

1次元フォトリック結晶における光電場増強と高速光応答

井上 英幸・鶴町 徳昭・服部 利明・中塚 宏樹

今日の高度情報化社会は、固体中の電子を制御することにより実現された、さまざまな電子デバイスによって支えられてきた。しかしながらエレクトロニクスにおける応答速度の限界はナノ秒 (10^{-9} 秒) もしくはサブナノ秒程度であり、社会の発展に伴い、より高速な処理を行うことのできるエレクトロニクスに代わる技術が求められている。より高速な領域で信号処理を行う技術としては光を用いた方法が最も有力視されている。そのためには光に対する非線形性が大きく、かつ高速応答性を有する光学材料の開発が不可欠であり、さまざまな無機および有機材料の探索とともに、量子井戸や量子ドットのような量子閉じ込めによる非線形光学効果の増強を用いた材料の開発など、活発な研究が続けられている。しかしながら非線形性と応答速度にはトレードオフの関係があり¹⁾、この二律背反する特性を同時に満たす材料の開発は困難が伴うため、なんらかのブレークスルーが期待されている。そのひとつの方法として、近年、実効的な非線形光学効果の増強を行うための異なったアプローチとして、フォトリック結晶構造 (photonic crystal: PC) による光の閉じ込め効果を利用する方法が提唱されている。

フォトリック結晶とは、異なる誘電率をもつ物質を周期的に配置することにより結晶中における電子と同様、その内部において光に対するバンド構造を形成するものであり、1980年代後半に Yablonovitch によって提唱されて以降²⁾、精力的に研究が行われている。フォトリック結晶は、その変調の次元により1次元、2次元、3次元と分類されるが、ある周波数帯の光において、すべての方向に光の伝搬が禁止されるようなフォトリックバンドギャップ (photonic band gap: PBG) が3次元的に実現できれば、

自然放出寿命の制御など非常に興味深い現象が期待される。光の閉じ込め効果は次元の増加につれて増大するため、より高次元のフォトリック結晶の作製が望ましい。しかしながら、変調の周期は光の波長程度であるため、可視光波長程度の周期で誘電率変調を構成した3次元フォトリック結晶の作製は現状においてきわめて困難である。そのため、光学回路設計においてもまったく新しいコンセプトを開発しなければならない3次元フォトリック結晶に関する研究よりも、既成技術との整合性のよい導波路構造を念頭に置いた2次元フォトリック結晶の作製および構造の制御や³⁻⁶⁾、その設計支援としてのFDTD⁷⁾ (finite difference time domain) 法を用いた計算機シミュレーションに主眼が置かれ、精力的に研究が行われている。しかしながら、その大きな特徴である光の閉じ込め効果を利用した非線形性の増大等に関する研究は、第二高調波発生等⁸⁾の研究は行われているものの、試料作製やその評価における困難さ等の問題からそれほど進展していないのが現状である。

筆者らのグループでは、フォトリック結晶の中でも最もシンプルな構造をもつファブリー・ペロー型1次元フォトリック結晶構造 (Fabry-Perot type one-dimensional photonic crystal: FP 1-D PC) の研究を行ってきた。本解説ではこのファブリー・ペロー型1次元フォトリック結晶における縮退四光波混合法 (degenerate four-wave mixing: DFWM) による非線形効果の増強に関する研究および全反射を利用した1次元フォトリック結晶における光学特性に関して紹介を行う。

