相互作用長変化法によるフォトリフラクティブ二光波混合結合係数の測定 Measurement of Photorefractive Two-Wave Mixing Coupling Coefficient Using Varying Interaction Length Method

# 岡 村 秀 樹\*・志 村 努\*・伊 藤 雅 英\*・黒 田 和 男\*・小 倉 磐 夫\*\* Hideki OKAMURA, Tsutomu SHIMURA, Masahide ITOH, Kazuo KURODA and Iwao OGURA

### 1.はじめに

フォトリフラクティブ効果は深い不純物準位をもつ電 気光学結晶に特有の現象で代表的な結晶としては BaTiO<sub>3</sub>やLiNbO<sub>3</sub>などの強誘電性結晶やBSOなどの常 誘電性結晶, GaAsなどの半導体がある.そのような結晶 に光を照射し干渉縞を作ると,その光強度の分布に応じ てキャリアが光励起され密度分布ができる.それが拡散 あるいはドリフトによって電荷分布となりそれによる電 界が電気光学効果によって屈折率分布を引き起こす.こ れらの結晶はリアルタイムホログラムの応用にとどまら ず二光波混合による光の増幅,四光波混合による位相共 役波発生などさまざまな利用法があり,光情報処理など で重要な役割を果たす可能性を期待されている.

二光波混合は最も基礎的な現象であり,その結合係数 の測定によってフォトリフラクティブ中心のキャリア密 度など結晶の評価に必要な基礎的なパラメーターを得る ことができる.二光波混合結合係数はFig. 1のように結 晶にシグナル波とポンプ波を入射し,ポンプ波を入射し たときとしなかったときのシグナル波の出力比を測るこ とによって測定できる.二光波混合は以下の結合波方程 式によって表わせる<sup>3</sup>.

$$\begin{cases} \frac{d}{dx}I_{1}(x) = \Gamma \frac{I_{1}(x)I_{2}(x)}{I_{1}(x) + I_{2}(x)} - \alpha I_{1}(x) \\ \frac{d}{dx}I_{2}(x) = -\Gamma \frac{I_{1}(x)I_{2}(x)}{I_{1}(x) + I_{2}(x)} - \alpha I_{2}(x) \end{cases}$$
(1)

ここで $I_1$ ,  $I_2$ はそれぞれシグナル波, ポンプ波の強度,  $\Gamma$ ,  $\alpha$ はそれぞれ結合係数と吸収係数である. これを解く と

$$I_1(x) = I_1(0) \frac{1+m}{m+e^{-r_x}} e^{-\alpha x}, \qquad (2)$$

が得られる.ここで入射強度比*m*=*I*<sub>1</sub>(0)/*I*<sub>2</sub>(0)とおいた.有効増幅率g<sub>b</sub>を,



生産研究

Fig.1 二光波混合の配置図

$$g_0 = \frac{I_1(L)_{\text{with pump beam}}}{I_1(L)_{\text{without pump beam}}}, \quad (3)$$

と定義し、これを測定する.Lは結晶の長さである.する と結合係数 $\Gamma$ は、

$$\Gamma = \frac{1}{L} \ln \frac{g_0}{1 - m - mg_0},$$
 (4)

によって求めることができる。今までの測定はこの方法 で行われている<sup>30</sup>ので本論文ではこの方法を従来法と呼 ぶことにする。しかし従来法には次のような問題がある。 [1]ビームの幅が有限であること,

[2]ビームファニング (beam fanning)<sup>3)</sup>によるロス,

[3]ビームが結晶内部で反射を繰り返して複数の相互作 用が起きること,

などである。われわれは再現性の良い安定した測定ので きる方法を開発し、その信頼性を検討した。実験は代表 的なフォトリフラクティブ結晶であるBaTiO₃について 行った。

### 2.方 法

[1]の問題は次のような事情によるものである.通常 の二光波混合の理論(式(1))は2光波が無限に広がっ た平面波であると仮定している。しかし実際にはこのよ うな状況で測定を行っているわけではない.シグナル波 の出力光強度から結合係数を求める際,相互作用長が正

