OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Mg添加LiNbO3系材料における周期分極反転構造のサブミクロン制御とその応用
Author(s)	森川, 顕洋
Citation	大阪大学, 2015, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/53980
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

博士学位論文

Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料における周期分極反転構造のサブミクロン制御とその応用

森川　顕洋

2015 年 6 月

大阪大学大学院工学研究科

目次

第1章　序論　1

1.1　はじめに　1

1.2　本研究の背景　2

1.3　本研究の目的と意義　4

1.4　本論文の構成　5

参考文献　8

第2章　Mg 添加 $LiNbO_3$ の分極反転メカニズムと厚板多重パルス電界印加法の提案　9

2.1　はじめに　9

2.2　擬似位相整合 SHG デバイスを実現する周期分極反転形成技術　9

2.2.1　擬似位相整合の特徴と原理　10

2.2.2　バルク型分極反転の特長　12

2.3　非線形光学材料の選択　13

2.4　Mg 添加 $LiNbO_3$ に要求される周期分極反転構造　15

2.5　Mg 添加 $LiNbO_3$ の分極反転メカニズム　19

2.6　厚板多重パルス電界印加法の提案　29

2.7　まとめ　32

参考文献　33

第3章　周期分極反転構造の形成　34

3.1　はじめに　34

3.2　周期構造不均一化の仮説と検証　35

3.3　発熱の空間的・時間的制御と電界集中の抑制　38

3.3.1　掘り込み電極による発熱の空間的制御　38

3.3.2　発熱制御パルスによる発熱の時間的制御　40

3.3.2.1　発熱制御パルス波形のパルス幅　43

3.3.2.2　発熱制御パルス波形のパルス間隔　44

3.3.3　裏面電極パターン形成による電界集中の抑制　45

3.4　周期分極反転構造の大面積均一化　48

3.4.1　緑色光発生用周期分極反転（周期 6.3～8.4μm）　48

3.4.2　青緑色光発生用周期分極反転（周期 5.4μm）　50

3.4.3　青色光発生用周期分極反転（周期 4.2～4.3μm）　52
3.4.4　紫外光発生用周期分極反転（周期 1.78μm）　53
3.5　定比組成材料への周期分極反転構造形成　55
3.5.1　Mg 添加定比組成 $LiNbO_3$ への周期分極反転構造形成　55
3.5.2　Mg 添加定比組成 $LiTaO_3$ への周期分極反転構造形成　60
3.6　まとめ　63
参考文献　65

第4章　周期分極反転 SHG デバイスを用いた第二高調波発生　67
4.1　はじめに　67
4.2　高効率紫外光発生　67
4.3　高効率青色光発生　73
4.4　高効率緑色光発生　77
4.4.1　緑色光発生　77
4.4.2　緑色光の高効率化　80
4.5　高出力緑色光発生　84
4.6　まとめ　86
参考文献　87

第5章　緑色 SHG レーザーの応用　88
5.1　はじめに　88
5.2　小型レーザープロジェクターへの応用　89
5.2.1　内部共振器型緑色レーザーモジュールの作製　89
5.2.2　ノートパソコン搭載レーザープロジェクターへの応用　93
5.3　レーザーリアプロジェクション TV への応用　98
5.3.1　シングルパス型緑色レーザーモジュールの作製　98
5.3.2　大画面レーザーリアプロジェクション TV への応用　100
5.4　レーザー加工への応用　104
5.4.1　高出力緑色レーザー光源の作製　104
5.4.2　赤外光と緑色光のハイブリッドレーザー加工の提案　109
5.5　まとめ　111
参考文献　112

第6章　結論　113
6.1　本研究の成果　113

6.2　波及効果と今後の展望 116

謝辞 117

本論文に関する主要業績 119
発表論文 119
国際会議発表 121
国内学会・研究会発表 123
日本特許（登録） 125
日本特許（公開） 126
外国特許（登録） 127

本論文に関する受賞 129

第 1 章　序論

1.1　はじめに

近年、ディスプレイ、加工、医療、計測など、多くの分野で高出力レーザー光源が要望されている[1)]。可視光域のレーザーは応用範囲が広いため、小型化、軽量化が可能な半導体レーザーを中心に開発が進められてきた。特に赤色、青色の波長域では DVD、ブルーレイディスクなどの光ディスク分野を中心に商品展開されている。一方、緑色波長域では直接発振が可能な固体レーザー、半導体レーザーともに高出力化できておらず、非線形光学結晶を用いた第二高調波発生（Second Harmonic Generation：SHG）が主流となっている。

本論文は、著者がパナソニック株式会社（旧 松下電器産業株式会社）において 1999 年から参画した研究開発活動によって、紫外光～可視光の広範囲にわたり波長変換可能な Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料における分極反転形成メカニズムの解明と高効率波長変換に必要不可欠な周期分極反転構造をサブミクロンオーダーで制御する方法を提案し、高効率・高出力波長変換レーザー光源を開発することによって、レーザーディスプレイ、レーザー加工に応用展開した研究開発成果をまとめたものである。

1.2　本研究の背景

近年、無線通信における周波数の有効利用、情報化社会へ向けた超高速通信に対応するための技術的要請が非常に強くなってきている。 そのため光情報処理、光通信、光計測などの幅広い分野において、広い波長にわたる小型で高効率なコヒーレント光源が強く望まれている。そのような背景の下、小型･軽量という特長を持つ半導体レーザーの発展にはめざましいものがあり、発振が確認された半導体材料は 50 種類をこえ、発振波長は 0.33μm~32μm におよんでいる。 身近ではコンパクトディスク、ミニディスク、レーザーディスク、ブルーレイディスクに代表される光ピックアップ用レーザー、光通信に使用される送信用レーザーなどに半導体レーザーが活用されている。 このように電波や光波の領域では、光源および伝送路、送受信技術の確立により技術面、応用面ともに成熟し、それらの周波数帯は近年の高度情報化社会の発展に大きく貢献している。

しかし、波長 0.57μm 以下は半導体レーザーによる直接発振は極めて困難であり、2000 年以降になって GaN 系青色半導体レーザーが実用化されることでブルーレイディスクが商品展開された。

紫外～緑色の短波長域において半導体レーザーに代わるもう一つの手段として、非線形光学効果を用いた波長変換技術がある。これは、1961 年に P.A.Franken らによって行われた SHG 実験[2)]に始まり、現在に至るまで盛んに研究開発が続けられており、注目されている。また、波長変換の中で 1962 年に J.A.Armstrong らによって提唱された擬似位相整合（Quasi Phase Matching : QPM、以下 QPM と略す）[3)]は、非線形グレーティング周期を選ぶことで任意の波長におけるノンクリティカル位相整合による相互作用長の増大が可能であり、波長変換素子の非線形光学定数の最大テンソル成分 d_{33} を利用することができるため、高効率な波長変換技術として期待された。しかし、擬似位相整合を実現するには非線形光学結晶の内部に数μm～数十

μm の周期構造（非線形グレーティング）を均一形成しなければならず、技術開発が大きな障壁となり、実用化に及んでいなかった。

1980 年後半に入って、赤外半導体レーザーの高出力化により、QPM-SHG デバイスは強い要望を受けて研究開発が活発となった。これにより、共振器、光導波路を用いた QPM-SHG デバイスによる緑色光、青色光の発生が報告され [4,5]、QPM-SHG による波長変換技術は実用化に向けて前進した。QPM-SHG 材料としては $LiNbO_3$（LN）、$LiTaO_3$（LT）、$KTiOPO_4$（KTP）などの強誘電体材料が主に用いられた。特に、LN は可視領域の透過性と高い非線形光学定数 d_{33} を持っており、50mm 長の周期分極反転 $LiNbO_3$（Periodically Poled $LiNbO_3$：PPLN、以下 PPLN と略す）を用いた Nd:YAG レーザーの波長変換による CW2.7W 緑色光発生 [6]、および 61mW 青色光発生 [7]が報告されている。しかしながら、PPLN による短波長光発生では、緑色光により誘起される赤外吸収 [8]、あるいは光損傷による出力不安定などの問題があった。そのため、高温動作（200～300℃）[6,7]による問題解決が図られたが、安定な高出力特性が得られていないのが現状である。

上述した課題を解決するための手法として、QPM-SHG デバイスの主流であった LN、LT に添加物、特に Mg を添加した材料が注目され、それらの材料を用いた分極反転形成技術と QPM-SHG デバイスの研究開発が盛んとなり、新しい段階に入ってきている。

その中でもとりわけ Mg 添加 $LiNbO_3$(MgLN)は非線形定数が大きく [9]、短波長（～320nm）まで透過し、高い耐光損傷強度を有する [10]、優れた非線形光学材料である。さらに、分極反転閾値電界（抗電界）が低いため [11]、低電圧での分極反転形成が可能である。1996 年に水内らは電界印加法による周期分極反転 Mg 添加 $LiNbO_3$（Periodically Poled Mg-doped $LiNbO_3$：PPMgLN）の作製に初めて成功し、青色光発生を実現している [12]。

しかしながら、MgLN は LN や LT に比べて分極反転成長を正確に制御することが難しく、パターン電極を利用した通常の電界印加方法での最短周期は 3.7μm[12]、コロナポーリングを用いた場合でも 4.8μm程度 [13]であり、MgLN のサブミクロンオーダーの分極反転制御は極めて困

難で MgLN を用いた高効率、高出力の紫外光、可視光発生およびレーザー光源の実用化はなされていなかった。

1.3　本研究の目的と意義

前節で述べたブルーレイディスク用青色レーザー光源に代表されるように紫外～可視波長域で民生および産業用途の小型・高効率のレーザー光源が要望されている。求められる仕様としては小型・高効率以外にも高出力、低コスト、高い歩留まり、高い生産性、量産性などが挙げられる。それらを実現する一つの手段として、筆者らは非線形光学効果を用いた波長変換（特に、第二高調波発生）を用いたレーザー光源、波長変換デバイスの開発が有効であると考えた。

本研究の目的は、非線形光学材料として高いポテンシャルを有する Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料における分極反転形成を制御し、高効率かつ高出力に波長変換可能な QPM-SHG デバイスを開発し、実用化に繋げることである。それは、Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料の分極反転メカニズムを解明し、周期分極反転構造をサブミクロンオーダーで制御することにより達成される。さらに、新たに提案する微細分極反転形成技術を用いて、レーザーディスプレイ、レーザープロジェクターをはじめとする民生製品、医療、バイオ、加工用途に代表される産業機器に応用展開することを最終目標としている。本研究開発の成果により、レーザーディスプレイの普及が加速するとともに、映像、自動車、医療、加工、計測、計量、農業、水産業、エンターテイメント、などの分野への新規事業貢献が期待される。

1.4　本論文の構成

本論文は、以下の 6 つの章より構成されており、図 1.1 に章構成を示す。第 1 章（本章）は序論である。本研究の背景と目的を述べ、研究成果が得られることによる波及効果を明示している。また、本研究論文の章立てと全体構成を明確化している。

第 2 章は本研究のベースとなる Mg 添加 $LiNbO_3$ の分極反転メカニズムと厚板多重パルス電界印加法の提案を述べる。導波路型とバルク型の周期分極反転構造の特徴について述べ、続いて高効率波長変換に必要な非線形光学材料を非線形光学定数（性能指数）から Mg 添加 $LiNbO_3$ を選定した点について論じている。さらに、Mg 添加 $LiNbO_3$ の分極反転メカニズムについて分析・解明し、周期分極反転構造の不均一形成の課題抽出と原因分析によりサブミクロンオーダーの分極反転制御ができる厚板多重パルス電界印加法を提案する。

第 3 章は周期分極反転構造の形成について述べる。厚板多重パルス電界印加法に分極反転形成時の発熱を空間的に制御する掘り込み電極と時間的に制御する発熱制御パルス波形を適用し、さらに配線電極端部の電界集中による過剰成長を抑制する裏面電極パターンを加えることでサブミクロンオーダーの周期分極反転構造の大面積均一化が実現され、これらの取り組みにより得られた周期分極反転構造を評価検証する。

第 4 章は周期分極反転 SHG デバイスを用いた第二高調波発生について述べる。周期分極反転構造が大面積で均一化された SHG デバイスを用いて紫外光、青色光、緑色光の高効率波長変換、高出力波長変換を実証する。

第 5 章は周期分極反転 SHG デバイスの応用について述べる。超小型緑色レーザーモジュールを試作し、ノートパソコン搭載レーザープロジェクターの開発成果について論じる。また、シングルパス型緑色レーザーモジュールを試作し、赤色・青色半導体レーザーと組み合わせることで 61 インチのレーザーリアプロジェクション TV を開発し、レーザーディスプレイの特

長である広範囲の色再現性、低消費電力化を実証する。さらに、高出力緑色レーザー光源を開発し、本光源を用いて赤外光、緑色光の二波長同一点集光を確認し、赤外光と緑色光のハイブリッドレーザー加工などの新たな微細加工方式を提案する。

第 6 章は本研究で得られた成果の総括をおこない、今後の SHG デバイスを用いたレーザーアプリケーションの展望について述べる。

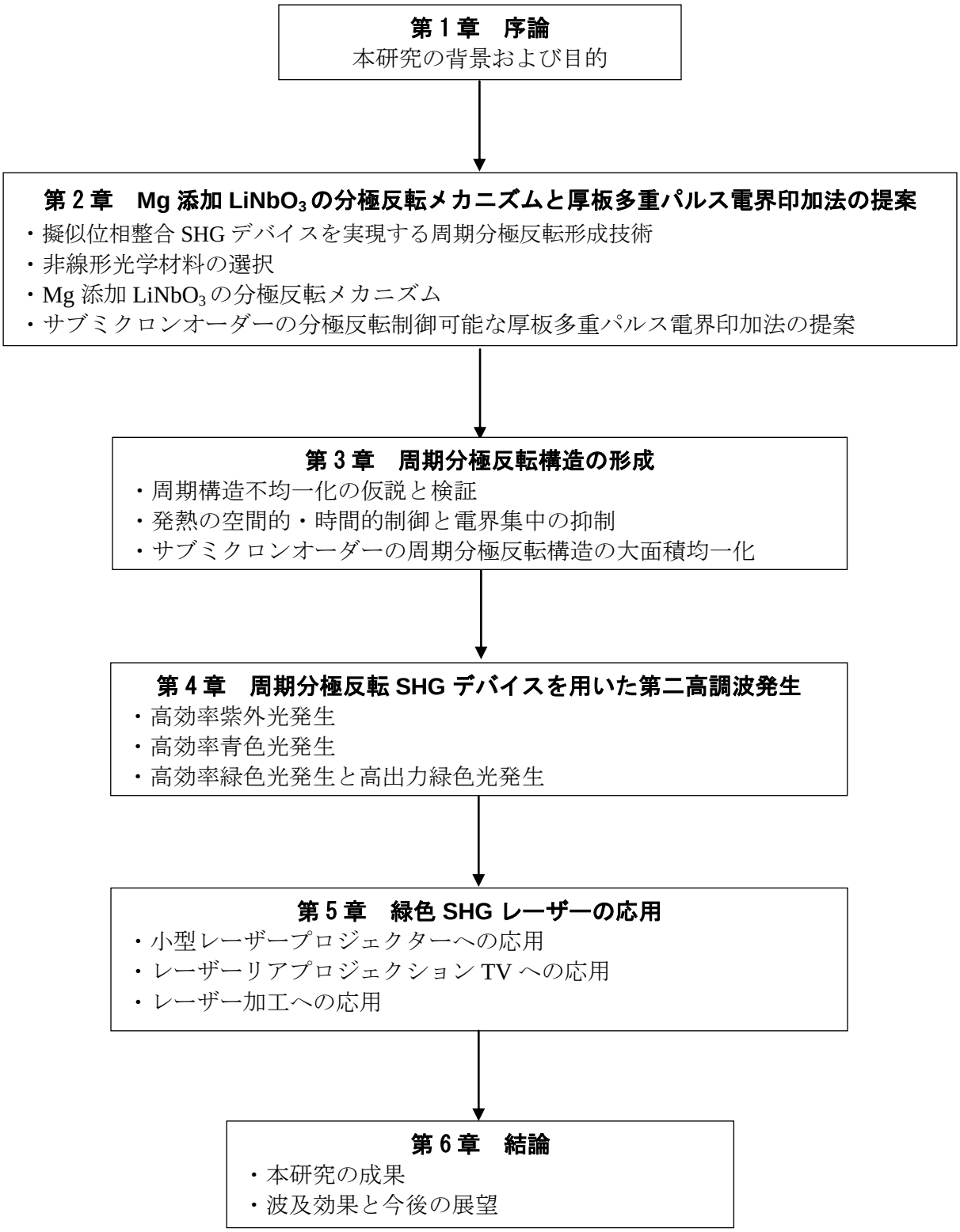

第 1 章　序論
本研究の背景および目的
第 2 章　Mg 添加 LiNbO3 の分極反転メカニズムと厚板多重パルス電界印加法の提案
・擬似位相整合 SHG デバイスを実現する周期分極反転形成技術
・非線形光学材料の選択
・Mg 添加 LiNbO3 の分極反転メカニズム
・サブミクロンオーダーの分極反転制御可能な厚板多重パルス電界印加法の提案
第 3 章　周期分極反転構造の形成
・周期構造不均一化の仮説と検証
・発熱の空間的・時間的制御と電界集中の抑制
・サブミクロンオーダーの周期分極反転構造の大面積均一化
第 4 章　周期分極反転 SHG デバイスを用いた第二高調波発生
・高効率紫外光発生
・高効率青色光発生
・高効率緑色光発生と高出力緑色光発生
第 5 章　緑色 SHG レーザーの応用
・小型レーザープロジェクターへの応用
・レーザーリアプロジェクション TV への応用
・レーザー加工への応用
第 6 章　結論
・本研究の成果
・波及効果と今後の展望

図 1.1　本論文の構成

参考文献

1）レーザー照明・レーザーディスプレイ最新動向調査報告書 完成版、株式会社オプトロニクス社 （2015）.

2) P.A.Franken, A.E.Hill, C.W.Peters, and G.Weinreich: Phys.Rev.Lett.7 (1961) 118.

3) J.A.Armstrong, N.Bloembergen, J.Ducuing, and P.S.Pershan: Phys. Rev.127 (1962) 1918.

4) W.J.Kozlovsky, C.D.Nabors, and R.L.Byer: IEEE J.Quantam Electron. QE-24.16 (1988) 913.

5) 谷内哲夫、山本和久：応用物理、56 (1987) 1637.

6) G.D.Miller, R.G.Batchko, W.M.Tulloch, D.R.Weise, M.M.Fejer, and R.L.Byer: Opt.Lett.22 (1997) 1834.

7) R.G.Batchko, M.M.Fejer, R.L.Byer, D.Woll, R.Wallenstein, V.Y.Shur, L.Erman: Opt.Lett.24 (1999) 1293.

8) R.G.Batchko, G.D.Miller, A.Alexandrovski, M.M.Fejer, and R.L.Byer:1998 OSA Technical Digest Series 12(1998) 75.

9) W.J.Kozlovsky, E.K.Gustafson, R.C.Eckardt, and R.L.Byer: Opt.Lett.13 (1988) 1102.

10) Y.Furukawa, K.Kitamura, S.Takekawa, K.Niwa, and H.Hatano: Opt.Lett.23 (1998) 1892.

11) A.Kuroda, S.Kurimura and, Y.Uesu: Appl.Phys.Lett.69 (1996) 1565.

12) K.Mizuuchi, K.Yamamoto, and M.Kato: Electron.Lett.32 (1996) 2091.

13) A.Harada, Y.Nihei, Y.Okazaki, and H.Hyuga: Opt.Lett.22 (1997) 805.

第 2 章　Mg 添加 $LiNbO_3$ の分極反転メカニズムと厚板多重パルス電界印加法の提案

2.1　はじめに

本章では、擬似位相整合の特徴と原理を述べ、擬似位相整合 SHG デバイスを実現する周期分極反転の主要な二方式を説明し、その特徴を述べる。さらに、非線形光学材料の性能を比較し、数ある非線形光学材料の中で Mg 添加 $LiNbO_3$（MgLN）を選択した理由を述べ、MgLN の特異な分極反転形成メカニズムから引き起こされる不均一形成のメカニズムを分析、解明し、新たに厚板 MgLN を用いた多重パルス電界印加法を提案する。

2.2　擬似位相整合 SHG デバイスを実現する周期分極反転形成技術

波長変換型レーザーは、波長 λ_1 の基本波を非線形光学効果により、波長 $\lambda_1/2$ の第二高調波に変換する。これを第二高調波発生（Second Harmonic Generation：SHG）と呼び、図 2.1 で原理を説明する。

非線形光学材料にレーザー光を入射すると、透過した光波は歪む。この歪んだ光波は入射光以外に、入射光の高調波成分（入射光波長の 1/2 波長、1/3 波長・・・となる成分）が含まれる。この歪み成分の中で、第二高調波を効率よく取り出すことで SHG 光が得られる。

SHG の高効率化には、高い非線形性を有する材料と、その材料において位相整合条件を成

立させることが必要である。高い非線形性を持つ材料とは、結晶内での光波の歪みが大きい材料のことで、結晶構造に依存するため、人工的に操作することは難しい。

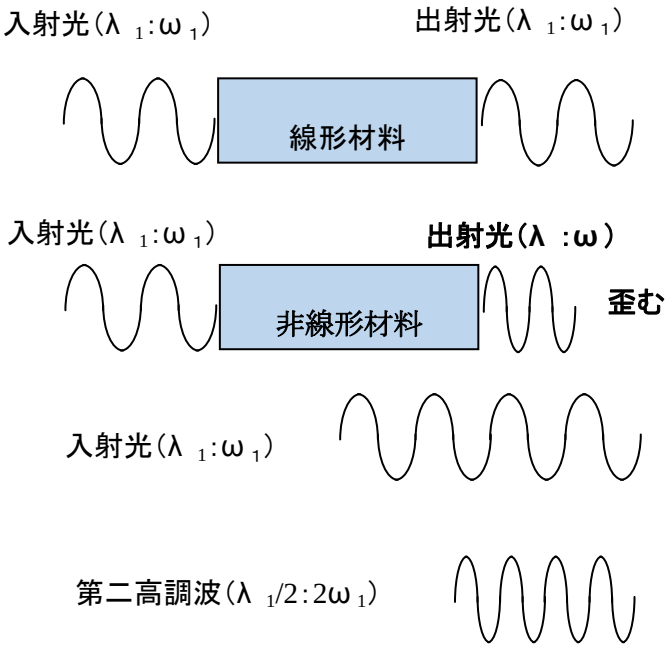


図 2.1　非線形光学材料による入射光の歪み

2.2.1　擬似位相整合の特徴と原理

位相整合とは、結晶内での波長 λ_1 の基本波と波長 $\lambda_1/2$ の SHG 光の位相速度を一致させることである。波長の異なる光波の位相速度を一致させるには、複屈折率位相整合方法と擬似位相整合方法とがある。

複屈折率位相整合方法とは、結晶の複屈折を利用し、基本波と SHG 光の位相整合速度を一致させる方法であるが、紫外領域での位相整合は困難である。材料の複屈折性もまた非線形光

学定数と同様に人工的に操作することができないため、複屈折を利用し、紫外領域で位相整合条件を満たす高非線形性材料は現在のところ存在しない。

擬似位相整合方法（Quasi-Phase Matching：以下、QPM）は、1962 年に J.A.Armstrong らによって提唱され [1)]、結晶に周期分極反転を形成することにより基本波と SHG 光の位相不整合差を補償する方法である。QPM は、次のような利点が挙げられる。

1）複屈折の小さな材料でも使用可能である

2）非線形光学係数の最大テンソル成分を利用できる

3）分極反転の周期を変えることにより所望の波長を選択的に発生できる

QPM には図 2.2 に示したように結晶の分極方向を周期的に反転した周期分極反転の形成が必要となる。光波の歪みは結晶軸方向に依存するため歪み方向を周期的に制御することで周期分極反転を構成する。

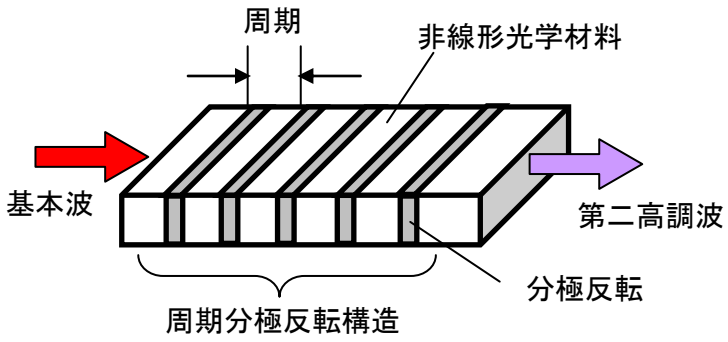


図 2.2　QPM による第二高調波発生

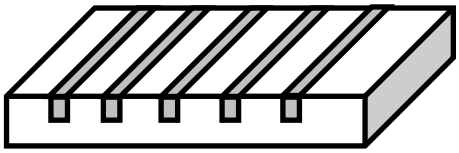
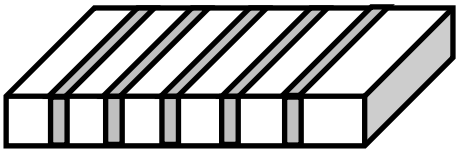
2.2.2　バルク型分極反転の特長

QPM を実現する周期分極反転には 2 つの主要な構成がある。表 2.1 に導波路型分極反転とバルク型分極反転の比較表を示す。

導波路型分極反転は周期分極反転とそれと直交するように形成された光導波路により構成される。光導波路に入力された波長 λ の基本波は周期分極反転により光導波路内を伝搬しながら第二高調波に変換される。このとき、基本波、第二高調波の波長、屈折率から分極反転周期が決定され、基本波は光導波路内に閉じ込められることで長い伝搬距離を通過することで高効率化を図ることができる。

バルク型分極反転は結晶の厚み方向に長い周期分極反転が形成される構成である。光導波路を形成する必要はないが、基本波は結晶の厚み方向全体を通過するために高効率波長変換を実現するには、高アスペクトの周期分極反転構造の形成が必要不可欠である。分極反転周期は導波路型と同様に、基本波、第二高調波の波長、屈折率から決定される。基本波のビーム径を数十ミクロン～数百ミクロンまで拡げて高出力の基本波を入射することができるため、導波路型よりも高出力の波長変換に有利である。

表 2.1　周期分極反転の構成

	導波路型	バルク型
分極反転方法	Ti 拡散法 LiO_2 外拡散法 プロトン交換熱処理法	電界印加法（金属電極、液体電極） 電子ビーム照射法
分極反転深さ	数ミクロン	基板厚（数百ミクロン～数ミリ）
分極反転形状		
特長	高効率	導波路の形成が不要 高効率／高出力

2.3　非線形光学材料の選択

非線形光学材料を選択する際に重要となるのは、高効率波長変換を実現するために必要な高い非線形光学定数を有していること、発生波長において材料が透明であることが挙げられる。さらに、高出力波長変換には高い耐光性を有していること、高い熱伝導性を有していることが求められる。図 2.3 は透過波長（吸収端）と性能指数（非線形光学定数）の関係を示したものである。ボレート系材料の BBO、LBO、CLBO は短波長域（200nm 以下）まで透過特性を有しているが、非線形光学定数が低く、高効率波長変換には不適である。従来から注目されていた $LiNbO_3$（LN）、$LiTaO_3$（LT）、$KTiOPO_4$（KTP）の中で LN は高い非線形光学定数と波長 300nm 近傍までの透明性を有しており、有望な波長変換材料の一つである。しかしながら、前述したように LN は緑色光により誘起される赤外吸収、あるいは光損傷による出力不安定などの問題があり、高温動作（200～300℃）による問題解決が図られたが、室温近傍で安定な高出力特性を得ることは困難である。一方、Mg 添加 $LiNbO_3$（MgLN）は LN と同等の透過波長と高い性能指数、さらに優れた耐光損傷性を有している。

以上より高効率､高出力の波長変換材料として高い性能を有する MgLN は紫外～可視への高効率波長変換に有望な材料であることが示された。

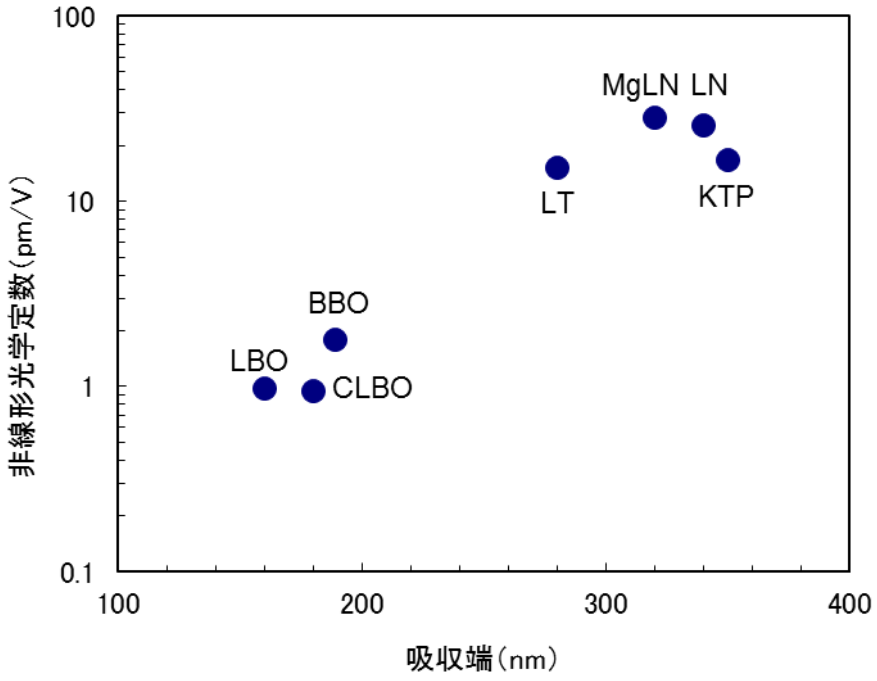


図 2.3　主要波長変換材料の透過波長と性能指数

2.4　Mg 添加 $LiNbO_3$ に要求される周期分極反転構造

Mg 添加 $LiNbO_3$（MgLN）は大きな非線形光学定数と短波長域までの透過性を有しているため、紫外～可視への高効率、高出力の波長変換材料として有望な材料であることが示された。紫外～可視波長域において高効率に波長変換するための MgLN に要求される周期分極反転構造について述べる。

一般的な波長変換材料では、屈折率は波長に対して緩やかに変化し、屈折率分散をもつ。基本波を入射し、高調波を発生させる場合、基本波、高調波の屈折率は異なるため、媒質中を伝搬する速度はそれぞれ異なり、位相がπずれるごとに発生する高調波は増減を繰り返し、結果的に高調波は高効率に波長変換することができない。基本波と高調波の位相がπずれる領域で非線形光学係数の符号を反転させる、すなわち分極反転させることで発生する高調波はさらにπの位相差が生じて基本波と高調波の位相は 2πずれて同位相となる。これによって、高調波は媒質中を伝搬しながら高効率に変換されることになる。本方式が前述した QPM であり、QPM を実現するために必要な分極反転周期はエネルギー保存則、運動量保存則から求めることができる。

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \tag{2-1}$$

$$k_3 = k_1 + k_2 \tag{2-2}$$

ここで、ωは角周波数、k は運動量である。

第二高調波発生（SHG）では基本波の角周波数、運動量をω_f 、k_f、SHG の角周波数、運動量をω_{SHG} 、k_{SHG} とすると、式(2-1)、式(2-2)は、$\omega_{SHG}=2\omega_f$、$k_{SHG}=2k_f$、と示すことができる。

さらに、運動量保存則における位相不整合分 Δk により QPM で必要とされる分極反転周期Λを算出することができる。

$$\Delta k = k_{SHG} - 2k_f = 2\pi/\Lambda \tag{2-3}$$

式(2-3)から、分極反転周期Λは次のように示される。

$$\Lambda=\lambda_f/2(n_{SHG}-n_f)=\lambda_{SHG}/(n_{SHG}-n_f) \tag{2-4}$$

λ_fは基本波の位相整合波長、λ_{SHG}は SHG の波長、n_{SHG}、n_fは SHG と基本波の屈折率であり、n_{SHG}、n_fは MgLN のセルマイヤーの式[2)]から求められる。図 2.4 に SHG 波長と必要とされる分極反転周期の関係を示す。紫外光発生には周期 3μm 以下、青色光発生には周期 4μm、緑色光発生には周期 7μm の周期分極反転構造を MgLN に形成することが必要である。分極反転周期の作製精度は MgLN の＋Z 面に形成される周期電極に依存している。周期電極はフォトリソグラフィーとドライエッチングにより形成されるため、フォトマスクの作製精度で決まる。フォトマスクは電子線描画装置により、サブミクロン精度（0.1μm～0.2μm）で作製され、フォトマスク周期のずれは SHG デバイスの温度同調で対応することができる。

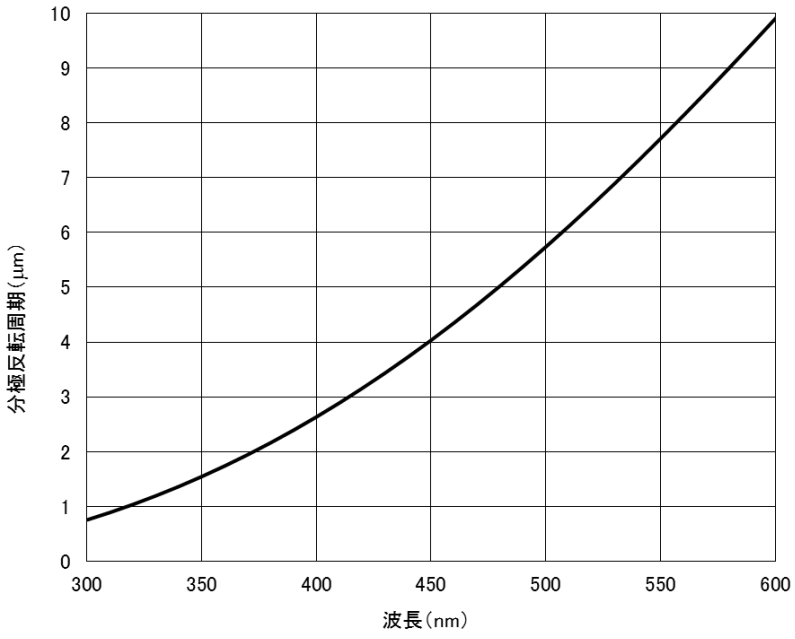


図 2.4　SHG 波長と分極反転周期の関係

1 次 QPM における実効非線形光学定数 d_{eff} はフーリエ級数展開により次式で与えられる。a は周期分極反転構造のデューティー比（反転部と非反転部の比率）、d_{33} は Z 板基板を用いた場合の非線形光学定数である。

$$d_{eff} = \frac{2}{\pi}\sin\left(\pi(1-a)\right) d_{33} \tag{2-5}$$

式（2-5）を基に、周期分極反転のデューティー比と変換効率の関係を図 2.5 に示す。1 次 QPM において、最大変換効率を得るには周期分極反転のデューティー比を 0.5 に制御しなければならない。図 2.4 と図 2.5 の関係から、緑色光（波長 530nm）、青色光（波長 450nm）、紫外光（波長 370nm）発生における周期分極反転の反転幅と変換効率の関係を図 2.6 に示す。高効率に波長変換するには反転幅を正確に制御させる必要があり、最大変換効率の 90%以上を得るためには緑色光では 3.5μm±0.7μm、青色光では 2μm±0.4μm、紫外光では 1μm±0.2μm の分極反転幅、すなわちサブミクロンオーダー（1μm 以下）の分極反転制御が要求される。さらに、入射基本波のビーム径は 10μm～200μm のため、デューティー比 0.5 の周期分極反転構造が幅方向、深さ方向に 10μm～200μm に形成されていることが必要となる。

