

有機色素含有薄膜光導波路における位相共役波の発生

その他（別言語等） のタイトル	Generation of a phase-conjugate wave in a saturable-dye-doped planar waveguide
著者	宮永 滋己, 山林 智明, 村山 勝宏, 藤原 裕文
雑誌名	室蘭工業大学研究報告. 理工編
巻	38
ページ	75-83
発行年	1988-11-10
URL	http://hdl.handle.net/10258/756

有機色素含有薄膜光導波路における位相共役波の発生

その他（別言語等） のタイトル	Generation of a phase-conjugate wave in a saturable-dye-doped planar waveguide
著者	宮永 滋己, 山林 智明, 村山 勝宏, 藤原 裕文
雑誌名	室蘭工業大学研究報告. 理工編
巻	38
ページ	75-83
発行年	1988-11-10
URL	http://hdl.handle.net/10258/756

有機色素含有薄膜光導波路における位相共役波の発生

宮 永 滋 己・山 林 智 明*・村 山 勝 宏**・藤 原 裕 文

Generation of a phase-conjugate wave in a saturable-dye-doped planar waveguide

SHIGEKI MIYANAGA, TOMOAKI YAMABAYASHI, KATSUHIRO MURAYAMA, HIROFUMI FUJIWARA

Abstract

A phase-conjugate wave (PCW) by degenerate four-wave mixing (DFWM) in a nonlinear-optical waveguide was observed with a Ar-ion laser. The planar waveguide consists of a transparent poly-vinyl alcohol (PVA) layer partly doped with erythrosin B. The DFWM excitation was performed as follows: two pump waves impinging in the interaction region of the waveguide from the outside and a probe wave was introduced into the guiding layer by a prism coupler. The PCW reflectivity of 6.3×10^{-5} outside the prism coupler was obtained at a pump intensity of 1.2 W/cm^2 in the PVA film having a thickness of about $80 \mu\text{m}$ and the product of a small-signal absorption coefficient and the film thickness of 0.97; the probe intensity was chosen to be 0.2 of the pump intensity. If the prism-outcoupling efficiency is assumed to be 100 percent, this corresponds to the PCW reflectivity of 4.2×10^{-4} inside the waveguide by taking into consideration the prism-coupling efficiency of 15 percent.

1. ま え が き

位相共役波は、入射した光の波面を光の進行方向に対して反転した波面をもつ波であり、実時間ホログラフィー、波面歪の補正、光画像処理、光フィルタリング、パルス波形整形、光コンピューティング、光双安定など多くの分野に応用できる可能性があり、近年盛んに研究されるようになってきた^{1),2)}。位相共役波の発生は、種々の非線形光学効果に基づいており、誘導ブリルアン散乱、誘導ラマン散乱、3光波混合、4光波混合（4光波の周波数が等しいとき、特に縮退4光波混合という）などを用いて行なわれている^{1),2)}。これらのうち、縮退4光波混合による方法³⁾は、広い視野にわたって位相整合条件が満たされるなど応用上非常に有利な特性をもっている。非線形媒質としては、種々の気体、液体、固体が用いられているが、これらのうち、エオシン Y、エリトロシン B などの有機色素を、ゼラチン、ポリメタクリル酸メチル (PMMA) などの高分子に分散させた薄膜試料（膜厚数 $10\mu\text{m}$ ）において、有機色素の飽和吸収にともなう非線形性を利用

* 日立北海セミコンダクター（前応用物性学専攻）

** 富士電機㈱（前応用物性学科）

した縮退4光波混合による位相共役波の研究が行なわれている⁴⁾⁻⁶⁾。エオシン Y, エリトロシン B などの色素は、比較的低い飽和強度 ($\sim 1 \text{ W/cm}^2$) をもつため、これらの研究では、連続発振 Ar イオンレーザーを用いて、比較的低い入射光強度で位相共役波が観測されているが、4光波の相互作用は薄膜試料の厚さ方向で行なわれているため、相互作用長は膜厚の程度 (数 $10 \mu\text{m}$) に制限されている。

