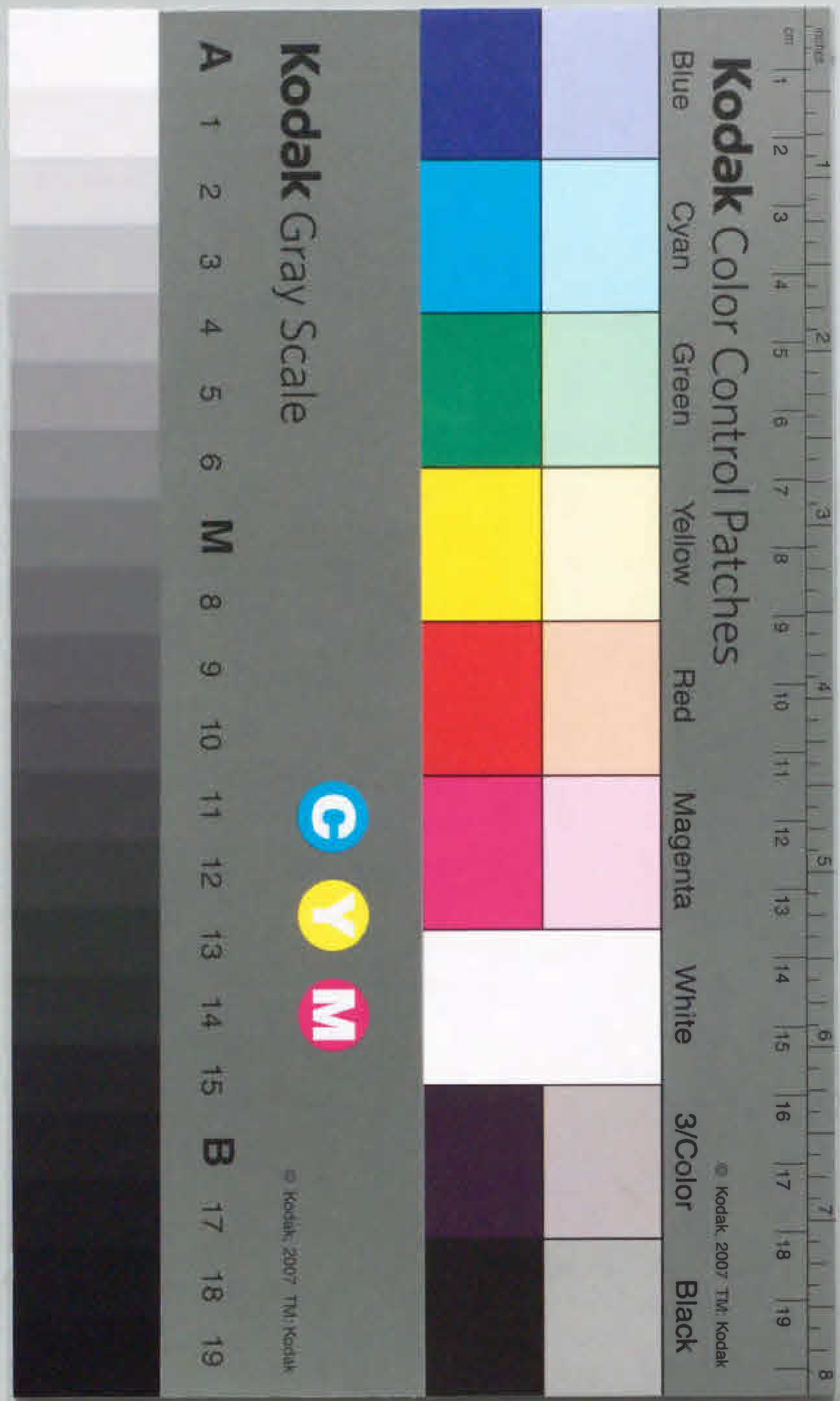


様式６

論　文　目　録

報告番号	甲工 / 乙工 / 工修　第　　号	氏　名	岡　本　敏　弘
学位論文題目	光双安定および光スイッチ現象に関する研究		

論文の目次

参考論文

主論文

1．"Optical Bistability Associated with Surface Plasmon Polariton Excitation", Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: Journal of The Physical Society of Japan, **61**(1992)1549-1555.

2．"Optical Bistability in Prism / Ag Film / Nonlinear Film / Air Geometry by Utilizing Surface Plasmon and Guided Wave Characteristics", Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi, Masuo Fukui, Hiroshi Kawakami and Samir J. AL-Bader: Journal of The Physical Society of Japan, **62**(1993)918-925.

3．"Optical Bistability in Periodic Channel Waveguides", Toshihio Okamoto, Kunihiko Koshimura, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: Jpn. J. App. Phys. **37**(1998)522-528.

4．"Optical Pulse Narrowing Due to Electronic Nonlinearity of PDA Films in ATR Geometry", Toshihiro Okamoto, Tatsuo Hasegawa, Takamichi Uetai, Masakazu Takabayashi, Masanobu Haraguchi, Masuo Fukui, Takao Koda and Kenji Takeda:　Nonlinear Optics, **22**(1999)401-404.

5．"Optical Switching Due to Local Kerr Nonlinearity in Attenuated Total Reflection Geometry", Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: Jpn. J. App. Phys. **39**(2000) 3977-3982.

副論文

1．"Optical bistability in ATR geometry", Toshihiro Okamoto, Tatsuo Hasegawa, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: *Proc. 9th Int. Autumn School-Conf. Young Scientists Solid State Physics Fundamentals and Applications, Uzhgorod, Ukraine, 1995* (Inst. Semicond. Phys., Kiev, 1995) R3.

2．"Experimental instrument for observing angle- and frequency-scanned attenuated total reflection spectra", Tetsuya Hayashi, Hirofumi Fukumoto, Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: Rev. Sci. Instrum. **67**(1996)3039-3043.

3．"Real-time observation of the dielectric constant variation of evaporated polydiacetylene films during photopolymerization and photochromic transitions", Masanobu Haraguchi, Toshihiro Okamoto, Hironori Hayashi, Tatsuo Hasegawa, Takuya Akamatsu, Masuo Fukui, Takao Koda and Kenji Takeda: Thin Solid Films **331**(1998)39-44.

4．"Optical constants and growth mode of Ni films deposited on evapolated Al, Ag and Cu films", Kazuhisa Hanamoto, Akihiko Shinya, Minoru Kuwahara, Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi, Masuo Fukui and Kichiro Koto: Surface Science **409**(1998)413-420.

5．"Determination of the Anisotropic Optical Constant of Evaporated Polydiacetylene-C_4UC_4 Films at 632.8nm", Tatsuo Hasegawa, Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi, Masuo Fukui, Takao Koda and Kenji Takeda: Jpn. J. App. Phys. **37**(1998)5793-5797.

6"Interaction of near-field light with orderd polystyrene spheres", Masanobu Haraguchi, Teruo Nakai, Akihiko Shinya, Toshihiro Okamoto, Masuo Fukui, Takao Koda, Ryoko Shimada and Kenji Takeda: Optical Review, **6**(1999)261-267.

7．"Optical Modes in Two-dimensionally Ordered Dielectric Spheres", Masanobu Haraguchi, Teruo Nakai, Akihiko Shinya, Toshihiro Okamoto, Masuo Fukui, Takao Koda, Ryoko Shimada, Kazuo Ohtaka and Kenji Takeda: Jpn. J. Appl. Phys. **39**(2000)1747-1751.

8．"Determination of the Second-Order Nonlinear Optical Susceptibility of GaN Films on Sapphire", Takashi Fujita, Tatsuo Hasegawa, Masanobu Haraguchi, Toshihiro Okamoto, Masuo Fukui, and Syuji Nakamura: Jpn. J. App. Phys. **39**(2000) 2610-2613.

様式 7

論 文 内 容 要 旨

報告番号	甲 工 乙 工 工 修 第 63 号	氏 名	岡 本 敏 弘
学位論文題目	光双安定および光スイッチ現象に関する研究		

内容要旨

3 次の非線形光学効果である光誘起屈折率変化を用いた光スイッチ，光双安定素子は，光で光を制御する全光学素子である。非線形緩和時間の小さな材料を用いることで，これまでにない非常に高速で大量の情報を処理できるシステムの構成素子になると考えられている。これを実現する構造として，電子的三次非線形光学材料であるポリジアセチレン（PDA）を用いた全反射減衰（ATR）配置がある。ATR 配置では表面プラズモンポラリトン（SPP）や導波光（GW）を励起して光強度増強効果を利用すれば，光スイッチ，光双安定現象の低入力パワー動作が可能と考えられる。しかし，これまで熱屈折率効果などによる光双安定現象しか観測されておらず，電子非線形性による高速応答の光スイッチ，光双安定現象は観測されていない。また，理論解析においても非線形性光学材料の線形・非線形損失，非線形性の飽和や，入射光のビーム径，広がり角のような，光スイッチ，光双安定現象に大きく影響を与えるパラメータについての考慮が十分に行われていない。

このような背景の下，本研究では ATR 配置において発生する光スイッチ，光双安定現象の，より現実に近い条件下での計算機シミュレーションを行い，低入力パワー動作の条件を明らかにすることを第一の目的とする。PDA-C_4UC_4 蒸着膜を用いた ATR 配置で光スイッチ，光双安定現象の観測実験を行い，これらの特性を明らかにすることを第二の目的とする。第三の目的は，低入力パワー動作が期待されるグレーティング構造を持つチャネル導波路における光双安定現象の正確な理論解析方法の確立と，グレーティングや導波路の各パラメータが光双安定現象に与える影響について明らかにすることである。

このような目的で行った本研究の主な成果をまとめると，

・光スイッチ，光双安定現象の理論検討より

(1)ATR 配置で非線形性光学材料の線形・非線形損失，非線形性の飽和を考慮した光双安定現象及び，入射光のビーム径，広がり角を考慮した光スイッチ現象の数値計算方法を確立した。 (2) 光スイッチ，光双安定現象に必要な入射光パワーは，SPP や GW の電界分布が，線形損失媒質や，自己誘起屈折率変化を示す媒質を占める割合で決まる。 (3)対称導波路構造を持つ ATR 配置を用いれば，光導波路に線形損失があっても低入力パワー動作可能。 (4)入射光のビーム広がりが適度に存在する方が，ビーム広がりが無い場合に比べ低入力パワーで光スイッチ現象が生じる。(5) レリーフ型グレーティング構造を持つチャネル導波路で発生する光双安定現象について，縦方向の電界成分を正しく考慮した計算法を確立した。

・ATR 配置で光スイッチ，光双安定現象の観測実験より

(1)TaFD9 プリズム－銀蒸着膜－PDA-C_4UC_4 蒸着膜構造では，銀が熱の発生源となって熱屈折率効果による光双安定現象が発生し，GW よりも SPP 励起の方が低入射光パワー（約 100 mW）動作した。(2) 熱屈折率効果による光双安定現象は時間応答速度が約 1 秒と遅く，動作に必要な光パワーは瞬時値ではなく，時間平均値に依存することがわかった。(3) TaFD9 プリズム－屈折率整合油－PDA-C_4UC_4 蒸着膜－BK-7 基板の低光損失媒質で構成された対称導波路構造を持つ ATR 配置で， GW からの再放射光のパルスナローイング現象が観測された。入射光強度 13 kW/cm^2（パルスピーク値）で動作し，応答速度がピコ秒より速い電子的非線形性に起因する現象であることがわかった。

以上の結果より，低損失の媒質で ATR 配置を構成し，短パルス光を利用して瞬時パワーを上げつつ時間平均パワーを下げると，熱屈折率効果を押さえ，電子的非線形性に起因する光スイッチ現象を観測できうることが明らかになった。これにより，PDA を用いた超高速光情報処理素子の一形態として ATR 配置が有用であることが証明された。

様式 9

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

報告番号	甲 工 乙 工 工 修 第 63 号	氏 名	岡本 敏弘
審査委員	主 査 福 井 萬 壽 夫 副 査 西 田 信 夫 副 査 三 澤 弘 明		

学位論文題目

光双安定および光スイッチ現象に関する研究

審査結果の要旨

本研究は、全反射減衰（ATR）配置および、グレーティング構造での光双安定および光スイッチング現象を取り扱う理論を構築し、理論の検証実験を行うことを目的としている。

目的を詳細に述べると、本研究の第一目的は、ATR配置において発生する光双安定現象、光スイッチ現象をより現実に近い条件下での計算機シミュレーションから低入力パワー動作の条件を明らかにすることである。第二は、PDA-C_4UC_4蒸着膜を用いたATR配置で光双安定現象、光スイッチ現象に結び付く実験を行い、光双安定現象、光スイッチ現象の実験観測やその可能性を検討することである。第三は、グレーティング構造を持つチャネル導波路における光双安定現象の正確な理論解析方法を確立し、グレーティングや導波路の各パラメータが光双安定にどのように関与するかを明らかにすることである。第１章で本研究の目的背景が要領良く述べられている。

第２章では、本研究の基本となる自己誘起屈折率変化を中心に、三次の非線形光学効果と光双安定現象、光スイッチ現象の関係を的確に述べている。

第３章では、ATR配置において、平面波入射によって励起した表面プラズモン（SP）、光導波モード（GW）による光双安定現象を非線形光学媒質の膜厚、線形光損失、非線形光損失、非線形項の飽和を考慮して数値解析する方法の確立に成功している。その結果、線形損失が最も光双安定現象に影響することが判明した。低入射光パワーで光双安定現象を観測するには、ATR構造に工夫が必要であることを示している。

第４章では、入射光がガウス分布をしている時、ATR配置での光双安定現象を結合波方程式を使って数値計算できることを明確に示している。さらに、構造を工夫して対称導波路構造から成るATR配置での光スイッチ現象を計算し、導波路厚さ、ガウスビーム径に適正値が存在することを示している。特記すべきことは、適度なビーム広がりの存在は、ビーム広がりの無い場合に比べ、低入力で光スイッチ現象が生じると言う、今までの常識を破る画期的な結果を示していることである。

第５章では、金属層を有するATR配置での熱屈折率効果による光双安定現象の実験観測を行い、それに成功している。SPによる現象の方がGWによるものよりも低入力パワーで光双安定現象が生じることを示し、理論の正当性を実証している。

第６章では、PDA-C_4UC_4蒸着膜から成る対称導波路構造を有するATR配置において、電子的非線形性による入射パルス光の時間幅のナローイングを観測することに成功している。このナローイングは光スイッチ現象の前駆現象である、さらに入射パワーを上げれば、ナローイングからスイッチングに移行する。このような観測は世界初であり、この分野の指導的実験結果であり、高く評価できる。

第７章では、レリーフ型グレーティングを有するチャネル導波路における光双安定現象の理論はあるが、無損失を対象としていて実際の材料に対して適用できないことを指摘し、さらにチャネル導波路における電界の縦成分を無視した手法であり、正確でないことを明らかにしている。本研究はそれらの諸点をすべてクリアしていて、電界の縦成分が光双安定現象を低入力パワーで発生させたり、グレーティング周期の影響が大きく、グレーティング作成には周期の精度を高める必要があることを明確に示している。

以上、当初の３つの目的をやり遂げている。本研究は、ATR配置、グレーティング構造での光双安定現象を実際に即じて計算する手法を確立し、その実証実験にも成功している研究であり、本論文は博士（工学）の学位授与に値するものと判定する。

徳島大学大学院 工学研究科 博士論文

光双安定および光スイッチ現象に関する研究

２０００年 １０月

岡 本 敏 弘

②

徳島大学大学院 工学研究科 博士論文

光双安定および光スイッチ現象に関する研究

２０００年　１０月

岡 本　敏 弘

第一章
序論

1－1　背景及び目的

最近のインターネットの爆発的な普及に伴い，光通信技術がめざましく発達している。長距離の光ファイバー通信のみならず，ISDN における家庭までの光ファイバーの配線や，光 LAN，光 CATV のような地域網にも広く用いられるようになった現在，システム間をつなぐ光分岐結合器や光スイッチなどの光回路部品の重要性が増している。その中でも光スイッチは光強度変調器などにも利用でき，最も重要な光回路部品の一つである。

３次の非線形光学効果である光誘起屈折率変化を用いた光スイッチ，光双安定素子は，光で光を制御する全光学素子である。非線形緩和時間の小さな材料を用いることで，これまでにない非常に高速で大量の情報を処理できるシステムの構成素子になると考えられている。[1)]

共役高分子であるポリジアセチレン（Polydiacetylene : PDA）は，電子的非線形性による三次非線形光学効果の緩和時間がサブピコ秒 [2)]と非常に高速であることから，超高速の光双安定素子，光スイッチ素子への応用が期待されている。しかし PDA の三次非線形感受率$\chi^{(3)}$は有機材料としては大きな値であるが [3)]，実用化するには小さいという欠点がある。

このような材料に対して，低入力パワーで光スイッチング，光双安定現象を発生させるための様々な構造が検討されている。その中の一つに全反射減衰（Attenuated Total Reflection : ATR）配置がある。ATR 配置では表面プラズモンポラリトン（Surface Plasmon Polariton : SPP）や導波光（Guided Wave : GW）を励起することができ，これによる光強度増強効果を利用すれば低入力光エネルギーで光スイッチングや光双安定現象を発生できると考えられる。

P.Martinot[4)] らは プリズム －CS_2－SiO_x－ 銀 －SiO_2 構造の ATR 配置で，銀 －SiO_2 界面に励起した SPP を用いた光双安定現象を観測している。これは SPP により銀で発生した熱によって CS_2 の屈折率を変化させる熱屈折率効果による現象を用いたもので，応答速度が熱拡散速度に左右されるため遅い。P.Martinot の他にも ATR 配置での光双安定現象についてはいくつかの報告があるが，熱屈折率効果や分子回転 [5)]などによるもので，応答速度は遅い。

ATR 配置ではないが，高速応答の電子的非線形性による屈折率変化を用いた非線形現象は，Burzynski[6)]らによって観測されている。彼らは 溶融石英ガラス上の polyamic acid 導波路にグレーティングを作製し，この構造で生じる非線形グレーティングカップリング現象を利用して，導波モード励起角や，結合効率の入射光強度依存性を観測している。この現象には 80 psec の励起パルス光で観測される速い応答と，10 nsec の励起光パルスで観測される遅い応答があり，速い応答は電子的非線形性によるものと結論づけている。しかし，明確なスイッチング現象は観測されていない。

このように，PDA のような高速応答を示す電子的非線形性による光スイッチ現象，光双安定現象は ATR 配置において観測されていない。その理由の一つは，非線形光学媒質にわずかな光損失が存在することによる。例えば，GW による光強度増強効果を

利用するには光導波路に非線形光学媒質を用いる必要があるが，導波路のわずかな光損失のために GW の伝搬距離が短くなり，光強度が大きくならない。そのために低入力パワーでは光双安定現象や光スイッチ現象が生じないと考えられる。

Takabayashi[7] らは，光損失の大きな導波層でも，その上下を同じ屈折率の無損失の材料で挟んだ対称導波路構造を用い，導波層の膜厚を小さくすれば GW の伝搬距離が飛躍的に延びることを理論と実験で示した。また，GW の長距離伝搬化に伴って入射光のビーム広がりが GW の励起効率を低下させることを示した。この構造での長距離伝搬 GW を用いれば，導波層内の光強度の増強効果が期待でき，光吸収損失のある非線形光学材料を導波層に用いても，光双安定現象，光スイッチング現象の低入力光強度動作が可能であると推測できる。

一方 ATR 配置における光双安定現象についての理論計算が，SPP を用いたものは Agarwal , Guputa[8]によって，導波光を用いたものは Montemayor & Deck[9] らによって行われている。彼らは平面波を入射したときに光双安定現象が生じることを示したが，現実の材料には必ず存在する線形損失や非線形損失，非線形項の飽和現象を考慮した詳しい議論をしなかった。Stegeman[10] らは，ATR 配置における非線形結合波方程式を解いて，ガウスビーム入射においても GW に光スイッチング現象などの非線形効果が現れることを示した。彼らは非局所的非線形性の場合のように縦型フィードバックを与えれば光双安定現象が生じ，そのようなフィードバックがない局所的非線形性に対しては，光スイッチング現象のみしか生じないことを示した。しかし長距離伝搬 GW 励起の際に問題となる入射光の広がり角を考慮しなかった。

ATR 配置の他に，低入力パワーで光双安定現象を発生させる構造としてグレーティング構造がある。Stegeman[11]らは，光双安定現象を発生させるためには，フィードバック機構が必要で，それには分布帰還型グレーティングによって可能になることを計算機シミュレーションによって示した。またチャネル導波路を用いることで狭い領域に光を閉じ込め，光双安定現象を得るために必要なパワーを小さくできることを示した。しかし，チャネル導波路に存在する電界の伝搬路方向成分が関与した非線形性の取り扱いが正しくなく，その点を修正した正確なシミュレーションを行うことが必要である。

このような背景の下，本研究の主たる目的は三次の非線形光学効果の一つである自己誘起屈折率変化によって生じる光双安定現象，及び光スイッチ現象の低入力パワー動作の可能性について検討することである。

非線形光学媒質として PDA を用いることを想定し，低入力パワー動作のための構造として ATR 配置と，グレーティング構造を持つチャネル導波路に注目した。ATR 配置において発生する光双安定現象，光スイッチ現象を，より現実に近い条件下での計算機シミュレーションを行い，低入力パワー動作の条件を明らかにすることを第一の目的とする。PDA-C_4UC_4 蒸着膜を用いた ATR 配置で光双安定現象，光スイッチ現象の観測実験を行い，これらの特性を明らかにすることを第二の目的とする。第三の目的は，グレーティング構造を持つチャネル導波路における光双安定現象の正確な理論解析方法の確立と，グレーティングや導波路の各パラメータが光双安定現象に与える影響について明らかにすることである。

1－2　論文の構成

本論文の構成は次の通りである。

第二章では，光双安定，光スイッチ現象の定義と，その起源となる三次非線形光学効果の基礎と取り扱い方について述べる。2－3節では自己誘起屈折率（誘電率）変化を表す一般的な表式を示す。また，2－5節では非線形屈折率変化の起源と代表的な材料の分類について述べる。

第三章では，簡単のために平面波入射としたときの ATR 配置で生じる光双安定現象の解析方法と計算機シミュレーションについて述べる。特に3－4節では非線形光学媒質の膜厚，線形損失，非線形損失，非線形性の飽和などが光双安定現象に与える影響について，シミュレーション結果を用いて明らかにする。

第四章では，ガウスビーム入射によって発生する導波光の光スイッチ現象の解析方法と計算機シミュレーションについて述べる。4－2節，4－3節で入射光のビーム径や，ビーム広がり角が光スイッチ現象に及ぼす影響を明らかにする。

第五章では，金属層を持つ ATR 配置で発生する，熱効果による光双安定現象の実験観測について述べる。5－1節で実験に用いたプリズム－銀－PDA 構造の作製方法について述べる。線形応答時の ATR 信号や，SPP，GW の励起条件の実験結果を5－2節で述べる。5－3節で非線形光学媒質として用いた PDA の膜厚や，励起するモード（SPP, GW）と発生する光双安定現象の関係を実験的に示し，この構造で生じる光双安定現象の発生プロセスを明らかにする。

第六章では，長距離伝搬型の GW を用いた光スイッチ現象の実験観測について述べる。6－1節でプリズム－屈折率整合油－PDA－BK-7 基板構造の作製方法について述べる。6－2節で励起される GW の線形応答時の伝搬特性を，ATR 信号と伝搬距離観測実験結果に基づいて示す。完全な光スイッチ現象は得られなかったが，この現象に密接に関連する光パルスナローイング現象の観測結果を6－3節に示し，この現象の発生プロセスを明らかにする。

第七章では，グレーティング構造を持つチャネル導波路で発生する光双安定現象の解析方法と計算機シミュレーションについて述べる。特に，7－2節で従来の解析では問題のあった，電界の GW 伝搬方向成分の取り扱いを正しく行う方法について述べる。7－3節でグレーティングや導波路の各パラメータが光双安定現象に与える影響について明らかにする。

＜参考文献＞

1) G.I.Stegeman, E.M.Wright, N.Finlayson, R.Zanoni and C.T.Seaton: IEEE J. Lightwave Tech. **6**(1988)953.
2) T.Kobayashi, A.Terasaki, T.Hattori and K.Kurokawa: Appl. Phys. B **47**(1988)107.
3) C.C.Hsu, Y.Kawabe, Z.Z.Ho, N.Peyghambarian, J.N.Polky, W.Krug and E.Miao: J. Appl. Phys. **67**(1990)7199.
4) P.Marrinot, A.Koster and S.Laval: IEEE J. Quantum Electron. **21**(1985)1140.
5) R.A.Innes and J.R.Samble: J. Phys. Condens. Matter **1**(1989)6231.
6) R.Burzynski, B.P.Singh, P.N.Prasad, R.Zanoni and G.I.Stegeman: Appl. Phys. Lett. **53**(1988)2011.
7) M.Takabayashi, M.Haraguchi and M.Fukui: J. Opt. Soc. Am. B **12**(1995)2406.
8) G.S.Agarwal and S.D.Guputa: Phys. Rev. B **34**(1986)5239.
9) V.J.Montemayor and R.T.Deck: J.Opt.Soc.Am.B **2**(1985)1010.
10) G.I.Stegeman, G.Assanto, R.Zanoni, C.T.Seaton, E.Garmire, A.A.Maradudin, R.Reinish and G.Vitrant: Appl. Phys. Lett. **52**(1988) 869.
11) G.I.Stegeman, C.Liao and H.G.Winful: Optical Bistability 2, eds. C.M.Bowden, H.M.Gibbs and S.L.McCall(Plenum, New York, 1984)p389.

第二章
三次の非線形光学効果と光双安定，光スイッチ現象

一般に電磁波に対する物質の応答である分極は入射電界に比例するが，レーザ光のような強度の強い光に対しては，非線形な応答を示すことが知られている。このような非線形光学分極に起因する非線形光学現象は極めて多様で，様々な応用が検討され，そのいくつかは実用化されている。

非線形光学現象の代表的なものに第二次高調波発生（Second Harmonic Generation : SHG），第三次高調波発生（Third Harmonic Generation : THG），光パラメトリック発振などの波長変換や，屈折率の光強度依存を利用した光双安定現象，光スイッチ現象，自己収束効果，位相共役波発生等がある。特に，非線形過程の緩和時間の短い材料で発生する光双安定現象，光スイッチ現象は，高速かつ大量の情報を扱うディジタル光情報処理には必要不可欠な光デバイスに広く応用できる現象として注目されている。本章では，非線形光学現象の基礎として，非線形分極と光双安定，光スイッチ現象の一般概念について述べる。

2－1　非線形光学過程 [1)]

光と電子はどちらも粒子性と波動性を持っている。従って，光と電子の相互作用である非線形光学過程を記述するには，厳密には量子力学によって表現されなければならない。それは，エネルギーと時間，或いは光子数（光強度）と位相のような共役物理量の間では，ハイゼンベルグの不確定性原理のために，両者を同時に決定することができないからである。この光子の個数演算子$\hat{n}$と位相に関する演算子$\hat{\cos}\phi$または$\hat{\sin}\phi$の不確定性関係は次式のような不確定性積（光子数の個数演算子の不確定性と位相を表す演算子の不確定性の積）で表される。

$$\Delta n \Delta \cos\phi \geq \frac{1}{2}\left|\left\langle \hat{\sin}\phi \right\rangle\right| \quad , \quad \Delta n \Delta \sin\phi \geq \frac{1}{2}\left|\left\langle \hat{\cos}\phi \right\rangle\right| \tag{2.1}$$

ここで，$\hat{\cos}\phi$と$\hat{\sin}\phi$がそれぞれ期待値$\langle \hat{\cos}\phi \rangle$と$\langle \hat{\sin}\phi \rangle$を持つような場の状態における，n，$\cos\phi$，$\sin\phi$ の測定値の平均２乗偏差（不確定性の大きさ）をΔn，$\Delta\cos\phi$，$\Delta\sin\phi$とおいた。単一モードコヒーレント状態$|\alpha\rangle$の光では，そのモードの平均光子数に対する不確定さの比率$\Delta n / \langle \alpha|\hat{n}|\alpha \rangle$や位相の不確定性の大きさ$\Delta\cos\phi$，$\Delta\sin\phi$は$|\alpha|^{-1}$に比例することが知られている。平均光子数である個数演算子の期待値は$\langle \alpha|\hat{n}|\alpha \rangle = |\alpha|^2$であるから，光子数や位相の不確定性の大きさは平均光子数の平方根の逆数となることを表す。さらにこのような単一モードコヒーレント状態の光では，式(2.1) の不確定性積は最小値（式(2.1)で等号が成立）をとる。[2)] レーザ光はスペクトル幅が狭く，波連が長いので近似的に単一モードコヒーレント状態とみなすことができる。また非線形光学効果を発生させるためには強い光を用いるので光子数や位相の不確定さが小さくなり，近

似的に安定な振幅と一定の位相を持った古典的な波動として扱うことができる。本論文では議論の簡単化の為に光を古典的波動として扱うこととする。光を古典的波動として表すとき，非線形光学過程は次のような組み合わせで表現できる。

第一過程

光が物質に入射すると，光電場 $\boldsymbol{E}$ に対する物質の応答として電気分極 $\boldsymbol{P}$ が生じる。強い光に対しては，$\boldsymbol{P}$ と $\boldsymbol{E}$ の関係が非線形となる。この関係は，光電場を受けた電子に対する運動方程式を解くことで電気双極子を求め，さらに統計処理によって電気双極子の集合体である巨視的な物理量の電気分極を求めることで得られる。

第二過程

第一過程より誘起された $\boldsymbol{P}$ が源となって新たな光電場 $\boldsymbol{E'}$が発生する。発生のプロセスはマクスウェル方程式に従うので，$\boldsymbol{E'}$を求めるには電磁気学の問題として取り扱えばよい。マクスウェル方程式から導かれる非線形波動方程式や，周りの構造によって定まる境界条件を解くことで $\boldsymbol{E'}$が決まる。

2－2　非線形分極 [3)]

2－1節で示したように，電気分極は光に応答する微視的な電気双極子の集合体として表されるが，その場合，表式が複雑で一般的でない。通常は，非線形効果を含む電気分極の各成分 P_iをテイラー展開した次のような表式を用いる。

$$P_i = \varepsilon_0 \left[\sum \chi_{ij}^{(1)} E_j + \sum\sum \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \sum\sum\sum \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \ldots \right] \tag{2.2a}$$

ここでε_0 は真空の誘電率，i, j, k, l は x, y, z （空間座標または結晶主軸），$\chi_{ij}^{(1)}$，$\chi_{ijk}^{(2)}$，$\chi_{ijkl}^{(3)}$はそれぞれ 2, 3, 4 階のテンソルで表される１次，２次，３次の電気感受率である。なお，P_i, $E_{j,k,l}$は空間 r 及び時間 t に依存する量 $P_i(r,t)$, $E_{j,k,l}(r,t)$である。

マクスウェル方程式においては，P_i は式(2.2a)の形で扱われる。関与する光波の周波数とその電場により誘起される分極の周波数との関連や，電場の積の順序の交換を明確にしたい場合には次式のような表し方が用いられる。

$$\begin{aligned} P_i(\omega_\delta) = \varepsilon_0 \Big[& \sum g_1 \chi_{ij}^{(1)}(-\omega_\delta;\omega_\delta) E_j(\omega_\delta) \\ & + \sum\sum g_2 \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_\delta;\omega_\alpha,\omega_\beta) E_j(\omega_\alpha) E_k(\omega_\beta) \\ & + \sum\sum\sum g_3 \chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_\delta;\omega_\alpha,\omega_\beta,\omega_\gamma) E_j(\omega_\alpha) E_k(\omega_\beta) E_l(\omega_\gamma) + \ldots \Big] \end{aligned} \tag{2.2b}$$

この表式には波数ベクトルが含まれていないので，空間分散を考えない場合に相当する。$g_{1,2,3}$ は縮重度，$\omega_{\alpha,\beta,\gamma}$は角周波数である。式(2.2a)は，空間・時間に依存する角周波数ωの分極及び，電場を

$$\boldsymbol{P}(\boldsymbol{r},t) = \frac{1}{2} \boldsymbol{P}(\omega) e^{i(\omega t - \boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r})} + \text{c.c.} \tag{2.3}$$

$$E(\boldsymbol{r},t)=\frac{1}{2}E(\omega)e^{i(\omega t-\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r})}+\text{c.c.} \tag{2.4}$$

としたときの振幅 $P(\omega)$と $E(\omega)$の間の関係である。以降，非線形光学効果を記述する方程式の $\boldsymbol{P}, \boldsymbol{E}$ は，特に断らない限り $\boldsymbol{P}(\boldsymbol{r},t)$，$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t)$とする。

式(2.2a)において，第１項は線形分極，第２項以降が非線形分極である。また，２次，３次... の電気感受率は特に非線形感受率と呼ばれる。

式(2.2a)第２項（一般に偶数次の非線形分極）は，反転対称性を欠く物質でのみ現れる。もし反転対称性を持つ物質であれば，座標軸を反転して P_{-x} を$-P_x$ に，E_{-x} を$-E_x$ に変換しても式(2.2a)が成立するはずである。このとき，$\chi^{(n)}=(-1)^{n-1}\chi^{(n)}$ の関係となる。n が偶数次の場合，この関係が成立するためには，$\chi^{(n)}=0$ でなければならない。すなわち，反転対称性を持つ物質は偶数次の非線形光学効果を示さないことがわかる。言い換えれば，偶数次の非線形光学効果は反転対称性を持たない物質のみに存在する。一方，奇数次の非線形光学効果は，多かれ少なかれいかなる物質にも存在する。

本論文では，１次，２次，３次の電気感受率は材料ごとに実験的に求められる定数として扱い，式(2.2)を出発点として非線形光学効果を取り扱う。

2－3　3次非線形分極と自己誘起屈折率（誘電率）変化

一般に物質に応力や電場などの外力を加えると，物理的な歪みが生じたり，電子状態が変化することで，電気分極が変化する。この変化は等価的に誘電率，または屈折率を変化させたと考えることができる。特に，光で光を制御する光双安定現象，光スイッチ現象を光強度による屈折率（誘電率）変化によって生じさせることができる。ここでは，そのような自己誘起屈折率（誘電率）変化と非線形分極との関連について述べる。

非線形光学材料が反転対称性を持つ物質とする。また式(2.2b)において，高次の非線形項は低次のそれに比べ十分小さいものとして，非線形分極としては第３項のみを考える。同じ次数の非線形分極でも，種々の非線形光学効果がある。それらは縮重度 g によって分類できる。非線形分極を周波数の結合過程で表現すると，単一の角周波数成分を持つ入射光電場の角周波数（右辺の３つの ω）と３次非線形分極の角周波数（左辺の ω）の関係は，次のようになる。

$$3\omega=\ \omega+\omega+\omega \tag{2.5a}$$

$$\omega=\ \omega-\omega+\omega \tag{2.5b}$$
$$\omega=\ \omega+\omega-\omega \tag{2.5c}$$
$$\omega=-\omega+\omega+\omega \tag{2.5d}$$

このうち自己誘起屈折率変化は，入射電場と分極の角周波数が等しいので式(2.5b)~(2.5d)が該当し，この組み合わせの数より縮重度は $g_3=3/4$（ただし，線形分極の縮重度 $g_1=1$ とした）となる。なお，式(2.5a)は第三高調波発生（THG）の場合で，そのときの縮重度は $g_3=1/4$ である。こうして，自己誘起屈折率変化を示す非線形分極は次式のようになる。

$$P_i(\omega)=\varepsilon_0\left[\sum\chi_{ij}^{(1)}(-\omega;\omega)E_j(\omega)+\sum\sum\sum\frac{3}{4}\chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega;\omega,-\omega,\omega)E_j(\omega)E_k(\omega)^*E_l(\omega)\right] \tag{2.6}$$

また，自己誘起屈折率（誘電率）のように空間座標（または結晶主軸）の１方向に振動する光電場 E_jのみによって誘起された電気分極の場合，

$$P_i(\omega)=\varepsilon_0\left[\chi_{ij}^{(1)}(-\omega;\omega)E_j(\omega)+\frac{3}{4}\chi_{ijjj}^{(3)}(-\omega;\omega,-\omega,\omega)\left|E_j(\omega)\right|^2E_j(\omega)\right] \tag{2.7}$$

となる。さて，電束密度ベクトル $\boldsymbol{D}$ の各成分を D_iとすると，

$$D_i(\omega)=\varepsilon_0\varepsilon_{ij}(\omega)E_j(\omega)=\varepsilon_0\delta_{ij}E_j(\omega)+P_i(\omega)\ ,\qquad \left(\delta_{ij}\begin{cases}=1 & (i=j)\\ =0 & (i\neq j)\end{cases}\right) \tag{2.8}$$

である。δ_{ij} はデルタ関数である。これより，非線形項を含む比誘電率テンソルε_{ij} は次式のようにおくことができる。

$$\varepsilon_{ij}(\omega)=\delta_{ij}+\chi_{ij}^{(1)}(-\omega;\omega)+\frac{3}{4}\chi_{ijjj}^{(3)}(-\omega;\omega,-\omega,\omega)\left|E_j(\omega)\right|^2 \tag{2.9}$$

特に対角成分のみがある場合には，$i=j$ とおいて

$$\begin{aligned}\varepsilon_{jj}(\omega)&=1+\chi_{jj}^{(1)}(-\omega;\omega)+\frac{3}{4}\chi_{jjjj}^{(3)}(-\omega;\omega,-\omega,\omega)\left|E_j(\omega)\right|^2\\&=\varepsilon_l+\frac{3}{4}\chi_{jjjj}^{(3)}(-\omega;\omega,-\omega,\omega)\left|E_j(\omega)\right|^2\end{aligned} \tag{2.10}$$

となる。ε_l は線形比誘電率である。なお，$\chi^{(3)}=\mathrm{Re}[\chi^{(3)}]+i\ \mathrm{Im}[\chi^{(3)}]$のように複素数で表すと，$\mathrm{Re}[\chi^{(3)}]$は自己誘起誘電率変化，$\mathrm{Im}[\chi^{(3)}]$は非線形吸収の大きさに寄与する。

線形屈折率を n_0とおくと，式(2.10)から角周波数ωに対する屈折率 $n(\omega)$は，

$$\begin{aligned}n(\omega)&=n_0(\omega)\left[1+\frac{3}{4n_0(\omega)^2}\chi_{jjjj}^{(3)}(-\omega;\omega,-\omega,\omega)\left|E_j(\omega)\right|^2\right]^{\frac{1}{2}}\\&\approx n_0(\omega)+\frac{3}{8n_0(\omega)}\chi_{jjjj}^{(3)}(-\omega;\omega,-\omega,\omega)\left|E_j(\omega)\right|^2\\&=n_0(\omega)+n_2(\omega)\left|E_j(\omega)\right|^2\end{aligned} \tag{2.11}$$

となる。$n_2(\omega)$は非線形屈折率と呼ばれる。

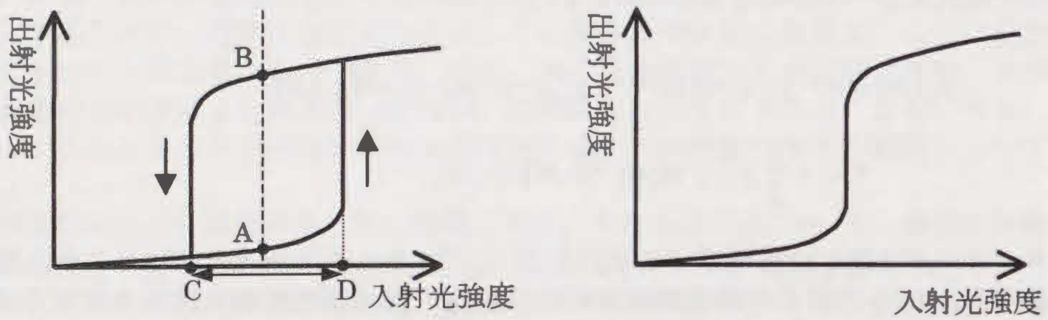
式(2.11)（または式(2.10)）は入射光自身の光強度（$|E_j(\omega)|^2$）によって屈折率（比誘電率）が変化する自己誘起屈折率（誘電率）変化を表している。また，光電界の 2 乗に比例して屈折率が変化しているため，光カー効果とも呼ばれるが，厳密には

$\omega_s = \omega_p - \omega_p + \omega_s$ の様な周波数過程で生じる屈折率変化を光カー効果，$\omega = \omega - \omega + \omega$ の周波数過程で生じる屈折率変化を光誘起屈折率変化と呼び，分類される。

2－4　光双安定現象と光スイッチ現象 [1)]

光双安定現象とは，考えている光学系への一つの入力光状態に対して，出力光が二つの安定状態のいずれかをとる現象である。図 2.1(a)に光双安定現象の一例を示す。C－D 間の一つの入力（入射光強度）に対して A, B の二種類の出力（出射光強度）のいずれかをとることを表している。

光双安定素子のほとんどは，光変調素子或いは光強度に対する非線形応答素子と，これらの素子の透過率または反射率をその出力光自身で変化させる帰還構造とで構成される。この帰還構造の種類によって，出力光を光検出器で受け電気信号で帰還する「混成型光双安定素子」と，出力光を直接鏡などで非線形光学素子に帰還する「真性型光双安定素子」に大別される。さらに真性型光双安定素子には，屈折率の光強度依存性を利用する「分散型」と，吸収係数の光強度依存性を利用する「吸収型」に分けられる。特別な帰還構造を設けなくても，その現象そのものの中に帰還機構が存在している場合もある。例えば光照射により発生した熱による屈折率変化の場合の熱拡散や，フォトリフラクティブ効果の場合のキャリア移動などがそれに当たる。



(a) 光双安定現象　　(b) 光スイッチ現象

図 2.1　光双安定現象と光スイッチ現象

光双安定素子の性能は，出力である２種類の安定状態を切り替えるスイッチングに要する時間と，必要とする最小光強度で決定される。スイッチング時間を決める要因は二つある。一つめの要因は，混成型光双安定素子では帰還電気系の応答時間，真性型光双安定素子では帰還を構成するモード，例えばファブリペロー共振器モードの形成時間，もしくは光が素子を通過する時間である。二つめの要因は，非線形光学過程そのものの応答時間である。スイッチングに要する光強度を小さくするためには，3 次の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ の大きな材料を用いるほか，非線形光学媒質内の光強度を高める働きを持つ構造を用いたり，光強度変化（屈折率変化）に対して出力が敏感に反応する構造を設ける必要がある。構造については様々なものが検討されているが，本論

文では ATR 配置等を用いた SPP や GW 励起によって非線形光学媒質内の光強度を高めることを考える。

一方，光スイッチ現象は，ある入力光状態のときに不連続に出力光の状態が変化する現象で，入力に対する出力は 1 種類しか存在しない。光スイッチ現象の一例を図 2.1(b)に示す。光双安定現象が生じる素子においても帰還構造を取り除くと，光双安定現象は起きずに光スイッチ現象となる。また帰還構造がある場合でも，光双安定を示す入力光強度の範囲（図 2.1(a)の C－ D 間）が限りなく 0 に近い条件の下では，光双安定現象の特殊な場合として光スイッチ現象が現れる。光スイッチ素子のスイッチングに要する時間と光強度も光双安定素子と同様に議論できる。

2－5　非線形屈折率効果の起源とその材料 [4)]

