

位相共役鏡における光の格子パターンの自己形成

本 多 徳 行

位相共役波は、ある基になる光（信号波）に対して波面が完全に一致しながら逆方向に進むという特異な性質をもつ¹⁾。主として1970年代の後半から非線形光学効果を用いて実時間で位相共役波を発生させる方法が研究されるようになり、現在では、物理的な基礎から情報処理や通信への応用に至るまで幅広い興味がもたれている。

位相共役波の重要な発生方法に四光波混合がある²⁾。これは、図1のように信号波と同時に互いに対向する励起波を非線形媒質に入射させて位相共役波を発生させるという方法である。位相共役波は信号波に対して逆向きに伝搬するので、非線形媒質を一種の反射鏡とみなすことができ、位相共役鏡と呼ばれる。しかし、通常の反射鏡と異なり、反射が媒質の表面で起こるわけではなく、非線形媒質中の光波の相互作用領域（通常の実験では100 μmから100 mm程度）の全体から位相共役波が発生される。したがって、相互作用領域の全体が一種の分布型の反射器として働く。さらに、四光波混合の位相共役鏡では、信号波以外に励起波からもエネルギーが供給するために光の増幅が可能となる。そのため、レーザーに類似した光の発振現象が起こり得る。すなわち、励起波のみを媒質へ入射させて信号波を外部から入射しない場合にも、互いに逆向きに進む（位相共役の関係にある）一対のコヒーレントな光波が非線形媒質の内部から放射される。四光波混合で発振が起こることは、位相共役波の発生過程の基礎に関わる重要な問題であるので、早くから理論的な検討がなされてきた³⁾。しかしその後の実験で、初期の理論で全く予想されなかつた形での発振が起こることがわかつてきた。すなわち、非線形媒質に入射した励起波の周囲に複数の発振波ビームが立ち現れ、それらが自発的に六角形などの規則的なパター

ンを形成するのである。

筆者らがパターン形成に用いた実験の配置を図2に示す。フォトリフラクティブ結晶に(a)対向する2本の励起波を入射させる、(b)1本の励起波を入射させて帰還鏡で折り返す、あるいは(c)帰還鏡の代わりに結晶の後ろ側の表面での反射により折り返すという、簡単なものである。いずれの場合も、励起波のビームの周囲に複数（六角形のパターンの場合には6本）の発振波のビームが、励起波と1°程度の角度をなして現れた。

パターンを近視野（すなわち、媒質の近傍での光ビームの断面）で観測すると、図3のように、2次元の格子パターンがみられる。これまでに、共鳴性の気体($\text{Na}^{4,5}$, Rb^6)、液晶^{7,8)}、フォトリフラクティブ結晶($\text{KNbO}_3^{9,10}$, $\text{BaTiO}_3^{11})$ 、バクテリオロドプシン¹²⁾などのさまざまな媒質を用いた位相共役の光学系において同様な格子パターンの自己形成が観測されている。

より最近の理論では、実験の結果を取り入れた解析がなされている。Firthらは、カーメ媒質において透過回折格子を仮定したモデルで数値計算により、六角パターンの自己形成などを示した¹³⁾。このモデルはわかりやすいのでよく用いられるが、これまでの多彩な実験結果は、光パターンの自己形成がカーメ媒質や透過型の回折格子に限らないより普遍的な現象であることを示している。特にフォトリフラクティブ結晶を用いた実験では、光ビーム間でのエネルギーの結合が重要である点がカーメ媒質と異なり、また反射回折格子が支配的である。したがってFirthのモデルを無理にあてはめる^{10,14)}のではなく、異なるモデル¹⁵⁻¹⁷⁾を用いることが望ましいと考える。

筆者らはフォトリフラクティブ結晶を用いた位相共役鏡において光の格子パターンの自己形成を初めて見いだしてから⁹⁾、パターン形成のメカニズムや運動に関して報告し

Stanford University, EE/ISL (Stanford, CA 94305-4035 U.S.A.)
E-mail: toku@kaos.stanford.edu