光導波路は、導波層より屈折率の低い媒質で導波層を囲むことによって、全反射により光を導波層に閉じ込めて伝搬させるもので、その構造によって光ファイバーや薄膜光導波路などに分類される。一般に光導波路においては、1) 光閉じ込め効果により導波路内部で光強度が高くなる、2) モード分散を利用して位相整合がとれる、3) 光が導波層に沿って伝搬するため、相互作用を導波路に沿って行なうことにより相互作用長が大きくとれる、など非線形光学現象の観測に有利となるいくつかの特徴をもっている。光導波路構造を縮退4光波混合系に利用すると、上記の特徴をいかした高効率な位相共役波の発生を実現できる可能性がある。さらに、近年発展してきた光集積回路技術と結びつけることにより、光信号のみによる小型の光情報処理システムを構成できる可能性がある。

これまで、光ファイバー^{7),8)}や薄膜光導波路^{9),10)}を用いて縮退4光波混合による位相共役波の発生が報告されている。CS₂を導波層に満たした3m長の光ファイバーを用いた実験⁸⁾においては、連続発振 Ar イオンレーザーを用いて0.45%の発生効率を得られているが、CS₂で覆った薄膜ガラス導波路⁹⁾や Cd S_x Se_{1-x} をドープした薄膜ガラス導波路¹⁰⁾を用いた実験では、位相共役波を効率的に発生させるためには、 1 MW/cm^2 程度の光強度が得られる高出力のパルス発振レーザーが用いられていた。

本研究では、色素の飽和強度が低いこと、光導波路において相互作用長が大きくとれること、などに注目し、エリトロシン B をポリビニールアルコール (PVA) に分散させた薄膜光導波路において、 1 W/cm^2 程度の光強度が得られる連続発振 Ar イオンレーザーを用い、縮退4光波混合により位相共役波を発生させる実験を行なった。縮退4光波混合においては、2つの対向するポンプ光は導波路の外部から導波路に垂直に相互作用領域に入射させ、プローブ光はプリズムカップラーを用いて導波光として相互作用領域まで伝搬させた。

2. 色素含有薄膜光導波路の作成

本実験で用いた色素は、図-1のような分子構造をもつキサンテン系色素のエリトロシン B であり、可視光域で強い光吸収を起こす。縮退4光波混合における相互作用は、色素の飽和吸収に基づいている。4光波のうち入射光となるプローブ光およびプローブ光と逆方向に発生する位相共役波は導波路に沿って伝搬するため、相互作用領域に達するまでのプローブ光の伝搬および相互作用領域で発生した位相共役波の伝搬は吸収を受けないことが不可欠となる。このプローブ

光および位相共役波の吸収を避けるため、本実験では、色素を分散させた領域を透明な PVA 薄膜の一部に作成した。以下、薄膜試料の作成法について説明する。まず、透明な PVA 溶液を洗浄したガラス基板上に滴下し、薄く一様に伸ばしながら余分な溶液を流し落とす。この PVA 膜上に、エリトロシン B を分散させた PVA 溶液を少量滴下し約 40℃ で乾燥させる。色素を分散させた領域は拡散して広がり、乾燥後図-2 に示すような部分的にエリトロシン B を分散させた PVA 薄膜ができた。

作成した PVA 薄膜のエリトロシン B を分散させた領域における典型的な分光透過率特性を図-3 に示す。飽和吸収にともなう非線形性を利用する上で、飽和光強度を低くするという観点からは、吸収のピーク付近を用いる方が有利なので、本実験では、光源として連続発振 Ar イオンレーザーの波長 514.5nm の発振線を用いた。

本実験で使用した PVA 薄膜は、光導波路としては多モード光導波路である。光導波路においては、通常導波層 (PVA 薄膜) の厚さ、膜厚は、プリズムカップラー法¹¹⁾を用いて 1 μm 以下の精度で測定できるが、本実験で使用した薄膜では、膜厚が大き

