

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 19 日現在

機関番号：12501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420268

研究課題名(和文) 2光子吸収型全光スイッチへの非縮退な2光に対する3次非線形感受率テンソルの研究

研究課題名(英文) Study on third-order nonlinear optical susceptibility tensor in non-degenerated two beams for all-optical switching devices by two-photon absorption

研究代表者

坂東 弘之 (Bando, Hiroyuki)

千葉大学・大学院融合科学研究科・助教

研究者番号：70298149

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：3次の非線形感受率テンソルを求めるために、1光束系および2光束系にて、我々の提案した入射光の偏光状態を円偏光から楕円偏光、直線偏光へと連続的に変化させた測定を行った。測定結果は考案した2光子吸収伝搬モデルから導出した解析式にて行った。その結果、1光束系も2光束系も、どの偏光状態の場合も実験結果と計算値とは非常に良く一致した。また、光非線形効果を導入したマクスウェル方程式にて光伝搬シミュレーションを行った結果も、実験結果と非常によい一致を示した。本研究にて得られた(3)の各値と偏光依存性の計算方法、および提案した2光子吸収伝搬モデルとその伝搬の解析式などが、全て適切であることが示された。

研究成果の概要(英文)：To obtain the precision of the components of third-order nonlinear optical susceptibility tensor, a new measurement system has been proceeded using polarized one or two beams combined with Z-scan method. The polarization of the beams is continuously varied from a linearly polarized one to a circularly polarized one through a elliptically polarized one. The values of the third-order susceptibility tensor have been measured on InP substrates and quasi-waveguide structures. The values have been analyzed using my expression derived from my light-propagating model of Gaussian beam with two-photon absorption. The propagation of the beam with two-photon absorption has been simulated by using COMSOL Multiphysics with the Maxwell's equations including nonlinear optical effects. The simulated results have shown the good agreements with the measured results. These results indicate the precisions of the values of the tensor components obtained in this study and our measurements methods.

研究分野：半導体工学

キーワード：2光子吸収 光スイッチ 光物性 半導体物性 超高速光デバイス 光非線形デバイス

1. 研究開始当初の背景

(1) 現在、情報通信量の増大により、光通信の高速化・帯域の増大化が必要となっている。これは、光信号(光パルス)の時間幅を小さくし、光パルスの時間間隔を短くし、対応波長域を広くすることである。それには、光通信に使用される各機器が、この高速度に対応した動作速度を持つことが必要である。信号(光パルス)は光ファイバ中を伝播しているが、現在の光通信網では各経路の分岐点にて、光スイッチ内で光信号が一度電気信号に変換され、次の送信経路を判断し、再び光信号に戻して次の経路へと信号を送信する。つまり、現在の光スイッチでは、光信号 電気信号 光信号として制御が行われている。当然ながらこの電気信号を処理するのは電子回路であるが、電子回路はCR時定数のために100GHz程度の周波数までしか追従できない。つまり時間幅が約10ps程度までのパルス信号しか扱えない。しかしながら、光パルスの時間幅は現在でも100fs程度のフェムト秒レーザーが市販されており、1ps以下のパルス幅の光信号を作製することは容易である。つまり、光通信を高速化するにあたり、ボトルネックとなる箇所の一つは、光スイッチにおいて一度電気信号に変換する箇所である。そこで、光信号を光信号のまま直接スイッチングできればこの問題は解消される。このような、光信号 光信号のように光信号を電気信号に変換することなく直接制御を行うものを全光スイッチといい、各研究機関にて研究が行われている。

(2) 全光スイッチは国内・国外にて盛んに研究されているが、ほとんどは可飽和吸収を利用した系で研究が行われており、2光子吸収を直接全光スイッチに利用している研究はない。可飽和吸収とは、強い光強度を照射すると、遷移する電子が枯渇もしくは遷移先の空状態が飽和してしまうために、光吸収係数が低下する減少である。可飽和吸収を利用した場合、以下の様にして光信号をスイッチングできる。通常時の光吸収係数の大きい状態にて光信号が来ると、その光信号は試料に吸収されて透過できないが、制御光(光強度:大)を照射時の可飽和吸収により光吸収係数の小さい状態に光信号が来ると、その光信号は透過する。このように可飽和吸収を利用した場合、実際の高速動作を得るためには、励起キャリアが再結合過程により元の状態に戻る必要がある。したがって、可飽和吸収を利用した系では、いかにしてこの再結合過程を高速にするか、つまり、光励起キャリアのライフタイムをいかに短くして可飽和吸収状態からノーマル状態に戻すかが重要であり研究対象となっている。

