

フォトリフラクティブ結晶における光カオス

Peter DAVIS

この小論では光励起の空間電化分布の変化を介して屈折率が変化するフォトリフラクティブ効果を取りあげる。光励起によって屈折率が変化する現象は光信号処理と光制御にとって重要な効果である。特に、フォトリフラクティブ効果は屈折率の変化が大きく、記憶効果もあり、光波間のエネルギー交換も可能であるため、空間パターンの増幅、記憶などへの応用が注目されている^{1,2)}。また、光ビームを結晶に入射するだけで、そのビームの位相共役波が発生されるような自己励起位相共役現象 (self pumped phase conjugation: SPPC) も注目されている。SPPC は一種の空間的な自己組織化現象である。機能をもつ空間構造の自然発生の理解とその工学応用の立場から非常に興味深い現象である。しかし、その空間的な構造とその発生機構はまだよく理解されていない。自由度が多く、非線形性が強く、ダイナミクスが複雑であるため、モデル化や解析は容易ではない。最近では空間2次元の偏微分運動方程式に基づいたモデルを使って、空間ダイナミクスを調べる研究が手がけられている。立命館大学の池田研介氏と筆者はフォトリフラクティブ系をモデルするための離散格子モデルを提案し、計算機実験を行っている。機能をもつ空間構造の自己組織化過程の理解と、その原理を応用した新しい機能システムの設計に役立つことを期待している。この小論の目的は、複雑なフォトリフラクティブダイナミクスに関する研究の背景と動向を簡単に紹介することである。

1. 単結晶の中のビームダイナミクス

フォトリフラクティブ効果は30年も前に^{4,5)}、電気光学結晶を通過したレーザービームの波面が乱れる異常光散乱として観測された。1982年頃にFeinberg⁶⁾が単結晶でのSPPCを発見した。図1は、SPPCが発生されているときのひとつの例である。結晶内部で発生している光のビームパターンの様子がみられる。その内部ビームパターンが複雑にゆらぐ場合が多い。図2では、SPPCを計算機でシミュレートした例が示されている。どちらの例でも、内部ビームパターンが複雑にゆらいでいる。

Feinbergの発見以来、SPPCは多くの人に観測されてきた。SPPCの発生に伴う複雑なダイナミクスは多くの研究者によって観測されてきたに違いない。出力ビームの振動を低次元のカオスとしてとらえようとする試みとして相関次元、Renyi エントロピーやリャプノフ数を測った例がある⁹⁾。しかし、SPPCに関する論文が多い割には、内部ビームパターンとそのダイナミクスに関する論文は少ない。1985年にGünterら¹⁰⁾は内部反射の条件を変化させた実験を行い、SPPCの発生に伴った複数の「空間チャンネル」の間の自発的な飛び移りの観測を報告している。そして、1988年にNowakら¹¹⁾は多数の内部ビームパターン現象について、説明ができないまままで報告し、大胆な「そのまま」の記述を試みた。その趣旨についてはこう述べている。

“While familiarizing ourselves with the fascinating optical properties of barium titanate, we stumbled across a large variety of heretofore unreported effects. We are presenting them here without full theoretical explanation because of their unusual com-

ATR 環境適応通信研究所 (〒619-02 京都府相楽郡精華町光台 2-2)

E-mail: davis@acr.atr.co.jp



図1 フォトリフラクティブ単結晶における自己励起位相共役のビームパターン. 右側から入射された光ビームによって励起されるビームパターンが複雑なダイナミクスを示す.

