



Title	強誘電体波長変換デバイスにおける横モード制御技術の開発
Author(s)	野呂, 諒介
Citation	大阪大学, 2024, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/98656
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

強誘電体波長変換デバイスにおける
横モード制御技術の開発

野 呂 諒 介

2024 年 4 月

大阪大学大学院工学研究科

目次

第 1 章 序論	1
1.1 波長変換の始まり	1
1.2 波長変換方式	2
1.2.1 複屈折位相整合	3
1.2.2 縦型擬似位相整合	4
1.3 非線形光学結晶	4
1.4 光導波路構造	8
1.5 波長変換デバイスの応用先	12
1.5.1 レーザ直接描画装置の光源	12
1.5.2 スクイーズド光源	14
1.6 強誘電体導波路と横モード制御の重要性	16
1.7 研究目的と本論文の構成	18
参考文献	20
 第 2 章 光導波路型波長変換の理論	27
2.1 はじめに	27
2.2 非線形分極と非線形光学テンソル	27
2.3 モード結合方程式	31
2.4 紫外光発生	33
2.5 スクイーズド光発生	42
2.6 まとめ	50
参考文献	51

第3章 定比組成 LiTaO_3 擬似位相整合

アニールプロトン交換導波路の横モード拡大53

3.1 はじめに	53
3.2 結晶の選定	53
3.3 設計	55
3.3.1 分極反転周期.....	56
3.3.2 横モード直径.....	57
3.3.3 規格化変換効率.....	58
3.4 周期分極反転構造作製と一様性改善	60
3.4.1 周期分極反転構造作製の原理.....	60
3.4.2 周期分極反転構造の作製手順.....	62
3.4.3 印加電界の最適化	67
3.4.4 波板電極を形成する面の検討.....	72
3.4.5 結晶に与える電荷量の検討.....	73
3.4.6 SiO_2 絶縁層の検討.....	77
3.4.7 duty 比の制御.....	81
3.5 アニールプロトン交換導波路の作製と横モード拡大.....	86
3.5.1 アニールプロトン交換の原理	86
3.5.2 アニールプロトン交換導波路の作製手順.....	88
3.5.3 プロトン交換幅依存性	92
3.5.4 プロトン交換時間依存性	93
3.5.5 アニール時間依存性	94
3.6 第二高調波発生実験	95

3.6.1 光学実験セットアップ	95
3.6.2 規格化変換効率のデバイス温度依存性	97
3.6.3 第二高調波パワーと変換効率の励起光パワー依存性	99
3.7 まとめ	101
参考文献.....	102

第4章 定比組成 LiTaO_3 擬似位相整合

アニールプロトン交換導波路の横モード対称化 105

4.1 はじめに	105
4.2 プロトン拡散係数	106
4.3 埋込導波路の作製と横モード拡大	111
4.3.1 埋込 APE 導波路作製手順.....	112
4.3.2 プロトン交換幅依存性	117
4.3.3 プロトン交換時間依存性	118
4.3.4 アニール時間依存性	119
4.3.5 高パワー導波実験	121
4.3.6 埋込 APE 導波路 QPM-SHG デバイス作製	124
4.4 第二高調波発生実験	128
4.4.1 光学実験セットアップ	128
4.4.2 規格化変換効率のデバイス温度依存性	129
4.4.3 第二高調波パワーと変換効率の励起光パワー依存性	131
4.4.4 横モード.....	132
4.5 まとめ	133
参考文献.....	134

第5章 一致溶融組成 $\text{LiNbO}_3/\text{GaN}$ 積層による	
横型擬似位相整合導波路	135
5.1 はじめに	135
5.2 結晶の選定	135
5.3 設計	136
5.3.1 設計方法.....	136
5.3.2 MgO:CLN と GaN の膜厚	139
5.3.3 スクイー징レベル	143
5.4 MgO:CLN と GaN の表面活性化接合	145
5.4.1 FAB照射条件.....	145
5.4.2 接合温度	149
5.4.3 CMP研磨による表面平坦性の改善.....	150
5.5 $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ チャネル導波路作製	153
5.6 導波実験	160
5.7 スラブ導波路第二高調波発生実験	162
5.8 まとめ	166
参考文献.....	167
 第6章 結論.....	 169
 謝辞	 175
 研究業績	 177

第1章 序論

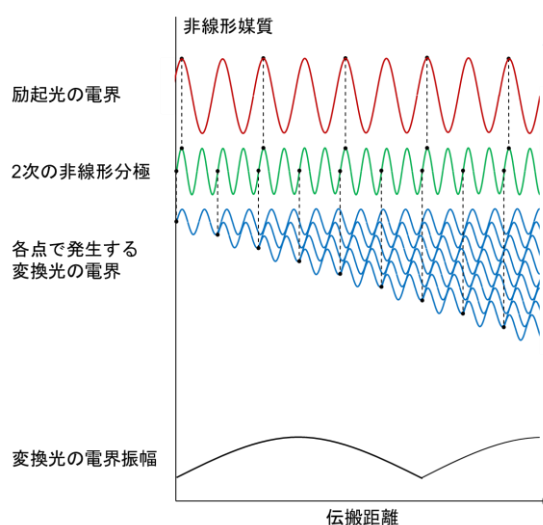
1.1 波長変換の始まり

レーザーは物質固有の電子のエネルギー準位間の光学遷移を利用するためレーザー媒質に依存する特定の波長でのみ発振し、レーザー媒質によって取り出せる出力に違いがある。例えばルビーレーザーは1960年にMaimanが高出力フラッシュランプ励起により世界で初めて発振に成功した波長 694.3 nm のレーザーである¹。また、Nd をドープした Y と Al の複合酸化物 (Nd:YAG) を用いた Nd:YAG レーザーは1964年にGeusicらが発振に成功した波長 1064 nm のレーザーである²。YAG 結晶は高い熱伝導率 (143 W/(m·K)) を持つ。そのため YAG レーザーは他の固体レーザーと比べて著しく高い 100 W 以上の出力で動作可能であり、安定性とビーム品質に優れている^{3,4}。

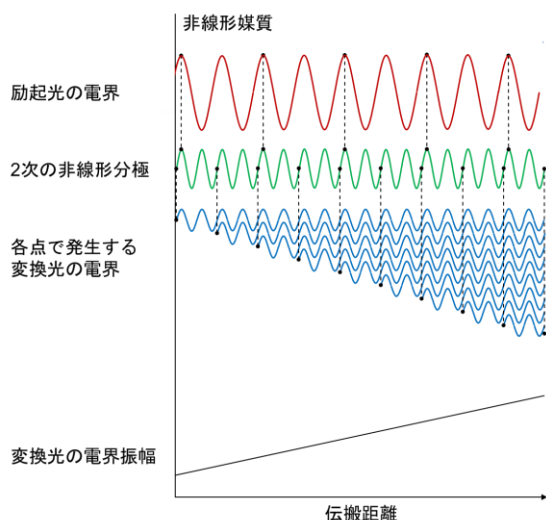
波長変換はレーザーの波長を変換する技術である。これにより直接レーザー発振できない波長の光や効率よくレーザー発振できない波長の光を効率よく得ることができる。1961年にFrankenらはルビーレーザーを異方性結晶である水晶に照射させることで波長 347.2 nm の第二高調波発生 (second harmonic generation, SHG) を実証した⁵。1962年にMakerらは厚さ 782 μm の水晶にルビーレーザーを照射し、水晶を回転させながら SH 光の強度を測定した⁶。その結果、SH 光強度は回転角度によって増減することが観測され、これは励起光と SH 光の伝搬定数の違いに起因する位相不整合によることを突き止めた。現在ではこの現象はメーカーブリンジと呼ばれており、2 次の非線形光学定数を実験的に求めるためなどに用いられている⁷⁻¹⁰。また、Maker は同じ論文で水晶の代わりに複屈折率性を持つ KH_2PO_4 (KDP) を用いるとある回転角度で励起光と SH 光の伝搬定数が一致することにより SH 光強度が従来の 300 倍に著しく増大することを報告した⁶。これは複屈折位相整合 (birefringent phase matching, BPM) と呼ばれており、代表的な位相整合方法の一つである。さらにBassらは2つのルビーレーザーを異なる温度で発振させることで互いに波長が 1 nm ずつ異なるレーザー光を作り出し、これらを励起光として硫酸トリグリシンに照射することで波長 347 nm の和周波発生 (sum frequency generation, SFG) に成功した¹¹。Armstrongらは1962年にSHGやSFGを含む非線形媒質中での光の相互作用を量子力学の摂動論を用いることによって理論的に整理した¹²。その論文で擬似位相整合 (quasi phase matching, QPM) を提案した。

1.2 波長変換方式

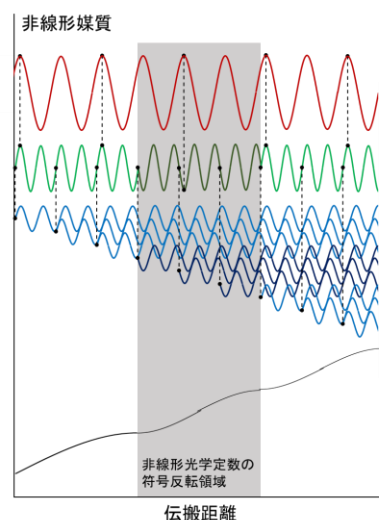
異方性結晶にレーザー光が入射されると、非線形光学効果により結晶の各点から波長の異なる変換光が発生する。図 1.1(a)に示すように、非線形光学効果によって結晶の各点から発生する変換光の位相は励起光の位相と一致する。しかし、一般に屈折率には波長分散が存在するため励起光と変換光がそれぞれ感じる屈折率は異なり、そのため結晶の各点から発生する変換光の位相は光が結晶中を進むにつれてずれていき最終的には打ち消しあってしまう。そのため変換光の出力は結晶中を伝搬するにつれて波打つのみであり増幅されない。励起光と変換光の位相を何らかの方法で



(a) 位相不整合時



(b) 複屈折位相整合時



(c) 擬似位相整合時

図 1.1 非線形媒質に入射された励起光と発生する変換光

整合させることができれば変換光の打ち消し合いをなくし、増幅することができる。このことを位相整合と言う。位相整合の方式には前述のとおり主に BPM と QPM がある。

1.2.1 複屈折位相整合

BPM は異方性結晶の複屈折率性を用いて位相整合を行う方式である。異方性結晶では光の偏光方向により屈折率が異なっており、複屈折率と呼ばれる。異方性結晶の中でも x, y, z の偏光を持つ光に対する屈折率 n_x, n_y, n_z がすべて異なる二軸性結晶とそのうち2つが異なる一軸性結晶が存在する。一軸性結晶では光の入射方向によって屈折率が変化しない偏光をもつ光を常光といい、屈折率 $n_x = n_y$ を常光屈折率 n_o という。一方、光の入射方向によって屈折率が変化する偏光をもつ光を異常光といい、屈折率 n_z を異常光屈折率 n_e という。また、異常光屈折率が常光屈折率よりも小さい一軸性結晶を負の一軸性結晶という。例として、負の一軸性結晶における角周波数 ω と 2ω の常光と異常光の感じる屈折率 $n_o(\theta), n_e(\theta)$ の入射角度 θ 依存性を図 1.2 に示す¹³。このとき、ある角度 θ_{pm} で角周波数 ω の常光と角周波数 2ω 異常光の屈折率が一致し、位相整合することが分かる。よって、角度 θ_{pm} で角周波数 ω の常光を結晶に入射させると非線形光学効果により結晶の各点で発生した角周波数 2ω の異常光は互いに打ち消しあわず図 1.1(b)のように増幅していく。

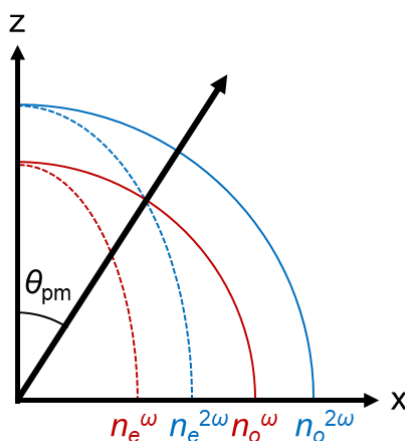


図 1.2 負の一軸性結晶のタイプ I 第二高調波発生時の屈折率の関係
(Ref.13 より引用)

1.2.2 縦型擬似位相整合

QPM は 1962 年に Armstrong らによって提案された位相整合方式である¹²。図 1.1(c)に示すように非線形光学定数の符号が反転すると位相が π ずれた変換光が発生する。そこで周期的に非線形光学定数の符号を反転させることで結晶の各点で発生した変換光が打ち消しあわずに増幅していく。1964 年には Miller が BaTiO_3 の自発分極と d_{15} 、 d_{31} 、 d_{33} の温度依存性が同じ振る舞いをするを明らかにした¹⁴。それ以降、結晶の自発分極を反転させることで非線形光学定数の符号を反転できるのではないかと考えられるようになった。結晶の自発分極を反転させる方法としてはイオン交換法、電子ビーム法、電界印加法等がある。特に強誘電体結晶において、電界印加法は比較的簡単に均一な PP 構造を形成できるため広く用いられている¹⁵⁻¹⁸。電界印加法については 3 章で詳しく説明する。異方性結晶では結晶軸によって非線形光学定数の値が異なる。BPM では励起光が結晶に入射する角度によって位相整合を行うため用いることができる非線形光学テンソルが決まっていた。一方、縦型 QPM では周期分極反転 (periodically-poled, PP) 構造を形成することで位相整合条件を満たすため、結晶の最大の非線形光学テンソルの成分を用いることができる。QPM では図 1.1(c)からわかるように完全に位相整合しているわけではないため、非線形光学定数は実質的に $2/\pi$ 倍となるが、一般に非線形光学テンソルの最大成分は他の成分に比べて数倍大きいため実効非線形光学定数は他の位相整合手法に比べて大きくなる。更に、BPM の場合、材料としては透過域の光であっても、複屈折率が小さく励起光と変換光の屈折率楕円体の交点が無ければ波長変換を行うことができないため、一般的に変換可能波長域は透過帯域よりも狭くなる。縦型 QPM ではこのような制限は無いので PP 構造が形成できるのであれば結晶の透過域全体での波長変換が可能である。また、異なる周期の PP 構造を同一基板上に形成することで複数の種類の波長変換デバイスを集積できるという利点もある。

1.3 非線形光学結晶

波長変換において、波長変換効率は実効非線形光学定数の 2 乗に比例するだけでなく、励起光パワー密度にも比例する。そこで、波長変換に用いる非線形光学結晶としては大きな非線形光学定数を持つことや高い光損傷耐性を示すこと、もしくはその両方が重要である。これらの基準に従って、表 1.1、表 1.2 にまとめるように、これまで様々な非線形光学結晶が研究されてきた。この節では近赤外光から紫外光で用いられる非線形光学結晶について述べる。

β - BaB_2O_4 (BBO) は 1985 年に Chen らが開発した結晶で波長 190 nm から 2500 nm

まで透明である¹⁹。複屈折性が大きいためほぼ吸収端である 205 nm まで SHG の位相整合を行うことができる。実際に波長 820 nm の Ti:Sapphire ピコ秒レーザの 4 倍波である 205 nm の発生に成功している²⁰。BBO はボレート系結晶の中では非線形光学定数が大きく、1064 nm(常光) + 532 nm(異常光) → 355 nm(常光)の SFG における実効非線形光学定数 d_{eff} は $d_{\text{eff}} = 1.21 \text{ pm/V}$ である²¹。また、波長 1064 nm の 1.1 ns レーザに対して光損傷閾値は 14 GW/cm^2 と高い²²。このような特徴から、パルス YAG レーザの波長変換材料として 266 nm 発生用などとして広く用いられている^{23,24}。しかし、他のボレート系結晶に比べてウォークオフが大きいことや角度許容幅と波長許容幅が小さいことが欠点として挙げられる²⁵。また、潮解性があるため、 100°C 以上の高温で使用する等の対策が必要である。

