



Title	導波路型非線形光学波長変換デバイスに関する研究
Author(s)	金高, 健二
Citation	大阪大学, 1997, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3129059
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

導波路型非線形光学波長変換デバイス に関する研究

1997年 3月

金高 健二

内容梗概

本論文は、著者が大阪大学大学院工学研究科電子工学専攻博士過程に在学中、集積電子システム工学講座集積光電子工学領域（西原研究室）において行った“導波路型非線形光学波長変換デバイスに関する研究”をまとめたもので、7章から構成されている。以下、その各章について、内容の梗概を述べる。

第1章 序論

小型コヒーレント光源から得られる光の波長域を拡大する方法として、導波路型非線形光学波長変換デバイスがその有力な候補であることを示している。このデバイス研究の現状を概観し、この研究における周期的強誘電分極反転構造作製の重要性を指摘した上で、本研究の目的と課題を明らかにしている。

第2章 高効率導波路型光第2高調波発生デバイスの理論設計

本章では、導波路型擬似位相整合光第2高調波発生 (QPM-SHG) デバイスの特性を、導波光モードプロファイル及び分極反転構造を数式化し、理論的に解析している。デバイスの基本構成要素である分極反転構造、光導波路がデバイス特性に与える影響を明らかにし、高効率デバイス実現に必要な条件を明らかにしている。

第3章 電圧印加によるLiNbO₃分極反転

本章では、LiNbO₃上への周期数 μm 程度の分極反転グレーティングの電圧印加による作製方法を述べている。結晶内に誘起される電界強度分布を理論解析し、分極反転グレーティング作製に有効な電極構造を明らかにしている。また、種々の条件下での作製を試みた結果得られた分極反転の特性を明らかにしている。さらに、本研究においてはじめて可能になった、扇形分極反転グレーティング、及び周期 $2\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングの作製について述べている。さらに、分極反転のメカニズムについて検討を行っている。また、

本研究において見いだされた、分極反転構造の検査法についても述べている。

第4章 緑色／青色光発生用導波路型第2高調波発生デバイスの作製と評価

本章では、第3章で作製した分極反転グレーティングを用いた、緑色／青色光発生用の LiNbO_3 導波路型QPM-SHGデバイスの作製と評価について述べている。 Nd:YAG レーザ光を用いた緑色光発生実験、 $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ レーザ光を用いた青色光発生実験、及び半導体レーザ光を用いた青色光発生実験で得られた結果を示すとともに、得られた結果と理論値との比較を行っている。

第5章 紫外光発生用導波路型第2高調波発生デバイスの作製と評価

本章では、これまでほとんど検討されていなかった、紫外光発生用 LiNbO_3 導波路型SHGデバイスについて検討し、試作・評価を行った結果について述べている。第2高調波に吸収損失がある場合のデバイス性能について理論解析を行ない、その特性を明らかにしている。周期 $6\mu\text{m}$ 程度の分極反転グレーティングを用いた3次QPM-SHGによる紫外光発生実験、及び本研究において初めて作製に成功した周期 $2\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングを用いた1次QPM-SHGによる紫外光発生実験で得られた結果について述べている。

第6章 分極反転グレーティングを用いた導波路型光第3高調波発生デバイス

本章では、分極反転グレーティングを用いた導波路型光第3高調波発生デバイスを提案し、理論的・実験的に行なった検討について述べている。提案するデバイス構成を述べ、デバイス性能を理論解析した結果について述べている。また、 Nd:YAG レーザ光をポンプ光として用いる場合のデバイス設計を行い、作製したデバイスを用いた第3高調波発生実験で得られた結果について述べている。この結果から高効率な導波路型光第3高調波発生デバイスの実現可能性を検討している。

第7章 結論

本章では、本研究で得られた成果を総括し、今後の課題を明らかにするとともに、将来展望について述べている。

目次

第1章	序論	1
1.1	研究の背景と現状	1
1.1.1	研究の背景	1
1.1.2	位相整合技術の現状	2
1.1.3	非線形光学波長変換デバイス研究の問題点	4
1.2	本研究の目的と課題	5
1.3	本論文の構成	5
第2章	高効率導波路型光第2高調波発生デバイスの理論設計	7
2.1	緒言	7
2.2	変換効率の理論式	7
2.3	分極反転構造依存性	10
2.4	作製誤差依存性	13
2.5	理想的分極反転グレーティング作製の検討	16
2.6	結言	17
第3章	電圧印加によるLiNbO ₃ 分極反転	19
3.1	緒言	19
3.2	作製方法	19
3.3	電圧印加により誘起される電界分布の理論解析	21
3.4	分極反転の特性	24
3.4.1	電圧印加条件	24
3.4.2	試料雰囲気依存性	25
3.4.3	周期電極形状依存性	27
3.4.4	LiNbO ₃ 結晶厚さ依存性	29
3.5	扇形分極反転グレーティングの作製	31
3.6	微細周期グレーティングの作製	32
3.7	熱処理による分極反転構造の非破壊観察	33

3.8	分極反転メカニズムの検討	34
3.9	結言	35
第4章	緑色／青色光発生用導波路型第2高調波発生デバイスの作製と 評価	37
4.1	緒言	37
4.2	デバイス作製	37
4.3	第2高調波発生実験	40
4.3.1	Nd:YAGレーザ光の第2高調波発生	40
4.3.2	Ti:Al ₂ O ₃ レーザ光の第2高調波発生	42
4.3.3	半導体レーザ光の第2高調波発生	48
4.4	理論値との比較	51
4.5	結言	53
第5章	紫外光発生用導波路型第2高調波発生デバイスの作製と評価 ..	55
5.1	緒言	55
5.2	吸収損失を考慮したデバイス性能の理論解析	55
5.3	導波路型3次擬似位相整合第2高調波発生デバイス	57
5.3.1	デバイス作製	57
5.3.1	第2高調波発生実験	58
5.4	導波路型1次擬似位相整合第2高調波発生デバイス	61
5.4.1	デバイス作製	61
5.4.1	第2高調波発生実験	62
5.5	結言	66
第6章	分極反転グレーティングを用いた導波路型光第3高調波発生 デバイス	68
6.1	緒言	68
6.2	デバイス構成	68
6.3	デバイス性能の理論解析とデバイス設計	70

6.4 デバイス作製	73
6.5 第3高調波発生実験	74
6.6 結言	76
第7章 結論	78
謝辞	82
参考文献	83
関連発表論文	90

第1章 緒論

1.1 研究の背景と現状

1.1.1 研究の背景

近年、小型コヒーレント光源として半導体レーザは、光ディスクに代表される光記録分野や、光情報処理分野、光通信分野、光センサや光計測分野等において必要不可欠なデバイスとして使用されている。しかしながら現在利用可能な波長域は、赤色光～近赤外光領域に限られている。この波長域が拡大できれば、上記の分野において一層の進展がもたらされるだけでなく、他分野への波及効果も期待できる。そのため小型コヒーレント光源から得られる光の波長域を拡大することは、オプトエレクトロニクス分野における非常に重要な研究課題となっている。特に、より短波長光である緑色や青色光を発生する小型短波長コヒーレント光源への要望が、光ディスクの高密度化やレーザプリンタの高性能化等の実現のため高まっている。

小型短波長コヒーレント光源実現のためのアプローチとして、緑色や青色光を発生する半導体レーザの研究が盛んに行われており^{1)–6)}、現在までにII-VI族であるZnSe系材料を用い、室温連続発振で100時間程度の動作時間が報告されている³⁾。また、III-V族であるGaN系材料を用いた研究もごく最近になって活発化しており^{5), 6)}、現在までに室温パルス発振が報告されている⁶⁾。しかしながらこのような半導体レーザの実用化には、室温連続発振下での長寿命化、信頼性の確保等まだ多くの課題を残している。

一方、小型コヒーレント光源から得られる光の波長域を拡大する方法として、非線形光学効果、特に2次非線形光学効果を用いて波長を変換する、非線形光学波長変換デバイスを用いる方法があり、現在最も有効で実用化に近い方法として考えられ、盛んに研究されている。このようなデバイスには

- 1) 周波数 ω の入力光から周波数 2ω の第2高調波を発生させる第2高調波発生 (Second Harmonic Generation : SHG) デバイス
- 2) 周波数 ω_1 と ω_2 の2つの入力光から、周波数 $\omega=\omega_1+\omega_2$ の光を発生させる和周波数発生 (Sum Frequency Generation : SFG) デバイスや、周波数 $\omega=|\omega_1-\omega_2|$ の光を発生させる差周波数発生 (Difference Frequency

Generation : DFG) デバイス

- 3) 周波数 ω の光で励起して、周波数 ω_1 の信号光を増幅／発振 (同時に周波数 $\omega_2=\omega-\omega_1$ の光も発生) する光パラメトリック増幅／発振 (Optical

Parametric Amplification / Oscillation : OPA/OPO) デバイス

等がある^{7),8)}。特にSHGデバイスは、近赤外光を半分の波長の緑～青色光に変換できるため、小型コヒーレント光源の短波長化への強い要望から盛んに研究されている。

2次非線形光学波長変換デバイスにおいて高い変換効率を達成するためには

- 1) 高いポンプ光強度
- 2) 長い相互作用長 L
- 3) 大きな2次非線形光学定数 (SHG係数) d
- 4) 関与する光波間の位相整合の達成

が必要である。1), 2)の条件は光波を狭い領域に閉じ込めたまま伝搬させることが可能な光導波路構造⁹⁾を用いることで達成できる。3)の条件は使用する材料によって決定される。高効率デバイス実現のために適用される非線形光学材料としては大きなSHG係数を持っているだけでなく、関与する光波長において光学的に透明、光導波路の作製が可能等の条件がある。これまでにデバイス化が検討されている基板材料としては、 LiNbO_3 ¹⁰⁾⁻²⁶⁾、 LiTaO_3 ²⁷⁾⁻³²⁾、 KTiOPO_4 ³³⁾⁻³⁵⁾等の無機材料がある。より大きなSHG係数をもっている有機材料を用いた研究もなされている³⁶⁾⁻³⁸⁾が、導波路作製技術が未確立である等の多くの課題がある。従って LiNbO_3 が、上記の無機材料の中で最も大きなSHG係数を持ち、光導波路作製技術もほぼ確立されているため、最も有望な導波路型非線形光学波長変換デバイス用の基板材料であると考えられる。以上の考察より、 LiNbO_3 を基板材料として用いて導波路型非線形光学波長変換デバイスを作製し、位相整合が達成できれば、高効率デバイスの実現が期待できる。

1.1.2 位相整合技術の現状

高効率な導波路型非線形光学波長変換デバイスを実現するためには、前述したように関与する光波間の位相整合を達成することが必要である。位相整

合法について、ここでは簡略化のためSHGの場合について述べる。

ポンプ光が非線形媒質中を伝搬すると、非線形分極波が発生し（伝搬定数 $2\beta_1$ ）、これがもとになって第2高調波が発生し伝搬する（伝搬定数 β_2 ）。第2高調波出力が大きくなるためには、非線形分極波の位相と第2高調波の位相が一致する必要がある、その条件（位相整合条件）は、それぞれの伝搬定数を用いて式(1.1)で表される。

$$\beta_2 - 2\beta_1 = 0 \quad (1.1)$$

この条件はポンプ光と第2高調波に対する実効屈折率が等しいことと等価であるが、一般に屈折率の波長分散のためこの条件は満たされない。そこで、これまでに以下に示すような様々な位相整合法が検討されている。

- 1) 複屈折位相整合法^{10),11)}：光導波路材料の複屈折性を利用して、偏光の異なる導波モード間で伝搬定数を一致させる方法。
- 2) モード分散位相整合法^{12),13)}：光導波路の実効屈折率のモード分散を利用して、次数の異なる導波モード間で伝搬定数を一致させる方法。
- 3) チェレンコフ放射型位相整合法^{14),15)}：導波モードのポンプ光と放射モードの第2高調波光との間で位相整合を達成させる方法。
- 4) 擬似位相整合法^{7),39)}：周期構造を用いてポンプ光と第2高調波光の間の位相不整合を補償する方法。

この中で擬似位相整合法 (Quasi-Phase-Matching : QPM) は他の方法に比べ、(i) 導波路材料の方位や偏光方向・波長に制限がない、(ii) SHGテンソルにおける最大要素が使えるため高い変換効率が望める、(iii) 導波モードの第2高調波が得られるため出射光の平行ビーム化・集光が容易、等の多くの利点を有し、現在最も有効な位相整合法であると考えられる。

QPM用の周期構造としては、SHG係数の符号を周期的に反転した構造を用いることが有効である。LiNbO₃のような強誘電体では、その強誘電分極の極性を周期的に反転させることで達成できる。これまでにLiNbO₃において報告されている分極反転法を以下に示す。

- 1) Ti内拡散法^{16)-18),40)}：LiNbO₃結晶の+Z面にTiを熱拡散すると拡散層内

の分極が反転する。

- 2) Li_2O 外拡散法¹⁹⁾: LiNbO_3 結晶を1100°C付近まで加熱して急冷すると、+Z面の Li_2O が結晶内部より外部へと拡散し、拡散層内の分極が反転する。
- 3) SiO_2 装荷熱処理法^{20), 21)}: LiNbO_3 結晶の+Z面に SiO_2 薄膜を堆積し1000°C付近の熱処理を行うと、 SiO_2 薄膜装荷部分の表面層の分極が反転する。
- 4) 電子ビーム走査法^{22)-24), 41)-44)}: LiNbO_3 結晶の+Z面を接地し、-Z面上に収束電子ビームを走査して照射すると、走査線直下から結晶裏面に達する垂直層状に分極が反転する。
- 5) 電圧印加法^{25), 26), 45)-49)}: LiNbO_3 結晶の自発分極の方向と対抗する方向に反転抗電界以上の電界を印加すると分極が反転する。Z板 LiNbO_3 の場合、結晶表面から裏面に達する反転領域も得られる。

緑色や青色光発生用の LiNbO_3 導波路型SHGデバイスにおいて必要とされる分極反転グレーティングの周期は、1次グレーティングの場合数 μm 程度である。上記の分極反転法を用いたグレーティング作製、デバイスへの応用の報告もなされているが、このような微細周期の分極反転グレーティングの作製は非常に困難であるため、分極反転法の基礎特性の確認、及びデバイス化の可能性の確認等の基礎的段階にとどまっている。したがって現状では、微細周期の分極反転グレーティングの作成法を確立する段階には至っておらず、そのデバイスへの応用についても検討が行われていない。

1.1.3 非線形光学波長変換デバイス研究の問題点

目的とする非線形光学波長変換デバイスを実現するため種々の検討を行った結果、基板材料として LiNbO_3 を用い、擬似位相整合法により位相整合を達成させる光導波路型のデバイスが、高効率デバイス実現に対して最も有望であると考えられる。しかしながら、 LiNbO_3 を用いた短波長光発生用導波路型非線形光学波長変換デバイスを高い変換効率で実現するには、現状では

- 1) 高効率を達成するための理論設計が確立されていない、
 - 2) 分極反転グレーティングの作成法が確立されていない、
 - 3) デバイス化の可能性と問題点が明らかになっていない、
- 等の問題点があり、解決が必要である。

1.2 本研究の目的と課題

本研究の目的は、短波長光発生用導波路型非線形光学波長変換デバイスの高効率化を図り、その可能性と問題点を明らかにすることである。

高効率デバイスを実現するためには、分極反転グレーティングの作製がきわめて重要である。さらに理論的に高効率が可能でデバイス設計を行う必要がある。このような要求を満たすため、本研究を始めるにあたり、次のような課題があった。

- 1) 高効率な導波路型非線形光学波長変換デバイス実現のための理論設計を確立する。

この課題に対し、本研究では導波路型SHGデバイスについて、特に分極反転グレーティング構造に着目して行う(第2章)。

- 2) 微細周期の分極反転グレーティングが作製可能な方法を探求し、確立する。

この課題に対し、本研究では電圧印加による分極反転法についてその特性を明らかにし、微細周期グレーティングの作成法を確立する(第3章)。

- 3) デバイスを試作・評価し、実用化への問題点と可能性を明らかにする。

この課題に対し、本研究では緑色、及び青色光発生用導波路型SHGデバイスを試作・評価する(第4章)。さらにこれまでほとんど検討されていない紫外光発生用デバイスについて検討・試作・評価をおこない、実用化への問題点と可能性を明らかにする(第5, 6章)。

1.3 本論文の構成

図1.1に本論文の構成と各章のつながりを示すブロックダイアグラムを示す。第2章では、高効率デバイス実現のための理論設計を、導波路型光第2高調波発生デバイスについて行った結果を述べる。第3章では高効率デバイス実現のために不可欠な分極反転グレーティング構造の作製のため、本研究で確立した電圧印加による LiNbO_3 分極反転について述べる。第4章では、緑色及び青色光発生用の導波路型光第2高調波発生デバイスを試作し、評価を行った結果を述べる。第5章では、これまで検討されていなかった、紫外光発生用の導波路型光第2高調波発生デバイスについて検討し、試作、評価を行った結果を述べ

る。第6章では、本研究で提案、試作した分極反転グレーティングを用いた導波路型光第3高調波発生デバイスについて述べる。第7章では、本研究において得られた成果を総括し、今後の課題について述べる。

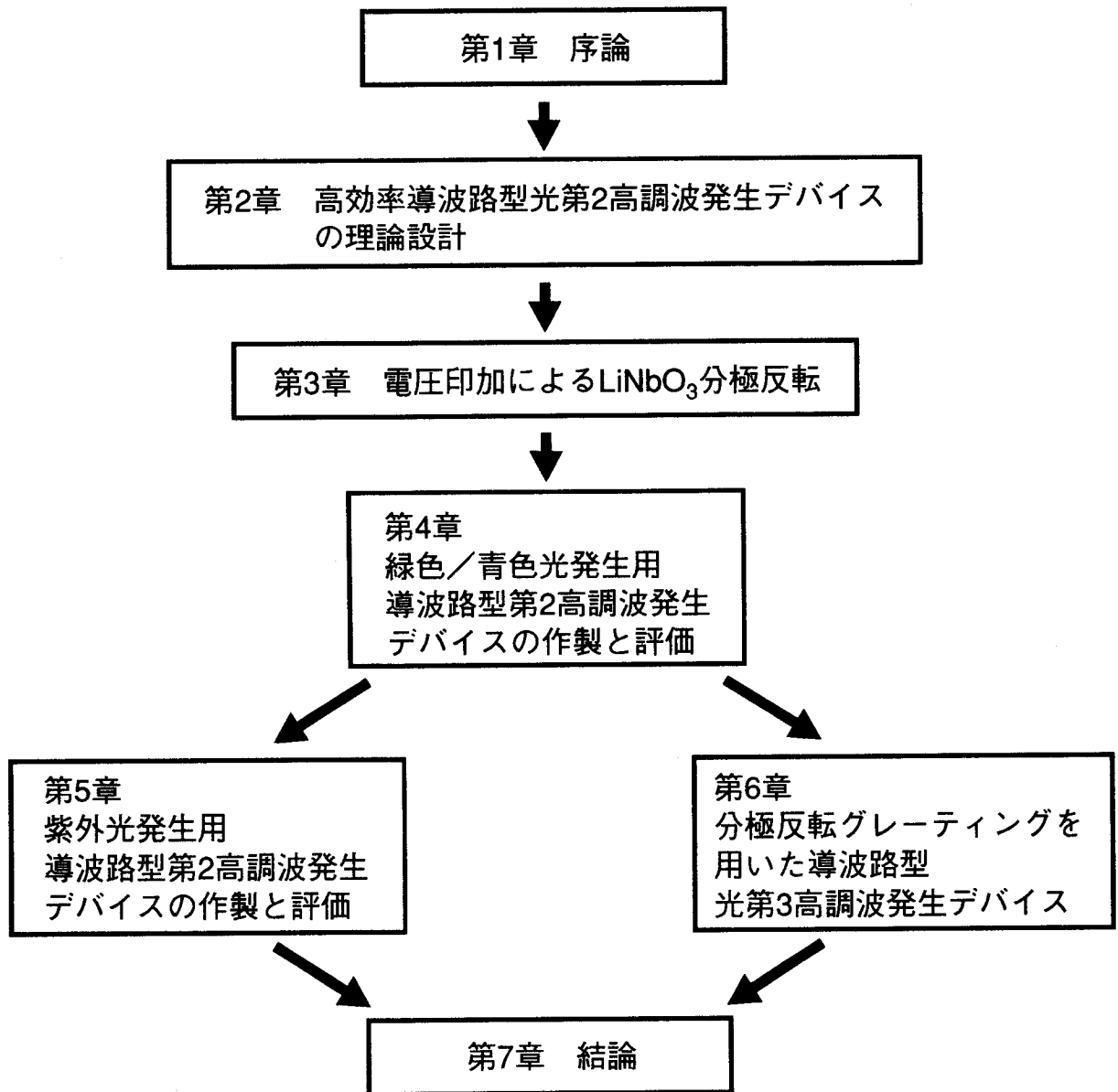


図1.1 本論文の構成

第2章 高効率導波路型光第2高調波発生デバイスの理論設計

2.1 緒言

本章では、高効率な導波路型非線形光学波長変換デバイス実現に必要な理論設計を確立するため、導波路型SHGデバイスについて行った理論解析結果について述べる。既に導波路型QPM-SHGデバイスの変換効率を与える一般式は報告されている³⁹⁾。本研究では、具体的に導波光のモードプロファイル、及び分極反転グレーティング構造のフーリエ展開を用いた表現式を導出した後、これらを一般式に適用して導波路型QPM-SHGデバイスの特性解析を行い、高効率デバイス実現に必要なデバイス構造を、特に分極反転グレーティング構造に着目して明らかにする。さらに、解析により明らかになった構造を作製する方法について、これまでの報告例をもとに検討する。

2.2 変換効率の理論式

[一般理論式]

図2.1に示されるような均一周期分極反転グレーティング構造を持つチャネル導波路内でのポンプ光と第2高調波は、次のモード結合方程式で記述できる。

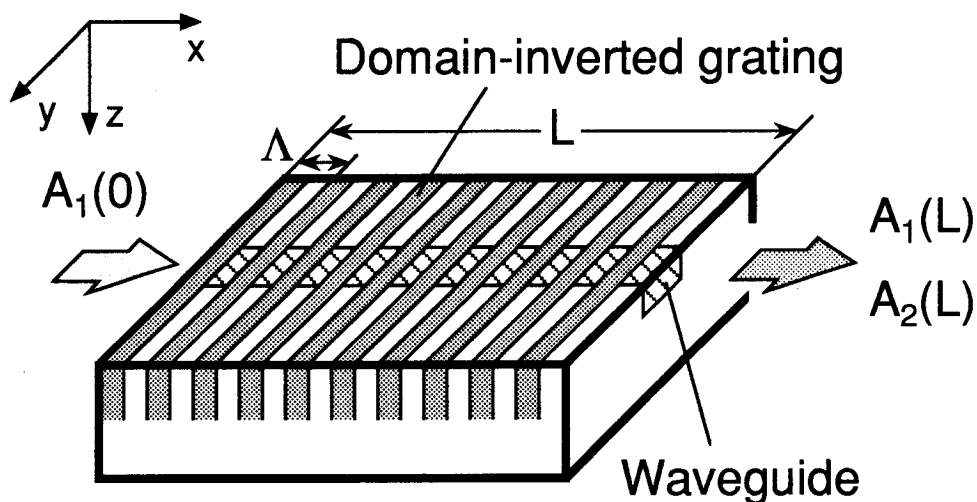


図2.1 均一周期分極反転グレーティングを持つ導波路型QPM-SHGデバイス

$$\begin{aligned}\frac{d}{dx}A_1(x) &= -j\kappa^* A_2(x) A_1^*(x) \exp(-j2\Delta x) \\ \frac{d}{dx}A_2(x) &= -j\kappa [A_1(x)]^2 \exp(+j2\Delta x)\end{aligned}\tag{2.1}$$

ここで、導波光の伝搬方向が x 、導波路深さ方向が z であり、 $A_1(x)$ 、 $A_2(x)$ はポンプ光と第2高調波の電界振幅、 κ は非線形結合係数、 Δ は位相不整合量である。 κ と Δ はそれぞれ次式で表される。

$$\kappa^2 = \frac{(2\omega)^2}{2(N_1)^2 N_2} \left(\frac{\mu}{\epsilon_0}\right)^{3/2} \cdot \frac{\left(\iint E_2^* d_1 E_1^2 dydz\right)^2}{\iint |E_2|^2 dydz \left(\iint |E_1|^2 dydz\right)^2}\tag{2.2}$$

$$2\Delta = \beta_2 - (2\beta_1 + 2\pi/\Lambda)\tag{2.3}$$

ここで、 μ と ϵ_0 は真空中の透磁率と誘電率、 ω はポンプ光の周波数、 N は導波モードの実効屈折率、 β は伝搬定数、 E は導波光の電界モードプロファイルであり、添え字1, 2はそれぞれポンプ光と第2高調波を表す。 N 、 β 、 E は光導波路の屈折率分布によって決まり、 E_1 、 E_2 は (y, z) の関数である。また、 Λ は分極反転グレーティングの周期であり、 d_1 は伝搬方向 x に対して周期的に変化するSHG係数分布をフーリエ展開したときの基本周期成分で、分極反転グレーティングの構造によって決まる (y, z) の関数である。

式(2.1)のモード結合方程式の解は、ヤコビの楕円関数 sn を用いて次のように表せる。

$$\begin{aligned}\eta &= \frac{|A_2(L)|^2}{|A_1(0)|^2} = \gamma \text{sn}^2 \left[\frac{\kappa \sqrt{P_0} L}{\sqrt{\gamma}}; \gamma \right] \\ \gamma &= \left[\sqrt{1 + \left(\frac{|\Delta|}{2\kappa \sqrt{P_0}} \right)^2} + \frac{|\Delta|}{2\kappa \sqrt{P_0}} \right]^{-2}\end{aligned}\tag{2.4}$$

ここで、 $P_0 = |A_1(0)|^2$ は入射ポンプ光パワー、 L は相互作用長である。特に、変

換効率 η があまり大きくなく、ポンプ光パワーの減衰が小さいときには、式(2.4)は簡単化され、式(2.5)で表せる。

$$\eta = \kappa^2 P_0 L^2 \left(\sin \Delta L / \Delta L \right)^2 \quad (2.5)$$

式(2.5)より明らかなように、変換効率 η はポンプ光パワー P_0 に比例しており、変換効率をポンプ光パワーで割った値 η/P_0 は各デバイスの固有の値となるので、これを規格化変換効率と呼び、デバイス性能の目安として一般的に用いられている。

以上より、均一周期の分極反転グレーティングを持つデバイスの性能解析には、非線形結合係数 κ を正確に求めることが重要であることがわかる。

[導波光電界モードプロファイル]

式(2.2)を用いて非線形結合係数 κ を求めるためには、導波光モードプロファイル E_1 , E_2 が必要である。ここでは、 LiNbO_3 のSHGテンソル中で最大の d_{33} を用いることのできる、Z板基板上の幅 W 、深さ T のステップ形屈折率分布を持ったチャネル導波路にTM-like基本モードを励振した場合を求めた。チャネル光導波路内の電界モードプロファイルを正確に求めることは容易ではないが、図2.2に示すような屈折率分布の導波路に対しては良い近似を与えるマーカッティリの方法⁵⁰⁾を用いて電界分布を求めた。マーカッティリの方法では、

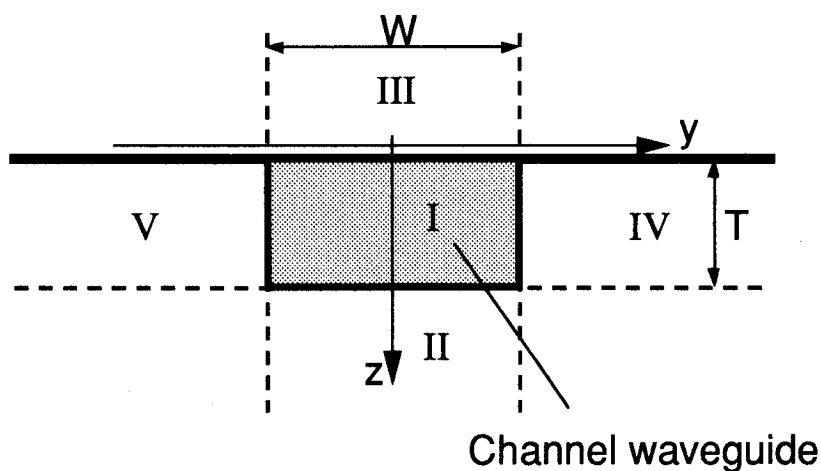


図2.2 ステップ形屈折率分布を持つチャネル導波路の断面構造

TM-like基本モードの電界Z方向成分（導波路深さ方向） E_z は、図2.2のI～Vの領域では式(2.6)で表せると仮定し、それ以外の領域を通して伝搬する光エネルギーは無視する。

$$\begin{aligned}
E_I(y,z) &= \left(1 - \frac{k_z^2}{k_0^2 n_f^2}\right) \cos(k_z z - \phi_1) \cos(k_y y + \phi_2) \\
E_{II}(y,z) &= \left(1 + \frac{\gamma_{z2}^2}{k_0^2 n_s^2}\right) \cos(k_z T - \phi_1) \cos(k_y y + \phi_2) \exp\{-\gamma_{z2}(z - T)\} \\
E_{III}(y,z) &= \left(1 + \frac{\gamma_{z3}^2}{k_0^2 n_c^2}\right) \cos\phi_1 \cos(k_y y + \phi_2) \exp(\gamma_{z3} z) \\
E_{IV}(y,z) &= \left(1 - \frac{k_z^2}{k_0^2 n_s^2}\right) \cos\left(\frac{k_y W}{2} + \phi_2\right) \cos(k_z z - \phi_1) \exp\left\{-\gamma_{y4}\left(y - \frac{W}{2}\right)\right\} \\
E_V(y,z) &= \left(1 - \frac{k_z^2}{k_0^2 n_s^2}\right) \cos\left(\frac{k_y W}{2} - \phi_2\right) \cos(k_z z - \phi_1) \exp\left\{\gamma_{y4}\left(y + \frac{W}{2}\right)\right\}
\end{aligned} \tag{2.6}$$

ここで $k_0=2\pi/\lambda_0$ は真空中の光波の波数、 k_y , k_z , ϕ_1 , ϕ_2 , γ_{z2} , γ_{z3} , γ_{y4} は固有値方程式を解いて得られる値である。式(2.6)より求まる電界モードプロファイルの例を図2.3に示す。表2.1に計算で用いたパラメータを示す。各波長の導波路屈折率 n_{f1} , n_{f2} の値はプロトン交換導波路^{51)–53)}での屈折率を考慮して表2.1のように仮定した。

2.3 分極反転構造依存性

非線形結合係数 κ の値は式(2.2)から明らかなように分極反転グレーティング構造に依存する。したがって図2.4に示す断面構造モデルに対して解析を行った。分極反転構造は深さが D で、反転領域の幅の周期 Λ に対する比（デューティー比）が a の矩形の断面構造であり、導波路の幅方向には一様な構造である。

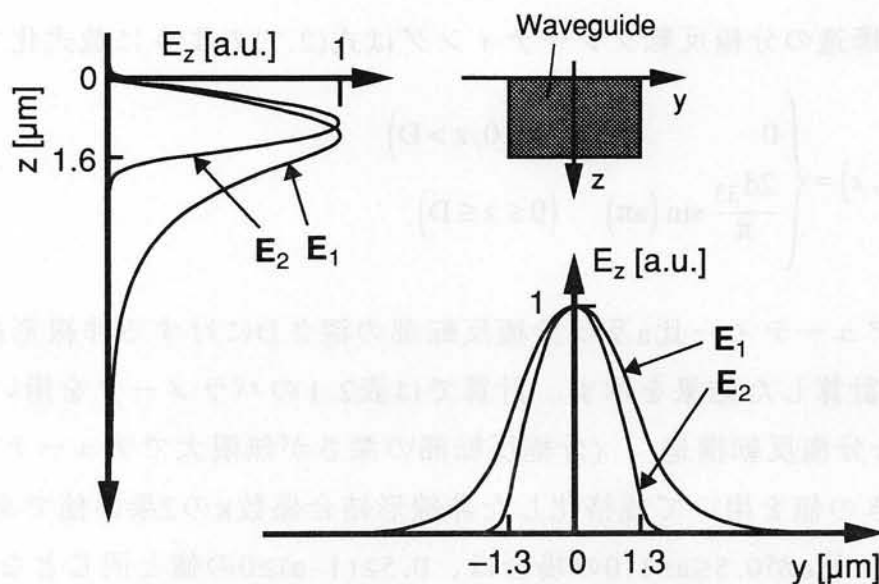


図2.3 TM-like基本モードの電界プロファイル
($W=2.6\mu\text{m}$, $T=1.6\mu\text{m}$, $\lambda_1=0.886\mu\text{m}$, $\lambda_2=0.443\mu\text{m}$)

