

1次元フォトリッククリスタル構造  
における非線形光学効果

1998年3月

鶴 町 徳 昭



①

## 目次

# 1 次元フォトニッククリスタル構造 における非線形光学効果

1998 年 3 月

鶴町徳昭



# 目次

|       |  |    |
|-------|--|----|
| 第1章   | 序論   | 1  |
| 1.1   | はじめに .....   | 1  |
| 1.2   | 背景 .....   | 3  |
| 第2章   | 1次元フォトリッククリスタル構造                                   | 7  |
| 2.1   | 特性行列による理論解析 .....                                  | 7  |
| 2.2   | 透過スペクトル .....                                      | 20 |
| 第3章   | 白色光マイケルソン干渉計によるフーリエ分光                              | 24 |
| 3.1   | 白色光マイケルソン干渉計による高時間分解分光 .....                       | 24 |
| 3.1.1 | 理論 .....   | 24 |
| 3.1.2 | 実験およびその結果 .....                                    | 27 |
| 3.2   | フーリエ分光 .....                                       | 32 |
| 3.2.1 | 理論 .....   | 32 |
| 3.2.2 | 実験結果 .....   | 34 |
| 第4章   | 1次元フォトリッククリスタル構造における光強度の増強                         | 39 |
| 4.1   | 光強度の増強 .....                                       | 39 |
| 4.2   | 試料作製法 .....  | 50 |
| 4.3   | 吸収飽和実験 .....                                       | 52 |
| 4.3.1 | 試料 .....   | 52 |
| 4.3.2 | 実験系 .....  | 55 |
| 4.4   | 実験結果 .....   | 57 |
| 第5章   | 1次元フォトリッククリスタル構造の縮退四光波混合                           | 59 |
| 5.1   | 縮退四光波混合 .....                                      | 59 |
| 5.2   | 理論 .....   | 62 |
| 5.2.1 | 媒質に吸収がない場合の増強度の見積もり .....                          | 65 |
| 5.2.2 | 媒質に吸収がある場合の縮退四光波混合光<br>の発生効率 .....                 | 68 |
| 5.3   | 実験その1：同じ厚さ、同じ濃度の色素フィルムと<br>1次元フォトリッククリスタルの比較 ..... | 73 |
| 5.3.1 | 試料：キサンテン系色素エオシン Y .....                            | 73 |
| 5.3.2 | 実験 .....   | 76 |
| 5.3.3 | 実験結果 .....   | 78 |
| 5.4   | 実験その2：同じ透過率の色素フィルムと<br>1次元フォトリッククリスタルの比較 .....     | 80 |



|       |                                |    |
|-------|--------------------------------|----|
| 5.4.1 | 試料：アゾ系色素メチルオレンジ .....          | 80 |
| 5.4.2 | 実験 .....                       | 83 |
| 5.4.3 | 実験結果 .....                     | 84 |
| 第6章   | 1次元フォトリック結晶構造による位相共役光の発生 ..... | 85 |
| 6.1   | 位相共役光 .....                    | 85 |
| 6.2   | 実験 .....                       | 88 |
| 6.3   | 実験結果 .....                     | 91 |
| 第7章   | まとめ .....                      | 93 |
| 参考文献  |                                |    |
| 謝辞    |                                |    |



# 第 1 章 序論

## 1.1 はじめに

来るべき高度情報化社会においては従来のエレクトロニクス技術を質的及び量的に凌駕するような新たな技術が必要であり、その役割を担うのが光技術すなわちフォトンクスであると言われるようになって久しい。

1960 年に Maiman がルビーレーザーの発振に成功して以来、人類は制御された光を手にすることが出来るようになり、その後レーザー技術を中心にして様々な光技術が発展してきた。光のもつ高速性、高密度性、並列性などを利用することにより光情報処理、さらには光コンピュータの実現が期待されているが、そのためにはまだまだ越えねばならないハードルがある。その一つとしてあげられるのが大きな非線形光学効果を示す材料の作製である。フォトンクス技術を現実のものとするためには大きな非線形光学効果を示す材料が必要であり、これまで長年に渡って研究が進められてきた。そのためのアプローチとして大きな非線形感受率を持つ物質の探索あるいは作製というものが主流である。例えば半導体超格子や半導体量子ドットなどのように物質中の電子の波動関数を制御することで大きな非線形感受率を持つ物質を作製したり、種々の有機材料の合成などにより大きな非線形感受率を持つ材料の開発が各方面で進められている。

本研究においてはそれとは異なるアプローチによって大きな非線形光学効果を実現することを試みた。それは光を微小領域に局在させることで電場強度を増強しこれを利用して非線形光学効果を実効的に増強させるというものである。この目的のために本研究では 1 次元フォトニッククリスタル構造を用いた。これにより具体的には低出力のレーザーにおいても位相共役光の発生が可能となるような技術の開発が本研究の目的である。この 1 次元フォトニッククリスタルによる非線形光学効果の増強について実験的、および理論的に考察した。

本論文の構成は以下の通りである。まず、第 1 章第 2 節では研究の背景について述べ、第 2 章で 1 次元フォトニッククリスタルの一般論を、第 3 章ではフーリエ分光によって観測した 1 次元フォトニッククリスタルのバンド構造について述べる。ここまでは 1 次元フォトニッククリスタルの線形的な光学特性に







## 1.2 背景

人類の科学探究の歴史において光の本性、物質の本性というものは非常に重要な位置を占めてきた。20 世紀になって Einstein が光量子説を唱え、光には波動性と粒子性の二重性があることが明らかになった。一方、電子などの物質粒子についても de Broglie によってその波動性が明らかにされ、光と同様に波動と粒子の二重性が存在することが量子力学から結論された。以上から粒子として従う統計的性質は異なるものの、光も電子も波動としては同様な物理法則に従うことが予想される。光の挙動を記述する Maxwell 方程式を式(1.1)に、電子の挙動を記述する Schrödinger 方程式を式(1.2)にそれぞれ示す[1,2]。

$$[-\Delta - (\omega^2/c^2)\epsilon_{\text{struct}}(\mathbf{r})]E(\mathbf{r}) = (\omega^2/c^2)\epsilon_0 E(\mathbf{r}) \quad (1-1)$$

$$[-\Delta + (2m^*/\hbar^2)V(\mathbf{r})]\Psi(\mathbf{r}) = (2m^*/\hbar^2)E\Psi(\mathbf{r}) \quad (1-2)$$

ここで式(1.1)における  $\omega$  は光の角振動数、 $E(\mathbf{r})$  は電場を表わし、誘電率は  $\epsilon = \epsilon_0 + \epsilon_{\text{struct}}(\mathbf{r})$  として  $\epsilon_{\text{struct}}(\mathbf{r})$  は誘電率の空間変調成分を表わす。また式(1.2)における  $\Psi(\mathbf{r})$  は電子の波動関数、 $m^*$  は電子の有効質量、 $V(\mathbf{r})$  はポテンシャルをそれぞれ表す。この両者を比較すると形式的には同様の波動方程式となっている。両者の対応関係から電子の波動関数  $\Psi(\mathbf{r})$  に対応するのは光の電場  $E(\mathbf{r})$  であり、またポテンシャル  $V(\mathbf{r})$  に対応するのは誘電率の空間変調成分  $\epsilon_{\text{struct}}(\mathbf{r})$  である。この形式的類似性が意味することは光と電子の間に現象的な類似性が存在するということである[3,4]。

結晶中の電子の運動において、状態の許容されるエネルギーバンドと禁止されるギャップが形成されるのは電子の波動性によるものである。バンド構造が形成されるのは構成原子の作る電子の de Broglie 波長程度の周期的ポテンシャルの影響によるもので式(1.1)においてはポテンシャルに空間的に周期性を持つ関数を導入することで理解される。結晶中の電子波はこの周期的ポテンシャルによってブラッグ反射されるが、これがエネルギーギャップのできる理由である[5]。また結晶に乱れがある場合、それは電子の伝導を阻害し、ある範囲のエネルギーに対して電子波動関数は空間的に局在する。この現象は波動の干渉に



起因するものである。今日のエレクトロニクス技術は、このような半導体中の電子の波動的な振る舞いがその基礎となっている。光と電子の現象的類似性に着目すると光の場合もその波動性を利用して真空中とは異なった振る舞いを見せる新しい媒質が考えられる。結晶中の周期的ポテンシャルの場合と同様に媒質の誘電率が光の波長程度の大きさで周期的に変動しているならば、光がこの媒質を伝搬する時、光の取りうるエネルギーも電子の場合のようなバンド構造を示すことが予想される。この考えに基づいて 1987 年に Yablonovitch は媒質の誘電率が光の波長程度の大きさで周期的に変調されているような媒質、フォトリッククリスタルを提唱した[6]。

このフォトリッククリスタル構造中においては光の取りうる状態は真空中や通常の一様媒質とは大きく異なる。そのなかでも最も特徴的なことはフォトリックバンドギャップの概念である。半導体や絶縁体における電子のエネルギーバンドギャップ同様にフォトリッククリスタルにおいては"光の"バンドギャップ（フォトリックバンドギャップ）が出現する場合があります、それに対応する周波数帯において光はフォトリッククリスタル中に存在することができなくなる。また、半導体中に異種原子を添加することでバンドギャップ中に電子の不純物準位が作られたように、フォトリッククリスタル構造中に誘電率の周期的変調を乱すような構造欠陥を導入することでフォトリックバンドギャップ中に欠陥による光の局在準位を作ることができる[7,8]。

このフォトリッククリスタルは基礎研究の立場からも、あるいはデバイスへの応用という立場からも非常に興味深いものである。例えばフォトリッククリスタル中にある電子系が置かれていたとしよう。電子系のある遷移の確率  $W$  は良く知られた Fermi の黄金律で次のように表わされる[9]。

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} |V|^2 \rho(E) \quad (1.3)$$

ここで  $V$  は遷移の行列要素であり、 $\rho(E)$  はエネルギー  $E$  の光の単位エネルギーあたりの状態密度である。フォトリッククリスタルにおいてはこの  $\rho(E)$  が真空中や通常の一様媒質とは大きく異なっているのでその遷移、例えば自然放出確率を抑制したり増大させたりすることができる。この事を利用してしきい値 0 の半導体レーザーなどが考案されている。これはフォトリッククリスタルの欠



陥による局在準位とレーザーの発振モードを一致させることで実現できる[6]。また、欠陥近傍においては光が局在するために光の電場強度が大きくなる。そのため欠陥近傍に置かれた物質の光学的非線形性は大きくなることが予想される。この事を利用して高効率の非線形光学デバイスというものも考えられる。本研究においてはまさにこの非線形光学効果の増強を目指しているわけである。

このようにフォトニッククリスタルにはいろいろな可能性があるが、図 1.1 に示すように誘電率を変調する次元によってその特性も目的も様々なフォトニッククリスタル構造を考えることができる[10]。

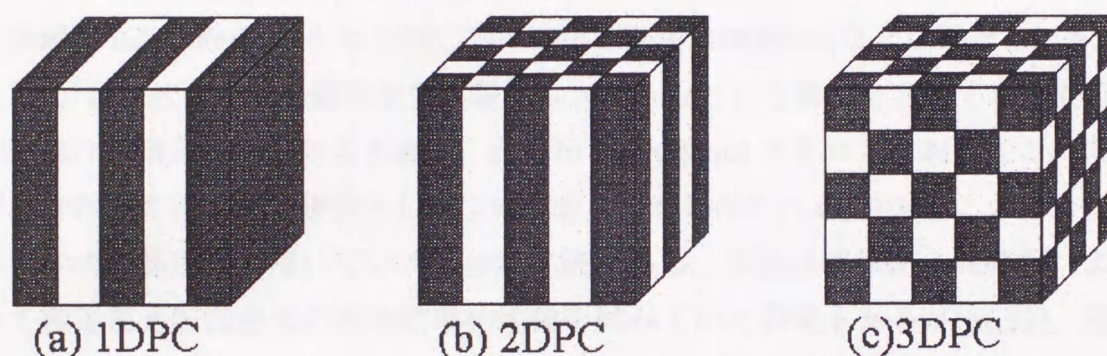


図 1.1: 様々な次元のフォトニッククリスタルの模式図(a)1 次元フォトニッククリスタル(b)2 次元フォトニッククリスタル(c)3 次元フォトニッククリスタル

図 1.1(a)は変調方向が1次元の1次元フォトニッククリスタル[11-18]、図 1.1 (b)は2次元フォトニッククリスタル[19-21]、そして図 1.1(c)は3次元フォトニッククリスタルである[22-24]。自然放出の制御のためには3次元的ないかなる方向にも光が伝搬できないようなフォトニックバンドギャップを持つ3次元のフォトニッククリスタルが望ましい。一方、レーザーのような平面波に近い光線の制御を考える場合には、その光線の伝搬方向にのみ誘電率を変調されているような1次元フォトニッククリスタルで十分である。さらに、欠陥における光強度の増強を利用した非線形光学効果の増強のためには1次元フォトニッククリスタルが望ましい[25]。それは1次元構造においては2次元、3次元の場合と比べて、入射するレーザー光線をより有効に閉じこめることができるからであ



る。また可視光領域におけるフォトニッククリスタルは誘電率の変調を可視光の波長程度の周期で行なわなければならないが、その様な微細加工を 3 次元的に行なうことは現在の技術でも容易ではない。このために 3 次元フォトニッククリスタル構造の実現は未だ困難である。それに対して 1 次元フォトニッククリスタル構造は例えば図 1.1(a)に示すような誘電体多層膜のような系で実現することができるので作製も比較的容易であると言えよう。以上のような理由のために非線形光学効果の増強のために本研究では 1 次元フォトニッククリスタル構造を作製した。

非線形光学効果の増強という試みに対して本研究においては欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタル構造を用いるわけであるが、これと類似の系として非線形 Fabry-Perot エタロン[26,27]や半導体微小共振器[28]などが挙げられる。これらは 2 枚の鏡で非線形光学媒質をはさみ込むという構造をとっており本研究における構造と類似の点も多い。非線形 Fabry-Perot エタロンにおいてこれまでに行われてきた主な研究としては光双安定性が挙げられる[29,30]。この場合、屈折率の非線形性を用いているものが主流である。また半導体微小共振器によって縮退四光波混合光の発生効率の増強を試みている研究もあるが[31,32]、定量的に解析研究された例はない。これらのことを鑑みて本研究における 1 次元フォトニッククリスタル構造を利用した非線形光学効果の増強、特に縮退四光波混合光の発生効率の増大という試みはこれまで確認されておらず、更にこの様な系において画像処理を行った例は筆者の知る限り未だ皆無といえる。また、フォトニッククリスタルという概念にはこれらのように単に共振器構造を利用するという事以上のものを含んでいる。本節の始めで述べたようにフォトニッククリスタルとは通常結晶における電子の役割を光子で置き換えるという概念によるものである。そしてそれは半導体中における電子の挙動を制御して現在のエレクトロニクスが発達したのと同様にフォトニッククリスタル中の光の挙動を制御して新しいフォトニクスを実現させるという夢をも含んだものである。



## 第2章 1次元フォトニッククリスタル構造

### 2.1 特性行列による理論解析

本研究においては1次元フォトニッククリスタル構造として屈折率の異なる2種類の誘電体薄膜を交互に積層させた多層膜を用いる。この多層膜に垂直に光を入射した場合の光の伝搬は一方向に限定されるので、1次元の周期構造に対する光の挙動を観測することになる。またこの系は電子の場合のKronig-Pennyモデルに対応している。このような誘電体多層膜の透過スペクトルや反射スペクトルは特性行列による手法によって理論的に計算できる[33]。

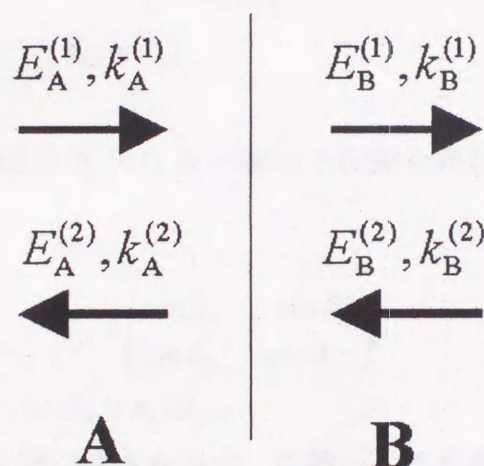


図 2.1: A 層と B 層の界面

図 2.1 に示すような2種類の透明媒質の間の界面を考える。ここで屈折率が  $n_A$  の層を A 層、 $n_B$  の層を B 層とする。矢印は光の伝搬方向を示している。A 層内の光の電場は

$$E_A = E_A^{(1)} \exp\{i(\mathbf{k}_A^{(1)} \cdot \mathbf{x} - \omega t)\} + E_A^{(2)} \exp\{i(\mathbf{k}_A^{(2)} \cdot \mathbf{x} - \omega t)\} \quad (2.1)$$

と表わされ、B 層内の電場も同様に表わされる。光が垂直に入射した場合を考えると、A 層と B 層の境界面における境界条件から次式を得る。



$$\begin{aligned} E_A^{(1)} + E_A^{(2)} &= E_B^{(1)} + E_B^{(2)} \\ n_A(E_A^{(1)} - E_A^{(2)}) &= n_B(E_B^{(1)} - E_B^{(2)}) \end{aligned} \quad (2.2)$$

便利のため

$$\begin{aligned} E_+ &= E^{(1)} + E^{(2)}, \\ E_- &= \frac{E^{(1)} - E^{(2)}}{i} \end{aligned} \quad (2.3)$$

とすると、式(2.2)は

$$\begin{pmatrix} E_{+B} \\ E_{-B} \end{pmatrix} = T_{BA} \begin{pmatrix} E_{+A} \\ E_{-A} \end{pmatrix} \quad (2.4)$$

ただし

$$\begin{aligned} T_{BA} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & n_A/n_B \end{pmatrix}, \\ T_{AB} &= T_{BA}^{-1} \end{aligned} \quad (2.5)$$

$T_{BA}$  は、A 層と B 層の界面を A から B へ横切る伝搬を表わす。一方、A 層内の光の伝搬は

$$\begin{aligned} T_A &= \begin{pmatrix} \cos \delta_A & -\sin \delta_A \\ \sin \delta_A & \cos \delta_A \end{pmatrix}, \\ \delta_A &= n_A k d_A \end{aligned} \quad (2.6)$$

ここで  $k$  は波数、 $d_A$  は A 層の厚さを示す。B 層内の光伝搬も同様に表わされる [34]。多層膜全体の光伝搬は上述の特性行列  $T_{BA}$ 、 $T_{AB}$ 、 $T_A$  そして  $T_B$  の積として表わされる。例として ABA と並ぶ 3 層の場合は全体の特性行列  $M$  は  $M = T_A T_{AB} T_B T_{BA} T_A$  となる。



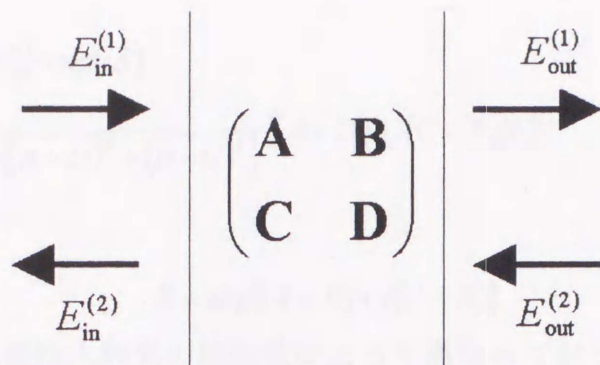


図 2.2: 試料と光電場の関係

図 2.2 に示すように入射側の光電場と出射側の光電場を定義した場合、それぞれ  $E_{\text{in}}^{(1)}$  が入射光電場、 $E_{\text{in}}^{(2)}$  が反射光電場、 $E_{\text{out}}^{(1)}$  が透過光電場、そして出力側から入ってくる光はないので  $E_{\text{out}}^{(2)} = 0$  となる。これらの光と多層膜の特性行列  $M$  の間の関係は一般に

$$M = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

とすると

$$\begin{pmatrix} E_{+\text{out}} \\ E_{-\text{out}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{+\text{in}} \\ E_{-\text{in}} \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

のようになる。ただし、図 2.2 の  $A$ 、 $B$ 、 $C$  そして  $D$  は多層膜全体の特性行列のそれぞれの行列要素を意味する。式(2.8)を計算すると

$$\{(A+D)+i(B+C)\}E_{\text{out}}^{(1)} = 2(AD-BC)E_{\text{in}}^{(1)} \quad (2.9)$$

となる。ここで特性行列の行列式は  $|M|=AD-BC=1$  となる。式(2.9)の関係から多層膜の透過率と入射光と透過光の間の位相差が計算できる。振幅透過率は

$$\frac{E_{\text{out}}^{(1)}}{E_{\text{in}}^{(1)}} = \frac{2}{(A+D)+i(B-C)} \quad (2.10)$$

となるので、透過率は

$$T = \frac{4}{(A+D)^2 + (B-C)^2} \quad (2.11)$$

と表わされる。また、入射光と透過光の間の位相差を  $\delta$  とすると



$$E_{\text{out}}^{(1)} = E_{\text{in}}^{(1)} \exp(i\delta),$$

$$= \frac{2}{\{(A+D)^2 + (B-C)^2\}} \{(A+D) + i(C-B)\} E_{\text{in}}^{(1)} \quad (2.12)$$

であるから

$$\delta = \arg\{(A+B) + i(C-B)\} \quad (2.13)$$

となる。この位相差は入射光の周波数によって異なり、周波数に対してプロットしたものを位相スペクトルと呼ぶ。

ここで位相スペクトルについて説明する。ある周波数 $\omega$ を持つ光が媒質を透過する場合を考える。図 2.3(a)に示すような場合、光が入る時の位相を 0 とすると出てくる時に位相は $\pi$ 進む。 $\omega$ よりもわずかに高い周波数 $\omega + \delta\omega$ の光の場合は図 2.3 (b)に示すように位相は $\pi$ よりも大きい $\pi + \alpha$ だけ進む。また $\omega$ よりもわずかに低い周波数 $\omega - \delta\omega$ の光の場合は図 2.3(c)に示すように位相は $\pi$ よりも小さい $\pi - \alpha$ だけ進む。以上のことをまとめると図 2.4 の位相スペクトルを描くことができる。ただし、媒質には分散がないとする。このように周波数の変化に対する位相差の変化を連続的につなげたものが位相スペクトルである。

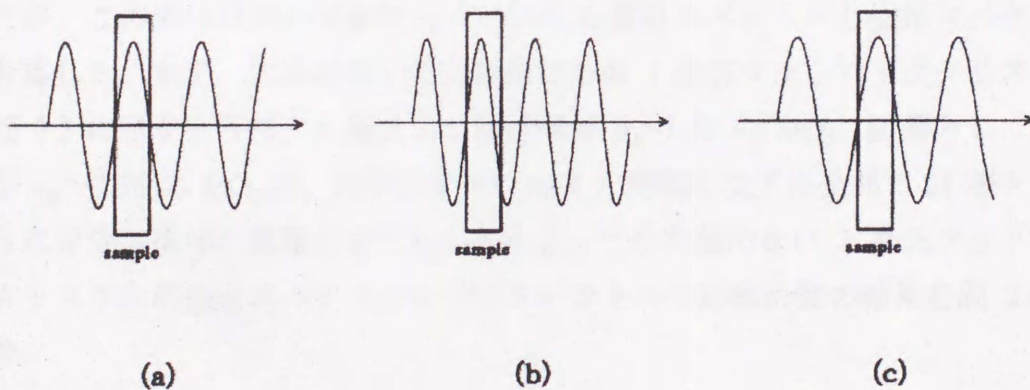


図 2.3: 光周波数と位相の関係(a)光周波数が $\omega$ 、入射光と透過光との位相差が $\pi$ の場合(b)光周波数が $\omega + \delta\omega$ 、位相差は $\pi + \alpha$  (c)光周波数が $\omega - \delta\omega$ 、位相差は $\pi - \alpha$



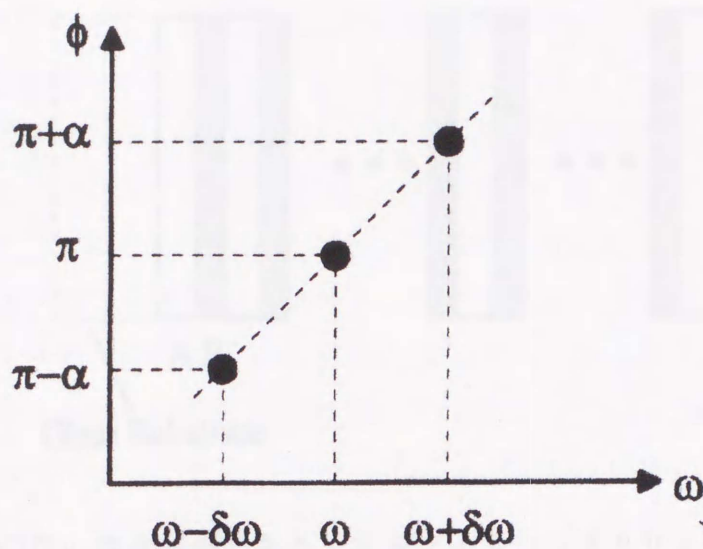


図 2.4: 位相スペクトル

本研究においては 1 種類の欠陥のない完全結晶である 1 次元フォトニッククリスタルと 3 種類の欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタルを実際に作製したが、この特性行列の手法によりこれらの透過スペクトルと位相スペクトルを計算した。まず、欠陥のない完全結晶である 1 次元フォトニッククリスタルは図 2.5 に示すように、A 層として屈折率が  $n_A=1.46$  の  $\text{SiO}_2$ 、B 層として屈折率が  $n_B=2.35$  の  $\text{TiO}_2$  の、光学膜厚  $600\text{nm}/4$  の薄膜を交互に全部で 21 層となるようにガラス基板に積層させたものである。この欠陥のない 1 次元フォトニッククリスタルの透過スペクトルと位相スペクトルの理論計算の結果を図 2.6 に示す。



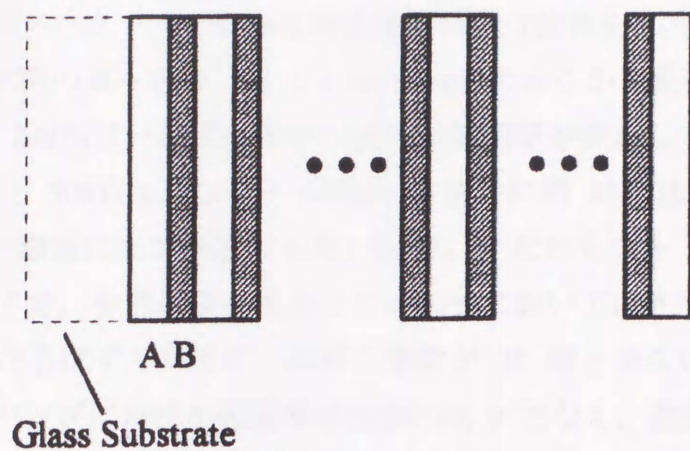


図 2.5: 欠陥のない完全結晶である 1 次元フォトニッククリスタルの模式図

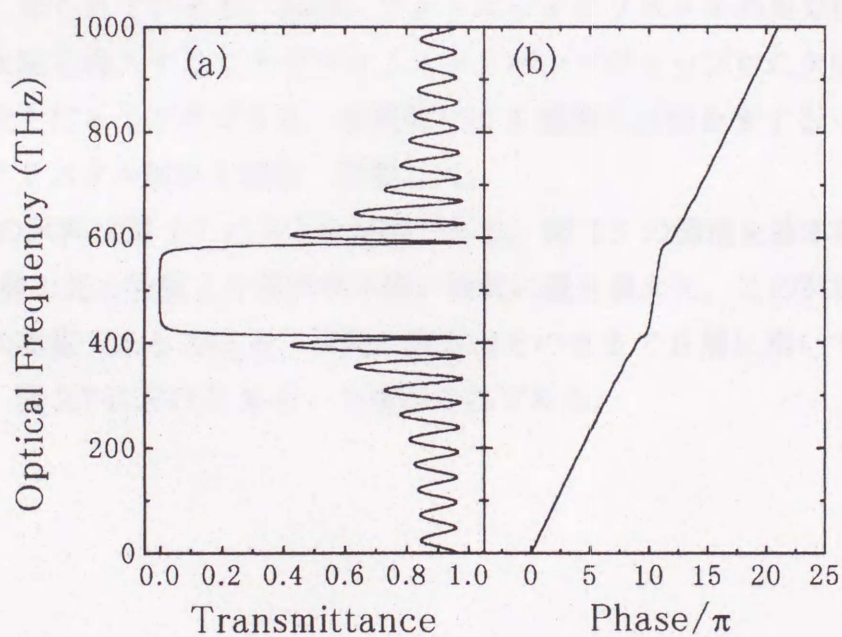


図 2.6: 欠陥のない完全結晶である 1 次元フォトニッククリスタルの  
(a)透過スペクトルと(b)位相スペクトル



図 2.6(a)は透過スペクトルで縦軸が周波数、横軸が透過率となっている。また図 2.6(b)は位相スペクトルで縦軸は周波数、横軸は位相を $\pi$ で割ったものである。波数を  $k$ 、試料の厚みを  $d$  とすると位相 $\phi=kd$  であるから縦軸を波数と見なすことができ図 2.6(b)はいわば試料中の光の分散関係を表わしていることになる。これによると 500THz、つまり 600nm を中心に約 430THz(700nm)から約 570THz(500nm)の領域に光が透過できない部分、すなわちフォトニックバンドギャップが存在する。分散関係を見るとこの部分においては光のモードが無いために不連続になるはずであるが、試料の層数が 21 層と少ないためにフォトニックバンドギャップにおける透過率は完全には 0 でなく、垂直に近い傾きで連続的につながっている。もし、無限に周期系が続いているならば完全に不連続になる。なお、この計算においては材料である  $\text{SiO}_2$  と  $\text{TiO}_2$  の分散の効果は取り入れていない。

次に欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタルについて述べる。半導体中に不純物を添加することでバンドギャップ中に不純物準位を作ることができることは良く知られているが、同様にフォトニッククリスタルの周期性を乱すような構造欠陥を導入することでフォトニックバンドギャップ中に欠陥による光の局在準位を作ることができる。本研究では 3 種類の欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタル試料を設計、作製した。

第 1 の試料は図 2.7 のような構造である。図 2.5 の構造を基本構造として中央の A 層を元の物質より屈折率が高い物質に置き換えた。この試料においては中央層の物質である  $\text{SiO}_2$  を、実際の膜厚はそのまま B 層に用いている  $\text{TiO}_2$  に換えた。図 2.7 における X という層がそれである。



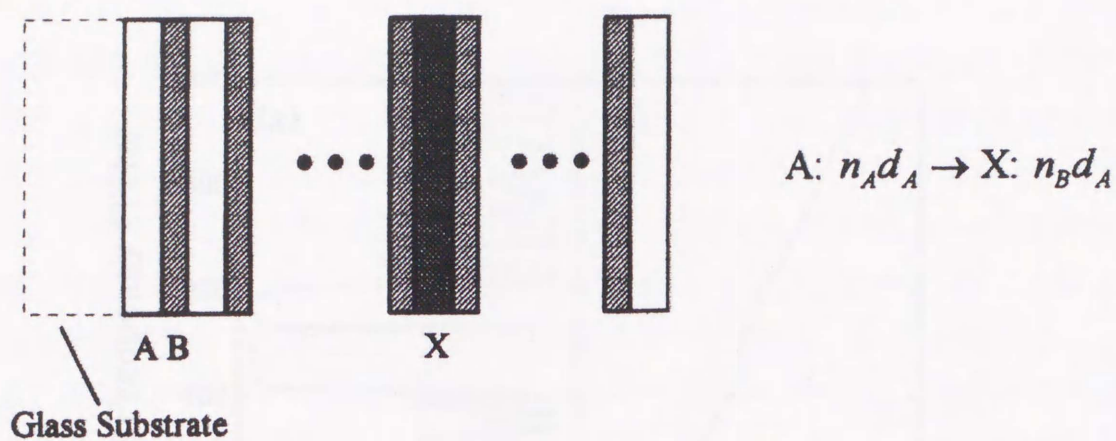


図 2.7: ドナー準位をもつ 1 次元フォトニッククリスタルの模式図

このような方法で欠陥を導入すると局在するモードのエネルギーが下がり、高周波数側のバンドからモードがはがれて半導体におけるドナーレベルに対応するような局在準位が形成される。このドナー型の欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタルの透過スペクトルと位相スペクトルの理論計算の結果を図 2.9 に示す。



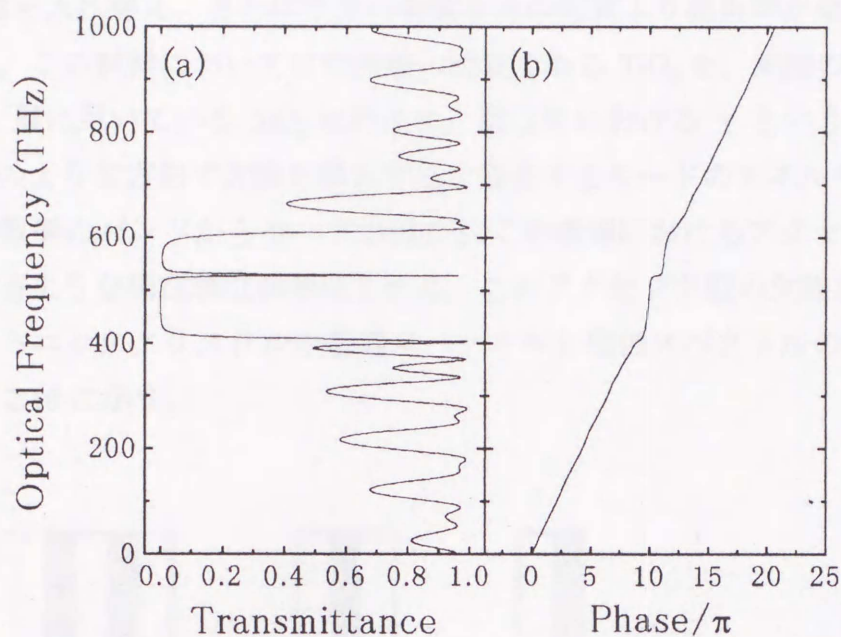


図 2.8: ドナーレベルをもつ 1 次元フォトニッククリスタルの  
(a)透過スペクトルと(b)位相スペクトル

計算した透過スペクトルからフォトニックバンドギャップの中央より高周波数側の 568THz(528nm)の位置に鋭い透過ピークが出現していることがわかる。また位相スペクトル（分散関係）からこの透過ピークの位置において位相が $\pi$ 進んでいる様子がわかる。これはバンドギャップのこの位置にモードが一つできたことを意味している。



Diagram illustrating a multilayer thin film structure on a glass substrate. The structure consists of alternating layers of material B (hatched) and material A (white). The layers are labeled B, A, Y, and B from left to right. The thickness of the B layers is denoted as  $n_B d_B$  and the thickness of the A layers is denoted as  $n_A d_A$ . The glass substrate is indicated by a dashed line on the left.