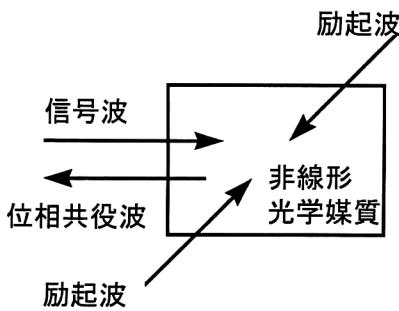


図1 四光波混合による位相共役波の発生。

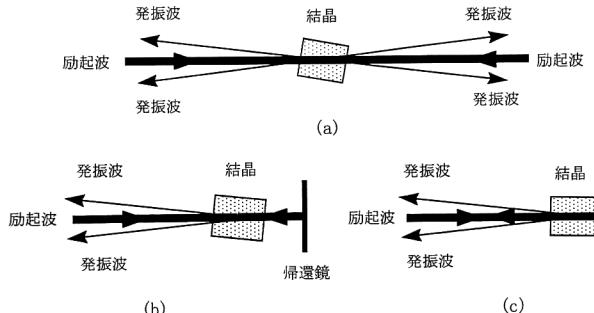


図2 光パターンの自己形成に用いられた配置。

てきた。本小論では、それらのささやかな研究について解説を行いたい。以下では、パターンの形や大きさがどのように決定されるかについて大まかな説明を試み、パターンのあたかも流体のような運動や、六角形や四角形などのパターンの間の遷移を紹介する。

なお、ここで論じる光のパターン形成をより広い視点でとらえると、非線形な系における空間構造の自己組織化の一例とみることができる¹⁸⁾。実際、六角形や四角形のパターンは流体の実験で観測されているパターンにきわめて類似している¹⁹⁾。また、互いに対向する励起波が非線形媒質に入射するという配置は、位相共役以外の分野でもレーザー共振器や飽和分光などに広く用いられていることを指摘しておきたい。

1. パターン形成のメカニズム

さて、なぜ六角形などのパターンが形成されるのであるか。この問い合わせるには、パターンの立ち上がりの観測が手がかりになる。フォトリラクティブ結晶を用いた実験では、光の強度を下げることで応答速度が下げるるので、ゆっくりとパターンの立ち上がりを観測できる。図4は、図2(c)の配置で、入射する励起波の強度を 26 mW/cm^2 (パワー $10 \mu\text{W}$) とした場合のパターンの立ち上がりを遠視野で観測した例である。結晶は KNbO_3 、波長は 532 nm であった。図中の秒数は、結晶への励起波の入射を開