表2.1 計算に用いたパラメータ

Pump wavelength	$\lambda_0=0.886\text{ }\mu\text{m}$
Indices	$n_{s1} = 2.167$ $n_{s2} = 2.287$ $n_{f1} = 2.179$ $n_{f2} = 2.337$
Waveguide size	$W = 2.6\text{ }\mu\text{m}$ $T = 1.6\text{ }\mu\text{m}$

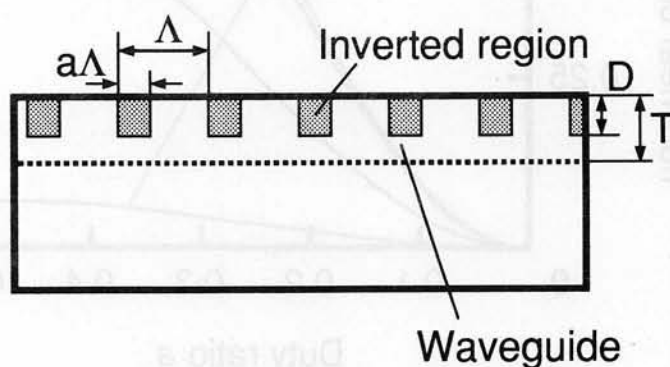


図2.4 解析に用いた分極反転グレーティングの断面構造

このような構造の分極反転グレーティングは式(2.7)のように数式化できる。

$$d_1(y, z) = \begin{cases} 0 & (z < 0, z > D) \\ \frac{2d_{33}}{\pi} \sin(a\pi) & (0 \leq z \leq D) \end{cases} \quad (2.7)$$

図2.5にデューティー比 a 及び分極反転部の深さ D に対する非線形結合係数 κ の依存性を計算した結果を示す。計算では表2.1のパラメータを用いた。縦軸は、理想的な分極反転構造（分極反転部の深さが無限大でデューティー比 a が0.5）のときの値を用いて規格化した非線形結合係数 κ の2乗の値である。なお、デューティー比 a が $0.5 \leq a \leq 1.0$ の場合は、 $0.5 \geq (1-a) \geq 0$ の値と同じとなる。

非線形結合係数はデューティー比が大きくなるほど増加し、 $a=0.5$ のとき最大値を取ること、 $0.4 \leq a \leq 0.6$ であれば $a=0.5$ のときの90%以上の値が得られることがわかった。また、分極反転部の深さが深くなるにつれて非線形結合係数は大きくなることがわかる。今回行った解析条件下では、分極反転部の深

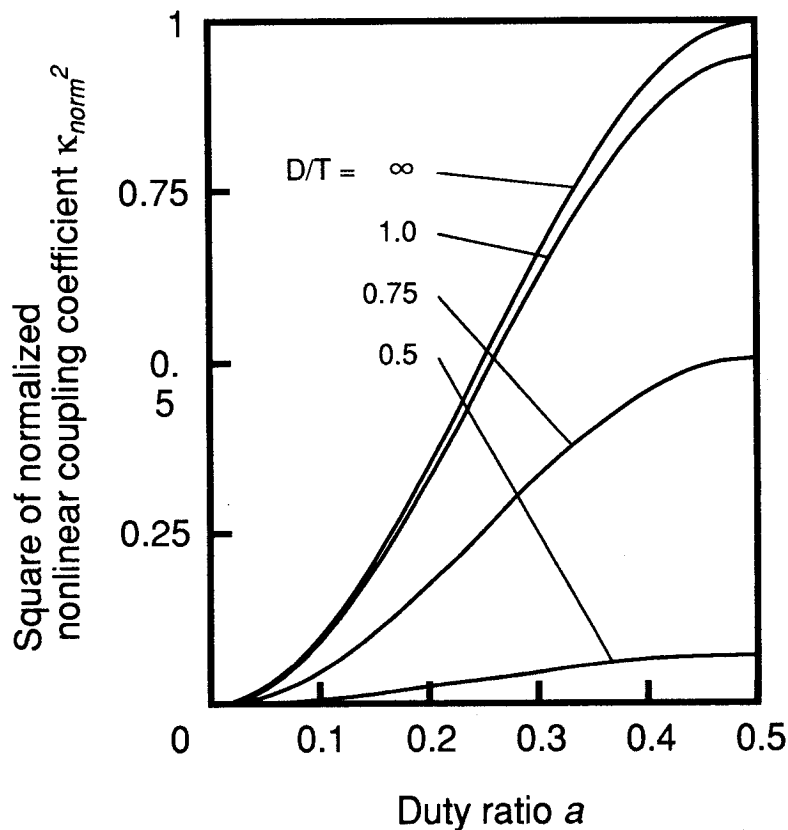


図2.5 規格化非線形結合係数のデューティー比依存性

さDが導波路深さTに対して $D \geq T$ であれば、深さが無限大のときの95%以上の値が得られるが、分極反転部の深さDが小さくなると非線形結合係数の値は激減し、 $D/T=0.75$ のときでも50%、 $D/T=0.5$ では10%の値しか得られないことがわかった。なお、理想的な分極反転グレーティングのときには、非線形結合係数 κ の値は、 $\kappa=0.65\text{W}^{-1/2}\text{cm}^{-1}$ が得られ、相互作用長3mmのデバイスにおいて規格化変換効率 $\eta/P_0=380\%/W$ が期待できる。ここで、SHG係数の値は $d_{33}=47\text{pm/V}^{54)}$ を用いた。

この結果より、高効率な導波路型QPM-SHGデバイス実現のためには、デューティー比 a の値が $0.4 \leq a \leq 0.6$ であり、分極反転部の深さDが導波路深さTと同等以上、屈折率分布の違いによる導波光モードプロファイルの違いを考慮すると、導波路深さの数倍の深さをもつ分極反転グレーティングが必要であることがわかった。なお、分極反転構造が矩形でない場合、導波路断面内全体にわたって、デューティー比 a が $0.4 \leq a \leq 0.6$ のときには性能劣化は少ないが、それ以外の場合は効率が劣化する²¹⁾。

2.4 作製誤差依存性

式(2.5)より明らかなように変換効率 η は、式(2.3)で表される位相不整合量 Δ に大きく依存し、 $\Delta=0$ の時最大値となる。 $\Delta=0$ とできる分極反転グレーティングの周期 Λ は式(2.3)より

$$\Lambda = \frac{\lambda_0}{2} \frac{1}{|N_2 - N_1|} \quad (2.8)$$

と表される。 λ_0 はポンプ光の真空中での波長である。 N_1 , N_2 として LiNbO_3 バルク結晶の屈折率を用いたときの分極反転グレーティング周期 Λ のポンプ光波長依存性を図2.6に示す。 LiNbO_3 バルク結晶の屈折率は、波長400nm～3 μm の範囲で良い近似を与える以下のセルマイヤ方程式より求めた。

$$n_s^2 = 4.582 + \frac{99210}{\lambda^2 - 210.9} - 2.194 \times 10^{-8} \lambda^2 \quad (2.9)$$

λ はナノメートルで表した真空中での波長である。屈折率の波長分散性のため、

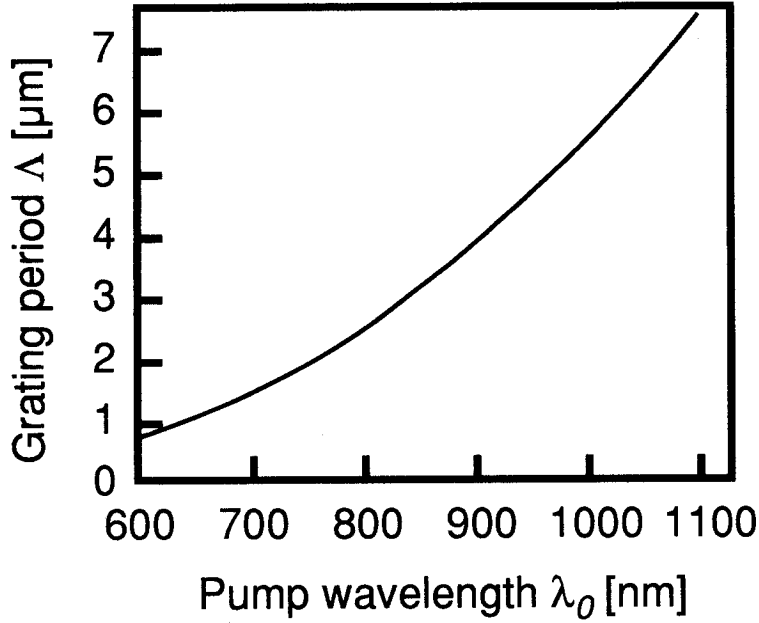


図2.6 分極反転グレーティング周期のポンプ光波長依存性

グレーティング周期とポンプ光波長は線形の関係ではないことがわかる。

図2.7に青色光発生用SHGデバイスに単一波長のポンプ光を入力したときの変換効率のグレーティング周期依存性を示す。位相整合がグレーティング周期 $\Lambda_0=3\mu\text{m}$ で達成されている場合の結果である。式(2.5)で示されているように $(\sin(\Delta L)/\Delta L)^2$ の特性であり、相互作用長が長くなるにつれて、急激にグレーティング周期誤差の受容幅が小さくなることがわかる。これより高効率デバイス実現のためには、mmオーダの相互作用長にわたって、数 μm 周期のグレーティングをnmオーダの精度で作製することが必要であることがわかる。

次に、位相整合波長の光導波路幅依存性を計算した結果を図2.8に示す。計算では簡単化のため、導波路屈折率 n_f と基板屈折率 n_s の差は各波長帯で一定である($\Delta n_1=n_{f1}-n_{s1}=0.012$, $\Delta n_2=n_{f2}-n_{s2}=0.05$)とした。導波路幅が変化すると、実効屈折率も変化する。ポンプ光と第2高調波に対する実効屈折率の変化量は等しくないため、位相整合波長が図2.8に示すように変化する。式(2.3), (2.5)より求められる位相整合波長の誤差受容幅は、相互作用長 $L=3\text{mm}$ のときに0.2 nm程度である。従って高効率デバイス実現のためには伝搬方向にわたっての導波路幅誤差は10%以下にする必要があることがわかった。なお、同様の解析により、導波路深さ方向に対しては5%以下の精度での作製が要求されること

がわかった。

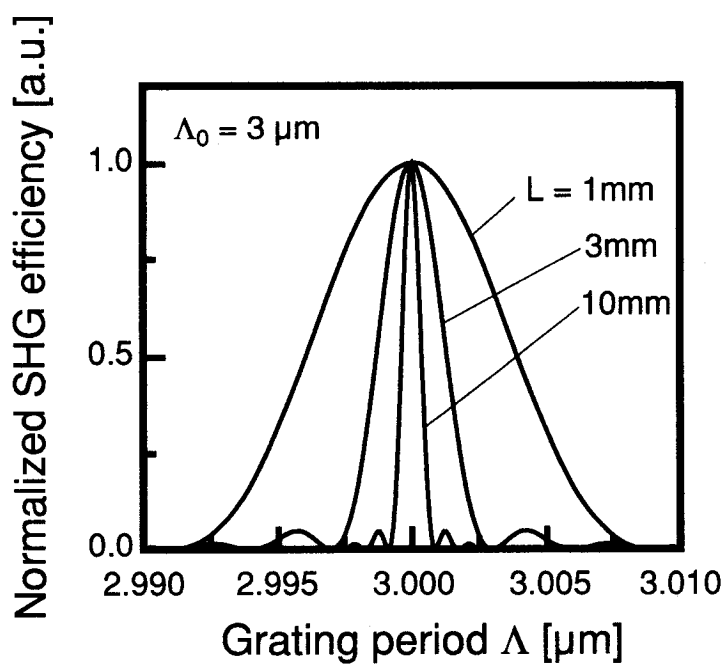


図2.7 変換効率の分極反転グレーティング依存性 ($\Lambda_0=3\mu\text{m}$)

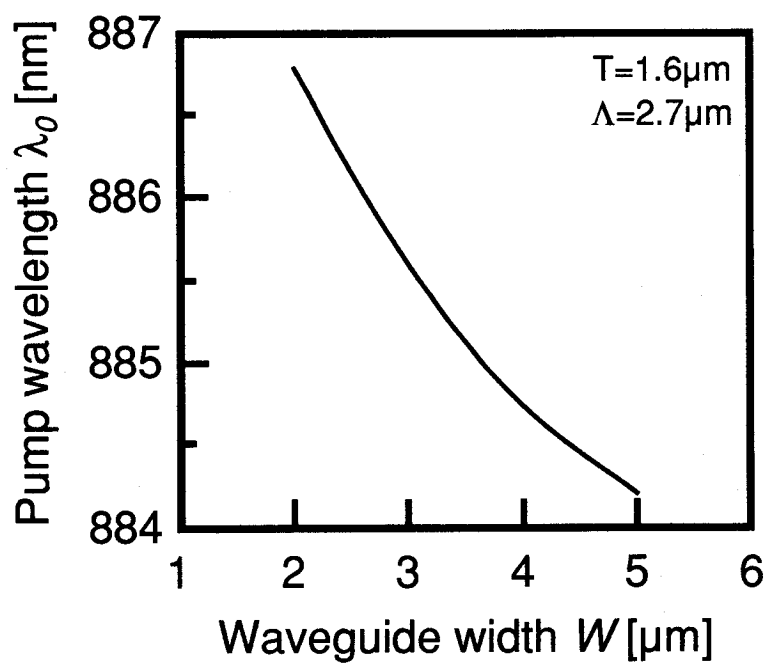


図2.8 位相整合波長の光導波路幅依存性
($T=1.6\mu\text{m}$, $\Lambda=2.7\mu\text{m}$, $\Delta n_1=0.012$, $\Delta n_2=0.05$)

2.5 理想的分極反転グレーティング作製の検討

2.3の解析結果により、高効率な導波路型QPM-SHGデバイス実現のためには、デューティー比 a の値がほぼ0.5であり、分極反転部の深さが導波路深さと同様以上の矩形の分極反転グレーティングが必要であることが明らかとなった。また2.4の解析結果より、分極反転グレーティングはnmオーダーでの周期均一性をmmオーダーの範囲にわたって実現する必要があることが明らかとなった。このような分極反転グレーティングを作製する方法についてこれまでの報告例をもとに検討する

これまでに LiNbO_3 において報告されている分極反転法としては、第1章でも述べたように① Ti内拡散法^{16)-18),40)}、② Li_2O 外拡散法¹⁹⁾、③ SiO_2 装荷熱処理法^{20),21)}、④ 電子ビーム走査法^{22)-24),41)-44)}、⑤ 電圧印加法^{25),26),45)-49)}がある。

①～③の方法で作製された分極反転部はいずれも表面層付近の限られた構造である。表面層付近の限られた構造であっても、その構造が導波路深さと同様の深さの矩形構造であれば高効率デバイスの作製も期待できるが、その構造は図2.9(a)に示すような表面付近のV形の構造である。このような分極反転グレーティング構造では非線形結合係数 κ の値が小さくなるため、①～③の方法では高効率デバイスの実現は期待できない。

④の方法で作製した分極反転構造は、図2.9(b)に示すように、反転部が結晶表面近傍から裏面にまで達するような、結晶厚さ方向にはほぼ一様な理想に近い構造が作製できる。しかしながら、この分極反転グレーティングは点列状の構造になり易い傾向があり、反転幅の制御が困難である。さらにこの方

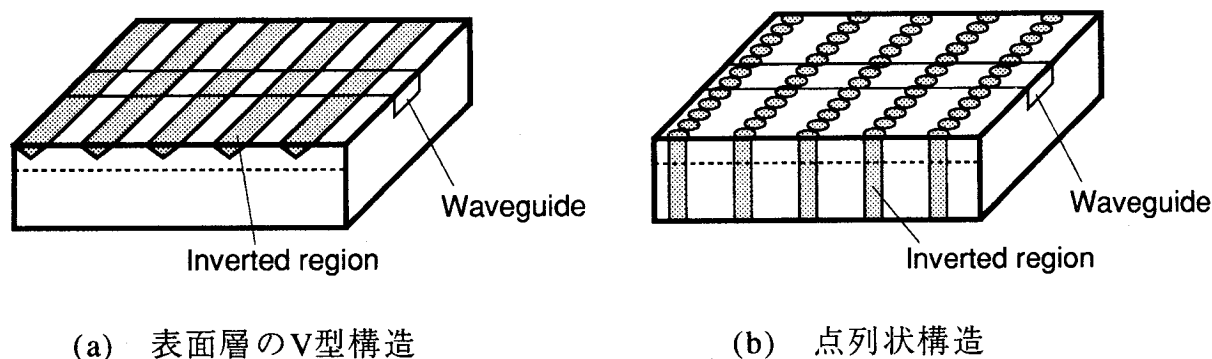


図2.9 各々の分極反転法で得られる構造

法で作製した分極反転グレーティングの周期均一性は明らかではない。

電圧印加法はごく最近になってSHGデバイス作製への応用が検討され始めた²⁵⁾方法である。強誘電体に外部電圧を印加するとその強誘電分極が反転することは古くから知られていたが、 LiNbO_3 ではほとんど検討されていなかった。この方法による分極反転では、結晶表面から裏面にまで達する領域の反転層の形成が可能である。従って周期構造を作製する方法が確立できれば、理想に近い構造が作製できる可能性がある。また、この方法で作製した分極反転グレーティングの周期均一性は、作製時に使用する電極の周期均一性のみ依存すると考えられるため、周期均一性の高い周期電極を使用すれば分極反転グレーティングの周期均一性も高くなると考えられる。さらに、分極反転には大がかりな装置は必要とせず、将来的に見て量産性も高いと考えられる。

以上の考察より、電圧印加法が高効率デバイス作製のための最も有力な方法として期待できる。しかしこの方法による微細周期の分極反転グレーティングの作製は現在のところ十分には検討されておらず、その特性はほとんど明らかになっていない。

2.6 結言

本章では、導波路型QPM-SHGデバイスの理論解析を行い、分極反転構造、及び光導波路構造がデバイス特性に与える影響を明らかにした。解析結果より、高効率デバイス実現のためには、デューティー比 a が $0.4 \leq a \leq 0.6$ であり、導波光モードと分極反転構造との重なりが大きくなる構造、すなわち反転領域の境界が結晶表面に垂直で反転部の深さが導波路深さと同等以上の構造を持った分極反転グレーティングを作製することが必要であることがわかった。さらに、高効率デバイス実現のためには、分極反転グレーティングにはナノメートルオーダーの周期均一性が、光導波路にはサブミクロンオーダーの幅／深さ均一性が必要であることがわかった。

高効率デバイス実現のための分極反転グレーティング作成法について、現在までの報告例をもとに検討し、電圧印加法が高効率デバイス実現のための有力な方法として期待できることを示した。

本章で行った計算は単一縦モードのポンプ光を用いた場合を仮定して行った。しかしながら、ポンプ光光源が多くの縦モードで発振し、しかもすべての縦モード波長がSHGデバイスの波長受容幅内にある場合には、理論的に変換効率が単一縦モードの場合の2倍になることが報告されている⁵⁵⁾。このことは、本章で得られた理論値と実験値を比較する場合に考慮する必要がある。

第3章 電圧印加によるLiNbO₃分極反転

3.1 緒言

強誘電体は外部電圧の印加により、その強誘電分極の極性反転が可能であることは古くから知られていた。しかしLiNbO₃では、室温での反転抗電界強度と絶縁破壊電界強度が非常に近く分極反転構造の形成が困難であったため、自発分極の測定⁵⁶⁾等で検討されている程度であった。最近、結晶内不純物の減少や結晶均一性の向上等により室温での電圧印加による分極反転が可能となり、周期構造の作製も検討されはじめた。導波路型SHGデバイスへの適用も報告され²⁵⁾、現在では本方法は著者らの研究グループを含め、いくつかの研究グループにより検討されている^{26), 45)–49)}。電圧印加による分極反転では、反転領域が結晶表面に垂直で、結晶表面から裏面にまで達するような深い反転層の形成が可能である。従って第2章で述べたような高効率デバイス用の理想的な周期的分極反転構造も作製できる可能性がある。また本方法はLiTaO₃やKTiOPO₄への適用も検討されている^{32), 57)–60)}。

本章では、電圧印加によるLiNbO₃分極反転について、周期数 μm 程度の微細周期グレーティング作製のために調べた特性について述べる。まず、電圧印加により誘起される電界強度分布を理論解析し、分極反転グレーティング作製に有効な電極構造を明らかにする。次に種々の電極構造と電圧印加条件を用いて分極反転の特性を明らかにする。また、本研究においてはじめて行われた、扇形分極反転グレーティング、及び最短周期 $2\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングの作製について述べる。さらに得られた結果を総合して、分極反転のメカニズムについて検討を行う。また、本研究において見いだされた、熱処理によるLiNbO₃分極反転構造の検査法についても述べる。

3.2 作製方法

図3.1に電圧印加によるLiNbO₃分極反転の模式図を示す。両面研磨のZ板LiNbO₃の片面に周期電極、他面に一様電極を装荷し、室温でこの両電極間に電圧を印加した。電圧印加による分極反転は、結晶内部に誘起される電界のZ方向成分の強度がLiNbO₃の反転抗電界強度 E_c ($\sim 20\text{kV/mm}$) を越えた場合に生

じる。分極反転が起こるとそれに伴い電圧印加方向と順方向に反転電流が流れるため、電流波形もしくは電荷量を測定して分極反転の有無を検出した。

図3.2に検討した周期電極の断面構造を示す。これまで使われていた梯子電極 (図3.2(a))²⁵⁾と、本研究で新たに考案した波板電極 (図3.2(b)) を検討した。波板電極では、基板上に周期的にパターンニングした絶縁体を装荷し、その上に金属を堆積させることで波状の電極を形成している。金属が結晶と直接接している部分では結晶内に強い電界が印加されるが、絶縁体装荷部分では緩和されるので周期的電界分布が形成される。波板電極では電極領域全面にわたり金属電極で覆われている。従って電極の電気抵抗は梯子電極と比較して小さくなり、誘起される周期的電界分布が電極領域下の各部分で同一な分布になり易く、作製される反転形状も均一になり易いと考えられる。

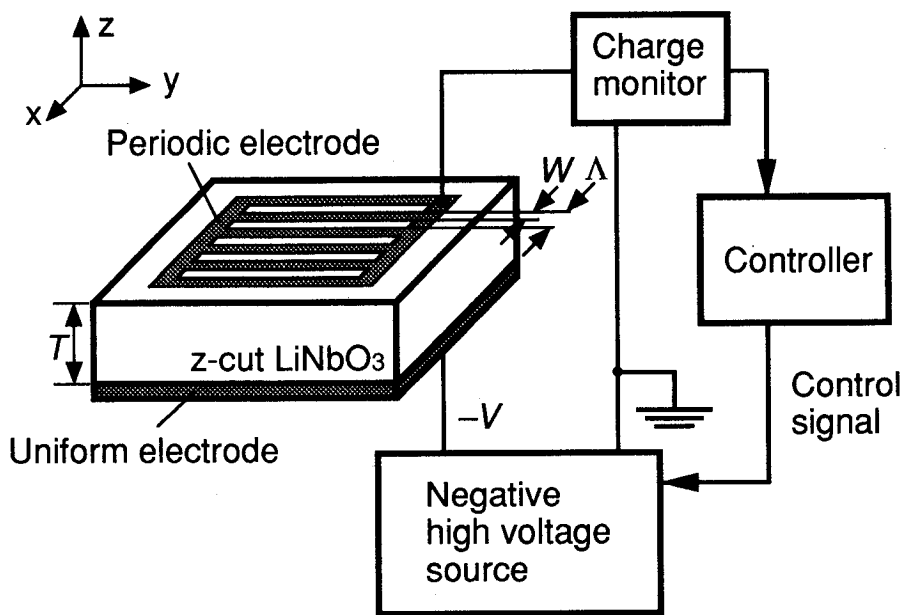


図3.1 電圧印加によるLiNbO₃分極反転

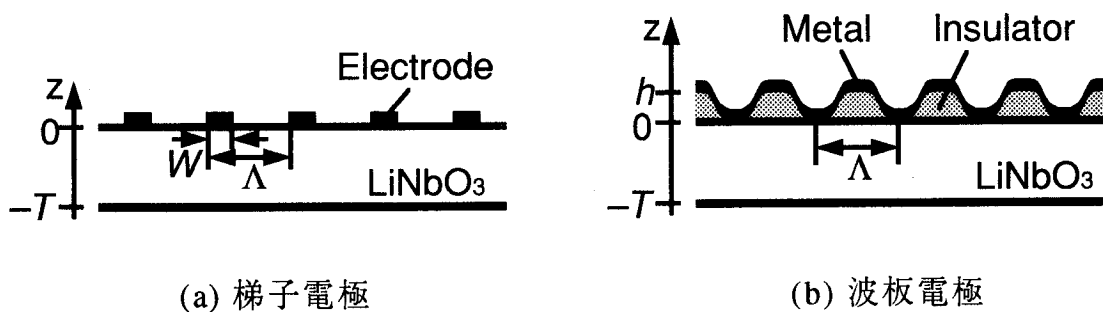


図3.2 周期電極の断面構造

3.3 電圧印加により誘起される電界分布の理論解析

分極反転グレーティング作製に関する理論的な目安を得るため、電圧印加により結晶内部に誘起される電界のZ方向成分の強度分布を計算した。図3.3(a)に解析に用いたモデルを示す。計算の簡単化のため、電極形状はy軸方向に一様で厚さは無視できるとし、分極反転が起こる前の分布を求めた。この時、結晶内の電位 $\phi(x, z)$ は次の二次元ラプラス方程式を満たす。

$$\epsilon_x \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \epsilon_z \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} = 0 \quad (3.1)$$

ここで ϵ_x , ϵ_z はそれぞれLiNbO₃のX軸, Z軸方向の比誘電率であり、それぞれ84.6, 29.1である。電位 $\phi(x, z)$ を平行平板コンデンサ内に誘起される電位分布とそこからの電位差 $\psi(x, z)$ を用いて $\phi(x, z) = V(1+z/T) + \psi(x, z)$ と表わした後、 $z' = \sqrt{\epsilon_x / \epsilon_z} \cdot z$ と座標変換することにより、式(3.1)は

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z'^2} = 0 \quad (3.2)$$

と変形される。図3.3(b)の格子点を用いて差分近似すると各格子点での電位差 $\psi(x, z')$ は式(3.3)のように表される⁶¹⁾。

$$\psi_0 = \left(\frac{1}{h_1 h_3} + \frac{1}{h_2 h_4} \right)^{-1} \cdot \left\{ \frac{1}{h_1 + h_3} \left(\frac{\psi_1}{h_1} + \frac{\psi_3}{h_3} \right) + \frac{1}{h_2 + h_4} \left(\frac{\psi_2}{h_2} + \frac{\psi_4}{h_4} \right) \right\} \quad (3.3)$$

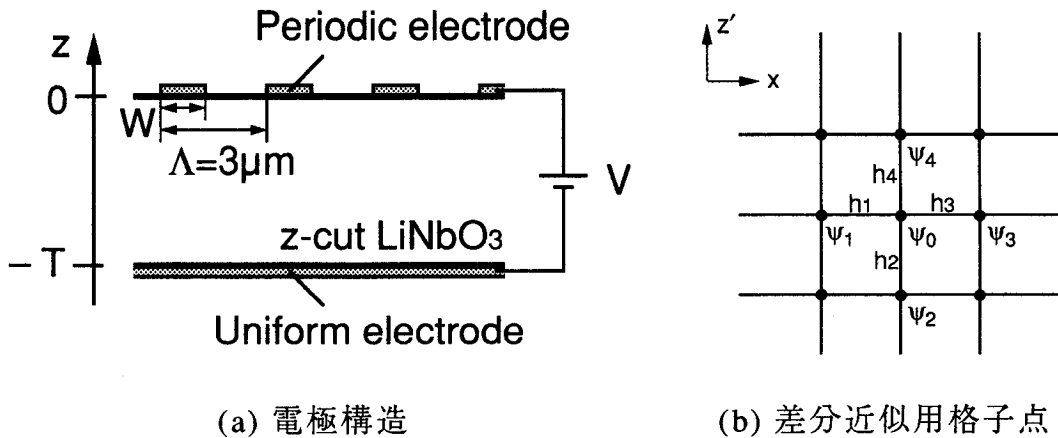


図3.3 電界分布解析モデル

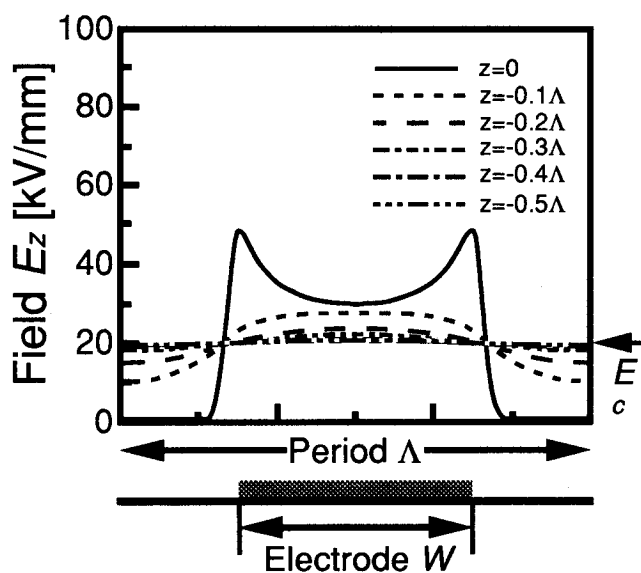
この連立1次方程式を逐次加速緩和 (Successive Over-Relaxation:SOR) 法⁶²⁾を用いて計算して電位差分布 $\psi(x, z')$ を求めた後、電界Z方向成分の強度分布 $E_z = -\partial\phi/\partial z = -V/T - \sqrt{\epsilon_x/\epsilon_z} \cdot \partial\psi/\partial z'$ を求めた。

梯子電極を用いたときの計算結果の一例を図3.4(a)に示す。電圧 $V=10\text{kV}$ 、結晶厚さ $T=0.5\text{mm}$ 、電極周期 $\Lambda=3\mu\text{m}$ 、電極指幅/周期 $=W/\Lambda=0.5$ で、試料雰囲気は真空の時の結果であり、梯子電極装荷面近傍の電界Z方向成分の1周期分の分布を示している。周期的分極反転構造作製には電界Z方向成分の周期的変調度が大きくなる電極構造が望ましいと考えられる。図3.4(a)より、電界分布の周期的変調度は表面直下で最も大きく、結晶内部になるに従って減少し、数 μm 程度内部では非常に小さくなることがわかった。電極指下の電界は電極ギャップ下の電界より大きいので、印加電圧 V を適切な値にすれば、電極指下のみの電界が反転抗電界強度 E_c を上回り、電極指下で分極反転が起こり周期的分極反転構造が作製されると予想できる。また強電界領域は電極指幅より広い範囲に分布しているため、電極指下全体の電界が E_c を越えるような電圧を印加した場合、電極指幅より広い範囲で電界強度が E_c を上回り反転幅も電極指幅より大きくなる傾向が強いことがわかった。第2章で述べたように高効率デバイス実現のためには、反転幅は周期の半分であることが必要である。解析の結果 $W/\Lambda \sim 0.3$ の梯子電極が、反転幅/周期 $=0.5$ の構造を作製するための電界分布の誘起に最適であることがわかった。