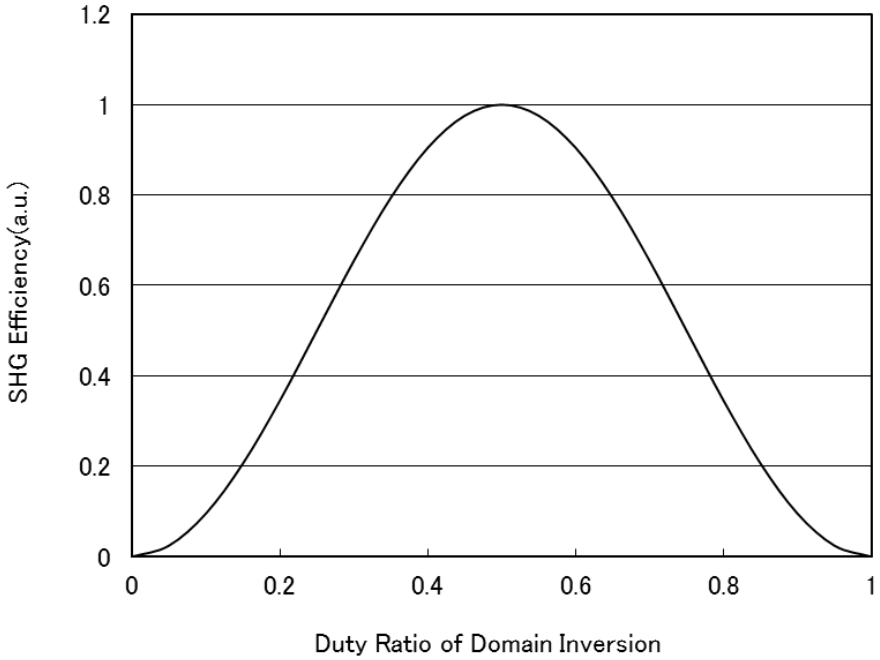
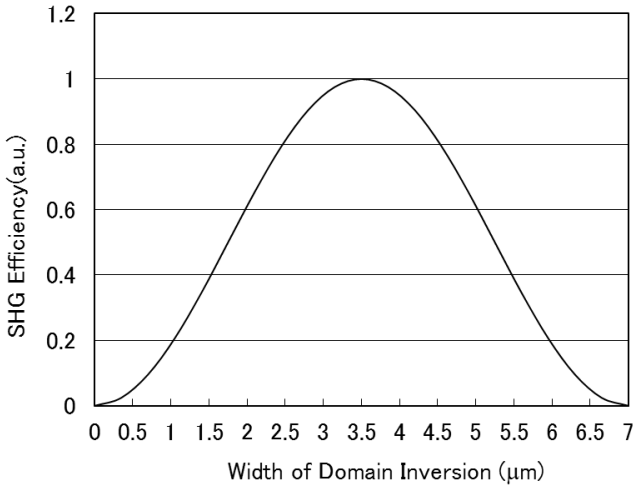
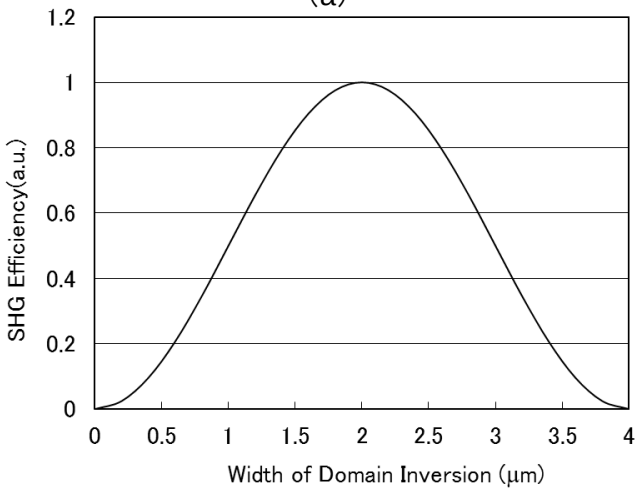


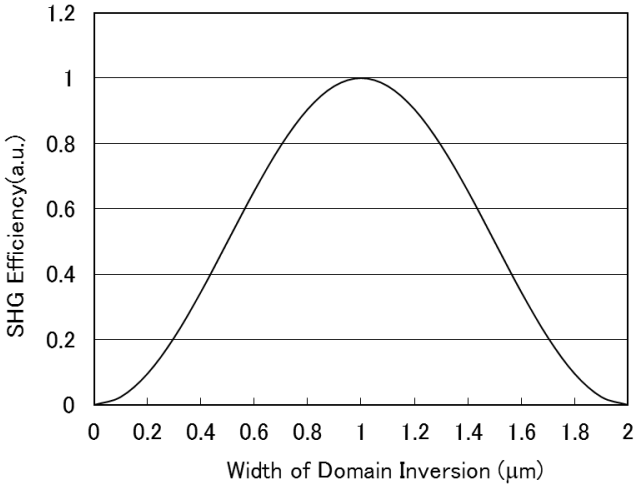
図 2.5　周期分極反転のデューティー比と SHG 変換効率



(a)



(b)



(c)

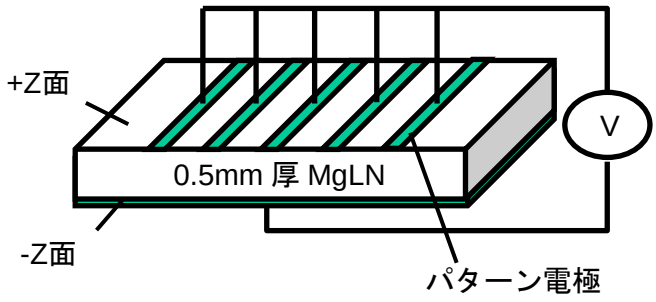
図 2.6　周期分極反転の分極反転幅と SHG 変換効率
（a）緑色光　（b）青色光　（c）紫外光

2.5　Mg 添加 $LiNbO_3$ の分極反転メカニズム

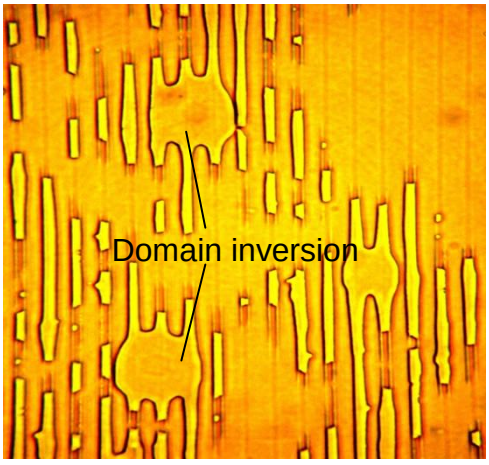
前節では MgLN で紫外光～可視光を高効率に発生させるにはサブミクロンオーダーの分極反転制御が要求されることを示した。しかしながら、前述したように MgLN の分極反転の微細制御や短周期分極反転構造の形成はノンドープ LN、LT と比べて極めて難しく、大きな壁となっている。

短周期分極反転構造の形成を実現するには MgLN の分極反転特性、メカニズムを解明することが必要であると考え、電界印加方法におけるノンドープ LN と MgLN の分極反転特性を比較検証した。0.5mm 厚の Z 板 5mol%Mg 添加 $LiNbO_3$（5mol%MgLN）に周期 3.5μｍのパターン電極を形成し、電界印加方法を用いて分極反転形成を試みた。図 2.7 に分極反転した＋Z 面をフッ硝酸溶液でウェットエッチングした時の写真を示す。フッ硝酸溶液のエッチング速度が±Z および±Y 方向で異なるため、エッチング段差により分極反転の形成状況を確認することができる。報告されているノンドープ LN の分極反転[3)]と比較して、分極反転部が不均一に拡大し、周期状の分極反転構造は得られなかった。分極反転特性の違いを明らかにするために、電界印加分極反転時の電流電圧特性の違いをノンドープ LN と MgLN で比較した。電極面積 $1mm^2$ 程度の平面電極を Z 板ノンドープ LN（0.15mm 厚）、および Z 板 5mol%MgLN（0.4mm 厚）の±Z 面に形成し、自発分極に対向する電界（ノンドープ LN：20kV/mm、5mol%MgLN：6kV/mm）を絶縁液中（室温）で印加した。図 2.8 に印加電圧と分極反転時に流れる反転電流の測定結果を示す。（a）はノンドープ LN、（b）は 5mol%MgLN の場合である。ノンドープ LN の場合、印加直後に電流が流れるがその後電流値は減少し、電極下の分極反転形成が終了する約 4msec で電流値は 0 になった。一方、MgLN は電界印加と同時に電流が流れはじめ、観測中（数分間）、電流の減少は見られなかった。強誘電体における分極反転による電荷の移動は内部電荷と表面電荷の合計で表され、分極反転した面積を S とすると移動電荷量 Q は、$Q=2Ps \times S$（Ps は自発

分極の値）の関係が成り立つ[4]。(a) の場合、ノンドープ LN の Ps＝70μC/cm^2 [5]から計算して、約 1mm^2 の分極反転部を形成するための電荷量は Q=0.7μC であり、電流波形から得られた電荷量と一致した。一方、(b) の場合、MgLN の Ps=80μC/cm^2 [6]に対しては、電極面積の 10 倍以上の分極反転領域が形成可能な電荷量を供給したことになる。しかしながら、形成された分極反転面積は電極とほぼ同程度であった。

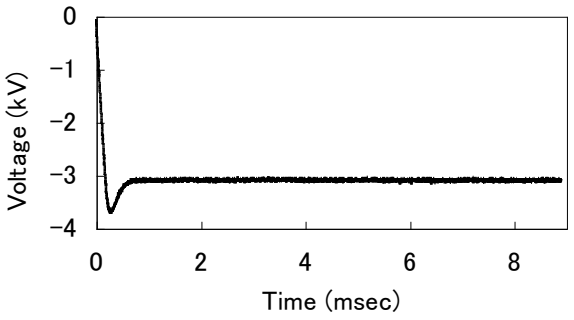


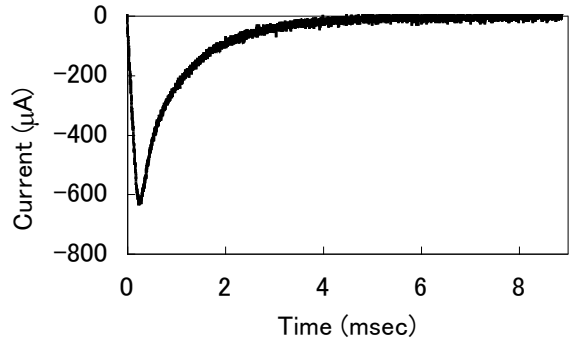
（a）電界印加構成



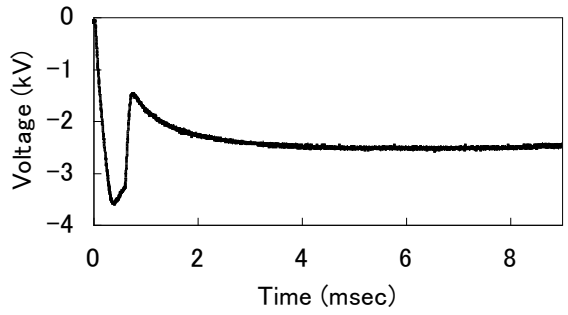
（b）周期分極反転の表面写真

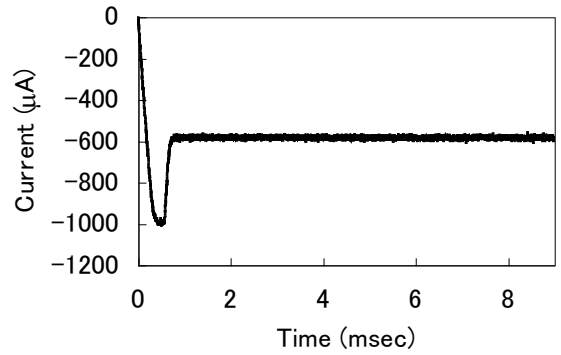
図 2.7　電界印加による MgLN 分極反転





（a）　ノンドープ LN





（b）　5mol%MgLN

図 2.8　分極反転形成時の電流電圧の時間波形

以上の実験結果は MgLN の分極反転特性が通常の強誘電体結晶における特性とは異なり、分極反転形成に伴った電気特性の変化が生じていることが推測される。そこで、1mm 厚 Z 板 MgLN の±Z 面に面積 1mm^2 の電極を形成し、分極反転形成前後における Z 板 MgLN の電気抵抗の変化を測定した。測定は分極反転閾値電界以下の－400～＋400V/mm の範囲で行った。分極反転形成前、MgLN は絶縁体特性を示し、電流は観測されなかった（図 2.9(a)）。一方、分極反転形成直後は図 2.9(b)に示すように、電圧に比例する電流が流れ、電気抵抗が 700kΩ程度に大幅に低下していることがわかった。抵抗測定による分極反転面積の増大がないこと、正負方向どちらの電界に対しても電流が流れることより、電流は分極反転形成に伴う電荷の移動とは無関係であり、分極反転部自体の電気抵抗が変化していることを示している。また、分極反転形成直後の抵抗率は 7×10^5 Ω･mm であった。X 板 MgLN では分極反転形成後に整流特性（ダイオード特性）が確認されているが [7]、Z 板 MgLN ではその特性とは異なり、分極反転形成によって MgLN が絶縁体から半導体に近い抵抗率を有する特性に変化していることが明らかになった。この分極反転形成に伴う抵抗率の変化については、原理的に明らかにされていないが、分極反転部自体が抵抗率の変化を誘起する結晶構造の変化を伴わないことから、向きの異なる分極が隣接する分極壁における結晶構造の変化が起因しているものと考察される。

さらに、分極反転形成後の MgLN における抵抗率の時間特性を評価した。図 2.10 は分極反転形成直後の抵抗率の変化を示したものである。分極反転直後に大きく低下していた抵抗率は時間とともに増加していく。分極反転形成に伴う MgLN の抵抗率の変化は、比較的不安定な現象であり、時間とともに緩和されることがわかった。均一な分極反転を形成するには、電気特性の時間的な変化は好ましくない。安定な分極反転条件を確立するには、短時間で分極反転形成プロセスを終了するのが望ましい。

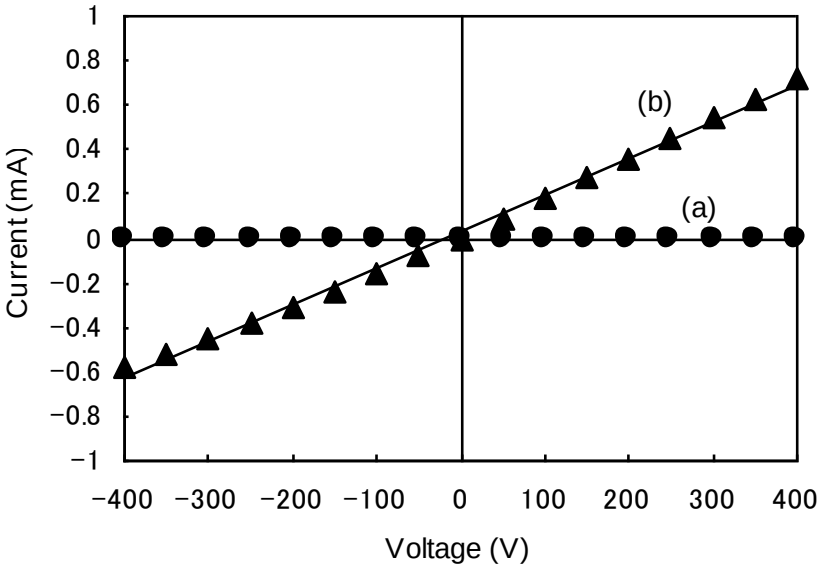


図 2.9　MgLN の電気特性

（a）分極反転前（b）分極反転後

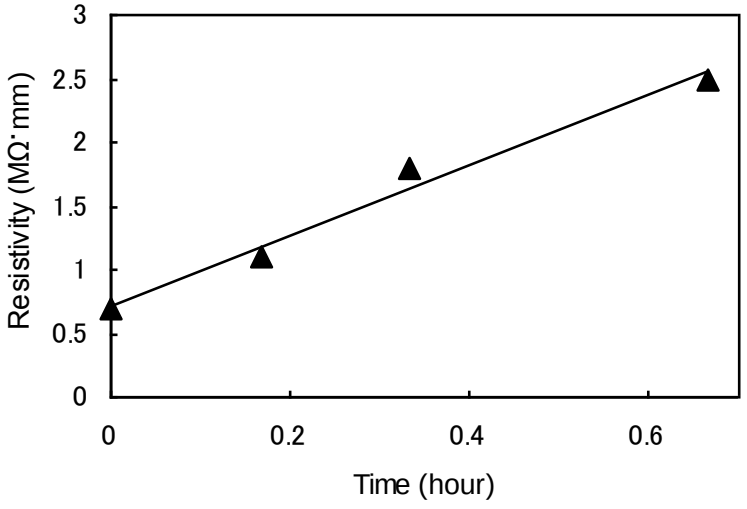


図 2.10　分極反転後の MgLN 抵抗率の時間特性

Mg 添加量と分極反転における電気特性の関係を明確にするためにノンドープ、3mol%、5mo%の LN、MgLN 基板を用いて電流電圧特性を評価し、Mg 添加量依存性を調査した。この時に用いた基板厚みはそれぞれ 0.15mm、0.5mm、1mm であった。基板厚みは Mg 添加量依存性に対してほぼ同一電界が印加されるように選択した。図 2.11 に実験系を示す。電流電圧特性は室温で測定した。基板の＋Z 面、－Z 面に膜厚 100nm の Ta 電極をスパッタリングで成膜し、＋Z 面に半径 0.5mm の円形電極を形成した。絶縁液内で＋Z 面、－Z 面に形成された電極間に高電圧を印加して流れた電流を測定した。図 2.12 に電流電圧特性の測定結果を示す。ノンドープ LN は一般的な強誘電体材料の分極反転形成時の電流電圧特性を示した。電圧を上昇させていき、3.1kV（抗電界 21kV に相当）に到達した時点で分極反転が形成され、分極反転による電荷移動で生じた電流が短時間に流れた。電界印加が終了した後、分極方向は保持される。反対方向に同一電界を印加することで再反転して元の分極方向に戻すことができる。分極反転と再反転は電荷量 Q に対して $2PsS$ の関係が成り立ち、ここでの Ps は自発分極量、S は反転領域を示している。電界印加が終了すると分極反転領域、再反転領域はいずれも絶縁体の電気特性を示している。

一方で 3mol%MgLN の電流電圧特性はノンドープ LN と異なる結果が得られた。電圧を 6.5kV に上昇させると電気抵抗が低下し、大きな電流が突然流れ始めた。この電気抵抗の低下は電界印加が終了したのちも保持された。5mol%MgLN の場合、同様の電気抵抗の低下が観測され、図 2.12（b）に見られるようなヒステリシスが得られた。電圧を上げていき、3.9kV に到達した時点で電気抵抗が低下した。そのあと、電圧を－3.9kV に上げていくと電気抵抗は突然上昇した。電界印加が終了した後、電気抵抗は元の分極反転形成前と同じ電気抵抗に戻っていた。2mm 厚 5mol%MgLN の場合、同様の電気抵抗の変化が±3.9V/μm の同じ電界印加時に観測された。分極反転と再反転で発生した電気抵抗低下は 120℃でも確認された。

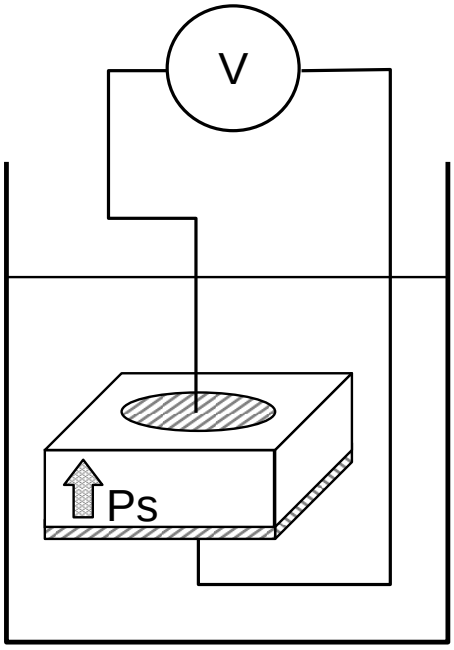
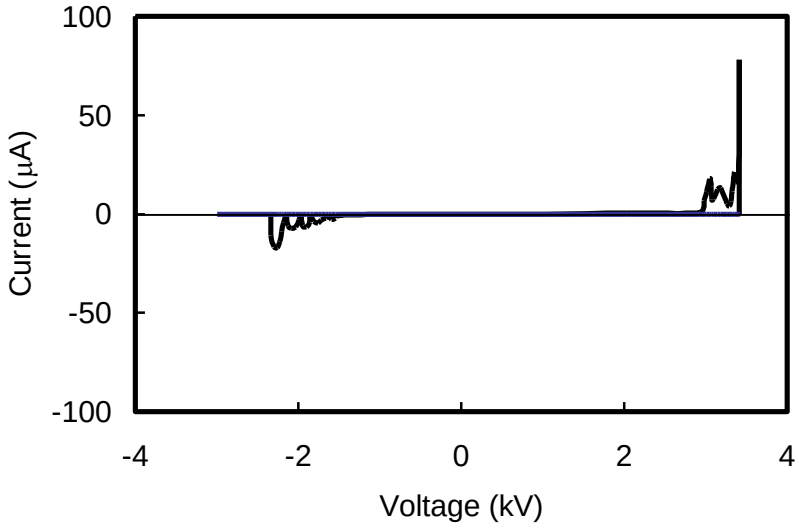
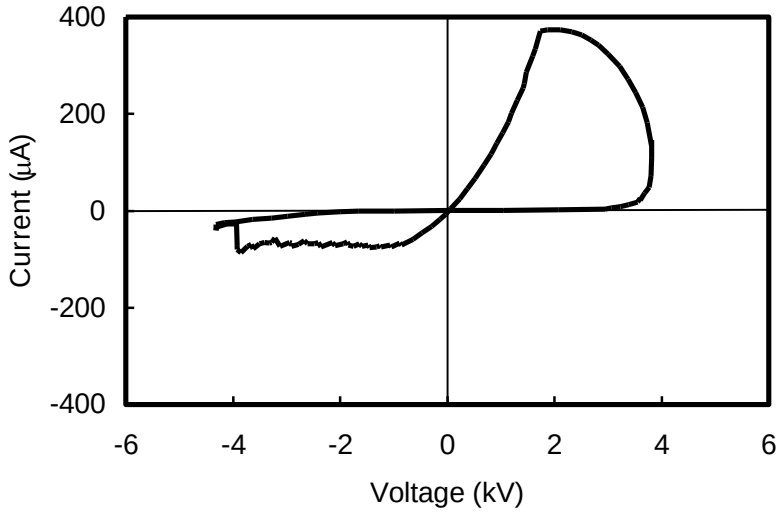


図 2.11　電界印加の構成



（a）



（b）

図 2.12　電流電圧特性（室温）

（a）ノンドープ LN　（b）5mol%MgLN

図 2.13 は Mg 添加量に対する分極反転前の抵抗率と分極反転形成後の抵抗率を示している。図中の virgin は電界印加前、switched は分極反転形成後、back switched は再反転後（逆方向に電界印加後）を示している。Mg を添加することで抵抗率の低下は引き起こされており、Mg 添加量の増加で低下率が大きくなり、Mg 添加量 5mol%では 6 桁の抵抗率の低下となった。不純物である金属を添加したペロブスカイト系酸化薄膜は電気抵抗のスイッチング特性が確認されている [8,9]。MgLN では分極反転によって生じた電荷移動がこの電気抵抗の変化を引き起こすきっかけとなっていると考えられる。電気抵抗の反転現象は強誘電体の結晶破壊あるいは分極反転壁における応力が関係し、強誘電体を金属材料に類似した導電特性（半導体特性）へ導いているのではないかと推測される。

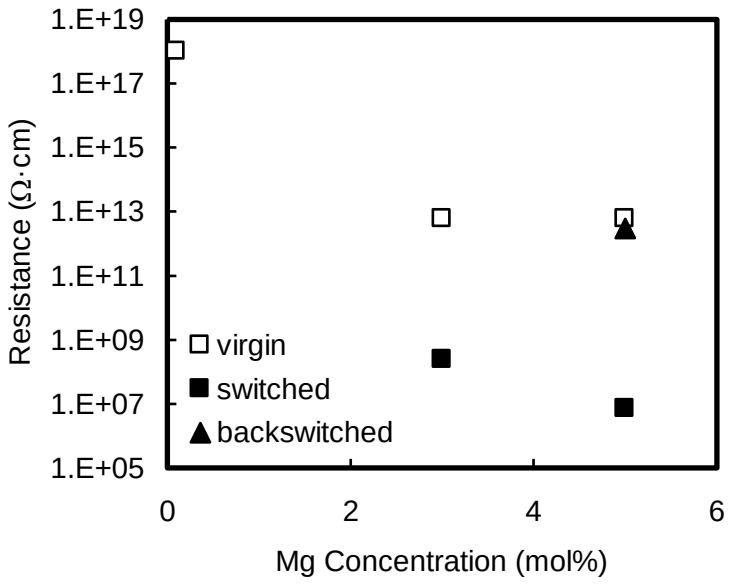


図 2.13　分極反転形成前後の抵抗率

以上に述べた電気特性を基に、MgLN に形成したパターン電極に電界印加した時に見られる分極反転の不均一形成を説明することができる。図 2.14 に、MgLN における分極反転の不均一形成のメカニズムを示す。パターン電極に印加する電界強度が分極反転閾値電界強度を上回ると分極反転核が＋Z 面電極下にランダムに発生する。さらに電界印加を継続するとランダムに発生した分極反転核から－Z 方向に分極反転領域が成長し、－Z 面（基板裏面）へ貫通する。分極反転部分は抵抗値が極端に低下するため、貫通した分極反転部分に電流が集中し、電流集中部分において局所的に分極反転が拡大する。貫通した分極反転部分により電圧降下が発生するため、分極反転の成長が遅れた部分は成長が停止する。以上の結果、電極下に局所的に発生する分極反転の成長は、電極下全体にわたり均一な分極反転が形成されるのを困難にする。すなわち、局所的に発生する貫通分極反転部分が、パターン電極を用いた電界印加法における均一な分極反転形成を困難にしていると考えられる。

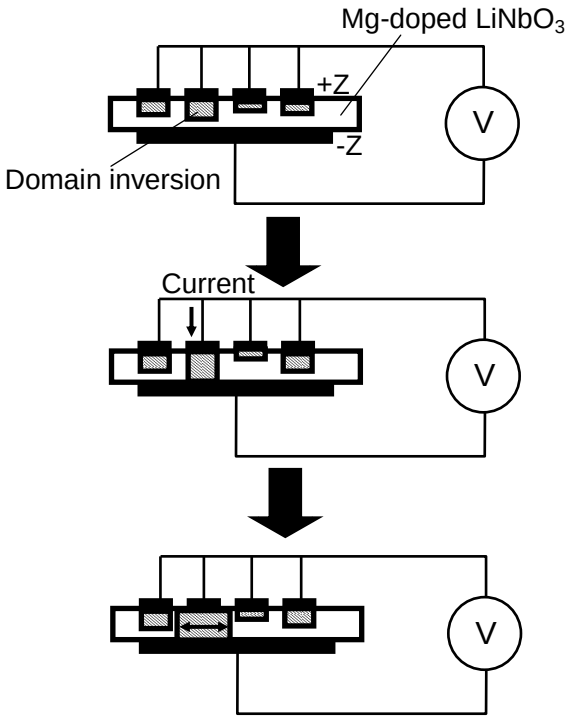


図 2.14　MgLN の分極反転不均一形成メカニズム

2.6　厚板多重パルス電界印加法の提案

前節では分極反転が基板裏面に貫通することで局所的に分極反転成長が促進して面内で不均一形成するというメカニズムを提唱した。不均一形成メカニズムを基に、分極反転の裏面への貫通を回避する電界印加分極反転形成方法を提案する。新しいアプローチは、二つの方法からなる。第一は、MgLN 基板の厚板化である。通常の LN、LT では短周期分極反転構造形成には基板の薄板化が有効であった [5,10-13]。しかし、MgLN では分極反転部の裏面への貫通を防止するために、厚板 MgLN を用いることが有効である。MgLN は分極反転閾値電界が低いため、厚板への高電界印加が容易である。第二は、多重パルス印加法の適用である。多重パルス印加法はオフカット基板で提案されているが [13]、短パルス列を印加することで、厚み方向の分極反転成長を抑制し、多重パルス化により、横方向、厚み方向の分極反転領域を制御することが可能である。横方向、厚み方向の分極反転領域の制御は、ノンドープ LN では電荷量による制御で行うことが可能であるが、MgLN では分極反転形成に伴い抵抗率が著しく低下するため、電荷量によって制御することができない。よって、分極反転領域の制御は、印加パルス回数を最適化し、最適パルス回数を決定することでおこなった。

以上の提案した厚板多重パルス電界印加法を用い、短周期分極反転形成を試みた。図 2.15 に、厚板多重パルス電界印加法による周期分極反転の作製プロセスを示す。基板は 2mm 厚 Z 板 5mol%Mg 添加 $LiNbO_3$ 結晶を使用した。まず、MgLN の＋Z 面に Ta 膜を 100nm 成膜する。次に、フォトリソグラフィー、CF_4 ドライエッチングにより、周期電極を＋Z 面に形成する（図 2.15 (a)）。＋Z 面に電極カバーとして SiO_2 膜を 300nm 成膜し、裏面電極として－Z 面に Ta 膜を 100nm 成膜する（図 2.15 (b)）。分極反転形成は前述した多重パルス印加法を用いた（図 2.15(c)）。電界印加条件は印加電圧 10kV、パルス幅 1msec とした。電界印加中の基板温度を上げることで、分極反転閾値電界を 5kV/mm 以下に低減し、厚板の結晶においても高電圧印加に

よる結晶損傷を回避できるため[14]、絶縁液（フッ素系不活性液体、商品名：フロリナート）を加熱することで基板温度を 100℃とした。

図 2.16 に作製した周期 1.4μm の短周期分極反転の断面写真を示す。分極反転部の形状観察は結晶断面を鏡面研磨後、60℃フッ硝酸液（HF：HNO_3＝2：1）により 5～10 分間エッチングすることで可視化した。図 2.16 で示されるように＋Z 面から深さ 0.2mm 付近まで均一な分極反転が得られている。また、深さ方向の分極反転成長は 0.2～0.5mm に抑制され、裏面への分極反転の貫通は確認されなかった。周期方向の分極反転幅は 0.8μm 程度であり、Z 板 MgLN において初めてサブミクロンオーダーの分極反転制御に成功した。提案した分極反転形成方法を用いることで、裏面への分極反転の貫通を防止し、MgLN の周期 1.4μm の分極反転を 10mm 以上の長さに渡って均一に形成することが可能となった。

この技術は、分極反転構造を利用した擬似位相整合デバイス等への応用に限らず、電気光学デバイス、強誘電体メモリ等の新たな展開を可能にするものである。

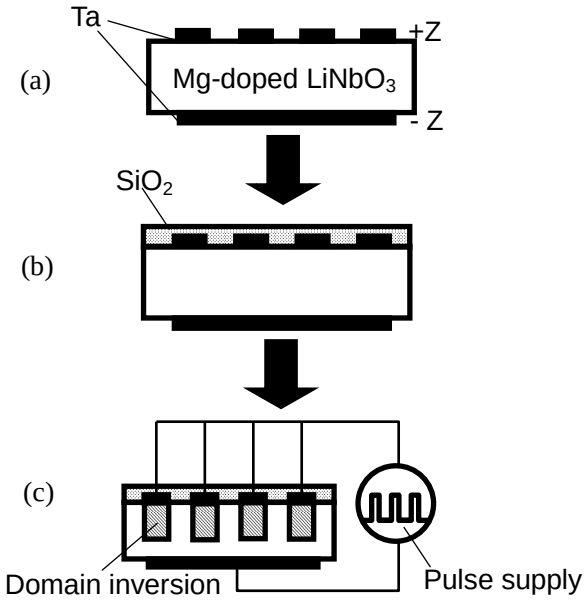
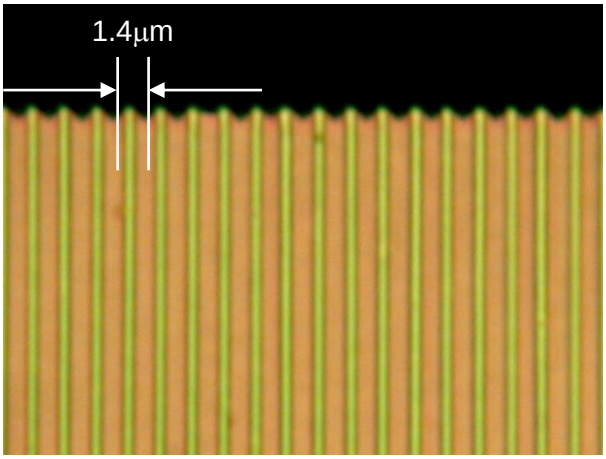
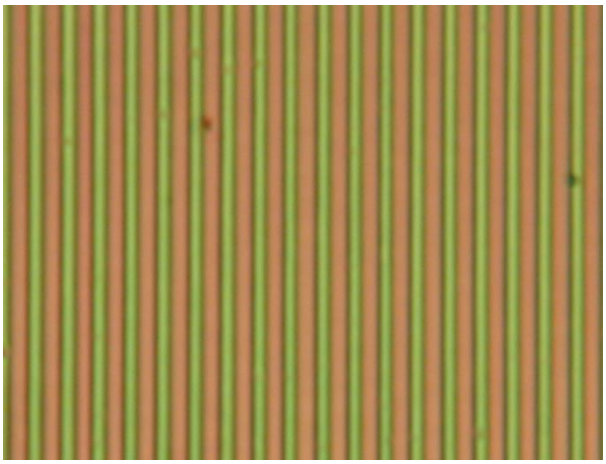


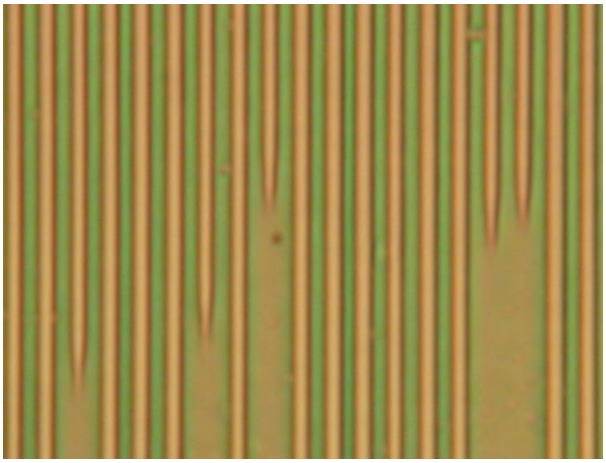
図 2.15　厚板多重パルス電界印加法



（a）



（b）



（c）

図 2.16　周期 1.4μm の MgLN 分極反転断面写真

（a）基板表面　（b）深さ 0.15mm　（c）深さ 0.2mm

2.7　まとめ

擬似位相整合 SHG デバイスを実現するための周期分極反転構造を示し、その特徴を述べるとともにバルク型分極反転が高出力波長変換に有利であることを明らかにした。

Mg 添加 $LiNbO_3$（MgLN）が紫外光～可視光の波長変換材料として有望であることを示し、紫外光発生には周期 3μm 以下、青色光発生には周期 4μm、緑色光発生には周期 7μm の周期分極反転構造を MgLN に形成することが必要であることを明らかにした。さらに、高効率に波長変換するためにはデューティー比 0.5 の周期分極反転構造が必要とされ、最大変換効率の 90%以上を得るためには緑色光（波長 530nm）では 3.5μm±0.7μm、青色光（波長 450nm）では 2μm±0.4μm、紫外光（波長 370nm）では 1μm±0.2μm の分極反転幅、すなわちサブミクロンオーダー（1μm 以下）の分極反転制御が要求されることを示した。

MgLN の分極反転メカニズムを解明するためにノンドープ LN と MgLN の分極反転形成時の電気特性を比較し、MgLN は分極反転形成とともに電気抵抗が急激かつ大幅に低下するために一般的な強誘電体材料に用いられる電荷量制御では分極反転形成を制御することができないことがわかった。分極反転が基板裏面に貫通することで電気抵抗の低下と分極反転の不均一形成を引き起こすというメカニズムを提唱し、新たに厚板多重パルス電界印加法を提案した。基板厚の厚い MgLN を用いて多重パルス印加することで貫通反転を抑制し、分極反転幅 0.8μm のサブミクロン分極反転制御を可能にし、周期 1.4μm の分極反転構造を均一形成することに成功した。

参考文献

1）J.A.Armstrong, N.Bloembergen, J.Ducuing, and P.S.Pershan: Phys. Rev.127 (1962) 1918.