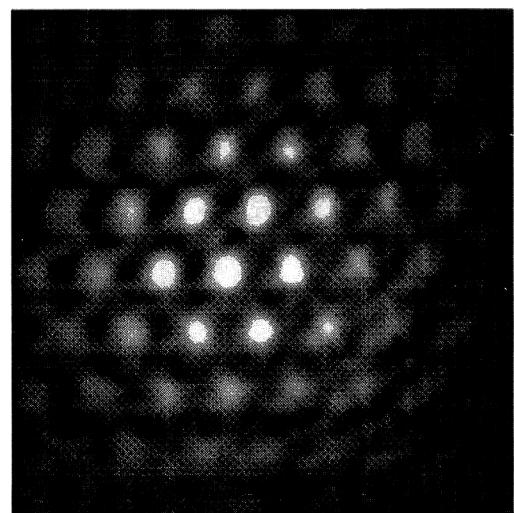


図3 六角形のパターンの近視野像。

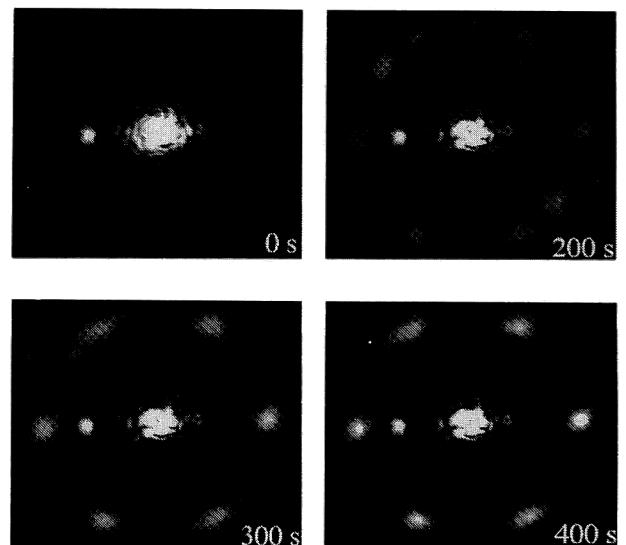


図4 遠視野で観測したパターンの立ち上がり。

始した時点からの時間である。この例にみられるように、パターンの立ち上がりの初期には同心円上の不規則な位置に対角線上に對をなす多数のスポットがまず現れる。そして、時間の経過とともにそれらが六角形のパターンに収束していく。このことは、六角形のパターンが2次の効果により形成されると考えるとうまく説明できる¹³⁾。まず、対角線上に對をなすスポットは、近視野で考えると縞状のパターンとなる。遠視野において特定の同心円上にスポットが現れることは、近視野において特定の空間周波数の波数ベクトル \mathbf{K} が選択されて成長することを意味する。次に、縞パターンがある程度成長すると、2次の効果によって波数ベクトル $\mathbf{K}_1, \mathbf{K}_2$ で表される2つの縞パターンから第3の縞パターン $\mathbf{K}_3 = \mathbf{K}_1 - \mathbf{K}_2$ が生成される。そのときに、 $\mathbf{K}_1, \mathbf{K}_2, \mathbf{K}_3$ の大きさがすべて等しく、上記の特定の空間

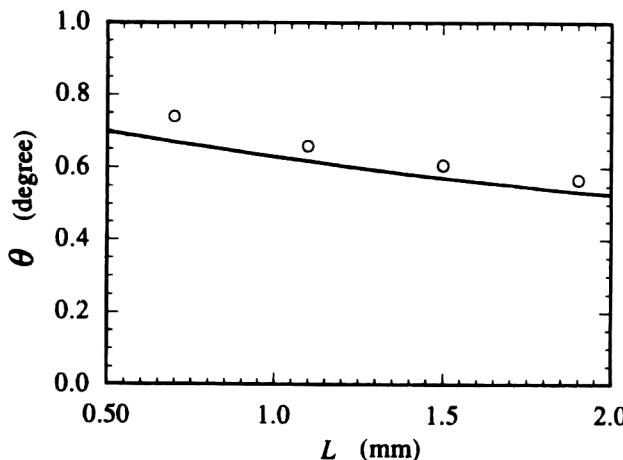


図5 発振波の励起波に対する角度 θ と帰還鏡と結晶との距離 L との関係。白丸が実験結果、実線が理論による計算値を表す。

周波数に一致するならば、それらの3つの縞パターンが互いに強め合いながら成長し、3つの縞パターンの重ね合わせによって図3のような六角形の格子パターンが形成されると考えられる。

どの空間周波数が選択されるかは、結合方程式を用いて発振の閾値を計算することで予測できる。例えば、図2(b)の配置に対する発振の閾は、フォトリフラクティブ結合係数 $\gamma = \gamma_R + i\gamma_I$ と回折の効果を表すパラメーター k_d との間の次のような分散関係で表される¹⁵⁾。

$$\begin{aligned} & \cos wl \cos k_d l + (\gamma_I/2w) \sin wl \cos k_d (l+2n_0 L) \\ & + [(\gamma_R+2k_d)/2w] \sin wl \sin k_d l \\ & - (\gamma_R/2w) \sin wl \sin k_d (l+2n_0 L) = 0 \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 l は結晶の光軸方向の長さ、 L は結晶と鏡の間隔、 n_0 は結晶の屈折率である。 k_d は、励起光の光軸を基準にしたときの発振光の横方向の空間周波数 k_{\perp} と真空中の光の波数 k_0 を用いて $k_d \equiv k_{\perp}^2/2k_0 n_0$ のように定義され、さらに $w \equiv (k_d^2 + \gamma_R k_d - \gamma_I^2/4)^{1/2}$ である。上式における k_d は、発振光が励起光に対して斜めに伝搬することによる単位長さあたりの位相の遅れに等しい。パターン形成においては、発振の閾が最小となる空間周波数が選択されやすいと考えられる。したがって、与えられた l および L に対して式(1)で表される分散曲線を求め、それが最小になる点からパターンの空間周波数（遠視野においては発振波の励起波に対する角度）が求められる。KNbO₃ 結晶を用いて行った実験とそのような理論計算との比較を図5に示す。この実験では、図1(b)の配置において結晶と帰還鏡との間の距離 L を変化させて、発振波と励起波の間の角度 θ の変化が測定された。理論と実験とがよく一致している。