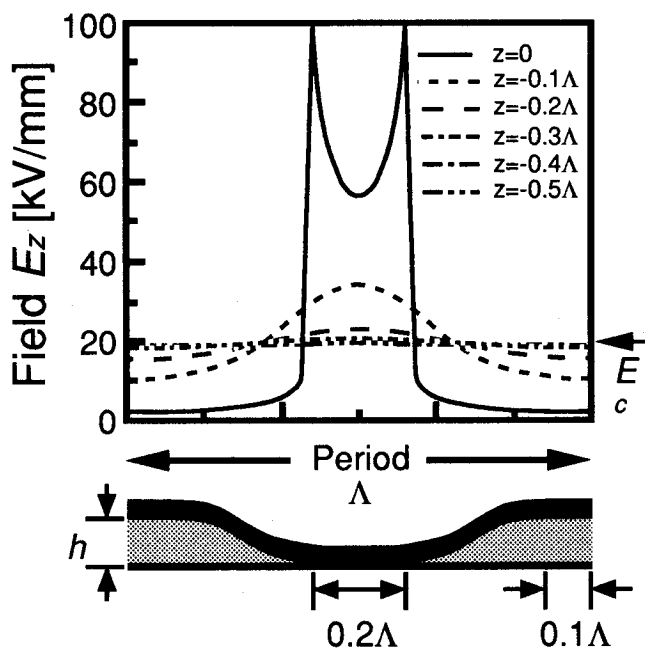
波板電極を用いた時の電界分布の一例を図3.4(b)に示す。絶縁体の厚さ $h=1.5\mu\text{m}$ 、絶縁体の比誘電率 $\epsilon_r=3.0$ (PMMA)、金属が結晶に接している部分の幅、絶縁体の最も厚い部分の幅が周期に対して共に0.2とし、この間の電極部分の形状を余弦曲線で表わした時の結果である。波板電極では電界分布は絶縁体の形状に依存するが、上記の条件では最適な電極指幅の梯子電極を用いたときと同様の電界分布が誘起されることがわかった。従って波板電極を用いた場合も、最適な構造の分極反転グレーティングが作製可能であると予想できる。更にこの様な電極構造を用いた方が電界強度の周期的変調度も大きくなっており、周期構造作製に有利であることもわかった。

電界分布の結晶厚さ依存性を知るため、同様の計算を $0.1 \leq T \leq 0.5\text{mm}$ のいくつかの厚さについて行った。その結果、印加電圧と厚さの比 V/T を一定とした

ときの表面近傍の分布は T にほとんど依存しないことがわかった。従って分極反転グレーティングの作製は結晶厚さに関わらず可能であると予想できる。



(a) 梯子電極 ($W/\Lambda=0.5$)



(b) 波板電極

図3.4 電界分布の計算結果
($V=10\text{kV}$, $T=0.5\text{mm}$, $\Lambda=3\mu\text{m}$)

3.4 分極反転の特性

LiNbO_3 の分極反転構造を直接観察することはできない。 LiNbO_3 はふっ酸硝酸混合液 ($\text{HF}:\text{HNO}_3=1:2$) により+Z (+Y) 面はエッチングされないが、-Z (-Y) 面はエッチングされる^{63),64)}。+Z面上に分極反転グレーティングがある場合には、反転領域 (-Z) のみがエッチングされるため分極反転構造が可視化できる。従って、作製した分極反転構造は LiNbO_3 表面を 50°C 、10～20分間エッチングした後に顕微鏡観察及びSEM観察することにより評価した。

3.4.1 電圧印加条件

3.3で明らかになった様に、Z方向電界分布は周期電極装荷面の表面直下でのみ周期的変調度が大きい。 $\pm Z$ 面で分極反転の起こり易さが異なる場合、作製される分極反転構造も周期電極装荷面に依存すると考えられる。従って、周期電極の装荷面による違いを検討した。+Z面に周期電極を装荷した場合、+Z面で分極反転グレーティングが作製されている場合でも-Z面ではほとんど分極反転していない構造も得られた。-Z面に周期電極を装荷した場合、-Z面に分極反転グレーティングが作製された時には+Z面では全面が一様に反転した構造も得られた。以上より分極反転は+Z面で起こり-Z面側へ進むことがわかった。

直流電圧の印加では、電極や結晶の損傷（絶縁破壊等）が起こり易いが、パルス電圧を印加すれば回避できる⁵⁶⁾。グレーティング作製には0.2～40msec幅のパルス電圧が有効である事がわかった。図3.5に分極反転時の電圧・電流波形の一例を示す。各図中の上側が電流波形、下側が電圧波形である。厚さ0.5mmの LiNbO_3 の+Z面の周期電極をアースにして-Z面の一様電極に0kV→-10kV→0kVの方形波パルス電圧を印加した時には図3.5(a)の様な波形になった。これは図3.5(b)のようにバイアス電圧を用いた-5kV→-10kV→-5kVの方形波パルス電圧を印加することで回避できることがわかった。図3.5(a)の様な電圧・電流波形になった理由は3.8で検討する。図3.5(b)ではA点～C点のパルス幅で電圧印加している。A点で充電電流が流れた後、B点まではほぼ一定値の反転電流が流れた後、電流は停止していることがわかった。なおC点の電流は放電電流である。図3.5(b)の電圧印加の結果、分極反転領域は無制限に広が

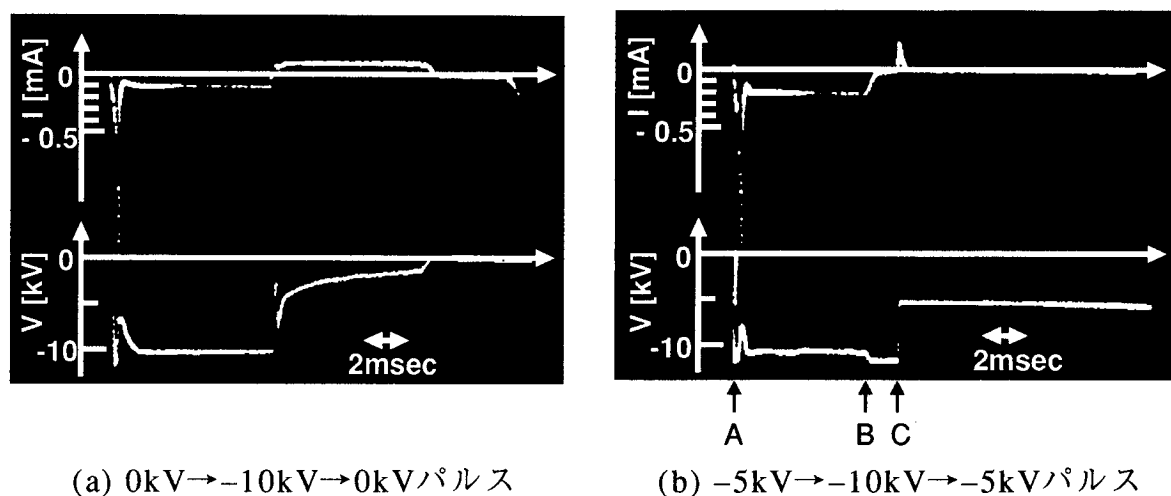


図3.5 分極反転時の電圧・電流波形

るわけではなく電極領域下に制限されることがわかった。種々の電圧印加条件を試みた結果、グレーティング作製において最も重要なことは、電圧印加中に結晶に与える総電荷量を正確に制御することであることがわかった。本研究では、図3.1に示すようなフィードバック回路を使用するとともに、電圧印加システムの配線等で生じる浮遊容量や電極容量のために電圧印加時に流れる充電電荷量を、全電荷量の数%以下に抑制することで、結晶に与える総電荷量を5%以下の誤差で制御することが可能になった。またこれにより、作製の再現性も向上できた。そして電圧印加中に結晶に与える総電荷量を、“ $2 \times$ 自発分極 P_s ($\sim 70 \mu\text{C}/\text{cm}^2$)⁵⁶⁾ $\times$ 目標反転面積 (=電極範囲面積 $\times 1/2$)” の値と等しくなるように制御したとき、周期電極下の全体にわたってほぼ均一に分極反転グレーティングが作製できることがわかった。

3.4.2 試料雰囲気依存性

周期電極として梯子電極を用いた場合の電圧印加時の試料雰囲気を検討した。試料雰囲気としては沿面放電等の異常放電を防ぐとともに、電界の周期的変調度を大きくするため絶縁性の高いことが望ましい。従って空気のほかに乾燥窒素ガス、フロンガス、真空 ($\sim 10^{-5}$ Torr)、絶縁性オイルを検討した。なお波板電極の場合は、試料表面は絶縁体か金属電極で覆われているため、

作製される分極反転構造は試料雰囲気に影響しないと考えられる。従って、最も絶縁性の高い絶縁性オイルとした。

試料雰囲気が空気の場合は放電により電極が損傷し易い。空気、乾燥窒素ガス、フロンガス、絶縁性オイルが試料雰囲気のときには、電極ギャップ部分でも反転が起こり易く、非反転部が点列状パターンとなるか、全面が一様に反転する傾向が非常に強いことがわかった。図3.6に $W/\Lambda \sim 0.5$ の梯子電極を用いて、厚さ0.5mmの LiNbO_3 結晶に10kV、幅20msecのパルス電圧印加で作製した周期 $3\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングの+Z表面付近の構造を示す。絶縁性オイル中での作製では分極反転が電極指下だけでなく電極ギャップ部分でも起こり、白く見えている非反転部が点列状となっていることがわかる。真空中での作製により連続線状分極反転グレーティングが得られることがわかった。しかし反転幅は周期の半分よりも大きく、分極反転が電極指幅より広がって起こることがわかった。このことは3.3の解析結果と一致する。

以上、梯子電極を用いる場合、試料雰囲気としては真空が最も有効であることがわかった。試料雰囲気により分極反転構造が異なる原因は明らかでは

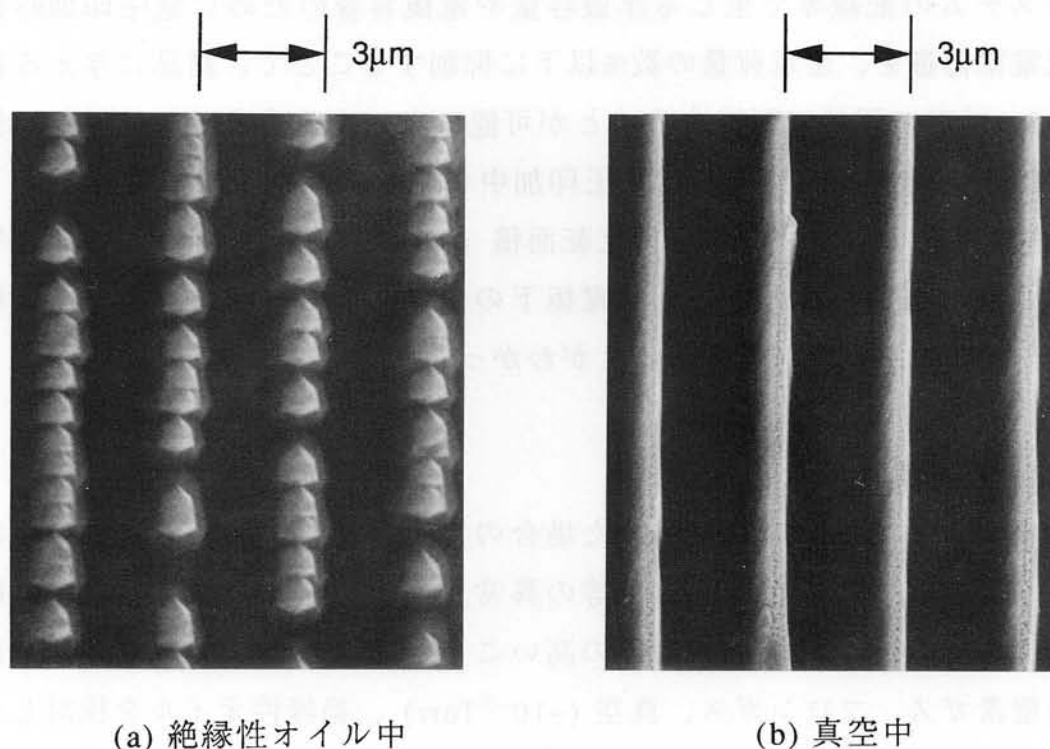


図3.6 $W/\Lambda \sim 0.5$ の梯子電極での $3\mu\text{m}$ 周期分極反転構造 (エッチング後)

ないが、誘電率や導電率等の違いにより電界分布の周期的変調度が変わることが予想でき、このことが要因の一つと考えられる。

3.4.3 周期電極形状依存性

3.3での解析結果及び3.4.2での実験結果で示したように、電極指幅 W ／周期 Λ が0.5近傍の梯子電極を用いた場合、反転幅は電極指幅より大きくなり、高効率デバイス実現に必要な反転幅：非反転幅=1:1の構造は作製できない。従って3.3での解析結果を基に、梯子電極の電極指幅 W の最適化を検討すると共に、本研究で提案した波板電極を検討した。

梯子電極の電極指幅 W を $0.2 \leq W/\Lambda < 0.5$ のいくつかの値で実験した結果、得られた反転構造は解析結果から予想される反転幅より広がり易い傾向が強く、解析で最適と予想された $W/\Lambda \sim 0.3$ より細いめの $W/\Lambda \sim 0.2$ 近傍で最良の結果が得られた。 $W/\Lambda \sim 0.2$ の梯子電極を用いたときの結果を図3.7に示す。電圧印加条件は $W/\Lambda \sim 0.5$ の場合とほぼ同じでも、非反転部の幅がより大きな構造が得られることがわかる。真空中での電圧印加により図3.7(b)の様に連続線状で反

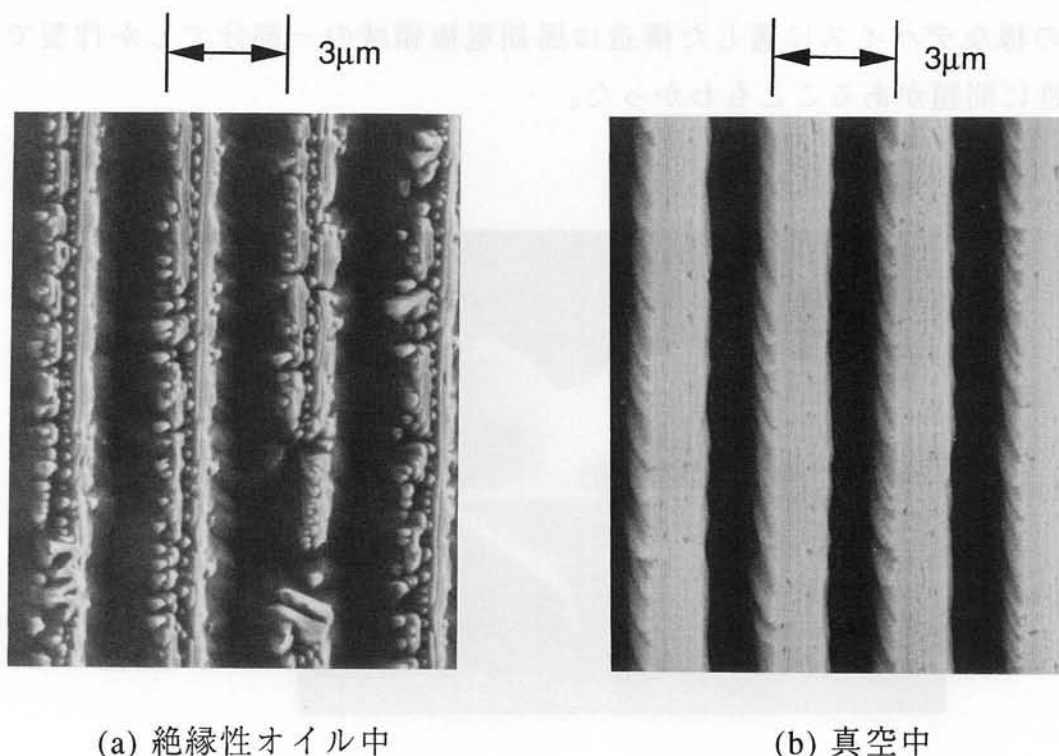


図3.7 $W/\Lambda \sim 0.2$ の梯子電極での $3\mu\text{m}$ 周期分極反転構造 (エッチング後)

転部と非反転部の幅がほぼ等しい構造が作製できた。しかしながら非反転部にはより微細な構造も見られ、最適構造とはなっていないこともわかった。

次に周期電極として波板電極を用いて作製を試みた。絶縁体は加工のしやすい電子ビームレジスト (PMMA) を用いた。図3.8に作製した波板電極の断面構造を示す。LiNbO₃基板上に厚さが滑らかに変化するレジスト (厚さ $h=1.2\mu\text{m}$)、その上にAl (500nm厚) が堆積されており設計どおりの構造が作製できていることがわかる。このような形状のとき得られる電界分布は、解析結果より最適電極指幅の梯子電極の場合と同様となる。図3.9にこのような波板電極を用いて、厚さ0.5mmのLiNbO₃結晶に10kV、幅4msecのパルス電圧印加で作製した周期 $3\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングの構造を示す。図3.9(a)は+Z表面での構造であり、図3.9(b)はグレーティング部分を切断、研磨し、再度Y面をエッチングして観察した断面構造である。反転幅が周期の半分で、反転領域の境界が結晶表面に垂直で導波路深さよりも深い、デバイスに適した分極反転グレーティングが作製できていることがわかる。

以上の結果、最適形状の波板電極を使用することで、反転幅：非反転幅=1:1の分極反転グレーティング構造を作製することが可能になった。しかしながらこの様なデバイスに適した構造は周期電極領域の一部分でしか作製できず、均一性に問題があることもわかった。

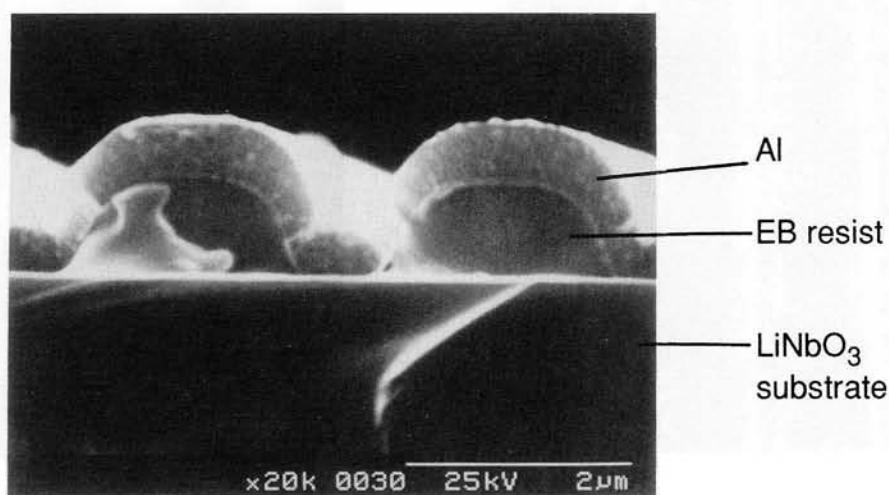


図3.8 波板電極の断面構造

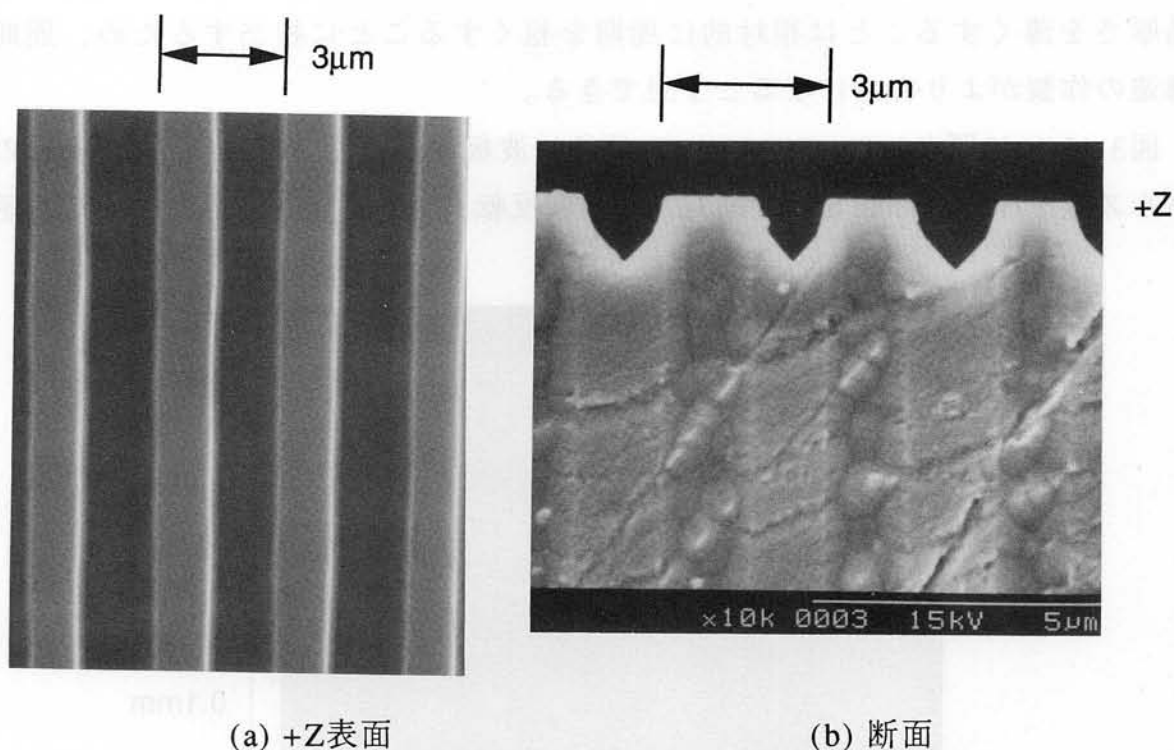


図3.9 波板電極での3 μ m周期分極反転構造 (エッチング後)

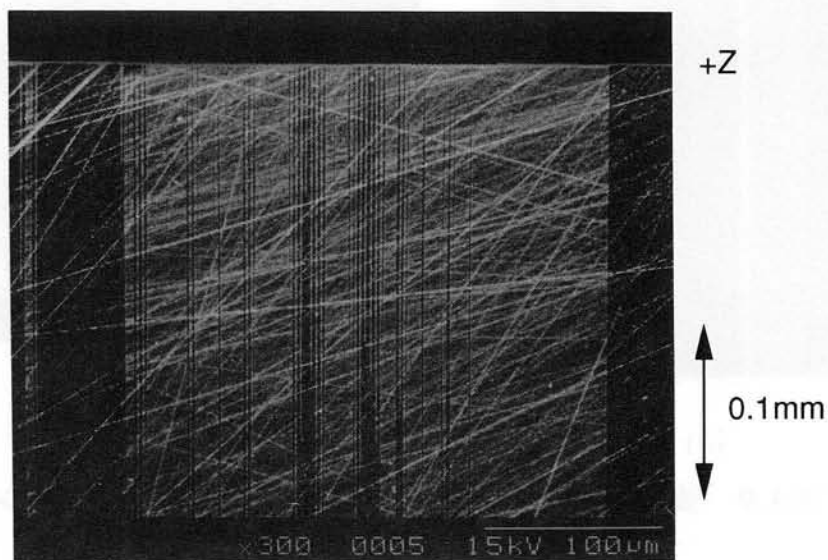
3.4.4 LiNbO₃結晶厚さ依存性

これまでの作製条件の検討により、均一性に問題があるが、反転幅：非反転幅=1:1の分極反転グレーティング構造を作製することが可能になった。より詳しく分極反転の作製過程を検討することで均一性の向上を図るため、結晶内部の構造を調べた。

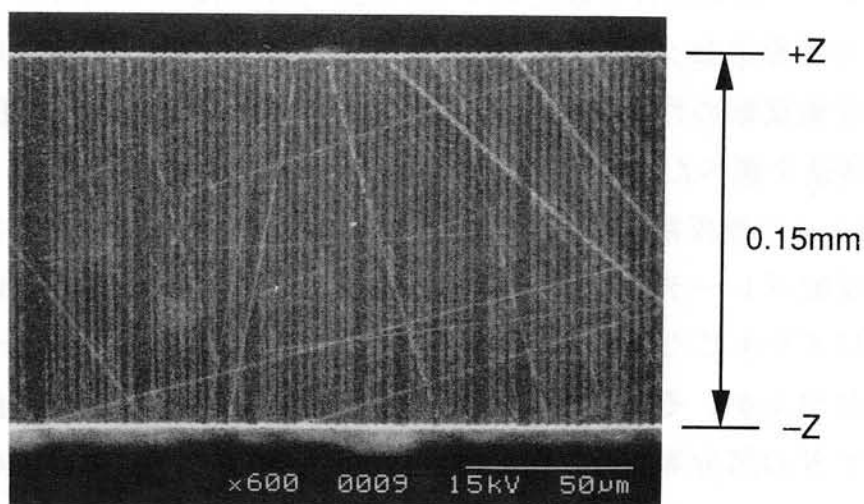
図3.10(a)に波板電極を用いて厚さ0.5mmのLiNbO₃結晶に作製した周期3 μ mの分極反転グレーティングの断面構造を示す。斜めに走っている白い線は端面研磨により生じた傷である。白く見える反転部が+Zから-Zへ成長していることがわかるが、その成長は電極下で一様になりにくく、成長不足の部分や成長しすぎの部分等、成長過程の様々な状態を含んだ構造になり易いことがわかった。このような分極反転の成長の不均一性が、均一なグレーティング構造作製を困難にする原因であることがわかった。電極領域下での分極反転の成長の均一性はLiNbO₃結晶の厚さに依存し、結晶厚さが薄いほうが分極反

転の成長が電極領域の各部分で均一になり易いことがわかった。さらに、結晶厚さを薄くすることは相対的に周期を粗くすることに相当するため、周期構造の作製がより容易になると予想できる。

図3.10(b)に厚さ0.15mmのLiNbO₃結晶に波板電極を用いて3kV、幅1msecのパルス電圧印加で作製した周期3 μ mの分極反転グレーティングの断面構造を示



(a) 結晶厚さ : 0.5mm



(b) 結晶厚さ : 0.15mm

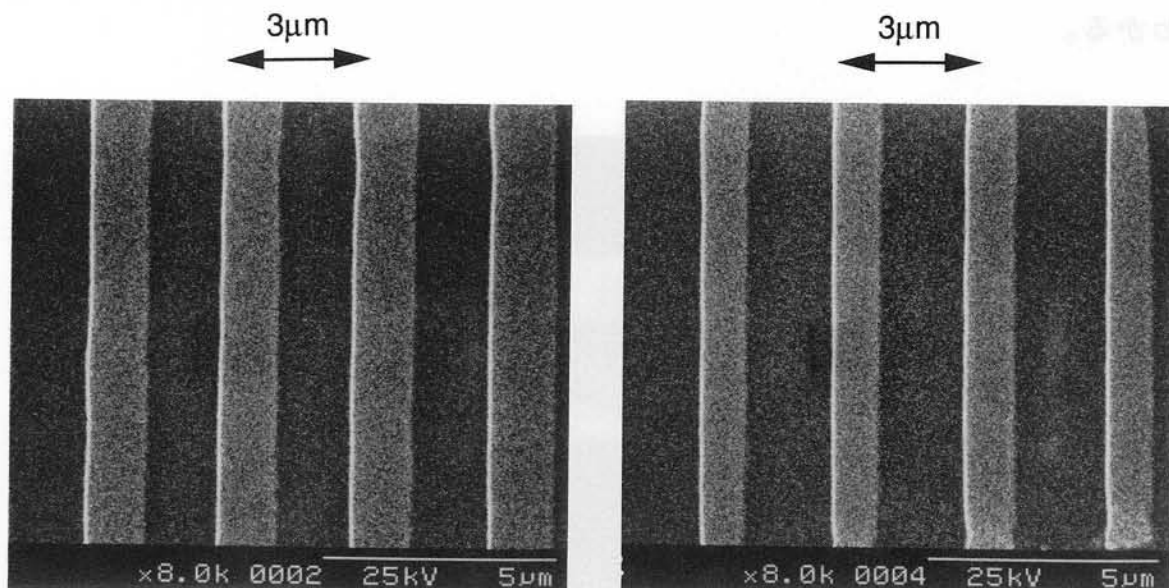
図3.10 3 μ m周期分極反転グレーティングの断面構造 (エッチング後)

す。反転部の幅が周期の半分で反転領域の境界が結晶表面に垂直なデバイスに適した反転構造が、周期電極下の全体にわたってほぼ均一に結晶の厚さ全体にわたって得られた。

3.5 扇形分極反転グレーティングの作製

残留位相整合誤差補償導波路型QPM-SHGデバイス¹⁷⁾の作製には扇形の分極反転グレーティングの作製が不可欠である。0.8 μm 帯半導体レーザを用いた青色光発生において必要となる、 $\sim 3\mu\text{m}$ 周期の扇形分極反転グレーティングの作製結果を図3.11に示す。パルス電圧は3kV、幅 $\sim 0.2\text{msec}$ であった。中心付近 (図3.11(a)) では反転幅/周期 ~ 0.5 のデバイスに適した構造が作製できているが、端付近 (図3.11(b)) では反転領域が広がり、反転幅/周期 ~ 0.7 の構造となっていることがわかる。このようになった原因は明らかではないが、

- 1) 電極構造が扇形である
 - 2) 電極指の方向が結晶軸 (Y軸) と平行でない (角度：端で $\pm 6^\circ$ 程度)
- のどちらか、あるいは両方が主な原因であると考えられる。



(a) 中心付近

(b) 端付近

図3.11 $\sim 3\mu\text{m}$ 周期扇形分極反転グレーティング (エッチング後)

3.6 微細周期グレーティングの作製

LiNbO₃導波路型QPM-SHGデバイスにおいて、高効率な紫外光発生用デバイスを実現するためには、これまで検討したグレーティング（周期3 μm 程度）よりも微細周期のグレーティング（周期2 μm 程度）が必要である。3.4と同様にして作製を試みた結果、反転部の幅が広がる影響がより顕著となり、グレーティング構造はほとんど得られなかった。反転幅の拡大を抑制するため、波板電極の構造を図3.12に示すように改善した。改善した波板電極は、Alが基板に接触している部分が狭く（<0.5 μm ）、絶縁体厚さが1 μm 以上あるような、深くて鋭利な溝断面構造を持っている。また、電圧印加システムのインピーダンスを更に減少させ、より速い反応速度とより大きな電流量が得られるように改善した。これにより反転所要時間が50 μsec 程度と短くなり、反転幅の拡大を抑制することができた。以上の改善を行うことにより、2 μm 周期の分極反転グレーティングを作製することが可能になった。電圧3.9kV、幅~50 μsec のパルス電圧印加で作製した分極反転グレーティング構造を図3.13に示す。図3.13(a)は+Z表面での構造であり、図3.13(b)は+Z表面付近での断面構造である。反転幅が周期の半分で反転領域の境界が結晶表面に垂直で導波路深さよりも深い、デバイスに適した分極反転グレーティングが得られていることがわかる。

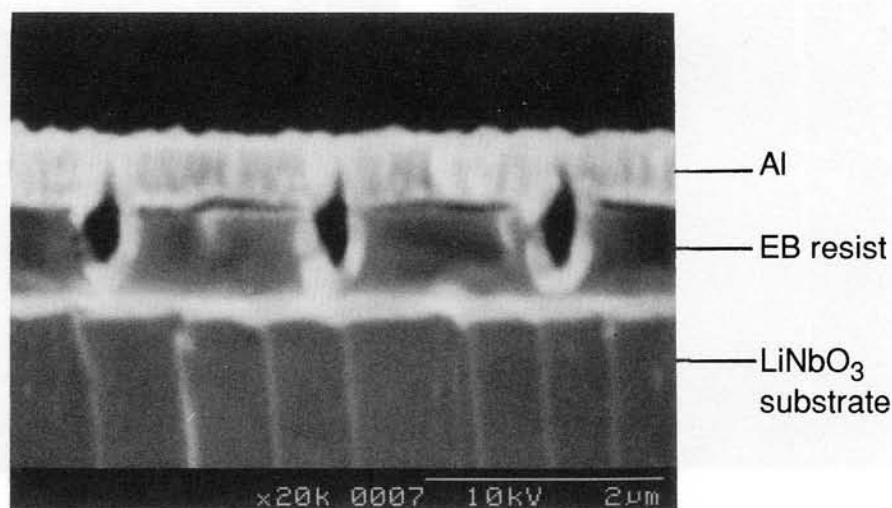
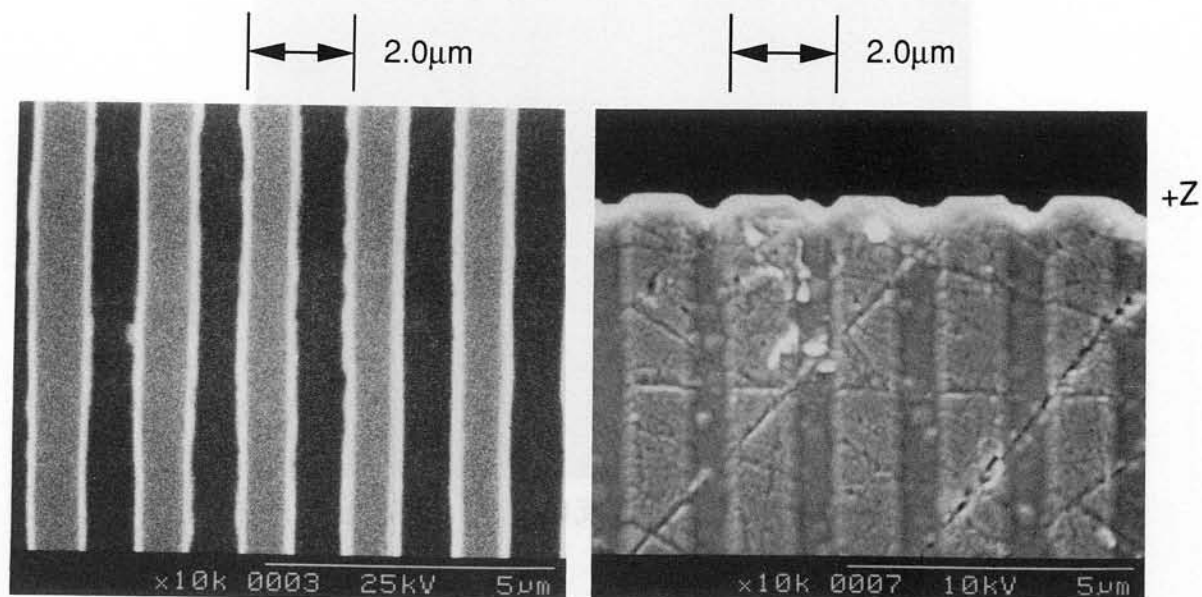