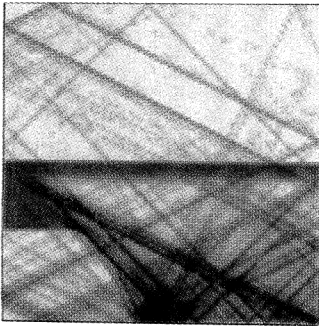


図2 自己励起位相共役の計算機シミュレーション. 式(12)の「光線-格子(Ray-Lattice)モデル」に光の散乱方位の数を $N=16$ にした例. 入力ビームは左側から入射されている.

plexity.”¹³⁾

さまざまな形の内部ビームパターンが観測されている。例えば、角反射、リング、八型などの内部ビームパターンが観測された。そして、異なったパターンの中の遍歴も観測されている。出力のSPPCビームが安定しているように見えても、内部パターンに関しては非常に多様性があることと、実験的に再現しにくいものが多いことが報告されている。また、内部パターンは、使った結晶、パラメーター、前のパターン等の実験条件に複雑に依存すると報告されている。

2. フォトリフラクティブ効果の基本モデル

この章ではフォトリフラクティブ効果の動的なモデルを簡単に紹介しよう。フォトリフラクティブ効果は光励起の空間電場によるものである。光によって励起された電荷キャリアの拡散で生じる空間電場が電気光学効果

を介して屈折率を変化させる。フォトリフラクティブ効果による屈折率の変化と光分布の関係は次のように表すことができる。

$$\Delta n \propto I^{-1} \frac{\partial I}{\partial x} \quad (1)$$

屈折率の変化 Δn は、光の強度 I に依存するが $\Delta n \propto I$ となる局所的なカー効果とは違う。屈折率の変化は光の強度そのものではなく、その空間変化率に依存する。この違いが、現象的にも機能的にも重要な特徴のひとつである。

2つの平面波が交差する基本的な場合を考えよう。 $A_1 e^{j(k_1 \cdot r - \omega t)}$ and $A_2 e^{j(k_2 \cdot r - \omega t)}$ で表されるような、2つの平面波が交差するとき生じる干渉縞は、フォトリフラクティブ媒体では周期的なパターンを励起する。

$$\Delta n(\mathbf{r}) \propto j |\hat{\mathbf{k}}_1 - \hat{\mathbf{k}}_2| \frac{2A_1 A_2^*}{I} e^{jk(\hat{\mathbf{k}}_1 - \hat{\mathbf{k}}_2) \cdot \mathbf{r}} \quad (2)$$

この光励起の周期パターンは光制御された回折格子として機能する。カー媒体と違って、フォトリフラクティブ媒体では、励起光の干渉縞と回折格子の間に空間的な位相のずれがある。これは光波の間のエネルギーの交換を可能にする重要な特徴である。

フォトリフラクティブ効果のもうひとつの重要な特徴は、記憶効果である。励起光が急になっても、屈折率のパターンが長時間そのまま残ることが可能である（これは電荷キャリアの再結合がキャリアの空間移動より早いのである）。もっとも簡単に、屈折率の時間的な変化は次のような緩和方程式に従うと考えることができる。

$$\frac{\partial \Delta n}{\partial t} \propto -(I + \beta) \Delta n + \frac{\partial I}{\partial x} \quad (3)$$

ここでは、 β は温度に依存した小さい定数である。複数の平面波が交差している場合に、屈折率の空間波数ベクトル \mathbf{K} が $\mathbf{K} = (\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_j)$ である成分の振幅 G_{ij} の時間的な変化は次のように書くことができる³⁾。

$$\frac{\partial G_{ij}}{\partial t} = -(I + \beta) G_{ij} + \sum_{m,n: \mathbf{k}_m - \mathbf{k}_n = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_j} \gamma_{mn} A_m A_n^* \quad (4)$$

ここでは A_i は波数ベクトル \mathbf{k}_i の光の振幅である。 γ は $\gamma_{ij} = -\gamma_{ji}$, $\gamma_{ij} = 0$ となる実数である。なお、光波が回折格子を誘起しながらもその回折格子から大きく散乱されることがある。これが自己回折といわれる現象で、複雑なフォトリフラクティブダイナミクスの始まりである。自己回折によって生じる光波の結合の基本的なモデルは、次のように表すことができる。

$$\hat{\mathbf{k}}_i \cdot \nabla A_i + \frac{1}{c} \frac{\partial A_i}{\partial t} = \sum_{j=1}^N G_{ij} A_j \quad (5)$$

式(4)と合わせてフォトリフラクティブダイナミクスの基本モデルとなる。図2の例はこの方程式に基づいたシミュレーションである。シミュレーションができていても現象は非常に複雑であり、どう理解したらよいか問題である。