16



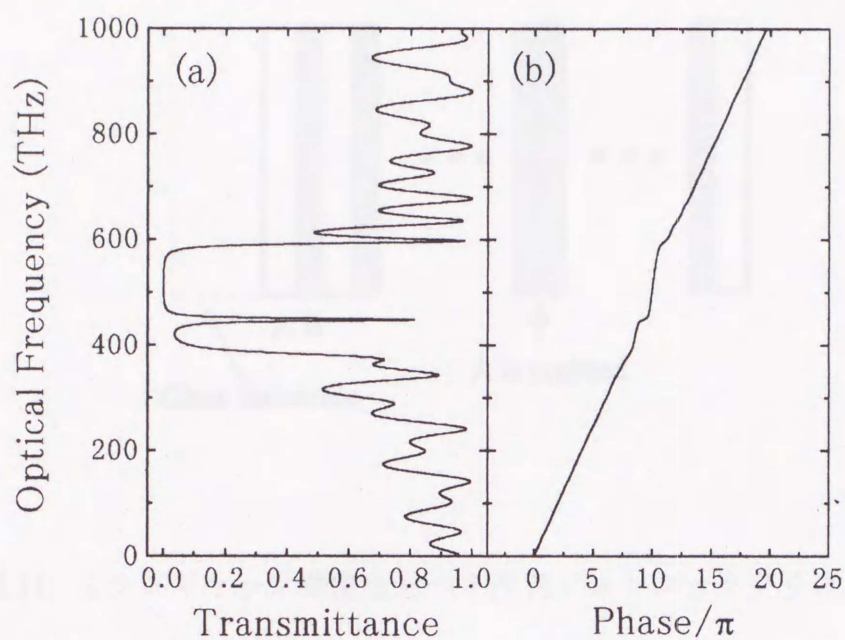


図 2.10: アクセプタレベルをもつ1次元フォトニッククリスタルの  
(a)透過スペクトルと(b)位相スペクトル

計算した透過スペクトルからフォトニックバンドギャップの中央より低周波数側の 449THz(668nm)の位置に鋭い透過ピークが出現していることがわかる。また位相スペクトル(分散関係)からこの透過ピークの位置において位相が $\pi$ 進んでいる様子がわかる。これはバンドギャップのこの位置にモードが一つできたことを意味している。

三つ目の試料は図 2.11 のような構造である。図 2.5 の構造を基本構造として中央の物質を削除した。



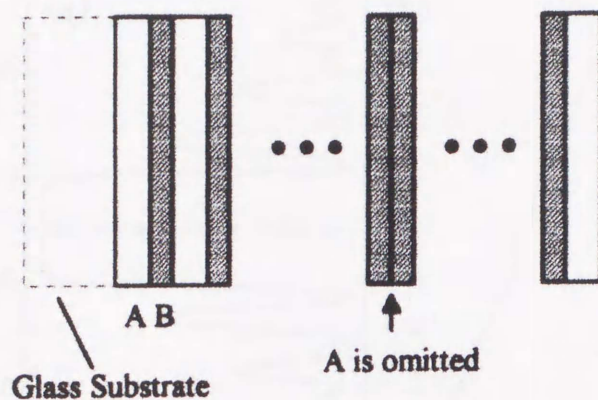


図 2.11: ミッドギャップ準位をもつ 1 次元フォトニッククリスタルの模式図

この場合、中央の A 層を削除すると両隣の B 層が並ぶことになるのでその光学膜厚は  $600\text{nm}/2$  となる。600nm の波長の光に対してはこの並んだ 2 層の特性行列は単位行列となるので透過率や反射率に影響を与えない層（不在層）となる。そこでこの 2 層並んだ B 層がないものと考え、その隣の A 層が 2 層並ぶことになりこれも同様に不在層となる。このようにして次々に不在層を削除していくと最終的にはすべての層を削除することになるので、波長 600nm の光は全透過する。つまりフォトニックバンドギャップの中央に透過ピークが出現することが予想されるのであるが、このようなミッドギャップ型の欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタルの透過スペクトルと位相スペクトルの理論計算の結果を図 2.12 に示す。



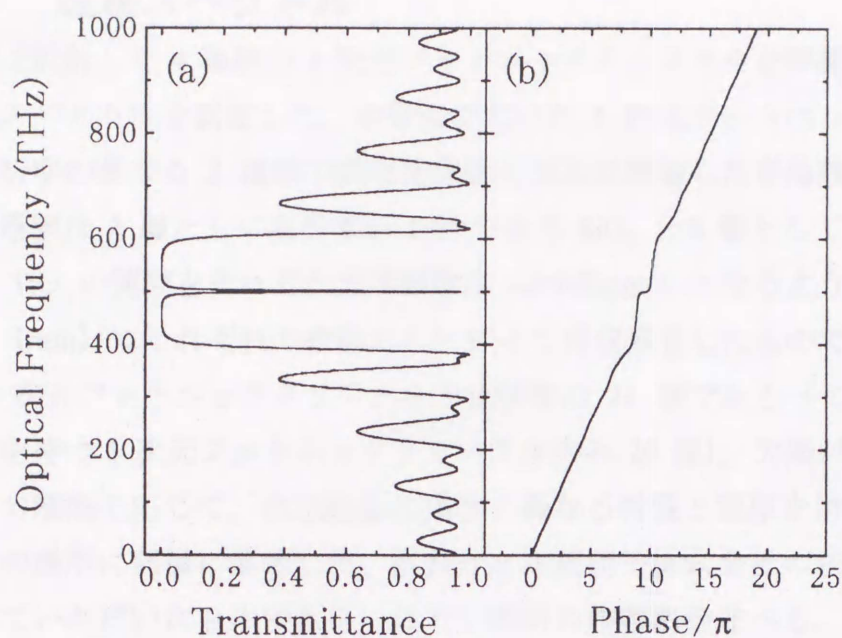


図 2.12: ミッドギャップレベルをもつ 1 次元フォトニッククリスタルの  
(a)透過スペクトルと(b)位相スペクトル

計算した透過スペクトルからフォトニックバンドギャップ中において予想通り 500THz(600nm)の位置に鋭い透過ピークが出現していることがわかる。また位相スペクトル(分散関係)から透過ピークの位置において位相が $\pi$ 進んでいる様子がわかる。これはバンドギャップ中のこの位置にモードが一つできたことを意味している。

以上、欠陥のない完全結晶である 1 次元フォトニッククリスタルと 3 種類の欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタルの透過スペクトルと位相スペクトル(分散関係)を特性行列の手法により計算した。



## 2.2 透過スペクトル

前節で設計した 4 種類の 1 次元フォトリッククリスタルを実際に作製し、その透過スペクトルを測定した。本研究で用いた 1 次元フォトリッククリスタルは、屈折率の異なる 2 種類の誘電体薄膜を交互に積層した多層膜である。これらの多層膜は A 層として屈折率が 1.46 である  $\text{SiO}_2$ 、B 層として屈折率が 2.35 である  $\text{TiO}_2$  の薄膜をそれぞれ光学膜厚が  $nd=600\text{nm}/4$  となるようにガラス基板（厚さ 1mm）にそれぞれの設計にしたがって真空蒸着したものである。それぞれの 1 次元フォトリッククリスタルの全層数は 21 層である（ミッドギャップレベルを持つ 1 次元フォトリッククリスタルのみ 20 層）。欠陥がある場合はその欠陥の種類に応じて、完全結晶の場合と異なる材質と膜厚を持った薄膜をその欠陥の場所に同様に蒸着した。試料は日本板硝子株式会社の荻野氏に委託し作製していただいたものである。以下で試料の作製法を述べる。真空蒸着とは蒸着槽を約  $10^{-6}\text{Torr}$  程度に排気した後に槽内に装着した材料を加熱し、蒸発した材料の粒子を基板上において凝縮させる方法である。薄膜を蒸着する過程でそれぞれの膜厚を監視し調整する必要がある。本研究においては光学監視法により膜厚を監視した。光学監視法とは最も高い反射率を持たせたい波長  $\lambda$ （本試料では  $\lambda=600\text{nm}$ ）で薄膜からの反射光をモニターしながら蒸着を行う方法である。光を垂直に入射した場合、薄膜の膜厚が  $\lambda/4$  に達した時に薄膜の表面と裏面からの反射光の光路差が  $\lambda/2$  となるので反射率は極大値あるいは極小値をとる。つまり反射率が極値に達した時に成膜を終了させることで正確に  $\lambda/4$  の膜厚を持った薄膜を得ることができる。今回、蒸着槽中に試料のみならずモニター用の基板をも装着し反射光をモニターしながら蒸着を行い、1 層成膜するごとにモニター用基板を取り替えて本試料を作製した。

作製した 1 次元フォトリッククリスタルの透過スペクトルを図 2.13 に示す光学系によって測定した。欠陥のない 1 次元フォトリッククリスタル、ドナーレベルを持つもの、アクセプタレベルを持つもの、そしてミッドギャップレベルを持つものの透過スペクトルをそれぞれ図 2.14、図 2.15、図 2.16、そして図 2.17 に示す。第 2 章第 1 節で計算した透過スペクトルと比較すると非常に良く一致しており、ほぼ設計通りに 1 次元 Photonic Crystal が作製できたことがわかる。



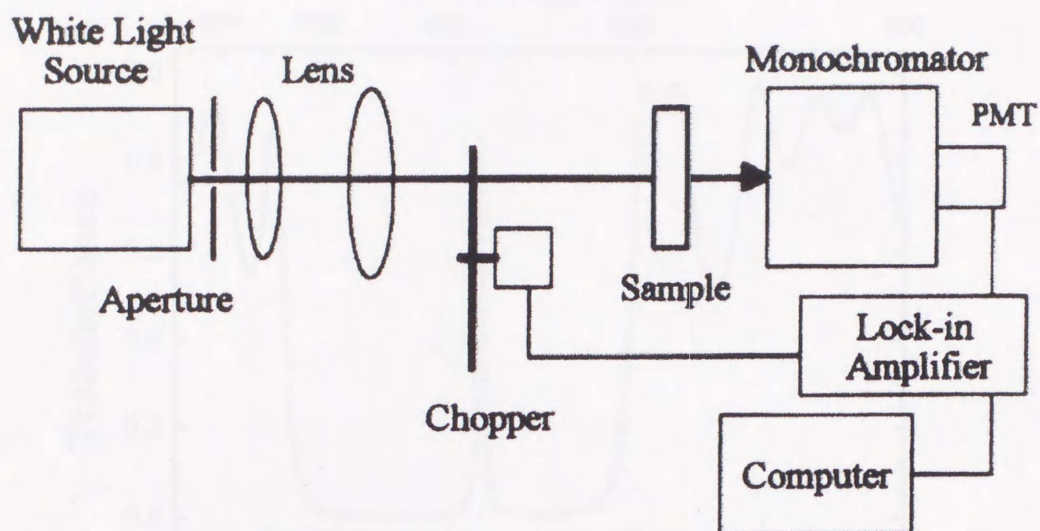


図 2.13: 透過スペクトル測定のための光学系

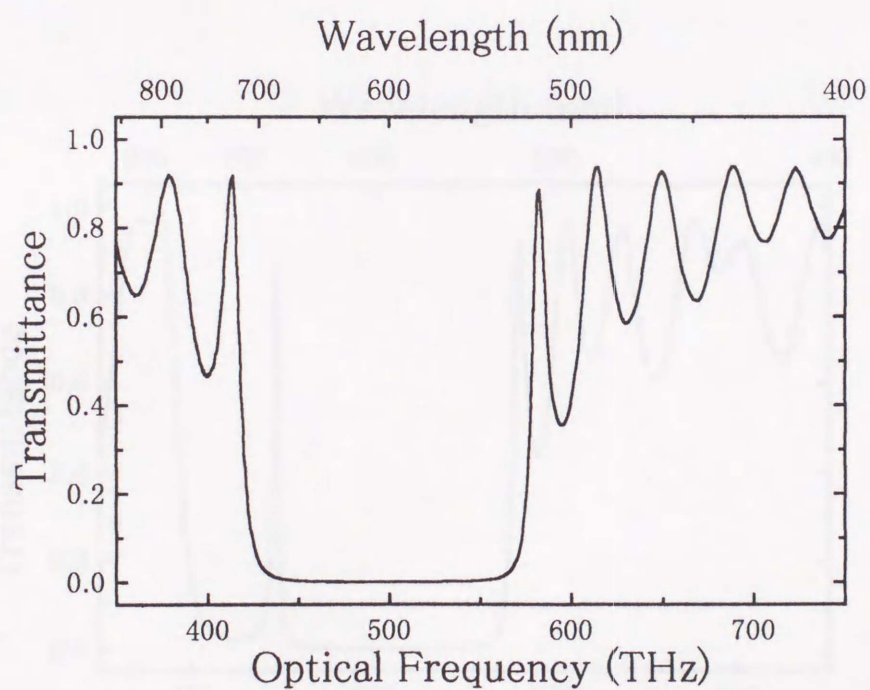


図 2.14: 欠陥のない完全結晶である 1 次元フォトニッククリスタルの透過スペクトル



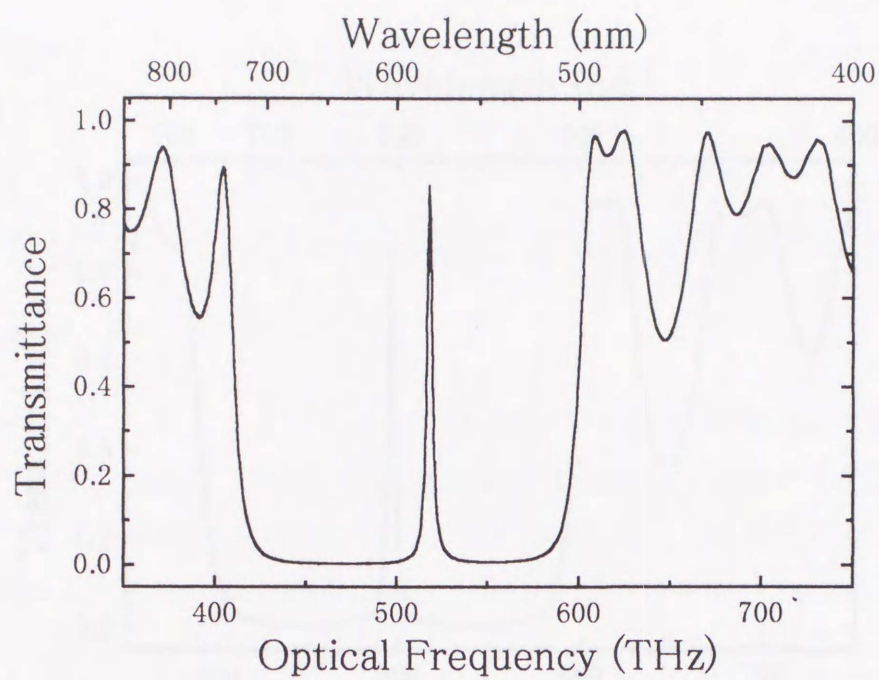


図 2.15: ドナーレベルをもつ1次元フォトニッククリスタルの透過スペクトル

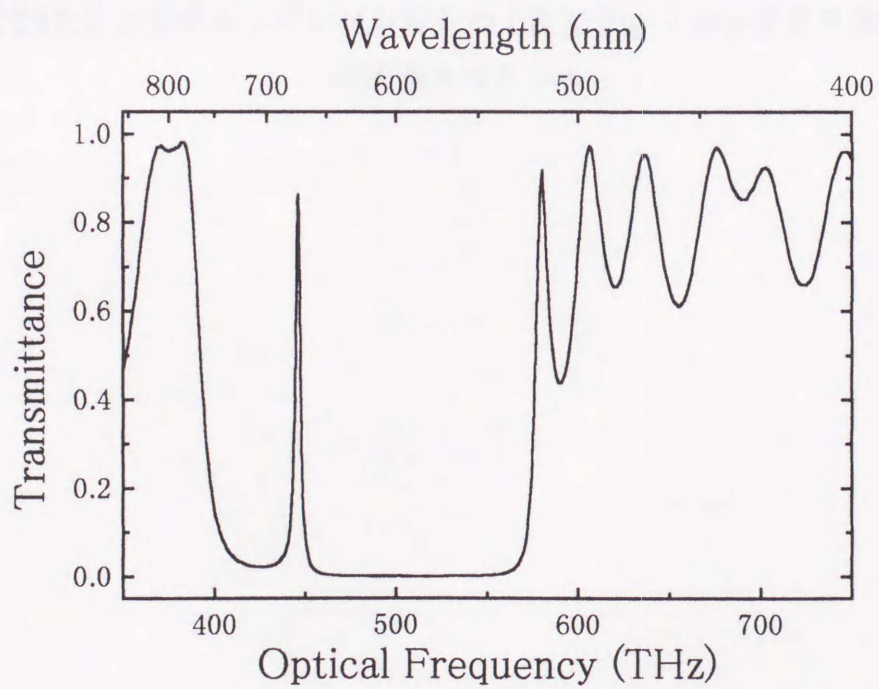


図 2.16: アクセプタレベルをもつ1次元フォトニッククリスタルの透過スペクトル



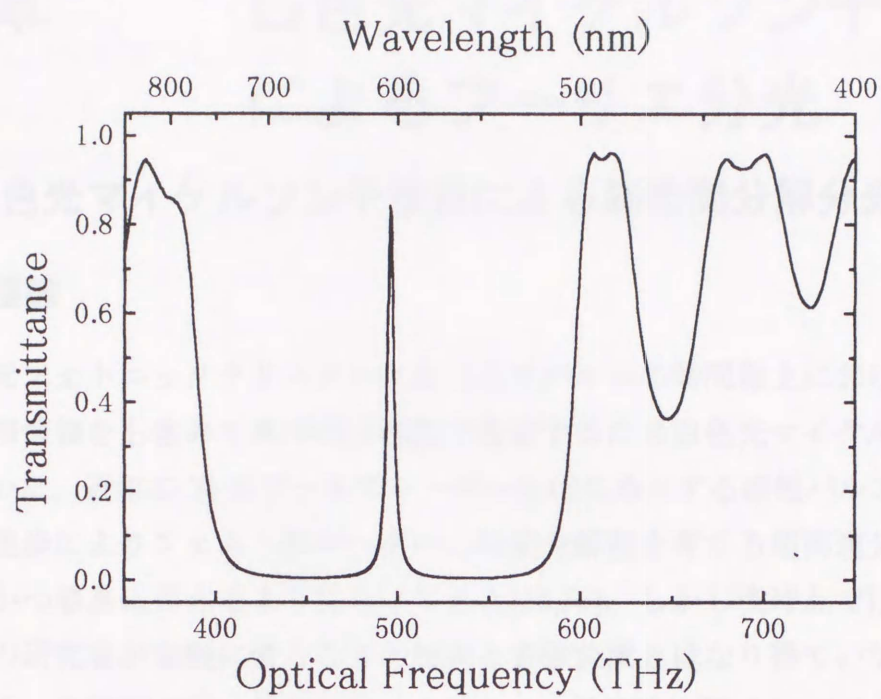


図 2.17: ミッドギャップレベルをもつ 1 次元フォトニッククリスタルの透過スペクトル



## 第3章

# 白色光マイケルソン干渉計 によるフーリエ分光

### 3.1 白色光マイケルソン干渉計による高時間分解分光

#### 3.1.1 理論

1次元フォトニッククリスタルにおける光パルスの時間軸上における透過特性を位相情報をも含めて高時間分解能で測定するため白色光マイケルソン干渉計を用いた。近年のTiサファイアレーザーをはじめとする超短パルスレーザー技術の進歩によりフェムト秒オーダーの時間分解能を有する超高速分光が比較的安定かつ容易に行えるようになってきた[35,36]。しかし現時点では、それらは多くの研究者が気軽に使うことの出来る実験装置とはなり得ていないのが現状である。本研究で用いた白色光マイケルソン干渉計は図 3.1 に示すような装置であり、光源としては広いスペクトル幅を持つ連続発光白熱灯を用いている。この装置を用いて超高速分光を行う原理について以下で述べる。

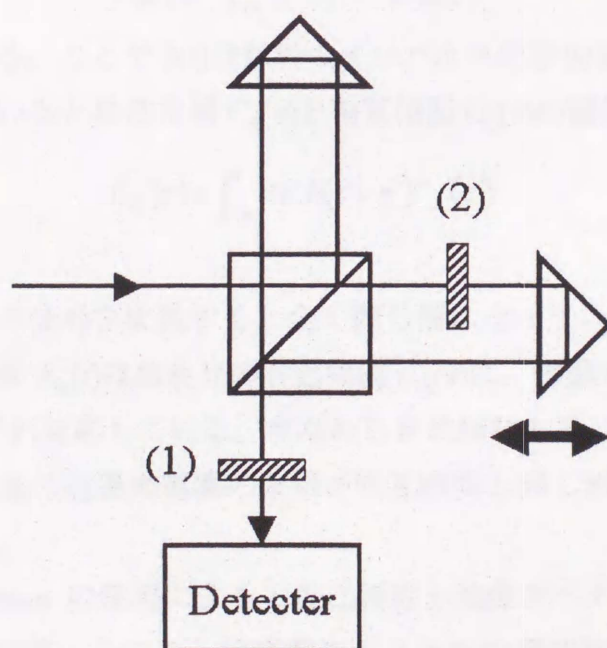


図 3.1: マイケルソン干渉計



この白色光マイケルソン干渉計で2種類の干渉波形を測定する。1つは光源からの入射白色光の自己相関  $C_A(\tau)$  で、もう1つは入射光と試料透過光の相互相関  $C_C(\tau)$  である。この相互相関  $C_C(\tau)$  はマイケルソン干渉計の二つある光路の片方に試料を挿入することで測定できる。図 3.1 においては(2)の位置に試料を挿入する。このとき  $\tau$  は光路1に対する光路2の遅延時間である。

ここで入射光の自己相関  $C_A(\tau)$  は

$$\begin{aligned} C_A(\tau) &= \langle E_{\text{in}}(t) E_{\text{in}}^*(t+\tau) \rangle \\ &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T E_{\text{in}}(t) E_{\text{in}}^*(t+\tau) dt \end{aligned} \quad (3.1)$$

一方、入射光と試料透過光の間の相互相関  $C_C(\tau)$  は

$$\begin{aligned} C_C(\tau) &= \langle E_{\text{in}}(t) E_{\text{out}}^*(t+\tau) \rangle \\ &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T E_{\text{in}}(t) E_{\text{out}}^*(t+\tau) dt \end{aligned} \quad (3.2)$$

となる。

線形応答理論によると入射光電場  $E_{\text{in}}(t)$  と試料透過光電場  $E_{\text{out}}(t)$  の間には次の

$$E_{\text{out}}(t) = \int_{-\infty}^t dt' h(t-t') E_{\text{in}}(t') \quad (3.3)$$

ような関係がある。ここで  $h(t)$  は試料のインパルス応答関数である。

この関係を用いると自己相関  $C_A(\tau)$  と相互相関  $C_C(\tau)$  の関係は

$$C_C(\tau) = \int_{-\infty}^{\tau} d\tau' h(\tau-\tau') C_A(\tau') \quad (3.4)$$

となる。式(3.3)と(3.4)を比較すると全く同じ形になっている。このことに着目すると入射光電場  $E_{\text{in}}(t)$  は白色光の自己相関  $C_A(\tau)$  に、透過光電場  $E_{\text{out}}(t)$  は相互相関  $C_C(\tau)$  にそれぞれ対応している。すなわち自己相関と同じ波形の光パルスが試料に入射したときの透過光電場の波形が相互相関と同じ形になる、ということの意味している。

Wiener-Khintchine の定理によると自己相関と強度スペクトルはフーリエ変換対になっている[37]。このことは強度スペクトルの周波数幅が広くなればなるほどその光の自己相関の時間幅は狭くなるということの意味している。そこでスペクトル幅の広い白色光源を用いることで超短パルスレーザーを用いること



なく非常に短いパルス幅の入射光に対する試料の応答を観測することが出来るのである。





### 3.1.2 実験およびその結果

本研究で用いた白色光マイケルソン干渉計を図 3.2 に示す[14,38,39]。

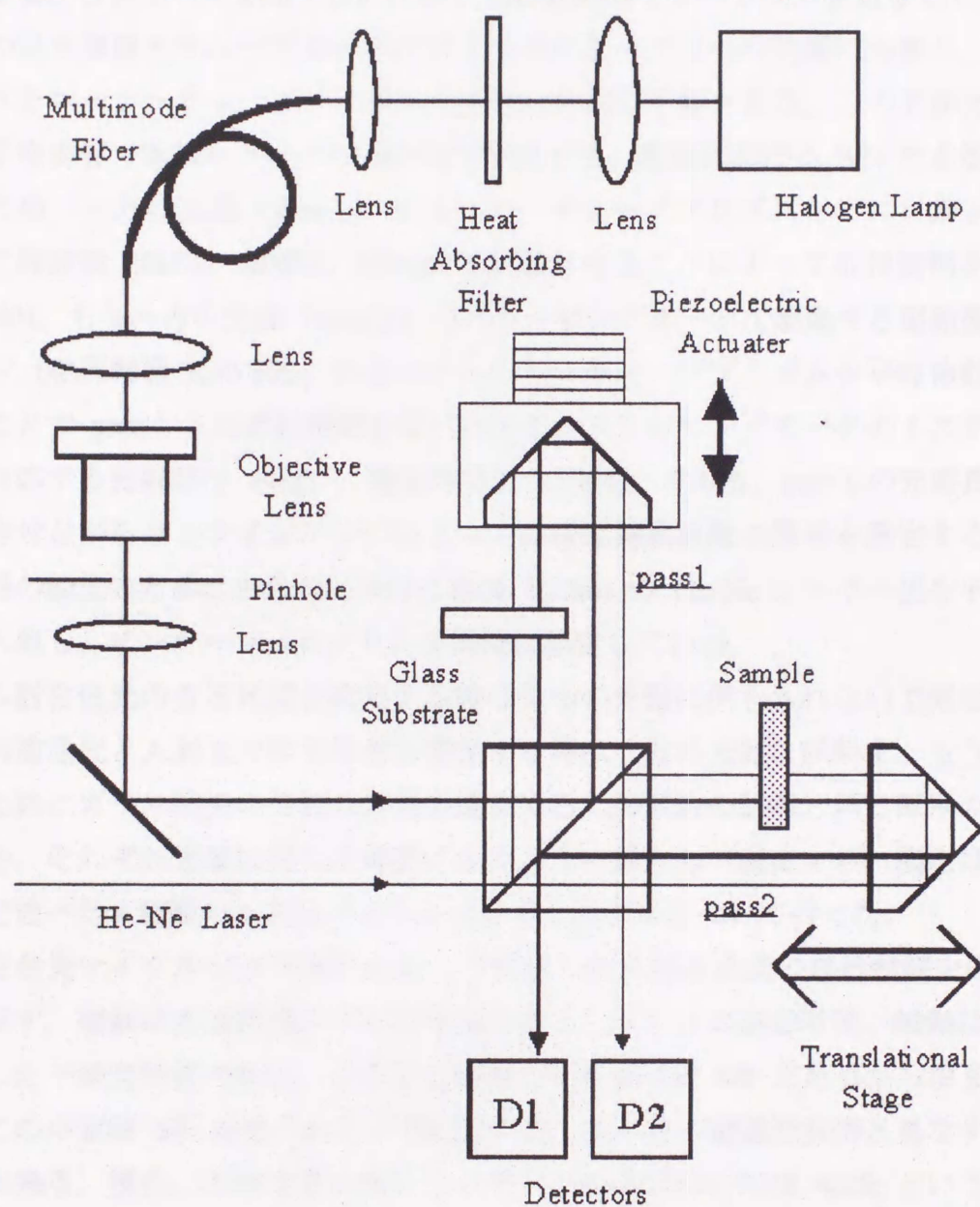


図 3.2: 白色光マイケルソン干渉計

白色光源としてスライドプロジェクター用のハロゲンランプ（LPL 社ピンスポットライト PSL-2000）を用いた。光源から出た光はレンズで集光されマルチモードファイバーに入射する。熱によるファイバーのダメージを避けるため、