光強度によって屈折率が変化する非線形屈折率効果には，ある場所の屈折率変化がその場所の光強度のみによって決められる「局所的非線形性(local nonlinearity)」と，ある場所の屈折率変化が周りの光強度にも影響される「非局所的非線形性(non-local nonlinearity)」がある。式(2.11)で表されるような自己誘起屈折率変化は，その場所の光強度によって屈折率が変化する現象であるので前者に相当する。局所的非線形性を示す材料では帰還構造を構成しないと光双安定現象は生じないが，熱や電荷の拡散を伴わないので応答速度は一般に速い。一方，非局所的非線形性ではそれ自身が帰還作用を持つので，特に帰還構造を設けなくても光双安定現象を生じうるが，熱や電荷の拡散のため応答速度が遅くなる傾向がある。以下に，様々な非線形屈折率効果の起源とその性質について簡単に紹介する。

プラズマ効果

一般の半導体において，バンドギャップ以上のエネルギーの光照射によって電子が励起され自由電子，自由正孔が生成されると，光誘起された分極をうち消すように分布するスクリーニングが生じる。光強度を大きくして自由電子，正孔を増加させるとスクリーニングの効果が大きくなるので，分極が小さくなり，屈折率が減少する効果をプラズマ効果と呼ぶ。光吸収によって熱を伴い，主にキャリアの再結合による緩和で応答速度が決まるため応答速度は遅い。また電子や正孔の移動を伴うので，非局所的非線形性である。

バンドフィリング効果

バンドギャップ以上のエネルギーで強い光を照射すると，励起状態のキャリア密度が増大し，吸収スペクトル強度が飽和するようになる。そのため，光強度の増加に伴ってその波長に対する吸収係数が減少する。バーシュタイン・モス効果とも呼ばれる。応答速度，非局所的非線形性である点はプラズマ効果と同様である。

励起子吸収効果

多重量子井戸（Multi Quantum Well : MQW）構造で顕著に見られる。MQW では自由電子が 2 次元化されるため，室温においても励起子スペクトルが観測される。この励起子スペクトルが，光照射によるバンドフィリング効果によってブルーシフト（光吸収スペクトルのピークが短波長側にずれること）することで，光強度の増加に伴っ

た吸収係数の減少を起こすことができる。応答速度，非局所的非線形性である点はプラズマ効果と同様である。

<u>半導体超微粒子効果</u>

ガラス中に直径 1～30nm 程度の半導体微粒子を分散させた半導体ドープガラスで見られる。半導体微粒子内部で弱い閉じ込めをうけた励起子が，1個の微粒子結晶内全体でコヒーレントな波動として振る舞い，大きな電気双極子を生じることに起因すると考えられている。電気双極子を構成する電荷の変位量が大きいので，大きな非線形分極を示す。励起子準位に共鳴した狭い波長領域でのみ非線形性を示すが，その励起子吸収スペクトルの吸収端，スペクトル形状は粒径に強く依存する。励起子の緩和時間はバルク半導体材料に比べると短く，応答速度は速い。キャリアの拡散を伴わないので，局所的非線形性といえる。

<u>ガラス材料非線形分極</u>

均質なガラスは $\chi^{(3)}$は小さいが，伝搬損失が小さく光ファイバ化が可能である。これを利用して相互作用長を稼ぐことで大きな非線形効果を引き出すことができる。純粋な電子分極による非線形性であり，非共鳴波長領域で使用できるので光吸収を伴わず，応答速度は非常に速い。局所的非線形性である。

<u>有機材料非線形分極</u> [1]

有機材料の多重結合でみられる共役□電子は，原子中心部から受けるクーロン引力が小さく，外部電場に対し大きな変位を示すため，結果として大きな非線形分極を示すものである。吸収波長を避けた非共鳴波長領域で使用することができるので，基本的には光吸収を伴わず，応答速度は非常に速い。また，局所的非線形性である。

<u>熱屈折率効果</u>

光吸収により発生した熱によって物質の膨張や格子振動の増大が起きると，双極子密度が減少し分極が小さくなる。そのため光強度の増加に伴う熱の増加によって屈折率が減少する。熱拡散によって周囲に影響を及ぼすため非局所的である。応答速度は熱拡散速度に左右され，遅い。

<u>分子配向効果</u>

永久双極子を持つ分子性ガスや液体で生じる。光電場が強くなると配向分極を示すようになることに起因する。非共鳴波長で動作できるので，基本的に光の吸収は伴わない。分子の回転速度によって応答速度が左右される。分子の移動を伴うので，非局所的非線形性である。

<u>液晶効果</u> [1]

光学異方性を持つ液晶分子が，光電場が強くなると配向分極を示すことに起因する。分子配向効果と基本的には同じであるが，分子サイズが大きいので屈折率変化は大きい利点があるが，分子の回転速度が遅いので応答速度は遅い。

<u>フォトリフラクティブ効果</u> [5]

光の干渉の明暗差によって，光の吸収によって生じたキャリアが空間電荷として分布し，これによって生じた静的空間電場が1次の電気光学効果（ポッケルス効果）を

通じて屈折率変化を生じさせるものである。光吸収を伴い，電荷の移動速度で応答速度が左右される。電荷の移動を伴うので，非局所的非線形性である。

この中で，純粋な高次の電子分極による自己誘起屈折率変化は有機材料非線形分極とガラス材料非線形分極のみである。このような分極を表す非線形性を電子的非線形性と呼ぶ。その他の屈折率変化の大部分は，光吸収や分子の配向効果を伴うもので，大きな屈折率変化を示すが，熱拡散，電荷の移動，分子回転などの過程があるため一般に応答速度が遅いという欠点がある。同じ光強度に対する屈折率変化の大きさは，一般に熱屈折率効果や液晶効果によるものが最も大きく，局所的・電子的非線形性が最も小さい。屈折率変化の応答速度は局所的・電子的非線形性が最も速く，熱屈折率効果や液晶効果によるものが最も遅い。

本研究では，理論解析の容易さ，応答速度の速さの点から，局所非線形性かつ電子的非線形性である有機非線形光学材料のポリジアセチレン（Polydiacetylene：PDA）を用いた。しかしこの材料で生じる非線形屈折率効果は，電子的非線形性の他，熱屈折率効果も現れるので注意が必要である。

2-6　まとめ

この章では，三次非線形光学現象の一つである自己誘起屈折率変化を中心に，非線形分極の基礎と光双安定，光スイッチ現象の一般概念について述べた。以後，理論計算において非線形屈折率変化の表式は式(2.10)，(2,11)を用いるものとする。また，三次非線形光学媒質にはポリジアセチレンを用いる。

<参考文献>

1) 加藤政雄・中西八郎：“有機非線形光学材料”，シーエムシー (1985).
2) R.Loudon 著，小島忠宣・小島和子 訳：“光の量子論 第2版”，内田老鶴圃 (1994).
3) 日本化学会：“非線形光学のための有機材料”季刊 化学総説 15，学会出版センター (1992).
4) 日本材料科学会：“光エレクトロニクス”，裳華房 (2000).
5) 宮澤信太郎：“光学結晶”，アドバンストエレクトロニクスシリーズ I-14，培風館 (1995).

第三章
全反射減衰配置における光双安定現象の理論計算 [1)]

低入射光強度で光双安定現象を発生させるためには，非線形光学媒質内の光強度（$\propto |E|^2$）を大きくするような構造を用いればよい。表面プラズモンポラリトン（Surface Plasmon Polariton : SPP）や導波光（Guided Wave : GW）は，それぞれ金属－誘電体界面や誘電体導波層内に光を閉じこめるので，光強度を増大させる特性を持つ。それゆえ，SPP や GW 励起は光双安定現象の低入力動作に貢献すると考えられる。また，これらのモードは全反射減衰（Attenuated Total Reflection : ATR）法によって容易に励起，観測することができるという利点を持つ。

ATR配置における光双安定現象の理論解析は，SPP を用いたものは Agarwal & Guputa[2)] によって，GW を用いたものは Montemayor & Deck[3)] らによって行われている。これらの計算は無損失の非線形光学媒質を仮定しており，現実の材料には存在する線形損失や非線形損失，非線形項の飽和現象を無視している。また，導波光を利用する場合においても，導波層ではなくクラッド層に半無限厚さの非線形光学媒質を置いている。そのようにしている理由は，非線形波動方程式が複雑になり解析的に解くことができなくなるためである。しかし，ATR 配置で生じる光双安定現象は，これらの損失や飽和，また導波層の厚さ等に大きく影響されるものと予想され，彼らの取り扱いでは光双安定現象が実現可能か否かの判断は不可能である。

いずれにしても低入射光強度で発生する光双安定現象の実現のためには，現実に近い条件下で光双安定現象を解析することが必要不可欠である。本章では，ルンゲ・クッタ・ギル法のような数値計算法を用いることで，これまで解析的に扱うことができなかった非線形媒質の線形損失，非線形損失，非線形項の飽和現象などを考慮した非線形波動方程式を数値的に解くことができることを示す。特に，ATR 配置において平面波入射によって励起した SPP や GW を用いた光双安定現象の数値計算法について述べ，そのシミュレーションの結果を用いてこの構造で生じる光双安定現象の特性について論じる。

3－1　平面波近似による非線形波動方程式

この節では，自己誘起屈折率（誘電率）変化を示す非線形光学媒質内の電磁界の振る舞いを決定する非線形波動方程式を，マクスウェル方程式から導出する。図 3.1 のように x-y 平面に平行な境界面が存在し，x-z 平面を入射面としたときの光の伝搬を考える。

自由電荷，電流が存在しないときのマクスウェル方程式は

$$\nabla\times\mathbf{E} = -\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} \tag{3.1}$$

$$\nabla\times\mathbf{H} = \frac{\partial\mathbf{D}}{\partial t} \tag{3.2}$$

$$\nabla\cdot\mathbf{D} = 0 \tag{3.3}$$

$$\nabla\cdot\mathbf{B} = 0 \tag{3.4}$$

で表され，物質方程式は

$$\mathbf{D} = \varepsilon\mathbf{E} \tag{3.5}$$

$$\mathbf{B} = \mu\mathbf{H} \tag{3.6}$$

である。

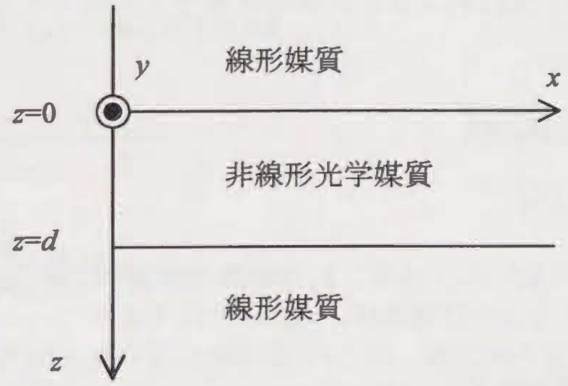


図 3.1　非線形光学媒質と座標

今，平面波近似を用いて，位置 x, z 及び時間 t での電磁界表式を次のようにおく

$$\mathbf{E}(x,z,t) = \frac{1}{2}\boldsymbol{E}(z)\mathrm{e}^{\mathrm{i}(\omega t - k_0\beta x)} + \mathrm{c.c.} \tag{3.7}$$

$$\mathbf{H}(x,z,t) = \frac{1}{2}\boldsymbol{H}(z)\mathrm{e}^{\mathrm{i}(\omega t - k_0\beta x)} + \mathrm{c.c.} \tag{3.8}$$

ここで　$k_{/\!/}$ を波数の x 方向成分とすると，$k_{/\!/} = k_0\beta$ の関係がある。例えば，非線形光学媒質中を x 方向に伝搬する GW が存在する場合，β を GW の実効屈折率と呼ぶ。k_0（$= \omega/c$）は真空中の波数，ωは角周波数，i は虚数単位である。式(3.7)(3.8)内の z に依存する振幅ベクトルの項 $\mathbf{E}(z)$, $\mathbf{H}(z)$ は一般に

$$\boldsymbol{E}(z) = E_x(z)\hat{x} + E_y(z)\hat{y} + E_z(z)\hat{z} \tag{3.9}$$

$$\boldsymbol{H}(z) = H_x(z)\hat{x} + H_y(z)\hat{y} + H_z(z)\hat{z} \tag{3.10}$$

とおける。$\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}$ はそれぞれ x, y, z 方向の単位ベクトルである。非線形光学媒質の光学的異方性を考える上で電気的主軸が x, y, z 軸であるとし，比誘電率テンソルが対角成分のみしか持たないとすると，式(3.5)は

$$\begin{pmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{pmatrix} = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \tag{3.11}$$

となる。$\varepsilon_x, \varepsilon_y, \varepsilon_z$はそれぞれ x, y, z 方向に振動する電界に対する比誘電率である。

3－1－1　TE 波における非線形波動方程式

式(3.3)，(3.4)において，TE 波の場合は $E_x(z) = E_z(z) = H_y(z) = 0$ である。故に比誘電率はε_y のみ考えればよい。式(2.9)より自己誘起誘電率変化を示す比誘電率 ε_{ny} は次のようにおける。

$$\begin{aligned} \varepsilon_{ny} &= \varepsilon_{ly} + \frac{3}{4}\chi^{(3)}_{yyyy}\left|E_y(z)\right|^2 \\ &= \varepsilon_{ly} + \alpha_y\left|E_y(z)\right|^2 \end{aligned} \tag{3.12}$$

ここで，$\alpha_y = 3\chi^{(3)}{}_{yyyy}/4$ とおいた。また，ε_{ly}は線形比誘電率である。

TE 波におけるマクスウェル方程式は，式(3.1)～(3.4)より

$$H_x(z) = \frac{1}{\mathrm{i}\omega\mu_0}\frac{\partial E_y(z)}{\partial z} \tag{3.13}$$

$$H_z(z) = \frac{k_0\beta}{\omega\mu_0}E_y(z) \tag{3.14}$$

$$\frac{\partial H_x(z)}{\partial z} - \mathrm{i}k_0\beta H_z(z) - \mathrm{i}\omega\varepsilon_0\varepsilon_{ny}E_y(z) = 0 \tag{3.15}$$

となる。式(3.12)を式(3.15)に導入してこれらを整理すると，次式が得られる。

$$\frac{\partial^2 E_y(z)}{\partial z^2} - \left[\gamma_n{}^2 - k_0{}^2\alpha_y\left|E_y(z)\right|^2\right]E_y(z) = 0 \tag{3.16}$$

これが，平面波近似における，TE 波に対する非線形波動方程式である。なお γ_n は非線形光学媒質内光波の z 方向に対する減衰定数で，

$$\gamma_n{}^2 = k_0{}^2(\beta^2 - \varepsilon_{ly}) \tag{3.17}$$

である。$\gamma_n{}^2 > 0$ のとき減衰解に，$\gamma_n{}^2 < 0$ のとき伝搬解となる。

3－1－2　TM 波における非線形波動方程式

TM 波の場合は $H_x(z) = H_z(z) = E_y(z) = 0$ である。電界は $E_x(z)$と $E_z(z)$の２つの成分を持つので，式(3.12)と同様に考えると，比誘電率は次のようにおける。

$$\varepsilon_{nx} = \varepsilon_{lx} + \alpha_x\left|E_x(z)\right|^2 \tag{3.18a}$$

$$\varepsilon_{nz} = \varepsilon_{lz} + \alpha_z\left|E_z(z)\right|^2 \tag{3.18b}$$

TM 波におけるマクスウェル方程式は，式(3.1)～(3.4)より次のようになる。

$$\frac{\partial E_x(z)}{\partial z} - \mathrm{i}k_0\beta E_z(z) - \mathrm{i}\omega\mu_0 H_y(z) = 0 \tag{3.19}$$

$$E_x(z) = -\frac{1}{\mathrm{i}k_0 c\varepsilon_0\varepsilon_{nx}}\frac{\partial H_y(z)}{\partial z} \tag{3.20}$$

$$E_z(z) = -\frac{k_0\beta}{\omega\varepsilon_0\varepsilon_{nz}}H_y(z) \tag{3.21}$$

さて，結晶材料や配向処理された膜においては，結晶軸や配向方向に平行な電界に対する非線形性が，垂直な方向に比べ１～２桁大きいことが報告されている。[4)] このような媒質を取り扱う場合，x または z いずれかの方向のみに非線形性があるとおける。取り扱いを簡単にするために，本研究では比誘電率を z 方向（深さ方向）に非線形性がある場合（z–非線形性）と x 方向（深さ方向）に非線形性がある場合（x–非線形性）の２通りに分けて考えることにする。

・z 方向（深さ方向）に非線形性がある場合（z–非線形性）

$$\varepsilon_{nx} = \varepsilon_{lx} \tag{3.22a}$$

$$\varepsilon_{nz} = \varepsilon_{lz} + \alpha_z\left|E_z(z)\right|^2 \tag{3.22b}$$

式(3.22)のように，比誘電率が $E_z(z)$に依存するので，$E_z(z)$についての非線形波動方程式を表すことは簡単であるが，境界条件を考えやすくするために $H_y(z)$に対する非線形波動方程式を求めた。式(3.22)を式(3.19)～(3.21)に導入して整理すると次式が得られる。

$$\frac{\partial^2 H_y(z)}{\partial z^2} - \left[\gamma_n{}^2 - k_0{}^2\frac{\varepsilon_{lx}}{\varepsilon_{lz}}\frac{\beta^4}{c^2\varepsilon_0{}^2\varepsilon_{lz}{}^3}\alpha_z\left|H_y(z)\right|^2\right]H_y(z) = 0 \tag{3.23}$$

これが，平面波近似における，z–非線形性媒質での TM 波に対する非線形波動方程式である。なお γ_nは，

$$\gamma_n{}^2 = k_0{}^2 \frac{\varepsilon_{lx}}{\varepsilon_{lz}}(\beta^2 - \varepsilon_{lz}) \tag{3.24}$$

である。

・x 方向（界面方向）に非線形性がある場合（x–非線形性）

$$\varepsilon_{nx} = \varepsilon_{lx} + \alpha_x |E_x(z)|^2 \tag{3.25a}$$

$$\varepsilon_{nz} = \varepsilon_{lz} \tag{3.25b}$$

式(3.25)のように，比誘電率は $E_x(z)$に依存する。そこで，式(3.25)を式(3.19)–(3.21)に導入して整理することで $E_x(z)$についての非線形波動方程式を求める。

$$\frac{\partial^2 E_x(z)}{\partial z^2} - \left[\gamma_n{}^2 - \frac{\gamma_n{}^2}{\varepsilon_{lz}}\alpha_x |E_x(z)|^2\right]E_x(z) = 0 \tag{3.26}$$

これが，平面波近似における，x–非線形性媒質での TM 波に対する非線形波動方程式である。

3-1-3　非線形波動方程式の数値解法

電子計算機を用いた数値計算法を用いれば，複雑な非線形波動方程式でも解くことが可能になる。微分方程式の数値解法にはオイラー法，アダムス・バッシュフォース法，予測子修正子法，ルンゲ・クッタ・ジル法などがある。これらはいずれも微分方程式 $y'(x) = f(x, y(x))$において，初期値 x_0, $y(x_0) = y_0$が与えられたときに，刻み幅 h ごとの x_j $(= x_0 + jh, j = 0, 1, 2, \ldots)$の値を逐次求める方法である。本論文では，比較的高い精度であり，数値的近似解法として広く用いられているルンゲ・クッタ・ジル法 [5]を用いた。この節ではコンピュータの使用を前提とした非線形波動方程式の数値的解法について述べる。

図 3.1 のような厚さ d の非線形光学媒質を考える。式(3.16)，(3.23)，(3.26)を式(3.27)のようにおくと，TE 波，TM 波いずれの場合も表すことができる。

$$\frac{\partial^2 U_n(z)e^{i\phi(z)}}{\partial z^2} - \left[\gamma_n{}^2 - \alpha' |U_n(z)e^{i\phi(z)}|^2\right]U_n(z)e^{i\phi(z)} = 0 \tag{3.27}$$

ここで非線形光学媒質内の電磁界振幅を次のようにおいた。

$$U_n(z)e^{i\phi(z)} \tag{3.28}$$

$U_n(z)$は，各偏光方向，非線形性の方向に対して表 3.1 に示されるような電界振幅又は磁界振幅の大きさを表す。また，$\phi(z)$は位相である。これらはいずれも実数であるとする。α'は非線形波動方程式における非線形項の係数で，表 3.1 のように表される。

表 3.1　非線形波動方程式の変数 $U_n(z)$と係数α'

	TE 波	TM 波	
		z–非線形性	x–非線形性
$U_n(z)$	$\lvert E_y(z)\rvert$	$\lvert H_y(z)\rvert$	$\lvert E_x(z)\rvert$
α'	$k_0{}^2\alpha_y$	$k_0{}^2 \frac{\varepsilon_{lx}}{\varepsilon_{lz}} \frac{\beta^4}{c^2\varepsilon_0{}^2\varepsilon_{lz}{}^3}\alpha_z$	$\frac{\gamma_n{}^2}{\varepsilon_{lz}}\alpha_x$

ルンゲ・クッタ・ジル法で解くことができるように，式(3.27)を実部の式，虚部の式に分けて，変数が実数のみになるような連立方程式に変形する。

$$\text{実部} \quad : \quad \frac{d^2U_n(z)}{dz^2} - U_n(z)\left[\frac{d\phi(z)}{dz}\right]^2 - \left[\gamma_n{}^2 - \alpha' U_n(z)^2\right]U_n(z) = 0 \tag{3.29}$$

$$\text{虚部} \quad : \quad 2\frac{dU_n(z)}{dz}\frac{d\phi(z)}{dz} + U_n(z)\frac{d^2\phi(z)}{dz^2} = 0 \tag{3.30}$$

さらに次のように 1 階の連立微分方程式にする。

$$\frac{dU_n(z)}{dz} = \eta(z) \tag{3.31}$$

$$\frac{d\eta(z)}{dz} = \left[\zeta^2(z) + \gamma_n{}^2 - \alpha' U_n(z)^2\right]U_n(z) \tag{3.32}$$

$$\frac{d\phi(z)}{dz} = \zeta(z) \tag{3.33}$$

$$\frac{d\zeta(z)}{dz} = -2\frac{\eta(z)\zeta(z)}{U(z)} \tag{3.34}$$

式(3.31)–(3.34)において，変数は $U_n(z)$，$\phi(z)$，$\eta(z)\ (= dU_n(z)/dz)$，$\zeta(z)\ (= d\phi(z)/dz)$の 4 つである。初期値は次節で述べる境界条件で与えられる。図 3.1 において $z < 0$ の領域から光を入射させる場合，$z = d$ の境界条件で決まる初期値 $U_n(d)$，$\phi(d)$，$\eta(d)$，$\zeta(d)$を与えると，ルンゲ・クッタ・ジル法 [5] を用いて式(3.31)–(3.34)の連立微分方程式を解くことで，$z = 0$ での値 $U_n(0)$，$\phi(0)$，$\eta(0)$，$\zeta(0)$を求めることができる。もちろん任意の位置 z における値を求めることもできる。

3－2　ATR配置における境界条件と反射率計算

この節では，図 3.2 の構造での境界条件を解いて，ATR 配置における反射率計算に必要な式の導出を行う。図 3.2 において，媒質３が非線形光学媒質で，他は等方な線形媒質であるとする。ATR 配置の場合，媒質１はプリズムと置くが，媒質２，媒質４は金属でも誘電体でもかまわない。これらの媒質の光学的性質は，複素比誘電率ε_j（j= 1, 2, 4 ）の値で特徴づけられる。媒質２および３の膜厚はそれぞれ d_2, d_3 とする。

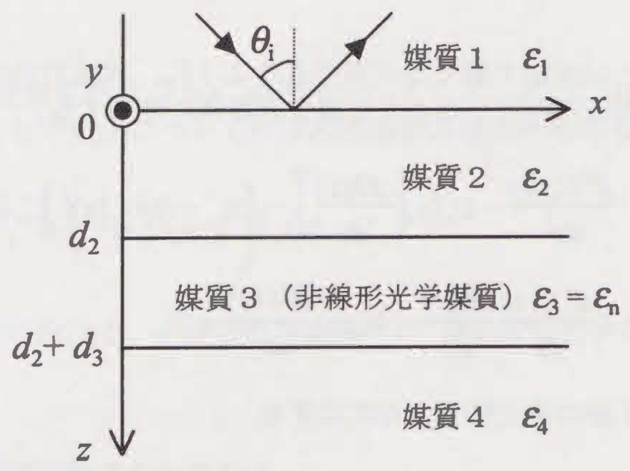


図 3.2　４層 ATR 配置

波長λ の平面波が図 3.2 のように入射角θ_i で媒質１から入射したとする。このときの各媒質内の電磁界表式を次のように置く。

$$\text{媒質1}:\quad U_1 = U_{1i}\,e^{-\gamma_1 z} + U_{1r}\,e^{\gamma_1 z} \tag{3.35}$$

$$\text{媒質2}:\quad U_2 = U_{2i}\,e^{-\gamma_2 z} + U_{2r}\,e^{\gamma_2 z} \tag{3.36}$$

$$\text{媒質3}:\quad U_n(z)\,e^{i\phi(z)} \tag{3.37}$$

$$\text{媒質4}:\quad U_4 = U_{4i}\,e^{-\gamma_4 (z-d_2-d_3)} \tag{3.38}$$

添え字の i, r はそれぞれ入射，反射を表す。γ_jは各媒質における z 方向の減衰定数で，

$$\gamma_j = k_0\sqrt{\beta^2 - \varepsilon_j} \qquad (j = 1, 2, 4) \tag{3.39}$$

$$\left.\begin{aligned} \gamma_j &= k_0\sqrt{\beta^2 - \varepsilon_{ly}} && :\text{TE 偏光} \\ \gamma_j &= k_0\sqrt{\frac{\varepsilon_{lx}}{\varepsilon_{lz}}}\sqrt{\beta^2 - \varepsilon_{lz}} && :\text{TM 偏光} \end{aligned}\right\} (j = \mathrm{n}) \tag{3.40}$$

である。入射角がθ_iのとき，βは

$$\beta = \sqrt{\varepsilon_1}\,\sin\theta_i \tag{3.41}$$

である。

線形媒質中では，式(3.35),(3.36),(3.38)のように+z と− z 方向に伝搬する平面波の重ね合わせとするが，非線形光学媒質中では式(3.37)のように z の関数である振幅 $U_n(z)$と位相$\phi(z)$で表現する。$U_n(z)$，$\phi(z)$の具体的な値は式(3.29),(3.30)を数値的に解くことで得られる。

さて，各層の電磁界振幅は以下のような境界条件式から求められる。

$z = 0$ での境界条件より，

$$U_{1i} = \frac{1}{2}\left[(1+\delta_{12})U_{2i} + (1-\delta_{12})U_{2r}\right] \tag{3.42}$$

$$U_{1r} = \frac{1}{2}\left[(1-\delta_{12})U_{2i} + (1+\delta_{12})U_{2r}\right] \tag{3.43}$$

$z = d_2$での境界条件より，

$$U_{2i} = \frac{1}{2}\left\{U_n(d_2) - \delta_{23}\left[\left.\frac{dU_n}{dz}\right|_{z=d_2} + iU_n(d_2)\left.\frac{d\phi}{dz}\right|_{z=d_2}\right]\right\}\exp\left[i\phi(d_2) + \gamma_2 d_2\right] \tag{3.44}$$

$$U_{2r} = \frac{1}{2}\left\{U_n(d_2) - \delta_{23}\left[\left.\frac{dU_n}{dz}\right|_{z=d_2} + iU_n(d_2)\left.\frac{d\phi}{dz}\right|_{z=d_2}\right]\right\}\exp\left[i\phi(d_2) - \gamma_2 d_2\right] \tag{3.45}$$

$z = d_2 + d_3$での境界条件より，

$$U_n(d_2 + d_3) = U_{4i} \tag{3.46}$$

$$\left.\frac{dU_n}{dz}\right|_{z=d_2+d_3} = -U_{4i}\,\mathrm{Re}(\delta_{34}) \tag{3.47}$$

$$\phi(d_2 + d_3) = 0 \tag{3.48}$$

$$\left.\frac{d\phi}{dz}\right|_{z=d_2+d_3} = -\mathrm{Im}(\delta_{34}) \tag{3.49}$$

が求まる。ここで，係数δ_{12}, δ_{23}, δ_{34} は表 3.2 で与えられる。
媒質 1 から入射される入射光及び反射光の強度 I_i, I_r は，

$$I_{\mathrm{i,r}} = \frac{1}{2} A \left| U_{\mathrm{1i,1r}} \right|^2 \tag{3.50}$$

である。ここで A は係数で，表 3.2 に示してある。
式(3.50)を用いて（エネルギー）反射率 R は

$$R = \frac{I_{\mathrm{r}}}{I_{\mathrm{i}}} \tag{3.51}$$

で表される。

表 3.2　係数δ_{12}, δ_{23}, δ_{34}

	TE 波	TM 波	
		z−非線形性	x−非線形性
δ_{12}	$\dfrac{\gamma_2}{\gamma_1}$	$\dfrac{\gamma_2\varepsilon_1}{\gamma_1\varepsilon_2}$	$\dfrac{\gamma_1\varepsilon_2}{\gamma_2\varepsilon_1}$
δ_{23}	$\dfrac{1}{\gamma_2}$	$\dfrac{\varepsilon_2}{\gamma_2\varepsilon_{lz}}$	$\dfrac{\gamma_2\varepsilon_{lx}}{\gamma_n^2\varepsilon_2}$
δ_{34}	γ_4	$\dfrac{\gamma_4\varepsilon_{lz}}{\varepsilon_4}$	$\dfrac{\gamma_n^2\varepsilon_4}{\gamma_4\varepsilon_{lx}}$
A	$c\varepsilon_0\sqrt{\varepsilon_1}$	$\dfrac{1}{c\varepsilon_0\sqrt{\varepsilon_1}}$	$\dfrac{c\varepsilon_0\varepsilon_1\sqrt{\varepsilon_1}k_0}{\gamma_1^2}$

以上の式を使って，反射率の数値計算手順を説明する。

（1）　入射光波長λ，各媒質の比誘電率ε_j，入射角θ_iを定め，δ_{12}, δ_{23}, δ_{34} を求める。
（2）　U_{4i} の値を仮定する。$z = d_2+d_3$ での境界条件（式(3.46) ~ (3.49)）から非線形媒質内の変数の初期値 $U_n(d_2+d_3)$, $dU_n/dz|_{z=d_2+d_3}$, $\phi(d_2+d_3)$, $d\phi/dz|_{z=d_2+d_3}$ が求まる。
（3）　ルンゲ・クッタ・ジル法[5] で非線形連立微分方程式 (3.31) ~ (3.34)を解き $z = d_2$ での値 $U_n(d_2)$, $dU_n/dz|_{z=d_2}$, $\phi(d_2)$, $d\phi/dz|_{z=d_2}$ を求める。
（4）　$U_n(d_2)$, $dU_n/dz|_{z=d_2}$, $\phi(d_2)$, $d\phi/dz|_{z=d_2}$ を $z = d_2$ での境界条件式 (3.44), (3.45)に代入して U_{2i}, U_{2r} を求める。
（5）　U_{2i}, U_{2r} を $z = 0$ での境界条件式(3.44), (3.45)に代入して U_{1i}, U_{1r} を求める。
（6）　入射光及び反射光強度 I_i, I_r を式(3.50)より求め，式(3.51)より反射率 R が求まる。
（7）　U_{4i} の値を変えながら(2) ~ (6)を繰り返すことによって，入射光強度 I_i と反射率 R の関係が得られる。

3－3　光双安定現象の計算機シミュレーション

この節では，ATR 配置で SPP や GW を利用した光双安定現象の特性を知るために，前節で述べた計算方法を使って，計算機シミュレーションを行う。そして SPP や GW を利用した光双安定現象特性の詳しい評価を行う。

SPP や GW が励起できる構造として，図 3.2 における媒質１，媒質２，媒質３，媒質４をそれぞれ TaFD9 プリズム，銀，PDA－4BCMU 単結晶膜，空気と仮定する。この構造では SPP 励起によって銀－PDA 界面の，また，GW 励起によって PDA 膜内の光強度を高めることができる。入射光波長λを 1064 nm，各媒質の誘電率を$\varepsilon_1 = 1.823^2$[6], $\varepsilon_2 = -57.8 - i0.6$[7], $\varepsilon_{lx} = \varepsilon_{ly} = \varepsilon_{lz} = 1.680^2$[8], $\varepsilon_4 = 1.0^2$, 非線形係数α ($=\alpha_x=\alpha_y=\alpha_z$) を 6.98×10^{-19} m^2/V^2 ($= 5\times10^{-11}$ esu)[8]とおく。以下に計算結果を示す。

3－3－1　入射光強度 I_i に対する反射率 R の変化

図 3.3 に TaFD9 プリズム－銀－PDA－4BCMU 単結晶膜－空気構造における線形応答時の ATR 信号を示す。このときの PDA 膜厚 d_3 は 1.0 μm である。銀膜厚 d_2 は，(a)では d_2 = 47 nm ，(b)では d_2 = 64 nm とした。図中のθ_{13} ，θ_{14} はそれぞれプリズム－PDA，プリズム? 空気の屈折率で決まる全反射角である。入射角が $\theta_{14} < \theta_i < \theta_{13}$ のとき，

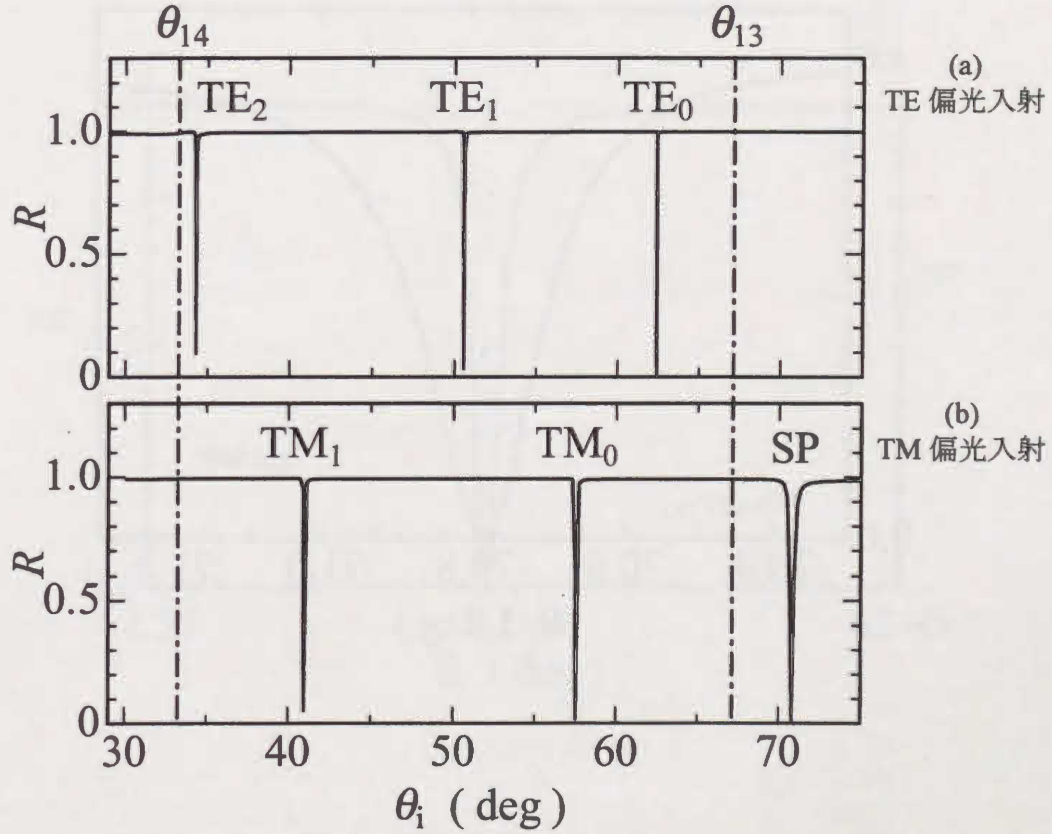
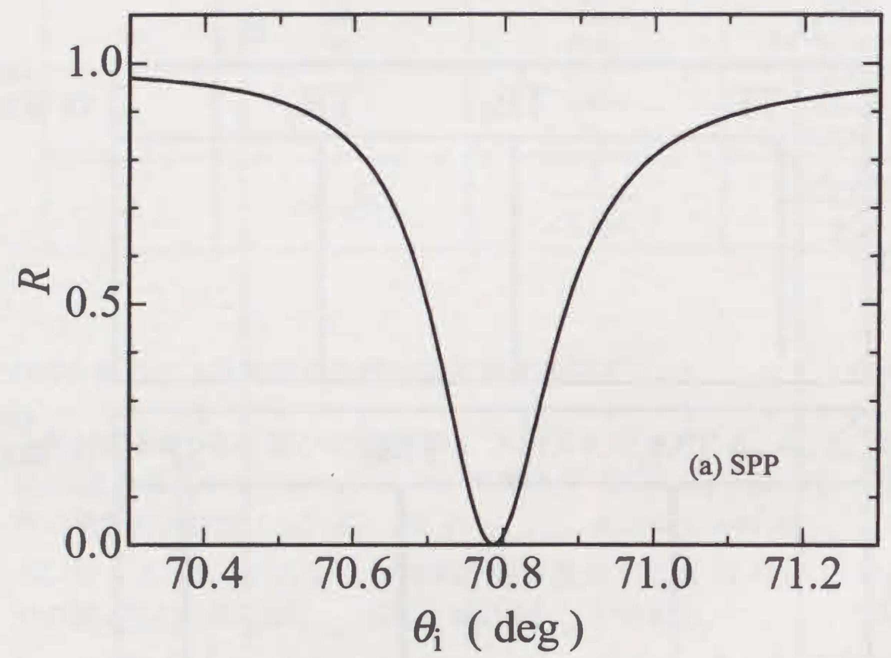
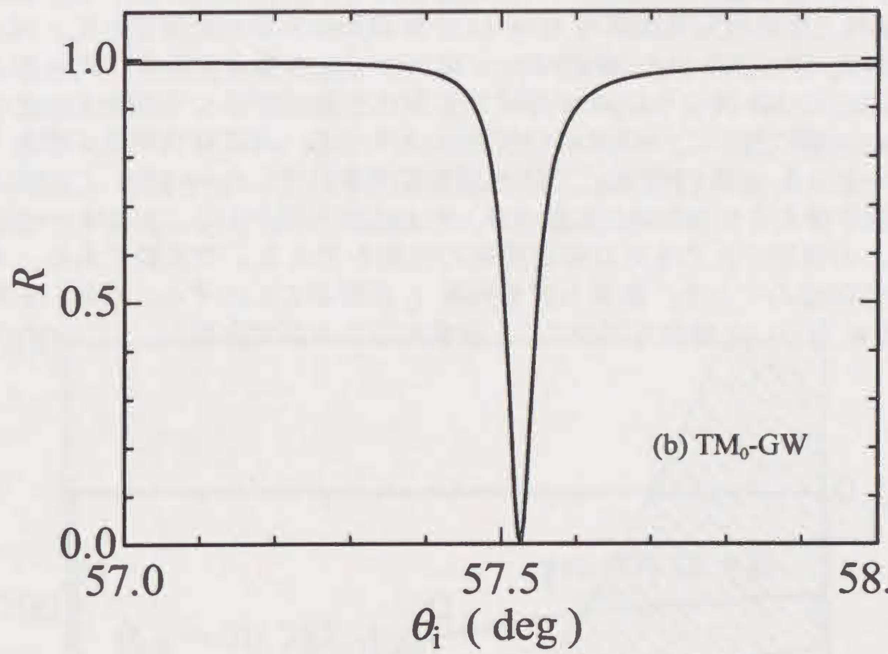


図 3.3　TaFD9− 銀− PDA− 4BCMU− 空気構造における線形応答時の ATR 信号
d_3 = 1.0 μm

導波層である PDA 膜内では光が伝搬するが，銀や空気内ではエバネセント波になるので，PDA 膜内に光を閉じ込める導波光（GW）を励起することが可能になる。図 3.3(a)の TE 偏光入射では TE_0，TE_1，TE_2 の 3 つ，図 3.3(b)の TM 偏光入射では TM_0，TM_1 の 2 つの GW 励起に対応する反射率の減少（ディップ）が現れている。また，TM 偏光入射における $\theta_i > \theta_{13}$ の角度領域では，表面プラズモンポラリトン（SPP）励起に対応するディップが現れていることがわかる。これらのディップの現れる入射角度は，主として PDA 膜厚 d_3 の値に大きく左右される。また，ディップの深さ（反射率 R の極小値 R_{min}）は GW や SPP によって異なり，銀膜厚 d_2 の値によって変化する。入射光のエネルギーが GW や SPP に効率よく注入されるのは，ディップが最も深いとき，すなわち $R_{min} = 0$ の時である。この時，PDA 膜内での光強度が大きくなり，非線形光学効果を効率よく発生させることができる。しかし，$R_{min} = 0$ となる d_2 の値は，PDA 膜厚 d_3 の値によっても変化するため注意が必要である。この章では，非線形光学効果が効率よく発生する条件で計算を行うために，注目している GW や SPP の ATR 信号が $R_{min} = 0$ となるような d_2 の値を用いた。こうして得られた ATR 信号の例を図 3.4 に示す。図 3.4 (a),(b),(c)の銀膜厚 d_2 はそれぞれ 61 nm，64 nm，47 nm であるとした。PDA 膜厚 d_3 はいずれも 1.0 μm とした。





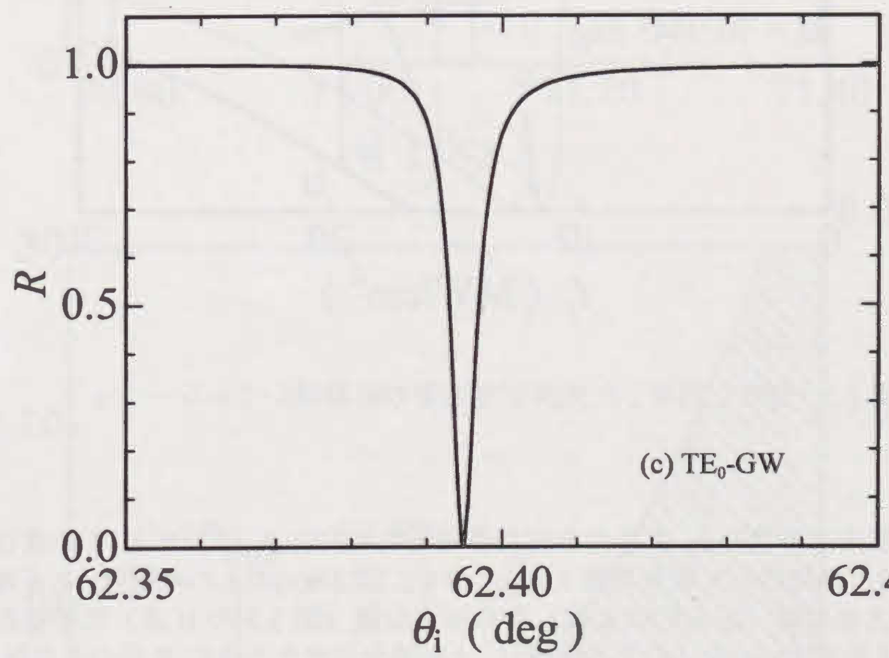


図 3.4　線形応答 ATR 信号

3－2節で示した計算方法を用いて，入射光強度 I_i に対する反射率 R を計算した例を示す。図 3.5 は，図 3.4(a)で示した SPP を励起したときの結果である。(d_2 = 64 nm，d_3 = 1.0μm)　なお，非線形光学媒質の PDA は z–非線形性を持つと仮定した。図 3.5 中の実線は入射角 θ_i = 71.1000 deg，鎖線は θ_i = 70.9445 deg の場合である。θ_i = 71.1000 deg のとき，A→B，C→D のように R が不連続に変化する I_i が２つ存在する。その間の I_i では，一つの I_i 値に対し二つの R のいずれかとりうる，光双安定現象が現れているのがわかる。一方，θ_i < 70.9445 deg では光双安定現象が生じなかった。このことから，光双安定現象を発生させるために必要な θ_i や I_i には下限があることがわかる。特に I_i の下限値はこの構造で生じる光双安定現象の性能を考える上で重要である。本論文ではこの I_i の下限値のことを，臨界入射光強度 I_c と呼ぶことにする。なお，x–非線形性の場合や，GW を用いた場合も同様に，I_c を求めることができる。