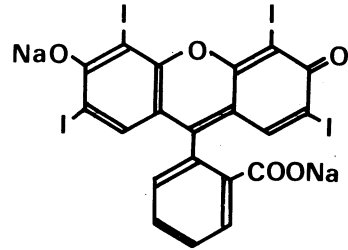


図-1 エリトロシン B の分子構造

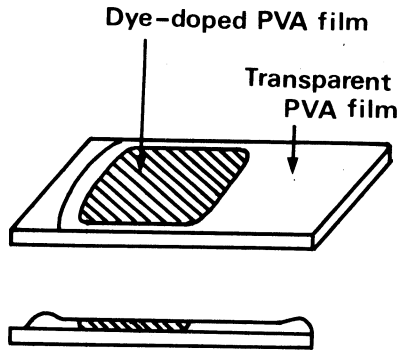


図-2 部分的に色素を分散させた PVA 薄膜

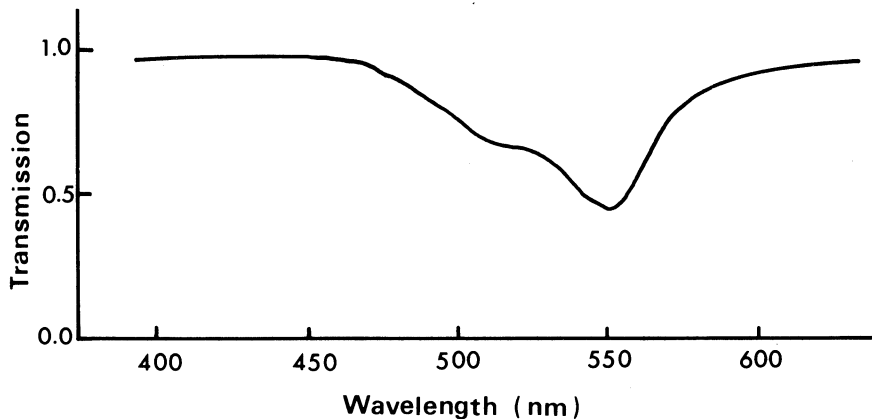


図-3 エリトロシン B を分散させた PVA 薄膜の典型的な分光透過率特性

すぎてこの方法は適用できなかった。マイクロメーターによる測定では、膜厚は約 $80\mu\text{m}$ であった。また、エリトロシン B を分散させた領域での、波長 514.5nm における吸収係数と膜厚の積は 0.97 であった。

3. 実験装置

光導波路を用いる縮退 4 光波混合の光学系を図-4(a), (b)に示す。

Ar イオンレーザーからの光ビームを、ビームスプリッター bs_1 によってポンプ光とプローブ光の 2 つのビームに分ける。ポンプ光ビームを、ビームスプリッター bs_2 によってさらに等しいパワーの 2 つのビームに分け、反射鏡 m によって互いに対向して伝搬する 2 つのポンプ光とする。一方、プローブ光ビームは、レンズ l で絞り、ビームスプリッター bs_3 、反射鏡 m を通して、プリズムカップラー C に入射させる。ポンプ光とプローブ光の相互作用領域では、図-4(b)に示すように、対向して伝搬する 2 つのポンプ光は PVA 薄膜光導波路の外部から薄膜にほぼ垂直に入射し、プローブ光はプリズムカップラー C によって導波路内に導波され、相互作用領域まで伝搬する。2 つのポンプ光とプローブ光の光路長は、3 つの波が相互作用領域で互いにコヒーレントに相互作用するように、Ar イオンレーザーのコヒーレンス長以内で一致するように調整す