1. ファブリー・ペロー型1次元フォトリック結晶

レーザー光のような平面波に近い光線の制御には必ずしも3次元フォトリック結晶を必要としない。伝搬方向が一

筑波大学理工学系 (〒305-8573 つくば市天王台 1-1-1)
E-mail: inoue@laserlab.bk.tsukuba.ac.jp

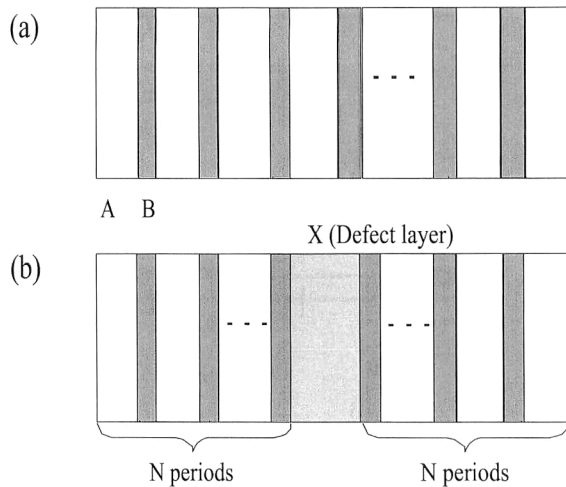


図1 1-D PC のモデル構造. (a) 欠陥なし, (b) 欠陥あり.

方向に限定されている場合、誘電率の変調はその方向のみに存在すればよく、誘電体多層膜あるいはファイバー中に形成された光伝搬方向の屈折率変調で十分であり、その作製も比較的容易となる。

1.1 1-D PC の作製

われわれは屈折率 1.46 の SiO_2 層 (A) と 2.35 の TiO_2 層 (B) を光学膜厚が $600 \text{ nm}/4$ となるようにガラス基板上に交互に積層し、構造的な欠陥を含まない 1 次元フォトニック結晶 (1-D PC) を作製した (図 1(a))。また構造的な欠陥を含む 1-D PC として、中央層の光学的膜厚のみを他の層と比べて 1.6 倍とした欠陥層を有する 1-D PC (図 1(b)) の作製も行った。これらの欠陥層を含まない構造と含む構造の 1-D PC の透過スペクトルは図 2 のようになる。欠陥層を含まない場合は波長 600 nm を中心とする広い不透過波長域が存在する。この不透過波長域が伝搬方向を一方に限定したときのフォトニックバンドギャップ (PBG) に対応する。すなわち、この 1 次元フォトニック結晶中においてはこの波長域の光モードは存在せず、外部から入射した光が内部に入り込めないため透過することができない (図 2(a))。一方、欠陥層を有する 1-D PC では上述の PBG 中に欠陥準位ができ、鋭い透過ピークが出現する (図 2(b))。このような欠陥準位に相当する波長の光は、空間的には 1-D PC 内部の欠陥層に局在化する。そのため欠陥層を有する 1 次元フォトニック結晶は高い Q 値をもつ微小共振器とみなすこともできる。欠陥準位に共鳴する光を入射すると 1-D PC 内での多重反射により光電場パターンは図 3 のようになる。これが欠陥準位の光電場モードパターンであり、欠陥層の周りに局在していることがはっきりとわかる。欠陥層における光電場の振幅は入射光電場の振幅に比べて 10 倍程度大きくなっている。FP 1-D

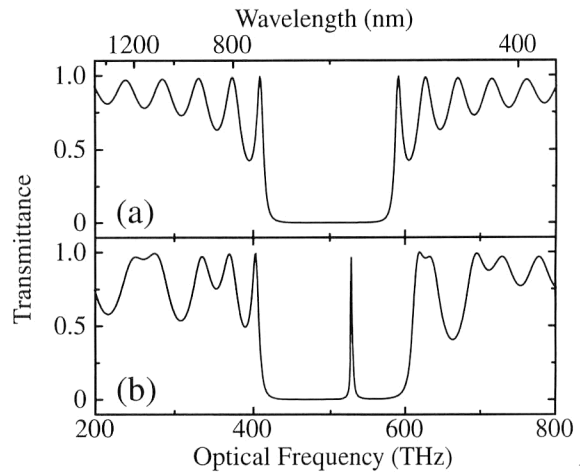


図2 1-D PC の透過スペクトル. (a) 欠陥なし, (b) 欠陥あり.

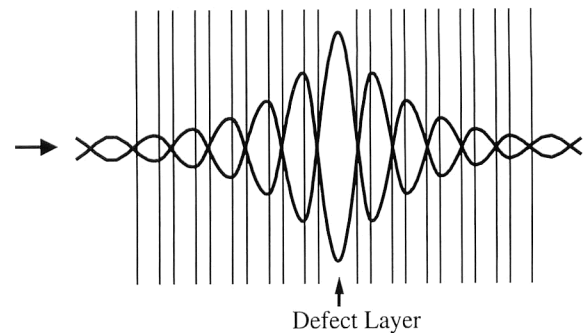


図3 欠陥層のある 1-D PC 内部における電場パターン.