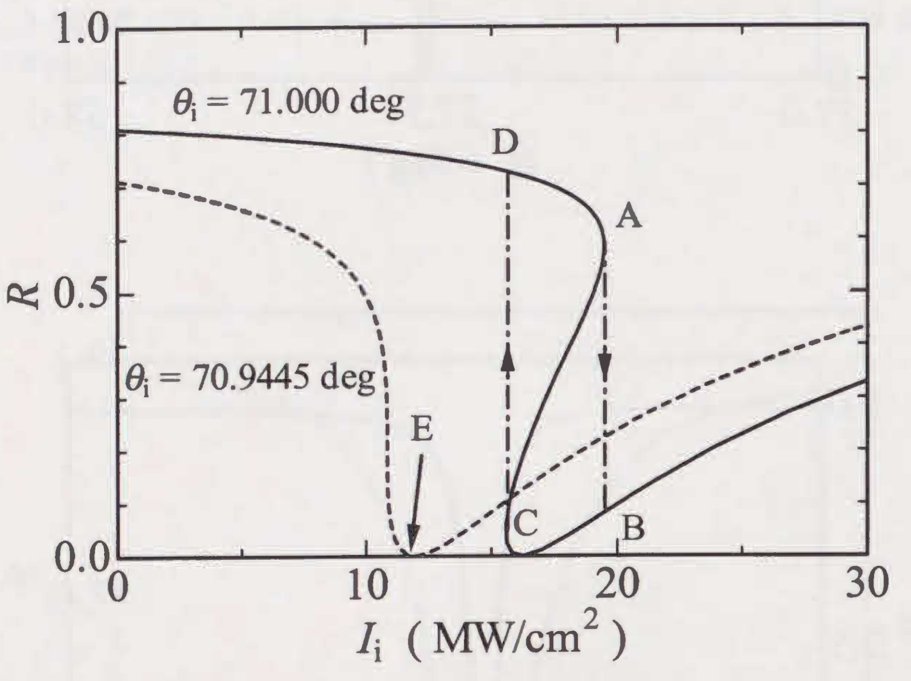
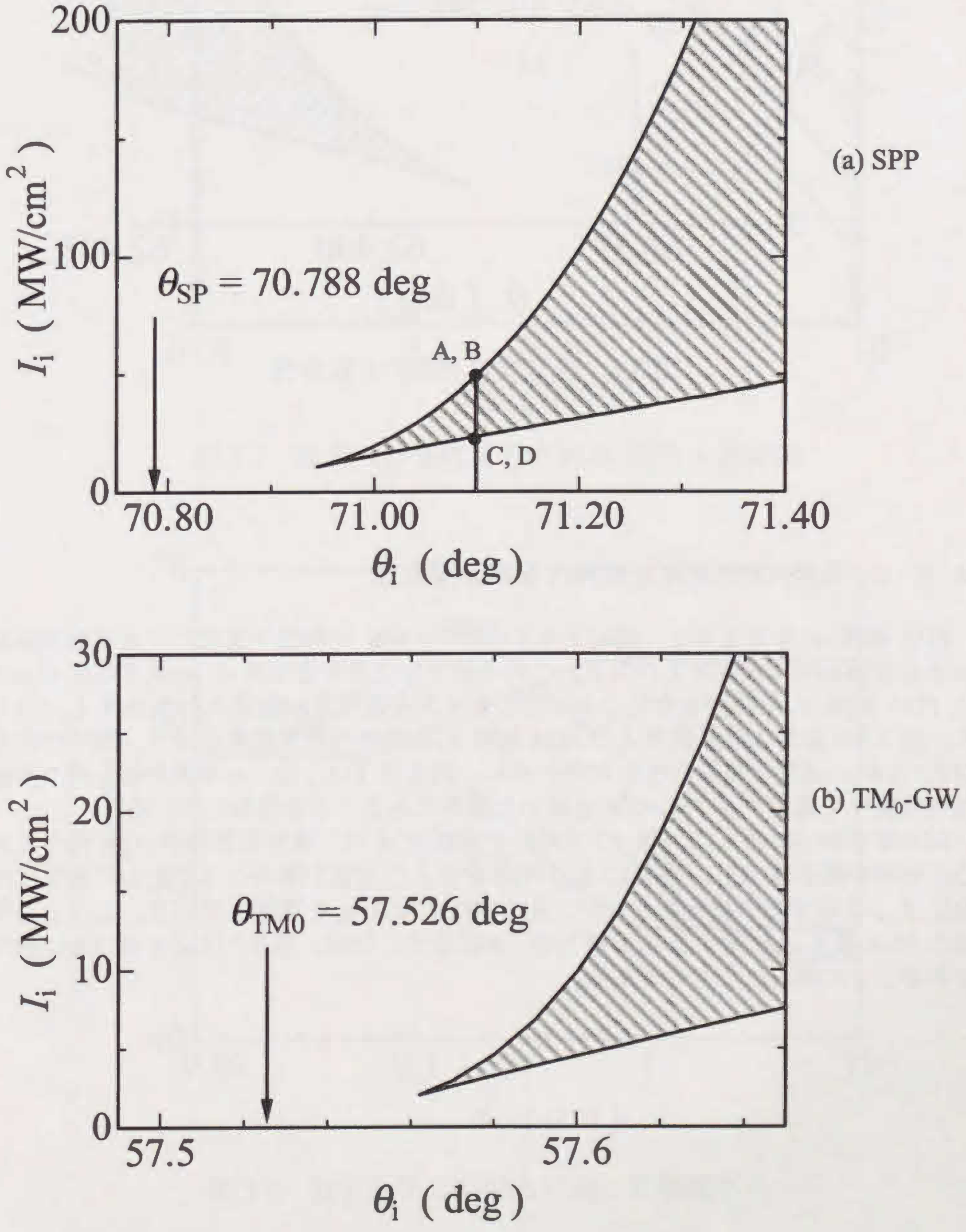


図 3.5　SPP を利用した光双安定現象の計算機シミュレーション

さらに光双安定特性の θ_i 依存性を詳しく知るために，θ_i に対する I_i の変化の様子を示す。図 3.5 に対応した結果を図 3.6(a)に示す。図 3.6(a)の上の曲線は，I_i を増加したときに R が大きな値（図 3.5 の A 点）から小さな値（図 3.5 の B 点）に不連続に小さくなる時の I_i を表す。また I_i の下の曲線は，I_i を減少させたときに R が小さな値（図 3.5 の C 点）から大きな値（図 3.4 の D 点）に不連続に大きい値に変化する時の I_i を表す。図 3.6 (b)は TM_0–GW を励起したとき（z–非線形性），(c)は TE_0–GW を励起したときの結果で，それぞれ図 3.3(b),(c)に対応している。図 3.6 中の斜線の領域は光双安定現象を示す領域である。また，θ_{SPP}, θ_{TM0}, θ_{TE0} はそれぞれ線形応答時の SPP, TM_0–GW, TE_0–GW の励起角を表す。図 3.6(a),(b),(c)いずれの場合も，θ_i を小さくして SPP または GW

励起角に近づけると，光双安定現象を発生させるために必要な I_i は小さくなるが，光双安定現象を示す領域が狭くなり，ある θ_i の時に光双安定現象が生じなくなる。このことから，光双安定現象を得るために必要な I_i には下限値があることがわかる。この下限値を臨界入射光強度 I_C と定義する。図 3.6 から求められる I_C の値は，図 3.4(a)のような SPP 励起の場合，z–非線形性として I_c = 10.8 MW/cm^2 であった（図 3.5 に対応)。その他，図 3.4(b)　(TM_0–GW 励起，z–非線形性）の場合 I_c = 2.03 MW/cm^2，図 3.4(b)　(TE_0–GW 励起）の場合 I_c = 12.2 kW/cm^2 であった。このうち，TE_0–GW を利用した光双安定現象の I_c が最も小さくなった理由については後に述べる。



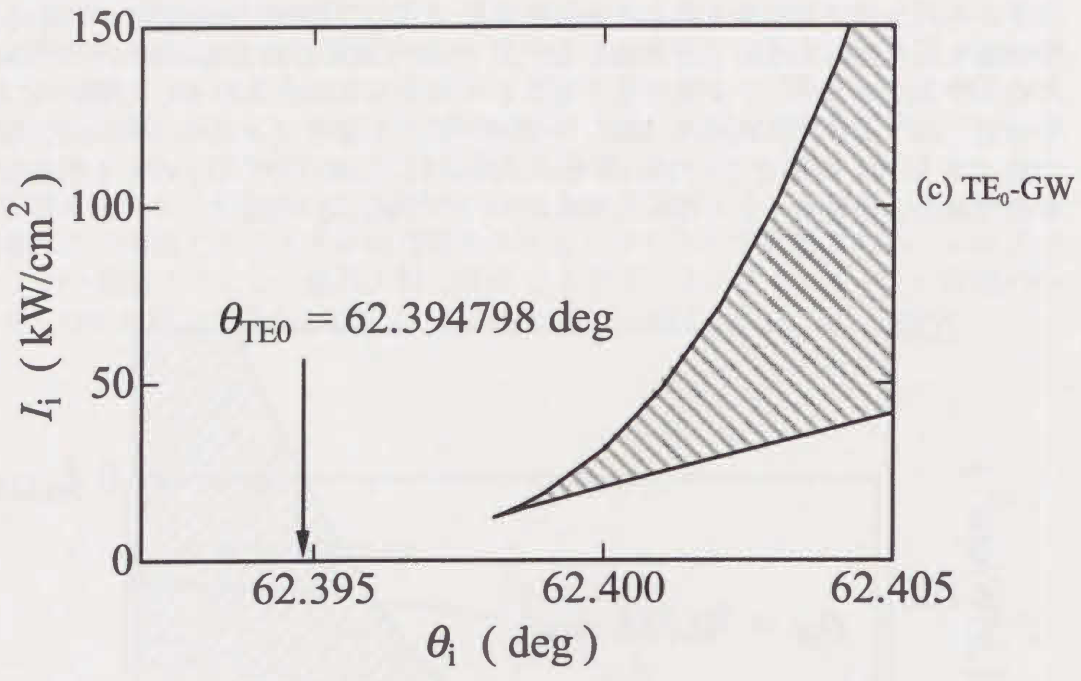


図 3.6　光双安定現象の θ_i 依存性

3-3-2　臨界入射光強度 I_c の PDA 膜厚 d_3 依存性

PDA 膜厚 d_3 を変えると，励起される SPP や GW の特性が変化し，光双安定現象に大きな影響を与えると考えられる。この小節では光双安定現象の d_3 依存性を知るために PDA 膜厚 d_3 を変化させたときに生じる光双安定現象の臨界入射光強度 I_c に注目した。図 3.7 に臨界入射光強度 I_c の PDA 膜厚 d_3 依存性の計算結果を示す。図中の記号は SPP，GW の種類と非線形性の方向を表し，例えば $TM_{0\text{-}x}$ は，x–非線形性を持つ非線形光学媒質中を導波する TM_0–GW を用いた結果であることを意味している。

前小節でのべたように，図 3.7 で用いた銀膜厚 d_2 は，線形応答時の ATR 信号における反射率の極小値 R_{min} が完全に R_{min}=0 となるような値を選ぶべきである。実際には完全に R_{min}=0 にするのは困難なので，R_{min}<10^{-3} となる d_2 を選択している。こうして得られた PDA 膜厚 d_3 に対する d_2 の値を図 3.8 に示す。なお，図 3.7 は d_2 が図 3.8 に示す値であるときに得られたものである。

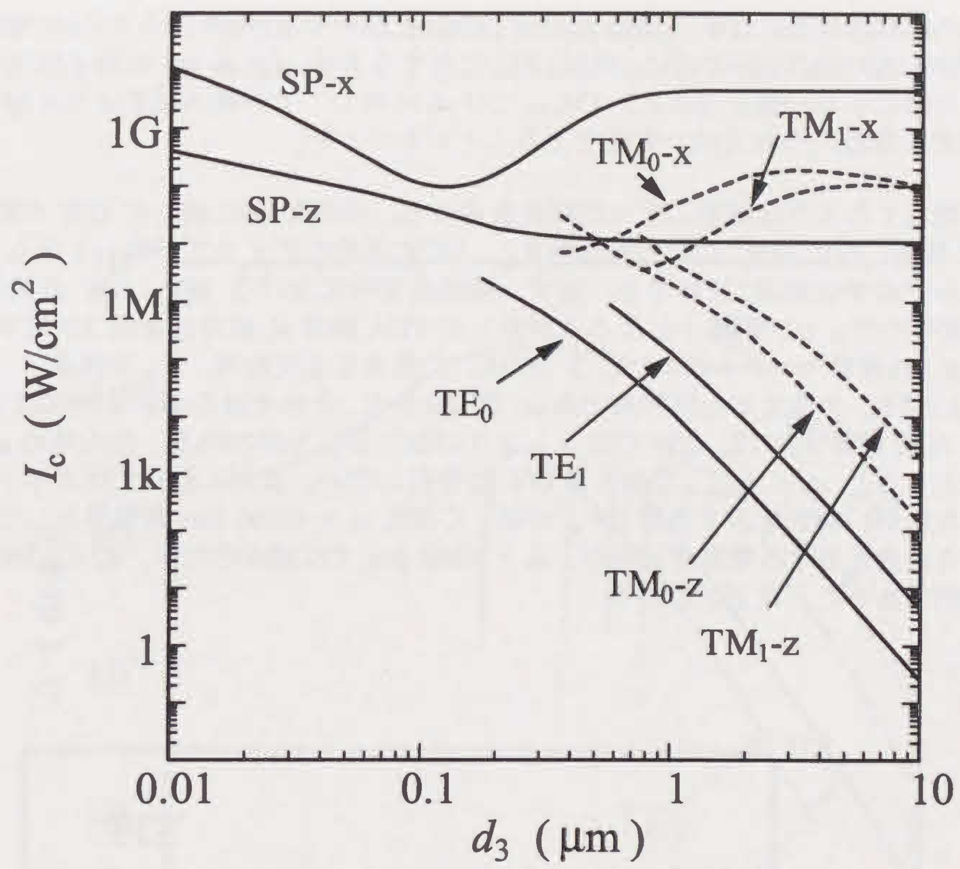


図 3.7　臨界入射光強度 I_c の PDA 膜厚 d_3 依存性

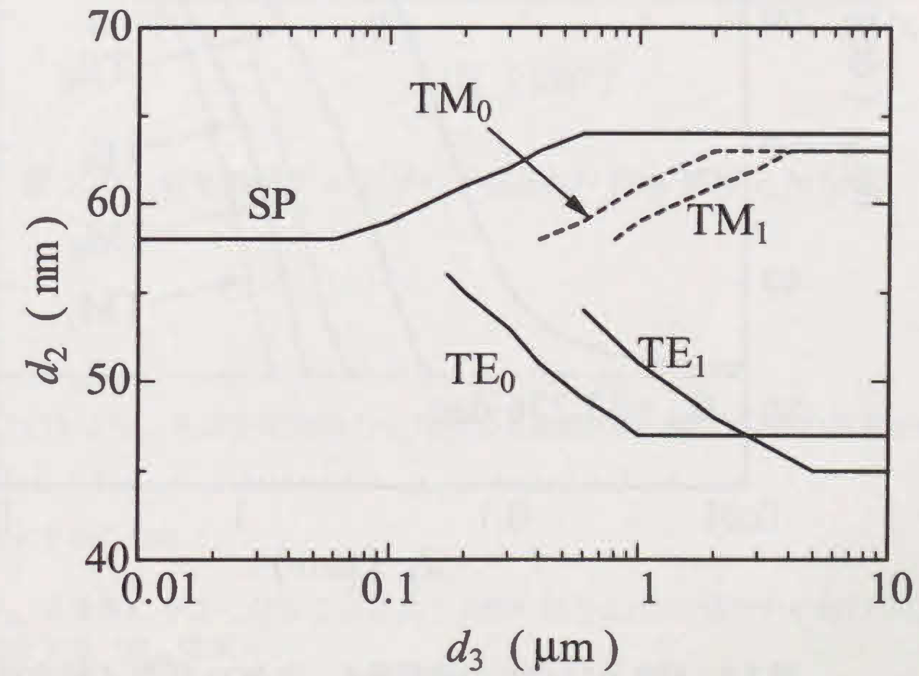


図 3.8　SPP 及び GW 励起に適した銀膜厚 d_2

図 3.7 の結果から，GW による I_c は，$TM_{0,1\text{-}x}$ を除いて d_3 を大きくするにつれてほぼ単調減少していることがわかる。特に，TE_0 に対する I_c は，$d_3 = 10$ μm の時 0.25 W/cm^2 となり，非常に小さい値となった。$TM_{0,1\text{-}x}$ では d_3 に対して I_c が極大値をとり，SPP では，d_3 が大きくなるにつれ I_c は一定値をとることがわかった。

次に図 3.7 のような結果になった理由を考える。そのために SPP や GW の線形応答時 ATR 信号，特に SPP，GW の励起角 θ_{dip} （ATR 信号のディップが極小となる入射角）とディップの半値幅Δに注目する。まず，線形応答時における SPP，GW の励起角 θ_{dip} （ATR 信号のディップが極小となる入射角）の PDA 膜厚 d_3 依存性を図 3.9 に示す。ここで，θ_{13} は媒質 1（プリズム）と 3（PDA）で決まる全反射角，θ_{14} は媒質 1（プリズム）と 4（空気）で決まる全反射角である。図 3.9 から，それぞれの GW に対して $\theta_{dip}=\theta_{14}$ となる PDA 膜厚 d_3 では，GW のカットオフが生じることがわかる。この時の d_3 を $d_{3\,\text{cut-off}}$ とすると $d_3 < d_{3\,\text{cut-off}}$ ではその GW は存在しない。また，SPP ではカットオフは存在しないが，SPP を表す曲線と θ_{13} が等しくなる $d_3 = 0.360$ μm を境界として，PDA 内の深さ方向に対する電磁界分布が，$d_3 > 0.360$ μm では減衰的だが，$d_3 < 0.360$ μm では伝搬的であることなどがわかる。

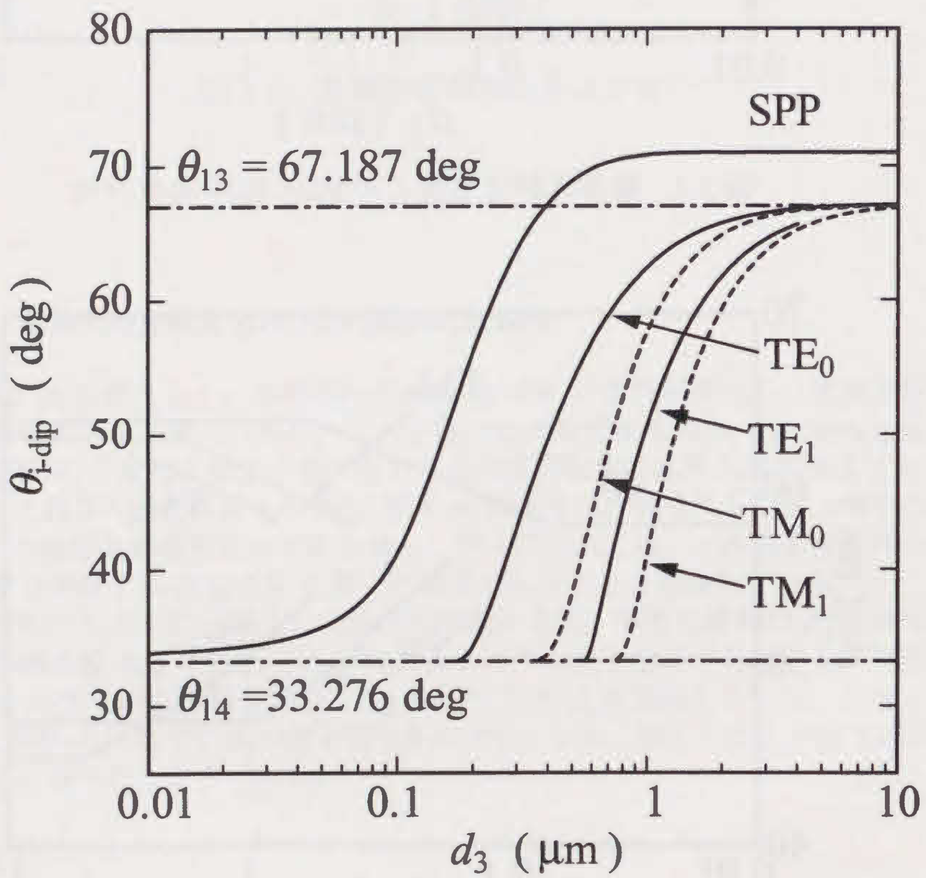


図 3.9　SPP 及び GW の励起角 $\theta_{\text{i-dip}}$ の PDA 膜厚 d_3 依存性

次に，ディップの半値幅Δの PDA 膜厚 d_3 依存性を図 3.10 に示す。図 3.10 から GW のΔは d_3 が大きいと，非常に小さくなることがわかる。Δが小さいほど SP や GW の伝搬距離は長くなる。[9)]

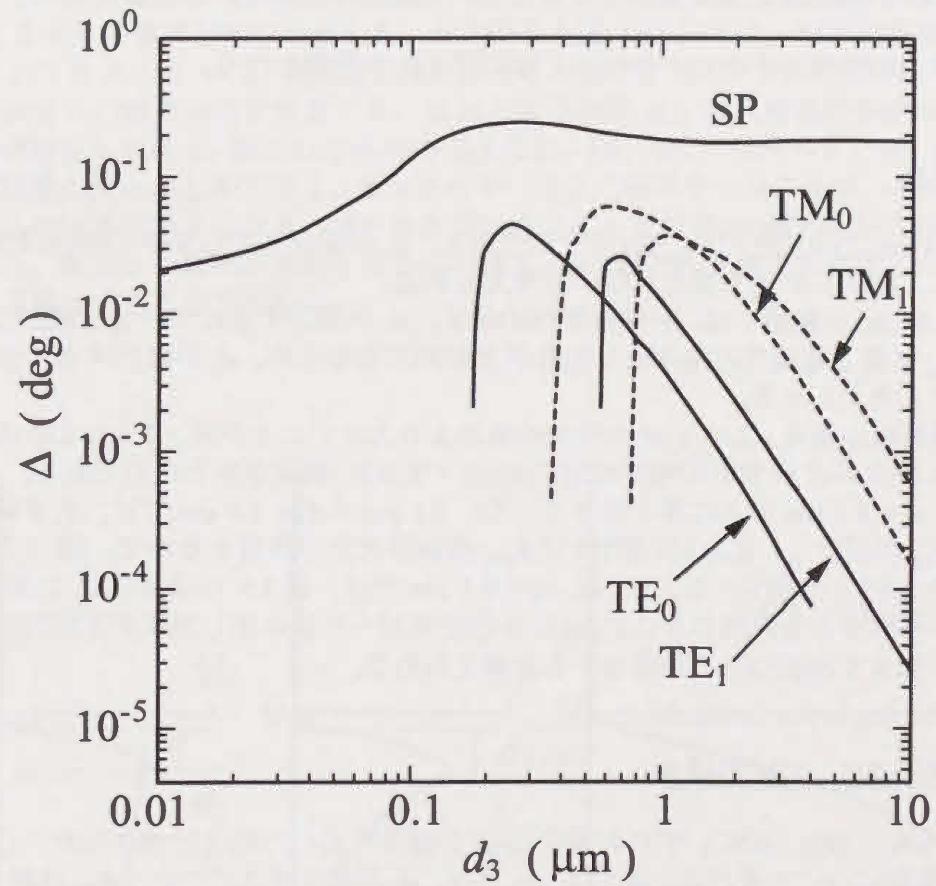


図 3.10　ATR 信号ディップの半値幅Δの PDA 膜厚 d_3 依存性

図 3.9，3.10 より，光双安定現象の I_c を決める要因には，次の３つの効果があると考えられる。

d_3 が減少するにつれて，

(1) θ_{dip} が急激に小さくなることにより PDA 内の $|E_x(z)|$ が増加する代わりに $|E_z(z)|$ が減少する（θ_{dip} 効果）

(2) θ_{dip} が θ_{14} に近づき，電磁界分布は光損失の無い空気側へ大きく浸み出すように

なるため，SPP の伝搬距離が延びる（これに伴ってΔが小さくなる）とともに PDA 内の$|E_z(z)|$が増加する（Δ効果）

(3) 電磁界分布の空気側への浸み出しが増える。SPP 又は GW の光エネルギーが PDA 内で閉じ込められる割合が減少するため，PDA 内の屈折率が変化しても SPP 特性に与える影響が小さくなる。（電磁界の浸み出し効果）

以上の３つの効果を中心に，各モード毎に図 3.7 の考察を行う。

SPP の場合

d_3> 1.0 μm では SPP のθ_{dip}やΔが一定であり，d_3 が変化しても SPP の特性は変化しないために，図 3.7 の I_c も変化しないと考えられる。

d_3 < 1.0 μm の範囲では，z-非線形性の場合，d_3 が減少するにつれ I_c は増加した。これは θ_{dip} 効果と電磁界の浸み出し効果が支配的になるため，d_3 が減少するにつれ I_c が増加すると考えられる。

x-非線形性の場合，I_c は z-非線形性の場合より大きいことが図 3.7 よりわかる。これは，PDA 内における SPP の電界成分に$|E_x(z)| < |E_z(z)|$の関係があるためである。

また，d_3 = 0.1 μm で I_c は最小値をとった。0.1 μm < d_3 < 1.0 μm では，d_3 が減少するにつれθ_{dip} が減少し，$|E_z(z)|$が増加するθ_{dip} 効果が大きく作用するので，図 3.7 のように d_3 とともに I_c は減少する。しかし d_3 < 0.1 μm では，図 3.9 のように d_3 に対するθ_{dip} の変化が小さくなり，代わりに$|E_z(z)|$分布の空気側への浸み出し効果が支配的になるため，d_3 が減少するにつれ I_c が増加すると考えられる。

$TM_{0\text{-}z}$-GW，$TM_{1\text{-}z}$-GW の場合

$TM_{0\text{-}z}$-GW，$TM_{1\text{-}z}$-GW いずれの場合も d_3 が減少するにつれ I_c は増加した。ここでは $TM_{0\text{-}z}$ の場合について述べる。d_3 >0.6 μm では，d_3 が減少するにつれてθ_{dip} は減少，Δは増加するため，$|E_z(z)|$が減少する。d_3 <0.6 μm では，d_3 と共にΔが減少するのでΔ効果によって$|E_z(z)|$が増加する。しかし SPP-z の(3)と同様，電磁界の浸み出し効果が支配的なので I_c の増加率は減少するものの結果的に I_c は増加すると考えられる。

$TM_{0\text{-}x}$-GW，$TM_{1\text{-}x}$-GW の場合

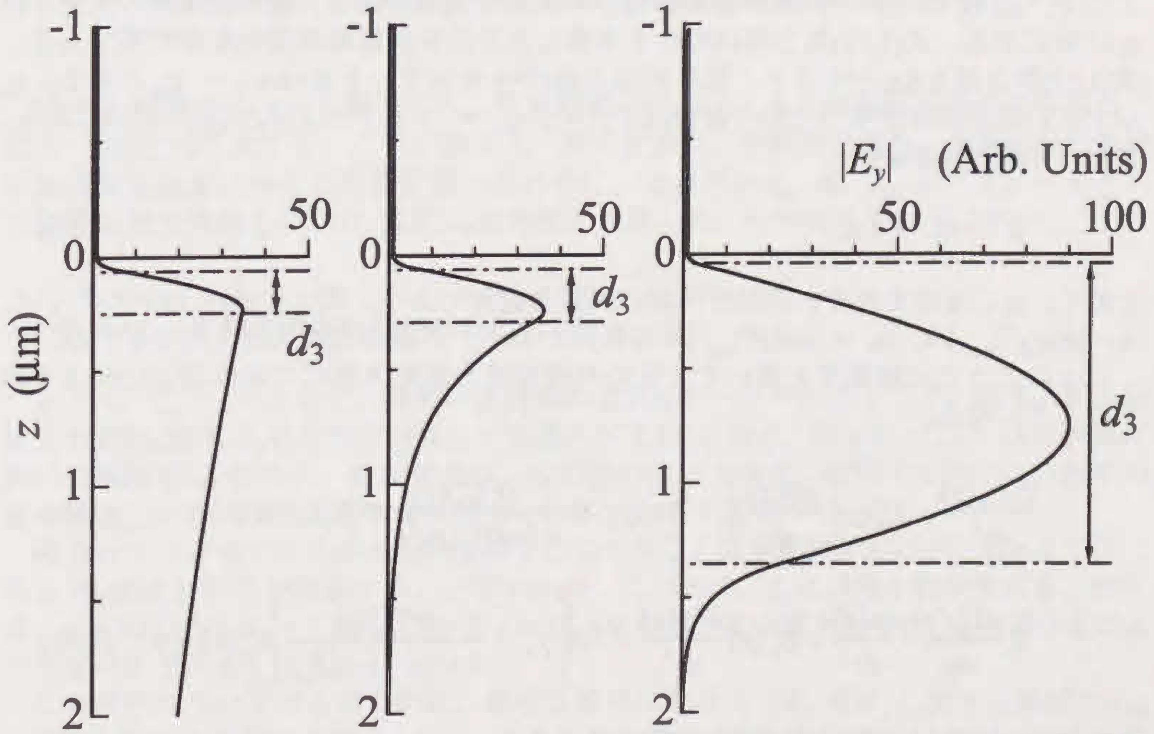
いずれも I_c の変化の様子は同様なので，$TM_{0\text{-}x}$-GW の場合について述べる。d_3 が減少すると，d_3 >3 μm では I_c が増加し，d_3 <3 μm では減少した。d_3 >3 μm ではΔ効果が大きいと考えられるが，d_3 <3 μm ではθ_{dip} 効果が支配的になるため I_c は極大値をとると考えられる。

TE_0-GW，TE_1-GW の場合

TE_0-GW，TE_1-GW のいずれの場合も d_3 が減少するにつれ I_c は増加した。これは d_3 が減少するにつれて電磁界の浸み出し効果が支配的であるためと考えられる。

この他，SPP の I_c が一番大きく，次が TM-GW の I_c，そして TE-GW の I_c が最も小さいこと，さらに高次より低次の GW を用いた方が I_c は小さくなることが図 3.7 からわかる。空気側へのこれらのことも電磁界の浸み出し効果が原因である。

以上のように使用する SPP や GW によって多少の違いはあるが，主として電磁界の浸み出し効果が光双安定現象に大きく影響していると考えられる。ここで，d_3 の値によってどの程度電界分布が変化するか調べるために，例として TE_0-GW における３種類の d_3 に対する電界分布を計算した。その結果を図 3.11 に示す。計算の条件として，図 3.5 中の E 点のような，光双安定現象が生じる臨界状態で，かつ反射率が 0 になる入射光強度での電界分布を計算した。なお，電界強度 $|E_y|$ は入射電界強度が 1 になるように規格化してある。図 3.11 からわかるように，TE_0-GW のエネルギーは，d_3=0.18μm では電磁界の浸み出しが大きく，光エネルギーは主に空気中を伝わるが，d_3=1.30μm では閉じ込め効果が大きくなり，光エネルギーのほとんどが PDA 膜内を伝わるようになる。また，閉じ込め効果が大きくなるにつれて PDA 膜内の光強度が大きくなり，その結果 I_c が減少することがわかる。



(a)　d_3=0.18 μm　　(b)　d_3=0.24 μm　　(c)　d_3=1.30 μm

図 3.11　TE_0-GW の電界分布

3－4. 線形光損失，非線形光損失，非線形項の飽和を考慮した計算機シミュレーション

この節では，より現実に近い条件下での光双安定現象を解析するために，非線形光学媒質における線形光損失，非線形光損失，非線形項の飽和を考慮した計算機シミュレーションを行う。計算を簡単にするために，この節では $\mathrm{TE_0}$-GW を用いた場合の光双安定現象のみを取り扱う。

3－4－1　線形光損失，非線形光損失，非線形項の飽和を考慮した非線形波動方程式

線形光損失，非線形光損失，非線形項の飽和を考慮するために，非線形光学媒質の比誘電率を式(3.12)にならって次のように置く。[10~13]

$$\varepsilon_n = \varepsilon_{lr} - \mathrm{i}\varepsilon_{li} + \frac{\alpha U_n^2(z)}{1 + \alpha U_n^2(z)/\varepsilon_{\mathrm{sat}}} \tag{3.52}$$

ここで，ε_{lr}, ε_{li} はそれぞれ線形複素誘電率の実部と虚部である。線形光損失の大きさは ε_{li} に対応する。式(3.52)第３項は飽和を考慮した自己誘起誘電率変化を示す項である。式(3.52)第３項を $\Delta\varepsilon_{\mathrm{n}}$ とすると，電界振幅 $U_{\mathrm{n}}(z)$ が十分大きいときは $\Delta\varepsilon_{\mathrm{n}} = \varepsilon_{\mathrm{sat}}$ となる。$\varepsilon_{\mathrm{sat}}$ が大きいほど非線形項の飽和の影響は小さく，$\varepsilon_{\mathrm{sat}} = \infty$ とすると式(3.12)と同様になる。また，非線形係数 α を

$$\alpha = \alpha_{\mathrm{r}} - \mathrm{i}\,\alpha_{\mathrm{i}} \tag{3.53}$$

と置く。α_{r}，α_{i} はそれぞれ非線形係数の実部と虚部である。式(3.12)からわかるように，$\alpha_{\mathrm{r}} = 3\mathrm{Re}[\chi^{(3)}{}_{yyyy}]/4$，$\alpha_{\mathrm{i}} = 3\mathrm{Im}[\chi^{(3)}{}_{yyyy}]/4$ の関係がある。非線形光損失は α_{i} に対応する。

以上のように比誘電率を置いたときの非線形連立波動方程式は式(3.29),(3.30)より以下のようになる。

$$\frac{d^2U_n(z)}{dz^2} - U_n(z)\left[\frac{d\phi(z)}{dz}\right]^2 - \mathrm{Re}\left[\gamma_n{}^2 - \frac{\alpha' U_n^2(z)}{1+\alpha U_n^2(z)/\varepsilon_{\mathrm{sat}}}\right]U_n(z) = 0 \tag{3.54}$$

$$2\frac{dU_n(z)}{dz}\frac{d\phi(z)}{dz} + U_n(z)\frac{d^2\phi(z)}{dz^2} - \mathrm{Im}\left[\gamma_n{}^2 - \frac{\alpha' U_n^2(z)}{1+\alpha U_n^2(z)/\varepsilon_{\mathrm{sat}}}\right]U_n(z) = 0 \tag{3.55}$$

さらに次のように１階の連立微分方程式にする。

$$\frac{dU_n(z)}{dz} = \eta(z) \tag{3.56}$$

$$\frac{d\eta(z)}{dz} = \left\{\zeta^2(z) + \mathrm{Re}\left[\gamma_n{}^2 - \frac{\alpha' U_n^2(z)}{1+\alpha U_n^2(z)/\varepsilon_{\mathrm{sat}}}\right]\right\}U_n(z) \tag{3.57}$$

$$\frac{d\phi(z)}{dz} = \zeta(z) \tag{3.58}$$

$$\frac{d\zeta(z)}{dz} = -2\frac{\eta(z)\zeta(z)}{U(z)} + \mathrm{Im}\left[\gamma_n{}^2 - \frac{\alpha' U_n^2(z)}{1+\alpha U_n^2(z)/\varepsilon_{\mathrm{sat}}}\right] \tag{3.59}$$

ここで，減衰定数 γ_{n} は

$$\gamma_{\mathrm{n}} = k_0\sqrt{\beta^2 - (\varepsilon_{lr} - \mathrm{i}\varepsilon_{li})} \tag{3.60}$$

で，α' は表 3.1 と同様で，

$$\alpha' = k_0{}^2\alpha \tag{3.61}$$

である。

3－4－2　線形光損失，非線形光損失，非線形項の飽和を考慮した計算機シミュレーション

図 3.2 の構造について計算する。線形誘電率の実部，３次非線形感受率の実部などは３－３節と同じとする。この小節では，線形光損失，非線形光損失，非線形項の飽和が光双安定現象に与える影響を調べるために，それぞれ ε_{li}，α_{i}，$\varepsilon_{\mathrm{sat}}$ をパラメータとした臨界入射光強度 I_{c} の PDA 膜厚 d_3 依存性を計算した。その結果を以下に示す。

3－4－2(a)　線形光損失のみがあるとき

$\alpha_{\mathrm{i}} = 0$，$\varepsilon_{\mathrm{sat}} = \infty$ とおく。線形比誘電率の虚部 ε_{li} をパラメータとして，臨界入射光強度 I_{c} の PDA 膜厚 d_3 依存性を計算した結果を図 3.12 に示す。図 3.13 に図 3.12 の計算に用いた銀膜厚 d_2 を示す。ATR 信号は，ε_{li} の値によって大きく変化するので，反射率の最小値 $R_{\min}$ が 0 になるような d_2 の値も ε_{li} の値によって異なっている。

図 3.12 より，$\varepsilon_{li} = 0$ では，d_3 が増加するにつれて I_{c} は単調減少するが，$\varepsilon_{li} \neq 0$ では，ある d_3 値以上で I_{c} が増加することがわかる。このため，I_{c} には最小値が現れる。例えば，$\varepsilon_{li} = 10^{-5}$ では $d_3 = 3.0\ \mu\mathrm{m}$ のとき $I_{\mathrm{c}} = 3.2\ \mathrm{kW/cm^2}$ で最小値となった。I_{c} の最小値は ε_{li} が大きいほど大きくなる。

この理由について考えるために，線形応答時における $\mathrm{TE_0}$-GW に対する励起角 θ_{dip} の PDA 膜厚 d_3 依存性を図 3.14 に，このときの ATR 信号ディップにおける半値幅 Δ の PDA 膜厚 d_3 依存性を図 3.15 に示す。図 3.14 のように，θ_{dip} は ε_{li} に影響されないことがわかる。一方 Δ は，図 3.15 のように d_3 が大きいほど ε_{li} の影響を受け，$\varepsilon_{li} = 0$ では d_3 が増加すると Δ は単調減少したのに対し，$\varepsilon_{li} \neq 0$ であると Δ は一定値になった。d_3 が大きいときの Δ の値は ε_{li} の値と共に大きくなった。d_3 を大きくすると PDA 膜内に GW のエネルギーが閉じ込められるようになるが，$\varepsilon_{li} \neq 0$ では，それに伴って PDA 膜内での線形光損失の影響が大きくなるので，$\mathrm{TE_0}$-GW 伝搬距離が延びずに PDA 膜内の光強度が大きくならないことを示している。つまり，d_3 の変化に応じて GW の閉じ込め効果