LiB_3O_5 (LBO) は 1989 年に Chen らが開発した結晶で波長 160 nm から 2600 nm まで透明である²⁶。非線形光学定数は他のボレート結晶に比べても少し低いが、光損傷閾値が波長 1064 nm の 1.1 ns レーザに対して 45 GW/cm^2 と非常に高いため共振器を組みパルスレーザ励起することで高パワー波長変換材料として用いられている^{21,22,27}。また、ウォークオフが非常に少なく、非常に品質の良い光が得られる²⁸⁻³¹。そのウォークオフの小ささから波長 355 nm の SFG 用結晶としても用いられており、パルス波長変換にて 35.1 W や 42 W の平均出力が報告されている^{21,27}。しかし、複屈折特性により波長 266 nm の SHG は不可能であることや潮解性がわずかに存在することが欠点として挙げられる。

$\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ (CLBO) は 1995 年に Mori らが開発した結晶で、波長 180 nm から 2750 nm まで透明である²⁵。光損傷閾値は 1.1 ns レーザに対して 29 GW/cm^2 という報告があり波長 266 nm の SHG 結晶としては非常に高い²²。ウォークオフも LBO と BBO の中間の大きさである²⁵。実際にパルスレーザによって出力 53 W の 266 nm SHG が報告されている³²。また、波長 1547 nm とその 7 倍波の波長 221 nm のレーザ光を励起光とした波長 193 nm の SFG の報告もされている^{33,34}。しかし、CLBO も潮解性を示す結晶である。

ここまでボレート結晶について述べてきた。ボレート結晶は他の非線形光学結晶に比べて非線形光学定数は低い光損傷閾値が非常に高いため共振器構造を用いた

表 1.1 代表的なボレート結晶の光学的性質 (実効非線形光学定数は Type-II 1064 nm(常光) + 532 nm(異常光) → 355 nm(常光)の SFG における値)

結晶	実効非線形光学定数 d_{eff} (pm/V)	レーザ損傷閾値 @1064 nm, 1.1 ns (GW/cm^2)
BBO	1.2^{21}	45^{22}
LBO	0.7^{21}	29^{22}
CLBO	0.9^{21}	14^{22}

表 1.2 代表的な強誘電体結晶の光学的性質

結晶	非線形光学定数 d_{33} (pm/V)	フォトリフラクティブ損傷閾値 @CW 532 nm (MW/cm ²)	GRIIRA @25 kW/cm ² ($\times 10^{-4}$ /cm)
MgO:CLN	25.0 ³⁵	> 2 ⁴⁶	11 ⁵²
MgO:SLN	25.0 ³⁵	> 2 ⁴⁶	6 ⁵²
MgO:CLT	13.8 ³⁵	N/A	N/A
MgO:SLT	13.8 ³⁵	> 2 ⁴⁶	None ⁵²
KTP	13.7 ³⁶	1.2 (常光) 0.13 (異常光) ⁴⁷	N/A

パルス励起での高パワー波長変換材料として用いられる。しかし、前述のように潮解性を示すため取り扱いに注意しなければならない。一方で、強誘電体結晶はボレート結晶と比べて非線形光学定数が高く、潮解性を示さない。光損傷耐性はボレート結晶より低いいため、低出力レーザや CW レーザを励起光としたときに高い変換効率を得るために用いられている。

KTiOPO₄(KTP)は複屈折率が強く、波長 497 nm から 1800 nm の波長変換を BPM により行うことができる。特に、 $d_{24} = 1.9$ pm/V を用いることで Nd:YAG レーザなどの波長 1000 nm 帯の光を励起光とした BPM-SHG が可能である ³⁵。また、KTP は強誘電体結晶であり、電界印加法によって PP 構造を形成できるため QPM デバイス材料としても用いられている。QPM デバイスとして用いる際、非線形光学テンソルの最大成分は $d_{33} = 13.7$ pm/V である ³⁶。KTP は他の非線形光学結晶と比べても波長 1550 nm の通信波長帯とその 2 倍波である波長 775 nm の光において吸収が少ないため、吸収を含む損失が大きな問題となるスクイーズド光発生用の結晶としても用いられている ³⁷。実際にバルク KTP 共振器により波長 1064 nm の 15.0 dB のスクイーズド光や波長 1550 nm の 12.3 dB のスクイーズド光の発生に成功している ^{38,39}。

LiNbO₃(LN)は非線形光学定数 d_{33} が 25.0 pm/V と強誘電体結晶の中でも非常に高い ³⁵。抗電界が 21 kV/mm と高い ²¹ ため電界印加による分極反転形成は難しかったが、1992 年に Yamada らがこれに成功した ¹⁸。LN はその高い非線形光学定数から高変換効率の波長変換デバイスとして研究されてきた。高変換効率には高パワー密度の光を用いることが重要であるが、LN はフォトリフラクティブ損傷閾値が低く高パワー密度の光を入射した際に結晶の屈折率が変化し、位相整合が取れなくなってしまう。そこでフォトリフラクティブ損傷閾値を向上させる研究が行われてきた。LN はチョクラルスキー法(CZ 法)によって結晶成長が行われる。CZ 法では原料るつぽからゆっくり結晶を引き上げることで結晶成長を行っているが、その際、成長の最初と最後に結晶の組成比が変化しないように一致溶解組成で成長を行う。LN の一致溶解組成は Li : Nb = 48.5 : 51.5 程度の Nb リッチとなっているため ⁴¹、CZ 法で成長された LN 内部には

本来の Li イオンサイトが Nb によって占有されたアンチサイト欠陥が高密度に存在する。定比組成となるようにするつぼ内の原料比を制御し、結晶として析出した分の原料を外側のるつぼから常に供給する2重るつぼ CZ 法 (DCCZ 法) により定比組成 LN (SLN) の成長が可能になった^{42,43}。定比組成 LN (SLN) は一致溶融組成 LN (CLN) に比べてアンチサイト欠陥が少なく、吸収端が 10 nm 程度短波長化した⁴²。一般にアンチサイト欠陥が少ない程フォトリフラクティブ損傷が抑えられると予想されるが、LN の場合はこの逆で、結晶組成が定比組成に近づくほどフォトリフラクティブ損傷が起こりやすいと報告されている⁴⁴。一方、MgO や ZnO などの金属酸化物を 5 mol% 添加した一致溶融 LN (MgO:CLN、ZnO:CLN) ではフォトリフラクティブ損傷が大きく抑制され、その閾値は波長 532 nm の CW レーザ光において 2 MW/cm^2 以上である^{45,46}。更に、MgO:CLN の抗電界は 4.5 kV/mm と無添加 CLN に比べて小さく、電界印加による PP 構造作製が容易になった⁴⁸。MgO:CLN の吸収端は 330 nm であるため Nd:YAG レーザの 3 倍波までの波長変換が可能である^{45,49}。実際に、CW レーザのバルク波長変換において、出力 1.4 W の波長 532 nm の SHG や出力 30 mW の波長 355 nm の SFG が報告されている^{50,51}。しかし、高パワー密度の緑光により緑誘起赤外吸収 (green induced infrared absorption, GRIIRA) が起こり、変換効率が飽和してしまう⁵²⁻⁵⁵。MgO 添加定比組成 LN (MgO:SLN) も GRIIRA を持つため、LN では高パワー波長変換に限界がある。しかしながら、その高い非線形光学定数を活かして、高効率な波長変換によるスキューズド光発生にも用いられており、バルク共振器構造により波長 1064 nm の 10.1 dB のスキューズド光発生に成功している⁵⁶。

LiTaO₃ (LT) は非線形光学定数が 13.8 pm/V の強誘電体である。LT の吸収端は 275 nm と LN よりも短いため更なる短波長の波長変換デバイス材料として注目されてきた^{35,57}。しかし、LN と同様に高電界が 21 kV/mm 以上と高く、電界印加法による PP 構造作製は難しかった^{21,58}。また、LT は複屈折率性をほとんど示さないため BPM を行うことができない。1999 年に Furukawa らによって DCCZ 法により定比組成 LT が開発され、吸収端は 260 nm まで短波長化された⁵⁷。MgO を 1 mol% 添加した定比組成 LT (MgO:SLT) は抗電界が 1.7 kV/mm と低いため、電界印加法による PP 構造作製が広く行われている⁵⁸。更に、MgO:SLT は波長 532 nm の CW レーザ光において 2 MW/cm^2 以上の高いフォトリフラクティブ損傷閾値をもち³⁵、MgO:CLN で問題となっていた GRIIRA が非常に少ない^{46,52}。また、高出力波長変換時には発熱が出力や変換効率を制限する原因の一つとなるが、MgO:SLT は熱伝導率が $8.43 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ と MgO:CLN の 2 倍程度の高い値をもつ⁵⁹。そのため強励起による高出力波長変換デバイスとして研究が進んでいる。実際に CW レーザのバルク波長変換において、出力 10.5 W、16.1 W、18.8 W の波長 532 nm の SHG が報告されている⁶⁰⁻⁶²。また、波長 355 nm のバルク SFG では出力 96 mW が報告されており、MgO:CLN 波長変換よりも高い出力が得られている⁶³。

1.4 光導波路構造

波長変換効率は励起光パワー密度に比例し、デバイス長の 2 乗に比例する。バルクデバイスの場合にはレンズで光を集光することでビームウエストでのパワー密度を上げているが、光は集光されればされるほど発散角が大きくなるためバルクデバイスの端の方ではパワー密度が小さくなり変換効率が下がってしまう。あるデバイス長のバルクデバイスにおける最適なビームウエスト径は Boyd らによって理論的に示されている⁶⁴。一方で、デバイス全域でパワー密度を高くすることができれば変換効率は飛躍的に向上する。光は屈折率の異なる 2 つの媒質間で屈折を起こす。高屈折率媒質から低屈折率媒質に光が進むとき、入射角がある角度よりも大きくなると光は全反射する。そこで高屈折率領域を低屈折率領域で挟み込む、もしくは取り囲むことによって光は全反射を繰り返しながら進むため光を高屈折率領域に閉じ込めることができる。この構造を光導波路という。図 1.3(a)のように基板に垂直な方向に光を閉じ込める導波路をスラブ導波路またはプレーナ導波路という。更に図 1.3(b)のように基板に垂直な方向だけでなく、水平な方向にも光を閉じ込める導波路をチャンネル導波路という。スラブ導波路、チャンネル導波路ともに光の伝搬方向を制御できるため、光デバイスにおいて重要な技術である。特にチャンネル導波路は基板内で任意の方向に光を伝搬させることができるため、集積光デバイスとして研究が行われている⁶⁵⁻⁶⁷。横モード直径が数 μm のチャンネル導波路を形成するとデバイス全域で高パワー密度の光を導波させることができるため、強い非線形相互作用を達成し高変換効率の波長変換が実現できる。光導波路は結晶軸の向きに関わらず波長変換を行うことができる擬似位相整合と相性が良く、PP MgO:CLN や PP MgO:SLT に導波路を装荷したデバイスの研究が盛んに行われている⁶⁵⁻⁶⁷。

MgO:CLN や MgO:SLT 等の強誘電体結晶においてよく用いられる導波路の一つとしてアニールプロトン交換 (APE) 導波路がある⁶⁸⁻⁷²。APE 導波路は PE 直後の基板とコアの屈折率差が MgO:CLN では 0.1 程度、MgO:SLT では 0.01 程度であり⁷³⁻⁷⁵、PE で取り込まれた H^+ を拡散することで更に屈折率差が小さくなるため閉じ込めの小さな導波路となるが、熱拡散によりグレーデッドインデックス型の導波路となり、光の進行方向での急激な屈折率の変化もないため伝搬損失が 0.1 dB/cm 程度と非常に低いという特徴がある⁶⁹。実際に APE 導波路を装荷した PP CLN にて規格化変換効率 28%/W の波長 532 nm の SHG や規格化変換効率 600 %/W の波長 426 nm の SHG が実証された^{76,77}。また、APE 導波路 PP CLT においては波長変換効率 230%/W の波長 435 nm の SHG が実証されている⁷⁸。

更に光の閉じ込めを大きくするためにリブ導波路やストリップ導波路の開発も行われている⁷⁹⁻⁸²。ストリップ導波路ではコアと基板やクラッドの材料が異なるため屈折率コントラストが大きく光の閉じ込めが強い導波路を作製できる。特に MgO:CLN や

ZnO:CLN では以下のようにストリップ導波路が作製される⁶⁵。MgO:CLN や ZnO:CLN を LT 基板に接合し、厚さ数 μm になるまで面研磨を行う。次に導波路形状にマスクを形成し、Ar イオンエッチングなどの方法で導波路を形成する。このように形成した導波路型波長変換デバイスを用いて波長変換効率 2400%/W の波長 782 nm の SHG が実証されている⁸⁰。また、その高い変換効率を活かして 6 dB のスクイズド光発生も報告されている⁸²。しかし、LN や LT の Ar イオンエッチングはエッチングレートが遅い、副生成物ができやすい、導波路側壁のラフネスにより大きな伝搬損失を持つ等、技術的な課題が残っている⁸³。そこでイオンエッチングの代わりにダイシングを用いてチャネル導波路を作製する技術も用いられている。この方法では特殊なダイシングソーを用いることで導波路側壁を研磨しながらダイシングすることによりイオンエッチングプロセスに比べて低損失なストリップ導波路の形成に成功している。更にマスク形成等を必要としないためプロセスの簡易化につながった。実際、この方法で形成された導波路を用いることで 8 dB のスクイズド光発生が実証された⁸⁴。しかし、そのプロセスの特徴上、直線導波路しか形成できないという欠点もある。

光導波路の開発が進んだことにより、導波路特有の位相整合方法が使えるようになった。ここでは簡単のためスラブ導波路における SHG で考えていく。導波路内部では光は少し基板やクラッド層に染み出しながら全反射を繰り返して進んでいく。光が上下方向に 1 往復したとき位相がちょうど 2π とならない場合は互いに打ち消しあう。このような光は導波路内部には存在できない。逆に言えば、導波路内部に存在できる光は上下方向に 1 往復したときに位相ずれが $2(m+1)\pi$ ($m = 0, 1, \dots$) となるような光である。このとき、 m をモード番号という。モード番号が大きくなるほど基板やクラッド層への染み出しが大きくなるためモードの実効屈折率が小さくなる。モードの染み出し量は導波路厚さによって決定される。また、一般に波長が短い光ほど感じる屈折率が大きくなる。そこで高次モードの SH 光を考えると、図 1.4 のようにある導波路膜厚で基底次モード