PC 欠陥層における電場振幅の増幅度 G_{FP}^{E} はそれを挟む両側の周期層の周期がともに N 周期であるとする、 $G_{FP}^{E} = (n_B/n_A)^N$ となる⁹⁾。ここで n_B/n_A は周期層における A, B 両層の屈折率比であり、 SiO_2 と TiO_2 を用いた場合には約 1.6 である。これより欠陥層の両側がともに 5 周期である場合、 G_{FP}^{E} は約 10、両側 10 周期の場合 G_{FP}^{E} は約 100 となる。したがって非線形光学材料を用いて欠陥層を構成し、この増幅された光による非線形光学過程を利用すれば、その非線形効果の次数に応じた巨大な非線形光学効果の増強が期待される。

筆者らは大きな非線形光学効果を求めて、半導体 (CdSe) 量子ドットをドーブしたシリカガラス層を欠陥層とする 1-D PC を作製した。半導体量子ドットは量子閉じ込め効果等により、非線形光学効果がきわめて大きいことが知られている。今回作製した CdSe 量子ドットは CdSe と SiO_2 をスパッターさせて作製したものであり、その粒径は約 4 nm 程度である。

1.2 非線形媒質を欠陥層とする FP 1-D PC における光電場の増強

非線形光学効果の測定は縮退四光波混合法 (DFWM) を用い、半導体量子ドットを欠陥層とする 1-D PC と裸の

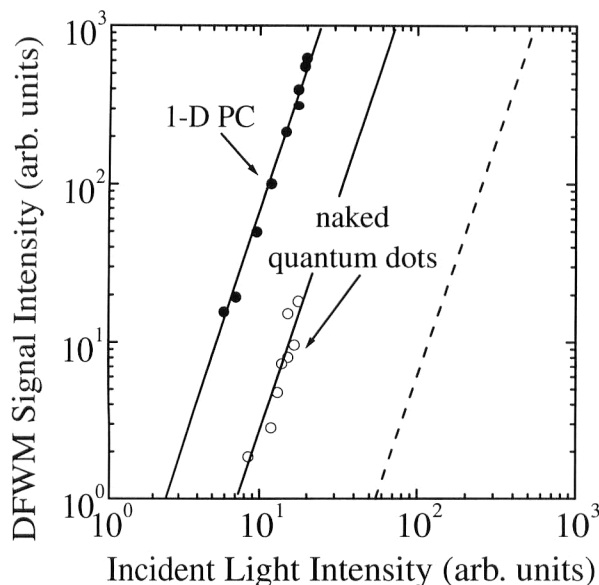


図4 1-D PC 構造によるDFWM 信号光の増強. 透過率60% 1-D PC (黒丸), 透過率60% 裸の量子ドット薄膜 (白丸), 点線は1-D PC 中の欠陥層のみ.

半導体量子ドット薄膜におけるDFWM 信号光発生効率の比較を行った¹⁰⁾. 励起光のパルス幅は約150 fsである. このとき裸の半導体量子ドット薄膜の光透過率は1-D PCの欠陥準位の共鳴光(532 nm)に対する透過率と等しく60%とした. ここで量子ドットを欠陥層とする1-D PCにおける60%の光透過率は, 1-D PC内部における光の局在化の結果生じているものであり, 1-D PC内の欠陥層のみの光透過率としては99%に相当し, 欠陥層自体のODはきわめて小さい. 図4に非線形信号発生効率の比較結果を示す. 光透過率を等しく60%とした場合, 1-D PCでは裸の量子ドット薄膜より約20倍高い発生効率を得られた. この結果より1-D PCの欠陥層と同等の膜厚および濃度をもつ裸の量子ドットと比較すれば, 1-D PCにおいては約8000倍の非線形信号の発生効率を得られることがわかる.