が変化し，d_3が小さければ導波層周辺の媒質による光損失が，d_3が大きければ導波層内部の光損失が光双安定現象を発生させにくくしていることになる。

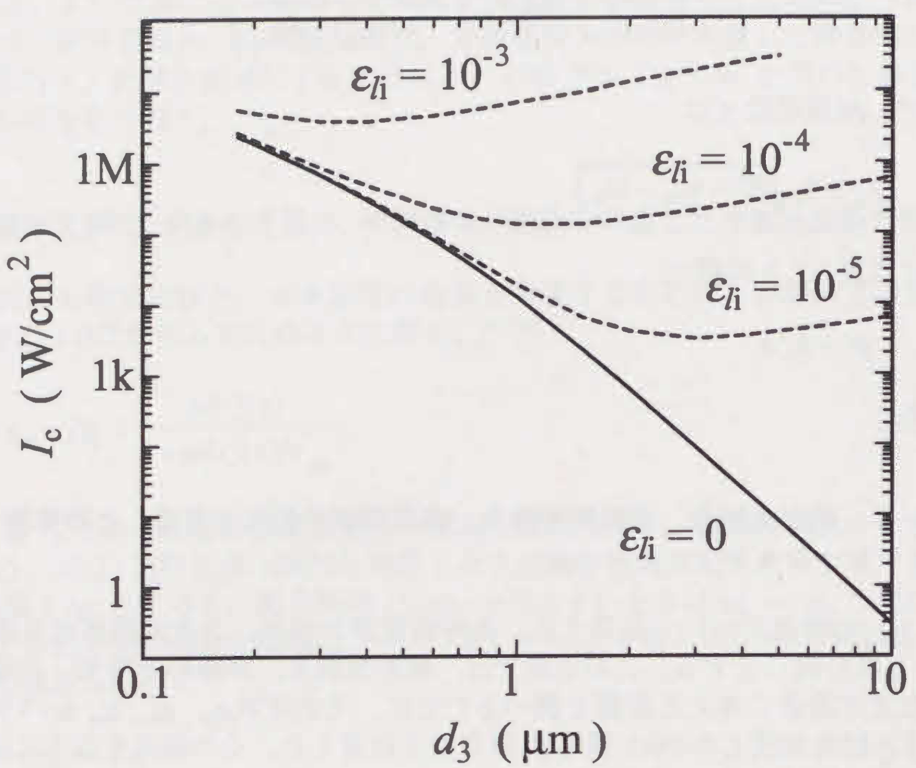


図 3.12　線形損失があるときの臨界入射光強度 I_c の PDA 膜厚 d_3 依存性

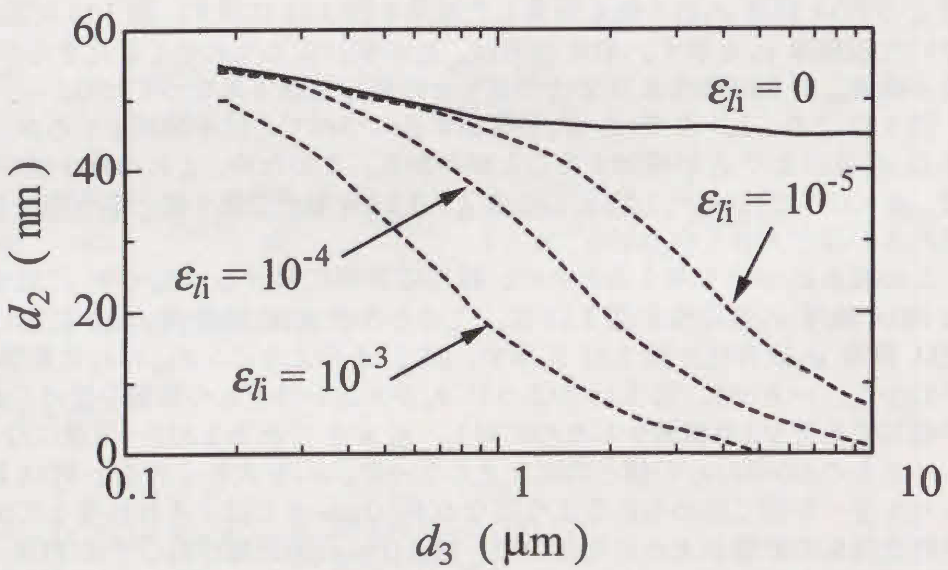


図 3.13　TE$_0$-GW 励起に適した銀膜厚 d_2

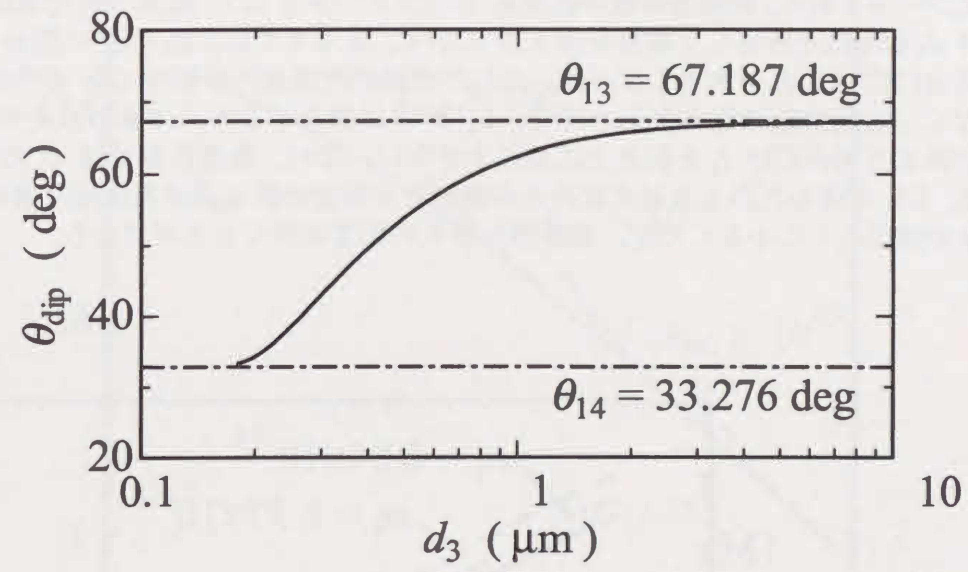


図 3.14　TE$_0$-GW の励起角 θ_{dip} の PDA 膜厚 d_3 依存性

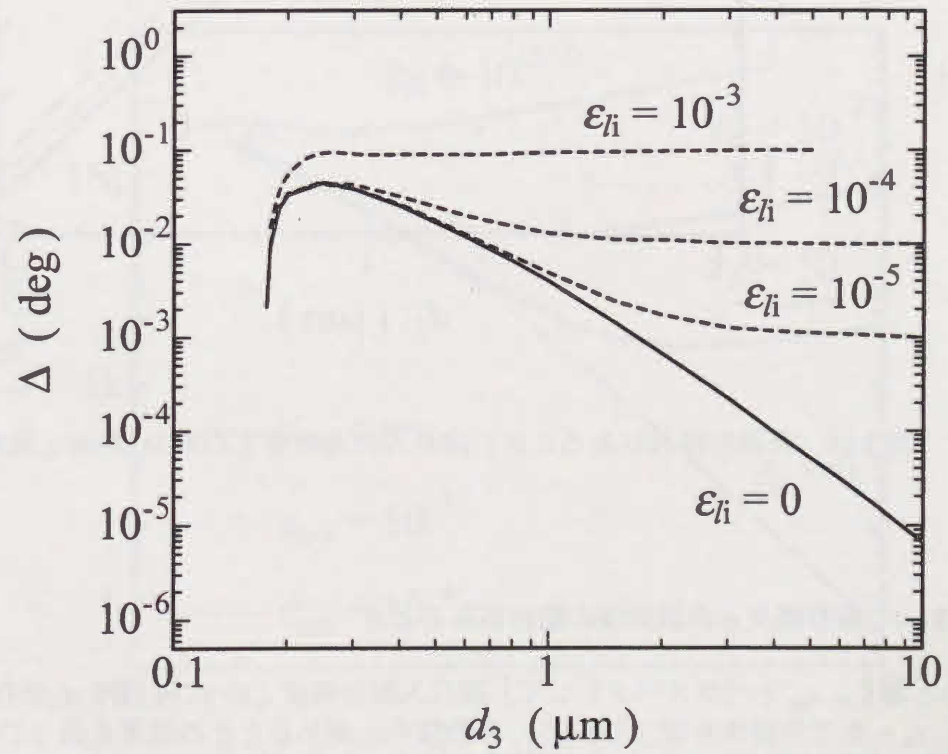


図 3.15　TE$_0$-GW における ATR 信号ディップの半値幅Δの PDA 膜厚 d_3 依存性

3-4-2(b)　線形損失と非線形光損失があるとき

$\varepsilon_{sat}=\infty$とおく。非線形係数の虚部α_iをパラメータとして，臨界入射光強度I_cのPDA膜厚d_3依存性を計算した結果を図3.16に示す。$\alpha_i\neq 0$では，d_3やε_{li}に関わらず$\alpha_i=0$の場合に比べてI_cが大きくなった。これは非線形光損失の影響はGWの特性とは関わりなく，自己誘起誘電率変化と同様，U_n^2のみに依存するためである。そのためα_iの値で決まる割合だけI_cを引き上げるにすぎない。なお，数値計算ではα_iの値をα_rの1/10，1/5に選んだが，入射光波長を非線形光学媒質の非共鳴波長領域に選択することでα_iの値はさらに小さくでき，非線形光損失の影響を除くことができる。

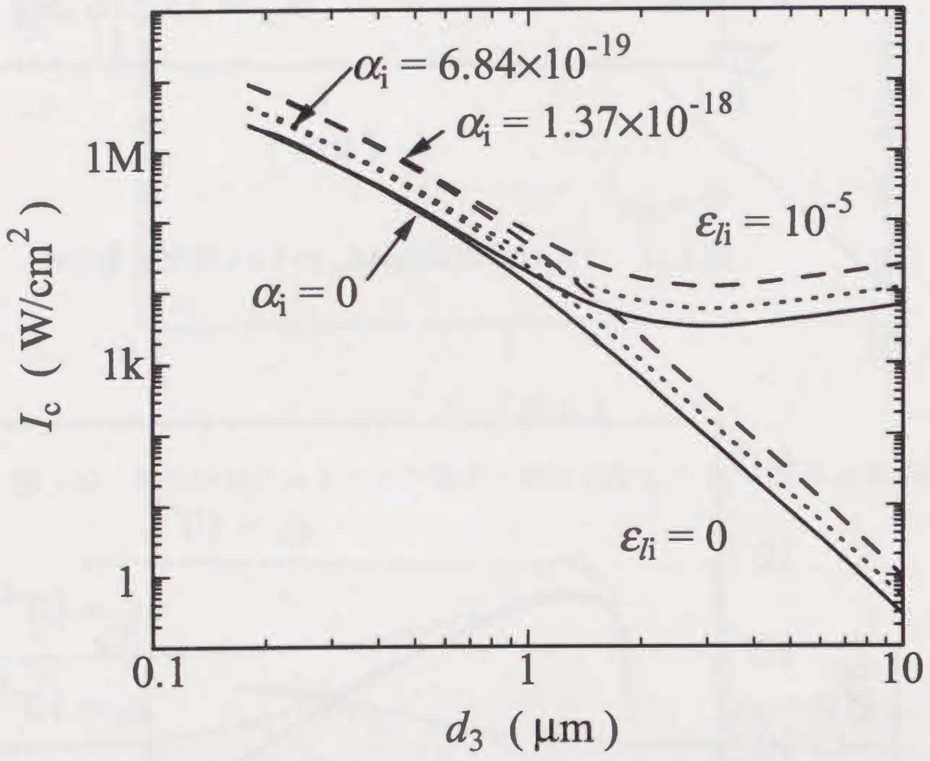


図3.16　非線形損失があるときの臨界入射光強度I_cのPDA膜厚d_3依存性

3-4-2(c)　線形損失と非線形項の飽和があるとき

$\alpha_i=0$とおく。ε_{sat}をパラメータとして，臨界入射光強度I_cのPDA膜厚d_3依存性を計算した。$\varepsilon_{li}=0$での結果を図3.17(a)に，有限値のε_{li}があるときの結果を図3.17(b)に示す。なお，ε_{sat}をパラメータとした非線形比誘電率$\Delta\varepsilon_n$のU_n依存性は図3.18に示す通りである。

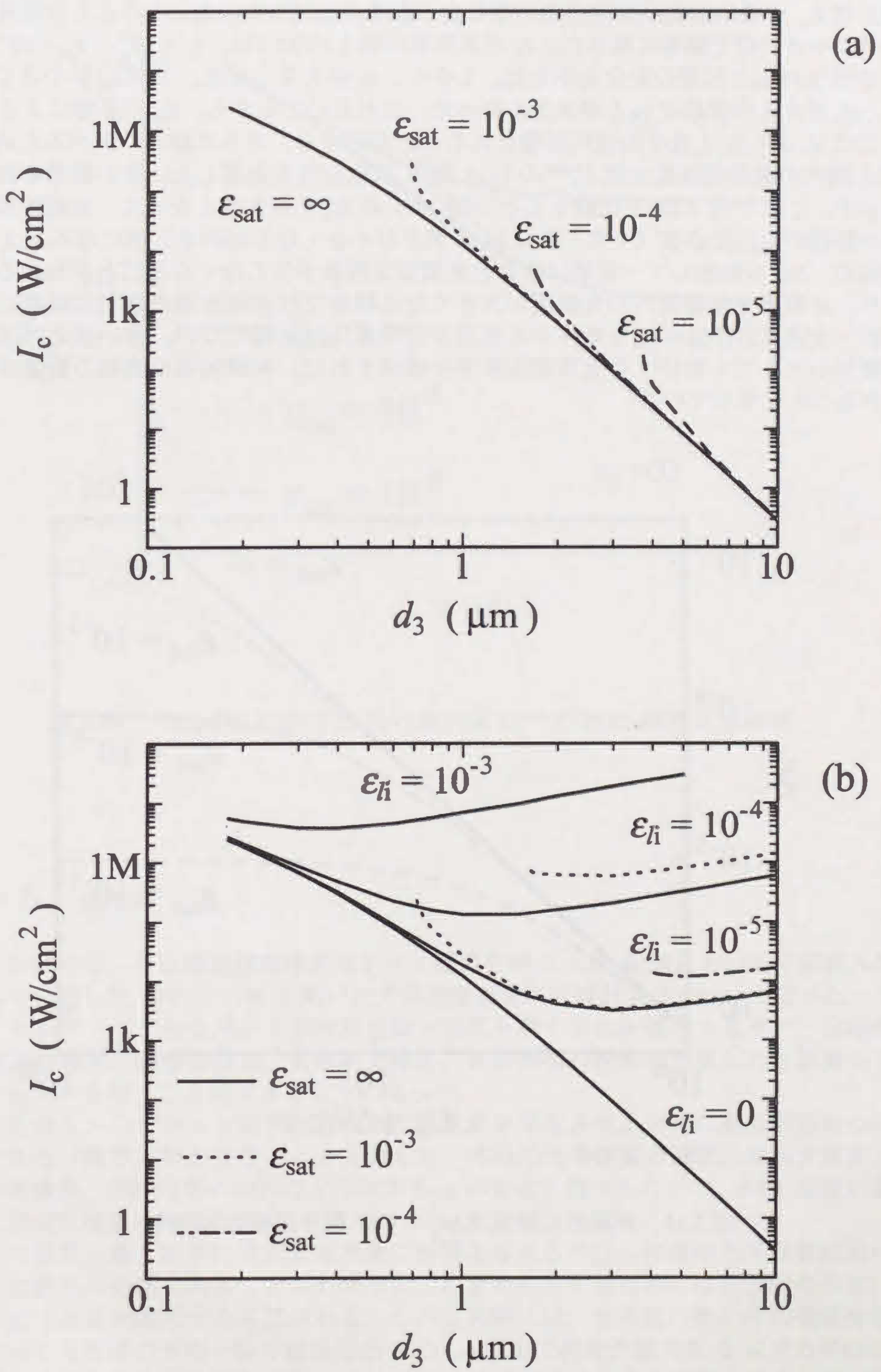


図3.17　非線形項の飽和があるときの臨界入射光強度I_cのPDA膜厚d_3依存性

図3.17(a)から，d_3が大きいとI_cはε_{sat}に依存しないが，d_3が減少するにつれてI_cの増加率が増え，最後には光双安定現象が生じなくなることがわかった。このような現象はε_{sat}の値が小さいほど顕著に現れた。ε_{li}が有限値の図3.17(b)では，$\varepsilon_{li}=10^{-5}$で$\varepsilon_{sat}=10^{-3}$の時には図3.16(a)と同様の変化を示した。しかし，ε_{li}が大きくなる，又はε_{sat}が小さくなると，d_3が大きい領域でもI_cが大きくなった。これらのことから，ε_{sat}の影響によるI_cの変化はd_3よりもI_c自身の値に影響されることがわかる。さらに詳しく調べるために，PDA膜内の電界振幅最大値U_n^{max}のPDA膜厚d_3依存性を計算した。その結果を図3.19に示す。これと図3.18を比較すると，図3.19のU_n^{max}が大きくなって，非線形項の飽和の影響が現れ始める（つまり図3.18の傾きが小さくなり始める）値になるとI_cが増え始め，$\Delta\varepsilon_n$が飽和して一定値になると光双安定現象が生じなくなることがわかる。つまり，非線形光学媒質内の光強度が大きくなる構造では非線形項の飽和は顕著に現れるが，光強度が小さくても動作する光双安定現象には影響しない。言い換えれば，光強度が小さくても動作する光双安定素子を構成すれば，非線形項の飽和の影響は回避できることを示している。

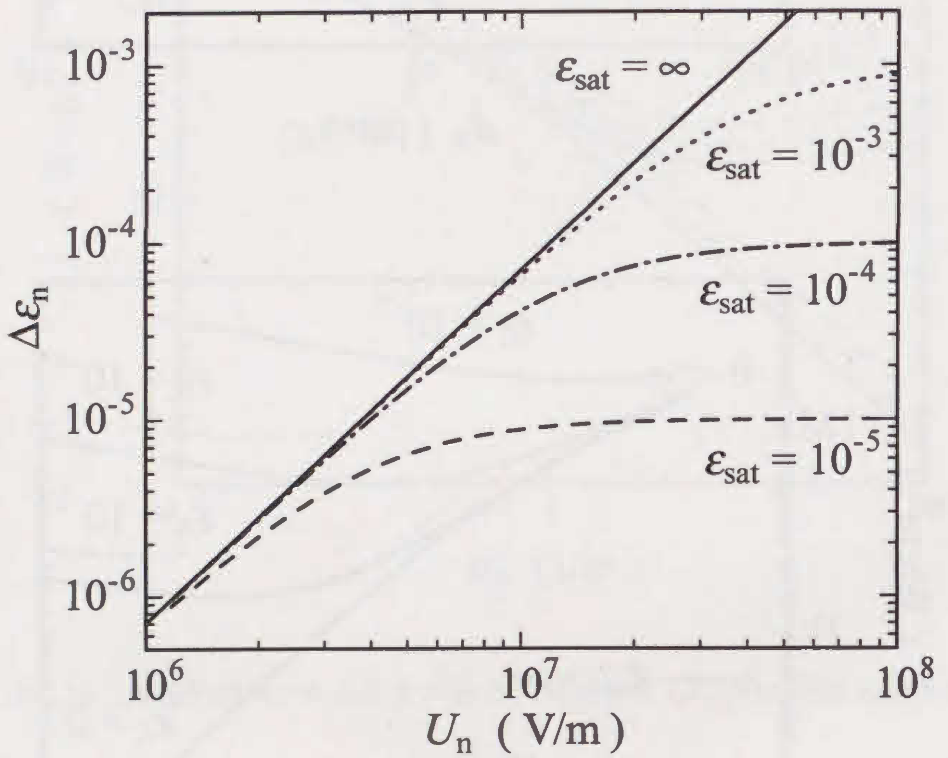


図3.18　非線形比誘電率$\Delta\varepsilon_n$のGW電界振幅U_n依存性

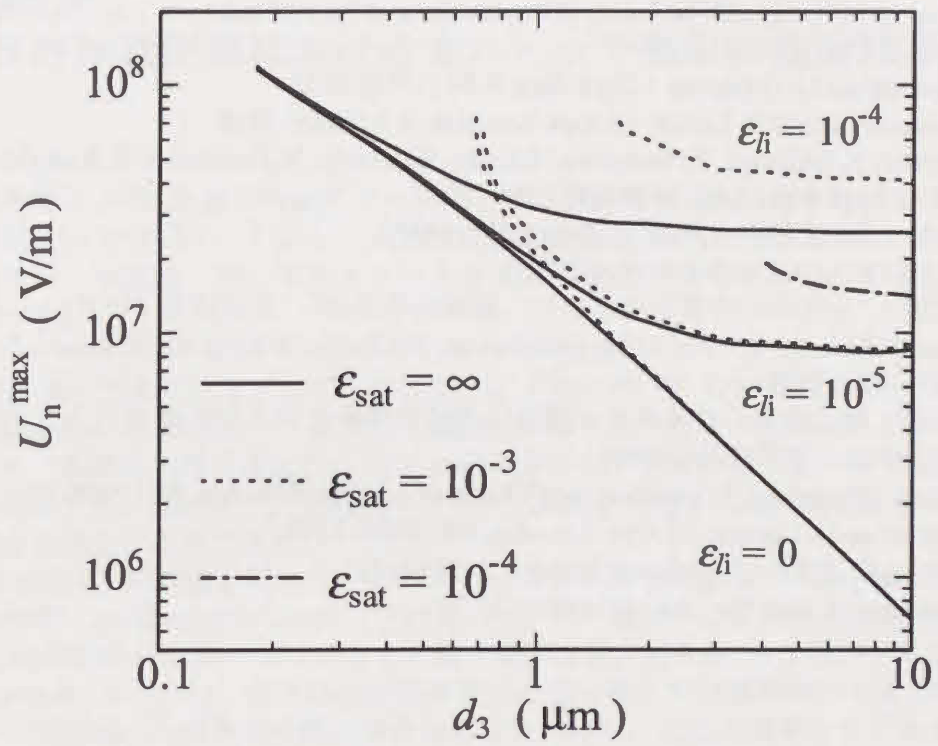


図3.19　TE_0-GWにおけるU_nの最大値U_n^{max}のPDA膜厚d_3依存性

3-5　まとめ

この章では，自己誘起誘電率変化を示す媒質を持つATR配置において平面波入射によって励起したSPPやGWを用いた光双安定現象の数値計算法について述べた。ルンゲ・クッタ・ジル法を用いて非線形波動方程式を解く方法を採用する事で，非線形光学媒質の膜厚，線形光損失，非線形光損失，非線形項の飽和を考慮した計算機シミュレーションを行うことができるようになった。

またシミュレーション結果から光双安定現象を発生させるために最低限必要な光強度である「臨界入射光強度I_c」を定義した。非線形光学媒質の膜厚，線形光損失，非線形光損失，非線形項の飽和などに対するI_cの変化を調べることで，ATR配置における光双安定現象の特性を明らかにした。

その結果，最も顕著に光双安定現象に影響を与えるのは，非線形光学媒質における線形光損失の存在であることがわかった。I_cを小さくするためには光吸収の小さい非線形光学媒質を選択する必要がある。しかし実際には，光吸収の無い非共鳴波長領域であっても密度の不均一性や表面凹凸などにが原因で線形光損失を0にする事はできない。そのため線形光損失があってもI_cを小さくできるような構造上の工夫が必要となる。その方法については次章で述べる。

＜参考文献＞

1) T.Okamoto, M.Haraguchi, M.Fukui, H.Kawakami and S.J.Al-Bader：J. Phys. Soc. Jpn. **62** (1993) 918.
2) G.S.Agarwal and S.D.Guputa：Phys. Rev. B **34** (1986) 5239.
3) V.J.Montemayor and R.T.Deck：J. Opt. Soc. Am. B **2** (1985) 1010.
4) T.Kanetake, K.Ishikawa, T.Hasegawa, T.Koda, K.Takeda, M.Hasegawa, K.Kubodera and H.Kobayashi：Appl. Phys. Lett. **54** (1989) 2287.
5) 篠原能材："数値解析の基礎"，日新出版 (1987).
6) HOYA OPTICAL GLASS DATA SHEETS.
7) 工藤恵栄："分光学的性質を主とした　基礎物性図表"，共立出版 (1972).
8) C.C.Hsu, Y.Kawabe, Z.Z.Ho, N.Peyghambarian, J.N.Polky, W.Krug and E.Miao：J. Appl. Phys. **67** (1990) 7199.
9) 高林正和：博士論文 "対称スラブ構造における導波光および表面ポラリトン"，徳島大学大学院工学研究科 (1996).
10) T. Peschel, P.Dannberg, U.Langbein and F.Lederer：J. Opt. Soc. Am. B**5** (1988) 29.
11) U.Trutschel and F.Lederer：J. Opt. Soc. Am. B**5** (1988) 2539.
12) S.J.Al-Bader：IEEE J. Lightwave Technol. **7** (1989) 717.
13) S.J.Al-Bader：J. Opt. Soc. Am. B**7** (1990) 357.

第四章
全反射減衰配置における光スイッチ現象の理論計算 [1]

前章では ATR 配置に無限のビーム幅を持つ平面波を入射したときに生じる光双安定現象について述べた。しかし，実際の実験では通常ガウスビームを用いる。そこでこの章では，有限幅，特にガウスビームを入射したときに生じる光スイッチ現象について述べる。

ATR 法に代表されるプリズムカップリング法を用いた GW 励起はモード結合波理論（Coupled mode theory）[2] を使って理論的に取り扱うことができる。この方法では，プリズム底面に入射する光から GW へのエネルギー伝達の様子を GW の伝搬方向に沿って計算する。これより，有限幅ビームを入射したときの GW の伝搬方向に対する電界分布を知ることができる。

Ulrich[3]はこの方法を用いて，ガウスビームを入射したときの入射光から導波光への結合効率（coupling efficiency）を計算した。その結果，GW の伝搬距離 l_m と入射ビーム径 D_i の関係が $l_m/D_i = 0.74$ のとき，結合効率は最大値 0.80 になることを示した。

Carter & Chen [4] は，自己誘起屈折率変化を示す媒質中を導波層とする ATR 配置で，GW と有限幅の入射光の非線形結合波解析を行った。主たる結果をまとめると，(i)GW 光強度に光スイッチ現象が生じること，(ii)有限幅の入射光によって励起される GW は，縦型フィードバック（longitudinal feedback : GW の伝搬方向に対して生じるフィードバック）機構がないので光双安定現象は生じないこと，(iii)平面波入射で取り扱うことは GW にとって自動的に縦フィードバックを受けることになるために光双安定現象が生じること，である。彼らは簡単のために入射光にボックスビームを用いた。

Stegeman ら [5]は，ガウスビーム入射で同様の計算を行い，ガウスビーム入射においても光スイッチング現象などの非線形効果が現れることを示した。彼らは局所的非線形性（電子的非線形性）と，非局所的非線形性（熱等による屈折率変化）を考慮して，入射光強度に対する結合効率の計算を行った。これによって，非局所的非線形性の場合のように縦型フィードバックを与えれば光双安定現象が生じ，そのようなフィードバックがない局所的非線形性に対しては，光スイッチング現象のみしか生じないことが示された。なお，ここでのガウスビームの取り扱いは，強度分布はガウス形だがビームの広がりがない平行光であるとしている。また，計算に用いている入射ビーム径と導波モードの伝搬距離の関係は，線形応答時での結合効率が大きくなるような値のみを採用している。

三章で示したように ATR 配置で励起した GW を用いた光双安定現象では，導波層に線形光損失があると臨界入射光強度 I_c が大きくなってしまう。これは有限幅の入射光に対して生じる光スイッチ現象についても同様であると考えられる。

Takabayashi ら [6] は，導波層の周りを同じ屈折率の材料で挟んだ対称導波路構造を用いれば導波層の膜厚を小さくしても GW が存在することができ，導波層が光損失の大きな材料であっても伝搬距離が延びることを理論と実験で示した。この特性を用いれば，導波モードの長距離伝搬化に伴う導波層内の光強度の増強効果によって，光吸収損失のある非線形光学材料を導波層に用いても，光スイッチング現象の低入力光強度動作が可能であると考えられる。しかし三章で述べたように，GW の長距離伝搬化に伴って ATR 信号ディップの半値幅Δが小さくなるので，入射光のビーム広がりが光ス

イッチ現象に影響を与えることが予想される。また，伝搬距離が延びることに対して，入射光のビーム径をいくらにすべきかという問題がある。しかし導波層厚さ，入射光のビーム径，ビーム広がり角が光スイッチ現象に与える影響について調べられた例はない。

この章では 対称導波路構造を持つ ATR 配置で局所的非線形性によって生じる光スイッチ現象に注目し，ビーム広がり角を考慮した計算方法の確立と，光スイッチ現象の数値計算について述べる。さらにそのシミュレーション結果から導波層厚さ，入射光のビーム径，ビーム広がり角が光スイッチ現象に与える影響について明らかにすることを目的とする。

4－1　ガウスビーム入射における光スイッチ現象の理論計算

この節では，光スイッチ現象の数値計算に必要な結合波方程式を示し，その数値解法について述べる。

計算に用いる対称 3 層構造を持つ ATR 配置を図 4.1 に示す。各媒質の屈折率を n_p, n_g, n_f, n_s 及び膜厚を d_g, d_f とおく。添え字の p, g, f, s はそれぞれプリズム(prism)，ギャップ(gap)，導波層(guided film)，基板（substrate）を表す。励起される GW の電界をマクスウェル方程式の解として次式のようにおく。なお，TM-GW は電界成分が 2 つになり複雑になるので，簡単化のためここでは TE_0-GW を対象にして議論する。

$$E(x,z)=\frac{1}{2}\xi(z)A(x,z_0)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\varphi(x)}+\mathrm{c.c.} \tag{4.1}$$

ここで，x は GW の伝搬方向，z は境界面に垂直な深さ方向を表す。$\xi(z)$ は z 方向に対する GW の電界分布である。ただし，$-1 \le \xi(z) \le 1$ である。$z = z_0$ のとき GW の振幅 $A(x,z)$ は最大値 $A(x,z_0)$をとるとする。$\varphi_{(x)}$ は GW の位相である。

プリズムから入射したガウスビームを，プリズム底面で全反射させる。そのときギャップに発生したエバネセント波を介して GW を励起する。このようなプリズム底面での入射光電界と導波路内の GW の電界との関係を，Carter & Chen の理論 4) に基づき，結合波方程式を用いて表現する。入射光の電界振幅を $E_i(x)$とすると，$A(x,z_0)$は x 方向に伝搬しながら次式に従って変化する。

$$\frac{dA(x,z_0)}{dx}=\alpha_0 E_{\mathrm{i}}(x)\exp\left\{\mathrm{i}[k_{/\!/}x-\varphi(x)]\right\}-\frac{1}{l_{\mathrm{m}}}A(x,z_0) \tag{4.2}$$

$$\varphi(x)=k_0 n_2'\int_{x_s}^{x}\left|A(x',z_0)\right|^2 dx'+k_{\mathrm{m}}x+\varphi_0 \tag{4.3}$$

ここでα_0は入射光と GW の結合係数，l_mは ATR 配置における GW の伝搬距離，k_0は入射光の真空中での波数，$k_{/\!/}$ は図 4.1 の位置 $x = 0$, $z = 0$ における入射光波数の x 方向成分，k_m は線形応答時の GW の波数，n_2'は実効非線形屈折率である。x_s は GW が伝搬し始める位置で，図 4.1 のように入射光の左端にあたる。$x = x_s$での位相$\varphi(x_s)$ を基準とするために$\varphi(x_s) = 0$ とすると，式(4.3)より$\varphi_0 = - k_m x_s$ である。式(4.2)の右辺第一項は入射光からのエネルギー注入による GW 電界の増加を，第二項は光損失やプリズムへ

再放射することによる GW 電界の減衰を表す。また，式(4.3)右辺第一項は自己誘起屈折率変化による GW の位相変化（非線形位相変化）を，第二項は GW が伝搬することによる位相変化（線形位相変化）を表す。

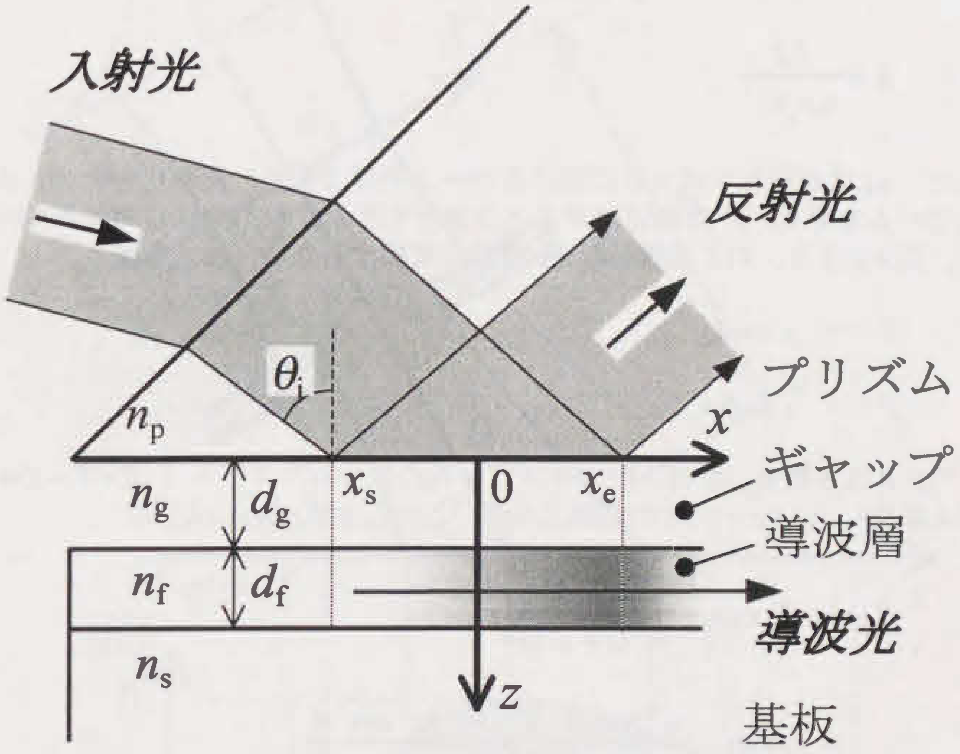


図 4.1　ATR 配置における有限幅入射光による GW 励起

導波層が自己誘起屈折率変化を示す媒質であったとすると，その屈折率 n_f は式(2.10)を書き直して次のように表される。

$$n_{\mathrm{f}}=n_{\mathrm{f0}}+n_2(z)\left|E(x,z)\right|^2 \tag{4.4}$$

ここで n_{f0}，$n_2(z)$はそれぞれ線形屈折率，非線形屈折率である。局所電界 $E(x,z)$は，深さ位置 z に対して$\xi(z)$の電界分布を持ち，GW 励起時では，非線形光学媒質である導波層に GW が閉じ込められる割合が大きいほど，GW は非線形屈折率の効果を強く受けることになる。このような効果を考慮した実効非線形屈折率 n_2'を次式に示す。5)

$$n_2'=\frac{\int_{-\infty}^{\infty}n_2(z)\left|\xi(z)\right|^4 dz}{\left|\int_{-\infty}^{\infty}\xi(z)^2 dz\right|^2} \tag{4.5}$$

入射光電界 $E_i(x)$について考える。図 4.2 に示すような座標系をとったとき，プリズム底面($z=0$)におけるガウスビームの電界分布は次式のようになる。[3]

$$E_i(X,Y,Z) = E_0 \exp\left[-\frac{X^2+Y^2}{w_0^{\,2}(1+iB)}\right] \tag{4.6}$$

$$B = \frac{2Z}{k_0 n_p w_0^{\,2}} \tag{4.7}$$

ここで，w_0 はビームウエストにおけるビーム半径である。簡単化のため，入射光は一次元ビームを考え，X 方向にはガウス分布をするが，Y 方向には電界が均一であるとする。図 4.2 より，XYZ 座標から xyz 座標に変換するため，次式を使う。

$$\begin{aligned} X &\rightarrow x\cos\theta_i \\ Y &\rightarrow 0 \\ Z &\rightarrow x\sin\theta_i + L \end{aligned} \tag{4.8}$$

ここで，θ_iは入射角，L は入射ガウスビームのビームウエスト（$X=Y=Z=0$）とプリズム底面($x=y=z=0$)との距離である。このとき式(4.6), (4.7)は

$$\begin{aligned} E_i(x) &= E_0 \exp\left[-\frac{x^2\cos^2\theta_i}{w_0^{\,2}(1+iB)}\right] \\ &= E_0 \exp\left[-\frac{x^2\cos^2\theta_i}{w_0^{\,2}(1+B^2)}\right]\exp\left[i\frac{Bx^2\cos^2\theta_i}{w_0^{\,2}(1+B^2)}\right] \end{aligned} \tag{4.9}$$

$$B = \frac{2x\sin\theta_i + 2L}{k_0 n_p w_0^{\,2}} \tag{4.10}$$

となる。これらの式からわかるように，$z=0$ 上の電界分布は厳密にはガウス分布ではない。そこで，$z=0$ 上で $E_i(x)=E_0/\mathrm{e}$ を満たす$|x|$の値を $z=0$ 上でのビーム半径とし，$x>0$ のビーム半径を $w_i^{(+)}$，$x<0$ のビーム半径を $w_i^{(-)}$とおく。ここで e は自然対数の底である。$z=0$ 上のビーム直径 D_iは

$$D_i = w_i^{(+)} + w_i^{(-)} \tag{4.11}$$

で定義される。図 4.2 に示すように，入射光のビーム直径 D_iのうち，絞りなどで $x_s \le x \le x_e$ の領域にのみ入射光が照射される場合を考える。このとき $x_s \le x \le x_e$は，入射光と GW の電磁場が結合してエネルギーが GW に伝達される領域であることから，結合領域と呼ぶことにする。図 4.2 のように入射光の Z 軸を中心にとるので，x 軸上での結合領域の大きさは $-x_s+x_e$ となる。$-x_s+x_e \ll D_i$ が成り立つ場合は，Carter & Chen らが取り扱ったボックスビームに相当する。もし$-x_s+x_e$, $D_i\rightarrow\infty$であれば，x に対して入射光の振幅が一定となり電界分布の上では平面波入射と同様になる。しかし $A(-\infty, z_0) = A(\infty, z_0)$と置かない限り縦フィードバックがかからないので，第 3 章で扱ったような完全な平面波入射というわけではい。

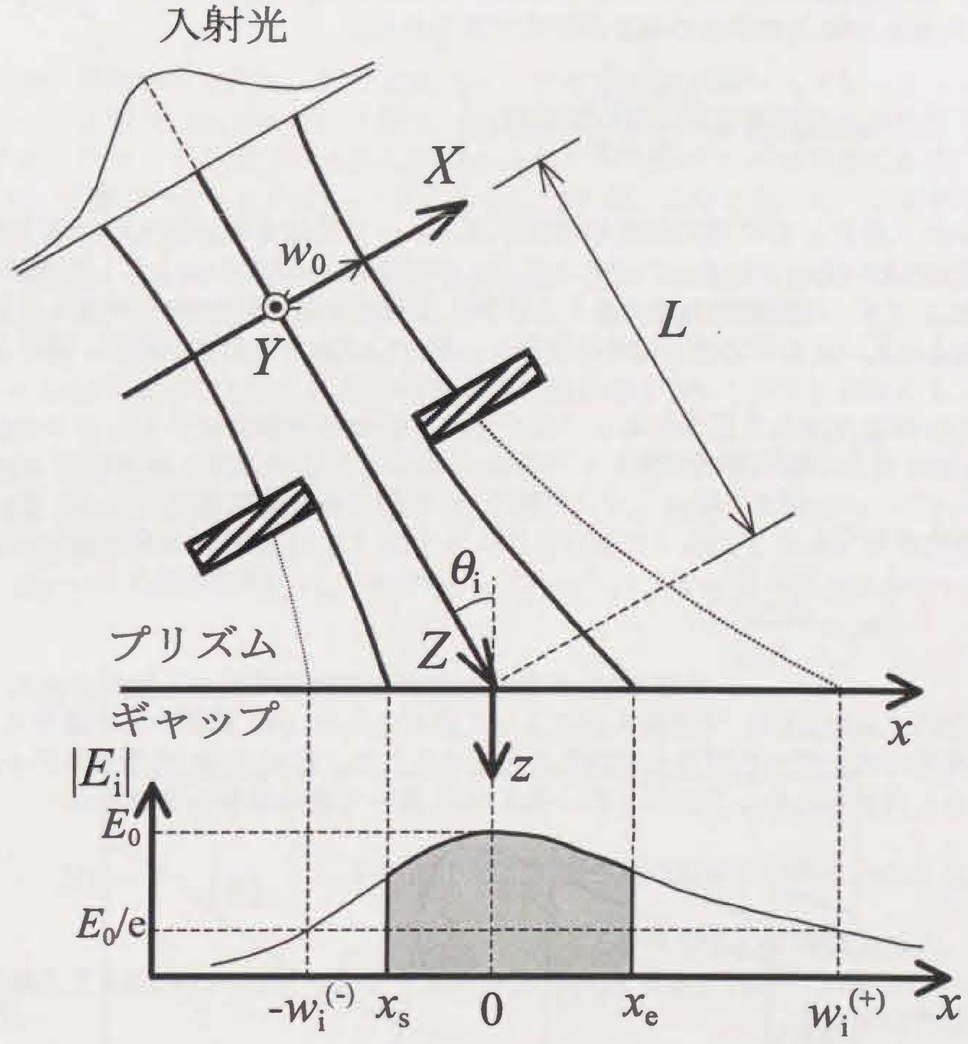


図 4.2　入射ガウスビーム

$x=0$ 位置での入射光電界 $E_i(0)=E_0$ から，入射光強度 I_i を次式のように定義する。

$$I_i = \frac{1}{2}c\varepsilon_0 n_p E_0^{\,2} \quad (\mathrm{W/m^2}) \tag{4.12}$$

図 4.2 に示すように，入射光座標（XYZ 座標）から見た入射光の直径は $D_i\cos\theta_i$ であることから，入射光パワーP_iは次のように定義される。

$$P_i = \frac{\pi}{2}\left(\frac{D_i\cos\theta_i}{2}\right)^2 I_i \quad (\mathrm{W}) \tag{4.13}$$

図 4.1 の構造で GW を励起したとき，角度スキャン ATR 信号は共鳴ディップを生じる。線形応答時のそのディップに対応する波数が k_m である。式(4.2)の右辺第一項から，入射光と GW との結合の強さは次式で表される。

$$\alpha_0 \cos\left[k_{//}x + \frac{Bx^2\cos^2\theta_i}{w_0^2(1+B^2)} - \varphi(x)\right] \tag{4.12}$$

$\varphi(x)$は入射光と GW 間の非線形相互作用によって変化する。式(4.12)は位相項が 0 になるとき最大値α_0 となる。このことより，結合係数α_0 は次のようにして求めることができる。まず，平面波（$E_i(x) = E_0$）を入射して線形応答時の GW を励起したとする（ $n_2' = 0, k_{//} = k_m$ ）。このとき $x\to\infty$ とすると，$dA(\infty, z_0)/dx = 0$ となるので，式(4.2)は

$$\alpha_0 = \frac{A(\infty, z_0)}{l_m E_0 \exp(-i\varphi_0)} \tag{4.13}$$

$\varphi_0 = 0$ とおくと，

$$\alpha_0 = \frac{A(\infty, z_0)}{l_m E_0} \tag{4.14}$$

となる。$A(\infty, z_0)$は，平面波入射によって励起された GW 電界の最大値であり，フレネル反射の式を使った電界分布計算から求められる。l_m は ATR 共鳴信号ディップの半値幅から求められる。このように，式(4.14)を使って結合係数α_0 を求めた。

以上の式を用いて数値計算を行う方法を述べる。

(i)　入射光電界 $E_i(x)$を求める。
$x = 0$ 位置での入射光電界 $E_i(0) = E_0$ を仮定すると，式(4.9), (4.10)より入射光電界 $E_i(x)$ の分布が求まる。

(ii)　$x = x_e$ での GW 光強度 $I_e = |A(x_e, z_0)|^2$ を求める。
$A(x, z_0) = |A(x, z_0)|\exp[i\phi(x)]$とおく。$|A(x, z_0)|$, $\phi(x)$は共に実数である。$x = x_s$ での値 $|A(x_s, z_0)|$，$\phi(x_s)$を初期値として（ $\phi(x_s) = 0$ とする），ルンゲ・クッタ・ジル法を用いて式(4.2),(4.3)を数値的に解くと，$x = x_e$ での値$|A(x_e, z_0)|$が求まる。

(iii) 入射光強度 I_i とに対する GW 光強度 I_e の変化をΔk ($= k_{//} - k_m$)をパラメータとしてプロットする。Δk がある値になると光スイッチ現象が現れる。

4－2　ビームウエスト入射における光スイッチ現象の計算機シミュレーション

この節では，有限幅の入射光における光スイッチ現象の計算機シミュレーションを行い，光スイッチ現象の基本特性，入射ビーム直径依存性，導波層膜厚依存性等について検討する。なお，この節では入射光のビームウエストがプリズム底面にある（図 4.2 において，位置 $X = Z = 0$ が $x = z = 0$ にある）とする。このとき，ビーム広がりの影響は非常に小さく，無視できる。

図 4.1 の構造を，TaFD9 プリズム－屈折率整合油－PDA-4BCMU－BK-7 ガラス基板であると仮定する。入射光波長$\lambda = 1.319\ \mu m$ とすると，各媒質の屈折率は，$n_p^2 = 3.300$ [7]，$n_g^2 = 2.263$，$n_{f0}^2 = 2.79 - i0.05$ [9]，$n_s^2 = 2.261$ [7]，PDA の非線形屈折率は $n_2 = 1.568\times10^{-19}$ m^2/V^2 ($\chi^{(3)} = 5\times10^{-11}$ esu)[8] とした。屈折率整合油の屈折率を BK-7 ガラス基板のものとほぼ同じ値にすることで対称導波路構造を形成することができる。線形応答時の角度スキャン ATR 信号計算で得られる TE_0-GW の共鳴ディップによる反射率の最小値 R_{min} が 0.5 になるように，屈折率整合油の膜厚 d_g を選択した。実際の実験においても，d_g の調整によって反射率の最小値が 0.5 にすることは可能である。また，ディップの半値幅から，TE_0-GW の伝搬距離は $l_m = 0.159$ mm であった。以下に計算結果を示す。

4－2－1　入射光強度 I_i に対する規格化導波光強度 I_e/E_0^2 の変化

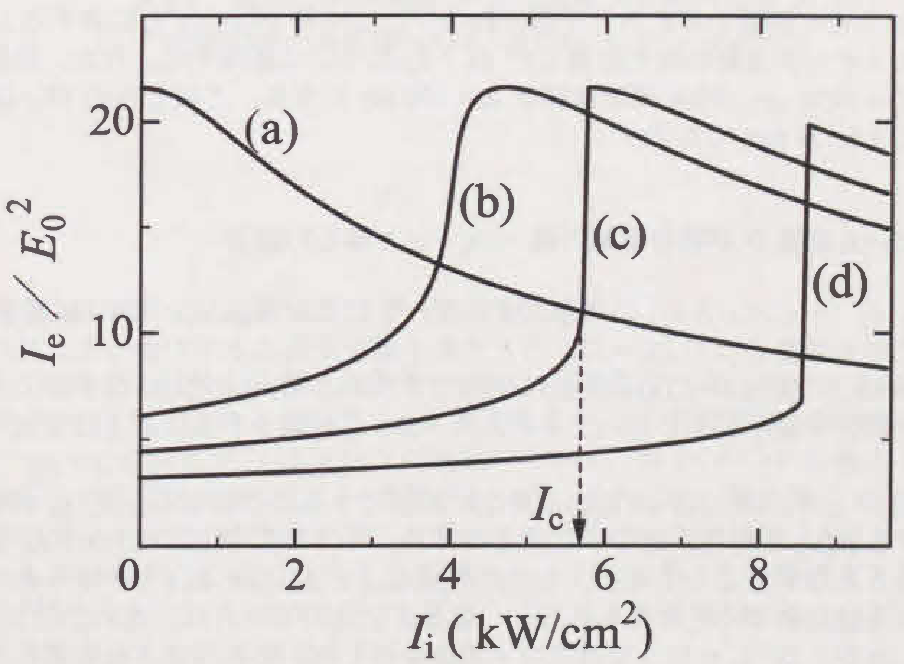


図 4.3　光スイッチ現象の計算機シミュレーション結果
(a)　Δk ($= k_{//} - k_m$) = 0 rad/m
(b)　$\Delta k = 1.0\times10^3$ rad/m
(c)　$\Delta k = 1.23\times10^3$ rad/m
(d)　$\Delta k = 1.5\times10^3$ rad/m