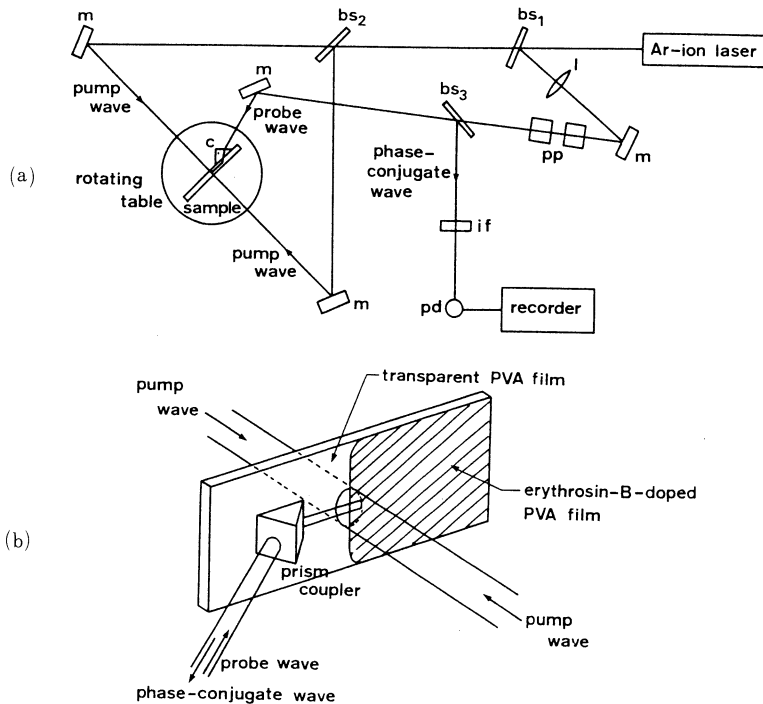


図-4 (a)光導波路を用いた縮退 4 光波混合の光学系と(b)相互作用系。 bs_1 ~ bs_3 はビームスプリッター、 m は反射鏡、 l はレンズ、 pp は偏光プリズム、 if は干渉フィルター、 pd は光検出器、 c はプリズムカップラーである。

る。縮退4光波混合によって発生した位相共役波は、プローブ光と反対方向に導波光として導波路内を伝搬し、プリズムカップラーCを通して出射する。さらに反射鏡m、ビームスプリッターbs₃で反射され、干渉フィルターifを通して光検出器pdで検出される。光検出器pdの出力をレコーダーで記録する。

偏光プリズムppは、プリズムカップラーCへのプローブ光の入射パワーを調節すると同時に、プローブ光の偏光方向をポンプ光と等しくするために用いる。すべての波は紙面に垂直な偏光をもつように調整されているので、プローブ光および位相共役波は、TEモードとして導波路内を伝搬する。PVA薄膜光導波路試料は、回転台に取り付けたX-Y微動台に装着され、回転台を回転させることによって、プリズムカップラーCへのプローブ光の入射角を導波路の導波モードの入射角に合うように調整する。

4. 位相共役波の発生

透明なPVA薄膜光導波路中を伝搬する導波光は、導波路表面の凹凸によって散乱され、その一部は導波路外部に放射され、一方、エリトロシンBを分散させた領域では、導波光によって励起されたエリトロシンBが発する蛍光の一部が導波路外部に放射される。したがって、部分的にエリトロシンBを分散させたPVA薄膜光導波路中を伝搬するプローブ光の様子は、これらの散乱光や蛍光によって目で観察することができ、導波路に沿ってビーム状に伝搬していく様子が確認できる。透明な領域を伝搬したプローブ光は、エリトロシンBを分散させた領域に到達すると、エリトロシンBがArイオンレーザー光の波長で強い吸収をもつため、1mm程度伝搬して目で見えなくなる程度に減衰した。ポンプ光ビームの直径は約6mmで、導波路を伝搬するプローブ光のビーム幅は約1mmであったので、ポンプ光は、図-4(b)のように、エリトロシンBを分散させた領域の境界付近の、プローブ光による蛍光を発している部分を照射するように調整した。したがって、相互作用はポンプ光の照射領域で行なわれる。プリズムカップラー用のプリズムは、頂角45°の2等辺3角柱プリズムを用いている。直角のコーナーを用いたプリズムカップラーの配置では、直角コーナーでのプローブ光の反射光や散乱光が位相共役波と同じ方向に戻り、強い背景雑音光となるため、位相共役波の発生は確認できなかったが、プリズムカップラーを図-4(b)のように45°の頂角を用いた配置にすることにより、背景雑音光をかなり減少させることができた。プリズムカップラーの入射結合効率は約15%であった。