(3) この可飽和吸収を生じる系としては、III-V族、II-VI族系の化合物半導体を用いたMQWや量子ドットにおけるサブバンド間遷移(ISBT)、InGaAs/InAlAs MQWの励起子などがある。しかし、これらは先に述べたよ

うに原理的に励起キャリアの緩和時間が律速であり、パターン効果の心配も大きい。また、量子準位を利用するために対応波長が限定されており偏波依存性が激しく、試料構造が複雑でありさらに試料作製条件が非常に厳しいものである。2光子共鳴型の系(三菱電機)もあるが、これも構造上利用できる波長は設計波長のみである。

(4) このように、全光スイッチ実現に向けての従来技術は、物理現象の可飽和吸収を利用したものであり、さらに量子井戸を作製して量子準位を利用したものが主であるため、光励起キャリアの再結合時間を短くするために試料作製に種々の工夫が必要である。設計波長でしか利用できない、偏光依存性も大きいといった問題点があり、超高速性と広波長帯域性とを同時に達成できていない。

(5) これに対し、申請者が着目して今まで研究および特許取得をしてきた2光子吸収型の全光スイッチでは、超高速・広波長帯域な特性が期待され、実際にInP、InGaAsにおける2光子吸収による応答速度の波長依存性(ポンプ・プローブ測定)にて、波長1200nm - 1650nmの広波長域にて、2光子吸収による1ps以下の超高速応答が得られることを示してきた。

(6) 以上より、2光子吸収型の全光スイッチの実用化に向けて「1光束に対する広波長域にて超高速応答と偏波特性」の材料レベルでの成果は得られており、今後は残された「異なる波長の2光に対する特性」を示すことが実用的には最も重要である。そしてこのためには、2光子吸収特性に關与している物理パラメータである異なる波長の2光に対する3次の非線形感受率テンソル⁽³⁾を知ることが、根本的な理解となる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、2光子吸収型全光スイッチにて、異なる波長(非縮退)の2光に対する2光子吸収特性を広波長域(1200nm - 1800nm)にわたり測定し、非縮退な2光に対する3次の非線形感受率テンソル⁽³⁾を広波長域にわたり求めることである。さらに、2光子吸収型全光スイッチのプロトタイプを作製およびその特性も測定する。また、得られた⁽³⁾の値を用い、デバイス形状での2光子吸収の伝搬特性や偏光依存性のシミュレーションも検討する。

3. 研究の方法

(1) 広波長域にて2光子吸収特性の偏光依存性を測定出来るよう、ポンプ・プローブ測定系を利用し、アクロマティックな $\lambda/2$ 位相板および $\lambda/4$ 位相板を導入した測定系の構築を行った。これにより、波長域1200nm - 1800nmにて2光の偏光状態を独立に変えられるようになった。2光子吸収測定では、波長可変フェムト秒レーザー(パルス幅~200fs、波長可変域1640nm - 1900nm)を使用し、

スポット径約 5 μm に集光したレーザー光を試料に入射した。

(2) 従来の測定方法による3次の非線形感受率テンソル⁽³⁾の測定では、直線偏光した2光束を使用し、それぞれの偏光方向を独立に変えることによるの偏光方向依存性の結果から求める必要があった。そのため、試料中での2光の重なり量の見積もりに不確定な点があり、さらに2光とも偏光素子を回転させるために、その重なり量が一定とは限らなかった。そのために、⁽³⁾の精度は2桁が限界であった。そこで本研究では、試料の⁽³⁾の各成分の測定精度をあげるために、この測定系を用いた1光束系にて、 $\pi/4$ 位相板を回転させることで入射光の2光の偏光状態を、独立に円偏光から楕円偏光、直線偏光へと連続的に変化させて2光子吸収係数を測定する方法にて行った。測定の際には、入射光の入射状態を試料の射出側から顕微鏡にて観察する必要があるが、この際に照明光として入射レーザー光を利用することで色収差による結像位置ずれの問題を解決でき、正しい入射光状態の設定が可能となった。さらに、この方法とZ-scan法を組み合わせた測定方法にて実験を行った。

(3) 上記実験方法にて得られた結果は、2光子吸収を有する試料中でのガウスビーム伝搬モデルを考案し、それに基づき導出した光伝搬式により解析を行った。その際、ビームパルス波形の時間変化や、ガウスビームの空間強度分布も考慮した。2光子吸収特性の偏光依存性は、Dvorakら[1]の式を適用した。これらにより、InP(001)面での実験結果から求めた⁽³⁾の各値を使用し、(1-10)面における直線偏光した2光束での2光子吸収特性の偏光依存性を計算した。また実際に測定もを行い、計算値との比較・検討を行った。