光スイッチ現象の計算結果例を示す。屈折率整合油の膜厚 d_g = 2450 nm，PDA 導波層膜厚 d_f = 100 nm，入射ビーム直径 D_i は，GW 伝搬距離 l_m や結合領域 $-x_s+x_e$ に対して $D_i >> l_m$, $-x_s+x_e$ であるとする。このときの I_c/E_0^2 の I_i 依存性を図 4.3 に示す。この図より，入射光と GW の波数の差Δk （ $= k_{//} - k_m$ ）が 1.23×10^3 rad/m 以上で光スイッチ現象が生じていることがわかる。また，光スイッチ現象を発生させるために必要な入射光強度には下限値が存在することがわかる。この下限値を光スイッチ現象を発生させるための臨界入射光強度 I_c と名付ける。図 4.3 では I_c = 5.8 kW/cm^2 であった。また，I_c に相当する入射光パワーを臨界入射光パワーP_c とする。$D_i >> l_m$ を満たすように D_i = 100 mm とすると，P_c = 71 kW となる。

4-2-2　入射ビーム直径 D_i に対する臨界入射光強度 I_c，臨界入射光パワーP_c の変化

入射ビーム直径 D_i を変化させることは，プリズム底面における入射光の電界分布 $E_i(x)$ を変えることを意味する。例えば $D_i >> -x_s+x_e >> l_m$ のとき，x 方向の入射光電界分布が一定であるボックスビーム入射に相当するが，このとき GW の電界振幅 $|A(x,z_0)|$ は GW が伝搬するにつれて増加し，ある一定の値に収束する。これはプリズムから GW へ移るエネルギーと，プリズムへの再放射や吸収による GW エネルギーの減衰が釣り合うからである。もし，D_i が l_m と同程度の大きさしかなければ，$|A(x,z_0)|$ は十分大きくならないと考えられる。さらに，ガウスビーム入射では $x_s \leq x \leq x_e$ の結合領域内で $E_i(x)$ が変化するので，$|A(x,z_0)|$ も複雑に変化すると考えられる。このように D_i と l_m の関係は I_c や P_c に大きく影響を与えると予想される。この小節では D_i / l_m に対する I_c や P_c を計算し，光スイッチ現象の発生に適した D_i / l_m について議論する。なお，屈折率整合油の膜厚 d_g = 2450 nm，PDA 導波層膜厚 d_f = 100 nm とする。このときの TE_0-GW の伝搬距離は l_m = 0.159 mm である。

(i)　入射ビーム直径 D_i が結合領域の幅 $-x_s+x_e$ と等しい場合

$w_i^{(+)} = x_e$，$w_i^{(-)} = x_s$ のときの，D_i / l_m に対する I_c や P_c の計算結果を図 4.4 に示す。図 4.4 から臨界入射光強度 I_c は D_i / l_m = 11.3 のとき最小値をとることがわかった。$D_i / l_m < 11.3$ のとき，$|A(x,z_0)|$の変化が $E_i(x)$の変化に追随できないため，$|A(x_e,z_0)|$ は十分に大きくならず十分な屈折率変化が生じない。そのため，D_i / l_m が減少するほど I_c は増加すると考えられる。一方
$D_i / l_m > 11.3$ のとき，$|A(x,z_0)|$ は $E_i(x)$の変化に追随できるようになる。D_i / l_m が増加すると x に対する $E_i(x)$ の変化が緩やかになるので，$x = x_e = w_i^{(+)}$ 周辺の $E_i(x)$は E_0 / e でほぼ一定であるとみなせるようになる。そのため$|A(x,z_0)|$が $E_i(x_e) = E_0$ / e のボックスビーム入射における値に近づくと考えられる。　臨界入射光パワーP_c は，$D_i / l_m > 11.3$ では単調に増加したが，$D_i / l_m < 11.3$ ではほぼ一定値を示した。これは D_i / l_m と共に入射光の断面積が大きくなることにより，P_c も大きくなる傾向があるためで，$D_i / l_m < 11.3$ では D_i / l_m の増加に伴う I_c の減少と相殺して一定値になっていると考えられる。

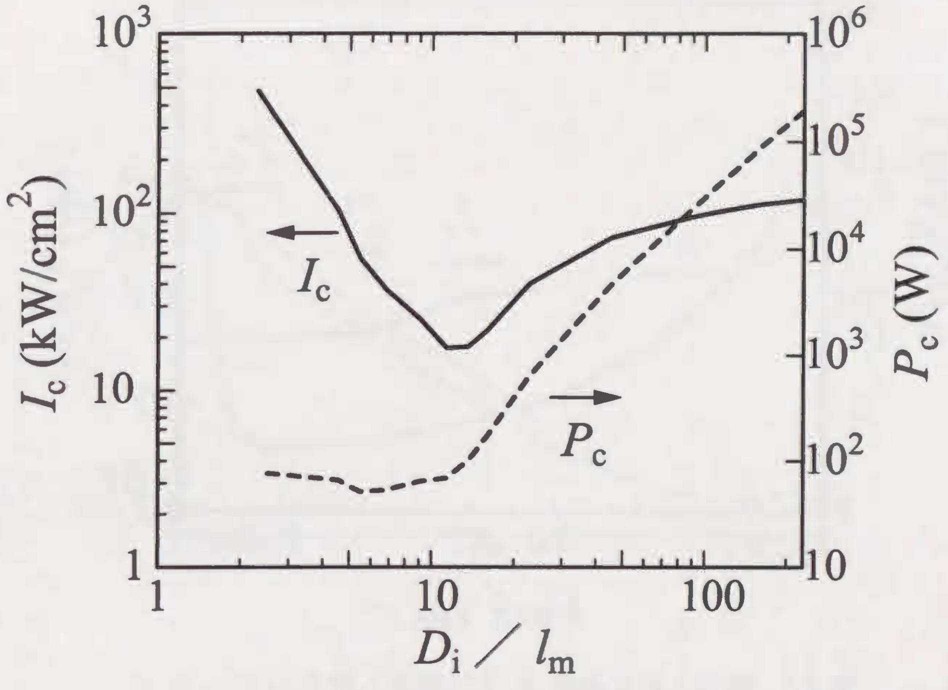


図 4.4　臨界入射光強度 I_c 及び臨界入射光パワー P_c の規格化ビーム直径 D_i / l_m 依存性（ $D_i = -x_s + x_e$ ）

(ii)　結合領域の幅$-x_s+x_e$ を 11.3 l_m で一定とした場合

図 4.4 の結果で I_c が最小値をとる条件$-x_s+x_e$ = 11.3 l_m で一定（ $x_s \approx -5.64 l_m$, $x_e \approx 5.67 l_m$ ）とする。このときの D_i / l_m に対する I_c や P_c の計算結果を図 4.5 に示す。なお，$D_i \geq -x_s+x_e$ を満たす $D_i / l_m > 11.3$ の範囲のみ示す。図 4.5 からわかるように，D_i / l_m が増加するにつれて I_c は減少し，一定値になった。これは(i)の時と同じく，D_i / l_m の増加につれてボックスビーム入射と同じ状態になるためで，この場合，$E_i(x_e) = E_0$ のボックスビーム入射における値に近づくためである。その結果，I_c の漸近する値は(i)の場合の 1 / e^2 倍となった。P_c は(i)で述べたように D_i / l_m と共に増加する。ただし，(i)に比べ I_c が小さくなった分 P_c の値は小さくなった。

(i)(ii)より，D_i / l_m によって I_c ，P_c は大きく変化することがわかった。以上の結果より，以降の計算は，I_c ，P_c 共に小さかった D_i / l_m = 11.3 を用いる。

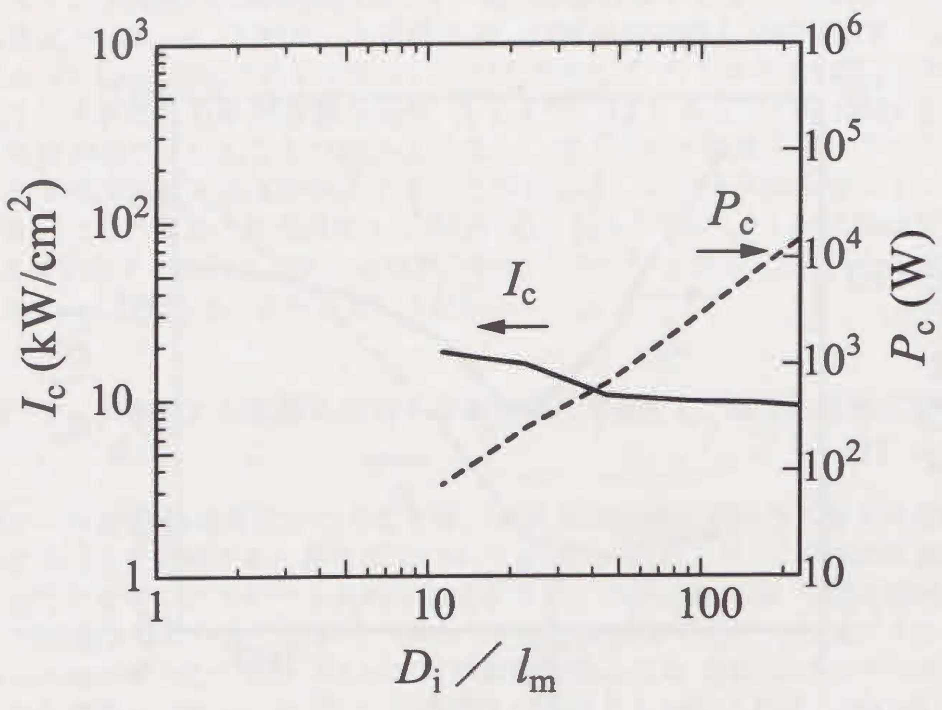


図 4.5　臨界入射光強度 I_c 及び臨界入射光パワー P_c の規格化ビーム直径 D_i / l_m 依存性（ $-x_s + x_e = 11.3 l_m$ ）

4-2-3　導波層膜厚 d_f に対する臨界入射光強度 I_c，臨界入射光パワー P_c の変化

導波層膜厚 d_f が変化すると GW の特性が大きく変わり，それに伴って実効非線形屈折率 n_2'，結合係数 α_0 も変化するために光スイッチ現象の特性も大きく変化することが予想される。この小節では I_c，P_c の d_f 依存性について述べる。先に述べたように屈折率整合油の膜厚 d_g は，角度スキャン ATR 信号計算において，共鳴ディップによる反射率の最小値が 0.5 になるように選択する。従って d_f を変化させるにつれて d_g も変化させることになる。$D_i / l_m = 11.3$ としたときの d_f に対する I_c，P_c の計算結果を図 4.6 に示す。これより I_c は $d_f = 17$ nm の時，P_c は $d_f = 700$ nm の時に最小値をとなることがわかった。

このようになった理由を考えるために，n_2'，α_0，l_m の d_f 依存性を図 4.7 に示す。d_f が増加するにつれ l_m は減少し，α_0，n_2' は $d_f = 700$ nm の時最大値をとった。まず α_0 に注目する。式(4.12)は，α_0 が $|A(\infty, z_0)| / l_m$ に比例することを示している。$d_f > 700$nm では，d_f が減少したときの $|A(\infty, z_0)|$ の増加が l_m の増加に比べ大きいために，結果として α_0 はやや増加する。また，$d_f < 700$nm では，d_f が減少すると l_m の増加割合が増える。これは d_g を大きくして入射光と GW の結合を小さくしたためである。その結果 d_f が減少するにつれて α_0 は減少することになる。次に n_2' に注目する。式(4.14)よりわかるように，n_2' は GW のエネルギーが導波層内に閉じ込められる割合で決まる。$d_f > 700$ nm では，d_f

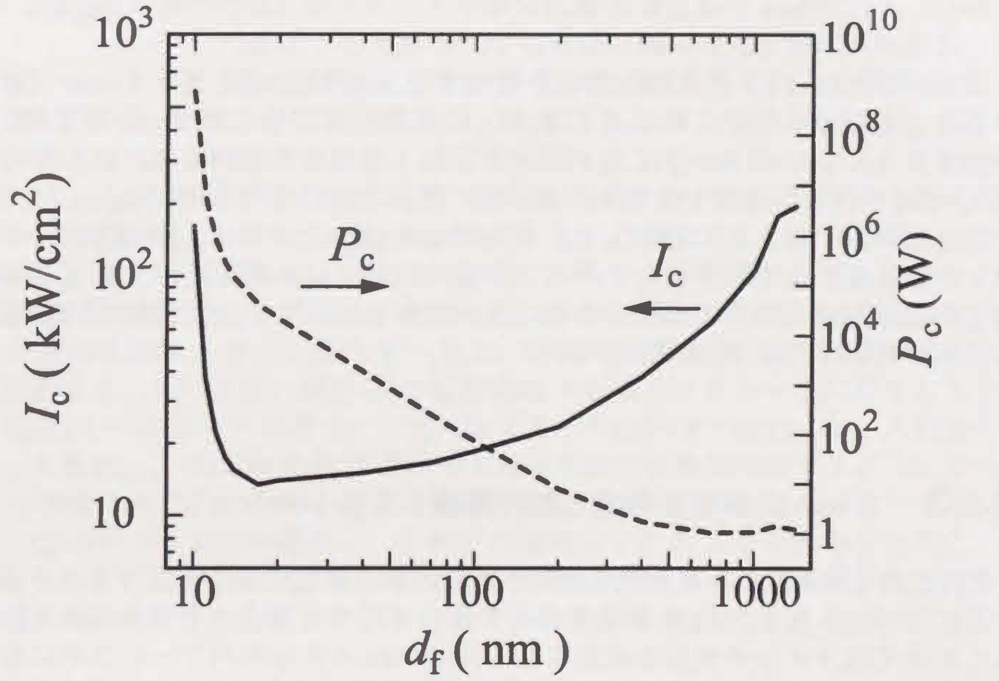


図 4.6　臨界入射光強度 I_c 及び臨界入射光パワー P_c の PDA 膜厚 d_f 依存性

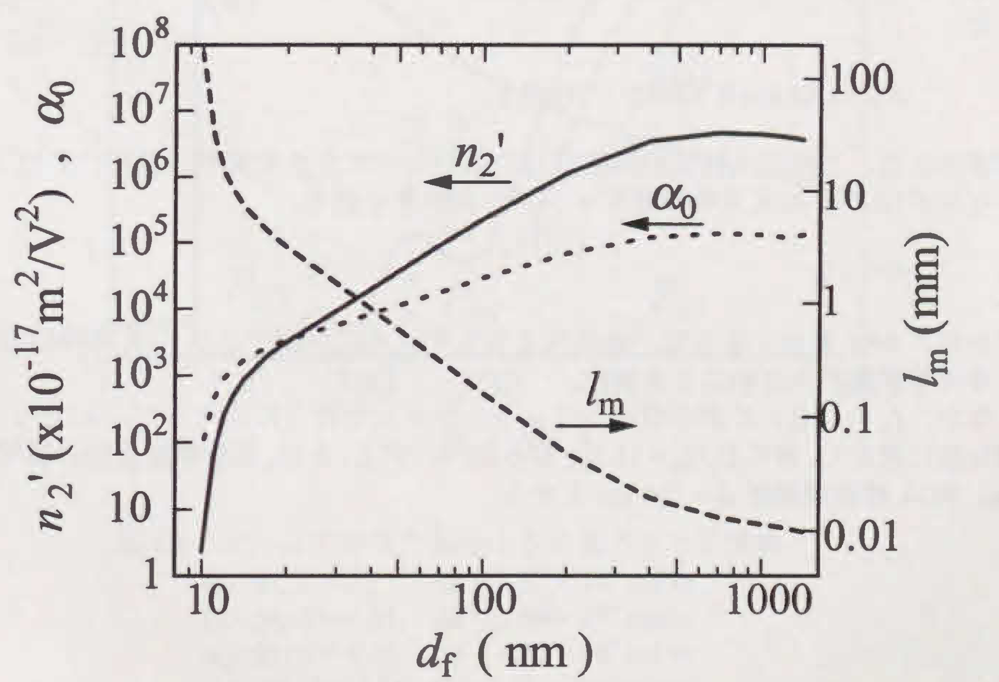


図 4.7　実効非線形屈折率 n_2'，結合係数 α_0，GW 伝搬距離 l_m の PDA 膜厚 d_f 依存性

が減少すると，電界分布はあまり変化せずに$|A(\infty, z_0)|$が増加するのでn_2'は大きくなる。しかし，$d_f < 700$nm ではGW の電界分布がクラッド側（屈折率整合油，BK-7 ガラス基板）に広がり，閉じ込めが弱くなるので，n_2'は小さくなる。

以上のことからI_c，P_cの振る舞いを説明する。図 4.6 から，$d_f > 17$ nm ではd_fが減少するとI_cも減少した。これはI_cが主にl_mに影響を受けるためで，l_mが増加するのでI_cは減少する。$d_f < 17$ nm ではd_fが減少するとI_cは急激に増加した。これはl_mの増加よりn_2'やα_0が急激に減少する効果の方が強く現れたためと考えられる。一方，$d_f < 700$ nm ではd_fが減少するとP_cは増加した。これはd_fの減少とともにl_mが増加するが，$D_i / l_m = 11.3$ の関係からD_iも大きくなるのでP_cが増加する。$d_f > 700$ nm では，d_fが減少したときl_mの増加割合よりもI_cの減少割合の方が顕著であるので，P_cは減少する。結果的に，n_2'やα_0が増加するとP_cは減少する。

4－3　ビーム広がりを考慮した計算機シミュレーション

式(4.8)の$L \neq 0$とすると入射光のビーム広がりを考慮することができる。入射光にビーム広がりがあると，ATR 共鳴信号のディップは広くなることが知られているが，これによって光スイッチ現象を発生させるためには大きな光パワーが必要になると予想される。この節では入射ガウスビームの広がり角度を変えたときの臨界入射光パワーP_cの計算機シミュレーションを行い，その結果からビーム広がりが光スイッチ現象に与える影響について検討する。

ATR 共鳴信号のディップは GW が受ける光損失によっても広くなる。ここでは入射光のビーム広がりの大きさを表すために，規格化ビーム広がり角 $\Delta\theta_k / K$という量を考える。入射光のビーム広がりによる波数の広がり$\Delta\theta_k$は，ビーム広がり角度を$\Delta\theta$とすると

$$\Delta\theta_k = n_p k_0 [\sin(\theta_i + \Delta\theta) - \sin\theta_i] \qquad (4.17)$$

で表される。これは入射光の波数成分の広がりの大きさを表す。また，K は GW のダンピングによる ATR 共鳴信号ディップの広がりを表し，

$$K = 1 / l_m \qquad (4.18)$$

である。$\Delta\theta_k / K > 1$ ならば，光損失よりもビーム広がりの方が ATR 共鳴信号ディップに与える影響が大きいことを表す。

なお，P_cの $\Delta\theta_k / K$ 依存性のシミュレーションを行うにあたって，w_0と L の値を適切な値に設定し，常に$D_i / l_m = 11.3$となるようにする。また，屈折率整合油の膜厚$d_g = 2450$ nm，PDA 導波層膜厚 $d_f = 100$ nm とする。

4－3－1　入射光パワーP_iに対する規格化導波光強度I_e/E_0^2のビーム広がり角度依存性

ここではビーム広がりがある時の光スイッチ現象について考える。計算例を図 4.8 に示す。図 4.8 中の(a)はビーム広がり無し（$\Delta\theta_k / K = 0$）で，(b)，(c)，(d)は $\Delta\theta_k / K = 4.35$ の広がりを持つ場合の結果である。$\Delta\theta_k / K = 4.35$ は，$d_g = 2450$ nm，$d_f = 100$ nm の構造では 5.76 mrad の広がり角に相当し，一般的なパルスレーザの広がり角もこの程度のオーダーである。図 4.8 より，$\Delta\theta_k$が値を持つときP_iに対するI_e / E_0^2が振動していることがわかる。例えば，図 4.8(b)ではこの振動によって３個の極大が現れた。このような振動が現れる原因は次のように考えられる。ビーム広がりが無ければ[図 4.8(a)]，入射光の x 方向の波数 $k_{//}$は x によらず一定で，GW の波数は自己誘起屈折率変化によってのみ変化する。そのため，式(4.10)の位相項はP_iが変化すると一度だけ 0 になるので，図 4.8(a)は 1 つのピークを持つ。一方 $\Delta\theta_k \neq 0$ の時[図 4.8 の(b)(c)(d)]，入射光の $k_{//}$は x に対して変化し，式(4.10)の位相項が 0 となる条件が複数個存在するようになるので，I_e / E_0^2が振動することになると考えられる。例えば$\Delta k = 3.69 \times 10^4$ rad/m のとき[図 4.8 の(b)]，I_e / E_0^2のピークが３つ存在し，それぞれ図のように 1, 2, 3 と番号をつけた。Δkの値を調整するとそれぞれの I_e / E_0^2 のピークに関係した光スイッチ現象が生じた。それぞれの臨界入射光パワーの値をピークの番号にあわせてP_{c1}，P_{c2}，P_{c3}とする。

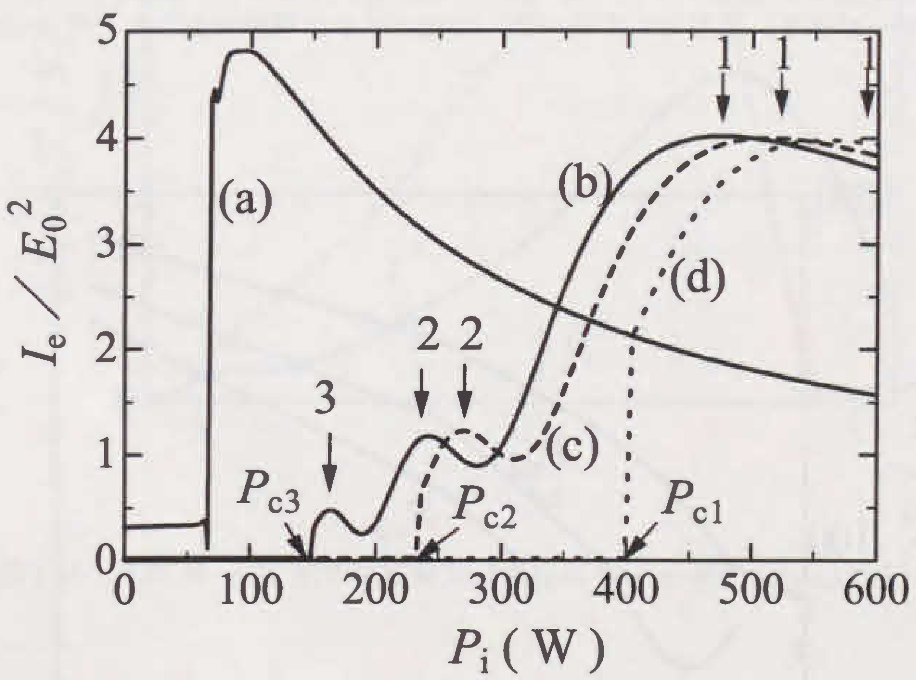


図 4.8　ビーム広がりのあるときの光スイッチ現象

(a) $\Delta\theta_k/K = 0$,　$\Delta k = 1.87 \times 10^4$ rad/m

(b) $\Delta\theta_k/K = 4.35$,　$\Delta k = 3.69 \times 10^4$ rad/m

(c) $\Delta\theta_k/K = 4.35$,　$\Delta k = 4.12 \times 10^4$ rad/m

(d) $\Delta\theta_k/K = 4.35$, $\Delta k = 4.63 \times 10^4$ rad/m

4-3-2　臨界入射光パワーP_cの規格化ビーム広がり角 $\Delta\theta_k / K$ 依存性

光スイッチ現象のビーム広がり角による影響を調べるために，$\Delta\theta_k / K$ に対する P_{c1}, P_{c2}, P_{c3} を計算した。その結果を図 4.9 に示す。ここで，$K = 6275$ rad/m（ $l_m = 0.1594$ mm ）とした。$\Delta\theta_k / K$ が増加すると，P_{c1}，P_{c3} は単調増加したが，P_{c2} は$\Delta\theta_k / K = 1.43$ のとき最小値 43W を示した。

この値は興味深いことに，$\Delta\theta_k / K = 0$ のときの $P_{c1} = 68$ W よりも小さい。これはビーム広がりが存在すると P_c が大きくなるという予想に反して，入射光が特定のビーム広がり角を持つと，ビーム広がりが無い場合よりも低入射光パワーで光スイッチ現象を発生できることを示している。このような現象の原因について考えるために，l_m で規格化した位置 x / l_m に対する x 軸上における入射光電界と GW 電界の位相差を図 4.10(a)に，x / l_m に対する規格化 GW 光強度 $|A(x,z_0)|^2 / E_0^2$ を図 4.10(b)に示す。実線はビーム広がり無し（ $\Delta\theta_k / K = 0$ ）の P_{c1} の場合で，波線は P_{c2} が最小となったビーム広がり有り（ $\Delta\theta_k / K = 1.43$ ）の P_{c2} の場合を表す。ここで，$x_s / l_m = -5.64$，$x_e / l_m = 5.67$，入射光の中心を $x / l_m = 0$ としている。図 4.10(a)からわかるように，ビーム広がり無しよりもビーム広がり有りの方が GW が発生する位置 x_s から長距離にわたって入射光− GW の位相差が小さいことがわかる。さらに図 4.10(b)よりビーム広がり有りの方が位相差が小さいために$|A(x,z_0)|^2 / E_0^2$ が大きくなることができ，それによって位相差が激しく変化していることがわかる。以上のことから，$\Delta\theta_k / K = 1.43$ における P_{c2} では，GW の屈折率変化による位相変化に対して，入射光の位相変化が似通っているために効率よく GW にエネルギーが移り，結果として低パワーで光スイッチ現象が生じたと考えられる。

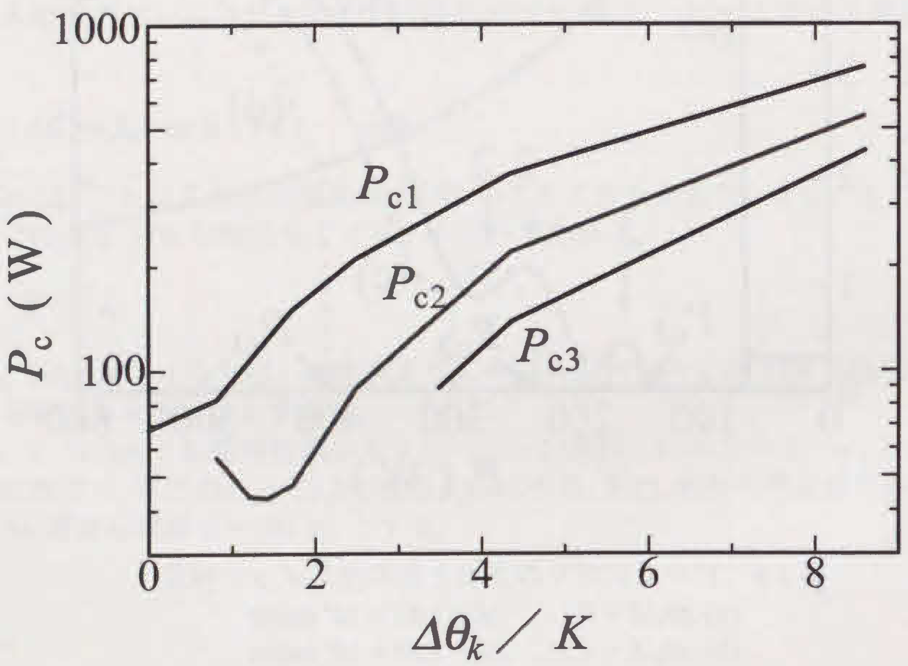


図 4.9　臨界入射光パワー P_c の規格化ビーム広がり角 $\Delta\theta_k / K$ 依存性

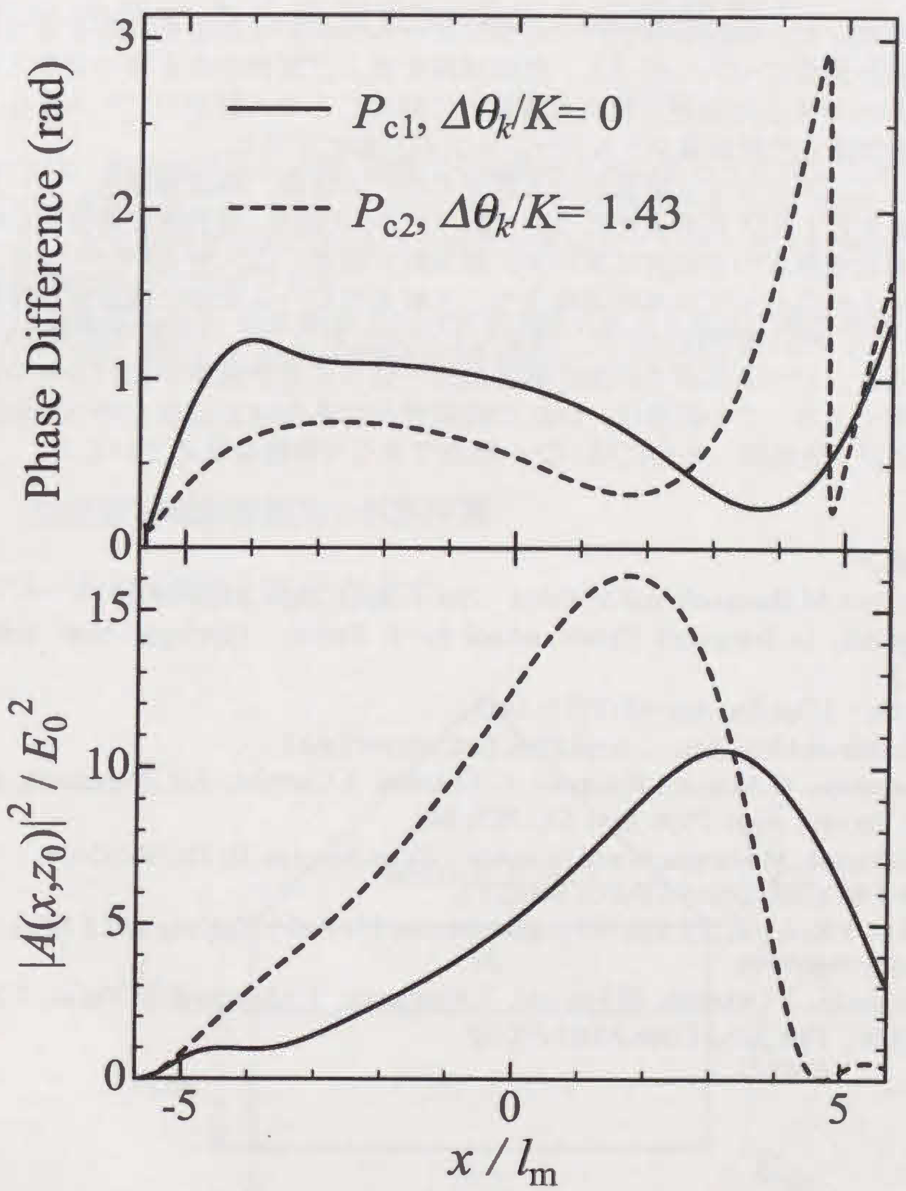


図 4.10　入射光− GW 間の位相差及び規格化 GW 光強度 $|A(x,z_0)|^2/E_0^2$ の空間分布

4－4　まとめ

この章では，ビーム広がりを持つガウスビームを入射したときに生じる光スイッチ現象の数値計算法について述べた。位相情報を含んだ電界分布を持つガウスビームとGW の電界に対する結合波方程式を数値的に解くことで入射光のビーム直径，ビーム広がり角を考慮した計算機シミュレーションが可能になった。

また，シミュレーション結果から入射光のビーム直径，導波層厚さ，ビーム広がり角などに対する I_c 及び P_c の変化について調べた。その結果，対称導波路構造を持つ ATR 配置では導波層厚さの自由度は高いが，低入射光強度，低入射光パワーで光スイッチ現象を発生させるためには導波路厚さや，入射光のビーム直径に適正値が存在することがわかった。特に興味深いのが，適度なビーム広がり（この計算では $\Delta\theta_k / K = 1.43$ ）が存在すると，ビーム広がりが無い場合に比べ光スイッチ現象が低パワーで動作しうるという点である。この結果は，GW の位相変化にあわせた位相を持つ入射光を入射させることができれば，さらに低パワー動作できる可能性を秘めている。

<参考文献>

1) T.Okamoto, M.Haraguchi and M.Fukui : Jpn. J. Appl. Phys. **39**(2000)3977.
2) H.Kogelnik, in Integrated Optics, edited by T. Tamir : (Springer, New York, 1979), Chap.2.
3) R.Ulrich, : J.Opt.Soc.Am. **63** (1973) 1419.
4) G.M.Carter and Y.J.Chen : Appl.Phys.Lett. **42**(1983)643.
5) G.I.Stegeman, G.Assanto, R.Zanoni, C.T.Seaton, E.Garmire, A.A.Maradudin, R.Reinish and G.Vitrant : Appl. Phys. Lett. 52(1988) 869.
6) M.Takabayash, M.Haraguchi and M.Fukui, : J.Opt.Soc.Am. B, **12**(1995)2406.
7) HOYA OPTICAL GLASS DATA SHEETS.
8) C.C.Hsu, Y.Kawabe, Z.Z.Ho, N.Peyghambarian, J.N.Polky, W.Krug and E.Miao : J. Appl. Phys. **67**(1990)7199.
9) M.Haraguchi, T.Okamoto, H.Hayashi, T.Hasegawa, T.Akamatsu, M.Fukui, T.Koda and K.Takeda : Thin Solid Films **331**(1998)39.

第五章
熱屈折率効果による光双安定現象の実験観測 [1)]

第三章では，金属層のある ATR 配置で平面波を入射したときに生じる光双安定現象についての計算機シミュレーションを行った。そこで述べたように，SPP や GW の励起によって３次非線形光学材料内部の光強度を高めることで，低入射光強度で光双安定現象を観測できる可能性がある。

本章では金属層のある ATR 配置で光双安定現象を発生させるための実験について述べ，それによって得られた光双安定現象の諸特性について述べる。

5－1　光双安定現象観測用の試料作製

実験で用いた ATR 配置を図 5.1 に示す。

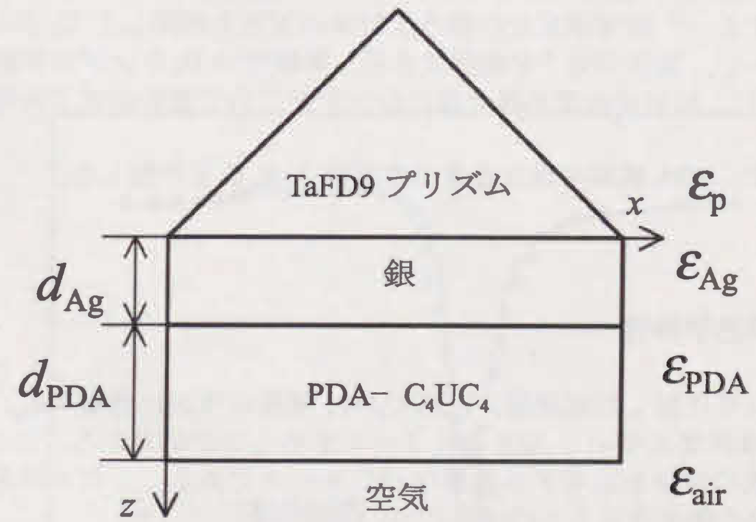


図 5.1　光双安定現象実験観測用 ATR 配置

本研究では，SPP 活性媒質として銀薄膜を用いた。銀は真空蒸着膜の光物性がよく知られた材料である。他の金属に比べ光吸収が小さいため半値幅の小さい ATR 共鳴信号が得られるので，光双安定現象の低入射光パワー動作が期待できる。三次非線形光学媒質にはポリジアセチレン(polydiacetylene : PDA)-C_4UC_4 真空蒸着膜を採用した。図 5.1 に示した ATR 配置の作製行程を以下に示す。

行程１　銀蒸着

純度 99.999%の銀ショットを蒸着源とし，TaFD9 プリズム上に真空蒸着法で銀薄膜を作製した。蒸着は，真空度 10^{-4}Pa 以下の高真空下，蒸着速度は平均 0.5nm/s で行った。膜厚は，フレネル反射率計算から図 5.1 の配置で SPP が効率よく励起できるような値（ATR 共鳴信号の反射率の最小値 $R_{min}=0$ となる膜厚）を採用した。実際に作製した蒸着膜の膜厚は水晶振動子式の膜厚センサーにて質量膜厚を，ATR 実験によって光学膜厚を測定した。光学膜厚測定結果については次節で述べる。

行程２　ジアセチレン(diacetylene : DA)モノマー蒸着

日本合成ゴム（株）で合成された DA-C_4UC_4 モノマー粉末を蒸着源とし，銀薄膜上に真空蒸着法によって DA-C_4UC_4 薄膜を作製した。真空度 10^{-4} Pa 以下，蒸着速度は平均 0.1~0.3 nm/s で蒸着を行った。

行程３　光重合

D_2（重水素）ランプを照射して DA-C_4UC_4 薄膜を光重合させ，PDA-C_4UC_4 薄膜とする。DA-C_4UC_4 薄膜は，重合に伴って He-Ne レーザ発振波長 $\lambda = 632.8$ nm での誘電率が大きく変化する。[2] 誘電率変化に伴う反射率の変化を利用して D_2 ランプ照射中の重合度をモニターし，重合の完了を確認できる。実験では D_2 ランプの照射パワー密度を 3~6 mW/cm^2 とし，反射光強度が最大値になったところで重合の完了と判断した。

以上の行程で，PDA 膜厚が異なる３つの試料 A, B, C を作製した。

５－２　線形光学特性

真空蒸着により作製した銀薄膜，PDA-C_4UC_4 薄膜の複素比誘電率 ε_{Ag}，ε_{PDA} と，光学膜厚 d_{Ag}，d_{PDA} は角度スキャン ATR 法によって求めることができる。この ε_{Ag}，ε_{PDA}，d_{Ag} は光双安定現象の特性を左右する重要なパラメータである。ここでは各層の線形複素比誘電率，膜厚の測定方法とその結果について述べる。

角度スキャン ATR 信号測定系を図 5.2 に示す。入射光には連続発振の Nd:YAG レーザ光（ $\lambda = 1319$ nm ）を用いた。線形光学特性を測定するために ND フィルタによって入射光パワーを十分小さくして実験を行った。

銀薄膜の光学定数の測定は行程１の直後に行った。入射光を TM 偏光とした。このとき得られた SPP による ATR 共鳴信号結果を図 5.3 に示す。銀膜厚 d_{Ag}，複素比誘電率 ε_{Ag} は，角度スキャン ATR 信号の実験値と TaFD9 プリズム－銀－空気の三層構造におけるフレネル反射計算による理論値が一致するように調整し，そのときの d_{Ag}，ε_{Ag} の組み合わせを解とするフィッティングによって決定した。その結果を表 5.1 に示す。図 5.3 においてディップの深さが一致していないのは，入射角の広がり角の影響によるものとと考えられる。

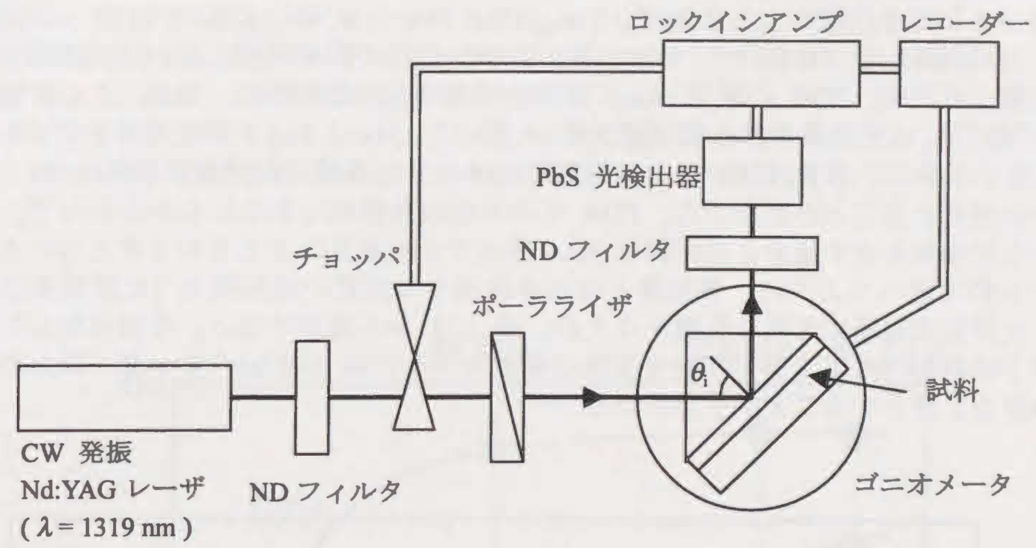


図 5.2　ATR 信号測定系

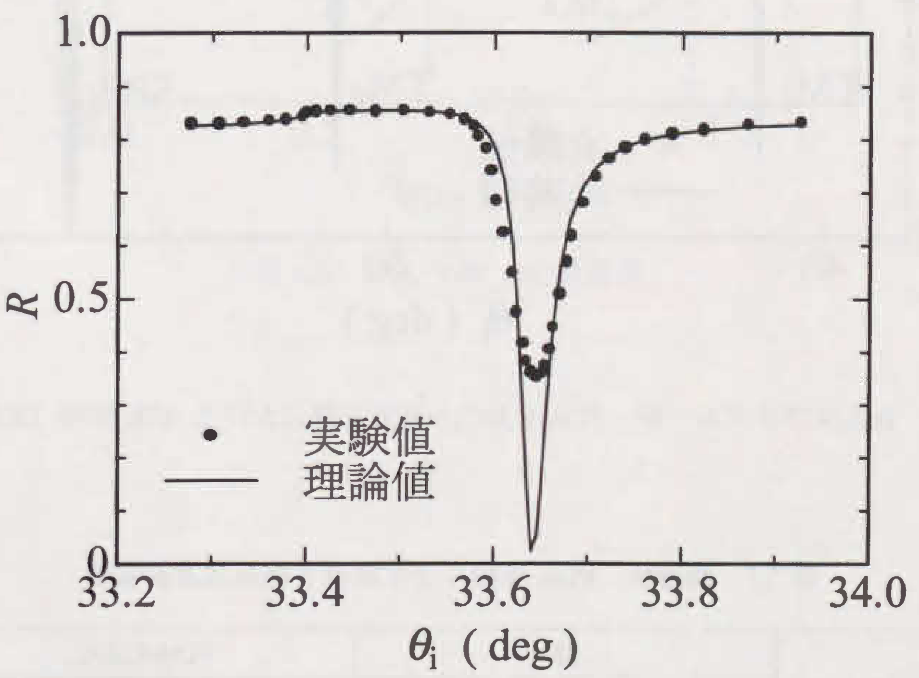


図 5.3　TaFD9 プリズム－銀－空気配置における ATR 信号（試料 A）

PDA-C_4UC_4 薄膜の測定は行程２の後に行った。試料 A に対する ATR 信号測定結果を図 5.4 に示す。図のように SPP，TM_0–GW，TM_1–GW 等による共鳴ディップが現れた。この結果から TaFD9 プリズム－銀－PDA－空気の四層構造において銀薄膜の場合と同様の方法で，PDA の膜厚 d_{PDA}，複素比誘電率ε_{PDA} を求めた。なお，この計算において d_{Ag}，ε_{Ag} は先に得られた値（表 5.1）を用いた。d_{PDA}，ε_{PDA} の測定結果を表 5.1 に示す。このように，波長 1319 nm における PDA-C_4UC_4 薄膜の比誘電率虚部は 10^{-3} オーダーの値をとることがわかった。PDA の非共鳴波長領域であるにもかかわらず，このような光損失を示す値をとる原因は PDA 膜内での光散乱によるものと考えられる。３－４－２節で述べたように，導波層となる非線形光学媒質の線形損失（比誘電率虚部）は，光双安定現象に大きな影響を与える。図 3.11 から推測すると，今回作製した試料で電子的非線形性による光双安定現象を発生させるには MW/cm^2 オーダー以上の入射光強度を必要とすることが予想される。