プリズムカップラーから出射した位相共役波は、図-4(a)の光検出器pdの代りにアイピースを置くことにより、目ではっきり確認することができた。主な背景雑音光は、プリズムのコーナーで発生する弱い反射、散乱光と、プローブ光とポンプ光によって励起されたエリトロシンBの蛍光の一部が、導波モードとして伝搬してプリズムカップラーから出射する蛍光成分である。これらの背景雑音光は、プローブ光と位相共役波の伝搬経路に適当に開口を置いたり、波長

514.5nm の干渉フィルターを挿入することによって除去した。位相共役波には、ポンプ光とプローブ光の3つの波が同時に相互作用したときのみ速い応答時間（色素の場合はりん光寿命の程度）で発生する4光波成分と、ポンプ光の一方とプローブ光でできる干渉じまが何らかの原因で媒質中に回折格子として記録され、それによってもう一方のポンプ光がブラック回折されるために発生するホログラフィー成分がある⁵⁾。4光波成分の位相共役波は、3つの光のどれか1つでも遮断すると発生しなくなるが、ホログラフィー成分は、どれか1つを遮断しても、回折格子が記録されている間は発生する。本実験で観測された位相共役波は、ポンプ光、プローブ光のうちどれか1つを遮断するか、あるいは、試料を装着した回転台を回転させて、プローブ光の入射角を導波モードに対応する入射角からずらすことによって発生しなくなった。前者の場合には、ど

れか1つの光を遮断した後に弱いホログラフィー成分が観測されたが、後者の場合は、すべての位相共役波が発生しなくなった。これは、回転台を回転した場合には、試料に対するポンプ光の入射角が、記録されている回折格子のブラック条件からはずれるためであると考えられる。以上のことから、観測された出射光が位相共役波であることが確認できた。

図-5は、ポンプ光強度 I_p に対する位相共役波の発生効率（反射率） R の変化を示したものである。ここで、発生効率 R は、プリズムカップラーから出射した位相共役波の全ビームパワーとプリズムカップラーに入射したプローブ光の全ビームパワーの比で定義している。位相共役波の全ビームパワーは、ポンプ光の一方を遮断したときのレコーダー出力の低下から測定