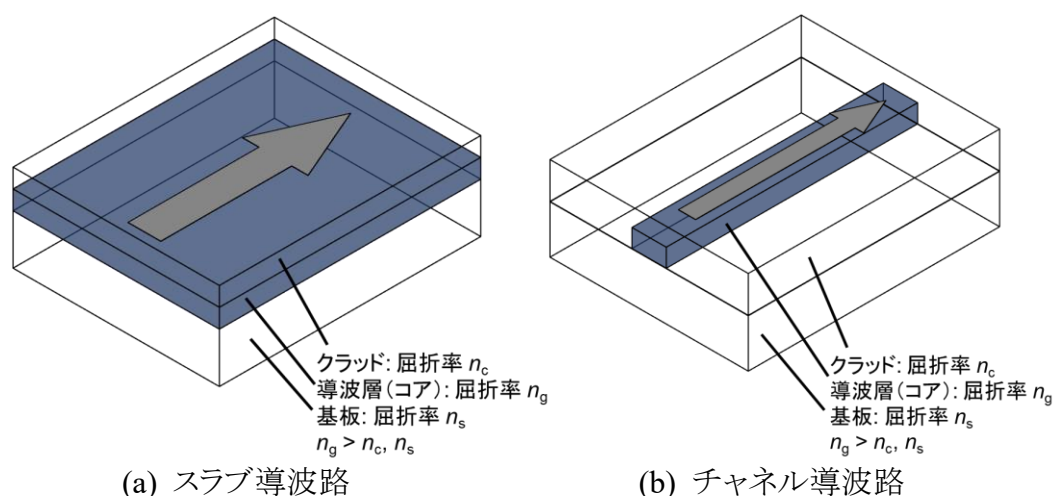


図 1.3 スラブ導波路とチャネル導波路

の励起光と実効屈折率が一致し、位相整合する。この位相整合方式をモード分散位相整合と言う。しかし、モード分散位相整合のみでは高効率な波長変換を行うことはできない。詳しくは2章で説明するが、波長変換効率は非線形結合係数 κ の2乗に比例する。SHGにおける κ は

$$\kappa = \frac{2\omega\epsilon_0}{4} \iint [E_{2\omega}(x, y)]^* d(x, y) [E_{\omega}(x, y)]^2 dx dy \quad (1.1)$$

のように励起光の電界分布の2乗と非線形光学定数、そしてSH光の電界分布を掛け合わせて空間積分したものとなっている。ここで慣習に従って光の伝搬方向を z 軸とした。なお、この軸は結晶軸とは異なるため注意が必要である。高次モードは電界分布に負の成分を持つため、図1.5(a)のように空間積分するときに正と負で打ち消し合い、 κ の値が非常に小さくなってしまう。1.2.2項で結晶の自発分極の向きを反転させると非線形光学定数の向きを反転させることができると述べた。そこで図1.5(b)のように高次モードの電界分布の節の位置で結晶の自発分極の向きを反転させることができれば空間積分による打ち消し合いが解消し、 κ の値を大きくすることができる。このモード分散位相整合と面内一斉極性反転による κ の向上を合わせて横型擬位相整合(横型 QPM)と呼ぶ。横型 QPM は表面平坦性の高い PP 構造を形成することが困難な GaN や AlN において新規波長変換方法として実証されてきた⁸⁵⁻⁸⁷。また、LNを用

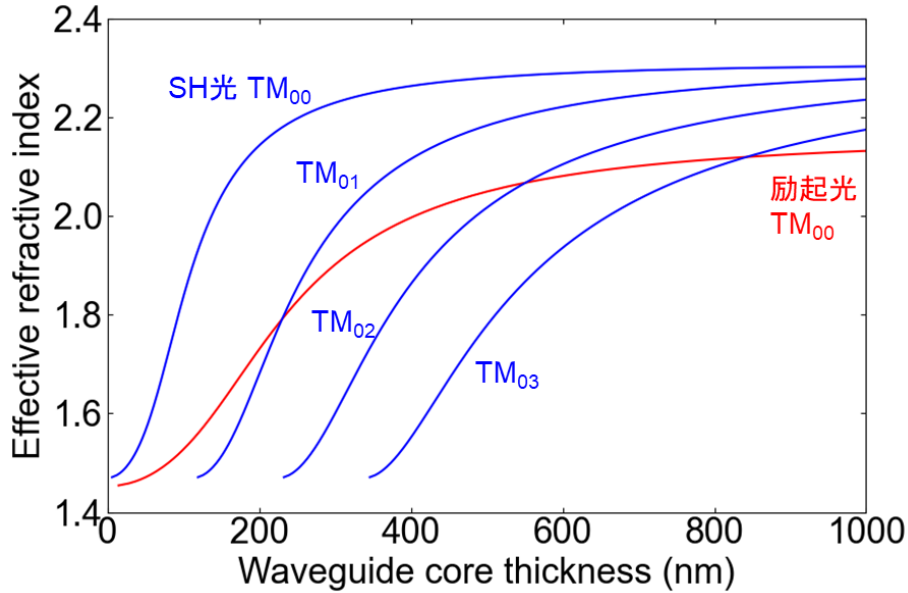


図 1.4 SiO₂/MgO:CLN/SiO₂ スラブ導波路における実効屈折率の導波路厚さ依存性
(励起光波長 808 nm、SH 光波長 404 nm)

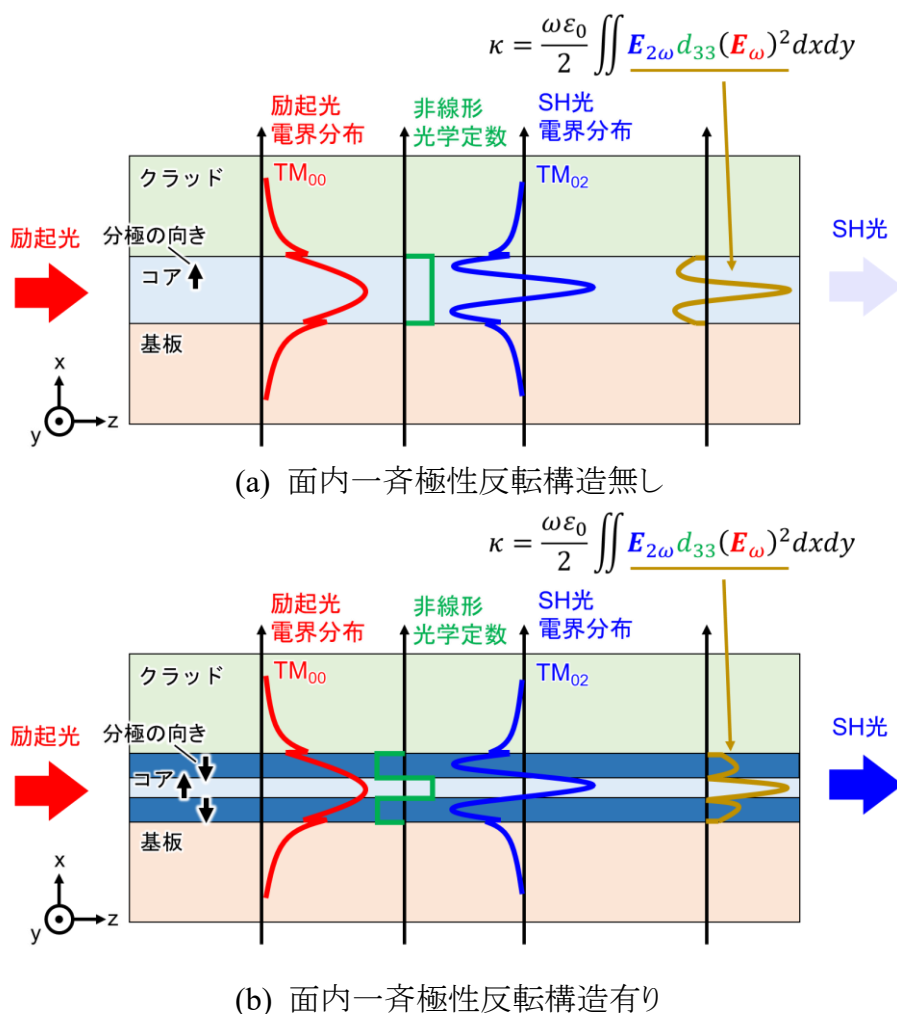


図 1.5 導波路断面図と非線形結合係数の被積分関数

いたデバイスの報告もある⁸⁸。導波路コアに2種類以上の異種材料を用いるとき分極の向きに合わせて材料を変えることが自然であるが、縦型 QPM の場合、導波方向に対して屈折率が変化するため反射や散乱損失の原因となり実用的でない。一方、横型 QPM の場合は面内一斉極性反転を行うことから導波方向に対して屈折率の変化が無いいため、異種材料を組み合わせたデバイスを作製できるという利点も存在する。

1.5 波長変換デバイスの応用先

現状、導波路型波長変換デバイスは可視レーザやガスセンシングデバイスへの応用に向けて研究が進んでいる。また、光量子応用に向けて光子対発生やスクイーズド光発生デバイスとして近年注目を浴びている。これらは導波路型波長変換デバイスが高効率であるという利点を生かした応用先である。ここで、更に導波路の横モードを目的に合わせて制御することで応用範囲を広げ、高機能デバイスを実現することができる。例えば、横モードサイズを大きくすることで高パワー波長変換が可能となり、これはレーザ直接描画装置の光源として応用できる。また、光学特性と電気特性に優れた結晶を組み合わせることで集積スクイーズド光源に応用することができる。本項ではそれぞれの応用先について述べる。

1.5.1 レーザ直接描画装置の光源

波長変換デバイスの重要な応用事例の一つにフォトリソグラフィ用の光源がある。フォトリソグラフィはプリント基板製造、フラットパネルディスプレイ製造、光デバイス製造、半導体製造等において最も重要な工程の一つである⁸⁹⁾。フォトリソグラフィにおける解像度 R は露光波長を λ 、露光装置のレンズの開口数を N_A とすると、

$$R = k_1 \frac{\lambda}{N_A} \quad (1.2)$$

と表される⁹⁰⁾。ここで k_1 はプロセスファクタと呼ばれる係数であり、プロセスやフォトレジストの解像性能などによって決定される。このプロセスファクタの理論限界値は 0.25 である⁹⁰⁾。式(1.2)より解像度を向上させるためには露光波長を短くしていくことが重要である。それぞれの用途において必要な解像度は異なる。プリント基板製造においては 5-10 μm 程度の解像度が必要である。フラットパネルディスプレイ製造において必要な解像度は 1-5 μm である。光デバイスになると用いる光の波長にもよるが、紫外光から近赤外光用のデバイスにおいて 100 nm から 1 μm 程度の解像度が必要である。また、半導体製造においてはトランジスタ描画で数 nm 程度の解像度が必要であるが、配線描画においては 1 μm 程度である。実際、数 μm の解像度において、露光波長は高圧水銀ランプの g 線 (436 nm) や h 線 (405 nm) が用いられており、数百 nm から 1 μm の解像度のためには更に短波長の i 線 (365 nm)、KrF エキシマレーザの発振波長 (248 nm) や ArF エキシマレーザの発振波長 (193 nm) が用いられている。近年の半導体集積回路における数 nm プロセスでは Sn の高温・高密度プラズマから発生する Extreme Ultraviolet (EUV) と呼ばれる 13.5 nm の波長の光にまで短波長化が進んでいる。

高圧水銀ランプの波長領域では数百 nm から数 μm の解像度が得られる。この解像度のフォトリソグラフィは従来から主にフォトマスクによる転写によって行われてきた。

フォトマスクを作製する際には、まず、石英ガラスにクロムなどの金属を蒸着する。その上からレジストを塗布し、EB 描画装置によって露光する。レジストを現像した後クロムをエッチングし、最後にレジスト除去を行う。フォトマスクは一度作製すれば繰り返し使えるため少品種大量生産に向いている。しかし、現代ではニーズの多様化により多品種少量生産も注目されている。また、研究開発分野では毎回異なるフォトマスクパターンを用いることも多い。多品種少量生産においてフォトマスク作製は工程も多く効率が悪い。更にフォトマスク作製には大量の薬品を利用するため環境負荷も高い。そのため近年では高圧水銀ランプの波長領域においてもコンピュータ上の描画ファイルを直接パターンニングできるレーザ直接描画装置の発展が望まれている。実際、この波長領域でのレーザ直接描画装置の開発は進んでおり、露光光源として波長 442 nm の He-Cd レーザや波長 405 nm の InGaN レーザが用いられている。しかし、これらのレーザの出力は数百 mW にとどまっている。露光光源の波長を短くすることで解像度を更に上げることができる。短波長化の目標として、まずは数百 nm の解像度をもつ i 線レジストを感光できる 350 nm 帯のレーザが目標となる。また、出力を 10 W 程度に向上させることで従来の 10 倍以上の描画速度である 300 mm ウエハ全面を 10 秒程度で露光することができる。但し、描画速度はレーザ出力のほかに光変調器の変調速度と画素数やステージ速度によって決められる。ここで光変調器の変調速度は MgO:SLT を用いた電界印加型光変調器によって実証されている 1 MHz とし、画素数は 10000 と仮定する⁸⁹⁾。ステージ速度は高精度ステッピングモータを用いることを考え 0.1 m/s と仮定する。このとき、10 W の光源は 1 W ずつに分け各 1 W の光をそれぞれ光変調器に入力することになる。

このような 10 W 程度の高出力 350 nm 帯のレーザ光を得るためには比較的小型で高出力な YAG レーザの第三高調波が有力な候補である。第三高調波発生には SHG と SFG をカスケード接続する。現在、350 nm 帯の 10 W 以上の高パワー波長変換は 100 W 程度のパルス YAG レーザを励起レーザとして LBO などのボレート結晶を用いた BPM によって行われる。しかし、前述のとおり、ボレート結晶は潮解性を有するため、メンテナンスコストが高くなる。また、レーザ直接描画装置において、描画 dose 量を任意に変更できることは重要であるが、パルスレーザを用いると 1 パルスに含まれるエネルギーの倍数でしか dose 量を変調することはできない。CW 光源では dose 量を任意に変更することができるが、ボレート結晶は非線形光学定数が小さいため CW で変換効率を高くすることは難しい。このようなことから、高効率かつ数 W の CW 波長変換デバイスがレーザ直接描画装置の光源として開発が望まれる。

1.5.2 スクイズド光源

ここまで言及してきた SHG や SFG では波長が短くなるように、つまり周波数が高くなる方に波長変換が行われていた。光パラメトリック下方変換(optical parametric down conversion, OPDC)では波長の短い光を励起光としてエネルギー保存則を満たすように 2 種類の波長の長い光に変換する。変換光の波長が縮退するとき、この波長変換は SHG の逆変換であり、縮退 OPDC と呼ばれる。2 章で説明するように縮退 OPDC の出力光はスクイズド光となる。通常のレーザ光はコヒーレント光とも呼ばれる。コヒーレント光は古典論的には位相と振幅がそろっている光であるが、量子論的にはハイゼンベルグの不確定性原理により位相揺らぎと振幅揺らぎが存在する。コヒーレント光は図 1.6(a)に示すように量子的な位相揺らぎと振幅揺らぎが同じ大きさの光であり、その揺らぎは標準量子限界(standard quantum limit, SQL)と呼ばれる。一方、スクイズド光は図 1.6(b)に示すようにどちらか一方(またはその中間)の揺らぎが圧搾され、SQL より小さくなった光である。なお、不確定性原理を満たすようにもう一方の揺らぎは SQL よりも大きくなっている。量子揺らぎの圧搾度合いをスクイーピングレベルと呼び、通常は dB で表記される。スクイーピングレベルが高いほど量子性が強くなる。例えば、スクイーピングレベル 3.0 dB で量子ゲートや量子通信に応用できる連続量光量子テレポーテーションが実証でき、4.5 dB では連続量光量子による測定誘起型量子計算に必要な 2 次元クラスター状態の生成ができる^{91,92}。