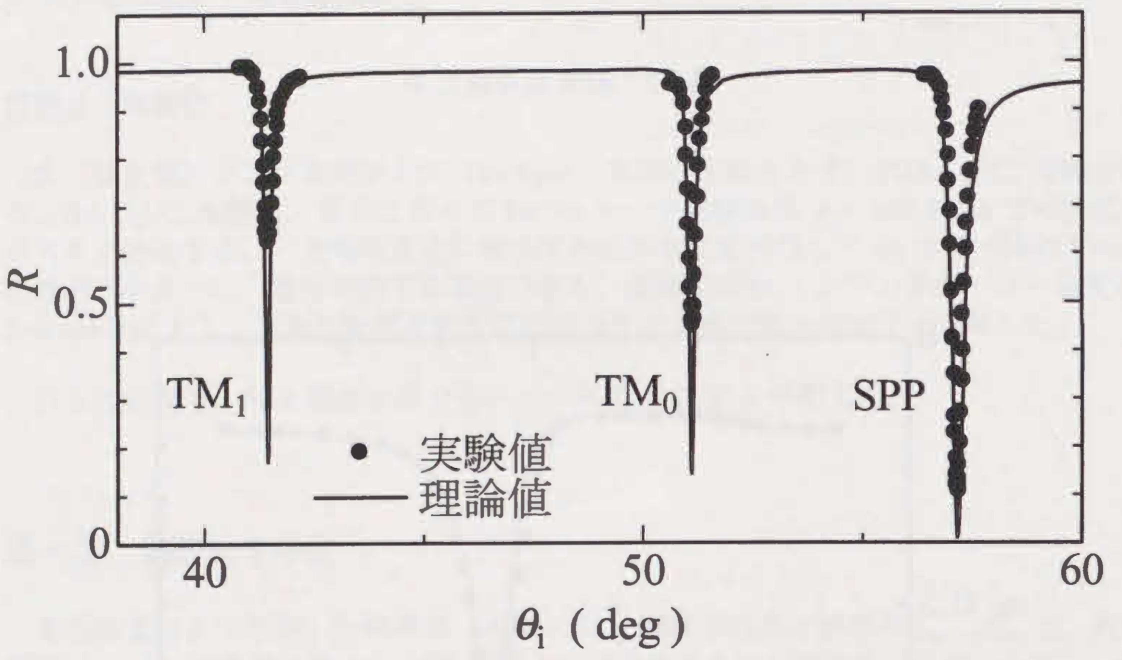


図 5.4　TaFD9 プリズム - 銀 - PDA-C_4UC_4 - 空気配置における ATR 信号（試料 A）

表 5.1　銀薄膜，PDA 薄膜の光学膜厚と線形複素誘電率

	銀		PDA-C_4UC_4	
	d_{Ag}(nm)	ε_{Ag}	d_{PDA}(nm)	ε_{PDA}
試料 A	46.0	- 84.0 - i 3.00	1630	2.268 - i 0.002
試料 B	37.0	- 79.0 - i 3.30	1400	2.268 - i 0.005
試料 C	40.5	- 84.9 - i 4.92	770	2.274 - i 0.002

SPP，TM_0–GW，TM_1–GW 等による共鳴ディップの現れる角度は PDA 膜厚によって異なった。実験で得られたディップの角度θ_{dip} と PDA 膜厚 d_{PDA} の関係を図 5.5 に示す。実線は四層構造におけるフレネル反射率計算から求めた SPP 及び GW の励起角（分散関係）である。なお，この反射率計算では $d_{Ag} = 46.0$ nm，$\varepsilon_{Ag} = -84.0 - i3.00$，$\varepsilon_{PDA} = 2.268 - i0.002$ とした。図 5.5 からわかるように，実験で観測された共鳴ディップに相当する SPP，TM_0–GW，TM_1–GW はそれぞれの分散関係に従って励起されていることが確認できる。

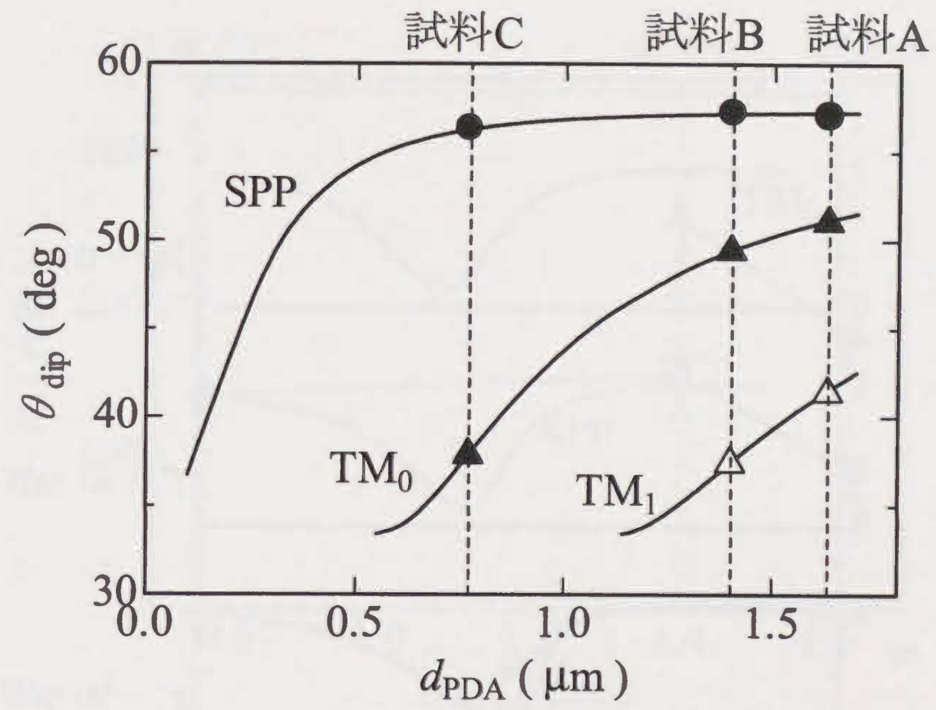


図 5.5　SPP，GW の分散関係

5－3 光双安定現象の観測

非線形光学効果を観測するために，図 5.2 の測定系で入射光パワーP_i をパラメータとして角度スキャン ATR 信号測定を行った。その結果の一例として試料 A で得られた SPP 励起による共鳴ディップを図 5.6 に示す。なお，入射光のビーム直径は約 2 mm であった。P_i が大きくなると，反射光強度の極小となるディップ角度θ_{dip} は低入射角側に移動し，$P_i \geq 96$ mW（ = 3.06 W/cm^2 ）では，入射角を増加させたときと減少させたときで得られる反射光強度が異なる光双安定現象が観測された。

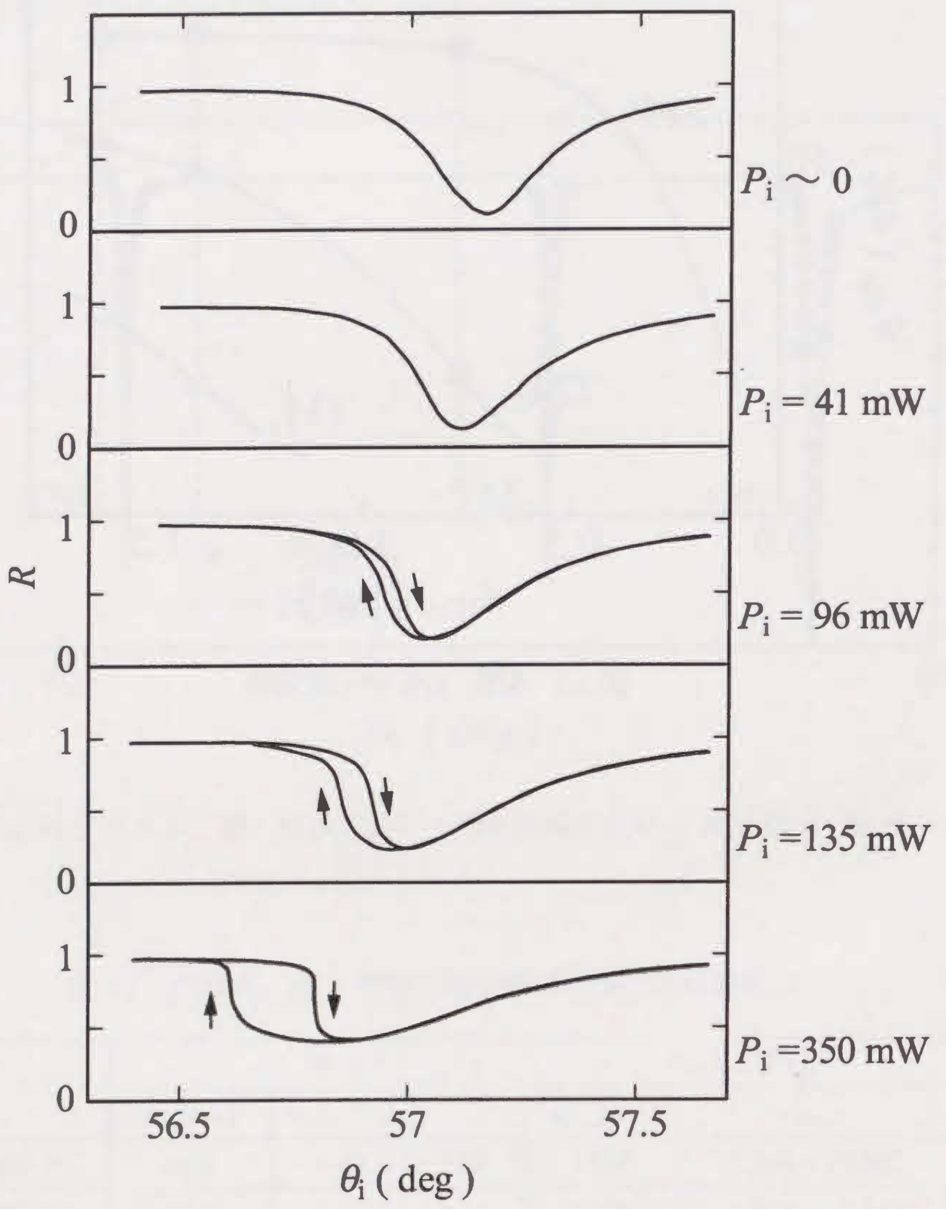


図 5.6 角度スキャン ATR 信号の入射光パワーP_i 依存性

またこの結果から，光双安定現象を得るために必要な P_i の下限値である臨界入射光パワーP_C を求めた。さらに，SPP の他，試料 A,B,C で得られる全ての TM_0-GW，TM_1-GW に対応する共鳴ディップについて同様の実験を行い，それぞれに対する P_C を求めた。PDA 膜厚 d_{PDA} に対する臨界入射光パワーP_C の関係を図 5.7 に示す。TM_0-GW よりも SPP 励起を用いた光双安定現象の方が P_C は小さく，SPP 励起を用いた場合でも d_{PDA} が最も大きい試料 A が最も P_C は小さくなった。なお，TM_1-GW 励起を用いた光双安定現象は，実験した入射光パワーの範囲内においては観測されなかった。

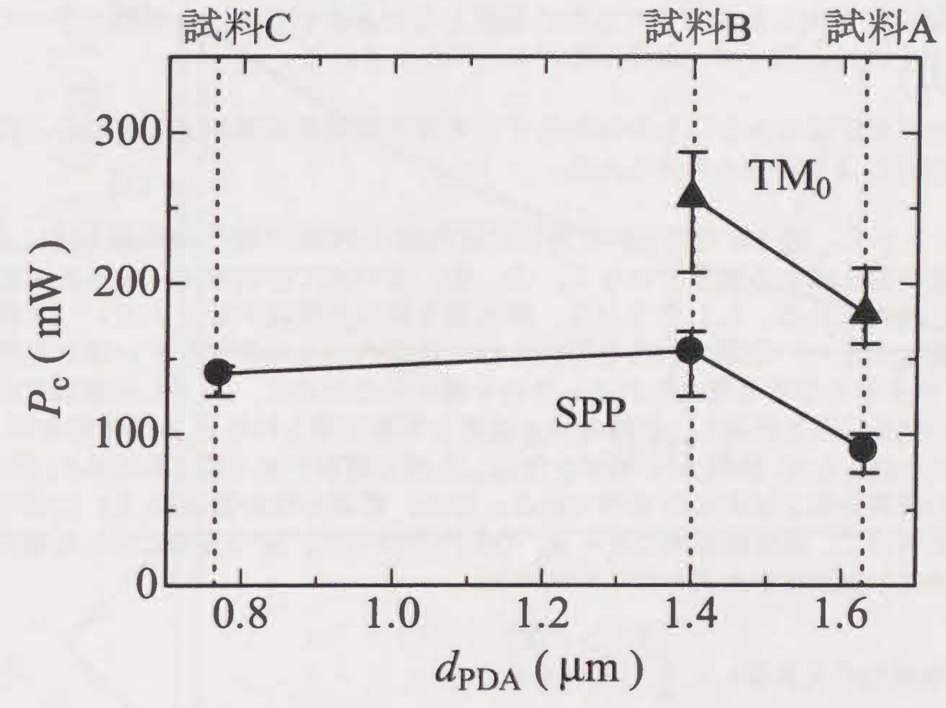


図 5.7 臨界入射光パワーP_c の PDA 膜厚 d_{PDA} 依存性

以上の結果から，得られた光双安定現象についていくつかのポイントに分けて考察する。

① 得られた現象は PDA 薄膜で光強度に依存した誘電率変化を示したことが原因であると考えられる。仮にそうだとすると，図 5.6 において P_i を大きくするとθ_{dip} が小さくなったことから，P_i を大きくすると PDA 薄膜の誘電率は小さくなることを示す。つまり，PDA 薄膜は負の非線形性を示していることになる。なお，λ= 1319 nm の波長では PDA の電子的非線形性は正の非線形性を示すことが知られており [3]，実験結果はこの事と矛盾する。

② 図 5.7 より，SPP 励起を用いた光双安定現象の P_c が最も小さかった。3－3 節で述べたシミュレーション結果では，GW の方が SPP よりも臨界入射光強度 I_c が小さくなっており，実験結果はこの事と矛盾する。また実験結果の P_c は，シミュレーションから予想された P_c よりも遙かに小さい。

③ モードロック Nd : YAG レーザ光（波長 1319 nm，パルス幅約 120 psec，繰り返し周波数 82 MHz）を入射光として瞬時的なピークパワーを大きくしても，時間平均パワーが同じであれば CW 光を入射光とした場合と同じ光双安定現象が現れた。また，P_i の変化に対して反射光強度が変化するまでに 1 秒以上の時間を要し，PDA の電子的非線形性で知られている時間応答速度（サブピコ秒）に比べ遙かに遅い。従って本研究で観測した光双安定現象の起源となる屈折率変化は，瞬時パワーのような速い変化には追随せず，時間平均パワーに左右される。

④ 入射光が有限幅であるにもかかわらず，光双安定現象が現れたことから，非局所的非線形性による現象と考えられる。

以上のことから，図 5.6 で得られた光双安定現象は PDA の電子的非線形性による自己誘起誘電率変化による現象ではなく，①，③，④の点で熱的効果による光双安定現象であると考えられる。もしそうなら，熱の発生源は光吸収が最も大きい（比誘電率の虚部が最も大きい）銀膜であると考えられ，銀膜内の光強度が大きいほど発熱量が大きく P_c は小さくなると考えられる。それを確かめるために，図 5.1 の構造における深さ方向の電界分布を計算し，銀膜内の光強度と実験で得られた P_c との相関を調べた。電界分布の一例として，試料 A で SPP を励起した時の電界分布を図 5.8 に示す。図 5.8(b) は銀膜内の電界分布を拡大したものである。なお，電界分布計算は表 5.1 に示したパラメータを用いて，線形応答時の $\theta_i = \theta_{dip}$ の条件で行った。図 5.8(b)に示した電界分布より，銀膜内の光強度を次式を使って求めた。

$$（銀膜内の光強度）= \int_0^{d_{Ag}} \left|E_z(z)\right|^2 dz \tag{5.1}$$

各試料，各 SPP，GW で発生した光双安定現象に対する銀膜内の光強度と P_c の関係を図 5.9 に示す。図 5.9 より，TM_0-GW よりも SPP の方が銀膜内の光強度が大きく，銀膜内の光強度と P_c は，ほぼ逆比例の関係があることがわかった。このことから，この実験で得られた光双安定現象は，

①銀膜内の光吸収で発生した熱が拡散して PDA 薄膜の温度を上昇させる。

②温度上昇にともなって PDA の熱による誘電率変化（負の誘電率変化）が生じる。

③誘電率変化によって SPP または GW の励起条件が変化し，銀膜内の光強度が変化する。

④熱拡散による非局所的非線形性によって光強度変化にフィードバックがかかり，さらなる光強度変化を引き起こす。

という行程で生じた，熱屈折率効果による光双安定現象であると結論づけられる。

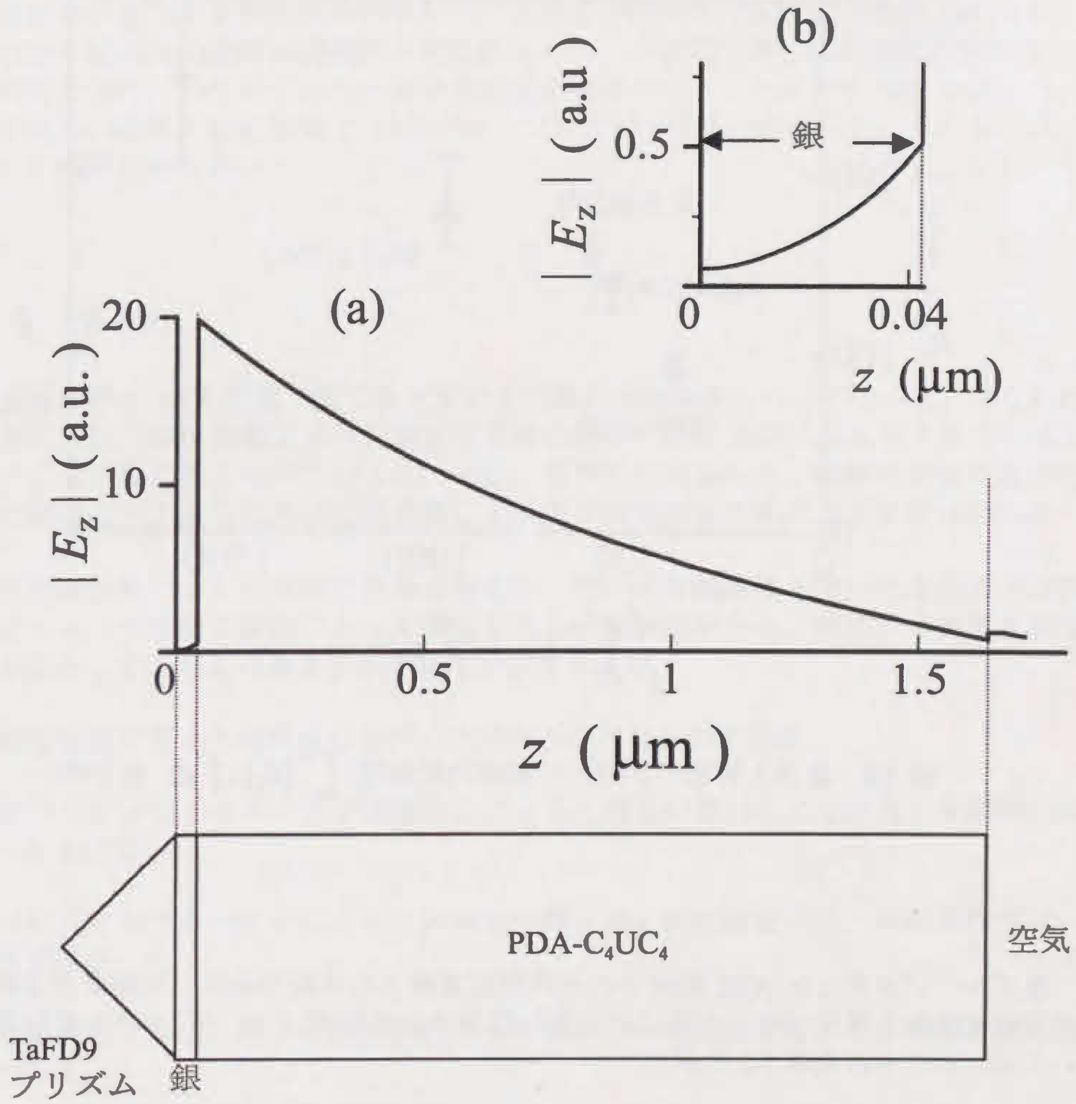


図 5.8　電界分布計算結果（試料 A，SPP 励起時）

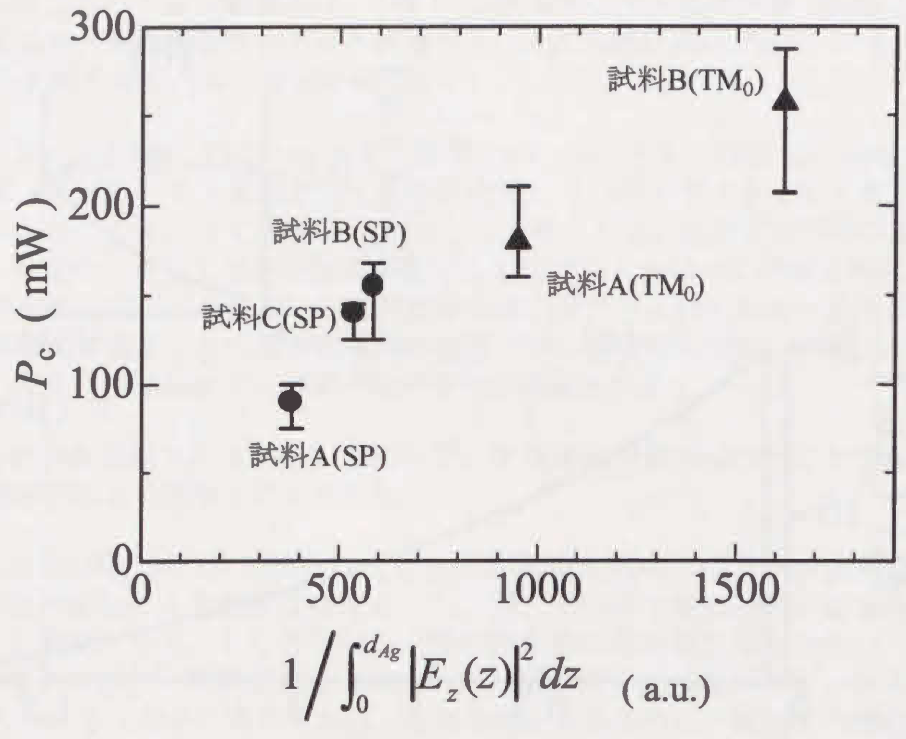


図 5.9　臨界入射光パワーP_cの銀膜内光強度 $\int_0^{d_{Ag}} |E_z(z)|^2 dz$ 依存性

他グループが行った ATR 配置での光双安定実験との比較の為に，非線形光学媒質，光双安定現象を発生させるためにに必要な臨界入射光強度 I_c ，スイッチング時間についてまとめたものを表 5.2 に示す。

表 5.2　ATR 配置での光双安定実験

	本研究	Martinot *et al.* 参考文献 4)	Innes *et al.* 参考文献 5)	Zhang *et al.* 参考文献 6)	Takeda *et al.* 参考文献 7)
非線形光学媒質	PDA-C_4UC_4	CS_2	ネマチック液晶 6CB	アゾベンゼンドープ PMMA	ZnS
使用波長 (nm)	1319	~600	632.8	575〜612	514.5
I_c (W/cm^2)	~3.1 (SPP) ~5.7 (TM$_0$)	~6 ×10^3 (SPP)	~42 (SPP)	~200 (SPP)	~6.1×10^3 (SPP)
スイッチング時間	~1 sec	~100 msec	~20 msec	——	——

表 5.2 に示した実験は全て SPP 活性媒質に銀を用いた ATR 配置によるものである。この中で，参考文献 4, 6, 7 は本研究と同様に銀膜で発生した熱によって非線形光学媒質の屈折率が変化する熱屈折率効果を用いた光双安定現象であるが，参考文献 5 は，液晶の分子配向効果を用いた光双安定現象である。本研究で得られた光双安定現象は，同一試料で SPP，TM$_0$ いずれも光双安定現象を発生させることができ SPP を用いた光双安定現象の臨界入射光強度 I_c は他グループに比べて最も小さかった。しかし，スイッチング時間は最も遅い。

5-4　まとめ

金属層を持つ ATR 配置で生じる光双安定現象の実験観測について述べた。得られた実験結果から，SPP 励起による光双安定現象の方が，GW 励起によるものよりも低入射光パワーで生じることがわかった。また，電界分布計算から，銀膜内の光吸収で発生した熱によって生じる熱屈折率効果による光双安定現象であることが明らかになった。

熱屈折率効果による光双安定現象の発生は，電子的非線形性を用いた高速の光双安定，光スイッチ現象の観測にとって障害となる。実験結果から，熱屈折率効果を除去する方法として次のようなことが必要だと考えられる。

①ATR 配置に用いる材料はなるべく光損失の小さなものを選ぶ。

②モードロック・Qスイッチ技術などによる入射光の短パルス化によって瞬時パワーを上げる。

③パルスセレクターなどによってパルスの繰り返し周波数を下げ，時間平均パワーを下げる

これらを併用すれば，電子的非線形性による現象のみを観測することが可能になると考えられる。

＜参考文献＞

1) T.Okamoto, T.Hasegawa, M.Haraguchi and M.Fukui : *Proc. 9th Int. Autumn School-Conf. Young Scientists Solid State Physics Fundamentals and Applications, Uzhgorod, Ukraine, 1995* (Inst. Semicond. Phys., Kiev, 1995) R3.
2) M.Haraguchi, T.Okamoto, H.Hayashi, T.Hasegawa, T.Akamatsu, M.Fukui, T.Koda and K.Takeda : Thin Solid Films **331**(1998)39.
3) C.C.Hsu, Y.Kawabe, Z.Z.Ho, N.Peyghambarian, J.N.Polky, W.Krug and E.Miao : J. Appl. Phys. **67**(1990)7199.
4) P.Marrinot, A.Koster and S.Laval : IEEE J. Quantum Electron. **21**(1985)1140.
5) R.A.Innes and J.R.Samble : J. Phys. Condens. Matter **1**(1989)6231.
6) Z.Zhang H.Wang, P.Ye, Y.Shen and X.Fu : Appl. Opt. **32**(1993)4495.
7) Y.Takeda, T.Motohiro, Tatsumi Hioki and S. Noda : J. Opt. Soc. Am. B **12**(1995)1905.

第六章
電子的非線形性による光スイッチ現象の実験観測 [1)]

前章まででで述べたように，低光損失の材料で構成された ATR 配置を用いることは，非線形光学現象を低入射光パワーで動作させる事はもちろん，熱屈折率効果による諸現象を除くためにも必要である。この章では四章で提案した対称導波路構造を持つ ATR 配置を用いて，光スイッチ現象を実験的に観測することについて述べる。

6－1　光スイッチ現象観測用の試料作製

実験で用いた ATR 配置を図 6.1 に示す。

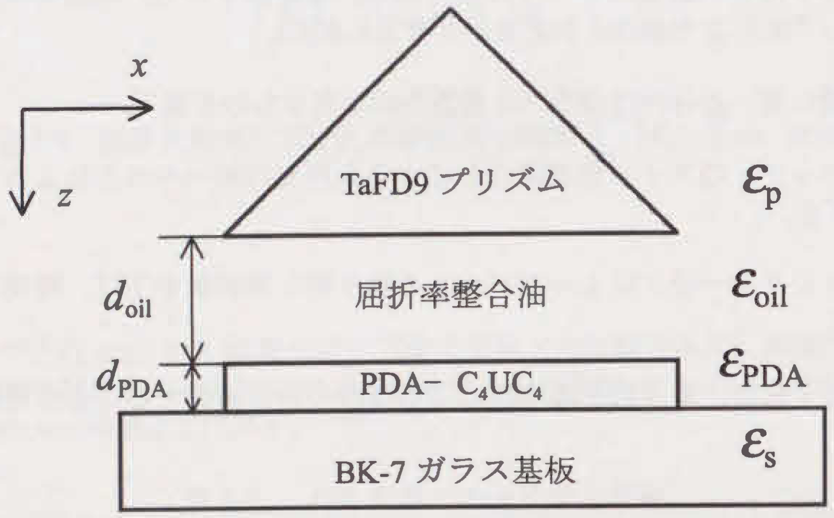


図 6.1　光スイッチ現象実験観測用 ATR 配置

実験波長 λ= 1319 nm において屈折率（誘電率）が BK-7 ガラス基板と同じである屈折率整合油を使用し，導波路となる三次非線形光学媒質の PDA-C_4UC_4 真空蒸着膜を BK-7 ガラスと屈折率整合油で挟んだ対称導波路構造を用いた。図 6.1 に示した ATR 配置の作製行程を以下に示す。

行程 1　DA モノマー蒸着及び光重合

BK-7 基板上に真空蒸着法によって DA-C_4UC_4 薄膜を作製した。さらに，D_2 ランプを照射して DA-C_4UC_4 薄膜を光重合させ，PDA-C_4UC_4 薄膜とした。蒸着条件，重合条件は 5－1 節で述べた行程 2，3 と同じである。

行程 2　屈折率整合油層の調整

TaFD9 プリズムと PDA-C_4UC_4 薄膜の間を屈折率整合油で満たす。マイクロメータを用いて屈折率整合油の厚さをμm 以下のオーダーで調整できる。これにより，入射光と GW との結合効率を自由に制御できる。なお，屈折率整合油は Cargille 標準屈折液 TypeA n_D=1.518 (25 ℃での値) を用いた。この屈折率整合油は $-dn_D/dT = 3.95\times10^{-4}$ /℃ の屈折率の温度依存性を持つので，測定中に屈折率整合油の屈折率 ≈ BK-7 基板の屈折率となる雰囲気温度 $T = 19.5 \pm 0.5$ ℃ に保って実験を行った。

行程 1，2 によって，質量膜厚 18 nm の PDA-C_4UC_4 薄膜を導波層とする ATR 配置を作製した。

6－2　線形光学特性（ATR 信号と伝播距離測定）

GW 励起角の確認と，GW の伝搬距離を測定するため，角度スキャン ATR 測定と空間分布測定を行った。実験系を図 6.2 に示す。

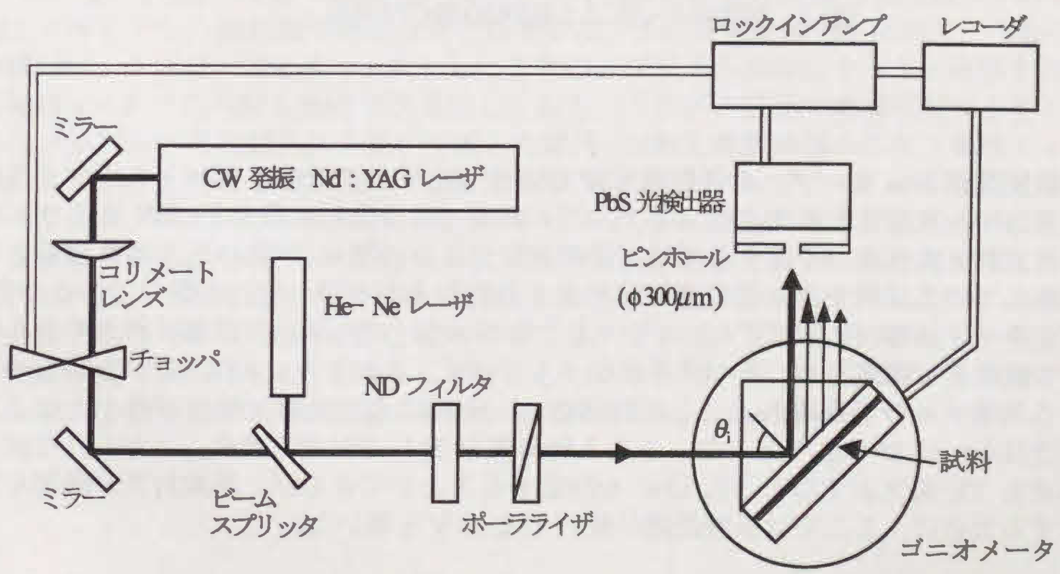


図 6.2　ATR 信号測定系

入射光は連続発振の Nd:YAG レーザ光（λ = 1319 nm）を用い，線形光学特性を測定するために ND フィルタによって入射光パワーを十分小さくして実験を行った。なおプリズム底面位置でのビーム広がりを小さくするため，コリメートレンズにてビーム広がりを制御した。

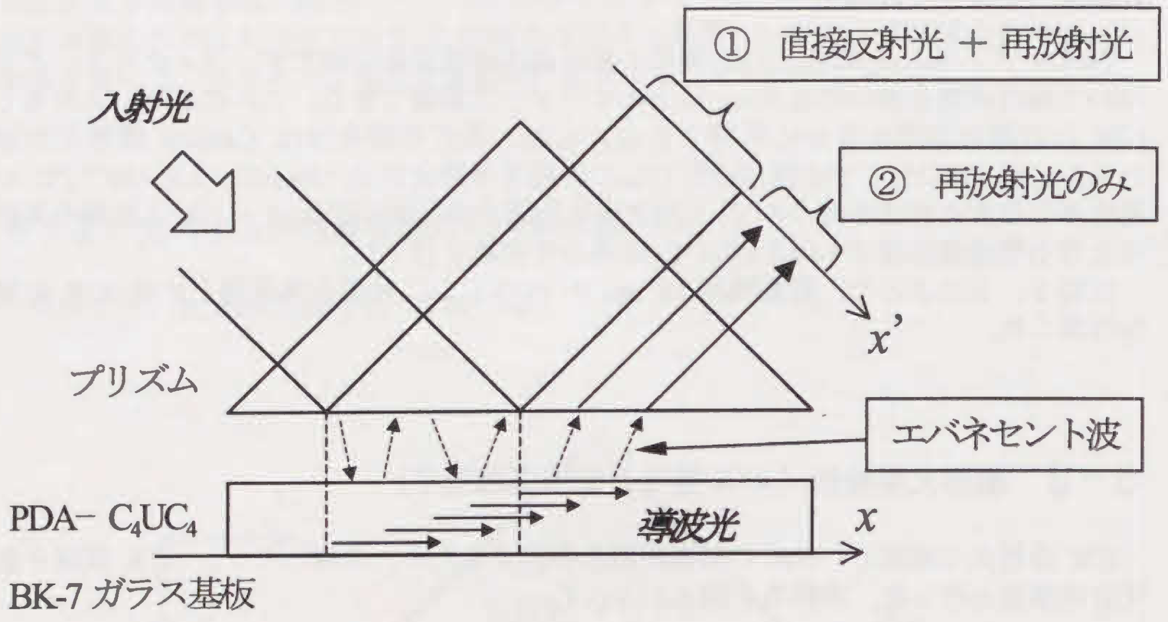


図6.3 有限幅ビームによる長距離伝搬GW 励起

伝搬距離が mm オーダーの長距離伝搬 GW が励起されたとき，図 6.3 に示すようにプリズムから放射される光には，①プリズム底面で直接反射する光と GW からプリズムへ再放射される光が干渉する領域，②再放射光のみの領域 が現れる。ATR 信号として観測している反射光は，①の直接反射光と再放射光が干渉している部分であるので，角度スキャン ATR 信号は図 6.2 に示すようなピンホールを用いて直接反射光の中心部分での反射光で測定した。その結果を図 6.4 に示す。これより，ATR 信号に TM_0–GW による共鳴ディップが現れることが確認され，それによる反射光強度が最小となる入射角度はθ_i = 55.84 deg であった。この入射角度を TM_0–GW 励起角θ_{TM0}とおく。なお，入射光を TE 偏光とすると TE_0–GW を励起することができるが，再放射光の観測を容易にするために，ここでは伝搬距離が長い TM_0–GW を用いた。

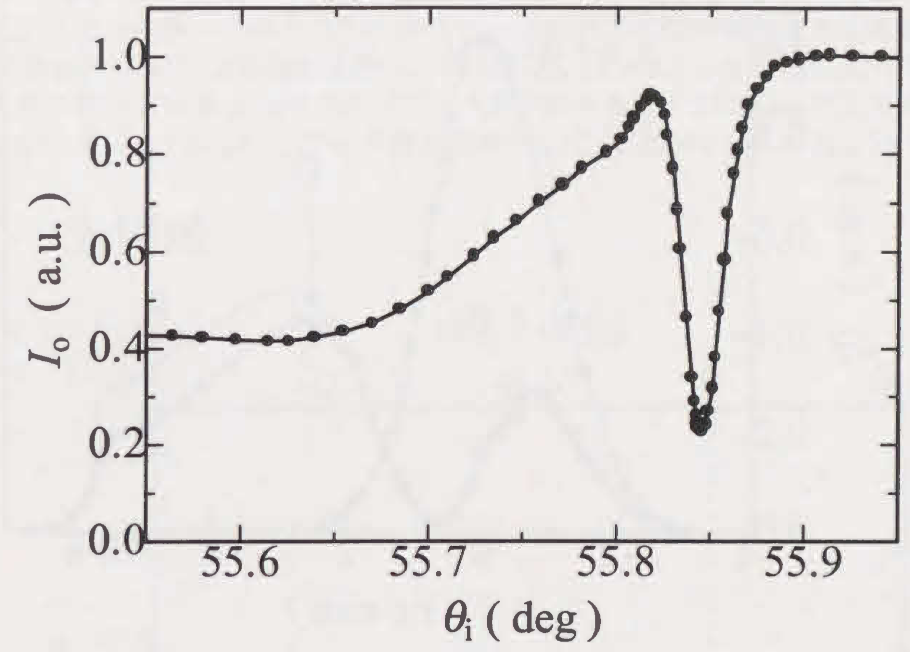


図 6.4 角度スキャン ATR 信号

次に入射角を$\theta_i = \theta_{TM0}$で固定し，ピンホールの付いた PbS 光検出器を図 6.3 の x' 方向にスキャンし，出射光の空間分布を測定した。その結果を図 6.5 に示す。なお図 6.5 の横軸は，入射光の中心を $x = 0$ としたときの，プリズム底面にそった x 座標を表す。縦軸は $x = 0$ での入射光強度で規格化してある。プリズム底面で直接反射する光と GW からプリズムへ再放射される光が干渉した結果，出射光強度が極小になる場所（ $x = 0.7$ mm ）があり，そこを境界として主に直接反射光成分をもつピークと再放射光成分のピークのダブルピークが現れる。図 6.5 中の A は GW からの再放射光のみが出射している領域である。なお，x = 5.53 mm に試料の端面があったため，再放射光はここで途切れている。この再放射光は GW の特性を反映し，再放射光強度の x 方向に対する減衰の様子から GW の伝搬距離 l_m を求めることができる。[2] 図 6.5 の縦軸を光強度の自然対数目盛で表したものを図 6.6 に示す。l_m はエネルギーが 1/e に減衰する距離で定義される。l_m を図 6.6 の A の領域の傾きから見積もると， l_m = 2.6 mm であった。

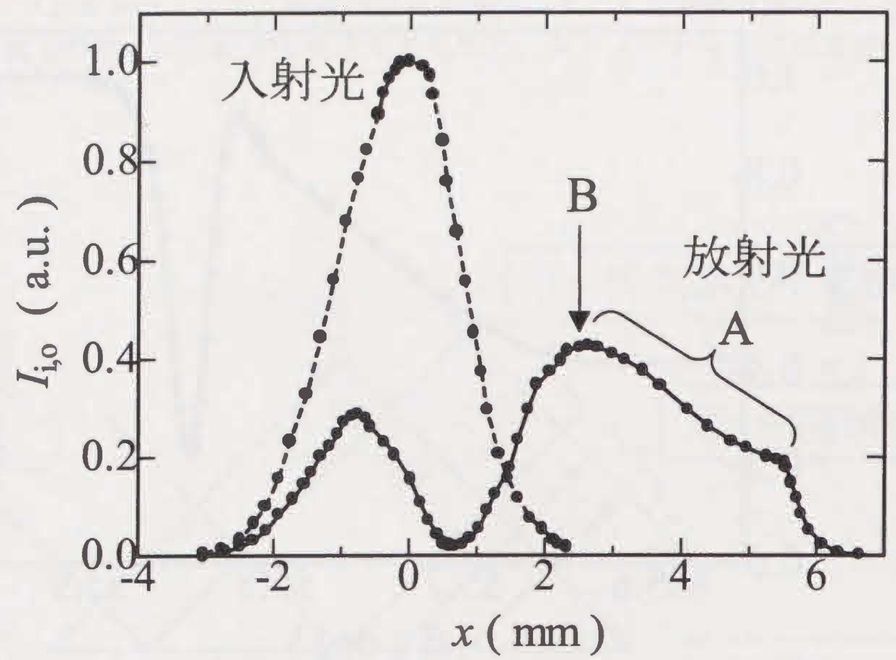


図 6.5　プリズム底面における出射光の空間分布

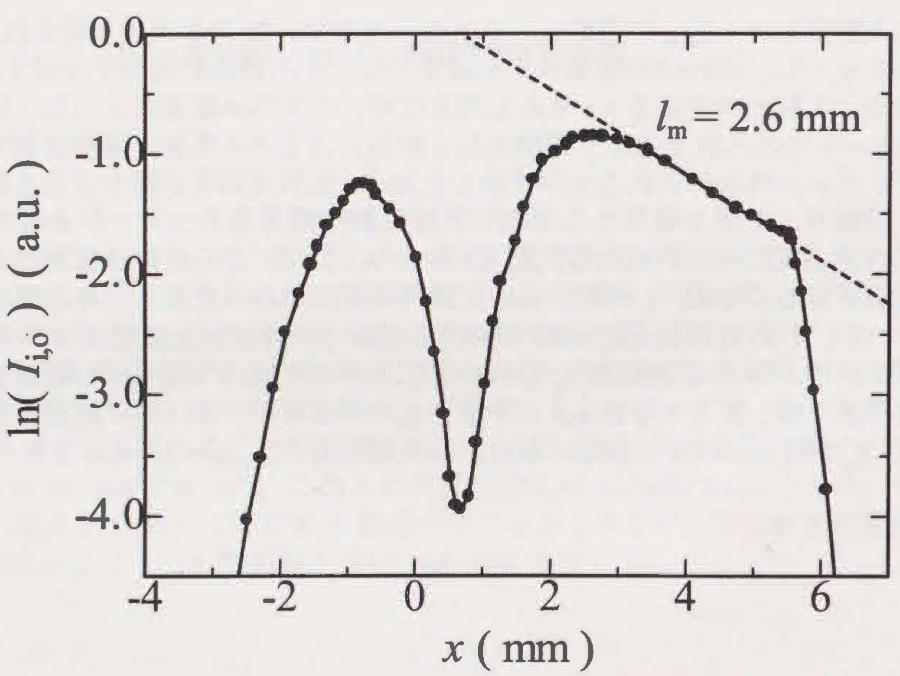


図 6.6　プリズム底面における出射光の空間分布（対数表示）

再放射光の強度は，導波層内の GW による光強度に比例する。従って，入射光強度に対して GW 光強度が非線形応答をしたときには再放射光も非線形応答を示すはずである。そこで，次節の非線形光学実験では，再放射光強度が最も大きい位置 $x = 2.5$ mm（図 6.5 B 点）における再放射光強度に注目する。$x = 2.5$ mm 位置における再放射光強度の角度スキャン信号を図 6.7 に示す。入射角 $\theta_i = \theta_{TM0} = 55.84$deg のとき再放射光強度は最大となる。$\theta_i = \theta_{TM0}$ のときの角度を基準とした角度 $\Delta\theta_i$ ($= \theta_i - \theta_{TM0}$)を定義する。