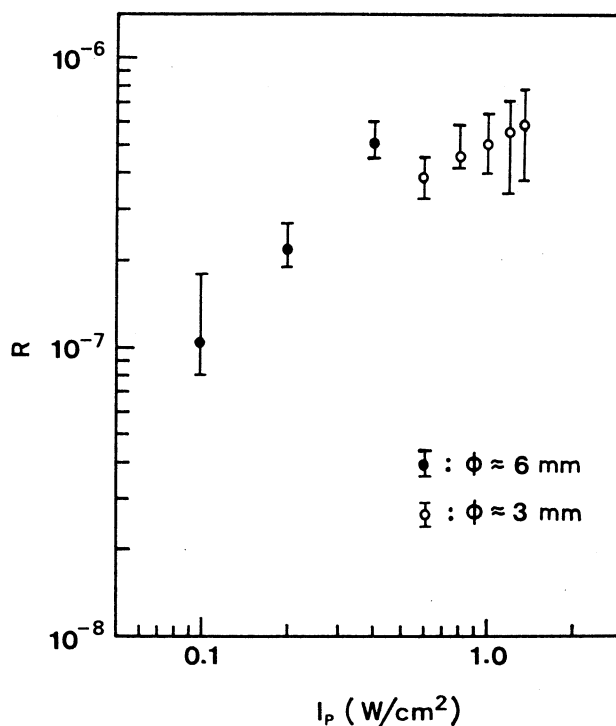


図-5 ポンプ光強度 I_p に対する位相共役波の発生効率 R の変化。黒丸はポンプ光ビーム径 ϕ が約 6 mm、白丸は約 3 mm のときの実験値。

した。図-5の実験では、図-4(a)のビームスプリッター $bs_1 \sim bs_3$ はすべて1対1の分割比のものを用いているが、本実験で使用した Ar イオンレーザーの出力では、ポンプ光ビーム径 ϕ を $\phi \approx 6 \text{ mm}$ 程度に広げると、ポンプ光強度は 0.4 W/cm^2 程度であった(図-5黒丸の実験値)。発生効率 R は、ほぼポンプ光強度に比例して増加しており、 $I_p = 0.4 \text{ W/cm}^2$ で $R = 5.0 \times 10^{-7}$ の発生効率が得られた。そこで、ポンプ光強度を高くするため、ポンプ光ビームをレンズで絞ってビーム径を $\phi \approx 3 \text{ mm}$ 程度にして実験を行なったが(図-5白丸の実験値)、発生効率はむしろ減少し、ポンプ光強度に対する増加率も小さくなった。これは、プローブ光ビーム幅が約 1 mm であるため、ポンプ光ビーム径を 3 mm 程度に絞ると、ポンプ光強度のガウス分布の影響がでるためと考えられる。3つの光の相互作用の強さは、相互作用領域における3つの光の振幅の重なり積分に依存するため、ポンプ光がガウス分布をもつと、相対的に相互作用が低下したのと同じ効果が生じる。位相共役波の発生効率は、 $I_p = 1.3 \text{ W/cm}^2$ で 6.0×10^{-7} が得られた。

ポンプ光とプローブ光の強度比は、位相共役波の発生効率に影響する。導波路構造を利用しない縮退4光波混合の理論的な検討においては、プローブ光強度がポンプ光強度より大きくなると発生効率は減少することが示されている¹²⁾。図-5の実験においては、光導波路の閉じ込め効果を考慮すると、ビーム径が $\phi \approx 6 \text{ mm}$ の場合でプローブ光強度はポンプ光強度の約4倍となっている。そこで、図-4(a)のビームスプリッター bs_1 を反射率-透過率比が1対16のビームスプリッターとし、プローブ光強度がポンプ光強度の0.2倍程度になるように調整し

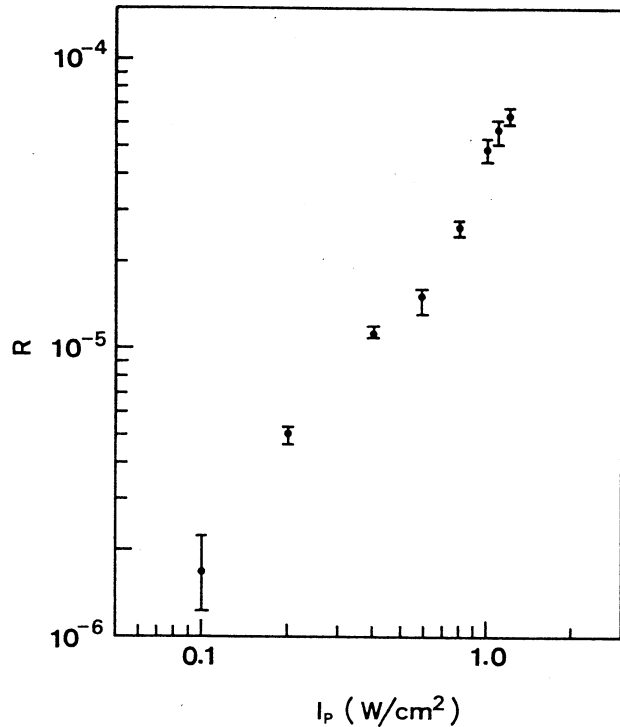


図-6 プローブ光とポンプ光の強度比を0.2としたときの、ポンプ光強度 I_p に対する位相共役波の発生効率 R の変化。

て実験を行なった。結果を図-6に示す。図-5と比較すると、発生効率は1桁以上大きくなっていることがわかる。発生効率は、ポンプ光強度のほぼ3/2乗に比例して増加しており、 $I_p = 1.2 \text{ W/cm}^2$ で $R = 6.3 \times 10^{-5}$ の発生効率が得られた。プリズムカップラーの入射結合効率が15%であることを考慮すると、導波路の内部では発生効率はさらに大きくなっていると考えられる。一般に、プリズムカップラーの結合効率は、入射結合効率より出射結合効率の方が高いので、出射結合効率を100%と仮定すると、導波路外部で $R = 6.3 \times 10^{-5}$ は、導波路内部では $R = 4.2 \times 10^{-4}$ の発生効率に相当する。