<sup>\*</sup>東京大学生産技術研究所 第1部

<sup>\*\*</sup>千葉大学工学部

確にわかっている必要があるため通常はシグナル光が結 晶の端から端までポンプ光によって完全に覆われるよう な配置をとる.このような状況ではポンプ光の一部しか シグナル波と重なっておらず,相互作用したポンプ波は シグナル波の幅が有限であるためにそのまま通り抜けて いってしまう.シグナル波は,まだ相互作用による減衰 (depletion)を受けていないポンプ波と相互作用するた め、同じシグナル波とポンプ波が最初から最後まで相互 作用するとしている通常の二光波混合理論の前提条件を 満足しない.この問題を検討するためにシグナル波が無 限に細い極限を考えてみることにする.この場合、シグ ナル波は常に,吸収以外の減衰を受けていない新しいポ ンプ波と相互作用するため、(1)式においてポンプ波L を $I_{L}(x) = I_{2}(0) e^{-\alpha}$ とおいてかまわない.すなわちシグ ナル波Jの強度は次の式によって表すことができる;

$$\frac{dI_1(x)}{dx} = \Gamma' \frac{I_1(x) I_2(0) e^{-\alpha x}}{I_1(x) + I_2(0) e^{-\alpha x}} - \alpha I_1(x).$$
(5)

これを解くと,

$$(\Gamma - \alpha)x = \frac{I_1(x)}{I_2(0)}e^{-\alpha x} - \frac{I_1(0)}{I_2(0)} + \ln \frac{I_1(x)}{I_1(0)}, \qquad (6)$$

という関係が得られる。 mとgoで表せば,

$$\Gamma L = lng_0 + (g_0 - 1)m,$$
 (7)

となる.通常の無限大幅の平面波同士の理論式(4)を $m \ll 1$ の条件で展開すると,

$$\Gamma L = lng_0 + (g_0 - 1)m + \frac{1}{2}(g_0 - 1)^2m^2, \qquad (8)$$

となる. この式を(7)式と比べてみるとmの1次までは 同じであることがわかる. したがってビームの幅の影響 の出てこないための条件は2次以降の項が無視できるこ と,つまり,

 $(g_0 - 1) m \ll 1$ , (9)

であることがわかった.長さ5mmのBaTiO<sub>3</sub>の場合で電 気光学係数 $r_{33}$ を用いた場合 $g_0$ は100程度であるから加は 0.001程度より小さくなくてはならない.測定精度を考え るとこれ以上小さくすることは難しく,Lを短くするな どして $g_0$ を小さくすることが望まれる. $r_{13}$ では $g_0$ は10程 度であるから問題はない.

次に、ビームファニングが起きると、ポンプ波の光強 度が減衰するのみならず、入射波の波数ベクトルが分布 をもってしまうため、二光波混合理論(1)式が適用でき なくなってしまう。したがって従来法による二光波混合 結合係数 $\Gamma$ の測定は不可能となる。BaTiO<sub>3</sub>に関して今 までに報告されている測定はゲインの小さい状態にする ために常光線で入射して最も小さい電気光学係数 $r_3$ を 使う配置にしビームファニングが無視できるようにして 測定している.

最後に内部反射の問題について検討する.BaTiO<sub>3</sub>の 屈折率は2.4程度であるため結晶表面での反射率は17% 程度である.ポンプ波はシグナル波に比べ100~10000倍 強いので,2~3回反射した後でもシグナル波の強度に 対して無視することができない.反射波がシグナル光に 重なる部分を最小にとどめるためには,ポンプ波の幅を 開口によって制限してシグナル波を覆うのに必要な部分 以外の光が入射しないようにすればよい.しかし結晶が 厚い場合には完全になくすのは難しい.さらに通常,相 互作用長を正確につかむために相互作用領域は結晶の端 から端までとするがこの場合にはポンプ波の反射波の一 部はシグナル波に必ず重なってしまう.