1.3 非線形媒質を欠陥層とするFP 1-D PCにおける非線形光学応答

本節では半導体量子ドットを欠陥層とするFP 1-D PCにおける時間応答特性について述べる. 数ナノ秒の励起状態の緩和寿命をもつ色素フィルムを欠陥層とする1-D PCでは, その応答時間もほぼ同程度の数ナノ秒であった. これは色素の緩和寿命に比べPC構造における光の閉じ込め寿命が十分に短いため, 色素分子そのものの応答時間が反映されていると考えられる. このことから, より高速な応答を示す媒質によって構成された欠陥層を有する1-D PCでは, 大きな非線形性の増大とともに光の閉じ込め寿命と同程度の高速な応答が期待される. われわれの試料におい

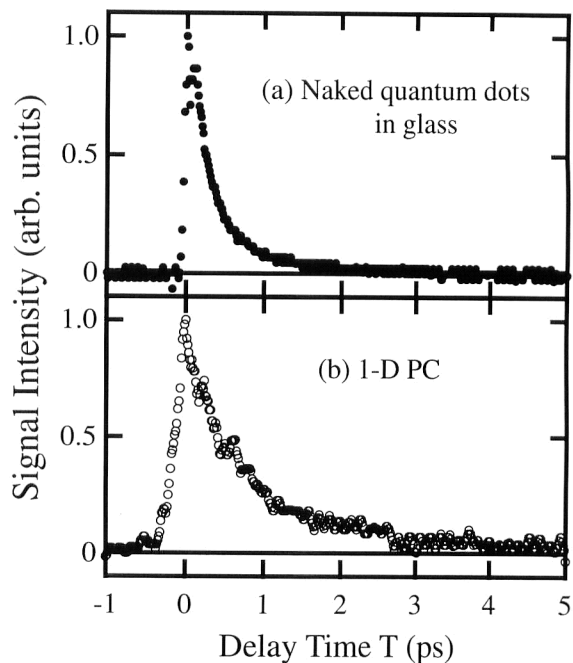


図5 3パルスフォトンエコーの減衰曲線 $I(0, T)$. (a) 裸の量子ドット, (b) 1-D PC.

て, 白色光マイケルソン干渉計を用いてパルス変形を測定した結果によれば, 欠陥準位に共鳴する光の1-D PC中での滞在時間は100 fs程度であり, 欠陥準位の非線形媒質の緩和時間が十分高速であれば, サブピコ秒の時間応答も可能である.

1-D PCの時間応答特性は, 3パルスフォトンエコー法によって調べた. 3パルスフォトンエコー強度は, 第1パルスと第2パルス間のパルス間隔を τ , 第2第3パルス間隔を T として $I(\tau, T) = I_0 \exp(-4\tau/T_2 - 2T/T_1)$ と表される. ここで, T_1 は量子ドットにおける光励起準位の緩和時間であり, T_2 は位相緩和時間である. 図5(a)に裸の半導体量子ドットにおける分布密度格子の緩和時間 T_1 を反映するエコー減衰曲線 $I(0, T)$ を示す. T_1 すなわち分布密度格子の寿命に帰因する縮退四光波混合過程の応答時間は, サブピコ秒ときわめて短くなっている. これは量子ドット表面および内部の欠陥等による散乱に起因すると考えられる. また, このCdSe量子ドットを欠陥層とする1-D PCにおいても図5(b)に示すように, その時間応答は常温では1 ps以下であり, 非常に高速に応答する. 一方, 裸のCdSe量子ドットについて $I(\tau, 0)$ の τ 依存性を測定した結果を図6(a)に示す. この場合エコー減衰曲線は量子ドットの位相緩和時間 T_2 を反映することが期待されるが, 常温における T_2 はきわめて短く, 入射光パルスの電場相関を反映しているものと考えられる. さらに1-D PCに対する $I(\tau, 0)$ でも, 1-D PC内における透過