2) A.L.Aleksandrovski, G.L.Ershova, G.Kh.Kitaeve, S.P.Kulik, I.I.Naumova, and V.V.Trasenko: Sov.J.Quantum Electron.21 (1991) 225.

3) M.Yamada, N.Nada, M.Saitoh, and K.Watanabe: Appl.Phys.Lett.62 (1993) 435.

4) K.Kintaka, M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara: J.Lightwave Technol.14 (1996) 462.

5) K.Kintaka, M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara: Electron.Lett.32 (1996) 2237.

6) A.Kuroda, S.Kurimura and, Y.Uesu: Appl.Phys.Lett.69 (1996) 1565.

7) S.Sonoda, I.Tsuruma, and M.Hatori: Appl.Phys.Lett.70 (1997) 3078.

8) Y. Watanabe, J.G.Bednorz, A.Bietsch, C.Gerber, D.Widmer, and A.Beck: Appl. Phys. Lett.78 (2001) 3738.

9) A.Beck, J.G.Bednorz, C.Gerber, C.Rossel, and D.Widmer: Appl. Phys. Lett.77 (2000) 139.

10) K.Mizuuchi, K.Yamamoto, and M.Kato: Appl.Phys.Lett.70 (1997) 1201.

11) M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara: Bull.Mater.Sci.22 (1999) 413.

12) K.Mizuuchi and K.Yamamoto: Appl.Phys.Lett.66 (1995) 2943.

13) T.Sugita, K.Mizuuchi, Y.Kitaoka, and K.Yamamoto: Jpn.J.Appl.Phys.40 (2001) 1751.

14) H.Ishizuki, T.Taira, S.Kurimura, J.H.Ro, and M.Cha: Jpn.J.Appl.Phys.42 (2003) L108.

第 3 章　周期分極反転構造の形成

3.1 はじめに

紫外～可視波長域におけるバルク型 QPM-SHG デバイスを実現するには、サブミクロン（1μm 以下）～ミクロンオーダーの分極反転制御が必要不可欠である。また、高効率化、高出力化を実現するには大面積の周期分極反転構造の均一形成がさらに要求される。

第 2 章において、Mg 添加 $LiNbO_3$（MgLN）の分極反転メカニズムと貫通分極反転による不均一形成のメカニズム分析から貫通分極反転を抑制する厚板多重パルス電界印加法を提案し、最小分極反転幅 0.8μm のサブミクロンオーダーの分極反転制御に成功した。その結果、周期 1.4μmの周期分極反転構造の形成を実現した。デバイスを実用化するためには周期分極反転構造のさらなる均一化、大面積化が必要となる。

本章では、高輝度レーザーディスプレイ用光源に必要なワットクラスの高出力緑色光源、青色光源を実現するための高効率バルク型 QPM-SHG デバイスの開発を目的として、MgLN におけるサブミクロンオーダーの周期分極反転構造の大面積均一化の検討結果について述べる。大面積の周期分極反転構造の不均一形成の主要因を分析し、前章で提案した厚板多重パルス電界印加法に、発熱を空間的に制御する掘り込み周期電極構造、発熱を時間的に制御する発熱制御パルス波形、配線電極端部の電界集中を抑制する裏面電極パターン形成を新たに加えることで緑色光発生用（周期～7μm）、青色光発生用（周期～4μm）の周期分極反転構造の大面積均一化を実証する。また、紫外光発生用（周期 1.78μm）の周期分極反転構造の形成においても大面積化、均一化の検討結果を述べる。

さらに、近年注目されている Mg 添加定比組成 $LiNbO_3$ と Mg 添加定比組成 $LiTaO_3$ の周期分

極反転形成を検討し、それぞれの分極反転メカニズムを Mg 添加 $LiNbO_3$ と比較検証し、緑色光発生用（周期 7～8μm）の周期分極反転構造の均一化に取り組んだ成果について述べる。

3.2 周期構造不均一化の仮説と検証

分極反転形成は＋Z 面で形成された分極反転核が－Z 方向に向けて形成されるが、その間に横方向（X 方向）にも形成が進んでいく。横方向の形成が過剰になると周期分極反転の周期性が不均一となり、さらには周期性が失われることになる。前章で述べたように、MgLN は分極反転形成と同時に電気抵抗が大幅に低下し、大きなリーク電流が流れるために短周期分極反転構造の均一化形成は極めて困難である。

MgLN における周期分極反転構造の不均一化は、分極反転形成時の漏れ電流により基板表面および内部に熱が発生し、加熱された箇所が過剰成長することで生じている、という仮説を提唱する。仮説が正しいかどうかを明らかにするために、分極反転形成時の MgLN 基板表面の温度分布を測定した。図 3.1 に温度分布測定に用いた電極パターン形状とサーモグラフィーで基板表面の温度分布を測定した結果を示す。MgLN 基板上に 5 つの同一形状の電極パッド（コンタクトプローブ接触部）と周期電極を形成し、基板中央部の電極（図 3.1(a)の赤色箇所）に電界印加を印加して温度分布を測定した。電極パッド部が赤色に変化しており、温度上昇が確認された。また、周期電極部も同様に分極反転形成で温度上昇が観測された。この時の分極反転部の温度上昇は数十度になっており、ノンドープ LN 等の従来材料で考慮する必要のなかった発熱が MgLN にあることが明らかになった。

一方、これまでに MgLN 基板を加熱することで MgLN の分極反転閾値電界は低下することが報告されている [1)]。分極反転閾値電界の温度依存性を調べたところ、常温では 4kV/mm、120℃では 2kV/mm となり、およそ 100℃の温度上昇で分極反転閾値電界は半減した。この結果は文

献[1)]で報告されている 5mol%MgLN の分極反転閾値電界とほぼ一致している。基板温度の上昇で分極反転閾値電界が低減することから、基板温度が上昇すると分極反転成長が促進すると考えられ、基板温度が上昇した時の分極反転成長への影響を検証した。

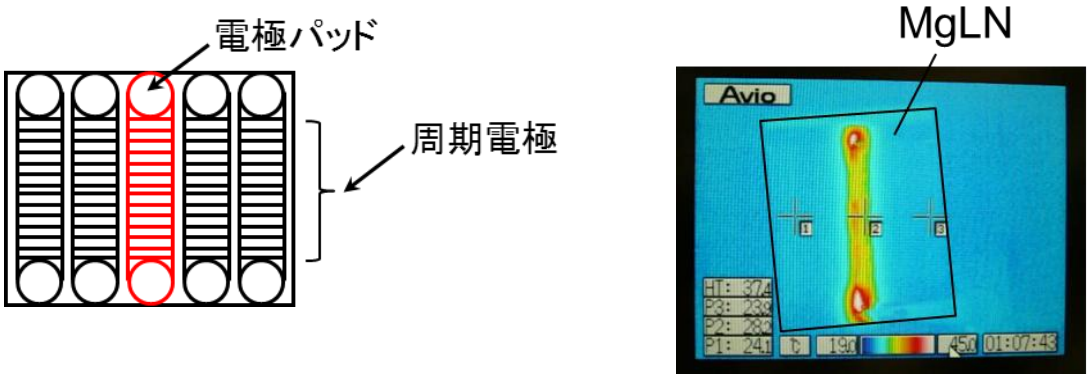


図 3.1　MgLN における分極反転形成時の温度分布測定
（a）電極パターン　（b）測定結果

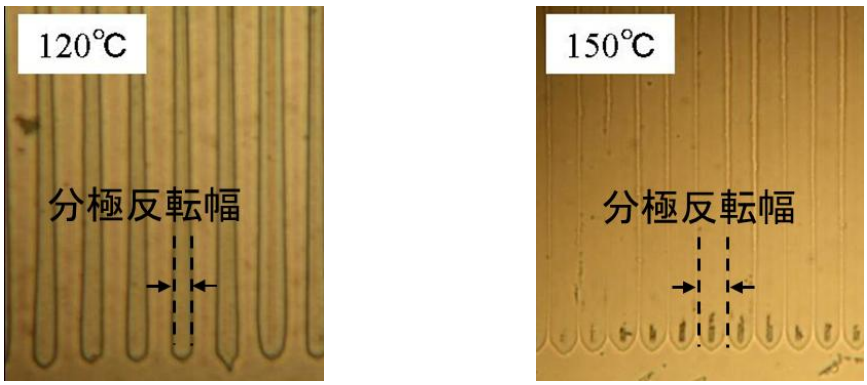
図 3.2 に基板温度を変えて電界印加で分極反転を形成した時の周期分極反転構造の表面観察結果を示す。基板温度以外の条件（電極形状、印加波形）は同一とした。基板温度が 30°C 上昇することで周期分極反転構造における分極反転幅がおよそ 2 倍に広がることを実証した。

以上の結果から、提唱した仮説は正しく、MgLN に発生する熱分布が周期分極反転構造の不均一化の主要因のひとつであることを特定した。

さらに、熱以外にも電界集中部の分極反転が過剰成長することで周期構造の不均一化を引き起こしていることが明らかになった。図 3.3 に電界集中部における分極反転の過剰成長の模式図を示す。図 3.3 における配線電極部には電極端が存在し、電界は電極端に集中する。これによって、電界が集中する配線電極部の分極反転が過剰成長し、周期電極直下の分極反転形成はなかなか進まずに不均一形成を引き起こす。

以上から、分極反転形成時の発熱制御と電界集中による配線電極端部の過剰成長を抑制する

ことで大面積周期分極反転構造を均一化できる。



（a）　　（b）

図 3.2　MgLN における周期分極反転の温度依存性
（a）120°C　（b）150°C

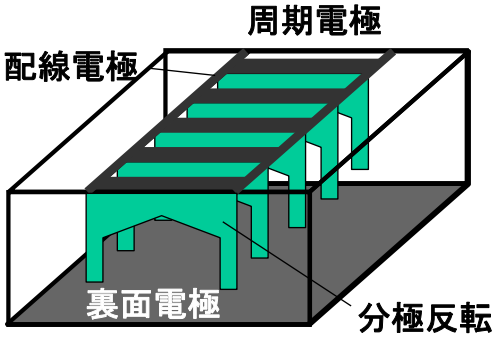


図 3.3　MgLN における配線電極端部の過剰成長

3.3　発熱の空間的・時間的制御と電界集中の抑制

分極反転形成時の発熱と電界集中部の過剰成長が大面積周期分極反転構造の不均一化を引き起こすというメカニズムを基に、掘り込み電極による発熱の空間的制御、発熱制御パルス波形による発熱の時間的制御、裏面電極パターン形成による電界集中抑制で周期分極反転構造の大面積均一化を検証した結果について述べる。

3.3.1　掘り込み周期電極による発熱の空間的制御

熱分布を空間的に制御するために掘り込み電極を用いた周期分極反転構造の形成法を提案する。図 3.4 に掘り込み電極を用いた場合の分極反転形成時の熱分布を示す。図 3.4（a）（b）は周期電極における熱分布、図 3.4（c）（d）は一つの周期電極における熱分布を掘り込み電極の有無で比較している。分極反転形成時の発生熱を周期電極の掘込溝で囲い込むことで電極直下以外の不要部分に分極反転が広がることを抑制し、必要部分（周期電極直下）のみに分極反転を再現性よく形成させることができる。

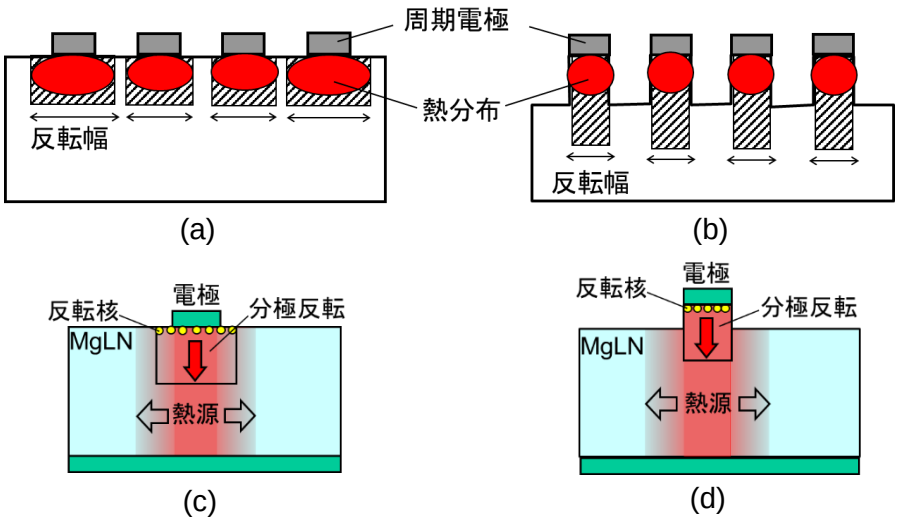


図 3.4　分極反転形成時の熱分布
（a）（c）従来電極　（b）（d）掘り込み電極

周期電極を掘り込む手法として、ウェットエッチングとドライエッチングが挙げられるが、フッ硝酸に代表されるウェットエッチングは MgLN のエッチングレートが極めて遅く、所望の掘り込み深さ（1μm 以上）を得ることが難しい。そこで、誘導結合型プラズマ反応性イオンエッチング（Inductively Coupled Plasma Reactive Ion Etching : ICP-RIE）で掘り込み電極形成を検討した。均一な周期分極反転構造を形成するには、周期電極の電極幅を正確に制御することが要求される。そのためには、線幅が正確に制御されたレジストパターン形成が必要不可欠である。さらに、エッチングレートの遅い MgLN 基板へ深い掘込電極パターン（掘込深さ 2.0μm 以上）を形成するには、厚いレジストパターン（膜厚 2.5μm 以上）が必要である。高アスペクトかつミクロンオーダーの線幅を有するレジストパターンを実現するには I 線レジストが有効である。I 線レジストは短波長の I 線（波長 365nm）を用いて紫外線露光するために、アスペクト比の高いパターン形成が可能である。

Ta 電極が成膜された 3 インチノンドープ LN ウェハに I 線レジストパターン（レジスト膜厚 2.5μm）を形成し、パナソニック株式会社生産技術本部製造の ICP-RIE 装置を用いて掘り込み周期電極構造を＋Z 面に作製した。ICP ドライエッチングをする際、エッチングレート、選択比に寄与する主なパラメータは、ガス種類、ガス流量、ICP パワー、バイアスパワー、下部電極温度、放電圧力である。エッチングガスは Ar と C_4F_8 を用いる。Ar プラズマで物理的に MgLN を削り、C_4F_8 はデポガスとして使用し、エッチングされたものと反応し、反応生成物としてレジストや MgLN のエッチング面を保護し、選択比向上に寄与する。また、ガス流量はエッチングレート、選択比、エッチング面の平坦度等に影響を及ぼすために重要なエッチング条件の一つである。ガス流量を Ar：48sccm、C_4F_8：0.5sccm として検討を行った場合、エッチング後の LN ウェハ表面が真っ白になり、表面が粗くエッチングされた。形成する電極パターンの開口率が高く、LN のエッチング面積が広いために Ar ガス流量が不足していると思われる。そこで、ガス流量を Ar=70sccm、C_4F_8=0.5sccm に変更したところ、ウェハ表面で発生した白濁化は解消され、エッチング面の面荒れも低減された。このときのレジスト、ノンドープ LN の選択比は

およそ 1 が得られた。このときのメインバルブの開口率は 60%～70%である。MgLN 基板に深さ 2.0μm を掘り込むための ICP ドライエッチング条件は、ICP パワー500W、バイアスパワー100W、下部電極温度 15℃、エッチング内圧 0.7Pa、エッチング時間 70 分である。エッチング後の後処理として、レジストおよびエッチング反応生成物を除去するためにアセトン超音波洗浄（20 分間）を行い、綿棒による擦り洗浄で基板表面の残留レジストを除去する。

3.3.2　発熱制御パルスによる発熱の時間的制御

分極反転形成時の発熱は前述した掘り込み電極による空間的制御に加えて、時間的制御が有効であると考え、これまでに提案したパルス波形に熱を制御するためのパルス波形を新たに加えた発熱制御パルス波形を図 3.5（b）に示す。

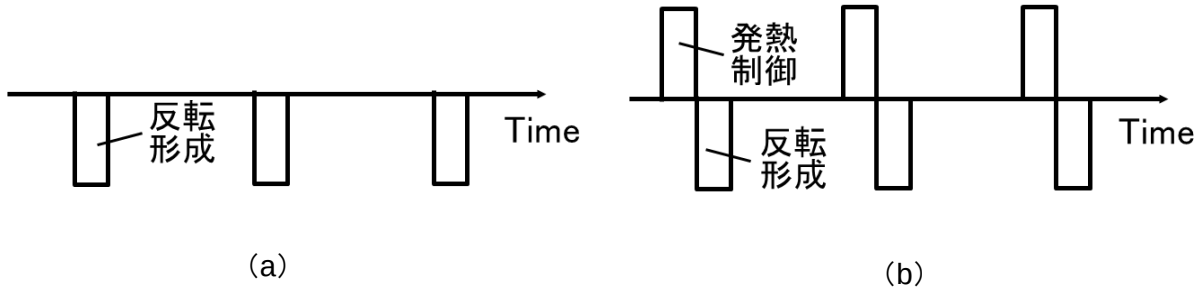


図 3.5　分極反転形成のパルス波形
（a）従来　（b）発熱制御パルス

提案した発熱制御パルス波形は発熱を定常状態に保持させることができ、発熱を積極的に利用することで必要箇所の分極反転成長を促進することができる。さらに、MgLN では分極反転形成とともに基板内を電流が流れ続けて抵抗値が低下し、分極反転閾値電界を下回ることで分極反転が停止し、不均一化が増大するが、発熱制御パルス波形は分極反転を形成する逆方向の電圧を印加する波形を入れることで低下した抵抗値を上昇させる効果をもつ。これをパルス波形で繰り返し電界印加することで抵抗低下を抑制し、分極反転の不均一形成を防止して所望領

域の分極反転形成を実現することができる。

図 3.6 に示すように、発熱制御パルス波形、および反転波形（分極反転形成に寄与する波形）を変えて分極反転特性を比較した。図 3.7 に同一パルス数の電界印加で形成した周期分極反転写真（＋Z 面）の比較結果を示す。前述したように、発熱制御パルスは MgLN の抵抗値低下を抑制するだけでなく、電流が流れているため基板内部の熱発生にも寄与しており、基板の温度上昇が分極反転成長に大きく関わる。発熱制御パルスによる熱発生で基板が局所的に加熱されて、それと同時に電界印加すると分極反転形成は促進される。一方、加熱されてから時間が経過すると基板は冷却されるために分極反転形成は進みにくくなる。同一パルス数を印加しても分極反転の形成率に差が生じ、図 3.6 の波形①、波形④は分極反転形成が遅く、波形③は分極反転形成が速すぎて不均一性が増大している。加熱による分極反転形成の促進と分極反転の均一形成を両立するのは波形②であることがわかる。

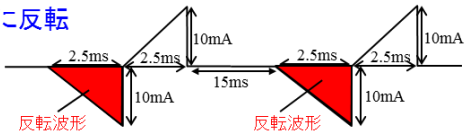
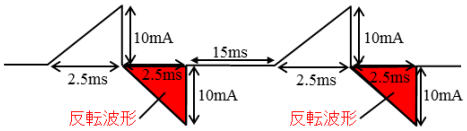
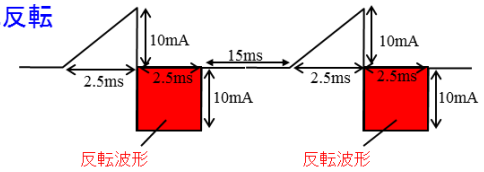
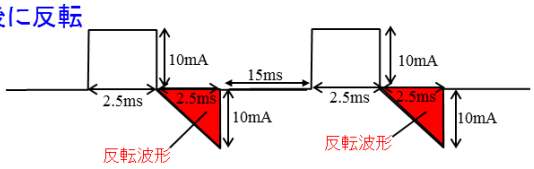
	入力電流波形
波形①	熱発生15ms後に反転  -Z面に入力。＋Z面はGND
波形②	熱発生直後に反転  -Z面に入力。＋Z面はGND
波形③	熱発生直後に反転  -Z面に入力。＋Z面はGND
波形④	熱発生直後に反転  -Z面に入力。＋Z面はGND

図 3.6　発熱制御パルス波形

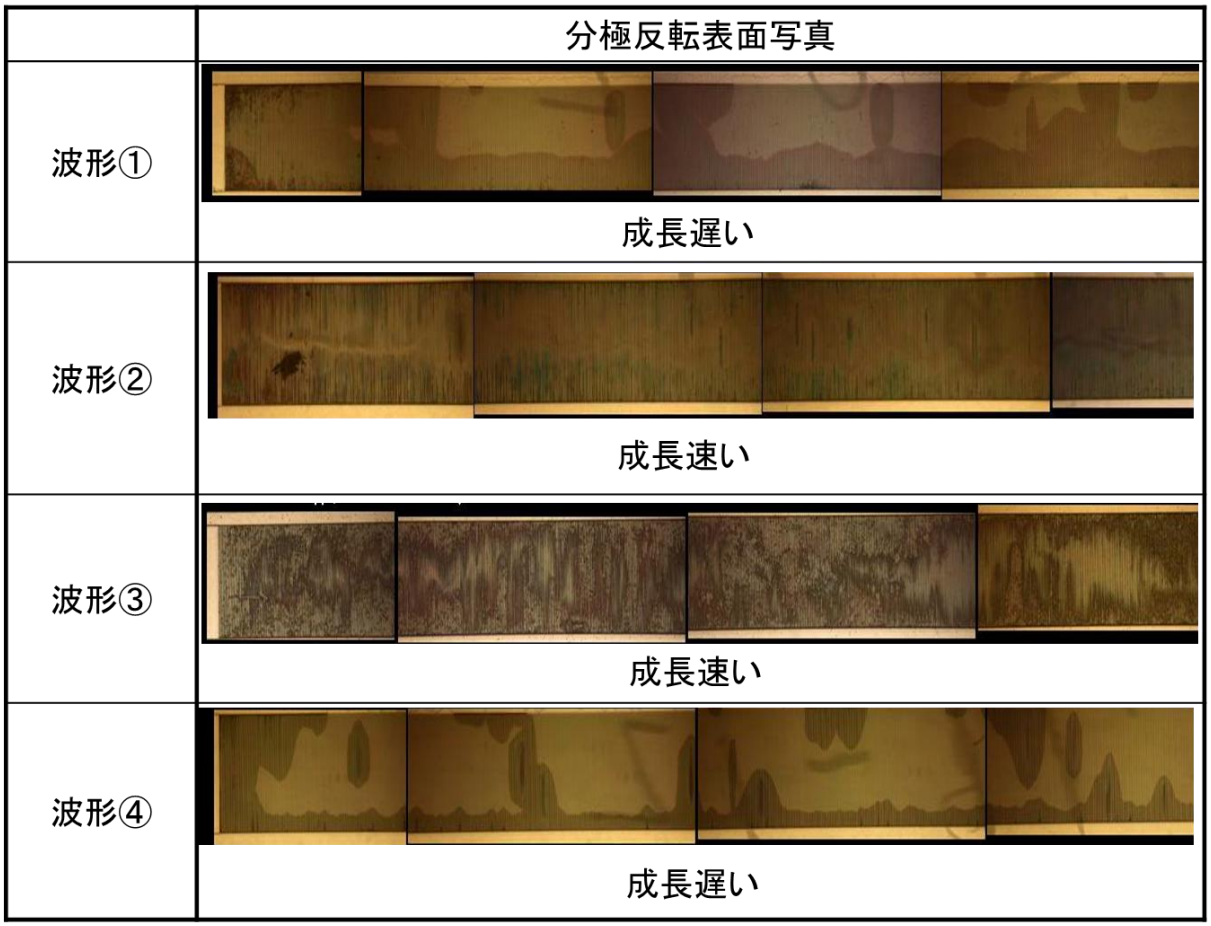


図 3.7　分極反転観察結果

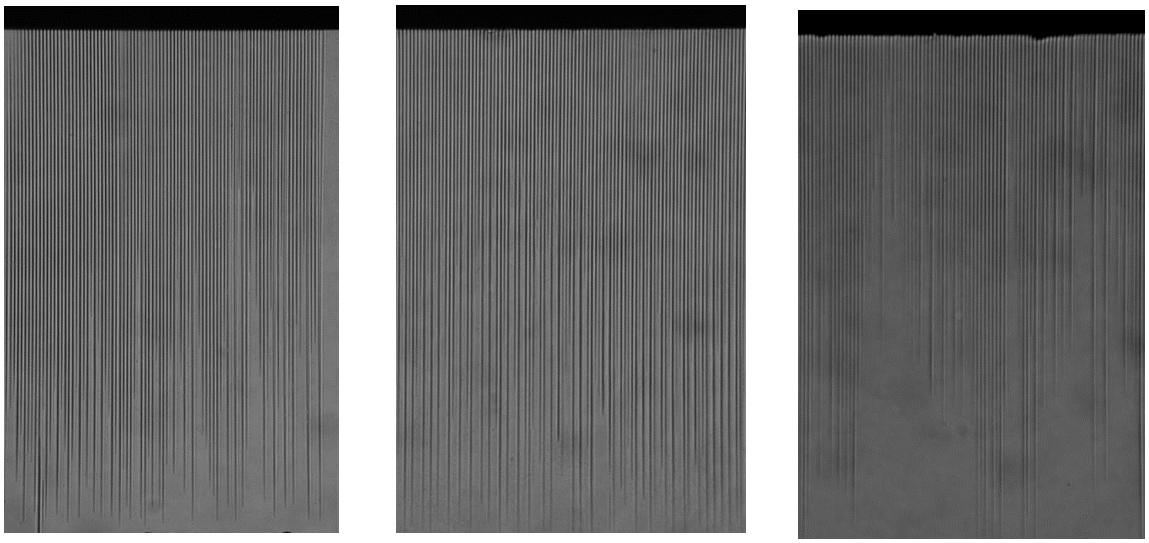
3.3.2.1　発熱制御パルス波形のパルス幅

図 3.6 の波形②を用いて、印加波形のパルス幅を 2msec、5msec、10msec、20msec、100msec と変えて電界印加の検討を行った。パルス幅が 10msec 以上の場合、裏面電極と電界印加治具のコンタクトピンの接触部分に焼け焦げが発生し、裏面電極の一部が消失した。パルス幅が長くなることで発熱量が多くなったためと思われる。一方、パルス幅が短い場合は発熱量（加熱効果）が減少し、分極反転形成が進みにくくなる。分極反転形成の促進と分極反転の均一形成を両立する最適なパルス幅は 5msec（発熱制御パルス 2.5msec、反転形成パルス 2.5msec）であ

ることがわかった。

3.3.2.2　発熱制御パルス波形のパルス間隔

図 3.6 の波形②を用いて、パルス間隔を 15msec、50msec、200msec と変えて形成した周期分極反転の断面写真を図 3.8 に示す。パルス間隔は長くなると分極反転が進みにくくなり、図 3.8 からもわかるように基板内部で分極反転が形成されない箇所が散見され、変換効率が低下する。これより、周期分極反転の均一化の最適パルス間隔は 15msec であった。



（a）15msec　　（b）50msec　　（c）200msec

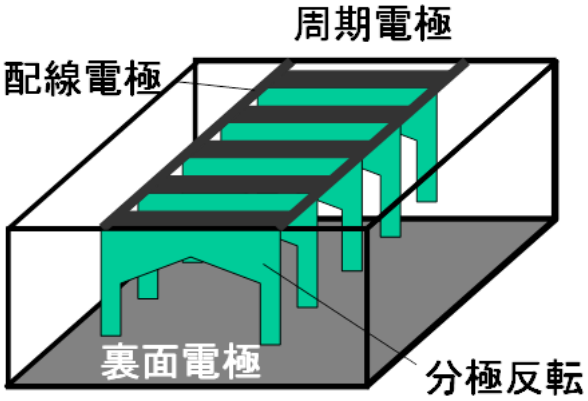
図 3.8　周期分極反転断面写真

3.3.3　裏面電極パターン形成による電界集中の抑制

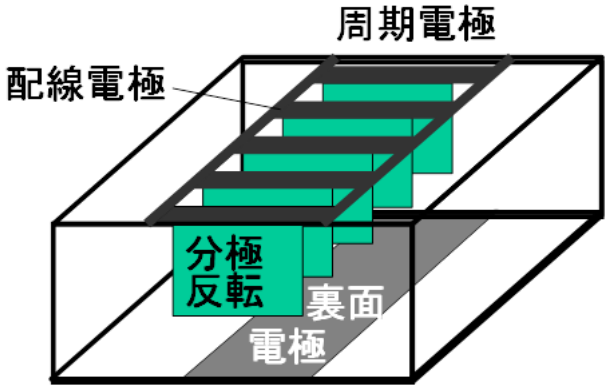
これまでに裏面電極パターン形成はなく、裏面全体に Ta 膜が成膜されている構成となっていた。図 3.9（a）に示すような構成では電界分布の集中する箇所、配線電極端部に分極反転成長が過剰成長し、必要とする周期電極直下の分極反転成長は遅く、分極反転成長に差が生じる。分極反転成長に差が生じることで、周期分極反転構造が不均一化し、変換効率の低下や変換効率のバラツキを招き、SHG デバイスの性能低下を起こしていた。これを回避するために図 3.9（b）のように分極反転過剰成長箇所に対向した裏面電極を取り除き、配線電極端部の電界集中を抑制させることで大面積の周期分極反転構造を均一形成することができる。

図 3.10 に裏面電極をパターンニングしていない場合と裏面電極をパターンニングした場合の分極反転表面写真および変換効率の面内分布を示す。裏面電極をパターンニングしていない場合は表面電極の電極端部に電界が集中するために分極反転が過剰成長し、他の部分は分極反転成長が遅くなる。この結果、基板の面内方向および基板の厚み方向で分極反転が不均一に形成され、変換効率に分布が発生する。裏面電極をパターンニングすることで所望領域のみに分極反転を選択的に形成させることができ、これまで過剰成長していた電極エッジ部分には裏面電極が形成されていないために分極反転は成長しない。その結果、周期電極が形成された箇所に周期分極反転構造を大面積に均一形成させることができる。図 3.10（b）より幅 11mm の領域に均一な周期分極反転構造を形成し、幅方向で分布を持たない変換効率特性を実現することができる。

なお、裏面電極パターン形成を適用することで＋Z 面の周期電極に梯子電極を用いることができるようになり、分極反転の幅方向の大幅な領域拡大を達成することができた。

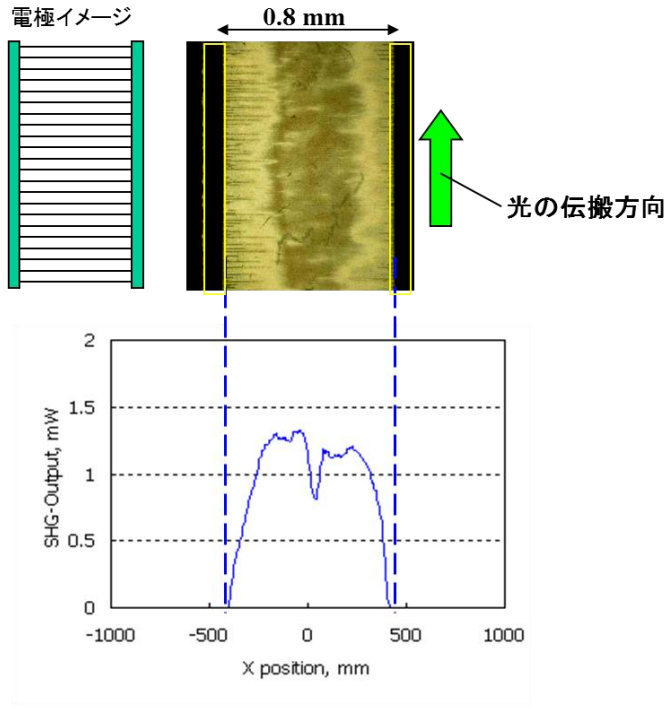


（a）　裏面電極パターン形成なし

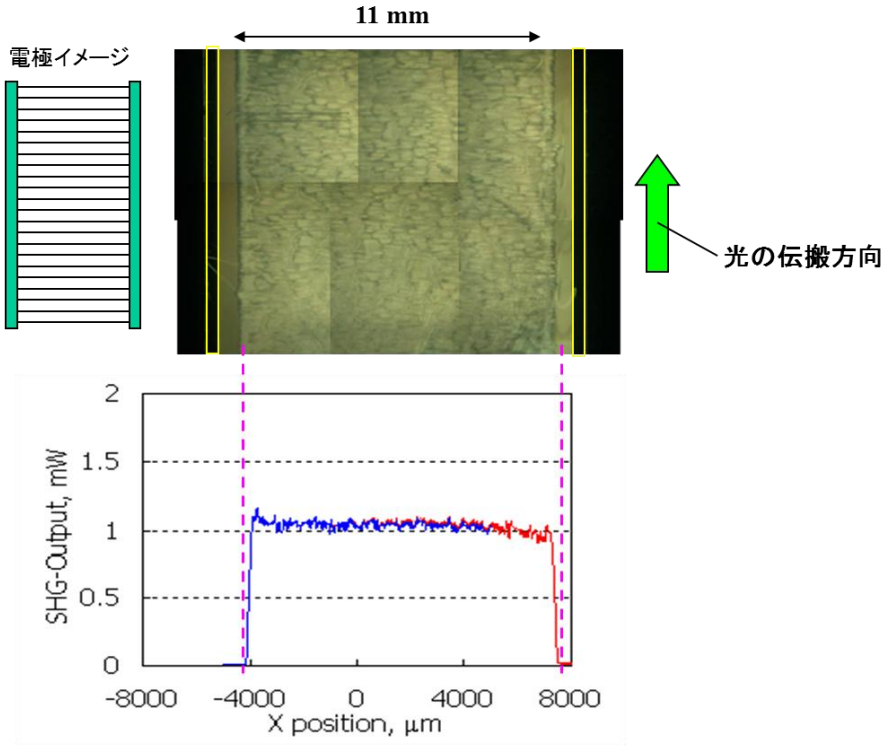


（b）　裏面電極パターン形成あり

図 3.9　裏面電極パターン



（a）　裏面電極パターン形成なし



（b）　裏面電極パターン形成あり

図 3.10　分極反転の表面観察写真と変換効率面内分布

3.4　周期分極反転構造の大面積均一化

3.4.1　緑色光発生用分極反転（周期 6.3μm～8.4μm）

提案した掘り込み電極、発熱制御パルス波形、裏面電極パターンを厚板多重パルス電界印加法に適用し、大面積の緑色光発生用周期分極反転構造の均一形成を試みた。MgLN において、波長 515nm～565nm の緑色光発生に対する分極反転周期は 6.3μm～8.4μm であるが、ここでは波長 542nm の緑色光発生に対する周期分極反転構造（7.38μm）の大面積均一化の検討結果を述べる。