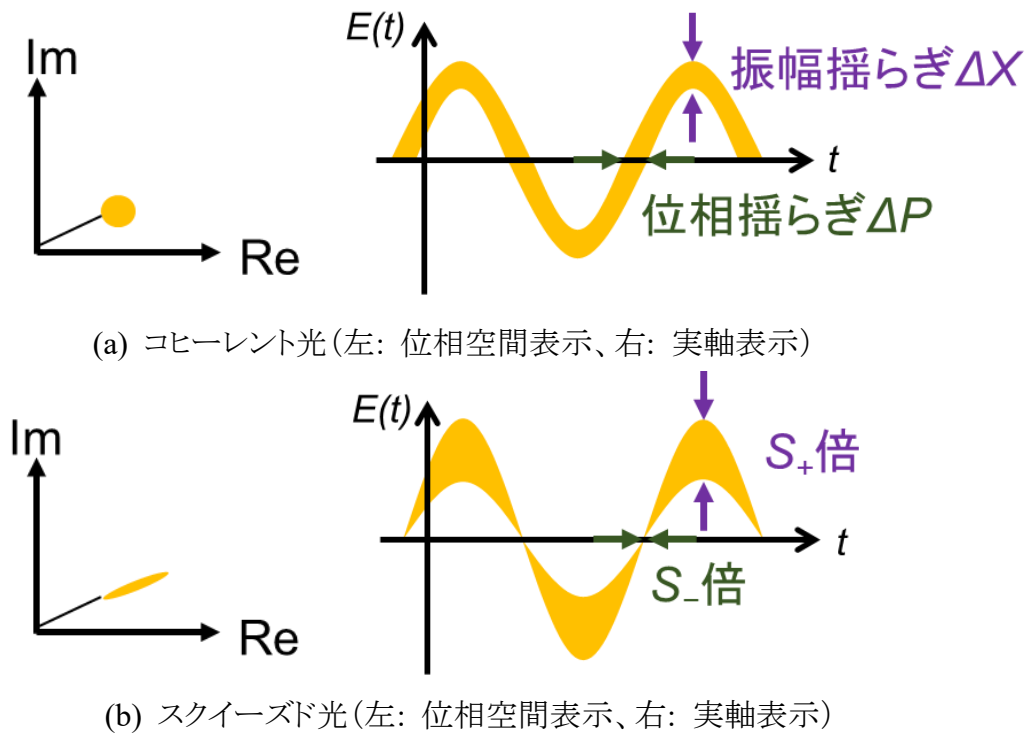


図 1.6 コヒーレント光とスクイズド光

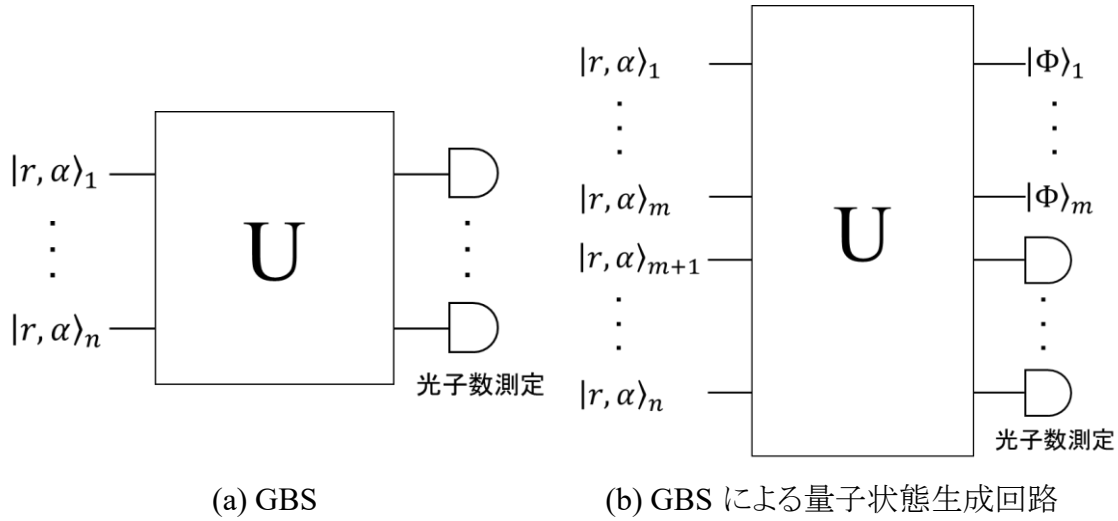


図 1.7 スクイズド光を用いた量子回路の例

スクイズド光の応用先の一つとしてガウシアンボゾンサンプリング (Gaussian boson sampling, GBS) がある。GBS は図 1.7(a)に示すように n モードの任意のスクイズド光 $|r, \alpha\rangle_1, \dots, |r, \alpha\rangle_n$ を入力とし、任意のガウス変換 U を施した後、各モードの光子数検出を行うものである。この回路の出力である光子数を古典計算機で計算するためには $n \times n$ 行列のハフニアンを計算する必要がある⁹³。 N 個の光子が検出されるとき確率を計算するためには、現在知られているアルゴリズムでは $O(nN^3 2^{N/2})$ の計算量が必要であり⁹³、光子数に対して指数関数的に増大してしまう。このように古典計算では大きな計算量が必要であるため、現在までに量子超越が実験的に示された 3 件のうち、2 件は光を用いた GBS によるものである^{94,95}。また、スクイズド光などの連続量光量子状態は無限次元の光子数基底で展開できる。このような高い自由度から量子機械学習において、この無限次元の空間を特徴量空間とした量子カーネル法の実現方法としても研究されている⁹⁶。更に、図 1.7(b)のように n モードのうち $n-m$ モードのみを光子数測定することで、近似的に非ガウス変換を含む任意のユニタリ変換を、測定していない m モードに施すことができる。この性質を用いて、量子ビットとして重要な Cat 状態や Gottesman-Kitaev-Preskill (GKP) 状態⁹⁷、GKP 状態を用いた量子計算時の補助量子ビットとして必要な cubic phase 状態⁹⁷等を確率的に生成することができる⁹⁸⁻¹⁰⁰。例えば、4.4 dB のスクイズド状態があれば 4% の成功確率で近似 cubic phase 状態、 ~ 12 dB のスクイズド状態があれば 2.3×10^{-4} の成功確率で 10 dB の近似 GKP 状態、14.7 dB のスクイズド状態があれば 7.5% の成功確率で近似 Cat 状態を生成できる⁹⁸⁻¹⁰⁰。そのほか、光子数検出の代わりにホモダイン検出とフィードフォワードを行うことで連続量量子テレポーテーションや連続量量子テレポーテーションによる量子ゲートの実装を行うことができる^{97,101-103}。スクイズド光源は励起レーザと波長変換デバイスからなり、任意のガウス変換は位相シフタとビームスプリッタからなる¹⁰⁴。従来、これ

らは自由空間光学系を用いて実証実験が行われてきた⁹⁴。しかし、自由空間光学系では数十 nm 精度のアライメント・フィードバック機構が必要であることに加え、50 モード程度の小規模なデバイスでも光学定盤一枚分の面積が必要となるため大型で不安定であった。

アライメントフリーの機構として、光ファイバを用いる方法と光導波路を用いる方法が研究されている。光ファイバを用いる方法は、通信波長帯である 1500 nm 帯のスクイーズド光を用いることで低損失光ファイバを用いることができる一方、高効率光検出のために極低温が必要な超伝導光検出器を用いなければならず、連続量光量子の利点の一つである常温動作が不可能になってしまう。また、光ファイバの少しの伸び縮みで偏光が回ってしまい実質的な損失となってしまうという技術上の困難さもある。光導波路を用いる方法では、2020 年に SiN_x を用いた 8 モードのスクイーズド光発生デバイスと光回路の集積が報告されている¹⁰⁵。SiN_x の加工は Si プロセスを用いることができるため非常に高精度である。しかし、SiN_x は 2 次の非線形感受率を持っておらず可視光領域は不透明であるため 3 次の非線形光学効果を用いた四光波混合により 1500 nm 帯の 2 モードスクイーズド光発生を行っている。3 次の非線形光学効果は 2 次の非線形光学効果と比べて著しく小さいためスクイージングレベルが ~ 1.2 dB と極めて低い¹⁰⁵。また、SiN_x は電気光学効果を用いることができず、位相シフタでは熱光学効果を利用するため応答速度がミリ秒オーダーと遅い。

1.6 強誘電体導波路と横モード制御の重要性

強誘電体結晶を用いることでレーザ直接描画装置の光源やモノリシックスクイーズド光源応用における上記問題を解決することができる。レーザ直接描画装置の光源において、強誘電体結晶はボレート結晶に比べて光損傷耐性が低いため 10 W の 350 nm 帯の波長変換を行うことは難しいとされるが、10 W 程度の励起光を用いた 1 W 出力であれば十分可能である。また、光導波路を装荷することで SHG デバイスと SFG デバイスを同一基板上に集積することができ、1 W 出力の導波路デバイスを 10 本程度集積することで合計 10 W の上記目標を達成できるモノリシックなデバイスが実現できる。従来の強誘電体導波路は横モードの大きさを直径数 μm 程度にすることで数 mW から数十 mW の低パワー領域でもパワー密度を高くし、変換効率の向上を行ってきた^{76,77}。しかし、この横モードサイズの強誘電体導波路をそのまま 1 W 出力用に用いるとパワー密度が光損傷閾値を超過してしまう。そこで横モードの拡大が必須となる。強誘電体結晶を用いて 1 W の紫外光発生を行う場合、3 章で詳しく説明するが直径 30 μm 程度の横モードサイズが必要となる。このような大きな横モードサイズを持つ導波路型波長変換デバイスの研究としては、フェムト秒レーザ直描導波路型 MgO:SLT 波長変

換デバイス等がある¹⁰⁶⁻¹⁰⁸。結晶に高エネルギーのフェムト秒レーザを照射するとその焦点付近で結晶に欠陥が生じ、屈折率が変化する。MgO:SLT ではその欠陥において屈折率が下がるため、欠陥部分をクラッドとした導波路を形成できる¹⁰⁷。実際、MgO:SLT においてコア直径 30 μm (横モード $1/e^2$ 直径約 22 μm) のフェムト秒レーザ直描導波路型波長変換デバイスが報告されている^{106,107}。フェムト秒レーザ直描導波路はその作製方法から3次元的に導波路を描くことができるという利点がある。しかし、欠陥とバルク MgO:SLT の屈折率差は 10^{-2} 程度であるため¹⁰⁷、コア直径 30 μm の導波路では 1064 nm のレーザ光に対してもマルチモード導波路となってしまう^{106,108}。一方、APE 導波路は基板とコアの屈折率差が小さくグレーテッドインデックス型の導波路であるため大きな横モードの導波路においても高次モードが抑制されやすい。そこで本研究では APE 導波路の横モードを拡大することとした。

モノリシックスクイズド光源において、強誘電体結晶は前述のとおり大きな非線形光学定数を活かして高いスキージングレベルを達成することができる。また、可視光域で透明であるため、例えば 400 nm 帯の InGaN レーザを励起光として 800 nm 帯のスクイズド光を発生させることで高効率かつ異種基板上に集積可能な Si フォトディテクタで光検出を行うことができる。更に、電気光学効果によりナノ秒応答の高速な光回路の実現も可能である。強誘電体結晶を用いた導波路型電界変調位相シフタでは、作製の簡易化のために導波路の両側に電極を配置し、面内に平行に電界印加することで導波光の相対位相を変調している¹⁰⁹。しかし、いくつもの位相シフタを並列に並べる必要がある集積光回路では隣同士の位相シフタへ掛かる電界が影響しあうため正確な制御が難しくなる。この問題を解決するためには導電性材料を導波路の下部に装荷し導波路上部に電極を形成することで垂直に電界を掛ける構造とすればよい。このとき、下部電極材料として透明材料を用いると電極による光吸収をなくすことができるため電極を導波路近くまたは導波路コア下部に装荷することができ、位相変調に必要な電圧を下げるができる。更に、垂直電界印加型の光回路では面内電界印加型の光回路と比べてデバイス表面の電極数を約半分程度にできることから、電極配線を単純化することができるという利点もある。透明電極材料として、薄膜技術が進んでいる不純物をドーピングした GaN や AlN などの窒化物半導体が挙げられる。そこで本研究では窒化物半導体と強誘電体結晶を組み合わせたスクイズド光発生デバイスの作製を試みた。位相整合方式としては異種材料を組み合わせたデバイスで波長変換が可能な横型 QPM を用いることとした。

このようにレーザ直接描画装置の光源を目指した 350 nm 帯高パワー波長変換デバイスでは横モードの拡大が必須である。また、モノリシックスクイズド光源においても横型 QPM を用いることから横モードの制御を行わなければならない。

1.7 研究目的と本論文の構成

本論文では強誘電体導波路型波長変換デバイスにおける横モード制御技術の開発を行った。本論文の構成は図 1.8 に示すとおりである。

第1章である本章では研究背景についてまとめた。まず波長変換の始まりと代表的な波長変換方式を説明し、波長変換に用いられる非線形光学結晶と変換効率向上のための光導波路構造について説明した。導波路型波長変換デバイスの応用先はまだ限られており、横モード制御を行うことでその応用先を広げることができると述べ、応用例として本論文で着目するレーザ直接描画装置の光源とスクイーズド光源を挙げた。レーザ直接描画装置において強誘電体導波路型波長変換デバイスにより応用上必須である CW 波長変換を効率よく行うことができるが、従来の導波路デバイスでは横モードが小さく、応用上要求される高パワーの波長変換は光損傷閾値を超えてしまうため行うことができなかったという問題点を説明した。本論文では横モードサイズを拡大することでこの問題を解決する。スクイーズド光発生デバイスでは、大規模量子計算に向けてスクイーズド光源と光回路を集積することが重要であるが、現状集積化されている SiN_x を用いたデバイスでは SiN_x の光学特性によりスクイージングレベルが低いことと熱変調型位相シフタを用いなければならず変調速度が遅いという問題点を述べた。本論文では、高い非線形光学定数と電気光学定数を持つ強誘電体結晶を用いたスクイーズド光発生デバイスを作製することでこの問題を解決する。更に、窒化物半導体を透明電極として用いることで大規模化の際に問題となる電極数を減らすことができる。そのためには強誘電体と窒化物半導体を組み合わせた波長変換デバイスが必要であり、位相整合方式としては横型 QPM が適していることを述べた。

第2章では、光導波路波長変換に必要な理論をまとめる。まず、非線形分極と非線形光学テンソルを導入する。次に、モード結合方程式について述べ、紫外光発生とスクイーズド光発生の理論をまとめる。

第3章ではレーザ直接描画装置の光源に向けて $\text{MgO}:\text{SLT}$ を用いた APE 導波路の横モード拡大と SHG 実証を行う。レーザ直接描画装置の光源では高出力波長変換を行うため、強誘電体結晶として高い光損傷耐性を持つ $\text{MgO}:\text{SLT}$ を用いる。まず、一様な PP 構造の作製方法を確立する。次に長時間プロトン交換と長時間アニールにより APE 導波路の横モード拡大を行う。最後に、作製した横モードサイズの大きな APE 導波路を装荷した縦型 QPM デバイスを用いて SHG 実験を行う。

第4章ではレーザ直接描画装置への応用上重要な APE 導波路横モード対称化を行う。まず、横モード対称化のために、プロトン交換後に表面活性化接合を行いアニールする埋込 APE 導波路の作製プロセスの確立を行う。次に、埋込 APE 導波路を PP 構造に装荷する方法を述べ、作製した対称横モード APE 導波路型波長変換デバイスを用いて SHG 実験を行う。

第5章では高効率集積スクイーズド光源に向けた $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ 積層による横型 QPM 導波路について述べる。高効率スクイーズド光発生デバイス実現には高効率波長変換が必要であるため、強誘電体結晶として高い非線形光学定数を持つ MgO:CLN を用いる。更に、透明下部電極としては窒化物半導体である GaN を用いる。横型 QPM デバイス作製に向けて MgO:CLN と GaN の表面活性化接合が必要であるが、従来の MgO:CLN と GaN 表面活性化接合では接合強度向上のため界面に Fe を導入していたが、 Fe は吸収源となるため光デバイスには応用できない。そこで、本節では接合強度最適化と CMP 研磨による GaN 表面平坦性改善により界面に不純物の無い表面活性化接合を行う。最後に、スラブ導波路による SHG 実証を行う。