以上のように、パターンの空間周波数、あるいは発振光

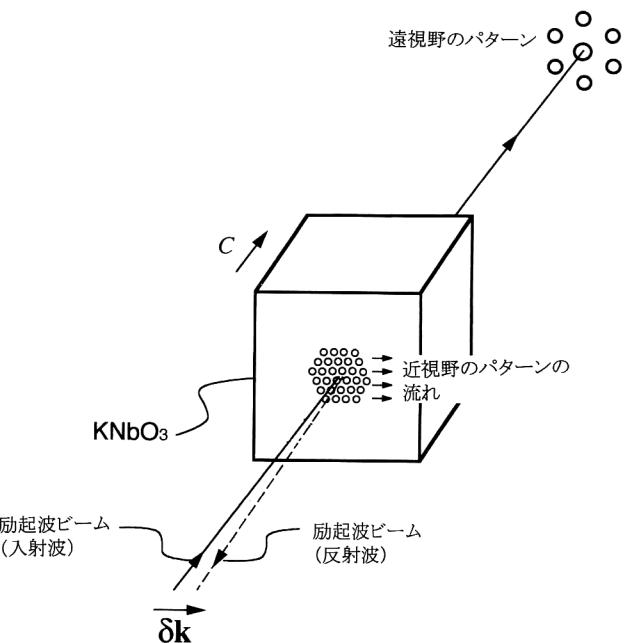


図6 パターンの流れの観測。

の広がり角は一般に媒質の長さや帰還鏡の位置に依存して変化する。このことは、通常のレーザーにおいて共振器の長さを変化させると発振光の回折による広がり角が変化することに類似している。なお、パターン形成が見いだされた当初、媒質内の位相整合によってパターンの空間周波数が決定されるかのような説明が用いられたが⁴⁾、それが誤りであることは明らかである。

2. パターンの流れと回転

図1のように、形成されたパターンの近視野は光の結晶とでも呼びたくなるような外観をもつ。しかしながら、真の結晶と異なり、これらの光パターンは熱的に非平衡である。このため、流体の実験¹⁸⁾のようにパターンのダイナミックな運動、あるいは時間変化がしばしば現れる。例えば、パターンのリズミカルな振動や、回転、パターンの生成・消滅の繰り返しなどである。フォトリフラクティブ結晶を用いた実験では媒質の屈折率変化の速度があまり大きくなないので、パターンのダイナミクスを容易に観測することができる。本節では、KNbO₃ 結晶を用いた実験において観測されたパターンの流れと回転について紹介する²⁰⁾。

実験の概略を図6に示す。基本的にこれは図2(c)の配置であるが、入射波の光軸と結晶の後部の表面からの反射波の光軸との間に $0.01 \sim 0.2^\circ$ の角度のずれが与えられている。このような配置においては、遠視野の六角形のパターンがわずかな角度で振動することがみられた。さらに、結晶への光の入射位置を適当に調節すると、時として遠視野

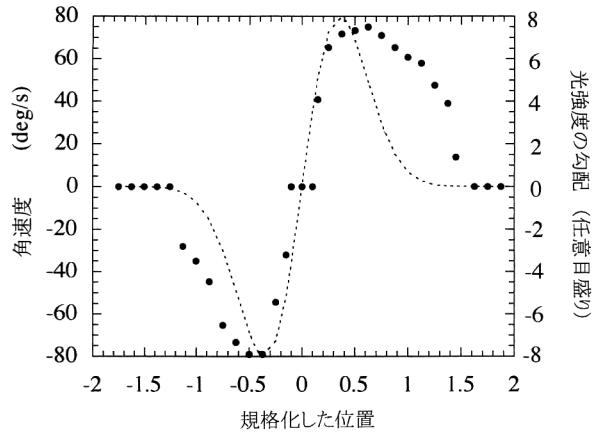


図7 遠視野の六角形パターンの角速度の実験結果（黒丸）と制御光ビームの規格化した位置の関係。点線は、形成されたパターンの中心部における制御光ビームの強度の勾配（点線）を表す。