図 3.11 に周期分極反転 Mg 添加 $LiNbO_3$（Periodically Poled MgO:$LiNbO_3$：PPMgLN）（以下、PPMgLN と略す）作製プロセスフローを示す。基板は 1mm 厚 Z 板 5mol%MgLN 結晶を使用した。MgLN の±Z 面に Ta 膜を 100nm 成膜する（a)。次に、フォトリソグラフィーで I 線レジストをパターンニングし、ICP-RIE 装置で掘り込み周期電極を＋Z 面に形成後、裏面電極を掘り込み周期電極の直下のみに形成されるようにパターンニングする（b)。周期分極反転構造の形成は発熱制御パルスによる多重パルス電界印加法を用いた（c)。電界印加条件は印加電圧±5kV、パルス幅 5msec とした。電界印加時の基板温度を上げることで、分極反転閾値電界が低減するため [1)]、絶縁液温度を 120℃とし、電界印加をおこなった。

図 3.12 に作製した PPMgLN（周期 7.38μm）の断面写真を示す。分極反転部の形状観察は結晶断面を鏡面研磨後、60°C フッ硝酸液（HF：HNO_3＝2：1）により 10 分間エッチングすることで可視化した。図 3.12 で示されるように＋Z 面から深さ 0.5mm 付近まで均一なデューティー比を有する周期分極反転構造が得られている。周期方向の分極反転部の幅は 1 次 QPM-SHG 用として、デューティー比 0.5 に制御した。サブミクロンオーダーの分極反転制御が可能な厚板多重パルス電界印加法を用いることで裏面への分極反転の貫通を防止し、デューティー比

0.5 の PPMgLN（周期 7.38μm、長さ 25mm 以上、幅 11mm 以上）を大面積かつ均一に作製することに成功した。

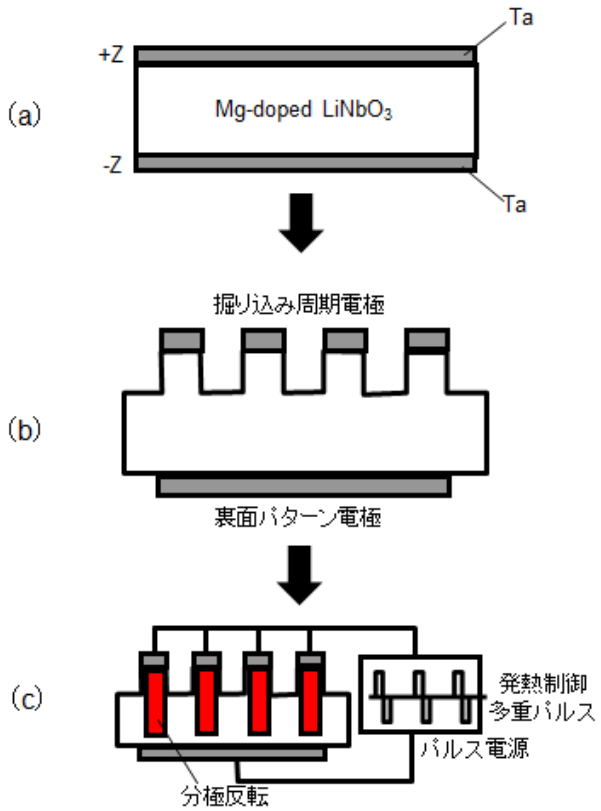


図 3.11　PPMgLN 作製プロセス（周期 7.38μm）

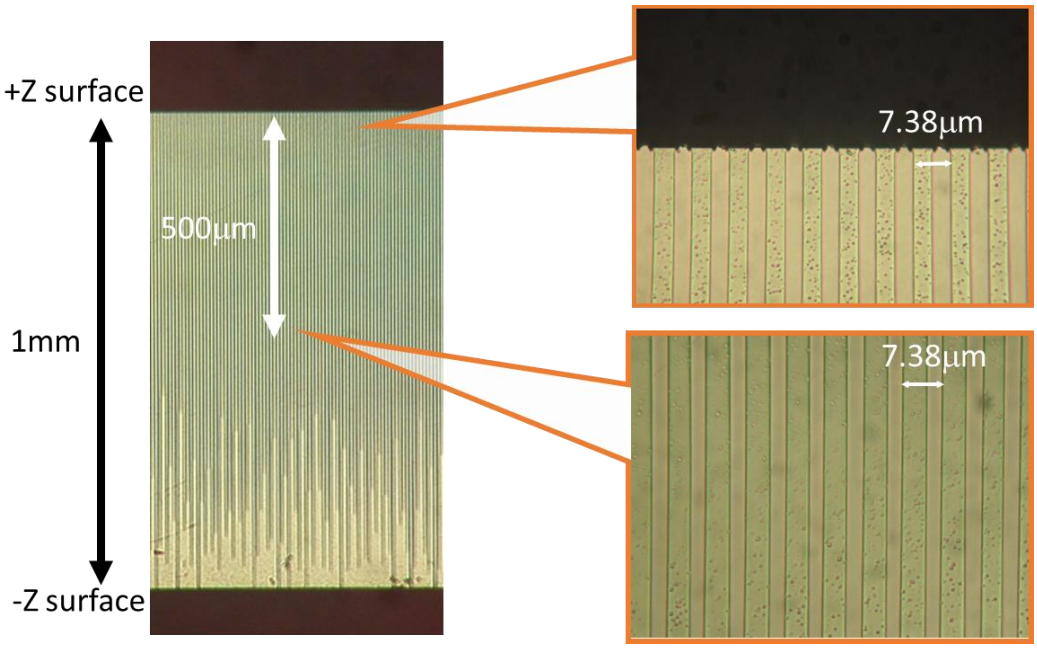


図 3.12　周期分極反転の断面観察結果（周期 7.38μm）

3.4.2　青緑色光発生用分極反転（周期 5.4μm）

周期 5.4μm の掘り込み電極を形成し、青緑色光（490nm）発生用周期分極反転の均一化、長尺化（28mm、60mm）を検討した。周期 5.4μm の分極反転形成により波長 980nm 半導体レーザーを用いたシングルパス構成の小型青緑色光源が実現する。周期 5.4μm の分極反転形成は、図 3.13 に示された交互電極で検討した。

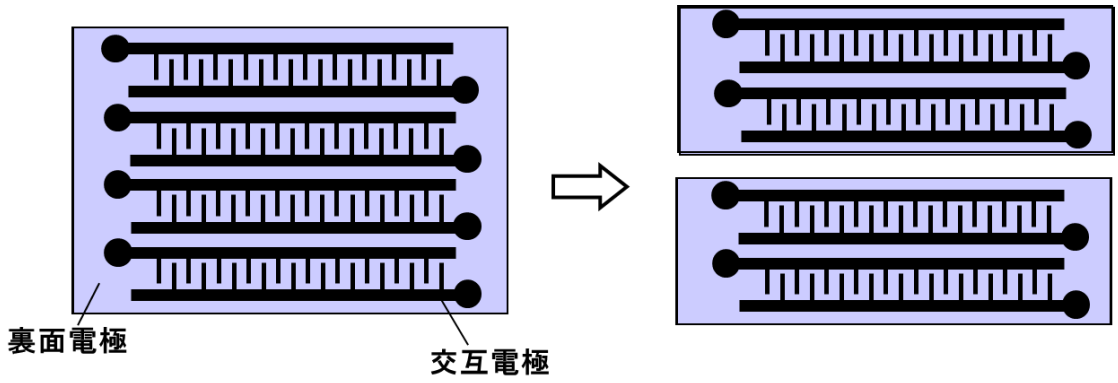
本検討で用いた電極パターンは以下の 3 種類である。

1) 掘り込み深さ 0.6μm、交差幅 200μm、500μm、相互作用長 28mm、60mm

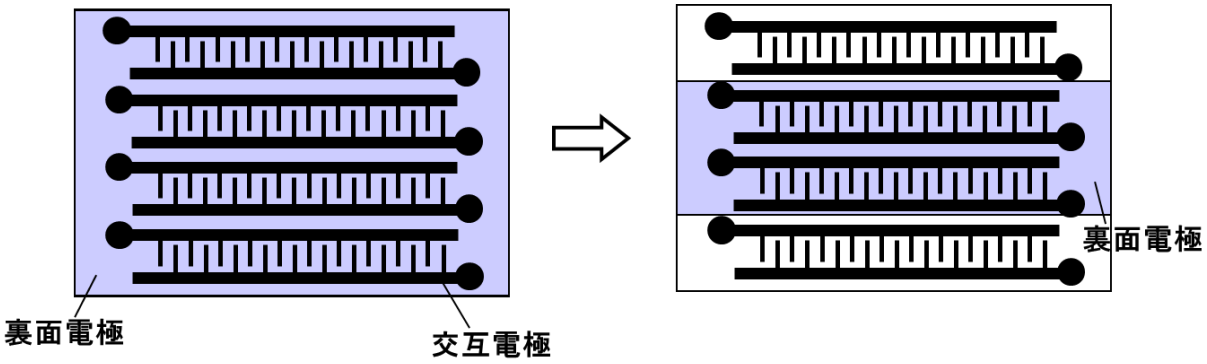
2) 掘り込み深さ 1.5μm、交差幅 200μm、500μm、相互作用長 28mm、60mm

3) 掘り込み深さ 1.3μm、交差幅 800μm、相互作用長 12mm

相互作用長 28mm では、交差幅 200μm、500μm のいずれも交差部分に周期分極反転が形成された。しかし、相互作用長 60mm では交差幅 200μm、500μm ともに交差部分に周期分極反転が形成されなかった。分極反転形成を促進させるために図 3.13 に示すように基板分割と裏面電極減少で長尺化を検討した。その結果、基板分割することで素子長 60mm にわたって分極反転形成を確認し、長尺化に成功した。一方、裏面電極減少による効果は得られず、交差部は不足形成となり、長尺化はできなかった。さらに、掘り込み電極の深堀効果を検証したが、効果は得られなかった。逆に、掘り込み深さを深くすることで、素子長 28mm、60mm において分極反転形成が不足形成であり、素子長全体にわたって交差部分への分極反転形成ができなかった。不足形成の要因は電極幅が広いことによるものと考えられる。短周期ほど電極幅が分極反転形成を阻害する影響が大きくなり、電極幅が広くなると電極間隔が狭く、電気的セパレーションが悪化して分極反転の形成を抑制することになる。周期 5.4μm においても電極幅の狭窄化（1μm 以下）が必要不可欠である。



（a）　基板分割



（b）　裏面電極面積減少

図 3.13　周期 5.4μm の長尺化検討

3.4.3　青色光発生用分極反転（周期 4.2μm～4.3μm）

周期 4.2～4.3μm の掘り込み電極を形成し、波長 456nm の青色光発生用分極反転の均一化を検討した。

図 3.14 の掘り込み櫛型電極による周期分極反転形成について述べる。図 3.14 に示すように、電極形状はコンタクトプローブで導通をとるための電極パッド一対の間に周期電極が形成されている。周期は 4.3μm、相互作用長は 12mm、掘り込み深さは 1.4μm であった。電界印加用アンプにはトレックジャパン製アンプリファイヤ（型番 610 : 出力電圧 10kV、出力電流 2mA）を使用した。設定電圧は±3kV（発熱制御パルス）、設定最大電流値は 2mA とし、パルス幅は 2mec、パルス回数は各 200～1600 回、パルス間隔は 10msec、基板温度は 120℃とした。このとき、相互作用長全体にわたって、最大 130μm の分極反転幅が得られた。

掘り込み電極構造と発熱制御パルス印加により横方向の分極反転成長を抑制することで分極反転幅 130μm が得られ、従来の 60μm に対して 2 倍以上の大面積化を実現した。

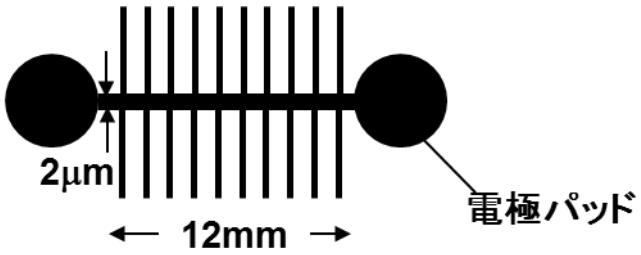


図 3.14　櫛型電極

3.4.4　紫外光発生用分極反転（周期 1.78μm）

周期 1.78μm の掘り込み電極を形成し、紫外光（基本波と高調波の和周波：354nm）発生用短周期分極反転の均一化、領域拡大の検討をおこなった。周期 2μm 以下の短周期では I 線レジスト厚膜化（2.5μm 以上）が困難であるため、レジスト厚を薄くして掘り込み周期電極の形成をおこなった。スピンコート条件は I 線レジスト 65cp に対し、7000rpm×30 秒であり、レジスト膜厚はおよそ 2μm である。レジスト膜厚とサイドエッチング量を考慮して、ICP-RIE 装置のエッチング時間を減らして 30 分とした（通常のエッチング時間は 60～70 分）。エッチング時間 30 分で得られた MgLN 基板の掘り込み深さは 0.6μm であった。

作製した短周期掘り込み電極構造を用いて周期 1.78μm の分極反転形成を検討した。短周期では、横方向（X 方向）の成長が非常に速く、周期構造が不均一になりやすいため、横方向の成長を抑制することが極めて重要である。周期 1.78μm では横方向の分極反転広がりが速いために周期構造の形成が困難でこれまでに得られた分極反転幅は最大 17μm であった。そこで、横方向の成長を抑制するために基板温度を 120℃、100℃、印加波形を発熱制御パルス（図 3.15（a））、通常パルス（図 3.15（b））として分極反転形成を比較した。

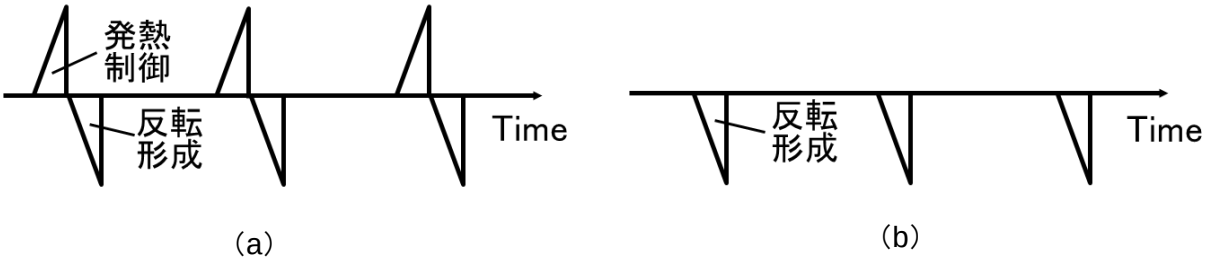


図 3.15　電界印加パルス波形
（a）発熱制御パルス　（b）通常パルス

基板温度 120℃、発熱制御パルスで形成した場合、横方向の成長が過剰になり、分極反転の周期構造は得られなかった。一方、基板温度 100℃、通常パルスで形成すると、分極反転幅 30～40μm、相互作用長 10mm の均一な周期分極反転が得られた。このときの設定電圧は-10kV、最大電流値は 0.6mA、パルス幅は 1msec、パルス回数は 1600 回であった。この条件で分極反転形成の再現性を確認した。分極反転幅 20μm 程度の均一形成は確認できたが、分極反転幅 30～40μm、相互作用長 10mm を均一かつ安定に形成することはできなかった。

周期 1.78μm を大面積かつ均一に安定して形成するためには、掘り込み深さ、電極形状、設定電圧が重要な要素であると考えられる。掘り込み深さは、現状のプロセスでは 0.5μm 程度が限界で、周期 4μm 以上のように掘り込み深さ 1μm 以上の掘り込み電極形成プロセスが確立されていない。掘り込み深さが深くなると電界のセパレーションが良くなるために横方向の過剰成長が抑制されると考えられ、電極を深く掘りこむためのプロセスを確立することが必要となる。櫛型電極は中央部の電極幅が分極反転の均一化に影響をおよぼすことが周期 7.4μmの検討で明らかになっている。櫛型電極の中央電極幅の最適化により、安定した周期分極反転の均一形成が実現できると思われる。また、本検討では設定電圧を 10kV としており、分極反転閾値電圧 V_{th}=2kV（2kV/mm@120℃、1mm 基板）に比べて高い値に設定している。設定電圧を最適化することで横方向の過剰成長を抑制できると考えられる。

3.5　定比組成材料への周期分極反転構造形成

定比組成の $LiNbO_3$、$LiTaO_3$ は一致溶融組成の $LiNbO_3$、$LiTaO_3$ に比べて分極反転閾値電界が低く、一致溶融組成 $LiNbO_3$ が 21kV/mm に対して、定比組成 $LiNbO_3$ の分極反転閾値電界はそれの 1/4 以下、あるいは二桁程度も低いと報告されている [2,3]。分極反転閾値電界が低いことで低電圧印加による分極反転形成が可能となり、安定に周期分極反転構造を形成できることが期待される。さらに、Mg を添加することで一致溶融組成と同様に高耐光性を有することで安定した高効率・高出力波長変換を実現することができる。

高効率波長変換を目的として Mg 添加定比組成 $LiNbO_3$、高出力波長変換を目的として Mg 添加定比組成 $LiTaO_3$ を用いて、それぞれの分極反転特性と周期分極反転構造の均一化について述べる。

3.5.1　Mg 添加定比組成 $LiNbO_3$ への周期分極反転構造形成

Mg 添加定比組成 $LiNbO_3$（Mg-doped Stoichiometric $LiNbO_3$：MgSLN）は、Mg 添加一致溶融 $LiNbO_3$（本論文では Mg 添加 $LiNbO_3$ もしくは MgLN と呼ぶ）よりも短い波長域を透過し、耐光損傷特性に優れた非線形光学材料である [4]。MgSLN の周期分極反転形成により、室温動作、小型かつ高出力の CW 光源が実現できることが期待され、近年さまざまな研究機関で MgSLN の分極反転形成に関する開発が行われている。2001 年に初めて 1mol%MgSLN の周期分極反転の形成が周期 30μm で報告され、赤外光のパルス発生を行っている [5]。さらに 2003 年には周期 20μm の分極反転形成により、高い非線形定数（d_{33}=42pm/V）が得られている [6]。短周期化では、VTE 法で作製した 1.8mol%MgSLN を用いて周期 7.8μm を実現している [7]。しかしながら、均一

性に関しては、位相整合特性、入出力特性の結果より、理論値に近い値が得られておらず、MgSLN における均一な短周期分極反転の形成に課題があった。前述した厚板多重パルス電界印加法を用いた 1.8mol%MgSLN への短周期分極反転の均一化に関して述べる。

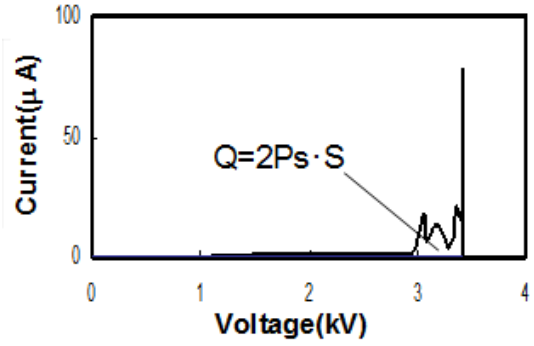
Mg 添加定比組成 $LiNbO_3$（Mg-doped Stoichiometric $LiNbO_3$：MgSLN）は、短波長透過特性、および耐光損傷特性に優れた非線形光学材料である。しかしながら、MgSLN は Mg 添加一致溶融 $LiNbO_3$（MgLN）と同様に、ノンドープ LN や LT に比べて分極反転成長を制御することが難しく、短周期分極反転における正確なデューティー比制御は難しかった。

MgSLN の分極反転メカニズムを解明するためにノンドープ LN、MgLN、MgSLN の電気特性（電流電圧特性）を比較した。電極面積 $1mm^2$ 程度の平面電極を Z 板ノンドープ LN（0.15mm 厚）、Z 板 5mol%MgCLN（1mm 厚）および Z 板 1.8mol%MgSLN（1mm 厚）の±Z 面に形成し、自発分極に対向する直流電界を絶縁液中（室温）で印加した。図 3.16 に印加電圧と分極反転時に流れる反転電流の測定結果を示す。（a）はノンドープ LN、（b）は 5mol%MgLN、（c）は 1.8mol％MgSLN の場合である。ノンドープ LN の場合、分極反転閾値電界（20kV/mm : 図 3.16 では印加電圧 3kV）を超えると電流が流れ、その後電流値は減少し、電極下の分極反転形成が終了すると電流値はゼロになった。MgLN は分極反転閾値電界（3.9kV/mm：図 3.16 では印加電圧 3.9kV）に到達すると同時に電流が流れはじめ、その後、電流の減少は見られなかった。MgSLN も分極反転閾値電界（3.5kV/mm：図 3.16 では印加電圧 3.5kV）に到達すると同時に電流が流れはじめ、その後、電流の減少は見られなかった。

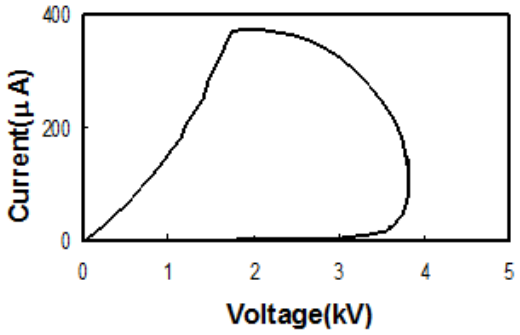
一般的に、強誘電体における分極反転による電荷の移動は内部電荷と表面電荷の合計で表され、分極反転した面積を S とすると移動電荷量 Q は、$Q=2Ps\times S$（Ps は自発分極の値）の関係が成り立つ[8]。（a）の場合、ノンドープ LN の $Ps=70\mu C/cm^2$[9]から計算して、約 $1mm^2$ の分極反転部を形成するための電荷量は $Q=0.7\mu C$ であり、電流波形から得られた電荷量とほぼ一致した。一方、（b）および（c）の場合、MgLN の $Ps=80\mu C/cm^2$ [10]に対して、電極面積の 10 倍以上の分極反転が形成可能な電荷量を供給したことになる。しかしながら、形成された

分極反転面積は電極とほぼ同程度であった。

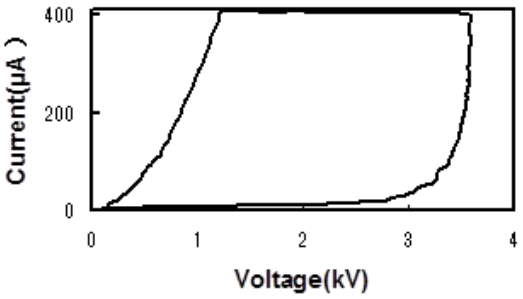
以上の実験結果より MgSLN は MgLN と同様に分極反転形成時に大きな漏れ電流が流れていることが確認された。MgSLN もこれまでに MgLN で述べた漏れ電流による不均一形成メカニズムを適用することができる。すわなち、＋Z 面電極下に発生した分極反転核が－Z 方向に分極反転が成長し、一部が－Z 面（基板裏面）に貫通し、貫通した分極反転部分に電流が集中し、電流集中部分において局所的に分極反転が拡大することで不均一化する。



（a）



（b）



（c）

図 3.16　分極反転の電圧電流特性

(a)ノンドープ $LiNbO_3$　(b)MgLN　(c)MgSLN

貫通分極反転部分への電流集中を回避するために分極反転の裏面への貫通を防止する厚板多重パルス電界印加法を MgSLN に適用した。図 3.17 に周期分極反転 Mg 添加定比組成 $LiNbO_3$（Periodically Poled Mg-doped Stoichiometric $LiNbO_3$: PPMgSLN）の作製プロセスフローを示す。基板は 1mm 厚 Z 板 1.8mol%MgSLN 結晶を使用した。MgSLN の＋Z 面に Ta 膜を 100nm 成膜する。次に、フォトリソグラフィー、ドライエッチングにより、周期電極を＋Z 面に形成する（a)。＋Z 面に電極カバーとして SiO_2 膜を 200nm 成膜し、裏面電極として－Z 面に Ta 膜を 100nm 成膜する（b)。分極反転形成は前述の多重パルス電界印加法を用いた（c)。電界印加条件は印加電圧 2.5kV、パルス幅 1msec とした。電界印加時の基板温度を上げることで、分極反転閾値電界が低減するため [1)]、絶縁液温度を 120℃とし、電界印加をおこなった。

図 3.18 に作製した PPMgSLN（周期 6.95μm）の断面写真を示す。分極反転部の形状観察は結晶断面を鏡面研磨後、60℃フッ硝酸液（HF：HNO_3＝2：1）により 10 分間エッチングすることで可視化した。図 3.17 で示されるように＋Z 面から深さ 0.3mm 付近まで均一なデューティー比を有する周期分極反転構造が得られている。また、深さ方向の分極反転成長を 0.3～0.8mm に抑制し、裏面への分極反転の貫通は確認されなかった。周期方向の分極反転部の幅は 2 次 QPM-SHG 用として、デューティー比 0.25 に制御した。多重パルス電界印加法を用いることで裏面への分極反転の貫通を防止し、均一なデューティー比を有する PPMgSLN（周期 6.95μm、長さ 10mm 以上）を作製することに成功した。

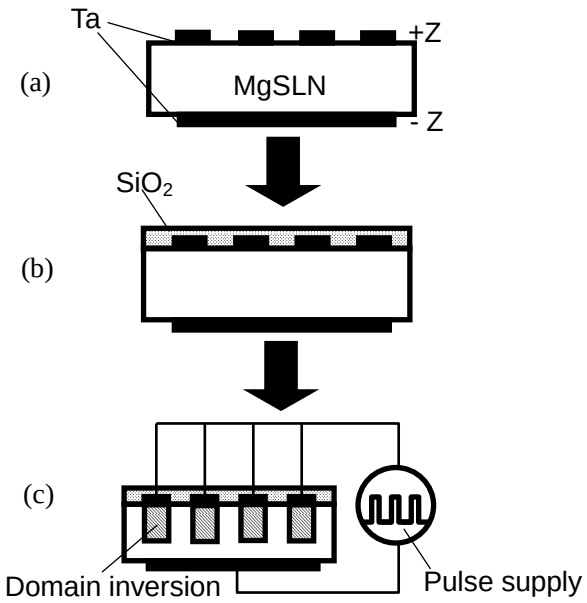


図 3.17　PPMgSLN 作製プロセス

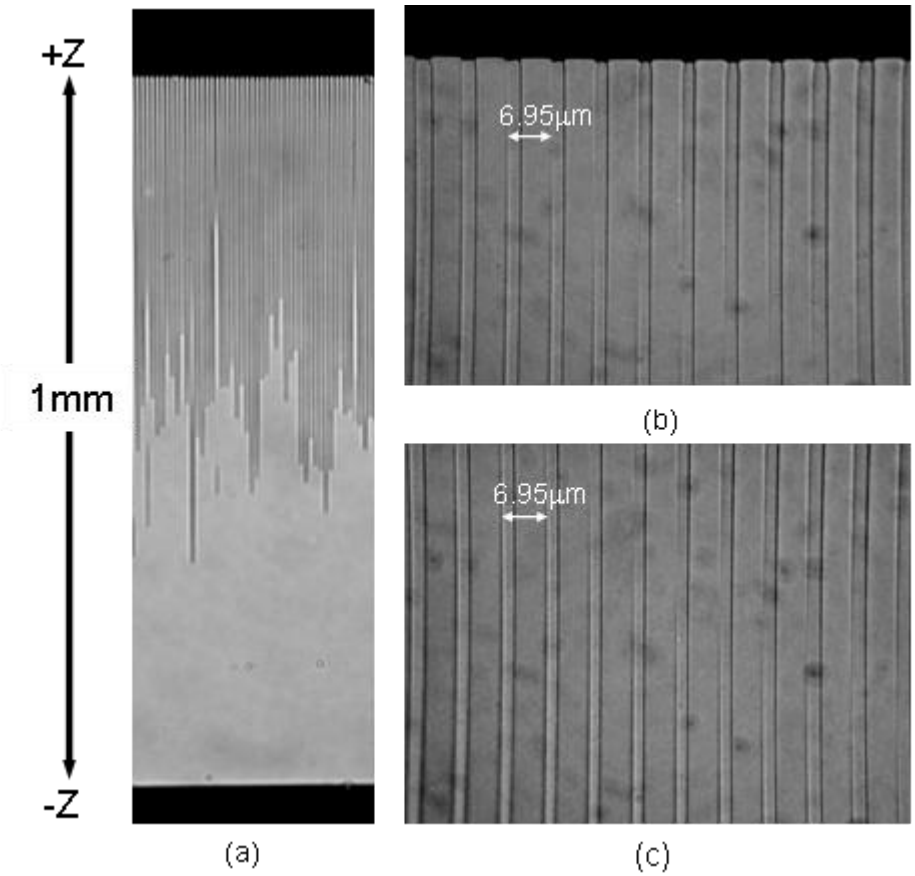


図 3.18　PPMgSLN（周期 6.95μm）の分極反転断面顕微鏡写真
（a）基板全体、（b）基板表面、（c）深さ 0.3mm

3.5.2　Mg 添加定比組成 $LiTaO_3$ への周期分極反転構造形成

Mg添加定比組成$LiTaO_3$（Mg-doped Stoichiometric $LiTaO_3$：MgSLT）は非線形光学定数が大きく、高出力耐性に優れ、MgLNに比べて高出力時の光吸収量が1/10～1/100と報告されており、高出力波長変換に適した有望な材料として注目されている[11-15)]。

MgSLT への周期分極反転形成を目的として、MgSLT の分極反転形成時の電気特性を取得し、電気特性を基に、電荷量制御により MgSLT の周期分極反転構造を形成した結果を述べる。

図 3.19 に MgSLT の分極反転形成時の電流時間特性を示す。電流は印加開始から 3msec で最大値 5300μA となり、電荷量が 20μC に到達した時点（14msec）で電界印加を停止させた。分極反転した面積を *S* とすると移動電荷量 *Q* は、*Q=2Ps*×*S*（*Ps* は自発分極の値）の関係が成り立つため、定比組成 $LiTaO_3$ の自発分極の大きさ 56μC/cm^2 [16,17)]と分極反転面積から電荷量を計算すると電流波形から算出した電荷量 20μC とほぼ一致した。これより、MgSLT は一般的な強誘電体材料と同様に分極反転形成を電荷量で制御することが可能であると言える。また、分極反転形成時の MgSLT の電気抵抗低下はなく、漏れ電流は極めて小さい。

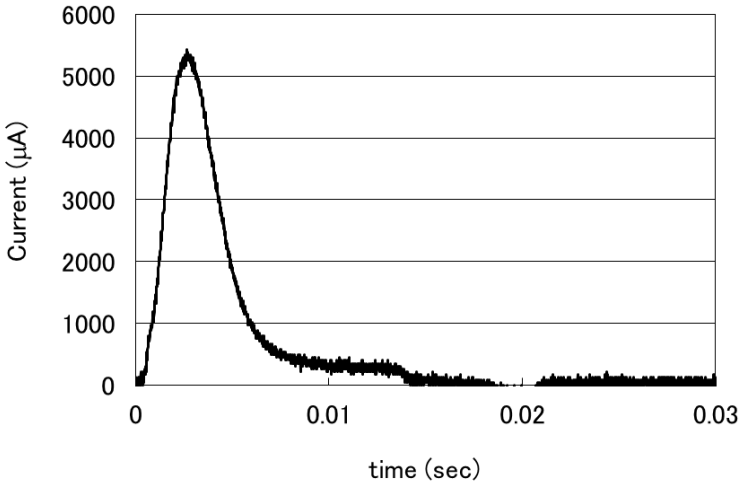


図 3.19　MgSLT の分極反転形成時の電流時間特性

図 3.20 に周期分極反転 Mg 添加定比組成 $LiTaO_3$（Periodically Poled Mg-doped Stoichiometric $LiTaO_3$：PPMgSLT）の作製プロセスフローを示す。基板は 0.5mm 厚の Z 板 MgSLT 結晶を使用した。MgSLT 基板の表面（＋Z 面）と裏面（－Z 面）に Ta 膜をスパッタリングにより 100nm 成膜する。分極反転は核が＋Z 面で形成された後、－Z 面方向に成長するので、より均一な周期分極反転構造を作製するには＋Z 面に周期電極パターンを形成するのが望ましく、フォトリソグラフィー、ドライエッチングにより＋Z 面に周期電極パターンを形成した。表裏面の電極間に結晶の自発分極と対向する電界を印加することで結晶内部に周期分極反転構造を作製した。このときの印加電圧は 400V、基板温度は 25°C とした。作製した SHG デバイスの分極反転構造を確認するために SHG デバイスの断面を光学研磨し、60℃フッ硝酸液（$HF : HNO_3$＝2：1）で 10 分間のエッチングを行うことで可視化した。図 3.21 に PPMgSLT の断面写真を示す。周期 8.0μm、長さ 30mm の周期分極反転がデューティー比 50%で均一に形成されていることが確認できた。