まず、時間的に変動しない2つのビームが光屈折材料の中で交差する場合を考えよう。 $G_{ij}(\mathbf{r})$ が定常な値に落ちついた後、2つのビームの空間的な相互作用は、式(4)と(5)より、

$$\hat{\mathbf{k}}_1 \cdot \nabla A_1 = -\gamma \frac{I_2 A_1}{I_1 + I_2} \quad (6)$$

$$\hat{\mathbf{k}}_2 \cdot \nabla A_2 = \gamma \frac{I_1 A_2}{I_1 + I_2} \quad (7)$$

ここでは $\gamma_{21} = -\gamma_{12} = \gamma$ とした。2つのビームの間にエネルギーの交換が起きる。 γ の符号、そして、エネルギーの流れの方向は結晶方位に対する伝搬方向に依存する。なお、 I_1 が I_2 より十分大きいとき、 $I_1 \gg I_2$ 、ビーム2の振幅が次のようになる。

$$A_2(\mathbf{r} + \hat{\mathbf{k}}_2 l) = A_2(\mathbf{r}) e^{\gamma l} \quad (8)$$

ここでは l はビーム2の伝搬方向に沿っての伝搬距離である。ビーム1の光がビーム2へ回折するため、ビーム2がビーム2の伝搬方向に沿って増幅される。 I_1 が十分大きければ、増幅度は I_1 の空間分布によらず、ビーム2の断面パターンは一様に増幅される。このビーム増幅現象は光イメージの増幅や共振器の光ポンプに利用されている。増幅度は距離 l に対して、指数的に大きくなり、チタン酸バリウムのような結晶の場合、1 cm以下の結晶でも増幅度1000倍以上は珍しくない。

増幅度が大きいと、微小な散乱光も大きく増幅されてしまう。そのために、結晶に入射されたビームが大きく広がるような、ビームファニングと呼ばれている強い散乱現象が見られる。結晶の中のビームパターンの自己組織化はこのビームファニングで始まる。式(4)、(5)を使った1つのビームを結晶に入射した場合のシミュレーションを行えば、微小の乱成分を含んだガウシアンビームである場合に、ビームの主方向を斜めに走る微小の乱成分が複雑なエネルギーの取り合いをしながら増幅され、そして、そのために入射光ビームが次第に広がりながら複雑に乱れていく様子が見える。Zozulyaら¹⁹⁾がparaxial近似という近似の範囲でもっともらしい2次元ビームファニングをシミュレートしている。次のような空間2次元のモデルを使っている。

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \left(\frac{j}{2k} \right) \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) A_j = 2j\gamma_0 \nu A_j \quad (9)$$

$$I^{-1} \frac{\partial \nu}{\partial t} + \nu - g^2 \frac{\partial^2 \nu}{\partial x^2} = -g \frac{\partial \ln I}{\partial x} \quad (10)$$

ここでは g は定数である。空間座標 z と x はビームの主伝搬方向とその横1次元に対応している。Zozulyaは入力ビームの断面 $A_j(x, z=0)$ が微小の乱成分を含んだガウシアンビームである場合をシミュレートした。

なお、一度ビームファニングで広がった光が結晶面等から反射して再び入射ビームを交差すると、さらに複雑な現象が起こりうる。結晶面が共振器の役割をし、ファニングを種に発振することがある。このような現象は図1, 2にもみられる。特に図2には複数の閉じた発振経路がみられる。

単結晶の中のダイナミクスとは少し違うが、フォトリフラクティブ効果による自己励起発振に関連して、フォトリフラクティブ材料を共振器内に置いた実験が80年代からなされている³⁾。共振器モードの振幅が小さいうち、フォトリフラクティブ増幅によるゲインはモードの横断面のパターンに依存しないが、振幅が大きくなるとポンプビームのエネルギーの取り合いによるモード競合が起きる¹⁵⁾。そして、モードの数と振幅が大きいうち、モード競合が非常に複雑になりうる。フレネル数を小さくして共振器の潜在的横モードの数を徐々に増やした実験では¹⁶⁾、複数モードの間のカオスの遍歴、そして、発達した乱流のような、空間的にも、時間的にも複雑に変動する現象が観測されている。一方、最近、共振器の長さの微小な熱ゆらぎでモード飛び移りが生じやすいとの報告もあり¹⁷⁾、フォトリフラクティブ共振器におけるモードのゆらぎとその起源に関しては微妙な問題があることが示されている。