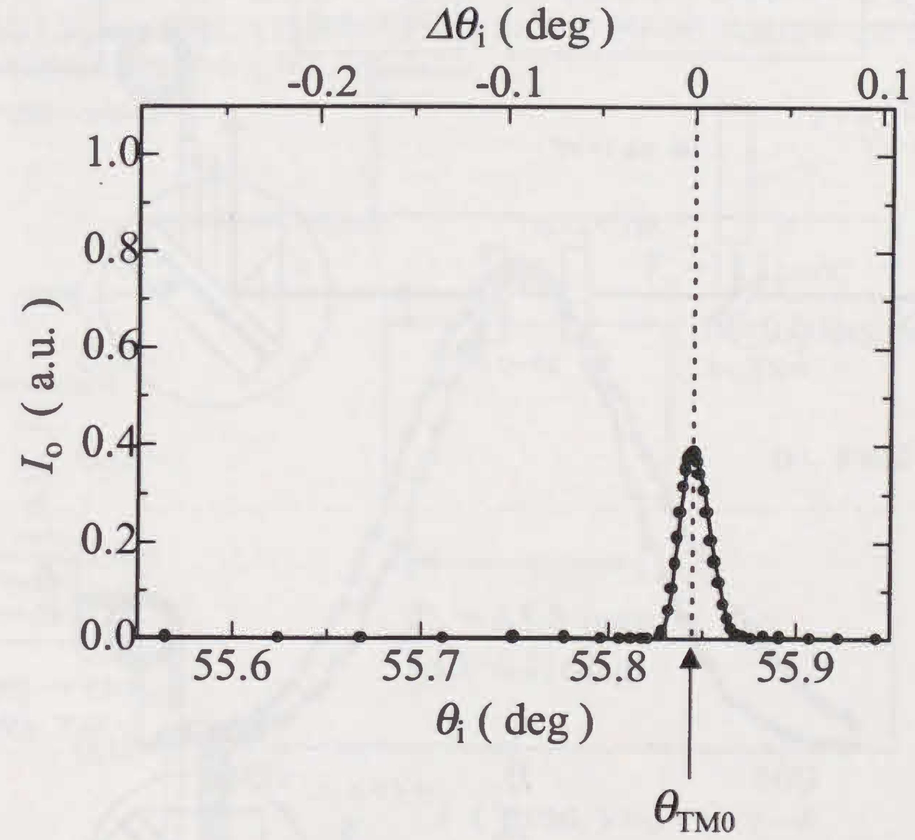


図 6.7　再放射光強度の入射角度依存性

6－3　光スイッチ現象の観測（パルスナローイング現象の観測）

非線形光学効果を観測するために図 6.8(a)の測定系を用いた。入射光の瞬時パワーを上げるために，モードロック Q スイッチ動作の Nd : YAG レーザを用いた。

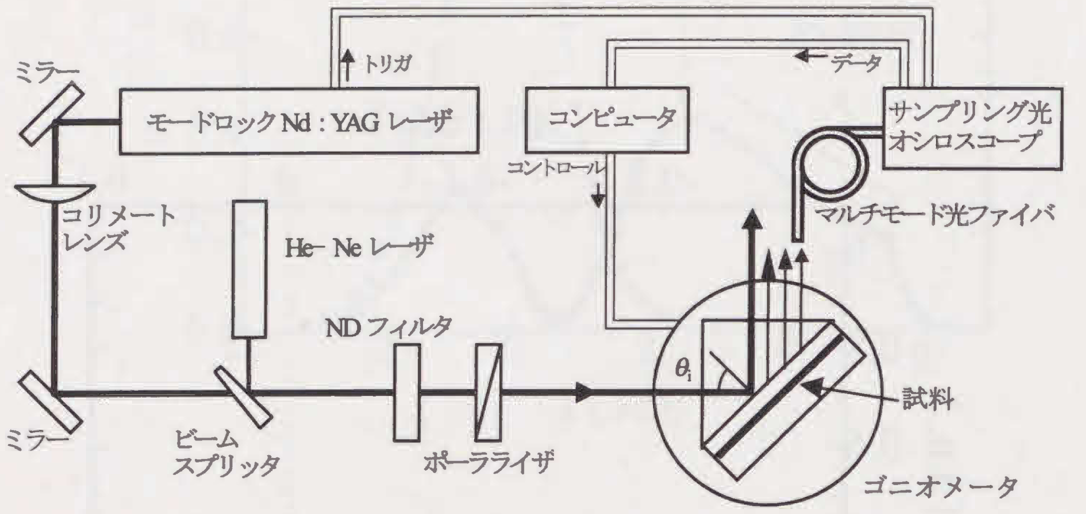


図 6.8　(a)

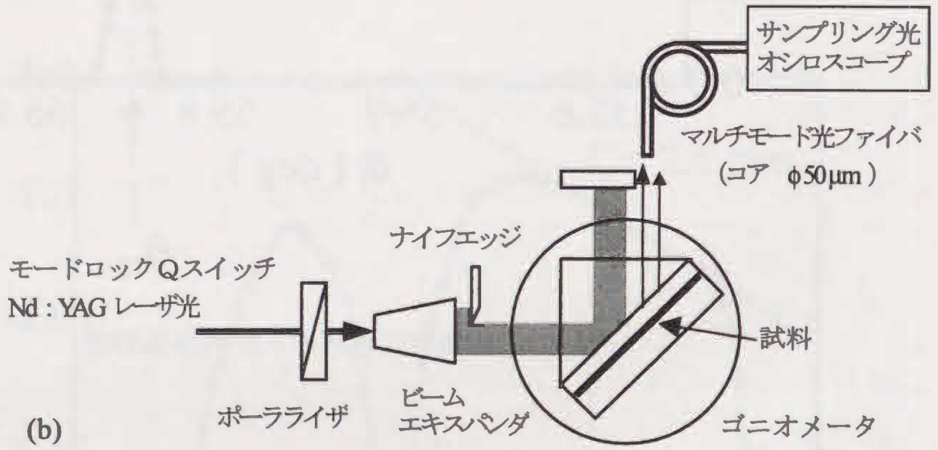


図 6.8　(b)

図 6.8　再放射光時間パルス波形測定系

図 6.5 の x = 2.5 mm の位置における再放射光をマルチモード光ファイバで選択的に取り出し，再放射光強度 I_o の時間波形をサンプリング光オシロスコープで観測した。その結果の一例として，パルス幅 T_{wi}~100 psec，繰り返し周波数 82 MHz のモードロック動作で，時間平均入射光パワーP_{i-ave} = 1.02 W（ピークパワーP_{i-peak} = 124 W，位置 x = 0 における入射光ピーク強度 I_{i-peak} = 7.02 kW/cm^2)における結果を図 6.9 に示す。なお，I_oはピーク値が 1 となるように規格化してある。再放射光の時間パルス幅が，$\Delta\theta_i$ = 0.00 deg では T_W = 111 psec であったのに対し，$\Delta\theta_i$ = 0.016 deg では T_W = 88.8 psec と狭くなることがわかった。この時間パルスのナローイング現象は，入射角が$\Delta\theta_i$ = 0.016 deg 付近で，P_{i-ave} を大きくしたときのみ生じた。この現象は入射光から GW へ移るエネルギー透過率が入射光パワーに依存して変化していることを示しており，また入射光パワーの時間的変化に追随して透過率が変化していることから，高速応答である PDA の電子的非線形性に起因すると考えられる。

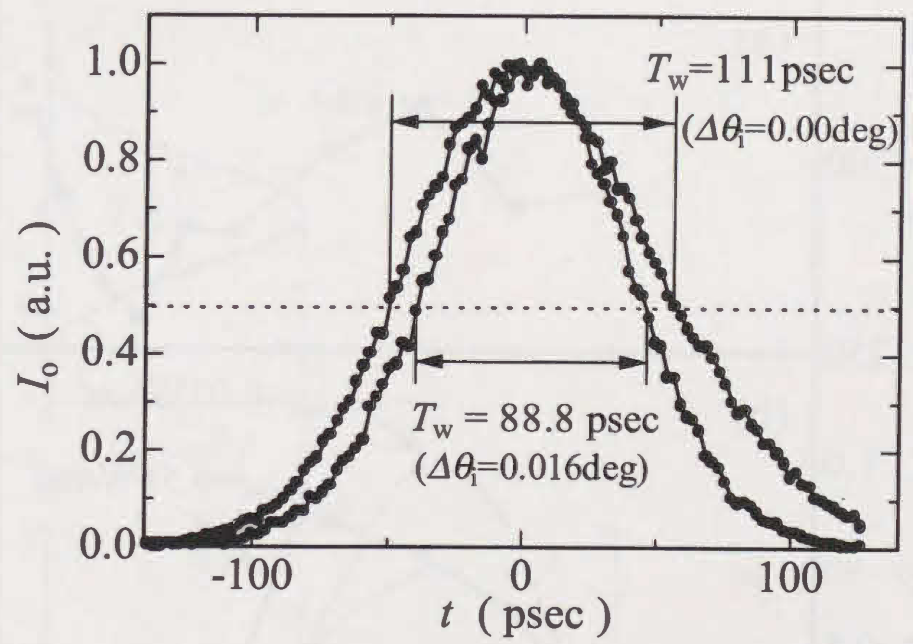


図 6.9　再放射光の時間パルス波形

第 4 章で述べたように，低入射光パワーで光スイッチ現象を生じさせるためには，入射光のビーム広がり角を押さえ，入射光のビーム直径 D_i を GW の伝搬距離 l_m の 2~10 倍程度にする必要がある。そのために図 6.8(b)のようにポーラライザと試料との間にビームエキスパンダをおいて，入射光のビーム直径 D_i を 10 mm にした。また，入射光のピークパワーを上げるために Nd:YAG レーザをモードロック Q スイッチ動作させて，繰り返し周波数 802 Hz，パルス幅 2.2 μsec（モードロック繰り返し周波数 82 MHz，パルス幅 T_{wi} ~ 300 psec）のジャイアントパルスを入射した。入射光の中心（x = 0）における時間平均入射光強度を I_{i-ave} = 0.56 W/cm^2（ピーク強度 I_{i-peak} = 13 kW/cm^2）とし

たときの，$\Delta\theta_i$ に対する再放射光の時間パルス幅 T_W と再放射光パルスのピーク強度 I_{peak} の測定結果を図 6.10 に実線で示す。図 6.10(b)の破線は，線形応答時（$I_{i-ave} < 0.01\ W/cm^2$）における$\Delta\theta_i$ に対する再放射光パルスのピーク強度 I_{peak} を表す。図 6.10(a)より，$\Delta\theta_i$ = 0.0080 deg のとき，T_w が小さくなるパルスナローイング現象が見られた。また，図 6.10(b)実線より，I_{peak} は TM_0-GW 励起角の$\Delta\theta_i$ = 0 deg ではなく，$\Delta\theta_i$ = 0.0045 deg の時に最大となった。つまり入射光強度が大きくなるにつれて TM_0-GW モード励起角が高角度側に移動したことになる。見方を変えれば，PDA 膜の屈折率が光強度に対して変化するため，$\Delta\theta_i$ = 0 deg では入射光強度が大きくなるにつれ TM_0-GW 励起条件から離れ，I_{peak} は減少する。一方$\Delta\theta_i$ = 0.0045 deg では入射光強度が大きくなるにつれ TM_0-GW 励起条件に近づくため I_{peak} は増加していることになる。

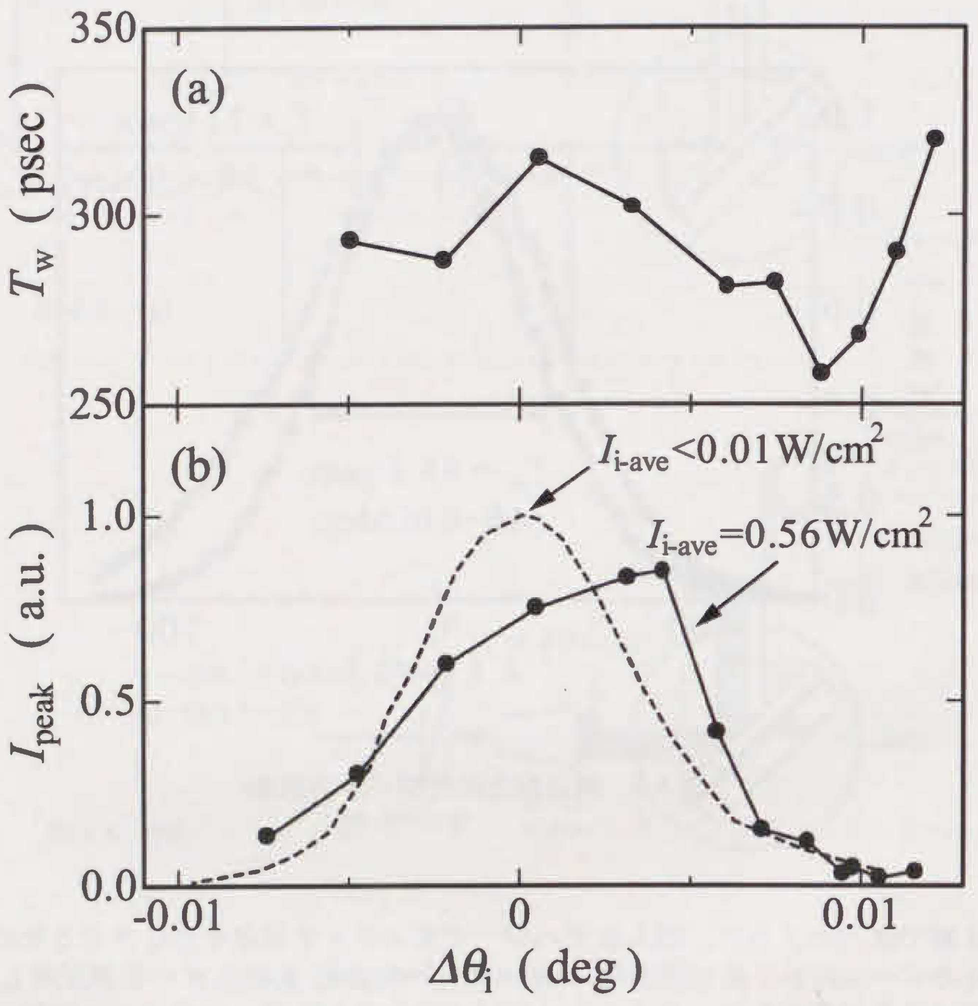


図 6.10　再放射光のパルス幅 T_w，パルスピーク強度 I_{peak} の$\Delta\theta_i$ 依存性

パルスナローイング現象が発生する原因について述べる。PDA 膜が GW によって自己誘起屈折率変化を起こしたとき，ある条件の下では四章で述べたような光スイッチ現象が生じると考えられる。しかし入射光強度が光スイッチ現象の臨界入射光強度に達していない，又は$\Delta\theta_i$ が十分な大きさでなかった場合，入射光強度 I_i と導波光強度 I_g との関係は，第 4 章で述べた計算結果から図 6.11(b)のような曲線になると考えられる。再放射光強度が I_g と比例関係にあるとすると，図 6.11(a)のようなパルス幅 T_{wi} の時間パルスが入射したとき，(b)の特性によって (c)のようになると考えられる。この時パルス幅 T_{wo} は $T_{wo} < T_{wi}$ となり，パルスナローイング現象を示す。

また，十分大きな入射光強度によって光スイッチ現象を生じさせることができたならば，図 6.12 のように入射パルス (a)は (b)の特性を経て，(c)の様な光スイッチング(OS)を示すパルスが得られると考えられる。このときも $T_{wo} < T_{wi}$ となり，パルスナローイング現象を示す。

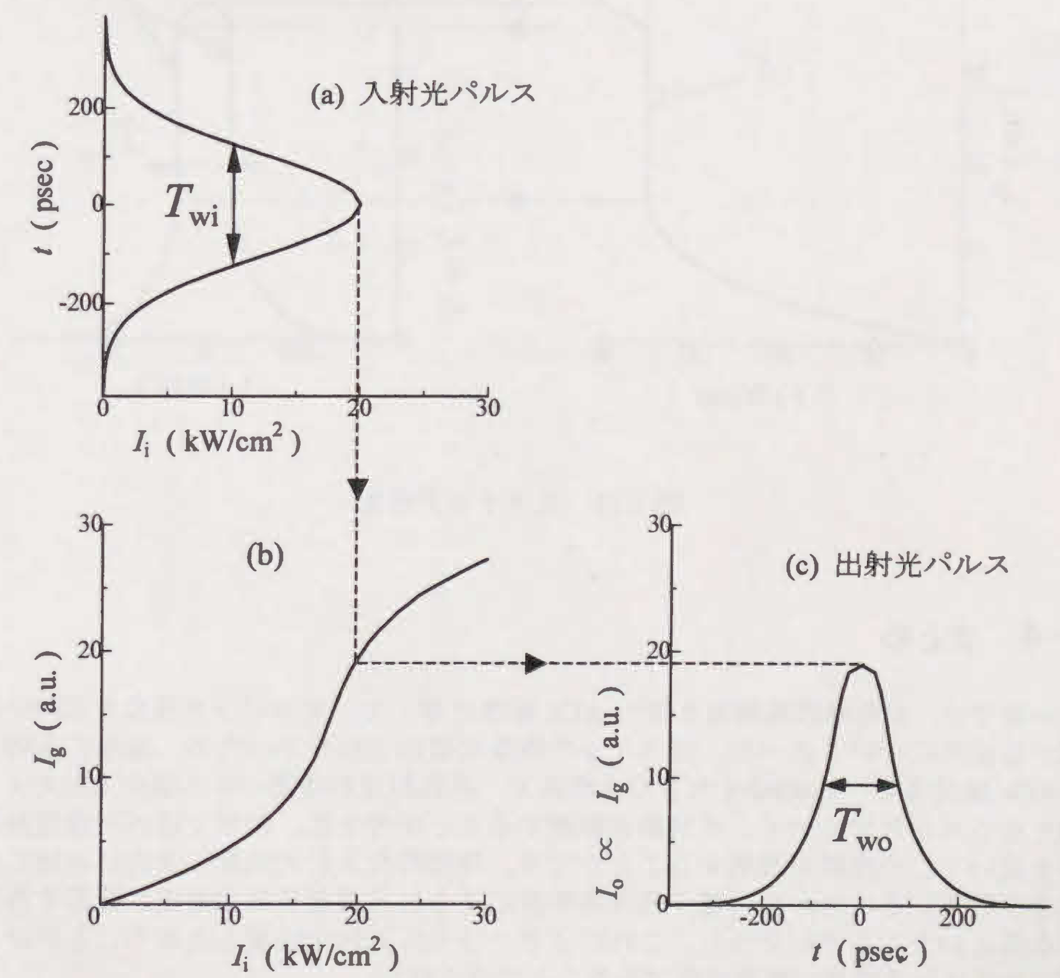


図 6.11　パルスナローイング現象

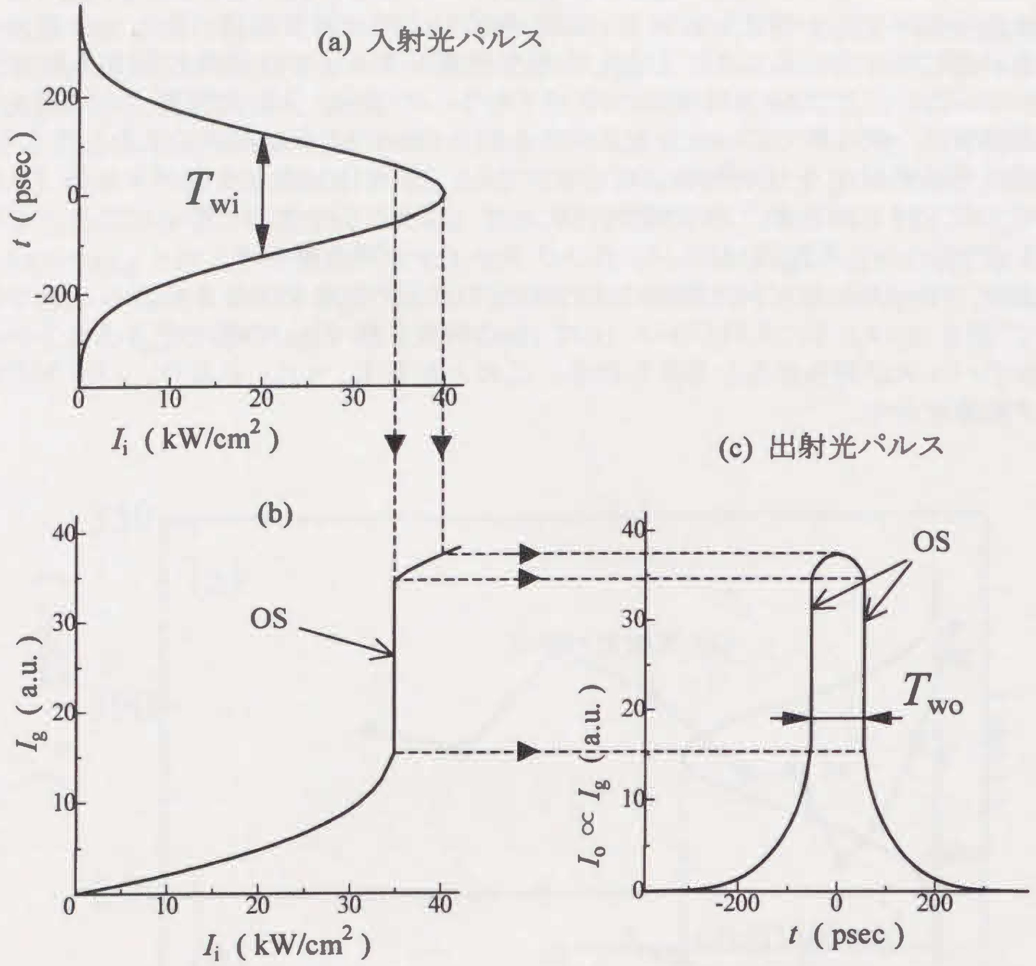


図 6.11　光スイッチ現象

6－4　まとめ

この章では，対称導波路構造を持つ ATR 配置を用いて，光スイッチ現象を実験的に観測する試みについて述べた。光スイッチ現象は観測されなかったが，線形応答時の TM_0-GW 励起角より 0.008deg 大きな入射角で，再放射光の時間パルス幅が入射光よりも狭くなるパルスナローイング現象を観測することができた。四章で述べた数値計算結果を用いてこの現象を説明することができ，時間的な入射光強度の変化に追随した応答を示していることから，電子的非線形性による自己誘起屈折率変化に起因する現象であるということがわかった。これにより，さらに入射光強度を高めることができれば，光スイッチ現象が観測可能であることが示された。

<参考文献>

1) T.Okamoto, T.Hasegawa, T.Uetai, M.Takabayashi, M.Haraguchi, M.Fukui, T.Koda and K.Takeda : Nonlinear Optics **22**(1999)401.
2) 高林正和：博士論文“対称スラブ構造における導波光および表面ポラリトン”，徳島大学大学院工学研究科(1996).

第七章
グレーティング構造を持つチャネル導波路での光双安定現象[1)]

チャネル導波路は光配線の集積化に利用できる他，二次元導波路よりも光閉じ込め効果が大きいため，光強度を高めることができ，非線形光学現象の低パワー動作が期待できる。

Stegeman ら[2)]は，光双安定現象を発生させるためには，フィードバック機構が必要で，それには分布帰還型グレーティングによって可能になることを示した。またチャネル導波路を用いることで狭い領域に光を閉じ込め，光双安定現象を得るために必要なパワーを小さくできることを示した。この論文中の計算の結果，InSb のような半導体を用いた場合はナノワットレベルで，PTS のような有機材料ではワットレベルで光双安定現象が起きうることを示している。彼らは非線形光学材料は光損失を無視して，光カー効果のみを取り扱っている。しかし，チャネル導波路に存在する電界の伝搬路方向成分に関連した非線形性の取り扱いが厳密には正しくない。

本章では，周期構造を持つ非線形チャネル導波路で生じる光双安定現象に注目し，その現象を左右する結合波方程式のより厳密な取り扱いについて述べる。そしてその結合波方程式の計算機シミュレーション結果から導波路やグレーティングパラメータが光双安定現象に与える影響について述べる。

7－1　レリーフ型グレーティングを持つチャネル導波路における非線形結合波理論

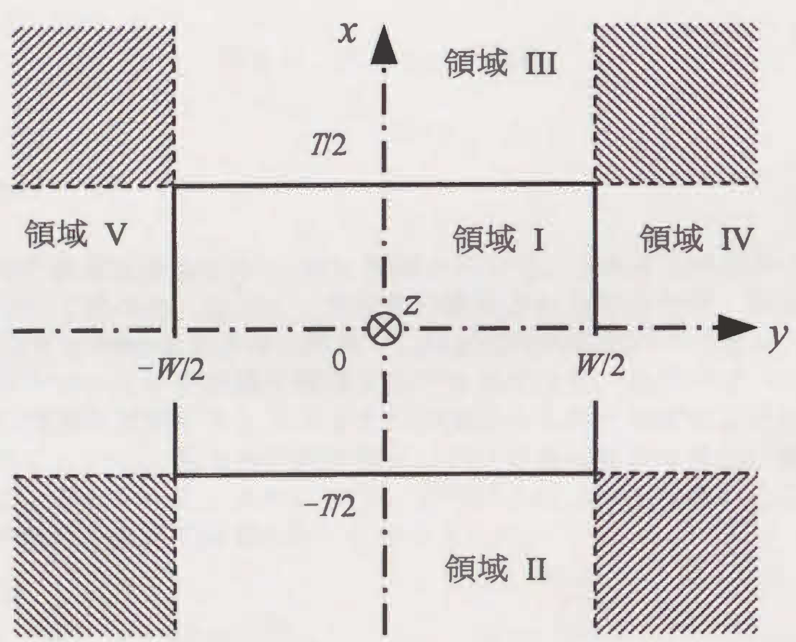


図 7.1　チャネル導波路断面

図 7.1 に示すようなチャネル導波路を考える。図中の I~V までの５つの領域に注目する。コアとなる領域 I は周りの領域よりも屈折率が大きい。導波光（GW）は $\exp[i(\omega t - k_{//} z)]$ の関係で，z 方向に伝搬するとおく。ここで ω は角周波数，$k_{//}$ は GW の伝搬方向（z 方向）に対する波数である。この構造において，カットオフ条件から離れた GW に対する取り扱いは Marcatili[3)]によって行われている。カットオフから離れた状態とは，GW の電界分布が領域 I 内に閉じ込められ，図 7.1 の斜線の領域の電磁界は非常に小さいため無視できる状態である。各領域の電界はマクスウェル方程式と境界条件によって決まる。本論文では主に x 方向に偏光した GW，すなわち E^x モードについて取り扱う。

まず，x-y 平面内における電磁界分布を考える。$\exp[i(\omega t - k_{//} z)]$ の関係で伝搬する E^x モードであれば，領域 I の電磁界成分は以下のようになる。

電界（領域 I）

$$\begin{aligned} E_{1x}(x,y) &= iA\frac{k_0^2 n_1^2 - k_x^2}{k_{//}}\sin(k_x x + \phi_x)\cos(k_y y + \phi_y) \\ &\approx iA\frac{k_0^2 n_1^2}{k_{//}}\sin(k_x x + \phi_x)\cos(k_y y + \phi_y) \end{aligned} \tag{7.1}$$

$$E_{1y}(x,y) = -iA\frac{k_x k_y}{k_{//}}\cos(k_x x + \phi_x)\sin(k_y y + \phi_y) \approx 0 \tag{7.2}$$

$$E_{1z}(x,y) = Ak_x\cos(k_x x + \phi_x)\cos(k_y y + \phi_y) \tag{7.3}$$

磁界（領域 I）

$$H_{1x}(x,y) = 0 \tag{7.4}$$

$$H_{1y}(x,y) = Ak_0 n_1^2\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\sin(k_x x + \phi_x)\cos(k_y y + \phi_y) \tag{7.5}$$

$$H_{1z}(x,y) = -A\frac{k_0 k_y n_1^2}{k_{//}}\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\sin(k_x x + \phi_x)\sin(k_y y + \phi_y) \tag{7.6}$$

ここで，真空中の波数 $k_0 = \omega/c = 2\pi/\lambda$ である。k_x，k_y はそれぞれ領域 I における波数の x 方向成分と y 方向成分で，$n_1^2 k_0^2 - k_{//}^2 = k_x^2 + k_y^2$ の関係がある。A は振幅を表す係数，ϕ_x，ϕ_y は初期位相を表す。

領域 III では，

<u>電界（領域 III）</u>

$$E_{3x}(x,y) = -\mathrm{i}A\frac{k_x\left(\gamma_3^2 + n_3^2k_0^2\right)}{\gamma_3 k_{//}}\cos\left(\frac{k_xT}{2} + \phi_x\right)\cos(k_y y + \phi_y)\exp\left[-\gamma_3\left(x - \frac{T}{2}\right)\right] \tag{7.7}$$

$$E_{3y}(x,y) \approx 0 \tag{7.8}$$

$$E_{3z}(x,y) = Ak_x\cos\left(\frac{k_xT}{2} + \phi_x\right)\cos(k_y y + \phi_y)\exp\left[-\gamma_3\left(x - \frac{T}{2}\right)\right] \tag{7.9}$$

<u>磁界（領域 III）</u>

$$H_{3x}(x,y) = 0 \tag{7.10}$$

$$H_{3y}(x,y) = -\mathrm{i}A\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\frac{n_3^2k_xk_0}{\gamma_3}\cos\left(\frac{k_xT}{2} + \phi_x\right)\cos(k_y y + \phi_y)\exp\left[-\gamma_3\left(x - \frac{T}{2}\right)\right] \tag{7.11}$$

$$H_{3z}(x,y) = A\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\frac{n_3^2k_xk_yk_0}{\gamma_3k_{//}}\cos\left(\frac{k_xT}{2} + \phi_x\right)\sin(k_y y + \phi_y)\exp\left[-\gamma_3\left(x - \frac{T}{2}\right)\right] \tag{7.12}$$

ここで，$n_3^2k_0^2 - k_{//}^2 = k_y^2 + \gamma_3^2$ である。領域 II, IV, V の３つの領域の電磁界表式についても同様に求められる。

k_x, k_y は境界条件（H_z の連続性）から求まる。k_x は次式で決定される。

$$\tan k_xT = \frac{n_1^2k_x\left(n_3^2\gamma_2 + n_2^2\gamma_3\right)}{n_2^2n_3^2k_x^2 - n_1^4\gamma_2\gamma_3} \tag{7.13}$$

$$\gamma_{2,3} = \sqrt{\left(n_1^2 - n_{2,3}^2\right)k_0^2 - k_x^2} \tag{7.14}$$

k_y は次式を用いて得られる。

$$\tan k_yW = \frac{k_y(\gamma_4 + \gamma_5)}{k_y^2 - \gamma_4\gamma_5} \tag{7.15}$$

$$\gamma_{4,5} = \sqrt{\left(n_1^2 - n_{4,5}^2\right)k_0^2 - k_y^2} \tag{7.16}$$

ここで，式中の 2, 4, 5 の添字はそれぞれ領域 II, IV, V を表す。k_x, k_y が求まると，$k_{//}$ が

求まる。さらに ϕ_x, ϕ_y も次式によって求まる。

$$\tan\left(\phi_x - \frac{k_xT}{2}\right) = \frac{n_2^2k_x}{n_1^2\gamma_2} \tag{7.17}$$

$$\tan\left(\phi_y - \frac{k_yW}{2}\right) = \frac{\gamma_4}{k_y} \tag{7.18}$$

次に GW の伝搬方向に対する電磁界の振る舞いについて考える。領域 I に図 7.2 に示すようなレリーフ型のグレーティング構造を持ち，自己誘起屈折率変化を示す材料があるとする。この構造に対する非線形結合波方程式を，線形結合波方程式を基にした Marcuse の方法 [4] を用いて導出する。まず，前方（$+z$ 方向）に伝搬する GW（前進波）の電磁界を $\tilde{\mathbf{E}}_\mathrm{F}$, $\tilde{\mathbf{H}}_\mathrm{F}$ とし，後方（$-z$ 方向）に伝搬する GW（後進波）の電磁界を $\tilde{\mathbf{E}}_\mathrm{B}$, $\tilde{\mathbf{H}}_\mathrm{B}$ とする。このとき，グレーティング内部の電磁界 $\tilde{\mathbf{E}}$, $\tilde{\mathbf{H}}$ は次式のようになる。

$$\tilde{\mathbf{E}} = F(z)\tilde{\mathbf{E}}_\mathrm{F} + B(z)\tilde{\mathbf{E}}_\mathrm{B} \tag{7.19}$$

$$\tilde{\mathbf{H}} = F(z)\tilde{\mathbf{H}}_\mathrm{F} + B(z)\tilde{\mathbf{H}}_\mathrm{B} \tag{7.20}$$

領域 I が等方媒質であるとして，角周波数 ω の電界によって生じる３次の非線形分極は次のように表わされる。[5]

$$\mathbf{P}^{(3)} = 2\chi_{1122}(-\omega;\omega,\omega,-\omega)\varepsilon_0(\tilde{\mathbf{E}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}^*)\tilde{\mathbf{E}} + \chi_{1221}(-\omega;\omega,\omega,-\omega)\varepsilon_0(\tilde{\mathbf{E}}\cdot\tilde{\mathbf{E}})\tilde{\mathbf{E}}^* \tag{7.21}$$

ここで，χ_{1122} と χ_{1221} は４階の三次非線形感受率テンソルの成分である。マクスウェル方程式を電磁界表式 (7.19),(7.20) と非線形分極表式(7.21)を用いて表すと，

$$\nabla\times\tilde{\mathbf{E}} = -\mathrm{i}\omega\mu_0\tilde{\mathbf{H}} \tag{7.22}$$

$$\nabla\times\tilde{\mathbf{H}} = \mathrm{i}\omega\varepsilon_0\varepsilon_1\tilde{\mathbf{E}} + \mathrm{i}\omega\varepsilon_0\alpha(\tilde{\mathbf{E}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}^*)\tilde{\mathbf{E}} + \mathrm{i}\omega\varepsilon_0\gamma(\tilde{\mathbf{E}}\cdot\tilde{\mathbf{E}})\tilde{\mathbf{E}}^* \tag{7.23}$$

となる。ここで，$\alpha = \chi_{1122}$, $\gamma = \chi_{1221}$ で，ε_1 はグレーティングによる空間的な誘電率の摂動を表す量である。式(7.22), (7.23)より，

$$u_z\times\tilde{\mathbf{E}}_\mathrm{F}\frac{dF}{dz} + u_z\times\tilde{\mathbf{E}}_\mathrm{B}\frac{dB}{dz} = 0 \tag{7.24}$$

$$
\begin{aligned}
&u_z\times\tilde{\mathbf{H}}_{\mathrm{F}}\frac{dF}{dz}+u_z\times\tilde{\mathbf{H}}_{\mathrm{B}}\frac{dB}{dz}-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0(\varepsilon_1-\varepsilon_F)F\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\\
&-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0(\varepsilon_1-\varepsilon_B)B\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}\\
&-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0|F|^2F\alpha(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}^*)\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0F^2B^*\alpha(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}^*)\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\\
&-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0|F|^2B\alpha(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}^*)\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0F|B|^2\alpha(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}^*)\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}\\
&-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0F^*B^2\alpha(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}^*\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}})\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0|B|^2B\alpha(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}^*)\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}\\
&-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0|F|^2F\gamma(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}})\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}^*-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0F^2B^*\gamma(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}})\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}^*\\
&-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0|F|^2B\gamma(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}})\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}^*-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0F|B|^2\gamma(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}})\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}^*\\
&-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0|F|^2B\gamma(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}})\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}^*-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0F|B|^2\gamma(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}})\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}^*\\
&-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0F^*B^2\gamma(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}})\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}^*-\mathrm{i}\omega\varepsilon_0|B|^2B\gamma(\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}\cdot\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}})\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}^*\\
&=0
\end{aligned}
\tag{7.25}
$$

となる。$\boldsymbol{u}_z$は z 軸方向の単位ベクトルである。ここでε_{F}，ε_{B}はそれぞれ$\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}$，$\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}$に対する比誘電率を表す量である。本論文では$\varepsilon_{\mathrm{F}}=\varepsilon_{\mathrm{B}}$とする。なお，$\varepsilon_{\mathrm{F}}$，$\varepsilon_{\mathrm{B}}$はグレーティングを無視したときの比誘電率である。

つぎに次式を計算する。

$$\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\left[\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}^*\cdot eq.(7.7)-\tilde{\mathbf{H}}_{\mathrm{F}}^*\cdot eq.(7.6)\right]dxdy \tag{7.26}$$

$$\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\left[\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}^*\cdot eq.(7.7)-\tilde{\mathbf{H}}_{\mathrm{B}}^*\cdot eq.(7.6)\right]dxdy \tag{7.27}$$

ここで，無損失の媒質を仮定している。損失媒質では式(7.26)，(7.27)の表式を参考文献 6)のように書き直さなければならない。後進波モードは前進波モードの時間反転又は z 方向反転のいずれかとなるが，ここでは$\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}$，$\tilde{\mathbf{H}}_{\mathrm{F}}$，$\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}$，$\tilde{\mathbf{H}}_{\mathrm{B}}$を次式のようにおく。

$$\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{F}}=e_{\mathrm{F}}\exp(-\mathrm{i}\beta z) \tag{7.28a}$$

$$\tilde{\mathbf{H}}_{\mathrm{F}}=h_{\mathrm{F}}\exp(-\mathrm{i}\beta z) \tag{7.28b}$$

$$\tilde{\mathbf{E}}_{\mathrm{B}}=e_{\mathrm{B}}\exp(\mathrm{i}\beta z) \tag{7.29a}$$

$$\tilde{\mathbf{H}}_{\mathrm{B}}=h_{\mathrm{B}}\exp(\mathrm{i}\beta z) \tag{7.29b}$$

そのため，式(7.26)は次式のようになる。

$$
\begin{aligned}
&\frac{dF}{dz}-\frac{dB}{dz}\frac{\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}u_z\cdot(e_{\mathrm{F}}^*\times h_{\mathrm{B}}+h_{\mathrm{F}}^*\times e_{\mathrm{B}})dxdy}{P}\mathrm{e}^{\mathrm{i}2\beta z}\\
&+\mathrm{i}F\frac{\omega\varepsilon_0\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}(\varepsilon_1-\varepsilon_{\mathrm{F}})e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{F}}dxdy}{P}+\mathrm{i}B\frac{\omega\varepsilon_0\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}(\varepsilon_1-\varepsilon_{\mathrm{B}})e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{B}}dxdy}{P}\mathrm{e}^{\mathrm{i}2\beta z}\\
&+\mathrm{i}|F|^2F\frac{\omega\varepsilon_0\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\left[\alpha(e_{\mathrm{F}}\cdot e_{\mathrm{F}}^*)^2+\gamma(e_{\mathrm{F}}\cdot e_{\mathrm{F}})(e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{F}}^*)\right]dxdy}{P}\\
&+\mathrm{i}F|B|^2\frac{\omega\varepsilon_0\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\alpha\left[(e_{\mathrm{B}}\cdot e_{\mathrm{B}}^*)(e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{F}})+(e_{\mathrm{F}}\cdot e_{\mathrm{B}}^*)(e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{B}})\right]dxdy}{P}\\
&+\mathrm{i}2F|B|^2\frac{\omega\varepsilon_0\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\gamma(e_{\mathrm{F}}\cdot e_{\mathrm{B}})(e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{B}}^*)dxdy}{P}\\
&+\mathrm{i}F|B|^2\frac{\omega\varepsilon_0\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\left[\alpha(e_{\mathrm{F}}\cdot e_{\mathrm{B}}^*)(e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{F}})+\gamma(e_{\mathrm{F}}\cdot e_{\mathrm{F}})(e_{\mathrm{B}}^*\cdot e_{\mathrm{F}}^*)\right]dxdy}{P}\mathrm{e}^{\mathrm{i}2\beta z}\\
&+\mathrm{i}2F|B|^2\frac{\omega\varepsilon_0\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\left[\alpha(e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{B}})^2+\gamma(e_{\mathrm{B}}\cdot e_{\mathrm{B}})(e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{F}}^*)\right]dxdy}{P}\mathrm{e}^{\mathrm{i}2\beta z}\\
&+\mathrm{i}F^*B^2\frac{\omega\varepsilon_0\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\left[\alpha(e_{\mathrm{F}}\cdot e_{\mathrm{F}}^*)^2+\gamma(e_{\mathrm{F}}\cdot e_{\mathrm{F}})(e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{F}}^*)\right]dxdy}{P}\mathrm{e}^{\mathrm{i}4\beta z}\\
&+\mathrm{i}|B|^2B\frac{\omega\varepsilon_0\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\left[\alpha(e_{\mathrm{B}}\cdot e_{\mathrm{B}}^*)(e_{\mathrm{F}}^*\cdot e_{\mathrm{B}})+\gamma(e_{\mathrm{B}}\cdot e_{\mathrm{B}})(e_{\mathrm{B}}^*\cdot e_{\mathrm{F}}^*)\right]dxdy}{P}\mathrm{e}^{\mathrm{i}2\beta z}=0
\end{aligned}
\tag{7.30}
$$

ここで

$$P=\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}u_z\cdot(e_{\mathrm{F}}^*\times h_{\mathrm{F}}+e_{\mathrm{F}}\times h_{\mathrm{F}}^*)dxdy \tag{7.31}$$

である。

$u_z(e_{\mathrm{F}}^*\times h_{\mathrm{B}}+h_{\mathrm{F}}^*\times e_{\mathrm{B}})$の項については$e_{\mathrm{B}}(h_{\mathrm{B}})$が$e_{\mathrm{F}}(h_{\mathrm{F}})$の z 方向反転であると，消去することができる。今，グレーティングを通過する前進波と後進波間の相互作用に注目するので，表面凹凸の波が非常に小さいとすると，式(7.30)の左辺第 3 項は無視できる。もし，表面凹凸の波が十分小さくなければ無視できない。また，第 4 項目はグレーティングとの位相整合の項で無視できない。第 5 項から第 11 項までは非線形相互作用によって現れる項で，特に第 5 項から第 7 項まではその位相整合を表し，無視できない。