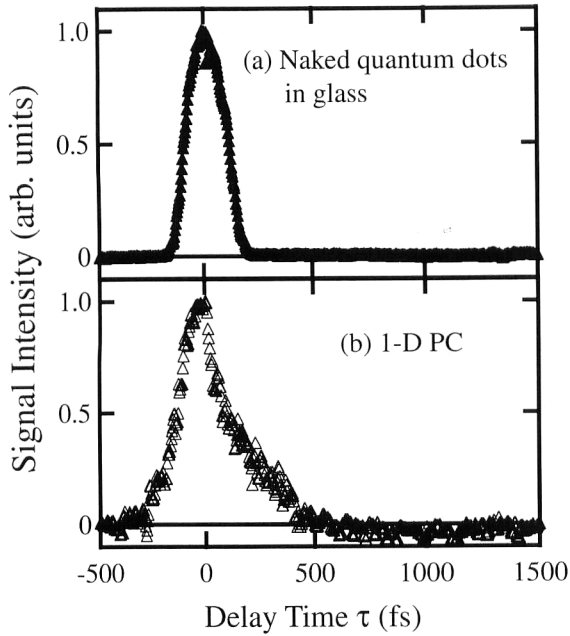


図6 3パルスフォトンエコーの減衰曲線 $I(\tau, 0)$. (a) 裸の量子ドット, (b) 1-D PC.

光パルスの多重反射によるものと考えられるエコー減衰曲線のだれがみられるが、この場合もサブピコ秒の応答時間が得られている (図6(b)). これらの結果から CdSe 量子ドットを欠陥層とする 1-D PC が実効的にきわめて高い非線形光学効果を示すとともに、ピコ秒オーダーの高速応答性をも兼ね備えていることが明らかとなった。

2. 全反射型 1次元フォトニック結晶

これまでファブリー・ペロー型 1-D PC に関して述べてきた。このようなシンプルな構造は非常に有用であるが、欠陥層の様子を直接観測できない点やアクティブな発光素子を FP 型で作製する場合、発光が屈折率変調層の影響を受ける等の欠点もある。そこでわれわれは、より外部からのアクセスを容易にする 1-D PC の作製において、全反射減衰測定 (attenuated total reflection: ATR) において用いられる試料の構造に着目した。ATR 試料において、例えば Yacoubian らは、金属薄膜で一面をコーティングしたプリズムと組み合わせた、色素を含む薄膜における共振モードの形成に関して報告している¹¹⁾。これは露出した薄膜表面における全反射およびプリズム側金属薄膜での反射を利用した光の閉じ込め効果によるものである。そこで、われわれは図7に示すように欠陥層を露出させ、その欠陥層表面における全反射を利用することにより光の閉じ込めを行う全反射型 1次元フォトニック結晶 (total-reflection type 1-D PC: TR 1-D PC) の作製を行った。このような試料の利点は、欠陥層における電場の増強を欠陥層に分散

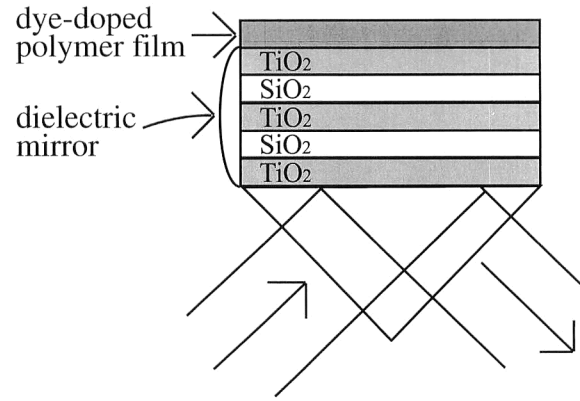


図7 全反射型 1-D PC の概念図。

させた色素の蛍光強度の増強などから観測することができる点や、外部から制御光を導入することにより容易に欠陥層の吸収率や屈折率の制御を行うことができる可能性がある点である。さらに表面に 2次元フォトニック結晶を作製した TR 1-D PC においては顕微鏡システムと組み合わせることにより、その伝搬の様子を直接観測することも可能になると考えられる。