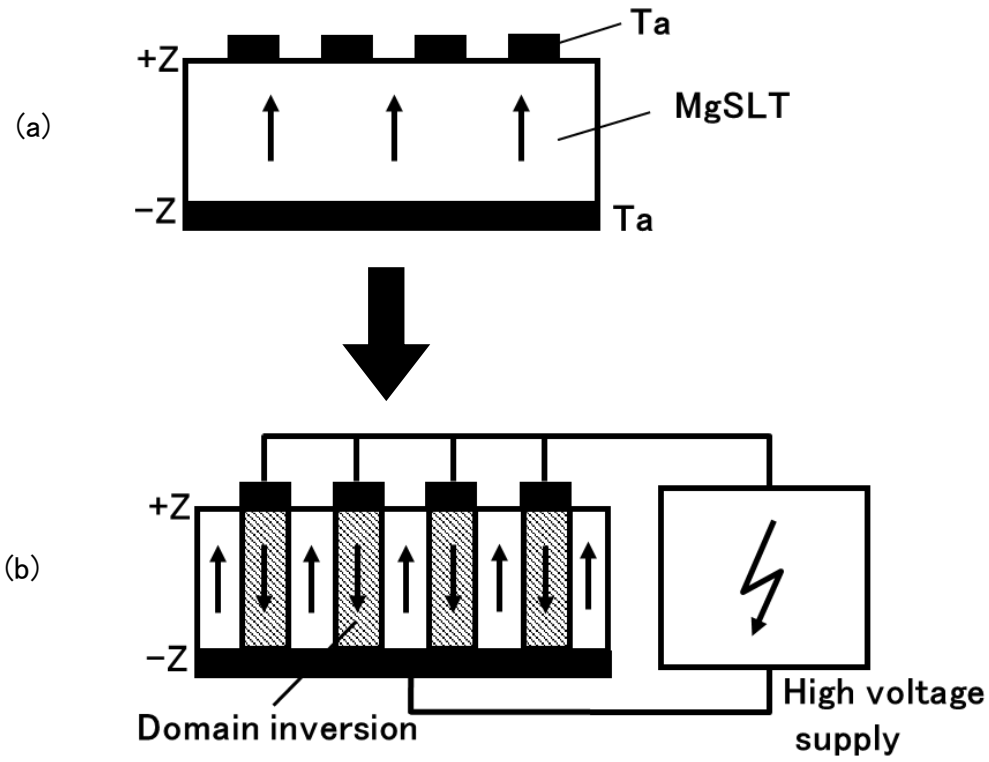


図 3.20　PPMgSLT 作製プロセス

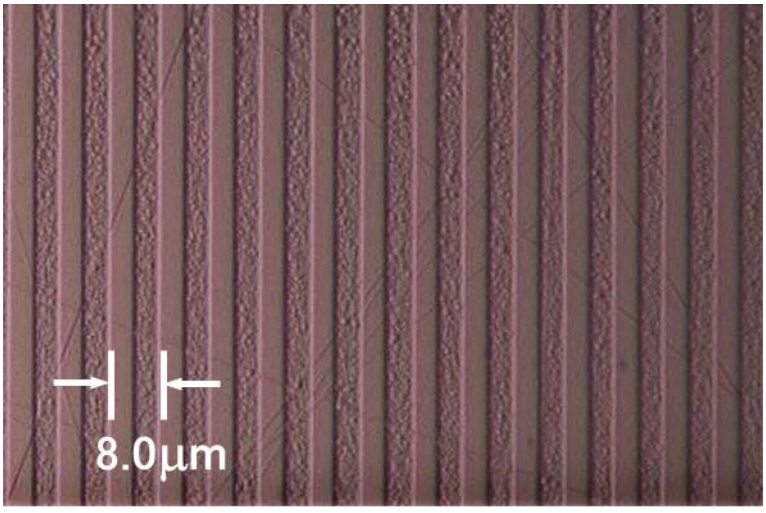


図 3.21　PPMgSLT（周期 8.0μm）の分極反転断面顕微鏡写真

3.6 まとめ

高輝度レーザーディスプレイ用の高出力緑色・青色波長変換デバイスの実現を目的として、サブミクロンオーダーの分極反転制御可能な多重パルス電界印加法に掘り込み電極、発熱制御パルス印加、裏面パターン電極を加えた周期分極反転形成技術を開発した。分極反転形成時の発熱を掘り込み電極で空間的に制御し、発熱制御パルス波形で時間的に制御し、配線電極端部の電界集中を裏面電極パターンで抑制することで MgLN において周期分極反転構造（周期 1.78～7.38μm）の大面積均一化を実現した。これにより、緑色光発生用分極反転（周期 7.38μm）では相互作用長 25mm 以上、領域幅 11mm 以上、青緑色光発生用分極反転（周期 5.4μm）では相互作用長 60mm、青色光発生分極反転（周期 4.3μm）では相互作用長 12mm、領域幅 130μm、紫外光発生分極反転（周期 1.78μm）では相互作用長 10mm、領域幅 40μm の周期分極反転構造を均一形成することに成功した。

作製が極めて困難であった MgLN への均一かつ大面積の短周期分極反転に成功したことで紫外～可視波長域の高効率 QPM-SHG デバイスとファイバーレーザーや固体レーザーと組み合わせることで、高効率・高出力の緑色レーザー光源、青色レーザー光源、紫外レーザー光源が実現され、高輝度レーザーディスプレイ、次世代光メモリ、レーザー加工等への応用が期待される。

さらに、分極反転閾値電界が低く、高耐光性を有する定比組成材料（MgSLN、MgSLT）への周期分極反転構造の形成を試みた。MgSLN は MgLN と同様に分極反転形成時に大きな漏れ電流が流れていることが確認され、厚板パルス電界印加法を適用することで裏面への分極反転の貫通を防止し、均一なデューティー比を有する PPMgSLN（周期 6.95μm、長さ 10mm 以上）を作製することに成功した。

一方、MgSLT は分極反転形成時の電気抵抗低下はなく、漏れ電流は極めて小さいため、電

荷量制御による分極反転形成が可能であることを明らかにし、周期 8.0μm、デューティー比 0.5 の分極反転構造を長さ 30mm にわたり形成することでサブミクロン分極反転制御により、周期分極反転構造の大面積均一化を実現した。

参考文献

1) H.Ishizuki, T.Taira, S.Kurimura, J.H.Ro, and M.Cha: Jpn.J.Phys.42 (2003) L108.

2) V.Gopalan, T.E.Mitchell, Y.Furukawa, and K.Kitamura: Appl. Phys. Lett. 72 (1998) 1981.

3) A.Grisard, E.Lallier, K.Polgar, and A.Peter: Electron.Lett.36 (2000) 1043.

4) Y.Furukawa, K.Kitamura, A.Alexandrovski, R.K.Route, M.M.Fejer, and G.Foulon: Appl. Phys. Lett.78 (2001) 1970.

5) L.Huang, D.Hui, D.J.Bamford, S.J.Field, I.Mnushkina, L.E.Myers, and J.V.Kayser: Appl. Phys.B.72 (2001) 301.

6) T.Andres, P.Haag, S.Zelt, J.-P.Meyn, A.Borsutzky, R.Beigang, and R.Wallenstein: Appl. Phys. B.76 (2003) 241.

7) Y.-H.Chen, J.-H.Yao, B.-X.Yan, H.-L.Deng, Y.-F.Kong, S.-L.Chen, J.-J.Xu, and G.-Y.Zhang: Opt.Commun.224 (2003) 149.

8) K.Kintaka, M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara: J.Lightwave Technol.14 (1996) 462.

9) K.Kintaka, M.Fujimura, T.Suhara, and H.Nishihara: Electron.Lett.32 (1996) 2237.

10) A.Kuroda, S.Kurimura, and Y.Uesu: Appl. Phys. Lett.69 (1996) 1565.

11) S.V.Tovstonog, S.Kurimura, I.Suzuki, K.Takeno, S.Moriwaki, N.Ohmae, N.Mio, and T. Katagai : Opt. Express 16(2008)11294.

12) G.K.Samanta, S.Chaitanya Kumar, and M.Ebrahim-Zadeh: Opt. Lett. 34(2009)1561.

13) S.Chaitanya Kumar, G.K.Samanta, and M.Ebrahim-Zadeh: Opt. Express 17(2009)13711.

14) H.H.Lim, T.Katagai, S.Kurimura, T.Shimizu, K.Noguchi, N.Ohmae, N.Mio, and I.Shoji: Opt. Express 19(2011)22588.

15) H.H.Lim, S.Kurimura, K.Noguchi, and I.Shoji: Opt. Express 22(2014)18268.

16) K.Kitamura, Y.Furukawa, K.Niwa, V.Gopalan, and T.E.Mitchell: Appl. Phys. Lett. 73 (1998) 3073.

17) T.Hatanaka, K.Nakamura, T.Taniuchi, H.Ito, Y.Furukawa, and K.Kitamura: Opt. Lett. 25 (2000) 651.

第 4 章　周期分極反転 SHG デバイスを用いた第二高調波発生

4.1　はじめに

第 3 章では、厚板多重パルス電界印加法に掘り込み電極、発熱制御パルス波形、裏面電極パターン形成を適用することで Mg 添加 $LiNbO_3$ における周期分極反転構造の大面積均一化を実現し、紫外光発生、青色光発生、青緑色光発生、緑色光発生用の周期分極反転構造の大面積均一化を実証した。

本章では、周期分極反転構造を有した SHG デバイスを用いて紫外光、青色光、緑色光の高効率波長変換、緑色光の高出力波長変換として第二高調波発生を検証する。

4.2　高効率紫外光発生

DNA 鑑定、蛋白質等の構造解析をはじめとするバイオの研究開発、露光、ホログラム記録、加工、計測等の幅広い分野において、紫外レーザー光源に多くの需要がある。しかしながら、紫外光発生用の高効率 SHG デバイスは実存しないため、高出力紫外レーザー光源を実現するには高出力かつ大型の基本波光源を必要としていた。

高効率紫外光発生用 SHG デバイスにより、前述した用途に適用可能な小型軽量の紫外レーザー光源を実現できるため、Mg 添加 $LiNbO_3$（MgLN）における周期分極反転構造をサブミクロン制御することで高効率紫外光発生用 SHG デバイスの作製を検討した。

図 4.1 に紫外光発生のための SHG デバイス（分極反転周期 1.4μm）の作製プロセスを示す。基板は 2mm 厚 Z 板 5mol%Mg 添加 $LiNbO_3$ 結晶を使用した。MgLN の＋Z 面に Ta 膜を 100nm 成膜する。次に、フォトリソグラフィー、ドライエッチングにより、周期電極を＋Z 面に形成する（a)。＋Z 面に電極カバーとして SiO_2 膜を 300nm 成膜し、裏面電極として－Z 面に Ta 膜

を 100nm 成膜する（b)。分極反転形成は前述した多重パルス電界印加法を用いる（c)。電界印加条件は印加電圧 10kV、パルス幅 1msec である。電界印加中の基板温度を上げることで分極反転閾値電界を 5kV/mm 以下に低減し、厚板結晶においても高電圧印加による結晶損傷を回避できるため[1)]、絶縁液（フッ素系不活性液体:フロリナート）を加熱することで基板温度を 100℃としている。

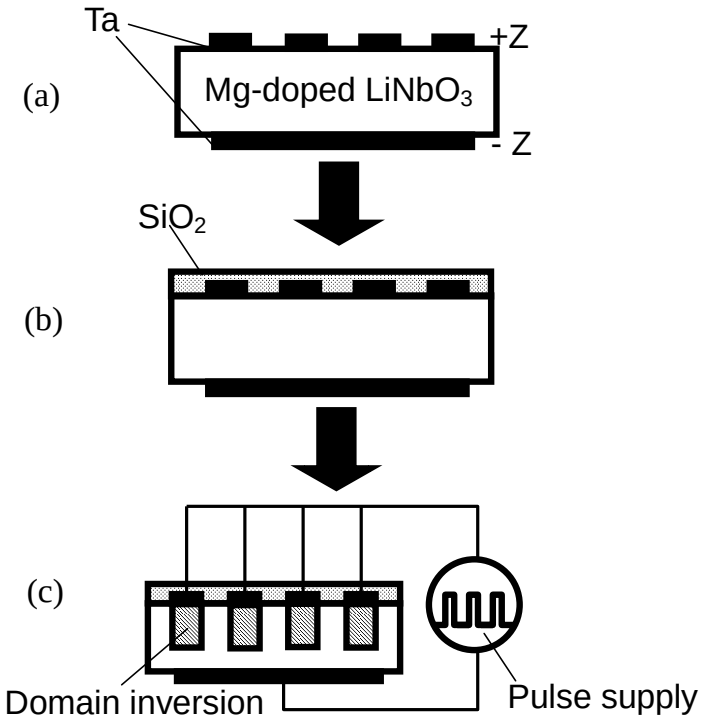


図 4.1　厚板多重パルス電界印加法を用いた紫外 SHG デバイス作製プロセス

図 4.2 に作製した周期 1.4μm の分極反転断面写真を示す。分極反転部の形状観察は結晶断面を鏡面研磨後、60℃フッ硝酸液（HF：HNO_3＝2：1）により 5～10 分間エッチングすることで可視化している。＋Z 面から深さ 0.2mm 付近まで均一な分極反転が得られている。また、深さ

方向の分極反転成長は 0.2～0.5mm に抑制され、裏面への分極反転の貫通を抑制している。周期方向の分極反転幅は 0.8μm 程度であり、Z 板 MgLN において初めてサブミクロンオーダーの分極反転幅の制御に成功した。提案した厚板多重パルス電界印加法を用いることで、裏面への分極反転の貫通を防止し、MgLN の最短周期（1.4μm）の分極反転を 10mm 以上の長さに渡って均一に形成することが可能となった。

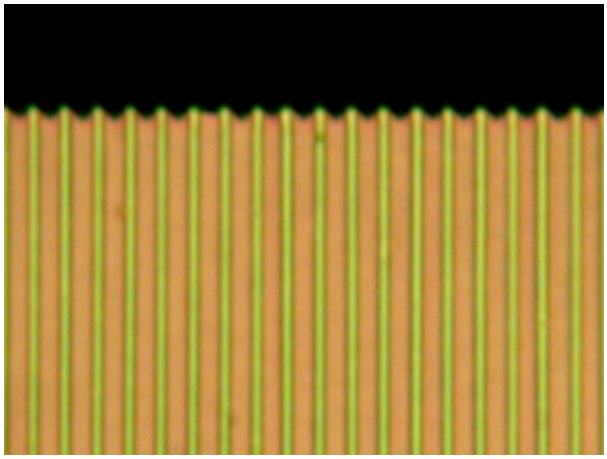
また、多重パルス電界印加法を用いて、周期 1.4～2.4μm、相互作用長 10mm の周期分極反転構造を有する紫外光発生 SHG デバイスを作製し、その特性を評価した。基本波に連続波発振の $Ti:Al_2O_3$ レーザーを用いて、シングルパス波長変換により、SHG デバイスの特性を室温で評価した。図 4.3 に評価系と評価結果を示す。集光レンズの焦点距離は 48mm であり、この時のビームウエストは半値全幅で約 20μmϕであった。周期 1.4μm の SHG デバイスでは、波長 685nm の基本波に対しピーク出力が得られた。最大出力は 3.5mW、このときの基本波の出力は 192mW、フレネル反射を考慮する変換効率は 8.6%/W、変換効率から計算した実効非線形定数 d_{eff} は 13pm/V で、バルク型 PPMgLN における高効率 342nm 紫外光発生に成功した。

周期 1.4～2.4μm の SHG デバイスにおける紫外光出力は $Ti:Al_2O_3$ レーザーの最大入力パワーに依存しており、基本波入力パワーが最も高い基本波波長 744nm において紫外光出力（波長 372nm）はシングルパス発生で 72mW、このときの基本波出力は 622mW、変換効率は 16.7%/W であった。実効非線形定数 d_{eff} は 20.6pm/V（理論値 d_{eff}=21.6pm/V ;$d_{eff}=2/\pi\times d_{33}$ [2]、d_{33}= 34pm/V）は、紫外光領域において、今までに非線形材料で得られた最大の値であり、理想的な周期分極反転構造が素子全体に渡り均一に形成されていることを示している。

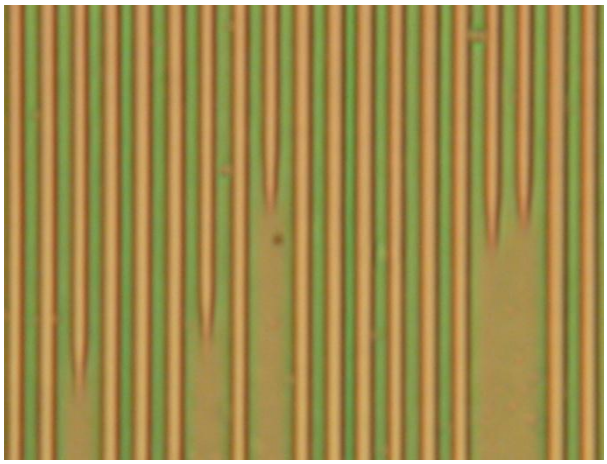
第二高調波出力は基本波出力の二乗に比例し、光損傷のない安定かつ高効率な紫外光発生を確認した。得られた変換効率は従来の紫外用波長変換素子の効率に対し二桁高い値であり、紫外域で初めて高効率な波長変換に成功した。

図 4.4 は波長と変換効率の関係をプロットしたものである。実線は d_{eff}=21.6pm/V としたときの変換効率の理論値である。波長 362nm 以上では、ほぼ理論値に近い値を示しており、分極

反転周期 1.8μm 以上（波長 362nm 以上）では理想的な周期分極反転構造が実現されている。波長 355nm 以下では実験値は理論値に比べ低下している。この原因は周期分極反転構造におけるデューティ比が 0.5 からずれてきている、および結晶の吸収端に近づくため結晶内での高調波の吸収ロスが増大して結晶外に放射されていないと考えられる。

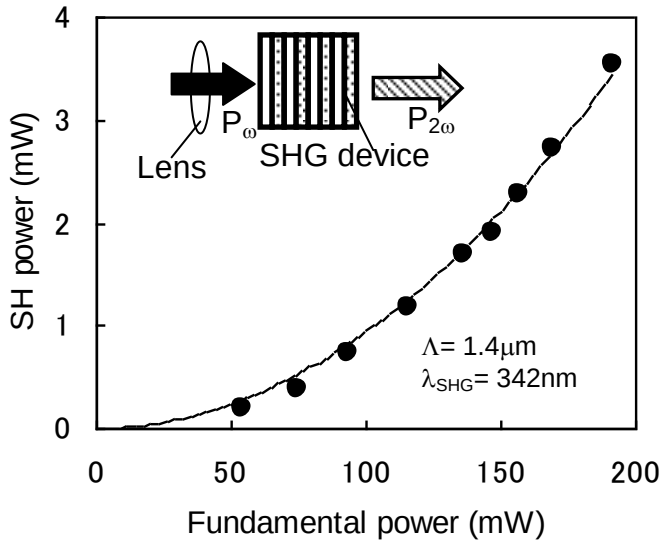


（a）

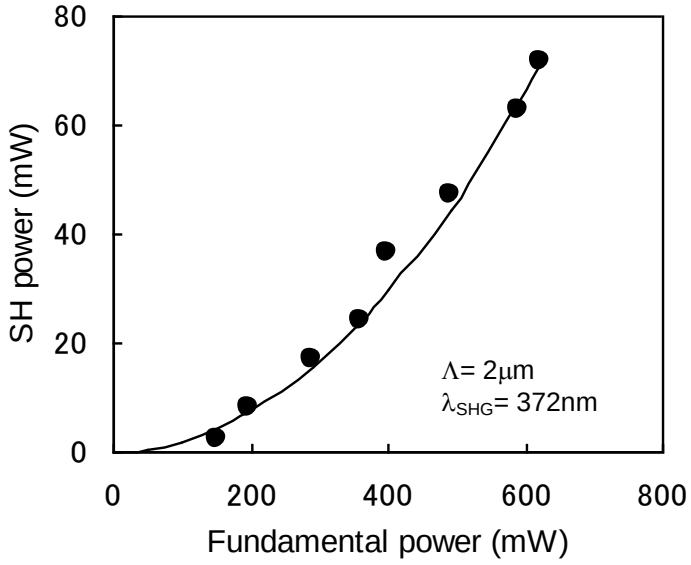


（b）

図 4.2　周期 1.4μm の分極反転断面写真
（a）表面近傍　（b）深さ 0.2mm



(a)



(b)

図 4.3 基本波入力と紫外光出力の関係

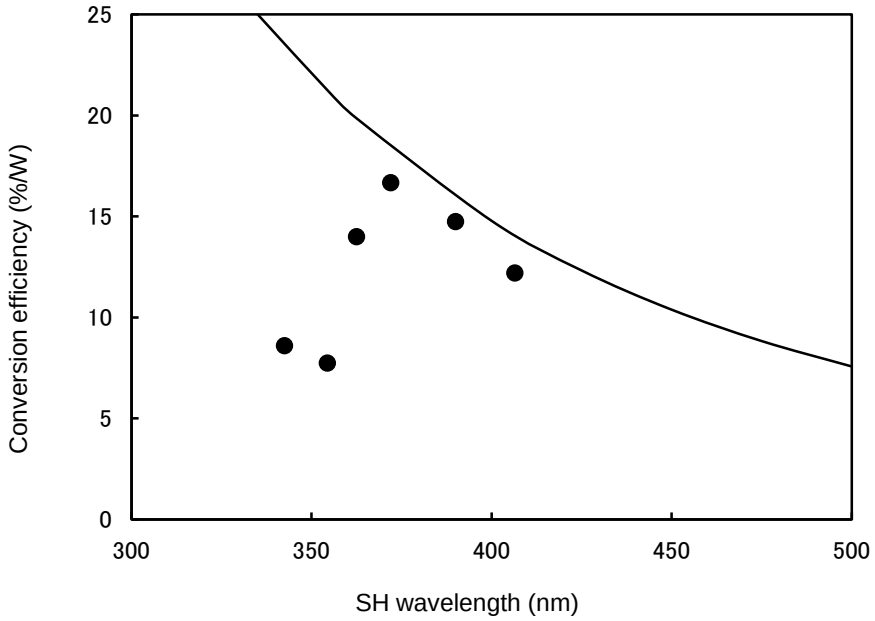


図 4.4 紫外光波長と変換効率

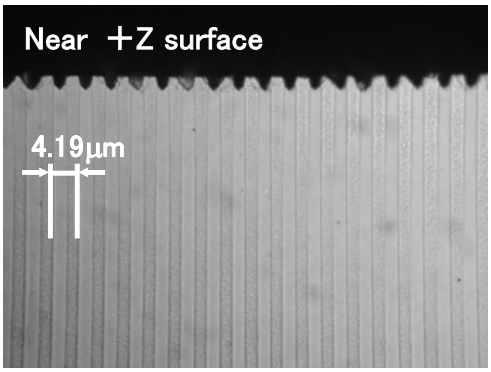
4.3　高効率青色光発生

優れた色再現性と低消費電力などの特長を有する高輝度レーザーディスプレイを実現するには高出力の赤色、緑色、青色のレーザー光源が必要とされる。小型かつ高出力の青色レーザー光源を実現するには SHG 方式が有効である。

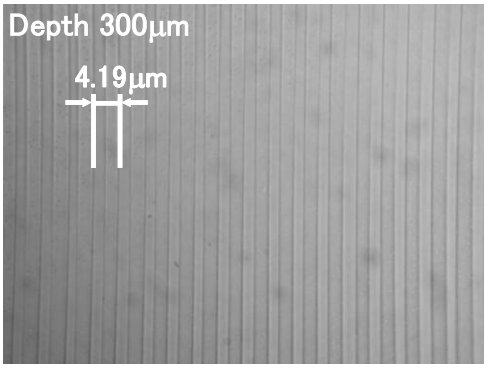
紫外光発生 SHG デバイスと同様に、前述した厚板多重パルス電界印加法を用いて周期 4.19μm の周期分極反転構造を有する青色光発生 SHG デバイスを作製した。基板に 1mm 厚 Z 板 5mol%Mg 添加 $LiNbO_3$ 結晶を用いた。図 4.5 に作製した PPMgLN（周期 4.19μm）の断面写真を示す。分極反転部の形状観察は結晶断面を鏡面研磨後、60℃フッ硝酸液（HF：HNO_3＝2：1）により約 10 分間エッチングすることで可視化した。＋Z 面から深さ 0.3mm 付近までデューティー比 0.5 に制御された周期分極反転が得られている。また、紫外光発生デバイスと同様に裏面への分極反転の貫通が抑制されていることを確認した。厚板多重パルス電界印加法を用いることで裏面への分極反転の貫通を防止し、周期 4.19μm においても長さ 10mm 以上の領域にわたって均一なデューティー比を有する周期分極反転構造の形成に成功した。

作製したバルク型分極反転 SHG デバイス（周期 4.19μm、長さ 10mm）を用いてシングルパス構成で青色光発生実験をおこなった。図 4.6 に光学実験系を示す。基本波光源には波長 912nm の $Nd:GdVO_4$ マイクロレーザーを用いた。波長 450nm 近傍の深青色（deep blue）は、高い比視感度と、純青色の表示が可能なため、レーザーディスプレイで高い色再現性を実現するには有効である。$Nd:GdVO_4$ は、$Nd:YVO_4$ と同等の励起光吸収、誘導放出断面積を有し、$Nd:YVO_4$ と比較して約 2 倍の熱伝導特性を有している [3]。このため、熱レンズ効果の緩和による高出力化、高ビーム品質化に有利である。また、$Nd:GdVO_4$ マイクロレーザーは波長 912nm に発振線を有しており、高出力の深青色光発生用基本波光源として期待されている。実験に使用した $Nd:GdVO_4$ マイクロレーザーの特性は、M^2 値が 1.14（出力 1.7W 時）、縦モードマルチである。

基本波は焦点距離f=40mmのレンズにより集光され、結晶中心でのビームウエストは16μm（$1/e^2$の半径）である。バルク PPMgLN 素子は結晶長 10mm であり、入射端面に波長 912nm、出射端面に波長 456nm の AR コーティングが施され、金属プレート上に固定されている。また、位相整合をとるため、SHG 素子は温度制御コントローラにより温度制御されている。図 4.7 にシングルパス構成による青色光の入出力特性を示す。青色出力は基本波パワーの 2 乗に比例し、光損傷のない安定した出力が得られた。このときの位相整合温度は 45℃であった。基本波入力パワー2W に対し、最大出力パワー167mW の青色光（波長 456nm）が得られ、このときの変換効率は 8.3%であった。規格化変換効率は 4.2%/W であり、d_{33}=27.5pm/V [4]より導かれる理論効率（5.3%/W）に対して、約 80%の変換効率が得られた。基本波のスペクトル幅が 0.26nm、SHG 許容幅が 0.13nm であることを考慮すると、$Nd:GdVO_4$マイクロレーザーの縦モードのシングルモード化により、さらなる高効率化が期待される。基本波の高出力化でワット級青色光発生を達成できる見込みを得た。



(a)



(b)

図 4.5　PPMgLN（周期 4.19μm）の断面写真

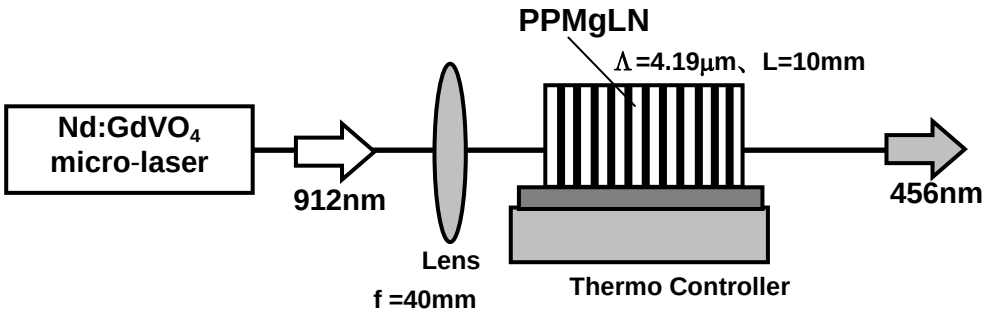


図 4.6　青色光発生の光学実験系

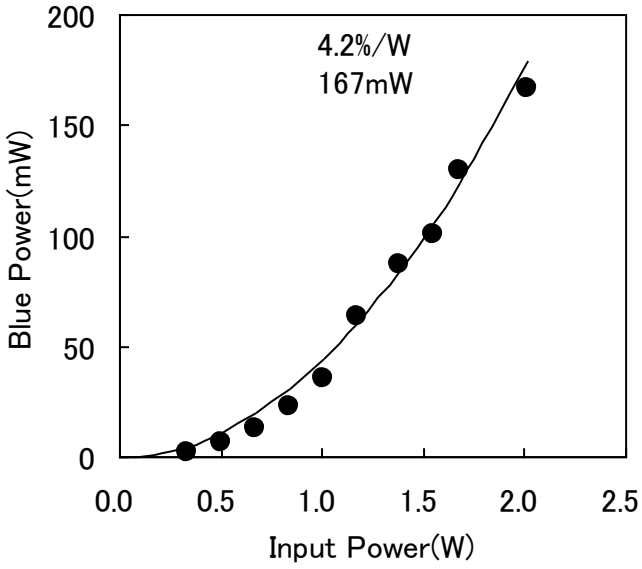


図 4.7　基本波入力と青色光出力の関係

4.4　高効率緑色光発生

緑色光発生用の周期分極反転構造を有する SHG デバイスを作製し、緑色光の波長変換を検証した結果を述べる。さらに、緑色光の高効率化、高出力化の検討もおこなった。

4.4.1　緑色光発生

前述した厚板多重パルス電界印加法を用いて紫外光発生、青色光発生と同様に緑色光発生用 PPMgLN（周期 6.95μm）を作製した。基板は 2mm 厚 Z 板 5mol%Mg 添加 $LiNbO_3$ 結晶を使用した。電界印加条件は印加電圧 6kV、パルス幅 1msec、絶縁液温度 100℃とした。

図 4.8 に作製した PPMgLN（周期 6.95μm）の断面写真を示す。＋Z 面から深さ 0.3mm 付近まで均一なデューティー比を有する周期分極反転構造が得られている。また、深さ方向の分極反転成長を 0.3mm～0.8mm に抑制し、裏面への分極反転の貫通は確認されなかった。周期方向の分極反転幅はデューティー比 0.5 となるように制御した。厚板多重パルス電界印加法を用いることで裏面への分極反転の貫通を防止し、均一なデューティー比を有する PPMgLN（周期 6.95μm、長さ 10mm）を作製した。

バルク分極反転 SHG デバイス（周期 6.95μm、長さ 10mm）を用いて緑色光発生実験をおこなった。図 4.9 に光学実験系を示す。基本波として、LD 励起 $Nd:GdVO_4$ マイクロレーザー（波長 1063nm）を使用した。$Nd:GdVO_4$ マイクロレーザーは前述したように熱伝導特性に優れているため、熱レンズ効果の緩和による高出力化、高ビーム品質化に有利な特性を持っている。横モード特性の指標となる M^2 値は赤外パワー6.8W のとき 1.16 であった。また、縦モードはマルチモードであり、その半値全幅は 0.24nm であった。SHG デバイスは入射、出射の両端面が

鏡面研磨され、SiO_2 単層膜により波長 1063nm に対し無反射（Anti-reflection：AR）コーティングされている。温度コントローラにより±0.1°C 以内に温度制御された金属プレート上に SHG デバイスは設置されている。光学実験で使用した集光レンズは焦点距離 20mm であり、SHG デバイスの入射スポットサイズは 17μm（$1/e^2$ の半径）であった。出射後の基本波（赤外光）、および高調波（緑色光）はダイクロイックミラーによって分離される。

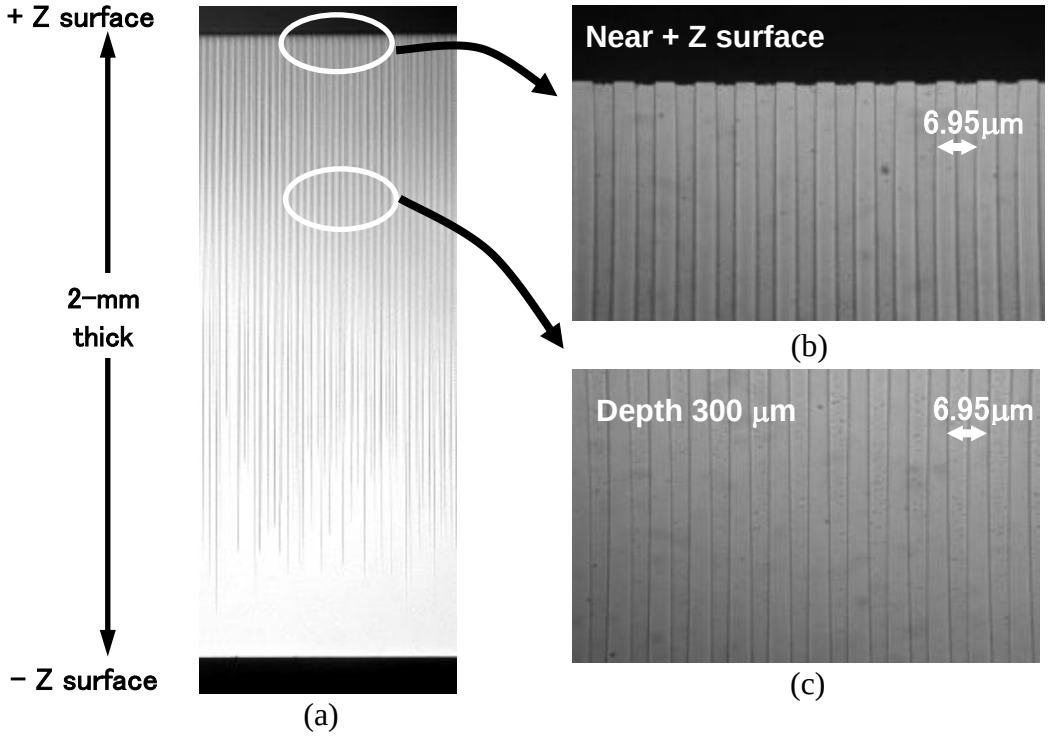


図 4.8　PPMgLN（周期 6.95μm）の断面写真

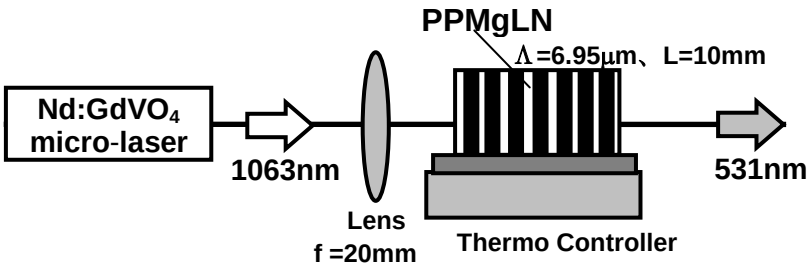


図 4.9　緑色光発生の光学実験系

図 4.10 に結晶内部における基本波、緑色光の入出力特性を示す。6.2W の基本波に対し、10mm 長の SHG デバイスを用いて最大出力パワー1.0W の緑色光発生（波長 531nm）に成功した。このときの変換効率は 16.5%であった。得られた規格化変換効率は 2.7%/W、実効非線形定数 d_{eff} は 14pm/V であり、理論実効非線形定数 d_{eff}=15.9pm/V（$d_{eff}=2/\pi\times d_{33}$ 、 d_{33}=25pm/V [4]）の 88%に相当し、理論値に近いものが得られた。作製した周期分極反転構造の分極反転幅は最大変換効率が得られるデューティー比 0.5 の分極反転幅 3.5μm に対し、±0.7μm のばらつきに抑制されていることを示している。また、図 4.10 からもわかるように緑色パワーは基本波パワーの二乗に比例しており、理論通りの入出力特性が得られている。位相整合温度は 29.5℃であり、任意の基本波パワーに対し±0.3°C 以内で安定であった。緑色光出力 1.0W で熱レンズ効果、光損傷、緑色光誘起赤外吸収のない安定なものが得られていることを確認した。シングルパス構成で室温連続波ワット級の安定な緑色光発生に成功した。