フォトリフラクティブ単結晶の中のダイナミクスの場合に話をもどそう。2つの波が反対に伝搬する場合に、その2つがもう1つの入力波に対して位相共役鏡を形成することがある。これは、四波混合の現象としてよく知られている⁷⁾。入力ビームの自己回折によって生じた波が入力ビームの位相共役鏡を形成する現象は、自己励起位相共役と呼ばれている。

単結晶の内部でSPPCが起きることは1982年頃にFeinberg⁹⁾によって報告された。Macdonald¹⁴⁾は結晶角からの内部反射でつながる、長さ l の2つの空間領域を考え、1次元の空間発展方程式を使ったモデルを提案し、SPPCの発生を γl の値がある閾値を超えるときに起きる相転移として説明した。Gauthierら⁹⁾はこのモデルにおいて異なった成長速度をもつ複数の回折格子成分がある場合にカオスが発生すると説明した(四波混合に

外部電場を加えて結合係数を複素数にするだけでカオスになるとの報告もある¹²⁾。しかし、このような空間1次元のモデルは、有限な広がりをもつ内部ビームパターン空間的な自己組織化を表すことができない。

3. 2次元ダイナミクスのモデル

Zozulya らは2次元 paraxial モデルで2次元内部ビームパターンのシミュレーションが可能であることを示した¹⁹⁾。式(8)，(9)にもうひとつ反対方向に伝搬するビームの振幅 $A_b(\mathbf{r})$ を表す次の式を加えた。

$$\left(-\frac{\partial}{\partial z} - \left(\frac{j}{2k}\right)\frac{\partial^2}{\partial x^2}\right)A_b = 2j\gamma_0\nu A_b. \quad (11)$$

数値シミュレーションにはビーム伝搬法(BPM)を使っている¹⁸⁾。

違う立場からのモデルとして、筆者らは「光線-格子(Ray-Lattice)モデル」と呼んでいるモデルを提案している²⁰⁾。これは式(4)と(5)で空間を離散化した、一種のセルラーオートマタである。空間を2次元離散格子で表し、格子点で光の回折が起き、格子点の間では光が自由伝搬する。格子点での N 方位に伝搬する光波の波数ベクトルを $\hat{k}_1, \hat{k}_2, \dots, \hat{k}_N$ 、そして振幅を A_1, A_2, \dots, A_N で表す。各格子点での散乱を行列 S_{ij} で表す。式(5)より、自由伝搬と回折を含めた光のダイナミクスは次の計算アルゴリズムで表現できる。

$$A_i(x+p_i, z+q_i) \leftarrow \sum_{j=1}^N S_{ij}(x, z) A_j(x, z) \quad (12)$$

ここでは、 $p_i = kc\delta t(\hat{k}_i \cdot \hat{e}_x)$ 、そして $q_i = kc\delta t(\hat{k}_i \cdot \hat{e}_z)$ 。散乱行列 S は式(4)の G_{ij} に依存する。もっとも簡単な近似では、