図3.12 2 μm 周期分極反転グレーティング作製用波板電極の断面構造



(a) +Z表面

(b) 断面

図3.13 2μm周期分極反転構造 (エッチング後)

3.7 熱処理による分極反転構造の非破壊観察

LiNbO_3 の分極反転構造はふっ酸硝酸混合液によるエッチングにより詳細な構造を調べることができるが、破壊的検査法であるためデバイス化は不可能となり有効な方法ではない。本研究において、 LiNbO_3 結晶に対し 100°C 程度の加熱を行うことで分極反転構造が可視化でき、1時間程度の自然冷却後においても観察できることがわかった。図3.14に透過照明の光学顕微鏡で観察した結果を示す。暗く見える部分が分極反転領域であり、反転・非反転が識別できる。この反転・非反転部でのコントラストは、更に数時間程度経過した後には観察できなかった。このコントラストが生じる原因は明らかになっていないが、実験結果より以下のように考察できる。 LiNbO_3 結晶に温度変化を与えると焦電気効果により表面電荷が生じる⁶⁵⁾。分極反転部と非反転部では、生じる表面電荷は同じ大きさで極性が逆であるため、表面付近に局所電界が発生する。この局所電界のため電気光学効果により屈折率が周期的に変化し、

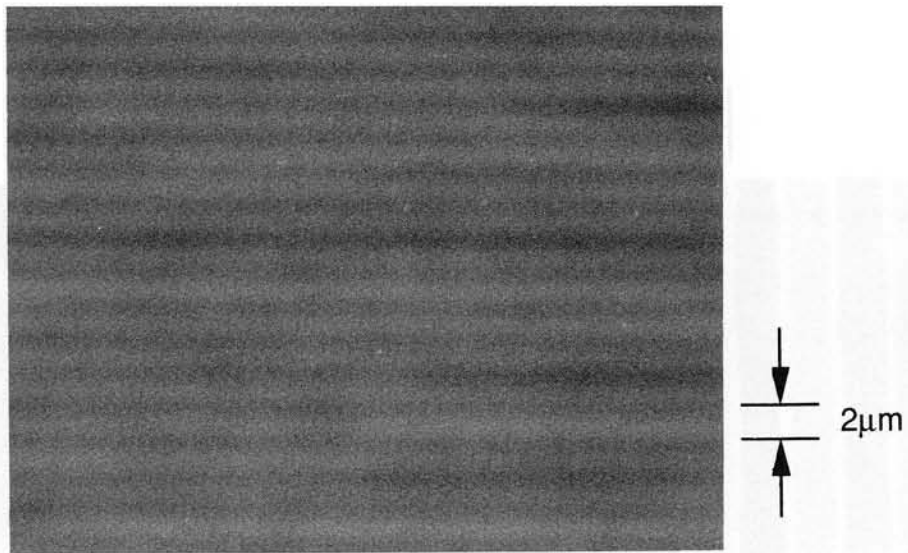


図3.14 熱処理による分極反転構造 (周期 $2\mu\text{m}$) の確認

視覚化できると考えられる。熱処理から数時間経過後では表面電荷が中和されるため局所電界は消え、屈折率変化もなくなるため観察できなくなると考えられる。

なお、電圧印加により分極反転グレーティングを作製した直後の試料は、クロスニコル観察 (低倍率) によりグレーティングが確認できた。これは分極反転により生じた結晶の僅かな歪みや結晶表面の僅かな残留電荷が原因と考えられる。これは上記の熱処理後には消失した。このことは同様の結晶構造を持つ LiTaO_3 での報告⁶⁶⁾と矛盾しない。

3.8 分極反転メカニズムの検討

[メカニズム]

電圧印加による LiNbO_3 分極反転のメカニズムは十分には明確にされていないが、前述したような様々な検討を行った結果、以下のように考えることができる。分極反転が起こるような電圧が印加されると、+Z面上の電極下の数カ所で分極反転の種 (最初に分極反転する領域) が形成される。この核から反転領域が-Z方向へと急速に成長する。同時にZ軸に垂直な方向への成長も起こり、主に結晶表面内で電極指に沿って成長する。しかしその速度は遅く、反転電流の値が一定値ではなかったことからこの速度は一定でないと考えら

れる。この原因は明らかではないが、結晶内の不純物の影響、あるいは結晶性の不均一等が要因と考えられる。さらに分極反転は非常に遅い速度ではあるが同時に電極幅方向にも成長する。これらの成長スピードを個々に制御することは非常に困難であるため、特に微細周期のグレーティングを均一に作製することが困難となる。さらにこの成長スピードの違いが、3.4.4で述べた分極反転グレーティングの均一性が結晶厚さに依存することの原因であると考えられる。

[電圧印加直後の逆方向電流の原因]

+Z面の周期電極をアースにして-Z面の一様電極に0kV→-10kV→0kVの方形波パルス電圧を印加した時に図3.5(a)の様な波形になった原因について考察する。方形波パルス印加中には図3.5(b)と同様、反転電流が流れているが、パルス終了直後より、逆方向の電流が流れている。この波形は再現性良く得られ、放電等の異常電流が原因ではない。このとき作製された反転構造は、電極指下では非反転で、電極ギャップ部では反転している逆反転構造となっているか、電極指端付近でのみ反転した構造となっていた。このような構造が形成されたメカニズムは明らかではないが、一つの可能性として、電圧印加により一旦電極下の領域全体あるいは電極指下で分極反転が生じたが、パルス終了後強制的に電極間電圧を0Vにしたため電極指下で再度分極反転が起こり、分極の極性が元に戻ったためと考えられる。このことは、一旦分極反転が起こっても直ちにその状態で分極構造が安定するわけではなく、僅かな間は不安定であることを示していると考えられる。以上のような現象は、より粗い周期の分極反転グレーティング作製での報告⁴⁹⁾と矛盾しない。

3.9 結言

本章では、高効率なLiNbO₃導波路型非線形光学波長変換デバイス実現に要求される構造の分極反転グレーティングを作製するため、電圧印加による分極反転グレーティング作製について詳細な検討を行った。

電圧印加により誘起される電界分布の解析及び実験的検討により、分極反転グレーティング作製に有効な周期電極構造を明らかにした。電極指幅を最

適化した梯子電極（電極指幅／周期 ~ 0.2 ）を用いることで、分極反転幅／周期 ~ 0.5 の構造も得られるが、本研究で考案した波板電極の使用がより有効であることを示した。

電圧印加による LiNbO_3 分極反転が+Z側より起こること、作製した分極反転グレーティングの均一性が LiNbO_3 結晶厚さに依存することを明らかにした。

電圧印加中に結晶に与える総電荷量を正確に“ $2 \times \text{自発分極 } P_s \times \text{目標反転面積}$ ”の値に制御することが、分極反転グレーティング作製において最も重要であることを明らかにした。本研究ではフィードバック回路の使用等により5%以下の誤差での制御を可能にし、作製の高い再現性を得た。さらに、反転領域の幅が周期の半分になる時間内に反転処理を完了させることが、グレーティング作製には重要であることを初めて見いだした。

以上、本研究での詳細な検討の結果、これまでで最短周期である $2\mu\text{m}$ 周期の分極反転グレーティング、及び扇形分極反転グレーティングを、デバイスに適した構造で作製することに初めて成功した。

また、熱処理により分極反転構造が確認できることを示した。

第4章 緑色／青色光発生用導波路型第2高調波発生デバイスの作製と評価

4.1 緒言

本章では、第3章で作製した分極反転グレーティングを用いた、緑色／青色光発生用の LiNbO_3 導波路型QPM-SHGデバイスの作製とSHG実験結果について述べる。デバイス作製について述べたのち、波長 $1.064\mu\text{m}$ のNd:YAGレーザー光をポンプ光として用いた緑色光発生実験、発振波長可変の $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ レーザー光をポンプ光として用いた青色光発生実験、及び波長 $0.8\mu\text{m}$ 帯半導体レーザー光をポンプ光として用いた青色光発生実験で得られた結果を示す。さらに、得られた結果と理論値との比較を行う。

4.2 デバイス作製

相互作用長が数mmのQPM-SHGデバイスにおいて位相整合を達成させるためには、グレーティング周期をnmオーダで制御することが必要である。しかし、そのような精度でグレーティング周期を制御して作製することは困難であり、作製誤差が生じる。また、式(2.8)で示したように、グレーティング周期はポンプ光と第2高調波の実効屈折率で決まる。しかし実効屈折率を正確に見積もることは難しいので、位相整合のとれるグレーティング周期に不確定さが残る。このようなことが原因で、QPM-SHGデバイスには位相整合誤差が残留する。この残留位相整合誤差を補償する方法としては、(i) デバイス温度を制御する、(ii) ポンプ光波長を変化させる、の2つの方法が考えられる。しかしながら、(i)には新たな装置が必要であり、(ii)はポンプ光光源により制限される。一方、残留位相整合誤差を補償して高効率なSHGを達成することができるデバイスとして、残留位相整合誤差補償導波路型QPM-SHGデバイスが提案されている¹⁷⁾。このデバイスは扇形分極反転グレーティングとチャネル導波路アレイを組み合わせた構成である。各チャネルにおける分極反転グレーティングの周期は少しずつ異なるため、最適チャネルを選択して導波光を励振することにより、残留位相整合誤差を最小に抑えることができる。

SHG実験で用いるポンプ光光源に適したデバイス構造として、以下の3種類

のデバイスを作製した。表4.1に各デバイスのパラメータを、図4.1にデバイス構成を示す。

- 1) 扇形分極反転グレーティングとチャネル導波路アレイで構成される 残留位相整合誤差補償形の緑色光発生用デバイス (図4.1(b))。
- 2) 均一周期の分極反転グレーティングとチャネル導波路で構成される 青色光発生用デバイス (図4.1(a))。
- 3) 扇形分極反転グレーティングとチャネル導波路アレイで構成される 残留位相整合誤差補償形の青色光発生用デバイス (図4.1(b))。

表4.1 デバイスパラメータ

	Green SHG device with fan-out grating	Blue SHG device with uniform grating	Blue SHG device with fan-out grating
Grating period	5.82 ~ 6.98 μ m	3 μ m, 2.9 μ m	2.86 ~ 3.41 μ m
Difference of period between adjacent channels	7nm	—	3nm
Number of channel waveguides	166	—	168
Interaction length	3mm	3mm, 10mm	3mm

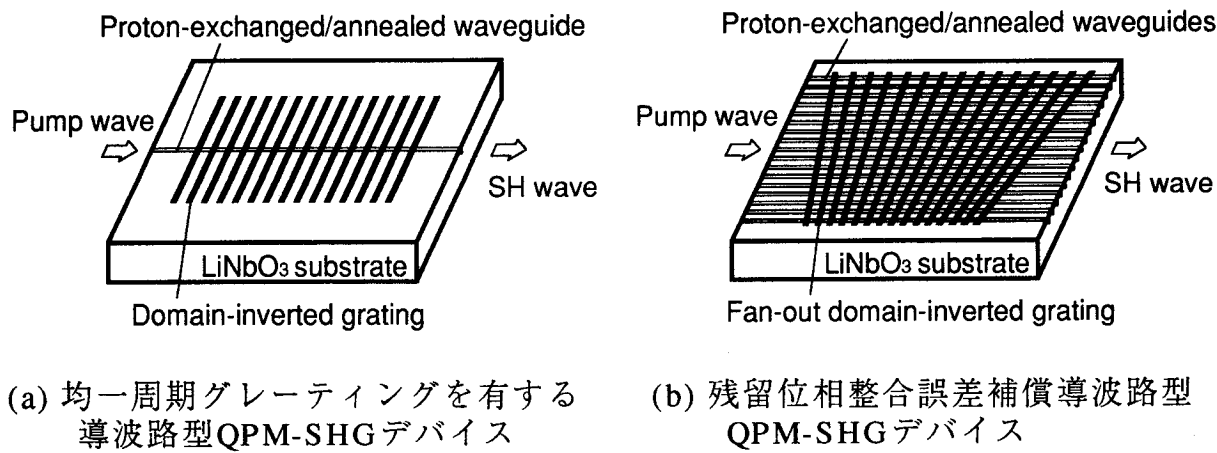


図4.1 デバイス構成

まず、 LiNbO_3 基板上に分極反転グレーティングを第3章で述べた方法で作製した。次にチャネル光導波路をプロトン交換／アニール法^{51)–53)}により作製した。光導波路作製工程を図4.2に示す。電子ビーム描画により導波路チャネルパターンを作製、厚さ100nmのAl薄膜を真空蒸着で堆積した後、リフトオフすることで、選択プロトン交換用のマスクパターン（窓幅：3 μm ）を作製した。ガラスチューブオープンにて200°Cに加熱された溶融純粋安息香酸液中で、20分間プロトン交換した。Alマスクを除去した後、酸素雰囲気中で350°C、1時間のアニールを行い光導波路を作製した。最後に光導波路の入出力端面を研磨により作製した。

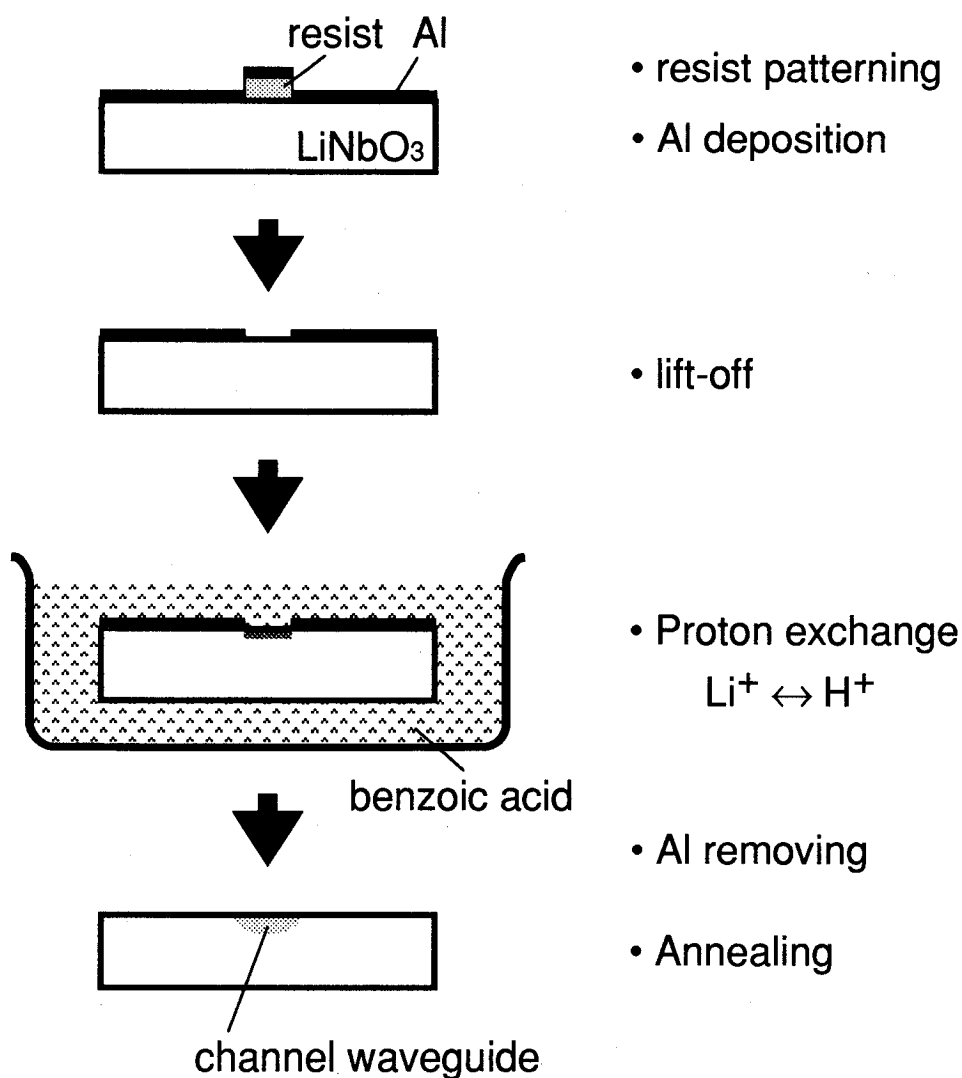


図4.2 プロトン交換／アニール法によるチャネル光導波路作製

4.3 第2高調波発生実験

4.3.1 Nd:YAGレーザ光の第2高調波発生

波長 $1.064\mu\text{m}$ のCW-Nd:YAGレーザをポンプ光源として用いて、残留位相整合誤差補償導波路型QPM-SHGデバイスによる緑色光発生実験を行った。実験光学系を図4.3に示す。ポンプ光は端面結合しTM-like基本モードを励振した。出射光はハーモニクセパレータでポンプ光と第2高調波に分離し測定した。図4.3に示すように、デバイスを光軸に対して垂直方向に移動させ、ポンプ光を励振する導波路を順次選択した。周期 $6.195\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングをもつ導波路から位相整合した基本モードの第2高調波(波長 $0.532\mu\text{m}$)が得られた。図4.4に得られた第2高調波の近視野像とその強度分布を示す。強度分布の半値全幅は導波路幅方向で $1.2\mu\text{m}$ 、深さ方向で $0.8\mu\text{m}$ であった。ポンプ光及び第2高調波のパワーは導波路出力端で測定した。図4.5にSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を示す。SHG変換効率は理論どおりポンプ光パワーに比例しており、 32mW のポンプ光パワーに対し 1.4mW の第2高調波が得られた。得られた最大のSHG変換効率は4%であり、図4.5の直線の傾きが示す規格化変換効率として $130\%/W$ が得られた。また、実験を行ったパワー範囲においては顕著な光損傷は見られず安定な出力が得られた。次に、ポンプ光を励振す

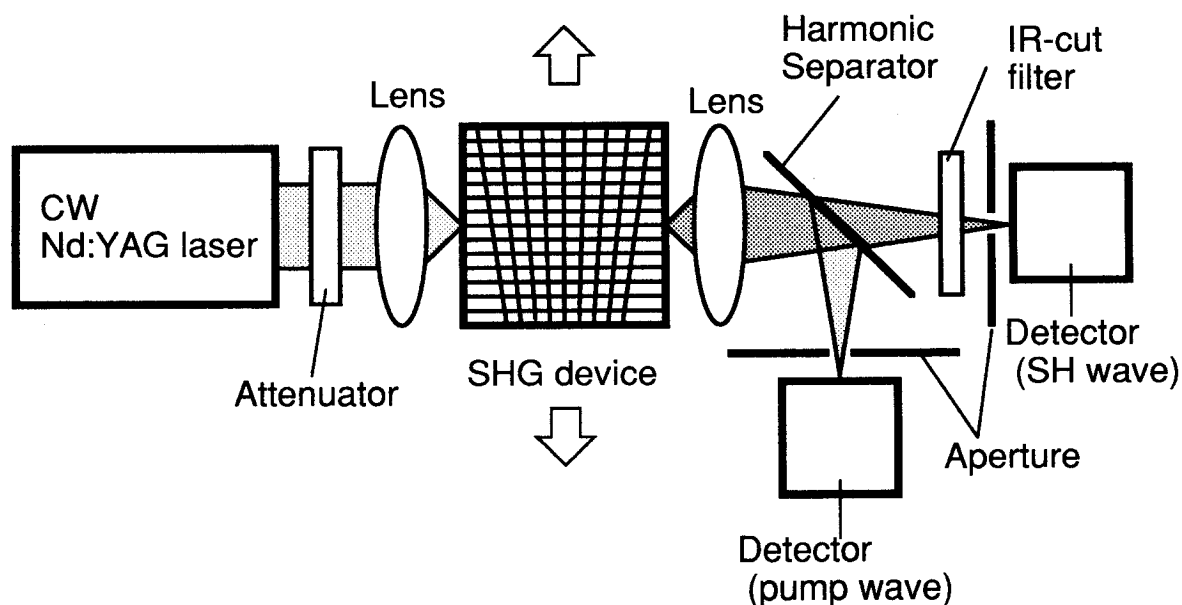


図4.3 緑色光発生SHG実験光学系

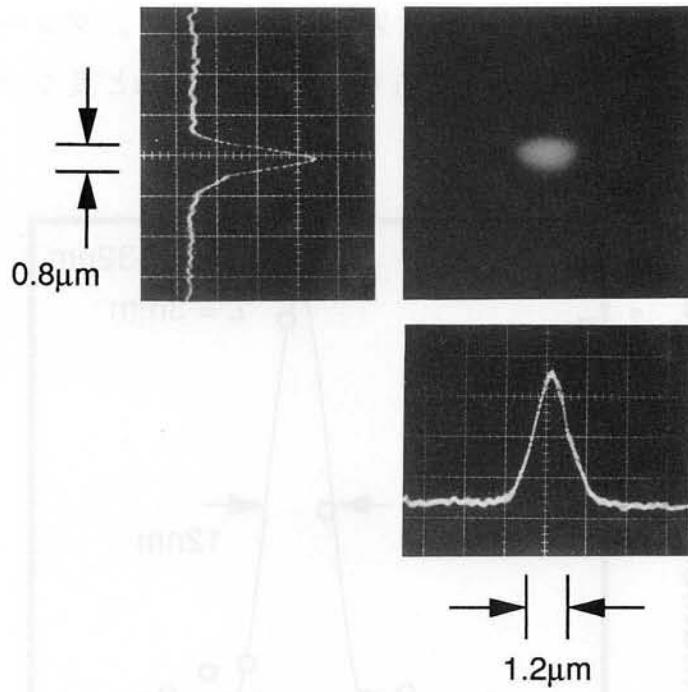


図4.4 第2高調波の近視野像 (波長0.532nm)

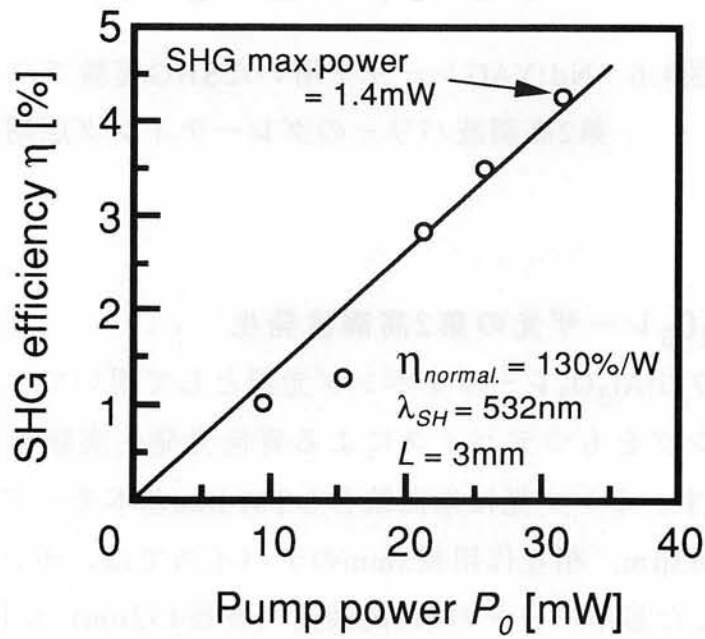


図4.5 Nd:YAGレーザーを用いたSHG実験での
SHG変換効率のポンプ光パワー依存性

る導波路を順次移動して、第2高調波パワーのグレーティング周期依存性を測定した。最適導波路付近での測定結果を図4.6に示す。グレーティング周期誤差に対する許容半値全幅は12nmであり、理論値11nmと良く一致していた。

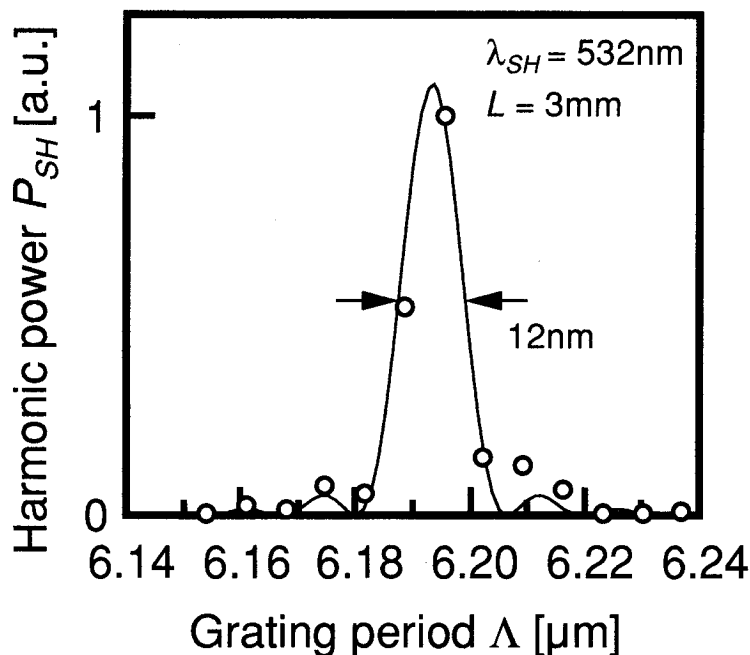


図4.6 Nd:YAGレーザを用いたSHG実験での
第2高調波パワーのグレーティング周期依存性

4.3.2 Ti:Al₂O₃レーザ光の第2高調波発生

発振波長可変のTi:Al₂O₃レーザをポンプ光源として用いて、均一周期の分極反転グレーティングをもつデバイスによる青色光発生実験を行った。実験光学系を図4.7に示す。ポンプ光は端面結合しTM-like基本モードを励振した。グレーティング周期3μm、相互作用長3mmのデバイスでは、ポンプ光波長864nmの時、位相整合した基本モードの第2高調波（波長432nm）が得られた。図4.8に得られた第2高調波の近視野像とその強度分布を示す。強度分布の半値全幅は導波路幅方向で1.0μm、深さ方向で0.8μmであった。図4.9にSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を示す。SHG変換効率は理論どおりポンプ光パワー

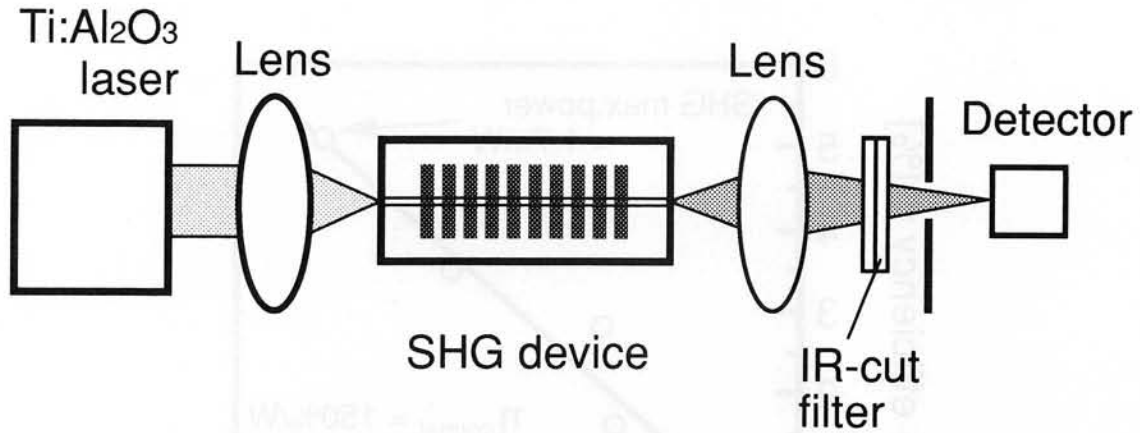


図4.7 青色光発生SHG実験光学系

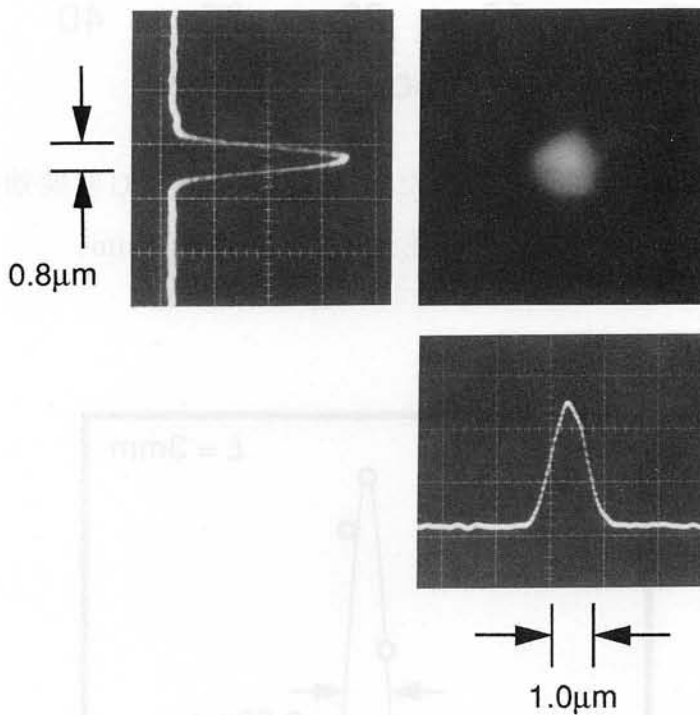


図4.8 第2高調波の近視野像 (波長0.432nm)

に比例しており、34mWのポンプ光パワーに対し1.7mWの第2高調波が得られた。得られた最大のSHG変換効率は5%であり、規格化変換効率として150%/Wが得られた。実験を行ったパワー範囲においては安定な出力が得られ、顕著な光損傷は観測されなかった。図4.10に第2高調波パワーのポンプ光波長依存性を測定した結果を示す。ポンプ光波長に対する受容半値全幅は0.23nmであり理論値0.25nmと良く一致していた。次に単一縦モード発振のTi:Al₂O₃

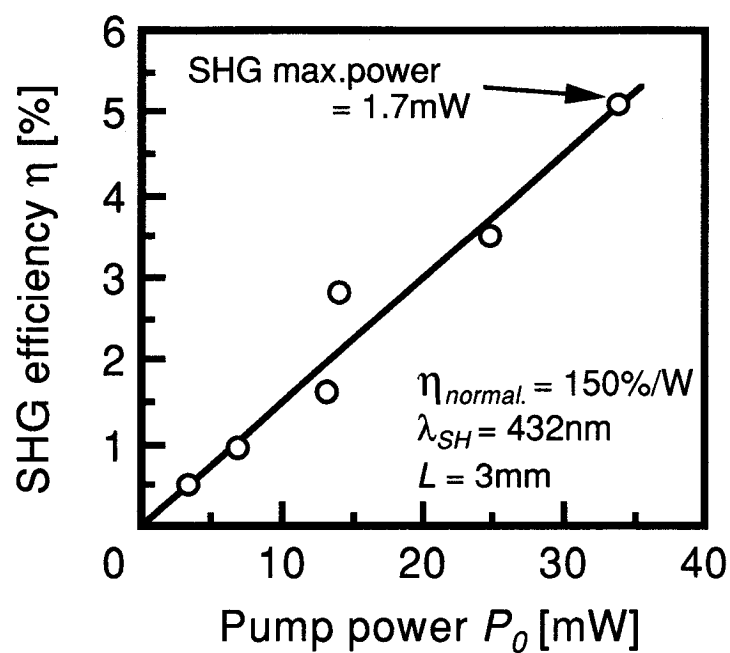


図4.9 Ti:Al₂O₃レーザを用いたSHG実験でのSHG変換効率のポンプ光パワー依存性 (相互作用長 $L=3mm$)