熱吸収フィルターを光ファイバーの前に挿入する。ファイバーから出てきた光をレンズで集光し、 $100\mu\text{m}$  のピンホールを通した後にレンズを用いて平行光線にする。ピンホールを通すことにより光の空間的コヒーレンスを良くしている。その光を無偏光キューブビームスプリッタによって2つの光路に分割し、それぞれをコーナーキューブプリズムで反射させ再び干渉させる。この干渉光を光電子増倍管（浜松ホトニクス R955）で検出する。測定における S/N 比を改善するため、一方の光路（pass 1）のコーナーキューブプリズムをピエゾ素子によって周波数 20kHz、振幅約 250nm で振動させることによって位相変調をかける[40]。もう一方の光路（pass 2）はステッピングモータで駆動する超微動ステージ（駿河精機 R10-80L）によってコーナーキューブプリズムを平行移動させることで pass 1 との遅延時間を変化させる。ステッピングモータの1ステップに対応する光路差は 44nm、遅延時間は 0.1466fs である。pass 1 の光路長を変化させながらロックインアンプによって位相変調周波数の信号を測定する。光路長の較正のために白色光に平行に波長 633nm の He-Ne レーザー光を干渉計に入射し、インターフェログラムを同時に測定している。

入射白色光の自己相関を測定する時は2つの光路に何も入れないで測定する。試料透過光と入射光の相互相関を測定する時は一方の光路に試料を、もう一方の光路にガラス基板の分散の効果を補正するため試料の基板と同じ厚みのガラスを、それぞれ光線に対して垂直になるように挿入して測定する。測定は第2章で述べた4種類の1次元フォトリッククリスタルについて行った。

白色光マイケルソン干渉計によって測定した入射白色光の自己相関を図 3.3 に示す。横軸は自己相関の中心を時間原点としたときの遅延時間、縦軸は規格化した干渉光強度である。この自己相関の半値幅は約 6fs であるから相互相関はこの半値幅 6fs の光パルスが試料に入射したときの透過光波形と見なすことが出来る。現在、世界で最も短いレーザーパルスにおいては 4.5fs という値が得られている[36]。この値は光パルスの強度の半値全幅であり、本研究の値と単純に比較はできないが、この様な超短光パルスに匹敵する時間分解能を有していることがいえる。

この自己相関をフーリエ変換して得た白色光の強度スペクトルを図 3.4 に示す。これによると本実験においては光の周波数で中心約 470THz、半値幅約 130THz、波長では中心約 640nm、半値幅 170nm の光を用いていることになる



が、これは主に検出器の感度によって決まっている。よって検出出来る波長幅  
が広い検出器を用いるか、あるいは複数の検出器を併用することでさらに広い  
波長域を検出できる。そうすれば自己相関においてさらに短い半値幅を得るこ  
とが出来、より高い時間分解分光が可能となる。

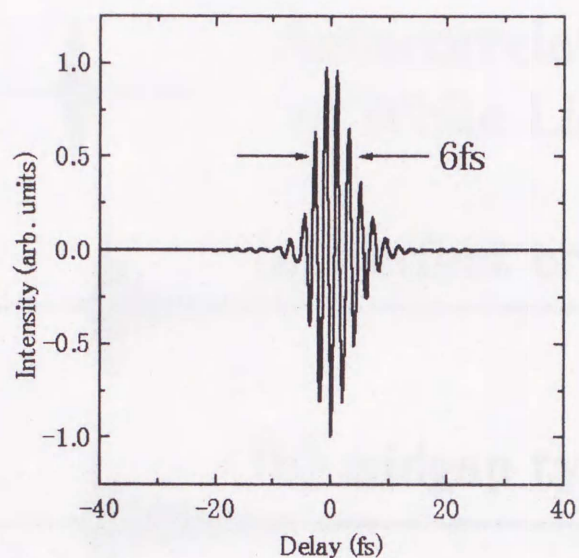


図 3.3: 白色光の自己相関

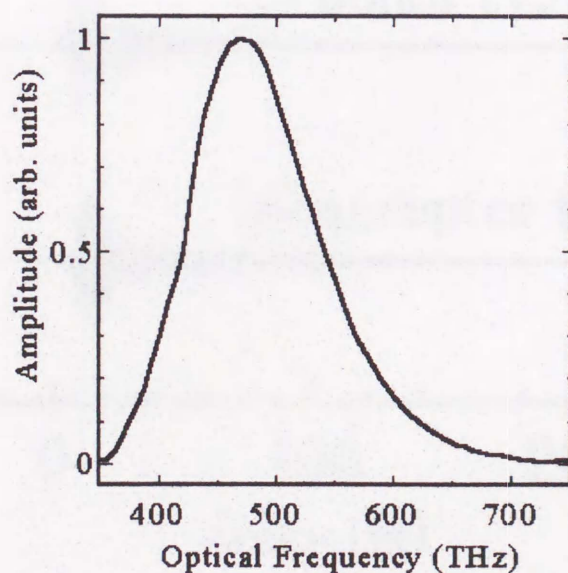


図 3.4: 白色光の強度スペクトル



図 3.5 に 1 次元フォトニッククリスタル試料透過光と入射光の相互相関の測定結果を示す。

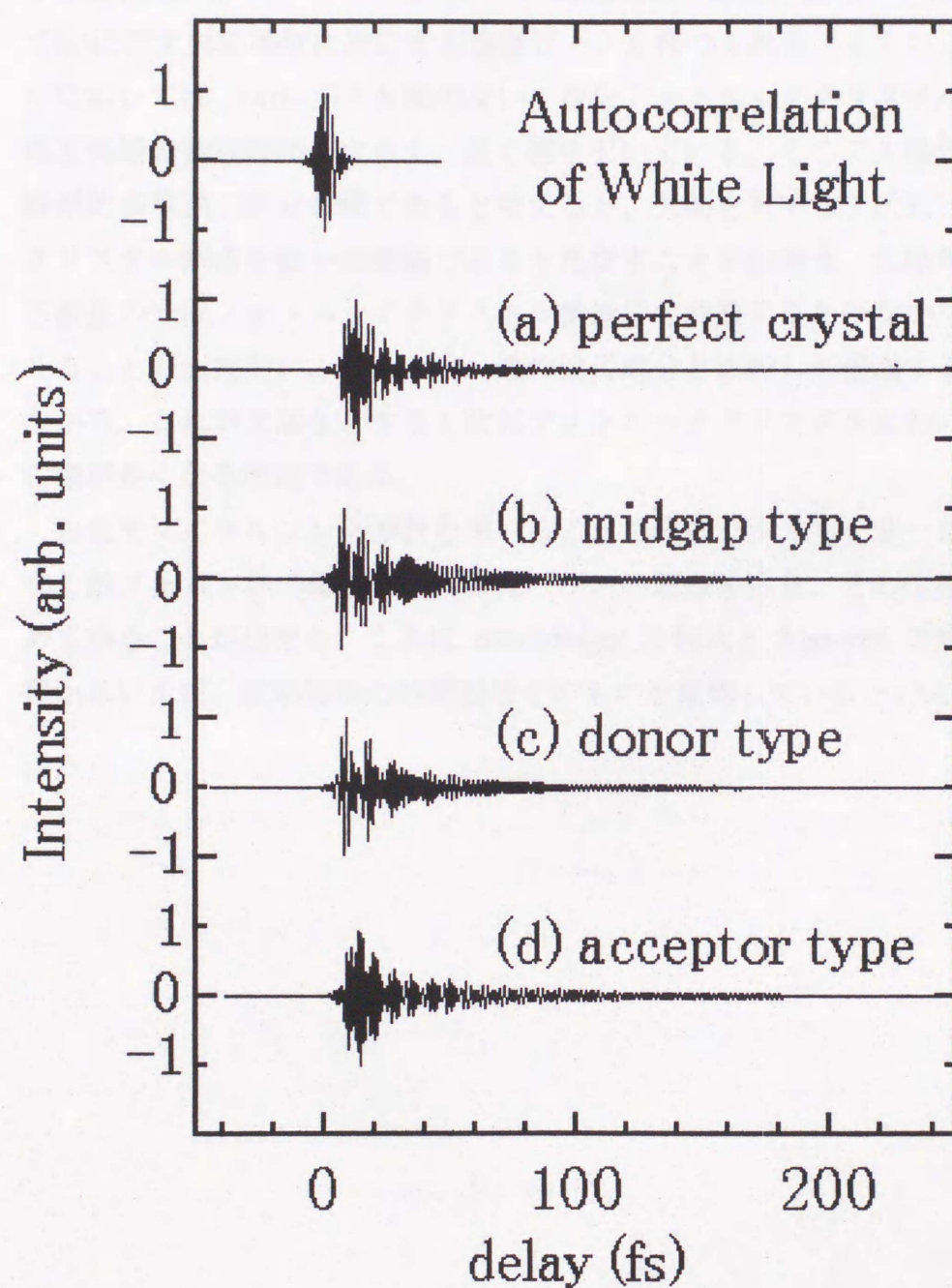


図 3.5: 1 次元フォトニッククリスタル試料透過光と入射光の相互相関



(a)、(b)、(c)、そして(d)はそれぞれ欠陥のない1次元フォトリッククリスタル、ミッドギャップ型の欠陥を有する1次元フォトリッククリスタル、ドナー型の欠陥を有する1次元フォトリッククリスタル、そしてアクセプタ型の欠陥を有する1次元フォトリッククリスタルの相互相関である。図 3.5 の(b)、(c)、そして(d)に示す欠陥準位に対応する透過ピークを持つ1次元フォトリッククリスタルにおいては、(a)に示す欠陥のない1次元フォトリッククリスタルと比較して相互相関の減衰時間が大きく、長く裾を引いている。ここで欠陥の両側にある周期的多層膜の部分を経路であると考えると、欠陥を有する1次元フォトリッククリスタル構造を微小共振器であると見なすことが出来る。欠陥準位に対応する波長の光はフォトリッククリスタル構造中で共振するためなかなか外に出てくることが出来ない。そのため、他の波長成分と比較して透過するのに時間がかかる。これが欠陥を有する1次元フォトリッククリスタルにおいて相関波形の裾が長くなる理由である。

白色光マイケルソン干渉計を用いることで超短パルスレーザーを用いることなく数フェムト秒の幅を持つ入射光パルスの透過特性を、その位相情報まで含めて得ることが出来る。これは Schrödinger 方程式と Maxwell 方程式の対応関係からいえば、波動関数の時間波形そのものを観測しているといえる。



## 3.2 フーリエ分光

### 3.2.1 理論

1次元フォトリッククリスタルのバンド構造を観測するため白色光マイケルソン干渉計によるフーリエ分光を行った。これは第3章第1節で得られた相関関数をフーリエ変換することによって行われる。一般にフーリエ分光は主に赤外領域の分光において発達し、現在多くのフーリエ変換赤外分光計が市販されている。これは図3.1の(1)の位置に試料を挿入し、試料透過光の自己相関を測定し、これをフーリエ変換することで試料透過光の強度スペクトルを得るものである。試料を挿入しないときの入射光の自己相関のフーリエ変換、すなわち入射光の強度スペクトルとの比を取ることで試料の透過率を得ることが出来る。

しかし、本研究で行ったフーリエ分光は、前述の一般的なフーリエ分光とは2つの点で異なっている。1つは分光する波長域が赤外領域ではなく可視光領域であるという点である。もう1つは測定する相関関数は試料透過光の自己相関ではなく、入射光と試料透過光の相互相関であるという点である。これは第3章第1節で述べたように図3.1の(2)の位置に試料を挿入することによって測定できる。この測定した相互相関をフーリエ変換することで試料の複素透過係数を得ることが出来る。この方法により試料の透過率のみならず透過の際の光の位相変化をも得ることが出来る。この位相変化とは第2章第1節で述べた位相スペクトルのことであり、すなわち試料中の光の分散関係を求めることに相当する[14]。これによって1次元フォトリッククリスタルのバンド構造を観測した。

入射光電場  $E_{in}(t)$ 、透過光電場  $E_{out}(t)$ 、そして試料のインパルス応答関数  $h(t)$  のフーリエ変換をそれぞれ  $E_{in}(\omega)$ 、 $E_{out}(\omega)$  そして  $H(\omega)$  とすると式(3.3)の関係から

$$E_{out}(\omega) = H(\omega) \cdot E_{in}(\omega) \quad (3.5)$$

という関係が成り立つ。ここで  $H(\omega)$  を伝達関数という。また複素透過係数  $t(\omega)$  は



$$t(\omega) = \frac{E_{\text{out}}(\omega)}{E_{\text{in}}(\omega)} \quad (3.6)$$

と定義されるから、この伝達関数  $H(\omega)$  は複素透過係数  $t(\omega)$  そのものである。

第3章第1節において式(3.3)と式(3.4)が同じ形で表されることについて述べたが、フーリエ変換したのも同様の関係が成り立つ。自己相関  $C_A(\tau)$  および相互相関  $C_c(\tau)$  のフーリエ変換をそれぞれ  $C_A(\omega)$  および  $C_c(\omega)$  とすれば式(3.4)から

$$C_c(\omega) = H(\omega) \cdot C_A(\omega) \quad (3.7)$$

という関係が成り立つ。よって白色光マイケルソン干渉計で測定した自己相関  $C_A(\tau)$  と相互相関  $C_c(\tau)$  をフーリエ変換してその比をとることで、試料の伝達関数  $H(\omega)t(\omega)$ 、すなわち試料の複素透過係数  $t(\omega)$  を得ることが出来るのである。

$$t(\omega) = |t(\omega)| \exp\{i\phi(\omega)\} \quad (3.8)$$

複素透過係数  $t(\omega)$  は

と表される。ここで  $|t(\omega)|$  は振幅透過率、 $\phi(\omega)$  は入射光と透過光の間の位相差である。ここで得られる位相は  $2\pi$  の整数倍の不定性を持つので図3.6のように連続的につながるように修正した。

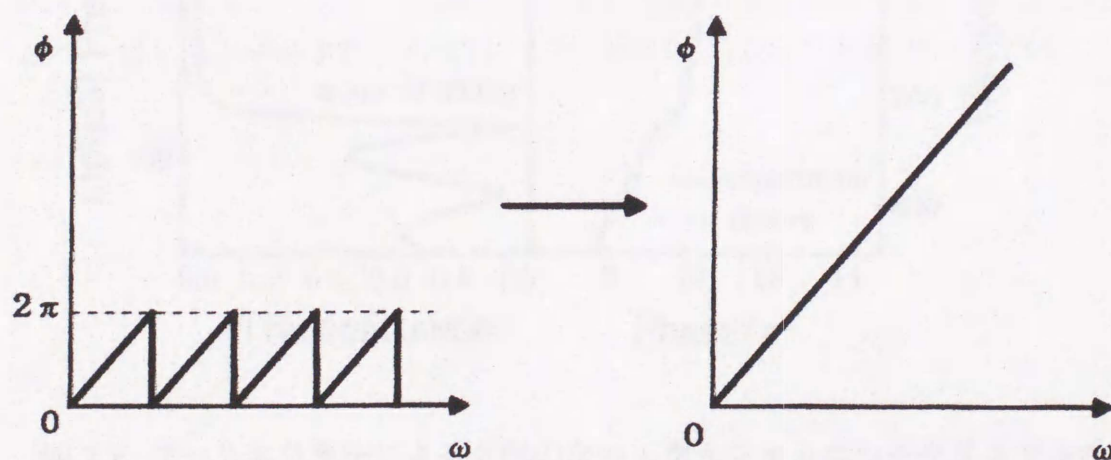


図 3.6: 位相スペクトルの修正法



### 3.2.2 実験結果

図 3.5 に示した相互相関をフーリエ変換すると試料の複素透過係数が求まる。この振幅部分である振幅透過率を自乗した透過率スペクトルと位相部分である位相スペクトルを図 3.7、図 3.8、図 3.9 そして図 3.10 に示す。それぞれ欠陥のない 1 次元フォトニック結晶、ドナー型の欠陥を持つ 1 次元フォトニック結晶、アクセプタ型の欠陥を持つ 1 次元フォトニック結晶、ミッドギャップ型の欠陥を持つ 1 次元フォトニック結晶である。また(a)が透過スペクトル、(b)が位相スペクトルである。縦軸は左側が周波数、右側が波長で、横軸は(a)が透過率、(b)が位相を $\pi$ で割ったものである。また(a)において実線はフーリエ分光による結果、破線は分光器による測定の結果である。(b)において実線はフーリエ分光による結果、破線は理論計算の結果である。

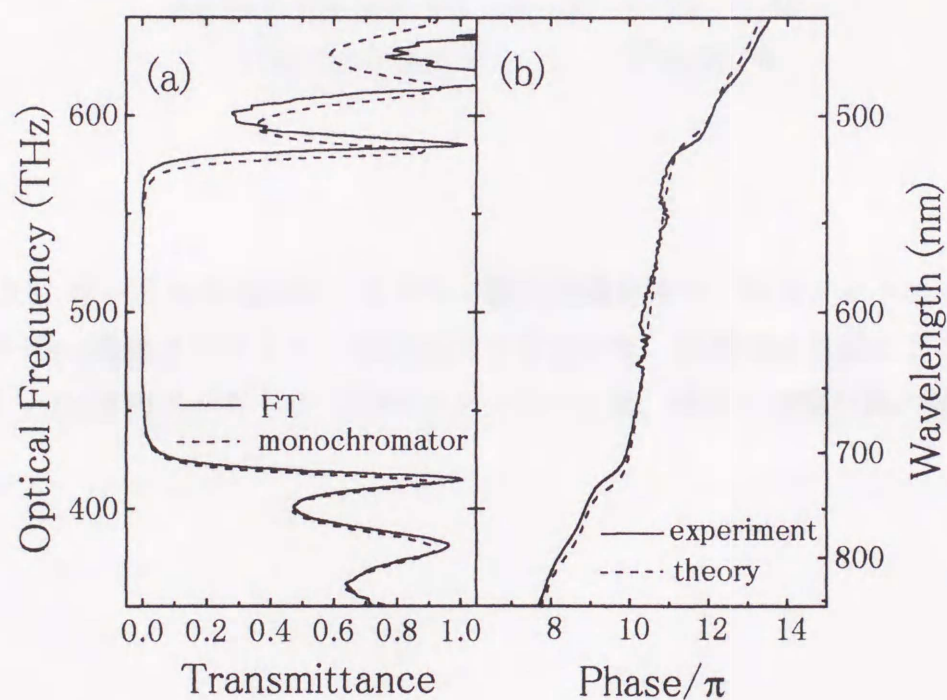


図 3.7: フーリエ分光法による欠陥のない 1 次元フォトニック結晶の (a)透過スペクトル (実線はフーリエ分光、破線は分光器による測定の結果) と (b)位相スペクトル (実線はフーリエ分光、破線は理論計算の結果)



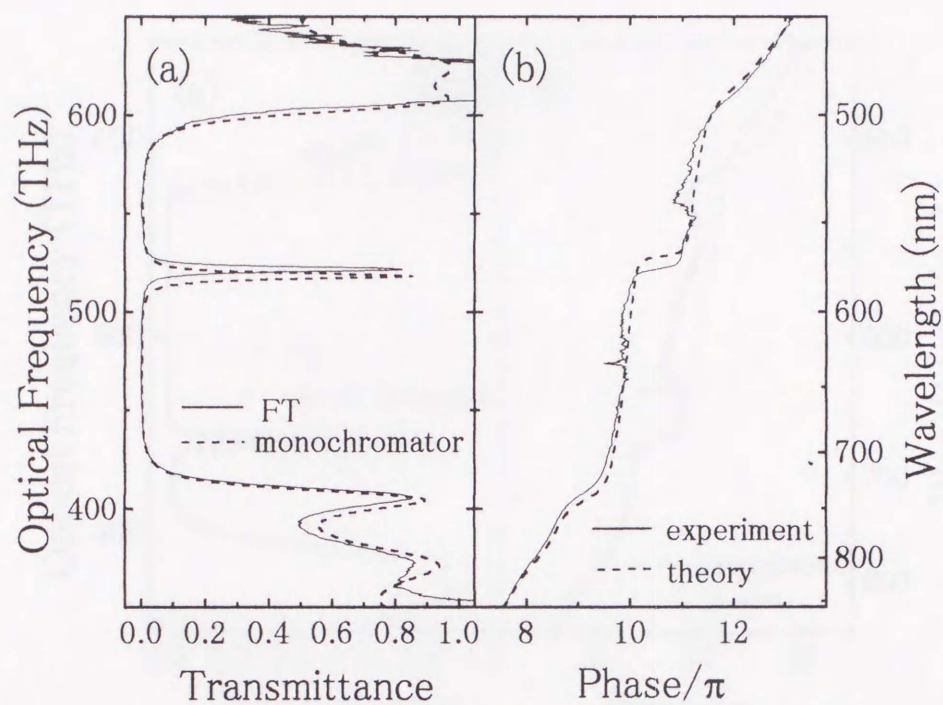


図 3.8: フーリエ分光法によるドナー型の欠陥を持つ 1 次元フォトニッククリスタルの (a) 透過スペクトル (実線はフーリエ分光、破線は分光器による測定の結果) と (b) 位相スペクトル (実線はフーリエ分光、破線は理論計算の結果)



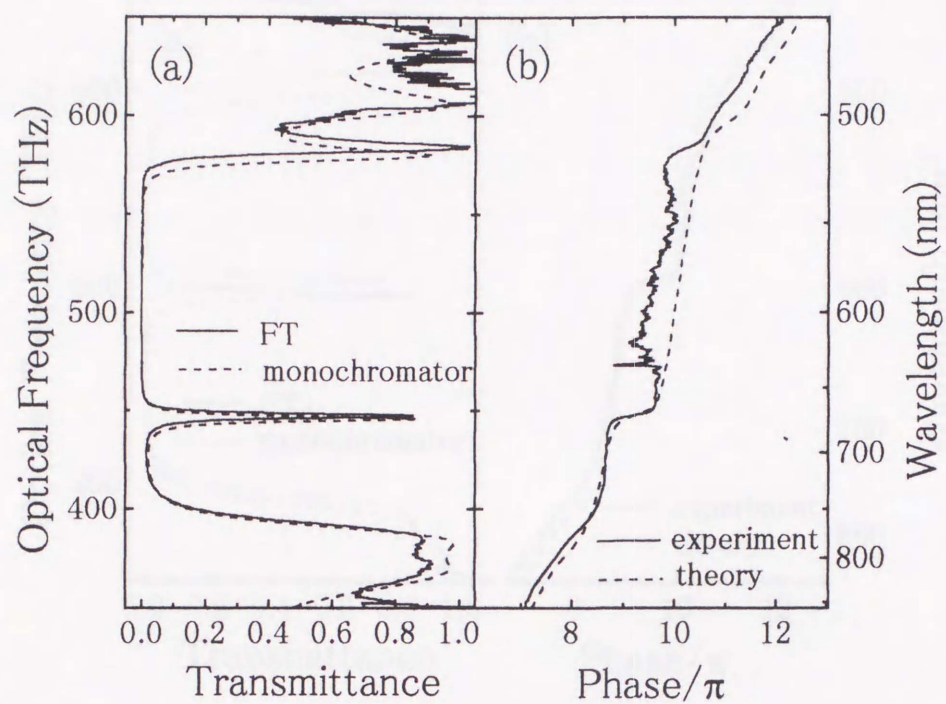


図 3.9: フーリエ分光法によるアクセプタ型の欠陥を持つ1次元フォトニッククリスタルの(a)透過スペクトル (実線はフーリエ分光、破線は分光器による測定の結果) と(b)位相スペクトル (実線はフーリエ分光、破線は理論計算の結果)



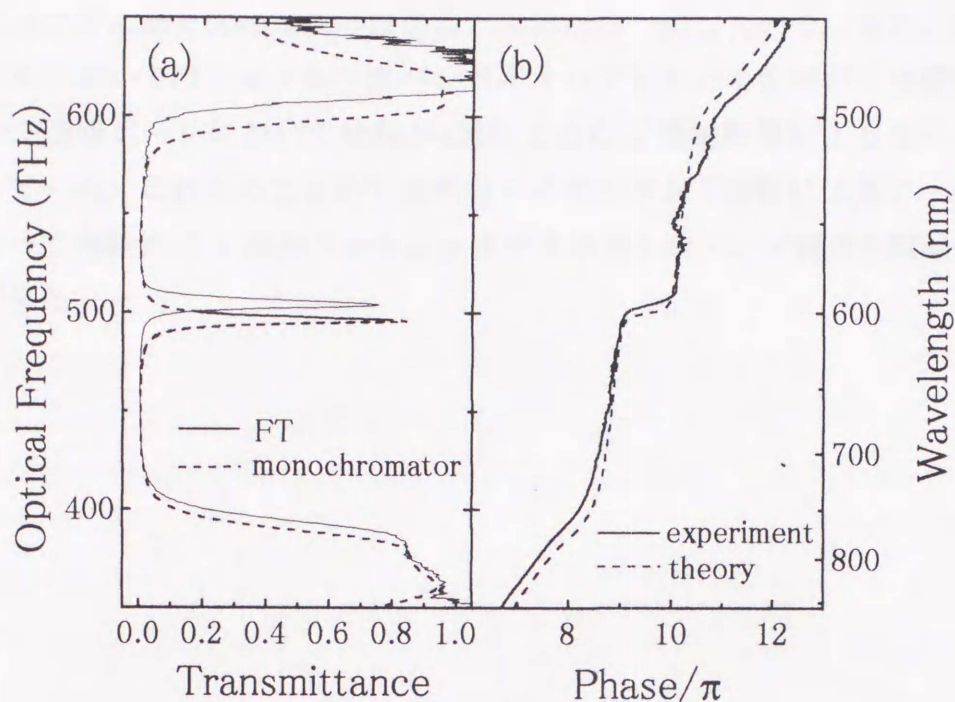


図 3.10: フーリエ分光法によるミッドギャップ型の欠陥を持つ1次元フォトニック結晶の(a)透過スペクトル（実線はフーリエ分光、破線は分光器による測定の結果）と(b)位相スペクトル（実線はフーリエ分光、破線は理論計算の結果）

今回の実験において試料のガラス基板と補正のために挿入したガラス基板の厚みがわずかながら異なっているために、フーリエ分光によって得られた位相スペクトルの傾きは正しい値とならない。つまり完全にガラス基板の厚みの補正がなされていないということである。理論計算によって得られた位相スペクトルの傾きとの違いから、これらの厚みの違いは試料によってそれぞれ異なるが数 $\mu\text{m}$ のオーダーであることがわかった。以下のフーリエ分光法で得られた位相スペクトルは理論計算値と合わせることでガラス基板の厚みの違いを補正し、傾きを修正したものである。



通常の分光測定によって得られた透過スペクトルと比較して、フーリエ分光によって得られた透過スペクトルにおいてはフォトニックバンドギャップの位置やギャップ中にある欠陥準位の波長などおおむね一致している。また、位相スペクトルにおいてはフォトニックバンドギャップにおいて位相が不連続になることや透過ピークにおいて位相が $\pi$ 進むことなど理論計算によるものとはほぼ一致している。これらのことから白色光マイケルソン干渉計によるフーリエ分光によって実験的に 1 次元フォトニッククリスタルのバンド構造を観測することができた。



図 4.1 1 次元フォトニッククリスタル中の電磁波の伝播

これによると、フォトニックバンドギャップ中において電場の振幅がゼロになっていることがわかる。これは、電場の振幅がゼロであるため、電場のエネルギーがゼロであるためである。もし、フォトニックバンドギャップ中において電場の振幅がゼロでない場合、電場のエネルギーがゼロでないため、電場のエネルギーがゼロでないためである。そこで、この現象について考察する。



## 第4章 1次元フォトニッククリスタル構造における光強度の増強

### 4.1 光強度の増強

これまでの章において1次元フォトニッククリスタルの線形的な光学特性について述べてきた。この章以降では1次元フォトニッククリスタルの非線形光学特性について述べる。欠陥を有する1次元フォトニッククリスタルがいわゆる微小共振器と見なせることは第2章、第3章において述べたが、欠陥準位に対応する波長の光を入射させた場合の1次元フォトニッククリスタル中における光電場パターンは特性行列の手法により計算すると図4.1のようになる。

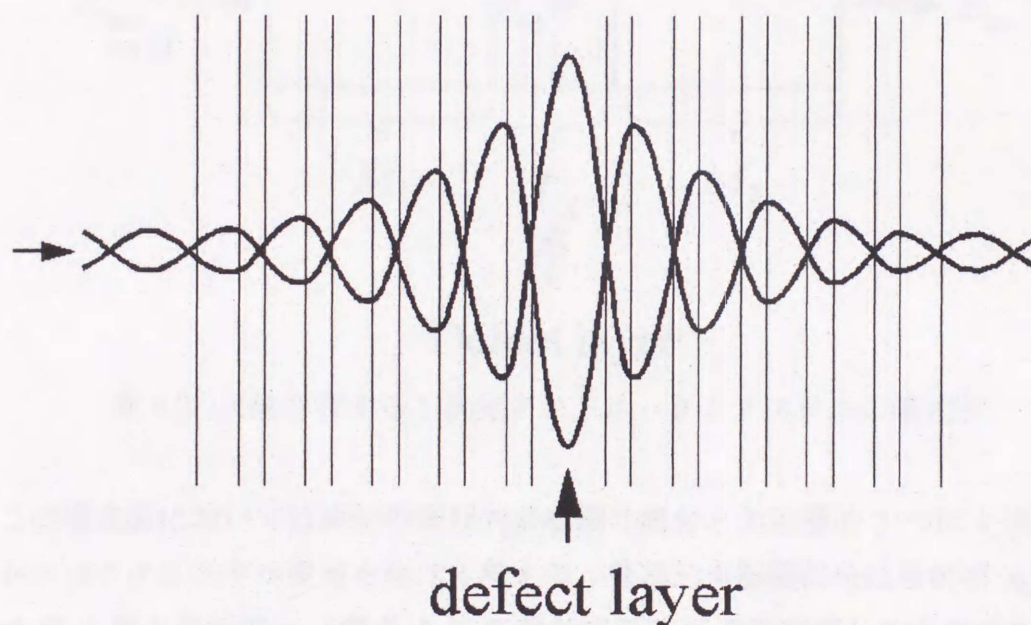


図4.1: 欠陥を有する1次元フォトニッククリスタル中の電場パターン

これによると多重反射により欠陥層近傍において光が局在するために電場が増強されていることがわかる。光強度は電場の2乗に比例して増強されるので、もし欠陥層媒質が光学的非線形性を持つならばこの増強された光強度に起因して非線形光学効果が大きく増強されることが期待される。そこで本節においてはこの光強度の増強について考察する。