パターンが回転を始めることが観測された。その遠視野のパターンの回転がどのような理由によるものかということが、しばらくの間、よく質問を受けながら答えられない興味深い問題であった。

あるとき、実験中に入射波と反射波の近視野を観察すると、図6に示すようなパターンの流れが起きていることがわかった。入射波の波数ベクトルを \mathbf{k}_1 、反射波の波数ベクトルを \mathbf{k}_2 として、両者の光軸の角度のずれを $\delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$ によって表そう。流れの方向は常に $\delta\mathbf{k}$ の方向に一致していた。角度のずれが小さくなるとパターンは停止し（つまり、閾が存在した）、また角度のずれが約 0.2° になると六角形が縞パターンに遷移したが、約 $0.01\sim0.2^\circ$ の範囲では $\delta\mathbf{k}$ の大きさに対して流れの速度がほぼ線形に増加した。これは、入射波のパターンに対して反射波のパターンの空間的な位相がずれるために、その位相のずれを系が自動的に補償するためであると考えられる。ところで、流体力学の教科書が教えるところによれば、流れの速度 v と直角に速度の勾配があると、流れに $(1/2)\nabla \times v$ の回転成分が生まれる²¹⁾。実験に用いた結晶は、フォトリフラクティブ効果の結合定数が結晶内の位置によって2倍程度異なる、非一様なフォトリフラクティブ媒質であった。したがって、遠視野の回転は、結晶の非一様性によって流れの速度に勾配が生じるためであると考えられた。そしてこの仮説によれば、何らかの形でフォトリフラクティブ効果のパラメーターを局所的に変化させて流れの速度に勾配を作ることにより、回転の方向や速度を制御できることが予想できた。

上記の着想を確かめるために、簡単な実験を行った。その実験では、図6の配置に1本の制御光ビームが加えられた。その制御光ビームは入射波と同じ波長であるが偏光方

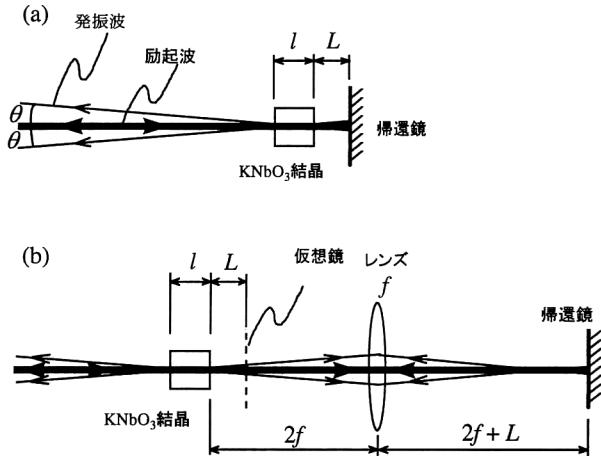


図8 帰還鏡を直接に結晶の後部に配置する光学系(a)とレンズによる結像を用いる光学系(b)の比較。光学系(b)では、帰還鏡を仮想的に結晶の内部に配置することができる。

向が直交しているため、パターンの形成に直接寄与せず、フォトリフラクティブ効果の大きさや応答速度を局所的に変化させることができた。予想されたように、制御光ビームを結晶内の相互作用領域に重なり合うように入射させてその位置をわずかに（励起波のビームの大きさ程度に）変化させることにより、パターンの回転の方向や速度を自由に変化させられることがわかった。図7に、パターンの回転の角速度（黒丸）を制御光ビームの位置の関数として測定した結果を示す。ここで横軸は、励起波のビームの直径で規格化した位置であり、原点が励起波ビームと制御ビームの位置が一致する状態に対応している。制御光ビームはガウシアンビームであったので、励起波ビームの位置における制御光ビームの強度の勾配が点線のようになる。制御光ビームの強度の勾配にほぼ対応する形でパターンの角速度が変化させられたことがわかる。このことは、制御光ビームの強度が高いところでパターンの流れの速度が大きくなることに対応しており、フォトリフラクティブ効果の応答速度が光の強度とともに大きくなることがそのひとつの原因であると考えられる。