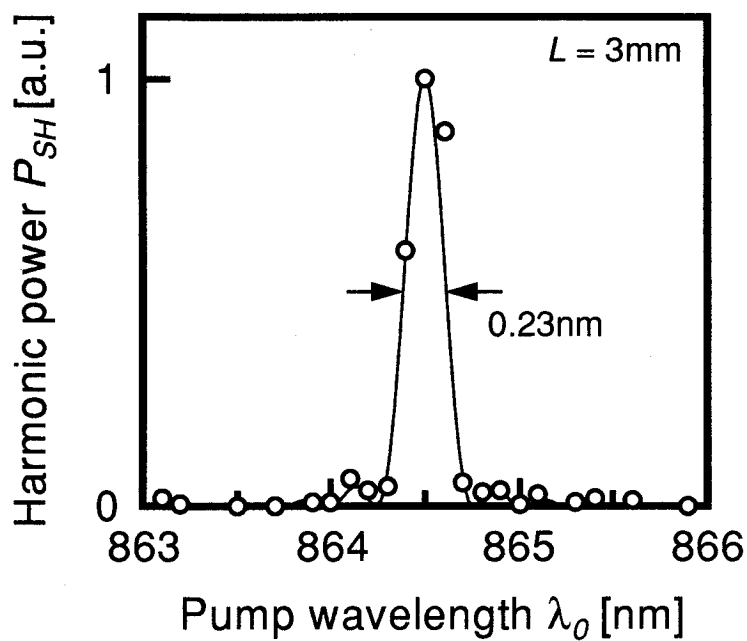


図4.10 第2高調波パワーのポンプ光波長依存性 (相互作用長 $L=3mm$)

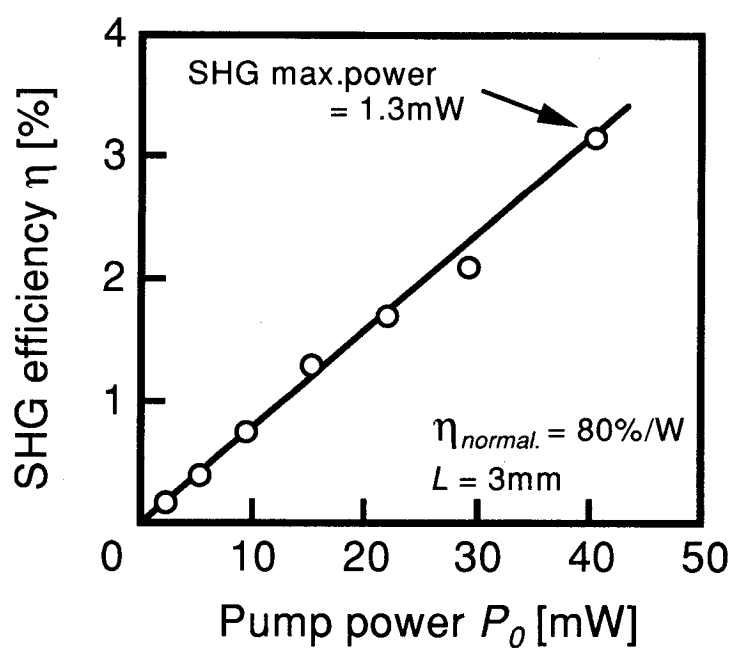
レーザをポンプ光光源として用いてSHG実験を行った。図4.11(a)にSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を、図4.11(b)に波長計を用いて同時測定した位相整合波長のポンプ光パワー依存性を示す。相互作用長3mmに対し、規格化変換効率として80%/Wが得られた。図4.9の実験結果より規格化変換効率が小さい原因は、図4.9の実験ではポンプ光が縦多モードであるためであると考えられる⁵⁵⁾。また、位相整合波長がポンプ光パワーに依存しており、ポンプ光パワーが増大するにつれて位相整合波長がほぼ線形に増加していることがわかった。位相整合波長が変化する原因としては、

1) ポンプ光によるデバイス温度の上昇

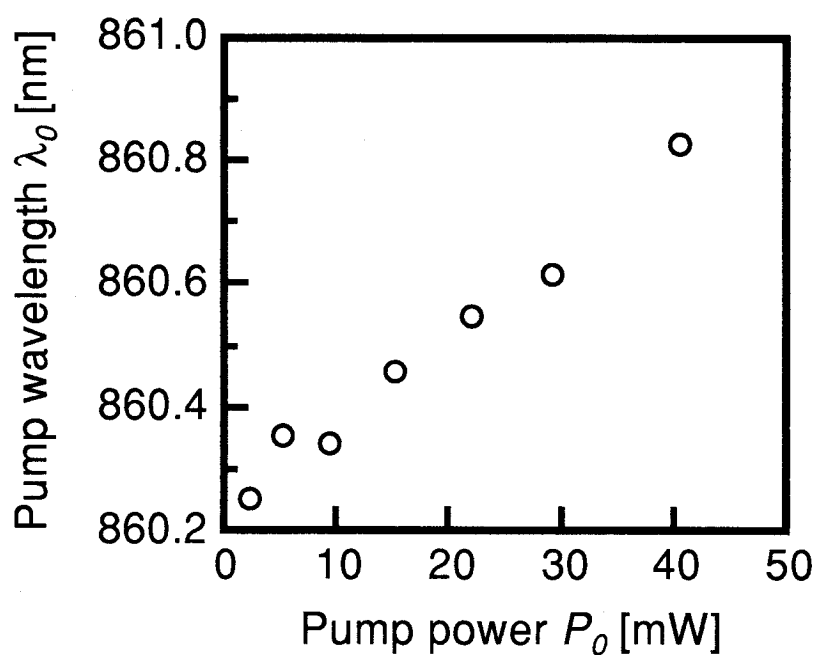
2) 光損傷

が考えられる。1)が原因の場合、位相整合波長は長波長側にシフトするため実験結果と矛盾しない。2)では位相整合波長が変化する方向、変化量とも明らかではないが、光損傷は特に第2高調波パワーが大きいときに顕著に起こる現象である。従って2)が原因の場合、位相整合波長の変化量はポンプ光パワーが増大するにつれて顕著に大きくなると考えられる。図4.11の実験結果になった原因は明らかではないが、位相整合波長はポンプ光パワーにほぼ比例して変化しているため、主に1)が原因であると考えられる。1)のみが原因であると考えると、導波路付近の温度は最大で15°C程度変化していると理論的に見積もられる。

次にグレーティング周期2.9 μm 、相互作用長10mmのデバイスでSHG実験を行った。ポンプ光光源はTi:Al₂O₃レーザである。ポンプ光波長841nmの時、位相整合した基本モードの第2高調波（波長420nm）が得られた。図4.12にSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を示す。SHG変換効率はポンプ光パワーに比例しており、14mWのポンプ光パワーに対し0.48mWの第2高調波が得られた。得られた最大のSHG変換効率は3.4%であり、規格化変換効率として240%/Wが得られた。図4.13に第2高調波パワーのポンプ光波長依存性を測定した結果を示す。ポンプ光波長に対する受容半値全幅は0.12nmであり、理論値0.06nmよりも大きい値となっている。この原因は明らかではないが、ポンプ光の波長幅が0.1nm (~40GHz) 程度あることが主な原因の一つであると考えられる。



(a) SHG変換効率のポンプ光パワー依存性



(b) 位相整合波長のポンプ光パワー依存性

図4.11 単一縦モードTi:Al₂O₃レーザを用いた
SHG実験での結果 (相互作用長L=3mm)

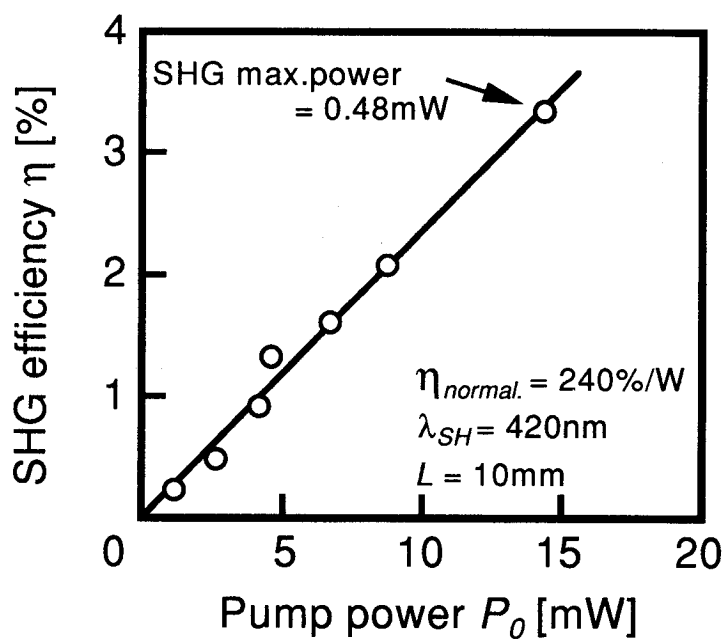


図4.12 Ti:Al₂O₃ レーザを用いたSHG実験でのSHG変換効率のポンプ光パワー依存性 (相互作用長L=10mm)

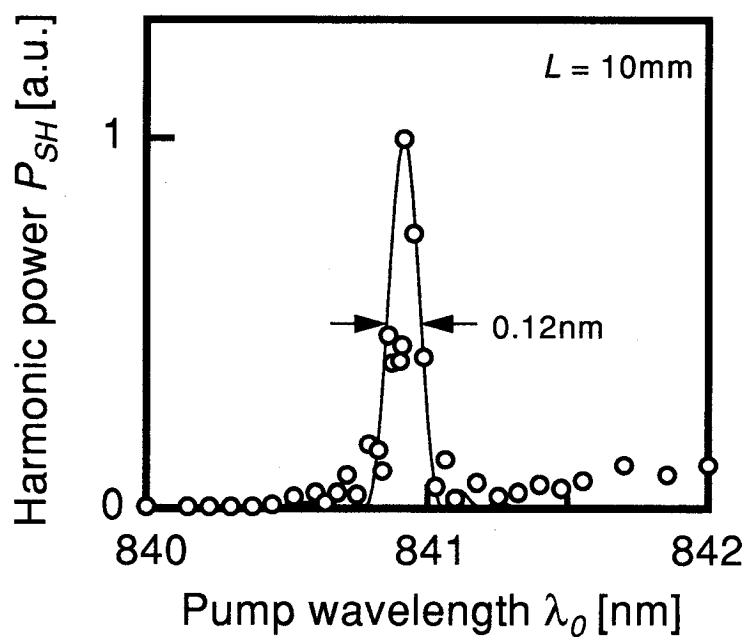


図4.13 第2高調波パワーのポンプ光波長依存性 (相互作用長L=10mm)

4.3.3 半導体レーザー光の第2高調波発生

波長865nmの半導体レーザー (Sanyo : SDL-7033) をポンプ光源として用いて、均一周期の分極反転グレーティングをもつデバイス(グレーティング周期 $3\mu\text{m}$, 相互作用長3mm) による青色光発生実験を行った。実験光学系を図4.14に示す。半導体レーザーの出射光を光導波路内に効率良くTM-like基本モードで入力するため、半波長板を用いて偏光方向を 90° 回転させて入力した。位相整合はペルチェ素子を用いてデバイス温度を制御して達成した。図4.15に第2高調波パワーのデバイス温度依存性を示す。デバイス温度に対する許容半値全幅は 3.2°C

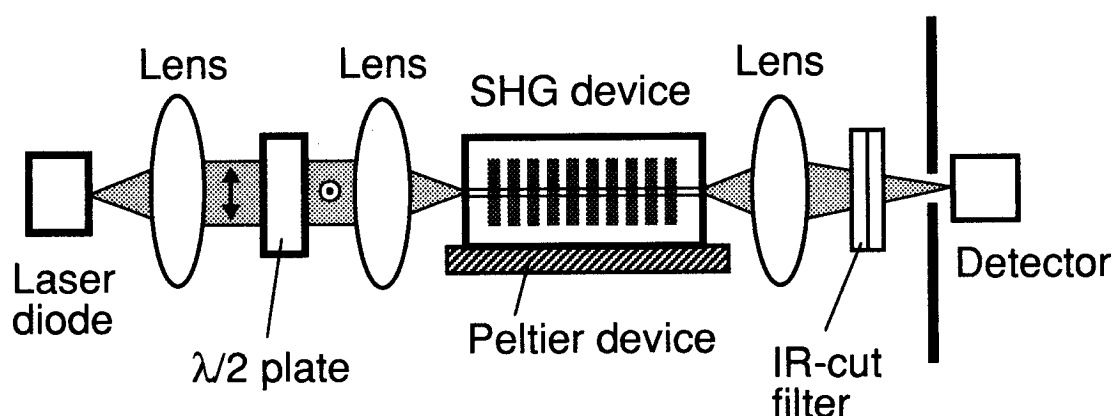


図4.14 半導体レーザーを用いたSHG実験光学系

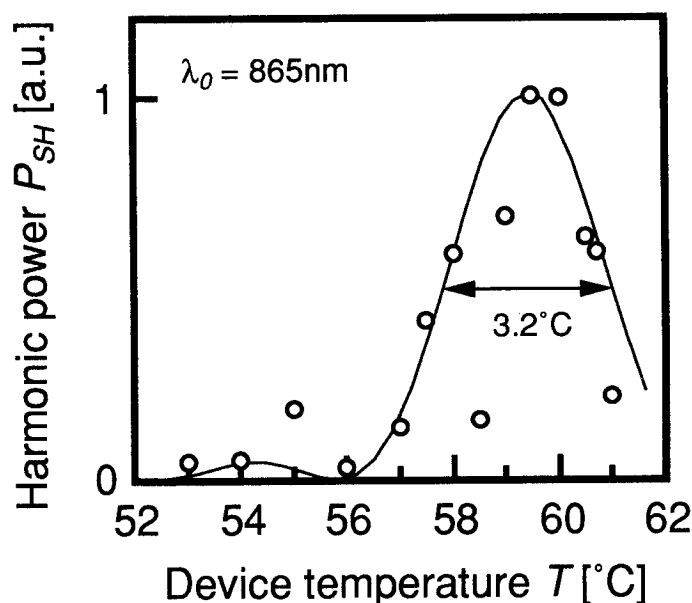


図4.15 第2高調波パワーのデバイス温度依存性

であった。またこの実験結果より、実験で使用したデバイスのグレーティング周期は、室温で位相整合が達成できるデバイスのグレーティング周期に対し、20nm程度の差異があったと理論的に見積もられる。

次にデバイス温度の制御の必要がない、残留位相整合誤差補償導波路型 QPM-SHG デバイスを用いて実験を行った。まず、Ti:Al₂O₃ レーザを用いて各チャネルにおいて位相整合を達成する波長を測定した。図4.16に位相整合波長のグレーティング周期依存性を示す。ポンプ光波長が854～896nmの範囲で位相整合した第2高調波が得られており、上記の半導体レーザを用いた場合でも位相整合が達成できると予想できる。次に室温で半導体レーザをポンプ光光源として用いてSHG実験を行った。デバイスを光軸に対して垂直方向に移動させ、ポンプ光を励振する導波路を順次選択した。周期3.012 μ mの分極反転グレーティングをもつ導波路から位相整合した基本モードの第2高調波が得られた。図4.17に得られた第2高調波の近視野像とその強度分布を示す。強度分布の半値全幅は導波路幅方向で1.0 μ m、深さ方向で0.8 μ mであった。図4.18にSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を示す。SHG変換効率はポンプ光パワーに比例しており、規格化変換効率として70%/Wが得られた。規格化変換効率の値が4.3.2の結果よりも小さい原因の一つは、3.5で示したように分極反

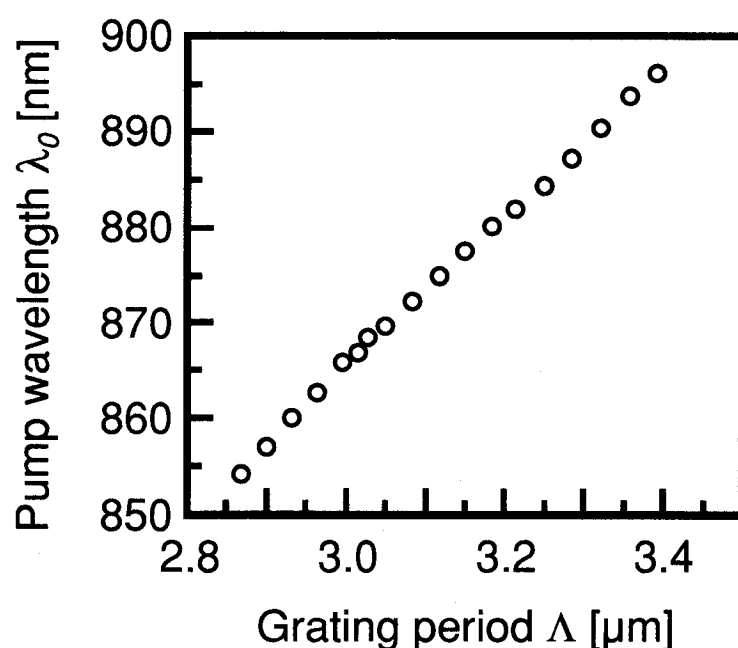


図4.16 位相整合波長のグレーティング周期依存性

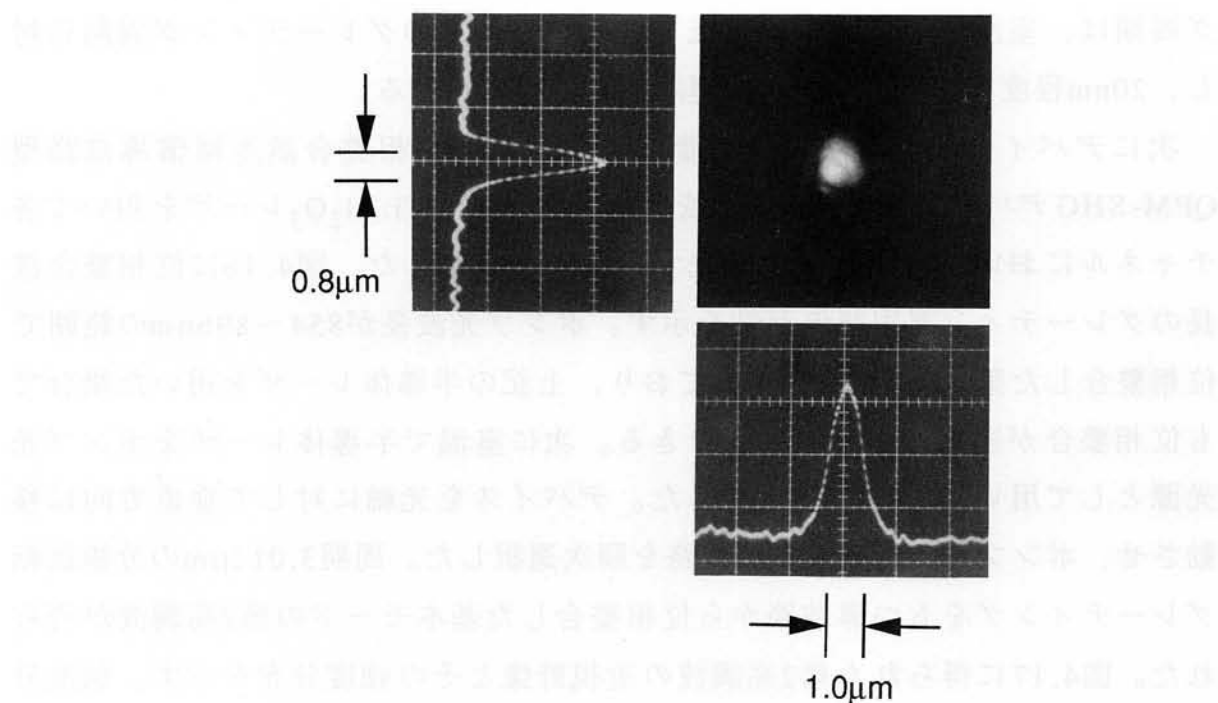


図4.17 半導体レーザ光の第2高調波の近視野像 (波長0.432nm)

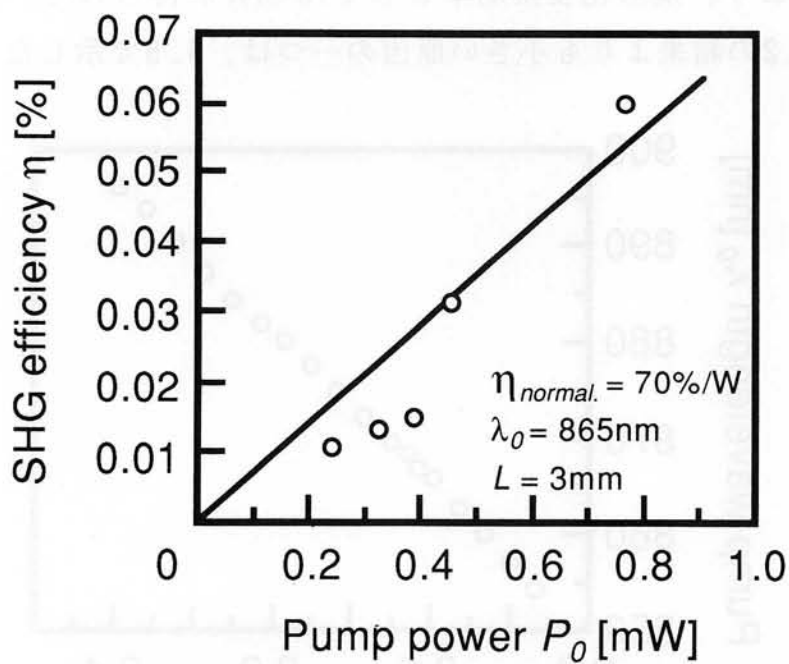


図4.18 半導体レーザを用いたSHG実験での
SHG変換効率のポンプ光パワー依存性

転グレーティングのデューティ比がグレーティングの一部では最適化されていないことであると考えられる。また、ポンプ光を励振する導波路を順次移動して、第2高調波パワーのグレーティング周期依存性を測定した。最適導波路付近での測定結果を図4.19に示す。グレーティング周期誤差に対する許容半値全幅は2.8nmであり、理論値2.9nmと良く一致していた。

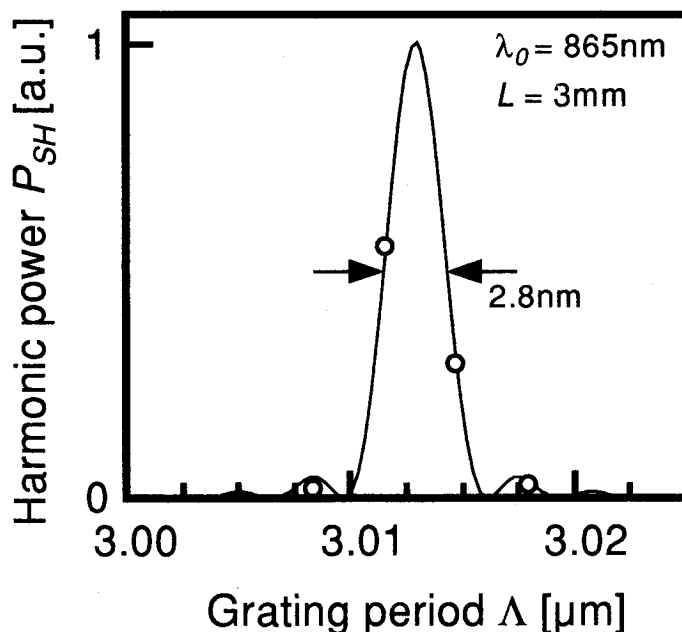


図4.19 半導体レーザを用いたSHG実験での
第2高調波パワーのグレーティング周期依存性

4.4 理論値との比較

第2章での解析では導波路伝搬損失を考慮していないが、実際に作製したデバイスでは伝搬損失が存在する。ポンプ光と第2高調波光に対する伝搬損失 α が等しく、位相整合が完全に達成されていると仮定すると、式(2.5)は以下のように書き直される。

$$\eta = \kappa^2 P_0 e^{-\alpha L} \cdot [2/\alpha \cdot (1 - e^{-\alpha L/2})]^2 \quad (4.1)$$

また、第2章で行った解析では光導波路の屈折率分布はステップ形を仮定した

が、実験においてプロトン交換／アニール法で作製した光導波路の屈折率分布はグレーディッド形である。そのため作製した光導波路でのモードプロファイルと第2章の解析で用いたモードプロファイルは完全には一致しない。従ってここでの理論計算ではモードプロファイルはガウシアン関数で近似し、その半値全幅が実験での測定値と一致するように決定した。さらに分極反転グレーティングの構造が第2章で述べた理想的な構造であると仮定すると、非線形結合係数 κ は式(4.2)で表される³⁹⁾。

$$\kappa = \sqrt{\frac{(2\omega)^2}{2(N^\omega)^2 N^{2\omega}} \left(\frac{\mu}{\epsilon_0}\right)^{3/2} \frac{d_{eff}^2}{S_{eff}}}$$

$$d_{eff} = (2/\pi)d \quad (4.2)$$

$$S_{eff} = \frac{\pi}{32} \cdot \left[\frac{(W_x^\omega)^2 + 2(W_x^{2\omega})^2}{W_x^{2\omega}} \right] \cdot \left[\frac{(W_y^\omega)^2 + 2(W_y^{2\omega})^2}{W_y^{2\omega}} \right]$$

ここで W_x , W_y はモードプロファイルの導波路幅方向及び深さ方向の $1/e^2$ 全幅である。

計算で用いたパラメータを表4.2に示す。伝搬損失の値としては、波長 $0.78\ \mu\text{m}$ のDFBレーザ（シャープ製）を用いてFabry-Perot法⁶⁷⁾で測定した値（ $\alpha=1\ \text{dB/cm}$ ）を使用した。SHG係数として、これまでの報告で最も大きい値 $d_{33}=47\text{pm/V}$ ⁵⁴⁾を使用すると、理論規格化変換効率 η/P_0 は緑色光発生用デバイスでは $90\%/W$ （ $L=3\text{mm}$ ）、青色光発生用デバイスでは $360\%/W$ （ $L=3\text{mm}$ ）、 $3100\%/W$ （ $L=10\text{mm}$ ）と見積もられる。ここで、実験値は透過ポンプ光パワーに対する比で求めたため、比較する理論値としては $(\eta/P_0)e^{2\alpha L}$ の値がより妥当である。また、実験で使用したNd:YAGレーザ及びTi:Al₂O₃レーザは縦多モード発振していたことを考慮⁵⁵⁾すると、理論値は緑色光発生用デバイスでは $210\%/W$ （ $L=3\text{mm}$ ）、青色光発生用デバイスでは $820\%/W$ （ $L=3\text{mm}$ ）、 $9800\%/W$ （ $L=10\text{mm}$ ）、半導体レーザ用デバイスでは $410\%/W$ （ $L=3\text{mm}$ ）となる。なおSHG係数として

表4.2 理論計算で用いたパラメータ

			Green SHG device	Blue SHG device
mode size	pump	W_x^ω	3.7 μm	2.7 μm
		W_y^ω	4.8 μm	3.1 μm
	SH	$W_x^{2\omega}$	1.3 μm	1.3 μm
		$W_y^{2\omega}$	2.0 μm	1.7 μm
mode index	pump	N^ω	2.16	2.18
	SH	$N^{2\omega}$	2.25	2.31
Effective cross-section S_{eff}			20 μm^2	7.3 μm^2

最近報告されている値25.2pm/V ($\lambda_0=1.064\mu\text{m}$)⁶⁸⁾を用いて理論値を求めると、それぞれ60%/W, 240%/W, 2900%/W, 120%/Wとなる。一方、実験値は130%/W, 150%/W, 240%/W, 70%/Wであり、相互作用長が3mmのデバイスでは実験値は理論値と同程度であることがわかる。相互作用長が10mmのデバイスでは実験値は理論値よりも一桁程度小さい。この原因は明らかではないが、考えられる原因としては、分極反転グレーティングや導波路の均一性が低いことがあげられる。より正確に理論値と実験値を比較するためには、導波光モードプロファイル、LiNbO₃バルク結晶のSHG係数、SHG係数がプロトン交換／アニールにより減少及び回復する現象^{69)–74)}、導波路伝搬損失等をより正確に考慮する必要がある。

4.5 結言

本章では、第3章で作製した分極反転グレーティングを用いた、緑色／青色光発生用のLiNbO₃導波路型QPM-SHGデバイスを試作し、その評価を行った。Nd:YAGレーザ光を用いた緑色光発生実験において、相互作用長3mmに対して規格化変換効率130%/Wを得た。またTi:Al₂O₃レーザ光を用いた青色光発生実験において、相互作用長3mmに対して規格化変換効率150%/W、相互作用長10mmに対して規格化変換効率240%/Wを得た。これらの値は、LiNbO₃導波路

型SHGデバイスについてこれまで報告された値の中で最高値である。また、相互作用長3mmのデバイスでは、効率、ポンプ光波長受容幅、グレーティング周期誤差許容幅等の値は理論値と実験値で同程度かあるいはよく一致しており、本研究で確立した電圧印加分極反転法が高効率デバイス作製に適していることが示された。しかしながら、相互作用長が長いデバイスでは、実験値は理論値を大きく下回っており、長相互作用長デバイスの作製においてはまだ均一性に問題があることも明らかになった。また、半導体レーザを用いた青色光発生実験も行い、相互作用長3mmに対して規格化変換効率70%/Wが得られた。これにより小型青色光発生デバイスの実現に対する見通しを得た。しかしながら出力パワーの安定性に課題があり、実用化のためにはさらなる検討が必要であることもわかった。

第5章 紫外光発生用導波路型第2高調波発生デバイスの作製と評価

5.1 緒言

LiNbO_3 導波路型QPM-SHGデバイスを用いて緑色や青色光を発生させることが高効率に行えることを第4章で述べた。より短波長の光である紫外光を高効率で発生させることができれば、小型コヒーレント光源から得られる波長域をさらに拡大させることが可能となる。さらに紫外光は可視光と比較して、光情報記録、光情報処理、光センサー等の多くの分野でより一層の利点を有している。しかしながら、紫外光発生デバイスは作製が困難である等の理由によりこれまでほとんど検討されていない。

本章では、第3章で得られた分極反転グレーティングを用いた紫外光発生用 LiNbO_3 導波路型QPM-SHGデバイスを検討し、作製、SHG実験を行った結果について述べる。まず、第2高調波に吸収損失がある場合のデバイス性能について理論解析を行った結果を述べる。次に、周期 $6\mu\text{m}$ 程度の分極反転グレーティングを用いた、3次QPM-SHGによる紫外光発生実験で得られた結果について述べる。さらに本研究において初めて作製に成功した周期 $2\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングを用いた1次QPM-SHGによる紫外光発生実験で得られた結果について述べる。

5.2 吸収損失を考慮したデバイス性能の理論解析

LiNbO_3 結晶は紫外光領域の光に対して透明ではなく、波長に応じて光を吸収する。図5.1に LiNbO_3 結晶の吸収係数の波長依存性を示す⁷⁵⁾。吸収係数は波長の減少に伴い指数関数的に増大している。紫外光発生デバイスでは、第2高調波が LiNbO_3 結晶により吸収されるため、デバイス性能が劣化すると考えられる。 LiNbO_3 結晶による吸収の影響を考慮し、導波路型1次QPM-SHGデバイスの特性を解析した。解析では、ポンプ光と第2高調波の位相整合は完全に達成していると仮定し、吸収の影響は第2高調波に対する伝搬損失として取り扱った。このときポンプ光と第2高調波を記述するモード結合方程式は、式(2.1)に伝搬損失を表す項を追加した式(5.1)で表される。