これまでの章においては 1 次元フォトニッククリスタル構造中の各層はすべて透明な媒質であるとしてきたが、本章以降においては欠陥層に吸収がある場合を考える。まず、欠陥層に吸収があった場合に欠陥準位に対応する透過ピークの透過率がどのように変化するかについて述べる[25]。

欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタル構造中の各位置における電場を図 4.2 のように定義する。

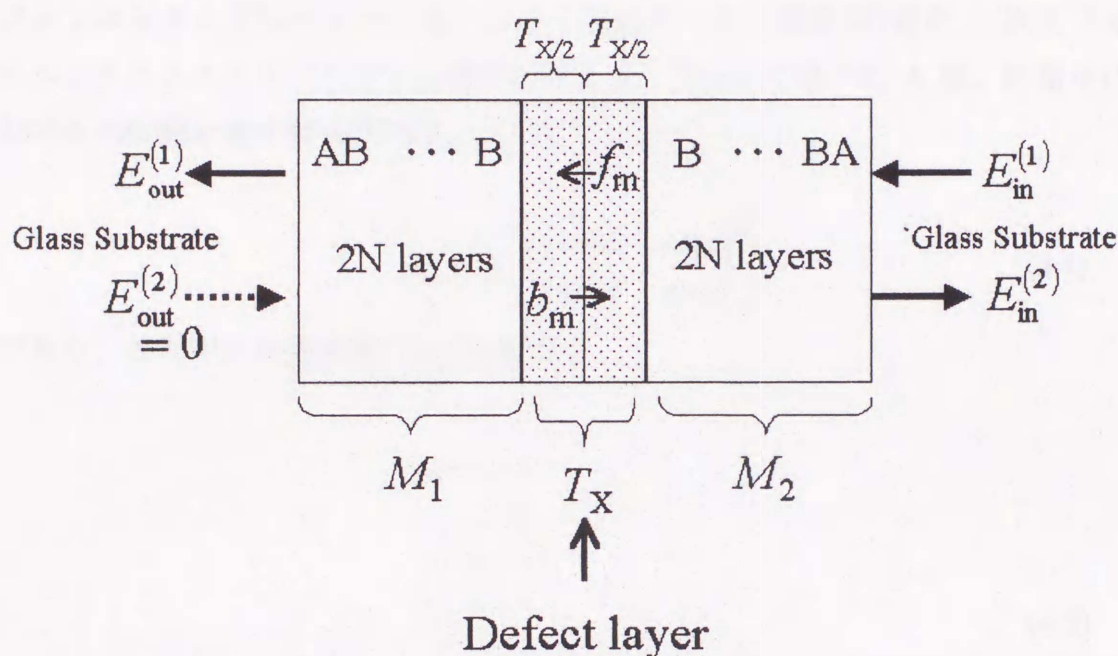


図 4.2: 欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタルの模式図

この模式図においては両側の周期的多層膜の部分と欠陥層の 3 つに 1 次元フォトニッククリスタル構造を分けて考える。周期的多層膜部分は屈折率  $n_A$ 、厚さ  $d_A$  の A 層と屈折率  $n_B$ 、厚さ  $d_B$  の B 層が交互に  $N$  周期積層したものである。また、周期的部分の外側は屈折率  $n_g$  のガラス基板であるとする。ここで

$$n_B > n_A \quad (4.1)$$

であるとする。また、各層の光学膜厚は

$$n_A d_A = n_B d_B = \lambda/4 \quad (4.2)$$



とする。欠陥層部分は吸収がある場合を考慮して媒質の複素屈折率を  $n_x + i\kappa$  とする。ここで  $n_x$  は屈折率、 $\kappa$  は消衰係数である。欠陥層の光学膜厚は

$$n_x d_x = \lambda/2 \quad (4.3)$$

とする。このような条件で 1 次元フォトニッククリスタルを作製した場合、欠陥による局在準位が形成され、透過ピークがフォトニックバンドギャップの中央に出現する。これは第 2 章第 1 節において述べたミッドギャップ型の 1 次元フォトニッククリスタルである。ここで透過ピークの波長  $\lambda$  の光を 1 次元フォトニッククリスタルに入射する場合を考える。式(2.6)で述べた A 層、B 層中における光伝搬を表す特性行列  $T_A$ 、 $T_B$  は

$$T_A = T_B = \begin{pmatrix} \cos \delta & -\sin \delta \\ \sin \delta & \cos \delta \end{pmatrix} \quad (4.4)$$

であり、ここで入射光波長は  $\lambda$  であるから

$$\begin{aligned} \delta &= nd \cdot k \\ &= \frac{\lambda}{4} \cdot \frac{2\pi}{\lambda} \\ &= \frac{\pi}{2} \end{aligned} \quad (4.5)$$

となる。よって式(4.4)は

$$T_A = T_B = \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.6)$$

となる。また欠陥層中における光伝搬を表す特性行列  $T_x$  は

$$T_x = \begin{pmatrix} \cos \delta_x & -\sin \delta_x \\ \sin \delta_x & \cos \delta_x \end{pmatrix} \quad (4.7)$$

となり、ここで



$$\begin{aligned}
\delta &= (n_x + i\kappa)d \cdot k \\
&= (n_x + i\kappa) \cdot \frac{\lambda}{2n_x} \cdot \frac{2\pi}{\lambda} \\
&= \pi \left( 1 + i \frac{\kappa}{n_x} \right)
\end{aligned} \tag{4.8}$$

である。よって式(4.7)は

$$T_X = \begin{pmatrix} -\cosh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) & i\sinh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) \\ -i\sinh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) & -\cosh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) \end{pmatrix} \tag{4.9}$$

となる。また、欠陥層と B 層の界面における特性行列は

$$T_{BX} = T_{XB}^{-1} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \frac{n_x + i\kappa}{n_B} \end{pmatrix} \tag{4.10}$$

となる。

ここで周期的多層膜部分の特性行列を  $M_1$ 、 $M_2$  とすると

$$M_1 = \begin{pmatrix} (-n_B/n_A)^N & 0 \\ 0 & \frac{n_x + i\kappa}{n_g} (-n_A/n_B)^N \end{pmatrix} \tag{4.11}$$

$$M_2 = \begin{pmatrix} (-n_A/n_B)^N & 0 \\ 0 & \frac{n_g}{n_x + i\kappa} (-n_B/n_A)^N \end{pmatrix} \tag{4.12}$$

とかける。よって吸収層を含む試料全体の特性行列  $M$  は

$$M = M_2 T_X M_1 \tag{4.13}$$

となる。第 2 章第 1 節の式(2.11)を用いて欠陥準位に対応する透過ピークにおける透過率を計算すると



$$T = \frac{4}{\left| -2 \cosh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) - \sinh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) \left\{ \frac{n_g(-n_B/n_A)^{2N}}{n_x + i\kappa} + \frac{n_x + i\kappa}{n_g(-n_B/n_A)^{2N}} \right\} \right|^2} \quad (4.14)$$

となる。この式により欠陥層における透過ピークの透過率を求めることができる。

また、欠陥層の部分を2等分し、それぞれの部分の特性行列を  $T_{x/2}$  とすると

$$\begin{aligned} T_{x/2} &= \begin{pmatrix} \cos \delta_{x/2} & -\sin \delta_{x/2} \\ \sin \delta_{x/2} & \cos \delta_{x/2} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} -i \sinh\left(\frac{\pi\kappa}{2n_x}\right) & -\cosh\left(\frac{\pi\kappa}{2n_x}\right) \\ \cosh\left(\frac{\pi\kappa}{2n_x}\right) & -i \sinh\left(\frac{\pi\kappa}{2n_x}\right) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.15)$$

となる。

ここで  $E_{in}^{(1)}$ 、 $E_{in}^{(2)}$ 、そして  $E_{out}^{(1)}$  はそれぞれ入射光電場、反射光電場そして透過光電場であり、出口側からの光の入射はないので  $E_{out}^{(2)} = 0$  とする。また、欠陥層中央における  $+z$  方向の電場を  $f_m$ 、 $-z$  方向の電場を  $b_m$  とする。すると入射側、透過側、および欠陥層中央でのそれぞれの電場と特性行列との関係は

$$\begin{pmatrix} E_{out}^+ \\ E_{out}^- \end{pmatrix} = M_1 T_{x/2} \begin{pmatrix} E_m^+ \\ E_m^- \end{pmatrix} \quad (4.16)$$

$$\begin{pmatrix} E_m^+ \\ E_m^- \end{pmatrix} = T_{x/2} M_2 \begin{pmatrix} E_{in}^+ \\ E_{in}^- \end{pmatrix} \quad (4.17)$$

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_{out}^+ \\ E_{out}^- \end{pmatrix} &= M_1 T_{x/2} T_{x/2} M_2 \begin{pmatrix} E_{in}^+ \\ E_{in}^- \end{pmatrix} \\ &= M \begin{pmatrix} E_{in}^+ \\ E_{in}^- \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.18)$$

などとなる。ただし



$$\begin{aligned} E_m^+ &= f_m + b_m, \\ E_m^- &= \frac{f_m - b_m}{i} \end{aligned} \quad (4.19)$$

とする。入射光電場に対して中央の欠陥層における電場がどのようなになっているかについて述べる。式(4.16)から

$$\begin{pmatrix} E_m^+ \\ E_m^- \end{pmatrix} = T_{x/2}^{-1} M_1^{-1} \begin{pmatrix} E_{\text{out}}^+ \\ E_{\text{out}}^- \end{pmatrix} \quad (4.20)$$

となる。ここで

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_{\text{out}}^+ \\ E_{\text{out}}^- \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -i & i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\text{out}}^{(1)} \\ E_{\text{out}}^{(2)} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -i & i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} t \\ 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\text{in}}^{(1)} \\ E_{\text{in}}^{(2)} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.21)$$

であるから式(4.20)は

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_m^+ \\ E_m^- \end{pmatrix} &= \frac{-2E_{\text{in}}^{(1)}}{-2 \cosh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) - \sinh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) \left\{ \frac{n_g(-n_B/n_A)^{2N}}{n_x + i\kappa} + \frac{n_x + i\kappa}{n_g(-n_B/n_A)^{2N}} \right\}} \\ &\quad \times \begin{pmatrix} i \sinh\left(\frac{\pi\kappa}{2n_x}\right) (-n_A/n_B)^N + i \cosh\left(\frac{\pi\kappa}{2n_x}\right) \frac{n_g}{n_x + i\kappa} (-n_B/n_A)^N \\ \cosh\left(\frac{\pi\kappa}{2n_x}\right) (-n_A/n_B)^N + \sinh\left(\frac{\pi\kappa}{2n_x}\right) \frac{n_g}{n_x + i\kappa} (-n_B/n_A)^N \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.22)$$

となる。この式により入射光電場と欠陥層中央における電場との比がわかる。

ここで、欠陥層における光強度の入射光強度に対する増強度  $G$  を

$$G \equiv \frac{1}{d_x} \int_{-d_x/2}^{d_x/2} |E(z)|^2 d_x / |E_{\text{in}}^{(1)}|^2 \quad (4.23)$$

と定義する。これは欠陥層における光強度の空間平均と入射光強度の比を取ったものである。図 4.3 に示すように層に垂直な方向を  $z$  方向とし、欠陥層の中央を  $z$  軸の原点にとると欠陥層中の位置  $z$  における電場  $E^{(1)}(z)$ 、 $E^{(2)}(z)$  と欠陥層



中央における電場  $E_m^+$ 、 $E_m^-$  との間には

$$\begin{pmatrix} E^+(z) \\ E^-(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \delta(z) & -\sin \delta(z) \\ \sin \delta(z) & \cos \delta(z) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_m^+ \\ E_m^- \end{pmatrix} \quad (4.24)$$

という関係がある。ただし、

$$\begin{aligned} E^+(z) &= E^{(1)}(z) + E^{(2)}(z) \\ E^-(z) &= \frac{E^{(1)}(z) - E^{(2)}(z)}{i} \end{aligned} \quad (4.25)$$

である。

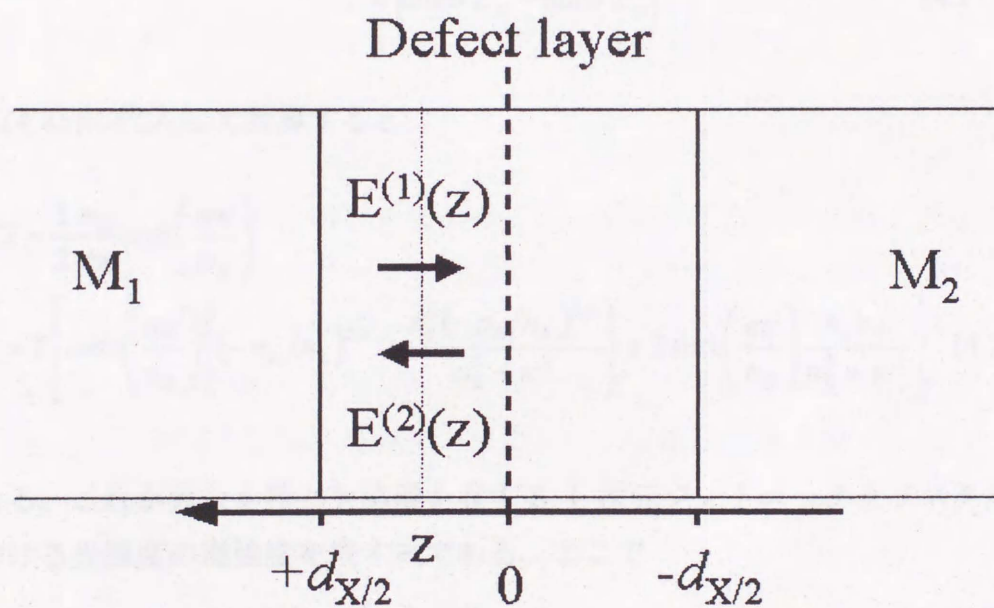


図 4.3: 1次元フォトニッククリスタル構造の欠陥層



ここで

$$\begin{aligned}\delta(z) &= (n_x + i\kappa)z \cdot \frac{2\pi}{\lambda} \\ &= \left(1 + i \frac{\kappa}{n_x}\right) \cdot \frac{z\pi}{d_x}\end{aligned}\quad (4.26)$$

である。欠陥層中の位置  $z$  における光強度

$$\begin{aligned}|E(z)|^2 &= |E^{(1)}(z) + E^{(2)}(z)|^2 \\ &= |E^+(z)|^2 \\ &= |\cos \delta E_m^+ - \sin \delta E_m^-|^2\end{aligned}\quad (4.27)$$

を式(4.23)に代入して計算すると

$$\begin{aligned}G &= \frac{1}{2} \frac{n_x}{\pi\kappa} \sinh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) \\ &\times T \left[ \cosh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) \left\{ (-n_A/n_B)^{2N} + \frac{n_g^2 (-n_B/n_A)^{2N}}{n_x^2 + \kappa^2} \right\} + 2 \sinh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) \frac{n_g n_x}{n_x^2 + \kappa^2} \right]\end{aligned}\quad (4.28)$$

となる。これが吸収を持つ欠陥層を有する 1 次元フォトニッククリスタル構造における光強度の増強度を表す式である。ここで

$$(n_B/n_A)^N \gg 1 \quad (4.29)$$

を満たすような場合、透過ピークの透過率を示す式(4.14)と欠陥層における光強度の増強度を示す式(4.27)は以下のように近似できる。



$$T = \frac{4}{\left[ 2 + \frac{\pi\kappa}{n_x} \left( \frac{n_B}{n_A} \right)^{2N} \right]^2}$$

$$G = \frac{T}{2} \left( \frac{n_B}{n_A} \right)^{2N} \quad (4.30)$$

ここで

$$n_x \gg \kappa \quad (4.31)$$

と仮定している。本研究においては A 層として  $\text{SiO}_2$ 、B 層として  $\text{TiO}_2$  を用いており、 $n_A=1.46$ 、 $n_B=2.35$  である。この場合、この近似は

$$N \geq 3 \quad (4.32)$$

のときに十分正しい。この事を踏まえて以下、本研究においてはこれらの式において  $N=5$  とする。透過ピークの透過率  $T$ 、および欠陥層における光強度の増強度  $G$  の計算結果を消衰係数  $\kappa$  の関数としてプロットすると図 4.4、4.5 のようになる。図 4.4 の縦軸は透過ピークの透過率  $T$ 、横軸は欠陥層媒質の消衰係数である。また、図 4.5 縦軸は光強度の増強度  $G$ 、横軸は消衰係数である。



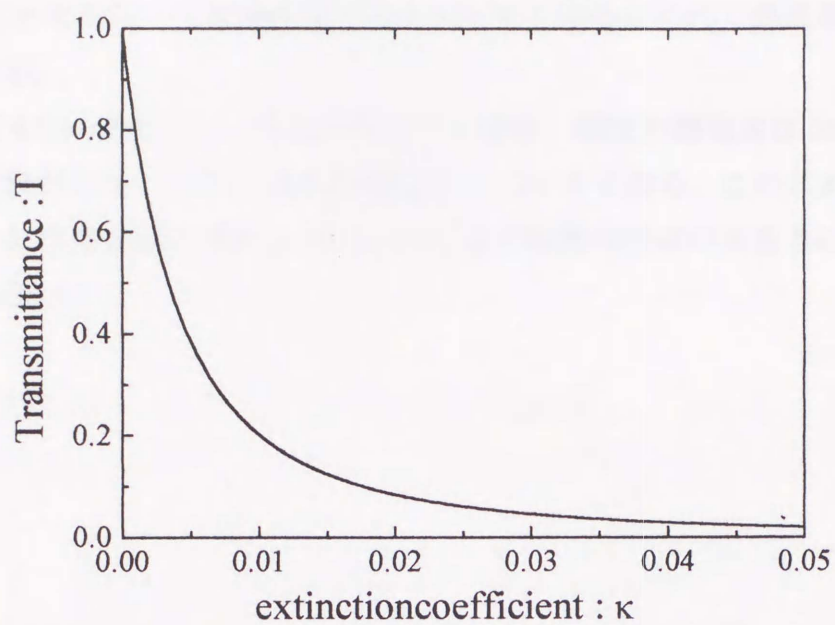


図 4.4: 透過ピークの消衰係数依存性

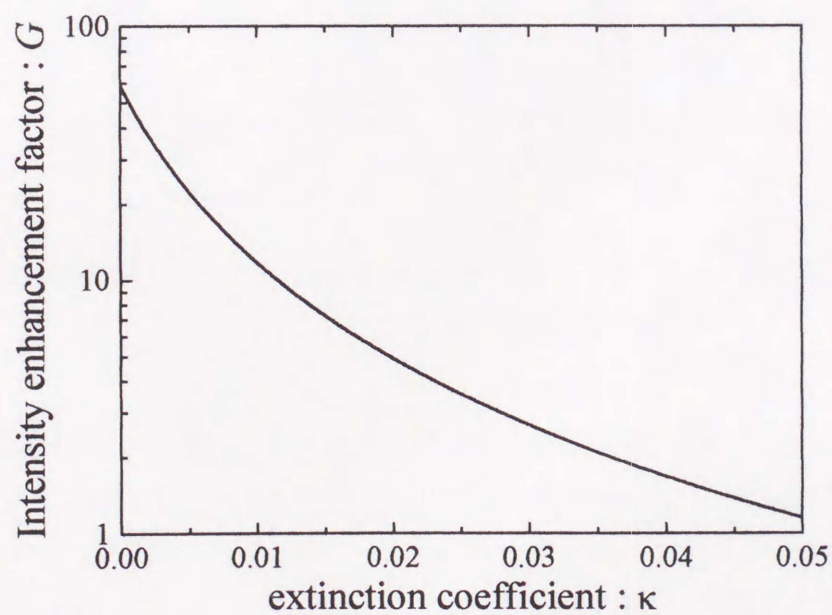


図 4.5: 1次元フォトニッククリスタル構造の欠陥層における  
光強度増強度の消衰係数依存性



図 4.4 に示すように消衰係数が 0、すなわち吸収がないとき透過ピークの透過率  $T$  は 1 となるが、欠陥層媒質の吸収が大きくなるにつれて透過率  $T$  は急激に小さくなる。

また図 4.5 に示すように吸収が全くない場合、強度の増強度は 50 倍にも達するが、吸収が大きくなるにつれて増強度  $G$  は小さくなる。このため、欠陥層における十分な光強度の増強を得るためには欠陥層の吸収の大きさに注意しなければならない。



図 4.4 透過率の計算に用いる三層系モデルの構造と寸法  
A: ガラス基板 B: 欠陥層 C: ガラス基板

図 4.5 は、図 4.4 の三層系モデルを用いて、透過率  $T$  と増強度  $G$  の計算結果を示している。図 4.4 のモデルでは、中央層 B の厚さが  $2\lambda/5$ 、両側層 A の厚さが  $\lambda/5$  と設定されている。図 4.5 のグラフは、中央層 B の吸収係数  $\alpha$  が 0 から 10 まで変化する際の透過率  $T$  と増強度  $G$  の変化を示している。透過率  $T$  は  $\alpha$  が 0 のときに 1.0 であり、 $\alpha$  が 10 になると 0.1 以下に急激に減少する。一方、増強度  $G$  は  $\alpha$  が 0 のときに 50 であり、 $\alpha$  が 10 になると 1.0 以下に急激に減少する。この結果から、透過率  $T$  と増強度  $G$  の両方を高く保つためには、中央層 B の吸収係数  $\alpha$  を低く保つ必要があることがわかる。



## 4.2 試料作製法

本研究においては非線形光学媒質を欠陥層とする 1 次元フォトニッククリスタルを実際に作製し、非線形光学効果の増強が起こっていることを実験的に確認した。欠陥層媒質としては有機色素分子を単分散させたポリビニルアルコール(PVA)フィルムを用いた。有機色素分子は可飽和吸収性を示すものとして良く知られており、本研究においてはこの吸収性の非線形光学効果を対象としている。前章までの実験においては単なる  $\text{SiO}_2$  と  $\text{TiO}_2$  の多層膜であったが、本章以降において実際に作製した 1 次元フォトニッククリスタルは図 4.6 に示すように有機色素分子を単分散させた PVA 薄膜を両側から 5 周期の  $\text{SiO}_2$  層と  $\text{TiO}_2$  層からなる周期的多層膜ではさんだような構造となっている。

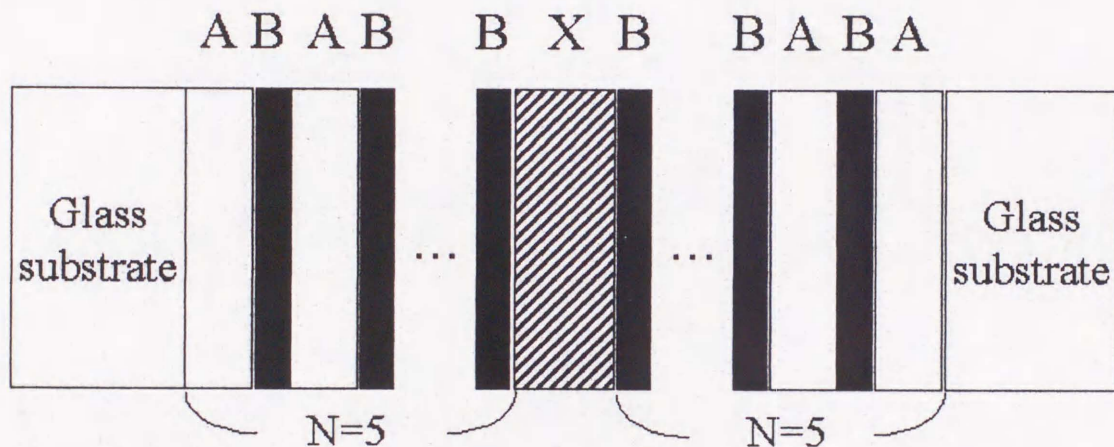


図 4.6: 有機色素分子を単分散させた PVA フィルムを欠陥層とする  
1 次元フォトニッククリスタル構造

試料の作製法について述べる。まず 5 周期の  $\text{SiO}_2$  層と  $\text{TiO}_2$  層からなる周期的多層膜を 2 つ用意する。そしてそれぞれの多層膜の表面に有機色素分子を単分散させた PVA 薄膜をスピコート法によって成膜し、その 2 つの PVA 薄膜側を向かい合わせて張り合わせる。こうして張り合わせた多層膜の両側から圧力をかけることで欠陥層を有する 1 次元フォトニッククリスタルを 1 つ作製することができる。この方法の場合、欠陥による局在準位に対応した透過ピークの波長は PVA 薄膜、すなわち欠陥層の厚さを変化させることで変えることができ



る。この PVA 薄膜の厚さはスピコートをする前の PVA 水溶液の粘性やスピコートにおける回転速度などを変えることで調整することができる。またピークの透過率は PVA 中に単分散させた色素の種類や濃度を変えることで自由自在に変化させることができる。用いた色素は行なう実験の状況に応じて様々である。この方法は安価にしかも簡便に試料が自由自在に作製できるというメリットがある。しかし、実際にこのように作製した場合に欠陥層である PVA 薄膜層と多層膜部分との界面で接触が不完全になりやすい。これはレーザー光を入射した場合に散乱の原因となるため、実験が困難なものとなるデメリットもある。このため試料作製は非常に困難であったが、試行錯誤の末に光学実験の使用に耐えられる 1 次元フォトニッククリスタル試料の作製に成功した。





## 4.3 吸収飽和実験

### 4.3.1 試料

理論的に予想される光強度の増強を確かめるために試料透過率の入射光強度依存性を調べた。光強度の増強が起こっているならば欠陥層中の色素による吸収の飽和が低い入射光強度で起こり始めることが期待できる。この実験で用いた色素はオキサジン 1(Oxazine1)である。オキサジン 1 の構造式を図 4.7 に示す。分子量は 423.90 である。

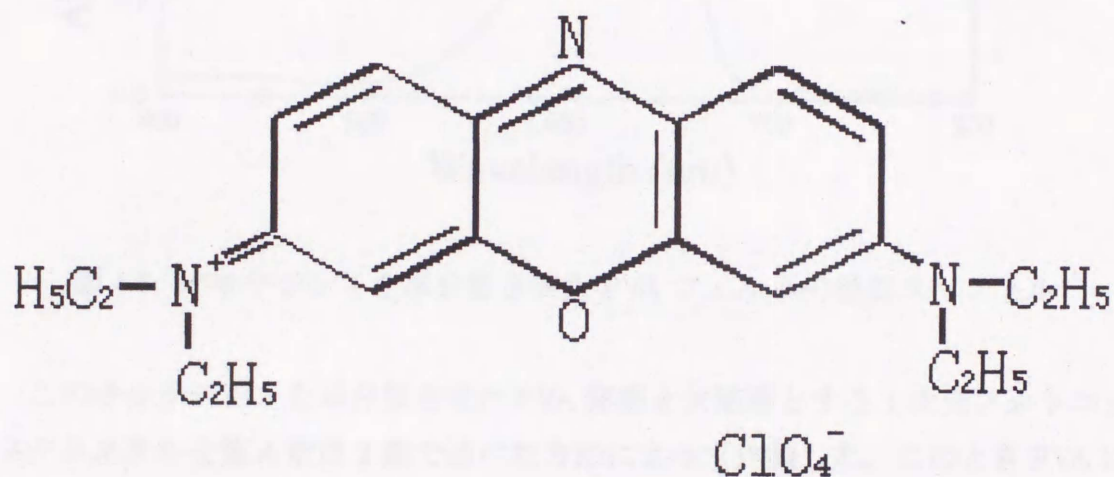


図 4.7: 有機色素分子オキサジン 1 の構造式

またオキサジン 1 分子を単分散させた PVA フィルムの吸収スペクトルは図 4.8 のようになっており波長 650nm 付近に吸収の極大がある。



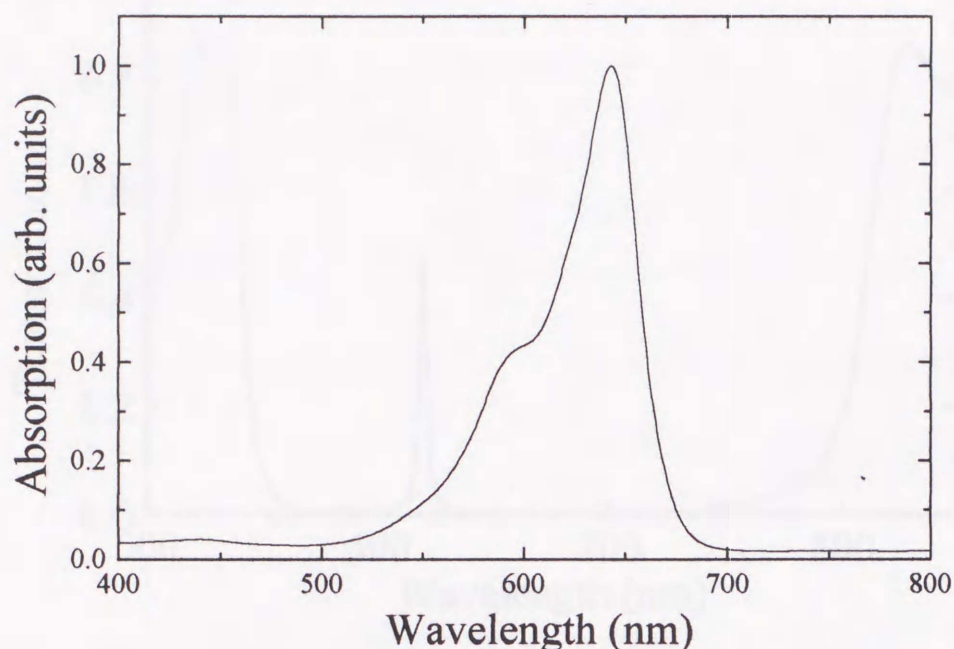


図 4.8: オキサジン 1 を単分散させた PVA フィルムの吸収スペクトル

このオキサジン 1 を単分散させた PVA 薄膜を欠陥層とする 1 次元フォトニック結晶を第 4 章第 2 節で述べた方法によって作製した。このとき PVA に対するオキサジン 1 の濃度は  $2.5 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$  であった。この 1 次元フォトニック結晶の透過スペクトルは図 4.9 のようになる。この時両側の周期的多層膜部分の各層の膜厚は  $640 \text{ nm}/4$  である。波長  $620 \text{ nm}$  の透過ピークは欠陥準位によるものである。また、透過ピークの透過率はオキサジン 1 分子の吸収のために約 50% となっている。吸収のために光強度の増強効果は抑制されるが、図 4.4 から透過ピークの透過率が 50% となるのは消衰係数  $\kappa=0.0033$  の場合であり、図 4.5 からこの場合、約 30 倍の光強度の増強度が期待される。また本実験においては比較のために、オキサジン 1 を単分散させた単なる裸の PVA キャストフィルムも作製し同様の実験も行っている。この裸の PVA フィルムの波長  $620 \text{ nm}$  における透過率は 50% で、これは 1 次元フォトニック結晶における透過ピークの透過率とまったく同じである。