2.1 全反射型 1-D PC の作製

TR 1-D PC 試料は、EosinY 色素ドープ PVA (polyvinyl alcohol) 薄膜をコーティングした多層膜ミラーと 90度プリズムを、インデックスマッチングオイルを用いて張り付けることにより作製した。通常、プリズム表面に誘電体多層膜ミラーを張り付けた状態では、高い反射率を有する多層膜の反射成分のみが観測される。しかしながら、色素含有薄膜が多層膜ミラー上に存在し、その表面において全反射が起こる場合には、図1に示した 1次元フォトニッククリスタル構造を中間の欠陥層において折り返した構造になっていることから予想される通り、多層膜層に局在化する欠陥モードが生じる。図8に、作製した試料と同じパラメーターを用いマトリックス法¹²⁾により計算した、TR 1-D PC 内部における欠陥モードに共鳴した光の電場パターンを示す。入射光電場振幅は 1 とし、色素による吸収は色素濃度が非常に薄いので無視している。(a)、(b) はそれぞれ TiO_2 層および SiO_2 層を表し、(c) は欠陥層を表す。このように TR 1-D PC においても欠陥モードは欠陥層に局在化し、そこで光電場が増強されることがわかる。

2.2 非線形媒質を欠陥層とする全反射型 1-D PC における光電場の増強

欠陥層内に分散された色素分子の蛍光強度は欠陥層内の電場強度 (光強度) を反映する。そのため、蛍光強度を観測することにより、欠陥層内部における光電場の増強に関

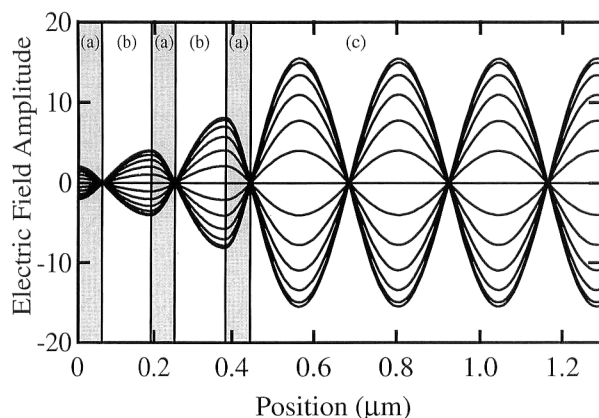


図8 TR 1-D PC 内部における欠陥モードに共鳴した光の電場パターン。(a) TiO₂ 層, (b) SiO₂ 層, (c) 欠陥層。

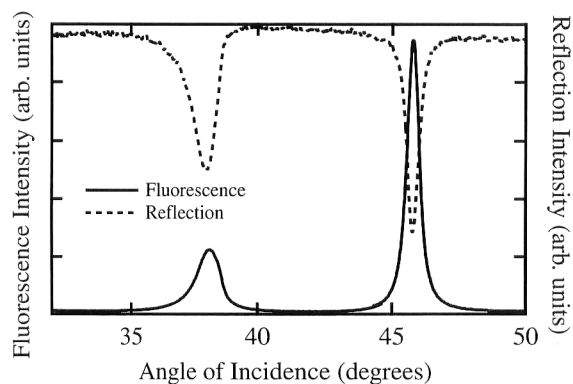


図9 代表的な反射光強度と蛍光強度の入射角依存性。

する情報を得ることができる。そこで TR 1-D PC において反射光強度および欠陥層からの色素の蛍光強度の測定を行った。TR 1-D PC においては欠陥層を構成する媒質の屈折率および膜厚により欠陥モードを形成する入射角が異なるため、試料は回転ステージ上に設置し、励起光の入射角を変化させ測定を行った。励起光源として波長 532 nm の半導体励起 cw グリーンレーザーを用いた。反射光強度はシリコンフォトディテクターで検出した。蛍光強度およびそのスペクトルは欠陥層側からバンドル光ファイバーを近接させ採光し、光電子増倍管および、分光器に付随した OMA (optical multichannel analyzer) を用いて測定した。入射レーザー光強度は数ナノワット～数マイクロワットである。

図9に代表的な反射光強度および蛍光強度の入射角度依存性を示す。38度と46度において反射光強度の減少および蛍光強度の増強が観測されている。反射光強度の減少は両角度において PVA 薄膜中に共振モードが形成され、薄膜中に局在化した光が色素による吸収の影響を受けるためであり、そのとき蛍光強度も増強される。その他の入射角においては共振モードが形成されないため、その反射光強度