第6章では、本論文を総括し、残された課題と今後の展望について述べる。

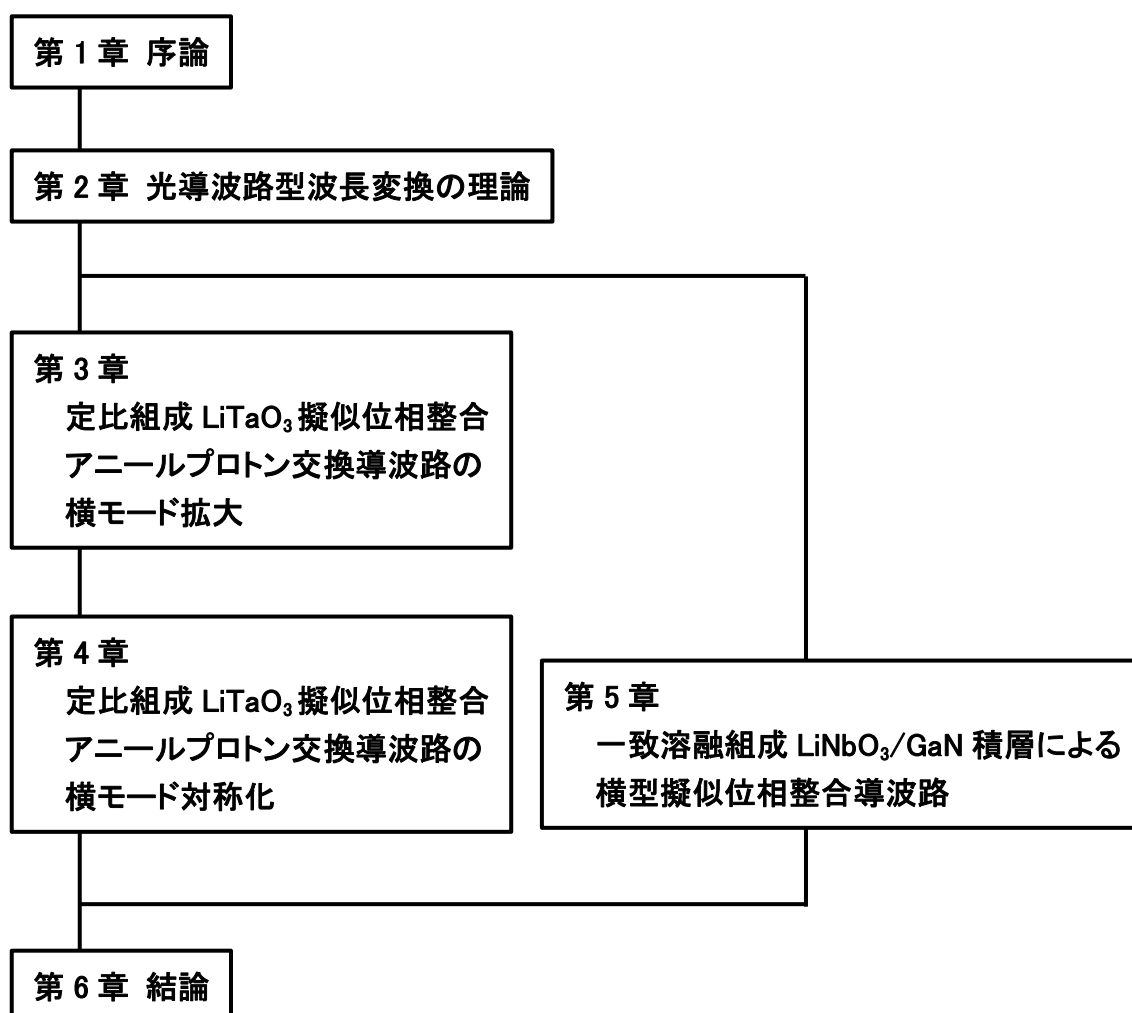


図 1.8 本論文の構成

参考文献

1. T. H. Maiman, *Nature* **187**, 493 (1960).
2. J. E. Geusic, H. M. Marcos, and L. G. V. Uiter, *Appl. Phys. Lett* **4**, 182 (1964).
3. S. Fujikawa, T. Kojima, and K. Yashi, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **3**, 40 (1997).
4. E. C. Honea, R. J. Beach, S. C. Mitchell, J. A. Skidmore, M. A. Emanuel, S. B. Sutton, S. A. Payne, P. V. Avizonis, R. S. Monroe, and D. G. Harris, *Opt. Lett.* **25**, 805 (2000).
5. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett* **7**, 118 (1961).
6. P. D. Maker, R. W. Terhune, M. Nisenoff, and C. M. Savage, *Phys. Rev. Lett.* **8**, 21 (1962).
7. Y. Uesu, S. Kurimura, and Y. Yamamoto, *Ferroelectric* **191**, 135 (1996).
8. N. A. Sanford, A. V. Davydov, D. V. Tsvetkov, A. V. Dmitriev, S. Keller, U. K. Mishra, S. P. DenBaars and R. J. Molnar, *J. Appl. Phys.* **97**, 053512 (2005).
9. R. K. Choubey, P. Sen, P. K. Sen, R. Bhatt, S. Kar, V. Shukla, and K. S. Bartwal, *Opt. Mater.* **28**, 467 (2006).
10. B. Kang, B. K. Rhee, and G. T. Joo, *Mater. Lett.* **60**, 2306 (2006).
11. M. Bass, P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* **8**, 18 (1962).
12. J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, *Phys. Rev.* **127**, 1918 (1962).
13. M. Yoshimura and Y. Mori, *Plasma Fusion Res.* **85**, 239 (2009).
14. R. C. Miller, *Phys. Rev.* **134**, A1313 (1964).
15. 栗村直, レーザー研究 **39**, 319 (2011).
16. 栗村直, M. M. Fejer, 平等拓範, 上江州由晃, 中島啓幾, 応用物理 **69**, 548 (2000).
17. M. Harada, M. Adachi, K. Muramatsu, M. Ueda, T. Yamada, and S. Kurimura, *Proc. SPIE* **7917**, 791709 (2011).
18. M. Yamada, N. Nada, and K. Watanabe, *Integrated Photonics Research*, YuC2-1, 144 (1992).
19. C. T. Chen, B. Wu, A. Jiang, and G. You, *Sci. Sin. B* **28**, 235 (1985).
20. E. Peters, S. A. Diddams, P. Fendel, S. Reinhardt, T. W. Hansch, and Th. Udem, *Opt. Express* **17** 9184 (2009).
21. X. Yan, Q. Liu, H. Chen, X. Fu, M. Gong, and D. Wang, *Laser. Phys. Lett.* **7**, 563 (2010).

22. M. Yoshimura, T. Kamimura, K. Murase, Y. Mori, H. Yoshida, M. Nakatsuka, and T. Sasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, L129 (1999).
23. K. Kondo, M. Oka, H. Wada, T. Fukui, N. Umezu, K. Tatsuki, and S. Kubota, *Opt. Lett.* **23**, 195 (1998).
24. M. Shi, G. Zhang, B. Li, R. Li, T. Yan, M. Luo, and N. Ye, *Opt. Lett.* **43**, 1734 (2018).
25. Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki, and S. Nakai, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1818 (1995).
26. C. Chen, Y. Wu, A. Jiang, B. Wu, G. You, R. Li, and S. Lin *J. Opt. Soc. Am. B.* **6**, 616 (1989).
27. X. Ya, Q. Liu, M. Gong, X. Fu, and D. Wang, *Appl. Phys. B* **95**, 323 (2009).
28. Q. Liu, X. Yan, M. Gong, X. Fu, and D. Wang, *Opt. Express* **16** (2008).
29. H. Hong, Q. Liu, L. Huang, and M. Gong, *Opt. Express* **21**, 7285 (2013).
30. W. Wang, H. Lu, J. Su, and K. Peng, *Appl. Opt.* **52**, 2279 (2013).
31. L. Wu, J. Huang, W. Weng, J. Li, F. Shi, S. Dai, H. Liu, H. Zheng, Y. Ge, J. Deng, and W. Lin, *Opt. Comm.* **435**, 159 (2019).
32. Y. Orii, K. Yoshii, K. Kohno, H. Tanaka, K. Shibuya, G. Okada, Y. Mori, J. Nishimae, and M. Yoshimura, *Opt. Commun.* **31**, 9 (2023).
33. J. Sakuma, Y. Kaneda, N. Oka, T. Ishida, K. Moriizumi, H. Kusunose, and Y. Furukawa, *Opt. Lett.* **40**, 5590 (2015).
34. H. Xuan, C. Qu, Z. Zhao, S. Ito, and Y. Kobayashi, *Opt. Express* **25**, 29172 (2017).
35. I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2268 (1997).
36. F. C. Zumsteg, J. D. Bierlein, and T. E. Gier, *J. Appl. Phys.* **47**, 4980 (1976).
37. J. Steinlechner, S. Ast, C. Kruger, A. P. Singh, T. Eberle, V. Handchen, and R. Schnabel, *Sensors* **13**, 565 (2013).
38. H. Vajlbruch, M. Mehmet, K. Danzmann, and R. Schnabel, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 110801 (2016).
39. M. Mehmet, S. Ast, T. Eberle, S. Steinlechner, H. ahlbruch, and R. Schnabel, *Opt. Express* **19**, 25763 (2011).
40. 栗村直, 北村健二, レーザー研究 **32**, 181 (2003).
41. J. R. Carruthers, G. E. Peterson, M. Grasso, and P. M. Bridenbaugh, *J. Appl. Phys.* **42**, 1846 (1971).
42. K. Kitamura, J. K. Yamamoto, N. Iyi, S. Kirnura, and T. Hayashi, *J. Cryst. Growth* **116**, 327 (1992).
43. S. Kan, M. Sakamoto, Y. Okano, K. Hoshikawa, and T. Fukuda, *J. Cryst. Growth* **119**, 215 (1992).

44. Y. Furukawa, M. Sato, K. Kitamura, Y. Yajima, and M. Minakata, *J. Appl. Phys.* **72**, 3250 (1992).
45. Y. Furukawa, M. Sato, F. Nitanda, and K. Ito, *J. Cryst. Growth* **99**, 832 (1990).
46. K. Kitamura, Y. Furukawa, S. Takekawa, T. Hatanaka, H. Ito, and V. Gopalan, *Ferroelectrics* **257**, 235 (2001).
47. J. Wang, J. Wei, Y. Liu, X. Hu, Z. Shao, and M. Jiang, *Prog. Crystal Growth and Charact.* **40**, 3 (2000).
48. A. Kuroda, S. Kurimura, and Y. Uesu, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1565 (1996).
49. Y. L. Chen, J. Guo, C. B. Lou, J. W. Yuan, W. L. Zhang, S. L. Chen, Z. H. Huang, and G. Y. Zhang, *J. Cryst. Growth* **253**, 427 (2004).
50. N. Pavel, I. Shoji, T. Taira, K. Mizuuchi, A. Morikawa, T. Sugita, and K. Yamamoto, *Opt. Lett.* **29**, 830 (2004).
51. Y. K. Yang, C. L. Tsai, J. Y. Lai, C. S. Hsu, Y. Y. Lin, C. C. Fu, and S. D. Yang, *CLEOPR 26P_44* (2015).
52. J. Hirohashi, T. Tago, O. Nakamura, A. Miyamoto, and Y. Furukawa, *Proc. SPIE* **6875**, 687516 (2008).
53. J. Hirohashi, V. Pasiskevicius, S. Wang, and F. Laurell, *J. Appl. Phys.* **101**, 033105 (2007).
54. S. Enomoto and S. Ashihara, *J. Appl. Phys.* **110**, 063111 (2011).
55. J. Sun and C. Xu, *Opt. Lett.* **37**, 2028 (2012).
56. H. Vahlbruch, M. Mehmet, S. Chelkowski, B. Hage, A. Franzen, N. Lastzka, S. Goßler, K. Danzmann, and R. Schnabel, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 033602 (2008).
57. Y. Furukawa, K. Kitamura, E. Suzuki, and K. Niwa, *J. Cryst. Growth* **197**, 889 (1999).
58. K. Kitamura, Y. Furukawa, K. Niwa, V. Gopalan, and T. E. Mitchell, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3073 (1998).
59. 北村健二, 竹川俊二, 羽田 肇, *応用物理* **74**, 573 (2005).
60. D. S. Hum, R. K. Route, G. C. Miller, V. Kondilenko, A. Alexandrovski, J. Huang, K. Urbanek, R. L. Byer, and M. M. Fejer, *J. Appl. Phys.* **101**, 093108 (2007).
61. S. V. Tovstonog, S. Kurimura, I. Suzuki, K. Takeno, S. Moriwaki, N. Ohmae, N. Mio, and T. Katagai, *Opt. Express* **16**, 11294 (2008).
62. S. Sinha, M. J. F. Digonnet, and R. L. Byer, *J. Light. Technol.* **26**, 3866 (2008).
63. J. Hirohashi, Y. Tomihari, T. Fukui, S. Makio, K. Suzuki, K. Imai, H. Motegi, and Y. Furukawa, *ASSP AT4A.22* (2012).
64. G.D.Boyd and D.A.Kleinman, *J. Appl. Phys.* **39**, 8 (1968).
65. T. Umeki, O. Tadanaga, and M. Asobe, *IEEE J. Quantum Electron.* **46**, 1206 (2010).

66. A. C. Busacca, E. D'Asaro, A. Pasquazi, S. Stivala, and G. Assanto, *Apl. Phys. Lett.* **93**, 121117 (2008).
67. M. Marangoni, M. Lobino, R. Ramponi, E. Cianci, and V. Foglietti, *Opt. Exp.* **14**, 248 (2006).
68. W. B. Spillman, Jr., N. A. Sanford, and R. A. Soref, *Opt. Lett.* **8**, 497 (1983).
69. K. Yamamoto, K. Mizuuchi, and T. Taniuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, 1059 (1992).
70. P. J. Matthews, A. R. Mickelson, and S. W. Novak, *J. Appl. Phys.* **72**, 2562 (1992).
71. G. M. Davis and N. A. Lindop, *J. Appl. Phys.* **77**, 6121 (1995).
72. M. Okazaki, T. Chichibu, S. Yoshimoto, H. Mizuno, and T. Suhara, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 070301 (2015).
73. S. T. Vohra and A. R. Mickelson, *J. Appl. Phys.* **66**, 5161 (1989).
74. A. Passaro, M. A. R. Franco, N. M. Abe, and F. Sircilli, *J. Lightwave Technol.* **20**, 1573 (2002).
75. T. Yuhara, K. Tada, and Y. S. Li, *J. Appl. Phys.* **71**, 3966 (1992).
76. X. Cao, R. Srivastava, and R. V. Ramaswamy, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 3280 (1992).
77. M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 435 (1993).
78. K. Yamamoto, K. Mizuuchi, Y. Kitaoka, and M. Kato, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 2599 (1993).
79. S. Kurimura, Y. Kato, M. Mayumura, Y. Usugi, and H. Nakajima, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 191123 (2006).
80. T. Umeki, M. Asobe, Y. Nishida, O. Tadanaga, K. Magari, T. Yanagawa, and H. Suzuki, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **20**, 15 (2008).
81. R. Kou, S. Kurimura, K. Kikushi, A. Terasaki, H. Nakajima, K. Kondou, and J. Ichikawa, *Opt. Express* **19**, 11867 (2011).
82. T. Kashiwazaki, N. Takahashi, T. Yamashita, T. Kazama, K. Enbutsu, R. Kasahawa, T. Umeki, and A. Furusawa, *APL Photon.* **5**, 036104 (2020).
83. G. Ulliac, V. Calero, A. Ndao, F.I. Baida, and M.-P. Bernal, *Opt. Mater.* **53**, 1 (2016).
84. T. Kashiwazaki, T. Yamashita, K. Enbutsu, T. Kazama, A. Inoue, K. Fukui, M. Endo, T. Umeki, and A. Furusawa, *Appl. Phys. Lett.* **122**, 234003 (2023).
85. N. Yokoyama, R. Tanabe, Y. Yasuda, H. Honda, S. Ichikawa, Y. Fujiwara, T. Hikosaka, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, *Jpn. J. Appl. Phys.* **61**, 050902 (2022).
86. N. Yokoyama, Y. Morioka, T. Murata, H. Honda, K. Serita, H. Murakami, M. Tonouchi, S. Tokita, S. Ichikawa, Y. Fujiwara, T. Hikosaka, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, *Appl. Phys. Express* **15**, 112002 (2022).
87. H. Honda, S. Umeda, K. Shojiki, H. Miyake, S. Ichikawa, J. Tatebayashi, Y.