$$S = R(1 + c\delta t G) \quad (13)$$

ここでは $R(\)$ はエネルギー保存のための行列正規化操作である。

方位の数 N が16である場合のシミュレーション結果の例を図2に示した。方位の数 N を4に限定した場合

の例を図3に示す。図4に結晶の角近辺の格子と光の4方位を示す。式(4)の結合係数 γ_{mn} は $\gamma_{41} = -\gamma_{41} = \gamma_{32} = -\gamma_{23} = \gamma$ と置いて、それ以外の γ_{mn} が0であると考え。式(4)に従う係数 G_{ij} は式(13)を通じて式(12)の散乱係数を定めるが、そこで各格子点に一定の大きさ ϵ の微小な散乱が常にあると考える。この微小な散乱の種があるため、入力光は方位1のみの光ビームであっても、ファニングが発生する。 γ が小さい場合には入射されたビームが弱いファニング現象を示すだけでほとんどまっすぐ結晶を通過するが、 γ を増やすと結晶の中でループが形成され、入射された光がループを介して入力ビームと逆の方向に結晶を出る。SPPCに伴う内部パターンの空間的な自己組織化現象が、この方位の少ない、簡単なモデルでも見えることが興味深い。このモデルではループ構造は微小な種によって支えられている。例えば、図3では種の振幅が $\epsilon = 0.01$ で非常に小さいのである。しかし、この種の振幅をゼロにすれば、ループは消えていく。実際の実験では難しいが、シミュレーションではいろいろ種を変えてみて、種の空間的な構造と自己組織化された内部ビームパターンとの関係を調べてみた。例えば、図3(a)は種が空間一様なものであるが、図3(b)は種が空間的にゆらいでいるものである。この場合には多重なループ構造がみられるが、種の空間構造そのものではない。この方位の少ない簡単なモデルでも、種とビームパターンの関係は複雑であることも、注目すべき点である。

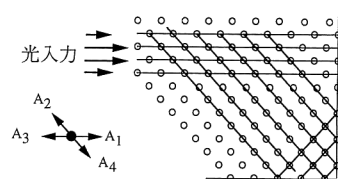


図4 $N=4$ 方位の光線-格子(Ray-Lattice)。

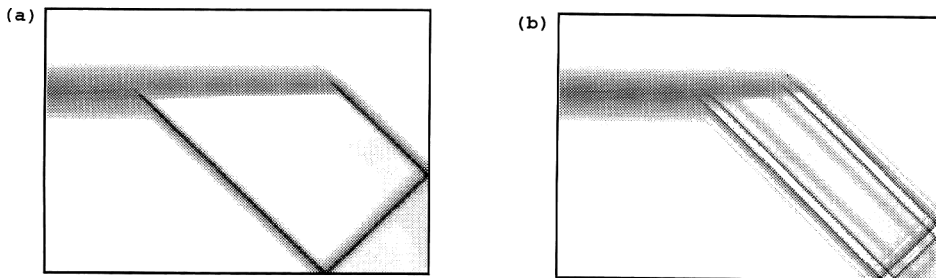


図3 自己励起位相共役の $N=4$ 方位シミュレーション。(a) 空間的に一様な種から自己組織化されたループパターン。(b) 種が空間的に変化する場合のループパターンの例。

このモデルでは方位の数 N が多くなると複数の空間チャンネルの間の競合が目立つ。図 2 のように方位が多くなると、ループ作りが可能である方位が増え、複数の違った方位のループの間の競合が起きる。シミュレーションでは複数の異なった形や位置のループが同時に形成され、励起光の取り合いで一度形成されたループが一時的に消えたりするような間欠的な現象が見られる。Nowak ら¹³⁾の報告にあったように、実際の実験でもこのような現象がたびたびみられるが、実際の実験とシミュレーションの関係について、例えばパラメータ空間構造等の詳しい比較がまだできていない状況である。

フォトリフラクティブ効果を示す単結晶の中で、ビームファニングや自己励起発振や自己励起位相共役が多くの研究者によって観測されてきた。しかし、内部のビームパターンのダイナミクスの性質、機構や可能性についてはまだよく理解されていないことが多い。特に、自己励起位相共役が発生するときに形成される結晶内の空間チャンネルが一種の「光回路」の自己組織化であると考えると、非常に面白い現象である。また、複雑系での機能をもつ空間構造の自己組織化というもっと一般的な意味でも面白いのである。ここでは複雑なフォトリフラクティブダイナミクスの計算機でシミュレーションに適している 2 つのモデルを紹介した。空間ゆらぎを種とする多数の経路の間の競合と協調の結果、マクロな経路ができあがる現象などがこのようなモデルでよくみえることがわかってきた。今後もこのようなモデルを使った計算機実験でフォトリフラクティブ現象の理解とその新しい可能性についてさらに調べていくことが重要である。