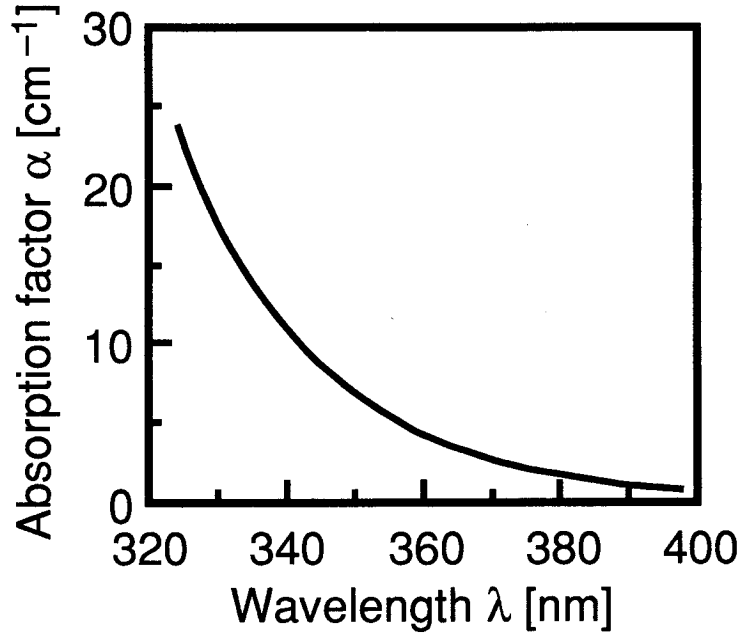


図5.1 LiNbO₃結晶の吸収係数の波長依存性⁷⁵⁾

$$\begin{cases} \frac{d}{dx}A_1(x) & = -j\kappa^* A_2(x) A_1(x)^* \\ \frac{d}{dx}A_2(x) + \frac{\alpha}{2} A_2(x) & = -j\kappa A_1(x)^2 \end{cases} \quad (5.1)$$

ここで α は第2高調波に対する伝搬損失 (=吸収係数) である。このモード結合方程式の解析解は明らかではないため、4次のルンゲクッタ法を用いて数値解析した。SHG変換効率の相互作用長依存性を計算した結果を図5.2に示す。非線形結合係数 κ の値は、第4章で述べた緑色／青色光発生用デバイスで得られている、相互作用長 $L=3\text{mm}$ のとき規格化変換効率 $\eta/P_0=100\%/W$ が得られる値 $\kappa=3.3\text{W}^{-1/2}\text{cm}^{-1}$ であり、入射ポンプ光パワー $P_0=|A_1(0)|^2=100\text{mW}$ の時の結果である。波長が短くなるに従い、吸収損失が大きくなるため得られる効率が小さくなることがわかる。また、相互作用長が短いときには吸収損失の影響は小さいが、相互作用長が長くなるに従って影響が大きくなるため、吸収損失がないときとは異なり、各波長において相互作用長に最適値があり、そのとき効率が最大になることがわかる。例えば、波長360nmの紫外光は相互作用長8mmにおいて最大変換効率11%が得られることがわかった。

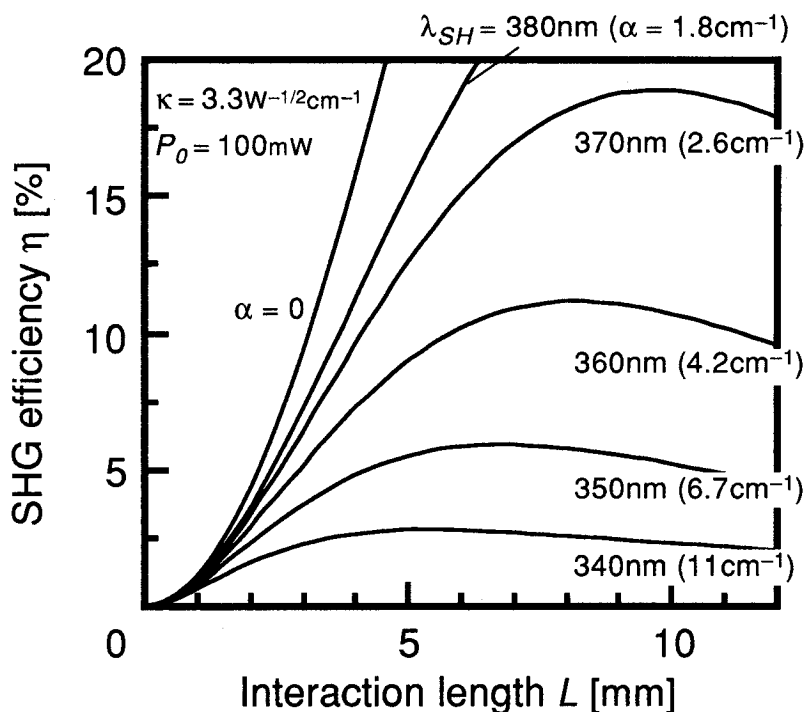


図5.2 SHG変換効率の相互作用長依存性

次に、最大変換効率及び最適相互作用長の非線形結合係数依存性を計算した。図5.3に入射ポンプ光パワー $P_0 = |A_1(0)|^2 = 100 \text{ mW}$ での波長360nmの紫外光発生の場合の結果を示す。非線形結合係数 κ が小さいときには得られる効率が小さく最適相互作用長は長いが、非線形結合係数 κ が大きくなれば、得られる最大変換効率は大きくなり最適相互作用長は短くなることがわかる。非線形結合係数 κ が大きい場合に高効率を得られる原因は、吸収損失の影響が小さい短相互作用長での変換が可能であるためと考えられる。

以上の結果、吸収損失がある場合には得られる効率は低下するが、非線形結合係数 κ の大きなデバイスでは高効率も達成可能であり、紫外光発生用デバイスにおいても高効率デバイスの実現が可能であることがわかった。

5.3 導波路型3次擬似位相整合第2高調波発生デバイス

5.3.1 デバイス作製

これまで紫外光発生デバイスはほとんど検討されておらず、紫外領域での光導波路の屈折率も明らかとはなっていないため、分極反転グレーティングと発生波長(位相整合波長)の関係は明確ではない。従って予備検討のため、

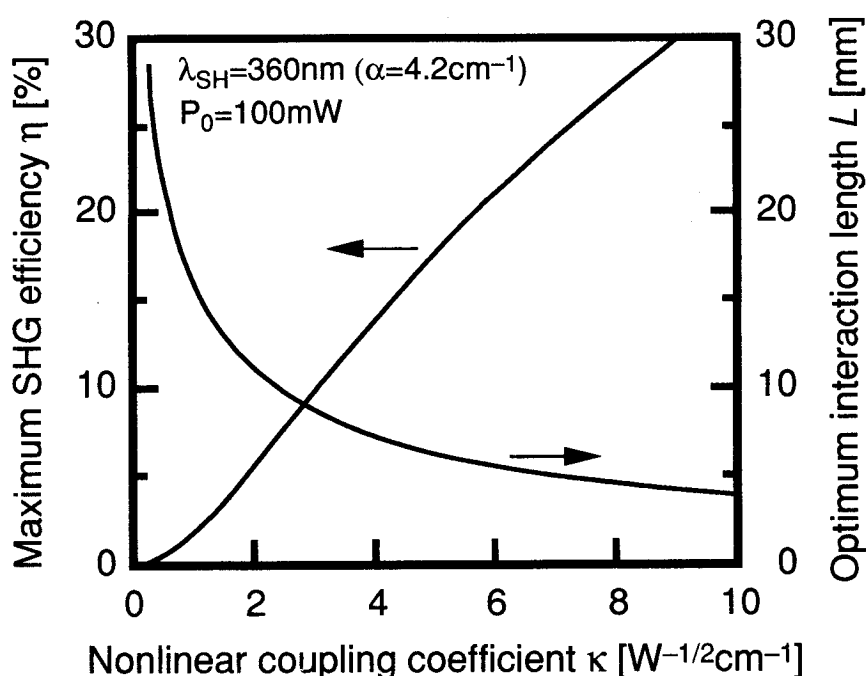


図5.3 最大SHG変換効率及び最適相互作用長の非線形結合係数依存性

高効率を期待することはできないが、作製の容易な3次グレーティングを用いたデバイスを試作した。紫外光発生で必要となる3次グレーティングの周期は $6\mu\text{m}$ 程度と見積もられる。第4章での緑色光発生実験で用いた扇形分極反転グレーティングとチャネル光導波路アレイで構成されるデバイスは、周期が $5.83\mu\text{m} \sim 6.97\mu\text{m}$ であるため、紫外光発生用導波路型3次QPM-SHGデバイスとして機能する。従ってこのデバイスを用いて紫外光発生実験を行った。

5.3.2 第2高調波発生実験

実験光学系を図5.4に示す。発振波長可変の $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ レーザをポンプ光源として用いた。ポンプ光は端面結合しTM-like基本モードを励振した。各チャネルにおいて位相整合を達成する波長を入力することで3次QPM-SHGによる紫外光の第2高調波が得られた。図5.5に第2高調波波長のグレーティング周期依存性を示す。 $5.83\mu\text{m} \sim 6.97\mu\text{m}$ のグレーティング周期に応じ、位相整合がとれている波長がほぼ線形に変化しており、波長 $382\text{nm} \sim 400\text{nm}$ の紫外第2高調波が得られた。波長 382nm の紫外光はこれまで LiNbO_3 導波路型QPM-SHGデバ

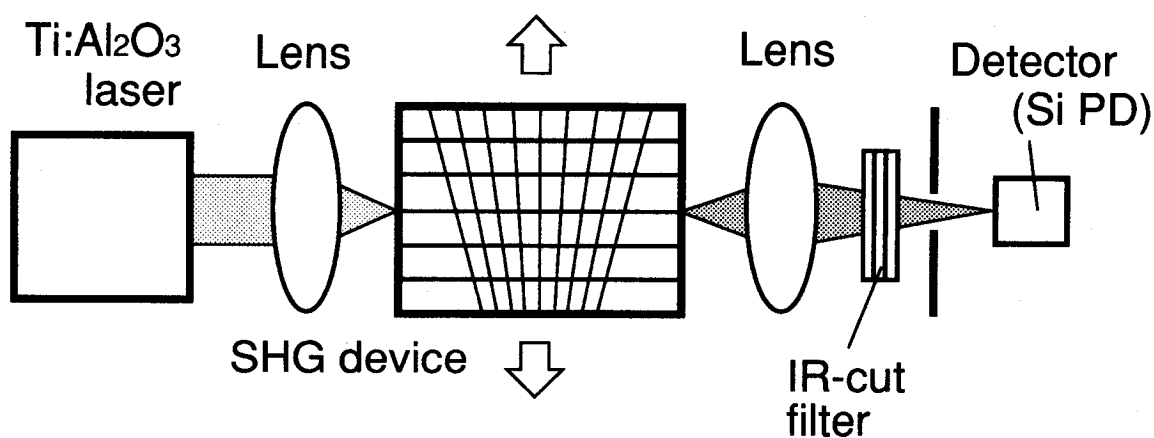


図5.4 紫外光発生SHG実験光学系

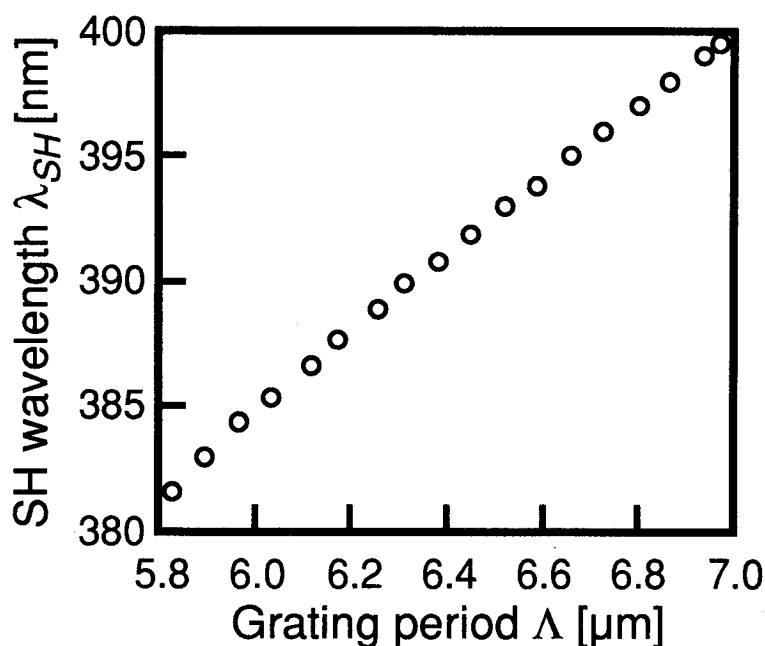


図5.5 第2高調波波長のグレーティング周期依存性

イスで得られている最短波長の光である。図5.6にSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を示す。SHG変換効率はポンプ光パワーに比例していることがわかる。規格化変換効率は位相整合波長が波長400nmの導波路において最大値4.5%/Wが得られた。より短波長光で位相整合する導波路では得られた規格化変換効率は減少し、波長382nmの紫外光を発生する導波路では規格化変換効率は1%/Wであった。規格化変換効率が短波長側で小さくなる原因は明らかにな

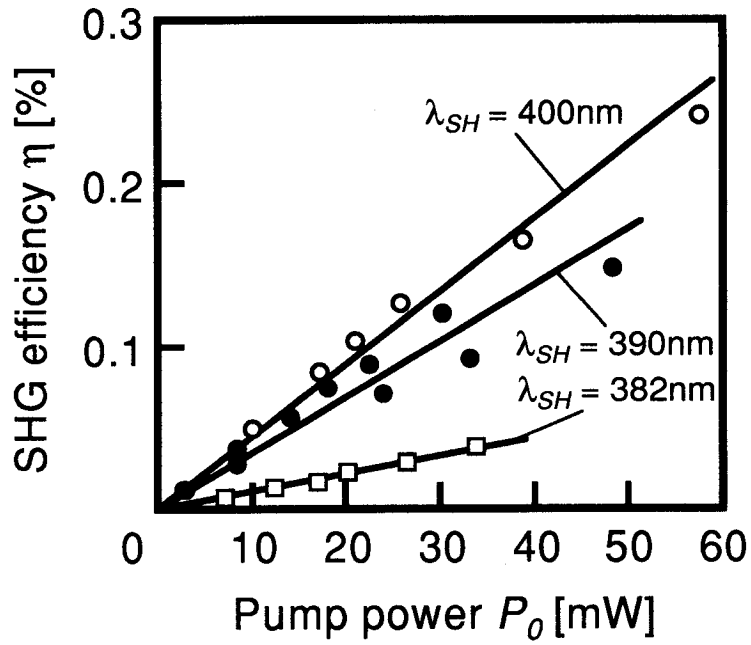


図5.6 SHG変換効率のポンプ光パワー依存性 (3次QPM-SHG)

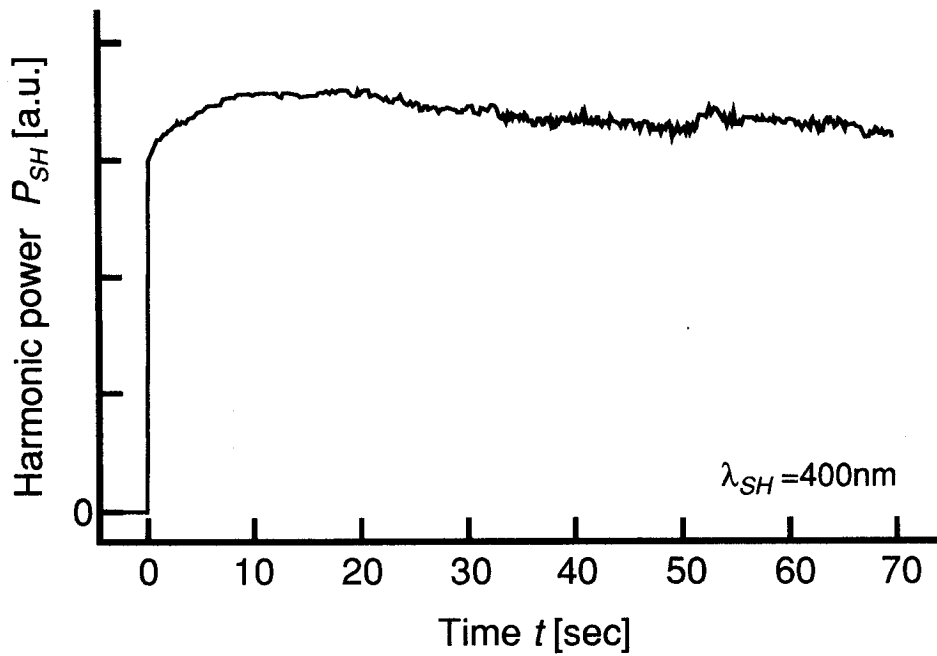


図5.7 第2高調波パワーの時間依存性

っていない。作製した扇形分極反転グレーティングのデューティー比は3.5で述べたようにグレーティング全体にわたっては0.5ではなく、反転幅が太くな

っていた。3次グレーティングではグレーティングのデューティ比への要求精度が1次グレーティングの場合よりも厳しいため、このことが効率劣化の原因の一つであると考えられる。次に、SHGの時間応答を調べた結果を図5.7に示す。時間 $t=0$ でポンプ光を入力し始めてから1分間程度の第2高調波パワーの時間依存性を示しており、第2高調波パワーの変動が10%程度であることがわかる。このことは光損傷や吸収による影響がほとんどなく、安定なSHGが得られていることを示していると考えられる。以上の結果より、 LiNbO_3 導波路型QPM-SHGデバイスを用いた紫外光発生の有用性が示された。1次QPM-SHGを用いることでより高効率な紫外光発生が期待できる。

5.4 導波路型1次擬似位相整合第2高調波発生デバイス

5.4.1 デバイス作製

5.3での3次QPM-SHG実験により、紫外光発生用 LiNbO_3 導波路型1次QPM-SHGデバイス実現に必要な分極反転グレーティングの周期は $2\mu\text{m}$ 程度であることが確認できた。従って紫外光発生用導波路型1次QPM-SHGデバイスとして、 $2\mu\text{m}$ 程度の均一周期の分極反転グレーティングを持ったデバイスを作製した。表5.1にデバイスパラメータを示す。デバイス作製方法は4.2で述べた方法と同様である。まず、 LiNbO_3 基板上に分極反転グレーティングを第3章で述

表5.1 紫外光発生用1次QPM-SHGデバイスのパラメータ

Domain-inverted grating	
period Λ	2.0 – 2.2 μm
interaction length L	1 – 3 mm
Channel waveguide	
・ Proton exchange	in pure benzoic acid
temperature	200 °C
time	20 min.
mask width	3 μm
・ Annealing	in dry oxygen
temperature	350 °C
time	1 hour

べた方法で作製した。次にチャネル光導波路を純粋安息香酸を用いた200°C、20分間のプロトン交換と、酸素雰囲気中での350°C、1時間のアニールにより作製した。

5.4.2 第2高調波発生実験

発振波長可変のTi:Al₂O₃レーザをポンプ光源として用いた。ポンプ光は端面結合しTM-like基本モードを励振した。グレーティング周期2.0μm、相互作用長1mmのデバイスでは、ポンプ光波長766nmの時、位相整合した基本モードの第2高調波（波長383nm）が得られた。得られた第2高調波の近視野像とその強度分布を図5.8に示す。強度分布の半値全幅は導波路幅方向、深さ方向共に1.0μmであった。図5.9にSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を示す。SHG変換効率はポンプ光パワーに比例しており、規格化変換効率として6%/Wが得られた。実験を行ったパワー範囲においては安定な出力が得られ、顕著な光損傷は観測されなかった。図5.10に第2高調波パワーのポンプ光波長依存性を測定した結果を示す。ポンプ光波長に対する受容半値全幅は0.41nmであり、理論値0.39nmと良く一致していた。

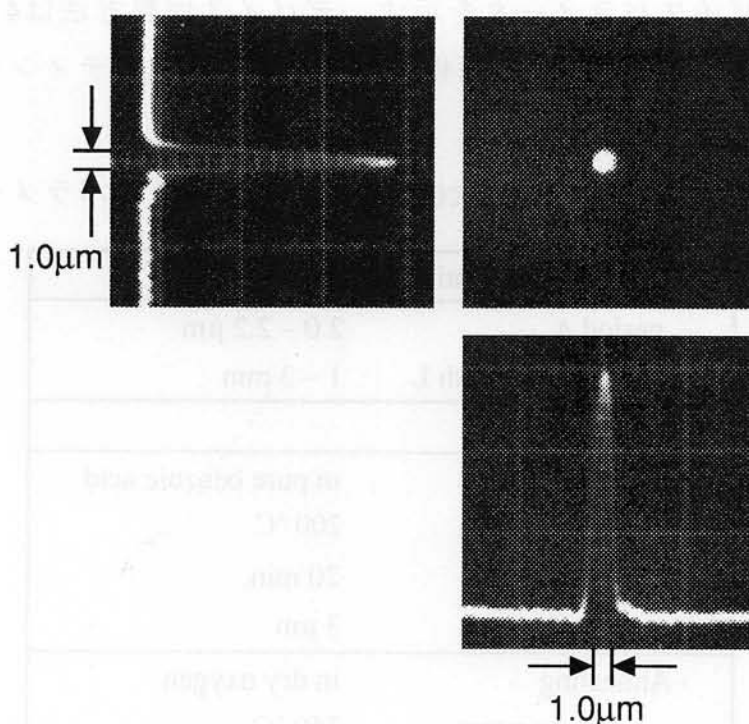


図5.8 第2高調波の近視野像 (波長383nm)

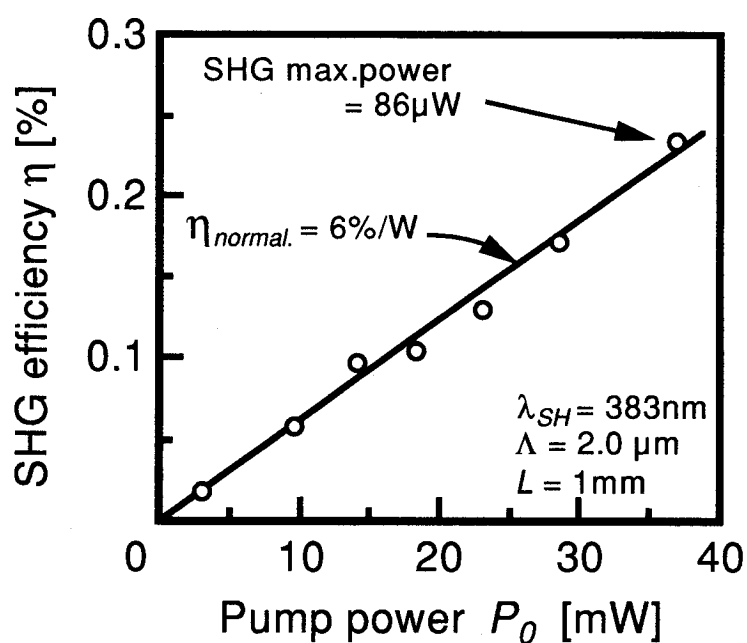


図5.9 SHG変換効率のポンプ光パワー依存性 (相互作用長 $L=1\text{mm}$)

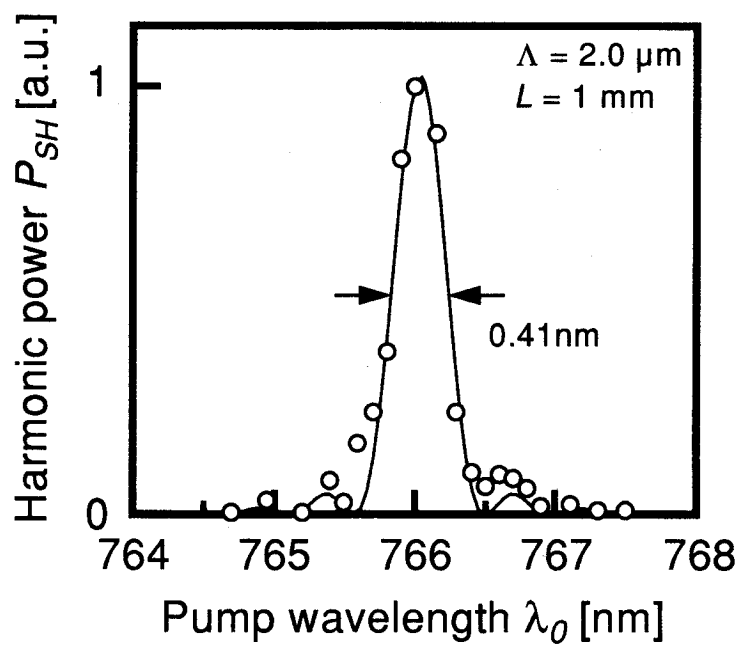


図5.10 第2高調波パワーのポンプ光依存性 (相互作用長 $L=1\text{mm}$)

次にグレーティング周期 $2.2\mu\text{m}$ 、相互作用長 3mm のデバイスでSHG実験を行った。ポンプ光光源は $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ レーザである。ポンプ光波長 786nm の時、位相整合した基本モードの第2高調波（波長 393nm ）が得られた。図5.11にSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を示す。SHG変換効率はポンプ光パワーに比例しており、 52mW のポンプ光パワーに対し 1.9mW の第2高調波が得られた。得られた最大のSHG変換効率は 3.6% であり、規格化変換効率として $70\%/W$ が得られた。このデバイスにおいても、実験を行ったパワー範囲において第2高調波パワーは安定であり、顕著な光損傷は観測されなかった。図5.12に第2高調波パワーのポンプ光波長依存性を測定した結果を示す。ポンプ光波長に対する受容半値全幅は 0.27nm であり、理論値 0.15nm よりも大きい値となっていた。この原因は明らかではないが、ポンプ光の波長幅が 0.1nm （ $\sim 40\text{GHz}$ ）程度あることが主な原因であると考えられる。次に単一縦モード発振の波長可変半導体レーザをポンプ光光源として用いてSHG実験を行った。実験光学系を図5.13に示す。ポンプ光の一部をFabry-Perot干渉計型スペクトルアナライザ（自由スペクトル間隔： 10GHz ）に入射し、レーザが常に単一縦モード発振し

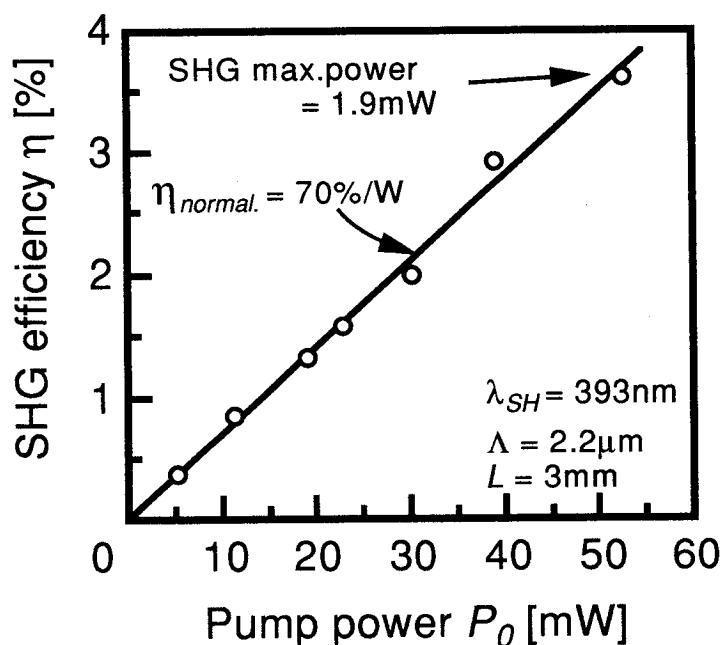


図5.11 SHG変換効率のポンプ光パワー依存性 (相互作用長 $L=3\text{mm}$)

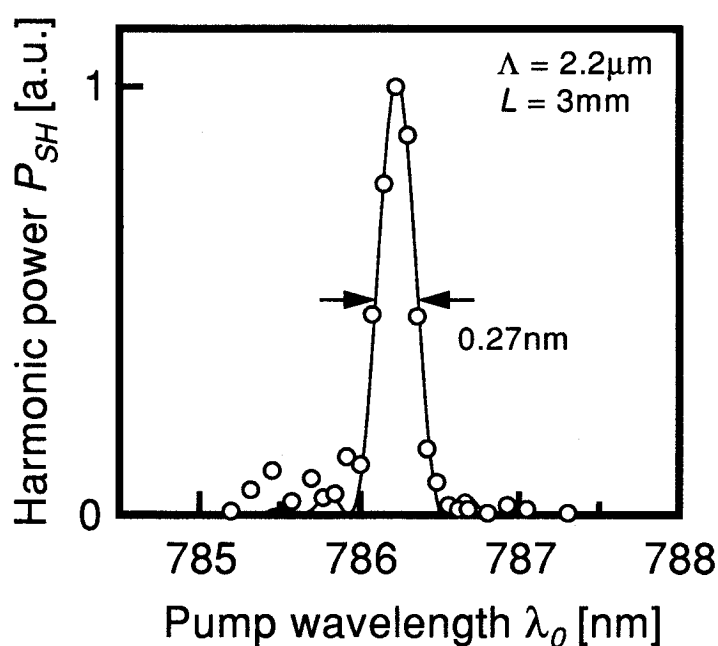


図5.12 第2高調波パワーのポンプ光依存性 (相互作用長 $L=3\text{mm}$)

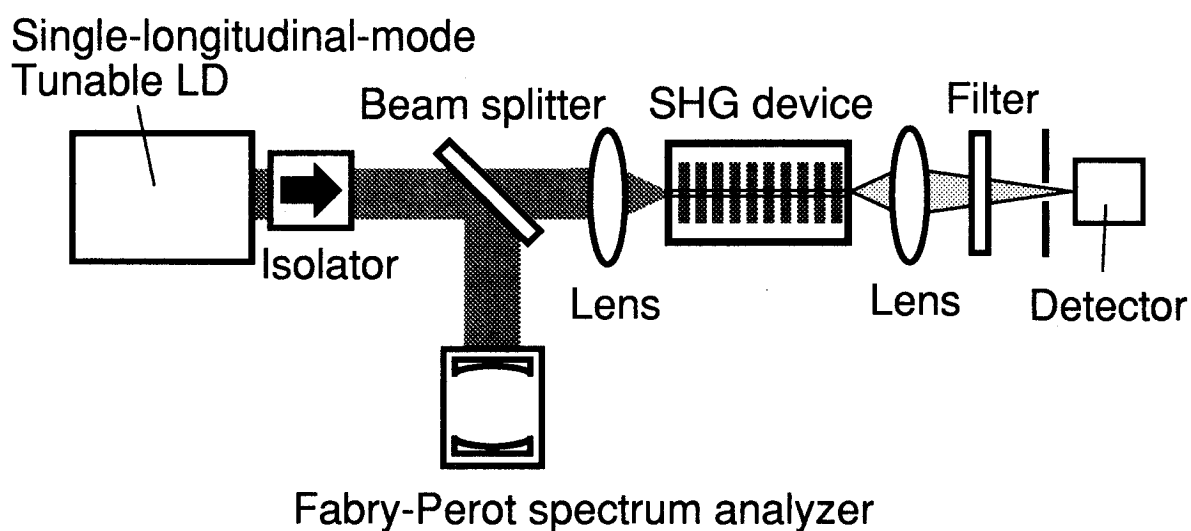


図5.13 波長可変半導体レーザポンプSHG実験光学系

ていることを確認した。図5.14にSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を示す。SHG変換効率はポンプ光パワーに比例しており、規格化変換効率として40%/Wが得られた。規格化変換効率がTi:Al₂O₃レーザを用いた図5.11の結果

よりも小さい原因は、ポンプ光として用いた波長可変半導体レーザ光は単一縦モードであるが、Ti:Al₂O₃レーザ光は縦多モードであるためであると考えられる⁵⁵⁾。

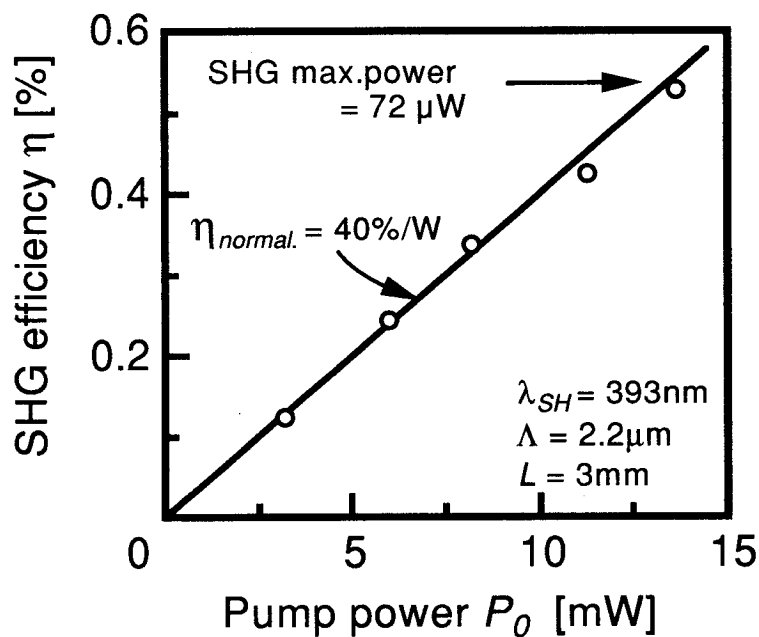


図5.14 波長可変半導体レーザを用いたSHG実験でのSHG変換効率のポンプ光パワー依存性

5.5 結言

本章では、これまでほとんど検討されていなかった紫外光発生用LiNbO₃導波路型QPM-SHGデバイスについて理論的・実験的な検討を行った。

第2高調波に吸収損失がある場合のデバイス性能を理論解析した結果、相互作用長に最大効率を与える最適値が存在すること、非線形結合係数 κ の大きなデバイスでは短い相互作用長でも比較的高効率変換が達成できるため、吸収の影響を少なくできること等がわかった。