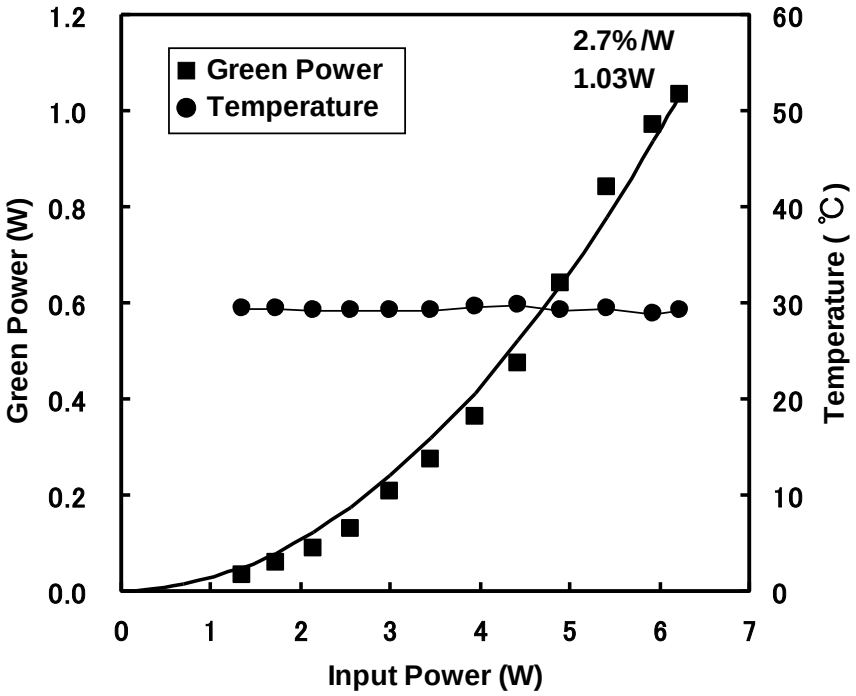


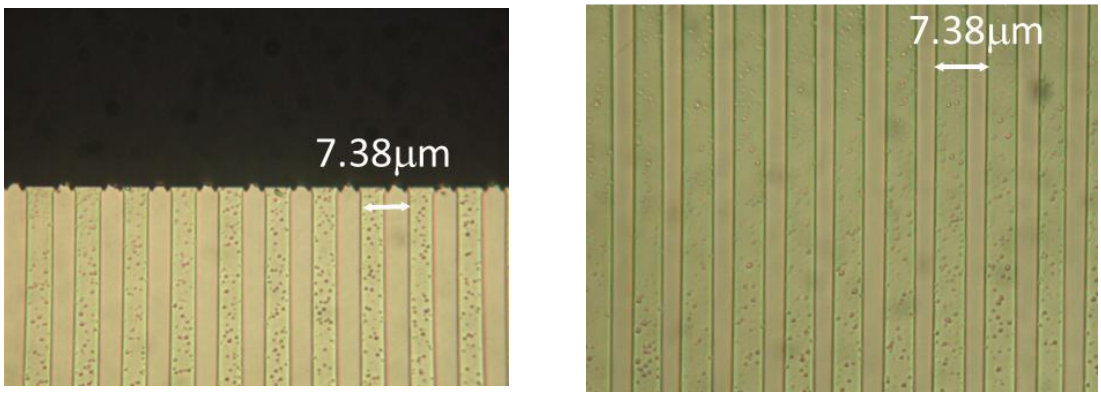
図 4.10　基本波入力と緑色光出力の関係

4.4.2　緑色光の高効率化

緑色光の高効率化を目的にして、高ビーム品質、高出力の特長を有するファイバーレーザーと 25mm 長 PPMgLN を組み合わせた緑色光発生の検証結果について述べる。

バルク型周期分極反転では変換効率は周期分極反転構造の長さに比例するため、SHG デバイス長を 10mm から 25mm に長尺化することで 2.5 倍の高効率化を実現することができる。しかしながら、厚板多重パルス電界印加法では均一形成可能な素子長は 10mm 程度が限界であり、均一化かつ大面積に周期分極反転構造を形成することが困難であった。そこで、分極反転形成時の発熱を空間的に制御する掘り込み周期電極、発熱を時間的に制御する発熱制御パルス、さらに電界集中を防止して不要部の過剰成長を抑制する裏面電極パターニングを厚板多重パルス電界印加法に適用して緑色光発生用 PPMgLN（周期 7.38μm）を作製した。基板は 1mm 厚 Z 板 5mol%Mg 添加 $LiNbO_3$ 結晶を使用した。電界印加条件は印加電圧±5kV、パルス幅 5msec、絶縁液温度 120℃とした。

図 4.11 に PPMgLN の断面写真を示す。深さ方向の分極反転成長を制御し、基板裏面の分極反転貫通を抑制することで、＋Z 面から深さ 0.5mm 付近まで均一なデューティー比 0.5 を有する周期分極反転構造が得られている。厚板多重パルス電界印加法に掘り込み電極、発熱制御パルス、裏面電極パターニングを適用することで均一かつ大面積に PPMgLN（周期 7.38μm、長さ 25mm）を作製することに成功した。PPMgLN の結晶端面は鏡面研磨され、入射面は波長 1084nm、出射面は波長 542nm に対する無反射コーティングを単層 SiO_2 膜で形成されている。波長 1084nm に対する周期 7.38μm の PPMgLN の位相整合条件は、セルマイヤー方程式 [5]から位相整合温度がおよそ 22°C となるように設計されている。



(a) (b)

図 4.11　PPMgLN 断面写真（周期 7.38μm）
(a) 基板表面近傍 (b) 深さ 0.5mm

作製したバルク分極反転 SHG デバイス（周期 7.38μm、長さ 25mm）を用いて緑色光発生実験をおこなった。図 4.12 に光学実験系を示す。図中の P は偏光板、L は集光レンズ、M はダイクロイックミラーを示している。基本波には連続波動作で高ビーム品質と優れた高出力特性を有する単一偏光 Yb ドープファイバーレーザー[6]を使用した。ファイバーレーザーと PPMgLN は紫外～可視波長域の連続波高出力レーザー光源を得るための最良手段の一つである。実験で用いた Yb ドープファイバーレーザー（古河電気工業株式会社製）は M^2 値～1.05、最大出力 9W（CW 動作）、波長 1084nm である。本検討におけるファイバーレーザーは最も効率のよい波長 1084nm を選択した。連続波出力 8.0W 動作時の単一縦モードの半値全幅は 0.07nm であり、25mm 長 PPMgLN の波長許容幅 0.09nm と比較しても狭い線幅が得られている。SHG デバイスは温度コントローラにより±0.1°C 以内に温度制御された金属プレート上に設置されている。光学実験で使用した集光レンズは焦点距離 40mm であり、SHG デバイスの入射スポットサイズは 30μm（$1/e^2$ の半径）であった。出射後の基本波（赤外光）、および高調波（緑色光）はダイクロイックミラーによって分離される。

図 4.13 に基本波、緑色光の入出力特性を示す。25mm 長の SHG デバイスを用いて最大出力パワー3.0W の緑色光発生（波長 542nm）に成功した。このときの変換効率は 34%であった。規格化変換効率は 6%/W、実効非線形定数 d_{eff} は 15.5pm/V であり、理論実効非線形定数 d_{eff}=15.9pm/V（$d_{eff}=2/\pi\times d_{33}$、$d_{33}$=25pm/V [4)]）の 97%に相当し、ほぼ理論値通りの結果が得られた。これは均一なデューティー比を有する理想的な周期分極反転構造が素子全体にわたり形成されていることを示している。また、図 4.13 の実線は 6%/W の規格化変換効率を基にして pump depletion[7)]を考慮した理論曲線を示している。緑色光パワーは基本波パワーの二乗に比例しており、理論通りの入出力特性が得られている。図 4.14 に緑色光出力 2.8W で 5 時間動作させた時の出力安定性を示す。出力変動は 1.5%以下であり、緑色光は熱レンズ効果、光損傷、緑色光誘起赤外吸収のない安定なものが得られていることを確認した。以上の結果から、MgLN は緑色光の高出力耐性に優れた高効率波長変換材料であると言える。

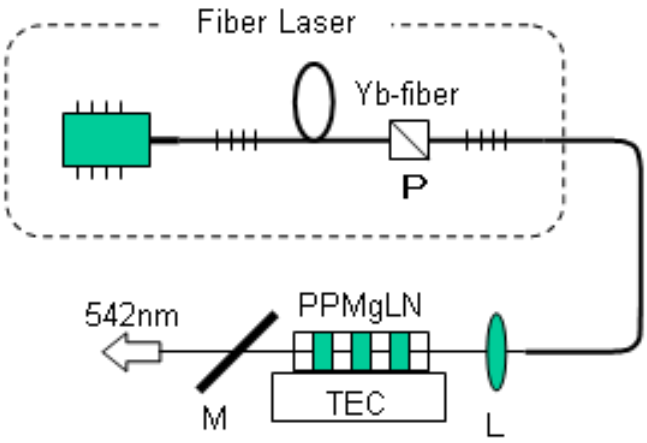


図 4.12　緑色光発生の光学実験系

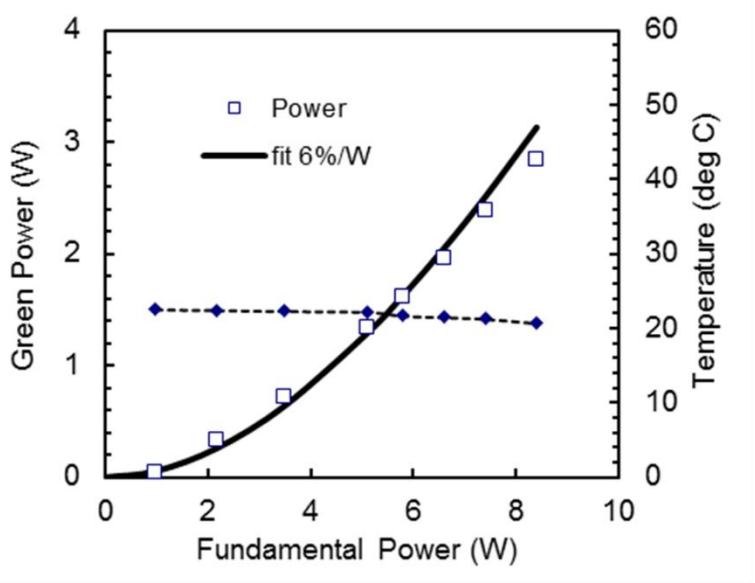


図 4.13　基本波入力と緑色光出力の関係

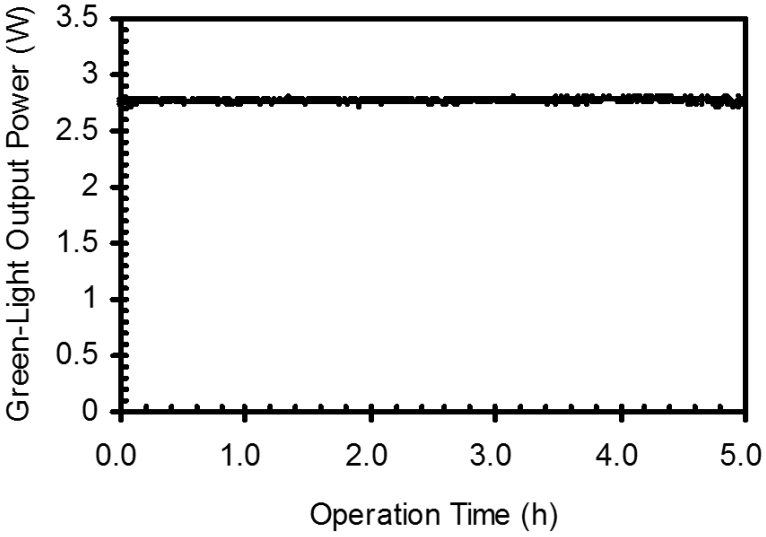


図 4.14　緑色光 2.8W の出力安定性

4.5　高出力緑色光発生

MgLNが高出力耐性に優れていることを緑色光最大出力3.0W、緑色光出力2.8Wの5時間の出力安定性から示すことができたが、緑色光出力3W以上ではMgLN結晶内の光吸収量が増大し、緑色光が不安定となったり、MgLN結晶が破壊したりする現象が見られ、緑色光の最大出力に限界があった。緑色光出力5W以上での安定動作を目的として、光吸収量の極めて小さいMgSLTと単一偏光Ybファイバーレーザーを用いて緑色光のさらなる高出力化を検討する。

MgSLT の周期分極反転構造を有するバルク分極反転 SHG デバイスを用いて緑色光発生実験をおこなった。図 4.15 に光学実験系を示す。SHG デバイスの周期は 8.0μm、相互作用長は 30mm、位相整合温度は 50°C である。高効率変換が可能となるよう、素子長を長くしているために温度許容幅が狭く、ペルチェ素子を用いた温度制御系により SHG デバイスは±0.1°C 以内に保持されている。光学実験で使用した集光レンズは焦点距離 30mm であり、赤外光の集光スポット径は 54μmϕ、赤外光波長は 1064nm であった。

図 4.16 に SHG デバイスに入力する赤外光に対する緑色光の出力および変換効率の関係を示す。29.0W の赤外光に対し、最大出力パワー8.0W の緑色光（波長 532nm）が得られ、このときの光－光変換効率（赤外光から緑色光への変換効率）は 27.6%であった。また、赤外光パワーが 3.0W のときに得られた規格化変換効率は 3.0%/W、これより算出される実効非線形定数 d_{eff} は 9.5pm/V であり、MgSLT の実効非線形定数 10pm/V [8)]にほぼ等しい値が得られた。この結果は理想的な周期分極反転構造がデバイス全体にわたり均一に形成されていることを示している。一方、緑色光 8.0W 出力時の規格化変換効率は 1.0%/W となった。高出力時の規格化変換効率の低下は、赤外光、緑色光の吸収、および緑色光誘起赤外吸収（Green-Induced Infrared Absorption：GRIIRA）による温度分布の影響と考えられる [9-13)]。

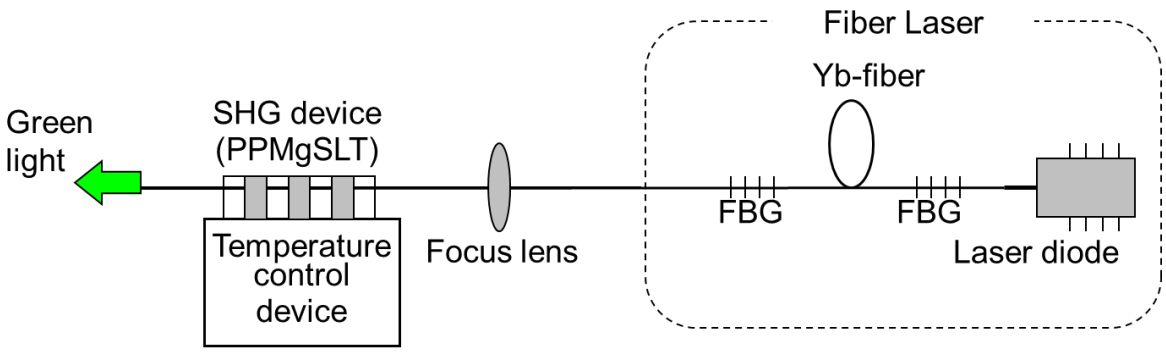


図 4.15　緑色光発生の光学実験系

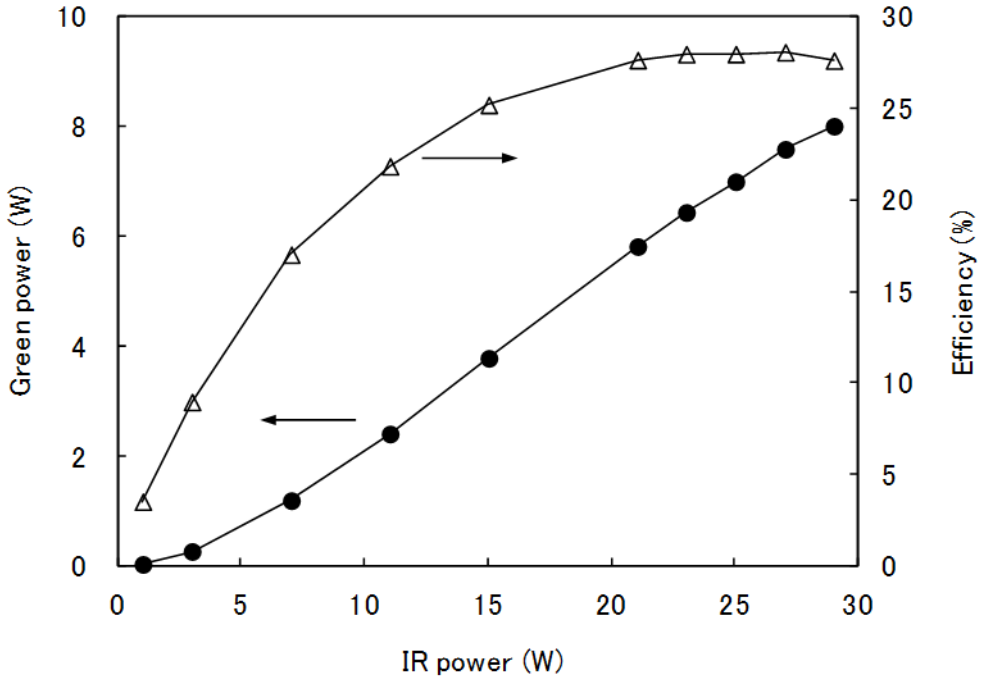


図 4.16　基本波入力と緑色光出力の関係

4.6 まとめ

分極反転構造をサブミクロンオーダーで制御し、大面積で均一化された PPMgLN、PPMgSLT を用いて紫外光、青色光、緑色光の高効率波長変換、高出力波長変換を実証した。

MgLN における周期分極反転構造のサブミクロン制御に成功し、周期 1.4μm の PPMgLN を用いて波長 342nm、変換効率 8.6%/W の高効率紫外光発生を実現し、実効非線形定数 13pm/V を得た。周期 2.0μm の PPMgLN では、光出力 72mW、変換効率 16.7%/W、波長 372nm の紫外光発生を実現し、紫外光領域において最大の実効非線形定数 20.6pm/V が得られ、理想的な周期分極反転構造がデバイス全体に均一形成されていることを示した。

周期 4.19μm の PPMgLN を用いて光出力 167mW、変換効率 8.3%、波長 456nm の青色光発生に成功し、理論効率の約 80%の高効率波長変換を実証した。

周期 6.95μm の 10mm 長 PPMgLN を用いて光出力 1.0W、変換効率 16.5%、波長 531nm の緑色光発生に成功した。さらに厚板多重パルス電界印加法に発熱を制御する掘り込み電極、発熱制御パルス波形、不要部の分極反転形成を防止する裏面電極パターニングを適用することで PPMgLN の大面積化、均一化を実現し、25mm 長 PPMgLN と高出力ファイバーレーザーを用いて光出力 3.0W、変換効率 34%、波長 531nm の高効率緑色光発生に成功した。

さらに、MgLN に比べて高出力時の光吸収量が極めて小さい MgSLT に着目し、緑色光出力の高出力化に取り組み、30mm 長 PPMgSLT と高出力ファイバーレーザーを用いて光出力 8.0W、変換効率 27.6%、波長 532nm の高出力緑色光発生に成功した。

参考文献

1) H.Ishizuki, T.Taira, S.Kurimura, J.H.Ro, and M.Cha: Jpn.J.Phys.42 (2003) L108.

2) G.D.Miller, R.G.Batchko, W.M.Tulloch, D.R.Weise, M.M.Fejer, and R.L.Byer: Opt.Lett.22 (1997) 1834.

3) C.Czeranowsky, M.Schmidt, E.Heumann, G.Huber, S.Kutovoi, and Y.Zavartsev: Opt.Commun.205 (2002)361.

4) I.Shoji, T.Kondo, A.Kitamoto, M.Shirane, and R.Ito:J.Opt.Soc.Am.B.14 (1997)2268.

5) D.E.Zelmon, D.I.Small, and D.Jundt:J.Opt.Soc.Am.B.14 (1997)3319.

6) D.Kliner, F.D.Teodoro, J.P.Koplow, S.W.Moore, and A.V.Smith:Opt.Commun.210 (2002)393.

7) T.Suhara, and M.Fujimura: Waveguide Nonlinear-Optic Devices(Springer, Berlin,2003) p.208.

8) N.E.Yu, S.Kurimura, Y.Nomura, and K.Kitamura: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L1265.

9) S.V.Tovstonog, S.Kurimura, I.Suzuki, K.Takeno, S.Moriwaki, N.Ohmae, N.Mio, and T. Katagai: Opt. Express 16(2008)11294.

10) G.K.Samanta, S.Chaitanya Kumar, and M.Ebrahim-Zadeh: Opt.Lett. 34 (2009)1561.

11) S.Chaitanya Kumar, G.K.Samanta, and M.Ebrahim-Zadeh: Opt.Express 17(2009)13711.

12) H.H.Lim, T.Katagai, S.Kurimura, T.Shimizu, K.Noguchi, N.Ohmae, N.Mio, and I.Shoji: Opt.Express 19(2011)22588.

13) H.H.Lim, S.Kurimura, K.Noguchi, and I.Shoji: Opt.Express 22(2014)18268.

第 5 章　緑色 SHG レーザーの応用

5.1　はじめに

第 4 章では分極反転構造をサブミクロンオーダーで制御し、大面積で均一化された PPMgLN と PPMgSLT を用いて SHG デバイスを作製し、紫外光、青色光、緑色光の高効率波長変換、高出力波長変換を実証した。本章では高効率 SHG デバイスを用いて内部共振器型緑色レーザーモジュールおよび高出力緑色レーザー光源を試作し、小型化、低消費電力化などの特長を示す。開発した緑色レーザーモジュールを用いたレーザーディスプレイへの応用としてノートパソコン搭載レーザープロジェクター、レーザーリアプロジェクション TV への適用について述べる。また、レーザー加工を目指した高出力緑色レーザー光源および二波長同一点集光による新たなレーザー加工方式について記述する。

5.2　小型レーザープロジェクターへの応用

ディスプレイ、計測、医療などの様々な応用に小型の緑色レーザー光源が必要とされている。特に、モバイルタイプの小型装置に出力 1W 程度の超小型緑色レーザーの要求が高い。DPSSL（Diode Pumped Solid State Laser）を用いた内部共振器型 SHG は高出力緑色光を得る有効な方式であり [1-3]、小型、高効率などの特長を有している。

5.2.1　内部共振器型緑色レーザーモジュールの作製

第 4 章で作製した PPMgLN と DPSSL を用いた内部共振器型 SHG の特性を評価した。図 5.1 に内部共振器型緑色 DPSSL の構成を示す。励起光である半導体レーザーには縦モードマルチの高出力半導体レーザーを用いた。励起半導体レーザーの波長は固体レーザー材料の吸収波長域で広い温度許容幅をもって安定化させなければならない。半導体レーザーの動作温度範囲を広げるために、体積ブラッグ格子（Volume Bragg Grating : VBG）を用いて波長をロックしている。励起半導体レーザーからの出射光の 20%が VBG 端面で反射され、半導体レーザーの活性層に戻される。これによって、半導体レーザーの発振波長は 808nm にロックされる。安定かつ高効率の励起光が簡素かつ小型な構成で得ることができる [4,5]。30±15°C の温度範囲に安定動作が可能である。固体レーザー媒質には高い吸収係数を有している Nd^{3+} 3%添加の 0.5mm 厚 Nd:YVO_4 を用いた。Nd:YVO_4 の端面の片側に波長 1064nm に対する高反射コーティングが施され、Nd:YVO_4 端面と出力ミラーで内部共振器を構成している。高反射コーティングの反射率は 99.9%以上である。Nd:YVO_4 における集光スポットサイズはおよそ 120μm である。PPMgLN には無反射コーティングが施され、出力ミラーと Nd:YVO_4 の間に挿入されている。無反射コーティングの反射率は 0.15%以下である。

励起パワー1W における DPSSL の特性を評価した。図 5.2 に PPMgLN のデバイス長を変えた時の緑色光出力と動作温度範囲を示す。PPMgLN が 1mm 以下になると動作温度範囲は広くなるが、緑色光出力が低下することがわかる。PPMgLN の高効率波長変換の飽和がデバイス長 1mm あたりで発生していると思われる。図より測定結果と計算結果はよく一致していることがわかる。0.5mm 長の PPMgLN を用いることで、励起パワー1W に対して 40°C 以上の広範囲動作温度と 0.21W の緑色光出力が得られた。

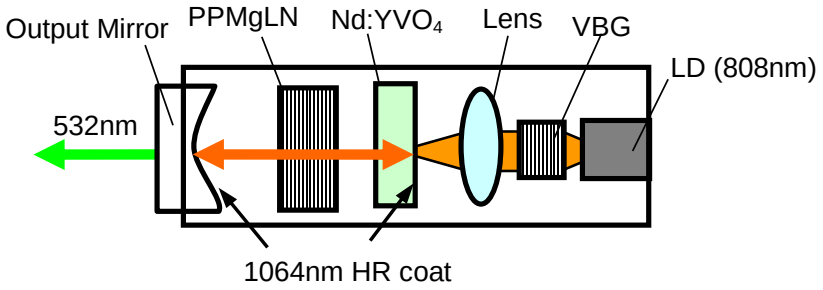


図 5.1　内部共振器型緑色 DPSSL の構成

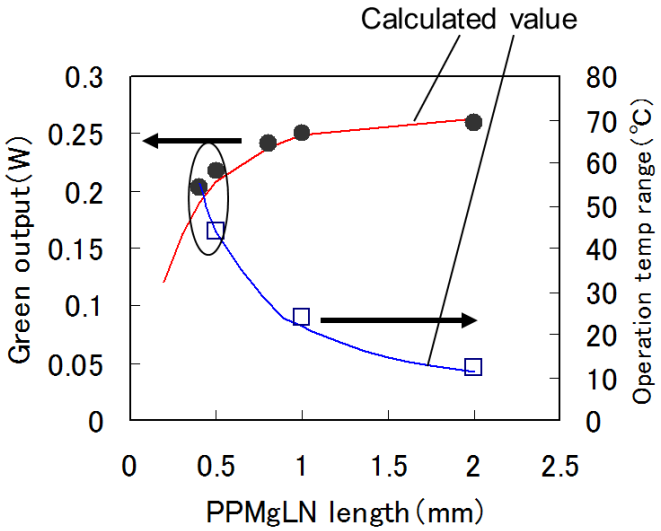


図 5.2　緑色光出力と動作温度範囲の PPMgLN 長さ依存性

特性評価結果と設計を基に、小型緑色 DPSSL モジュールを試作した。図 5.3 に緑色レーザーモジュールの写真を示す。モジュール構成は図 5.1 と同じである。励起光波長を安定化させるために VBG ロック半導体レーザーを用いた。光学系と励起半導体レーザーを含んだモジュール容積は 3cc であった。図 5.4 に緑色レーザーモジュールの出力特性を示す。励起パワー2.35W に対し、0.7W の緑色光出力が得られた。光波長変換効率は 30%、電気－光変換効率（電気から緑色光への変換効率）は 11.8%を達成した。MgLN の周期分極反転構造をサブミクロンオーダーで均一制御できていることでこのような高効率変換特性が得られている。図 5.5 にモジュールの動作温度特性を示す。動作温度範囲は波長ロック半導体レーザーによって制限される。励起半導体レーザーの波長シフトの影響は VBG からの光学的なフィードバックよりも大きい。最大緑色光出力 0.7W では緑色光出力の低下や変動等は観測されなかった。PPMgLN を用いた緑色 DPSSL は高出力領域において高効率で安定した出力特性を実現することができる。高い電気－光変換効率はペルチェ素子等の熱電冷却機構のないモジュール構成で得られている。また、動作温度範囲が極めて広くすることができたために、Automatic Power Control（APC：自動出力制御）によって安定した出力特性を可能にしている。

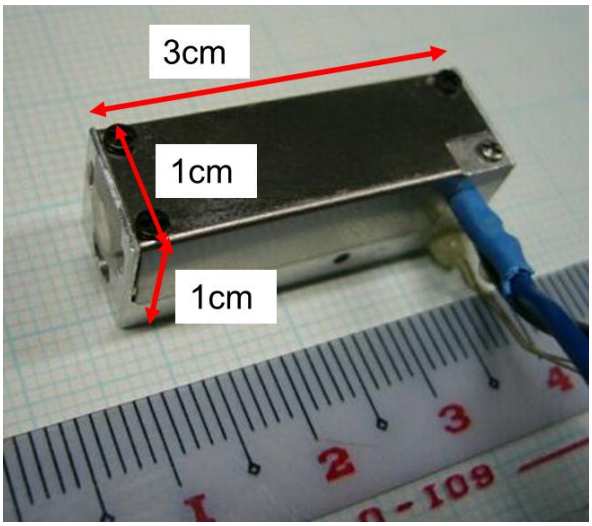


図 5.3　緑色 DPSSL モジュールの写真

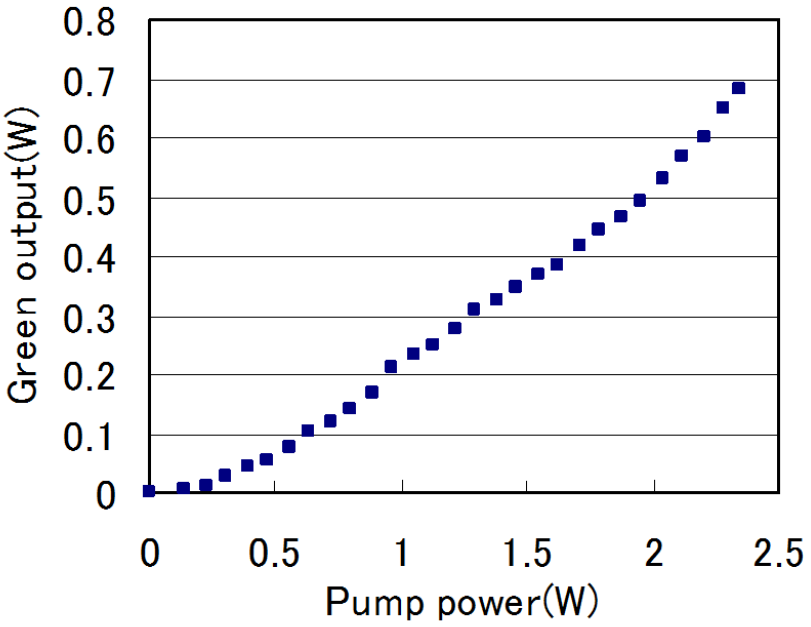


図 5.4　緑色 DPSSL モジュールの出力特性

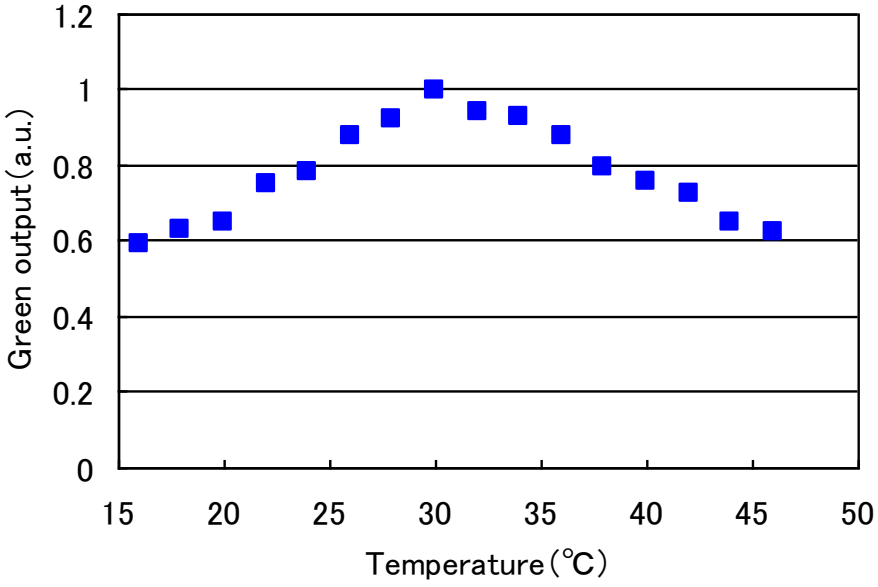


図 5.5　緑色 DPSSL モジュールの動作温度特性

5.2.2　ノートパソコン搭載レーザープロジェクターへの応用

図 5.6 はディスプレイの色再現性を示す色度図で、レーザーディスプレイと CRT ディスプレイ（sRGB）の色再現性を比較したものである。RGB（Red、Green、Blue）の三色のレーザー光源を用いたレーザーディスプレイはレーザーの単色性を生かして CRT ディスプレイの 2 倍の広い色再現性を得ることができる [6-9]。また、レーザーの高い電気光変換効率を利用し、低消費電力化を実現することができる。さらには、長い光源寿命、瞬時点灯可能、高い投射効率などの特長を有しているため、レーザーディスプレイは次世代ディスプレイとして注目されている。しかしながら、高輝度かつ高精細のレーザーディスプレイを実現するための主要課題のひとつは小型かつ高出力の緑色レーザー光源が実在しないことである。

主要課題を解決することでレーザープロジェクションシステムを試作し、優れた色再現性と低消費電力を実証する。

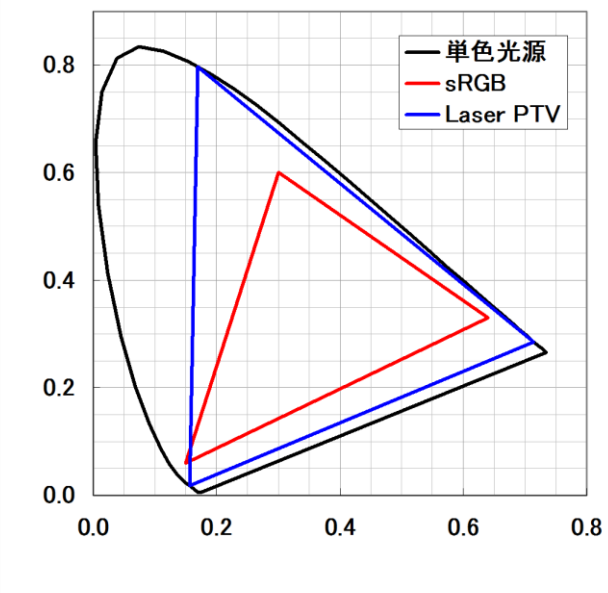


図 5.6　CIE xy 色度図

近年、スマートフォンをはじめとする携帯型モバイル端末の急速な普及によりインターネット、ゲーム、SNS（Social Networking Service）などのような様々なコンテンツをいつでもどこでも受けられるようになっている。しかしながら、携帯型モバイル端末でこれらのコンテンツを楽しむには画面サイズに限界がある。小型プロジェクターは携帯型でありながら、大画面で高精細な映像を投射されることでこのような問題を解決することができる。レーザーや LED と小型空間光変調素子を組み合わせた光学モジュールを用いた小型プロジェクターはピコプロジェクター、ポケットプロジェクターなどと呼ばれ、携帯型モバイル端末として有望である。しかしながら、商品化されているプロジェクターは 10lm 以下の明るさに限られており、低消費電力で高輝度の小型プロジェクターが要望されている。