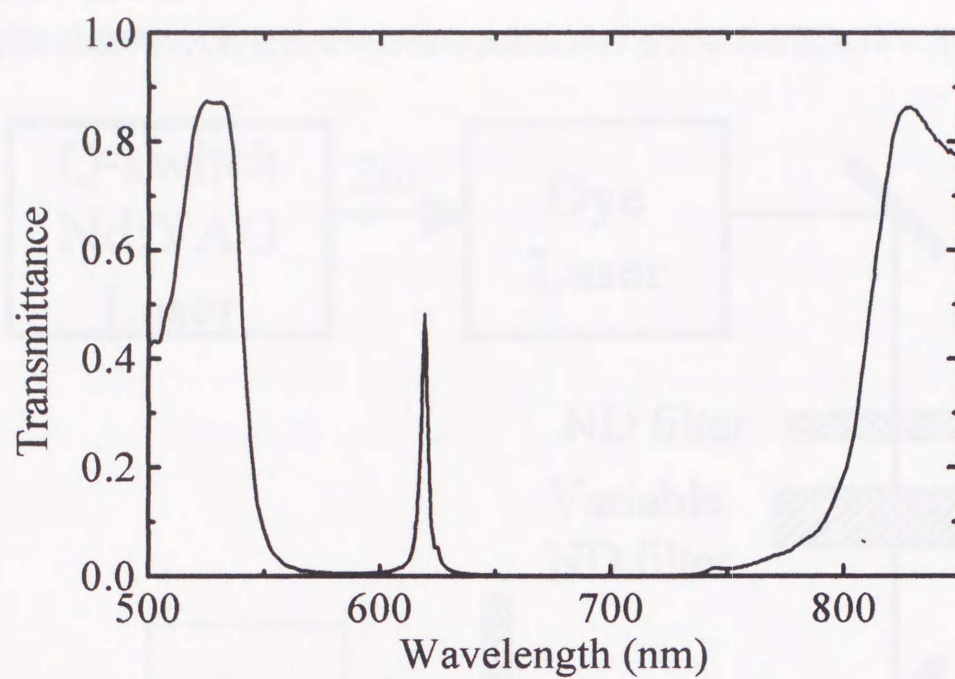


図 4.9: オキサジン 1 を単分散させた PVA 薄膜を欠陥層とする  
1 次元フォトリッククリスタルの透過スペクトル



### 4.3.2 実験系

試料透過率の入射光強度依存性の実験における光学系を図 4.10 に示す。

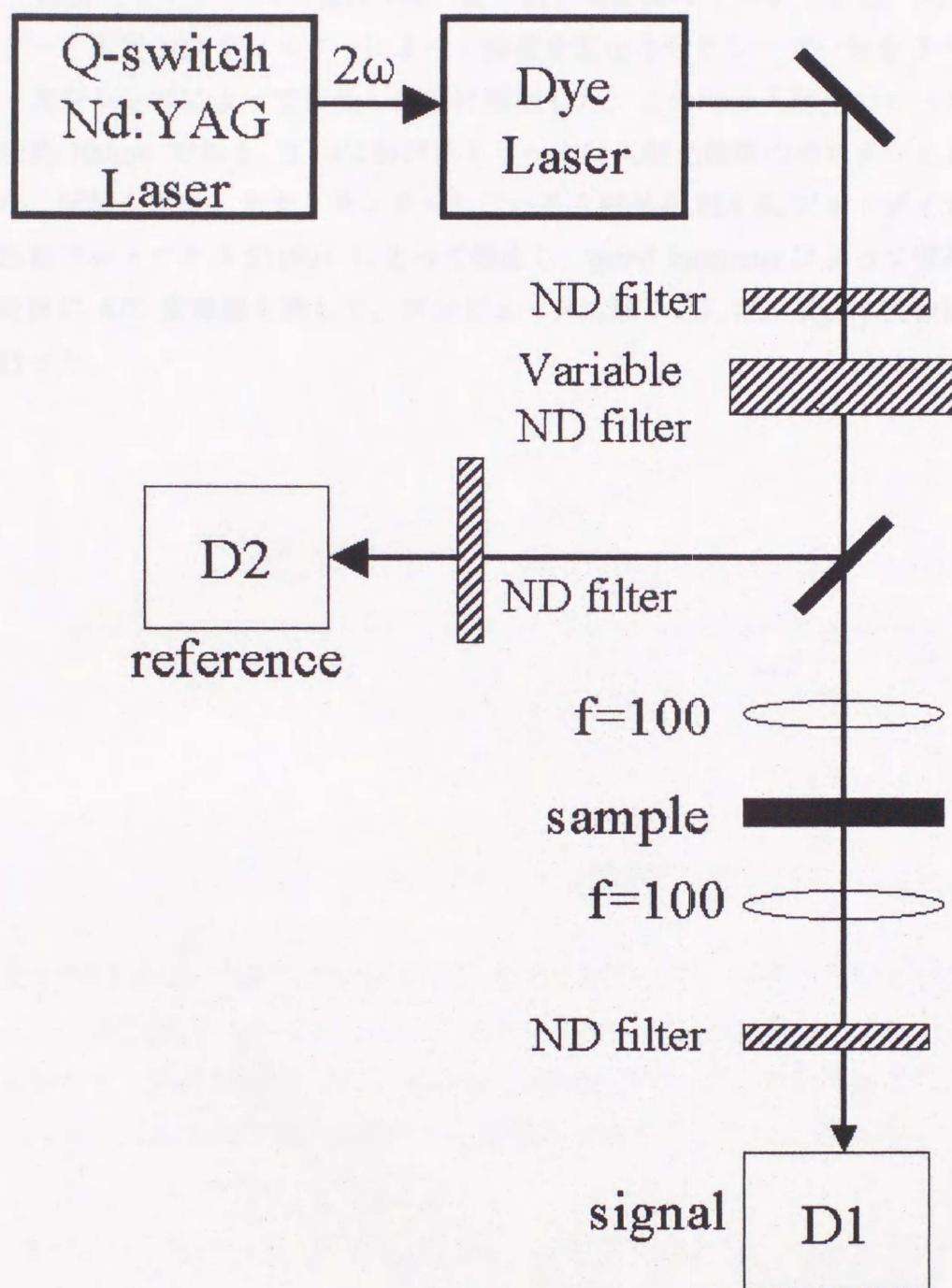


図 4.10: 試料透過率の入射光強度依存性の実験における光学系







#### 4.4 実験結果

透過ピークにおける透過率の入射光強度依存性の測定結果を図 4.11 に示す [41]。

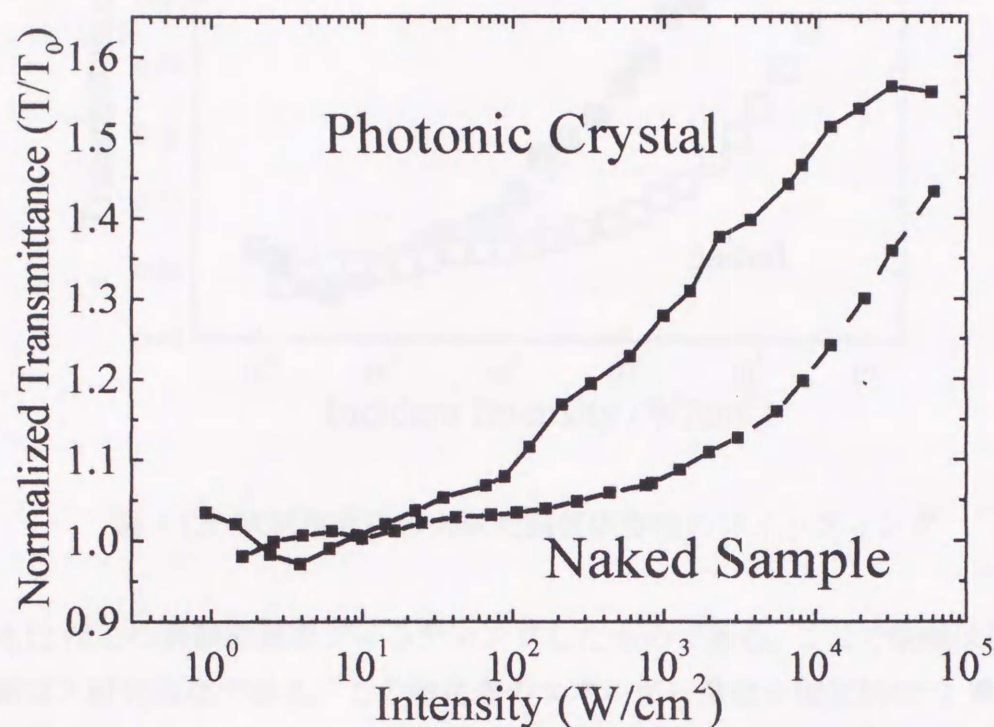


図 4.11: 試料透過率の入射光強度依存性

縦軸は微弱な入射光の時の透過率で規格化した透過率、横軸は入射光強度である。また実線は 1 次元フォトニッククリスタル、破線は比較のため用いた同じ透過率をもつ裸の PVA フィルムにおける実験結果である。共に入射光強度が大きくなるにつれて吸収飽和が起こり、透過率が高くなっていく様子が分かる。



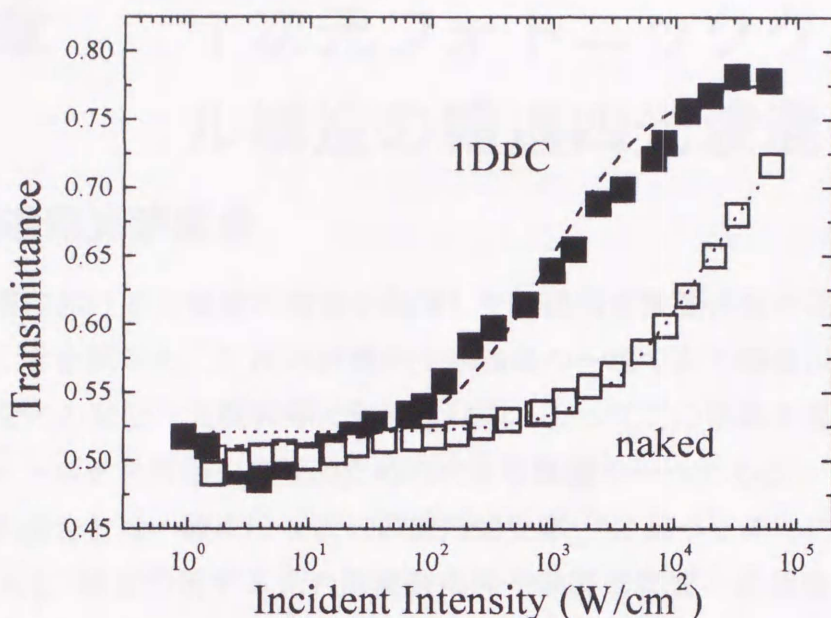


図 4.12: 試料透過率の入射光強度依存性のフィッティング

図 4.12 はこの実験結果をフィッティングしたものである。ここで縦軸は透過率、横軸は入射光強度である。この時色素のエネルギー準位を便宜的に 2 準位で近似した[42]。フィッティングに用いた式は

$$T = A \cdot T_0^{\frac{1}{1+I_{in}/I_s}} \quad (4.32)$$

である。ここで  $T_0$  は線形の透過率、 $I_{in}$ 、 $I_s$  はそれぞれ入射光強度、飽和強度である。また通常の 2 準位系におけるフィッティングでは  $I_{in} \rightarrow \infty$  の極限で  $T \rightarrow 1$  となるが実験的には散乱や表面反射のため  $T=1$  とはならないので、損失があるとして全体に係数  $A(<1)$  を掛けた。このフィッティングによると 1 次元フォトリック結晶における飽和強度  $I_s$  は  $700 \text{ W/cm}^2$  で、裸のフィルムの飽和強度  $14000 \text{ W/cm}^2$  の約  $1/20$  である。つまり約  $1/20$  の低い入射光強度で吸収の飽和が起こっているということである。すなわち欠陥層において約 20 倍光強度が増強しており、裸のフィルム中の色素分子より 1 次元フォトリック結晶構造の欠陥層中の色素分子が 20 倍の強い光を感じていることに他ならない。これは理論的予想である 30 倍という値とオーダー的にはほぼ一致しており、確かに欠陥層において光強度の増強が起こっていることが確認できた。



## 第5章 1次元フォトニッククリスタル構造の縮退四光波混合

### 5.1 縮退四光波混合

欠陥層における光強度の増強を利用して縮退四光波混合光の発生効率を増大させることを試みた。3次の非線形光学効果の一種である縮退四光波混合は、位相共役光の発生や光演算等利用される。よってこの効率を高めることは将来のフォトンクス技術の実現のための大きな課題の一つである。

四光波混合とは一般には3次の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ に基づく4つの光の混合過程である[43]。相互作用する光の周波数条件や非線形媒質との共鳴条件、あるいは光学的配置などにより多様な現象が現れる。縮退四光波混合という場合は4つの光の周波数が全て等しいことを意味する。この縮退四光波混合において強い信号光を得るためには一般に大きな3次の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ を持つ媒質が必要であるが、フォトンクスデバイスとして実用に耐えられるようなものは未だ見出されていないといっても過言ではない。

波数ベクトル  $\mathbf{k}_1$ 、 $\mathbf{k}_2$  そして  $\mathbf{k}_3$  をもつ周波数  $\omega$  の3つの光が入射した場合、非線形媒質中に作られる3次の非線形分極のうちこの過程に関与しているものは一般にいくつもの異なる波数ベクトル成分を持つが、これら3つの光全てが関与している3次の非線形分極は式(5.1)のように3つの波数ベクトル成分を持つ。

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_s^{(3)}(\omega) = & \mathbf{P}_s^{(3)}(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3, \omega) \\ & + \mathbf{P}_s^{(3)}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3, \omega) + \mathbf{P}_s^{(3)}(-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3, \omega) \end{aligned} \quad (5.1)$$

ここで

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_s^{(3)}(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3, \omega) &= \chi^{(3)} : \mathbf{E}_1(\mathbf{k}_1) \mathbf{E}_2(\mathbf{k}_2) \mathbf{E}_3^*(\mathbf{k}_3), \\ \mathbf{P}_s^{(3)}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3, \omega) &= \chi^{(3)} : \mathbf{E}_1(\mathbf{k}_1) \mathbf{E}_2^*(\mathbf{k}_2) \mathbf{E}_3(\mathbf{k}_3), \\ \mathbf{P}_s^{(3)}(-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3, \omega) &= \chi^{(3)} : \mathbf{E}_1^*(\mathbf{k}_1) \mathbf{E}_2(\mathbf{k}_2) \mathbf{E}_3(\mathbf{k}_3) \end{aligned} \quad (5.2)$$

である。 $\mathbf{E}_1(\mathbf{k}_1)$ 、 $\mathbf{E}_2(\mathbf{k}_2)$  そして  $\mathbf{E}_3(\mathbf{k}_3)$  は3つの入射光電場である。これらの3次の非線形分極から放射されるのが縮退四光波混合光である。この過程は以下の



ような物理的描像で理解できる。

媒質に共鳴した 3 つの異なる波数ベクトルを持つ光を入射した場合、3 つの入射光の中の 2 つの光が干渉し、それに伴いエネルギー準位の分布密度格子が形成される。このとき、媒質の吸収係数は周期的に変調されており、この分布密度格子によって残りの 1 つの光が回折されたものが縮退四光波混合光である、という描像である。このとき  $\mathbf{k}_1$  と  $\mathbf{k}_2$  の波数ベクトルを持つ光が形成する分布密度格子で  $\mathbf{k}_3$  方向の光が回折されて  $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_3 \pm (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)$  方向に縮退四光波混合光が発生する。同様に  $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_1 \pm (\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3)$  方向および  $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_2 \pm (\mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_1)$  方向に縮退四光波混合光が発生する。すなわち 3 つの異なる方向  $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3$ 、 $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$ 、そして  $\mathbf{k}_s = -\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$  に縮退四光波混合光が発生することが期待される。しかし一般には  $|\mathbf{k}_s|$  は  $\omega\epsilon^{1/2}/c$  と等しくならず位相整合条件を満たさないために放射されない。したがって縮退四光波混合光を発生させるためには 3 つの入射光の方向を位相整合条件を満たすように適当に配置する必要がある。位相整合条件を満たすことの出来るような配置として図 5.1 に示す Box-cars 型[44,45]と位相共役型が通常よく用いられている。

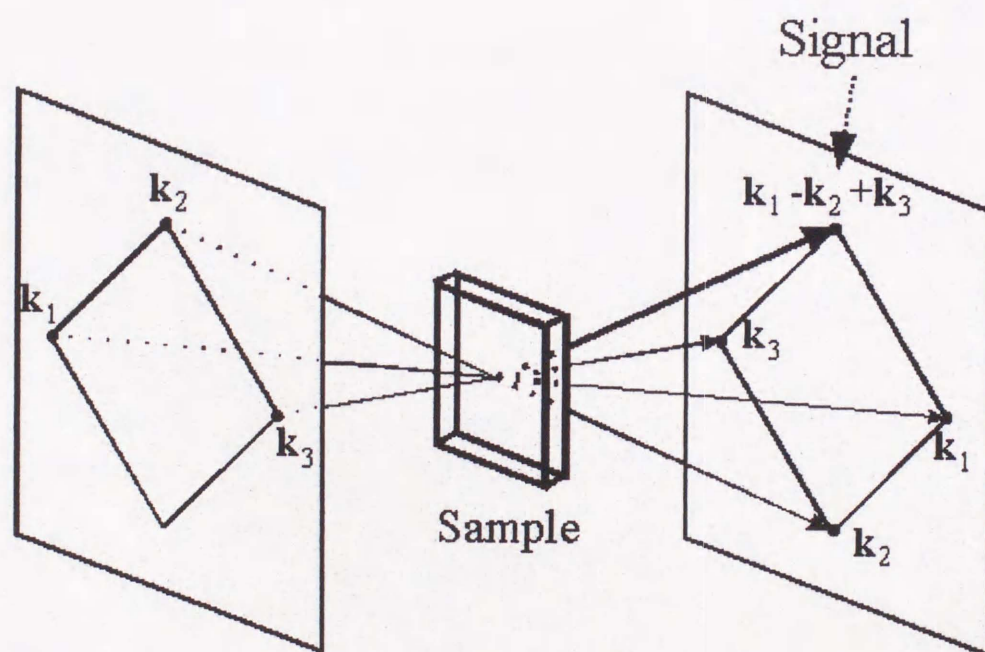


図 5.1: Box-cars 型配置



Box-cars 型配置について述べる。図 5.1 に示すように入射する  $k_1$ 、 $k_2$  そして  $k_3$  方向の 3 つの光は正四角錐の 3 つの稜を形成するように配置する。縮退四光波混合光はこの場合、残りの 1 つの稜の方向、すなわち  $k_s = k_1 - k_2 + k_3$  方向に伝搬する。本章における縮退四光波混合実験はこの配置で行った。もう一つの配置である位相共役型配置については第 7 章において述べる。



図 5.1 同じ厚さ、同じ色散特性の誘電体フィルムと  
1次元フォトニッククリスタル型配置

この図は、左側の図は、1次元フォトニッククリスタル型配置であり、右側の図は、同じ厚さ、同じ色散特性の誘電体フィルムと1次元フォトニッククリスタル型配置を示している。



## 5.2 理論

この縮退四光波混合光の発生効率を単なる裸のフィルムの場合と比較して増大させることが目的であるが、本研究においては 2 種類の比較を行った。第 1 に図 5.2 に示すような欠陥層と同じ厚さ、同じ色素濃度のフィルムとの比較である。

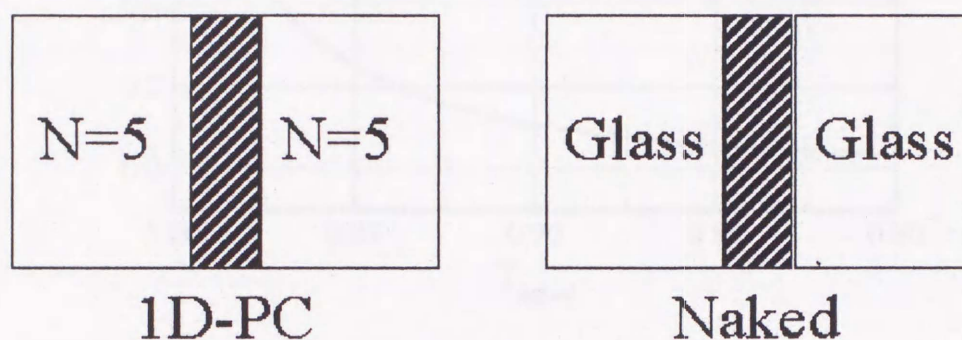


図 5.2: 同じ厚さ、同じ色素濃度の裸のフィルムと  
1 次元フォトリッククリスタルの比較

これはすなわち、欠陥層としている PVA 層そのものとの比較である。ここで裸のフィルムの場合の透過率とそのフィルムを欠陥層とする 1 次元フォトリッククリスタルの透過ピークの透過率の関係は図 5.3 のようになる。



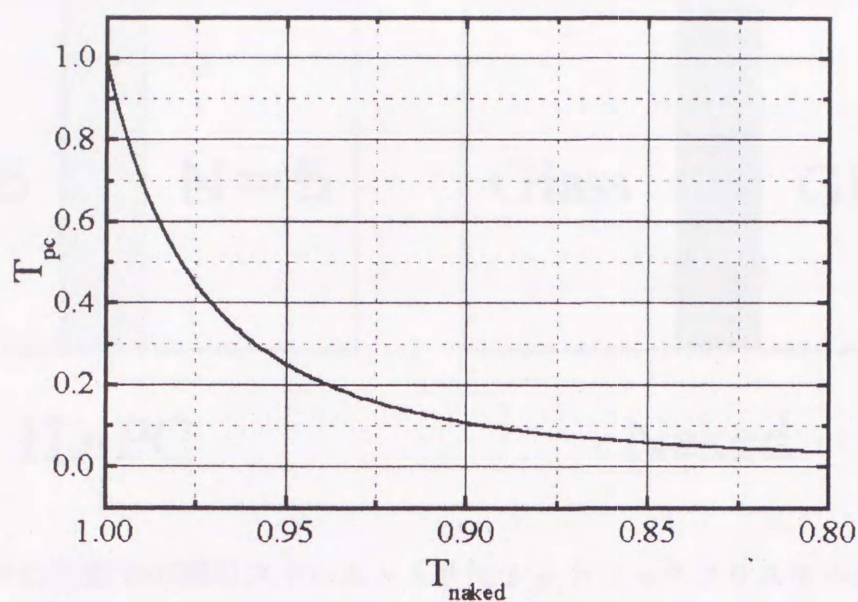


図 5.3: 1 次元フォトニッククリスタルの透過率と裸のフィルムの透過率の関係

横軸は裸のフィルムの透過率、縦軸はそのフィルムを欠陥層とした 1 次元フォトニッククリスタルの透過ピークにおける透過率である。裸のフィルムの透過率が吸収のために変化すると 1 次元フォトニッククリスタルの透過率も変化するが、その変化の度合いは大きく異なっている様子が分かる。例えば、裸のフィルムの透過率が 90% になった場合、それを欠陥層とする 1 次元フォトニッククリスタルの透過率は 10% にも下がる。これは多重反射の効果により吸収層を何度も透過することで、裸のフィルムの場合よりも光が多く吸収されるためである。

第 2 に図 5.4 に示すような第 4 章の吸収飽和の実験のときと同様、透過ピークにおける透過率と同じ透過率を持つ裸のフィルムとの比較である。



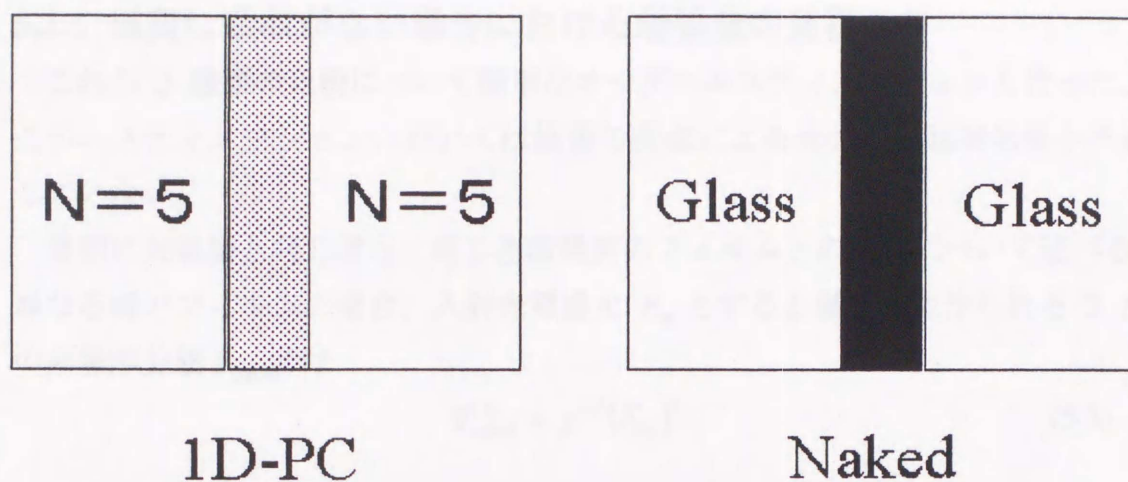


図 5.4: 同じ透過率の裸のフィルムと 1 次元フォトニッククリスタルの比較

この場合、欠陥層の膜厚が同じだとすると同じ透過率にするためには両者の欠陥層中の色素分子数は異なる。色素分子の吸収断面積は同じであり、また 1 次元フォトニッククリスタルの欠陥層において光強度が入射光強度の  $G$  倍であることを考慮すると、1 次元フォトニッククリスタル欠陥層中の全色素分子数は裸のフィルムの場合の  $1/G$  倍となる。これら 2 種類の比較について理論的考察をした。



### 5.2.1 媒質に吸収がない場合における増強度の見積もり

これら 2 種類の比較について簡単なオーダーエスティメーションを行った。このエスティメーションにおいては媒質の吸収による光強度の減衰効果を考慮していない。

最初に欠陥層と同じ厚さ、同じ色素濃度のフィルムとの比較について述べる。単なる裸のフィルムの場合、入射光電場を  $E_{in}$  とすると媒質中に作られる 3 次の非線形分極  $\mathbf{P}_{naked}^{(3)}$  は

$$\mathbf{P}_{naked}^{(3)} \propto \chi^{(3)} (E_{in})^3 \quad (5.3)$$

となる。ここで  $\chi^{(3)}$  は 3 次の非線形感受率である。この 3 次の分極から放射される縮退四光波混合光強度  $I_{D-naked}$  は

$$\begin{aligned} I_{D-naked} &\propto \frac{\partial \mathbf{P}_{naked}^{(3)}}{\partial t} \cdot E_{D-naked} \\ &\propto \frac{\partial \mathbf{P}_{naked}^{(3)}}{\partial t} \cdot \sqrt{I_{D-naked}} \end{aligned} \quad (5.4)$$

となる。両辺を自乗すると

$$\begin{aligned} I_{D-naked} &\propto \left| \frac{\partial \mathbf{P}_{naked}^{(3)}}{\partial t} \right|^2 \\ &\propto \left| \mathbf{P}_{naked}^{(3)} \right|^2 \\ &\propto \left| \chi^{(3)} (E_{in})^3 \right|^2 \end{aligned} \quad (5.5)$$

となり、3 次の分極の 2 乗に比例している。

ここでは 1 次元フォトニッククリスタルの場合、欠陥層中の色素分子数は裸のフィルム中の色素分子数と同じであるから、3 次の非線形感受率は裸のフィルムの場合と変わらない。欠陥層において作られる 3 次の非線形分極  $\mathbf{P}_{IDPC}^{(3)}$  は

$$\mathbf{P}_{IDPC}^{(3)} \propto \chi^{(3)} (E_{defect})^3 \quad (5.6)$$

となる。ここで  $E_{defect}$  は欠陥層における励起光強度である。1 次元フォトニック

クリスタルの欠陥層における光強度の増強度を  $G$  とすると欠陥層における光電場  $E_{\text{defect}}$  は

$$E_{\text{defect}} = \sqrt{G} E_{\text{in}} \quad (5.7)$$

であるから 3 次の非線形分極  $\mathbf{P}_{\text{1DPC}}^{(3)}$  は

$$\mathbf{P}_{\text{1DPC}}^{(3)} \propto \chi^{(3)} \sqrt{G}^3 (E_{\text{in}})^3 \quad (5.8)$$

となる。この 3 次の分極から放射される縮退四光波混合光強度  $I_{\text{D-1DPC}}$  は

$$\begin{aligned} I_{\text{D-1DPC}} &\propto \frac{\partial \mathbf{P}_{\text{1DPC}}^{(3)}}{\partial t} \cdot E_{\text{D-inside}} \\ &\propto \frac{\partial \mathbf{P}_{\text{1DPC}}^{(3)}}{\partial t} \cdot \sqrt{I_{\text{D-inside}}} \\ &\propto \frac{\partial \mathbf{P}_{\text{1DPC}}^{(3)}}{\partial t} \cdot \sqrt{G \cdot I_{\text{D-1DPC}}} \end{aligned} \quad (5.9)$$

となる。ここで  $E_{\text{D-inside}}$ 、 $I_{\text{D-inside}}$  は 1 次元フォトニッククリスタル中における縮退四光波混合光の電場および強度である。これを解くと

$$\begin{aligned} I_{\text{D-1DPC}} &\propto |\mathbf{P}_{\text{1DPC}}^{(3)}|^2 G \\ &\propto \left| \chi^{(3)} \sqrt{G}^3 (E_{\text{in}})^3 \right|^2 G \end{aligned} \quad (5.10)$$

となる。

よって裸のフィルムの場合の縮退四光波混合光強度を用いてあらわすと

$$I_{\text{D-1DPC}} \propto I_{\text{D-naked}} \cdot G^4 \quad (5.11)$$

となり、裸のフィルムの場合の  $G^4$  倍となることがわかる。例えば、欠陥層において強度が 10 倍になった場合縮退四光波混合光の発生効率は 10000 倍にもなり得るのである。