文 献

- 1) 富田康生：“フォトリフラクティブ効果とその非線形光学への応用”，応用物理，**59** (1990) 1154-1174.
- 2) 北山研一：“フォトリフラクティブ効果の光情報処理への応用”，応用物理，**61** (1992) 14-21.
- 3) P. Yeh: *Introduction to Photorefractive Nonlinear Optics* (Wiley, New York, 1993); 富田康生, 北山研一(訳) フォトリフラクティブ非線形光学 (丸善, 1995).
- 4) A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein and K. Nassau: “Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO₃ and LiTaO₃,” Appl. Phys. Lett., **9** (1966) 72-74.
- 5) A. M. Glass: “The photorefractive effect,” Opt. Eng., **17**

- (1978) 470-482.
- 6) M. Cronin-Golomb, B. Fischer, J. O. White and A. Yariv: “Passive (self-pumped) phase conjugate mirror: Theoretical and experimental investigation,” Appl. Phys. Lett., **40** (1982) 689-691.
- 7) M. Cronin-Golomb, B. Fischer, J. O. White and A. Yariv: “Theory and applications of four-wave mixing in photorefractive media,” IEEE J. Quantum Electron., **QE-20**, (1984) 12-30.
- 8) J. Feinberg: “Self-pumped continuous wave phase conjugator using internal reflection,” Opt. Lett., **7**(1982) 486-488.
- 9) D. J. Gauthier, P. Narum and R. W. Boyd: “Observation of deterministic chaos in a phase conjugate mirror,” Phys. Rev. Lett., **58** (1987) 1640-1643.
- 10) P. Günter, E. Voit, M. Z. Zha and J. Albers: “Self-oscillation and optical chaos in self-pumped photorefractive BaTiO₃,” Opt. Commun., **55** (1985) 210-214.
- 11) G. Valley and G. Dunning: “Observation of chaos in a phase-conjugate resonator,” Opt. Lett., **9** (1984) 420-423.
- 12) W. Krolkowski, M. R. Belic, M. Cronin-Golomb and A. Bledowski: “Chaos in four-wave mixing,” J. Opt. Soc. Am. B, **7** (1990) 1204-1209.
- 13) A. V. Nowak, T. R. Moore and R. A. Fischer: “Observations of internal beam production in barium titanate phase conjugators,” J. Opt. Soc. Am. B, **5** (1988) 1864-1878.
- 14) K. R. Macdonald and J. Feinberg: “Theory of self-pumped phase-conjugator with two-coupled interaction regions,” J. Opt. Soc. Am., **73** (1983) 548-553.
- 15) D. Anderson and M. C. Erié: “Resonator memories and optical novelty filters,” Opt. Eng., **26** (1987) 434-444.
- 16) F. T. Arrecchi, G. Giacomelli, P. L. Ramazza and S. Residori: “Experimental evidence for chaotic itinerancy and spatio-temporal chaos in optics,” Phys. Rev. Lett., **65** (1990) 2531-2534.
- 17) C. Denz, O. Knaup, G. Balzer and T. Tschudi: “Dynamics, symmetries and competition in hexagonal and square pattern formation in a photorefractive single feedback system,” *Technical Digest of Photorefractive Materials Effects and Devices, PR '97* (Chiba, 1997) 415-418.
- 18) M. Cronin-Golomb: “Whole beam propagation method for photorefractive optics,” Opt. Commun., **89** (1992) 276-282.
- 19) A. A. Zozulya, M. Saffman and D. Z. Anderson: “Propagation of light beams in photorefractive media: Fanning, self-bending and formation of self-pumped four-wave mixing phase conjugation geometries,” Phys. Rev. Lett., **73** (1994) 818-821.
- 20) P. Davis and K. S. Ikeda: “Ray-lattice model for complex beam formation in self-pumped phase conjugation,” *Technical Digest of Photorefractive Materials Effects and Devices, PR '97* (Chiba, 1997) 613-616.

(1997年8月28日受理)