紫外光発生用LiNbO₃導波路型1次QPM-SHGデバイスを、電圧印加法で作製した分極反転グレーティングを用いて初めて作製した。周期2.0 μ mの分極反転グレーティングをもつデバイスにおいて、波長383nmの紫外第2高調波が得ら

れた。この値は LiNbO_3 導波路型QPM-SHGデバイスにおいて得られている最短波長の第2高調波である。また、相互作用長3mmのデバイスにおいて規格化変換効率が70%/Wという高い値が得られた。この値はこれまでに報告されている結果¹⁸⁾を大きく上回るものである。さらに、ポンプ光波長受容幅の値は理論値と実験値で一致しており、本研究で確立した電圧印加分極反転法が、紫外光発生用デバイスにおいても高効率デバイス作製に適していることが示された。

第6章 分極反転グレーティングを用いた導波路型光第3高調波発生デバイス

6.1 緒言

光第3高調波発生 (Third Harmonic Generation : THG) デバイスは、ポンプ光を1/3の波長の光に変換できる。従って、同一波長のポンプ光からSHGデバイスよりも短波長光が得られ、発生波長の短波長化に有効である。THGを行う方法としては、3次非線形光学効果を用いてポンプ光を直接第3高調波に変換する方法 ($\omega + \omega + \omega = 3\omega$) と、2次非線形光学効果を2度用いることで間接的に変換する方法 ($\omega + \omega = 2\omega \rightarrow \omega + 2\omega = 3\omega$) が考えられる。現状では、3次非線形光学定数は2次非線形光学定数よりも小さく研究も不十分であるため、後者の方法を用いる場合の方が高い変換効率の達成が可能である⁸⁾。また、第3章で述べた電圧印加法で作製した分極反転グレーティングを用いれば、2次非線形光学効果を用いた波長変換を高効率で達成することが可能であることを第4章で述べた。従って第3章で作製した分極反転グレーティングを導波路型THGデバイスに適用すれば、高効率デバイスが実現できる可能性がある。

本章では、分極反転グレーティングを用いた導波路型光第3高調波発生デバイスを提案し、理論的・実験的に行った検討について述べる。まず、提案するデバイス構成を述べる。次に、デバイス性能を理論解析した結果について述べ、Nd:YAGレーザ光をポンプ光として用いる場合のデバイス設計を行った結果を述べる。次に、作製したデバイスを用いた第3高調波発生実験で得られた結果について述べる。

6.2 デバイス構成

図6.1にデバイス構成を示す。デバイスはチャネル光導波路と周期の異なる2つの分極反転グレーティングを直列に連結した構造である。ポンプ光が入力すると、まず一つ目のグレーティングによりQPM-SHGがおこり、ポンプ光の一部が第2高調波に変換する。次にポンプ光と第2高調波が二つ目のグレーティングに入力すると、擬似位相整合和周波数発生 (QPM-SFG) がおこり、ポンプ光と第2高調波の和周波数の光である第3高調波が発生する。図6.2に各高調

波パワーの伝搬方向依存性を示す。入力端より、第2高調波がパワーをほぼ2次関数的に増加させながら伝搬し、SHG部端まで到達する。SFG部に入ると、第3高調波がパワーをほぼ2次関数的に増加させながら伝搬し、出力する。一方第2高調波パワーは、SFG部では第3高調波へ変換されるため減衰した後、出射する。

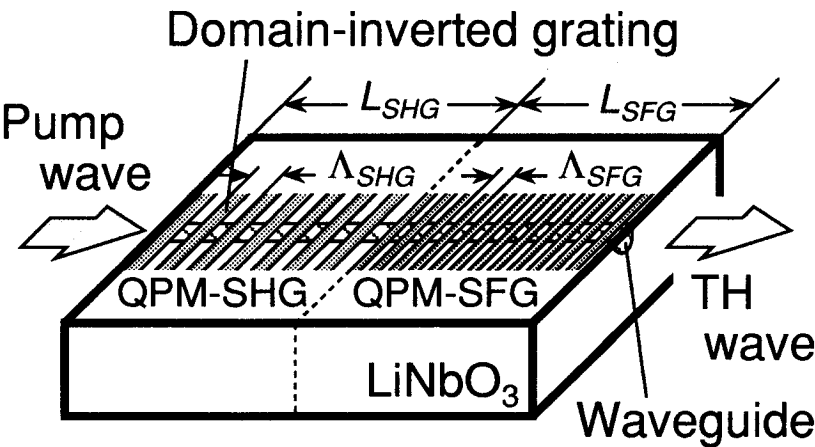


図6.1 LiNbO₃導波路型QPM-SHG-QPM-SFGデバイス

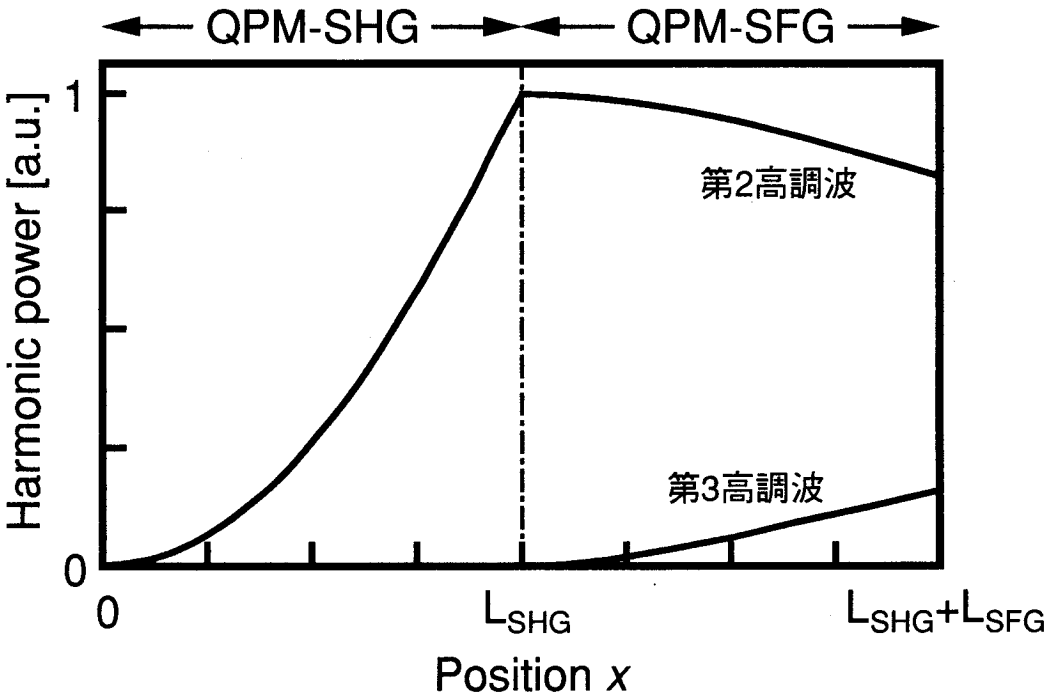


図6.2 高調波パワーの伝搬方向依存性

6.3 デバイス性能の理論解析とデバイス設計

図6.1に示すようなLiNbO₃導波路型QPM-SHG-QPM-SFGデバイスの特性を理論解析した。解析では、SHG部ではポンプ光と第2高調波が、SFG部ではポンプ光、第2高調波、第3高調波が完全に位相整合していると仮定した。また波長1.064μmのNd:YAGレーザ光をポンプ光として用いる場合を検討するため、紫外光である第3高調波のLiNbO₃結晶による吸収を考慮した。吸収の影響は5.2と同様に、第3高調波に対する伝搬損失として取り扱った。このときポンプ光、第2高調波、第3高調波を記述するモード結合方程式は、式(6.1)で表される。

SHG部 ($0 \leq x \leq L_{\text{SHG}}$)

$$\begin{cases} \frac{d}{dx}A_1(x) = -j\kappa_{\text{SHG}}^* A_2(x) A_1(x)^* \\ \frac{d}{dx}A_2(x) = -j\kappa_{\text{SHG}} A_1(x)^2 \end{cases}$$

SFG部 ($L_{\text{SHG}} \leq x \leq L_{\text{SHG}} + L_{\text{SFG}}$)

(6.1)

$$\begin{cases} \frac{d}{dx}A_1(x) &= -j\frac{1}{3}\kappa_{\text{SFG}}^* A_2(x)^* A_3(x) \\ \frac{d}{dx}A_2(x) &= -j\frac{2}{3}\kappa_{\text{SFG}}^* A_3(x) A_1(x)^* \\ \frac{d}{dx}A_3(x) + \frac{\alpha}{2}A_3(x) &= -j\kappa_{\text{SFG}} A_{\omega}(x) A_{2\omega}(x) \end{cases}$$

ここで導波光の伝搬方向は x であり、 $A_1(x)$ 、 $A_2(x)$ 、 $A_3(x)$ はそれぞれポンプ光、第2高調波、第3高調波の電界振幅、 α は第3高調波に対する伝搬損失 (=吸収係数)、 κ_{SHG} 、 κ_{SFG} はそれぞれSHG部 ($0 \leq x \leq L_{\text{SHG}}$) 及びSFG部 ($L_{\text{SHG}} \leq x \leq L_{\text{SHG}} + L_{\text{SFG}}$) での非線形結合係数である。SHG部のモード結合方程式は第2章で位相整合しているとき ($\Delta=0$) の方程式と同一であり、 κ_{SHG} は式(2.2)で表される。 κ_{SFG} は同様にして式(6.2)で表される。

$$\kappa_{\text{SFG}}^2 = 9 \cdot \frac{(2\omega)^2}{2N_1 N_2 N_3} \left(\frac{\mu}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \cdot \frac{\left(\iint \mathbf{E}_3^* d_1 \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2 dydz \right)^2}{\iint |\mathbf{E}_1|^2 dydz \iint |\mathbf{E}_2|^2 dydz \iint |\mathbf{E}_3|^2 dydz} \quad (6.2)$$

ここで、 ω はポンプ光の周波数、 N_i 、 $\mathbf{E}_i$ ($i=1,2,3$) はそれぞれ各導波光の実効屈折率、電界モード分布を表す。SHG部のモード結合方程式は第2章で述べたように解析的に解け、SHG部 ($0 \leq x \leq L_{\text{SHG}}$) でのポンプ光と第2高調波のパワーはそれぞれ式(6.3)で表される。

$$\begin{cases} P_1(x) = |A_1(x)|^2 = \text{sech}^2 \left(\kappa_{\text{SHG}} |A_1(0)| x \right) \cdot |A_1(0)|^2 \\ P_2(x) = |A_2(x)|^2 = \tanh^2 \left(\kappa_{\text{SHG}} |A_1(0)| x \right) \cdot |A_1(0)|^2 \end{cases} \quad (6.3)$$

ここで $P_0 = |A_1(0)|^2$ は入力ポンプ光パワーである。一方、式(6.1)のSFG部を記述するモード結合方程式の解析解は明らかではないため、4次のルンゲクッタ法を用いて数値解析した。第3高調波パワーのポンプ光パワー依存性を計算した結果を図6.3に示す。SHG部の非線形結合係数 κ_{SHG} 及び相互作用長 L_{SHG} の値は、第4章で述べた緑色光発生用SHGデバイスで得られている値 $\kappa_{\text{SHG}} = 3.3 \text{ W}^{-1/2} \text{ cm}^{-1}$ 、 $L_{\text{SHG}} = 3 \text{ mm}$ とした。SFG部の非線形結合係数 κ_{SFG} の値としては、第4章で述べたSHGデバイスで得られている結果を考慮すると共に、高効率とは期待できないが作製が容易で実現可能性が高いと考えられる2次グレーティングを仮定して $\kappa_{\text{SFG}} = 3.3 \text{ W}^{-1/2} \text{ cm}^{-1}$ とした。またSFG相互作用長 L_{SFG} の値は、電圧印加法で均一性良く作製できる $L_{\text{SFG}} = 3 \text{ mm}$ とした。また第3高調波の伝搬損失 α の値は、波長355nmに対する LiNbO_3 結晶の吸収係数の値である $\alpha = 23 \text{ dB/cm}^{75)}$ とした。上記のパラメータの場合、図6.3に示したポンプ光パワーの範囲では、第3高調波パワーはポンプ光パワー P_0 の3乗にほぼ比例して増加することがわかった。この結果は、SHG変換効率及びSFG変換効率があまり大きくなく、SHG部ではポンプ光の減衰が、SFG部ではポンプ光及び第2高調波の減衰が無視できると近似したときの式(6.1)の解を表わす式(6.4)と矛盾して

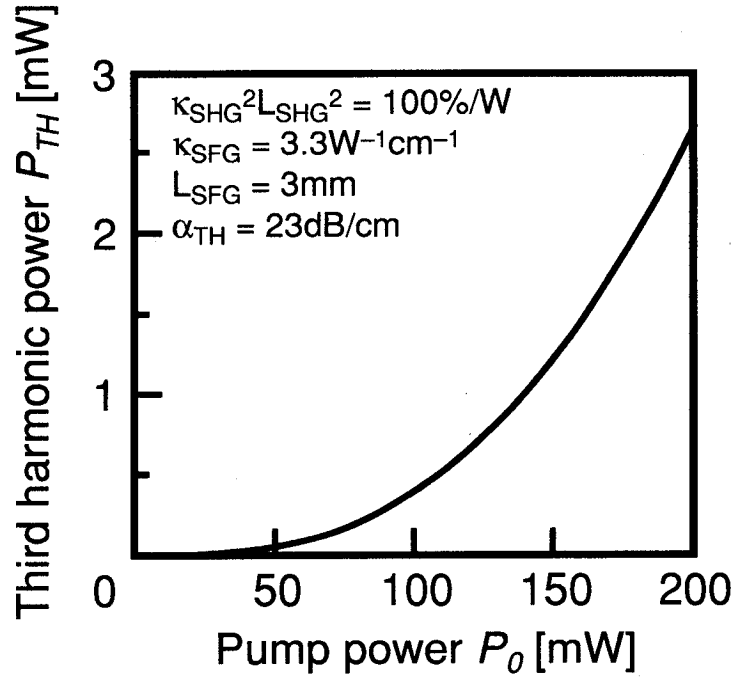


図6.3 第3高調波パワーのポンプ光パワー依存性

いない。

$$P_{TH} = \left| A_3 (L_{SHG} + L_{SFG}) \right|^2 = \left[\frac{2}{\alpha} K_{SHG} K_{SFG} L_{SHG} \left\{ 1 - \exp \left(-\frac{\alpha}{2} L_{SFG} \right) \right\} \right]^2 |A_1(0)|^6 \quad (6.4)$$

また上記のパラメータのデバイスでは、1mWの第3高調波が140mWの入力ポンプ光パワーで得られることがわかった。また、吸収損失のためSFG部の相互作用長には最適値が存在し、そのとき最大変換効率が得られることがわかった。以上の結果、mWオーダの出力パワーが得られる小型紫外光源が実現可能であることがわかった。より高効率なデバイスを実現するためには、SHG部の変換効率を増加させる ($\leq 50\%$) と共に、吸収損失の影響を少なくするためにSFG部の非線形結合係数を大きくして短い相互作用長での変換を可能にすることが必要であることがわかった。

次に、波長1.064 μm のNd:YAGレーザ光をポンプ光として用いたLiNbO₃導波路型QPM-SHG-QPM-SFGデバイスの実現に必要な分極反転グレーティ

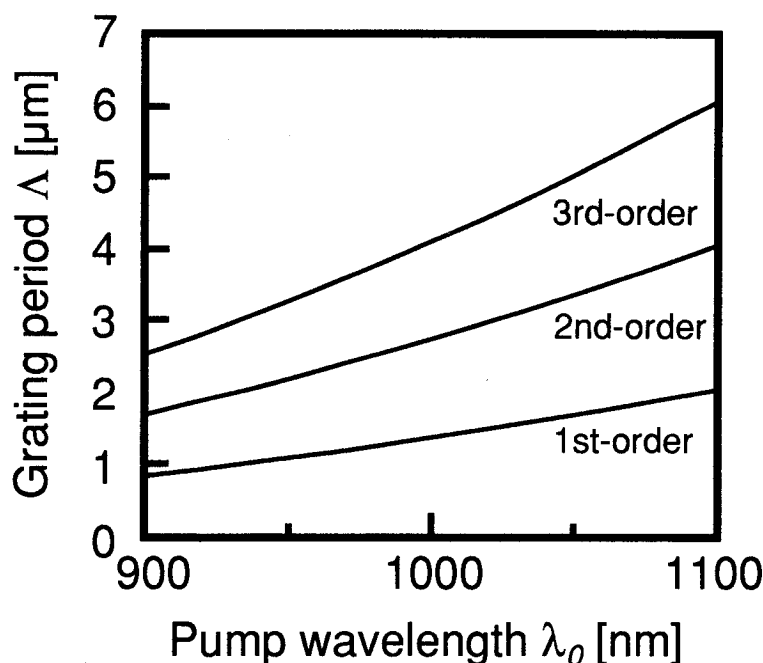


図6.4 SFG部の分極反転グレーティング周期のポンプ光波長依存性

ングの周期を求めた。QPM-SHG部の周期は第2章で求めたように $6\mu\text{m}$ 程度である。QPM-SFG部のグレーティング周期のポンプ光波長依存性を図6.4に示す。図6.4は式(2.9)のセルマイヤー方程式で表される LiNbO_3 のバルク結晶の屈折率を用いて計算した結果である。1次、2次、3次のグレーティング周期を示している。プロトン交換／アニール法で導波路を作製した場合、各導波光の実効屈折率間の差は大きくなるため、導波路型デバイスに必要となるグレーティング周期は図6.4の値より1割程度小さい値となることが予想される。従って、1次グレーティングの場合は周期 $1.6\mu\text{m}$ 程度が必要となることがわかった。

6.4 デバイス作製

位相整合を達成させるためには、グレーティング周期をnmオーダで制御することが必要である。しかしこのような精度での作製は非常に困難であり、光導波路の実効屈折率も不確定である。さらに第3高調波に対する光導波路の屈折率は正確には明らかではないため、2つのグレーティングの周期を正確に制御して、SHG部、SFG部ともに位相整合を達成させることは非常に困難であ

る。従ってSHG部、SFG部ともに、扇形分極反転グレーティングとチャネル光導波路アレイを組み合わせた残留位相整合誤差補償デバイスの構成とし、別基板上に作製した後に組み合わせることで導波路型THGデバイスを実現した。SHG部は第4章での緑色光発生実験で用いたデバイスを用いた。SFG部は、高効率を期待することはできないが作製の容易な2次グレーティングを用いた。必要となる2次グレーティングの周期は $3.2\mu\text{m}$ 程度である。第4章での半導体レーザを用いた青色光発生実験で使用した残留位相整合誤差補償導波路型QPM-SHGデバイスは、周期が $2.86\mu\text{m}\sim 3.41\mu\text{m}$ である上、作製した分極反転グレーティングのデューティ比が完全には0.5ではないため、導波路型2次QPM-SFGデバイスとして機能すると考えられる。従ってこのデバイスを用いて実験を行った。

6.5 第3高調波発生実験

実験光学系を図6.5に示す。波長 $1.064\mu\text{m}$ のNd:YAGレーザをポンプ光源として用いた。QPM-SHG部とQPM-SFG部は両基板の端面を直接結合した。両基板の端面間の距離は数十 μm であり、SHG部からSFG部へのポンプ光と第2高調波のパワー移行効率は20%程度であった。出射光はプリズムを用いて分光した。図6.5に示すように、デバイスを光軸に対して垂直方向に移動させることで励振する導波路を順次選択した。QPM-SHG部では $6.19\mu\text{m}$ 、QPM-SFG部では $3.31\mu\text{m}$ のグレーティング周期を持つ導波路に光を励振することにより位相整合が達成でき、基本モードの第3高調波 (波長 355nm) が得られた。波長

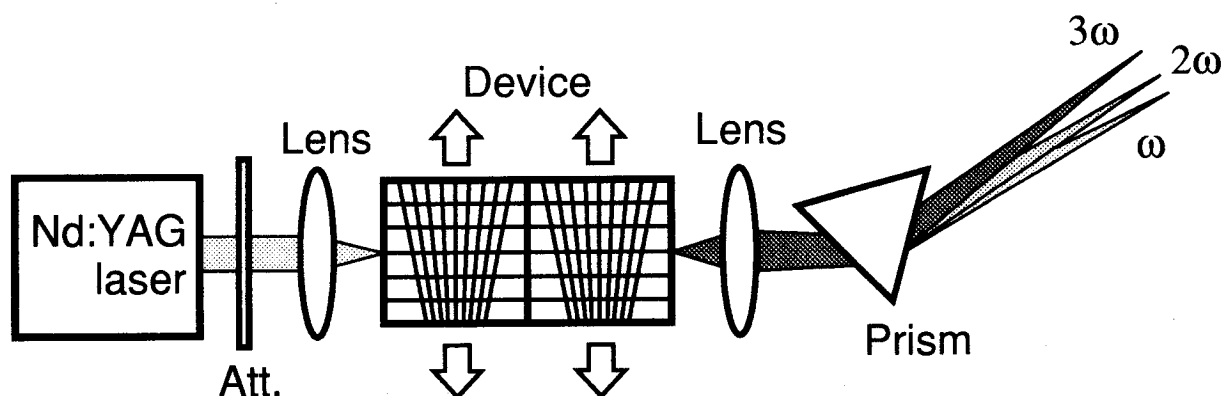


図6.5 第3高調波発生実験光学系

355nmの紫外光はこれまでLiNbO₃導波路型波長変換デバイスで得られている最短波長の光である。得られた第3高調波の近視野像を図6.6に示す。図中で一番左にあるほぼ円形のスポットが第3高調波であり、基本モードで得られていることが確認できる。図6.6では、透過してきた第2高調波とポンプ光も確認できるが、出射レンズ等の波長分散のためディテクタ上で集光していない。図6.7に第3高調波パワーの透過ポンプ光パワー依存性を示す。第3高調波パワーはポンプ光パワー P_{0t} の3乗にほぼ比例しており、透過ポンプ光パワー P_{0t} が30mWの時、0.36 μ Wの第3高調波が得られた。変換効率が小さい主な原因は、SFG部の分極反転グレーティングの線幅が不均一であり、2次グレーティングとして最適化されていないことであると考えられる。また、出力パワーの時間安定性は良くなかった。この原因は明らかとはなっていないが、SHG部とSFG部の直接結合部分は固定しておらず、試料台等の不安定さのためにSFG部へのパワー移行が不安定であったことが原因の一つであると考えられる。

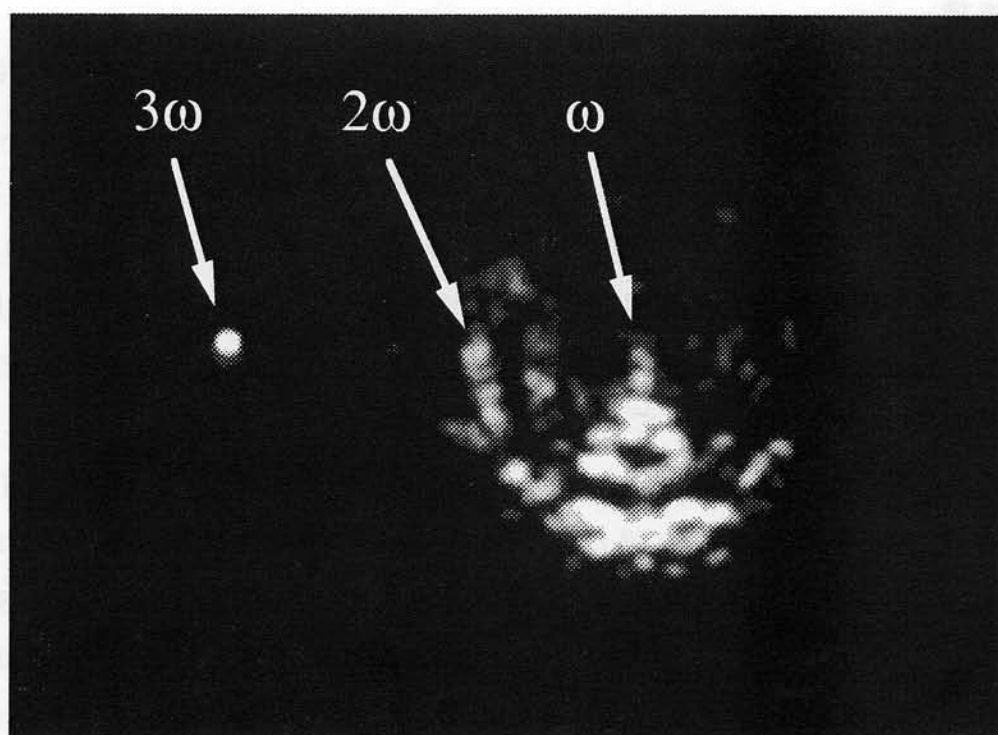


図6.6 第3高調波の近視野像 (波長355nm)

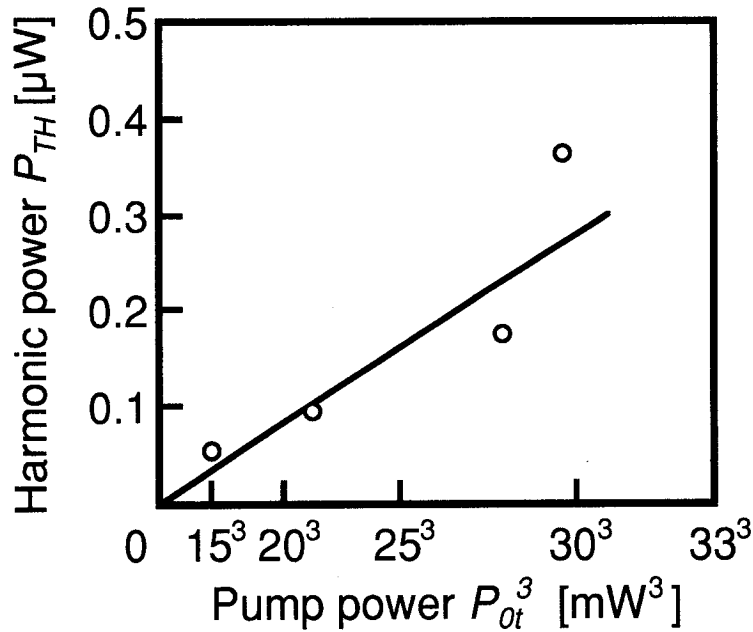


図6.7 第3高調波パワーの透過ポンプ光パワー依存性

6.6 結言

本章では、分極反転グレーティングを用いた導波路型THGデバイスについて理論的・実験的検討を行った。Nd:YAGレーザ光用デバイスについて、SHGデバイスで得られている成果をもとに得られる性能を理論解析し、mWオーダの出力光が得られるデバイスが実現可能であることを示した。QPM-SHG部とQPM-SFG部を別基板上に作製したのち端面を直接結合したデバイスを用いて光学実験を行い、波長355nmの紫外第3高調波が得られた。これはLiNbO₃導波路型波長変換デバイスにおいて、これまで得られている最短波長の光である。

この結果より、分極反転グレーティングを用いたLiNbO₃導波路型THGデバイスの実現に対する見通しを得た。さらなる高効率化と出力安定化のためには、QPM-SHG部とQPM-SFG部の集積化が必要であると考えられる。SHGとSFGともに完全な位相整合を達成することは非常に困難であるが、実現可能性の高いデバイス構成として、図6.8に示すような残留位相整合誤差補償導波路型QPM-SHG-QPM-SFGデバイスが考えられる。このデバイスではデバイス温度の制御によりQPM-SHGでの残留位相整合誤差を補償し、チャネル光導波

路の選択によりQPM-SFGでの残留位相整合誤差を補償する。このようなデバイスの実現が今後の検討課題であると考えられる。

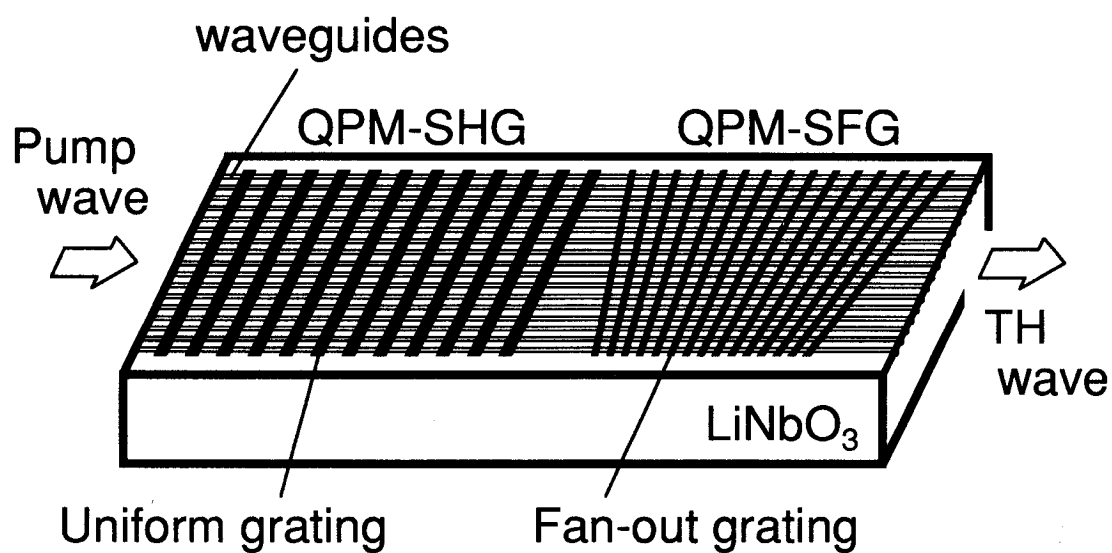


図6.8 残留位相整合誤差補償導波路型QPM-SHG-QPM-SFGデバイス

第7章 結論

小型コヒーレント光源から得られる光の波長域を拡大できるデバイスとして、導波路型非線形光学波長変換デバイスを取り上げ、特に緑色～紫外光領域の短波長光の発生が可能な第2高調波発生デバイスおよび第3高調波発生デバイスについて、理論的・実験的検討を行い、いくつかの成果を得ることができた。本研究において得られた結果および考察した課題を以下に要約して述べるとともに将来展望も述べ、本研究の結論とする。

第2章では、導波光モードプロファイルと分極反転構造を数式化することで、導波路型第2高調波発生デバイスの特性を理論的に解析し、分極反転構造及び光導波路構造がデバイス性能に与える影響を明らかにした。

- 1) 高効率デバイス実現に要求される分極反転グレーティング構造は、デュエティー比が0.4～0.6であり、反転領域の境界が結晶表面に垂直で導波路深さと同等以上の深さをもった構造であることがわかった。また、この条件を満足しない構造では、変換効率が顕著に減少することを明らかにした。
- 2) 高効率デバイス実現のためには、デバイス全体にわたって、分極反転グレーティングにはナノメートルオーダーの周期均一性が、光導波路サイズにはサブミクロンオーダーの均一性が要求されることを明らかにした。

第3章では、高効率な LiNbO_3 導波路型非線形光学波長変換デバイス実現に必要な構造の分極反転グレーティングを作製するため、電圧印加による分極反転グレーティング作製について理論的・実験的検討を行った。

- 1) 電圧印加により結晶内部に誘起される電界分布の解析を行った。周期的電界分布は周期電極直下から数 μm 程度内部までの領域にしか誘起されないこと、強電界領域は電極指幅より広範囲に分布しているため反転幅も電極指幅より大きくなる傾向が強いことがわかった。また、電極指幅／周期 ~ 0.3 の梯子電極が、反転幅／周期 $=0.5$ のデバイスに適した構造作製に有効であることを明らかにした。さらに、本研究で新たに提案した波板電極を用いた場合でも、グレーティング作製が可能であることがわか