(4) 実際のデバイス形状での特性の知見を得るために、測定試料として導波路構造をInP(001)基板上にドライエッチングにより作製し、2光子吸収特性の測定を行った。そして、2光の偏光状態を独立に変えることにより、2光子吸収特性の偏光状態の組み合わせにどのように変化するかを測定し、われわれの導出したモデル式と比較・検討を行った。

(5) 測定された⁽³⁾値の妥当性、および我々の導出したモデル式の妥当性を評価するために、非線形光学効果を組み入れた光伝搬シミュレーションを行った。計算には、測定された⁽³⁾の各値、および実験に合わせた入射光強度や偏光状態をシミュレーション条件に置いて光透過率を計算し、対応する実験結果と比較した。このシミュレーションのためにワークステーションを購入し、シミュレーションのソフトウェアには、ユーザーが記述

した偏微分方程式を有限要素法にて計算できる汎用アプリケーションのCOMSOL Multiphysicsを利用した。これに、非線形光学効果を導入したマクスウェル方程式を記述し、2光子吸収やカー効果を含んだ光伝搬のシミュレーションを行った。

4. 研究成果

(1) 1光束系にて、波長1640, 1700, 1800 nmの各波長におけるInPの2光子吸収係数の楕円偏光状態依存性を測定し、⁽³⁾の虚部の測定を行った。楕円偏光の状態は、 $\pi/4$ を自動回転ステージにて回転させることで設定した(設定角度)。各波長において、 θ は設定角度が90度周期で変化し、偏光状態が直線偏光となる $\theta = 0$ 度, 90度, 180度において極大値をとり、偏光状態が円偏光となる $\theta = 45$ 度, 135度にて極小値をとった。また、各波長において測定結果のエラーバーはプロットサイズ以下であった。各波長において、 $\chi^{(3)}$ の測定結果は、Dvorakら[1]による⁽³⁾を用いた式に、今回の実験条件である[001]方向伝搬および楕円偏光状態を表す式を適用することでよくフィッティングできた。そのフィッティング結果より、 $\text{Im}\{\chi^{(3)}\}$ の独立な3成分の値を決定した。その結果、 $\text{Im}\{\chi^{(3)}_{xxxx}\}$ の値は、波長1640 nmにて、 $\text{Im}\{\chi^{(3)}_{xxxx}\} = (2.57 \pm 0.03) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{V}^2$ 、 $\text{Im}\{\chi^{(3)}_{xyyx}\} = (1.51 \pm 0.02) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{V}^2$ 、 $\text{Im}\{\chi^{(3)}_{xxyy}\} = (0.513 \pm 0.009) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{V}^2$ と求まった。他の波長でも同様に、有効桁数3桁程度にて $\text{Im}\{\chi^{(3)}\}$ の値が求まった。これは、従来の有効桁数よりも1桁多く、数値計算シミュレーションでも使用可能な精度である。

(2) ⁽³⁾の虚部が有効桁数3桁程度にて求まったため、次に実部測定を行った。 $\text{Re}\{\chi^{(3)}\}$ は、光カー効果を生じさせる。この測定には、closed aperture Z-scan法を取り入れた。この信号強度は微弱なためにS/N比が低下した。そのため、初期の測定では有効桁数が1桁弱となり、 $\text{Im}\{\chi^{(3)}\}$ の時よりもかなり悪くなってしまった。また、この程度の精度では、当然数値計算シミュレーションなどには使用できなかった。そこでこれらの改善のために、レーザー強度の安定性やノイズ対策として、光チョッピング周波数の変更、エアダンパーの導入、光軸や試料傾きのより精密な微調整などを行った。その中で最後まで頭を悩ませた原因は、体感ではわからないが、定盤上の空気の動きが原因の光検出器の温度変化による、光検出感度の変化であった。これらの対策を行い、さらに測定条件である、closed aperture 時の開口サイズや集光点から光検出器までの距離などを精査することにより、最終的に、波長1640 nmにて、非線形屈折率 $n_2 = (7.01 \pm 0.08) \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{W}$ と従来の誤差の約1/3に低減できた。そして、この n_2 の楕円偏光状態依存性を測定することにより、 $\text{Re}\{\chi^{(3)}\}$ を求めた。その結果、 $\text{Re}\{\chi^{(3)}_{xxxx}\} =$

$(0.71 \pm 0.10) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{V}^2$, $\text{Re}\{\chi_{xyyx}^{(3)}\} = (0.15 \pm 0.03) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{V}^2$, $\text{Re}\{\chi_{xyxy}^{(3)}\} = (0.33 \pm 0.07) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{V}^2$ と精度が約1桁半となり、虚部の3桁よりも大きく劣ってしまった。これは、各 n_2 の測定精度は2桁以上あるのだが、楕円偏光依存性の測定結果がモデル式の曲線にあまり合わなかったためである。今後は、この n_2 の楕円偏光依存性測定により安定化が必要であることが分かった。