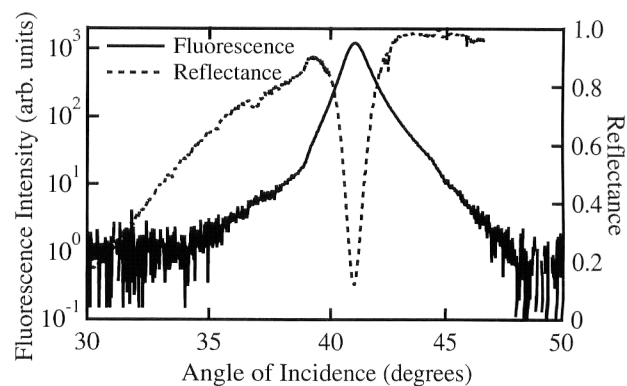


図10 蛍光強度の増強と反射光の減少。

はおもに多層膜ミラーによる反射によって決まり、反射率はほぼ1に近い。形状に注目すると38度におけるピークおよびディップは46度におけるそれらよりも鈍い。この試料においては全反射は40度以上でしか起こらない。そのため38度では欠陥層内に形成される共振器の共振器寿命が短くなっているために共振器内のQ値が減少し、その結果として角度依存性が鈍くなっていると考えられる。

図10に最も大きな蛍光強度の増強が得られた結果を示す。蛍光強度は共振モードが形成されない部分での蛍光強度で規格化してあり、蛍光強度の縦軸は対数表示した。共振モードが形成されるに従い反射光強度は減少し、蛍光強度は増大していることがはっきりとわかる。蛍光強度は共振モードが形成された場合と共振モードが形成されない場合を比較すると1000倍以上増強されている。これは欠陥層内の電場が非常に大きく増強されていることを表している。

この増強を理解するために、入射光電場増強の角度依存性に関する解析を行った。われわれは得られた蛍光強度の角度依存性ととの比較を行うために、光強度の増強度 G_{TR}^{I} を次のように定義した。これは欠陥層内における光強度の空間平均を入射光強度で規格化したものである。

$$G_{\text{TR}}^{\text{I}} \equiv \frac{1}{d} \int_{-d/2}^{d/2} \frac{|E_{\text{defect}}(z)|^2}{|E_{\text{incident}}|^2} dz \quad (1)$$

ここで d は欠陥層の厚さであり、 $E_{\text{defect}}(z)$ は欠陥層内部の場所 z における光電場、 E_{incident} は入射光電場を表す。実験結果との正確な比較を行うためには色素分子による吸収成分をも考慮しなければならない。そこで、図10に示された反射率変化の大きさから、色素による吸収に対応する減衰定数 κ の値を0.0005と見積もった。この値を用いた増強度 G_{TR}^{I} の入射角依存性に関する計算結果を図11に示す。

入射角が共鳴に近づくにつれ G_{TR}^{I} の値は最大値63へと増加しているが、これは入射光強度が63倍に増強されていることに相当する。この光強度の増強は蛍光強度の増強

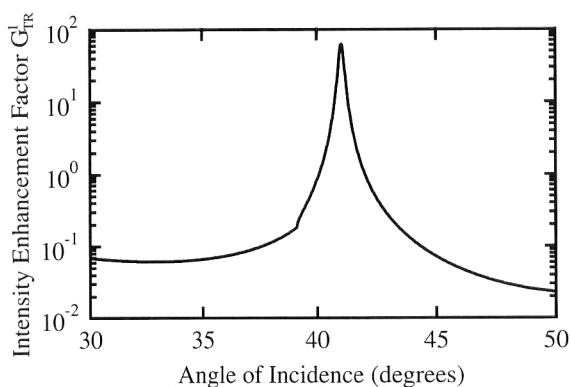


図11 増強度 G_{TR} の入射角依存性.