次に同じ透過率の裸のフィルムとの比較について述べる。1 次元フォトニッククリスタル欠陥層中の色素分子数が  $1/G$  倍なので、1 次元フォトニッククリ



スタルの3次の非線形感受率 $\chi_{1\text{DPC}}^{(3)}$ と裸のフィルムの3次の非線形感受率 $\chi_{\text{naked}}^{(3)}$ との関係は

$$\chi_{\text{naked}}^{(3)} = \frac{\chi_{1\text{DPC}}^{(3)}}{G} \quad (5.12)$$

となる。よって1次元フォトニッククリスタルにおける3次の非線形分極 $\mathbf{P}_{1\text{DPC}}^{(3)}$ は

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_{1\text{DPC}}^{(3)} &\propto \chi_{1\text{DPC}}^{(3)} (E_{\text{defect}})^3 \\ &\propto \chi_{\text{naked}}^{(3)} \cdot G^{-1} \sqrt{G}^3 (E_{\text{in}})^3 \\ &\propto \chi_{\text{naked}}^{(3)} (E_{\text{in}})^3 \cdot \sqrt{G} \end{aligned} \quad (5.13)$$

となる。この3次の分極から放射される縮退四光波混合光強度 $I_{\text{D-1DPC}}$ は同様の計算により

$$I_{\text{D-1DPC}} \propto I_{\text{D-naked}} \cdot G^2 \quad (5.14)$$

となり、裸のフィルムの場合の $G^2$ 倍となることがわかる。例えば、欠陥層において強度が10倍になった場合縮退四光波混合光の発生効率は100倍となる。このようにそれぞれ違いはあるが2種類の比較においていずれも縮退四光波混合光の発生効率の増強の可能性が期待できる。

### 5.2.2 媒質に吸収がある場合の縮退四光波混合光の発生効率

次に吸収を考慮した場合の縮退四光波混合光の発生効率について考察する[25]。ここで  $z$  軸は層面に垂直な方向であるとして、欠陥層中での位置  $z$  における光強度は

$$I(z) = 2GI_{\text{in}} \cos^2(\pi z/d_x) \quad (5.15)$$

と近似することができる。ここで

$$-d_x/2 < z < d_x/2 \quad (5.16)$$

である。欠陥層媒質中の各位置における光強度が異なるために吸収の飽和の度合いもまた位置によって異なる。よって吸収飽和によって変化する消衰係数は位置  $z$  に依存し、

$$\kappa(z) = \frac{\kappa_0}{1 + I(z)/I_s} \quad (5.17)$$

という関数で表されとする。ここで  $I_s$  は欠陥層媒質の飽和強度である。よって実効的な消衰係数は

$$\begin{aligned} \bar{\kappa} &= \frac{\int_{-d_x/2}^{d_x/2} \kappa(z) I(z) dz}{\int_{-d_x/2}^{d_x/2} I(z) dz} \\ &= \kappa_0 \frac{2(\sqrt{1+p}-1)}{p\sqrt{1+p}} \end{aligned} \quad (5.18)$$

ここで

$$p \equiv 2GI_{\text{in}}/I_s \quad (5.19)$$

である。入射光強度が変化した場合にこの実効的な消衰係数がどう変化するかを求めると、



$$\frac{d\bar{\kappa}}{dl_{\text{in}}} = -\frac{3}{2}\bar{\kappa} G/I_s \quad (5.20)$$

となる。この消衰係数の変化、すなわち吸収の変化に起因して 1 次元フォトニッククリスタルの透過率は変化する。透過率の変化は

$$\begin{aligned} \frac{dT}{dl_{\text{in}}} &= \frac{dT}{d\bar{\kappa}} \frac{d\bar{\kappa}}{dl_{\text{in}}} \\ &= \frac{1}{I_s} \frac{24\pi\bar{\kappa}}{n_x} \left(\frac{n_B}{n_A}\right)^{4N} \left[ 2 + \frac{\pi\bar{\kappa}}{n_x} \left(\frac{n_B}{n_A}\right)^{2N} \right]^{-5} \end{aligned} \quad (5.21)$$

と表される。

この透過率の変化から縮退四光波混合光強度を算出する。強いレーザー光を媒質に入射したとき 3 次の非線形光学過程によって透過光電場は

$$E_{\text{out}} = E_{\text{out}}^{(1)} + E_{\text{out}}^{(3)} \quad (5.22)$$

で表される。つまり、線形透過光の電場  $E_{\text{out}}^{(1)}$  と 3 次の非線形分極から放射される光電場  $E_{\text{out}}^{(3)}$  との和で表され、それらが干渉することで線形の場合とは異なる透過率となる。

媒質に単一のレーザー光が入射した場合の透過光強度  $I_{\text{out}}$  は

$$\begin{aligned} I_{\text{out}} &= c\epsilon |E_{\text{out}}|^2 \\ &= c\epsilon \left\{ |E_{\text{out}}^{(1)}|^2 + 2|E_{\text{out}}^{(1)} E_{\text{out}}^{(3)}| \right\} \end{aligned} \quad (5.23)$$

となり、透過率は

$$\begin{aligned} T &= \frac{I_{\text{out}}}{I_{\text{in}}} \\ &= T_0 + 2\sqrt{T_0} \left| \frac{E_{\text{out}}^{(3)}}{E_{\text{out}}^{(1)}} \right| \end{aligned} \quad (5.24)$$

となる。ここで、 $E_{\text{in}}$  は入射光電場、 $T_0$  は線形の透過率であり、

$$E_{\text{out}}^{(1)} = \sqrt{T_0} E_{\text{in}} \quad (5.25)$$

となる。式(5.24)を微分すると

$$\frac{dT}{dI_{\text{in}}} = 2\sqrt{T_0} \frac{d}{dI_{\text{in}}} \left| \frac{E_{\text{out}}^{(3)}}{E_{\text{in}}} \right| \quad (5.26)$$

である。 $I_{\text{in}}$  が小さいとき、 $E_{\text{out}}^{(1)}/E_{\text{in}}$  は  $I_{\text{in}}$  に比例するので

$$\left| E_{\text{out}}^{(3)} \right| = \frac{I_{\text{in}}}{2\sqrt{T_0}} \frac{dT}{dI_{\text{in}}} |E_{\text{in}}| \quad (5.27)$$

となる。ここで縮退四光波混合光強度は式(5.27)の両辺を自乗して

$$|I_{\text{DFWM}}| = \frac{1}{4T} \left( \frac{dT}{dI_{\text{in}}} \right)^2 I_{\text{in}}^3 \quad (5.28)$$

となる。この式は縮退四光波混合光強度と透過率の変化の大きさを結び付ける一般的な式である。

ここで、規格化した縮退四光波混合光発生効率を

$$W \equiv I_{\text{DFWM}} I_s^2 / I_{\text{in}}^3 \quad (5.29)$$

と定義すると、1次元フォトリッククリスタルの場合は

$$W_{\text{IDPC}} = \frac{9}{16} \left( \frac{n_B}{n_A} \right)^{4N} T^3 (1 - \sqrt{T})^2 \quad (5.30)$$

であり、裸のフィルムの場合は

$$W_{\text{naked}} = \frac{1}{4} T (1 - T)^2 \quad (5.31)$$

と、それぞれ透過率の関数として表される。この式(5.30)、(5.31)を用いて、1次元フォトリッククリスタルと裸のフィルムの縮退四光波混合光発生効率の比較を行うことができる。まず、図 5.2 のような同じ厚さ、同じ色素濃度の裸のフィルムとの比較について述べる。2種類の試料において媒質の消衰係数は同



じであるので式(5.30)、(5.31)を消衰係数の関数で表し両者の比を取れば、これらの発生効率の比を求めることができる。 $n_B/n_A=1.6$ 、 $N=5$  の場合についてこれをプロットすると図 5.5 のようになる。

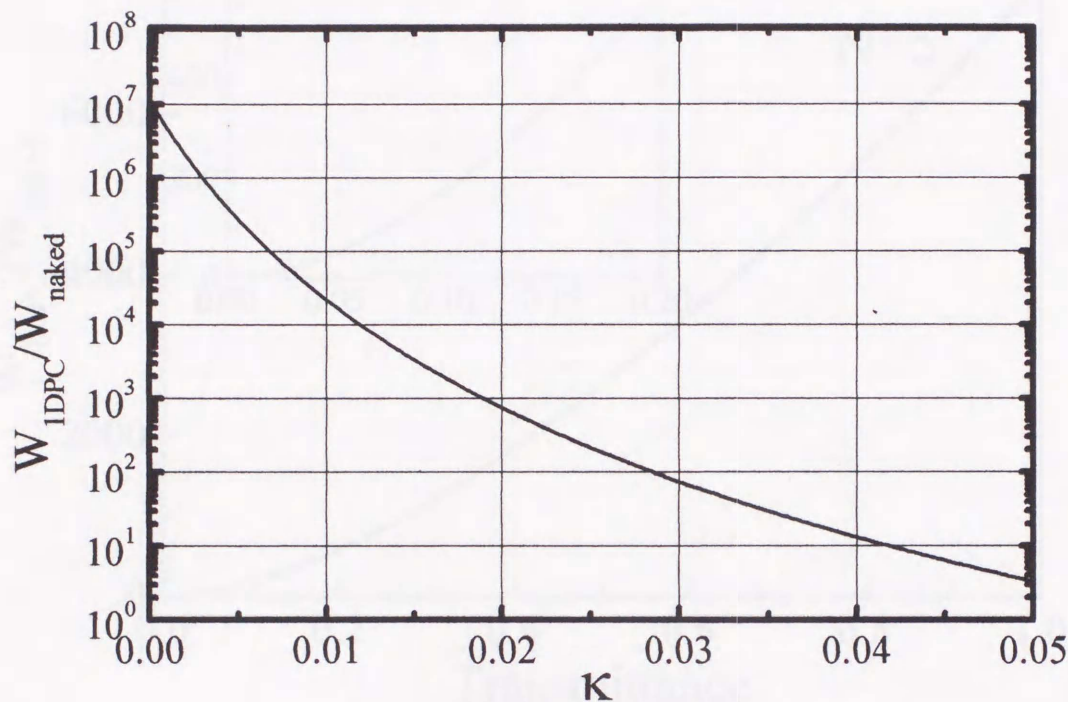


図 5.5: 縮退四光波混合光発生効率の比  
: 同じ厚さ、同じ色素濃度の裸のフィルムとの比較

例えば、消衰係数 $k$ が 0.02 程度のとき 1 次元フォトニッククリスタルでは裸のフィルムの 1000 倍の縮退四光波混合光強度が期待される。これは 1 次元フォトニッククリスタルの欠陥による透過ピークの透過率が 10% の場合であり、以下の実験における条件と一致している。

また、同じ透過率の場合の比較は式(5.30)、(5.31)が共に透過率の関数であるからこれらの比をとることによって求めることができる。 $n_B/n_A=1.6$ 、 $N=5$  の場合についてこれをプロットすると図 5.6 のようになる。1 次元フォトニッククリスタルの欠陥による透過ピークの透過率が 10% の場合、約 200 倍の発生効率

の増大が期待される。

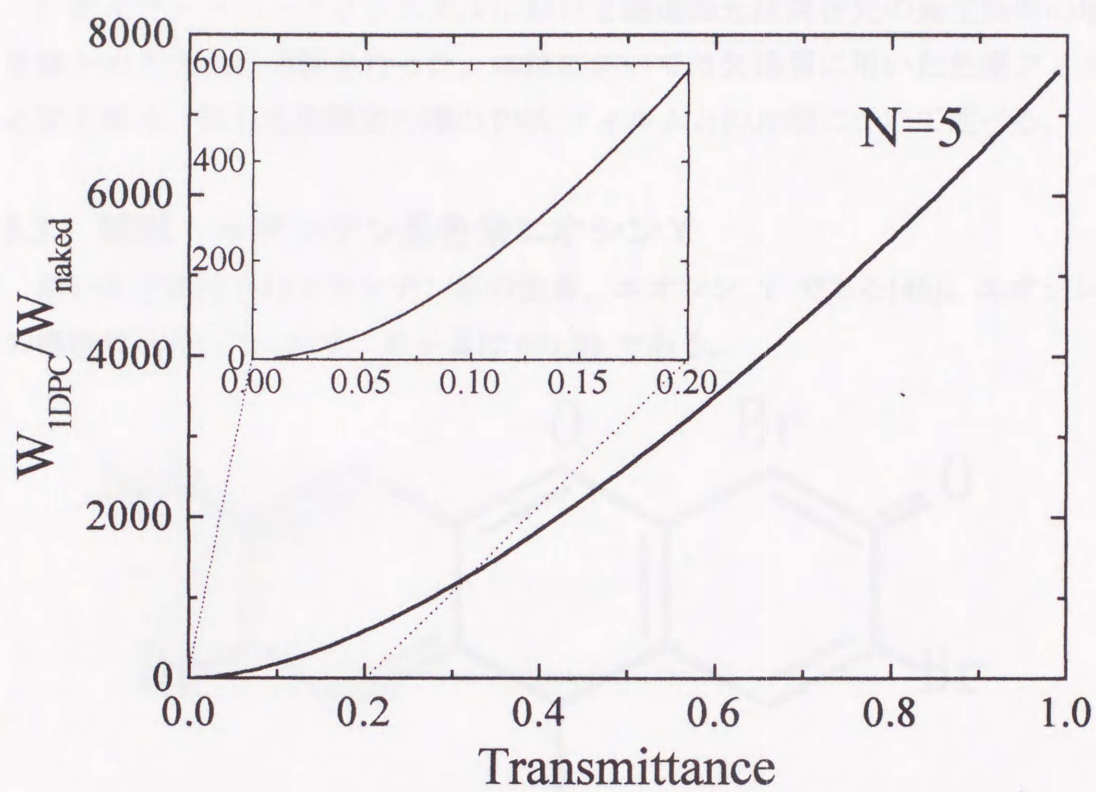


図 5.6: 縮退四光波混合光発生効率の比 : 同じ透過率の裸のフィルムとの比較



### 5.3 実験その1：同じ厚さ、同じ濃度の色素フィルムと 1次元フォトリッククリスタルの比較

1次元フォトリッククリスタルにおける縮退四光波混合光の発生効率の増大を確かめるために実験を行った。本節においては欠陥層に用いた色素フィルムと同じ厚さ、同じ色素濃度の裸のPVAフィルムとの比較について述べる。

#### 5.3.1 試料：キサントン系色素エオシンY

用いた色素分子はキサントン系の色素、エオシンYである[46]。エオシンYの構造式を図5.7に示す。分子量は691.86である。

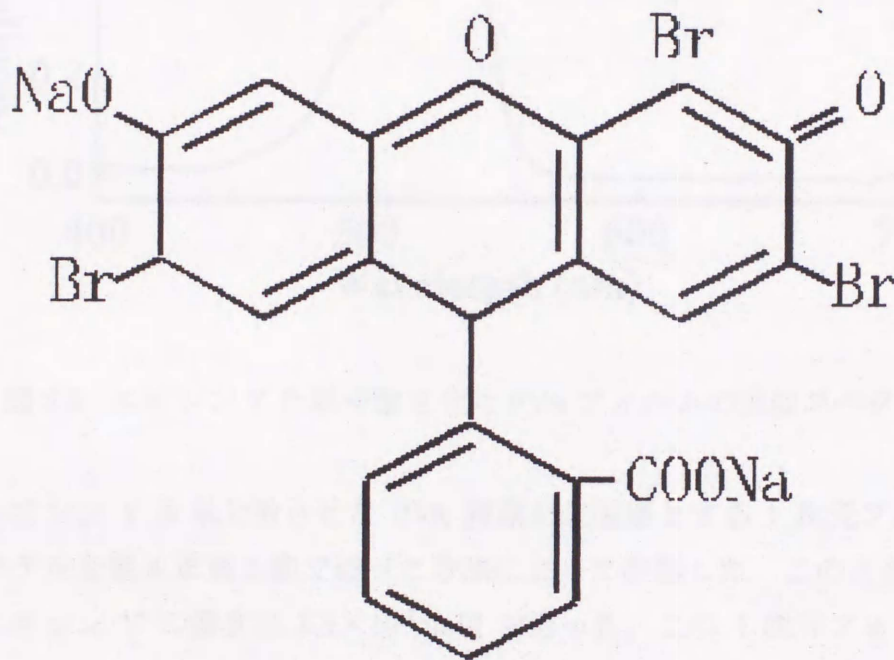


図 5.7: 有機色素分子エオシンYの構造式

またエオシン Y 分子を単分散させた PVA フィルムの吸収スペクトルは図 5.8 のようになり、波長 530nm 付近に吸収の極大がある。

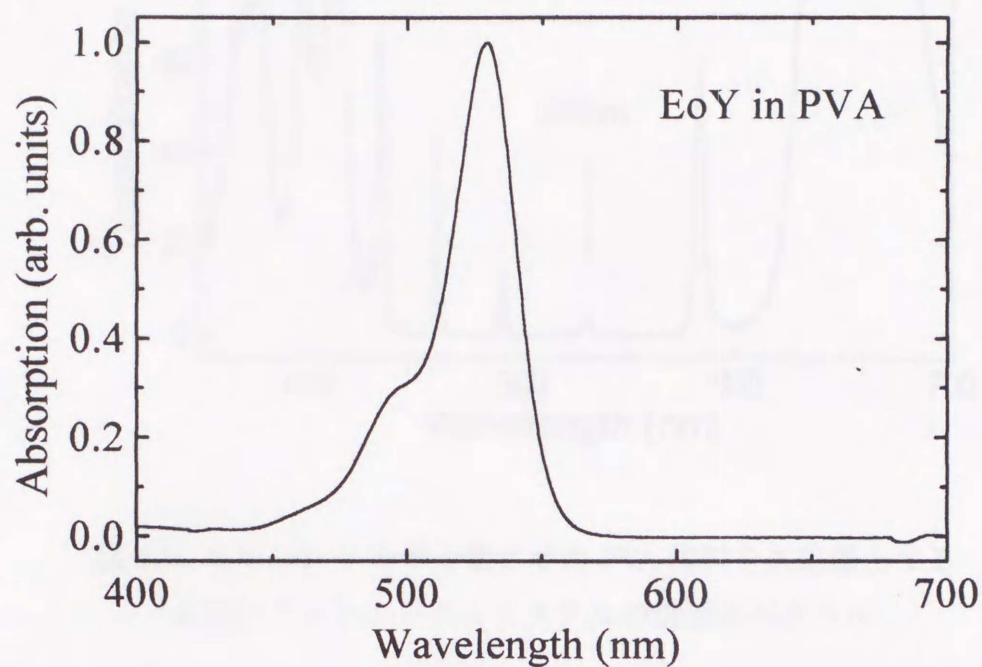


図 5.8: エオシン Y を単分散させた PVA フィルムの吸収スペクトル

このエオシン Y を単分散させた PVA 薄膜を欠陥層とする 1 次元フォトニック結晶を第 4 章第 2 節で述べた方法によって作製した。このとき PVA に対するエオシン Y の濃度は  $3.5 \times 10^{-2} \text{ mol/l}$  であった。この 1 次元フォトニック結晶の透過スペクトルを分光光度計 (JUSCO U-best550) で測定したものは図 5.9 のようになる。



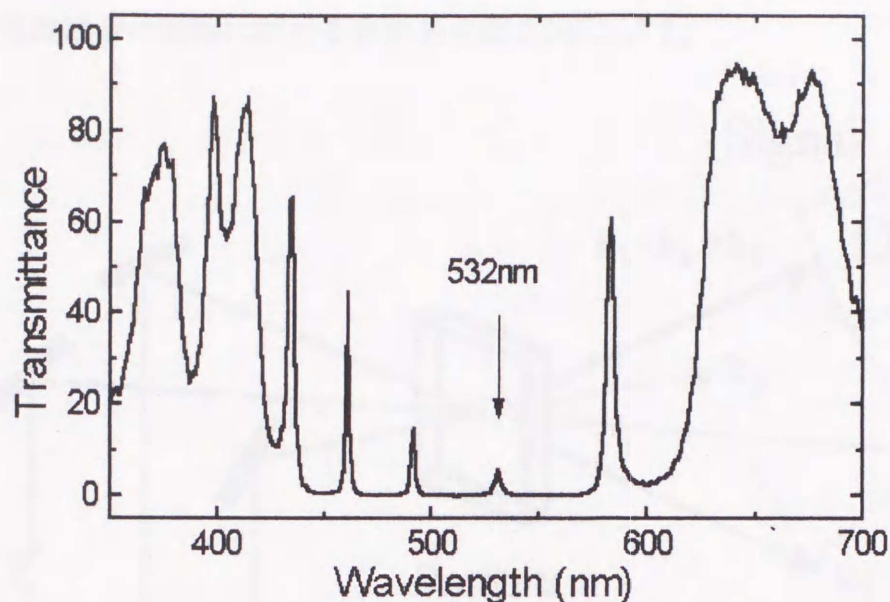


図 5.9: エオシン Y を単分散させた PVA 薄膜を欠陥層とする  
1 次元フォトニッククリスタルの透過スペクトル

フォトニックバンドギャップ中の透過ピークはそれぞれ欠陥準位に対応しているが欠陥層の光学膜厚が  $\lambda/2$  以上であるため何本も出現している。この時両側の周期的多層膜部分の各層の膜厚は  $488\text{nm}/4$  である。透過スペクトルから算出した欠陥層の光学膜厚は  $5\lambda$  程度である。本実験において入射光は Q スイッチ YAG レーザーの第二高調波を用いているので、波長  $532\text{nm}$  の透過ピークのみを考えればよい。この波長  $532\text{nm}$  に出現している透過ピークの透過率は弱い Q スイッチ YAG レーザーの第二高調波を入射させて測定したところ約 10% である。また本実験においては比較のために、エオシン Y を単分散させた単なる裸の PVA キャストフィルムも作製し同様の実験も行った。この裸の試料は多層膜ではなく 2 つのガラス基板に 1 次元フォトニッククリスタルの時と同様な条件で成膜し、それらを張り合わせ圧力をかけて作製した。1 次元フォトニッククリスタルの透過ピークが 10% の場合、図 4.4 によると媒質の消衰係数は  $\kappa=0.02$  程度である。この時、裸の試料の透過率は 90% 程度となる。

この様な比較の場合、図 5.5 に示すように理論的には約 1000 倍の発生効率の増大が期待できる。

### 5.3.2 実験

縮退四光波混合の実験における光学系を図 5.10 に示す。

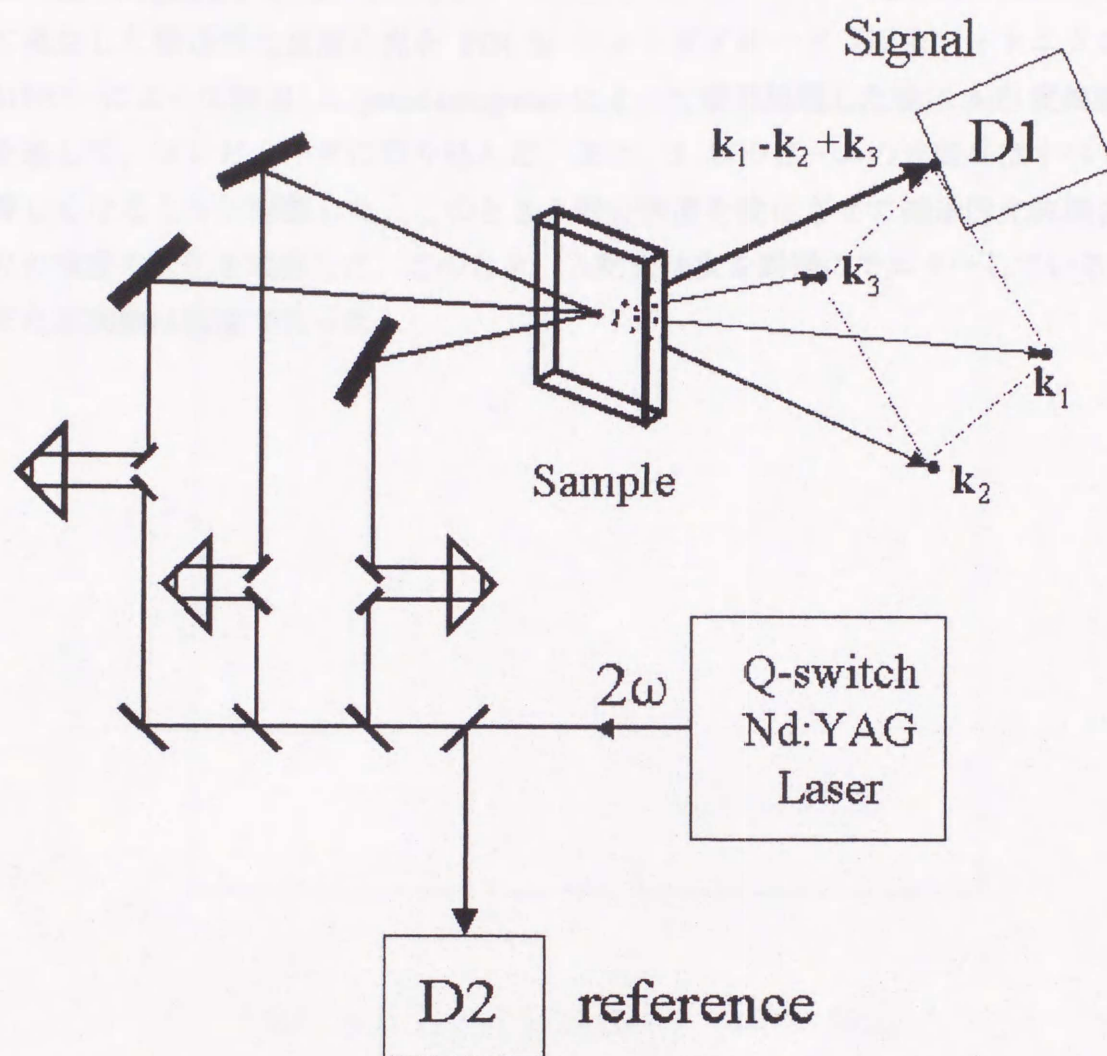


図 5.10: 縮退四光波混合の実験における光学系



縮退四光波混合の実験は第 6 章第 1 節において述べた Box-cars 型の配置で行った。入射光は Q スイッチ YAG レーザーの第二高調波である。パルス幅は 6ns、繰り返し周波数は 1.5Hz である。3 つに分けた入射レーザー光を試料に集光して発生した縮退四光波混合光を PIN Si フォトダイオード（浜松フォトニクス S1190）によって検出し、gated-integrator によって信号処理した後に A/D 変換器を通して、コンピュータに取り込んだ。また、3 本のビームの光路長はすべて等しくなるように調整した。このとき入射光強度を変化させて縮退四光波混合光の強度の変化を観測した。このとき、入射光強度を同様にモニターしている。また本実験は室温で行った。

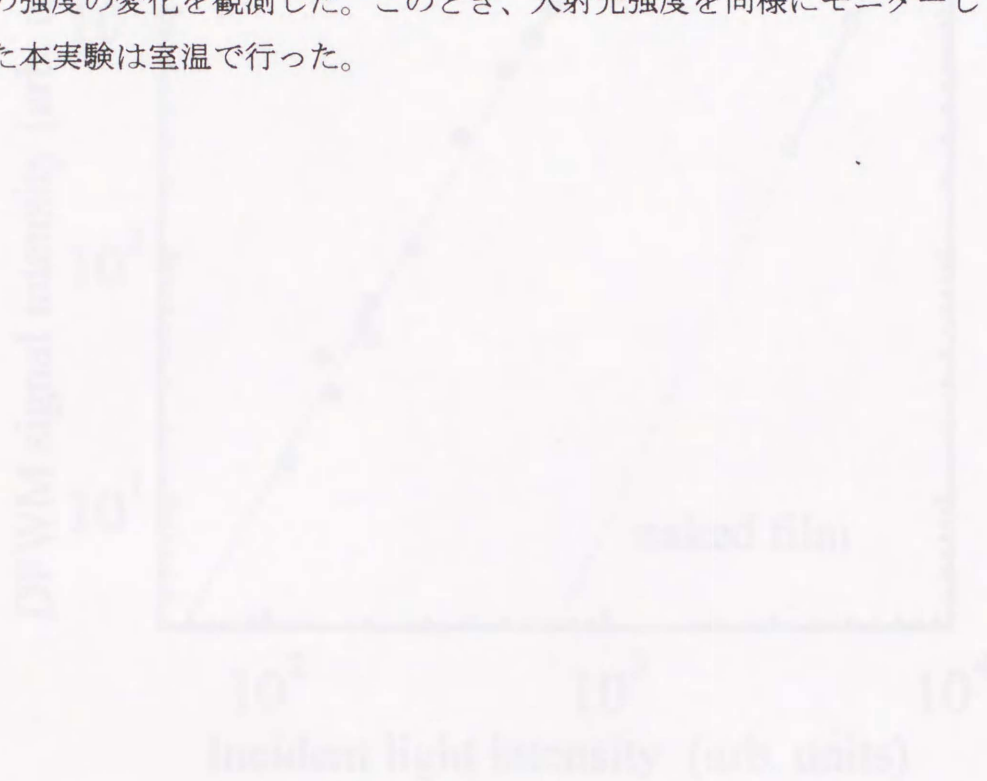


図 11-10 縮退四光波混合光の強度と入射光強度の関係 (naked film と ITO film の比較)

また、図 11-10 に示すように、ITO film を用いた場合、naked film の場合と比較して、生成光の強度が約 2 倍程度増加していることが確認された。これは、ITO film の存在が縮退四光波混合の効率を向上させていることを示唆している。また、図 11-11 に示すように、ITO film の厚さが生成光の強度に影響を与えていることが確認された。ITO film の厚さが 10 nm 程度である場合、生成光の強度は約 2 倍程度増加していることが確認された。これは、ITO film の厚さが縮退四光波混合の効率に影響を与えていることを示唆している。また、図 11-12 に示すように、ITO film の厚さが生成光の強度に影響を与えていることが確認された。ITO film の厚さが 10 nm 程度である場合、生成光の強度は約 2 倍程度増加していることが確認された。これは、ITO film の厚さが縮退四光波混合の効率に影響を与えていることを示唆している。