前述した内部共振器型緑色レーザーはモジュールサイズ 3cc の超小型レーザー光源を実現できており、これをベースにした小型高出力緑色レーザー光源をノートパソコン搭載のレーザープロジェクターに適用することを試みる。

図 5.7 に開発した超小型緑色レーザーモジュールの写真を示す。モジュールサイズは 2.6cc であり、小型ながら 1W 以上の緑色光を出力することができる。5.2 で励起光源の動作温度範囲が広いことを示されたが、高い緑色光出力を保持するには SHG デバイスの温度特性改善が必要不可欠である。そこで、レーザーモジュールの温度に対する出力安定性に大きな影響を与える SHG デバイスの周期分極反転構造を変更し、温度特性改善を試みた。図 5.8 に SHG デバイスの模式図を示す。SHG デバイスは周辺温度が変化すると素子の屈折率が変化するため、緑色光同士の位相にずれが生じ、緑色光の出力低下を引き起こしていた。SHG デバイスに位相制御領域を設ける構造を導入し、位相ずれを補償している。位相を進める領域の位相制御部 1 と位相を遅らせる位相制御部 2 は MgLN における周期分極反転構造のサブミクロンオーダーの均一制御により設けることができ、温度変換による位相ずれを緩和させ、動作温度範囲の拡大と緑色光出力の安定化を実現した。図 5.9 に緑色レーザー光源の温度特性を示す。20°C～60°C の温度範囲で高出力の緑色光が得られ、広い動作温度範囲を実現している。この結果、温度調

整機構を不要にし、超小型レーザープロジェクターへの緑色レーザーモジュールの適用を可能にした。

図 5.10 にノートパソコンに搭載されたレーザープロジェクターの写真を示す。光イメージングユニットはノートパソコンのモバイルマルチベイに差し込む形態となっており、DVD-ROM ドライブなどの他のユニットと併用できる。表 5.1 に緑色レーザー光源と画像表示部で構成される光イメージングユニットの特性表を示す。消費電力 5W で 40lm の鮮明な映像を投射することができる。また、光イメージングユニットの厚みはわずか 11.5mm である。映像の画面解像度はノートパソコンに使われている画面解像度と同じ SVGA である。本レーザープロジェクターはクラス 1 レーザー製品となっている。

図 5.7　超小型緑色レーザーモジュール

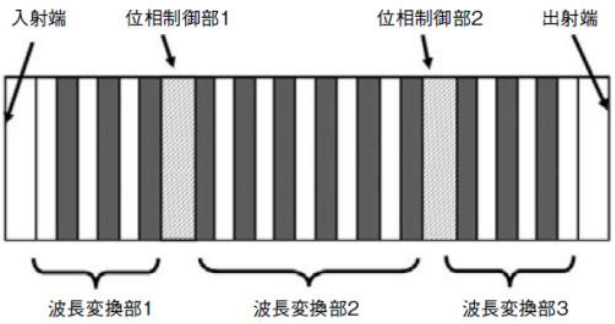


図 5.8　位相ずれ補償 SHG デバイスの模式図

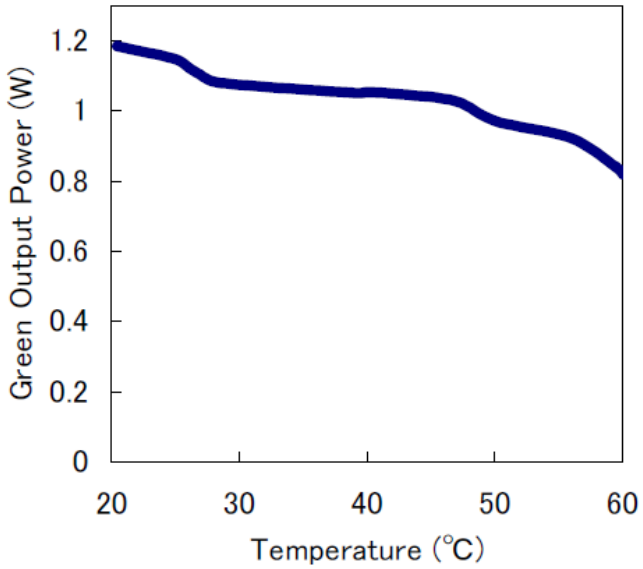


図 5.9　緑色光出力の温度特性

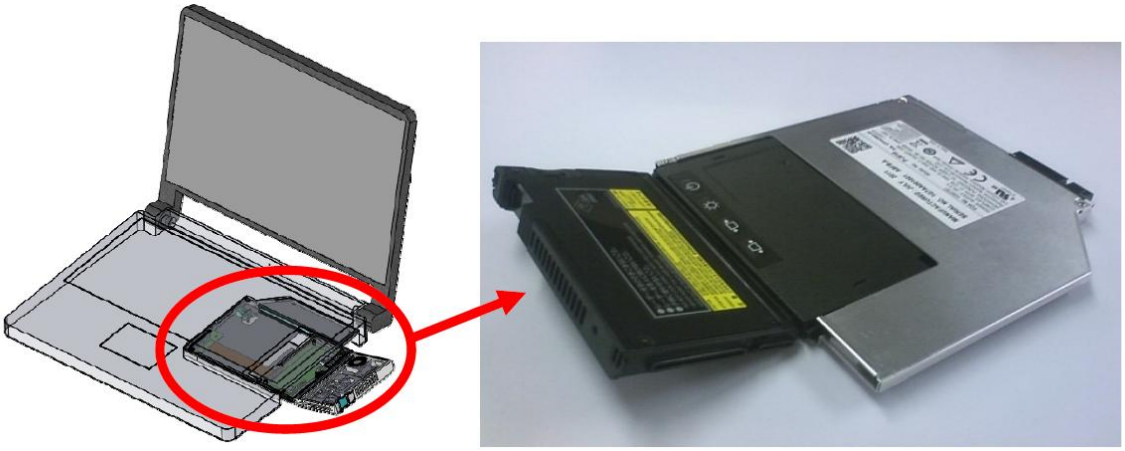


図 5.10　光イメージングユニットの写真

表 5.1　光イメージングユニットの特性表

Brightness	40lm
Thickness	11.5mmH
Power Consumption	5W (max 6.5W)
Resolution	SVGA
Throw ratio	30″@1m
Laser	HHS Class1 product

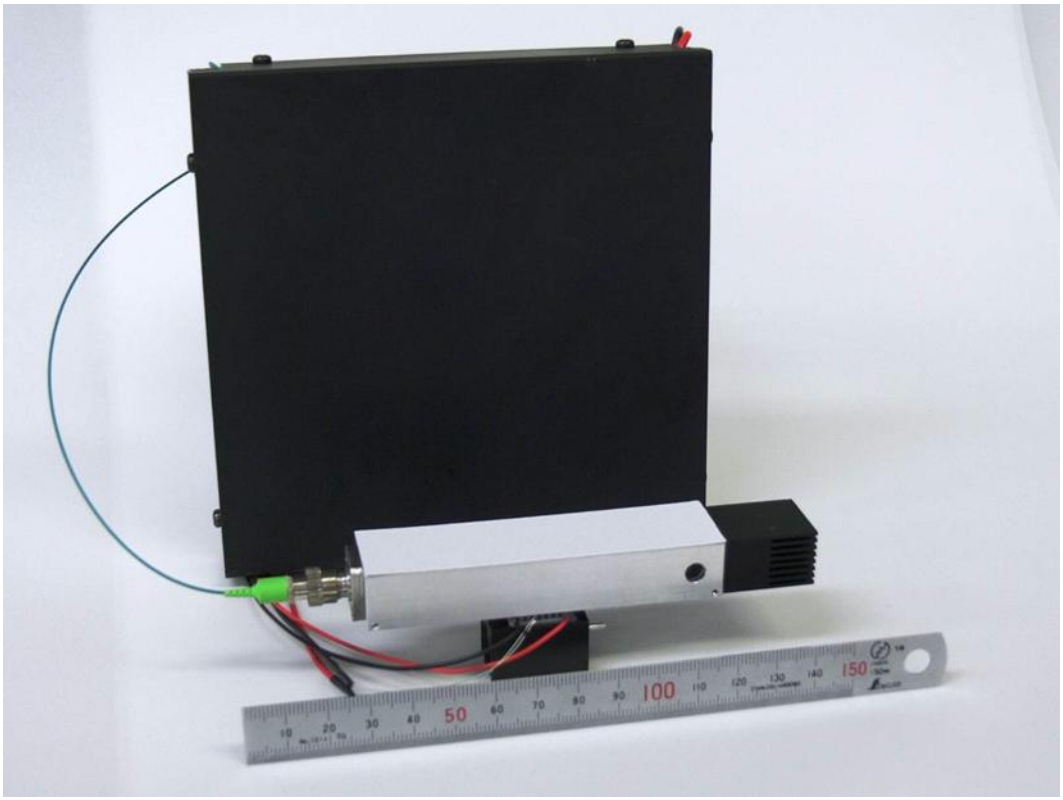
5.3　レーザーリアプロジェクション TV への応用

小型レーザープロジェクターとともに据え置き型レーザープロジェクターもレーザーの特長を生かして、低消費電力、広い色再現性に優れており、次世代テレビとして期待されている。

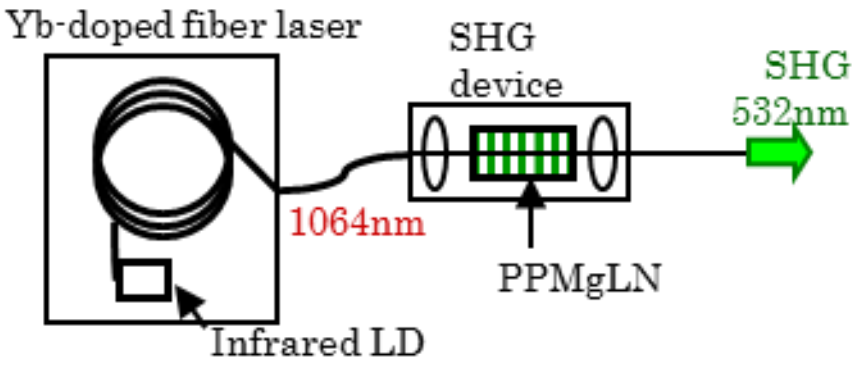
ファイバーレーザーを基本波に用いたシングルパス方式の高出力緑色レーザーモジュールにより、大画面レーザーリアプロジェクション TV を試作し、レーザープロジェクターの色再現性、低消費電力を実証する。

5.3.1　シングルパス型緑色レーザーモジュールの試作

図 5.11 にレーザープロジェクターに用いたシングルパス型緑色レーザーモジュールを示す。高ビーム品質、高出力の Yb ドープファイバーレーザーと 25mm 長 PPMgLN を用いたシンプルな構成となっている。これまでに提案した厚板多重パルス電界印加法、掘り込み電極、発熱制御パルス、裏面電極パターンを適用することで PPMgLN の大面積均一化に成功し、共振器を必要としないシングルパス構成で高効率波長変換が可能となり、ワット級の緑色光出力を実現している。ビーム品質の指標となる M^2 値は 1.1 であり、コンパクトで優れたビーム品質を有する緑色レーザー光源が得られている。図 5.12 に緑色 SHG レーザーモジュールの出力特性と変換効率特性を示す。緑色光出力 3.6W で冷却機構を含めた電気光変換効率 10%以上を達成している。MgLN の周期分極反転構造をサブミクロンオーダーで均一制御できていることでこのような高効率変換特性が得られている。



（a）



（b）

図 5.11　ファイバーレーザーと緑色 SHG レーザーモジュール
（a）実物写真　（b）模式図

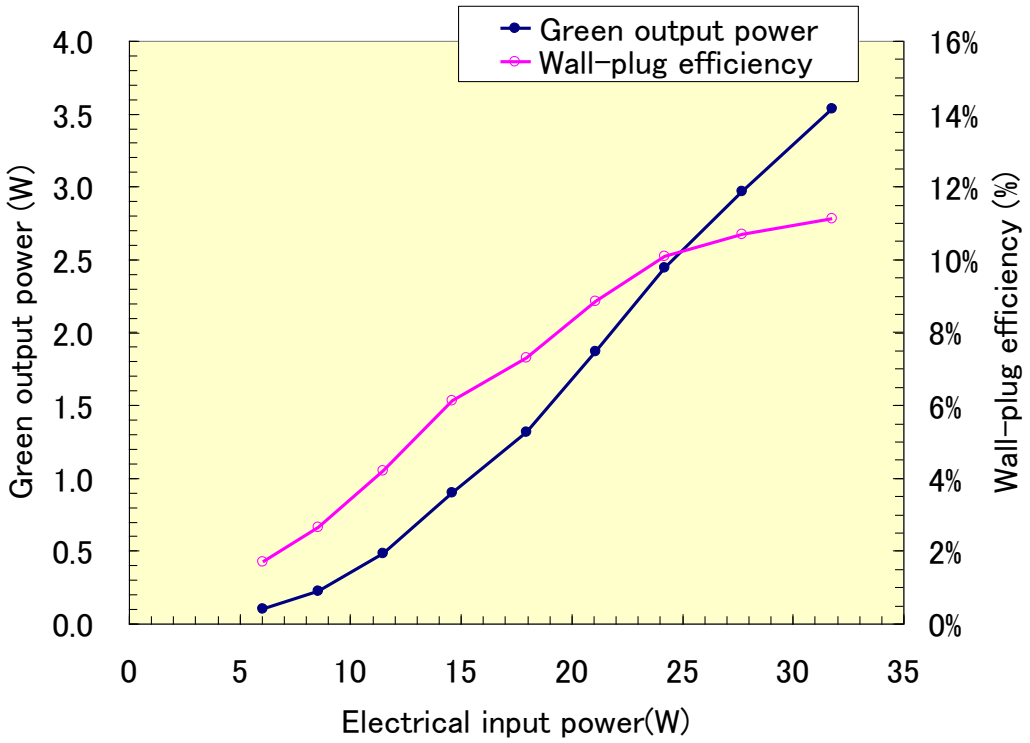


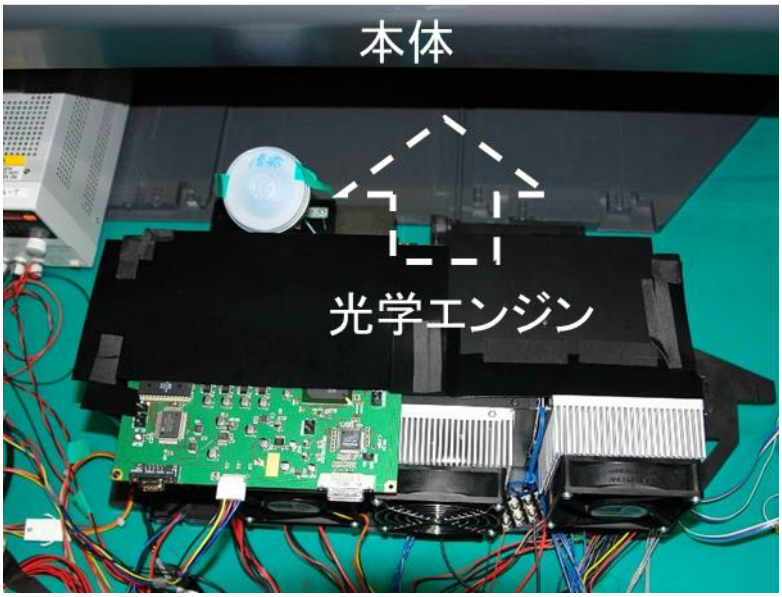
図 5.12　シングルパス型緑色レーザーモジュールの出力特性と変換効率特性

5.3.2　大画面レーザーリアプロジェクション TV への応用

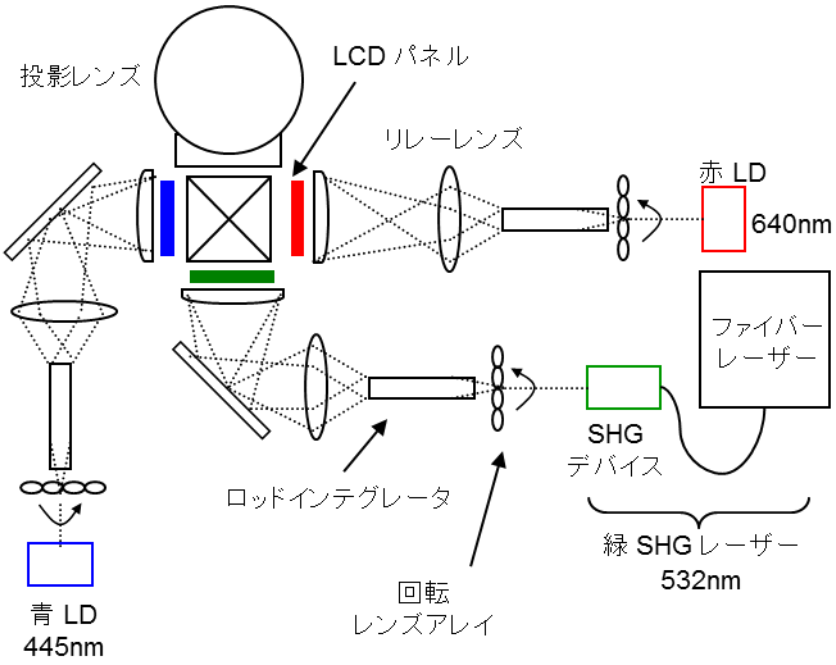
前述のシングルパス型緑色レーザーモジュールと赤色半導体レーザー、青色半導体レーザーを用いて大画面レーザーリアプロジェクション TV を試作した。図 5.13 にレーザープロジェクションエンジンの構成図を示す。緑色レーザー光源は前述したファイバーレーザーと周期分極反転 MgLN で構成された SHG レーザーを用いている。空間光変調素子は 3 つの透過型液晶パネル（対角長 0.7 インチ、画素数 1920×1080）を使っている。RGB レーザーは単一偏光化されているため、一般の水銀ランプを光源に用いた液晶プロジェクターで使われている偏光変換素子は不要となる。本プロジェクションシステムの光利用効率は 20%、輝度は 500lm が得られ、この時の赤色、緑色、青色のレーザー出力はそれぞれ 4.5W、3W、3W であった。色度図によ

る色再現範囲は NTSC 比で 133%が得られ、本プロジェクションシステムは広い色再現性を得ることができた。

図 5.14 に試作した 61 インチリアプロジェクションシステムによるプロジェクション映像を示す。輝度強度は 650cd/m^2 で非常に明るく鮮明な映像が得られた。試作したレーザープロジェクションシステムのレーザー光源の消費電力は 100W 以下に抑えられている。



（a）



（b）

図 5.13　レーザープロジェクションエンジンの構成
（a）実物写真　（b）模式図

図 5.14　61 インチレーザーリアプロジェクション TV

5.4　レーザー加工への応用

レーザー加工応用を目的として高出力ファイバーレーザーと高出力耐性に優れた PPMgSLT を用いて高出力緑色レーザー光源を試作した。また、新たに二波長同一集光のレーザー加工応用への展開を提案する。

5.4.1　高出力緑色レーザー光源の作製

緑色光発生用 30mm 長 PPMgSLT と半導体レーザー励起 Yb ドープファイバーレーザーを用いて高出力緑色 SHG レーザー（連続波出力 5.0W、波長 532.0nm）を試作した。図 5.15 に試作機の構成を示す。Yb ドープのダブルクラッドファイバーを基本とするファイバーレーザーは、1030～1100nm の広い発振波長域を有する。ファイバーグレーティング（Fiber Bragg Grating：FBG）を用いた共振器構造により発振波長を選択でき、発振スペクトルの狭帯域化（0.1nm 以下）を実現している。

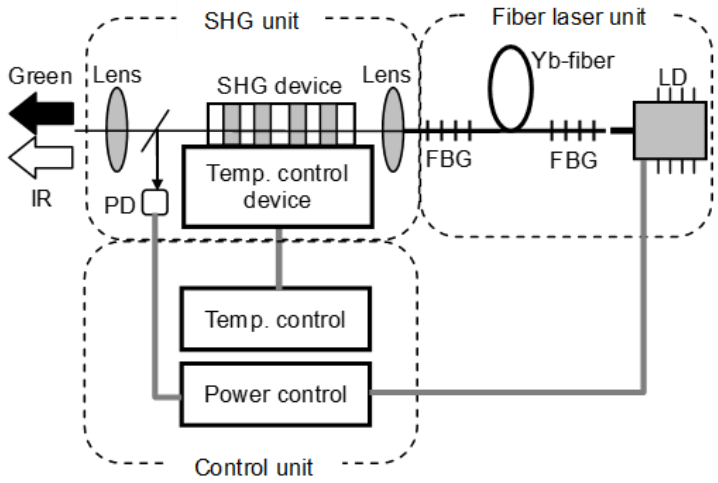


図 5.15　緑色レーザー試作機の構成

ファイバーレーザーは熱設計において二つの利点を有する。第一はレーザー媒質の温度上昇が少ない点である。励起光の半導体レーザーの発振波長（915nm 帯）とファイバーレーザーの発振波長（1μm 帯）との波長差が小さいため量子ロスによる発熱が少ない。さらに、表面積の大きな光ファイバーでレーザー発振を行うため、熱の集中が回避できる。第二は、励起半導体レーザーの高精度な温度制御を必要としない点である。915nm 帯の半導体レーザーは高温動作に優れ、ファイバー供給を利用して複数の半導体レーザーを分散配置することができる。さらに、Yb ドープファイバーにおける 915nm 近傍の吸収波長域が広いため、半導体レーザーの高精度の波長制御を必要としない。

以上のように、ファイバーレーザーは従来から緑色 SHG レーザーとして実用化が進んでいる DPSSL（Diode Pumped Solid State Laser）[10]に比べ、システムの熱設計尤度が非常に広い。また、出射ビームはファイバーの伝搬モードで制御されるため理想的なシングルモードでの高出力化が可能である。このためペルチェ素子不要の完全空冷で、30W を越えるシングルモード高出力化が可能であり、システムの小型化、低消費電力化を実現することができる。

ファイバーレーザーから出射した赤外光は集光レンズによって SHG デバイス内で集光される。発生した緑色光の一部はミラーで反射され、フォトディテクター（PD）で出力検出される。PD で受けた緑色光出力をフィードバックすることで半導体レーザーの駆動電流を制御し、緑出力を一定に保っている。発生した緑色光、および未変換の赤外光はレンズによりコリメートされて出射する。

図 5.16 に高出力緑色 SHG レーザー試作機の外観写真を示す。写真右側が小型光源ヘッド、写真左側が光源本体となっている。光源本体にはコントローラとファイバーレーザーが納められ、ファイバーによって赤外光を光源ヘッドに伝送している。光源ヘッドには SHG デバイス、ペルチェ素子、集光・コリメート光学系が設置され、サイズ 40mm×40mm×200mm（320cc）の小型化を実現した。

図 5.16　緑色レーザー試作機の外観写真

本レーザーは以下の特長を有する。第一は、自然冷却でファンレスの小型ヘッドを実現し、小型・小電力化を図った点である。従来の DPSSL ではヘッド内に固体レーザー共振器を必要とするため、固体レーザーの変換ロス、および共振器内で変換されなかった赤外光はすべて共振器内部の熱に変わる。このため、高出力化にともない発熱が増大し、冷却機構が必須になる。これに対して、シングルパス方式は非線形光学効果による波長変換のみを利用するために変換ロスの熱転移がない。さらに、SHG デバイスで変換されなかった赤外光を空間放出することで赤外光による発熱も回避できる。この結果、連続波 5W クラスで水冷も空冷（ファン冷却）も不要で、冷却に要する電力の大幅削減を達成した。

第二は、本レーザーは安定で耐塵性に優れている点である。波長変換部は高効率SHGデバイスを用いたシングルパス方式となっているため、集光光学系とSHGデバイスおよび出力検出用のPDというシンプルな構成になっている。従来のDPSSLでは共振器ミラーの反射率がわずかに変化すると出力が大幅に低減するため、粉塵やアウトガスの対策が必須で、ハーメチ

ック構造など厳重な対策を必要としていた。これに対して、シングルパス方式は、透過光学系のみを用いた簡単な構成のため安定性に優れ、粉塵やアウトガスなどの耐久性にも優れている。

第三は、ファイバーレーザーを光源ヘッドと分離した構成となっている点である。ファイバーレーザー本体およびファイバーレーザーの空冷機構はコントローラ側に搭載されているためにヘッド部のさらなる小型化、軽量化を実現している。

図5.17に高出力緑色SHGレーザーを連続波5.0Wで点灯した時の緑出力安定性を示す。連続点灯は室温環境下において実施した。前述したように、緑出力の一部をフィードバックすることで自動光出力制御（Auto power control：APC）を行っている。1時間以上の連続点灯に対して5.0W±0.6%の出力安定性を確認した。

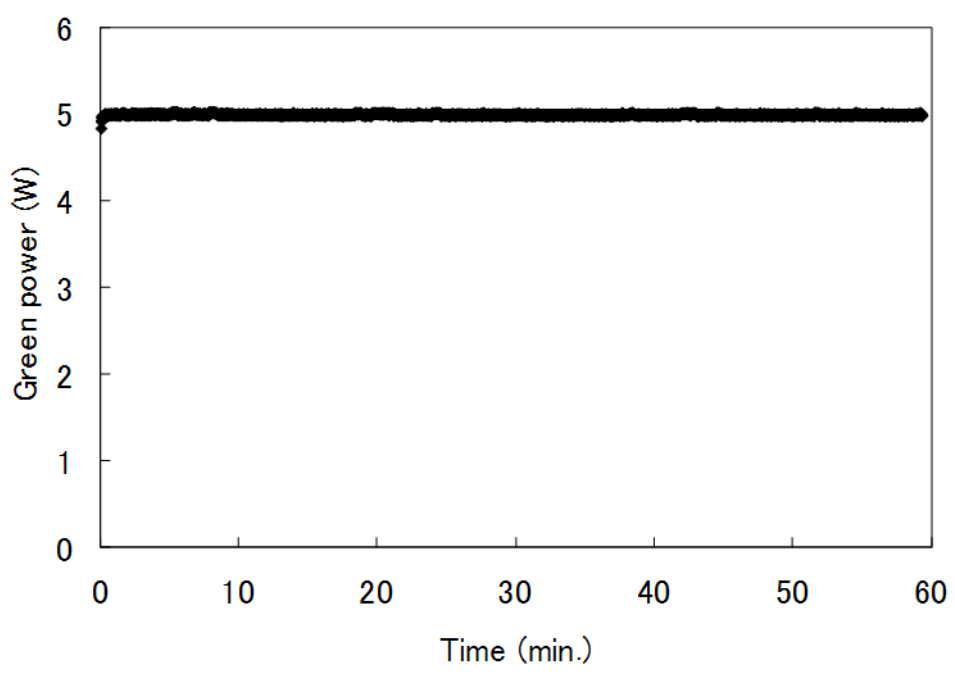


図 5.17　緑色レーザー試作機の緑色光出力安定性

図 5.18 に試作機の緑色光ビームプロファイル（出力 5W）を示す。緑色光は TEM_{00} モードであり、偏光比 100:1 以上の単一偏光である。集光ビームはほぼガウス分布であり、ビーム品質の高いファイバーレーザーを用いているために $M^2 < 1.1$ の高いビーム品質を有する緑色光が得られた。

表 5.1 に試作機の特性表を示す。本レーザーの電気－光変換効率（電気から緑色光への変換効率）は 6.2%であり、またファイバーレーザーの空冷ファンの駆動電力は小さく、光源全体の消費電力は約 120W と低消費電力化を達成した。

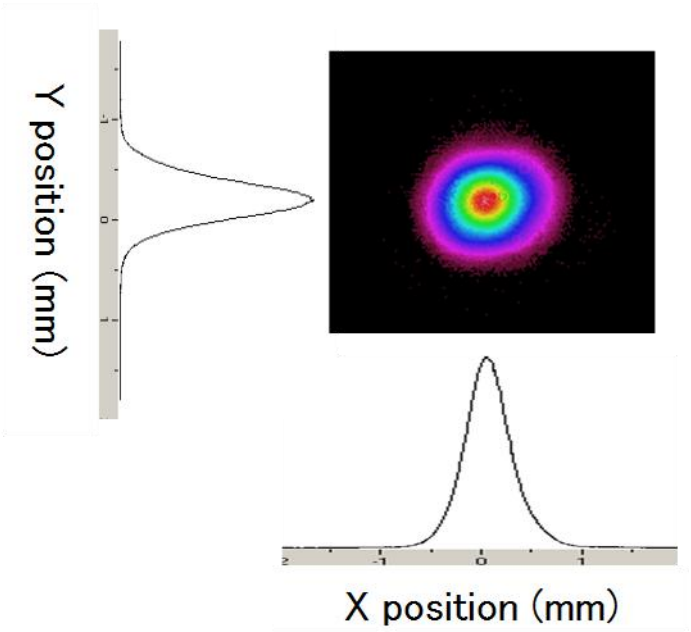


図 5.18　緑色光のビームプロファイル特性

表 5.1　緑色レーザー試作機の特性

Head size (mm)	Head weight (kg)	Beam quality	Polarization ratio	Power (w)	Stability	Emission	Wavelength (nm)	Spectrum width(nm)
40/40/200	0.5	$M^2<1.1$	>100:1	5.0	<±1%	Double emission of infrared and green	532.0	0.04

5.4.2　赤外光と緑色光のハイブリッドレーザー加工の提案

本構成の特長のひとつであるシングルパス方式は二波長同一点集光が可能であり、これを実現することで新たな微細レーザー加工に展開できる。シングルパス方式の赤外光と緑色光はノンクリティカルな位相整合をしているため、二つの光は波面の一致した状態で SHG デバイス内部を伝搬する。SHG デバイスにより変換された緑色光と未変換の赤外光は波面の揃った二波長光として空間に同軸出射される。さらに、M^2＜1.1 の高いビーム品質を有するファイバーレーザーを用いることで出力される赤外光および緑色光はともに高いビーム品質を得ることができ、本光源では赤外光 20W、緑色光 5W の回折限界に近い集光スポット径を同一集光点で実現できる。

色収差補正レンズ（焦点距離 40mm）を用いた集光光学系で赤外光、緑色光の集光特性をビームプロファイラーにより評価した。赤外光の集光特性評価は、緑色光を吸収フィルタで遮断させ、赤外光のみがビームプロファイラーで受光される構成とした。この時の赤外光出力は 3.0W であったが、ビームプロファイラーの耐光性の関係で反射率 99%のミラーで減衰させた光を用いて評価した。一方、緑色光の集光特性評価は、赤外光を反射率 99%のミラーで減衰、吸収フィルタで遮断させ、緑色光のみがビームプロファイラーで受光される構成とし、この時の緑色光出力は 0.1W であった。図 5.19 に評価結果を示す。実線は M^2=1.0 の理想的な集光特性、点は本光源の測定結果である。赤外光と緑色光の二波長光ともに M^2=1.0 の計算値にほぼ一致した集光特性を確認した。また、この時の集光スポット径は赤外光 74μmφ、緑色光 51μmφであり、回折限界の 95%の集光スポット径を同一点で得ることができた。未変換の赤外光と変換された緑色光の二波長が回折限界に近い集光スポット径をもって同一点で集光されることから、光損傷や熱レンズ効果などによる劣化のない、高品質ビームが得られていると言える。本結果から、これまで赤外光の単波長で加工が困難であった材料において赤外光と緑色光のハ

イブリッドレーザー加工など、新たな微細加工の可能性が示唆される。

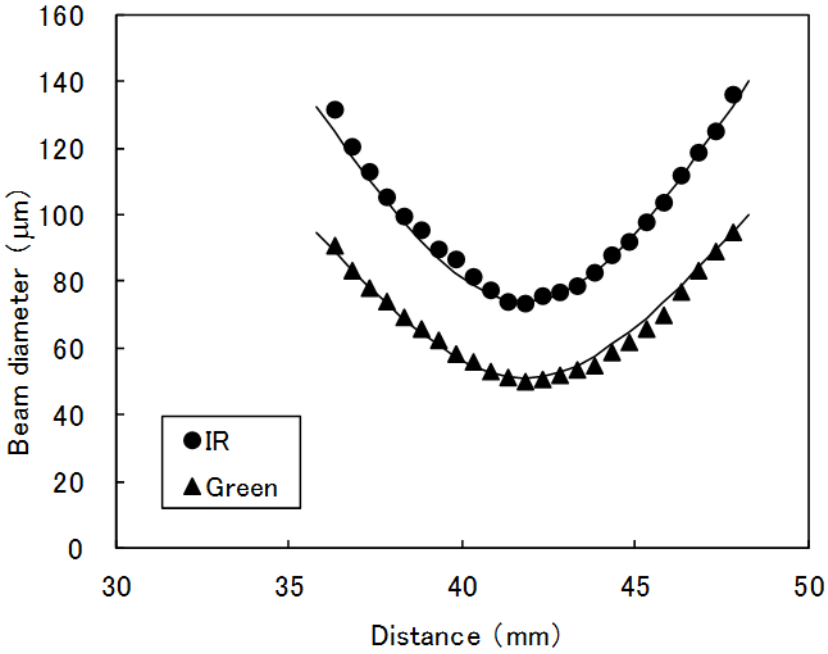


図 5.19　赤外光と緑色光の同一点集光特性

5.5 まとめ

PPMgLN を用いた超小型緑色レーザーモジュールを試作し、ノートパソコン搭載レーザープロジェクターを開発した。本レーザーモジュールの特長である広い動作温度範囲を生かし、高出力緑色光を安定に出力させることで緑色レーザーモジュールの量産化とノートパソコン搭載レーザープロジェクターの商品化を実現した。

また、シングルパス型緑色レーザーモジュールを試作し、赤色・青色半導体レーザーと組み合わせることで 61 インチのレーザーリアプロジェクション TV を開発した。レーザーディスプレイの特長である広範囲の色再現性、低消費電力化を実証した。

さらに、レーザー加工を目的として、ファイバーレーザーと高出力耐性に優れた PPMgSLT を用いた高出力緑色レーザー光源を開発し、緑色光出力 5W で世界最小、最軽量の小型ヘッドを実現し、また世界最低の消費電力を実現した。また、本光源を用いて赤外光、緑色光の二波長同一点集光を確認し、赤外光と緑色光のハイブリッドレーザー加工など、新たな微細加工方式を提案した。

以上から、提案したサブミクロンオーダーの分極反転制御技術を適用した PPMgLN と PPMgSLT は高効率、高出力緑色レーザー光源を実現でき、レーザーディスプレイ、レーザー加工等に応用展開できることを実証した。

参考文献

1) J.E.Geusic, H.J.Levinstein, S.Singh, R.G.Smith, and L.G.Van Uitert: Appl.Phys.Lett. 12(1968) 306.

2) N.Pavel T.Taira, and M.Furuhata: Opt. Laser Technol. 30(1998) 275.

3) Y.Kitaoka, K.Mizuuchi, K.Yamamoto, M.Kato and T.Sasaki: Opt.Lett. 21(1996) 1972.