を引き起こす。実験結果との対応を考え、非共鳴領域での値と共鳴での値を比較すると、最大2000倍程度増強が起こっていることがわかる。これは実験において得られた1000倍程度の蛍光強度の増強をよく再現している。測定結果における増強度がやや小さい点と形状の差は、欠陥層の膜厚の不均一性や入射光の発散角によるものと考えられる。

3. まとめおよび今後の課題

今回筆者らのグループで研究を行っている1-D PCに関して紹介を行った。FP 1-D PCにおいては紹介した非線形性の増強および超高速応答性以外にも、位相共役画像の観測など画像演算等にも使えることを報告しており¹³⁾、応用に向けても非常に有効な構造のひとつであると考えられる。さらに全反射を用いたTR 1-D PCにおいても明らかな電場の増強を観測することができた。今後、欠陥層の露出した構造を生かした応用、たとえば外部からの制御光導入による超高速スイッチング等への発展を目指す予定であり、予備実験の結果としては入射光の電場相関時間程度の超高速応答特性を得ることに成功している。

今回紹介した1-D PC構造、例えばTR 1-D PCにおいては入射光強度の増強度としては数十倍程度の増強度であった。このことは、光スイッチングにおいて非常に重要な因子のひとつである物質の3次の非線形性をこのような構造と組み合わせることにより、実効的に大きく改善できる可能性を示している。非線形光学材料の視点から考えると、材料単体における高い光学非線形性と超高速応答特性の追求には限界があるが、このようなフォトニック結晶における光の閉じ込め効果による非線形効果の増強を利用することはその限界を突破する非常に有効な手法であると考えられる。

本稿では筆者らのグループによって行っている1次元フォトニック結晶における結果に関して解説を行ったが、今

後2次元、3次元フォトニック結晶における非線形性の増大に関する研究が活発に行われることを期待する。なおこの研究は、一部日本学術振興会未来開拓学術研究推進事業(次世代人工物質・材料の探査的研究, ナノ構造における量子光非線形効果とその応用, No. JSPS-RFTF 97P 00106)の援助を受け行われた。

文 献

- 1) D. H. Auston, T. K. Gustafson, A. E. Kaplan, *et al.*: "Limits on nonlinear optical interactions," *Appl. Opt.*, **26** (1987) 231-234.
- 2) E. Yablonovitch: "Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics," *Phys. Rev. Lett.*, **58** (1987) 2059-2062.
- 3) S. Noda, N. Yamamoto and A. Sasaki: "New realization method for three-dimensional photonic crystal in optical wavelength region," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35** (1996) L909-L912.
- 4) T. Baba: "Photonic crystals and microdisk cavities based on gainasp-inp system," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **3** (1997) 808-830.
- 5) H. Kosaka, T. Kawashima, A. Tomita, M. Notomi, T. Tamamura, T. Sato and S. Kawakami: "Superprism phenomena in photonic crystals," *Phys. Rev. B*, **58** (1998) 10096-10099.
- 6) S. Noda, A. Chutinan and M. Imada: "Trapping and emission of photons by a single defect in a photonic bandgap structure," *Nature*, **407** (2000) 608-610.
- 7) K. S. Yee: "Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media," *IEEE Trans. Antennas Propag.*, **14** (1966) 302-307.
- 8) J. Martorell, R. Vilaseca and R. Corbalan: "Second harmonic generation in a photonic crystal," *Appl. Phys. Lett.*, **70** (1997) 702-704.
- 9) 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** (1997) 348-355.
- 10) N. Tsurumachi, M. Abe, M. Arakawa, T. Yoda, T. Hattori and H. Nakatsuka: "Time response of one-dimensional photonic crystals with a defect layer made of semiconductor quantum dots," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38** (1999) L1400-L1402.
- 11) A. Yacoubian and T. M. Aye: "Enhanced optical modulation using azo-dye polymers," *Appl. Opt.*, **32** (1993) 3073-3080.
- 12) Z. Knittl: *Optics of Thin Films; An Optical Multilayer Theory*. Wiley Series in Pure and Applied Optics (John Wiley & Sons, London, 1976).
- 13) N. Tsurumachi, S. Yamashita, N. Muroi, T. Fuji, T. Hattori and H. Nakatsuka: "Enhancement of nonlinear optical effect in one-dimensional photonic crystal structures," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38** (1999) 6302-6308.

(2000年9月9日受理)