### 5.3.3 実験結果

縮退四光波混合の実験結果を図 5.11 に示す。横軸は入射光強度、縦軸は発生した縮退四光波混合光強度である。

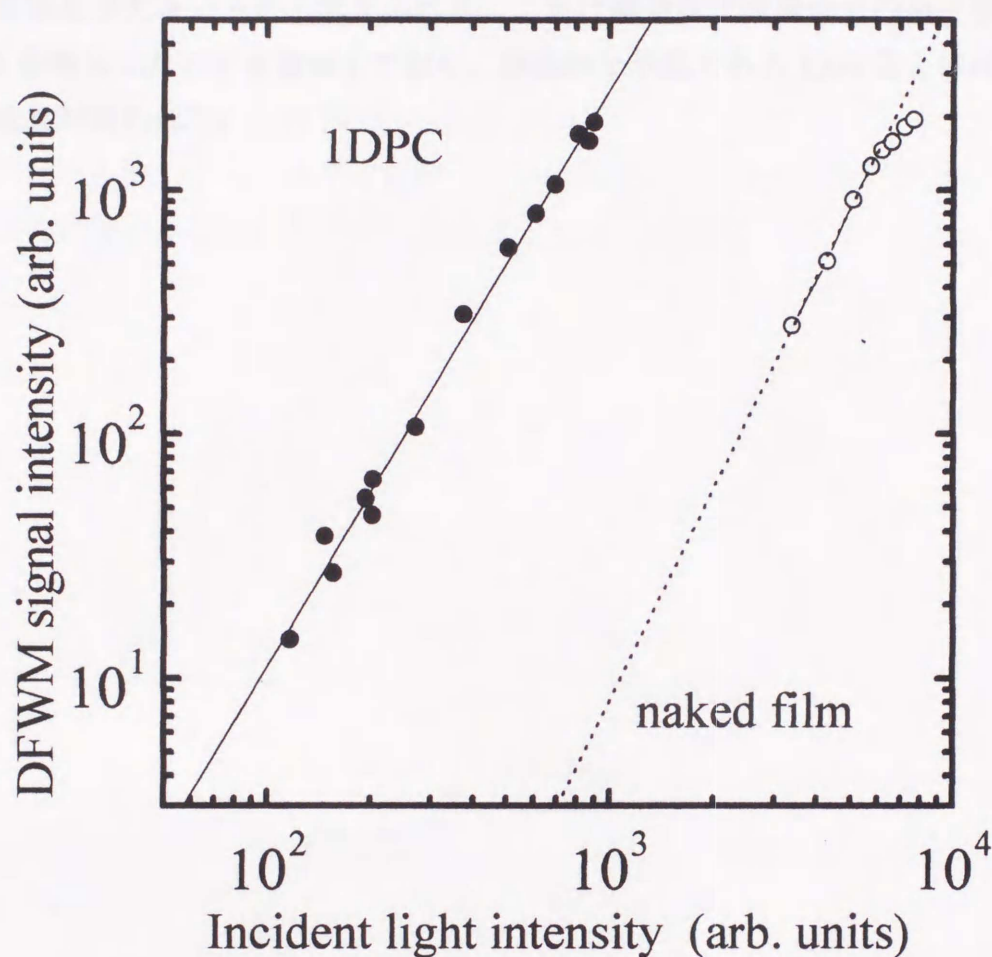


図 5.11: 1次元フォトニッククリスタルによる縮退四光波混合光強度

また、黒丸は 1 次元フォトニッククリスタル、白抜き丸は単なる裸のフィルムにおける結果である。図 5.11 の直線は実験結果をフィッティングしたものであり、それぞれの傾きは 1 次元フォトニッククリスタルにおいては 2.4、裸のフィルムにおいては 2.9 となる。縮退四光波混合は 3 次の非線形過程であるから入射光強度を増加させると信号光強度は入射光強度の 3 乗に比例して増加するが、裸のフィルムにおける結果は信号が飽和するまではそのようになっている。



一方、1次元フォトニッククリスタルの傾きがやや小さいが、これは試料の光学的不均一性に起因した入射光の散乱をも同じに検出してしまっているためだと考えられる。これは試料の作製法等を改善することで改良できると思われる。これによると1次元フォトニッククリスタルの方が同じ入射光強度で約300倍信号強度が大きいものと考えられる。これは縮退四光波混合光の発生効率が約300倍増大したことを意味しており、理論的な予想である1000倍とほぼ一致した結果が得られた。



## 5.4 実験その2：同じ透過率の色素フィルムと 1次元フォトリック結晶の比較

1次元フォトリック結晶における縮退四光波混合光の発生効率の増大を確かめるために実験を行った。本節においては同じ透過率の裸の色素フィルムとの比較について述べる。

### 5.4.1 試料：アゾ系色素メチルオレンジ

用いた色素分子はアゾ系の色素、メチルオレンジである[47-49]。メチルオレンジの構造式を図5.12に示す。分子量は327.34である。

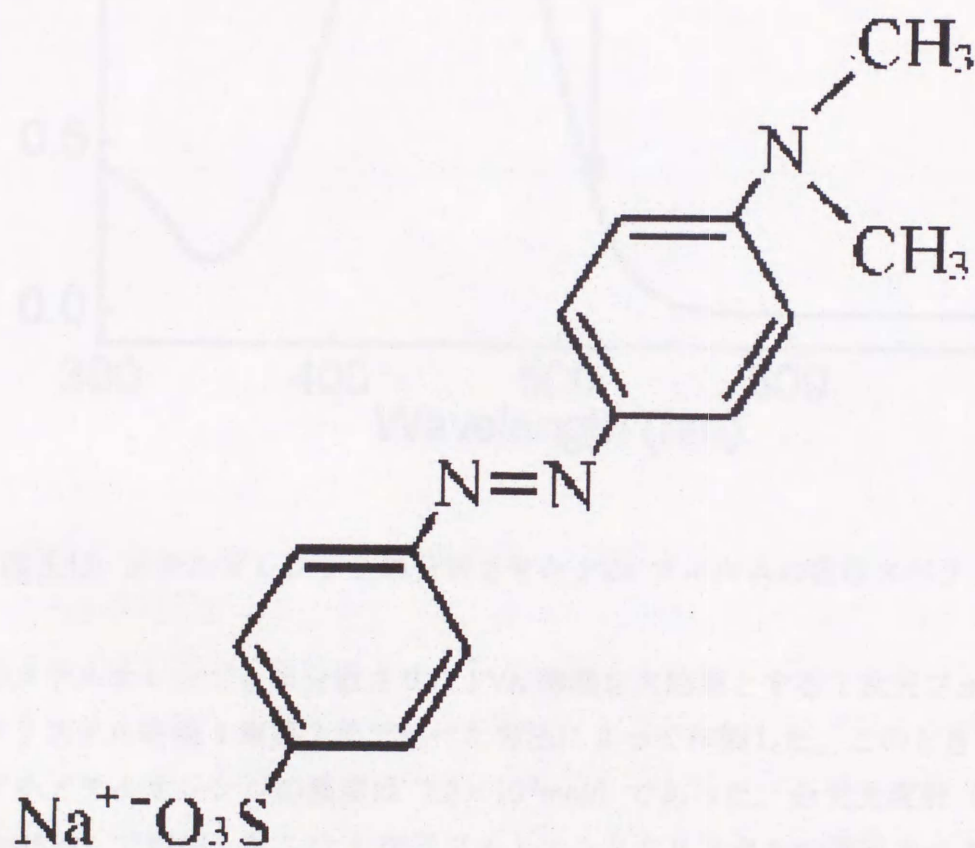


図 5.12: 有機色素分子メチルオレンジの構造式



またメチルオレンジ分子を単分散させた PVA フィルムの吸収スペクトルは図 5.13 のようになっており波長 450nm 付近に吸収の極大がある。

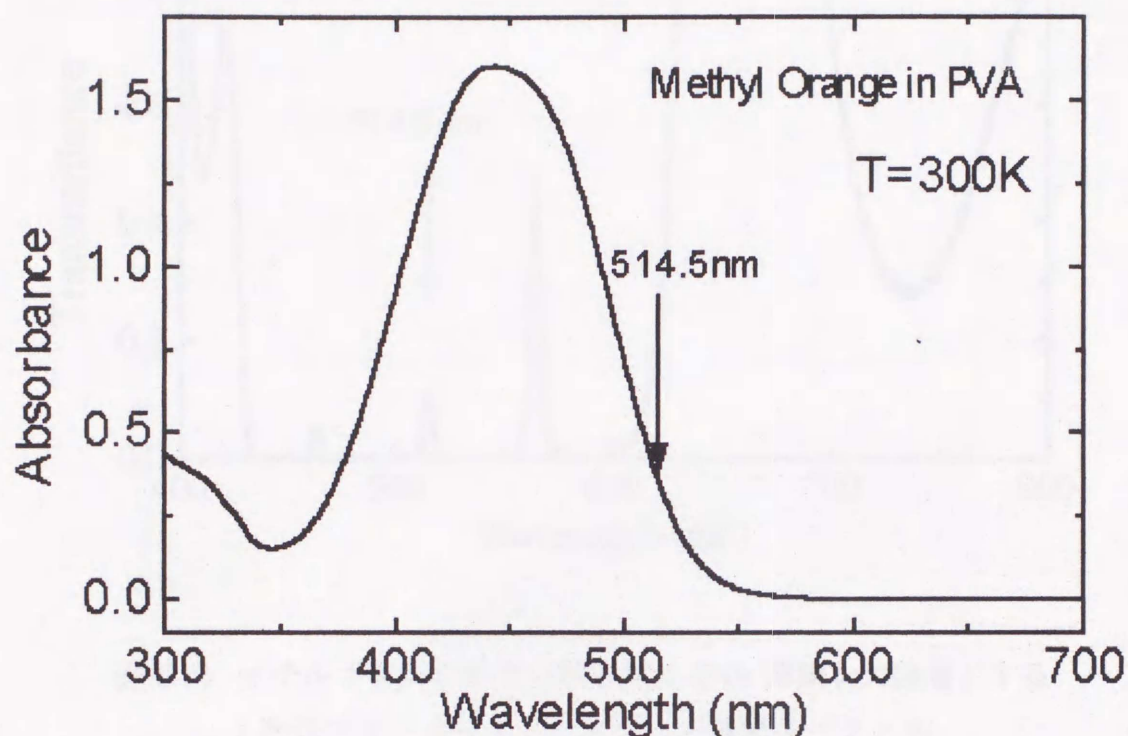


図 5.13: メチルオレンジを単分散させた PVA フィルムの吸収スペクトル

このメチルオレンジを単分散させた PVA 薄膜を欠陥層とする 1 次元フォトニック結晶を第 4 章第 2 節で述べた方法によって作製した。このとき PVA に対するメチルオレンジの濃度は  $7.2 \times 10^{-2} \text{ mol/l}$  であった。分光光度計 (JUSCO U-best550) で測定したこの 1 次元フォトニック結晶の透過スペクトルを図 5.14 に示す。この時両側の周期的多層膜部分の各層の膜厚は  $488\text{nm}/4$  である。

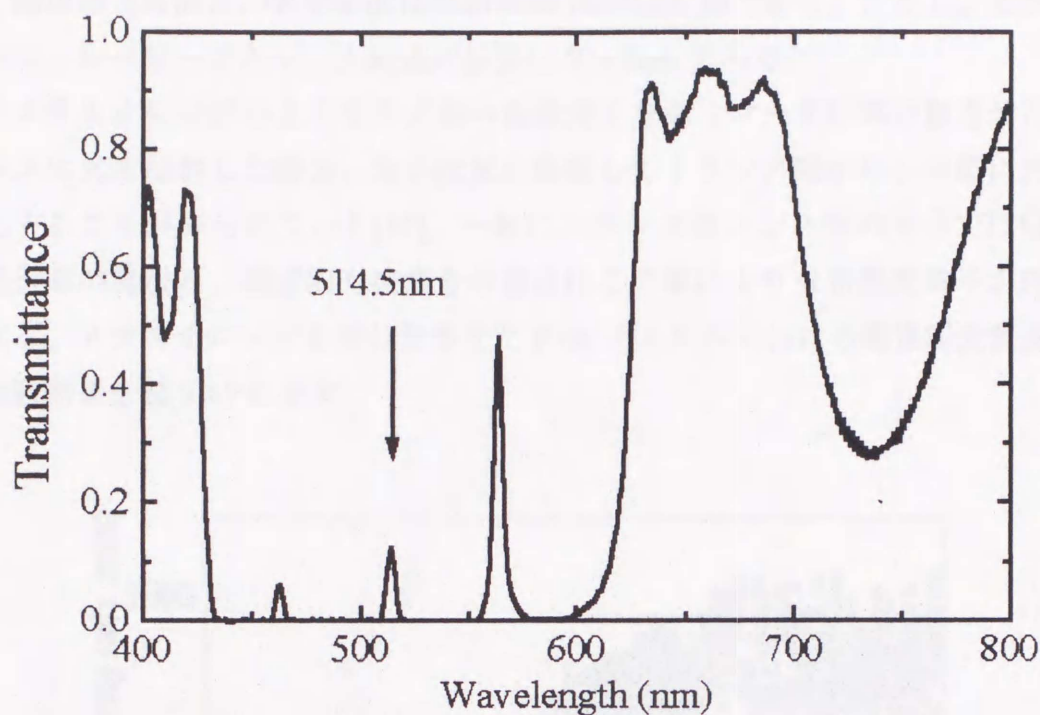


図 5.13: メチルオレンジを単分散させた PVA 薄膜を欠陥層とする  
1次元フォトリッククリスタルの透過スペクトル

この透過スペクトルから算出した欠陥層の光学膜厚は  $3\lambda$  程度である。本実験において入射光はアルゴンレーザーの 514.5nm 発振線を用いており、波長 514.5nm の透過ピークのみを考えればよい。この波長 514.5nm の透過率は弱いアルゴンレーザーを入射させて測定したところ約 12% である。また本実験においては比較のために、メチルオレンジを単分散させた単なる裸の PVA キャストフィルムも作製し同様の実験も行っている。この裸の PVA フィルムは波長 514.5nm における透過率が 1 次元フォトリッククリスタルの場合と同じ約 12% のものであり、キャスト法によって作製した。透過率 12% の場合、図 5.6 に示すように理論的には約 200 倍の発生効率の増大が期待できる。



### 5.4.2 実験

縮退四光波混合の光学配置は前節同様 Box-cars 型である。ただし、光源はアルゴンレーザーであり、入射光の波長は 514.5nm である。

メチルオレンジのようなアゾ系の色素分子をポリマー中に単分散させたフィルムに光を照射した場合、分子は光を吸収してトランス型からシス型に光異性化することが知られている[47]。一般にトランス型とシス型の分子では吸収や屈折率が異なる。縮退四光波混合の場合はこの事により分布密度格子が形成される。メチルオレンジを単分散させた PVA フィルムにおける縮退四光波混合の実験結果を図 5.15 に示す。

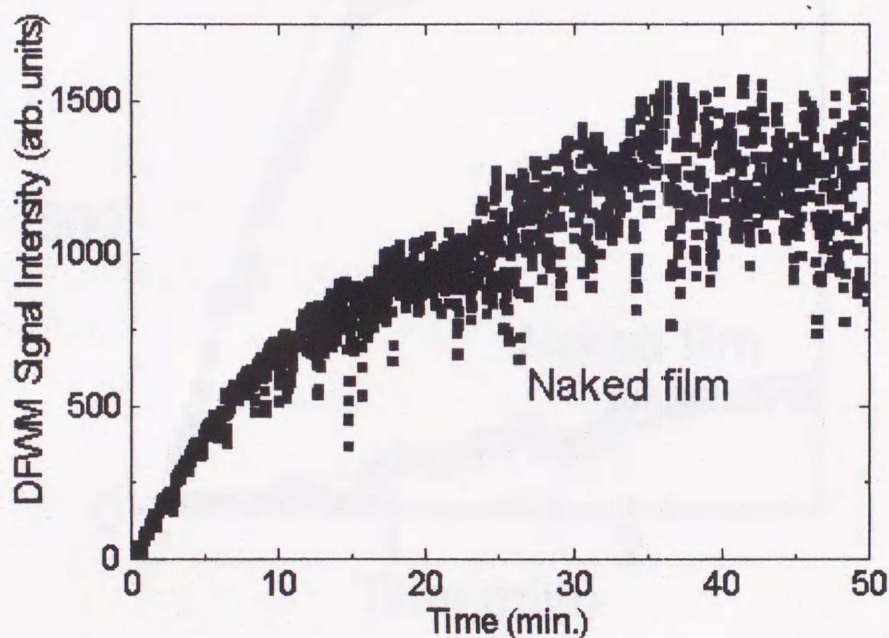


図 5.15: メチルオレンジを単分散させた PVA フィルムの縮退四光波混合

縦軸は縮退四光波混合光強度、横軸は光の照射時間である。これによると光を当て続けると光異性化が進むために分布密度格子が成長し、それにしたがって信号強度も増加する様子が分かる。これは入射強度に依存しており、入射光が強くなればそれだけ光異性化は速く進むので信号強度の成長速度もそれに応じて速くなる。そして、光を入射し続けると分布密度格子の成長が平衡状態に達し、信号強度も飽和する。



### 5.4.3 実験結果

1次元フォトニッククリスタルと裸のPVAフィルムの縮退四光波混合の実験結果を図5.16に示す。縦軸は縮退四光波混合光強度、横軸は光の照射時間である。また、黒四角は1次元フォトニッククリスタル、白抜き四角は単なる裸のフィルムにおける結果である。

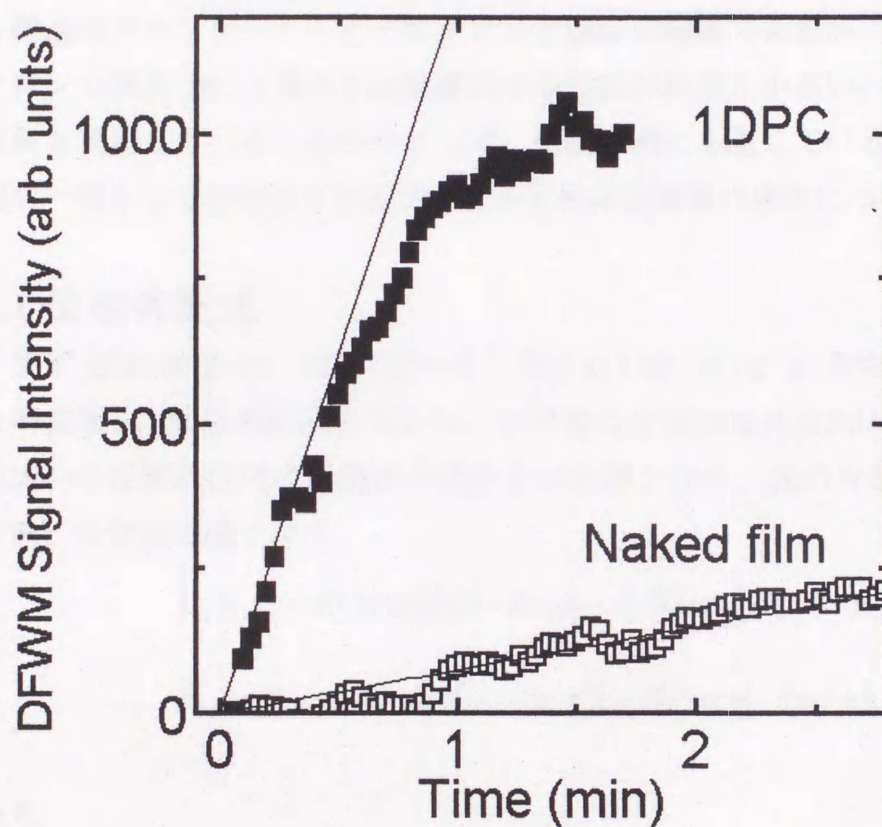


図 5.16: 1次元フォトニッククリスタルによる縮退四光波混合光強度

それぞれ光を照射し続けると信号強度が増加していく様子が分かるが、1次元フォトニッククリスタルの方が飽和するまでの間、裸のフィルムと比較して約20倍の発生効率の増大が観測された。理論的考察から期待される200倍の発生効率は見られなかったが、これは作製した試料の不完全性によるものであると考えられる。以上より1次元フォトニッククリスタルにおいて縮退四光波混合光の発生効率を増大させることに成功した。



## 第6章 1次元フォトニッククリスタル構造による位相共役光の発生

前章までに、1次元フォトニッククリスタル構造における非線形光学効果の増強が実験的に確認できた。本研究で用いている1次元フォトニッククリスタル構造はファブリー・ペローエタロンと類似の構造であるが、通常非線形エタロンの場合[29]と異なり欠陥層の光学膜厚が非常に小さい。そのため、多重反射を利用しているにもかかわらず、画像処理にも適している。以下で画像処理の一例として縮退四光波混合による位相共役画像の発生について述べる。

### 6.1 位相共役光

まず、位相共役光について述べる。式(6.1)で表される $\mathbf{k}$ 方向に伝搬するような周波数 $\omega$ の単色平面波を考える。この光の位相共役光は式(6.2)に示すように式(6.1)の空間的位相項の複素共役をとった形となり、元の光波と逆方向( $-\mathbf{k}$ 方向)に進む光波となる。

$$E_{\text{in}}(\mathbf{r}, t) = A(\mathbf{r})\exp\{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})\} + A^*(\mathbf{r})\exp\{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})\} \quad (6.1)$$

$$E_{\text{pc}}(\mathbf{r}, t) = A^*(\mathbf{r})\exp\{i(\omega t + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})\} + A(\mathbf{r})\exp\{-i(\omega t + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})\} \quad (6.2)$$

また

$$E_{\text{pc}}(\mathbf{r}, t) \propto E_{\text{in}}(\mathbf{r}, -t) \quad (6.3)$$

とかけることから、位相共役光は時間反転波ともいわれる。このように位相共役光にはもと来た光路を正確に逆行する性質がある。また、例えばすりガラスのような媒質を通過して波面が乱れた波の位相共役光が同じ媒質を逆向きに通過すると、波面の乱れは打ち消されて完全な入射光波面が再生される、というように位相補正作用がある[42]。

この位相共役光を発生させる方法は様々であるが最も一般的な方法として縮退四光波混合によるものがあげられる。



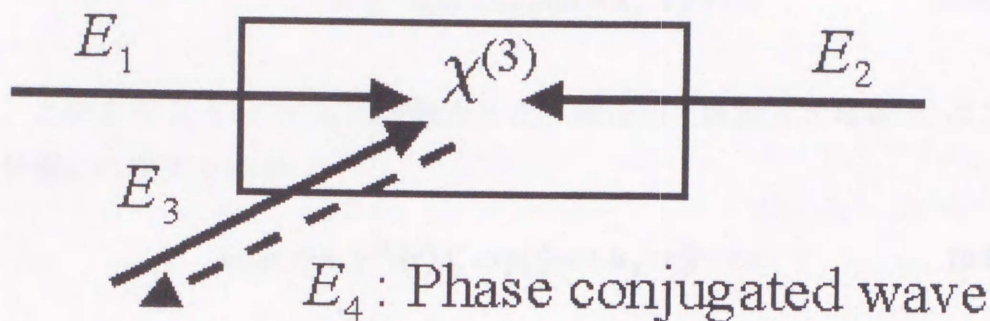


図 6.1: 位相共役型配置

図 6.1 に示すように互いに逆向きに伝搬するポンプ光  $E_1$ 、 $E_2$  とプローブ光  $E_3$  を非線形媒質に入射した場合、縮退四光波混合光  $E_4$  が発生する。ここで  $E_1$ 、 $E_2$  そして  $E_3$  は全て同じ周波数の光であるとし、

$$\begin{aligned} E_1(\mathbf{r}, t) &= A_1(\mathbf{r}) \exp\{i(\omega t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})\} + \text{c.c.} \\ E_2(\mathbf{r}, t) &= A_2(\mathbf{r}) \exp\{i(\omega t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})\} + \text{c.c.} \\ E_3(\mathbf{r}, t) &= A_3(\mathbf{r}) \exp\{i(\omega t - \mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r})\} + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (6.4)$$

のように表す。

このときこれら 3 つの入射光によって生じる 3 次の非線形分極のある成分は

$$\mathbf{P}_s^{(3)}(\mathbf{r}, t) = \chi^{(3)} A_1 A_2 A_3^* \exp[i\{\omega t - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}\}] + \text{c.c.} \quad (6.5)$$

と表される。ここで、 $E_1$  と  $E_2$  は互いに逆向きであることから

$$\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2 \quad (6.6)$$

となり

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_4 &= \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 \\ &= -\mathbf{k}_3 \end{aligned} \quad (6.7)$$

となる。よってこの 3 次の非線形分極は



$$\begin{aligned} \mathbf{P}_s^{(3)}(\mathbf{r}, t) &\propto \chi^{(3)} A_3^*(\mathbf{r}) \exp\{i(\omega t - \mathbf{k}_4 \cdot \mathbf{r})\} + c.c. \\ &\propto \chi^{(3)} A_3^*(\mathbf{r}) \exp\{i(\omega t + \mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r})\} + c.c. \end{aligned} \quad (6.8)$$

となる。このとき  $A_1$  および  $A_2$  は定数とした。縮退四光波混合光電場  $\mathbf{E}_4$  はこの非線形分極に比例するので

$$\mathbf{E}_4(\mathbf{r}, t) \propto \chi^{(3)}(\mathbf{r}) A_3^* \exp\{i(\omega t + \mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r})\} + c.c. \quad (6.9)$$

となる。これはプローブ光  $\mathbf{E}_3$  の位相共役光に他ならない。以上、縮退四光波混合により位相共役光を発生することができることを述べたが、第 5 章で述べたように 1 次元フォトニッククリスタル構造を用いることによりこの発生効率を増大させることが出来る。また、プローブ光として単なる平面波を考えたが、一般に任意の形の波面を持つ波は平面波の重ね合わせであると考えることが出来るので、上述の議論によって任意の形の波面を持った波の位相共役光を縮退四光波混合によって発生させることが出来る。本章の実験においてはプローブ光は単なるレーザー光線ではなく画像情報を含むような光波とした。

このように位相共役光は位相補正作用や時間反転性などの特異な性質をもっていることから光計測や光情報処理などへのさまざまな応用が考えられる。しかし、現時点においてはその発生効率や応答速度の面で実用的なものとは言い難い。しかし、1 次元フォトニッククリスタル構造を用いることによって非線形光学効果が増強できるので位相共役光の発生効率を増大させることが可能となり、実用化のための有用な技術となり得ると思われる。

## 6.2 実験

位相共役光発生実験においては、1次元フォトニッククリスタルの欠陥層媒質として第6章第4節でも述べたアゾ系色素である Methyl Orange(MO)を単分散させた PVA フィルムを用いた。このとき PVA に対する MO のモル濃度は  $1.85 \times 10^{-1}$  mol/l、重量比は 200:1 である。作製した 1次元フォトニッククリスタルの透過スペクトルを図 6.2 に示す。この時両側の周期的多層膜部分の各層の膜厚は  $488\text{nm}/4$  である。

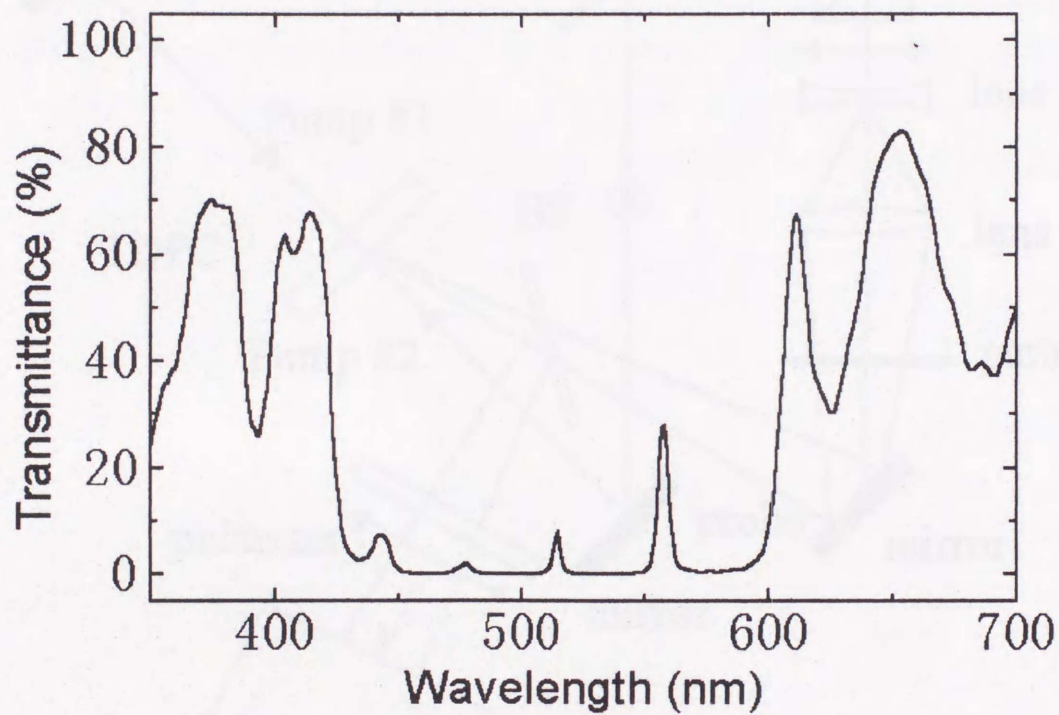


図 6.2: 1次元フォトニッククリスタルの透過スペクトル



次に位相共役光発生のための実験系を図 6.3 に示す。

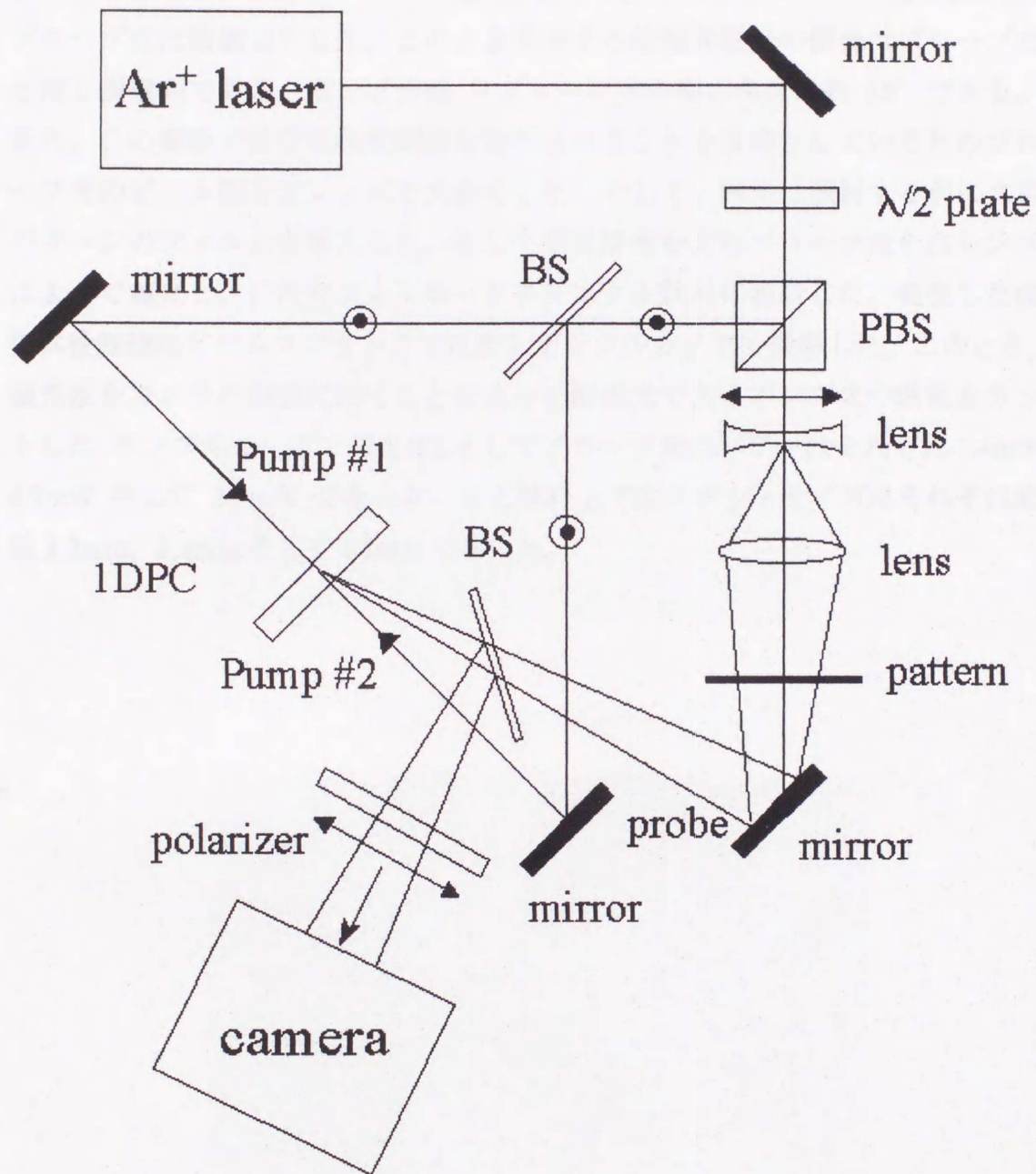


図 6.3: 位相共役光発生実験配置図

CW アルゴンレーザーの波長 514.5nm の光を入射光として用いた。レーザー光は $\lambda/2$  波長板によってレーザー光の偏光面を回転させた後に偏光ビームスプリッターによってポンプ光とプローブ光に分割した。このとき、ポンプ光は縦偏光、プローブ光は横偏光とした。このとき発生する位相共役光の偏光はプローブ光と同じ横偏光である。ポンプ光#2 とプローブ光の間の角度は約  $15^\circ$  である。また、この実験では位相共役画像を発生させることを目的としているためプローブ光のビーム径を凹レンズで大きくした。そして、試料に照射する前に文字パターンのフィルムを挿入した。そして画像情報を含むプローブ光を凸レンズによって集光し、1次元フォトリソグラフィ結晶試料に照射した。発生した位相共役画像はビームスプリッターで反射しデジタルカメラで撮影した。このとき、偏光板をカメラの前面におくことによって縦偏光であるポンプ光の散乱をカットした。ポンプ光#1、ポンプ光#2そしてプローブ光のパワーはそれぞれ 5.4mW、4.7mW そして 2.4mW であった。また試料上でのスポットサイズはそれぞれ直径 2.2mm、2.2mm そして 1.2mm であった。