- Fujiwara, K. Serita, H. Murakami, M. Tonouchi, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, *Appl. Phys. Express* **16**, 062006 (2023).
88. L. Wang, X. Zhang, and F. Chen, *Laser Photonics Rev.* **15**, 2100409 (2021).
 89. 岡崎雅英, 強誘電体周期分極反転構造を用いた高速レーザーソングラフィ装置用空間光変調器に関する研究, 博士学位論文, 大阪大学大学院工学研究科 (2015).
 90. 森一郎, 東木達彦, 東芝レビュー **59**, 8 (2004).
 91. H. Yonezawa, S. L. Braunstein, and A. Furusawa, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 110503 (2007).
 92. W. Asavanant, Y. Shiozawa, S. Yokoyama, B. Charoensombutamon, H. Emura, R. N. Alexander, S. Takeda, J. Yoshikawa, N. C. Menicucci, H. Yonezawa, and A. Furusawa, *Science* **366**, 373 (2019).
 93. N. Quesada, R. S. Chadwick, B. A. Bell, J. M. Arrazola, T. Vincent, H. Qi, and R. G. Patrón, *Phys. Rev. X Quantum* **3**, 010306 (2022).
 94. H. S. Zhong, H. Wang, Y. H. Deng, M. C. Chen, L. C. Peng, Y. H. Luo, J. Qin, D. Wu, X. Ding, Y. Hu, P. Hu, X. Y. Yang, W. J. Zhang, H. Li, Y. Li, X. Jiang, L. Gan, G. Yang, L. You, Z. Wang, L. Li, N. L. Liu, C. Y. Lu, and J. W. Pan, *Science* **370**, 1460 (2020).
 95. L. S. Madsen, F. Laudenbach, M. F. Askarani, F. Rortais, T. Vincent, J. F. F. Bulmer, F. M. Miatto, L. Neuhaus, L. G. Helt, M. J. Collins, A. E. Lita, T. Gerrits, S. W. Nam, V. D. Vaidya, M. Menotti, I. Dhand, Z. Vernon, N. Quesada, and J. Lavoie, *Nature* **606**, 75 (2022).
 96. M. Schuld and N. Killoran, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 040504 (2019).
 97. D. Gottesman, A. Kitaev, and J. Preskill, *Phys. Rev. A* **64**, 012310 (2001).
 98. K. K. Sabapathy, H. Qi, J. Izaac, and C. Weedbrook, *Phys. Rev. A* **100**, 012326 (2019).
 99. D. Su, C. R. Myers, and K. K. Sabapathy, *Phys. Rev. A* **100**, 052301 (2019).
 100. I. Tzitrin, J. E. Bourassa, N. C. Menicucci, and K. K. Sabapathy, *Phys. Rev. A* **101**, 032315 (2020).
 101. L. Vaidman, *Phys. Rev. A* **49**, 1473 (1994).
 102. S. L. Braunstein and H. J. Kimble, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 869 (1998).
 103. H. F. Hofmann, T. Ide, T. Kobayashi, and A. Furusawa, *Phys. Rev. A* **62**, 062304 (2000).
 104. W. R. Clements, P. C. Humphreys, B. J. Metcalf, W. S. Kolthammer, and I. A. Walmsley, *Optica* **3**, 1460 (2016).
 105. J. M. Arrazola, V. Bergholm, K. Brádler, T. R. Bromley, M. J. Collins, I. Dhand, A. Fumagalli, T. Gerrits, A. Goussev, L. G. Helt, J. Hundal, T. Isacsson, R. B. Israel, J. Izaac, S. Jahangiri, R. Janik, N. Killoran, S. P. Kumar, J. Lavoie, A. E. Lita, D. H.

- Mahler, M. Menotti, B. Morrison, S. W. Nam, L. Neuhaus, H. Y. Qi, N. Quesada, A. Repington, K. K. Sabapathy, M. Schuld, D. Su, J. Swinarton, A. Száva, K. Tan, P. Tan, V. D. Vaidya, Z. Vernon, Z. Zabaneh, and Y. Zhang, *Nature* **591**, 54 (2021).
106. 渡辺俊介, 廣橋淳二, 今井浩一, 星正幸, 牧尾諭, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10p-W834-18 (2019).
107. M. Tripkett, J. Khayadarov, X. Xu, A. Marandi, G. Imeshev, J. Arntsen, A. Ninan, G. Miller, and C. Langrock, *Opt. Express* **27**, 21102 (2019).
108. L. Li, B. Zhang, C. Romero, J. R. V. Aldana, L. Wang, and F. Chen, *Results in Physics* **19**, 103373 (2020).
109. S. Jin, X. Haihua, and Y. Li, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **28**, 736 (2016).

第2章 光導波路型波長変換の理論

2.1 はじめに

波長変換はレーザ光の電界に対する結晶の非線形な応答によって起こる。本章では非線形光学結晶を用いた波長変換に必要な理論をまとめる。まず、非線形分極について述べる。次に波長変換の理論の根幹となるモード結合方程式を導入し、応用に向けた紫外光発生とスクイーズド光発生について述べる。

2.2 非線形分極と非線形光学テンソル¹

光学媒質中にレーザ光等の電界が入射すると媒質中の電子と原子核の位置が相対的に変化するため誘電分極が誘起される。誘電分極は入射した電界振幅が小さい場合は電界にほぼ比例するが、電界振幅が大きくなると電界の2乗や3乗に比例する非線形に応答する成分が無視できなくなってくる。一般に時間 t での分極 $\mathbf{P}(t)$ は

$$\begin{aligned}\mathbf{P}(t) &= \mathbf{P}_L(t) + \mathbf{P}_{NL}(t) \\ &= \mathbf{P}^{(1)}(t) + \mathbf{P}^{(2)}(t) + \mathbf{P}^{(3)}(t) + \dots\end{aligned}\quad (2.1)$$

と表される。ここで $\mathbf{P}_L(t)$ と $\mathbf{P}_{NL}(t)$ はそれぞれ線形分極、非線形分極であり、 $\mathbf{P}^{(q)}(t)$ ($q \in \mathbb{N}$) は q 次の分極を表している。

分極は考えている場所での過去の電界の影響を受け、未来の電界の影響は受けないため、時間 t での q 次の分極は q 次の応答関数を $\mathbf{R}^{(q)}$ とすると

$$\begin{aligned}\mathbf{P}^{(q)}(t) &= \varepsilon_0 \int_{-\infty}^t \dots \int_{-\infty}^t \mathbf{R}^{(q)}(t - t_1, \dots, t - t_q) \mathbf{E}(t_1) \dots \mathbf{E}(t_q) dt_1 \dots dt_q \\ &= \varepsilon_0 \int_0^{+\infty} \dots \int_0^{+\infty} \mathbf{R}^{(q)}(\tau_1, \dots, \tau_q) \mathbf{E}(t - \tau_1) \dots \mathbf{E}(t - \tau_q) d\tau_1 \dots d\tau_q,\end{aligned}\quad (2.2)$$

$$\tau_i = t - t_i \quad (2.3)$$

と書くことができる。ここで、媒質は時間に依存しない、つまり応答関数は時間に依存しないと仮定したための $\mathbf{R}^{(q)}$ の変数は考えている電界 $\mathbf{E}(t_i)$ の変数 t_i と時間 t との差 τ_i ($= t - t_i$) となる。また、 $\mathbf{R}^{(q)} = 0$ ($\tau_i < 0$) と定義すると積分範囲を $-\infty$ から $+\infty$ にすることができ、

$$\mathbf{P}^{(q)}(t) = \varepsilon_0 \int \dots \int \mathbf{R}^{(q)}(\tau_1, \dots, \tau_q) \mathbf{E}(t - \tau_1) \dots \mathbf{E}(t - \tau_q) d\tau_1 \dots d\tau_q \quad (2.4)$$

と書ける。 $\mathbf{E}(t)$ と $\mathbf{P}^{(q)}(t)$ をフーリエ変換の形で記述すると、

$$\mathbf{E}(t) = \int \mathbf{E}(\omega) \exp(j\omega t) d\omega, \quad \mathbf{P}^{(q)}(t) = \int \mathbf{P}^{(q)}(\omega) \exp(j\omega t) d\omega \quad (2.5)$$

となる。ここで、 $\mathbf{E}(t)$ と $\mathbf{P}^{(q)}(t)$ は実数なので、 $\mathbf{E}(-\omega) = \mathbf{E}(\omega)^*$ 、 $\mathbf{P}(-\omega) = \mathbf{P}(\omega)^*$ である。式(2.5)を式(2.4)に代入すると

$$\begin{aligned} & \int \mathbf{P}^{(q)}(\omega) \exp(j\omega t) d\omega \\ &= \varepsilon_0 \int \cdots \iint \cdots \int \mathbf{R}^{(q)}(\tau_1, \dots, \tau_q) \exp\{-j(\omega_1\tau_1 + \cdots + \omega_q\tau_q)\} \\ & \quad \mathbf{E}(\omega_1) \cdots \mathbf{E}(\omega_q) \exp\{jt(\omega_1 + \cdots + \omega_q)\} d\omega_1 \cdots d\omega_q d\tau_1 \cdots d\tau_q \end{aligned} \quad (2.6)$$

と変形できる。非線形分極 $\mathbf{P}^{(q)}(t)$ のうち角周波数 ω の成分 $\mathbf{P}^{(q)}(\omega)\exp(j\omega t)$ を考えると、式(2.6)の右辺も時間 t に対して $\exp(j\omega t)$ で振動する成分のみを取り出せばよい。式(2.6)の右辺は $\omega_1 + \cdots + \omega_q = \omega$ となると $\exp(j\omega t)$ で振動するから、ディラックのデルタ関数 δ を用いると $\mathbf{P}^{(q)}(\omega)\exp(j\omega t)$ は

$$\begin{aligned} & \mathbf{P}^{(q)}(\omega) \exp(j\omega t) \\ &= \varepsilon_0 \int \cdots \int \chi^{(q)}(-\omega; \omega_1, \dots, \omega_q) \\ & \quad \delta(\omega - \omega_1 - \cdots - \omega_q) \mathbf{E}(\omega_1) \cdots \mathbf{E}(\omega_q) \exp(j\omega t) d\omega_1 \cdots d\omega_q, \end{aligned} \quad (2.7)$$

$$\chi^{(q)}(-\omega; \omega_1, \dots, \omega_q) = \int \cdots \int \mathbf{R}^{(q)}(\tau_1, \dots, \tau_q) \exp\{-j(\omega_1\tau_1 + \cdots + \omega_q\tau_q)\} d\tau_1 \cdots d\tau_q \quad (2.8)$$

と書ける。式(2.7)の両辺を $\exp(j\omega t)$ で割ると、

$$\begin{aligned} & \mathbf{P}^{(q)}(\omega) \\ &= \varepsilon_0 \int \cdots \int \chi^{(q)}(-\omega; \omega_1, \dots, \omega_q) \\ & \quad \delta(\omega - \omega_1 - \cdots - \omega_q) \mathbf{E}(\omega_1) \cdots \mathbf{E}(\omega_q) d\omega_1 \cdots d\omega_q \end{aligned} \quad (2.9)$$

となる。式(2.9)は角周波数 $\omega_1, \dots, \omega_q$ の電界が角周波数 $\omega (= \omega_1 + \cdots + \omega_q)$ の分極 $\mathbf{P}^{(q)}(\omega)$ を誘起することを示している。逆に、 $\mathbf{P}^{(q)}(\omega)$ が値を持つとき $\chi^{(q)}$ 中の ω は $\omega = \omega_1 + \cdots + \omega_q$ を満たす。ここで、式(2.8)で表されるテンソルは感受率テンソルと呼ばれる。 q 次の感受率テンソルの次元は $q + 1$ 次元であり、テンソルの要素の添え字はそれぞれ角周波数 $-\omega, \omega_1, \dots, \omega_q$ の電界の偏光方向に対応する。なお、 $\chi^{(q)}$ 中の ω の符号「-」は後述の式との一貫性を保つためであり、深い意味は無い。

$q = 1$ のとき、式(2.9)は線形分極 $\mathbf{P}_L(\omega)$ を表し、

$$\mathbf{P}^{(1)}(\omega) = \mathbf{P}_L(\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(-\omega; \omega) \mathbf{E}(\omega) \quad (2.10)$$

となる。線形分極 $\mathbf{P}_L(\omega)$ は電界に比例していることが分かる。

$q = 2$ のとき式(2.9)は2次の非線形分極を表しており、

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega) = \varepsilon_0 \iint \chi^{(2)}(-\omega; \omega_1, \omega_2) \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) d\omega_1 d\omega_2, \quad \omega_1 + \omega_2 = \omega \quad (2.11)$$

となる。

本研究では2次の非線形分極を用いた波長変換を行う。レーザ光は単色性の高い光であるため、電界 $\mathbf{E}(t)$ は角周波数 ω の三角関数で表すことができる。角周波数 ω_1, ω_2 をそれぞれ持つ電界 $\mathbf{E}(\omega_1), \mathbf{E}(\omega_2)$ を非線形媒質に入射すると、式(2.11)から角周波数 $\omega_1 + \omega_2$ や $\omega_1 - \omega_2$ をもつ2次の非線形分極 $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2), \mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2)$ が誘起される。ここで、分極は媒質中の電子密度の偏りを表しているため分極 $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2), \mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2)$ からは同角周波数の電界 $\mathbf{E}(\omega_1 + \omega_2), \mathbf{E}(\omega_1 - \omega_2)$ がそれぞれ生じる。前者は SFG であり、後者は差周波発生 (difference frequency generation, DFG) である。また、入射する電界の角周波数が $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ のとき $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ からは角周波数 2ω の電界 $\mathbf{E}(2\omega)$ が生じる。これは SHG が起こることを示している。また、 $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \mathbf{P}^{(2)}(0)$ からは静電界 $\mathbf{E}(\omega)$ が生じる。

2 次の非線形感受率テンソル $\chi^{(2)}$ はいくつかの対称性がある。対称性のうちのひとつとして t_i の固有置換対称性が挙げられる。固有置換対称性とは、式(2.2)において、 t_1, \dots, t_q の添え字 $1, \dots, q$ はどのような付け方でもよい対称性である。この固有置換対称性は $\chi^{(2)}$ に現れる全ての角周波数の光に対して媒質が透明なときに有効である。2 次の非線形感受率テンソル $\chi^{(2)}$ の要素を χ_{ijk} と書くと、前述の通りテンソルの要素の添え字は角周波数 $-\omega, \omega_1, \omega_2$ の電界の偏光方向に対応するため、固有値間対称性は

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega; \omega_1, \omega_2) &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1; \omega_2, -\omega) = \chi_{kij}^{(2)}(\omega_2; -\omega, \omega_1) \\ &= \chi_{ikj}^{(2)}(-\omega; \omega_2, \omega_1) = \chi_{jik}^{(2)}(\omega_1; -\omega, \omega_2) = \chi_{kji}^{(2)}(\omega_2; \omega_1, -\omega) \end{aligned} \quad (2.12)$$