(3) デバイスでの使用状態に近い特性の測定として、2光束による2光子吸収の偏光状態依存性を測定した。試料は、デバイスとして多く利用されるであろう伝搬方向[110]の特性を見るために、へき開した InP(110)面を使用した。測定方法は Pump-Probe 測定にて行った。過去の研究では、偏光状態の組み合わせとして(Pump, Probe) = (直線偏光, 直線偏光)で行ったが、その際には Probe 光に対するの偏光方向依存性(変動率 v)は約27%以上であった。そのため、デバイス特性として望ましい偏光無依存を目指し、Pump 光の偏光状態を直線偏光から楕円偏光、そして円偏光まで変え、各偏光状態にて Probe 光に対する2光子吸収特性を測定した。その結果、波長 1640 nm にて、Pump 光の楕円偏光度 $E_r = 1.192$ にて、直線偏光の Probe 光に対する2光子吸収係数の偏光方向依存性(変動率)は、 $v = 2.8\%$ と、以前の1/10まで低減できることを明らかにした。さらに、この変動率 v の楕円偏光度 E_r 依存性は、Dvorak ら[1]の式に、我々の測定した $\text{Im}\{\chi^{(3)}\}$ の値と実験の2光の偏光状態を適用した式と非常によい一致を示した。これにより、我々の求めた $\text{Im}\{\chi^{(3)}\}$ 値の精度の良さ、および各実験が問題無いことが確かめられた。そして、導出した式の解析により、Probe 光の直線偏光方向によらずの値が一定となる、つまり Probe 光に対して偏波無依存となるような E_r 値が存在することが分かった。このような状態で、作製した擬光導波路構造の試料にても測定を行ったところ、バルク試料時の約1.5~1.9倍程度の吸収効率があることが分かった。ただしこれらの値は、導波路側壁のエッチング状態などに依存し、今後のより高効率化と安定性が望まれる。

(4) 2光の偏光状態の組み合わせが、(Pump, Probe) = (楕円偏光, 直線偏光)の時に、Probe 光の偏光状態に無依存な条件があることが明らかになった。しかしながら、その2光子吸収量が(直線偏光, 直線偏光)の場合に比べて、約60%に低減してしまうことが分かった。そこで、偏光無依存もしくは偏光状態に鈍感なまま2光子吸収量を増大させるために、(Pump, Probe) = (楕円偏光, 円偏光)にて測定を行った。その結果、(3)の結果に比べて、2光子吸収量が38%増大することが明らかになった。ただし、実際のデバイスでこの偏光状態の組み合わせを使用するには偏光状態

の成形などの工夫も必要となるために、作製コストなど、より現実的な条件を考慮する必要がある。

(5) 今まで、 $\chi^{(3)}$ 値を測定してきたが、これらの値の決定は、2光子吸収を伴った光伝搬に定式化のためのいくつかの仮定を入れて導出したモデル式により行っていた。そのため、得られた $\chi^{(3)}$ 値が本当に正しいのかを確認するために、光非線形効果を導入したマクスウェル方程式にて光伝搬シミュレーションを行い、実際の実験結果と比較する必要がある。そこで、ワークステーションを購入し、自分たちで任意に記述した偏微分方程式を数値計算出来る COMSOL Multiphysics を使用した。我々が設定する条件は、試料形状と標準的なマクスウェル方程式の記述、非線形分極の記述、測定されている $\chi^{(3)}$ 値の使用、入射光(ガウスビーム)のパラメータである。その結果、試料中でのガウスビームの伝搬状況(伝搬に伴うビーム径の変化や強度分布変化)は、我々の仮定したモデルと非常によい一致を示した。そして、試料透過光強度の入射光強度依存性、つまり2光子吸収量の入射光強度依存性や偏光状態依存性などは、実際の実験結果と非常によい一致を示した。これらの結果からも、我々の測定した $\chi^{(3)}$ 値の正しさが確認された。そしてさらに、 $\chi^{(3)}$ を求めるための測定方法や解析方法、適用モデル式なども問題ないことが示された。

<参考文献>

[1] Mark D. Dvorak et al., IEEE JQE 30, 256 (1994).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計1件)

坂東弘之, 李修平, 諸岡明德, 大石真樹, 松末俊夫, 半導体の3次非線形感受率テンソル測定と2光子吸収シミュレーション, 計算工学講演会論文集 vol. 21, D-8-5-1-D-8-5-5, 2016, 査読無
<http://www.jsces.org/koenkai/21/index.html>