### 6.3 実験結果

1 次元フォトニッククリスタル構造による位相共役画像の発生実験の結果を図 6.4、図 6.5 に示す。

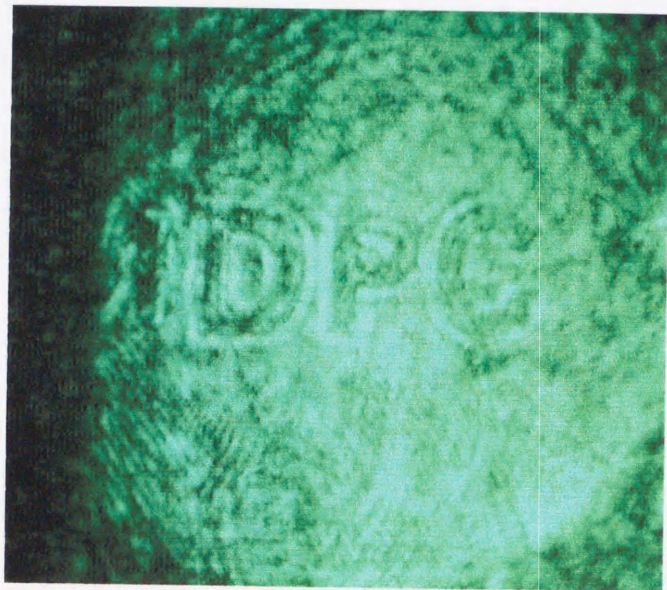


図 6.4: 位相共役画像 1

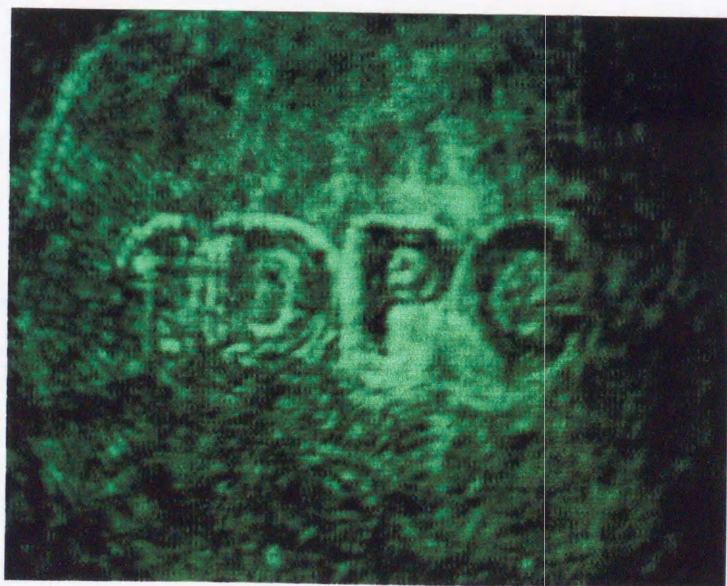


図 6.5: 位相共役画像 2

カメラの前に ND フィルターを置いて位相共役光強度を調整したため図 6.4 と図 6.5 とは明るさが異なっている。試料の不完全性などのために画像はやや不鮮明ではあるが、文字パターン"1DPC"の位相共役画像が発生したことが分かる。



## 第7章 まとめ

本論文において 1 次元フォトニッククリスタル構造により非線形光学効果が増強できることを示したが、以下にこれをまとめる。

はじめに、この研究の背景としてフォトニッククリスタルの概念について述べた。従来のエレクトロニクスにおいて中心的役割を果たしてきた半導体と同様の、あるいはそれ以上の役割を、今後実現が期待されるフォトニクスにおいてフォトニッククリスタルが担うであろうことが期待されている。本研究においてはフォトニッククリスタルの様々な特徴の中で、構造欠陥近傍において光が局在するという特徴に着目した。そして 1 次元のフォトニッククリスタル構造において非線形光学効果を増強することが可能であるという提案を行った。

その 1 次元フォトニッククリスタル構造はよく知られた誘電体多層膜のような系で実現することができ、その線形の光学的性質を特性行列を用いた手法により理論的に解析した。そしてこの理論解析に基づいて各種の 1 次元フォトニッククリスタルを設計し、それを実際に作製した。これらの作製した 1 次元フォトニッククリスタルの透過スペクトルの測定により、設計した通りのものができていることが分かった。さらに、独自に開発した白色光マイケルソン干渉計を用いて超短光パルスの時間的な透過特性を観測した。またこの白色光マイケルソン干渉計を用いたフーリエ分光により各種の 1 次元フォトニッククリスタルのバンド構造を実際に観測することができた。これらの線形的な光学測定の結果、1 次元フォトニッククリスタルにおいてフォトニックバンドギャップができ得ること、欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタルにおいてフォトニックバンドギャップ中に欠陥による光の局在準位ができること、そして欠陥を有する 1 次元フォトニッククリスタル中の欠陥近傍において光が局在していることが間接的にわかった。これはすなわち欠陥層において光強度が増強していることを意味しており、非線形光学効果の増強が可能であることを示唆している。

そこで、有機色素分子を単分散させたポリマーフィルムを欠陥層とした 1 次元フォトニッククリスタルを実際に作製して非線形光学効果の増強を試みた。まず、欠陥に起因した光の局在準位に対応する透過ピークにおける透過率の入



射光強度依存性の測定により、同じ透過率 50%の単なる裸のポリマーフィルムよりも約 1/20 の低い入射光強度で吸収飽和が起こっていることが観測できた。このことは欠陥層中の色素分子が約 20 倍の光強度を感じているためであり、確かに欠陥層において光が局在し光強度が増強している事が分かった。特性行列を用いた手法による理論解析によると、本実験の条件においては約 30 倍の光強度の増強が期待されており、ほぼ一致した結果が得られた。

さらに、低出力レーザーを用いた位相共役光の発生を目指し縮退四光波混合光の発生効率を増大することを試みた。この実験においては 2 種類の比較を行った。1 つは欠陥層媒質と同じ厚さ、同じ色素濃度の裸のフィルムとの比較である。この時の実験条件においては理論解析で約 1000 倍の発生効率の増大が期待されていたが、実験においては約 300 倍の増大が観測できた。もう 1 つの比較は 1 次元フォトリック結晶の欠陥準位に対応した透過ピークの透過率と同じ透過率を持つ裸のフィルムとの比較である。この時の実験条件においては理論的には約 200 倍の発生効率の増大が期待されていたが、実験においては約 20 倍の増大が観測できた。

これらの縮退四光波混合光発生効率の増大は、1 次元フォトリック結晶の欠陥層中の色素の種類や濃度、全体の層数などいろいろなパラメータによって異なる。本研究においてはこれらのパラメータを変化させていろいろな種類の 1 次元フォトリック結晶を作製し実験を行ったが、このように多数の試料を作製できたのは欠陥層媒質として色素分子を単分散させたポリマーフィルムを用いた点に依るところが大きい。作製法としては周期的誘電体多層膜表面にスピコート法によって水溶性のポリマーを成膜するという手法を取ったが、試料の出来によっては洗浄するだけで何度もその誘電体多層膜が使用でき、本研究において試料は安価にかつ大量に作製することができた。このようなメリットはあったものの、この手法にもデメリットがあった。それは欠陥層であるポリマー薄膜と誘電体多層膜との界面において接触が十分でなく、不整合が生じてしまうという点である。この結果、入射レーザー光が乱反射し散乱が多くなり、縮退四光波混合光の測定が非常に困難なものとなった。また、このことは発生効率の増大において、理論的に期待された通りのものが得られなかった一因にもなっていると思われる。この点においては今後改善の余地が残されている。いずれにせよ、非線形光学効果の増強が 1 次元フォトリック結晶



タルにおいて可能であることがわかった。今後は更に信頼性の高い試料を用いることで本研究においては行えなかった発生効率の増強度の定量的な議論が可能となるであろう。

最後に、このような 1 次元フォトニッククリスタルを用いて位相共役画像の発生に成功した。この方法を用いることにより縮退四光波混合光の発生が低出力レーザー光でも実現できることから光演算や光画像処理などためのフォトニクスデバイスとして大きな可能性を秘めていることが言える。

本研究においては主に欠陥層媒質として有機色素分子を単分散させた高分子薄膜を用いたが、その他の媒質においても同様の過程が可能である。例えば非線形媒質として大きな非線形感受率を有する半導体量子ドットなどがあげられる。また今回は吸収性の非線形光学媒質を用いたが、これは欠陥層における光強度の増強を抑制することになり本来好ましくない。そこで分散性の非線形光学媒質を欠陥層とする 1 次元 PC 構造により更に大きな光強度の増強が期待できる。分散性非線形光学媒質の持つ高速応答性をも加味すれば超高速非線形光学デバイスとしての大きな可能性も秘めているであろう。



## 参考文献

- [1] S. John, "Localization of Light", *Physics today*, **44**, 32 (1991).
- [2] 富田誠, "乱れた媒質中での光の揺らぎとアンダーソン局在", *日本物理学会誌*, **46**, 927 (1991).
- [3] E. Yablonovitch, "Photonic band-gap structures", *J. Opt. Soc. Am. B*, **10**, 283 (1993)
- [4] T.K. Gaylord, G.N. Henderson, and E.N. Glytsis, "Application of electromagnetics formalism to quantum-mechanical electron-wave propagation in semiconductors", *J. Opt. Soc. Am. B*, **10**, 333 (1993)
- [5] 例えば, C. Kittel, "Introduction to Solid State Physics 6th ed.", John Wiley & Sons, Inc., New York, (1986)
- [6] E. Yablonovitch, "Inhibited Spontaneous Emission in Solid-State Physics and Electronics", *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 2059 (1987)
- [7] E. Yablonovitch, "Donor and Acceptor Modes in Photonic Band Structure", *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3380 (1991)
- [8] D.R. Smith, R. Dalichaouch, N. Kroll, S. Schultz, S.L. McCall, and P.M. Platzman, "Photonic band structure and defects in one and two dimensions", *J. Opt. Soc. Am. B*, **10**, 314 (1993)
- [9] 例えば, Loudon, "光の量子論", 内田老鶴圃 (1994)
- [10] 例えば, J.D. Joannopoulos, R.D. Meade and J.N. Winn, "Photonic Crystals", Princeton university, (1995)
- [11] J.P. Dowling and C.M. Bowden, "Atomic emission rates in inhomogeneous media with applications to photonic band structures", *Phys. Rev. A*, **46**, 612 (1992)
- [12] M. Scalora and M.E. Crenshaw, "A beam propagation method that handles reflections", *Opt. Comm.*, **108**, 191 (1994)
- [13] R.P. Stanley, R. Houdré, U. Oesterle, M. Illegems, and C. Weisbuch, "Impurity modes in one-dimensional periodic systems: The transition from photonic band gaps to microcavities", *Phys. Rev. A*, **48**, 2246 (1993)
- [14] T. Hattori, N. Tsurumachi, S. Kawato, and H. Nakatsuka, "Photonic dispersion relation in one-dimensional quasicrystal", *Phys. Rev. B*, **50**, 4220 (1994)



- [15] A.M.Steinberg, P.G.Kwait, and R.Y.Chiao, "Measurement of the single-photon tunneling time", *Phys.Rev.Lett.*, **71**, 708 (1993)
- [16] M.D.Tocci, M.Scalora, M.J.Bloemer, J.P.Dowling, and C.M.Bowden, "Measurement of spontaneous-emission enhancement near the one-dimensional photonic band edge of semiconductor heterostructures", *Phys.Rev.A*, **53**, 2799 (1996)
- [17] H.Miyazaki, Y.Jimba, and T.Watanabe, "Multiphotonic lattices and stark localization of electromagnetic fields in one dimension", *Phys. Rev. A*, **53**, 2877 (1996)
- [18] R.Riklund and M.Severin, "Optical properties of perfect and non-perfect quasi-periodic multilayers: a comparison with periodic and disordered multilayers", *J.Phys. C: Solid State Phys.*, **21**, 3217 (1988)
- [19] P.R.Villeneuve and M.Piché, "Photonic band gaps in two-dimensional square and hexagonal lattices", *Phys.Rev.B*, **46**, 4969 (1992)
- [20] P.R.Villeneuve and M.Piché, "Photonic band gaps in two-dimensional square lattices: Square and circular rods", *Phys.Rev.B*, **46**, 4973 (1992)
- [21] S.L.McCall, P.M.Platzman, R.Dalichaouch, D.Smith, and S.Schultz, "Microwave propagation in two-dimensional dielectric lattices", *Phys.Rev.Lett.*, **67**, 2017 (1991)
- [22] E.Yablonovitch, T.J.Gmitter and K.M.Leung, "Photonic band structure: The face-centered-cubic case employing nonspherical atoms", *Phys.Rev.Lett.*, **67**, 2295 (1991)
- [23] H.S. Sözüer, and J.W.Haus, "Photonic bands: simple-cubic lattice", *J.Opt.Soc.Am.B*, **10**, 296 (1993)
- [24] C.J.Herbert, W.S.Capinski, and M.S.Malcuit, "Optical power limiting with nonlinear periodic structures", *Opt.Lett.*, **17**, 1037 (1992)
- [25] T.Hattori, N.Tsurumachi, and H.Nakatsuka, "Analysis of optical nonlinearity by defect states in one-dimensional photonic crystals", *J.Opt.Soc.Am.B*, **14**, 348 (1997)
- [26] J.H.Marburger and F.S.Felber, "Theory of a loss less nonlinear Fabry-Perot interferometer", *Phys.Rev.A*, **17**, 335 (1978)
- [27] G.Manneberg and M.Kull, "Polychromatic phase conjugation in Fabry-Perot etalons", *IEEE J.quantum electron.*, **25**, 602 (1989)
- [28] J.L.Oudar, R.Kuszelewicz, B.Sfez, D.Pellat, and R.Azoulay, "Quantum well nonlinear microcavities", *Superlattices and Microstructures*, **12**, 89 (1992)



- [29] H.M.Gibbs, S.L.McCall, and T.N.C.Venkatesan, "Differential gain and bistability using a sodium-filled Fabry-Perot interferometer", *Phys.Rev.Lett.*, **36**, 1135 (1976)
- [30] T.N.C.Venkatesan and S.L.McCall, "Optical bistability and differential gain between 85 and 296 ° K in a Fabry-Perot containing ruby", *Appl.Phys.Lett.* **30**, 282 (1977)
- [31] R.Shimano, S.Inouye, M.Kuwata-Gonokami, T.Nakamura, M.Yamanishi, and I.Ogura, "Efficient Phase Conjugation Wave Generation from a GaAs Single Quantum Well in a Microcavity", *Jpn. J.Appl. Phys.* **34**, 817 (1995)
- [32] R.Buhleier, V.Bardinal, J.H.Collet, C.Fontaine, M.Hübner, and J.Kuhl, "Four-wave mixing in bulk GaAs microcavities at room temperature", *Appl.Phys.Lett.* **69**, 2240 (1996)
- [33]例えば、M.Born and E.Wolf, "Principles of Optics", (1974)
- [34] M.Kohmoto, B. Sutherland, and K.Iguchi, "Localization in Optics: Quasiperiodic Media", *Phys.Rev.Lett.*, **58**, 2436 (1987)
- [35] A.Baltuska, Z.Wei, M.S.Pshenichnikov, and D.A.Wiersma, "Optical pulse compression to 5fs at a 1-MHz repetition rate", *Opt.Lett.*, **22**, 102 (1997)
- [36] M.Nisoli, S.D.Silvestri, O.Svelto, R.Szipöcs, K.Ferencz, Ch.Spielmann, S.Sartania, and F.Krausz, "Compression of high-energy laser pulses below 5fs", *Opt.Lett.*, **22**, 522 (1997)
- [37] 例えば、J.W.Goodman, "Statistical Optics", John Wiley & Sons, Inc., New York, (1985)
- [38] N.Tsurumachi, T.Fuji, S.Kawato, T.Hattori, and H.Nakatsuka, "Interferometric observation of femtosecond free induction decay", *Opt.Lett.*, **19**, 1867 (1994)
- [39] T.Fuji, M.Miyata, S.Kawato, T.Hattori, and H.Nakatsuka, "Linear propagation of light investigated with a white-light Michelson interferometer", *J.Opt.Soc.Am.B*, **14**, 1074 (1997)
- [40] S.Saikan, K.Uchikawa, and H.Ohsawa, "Phase-modulation technique for accumulated photon echo", *Opt.Lett.*, **16**, 10 (1991)
- [41] T.Hattori, N.Tsurumachi, N.Muroi, H.Nakatsuka, and E.Ogino, "Enhancement of optical nonlinearity in one-dimensional photonic crystals", *Prog.Crystal Growth and Charact.* **33**, 183 (1996)
- [42] 例えば、A.Yariv, "Quantum Electronics", John Wiley & Sons, Inc., New York, (1988)



- [43] R.L.Abrams and R.C.Lind, "Degenerate four-wave mixing in absorbing media", *Opt.Lett.* **2**, 94 (1978)
- [44] L.Tang, R.Dorsinville, Q.Z.Wang, W.K.Zou, P.P.Ho, N.L.Yang, R.R.Alfano, R.Zamboni, R.Danieli, G.Ruani, and C.Taliani, "Third-order optical nonlinearity in polycondensed thiophene-based polymers and polysilane polymers", *J.Opt.Soc.Am.B*, **6**, 753 (1989)
- [45] W.Du, X.Zhang, K.Chen, Z.Lu, Y.Zheng, and J.Wu, "Multiple forward phase conjugate waves by degenerate four-wave mixing in Langmuir-Blodgett films with BOXCARS geometry", *Opt.Comm.*, **84**, 205 (1991)
- [46] Y.Silberberg and I.Bar-Joseph, "Low power phase conjugation in thin films of saturable absorbers", *Opt.Comm.*, **39**, 265 (1981)
- [47] T.Todorov, L.Nikolova, N.Tomov, and V.Dragostinova, "Photoinduced anisotropy in rigid dye solutions for transient polarization holography", *IEEE J.quantum electron.*, **22**, 1262 (1986)
- [48] I.V.Tomov, B.VanWantergham, A.S.Dvornikov, T.E.Dutton, and P.M.Rentzepis, "Degenerate four-wave mixing in azo-dye-doped polymer films", *J.Opt.Soc.Am.B*, **8**, 1477 (1991)
- [49] T.Todorov, L.Nikolova, and N.Tomov, "Polarization holography. 1: A new high-efficiency organic material with reversible photoinduced birefringence", *Appl.Opt.*, **23**, 4309 (1984)



## 謝辞

本研究を行うにあたり、大変心配をおかけし、また多大な励ましをいただき懇切丁寧なご指導くださった中塚宏樹先生に深く感謝いたします。

研究全般にわたり貴重なご助言をいただき、特に理論部分のサポートをしてくださった服部利明先生に深く感謝いたします。

お忙しい中、本論文についていろいろな検討をしてくださった青木貞雄先生、舩本泰章先生、谷田貝豊彦先生、竹森直先生に深く感謝いたします。

本研究で用いた 1 次元フォトリッククリスタル試料を作製していただき、提供してくださった日本板硝子株式会社の荻野悦男氏にお礼を申し上げます。

同時期に研究室に入りこの 5 年間いろいろな面で協力していただき、特にコンピュータ関係について私を助けてくださった藤貴夫氏に深く感謝いたします。

研究室の先輩として様々な面でご指導ご助言くださった K.M.Abedin 氏、川戸栄氏、J.Y.Ye 氏、井上英幸氏に感謝いたします。

研究室の同期として共に励ましあった斎藤健一氏、福田仁氏に感謝いたします。

共同実験者として共に研究をした上田浩氏、室井典雄氏、宮田元寿氏、荒川真理子嬢、そして最も困難な場面に共に過ごした山下祥一氏に感謝いたします。

同じ研究室で共に過ごした高橋直樹氏、柏木剛氏、鈴木肇氏、関根俊治氏、古市万寿美嬢、平井雅也氏、株木耕平氏、依田琢也氏、阿部真氏、川島由嗣氏、鈴木祐仁氏、山根裕治氏、高橋篤史氏、石井英道氏、林良氏に感謝いたします。

同世代の大学院生として共に励まし合った大島研究室の高橋靖彦氏、舩分倫子嬢をはじめ大島研究室の皆様に感謝いたします。

各種の色素に関する情報および位相共役画像撮影用のデジタルカメラについていろいろとご教授くださった谷田貝研究室の原田建治氏、宗形勝博氏に感謝いたします。

信州大学卒業後も公私共に様々な面で相談に乗っていただき、ご指導ご教授くださった信州大学伊藤稔先生に深く感謝いたします。

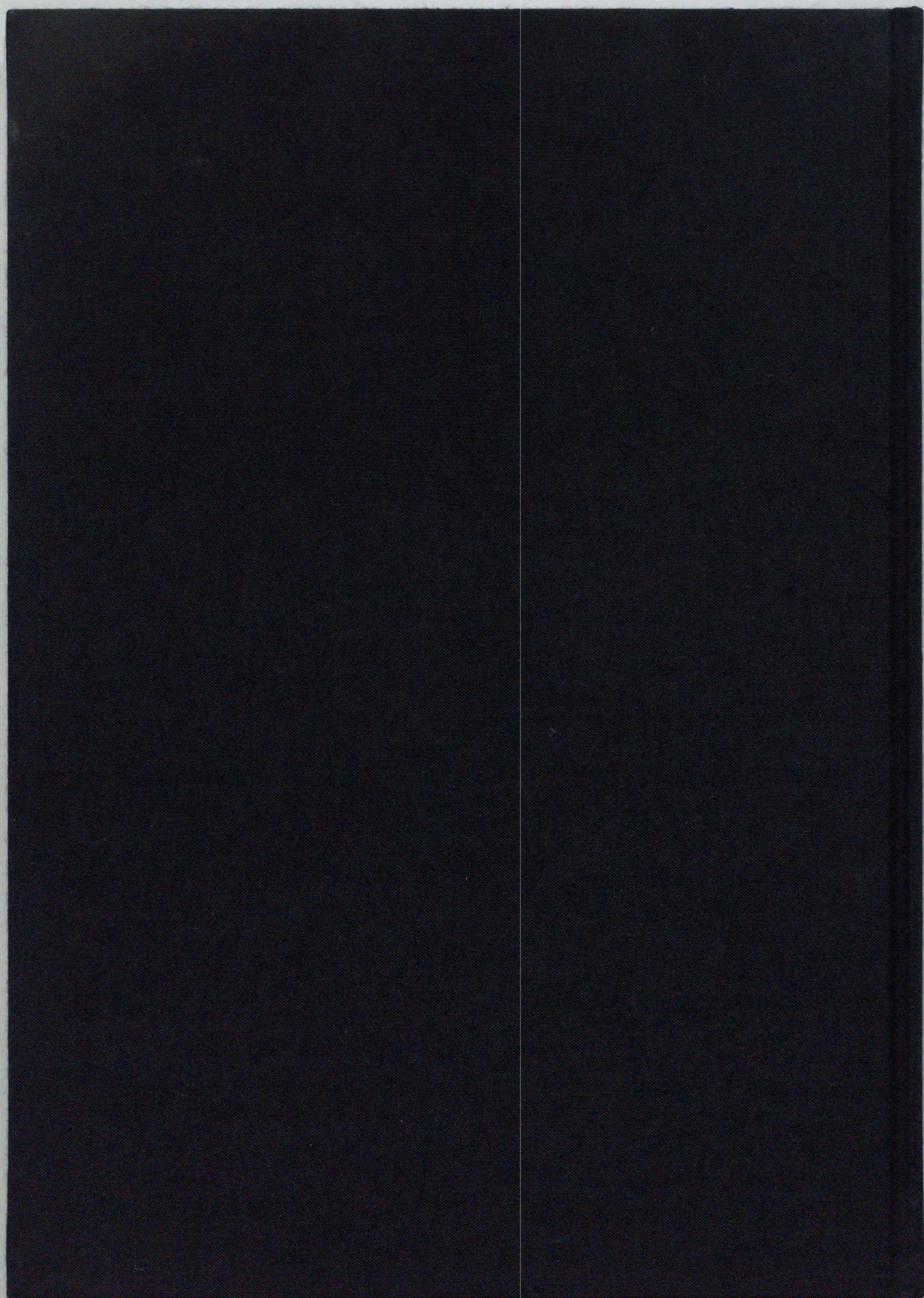
分子科学研究所 UVSOR における研究に参加させていただき、学会などの時にお世話いただいた香川大学伊藤寛先生、中西俊介先生に深く感謝いたします。



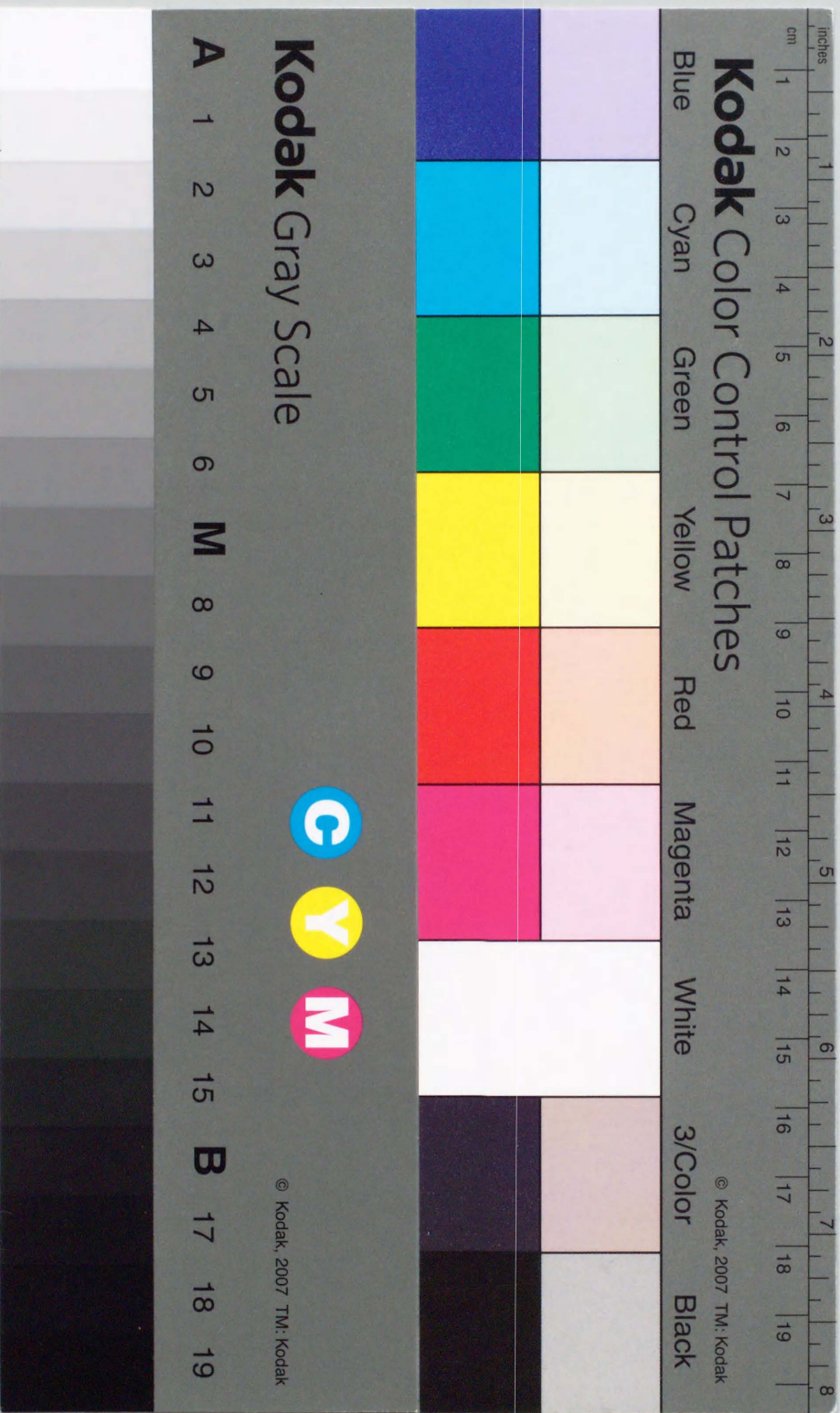
この 5 年間、研究生活に集中できるように様々なサポートをしてくださった家族、そして婚約者の小堀陽子には感謝の言葉も見つかりません。

その他、ここに書ききれなかった数多くの人々の励ましや協力のおかげで本研究を遂行し、ここに博士論文としてまとめることができました。どうもありがとうございました。









# Kodak Color Control Patches

Blue Cyan Green Yellow Red Magenta White 3/Color Black

© Kodak, 2007 TM: Kodak

## Kodak Gray Scale



© Kodak, 2007 TM: Kodak

A 1 2 3 4 5 6 M 8 9 10 11 12 13 14 15 B 17 18 19