と書くことができる。さらに、低周波数領域などで感受率の周波数分散が無視できるとき、式(2.12)は Kleinman 対称性²を満たすため

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{jki}^{(2)} = \chi_{kij}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)} = \chi_{jik}^{(2)} = \chi_{kji}^{(2)} \quad (2.13)$$

と書ける。

ここで SHG を考える。角周波数 ω の光が非線形媒質に入射すると、上記のように2次の非線形効果により角周波数 2ω の電界 $\mathbf{E}(2\omega)$ が生じる。つまり、非線形媒質中には角周波数 ω と 2ω の光が混在する。よって、電界 $\mathbf{E}(t)$ と分極 $\mathbf{P}(t)$ は

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(t) &= \text{Re}\{\mathbf{E}_\omega \exp(j\omega t) + \mathbf{E}_{2\omega} \exp(j2\omega t)\} \\ &= \frac{1}{2}\{\mathbf{E}_\omega \exp(j\omega t) + \mathbf{E}_{-\omega} \exp(-j\omega t) + \mathbf{E}_{2\omega} \exp(j2\omega t) + \mathbf{E}_{-2\omega} \exp(-j2\omega t)\} \end{aligned} \quad (2.14)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(t) &= \text{Re}\{\mathbf{P}_\omega \exp(j\omega t) + \mathbf{P}_{2\omega} \exp(j2\omega t)\} \\ &= \frac{1}{2}\{\mathbf{P}_\omega \exp(j\omega t) + \mathbf{P}_{-\omega} \exp(-j\omega t) + \mathbf{P}_{2\omega} \exp(j2\omega t) + \mathbf{P}_{-2\omega} \exp(-j2\omega t)\} \end{aligned} \quad (2.15)$$

と表される。ただし、 $\mathbf{E}_{\omega'}$, $\mathbf{P}_{\omega'}$ は角周波数 ω' ($= -2\omega, -\omega, \omega, 2\omega$) を持つ電界と分極の複素数表現である。これらを式(2.5)に代入すると、

$$\mathbf{E}(\omega') = \frac{1}{2} \mathbf{E}_{\omega'}, \quad \mathbf{P}^{(2)}(\omega') = \frac{1}{2} \mathbf{P}_{\omega'}, \quad \omega' = -2\omega, -\omega, \omega, 2\omega \quad (2.16)$$

となる。式(2.16)と式(2.11)を用いると

$$\mathbf{P}_{2\omega} = \varepsilon_0 \frac{\chi^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega)}{2} \mathbf{E}_{\omega} \mathbf{E}_{\omega} = \varepsilon_0 \mathbf{d} \mathbf{E}_{\omega} \mathbf{E}_{\omega}, \quad (2.17)$$

$$\mathbf{P}_{\omega} = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) \mathbf{E}_{2\omega} \mathbf{E}_{\omega} = 2\varepsilon_0 \mathbf{d} \mathbf{E}_{2\omega} \mathbf{E}_{\omega} \quad (2.18)$$

$$\mathbf{d} = \frac{\chi^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega)}{2} \quad (2.19)$$

と書ける。ここで式(2.32)の $\chi^{(2)}$ は式(2.12)の固有置換対称性を考慮した。このときテンソル \mathbf{d} は 2 次の非線形光学テンソルと呼ばれる。

$\mathbf{d} = \chi^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega)/2$ のとき、 $\chi^{(2)}$ の第 2 第 3 変数は両方 ω であるため j と k の入れ替えに対して不変である。よって、 $d_{ijk} = d_{ikj}$ という対称性を持つ。本来、 \mathbf{d} は 3 階のテンソルであるが、この対称性により、 $jk = 11, 22, 33, 23, 31, 12$ をそれぞれ 1, 2, 3, 4, 5, 6 と表記する、つまり、 $11 \rightarrow 1, 22 \rightarrow 2, 33 \rightarrow 3, 23 \rightarrow 4, 31 \rightarrow 5, 12 \rightarrow 6$ と表記することで 3×6 の 2 次元行列のように表すことができる。式(2.17)を書き下すと

$$\begin{bmatrix} P_x^{2\omega} \\ P_y^{2\omega} \\ P_z^{2\omega} \end{bmatrix} = \varepsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} d_{12} d_{13} d_{14} d_{15} d_{16} \\ d_{21} d_{22} d_{23} d_{24} d_{25} d_{26} \\ d_{31} d_{32} d_{33} d_{34} d_{35} d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (E_x^{\omega})^2 \\ (E_y^{\omega})^2 \\ (E_z^{\omega})^2 \\ 2E_y^{\omega} E_z^{\omega} \\ 2E_z^{\omega} E_x^{\omega} \\ 2E_x^{\omega} E_y^{\omega} \end{bmatrix} \quad (2.20)$$

となる。ここで、Kleinman 対称性が成り立つときは $d_{15} = d_{31}, d_{16} = d_{21}, d_{24} = d_{32}, d_{26} = d_{12}, d_{34} = d_{23}, d_{35} = d_{13}, d_{14} = d_{25} = d_{36}$ となる。これにより \mathbf{d} の独立要素は 10 個に減る。

Kleinman 対称性以外にも媒質の空間対称性、つまり、結晶構造により独立要素の数は減る。例えば、LN や LT 等は点群 $3m$ に属する結晶で、 \mathbf{d} は

$$\mathbf{d} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} - d_{22} \\ -d_{22} d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (2.21)$$

GaN や AlN 等の窒化物半導体は安定相であるウルツ鉱型構造と準安定相である閃亜鉛鉱型構造を持つ。ウルツ鉱型構造の GaN や AlN の点群は $6mm$ であり、 \mathbf{d} は

$$\mathbf{d} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} d_{15} d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (2.22)$$

となる。

2.3 モード結合方程式^{1,3}

モード結合方程式は複数のモードが相互作用するとき、その結合を説明する方程式である。波長変換(異なる波長のモード結合)や方向性結合器(異なる経路のモード結合)、グレーティング結合器(導波モードと放射モードの結合)の解析を行うために便利な方程式である。本節では媒質の非線形性により誘起される非線形分極を摂動とみなすことで波長変換におけるモード結合方程式の導出を行う。なお、本節では導波路型波長変換を踏まえたモード結合方程式の定式化を行うが、Gaussian 分布のモードが伝搬する架空の導波路を考えることで、以下の議論はバルク波長変換にも適用可能である。

慣例に従って、図 2.1 のように x は基板に垂直な方向、 y は導波路に垂直で基板面に平行な方向、 z は導波路に沿った方向(伝搬方向)とする。なお、これら x, y, z 方向は結晶の X, Y, Z 軸とは必ずしも一致しないため注意が必要である。まずは摂動の無い、つまり、非線形分極が生じない導波路を考える。角周波数 ω でモード番号 m の導波路を伝搬する光は

$$\mathbf{E}^{(0)}(x, y, z) = \mathbf{E}_m(x, y) \exp(-j\beta_m z), \quad (2.23)$$

$$\mathbf{H}^{(0)}(x, y, z) = \mathbf{H}_m(x, y) \exp(-j\beta_m z) \quad (2.24)$$

$$\beta_m = N_m k \quad (2.25)$$

と表される。ここで、 $\mathbf{E}_m, \mathbf{H}_m$ はそれぞれ規格化電界、規格化磁界であり、 N_m はそのモードが感じる実効屈折率、 k は波数である。 β_m は伝搬定数と呼ばれる。 $\mathbf{E}_m, \mathbf{H}_m$ はモード全体で 1 のパワーを伝搬するという規格化がされている。電磁波が運ぶパワーは Poynting ベクトル \mathbf{S} を用いると

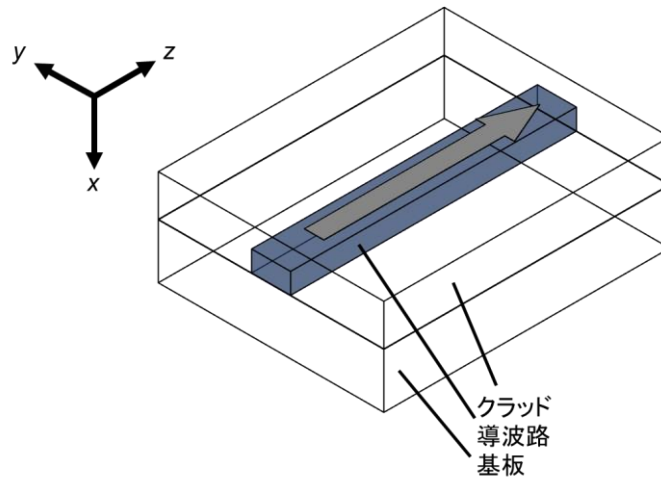


図 2.1 導波路と座標系

$$\begin{aligned}
\iint S dx dy &= \iint \operatorname{Re} \left\{ \frac{1}{2} [\mathbf{E}_m \times \mathbf{H}_m^*]_z \right\} dx dy \\
&= \frac{1}{4} \iint [\mathbf{E}_m \times \mathbf{H}_m^* + \mathbf{E}_m^* \times \mathbf{H}_m]_z dx dy
\end{aligned} \quad (2.26)$$

と書ける。各モードは互いに直交しているものとする、規格化条件は

$$\frac{1}{4} \iint [\mathbf{E}_m \times \mathbf{H}_{m'}^* + \mathbf{E}_{m'}^* \times \mathbf{H}_m]_z dx dy = \pm \delta_{mm'} \quad (2.27)$$

となる。ここで、 $\delta_{mm'}$ はクロネッカーのデルタであり、 $m \neq m'$ のとき $\delta_{mm'} = 0$ 、 $m = m'$ のとき $\delta_{mm'} = 1$ である。また、左辺の積分中の添え字 z は z 方向(伝搬方向)の成分であることを明示するために付けてある。 $\mathbf{E}_m, \mathbf{H}_m$ は Maxwell 方程式を満たすため

$$\nabla \times \mathbf{E}^{(0)} = -j\omega\mu_0\mathbf{H}^{(0)}, \quad \nabla \times \mathbf{H}^{(0)} = +j\omega\varepsilon_0\varepsilon\mathbf{E}^{(0)} \quad (2.28)$$

が成り立つ。

次に摂動のある、つまり、非線形分極が生じている導波路を考える。非線形分極が生じている場合も、非線形分極が無い場合と同様に、導波路中の電磁波は Maxwell 方程式を満たすから、入射した光と同じ角周波数 ω を持つ非線形分極を \mathbf{P} で表すと、

$$\nabla \times \mathbf{E} = -j\omega\mu_0\mathbf{H}, \quad \nabla \times \mathbf{H} = +j\omega(\varepsilon_0\varepsilon\mathbf{E} + \mathbf{P}) \quad (2.29)$$

が成り立つ。ここで Lorentz の相反定理 (Lorentz Reciprocity Theorem) を考える。式 (2.28), (2.29) と、ベクトル公式 $\nabla \cdot (\mathbf{A} \times \mathbf{B}) = \mathbf{B} \cdot \nabla \times \mathbf{A} - \mathbf{A} \cdot \nabla \times \mathbf{B}$ より

$$\nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{H}^{(0)*} + \mathbf{E}^{(0)*} \times \mathbf{H}) = -j\omega\mathbf{E}^{(0)*} \cdot \mathbf{P} \quad (2.30)$$

が得られる。 xy 平面に平行で面積が無限であり、 z 方向には厚みが無限に小さな区間を考え、式 (2.30) を積分すると、

$$\iint \frac{\partial}{\partial z} [\mathbf{E}_t \times \mathbf{H}_t^{(0)*} + \mathbf{E}_t^{(0)*} \times \mathbf{H}_t]_z dx dy = -j\omega \iint \mathbf{E}^{(0)*} \cdot \mathbf{P} dx dy \quad (2.31)$$

が導かれる。ここで、添え字 t は導波路に垂直な成分であることを明示するために付けてある。導波路のモードは直交性と完備性を持っているため、導波路内を伝搬する任意の光はモード展開できて

$$\mathbf{E}_t(x, y, z) = \sum_m A_m(z) \mathbf{E}_{tm}(x, y) \exp(-j\beta_m z) \quad (2.32)$$

$$\mathbf{H}_t(x, y, z) = \sum_m A_m(z) \mathbf{H}_{tm}(x, y) \exp(-j\beta_m z) \quad (2.33)$$

と書ける。ここで $A_m(z)$ はモード m の電界振幅である。式 (2.23), (2.24) と式 (2.32), (2.33) を式 (2.31) に代入し、式 (2.27) の規格化条件を用いると、

$$\frac{d}{dz} A_m(z) = -j \left(\frac{\omega}{4} \right) \iint \mathbf{E}_m^*(x, y) \exp(+j\beta_m z) \cdot \mathbf{P}(x, y, z) dx dy \quad (2.34)$$

となる。式 (2.25) はモード結合方程式と呼ばれる。特にこの式はモード間の相互作用が分極に起因するときのモード結合方程式である。

2.4 紫外光発生^{1,4}

本論文の第3章と第4章では 350 nm 帯高パワー紫外光発生に向けた強誘電体導波路の横モード拡大と対称化について述べる。本デバイスの最終的な目標は SHG と SFG をカスケード接続した 350 nm 帯紫外光発生であり、位相整合方式としては縦型 QPM 導波路である。本節ではまず PP 構造の理論的な表現方法を述べたのち、縦型 QPM 導波路における SHG と SFG の理論をまとめる。

図 2.2 のような周期 Λ の PP 構造を持つ導波路を考える。PP 構造は光波の伝搬方向に対して非線形光学テンソルが周期的に変化した構造であるため、非線形光学テンソルの z 方向の分布によって記述できる。非線形光学テンソルの分布は

$$\mathbf{d}(x, y, z) = \sum_q \mathbf{d}_q(x, y) \exp(-jqKz), \quad (2.35)$$

$$K = \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (2.36)$$

のようにフーリエ級数展開で書くことができる。 \mathbf{K} はグレーティングベクトルであり、ここではベクトルの方向は伝搬方向と一致しているため、スカラー量としており、 K と書いている。簡単のため CW 光での波長変換など励起光と変換光がそれぞれ 1 つずつのモードのみで表されるときを考える。このとき、 \mathbf{d} はスカラーで表すことができる。PP 構造における \mathbf{d} は図 2.3 のように d_a, d_b の 2 値のみで表現できるから、式(2.35)中のフーリエ係数は

$$d_q = \begin{cases} (d_a - d_b) \left(\frac{\sin(qa\pi)}{q\pi} \right), & (q \neq 0) \\ ad_a + (1-a)d_b, & (q = 0) \end{cases} \quad (2.37)$$