4) O.Efimov, L.Glebov, L.Glebova, K.Richardson, and V.Smirnov: Appl.Opt. 38(1999) 619.

5) B.Volodin, S.Doolqy, E.Melnik, E.Downs, J.Shaw, and V.Ban: Opt.Lett. 29(2004) 1891.

6) C.E.Baker, and A.D.Rugari: Proc.6th Conf.Society for Information Display (1965) 85.

7) S.Kubota: Opt.Photonics News 13 (2002) 50.

8) J.L.A.Chilla, H.Zhou, E.Weiss, A.L.Caprara,Q.Shou, S.V.Govorkov, M.K.Reed, and L.Spinelli: Proc. SPIE 5740 (2005) 41.

9) K.Kasazumi, Y.Kitaoka, K.Mizuuchi, and K.Yamamoto: Jpn.J.Appl.Phys.43 (2004) 5094.

10) 平等拓範：レーザー研究 26 (1998) 847.

第 6 章　結論

6.1　本研究の成果

本研究は、Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料における周期分極反転構造のサブミクロン制御による高効率波長変換を目的とし、紫外光～可視光の広範囲にわたり高効率波長変換可能な Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料における分極反転形成メカニズムを解明することで貫通反転による不均一化を抑制する厚板多重パルス電界印加法を提案してサブミクロン分極反転制御を実現した。また、周期分極反転構造の不均一化メカニズムを仮説・検証し、分極反転形成時の発熱を空間的・時間的に制御する掘り込み電極と発熱制御パルス波形を提唱した。さらに、電極端部の電界集中による過剰成長を抑制する裏面電極パターンを考案することで分極反転幅ばらつきをサブミクロンに低減し、周期分極反転構造の大面積均一化に成功した。

均一化した大面積周期分極反転構造を用いた高効率 SHG デバイスを作製し、紫外～可視波長域における高効率波長変換、高出力波長変換を実証した。さらに、緑色レーザーモジュールを用いた小型レーザープロジェクター、レーザーリアプロジェクション TV、レーザー加工への応用展開を図った。

以下に本研究の内容および得られた成果を総括する。

第 2 章　Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料の分極反転メカニズムと厚板多重パルス電界印加法の提案

導波路型分極反転とバルク型分極反転を比較検証し、バルク型分極反転が高出力化に適していることを示した。また、非線形光学材料の特徴を比較し、高効率化、高出力化が実現可能な Mg 添加 $LiNbO_3$ を選択した。Mg 添加 $LiNbO_3$ には分極反転形成時に大幅な抵抗低下と大電流が流れるという特異な特性があることを示し、基板裏面への貫通反転を抑制する厚板多重パルス電界印加法を提案することで周期分極反転構造のサブミクロン制御が可能となり、周期

1.4μm、分極反転幅 0.8μm の分極反転構造の形成に成功した。

第 3 章　周期分極反転構造の形成

周期分極反転構造の不均一化メカニズムを考察し、分極反転形成時の発熱と電極端部の電界集中が大面積周期分極反転構造の不均一化の要因であることを導いた。不均一化メカニズム考察から、サブミクロンオーダーの分極反転制御ができる厚板多重パルス電界印加法に掘り込み電極、発熱制御パルス印加、裏面パターン電極を加えた周期分極反転構造の形成技術を開発した。分極反転形成時の発熱を掘り込み電極で空間的に制御し、発熱制御パルス印加で時間的に制御し、配線電極端部の電界集中を裏面電極パターンで抑制することで分極反転幅ばらつきをサブミクロンに低減し、Mg 添加 $LiNbO_3$ における周期分極反転構造（周期 1.78～7.38μm）の大面積均一化を実現した。

また、Mg 添加定比組成 $LiNbO_3$、Mg 添加定比組成 $LiTaO_3$ への周期分極反転構造の形成を検討し、サブミクロン分極反転制御により Mg 添加 $LiNbO_3$ と同様に高効率波長変換を実現可能な周期分極反転構造の均一化を達成した。

第 4 章　周期分極反転 SHG デバイスを用いた第二高調波発生

分極反転構造をサブミクロンオーダーで制御し、大面積均一化が図られた PPMgLN、PPMgSLT を用いて紫外光、青色光、緑色光の高効率波長変換、高出力波長変換を実証した。周期 1.4μm の PPMgLN を用いて波長 342nm、変換効率 8.6%/W の紫外光発生、周期 2.0μm の PPMgLN では、波長 372nm、変換効率 16.7%/W の紫外光発生を実現し、紫外光領域において最大の実効非線形定数 20.6pm/V が得られ、理想的な周期分極反転構造がデバイス全体に均一形成されていることを示した。また、周期 4.19μm の PPMgLN を用いて光出力 167mW、変換効率 8.3%、波長 456nm の青色光発生に成功し、理論効率の 80%の高効率波長変換を実証した。

周期 6.95μm の 10mm 長 PPMgLN を用いて光出力 1.0W、変換効率 16.5%、波長 531nm の緑

色光発生に成功した。また、PPMgLN の大面積化、均一化を実現することで 25mm 長 PPMgLN と高出力ファイバーレーザーを用いて光出力 3.0W、変換効率 34%、波長 531nm の高効率緑色光発生に成功した。

さらに、30mm 長 PPMgSLT と高出力ファイバーレーザーを用いて光出力 8.0W、変換効率 27.6%、波長 532nm の高出力緑色光発生に成功した。

第 5 章　緑色 SHG レーザーの応用

PPMgLN を用いた超小型緑色レーザーモジュールを試作し、ノートパソコン搭載レーザープロジェクターを開発した。また、シングルパス型緑色レーザーモジュールを試作し、赤色・青色半導体レーザーと組み合わせることで 61 インチのレーザーリアプロジェクション TV を開発し、レーザーディスプレイの特長である広範囲の色再現性、低消費電力化を実証した。

さらに、レーザー加工を目的として、ファイバーレーザーと高出力耐性に優れた PPMgSLT を用いた高出力緑色レーザー光源を開発し、緑色光出力 5W で世界最小、最軽量の小型ヘッドを実現し、また世界最低の消費電力を実現した。また、本光源を用いて赤外光、緑色光の二波長同一点集光を確認し、赤外光と緑色光のハイブリッドレーザー加工など、新たな微細加工方式を提案した。

以上に述べた本研究開発の成果により、Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料における周期分極反転構造のサブミクロン制御技術を確立し、高効率、高出力レーザー光源を実現することでレーザーディスプレイ、小型レーザープロジェクターのディスプレイ用途、レーザー加工などの産業用途、医療、バイオ、などの様々な分野に応用展開できることを実証した。

6.2　波及効果と今後の展望

現在の日常生活に普及されているブルーレイディスクの青色レーザー光源は、1990 年～2000 年代初頭にかけて GaN 系半導体レーザーと SHG 方式の両方において活発に開発が進められてきた。SHG 方式は出力、寿命ともに半導体レーザーを凌ぐ特性が得られており、ブルーレイディスクの規格化の推進に大きく貢献した。

本研究の Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料における周期分極反転構造のサブミクロン制御技術は紫外～可視波長域の高効率 SHG レーザーを実現する最も重要な技術であり、それを確立することで緑色 SHG レーザーを用いて小型レーザープロジェクター、レーザーリアプロジェクション TV、レーザー加工に応用展開することができた。現在、緑色半導体レーザーの高出力化の開発が進んでいるが、出力、信頼性の面で SHG 方式が優れていると言える。2015 年秋に 109 シネマズ大阪エキスポシティ（大阪府吹田市）に登場する次世代 IMAX シアター（大型レーザープロジェクター）には高出力緑色 SHG レーザーの採用が決まっており、レーザー照明、レーザーシネマなどの用途として、高出力で高信頼性が要求される緑色レーザー光源には SHG 方式が用いられる可能性が高く、本研究の Mg 添加 $LiNbO_3$ 系材料の周期分極反転構造のサブミクロン制御技術が高出力緑色 SHG レーザー光源の開発、商品化に対して大きな役割を担っている。

高出力、高信頼性以外にも、緑色 SHG レーザーは狭波長線幅、単一横モード、高コヒーレンシーなどの特長を有しており、新たな応用分野に展開され、本研究がそれらの実用化に貢献することを期待する。

謝辞

本論文を完遂するにあたり、終始御理解のある御指導、御鞭撻を賜りました大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻 教授 藤原康文博士に深甚なる感謝の意を表しますとともに厚く御礼申し上げます。

また、本論文の審査をして頂き、本論文を纏めるにあたり、懇切なる御検討と数多くの御指導・御助言を賜りました大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻 教授 中谷亮一博士、同 教授 保田英洋博士、大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻 特任教授 山本和久博士に深く感謝致します。

本研究開発は、著者がパナソニック株式会社（旧 松下電器産業株式会社）在籍中に遂行したものです。

本研究開発の開始時点から常に親身に御助言と御指導を賜り、また、本研究においても先駆的な御研究をされ、本論文を纏める動機付けを頂きましたパナソニックヘルスケア株式会社 R&D センター 主幹 水内公典博士に深く感謝致します。

本研究開発を推進するにあたり貴重な御指導と適切な方向付けを賜りました田中伸一氏（元メディア制御システム開発センター 所長）、大原俊次氏（元メディア制御システム開発センター 主担当）、岡崎之則博士（元パナソニックヘルスケア株式会社 常務取締役）に心より御礼申し上げます。

本論文執筆の機会を与えていただき、多大な御配慮と御理解を賜りましたパナソニック株式会社 オートモーティブ&インダストリアルシステムズ社 常務取締役 技術本部 本部長 久保実博士、 同 デバイスソリューション事業部 開発企画部 部長 御堂勇治氏、同 技術本部 開発統括部 主幹 富井和志氏、同 技術本部 基盤技術開発センター 基板材料開発部 開発１課

課長 川崎哲生氏、同 デバイスソリューション事業部 開発企画部 センサ開発二課 課長 中園晋輔氏、同 デバイスソリューション事業部 開発企画部 センサ開発二課 開発三係 係長 吉田和司博士に厚く感謝致します。

また、SHG レーザー要素技術とレーザーディスプレイの共同研究者として有益な御討論と御協力を頂きました門脇愼一氏、伊藤達男氏、黒塚章氏、北岡康夫博士、笠澄研一氏、横山敏史氏、杉田知也氏、式井愼一氏、古屋博之博士、水島哲郎氏、楠亀弘一氏、中山健二氏、堀川信之氏、川端陽美氏に心より感謝致します。

また、緑色 SHG レーザーの共同研究者として有益な御討論と御協力を頂きました溝尾嘉章氏、渡邊克也氏、高木進氏、平塚隆繁氏、桃井香充氏、中北勝氏、青野暁史氏、田中晃治氏、中野太郎氏、伴知晃氏、上別府剛氏に心より感謝致します。

また、日頃より御討論と温かい励ましを頂きましたパナソニック株式会社 先端研究本部、オートモーティブ&インダストリアルシステムズ社、パナソニックヘルスケア株式会社の皆様にも深く感謝致します。

さらに、本研究の共同研究者として貴重な御検討と御協力を頂きました分子科学研究所 准教授 平等拓範博士、中央大学理工学部 教授 庄子一郎博士、Nicolaie Pavel 博士に心より感謝致します。

本研究開発の推進と遂行は、パナソニック株式会社（旧 松下電器産業株式会社)、パナソニックヘルスケア株式会社（旧 パナソニック四国エレクトロニクス株式会社）に於き、お名前を挙げていない多くの方々の御指導、御協力を頂きました。心より御礼申し上げます。

最後に、これまでの人生において、多大なる御支援と御理解と御協力を頂いた父 森川邦祐、母 森川美知子、妹 森川理美に心から感謝し謝辞とさせて頂きます。

平成 27 年 6 月 26 日

森川　顕洋

本論文に関する主要業績

発表論文

1) 森川顕洋、水内公典、藤原康文： “ファイバレーザーと Mg ドープ $LiTaO_3$ 分極反転素子を用いた高出力 SHG グリーンレーザー”, レーザー研究 **42**(11) (2014) pp. 844-848.

2) T. Itoh, T. Mizushima, H. Furuya, K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, S. Shikii, K. Yamamoto, S. Kadowaki, T. Hiratsuka, S. Takagi, and Y. Mizoh: “Multi-laser diodes condenser/Homogenizer applicable to laser projection systems”, Japanese Journal of Applied Physics **47**(8) (2008) pp. 6794-6796.

3) T. Yokoyama, K. Mizuuchi, K. Nakayama, A. Kurozuka, T. Sugita, **A. Morikawa**, and K.Yamamoto: “Compact intracavity green light source with wide operation temperature range using periodically poled MgO:$LiNbO_3$”, Japanese Journal of Applied Physics **47**(8) (2008) pp. 6787-6789.

4) H. Furuya, **A. Morikawa**, K. Mizuuchi, and K. Yamamoto: “High-beam-quality continuous wave 3W green-light generation in bulk periodically poled MgO:$LiNbO_3$”, Japanese Journal of Applied Physics **45**(8B) (2006) pp. 6704-6707.

5) 森川顕洋、水内公典、杉田知也、山本和久、パベルニコライ、平等拓範： “分極反転 SHG 素子による高効率緑色光・青色光発生”, レーザー研究 **33**(10) (2005) pp. 671-675.

6) **A. Morikawa**, K. Mizuuchi, T. Sugita, and K. Yamamoto: “Harmonic blue light generation in periodically poled bulk near-stoichiometric MgO:$LiNbO_3$”, Electronics Letters **41**(8) (2005) pp. 486-487.

7) K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, and K. Yamamoto: “Electric-field poling in Mg-doped $LiNbO_3$”, Journal of Applied Physics **96** (11) (2004) pp. 6585-6590.

8) K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, K. Yamamoto, N. Pavel, and T. Taira: “Continuous-wave deep blue generation in a periodically poled MgO:$LiNbO_3$ crystal by single-pass frequency doubling of a 912-nm Nd:$GdVO_4$ laser”, Japanese Journal of Applied Physics (Express Letters) **43** (10A) (2004) pp. L1293–L1295.

9) K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, K. Yamamoto, N. Pavel, and T. Taira: “Continuous-wave ultraviolet generation at 354 nm in a periodically poled MgO:$LiNbO_3$ crystal by frequency tripling of a diode end-pumped Md:$GdVO_4$ microlaser”, Applied Physics Letters **85**(18) (2004) pp. 3959-3961.

10) K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, and K.Yamamoto: “Polarisation-switching-induced resistance change in ferroelectric Mg-doped $LiNbO_3$ single crystals”, Electronics Letters **40**(13) (2004) pp. 819-820.

11) 森川顕洋、杉田知也、水内公典、山本和久: “MgO:$LiNbO_3$ への短周期分極反転層形成と高効率紫外光発生”, レーザー研究 **32**(3) (2004) pp. 191-196.

12) N. Pavel, I. Shoji, T. Taira, K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, and K. Yamamoto: “Room-temperature continuous-wave 1-W green power by single-pass frequency doubling in a bulk periodically poled MgO:$LiNbO_3$ crystal”, Optics Letters **29**(8) (2004) pp. 830-832.

13) K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, and K. Yamamoto: “High-power continuous-wave ultraviolet generation by singlepass frequency doubling in periodically poled MgO:$LiNbO_3$”, Electronics Letters **39**(25) (2003) pp. 1836-1838.

14) K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, K. Yamamoto, N. Pavel, I. Shoji, and T. Taira: “High-power continuous wave green generation by single pass frequency doubling of a Nd:$GdVO_4$ laser in a periodically poled MgO:$LiNbO_3$ operating at room temperature”, Japanese Journal of Applied Physics **42**(11A) (2003) pp. L1296-1298.

15) K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, and K. Yamamoto: “Generation of 360-nm ultraviolet light in first-order periodically poled bulk MgO:$LiNbO_3$”, Optics Letters **28**(11) (2003) pp. 935-937.

16) Y. Kitaoka, K. Kasazumi, **A. Morikawa**, T. Yokoyama, T. Sugita, K. Mizuuchi, K.Yamamoto, T. Takayama, S. Takigawa, and M. Yuri: “Wavelength stabilization of a distributed Bragg reflector laser diode by use of complementary current injection”, Optics Letters **28**(11) (2003) pp. 914-916.

17) K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, and K.Yamamoto: “Efficient second-harmonic generation of 340-nm light in a 1.4 μm periodically poled bulk MgO:$LiNbO_3$”, Japanese Journal of Applied Physics (Express Letters) **42**(2A) (2003) pp. L90-L91.

18) 北岡康夫、森川顕洋、横山敏史、杉田知也、水内公典、笠澄研一、山本和久、高山徹、折田賢児、持田篤範、瀧川信一、油利正昭、清水裕一: “分布ブラッグ反射型半導体レーザーと導波路型波長変換素子を用いた高出力青紫色レーザー”, レーザー研究 **30**(11) (2002) pp. 676-680.

国際会議発表

1) **A. Morikawa**, K. Mizuuchi, and Y. Fujiwara:“High-power SHG green lasers using periodically poled Mg-doped stoichiometric $LiTaO_3$ and fiber lasers”, 18th SANKEN International, The 13th SANKEN Nanotechnology Symposium, 2nd KANSAI Nanoscience and Nanotechnology, 10th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, PB-31, The Congres Convention Center, Osaka, Japan, December 10-11 (2014).

2) T. Itoh, T. Mizushima, H. Furuya, K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, S. Shikii, K. Yamamoto, S. Kadowaki, T. Hiratsuka, S. Takagi, and Y. Mizoh: “Multi-laser diodes condenser/hmogenizer applicable to laser projection systems”, The 13th Microoptics Conference (MOC07), K7, Kagawa, Japan, October 28-31 (2007).

3) T. Yokoyama, K. Mizuuchi, K. Nakayama, A. Kurozuka, T. Sugita, **A. Morikawa**, and K. Yamamoto:“Compact intracavity SHG green light source with wide operation temperature range using periodically poled $MgO:LiNbO_3$”, The 13th Microoptics Conference (MOC07), K1, Kagawa, Japan, October 28-31 (2007).

4) H. Furuya, T. Mizushima, K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Itoh, S. Shikii, K. Yamamoto, S. Kadowaki, T.Hiratsuka, S. Takagi, and Y. Mizoh: “ Low electric consumption 3.6W green SHG laser light source applicable to laser projection systems”, The 6th International Workshop of Social Intelligence Design 2007(SID2007), P206, Digest, pp. 911-914, Trento, Italy, July 2-4 (2007).

5) T. Mizushima, H. Furuya, K. Mizuuchi, T. Yokoyama, **A. Morikawa**, K. Kasazumi, T. Itoh, A. Kurozuka, K. Yamamoto, S. Kadowaki, and S. Marukawa: “Laser projection display with low electric consumption and wide color gamut by using efficient green SHG laser and new illumination optics”, The 5th International Workshop of Social Intelligence Design 2006(SID2006), L6, Digest, pp. 1681-1684, Osaka, March 24-26 (2006).

6) H. Furuya, **A. Morikawa**, K. Mizuuchi, and K. Yamamoto: “High beam quality continuous wave 3W green generation in a bulk periodically poled $MgO:LiNbO_3$,” The 11th Microoptics Conference (MOC05), N3, Tokyo, Japan, October 30-November 2 (2005).

7) K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, H. Furuya, and K. Yamamoto: “3-W cw green generation at 34% efficiency by single-pass frequency-doubling in a bulk periodically poled $MgO:LiNbO_3$ at room temperature”, Conference on Lasers and Electro-Optics 2005 (CLEO2005), CFL1, Baltimore Convention Center, Baltimore, Maryland, USA, May 22-27 (2005).

8) N. Pavel, T. Taira, K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita and K. Yamamoto: “Continuous-wave 456-nm blue light generation in a bulk periodically poled $MgO:LiNbO_3$ crystal”, Advanced Solid-State Photonics 2005 (ASSP2005), MB27, Intercontinental Wien Vienna, Austria, February 6-9 (2005).

9) K. Kasazumi , **A. Morikawa**, T. Sugita, K. Mizuuchi, K. Yamamoto, N. Pavel, and T. Taira:"A laser light source generating ultra-violet and green light for holographic memory system", International Symposium on Optical Memory 2004 (ISOM2004), Th-I-5, Lotte Hotel Jeju, Jeju Island, Korea, October 11-15 (2004).

10) **A. Morikawa**, K. Mizuuchi, T. Sugita, K. Yamamoto, N. Pavel, and T. Taira: "Continuous-wave 354nm generation by single-pass frequency tripling of a Nd:$GdVO_4$ micro-laser in a periodically poled MgO:$LiNbO_3$", *ISFD-8 International Conference*, P02-32, Tsukuba, Japan, August 24-27 (2004).

11) N. Pavel, T. Taira, K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita, and K. Yamamoto: "Continuous-wave ultraviolet generation at 354 nm in a periodically poled MgO:$LiNbO_3$", Nonlinear Optics 2004 (NLO2004), TuA2, Hawaii, USA, August 2-6 (2004).

12) N. Pavel, I. Shoji, T. Taira, K. Mizuuchi, **A. Morikawa**, T. Sugita and K. Yamamoto: "High-power green generation at room temperature in a periodically poled MgO:$LiNbO_3$ by frequency doubling of a diode end-pumped Nd:$GdVO_4$ laser", Advanced Solid-State Photonics 2004 (ASSP2004), WD3, Santa Fe, New Mexico, USA, April 1-5 (2004).

13) **A. Morikawa**, T. Sugita, K. Mizuuchi, and K.Yamamoto: "High power UV light in a periodically poled bulk MgO:$LiNbO_3$", International Symposium on Optical Memory 2003 (ISOM2003), Th-G-02, Nara, Japan, November 3-7 (2003).

国内学会・研究会発表

1) 森川顕洋、水内公典、中野太郎、田中章治、高木進: “ファイバーレーザを用いた高出力 SHG グリーンレーザの開発”, 第 72 回レーザ加工学会講演会：30 周年記念名古屋大会, P-13, 名古屋国際会議場, 12 月 16 日(2009).

2) 森川顕洋、水内公典、中野太郎、田中章治、高木進: “ファイバレーザーを用いた高出力 SHG グリーンレーザーの開発”, レーザー学会 中部支部 第 393 回研究会「レーザー加工」, 名古屋大学, 10 月 14 日(2009).

3) 古屋博之、水島哲郎、水内公典、森川顕洋、伊藤達男、式井愼一、山本和久、門脇愼一: “高出力・高効率グリーン光源とそれを用いたレーザプロジェクターの開発”, レーザー学会学術講演会第 28 回年次大会, 31aI-5, 名古屋国際会議場, 1 月 31 日(2008).

4) 古屋博之、森川顕洋、水内公典、山本和久: “周期分極反転 $MgO:LiNbO_3$ を用いたバルク型 SHG デバイスによる 3W CW 緑色光発生”, 2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会, 30p-ZQ-2, 埼玉大学, 3 月 30 日(2005).

5) 森川顕洋、水内公典、杉田知也、山本和久: “ストイキオメトリック $MgO:LiNbO_3$ への短周期分極反転構造の形成”, レーザー学会学術講演会第 25 回年次大会, 21aI-2, けいはんなプラザ, 1 月 21 日(2005).

6) 森川顕洋、水内公典、杉田知也、山本和久、ニコライ パベル、平等拓範: “バルク周期分極反転 $MgO:LiNbO_3$ を用いた CW 青色光発生”, 日本光学会年次学術講演会 OJ2004, 5pH1, 大阪大学, 11 月 5 日(2004).

7) 森川顕洋、水内公典、杉田知也、山本和久: “ストイキオメトリック $MgO:LiNbO_3$ における短周期分極反転構造の形成”, 2004 年秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会, 3p-ZM-11, 東北学院大学, 9 月 3 日(2004).

8) 森川顕洋、水内公典、杉田知也、山本和久、パベルニコライ、平等拓範: “バルク分極反転 $MgO:LiNbO_3$ を用いた CW354nm 三倍波発生”, 2004 年秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会, 3p-ZM-10, 東北学院大学, 9 月 3 日(2004).

9) 水内公典、森川顕洋、杉田知也、山本和久: “$MgO:LiNbO_3$ を用いた分極反転メモリ”, 2004 年秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会, 1p-Y-11, 東北学院大学, 9 月 1 日(2004).

10) 森川顕洋、水内公典、杉田知也、山本和久: “バルク周期分極反転 $MgO:LiNbO_3$ の相互作用長拡大”, 2004 年春季 第 51 回応用物理学関係連合講演会, 30a-N-7, 東京工科大学, 3 月 30 日(2004).

11) 森川顕洋、水内公典、杉田知也、山本和久、Nicolaie Pavel、庄司一郎、平等拓範: “バルク周期分極反転 $MgO:LiNbO_3$ を用いた 1W 緑色光発生”, 2004 年春季 第 51 回応用物理学関係

連合講演会, 30a-N-6, 東京工科大学, 3 月 30 日(2004).

12) 森川顕洋、水内公典、笠澄研一、杉田知也、山本和久: “バルク $MgO:LiNbO_3$ を用いた次世代光メモリ用 UV-SHG 光源”, レーザー学会学術講演会第 24 回年次大会, 30pIII3, 仙台国際センター, 1 月 30 日(2004).

13) 森川顕洋、水内公典、杉田知也、山本和久: “Z 板 $MgO:LiNbO_3$ における短周期分極反転構造の形成”, 2003 年春季 第 50 回応用物理学関係連合講演会, 30a-YQ-9, 神奈川大学, 3 月 30 日(2003).

14) 水内公典、森川顕洋、杉田知也、山本和久: “周期状分極反転バルク $MgO:LiNbO_3$ による高効率紫外光発生”, 2003 年春季 第 50 回応用物理学関係連合講演会, 27p-W-14, 神奈川大学, 3 月 27 日(2003).

日本特許（登録）

	登録番号	発明の名称	発明者
1	特許第 5457031 号	レーザ発光装置とそれを用いた画像表示装置	水島哲郎、**森川顕洋**、山本和久、笠澄研一、古屋博之、門脇愼一
2	特許第 5312947 号	短波長光源およびレーザ画像形成装置	**森川顕洋**、水内公典、古屋博之、山本和久
3	特許第 5274888 号	レーザ波長変換装置、分極反転構造の形成方法及び画像表示装置	楠亀弘一、水内公典、杉田知也、**森川顕洋**
4	特許第 4990144 号	レーザ画像形成装置およびカラー画像形成方法	水島哲郎、笠澄研一、**森川顕洋**、古屋博之、山本和久、伏見吉正
5	特許第 4946052 号	レーザ光源、及び２次元画像形成装置	杉田知也、水内公典、笠澄研一、**森川顕洋**、山本和久
6	特許第 4927739 号	ディスプレイ装置及び照射装置	水内公典、山本和久、門脇愼一、水島哲郎、**森川顕洋**
7	特許第 4926700 号	光学素子ならびに分極反転領域の形成方法	**森川顕洋**、杉田知也、水内公典
8	特許第 4862821 号	波長変換光学装置、レーザ光源、及び画像表示光学装置	古屋博之、水内公典、**森川顕洋**、山本和久
9	特許第 4855401 号	波長変換素子、レーザ光源装置、２次元画像表示装置及びレーザ加工装置	古屋博之、**森川顕洋**、水内公典、山本和久、門脇愼一
10	特許第 4856950 号	電気スイッチおよびそれを用いた記憶素子	水内公典、山本和久、杉田知也、**森川顕洋**
11	特許第 4833203 号	レーザ画像表示装置	水島哲郎、笠澄研一、**森川顕洋**、山本和久
12	特許第 4680065 号	面発光レーザおよびレーザ投射装置	水内公典、笠澄研一、**森川顕洋**
13	特許第 4669879 号	レーザ画像形成装置	**森川顕洋**、笠澄研一、水島哲郎、山本和久、門脇愼一
14	特許第 4598676 号	２次元走査型画像表示装置	**森川顕洋**、笠澄研一、水内公典
15	特許第 4359615 号	レーザ画像表示装置	**森川顕洋**、笠澄研一、水内公典
16	特許第 4077484 号	光源装置	笠澄研一、水内公典、**森川顕洋**、山本和久
17	特許第 4036340 号	ディスプレイ装置およびその走査方法	横山敏史、笠澄研一、**森川顕洋**、水内公典、山本和久

日本特許（公開）

	公開番号	発明の名称	発明者
1	WO11/045893	光学素子の製造方法	**森川顕洋**、水内公典
2	特開 2012-37704	レーザ光源	**森川顕洋**、桃井香充、上別府剛、水内公典、渡邊克也
3	特開 2010-20285	レーザ光源、画像表示装置、及び加工装置	楠亀弘一、古屋博之、水内公典、杉田知也、**森川顕洋**、堀川信之、山本和久、門脇愼一
4	WO07/040089	レーザ投射装置及び液晶テレビ装置	山本和久、水島哲郎、笠澄研一、**森川顕洋**、門脇愼一
5	WO07/007733	光源、光源装置、レーザ画像形成装置、および集積回路	**森川顕洋**、笠澄研一、水島哲郎、山本和久、門脇愼一
6	特開 2007-19383	光源およびレーザ画像形成装置	**森川顕洋**、笠澄研一、水島哲郎、横山敏史、山本和久、門脇愼一
7	特開 2006-308731	短波長光源および光学素子の形成方法	**森川顕洋**、水内公典、古屋博之、山本和久
8	WO05/057271	光学素子、レーザ光源、及び２次元画像形成装置	杉田知也、水内公典、笠澄研一、**森川顕洋**
9	特開 2004-246332	分極反転構造の形成方法および分極反転構造を有する光学素子	水内公典、**森川顕洋**、杉田知也
10	WO04/049526	レーザモジュールおよびその作製方法	**森川顕洋**、横山敏史、北岡康夫、山本和久
11	特開 2003-330054	光導波路型波長変換デバイスモジュールおよびその作製方法	横山敏史、北岡康夫、山本和久、**森川顕洋**
12	特開 2004-70079	光導波路デバイスモジュールの実装方法	横山敏史、北岡康夫、山本和久、**森川顕洋**
13	特開 2004-12992	光導波路デバイスモジュールの実装装置および実装方法	横山敏史、北岡康夫、山本和久、**森川顕洋**
14	WO02/054548	短波長レーザモジュールおよびその製造方法	**森川顕洋**、北岡康夫、山本和久、瀧川信一
15	特開 2003-29307	光導波路型波長変換デバイスおよびこれを用いた光源および光学装置	**森川顕洋**、笠澄研一、北岡康夫、水内公典、山本和久
16	特開 2002-258340	光波長変換素子、その製造方法、短波長光源及び光学システム	水内公典、山本和久、**森川顕洋**

外国特許（登録）

	登録番号	発明の名称	発明者
1	US8571076B2	Laser light source, image display apparatus, and processing apparatus	Kusukame Koichi Furuya Hiroyuki Mizuuchi Kiminori Sugita Tomoya **Morikawa Akihiro** Horikawa Nobuyuki Yamamoto Kazuhisa Kadowaki Shinichi
2	JP5274888B2	LASER WAVELENGTH CONVERSION DEVICE, METHOD FOR FORMING POLARIZATION REVERSED STRUCTURE, AND IMAGE DISPLAY DEVICE	KUSUKAME Koichi MIZUUCHI Kiminori SUGITA Tomoya **MORIKAWA Akihiro**
3	EP1566689B1	POLARIZATION REVERSAL STRUCTURE CONSTRUCTING METHOD	MIZUUCHI Kiminori **MORIKAWA Akihiro** SUGITA Tomoya
4	US8189632B2	Laser emission device and image display device using the same	MizushimaTetsuro **Morikawa Akihiro** Yamamoto Kazuhisa Kasazumi Kenichi Furuya Hiroyuki Kadowaki Shinichi
5	US8089581B2	Display and illuminator	Mizuuchi Kiminori Yamamoto Kazuhisa Kadowaki Shin-ichi MizushimaTetsuro **Morikawa Akihiro**
6	US8016427B2	Light source device, and two-dimensional image display device	Kasazumi Kenichi Mizuuchi Kiminori **Morikawa Akihiro** Yamamoto Kazuhisa
7	US8018646B2	Wavelength conversion element, laser light source, two-dimensional image display and laser processing system	Furuya Hiroyuki **Morikawa Akihiro** Mizuuchi Kiminori Yamamoto Kazuhisa Kadowaki Shinichi
8	US7999998B2	Short wavelength light source and laser image forming apparatus	**Morikawa Akihiro** Mizuuchi Kiminori Furuya Hiroyuki Yamamoto Kazuhisa
9	US7938541B2	Laser picture formation device and color picture formation method	Mizushima Tetsuro Kasazumi Kenichi **Morikawa Akihiro** Furuya Hiroyuki Yamamoto Kazuhisa Fushimi Yoshimasa

10	US7926950B2	Laser image display device and color image display method utilizing control of the power of plural laser beams to display a pixel	Mizushima Tetsuro Kasazumi Kenichi **Morikawa Akihiro** Yamamoto Kazuhisa
11	US7873087B2	Light source, light source device, laser image forming device and integrated circuit	**Morikawa Akihiro** Kasazumi Kenichi Mizushima Tetsuro Yamamoto Kazuhisa Kadowaki Shin-ichi
12	DE602004030376D1	OBERFLÄCHENEMISSIONSLASER UND LASERPROJEKTOR	MIZUUCHI Kiminori KASAZUMI Kenichi **MORIKAWA Akihiro**
13	US7869120B2	Laser wavelength conversion device, method for forming polarization reversed structure, and image display device	Kusukame Koichi Mizuuchi Kiminori Sugita Tomoya **Morikawa Akihiro**
14	EP1710877B1	SURFACE-EMITTING LASER AND LASER PROJECTOR	MIZUUCHI Kiminori KASAZUMI Kenichi **MORIKAWA Akihiro**
15	US7643524B2	Surface-emitting laser and laser projector	Mizuuchi Kiminori Kasazumi Kenichi **Morikawa Akihiro**
16	US7593151B2	Display unit and scanning method therefor	Yokoyama Toshifumi Kasazumi Kenichi **Morikawa Akihiro** Mizuuchi Kiminori Yamamoto Kazuhisa
17	US7583431B2	Wavelength conversion optical device, laser light source, and image display optical device	Furuya Hiroyuki Mizuuchi Kiminori **Morikawa Akihiro** Yamamoto Kazuhisa
18	US7565049B2	Laser light source, and two-dimensional image forming device	Sugita Tomoya Mizuuchi Kiminori Kasazumi Kenichi **Morikawa Akihiro** Yamamoto Kazuhisa
19	US7522792B2	Optical element, laser light source, and two-dimensional image forming apparatus	Sugita Tomoya Mizuuchi Kiminori Kasazumi Kenichi **Morikawa Akihiro**
20	US7494286B2	Laser module and method for manufacturing the same	**Morikawa Akihiro** Yokoyama Toshifumi Kitaoka Yasuo Yamamoto Kazuhisa

本論文に関する受賞

表彰

平成 27 年 5 月	レーザー学会論文賞	ファイバレーザーと Mg ドープ $LiTaO_3$ 分極反転素子を用いた高出力 SHG グリーンレーザー
平成 17 年 5 月	レーザー学会優秀論文発表賞	ストイキオメトリック MgO: $LiNbO_3$ への短周期分極反転構造の形成

パナソニック株式会社での表彰

平成 22 年 2 月	パナソニック総合技術シンポジウム 2009　銅賞	高出力 SHG グリーンレーザの開発
平成 21 年 1 月	パナソニック四国シンポジウム優秀口頭発表	高出力 SHG グリーンレーザの開発