[2],[3]の問題を解決するために我々は新たに相互 作用長変化法という方法を考案した。これはポンプ波が 結晶に入射する直前にマイクロメーターで横方向に動か せるナイフエッジをおいて,相互作用長を変えながら二 光波混合増幅率goを測定していきその変化率から二光波 混合結合係数Γを求める方法である。

この方法では相互作用長の絶対値を必要としないので ポンプ波を細くして測定でき,容易に反射波が重ならな いようにできる.またビームファニングの影響も大きく 軽減される.ビームファニングはビーム幅が大きいほど, また結晶の中を進むほど顕著になる.相互作用長変化法 を使えばポンプ波の幅を回折限界まで細くすることがで きるのでビームファニングを小さくすることができる. それに加えて相互作用領域を結晶の前面,すなわちビー ム入射直後にすればビームファニングはまだほとんど起 きていないと考えることができるのでビームファニング の影響はさらに小さくなり実質的に無視できるようにな る.また,相互作用長を短くすることによって有効増幅 率60を任意に小さくして測定できるため条件(9)を満た すことが容易になり,ゲインがどんなに大きくてもビー ムの幅による影響がない状態で測定できる.

## 3.実 験

実験配置図をFig. 2に示す.アルゴンレーザー(波長 488nm,出力300mW)からのビームを一様な光強度を得 るためにビームエクスパンダーによって2倍に拡大した 後,ビームスプリッター(B.S.)で2つに分けポンプ波と シグナル波とする.偏光方向は紙面と垂直方向(常光線) であり,BaTiO<sub>3</sub>の $r_{13}$ を使ってゲインの小さい状態で測 定する.シグナル波の方はポンプ波に比べて1/100から1/ 1000位の光強度になるように設定してあり0.4mmのピ ンホールによって中心部分だけを切り出されて結晶に入

25





Fig. 2 二光波混合結合係数の測定系

射する.ポンプ波の方も1~3mmの開口を通して不要 な部分をカットした後,マイクロメーターによって横方 向に動かせるナイフエッジによって外側をカットされ, 結晶に入射する.結晶はc軸が2光線の二等分線に垂直 で,シグナル光が増幅されるような方向に置いてある. この配置で常光線を入射すると,有効電気光学定数は電 気光学定数7<sub>13</sub>と一致する.

サンプルは大きさは5×5×7 mm, *c*軸は7 mmの辺 に平行である。測定時の気温は20°Cで,結晶前面でのポ ンプ波とシグナル波のそれぞれの強度は1 W/cm<sup>2</sup>, 40mW/cm<sup>2</sup>程度である。

測定の手順は以下のとおりである。マイクロメーター を動かしてポンプ光がわずかに入射するような状態にし、 2本の光束が結晶の入口付近で交差するようにセットす る。結晶前面を上下方向に傾けておくと結晶内での光束 の反射波が重なるのを防ぐのに効果がある。そこから 0.01~0.1mmの刻み幅でマイクロメーターを動かして ポンプ光の幅を太くしていきながらそのつど、出力を測 定する。出力が安定するように10分程度置いてから測定 を行った。出力が揺らぐ場合はピーク値を採用し、シグ ナル光を入射せずに測ったバックグラウンド光強度を差 し引いた. (4)式あるいは(7)式を用いて $\Gamma x$ の値を求 め、対応する相互作用長xに対してプロットするとxが小 さいときは直線になる.この傾きが結合係数Γの値その ものを与える。なお傾きをとるときにどの範囲を選ぶか によって誤差が生じるが実測の結果,この誤差は5%程 度であることがわかった.

### 4.結果

測定結果をFig. 3に示す.入射角(Fig. 2におけるθ) にたいして二光波混合結合係数*Γ*の測定値をプロットした.四角い点が相互作用長変化法による測定値,黒い三 角が従来法による測定値である.従来法で測定した値は 相互作用長変化法で測定した値より小さくなっている.

#### 5.考

相互作用長変化法で測定したデータをもとに最小自乗

察



Fig. 3 測定結果. 横軸:入射角,縦軸:二光波混合結合係 数. 四角い点は相互作用長変化法による測定値. 三角 は従来法による測定値.

法でフィッティングして得たパラメーターをもとにした 理論曲線を"Fig. 4に示す.この結果より有効トラップ密 度5.6×10<sup>16</sup>cm<sup>-3</sup>が得られた.

r<sub>13</sub>で測定した場合にはビームファニングの影響はほ とんどなく,問題なのはポンプ波の反射波による影響だ けである.それならばその影響を補正することはできな いだろうか?