可飽和吸収媒質を用いた縮退4光波混合においては、位相共役波の発生効率は、ポンプ光強度が媒質の飽和強度の付近で最大値をとることが理論的¹³⁾、実験的¹⁴⁾に示されている。エリトロシンBの飽和強度は約 2 W/cm^2 であるが、本実験では、ポンプ光強度は 1.2 W/cm^2 までしかとれなかった。したがって、より高出力の Ar イオンレーザーを用いれば、位相共役波の発生効率はさらに増加すると考えられる。

5. ま と め

本報告では、部分的にエリトロシンBを分散させたPVA薄膜からなる非線形薄膜光導波路において、縮退4光波混合による位相共役波発生の実験結果について述べた。これまで報告された薄膜光導波路を用いた縮退4光波混合による位相共役波の発生実験^{9),10)}では、 1 MW/cm^2 程度の光強度が得られる高出力パルス発振レーザーが用いられていたが、本実験では、比較的低出力の連続発振 Ar イオンレーザーを用いて位相共役波を発生させることができた。縮退4光波混合過程においては、対向して伝搬する2つのポンプ光は、相互作用領域を導波路外部から照射し、プローブ光を、結合効率15%のプリズムカップラーを用いて導波路内に入射させ、相互作用領域まで導波光として伝搬させた。プローブ光とポンプ光の光強度比を0.2に調整した実験において、ポンプ光強度 1.2 W/cm^2 で最大 6.3×10^{-5} の位相共役波発生効率が得られた。プリズムカップラーの出射結合効率を100%と仮定し、入射結合効率15%を考慮すると、この値は導波路内部では、 4.2×10^{-4} の発生効率に相当する。より高出力の Ar イオンレーザーを用いること、および相互作用長を大きくして色素濃度などに対する最適条件を検討することなどにより、位相共役波の発生効率はさらに改善することができるであろう。

References

- 1) T. R. O'Meara, D. M. Pepper and J. O. White: Optical Phase Conjugation Chap. 14 (R. A. Fisher ed., Academic, New York, 1983).
- 2) D. M. Pepper: Laser Handbook Vol. 4, Chap. 4 (M. L. Stitch and M. Bass eds., North-Holland, Amsterdam, 1985).
- 3) R. W. Hellwarth: J. Opt. Soc. Am. 67, 1 (1977).

有機色素含有薄膜光導波路における位相共役波の発生

- 4) Y. Silberberg and I. Bar-Joseph: *Optics Comm.* 39, 265 (1981).
- 5) H. Fujiwara and K. Nakagawa: *Optics Comm.* 55, 386 (1985).
- 6) H. Fujiwara and K. Nakagawa: *Optics Comm.* (1988) in press.
- 7) S. M. Jensen and R. W. Hellwarth: *Appl. Phys. Lett.* 35, 404 (1978).
- 8) J. AuYeung, D. Fekete, D. M. Pepper, A. Yariv and R. K. Jain: *Opt. Lett.* 4, 42 (1979).
- 9) C. Karaguleff, G. I. Stegeman, R. Fortenberry, R. Zanoni and C. T. Seaton: *Appl. Phys. Lett.* 46, 621 (1985).
- 10) A. Gabel, K. W. DeLong, C. T. Seaton and G. I. Stegeman: *Appl. Phys. Lett.* 51, 1682 (1987).
- 11) R. Ulrich and R. Torge: *Appl. Opt.* 12, 2901 (1973).
- 12) W. P. Brown: *J. Opt. Soc. Am.* 73, 629 (1983).
- 13) R. L. Abrams and R. C. Lind: *Opt. Lett.* 2, 94; 3, 205 (1978).
- 14) H. Fujiwara and K. Nakagawa: *J. Opt. Am. Soc. B* 4, 121 (1987).