った。

- 2) 電圧印加による LiNbO_3 分極反転が+Z側より起こることがわかった。また、分極反転グレーティングの均一性が LiNbO_3 結晶厚さに依存し、薄い結晶を用いた場合に、より均一性の高い構造が作製可能であることがわかった。
- 3) 実験的検討により、デバイスに適した分極反転構造の作製には、電極指幅を最適化した梯子電極よりも、本研究で提案した波板電極の方がより有効であることがわかった。
- 4) 電圧印加中に結晶に与える総電荷量を正確に“ $2 \times \text{自発分極} \times \text{目標反転面積}$ ”の値に制御することが、分極反転グレーティング作製において最も重要であることを明らかにした。さらに、反転領域の幅が周期の半分になる時間内に分極反転を完了させることが、グレーティング作製には重要であることがわかった。
- 5) これまでで最短周期である周期 $2\mu\text{m}$ の分極反転グレーティング、及び扇形分極反転グレーティングを、デバイスに適した構造で作製することが可能であることを示した。

第4章では、第3章で作製した分極反転グレーティングを用いた、緑色及び青色光発生用の LiNbO_3 導波路型QPM-SHGデバイスを作製し、SHG実験による評価を行った。

- 1) 波長 $1.064\mu\text{m}$ のNd:YAGレーザ光を用いた緑色光発生SHG実験において、相互作用長 3mm のデバイスにおいて規格化変換効率 $130\%/W$ を得た。
- 2) 発振波長可変のTi:Al₂O₃レーザ光を用いた青色光発生SHG実験において、相互作用長 3mm のデバイスにおいて規格化変換効率 $150\%/W$ 、相互作用長 10mm のデバイスでは規格化変換効率 $240\%/W$ を得た。これらの値は LiNbO_3 導波路型SHGデバイスでの最高値である。
- 3) 波長 $0.8\mu\text{m}$ 帯の半導体レーザを用いた青色光発生実験において、相互作用長 3mm のデバイスにおいて規格化変換効率 $70\%/W$ が得られた。
- 4) 相互作用長 3mm のデバイスでは、変換効率、ポンプ光波長受容幅、グレーティング周期誤差許容幅の値は理論値と実験値で同程度であり、第3章で確立した電圧印加分極反転法が高効率デバイス作製に適していること

がわかった。しかしながら長相互作用長のデバイスでは、まだ作製したグレーティング構造の均一性に問題があることもわかった。

第5章では、これまでほとんど検討されていなかった紫外光発生用 LiNbO_3 導波路型第2高調波発生デバイスについて、理論的・実験的な検討を行った。

- 1) 第2高調波に吸収損失がある場合のデバイス性能を理論解析した。相互作用長に最適値が存在すること、非線形結合係数の大きなデバイスでは吸収の影響を少なくできるため高効率変換も可能であることがわかった。
- 2) 導波路型1次QPM-SHGデバイスを作製し、 $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ レーザ光を用いた紫外光発生SHG実験を行った結果、周期 $2.0\mu\text{m}$ のグレーティングを持つデバイスより波長 383nm の紫外光が得られた。これは LiNbO_3 導波路型QPM-SHGデバイスで得られている最短波長の第2高調波である。また、相互作用長 3mm のデバイスにおいて規格化変換効率 $70\%/W$ が得られた。この値は、紫外光発生用 LiNbO_3 導波路型SHGデバイスとしては良好な値であり、本研究で確立した電圧印加分極反転法が、紫外光発生用デバイス作製においても有用であることが示された。

第6章では、分極反転グレーティングを用いた導波路型光第3高調波発生デバイスを提案し、理論的・実験的に行った検討について述べた。

- 1) 波長 $1.064\mu\text{m}$ のNd:YAGレーザ光用デバイスについて、SHGデバイスで得られている成果をもとにその特性を理論解析した。 100mW 程度のポンプ光より mW オーダの第3高調波が得られるデバイスが実現可能であることを明らかにした。
- 2) SHG部とSFG部を別基板上に作製したのち端面を直接結合してデバイスを作製し、Nd:YAGレーザ光を用いたTHG実験を行った結果、波長 355nm の紫外第3高調波が得られた。これは LiNbO_3 導波路型波長変換デバイスにおいて、これまで得られている最短波長の光である。

以上、本研究で得られた成果より、 LiNbO_3 を用いた短波長光発生用導波路型非線形光学波長変換デバイスによる小型短波長コヒーレント光源実現の見通しを得ることができた。しかし、実用化のためにはまだいくつかの課題が残されている。より高効率なデバイスを実現するためには、(1) 電圧印加分極

反転法で作製した分極反転グレーティング構造の長い相互作用長での均一性を改善する、(2) 光導波路作製条件をさらに最適化して導波路伝搬損失を低減するとともに、導波光モードプロファイルや導波モード間の重なりを改善する、等の課題がある。さらにプロトン交換／アニール導波路におけるSHG係数の低減や光損傷の問題などの検討課題もある。また、より安定動作可能なデバイスを実現するためには、デバイス温度の制御や光源の波長安定性の改善を行う必要がある。特に、導波路型THGデバイスの高効率化と動作安定化には、デバイス構成要素の集積化が最重要課題である。

本研究で確立した分極反転技術は、SHGデバイス等の短波長光発生用デバイスに限らず、2次非線形光学波長変換デバイスである差周波発生デバイスや光パラメトリック増幅／発振デバイスへの応用も可能であり、高効率デバイスの実現も期待できる。また、進行波形デバイスでは実現困難な超高効率デバイスの実現が期待できる共振器導波路型デバイス^{12),76)}への応用も可能であり、既に基礎検討も行われている^{77),78)}。さらに、通常のコヒーレント状態の光とは異なる量子状態をもつ光波であるスクイズド光を、導波路型SHGデバイスを用いて発生させることも検討されており^{79),80)}、本研究で確立した技術を応用することで、顕著なスクイジングが可能なデバイスを実現することも期待できる。以上のような非線形光学効果を利用したデバイスに留まらず、電気光学効果を利用したデバイス等への応用も可能であり、多くの光デバイスにおいて一層の進展が期待できる。

謝 辞

本研究を行うに際し、終始懇切な御指導、御鞭撻を賜った大阪大学大学院工学研究科西原浩教授に深甚なる感謝の意を表します。

論文作成にあたり、懇篤なる御指導を頂くとともに種々の御高配を賜った大阪大学大学院工学研究科吉野勝美教授、森田清三教授に深謝の意を表します。

さらに、著者が大阪大学に在学中、御指導と御鞭撻を賜った大阪大学大学院工学研究科浜口智尋教授、尾浦憲治郎教授、寺田浩詔教授、白川功教授、藤岡弘教授、大阪大学産業科学研究所溝口理一郎教授、大阪大学医学部春名正光教授、ならびに大阪大学裏克己名誉教授、児玉慎三名誉教授に深謝の意を表します。

本研究を行うに際し、終始一貫して御指導、御鞭撻、御討論を頂いた西原研究室栖原敏明助教授、藤村昌寿博士に深謝の意を表します。

本研究を行うに際し、有益なる御助言、御協力を頂いたNTT基礎研究所向井孝彰博士、町田進氏に感謝の意を表します。また、電圧印加による LiNbO_3 分極反転について御討論頂いた東北大学伊藤弘昌教授、スタンフォード大学Prof. M. M. Fejer、ソニー中央研究所山田正裕博士に感謝の意を表します。

高出力半導体レーザを提供して頂いた三洋電機半導体研究所山口隆夫博士、吉年慶一博士、DFB半導体レーザを提供して頂いたシャープ中央研究所瀧口治久博士に感謝の意を表します。

本研究を行うにあたって、終始有益なる御指導を頂いた西原研究室裏升吾博士に心から感謝致します。また、各過程において協力頂いた関井広行氏、白附晶英氏、満山照樹氏に感謝します。

本研究は、本部省科学研究費補助金特別研究員奨励費（平成8年度）、文部省科学研究費補助金試験研究(B)(2)、及び村田学術振興財団研究助成金の援助を受けた。

参考文献

- 1) M.A.Haase, J.Qiu, J.M.De Puydt, and H.Cheng : "Blue-green laser diodes," Appl. Phys. Lett., vol.59, pp.1272-1274 (1991).
- 2) N.Nakayama, S.Itoh, H.Okuyama, M.Ozawa, T.Ohata, K.Nakano, M.Ikeda, A.Ishibashi, and Y.Mori : "Continuous-wave operation of 489.9nm blue laser diode at room temperature," Electron. Lett., vol.29, pp.2194-2195 (1993).
- 3) S.Taniguchi, T.Hino, S.Itoh, N.Norikazu, A.Ishibashi, and M.Ikeda : "100h II-VI blue-green laser diode," Electron. Lett., vol.32, pp.552-553 (1996).
- 4) 奥山浩之, 石橋晃 : "ZnSe系発光素子の現状と将来," 応用物理, vol. 65, pp.687-696 (1996).
- 5) 中村修二 : "GaN系発光素子の現状と将来," 応用物理, vol.65, pp.676-686 (1996).
- 6) S.Nakamura, M.Senoh, S.Nagahama, N.Iwasa, T.Yamada, T.Matsushita, H.Kiyoku, and Y. Sugimoto : "InGaN multi-quantum-well-structure laser diodes with cleaved mirror cavity facets," Jpn. J. Appl. Phys., vol.35, pp.L74-L76 (1996).
- 7) J.A.Armstrong, N.Bloembergen, J.Ducuing, and P.S.Pershan : "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric," Phys. Rev., vol.127, pp.1918-1939 (1962).
- 8) Y.R.Shen : "The principles of nonlinear optics," John Wiley & Sons, Inc. (1984).
- 9) 西原浩, 春名正光, 栖原敏明 : "光集積回路," オーム社 (1985).
- 10) N.Uesugi, and T.Kimura : "Efficient second-harmonic generation in three dimensional LiNbO₃ optical waveguide", Appl. Phys. Lett., vol.29, pp.572-574 (1976).
- 11) W.Sohler, and H.Sushe : "Second-harmonic generation in Ti-diffused LiNbO₃ optical waveguides with 25% conversion efficiency," Appl. Phys. Lett., vol.33, pp.518-520 (1978).
- 12) R.Regener, and W.Sohler : "Efficient second-harmonic generation in Ti:LiNbO₃ channel waveguide resonators," J. Opt. Soc. Am. B, vol.5, pp.267-277 (1988).
- 13) M.De Micheli, J.Botineau, S.Neveu, P.Sibillot, D.B.Ostrowsky, and M.Papuchon : "Extension of second-harmonic phase-matching range in lithium niobate guides," Opt. Lett., vol.8, pp.116-118 (1983).
- 14) G.Tohmon, K.Yamamoto, and T.Taniuchi : "Blue light source using guided-wave

- frequency doubler with a diode laser," Proc. SPIE, 898, pp.70-75 (1988).
- 15) M.J.Li, M.De Michelli, Q.He, and D.B.Ostrowsky : "Cerenkov configuration second harmonic generation in proton-exchanged lithium niobate guides," IEEE J. Quantum Electron., vol.QE-26, pp.1384-1393 (1990).
 - 16) E.J.Lim, M.M.Fejer, R.L.Byer, and W.J.Kozlovsky : "Blue light generation by frequency doubling in periodically poled lithium niobate channel waveguide," Electron. Lett., vol.25, pp.731-732 (1989).
 - 17) Y.Ishigame, T.Suhara, and H.Nishihara : "LiNbO₃ waveguide second-harmonic generation device phase matched with a fan-out domain-inverted grating," Opt. Lett., vol.16, pp.375-377 (1991).
 - 18) W.Wang, M.M.Fejer, R.H.Hammond, M.R.Beasley, C.H.Ahn, M.L.Bortz, and T.Day : "Atomic absorption monitor for deposition process control of aluminum at 394 nm using frequency-doubled diode laser," Appl. Phys. Lett., vol.68, pp.729-731 (1996).
 - 19) J.Webjörn, F.Laurell, and G.Arvidsson : "Blue light generation by frequency doubling of laser diode light in a lithium niobate channel waveguide," IEEE Photon. Technol. Lett., vol.1, pp.316-318 (1989).
 - 20) M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara : "Ferroelectric-domain inversion induced by SiO₂ cladding for LiNbO₃ waveguide SHG," Electron. Lett., vol.27, pp.1207-1208 (1991).
 - 21) 藤村, 栖原, 西原 : "SiO₂装荷誘起分極反転を用いた擬似位相整合LiNbO₃導波形 SHGデバイス," 信学会論文誌C- I , vol.J75-C-I, pp.489-496 (1992).
 - 22) M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara : "LiNbO₃ waveguide SHG device with ferroelectric-domain-inverted grating formed by electron-beam scanning," Electron. Lett., vol.28, pp.721-722 (1992).
 - 23) M.Fujimura, K.Kintaka, T.Suhara, and H.Nishihara : "Blue light generation in LiNbO₃ waveguide SHG device with first order domain-inverted grating formed by EB scanning," Electron. Lett., vol.28, pp.1868-1869 (1992).
 - 24) M.Fujimura, K.Kintaka, T.Suhara, and H.Nishihara : "LiNbO₃ waveguide quasi-phase-matching second harmonic generation devices with ferroelectric-domain-inverted gratings formed by electron-beam scanning," IEEE/OSA J. Lightwave Technol., vol.LT-

- 11, pp.1360-1368 (1993).
- 25) M.Yamada, N.Nada, M.Saitoh, and K.Watanabe : "First-order quasi-phase matched LiNbO_3 waveguide periodically polled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation," *Appl.Phys.Lett.*, vol.62, pp.435-436 (1993).
 - 26) K. Kintaka, M. Fujimura, T. Suhara, and H. Nishihara : "High-efficiency LiNbO_3 waveguide second-harmonic generation devices with ferroelectric-domain-inverted gratings fabricated by applying voltage," *IEEE/OSA J. Lightwave Technol.*, vol.LT-14, pp.462-468 (1996).
 - 27) S.Matsumoto, E.J.Lim, H.M.Hertz, and M.M.Fejer : "Quasiphase-matched second harmonic generation of blue light in electrically periodically-poled lithium tantalate waveguides," *Electron. Lett.*, vol.27,pp.2040-2041 (1991).
 - 28) K.Mizuuchi, and K.Yamamoto : "Highly efficient quasi-phase-matched second-harmonic generation using a first-order periodically domain-inverted LiTaO_3 waveguide," *Appl. Phys. Lett.*, vol.60, pp.1283-1285 (1992).
 - 29) S.Kurimura, M.Miura, and I.Sawaki : "New method of $20\mu\text{m}$ -deep and $3.6\mu\text{m}$ -periodic domain-inversion for 1st-order quasi-phase matching SHG in LiTaO_3 waveguides," *Conf. on lasers and electro-optics (CLEO'92)*, CPD5, California (1992).
 - 30) K.Mizuuchi, K.Yamamoto, and H.Sato, : "Domain inversion in LiTaO_3 using proton exchange followed by heat treatment," *J. Appl. Phys.*,vol.75, pp.1311-1318 (1994).
 - 31) S. Yi, S. Shin, Y. Jin, and Y. Son : "Second-harmonic generation in a LiTaO_3 waveguide domain-inverted by proton exchange and masked heat treatment," *Appl. Phys. Lett.*, vol.68, pp.2493-2495 (1996).
 - 32) K.Mizuuchi, and K.Yamamoto : "Generation of 340-nm light by frequency doubling of a laser diode in bulk periodically poled LiTaO_3 ," *Opt. Lett.*, vol.21, pp.107-109 (1996).
 - 33) C.J.van der Poel, J.D.Bierlein, J.B.Brown, and S.Colak : "Efficient type I blue second-harmonic generation in periodically segmented KTiOPO_4 waveguides," *Appl. Phys. Lett.*, vol.57, pp.2074-2076 (1990).
 - 34) J.D.Bierlein : "Second order nonlinear optical processes in KTiOPO_4 waveguides," in D.B.Ostrowsky, and R.Reinisch, Eds., : "Guided wave nonlinear optics", Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1992).

- 35) D.Eger, M.Oron, M.Katz, and A.Zussman, : "Highly efficient blue light generation in KTiOPO_4 waveguides," *Appl. Phys. Lett.*, vol.64, pp.3208-3209 (1994).
- 36) D.S.Chemla, and J.Zyss, Eds., : "Nonlinear optical properties of organic molecules and crystals," London : Academic press (1987).
- 37) O.Sugihara, and K.Sasaki : "Phase-matched second-harmonic generation in a 2-methyl-4-nitroaniline single-crystal waveguide : Combined structure of grating couplers and four-layer waveguide," *J. Opt.Soc. Am. B*, vol.9, pp.104-107 (1992).
- 38) T.Suhara, T.Morimoto, and H.Nishihara : "Optical second-harmonic generation by quasi-phase matching in channel waveguide structure using organic molecular crystal," *IEEE Photon. Technol. Lett.*, vol.5, pp.934-937 (1993).
- 39) T.Suhara, and H.Nishihara : "Theoretical Analysis of waveguide second-harmonic generation phase matched with uniform and chirped gratings," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol.QE-26, pp.1265-1276 (1990).
- 40) S.Miyazawa : "Ferroelectric domain inversion in Ti-diffused LiNbO_3 optical waveguide," *J. Appl. Phys.*, vol.50, pp.4599-4603 (1979).
- 41) R.W.Keys, A.Loni, R.M.De La Rue, C.N.Ironside, J.H.Marsh, B.J.Luff, and P.D.Townsend : "Fabrication of domain reversed grating for SHG in LiNbO_3 by electron beam bombardment," *Electron. Lett.*, vol.26, pp.188-190 (1990).
- 42) M.Yamada, and K.Kishima : "Fabrication of periodically reversed domain structure for SHG in LiNbO_3 by direct electron beam lithography at room temperature," *Electron. Lett.*, vol.27, pp.828-829 (1991).
- 43) H.Ito, C.Takyu, and H.Inaba : "Fabrication of periodic domain grating in LiNbO_3 by electron beam writing for application of nonlinear optical processes," *Electron. Lett.*, vol.27, pp.1221-1222 (1991).
- 44) A.C.G.Nutt, V.Gopalan, and M.C.Gupta : "Domain inversion in LiNbO_3 using direct electron-beam writing," *Appl.Phys.Lett.*, vol.60, pp.2828-2830 (1992).
- 45) G.Janzen, H.Seibert, and W.Sohler : "Electric field induced ferroelectric microdomain inversion on X- and Y-cut lithium niobate," *Integrated Photonics Research (IPR'92)*, TuC2-1, New Orleans (1992).
- 46) 金高, 藤村, 栖原, 西原 : "電圧印加による LiNbO_3 SHGデバイス用分極反転グレ

- ーティングの作製," 信学会論文誌C-I, vol. J78-C-I, pp. 238-245 (1995).
- 47) W.K. Burns, W. McElhanon, and L. Goldberg : "Second Harmonic Generation in Field Poled, Quasi-Phase-Matched, Bulk LiNbO_3 ," IEEE Photon. Technol. Lett., vol.6, pp. 252-254 (1994).
 - 48) J. Webjörn, V. Pruneri, P.St.J. Russell, J.R.M. Barr, and D.C. Hanna : "Quasi-phase-matched blue light generation in bulk lithium niobate, electrically poled via periodic liquid electrodes," Electron. Lett., vol.30, pp. 894-895 (1994).
 - 49) L.E.Myers, R.C.Eckardt, M.M.Fejer, R.L.Byer, W.R.Bosenberg, and J.W.Pierce : "Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO_3 ," J. Opt. Soc. Am. B, vol.12, pp.2102-2116 (1995).
 - 50) E.A.J.Marcatili : "Dielectric rectangular waveguide and directional coupler for integrated optics," Bell Syst.Tech. J., vol.48, pp.2071-2102 (1969).
 - 51) J.L.Jackel, C.E.Rice, and J.J.Veselka : "Proton exchange for high-index waveguides in LiNbO_3 ," Appl. Phys. Lett., vol.41, pp.607-608 (1982).
 - 52) D.F.Clark, A.C.G.Nutt, K.K.Wong, P.J.R.Laybourn, and R.M.De La Rue : "Characterization of proton-exchange slab optical waveguides in z-cut LiNbO_3 ," J. Appl. Phys., vol.54, pp.6218-6220 (1983).
 - 53) P.G.Suchoski, T.K.Findakly, and F.J.Leonberger : "Stable low-loss proton-exchanged LiNbO_3 waveguide devices with no electro-optic degradation," Opt. Lett., vol.13, pp.1050-1052 (1988).
 - 54) F.T. Arecchi, and E.O. Schulz-dubois, Eds. : "Laser Handbook," Amsterdam : North-Holland Publishing Co. (1972).
 - 55) S. Helmfrid, and G. Arvidsson : "Second-harmonic generation in quasi-phase-matching waveguides with a multimode pump," J.Opt. Soc. Am. B, vol. 8, pp. 2326-2330 (1991).
 - 56) I.Camlibel : "Spontaneous polarization measurements in several ferroelectric oxides using pulsed-field method," J. Appl. Phys, vol.40, pp.1690-1693 (1969).
 - 57) 佐脇, 三浦, 栗村 : " LiTaO_3 への深い周期的分極反転の作製(II) — 直接電界印加法 —," 平成4年秋季応物講演会 18a-X-2 (1992).
 - 58) 大橋, 田久, 佐藤, 伊藤 : "絶縁油中電界印加による周期ドメイン反転構造," 平成

- 6年春季応物講演会, 29p-E-14 (1994).
- 59) S.Zhu, Y.Zhu, Z.Zhang, H.Shu, H.Wang, and N.Ming : "LiTaO₃ crystal periodically poled by applying an external pulsed field," J. Appl. Phys., vol.77, pp.5481-5483 (1995).
 - 60) Q. Chen, and W.P. Risk : "Periodic poling of KTiOPO₄ using an applied electric field," Electron. Lett., vol.30, pp. 1516-1517 (1994).
 - 61) W.F. Ames : "Numerical Methods for Partial Differential Equations," New York : Academic Press (1977).
 - 62) 戸川 : "マトリクスの数値計算," オーム社 (1971).
 - 63) K.Nassau, H.J.Levinstein, and G.M.Loiacono : "Ferroelectric lithium niobate. 1.growth, domain structure, dislocations and etching," J. Phys. Chem. Solids, vol.27, pp.983-988 (1966).
 - 64) N.Niizeki, T.Yamada, and H.Toyoda : "Growth ridges, etched hillocks, and crystal structure of lithium niobate," Jap. J. Appl. Phys., vol.6, pp.318-327 (1967).
 - 65) A.Savage : "Pyroelectricity and Spontaneous Polarization in LiNbO₃," J. Appl. Phys., vol.37, pp.3071-3072 (1966).
 - 66) 佐藤, 大橋, 川瀬, 田久, 伊藤, 櫛引, 中鉢 : "強誘電体非線形光学結晶における周期ドメイン反転構造の観察と評価," 信学会光エレクトロニクス研究会資料, OQE93-147 (1993).
 - 67) R.Regener, and W.Sohler : "Loss in low-finesse Ti:LiNbO₃ optical waveguide resonators," Appl. Phys. B, vol.36, pp.143-147 (1985).
 - 68) I. Shoji, A. Kitamoto, M.Shirane, T. Kondo, and R. Ito : "Absolute scale of the second-order nonlinear optical coefficients," OSA Summer Topical Meetings, Nonlinear Optics : Materials, Fundamentals, and Applications, NME29, Maui (1996).
 - 69) T.Suhara, H.Tazaki, and H.Nishihara : "Measurement of reduction in SHG coefficient of LiNbO₃ by proton exchanging", Electron. Lett., vol.25, pp.1326-1328 (1989).
 - 70) M.L.Bortz, and M.M.Fejer : "Measurement of the second-order nonlinear susceptibility of proton-exchanged LiNbO₃," Opt. Lett., vol.17, pp.704-706 (1992).
 - 71) F.Laurell, M.G.Roelofs, and H.Hsiung : "Loss of optical nonlinearity in proton-exchanged LiNbO₃ waveguides," Appl. Phys. Lett., vol.60, pp.301-303 (1992).

- 72) R.W.Keys, A.Loni, and R.M.De La Rue : "Measurement of the increase in the SHG coefficient of proton exchanged LiNbO_3 after annealing using a grating diffraction technique," *Electron. Lett.*, vol.26, pp.624-626 (1990).
- 73) X. Cao, R. Srivastava, R.V. Ramaswamy, and J. Natour : "Recovery of second-order optical nonlinearity in annealed proton-exchanged LiNbO_3 ", *IEEE Photon. Technol. Lett.*, vol.3, pp. 25-27 (1991).
- 74) M.L.Bortz, L.A.Eyres, and M.M.Fejer : "Depth profiling of the d_{33} nonlinear coefficient in annealed proton exchanged LiNbO_3 waveguide," *Appl. Phys. Lett.*, vol.62, pp.2012-2014 (1993).
- 75) S.Kase, and K.Ohi : " Optical absorption and interband faraday rotation in LiTaO_3 and LiNbO_3 ," *Ferroelectrics*, vol.8, pp.419-420 (1974).
- 76) M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara : "Theoretical analysis of resonant waveguide optical second harmonic generation devices," *IEEE/OSA J. Lightwave Technol.*, vol.14, pp.1899-1906 (1996).
- 77) M. Fujimura, M. Sudoh, K. Kintaka, T. Suhara, and H. Nishihara : "Enhancement of SHG efficiency in periodically poled LiNbO_3 waveguide utilising a resonance effect," *Electron. Lett.*, vol.32, pp.1283-1284 (1996).
- 78) M.Fujimura, M.Sudoh, K.Kintaka, T.Suhara, and H.Nishihara : "Resonant waveguide quasi-phase-matched SHG devices with electrooptic phase-modulator for tuning," to be published in *IEEE J. Selected Topics in Quantum Electron.* (Dec. 1996).
- 79) T.Suhara, M.Fujimura, K.Kintaka, H.Nishihara, P.Kürz, and T.Mukai : "Theoretical analysis of squeezed light generation by second-harmonic generation," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol.QE-32, pp.690-700 (1996).
- 80) D.K.Serkland, P.Kumar, M.A.Arборе, and M.M.Fejer : "Squeezing by means of traveling-wave second-harmonic generation in a quasi-phasematched lithium niobate waveguide," *OSA Annual Meet., ThNN8*, New York (1996).

関連発表文献

[論文, レター]

- 1) M.Fujimura, K.Kintaka, T.Suhara, and H.Nishihara : "Blue light generation in LiNbO_3 waveguide SHG device with first order domain-inverted grating formed by EB scanning," Electron. Lett., vol.28, No.20, pp.1868-1869 (Sept. 1992).
- 2) M.Fujimura, K.Kintaka, T.Suhara, and H.Nishihara : " LiNbO_3 waveguide quasi-phase-matching second harmonic generation devices with ferroelectric-domain-inverted gratings formed by electron-beam scanning," IEEE/OSA J. Lightwave Technol., vol.LT-11, No.8, pp.1360-1368 (Aug. 1993).
- 3) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "電圧印加による LiNbO_3 SHGデバイス用分極反転グレーティングの作製," 信学会論文誌C-I, vol. J78-C-I, No.5, pp. 238-245 (1995-05).
- 4) K.Kintaka, M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara : "High-efficiency LiNbO_3 waveguide second-harmonic generation devices with ferroelectric-domain-inverted gratings fabricated by applying voltage," IEEE/OSA J. Lightwave Technol., vol.LT-14, No.3, pp.462-468 (March 1996).
- 5) T.Suhara, M.Fujimura, K.Kintaka, H.Nishihara, P.Kürz, and T.Mukai : "Theoretical analysis of squeezed light generation by second-harmonic generation," IEEE J. Quantum Electron., vol.QE-32, No.4, pp.690-700 (April 1996).
- 6) M.Fujimura, M.Sudoh, K.Kintaka, T.Suhara, and H.Nishihara : "Enhancement of SHG efficiency in periodically poled LiNbO_3 waveguide utilising a resonance effect," Electron. Lett., vol.32, No.14, pp.1283-1284 (July. 1996).
- 7) K.Kintaka, M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara : "Efficient ultraviolet light generation by LiNbO_3 waveguide 1st-order quasi-phase-matched second-harmonic generation devices," to be published in Electron. Lett..
- 8) M.Fujimura, M.Sudoh, K.Kintaka, T.Suhara, and H.Nishihara : "Resonant waveguide quasi-phase-matched SHG devices with electrooptic phase-modulator for tuning," to be published in IEEE J. Selected Topics in Quantum Electron..

[国際会議]

- 1) K.Kintaka, M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara : "LiNbO₃ waveguide SHG devices with ferroelectric-domain-inverted gratings fabricated by applying voltage," The Pacific Rim Conf. on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Pacific Rim'95), FE4, Chiba, (July 1995).
- 2) M.Fujimura, M.Sudoh, K.Kintaka, T.Suhara, and H.Nishihara : "Resonant quasi-phase-matched second harmonic generation in LiNbO₃ waveguide," Fifth Microoptics Conference (MOC'95), L-5, Hiroshima, (Oct. 1995).
- 3) M.Fujimura, M.Sudoh, K.Kintaka, T.Suhara, and H.Nishihara : "Demonstration of efficient SHG in periodically poled LiNbO₃ waveguide by resonance effect," Topical Meeting: Advanced Solid State Lasers, PDP-19, San Francisco, (Jan. 1996).
- 4) K.Kintaka, M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara : "Efficient ultraviolet light generation by LiNbO₃ waveguide quasi-phase-matched second-harmonic generation devices," OSA Summer Topical Meetings, Nonlinear Optics : Materials, Fundamentals, and Applications, NMC2, Maui, (July 1996).

[研究会]

- 1) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "電圧印加によるLiNbO₃SHGデバイス用分極反転グレーティングの作製," 信学会レーザ・量子エレクトロニクス研究会資料, LQE94-48 (1994-10).
- 2) 藤村昌寿, 須藤正明, 金高健二, 栖原敏明, 西原浩 : "共振器型LiNbO₃導波路擬似位相整合光第2高調波発生デバイスの検討," 信学会レーザ・量子エレクトロニクス研究会資料, LQE95-95 (1995-11).

[学会発表]

- 1) 藤村昌寿, 金高健二, 栖原敏明, 西原浩 : "EB走査LiNbO₃分極反転を用いた青色光発生用導波路SHGデバイス," 平成4年秋季応物講演会, 18a-X-6 (1992-09).
- 2) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "電圧印加によるLiNbO₃SHGデバイス用分極反転グレーティング作製," 平成5年春季応物講演会, 29a-SA-8 (1993-03).
- 3) 藤村昌寿, 金高健二, 栖原敏明, 西原浩 : "EB走査LiNbO₃分極反転を用いた導波

- 路SHGデバイスでのLD光SHG," 平成5年春季応物講演会, 29a-SA-9 (1993-03).
- 4) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "電圧印加による LiNbO_3 SHGデバイス用最適分極反転グレーティングの作製," 平成5年電気関係学会関西支部連合大会, G11-8 (1993-11).
 - 5) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "電圧印加による LiNbO_3 SHG素子用最適分極反転グレーティング作製の検討," 平成6年春季応物講演会, 28p-G-1 (1994-03).
 - 6) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "導波路SHG用電圧印加作製 LiNbO_3 分極反転グレーティングの断面構造," 平成6年秋季応物講演会, 22p-R-6 (1994-09).
 - 7) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "電圧印加による LiNbO_3 分極反転を用いた擬似位相整合導波路SHGデバイス," 平成7年春季応物講演会, 28p-ZF-6 (1995-03).
 - 8) 須藤正明, 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "共振器型 LiNbO_3 導波路擬似位相整合SHGデバイスの実験," 平成7年春季応物講演会, 28p-ZF-7 (1995-03).
 - 9) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : " LiNbO_3 導波路擬似位相整合SHGデバイスによる紫外光発生," 平成7年秋季応物講演会, 27a-SQ-17 (1995-08).
 - 10) 藤村昌寿, 須藤正明, 金高健二, 栖原敏明, 西原浩 : "共振型 LiNbO_3 導波路QPM-SHGデバイスにおける高効率波長変換," 平成8年春季応物講演会, 26p-D-4 (1996-03).
 - 11) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "紫外光発生用 LiNbO_3 導波路1次擬似位相整合SHGデバイス," 平成8年春季応物講演会, 26p-D-5 (1996-03).
 - 12) 藤村昌寿, 須藤正明, 金高健二, 栖原敏明, 西原浩 : "同調用位相変調器付共振型 LiNbO_3 導波路QPM-SHGデバイス," 平成8年秋季応物講演会, 8p-KG-6 (1996-09).
 - 13) 金高健二, 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : " LiNbO_3 導波路SHG-SFGデバイスによるNd:YAGレーザー光の第3高調波発生," 平成8年秋季応物講演会, 8p-KG-9 (1996-09).
 - 14) 藤村, 金高, 栖原, 西原 : "導波型非線形光学波長変換デバイス," 平成8年電気関係学会関西支部連合大会, S6-5 (1996-11).