そこでポンプ波の反射波を考慮した二光波混合を考え る.ポンプ波とその反射波は互いに逆向きに進行するの でその結果生じる屈折率格子のピッチは波長の半分とな る.このように小さい屈折率格子間隔ではこの結晶の場 合,二光波混合によるエネルギーの移動はほとんど起き ないとみなしてよいから反射波とシグナル波の結合は無 視できる.よってシグナル波の光強度を表す式は、

$$\frac{d}{dx}I_1 = \Gamma \frac{I_1 I_2}{I_1 + I_2 + I_3} - \alpha I_1, \tag{10}$$





173



Fig. 5 結晶内の反射を考慮した二光波混合の配置図

となる.ただし $I_{0}$ はポンプ波の反射波の強度である(Fig. 5参照).シグナル波が結晶中のどの部分でもポンプ波に 比べて弱いと仮定して,ポンプ波の相互作用による減衰 (depletion)を考えないことにする.すると $I_{2}$ ,  $I_{3}$ は次の ようにおくことができる;

$$I_2(x) = I_{20}e^{-\alpha x}, \tag{11}$$

$$I_3(x) = I_{20} R e^{-2\alpha L + \alpha x}.$$
 (12)

ここでRは結晶後面 (x = L) におけるエネルギー反射率 である.ここで $I_1(x) \ll I_2(x)$ の場合を考えてみると(10) 式の分母の $I_1$ が無視できて解析的に積分でき,

$$I_1(L) = I_1(0) e^{(\Gamma - \alpha)L} \left( \frac{1 + Re^{-2\alpha L}}{1 + R} \right)^{\frac{\Gamma}{2\alpha}}, \quad (13)$$

となる.これは線形な増幅 $I_1(0)e^{\Gamma L}$ に補正係数がかかった形になっている.吸収 $\alpha L$ が0の極限を考えてみると、

$$\lim_{\alpha \to 0} I_{1}(L) = I_{1}(0) e^{\Gamma L} e^{-\frac{RL\Gamma}{1+R}} = I_{1}(0) e^{\frac{\Gamma L}{1+R}}, \qquad (14)$$

となって実質的に $\Gamma$ が1/(1+R)に低下した形となって いる.一方,ポンプ波、シグナル波間の二光波混合のも ととなる干渉縞のモジュレーションはポンプ波の反射波 が重なるために1/(1+R)に低下しているはずであり、こ れは $\Gamma$ の低下と同じ率である.したがって増幅率の低下 はもとの干渉縞のモジュレーションの低下を反映してい るものといえる。

(10)式を計算機で数値的に解いて補正をした結果を Fig. 4のなかで白抜きの三角で示す.この結果は相互作 用長変化法での測定値とほぼ一致する.したがってビー ムファニングが無視でき、互いに逆向きに進む2光束の 相互作用が無視できるような条件の下では従来法による 測定値に補正をすることによって相互作用長変化法と同 じ結果を簡便に得ることができる.

従来法の問題点を指摘した.ビームの幅による増幅率 の変化を定量的に評価した.また,ビームファニングの 影響を受けにくく,実験条件も緩くすむ相互作用長変化 法を考案し,実際に n<sub>3</sub>を用いるような配置において BaTiO<sub>3</sub>の二光波混合結合係数を測定した.この結果従 来法で得られた結果よりも実際は入射角の大きい所に ゲインのピークがあることがわかった.またビームファ ニングが無視でき、互いに逆方向に進むビームの相互作 用が無視できる場合には反射波の影響を計算で差し引く ことが可能であることを示した.

BaTiO<sub>3</sub>の場合は従来法による測定値から簡単な補正 で相互作用長変化法による測定値に近い値を得ることが できるが,相互作用長変化法はすべてのフォトリフラク ティブ結晶の測定に応用可能でゲインが大きい場合や互 いに逆向きに進むビームの相互作用が無視できないとき にも適用できるためそのような補正ができない場合に有 用であろう. (1991年5月8日受理)

### 参考文献

- 1) Pochi Yeh, IEEE J. Quantum Electron. 25. 484 (1989)
- M.B. Klein and G.C. Valley, J. Appl. Phys. 57. 4901 (1985)
- 3) J. Feinberg, J. Opt. Soc. Am. 72. 46 (1982).
- 4) N.V. Kukhtarev, Sov. Tech. Phys. Lett. 2, 438 (1976)