式(7.30)と同様の式が，式(7.27)からも得られる。ここで，E^x モードに注目しているので，電界成分は E_x，E_z となる。[6] こうして，結合波方程式が次のようになる。

$$\begin{aligned} \mathrm{i}\frac{dF}{dz} &= \chi_{\mathrm{lp}} B e^{\mathrm{i}2\beta z} + (\chi_{\mathrm{nl1}} + \chi_{\mathrm{nl2}} + \chi_{\mathrm{nl3}})|F|^2 F + 2(\chi_{\mathrm{nl1}} + \chi_{\mathrm{nl4}})|B|^2 F \\ &= \chi_{\mathrm{lp}} B e^{\mathrm{i}2\beta z} + \chi_{\mathrm{a}}|F|^2 F + 2\chi_{\mathrm{b}}|B|^2 F \end{aligned} \tag{7.32}$$

$$-\mathrm{i}\frac{dB}{dz} = \chi_{\mathrm{lp}} F e^{-\mathrm{i}2\beta z} + 2\chi_{\mathrm{b}}|F|^2 B + \chi_{\mathrm{a}}|B|^2 B \tag{7.33}$$

ここで，

$$\chi_{\mathrm{a}} = \chi_{\mathrm{nl1}} + \chi_{\mathrm{nl2}} + \chi_{\mathrm{nl3}} \tag{7.34}$$

$$\chi_{\mathrm{b}} = \chi_{\mathrm{nl1}} + \chi_{\mathrm{nl4}} \tag{7.35}$$

$$\chi_{\mathrm{lp}} = \frac{\omega\varepsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} (\varepsilon_1 - \varepsilon_3) e_{\mathrm{F}}^{*} \cdot e_{\mathrm{B}}\, dxdy}{P} \tag{7.36}$$

$$\chi_{\mathrm{nl1}} = \frac{\omega\varepsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \alpha(|E_x|^4 + |E_z|^4)\, dxdy}{P} \tag{7.37}$$

$$\chi_{\mathrm{nl2}} = \frac{2\omega\varepsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \alpha(|E_x|^2 |E_z|^2)\, dxdy}{P} \tag{7.38}$$

$$\chi_{\mathrm{nl3}} = \frac{\omega\varepsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \gamma|E_x{}^2 + E_z{}^2|^2\, dxdy}{P} \tag{7.39}$$

$$\chi_{\mathrm{nl4}} = \frac{\omega\varepsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \gamma|E_x{}^2 - E_z{}^2|^2\, dxdy}{P} \tag{7.40}$$

領域 I のみが非線形光学媒質で満たされているとすると，χ_{nl2} は縦方向（GW の伝搬方向）成分の e_{F} と E_{1z}，及び横方向（伝搬方向に垂直な）成分の E_{1x} によって生じる。また，χ_{1221} が 0 でないこと，e_{F}，e_{B} が z 反転性を持つことから χ_{nl3}，χ_{nl4} は値をとる。$\chi_{\mathrm{nl}j}$ (j = 2, 3, 4)は χ_{nl1} に加算されて非線形性を大きくするので，$\chi_{\mathrm{nl}j}$ (j = 2, 3, 4)を考慮すると，χ_{nl1} しか考慮していない計算に比べて光双安定現象の動作パワーは低くなると考えられる。ここで取り扱う非線形係数 $\chi_{\mathrm{nl}j}$ (j = 1, 2, 3, 4)は入射パワーに依存し，A^2 に比例する。

もし，スラブ導波路における TE-GW のように，電界の縦方向成分が存在しなかったら，式(7.32),(7.33)は Winful らが導出した式 [7] になる。しかし，縦方向成分が無視できない時には，結合波方程式の表式は複雑になり，χ_{nl2}，χ_{nl3}，χ_{nl4} が非線形結合波相互作用に重要な役割をすることを Stegeman は指摘した。[8] しかしながら，Stegeman とその研究グループはチャネル導波路で生じる光双安定現象の解析にスラブ導波路を伝搬

する TE-GW を適用して，縦方向電界を正しく考慮していない結合波方程式を用いている。[2] そのため，彼らの取り扱いは正しくなく，より正しい結合波方程式で光双安定現象を検討するべきである。

本論文では，χ_{lp} のより現実的な表式を導出する。式(7.36)の積分には様々な評価方法があるが，Stegeman の取り扱いでは，積分の厳密な評価をしても，電界の x 方向成分 E_x が $x = T/2$ で不連続になってしまう。本論文では，全電界成分を考慮した方法で積分に対する厳密な評価を行う。正弦波状のレリーフ型グレーティングの振幅 h が非常に小さいとすると，式(7.36)の積分は

$$\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} (\varepsilon_1 - \varepsilon_3) e_{\mathrm{F}}^{*} \cdot e_{\mathrm{B}}\, dxdy = h(\varepsilon_1 - \varepsilon_3) \mathrm{e}^{\pm \mathrm{i}2\pi/\Lambda} \int_{-\infty}^{\infty} e_{1F}(x = T/2, y) \cdot e_{3B}(x = T/2, y)\, dy \tag{7.41}$$

ここで，e_{1F} は領域 I を前方に伝搬するモードの電界であり，e_{3B} は領域 III を後方に伝搬するモードの電界を表す。ただし，位相項 exp(± i$k_{//}z$) は含めていない。式(7.41)より，式(7.36)は次のようになる。

$$\begin{aligned} \chi_{\mathrm{lp}} &= \frac{\omega\varepsilon_0 h(\varepsilon_1 - \varepsilon_3)\mathrm{e}^{\pm \mathrm{i}2\pi d/\Lambda}}{P} \int_{-W/2}^{W/2} \left[E_{1x}(T/2, y) E_{3x}(T/2, y) - E_{1z}(T/2, y) E_{3z}(T/2, y)\right] dy \\ &= \chi_1 \mathrm{e}^{\pm \mathrm{i}2\pi d/\Lambda} \end{aligned} \tag{7.42}$$

$$\chi_1 = \frac{\omega\varepsilon_0 h(\varepsilon_1 - \varepsilon_3)}{P} \int_{-W/2}^{W/2} \left[E_{1x}(T/2, y) E_{3x}(T/2, y) - E_{1z}(T/2, y) E_{3z}(T/2, y)\right] dy \tag{7.43}$$

E_{ij}（i = 1, 3 ; j = x, z）の表式は式(7.1),(7.3),(7.7),(7.9)である。式(7.24)中の exp(− i2πz/Λ)を使って，exp(− iΔkz)に比例する式(7.32)の右辺第一項が得られる。一方 exp(i2πz/Λ)を使って，exp(iΔkz)に比例する式(7.33)の右辺第一項が得られる。ここで，$\Delta k = 2\pi/\Lambda - 2k_{//}$ である。

通常，表面凹凸は小さいので，$\chi_{\mathrm{nl}j}$ に対するグレーティングの効果は無視できる。

7－2　非線形結合波方程式の数値計算

χ_{nlj} ，χ_{nlj} (j = 1, 2, 3, 4)が実数で，$F(z)=|F|e^{i\phi_F}, B(z)=|B|e^{i\phi_B}$ であると仮定すると式(7.32),(7.33)は次のようになる。

$$\frac{d\phi_F}{dz}=-\chi_1\frac{|B|}{|F|}\cos\phi-\chi_a|F|^2-2\chi_b|B|^2 \tag{7.44}$$

$$\frac{d\phi_B}{dz}=\chi_1\frac{|F|}{|B|}\cos\phi-2\chi_b|F|^2-\chi_a|B|^2 \tag{7.45}$$

$$\frac{d|F|}{dz}=-\chi_1|B|\sin\phi \tag{7.46}$$

$$\frac{d|B|}{dz}=-\chi_1|F|\sin\phi \tag{7.47}$$

ここで，$\phi=\Delta k_{//}z+\phi_F-\phi_B$ である。式(7.44)―(7.47)を，初期値を $z=L$ で$|B|=0$ とおいてルンゲ・クッタ・ジル法を使って解く。

図 7.2 に示すような周期構造を持つチャネル導波路を考える。3 次非線形光学材料としてポリジアセチレン(PDA)-C_4UC_4 を仮定する。PDA-C_4UC_4 はフォトクロミズムによって屈折率や，膜厚が変化することが知られており [9]，これを利用したグレーティングを作ることができる。入射光波長λ= 1319 nm，チャネル導波路高さ T= 1.2 μm，W/T= 2.5，　n_1= 1.666 (PDA-C_4UC_4)[9]，n_2= 1.504 (BK7 基板) [15]，$n_3=n_4=n_5$ = 1.0，グレーティング振幅 h = 2 nm，グレーティング長 L = 1 cm，$2\pi/\Lambda-\beta=0$ とおく。PDA-C_4UC_4 の 2 光子吸収はλ= 1319 nm では非常に小さく，無視した。[10,11]

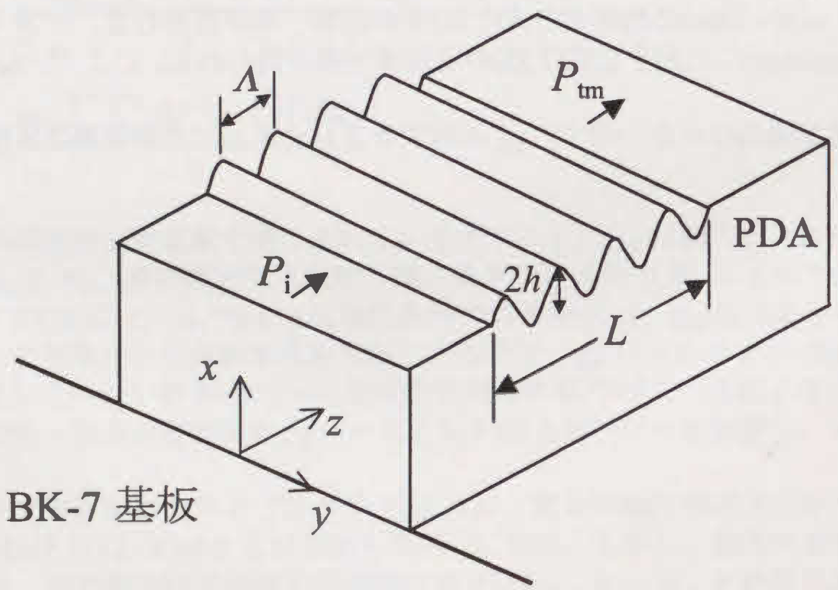


図 7.2　レリーフ型グレーティング構造を持つチャネル導波路

ここで，非線形係数αについて述べる。 第 3 高調波に対する$\chi_{1122}(-3\omega;\omega,\omega,\omega)$は実験的に求めることができる。電子的歪みに起因する 3 次非線形性ならば，$\chi_{1122}(-3\omega;\omega,\omega,\omega)$ = $\chi_{1122}(-\omega;\omega,\omega,-\omega)$ = $\chi_{1221}(-\omega;\omega,\omega,-\omega)$なので，[5, 12, 13]　αは $6\chi_{1122}(-3\omega;\omega,\omega,\omega)/\varepsilon_0$ = 2.80×10^{-18} m^2/V^2 (= 10^{-10} esu)とする。[14]

Stgegeman ら [2] は主に構造や導波路のサイズと，スイッチングパワーとの関係について述べている。本論文では，グレーティングパラメータとスイッチングパワーとの関係についても述べる。さらに Stegeman らが，χ_{nl1} のみしか考慮していなかった事に対し，χ_{nlj} (j = 2, 3, 4)を考慮する効果についても述べる。

7－2－1　入射光パワーP_iに対する透過パワーP_{tm}の変化

E_{11}^xモードにおける，入射光パワーP_iに対する透過パワーP_{tm}の計算結果を図 7.3 に示す。図中の波線はχ_{nl1} のみ，実線はχ_{nlj} (j = 1, 2, 3, 4)を考慮した計算結果である。ここで，光双安定現象を生じさせるために必要な入射光の下限値をスイッチングパワーP_s とする。χ_{nl1} のみのスイッチングパワーが 1.1 W であるのに対して，χ_{nlj} (j = 1, 2, 3, 4) を考慮した場合は 0.73 W と小さくなることがわかった。図 7.3 に示すように P_i が減少したときに P_{tm} が大きな値から小さな値へ遷移するときの P_i を遷移パワーP_t とする。P_t は後に詳しく議論する。なお，図 7.3 では P_t = 0.35 W であった。

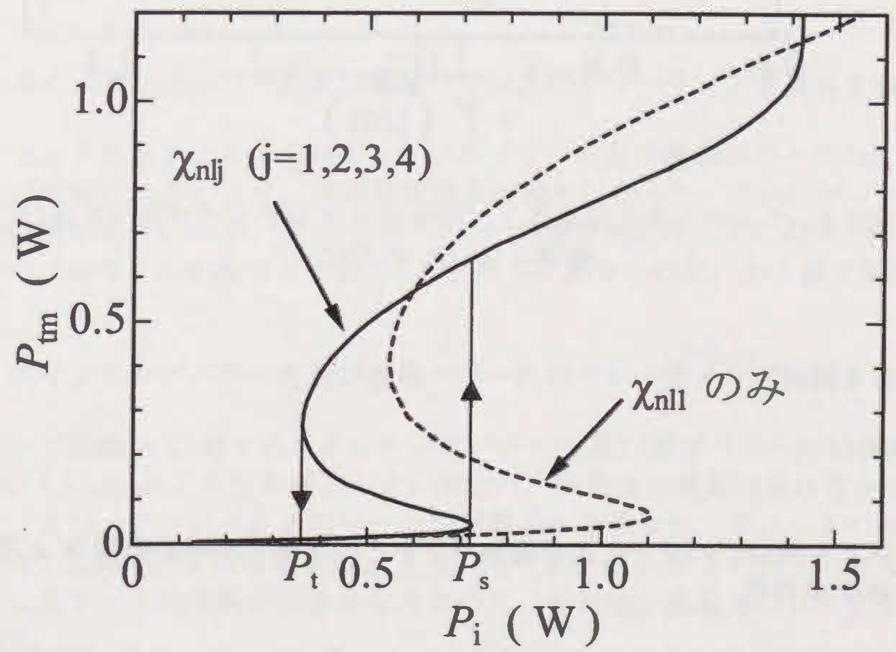


図 7.3　入射光パワーP_iに対する透過パワーP_{tm} の変化

7-2-2　スイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_tのチャネル導波路高さ T 依存性

図 7.4 に結果を示す。チャネル導波路高さ T を増加させるとスイッチングパワーP_s（実線）は減少した。これは，チャネル導波路高さを増加させるにつれて，領域 I に電界が強く閉じ込められるようになるためと考えられる。一方遷移パワーP_t（波線）は T と共に増加した。チャネル導波路高さを増加させるにつれて，グレーティングによるフィードバックの効果が小さくなり，P_sと P_tの差が小さくなる。そして，$T \cong 1.5$ μm で光双安定現象は生じなくなった。

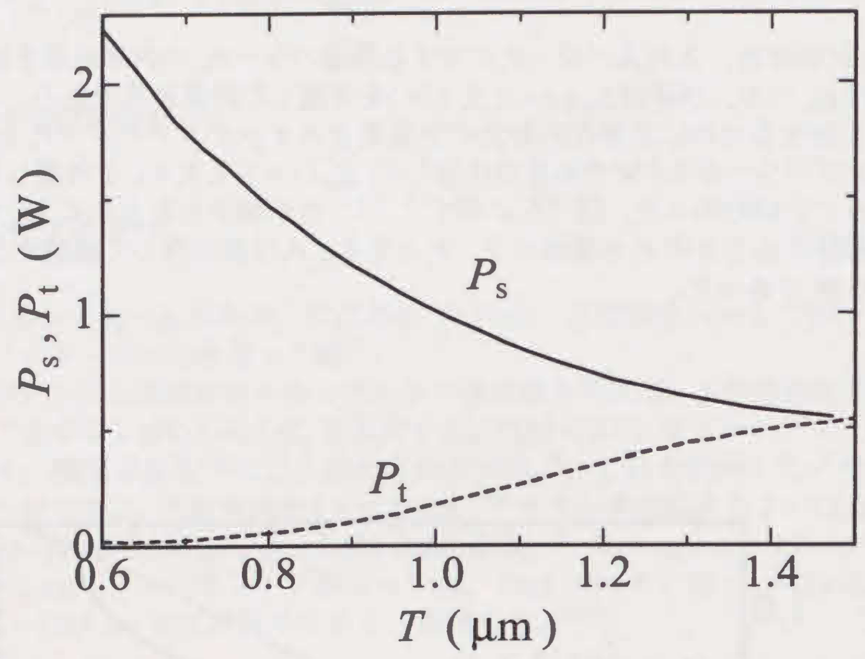


図 7.4　チャネル導波路高さ T に対するスイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_t の変化

7-2-3　スイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_tのチャネル導波路幅 W と高さ T の比 W/T 依存性

チャネル導波路幅と高さの比 W/T に対するスイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_tの計算結果を図 7.5 に示す。W/T が増加すると，スイッチングパワーP_s，遷移パワーP_t 共に増加した。W/T を小さくすると光双安定現象を起こすために必要なパワーは小さくなるが，幅が狭くて高いチャネル導波路になるので，作製が困難になると考えられる。

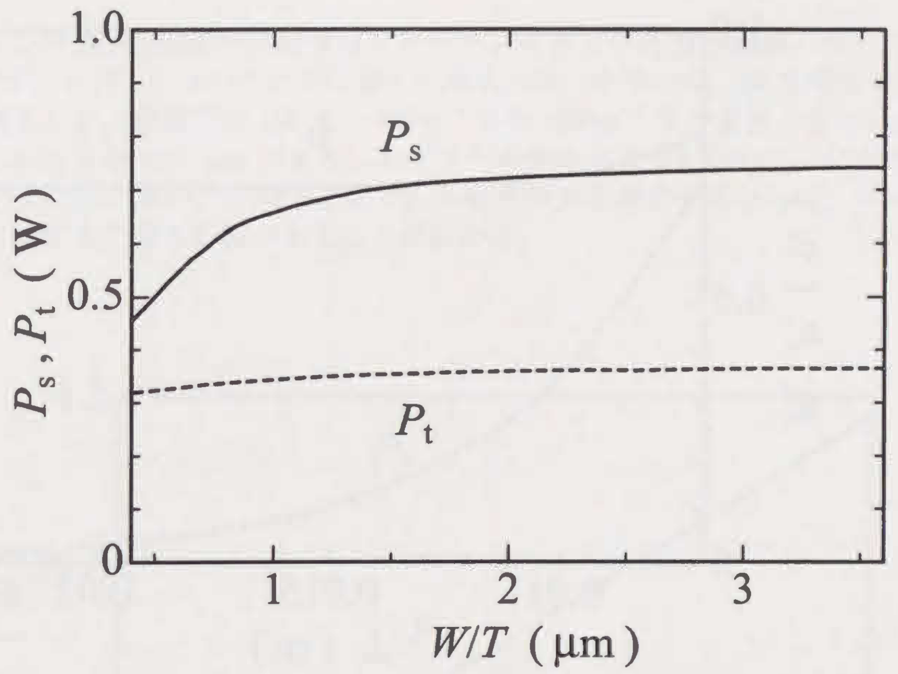


図 7.5　チャネル導波路幅と高さの比 W/T に対する P_s , P_t の変化

7-2-4　スイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_tのグレーティング長さ L 依存性

グレーティング長さ L に対するスイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_tの計算結果を図 7.6 に示す。L が非常に小さいとき，光双安定現象は現れなかった。これはグレーティングによるモードの反射は小さいので，フィードバックの効果が現れるためには十分な長さの L が必要であるからである。L を増加させると，P_s，P_t共に減少したが，ある値で変化しなくなる。

7-2-5　スイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_tのグレーティング振幅 h 依存性

グレーティング振幅 h に対するスイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_tの計算結果を図 7.7 に示す。h が 1.5 nm のような非常に小さい値では，光双安定現象は現れなかった。これは h が小さいと，グレーティングによるモードの反射が小さくなり，フィードバックが不十分になるためと考えられる。h が増加すると P_sも増加した。これは h の増加にともない，グレーティングによるモードの反射が大きくなるために，相対的に透過光パワーが小さくなるためと考えられる。

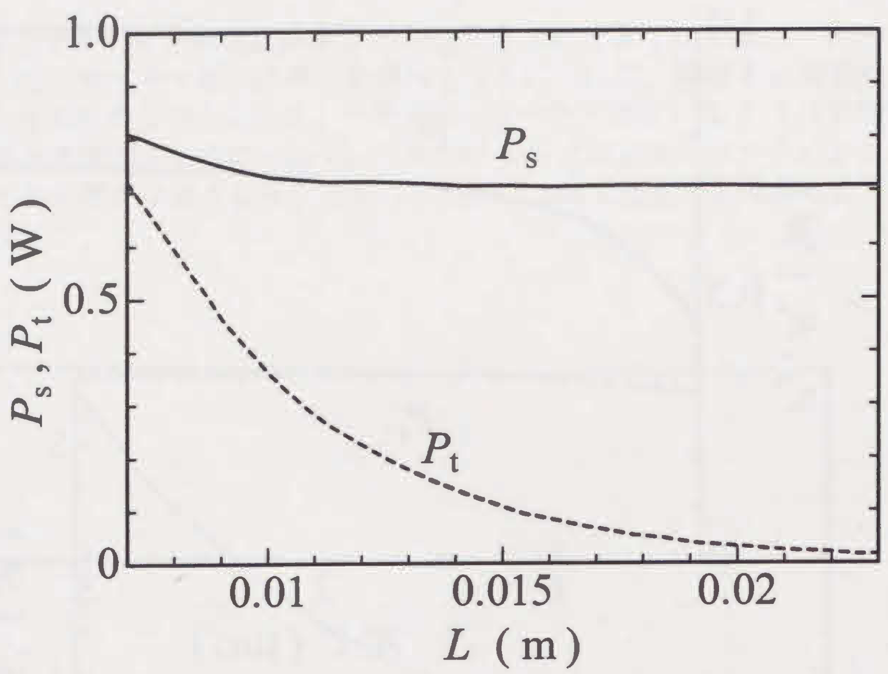


図 7.6　グレーティング長 L に対する P_s , P_t の変化

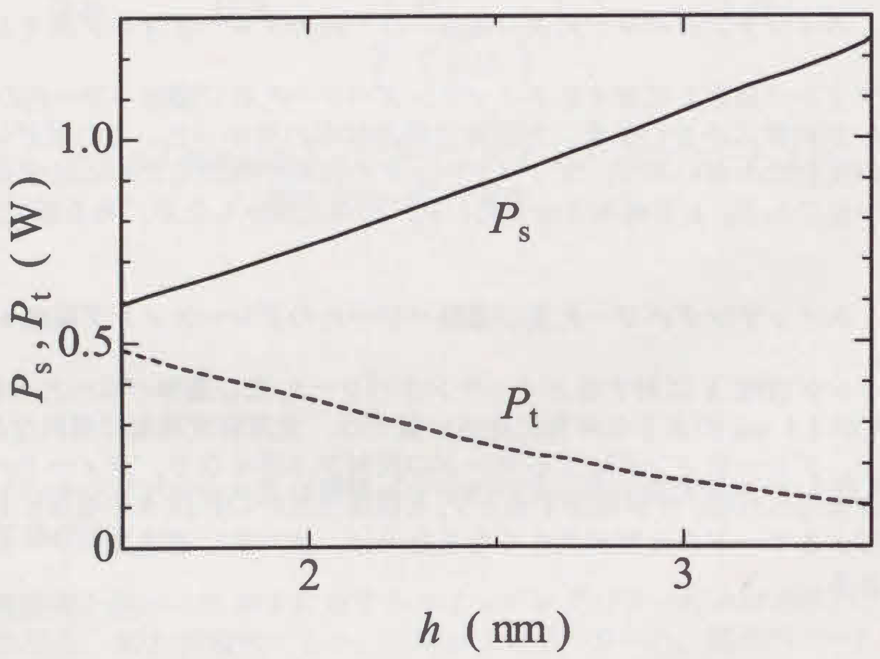


図 7.7　グレーティング振幅 h に対する P_s , P_t の変化

7-2-6　スイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_tのグレーティング波長Λ依存性

グレーティング波長Λ依存性に対するスイッチングパワーP_s及び遷移パワーP_tの計算結果を図 7.8 に示す。ただし，Λの代わりにΔk ($= 2\pi/\Lambda - 2k_{//}$)を用いた。Δk を増加すると，P_s, P_t は共に単調増加した。計算では Δk を $-400\mathrm{m}^{-1}$ から $400\mathrm{m}^{-1}$ まで変化させたが，Λで言えば 0.659555 μm から 0.659444 μm のようにわずかしか変化させていないことになる。にもかかわらず，P_s の変化は大きい。このことより，入射光波長を固定するならば，グレーティング波長を非常に精度良く作る必要があることがわかる。

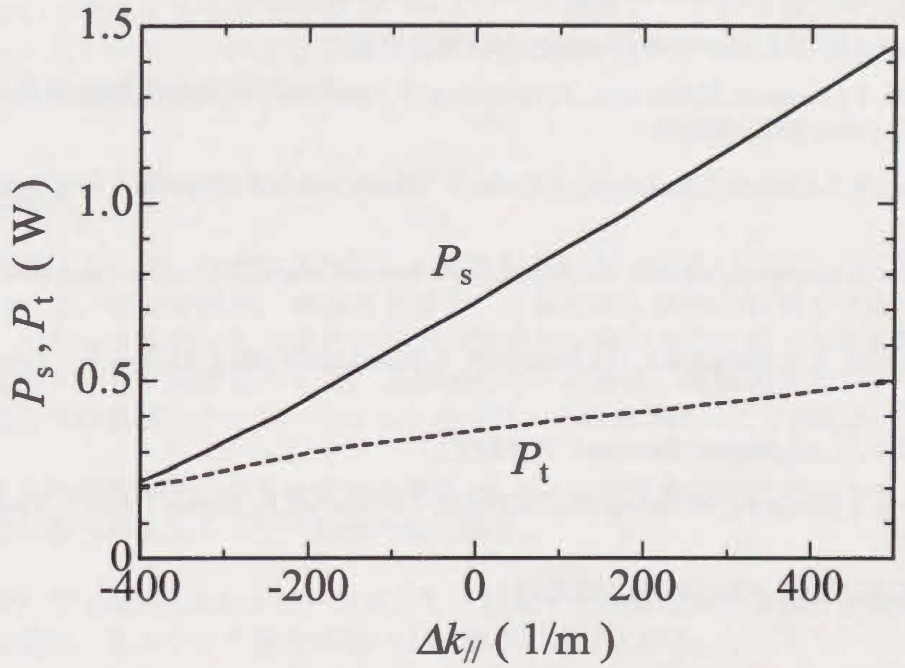


図 7.8　グレーティング波長Λに対する P_s , P_t の変化
($\Delta k_{//} = 2\pi/\Lambda - 2\beta$)

7-3　まとめ

この章では，レリーフ型グレーティングを持つチャネル導波路中の電磁界を表す非線形結合波方程式を縦方向電界成分を正しく考慮して導出した。これによって，非線形結合波方程式に新たな非線形項が加わった。次にチャネル導波路に PDA-C_4UC_4 を仮定した計算機シミュレーションを行い，導波路サイズや，グレーティングパラメータが光双安定現象に与える影響について調べた。その結果，導波路サイズ，グレーティングパラメータの値を最適化すると光双安定現象が非常に低パワーで動作しうることがわかった。とくに，グレーティング周期により光双安定現象の特性が大きく変わるので，実際の実験ではグレーティング周期の精度の高い作製技術が必要になる。

＜参考文献＞
1) T.Okamoto, K.Koshimura, M.Haraguchi and M.Fukui：Jpn. J. App. Phys. **37**(1998)522-528.
2) G.I.Stegeman, C.Liao and H.G.Winful: *Optical Bistability 2*, eds. C.M.Bowden, H.M.Gibbs and S.L.McCall(Plenum, New York, 1984)p389.
3) E.A.J.Marcatili：Bell Syst. Tech. J. **48**(1969)2071.
4) D.Marcuse： *Light Transmission Optical Waveguide* (Robert E. Krieger, Florida, 1989)p.415.
5) P.D.Maker and R.W.Terhume：Phys. Rev. **137**(1965)A801.
6) D.Marcuse：*Theory of Dielectric Optical Waveguides* (Academic, New York, 1974)
7) H.G.Winful, J.H.Marburger and E.Gaimire: Appl. Phys. Lett. **35**(1979)379.
8) G.I.Stegeman：IEEE J. Quantum Electron. **18**(1982)1610.
9) M.Haraguchi, T.Okamoto, H.Hayashi, T.Hasegawa, T.Akamatsu, M.Fukui, T.Koda and K.Takeda：Thin Solid Films **331**(1998)39.
10) T.Hasegawa, K.Ishikawa, T.Kanetake, T.Koda, K.Takeda and H.Kobayashi：Synth. Met. **43**(1991) 3151.
11) T.Hasegawa, K.Ishikawa, T.Koda, K.Takeda, H.Kobayashi and K.Kubodera : Synth. Met. **49**(1992) 123.
12) A.D.Boardman, A.A.Maradudin, G.I.Stegeman, T.Twardowski and E.M.Wright：Phys. Rev. A **35** (1987)1159.
13) S.J.Al-Bader：J. Lightwave Thechnol. **7**(1989)717.
14) T.Hasegawa, T.Okamoto, M.Haraguchi, M.Fukui, T.Koda and K.Takeda：Jpn. J. App. Phys. **37** (1998)5793.
15) HOYA OPTICAL GLASS DATA SHEETS.

第八章
総括

三次の非線形光学効果の一つである自己誘起屈折率変化によって生じる光双安定現象，及び光スイッチ現象の低入力パワー動作の可能性について検討した。
非線形光学媒質として PDA を用いることを想定し，低入力パワー動作のための構造として ATR 配置と，グレーティング構造を持つチャネル導波路に注目した。これらの構造において発生する光双安定現象，光スイッチ現象を，より現実に近い条件下での計算機シミュレーションによる理論解析とその実験を行い，その特性を明らかにした。得られた重要な結果を以下に示す。

理論解析結果

ATR 配置において，平面波入射によって励起される SPP 及び GW を用いた光双安定現象について，線形光損失，非線形光損失，非線形性の飽和の影響を考慮した計算機シミュレーションを行った。また，ビーム広がりを持つガウスビームを入射したときに生じる光スイッチ現象について，入射光のビーム直径，導波層厚さ，ビーム広がり角を考慮した計算機シミュレーションを行った。その結果次のことがわかった。

1．　電子的非線形性による光双安定現象，光スイッチ現象においては SPP よりも GW を用いる方が低入力パワー動作可能である。

2．　SPP や GW のエネルギーが主として伝搬する媒質における線形光損失が，光双安定現象，光スイッチ現象の低パワー動作の妨げとなる。

3．　対称導波路構造を持つ ATR 配置を用いれば，光導波路に線形損失があっても低入力パワー動作可能である。

4．　光双安定現象，光スイッチ現象に必要な入射光パワーは，SPP や GW のエネルギーが，線形損失媒質や，自己誘起屈折率変化を示す媒質を占める割合で決まる。

5．　有限幅の入射光による光スイッチ現象は，入射光の直径が GW 伝搬距離の約 11.3 倍の時に最も低入力パワー動作する。

6．　入射光のビーム広がりが適度に存在する方が，ビーム広がりが無い場合に比べ低入力パワーで光スイッチ現象が生じる。

また，レリーフ型グレーティング構造を持つチャネル導波路で発生する光双安定現象の計算機シミュレーションを行った。縦方向の電界成分を正しく考慮することで，より現実に近いシミュレーションを行うことができるようになった。

光双安定現象，光スイッチ現象観測実験

本研究で作製した TaFD9 プリズム－銀蒸着膜－PDA-C_4UC_4 蒸着膜構造及び，TaFD9 プリズム－屈折率整合油－PDA-C_4UC_4 蒸着膜－BK-7 ガラス基板構造で光双安定現象及び光スイッチ現象の観測を試みた。その結果次のことがわかった。

1．　金属などの損失媒質を持つ ATR 配置では熱屈折率効果による光双安定現象が発生し，GW よりも SPP 励起の方が低入射光パワー動作することが確認できた。本実験においては約 100 mW で光双安定現象が観測された。

2．　熱屈折率効果による光双安定現象は時間応答速度が約 1 秒と遅く，動作に必要な光パワーは瞬時値ではなく，時間平均値に依存することがわかった。

3．　低光損失媒質で構成された対称導波路構造を持つ ATR 配置において，GW からの再放射光のパルスナローイング現象が観測された。これは PDA の電子的非線形性に起因する現象で，本実験においては，入射光強度 13 kW/cm^2（パルスピーク値）で，応答速度がピコ秒より速い光パルスナローイング現象が観測された。

以上の結果より，低損失の媒質で ATR 配置を構成し，短パルス光を利用して瞬時パワーを上げつつ時間平均パワーを下げると，熱屈折率効果を押さえ，電子的非線形性に起因する光スイッチ現象を観測できうることが明らかになった。これにより，PDA を用いた超高速光情報処理素子の一形態として ATR 配置が有用であることが証明された。

謝辞

本研究の遂行と論文の作成にあたって，終始適切な御指導を賜りました徳島大学工学部光応用工学科　福井萬壽夫教授に深甚なる感謝の意を表します。福井教授には研究のみならず公私にわたって様々な御指導，御教示を賜り，日々叱咤激励されここに至ることができました。この場をお借りして心より御礼申し上げます。
本論文の作成にあたり，適切な御指導，御教示を賜った徳島大学工学部光応用工学科　西田信夫教授　ならびに徳島大学大学院工学研究科エコシステム専攻　三澤弘明教授に心より感謝の意を表します。
本研究の遂行にあたり，数値計算や線形，非線形光学実験において懇切なる御指導及び御教示を賜った徳島大学工学部光応用工学科　原口雅宣講師に心より感謝いたします。
本研究で用いた有機非線形光学材料ポリジアセチレンの使用に際し，適切な御指導，御教示を賜った日本女子大学理工学部　国府田隆夫教授　ならびにポリジアセチレンの試料を提供していただいた科学技術振興事業団五神共同励起プロジェクト　竹田研爾博士に心より感謝いたします。
本研究で用いた非線形波動方程式の数値解法について，適切な御指導，御教示を賜った徳島大学工学部電気電子工学科　川上博教授　ならびにサウジアラビア・キングファハド大学 Samir J. Al-Bader 教授に心より感謝いたします。
本研究の遂行に際し，実験装置の作製や改造など惜しみない協力を賜った徳島大学工学部光応用工学科　桑原稔技官に心より感謝いたします。
そして，光スイッチ現象の観測実験とその結果の解析の一部を共同で行った徳島大学工学研究科博士後期課程　長谷川竜生氏（現　阿南高等工業専門学校助手），徳島大学工学研究科博士前期課程　上田井孝道氏（現　西日本電信電話株式会社），徳島大学工学研究科博士後期課程　高林正和氏（現　三菱電機株式会社先端技術総合研究所），グレーティングを用いた光双安定現象の数値計算を共同で行った徳島大学工学研究科博士前期課程　越村邦彦氏（現　アンリツ株式会社），他御協力いただいた福井研究室の学生諸君に深く感謝いたします。

研究業績

主論文

1．"Optical Bistability Associated with Surface Plasmon Polariton Excitation", Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: Journal of The Physical Society of Japan, **61**(1992)1549-1555.

2．"Optical Bistability in Prism / Ag Film / Nonlinear Film / Air Geometry by Utilizing Surface Plasmon and Guided Wave Characteristics", Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi, Masuo Fukui, Hiroshi Kawakami and Samir J. AL-Bader: Journal of The Physical Society of Japan, **62**(1993)918-925.

3．"Optical Bistability in Periodic Channel Waveguides", Toshihio Okamoto, Kunihiko Koshimura, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: Jpn. J. App. Phys. **37**(1998)522-528.

4．"Optical Pulse Narrowing Due to Electronic Nonlinearity of PDA Films in ATR Geometry", Toshihiro Okamoto, Tatsuo Hasegawa, Takamichi Uetai, Masakazu Takabayashi, Masanobu Haraguchi, Masuo Fukui, Takao Koda and Kenji Takeda: Nonlinear Optics, **22**(1999)401-404.

5．"Optical Switching Due to Local Kerr Nonlinearity in Attenuated Total Reflection Geometry", Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: Jpn. J. App. Phys. **39**(2000) 3977-3982.

副論文

1．"Optical bistability in ATR geometry", Toshihiro Okamoto, Tatsuo Hasegawa, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: *Proc. 9th Int. Autumn School-Conf. Young Scientists Solid State Physics Fundamentals and Applications, Uzhgorod, Ukraine, 1995* (Inst. Semicond. Phys., Kiev, 1995) R3-R4.

2．"Experimental instrument for observing angle- and frequency-scanned attenuated total reflection spectra", Tetsuya Hayashi, Hirofumi Fukumoto, Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui: Rev. Sci. Instrum. **67**(1996)3039-3043.

3．"Real-time observation of the dielectric constant variation of evaporated polydiacetylene films during photopolymerization and photochromic transitions", Masanobu Haraguchi, Toshihiro Okamoto, Hironori Hayashi, Tatsuo Hasegawa, Takuya Akamatsu, Masuo Fukui, Takao Koda and Kenji Takeda: Thin Solid Films **331**(1998)39-44.

4．"Optical constants and growth mode of Ni films deposited on evapolated Al, Ag and Cu films", Kazuhisa Hanamoto, Akihiko Shinya, Minoru Kuwahara, Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi, Masuo Fukui and Kichiro Koto: Surface Science **409**(1998)413-420.

5．"Determination of the Anisotropic Optical Constant of Evaporated Polydiacetylene-C_4UC_4 Films at 632.8nm", Tatsuo Hasegawa, Toshihiro Okamoto, Masanobu Haraguchi, Masuo Fukui, Takao Koda and Kenji Takeda: Jpn. J. App. Phys. **37**(1998)5793-5797.

6．"Interaction of near-field light with orderd polystyrene spheres", Masanobu Haraguchi, Teruo Nakai, Akihiko Shinya, Toshihiro Okamoto, Masuo Fukui, Takao Koda, Ryoko Shimada and Kenji Takeda: Optical Review, **6**(1999)261-267.

7．"Optical Modes in Two-dimensionally Ordered Dielectric Spheres", Masanobu Haraguchi, Teruo Nakai, Akihiko Shinya, Toshihiro Okamoto, Masuo Fukui, Takao Koda, Ryoko Shimada, Kazuo Ohtaka and Kenji Takeda: Jpn. J. Appl. Phys. **39**(2000)1747-1751.

8．"Determination of the Second-Order Nonlinear Optical Susceptibility of GaN Films on Sapphire", Takashi Fujita, Tatsuo Hasegawa, Masanobu Haraguchi, Toshihiro Okamoto, Masuo Fukui, and Syuji Nakamura: Jpn. J. App. Phys. **39**(2000) 2610-2613.

学会発表

1991.11 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫「表面ポラリトン特性を用いた光双安定現象」平成 3 年電気関係学会四国支部連合大会

1992.3 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫「SP 特性を用いた光双安定現象の計算機シミュレーション」第 39 回応用物理学関係連合講演会

1992.3 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫「表面ポラリトン特性を用いた光双安定現象」日本物理学会第 47 回年会

1992.9 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫「導波モード励起による光双安定現象の理論的検討」第 53 回応用物理学会学術講演会

1992.10 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫「光導波特性を用いた光双安定現象の理論的検討」平成 4 年電気関係学会四国支部連合大会

1993.3 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫，川上博「損失光導波路を伝搬する導波光による光双安定現象」第 40 回応用物理学関係連合講演会

1993.10 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫，川上博「光損失，非線形性の飽和を考慮した光双安定現象」日本物理学会 1993 年秋の分科会

1993.10 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫，川上博「光損失，非線形性の飽和のある媒質を考慮した光双安定現象」平成 5 年電気関係学会四国支部連合大会

1994.3 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫，川上博「導波光励起による光双安定現象」第 41 回応用物理学関係連合講演会

1994.10 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫，川上博「導波光励起による光双安定現象の理論的検討」平成 6 年電気関係学会四国支部連合大会

1995.3 林弘能，岡本敏弘，赤松拓哉，原口雅宣，福井萬壽夫，国府田隆夫，竹田研爾「PDA(C_4UC_4)蒸着膜の線形光学定数」第 42 回応用物理学関係連合講演会

1995.3 赤松拓哉，岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫，長谷川達夫，国府田隆夫，竹田研爾「ポリジアセチレン蒸着膜におけるラマン散乱」第 42 回応用物理学関係連合講演会

1995.8 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫「ATR 配置における光双安定現象の観測」第 57 回応用物理学会学術講演会

1995.11 岡本敏弘，西克之，原口雅宣，福井萬壽夫，国府田隆夫，竹田研爾「PDA の熱的非線形性による ATR 信号の光双安定現象」平成 7 年電気関係学会四国支部連合大会

1996.9 岡本敏弘，上田井孝道，高林正和，原口雅宣，福井萬壽夫，国府田隆夫，竹田研爾
「ＰＤＡ膜の電子的非線形性による ATR 形光スイッチング現象の実験・観測」
第 57 回応用物理学会学術講演会

1996.10 岡本敏弘，丸月義一，原口雅宣，福井萬壽夫，国府田隆夫，竹田研爾
「ATR 法，m-ライン法によるポリジアセチレン蒸着膜の光学定数測定」
平成 8 年電気関係学会四国支部連合大会

1997.3 岡本敏弘，上田井孝道，高林正和，原口雅宣，福井萬壽夫，国府田隆夫，竹田研爾
「PDA 膜の電子的非線形性による光パルス幅のナローイング」第 44 回応用物理学関係連合講演会

1997.10 岡本敏弘，越村邦彦，原口雅宣，福井萬壽夫「チャネル型光導波路における分布帰還型光双安定現象の理論的検討」第 58 回応用物理学会学術講演会

1997.10 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫，国府田隆夫，竹田研爾「PDA 膜の電子的非線形性による光パルス幅のナローイング(II)」第 58 回応用物理学会学術講演会

1997.10 岡本敏弘，上田井孝道，高林正和，原口雅宣，福井萬壽夫，国府田隆夫，竹田研爾
「PDA 膜の電子的非線形性による光パルス幅の圧縮」平成 9 年電気関係学会四国支部連合大会

1998.9 岡本敏弘，上田井孝道，高林正和，原口雅宣，福井萬壽夫，国府田隆夫，竹田研爾
「PDA 膜の電子的非線形性による光パルス幅のナローイング(III)」第 59 回応用物理学会学術講演会

1999.3 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫「ATR 光スイッチング現象の理論的考察(ガウスビーム入射)」第 46 回応用物理学関係連合講演会

1999.10 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫「ガウス光入射に対する ATR 型光スイッチ現象の理論的検討」平成 11 年電気関係学会四国支部連合大会

2000.3 岡本敏弘，原口雅宣，福井萬壽夫「ガウスビーム入射による ATR 型光スイッチ現象の理論的考察」第 47 回応用物理学関係連合講演会

国際会議等

1995.9 Toshihiro Okamoto, Tatsuo Hasegawa, Masanobu Haraguchi and Masuo Fukui “Optical bistability in ATR geometry” (International Autumn School-Conference for Young Scientists "Solid State Physics: Fundamentals & Applications"(SSPFA'95) Uzhgorod, Ukraine)

1998.10 Toshihiro Okamoto, Tatsuo Hasegawa, Takamichi Uetai, Masanobu Takabayashi, Masanobu Haraguchi, Masuo Fukui, Takao Koda, Kenji Takeda “Optical pulse narrowing due to electronic nonlinearity of PDA films in ATR geometry”(4th Internationa Conference on Organic Nonlinear Optics(ICONO'4) Chitose, Japan)