[学会発表](計15件)

諸岡明德, 大石真樹, 松末俊夫, 坂東弘之, 薄膜多重反射の2光子吸収への影響のシミュレーション, 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017/3/14 - 2017/3/17, パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)

吉田直由, 飯田成, 松友知将, 坂東弘之, 松末俊夫, 表面弾性波による GaAs 表面の誘電率変化, 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017/3/14 - 2017/3/17, パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)

坂東弘之, 諸岡明德, 大石真樹, 松末俊夫, COMSOL Multiphysics を用いた2光子吸収

シミュレーションと 3 次非線形感受率テンソルの測定, COMSOL CONFERENCE TOKYO 2016, 2016/12/9, 秋葉原 UDX (東京都・千代田区)

三橋大地, 松友知将, 坂東弘之, 松末俊夫, GaAs 基板上櫛型電極による表面弾性波の RF 励振特性 - 電極指による弾性波の反射や不規則性の影響, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 2016/9/13 - 2016/9/16, 朱鷺メッセ (新潟県・新潟市)

石島孝章, 大石真樹, 松末俊夫, 坂東弘之, InP(110)パルクにおける楕円偏光と円偏光の 2 光束による 2 光子吸収の偏光状態依存性, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 2016/9/13 - 2016/9/16, 朱鷺メッセ (新潟県・新潟市)

池田優輝, 三谷智也, 大石真樹, 松末俊夫, 坂東弘之, InP 厚膜における Z-scan 法による非線形屈折率の測定条件の検討, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 2016/9/13 - 2016/9/16, 朱鷺メッセ (新潟県・新潟市)

Masaki Oishi, Hiroyuki Bando, Tomohisa Shinozaki, Hikaru Hara and Toshio Matsusue, Measurement of Polarization Dependence of Two-Photon Absorption Coefficient β in InP Using Extended Z-scan Technique for Thick Materials, Compound Semiconductor Week 2016 (ISCS/IPRM), Toyama (Japan)

坂東弘之, 李修平, 諸岡明德, 大石真樹, 松末俊夫, 半導体の 3 次非線形感受率テンソル測定と 2 光子吸収シミュレーション, 第 21 回計算工学講演会, 2016/5/31 - 2016/6/2, 朱鷺メッセ (新潟県・新潟市)

池田優輝, 坂東弘之, 原皓, 大石真樹, 松末俊夫, Z-scan 法による InP 厚膜の非線形屈折率の測定, 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 2015/9/13 - 2015/9/16, 名古屋国際会議場 (愛知県・名古屋市)

三科敬英, 大石真樹, 坂東弘之, 松末俊夫, InP(1-10)面における楕円偏光・直線偏光の 2 光束による 2 光子吸収の偏光状態依存性, 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 2015/9/13 - 2015/9/16, 名古屋国際会議場 (愛知県・名古屋市)

李修平, 坂東弘之, 大石真樹, 松末俊夫, InP の 2 光子吸収係数 β の偏光方向依存性シミュレーション, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 2015/3/11 - 2015/3/14, 東海大学 (神奈川県・平塚市)

李修平, 坂東弘之, 大石真樹, 松末俊夫,

InP の 2 光子吸収係数 β の偏光方向依存性のシミュレーション, COMSOL CONFERENCE TOKYO 2014, 2014/12/4 - 2014/12/5, 秋葉原 UDX (東京都・千代田区)

李修平, 坂東弘之, 大石真樹, 松末俊夫, 2 光子吸収を有する試料におけるガウシアンビームの伝搬シミュレーション, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 2014/9/17 - 2014/9/20, 北海道大学 (北海道・札幌市)

原皓, 坂東弘之, 篠崎智文, 大石真樹, 松末俊夫, 1 光束楕円偏光を用いた Z-scan 法による 3 次非線形感受率テンソルの虚部の測定, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 2014/9/17 - 2014/9/20, 北海道大学 (北海道・札幌市)

大石真樹, 坂東弘之, 三科敬英, 松末俊夫, InP(1-10)面における円偏光・直線偏光の 2 光束による 2 光子吸収の偏光状態依存性, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 2014/9/17 - 2014/9/20, 北海道大学 (北海道・札幌市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

坂東 弘之 (BANDO, Hiroyuki)
千葉大学・大学院融合科学研究科・助教
研究者番号: 70298149

(2) 研究分担者

松末 俊夫 (MATSUSUE, Toshio)
千葉大学・大学院融合科学研究科・講師
研究者番号: 20209547