3. 四角形、不等辺六角形

2次元の格子には六角形を含めて5種類のパターンが存在することが知られている²²⁾。例えば、正多角形で構成される格子パターンには六角形に加えて四角形のパターンがある。2節において2次の効果から六角形のパターンが形成されることを述べたが、その議論を延長すると、3次の効果から四角形のパターンが形成されることが予想される。また、流体の実験では、1995年に六角形から四角形のパターンへの遷移が報告されていた¹⁹⁾。光では、数値シミ

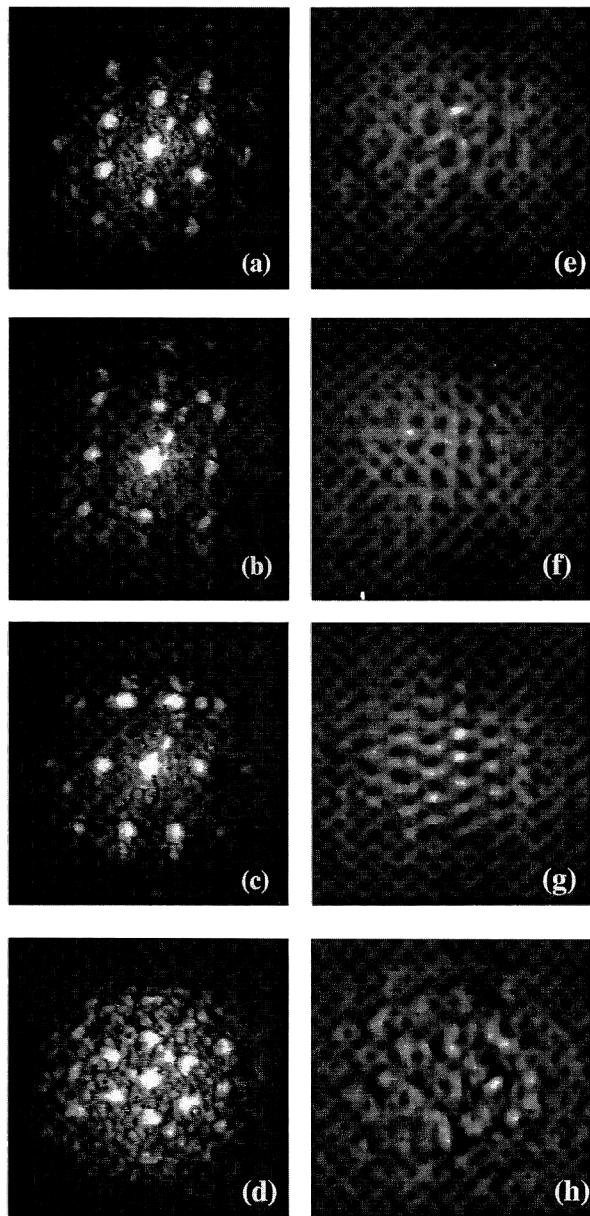


図9 パターンの遷移。

ュレーションで、図2(a)の配置での四角パターンの形成の可能性が示されていたが²³⁾、媒質について実現が困難な仮定が用いられており、実験の例がなかった。筆者らは、図2(b)の配置に簡単な工夫を加えることにより、四角形や不等辺六角形のパターンを光の実験で初めて観測した²⁴⁾。

実験は、図8(b)に示す光学系によって行われた。帰還鏡と結晶の間にレンズが用いられていることがわかる。帰還鏡のレンズによる像を仮想鏡と呼ぶことにしよう。仮想鏡と結晶との間の距離を L とすると、この系の境界条件は図8(a)の系、すなわち、結晶から L の距離の位置に帰還鏡を配置した場合のそれと等価になる。なぜならば、結晶と帰還鏡との間の光の伝搬に伴う回折の効果、すなわち励起波

と発振波との間の位相のずれが図8(a)と(b)で等しいからである。ここで興味深いのは、図8(b)の配置において L の値を負にできることである。特に筆者らは、仮想鏡が結晶の内部に配置される場合に興味をもってパターン形成の詳細を調べた。この場合がおもしろいのは、仮想鏡によって区切られた結晶の右側の部分と左側の部分とが、それぞれ異なる空間周波数あるいは位相のパターンを成長させようとして、競合や協調によって新しいパターンのダイナミクスが生まれるためである。図9に、観測されたパターンの近視野 (a~d) と遠視野 (e~h) の像を示す。図8の右側から左側へ結晶を横切って仮想鏡を動かしたときに、六角形のパターン (a, e) に始まって、四角形のパターン (b, f), 異なる2つのスケールをもつ六角形のパターン (c, g), そして再び六角形のパターン (d, h) へとパターンが遷移することが観測された。また、これらのパターンの遷移は帰還鏡の移動方向によらず、ほぼ一定の位置で再現性よく起こることが確認された。

光のパターン形成については、ようやく部分的でかつ大まかな理解が得られたところなので、研究の余地がまだかなり残されている。特にダイナミクスに関して未解明の問題が多い。それでも、実験における偶然をきっかけに始めた本研究を顧みると、多くの方に興味をもっていただき、協力していただくことで意外な発展が得られたと思う。その中で特に、論文の共著者である計量研究所の松本弘一氏、ダルムシュタット工科大学の Markus Sedlatschek 氏、Cornelia Denz 氏、Theo Tschudi 教授、アラバマ大学の Partha Banerjee 教授、そして、有益な議論をしていただいたウクライナ科学アカデミーの Serguei Odoulov 教授、オックスフォード大学の Laszlo Solymer 教授、東京大学の黒田和男教授に感謝申し上げる。最後に、本研究は筆者が工業技術院計量研究所に在籍中に行われた。多大なるご指導、ご支援をいただいた計量研究所の各位に御礼申し上げる。

文 献

- 1) R. A. Fisher, ed.: *Optical Phase Conjugation* (Academic Press, New York, 1983).
- 2) D. M. Pepper: "Nonlinear optical phase conjugation," *Laser Handbook*, eds. M. L. Stich and M. Bass (North-Holland Physics Publishing, Amsterdam, 1985) p. 333.
- 3) A. Yariv and D. M. Pepper: Opt. Lett., **1** (1977) 16.
- 4) G. Grynberg: Opt. Commun., **66** (1988) 321.
- 5) J. Pender and L. Hesselink: J. Opt. Soc. Am. B, **7** (1988) 363.
- 6) A. Petrossian, M. Pinard, A. Maître, J.-Y. Courtois and G. Grynberg: Europhys. Lett., **18** (1992) 689.

- 7) R. Macdonald and H. J. Eichler: Opt. Commun., **89** (1992) 289.
- 8) M. Tamburini, M. Bonavita, S. Wabnitz and E. Santamato: Opt. Lett., **18** (1993) 855.
- 9) T. Honda: Opt. Lett., **18** (1993) 598.
- 10) P. P. Banerjee, H. -L. Yu, D. A. Gregory, N. Kukhtarev and H. J. Caulfield: Opt. Lett., **20** (1995) 10.
- 11) T. Honda and H. Matsumoto: Opt. Lett., **20** (1995) 1755.
- 12) J. Glückstad and M. Saffman: Opt. Lett., **20** (1997) 293.
- 13) G. D'Alessandro and W. J. Firth: Phys. Rev. Lett., **66** (1991) 2597.
- 14) J. F. Scott and R. A. O'Sullivan: Nature, **382** (1996) 305.
- 15) T. Honda and P. P. Banerjee: Opt. Lett., **21** (1996) 779.
- 16) A. I. Chernykh, B. I. Sturman, M. Aguilar, F. Agullo-Lopez: J. Opt. Soc. Am. B, **14** (1997) 1754.
- 17) O. Sandfuchs, J. Leonardi, F. Kaiser and M. R. Belic: Opt. Lett., **22** (1997) 498.
- 18) 蔵本由紀: パターン形成 (朝倉書店, 1991).
- 19) K. Nitschke and A. Thess: Phys. Rev. E, **52** (1995) R5772.
- 20) T. Honda: Opt. Lett., **20** (1995) 851.
- 21) G. K. Batchelor: *An Introduction to Fluid Dynamics* (Cambridge U. Press, London, 1967) p. 81.
- 22) C. Kittel: *Introduction to Solid State Physics*, 7th ed. (Wiley, New York, 1996).
- 23) J. B. Geddes, R. A. Indik, J. V. Moloney and W. J. Firth: Phys. Rev. A, **50** (1994) 3471.
- 24) T. Honda, H. Matsumoto, M. Sedlatschek, C. Denz and T. Tschudi: Opt. Commun., **133** (1997) 293.

(1998年5月8日受理)