となる。ここで図 2.3 に示すように、 a は周期に対する一つの領域の duty 比である。ま

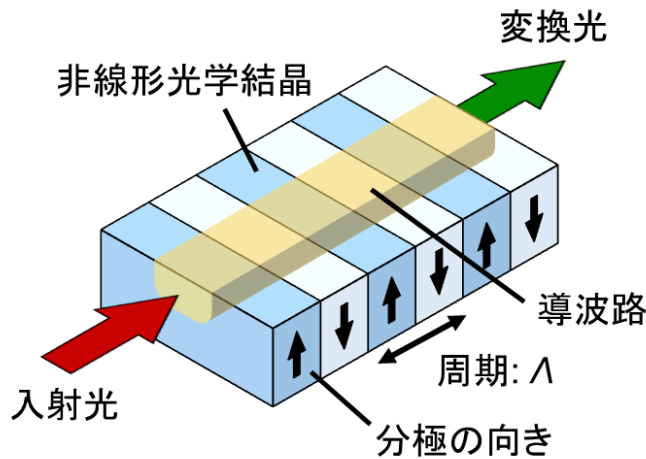


図 2.2 導波路型 QPM デバイスの構造

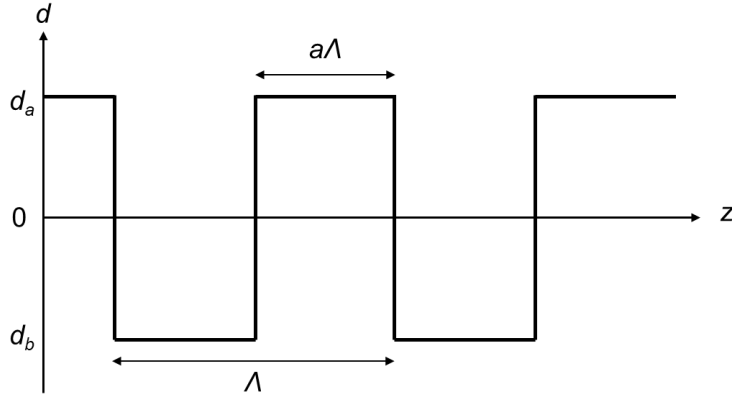


図 2.3 PP 構造中の非線形光学定数の分布

た、一般的に強誘電体導波路における PP 構造では図 2.2 に示すように同一材料の極性を反転させた構造であることから $d_b = -d_a$ である。

次にこのような PP 構造を用いた波長変換について述べる。まずは SHG について考える。角周波数 ω の光が感じる実効屈折率を N_ω 、波数を k_ω とすると、角周波数 ω の励起光の位相は $\exp(-jN_\omega k_\omega z)$ で表される。2 次の非線形分極は式(2.17)より励起光と位相が揃っており波長が半分であるため、その位相は $\exp(-jN_\omega k_{2\omega} z)$ で表される。また、SH 光の位相は $\exp(-jN_{2\omega} k_{2\omega} z)$ で表される。縦型 QPM では図 2.4 のように 2 次の非線形分極と SH 光の位相が π ずれる長さで分極を反転させることで SH 光を増幅している。非線形分極と SH 光の位相が π ずれるとき、その伝搬長 l_c は

$$\exp(-jN_{2\omega} k_{2\omega} l_c) = \exp\{-j(N_\omega k_{2\omega} l_c + \pi)\} \quad (2.38)$$

という関係が成り立つから、

$$l_c = \frac{\lambda_\omega}{4(N_{2\omega} - N_\omega)} \quad (2.39)$$

が導かれる。ここで、 λ_ω は角周波数 ω の波長である。この l_c をコヒーレンス長という。1 次 QPM での分極反転周期 Λ_{SHG} は図 2.4 からわかる通りコヒーレンス長の 2 倍なので、

$$\Lambda_{\text{SHG}} = \frac{\lambda_\omega}{2(N_{2\omega} - N_\omega)} \quad (2.40)$$

となる。 q 次 QPM での分極反転周期は 1 次 QPM のときの q 倍となるため、式(2.25)で表される伝搬定数と式(2.36)で表されるグレーティングベクトルの関係は、

$$2\beta_\omega + qK = \beta_{2\omega} \quad (2.41)$$

となる。図 2.5 に 1 次 QPM での SHG の位相整合時の波動ベクトルダイアグラムを示す。

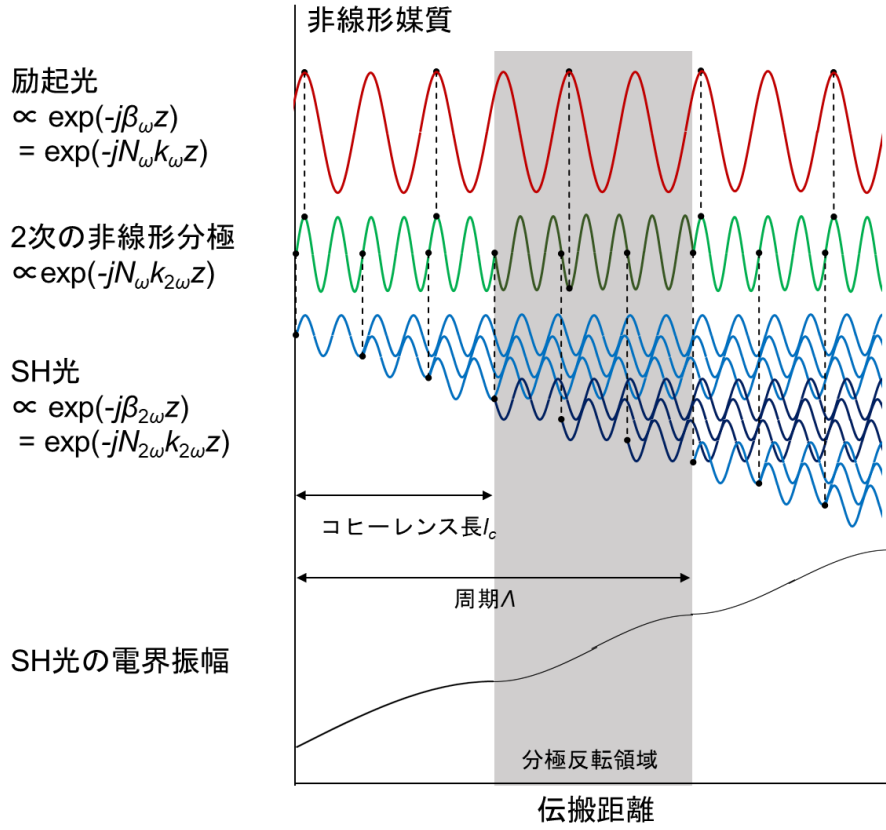


図 2.4 媒質中での電界と非線形分極のふるまい

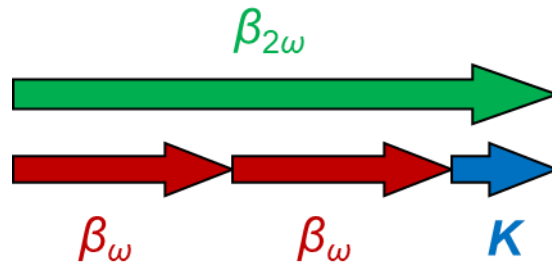


図 2.5 1 次 QPM での位相整合時の SHG の波動ベクトルダイアグラム

CW 光は周波数領域では非常に狭いスペクトルを持つため、CW 光の波長変換は励起光と SH 光からそれぞれ 1 つのモードのみを考えればよい。このとき式 (2.32), (2.35) を式 (2.17), (2.18) に代入し、その結果を式 (2.34) に代入すると、

$$\frac{d}{dz} A_{\omega}(z) = -j \sum_q \left[\kappa_{\text{SHG}}^{(q)} \exp(j2\Delta_{\text{SHG}}^{(q)} z) \right]^* [A_{\omega}(z)]^* A_{2\omega}(z), \quad (2.42)$$

$$\frac{d}{dz} A_{2\omega}(z) = -j \sum_q \left[\kappa_{\text{SHG}}^{(q)} \exp(j2\Delta_{\text{SHG}}^{(q)} z) \right] [A_{\omega}(z)]^2, \quad (2.43)$$

$$2\Delta_{\text{SHG}}^{(q)} = \beta_{2\omega} - (2\beta_{\omega} + qK), \quad (2.44)$$

$$\kappa_{\text{SHG}}^{(q)} \equiv \frac{2\omega\epsilon_0}{4} \iint [\mathbf{E}_{2\omega}(x, y)]^* d_q(x, y) [\mathbf{E}_{\omega}(x, y)]^2 dx dy \quad (2.45)$$

となる。ここで、 $A_{\omega}(z)$ と $A_{2\omega}(z)$ はそれぞれ励起光と SH 光の電界振幅である。なお、モードを表す添え字 m は省略した。 $\Delta_{\text{SHG}}^{(q)}$ は位相不整合量であり $\kappa_{\text{SHG}}^{(q)}$ は非線形結合係数である。式(2.44),(2.43)を解く過程において、(2.42) $2\Delta_{\text{SHG}}^{(q)} \neq 0$ の項は z に対して周期的に動くため $2\Delta_{\text{SHG}}^{(q)} = 0$ を満たす項に比べて非常に小さくなる。そこで 1 次 QPM の場合、 $q = 1$ の項のみを考えることで、

$$\frac{d}{dz} A_{\omega}(z) = -j\kappa_{\text{SHG}}^* A_{\omega}^*(z) A_{2\omega}(z) \exp[-j(2\Delta_{\text{SHG}})z], \quad (2.46)$$

$$\frac{d}{dz} A_{2\omega}(z) = -j\kappa_{\text{SHG}} [A_{\omega}(z)]^2 \exp[+j(2\Delta_{\text{SHG}})z] \quad (2.47)$$

となる。なお、 κ_{SHG} の上付き文字(q)は省略した。 κ_{SHG} は一般に複素数であるが、不変な位相因子は重要ではないため、今後の議論では κ_{SHG} を正の実数として取り扱うことにする。

式(2.46),(2.47)を解くことで、SHG 効率を理論的に求めることができる。 $z = 0$ で電界振幅が A_0 の励起光をデバイスに入射させるとき、境界条件は

$$A_{\omega}(0) = A_0, \quad A_{2\omega}(0) = 0 \quad (2.48)$$

である。SHG の効率が小さいとき、励起光は減衰しないと近似できる。この近似を No Pump Depletion Approximation (NPDA)という。NPDA を用いることで、式(2.46),(2.47)は簡単に解くことができ、

$$A_{\omega}(z) \cong A_0 \quad (2.49)$$

$$A_{2\omega}(z) \cong -j\kappa_{\text{SHG}} A_0^2 z \exp(+j\Delta z) \left\{ \frac{\sin(\Delta_{\text{SHG}} z)}{\Delta_{\text{SHG}} z} \right\} \quad (2.50)$$

となる。相互作用長を L 、励起光パワーを $P_0 (= A_0^2)$ とすると、変換効率 η は

$$\eta = \frac{|A_{2\omega}(L)|^2}{|A_0|^2} = \kappa_{\text{SHG}}^2 P_0 L^2 \left\{ \frac{\sin(\Delta_{\text{SHG}} L)}{\Delta_{\text{SHG}} L} \right\}^2 \quad (2.51)$$

と表される。よって規格化変換効率 η_{norm} は

$$\eta_{\text{norm}} = \frac{\eta}{P_0} = \kappa_{\text{SHG}}^2 L^2 \left\{ \frac{\sin(\Delta_{\text{SHG}} L)}{\Delta_{\text{SHG}} L} \right\}^2 \quad (2.52)$$

となる。

これらの式を用いると理論的には設計段階で変換効率の見積りまで行えるが、変換効率の計算に必要な κ_{SHG} の計算のためには励起光と SH 光の横モード分布が必要である。横モード分布は導波路の屈折率分布が与えられると決まる。しかし、第3章、第4章で作製する APE 導波路の屈折率分布は PE 条件やアニール条件によって変わり、さらに、 H^+ が取り込まれた $\text{H}_x\text{Li}_{1-x}\text{NbO}_3$ や $\text{H}_x\text{Li}_{1-x}\text{TaO}_3$ の屈折率変化量は報告に

よって異なるため横モード分布を設計段階で予想することは難しい。そこで設計では横モードは Gaussian 分布を仮定して変換効率を求める。横モードが Gaussian 分布のときはガウス積分によって κ_{SHG} を簡単に計算することができる。ここからはその導出を行う。

κ_{SHG} の式(2.45)中に現れる \mathbf{E} は式(2.31)より導波路に垂直な成分(E_x, E_y)のみである。チャネル導波路の導波モードの電界は E_x, E_y のうちどちらかの値がもう一方の値に比べて非常に大きくなるため、ここからは電界をスカラーで近似する。規格化モード電界 $E_\omega, E_{2\omega}$ は規格化されていないモード電界 $e_\omega, e_{2\omega}$ と規格化定数 $C_\omega, C_{2\omega}$ により

$$E_\omega(x, y) = C_\omega e_\omega(x, y) \quad (2.53)$$

$$E_{2\omega}(x, y) = C_{2\omega} e_{2\omega}(x, y) \quad (2.54)$$

と書ける。電界は式(2.27)により規格化されているため、規格化定数は

$$C_\omega = \left[\frac{\beta_\omega}{2\omega\mu_0} \iint |e_\omega|^2 dx dy \right]^{-\frac{1}{2}}, \quad C_{2\omega} = \left[\frac{\beta_{2\omega}}{2(2\omega)\mu_0} \iint |e_{2\omega}|^2 dx dy \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (2.55)$$

と計算できる。これらを式(2.45)に代入することで

$$\kappa_{\text{SHG}} = \varepsilon_0 \sqrt{\frac{2\omega^2}{(N_\omega)^2 N_{2\omega}} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{d_{\text{eff}}^2}{S_{\text{eff}}}}, \quad (2.56)$$

$$d_{\text{eff}} = \frac{\sqrt{S_{\text{eff}}} \iint [e_{2\omega}]^* d_q [e_\omega]^2 dx dy}{\sqrt{\iint |e_{2\omega}|^2 dx dy} \sqrt{\iint |e_\omega|^2 dx dy}} \quad (2.57)$$

が得られる。ここで、 μ_0, ε_0 はそれぞれ真空中の透磁率、誘電率である。 d_{33} を用いる 1 次 QPM で $a = 0.5$ の場合、 d_{eff} は式(2.37)で表される d_q を式(2.57)に代入することでより $d_{\text{eff}} = (2/\pi)d_{33}$ と書ける。

S_{eff} は実効断面積で励起光と SH 光の電界分布の重なりを表しており、

$$S_{\text{eff}} = \frac{\iint |e_{2\omega}|^2 dx dy [\iint |e_\omega|^2 dx dy]^2}{[\iint [e_{2\omega}]^* [e_\omega]^2 dx dy]^2} \quad (2.58)$$

となる。励起光、SH 光の電界分布が伝搬方向 (z 方向) には依存せず、 x, y 方向において Gaussian 分布を仮定すると、電界 e は

$$e(x, y) = c \exp \left[-\left(\frac{2x}{W_x} \right)^2 \right] \exp \left[-\left(\frac{2y}{W_y} \right)^2 \right] \quad (2.59)$$

と表される。ここで、 W_x, W_y はそれぞれビームの x 方向、 y 方向の $1/e^2$ 全幅を表し、 c は比例定数である。励起光と SH 光の中心位置が同じとき、式(2.59)を式(2.58)に代入することで実効断面積は

$$S_{\text{eff}} = \frac{\pi}{32} \left[\frac{(W_x^\omega)^2 + 2(W_x^{2\omega})^2}{W_x^{2\omega}} \right] \left[\frac{(W_y^\omega)^2 + 2(W_y^{2\omega})^2}{W_y^{2\omega}} \right] \quad (2.60)$$

となる。励起光の x 方向と y 方向の $1/e^2$ 半径をそれぞれ w_{x0} 、 w_{y0} とおき、バルクデバイスのように SH 光の横モード直径が励起光の横モード直径の $1/\sqrt{2}$ であると仮定すると (つまり、 $W_x^\omega = \sqrt{2}W_x^{2\omega} = 2w_{x0}$ 、 $W_y^\omega = \sqrt{2}W_y^{2\omega} = 2w_{y0}$ とおくと)、実効断面積は

$$S_{\text{eff}} = \pi w_{x0} w_{y0} \quad (2.61)$$

と計算できる。

次に SFG について考える。角周波数の異なる 2 つの光 (ω_1, ω_2) が非線形媒質に同時に入射したとき、2 次の非線形効果によりその 2 つの角周波数の和の角周波数 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ の電界が生じる。つまり、非線形媒質中にはこれら 3 つの角周波数を持つ光が存在する。よって、電界と分極は

$$\mathbf{E}(t) = \text{Re}\{\mathbf{E}_1 \exp(j\omega_1 t) + \mathbf{E}_2 \exp(j\omega_2 t) + \mathbf{E}_3 \exp(j\omega_3 t)\} \quad (2.62)$$

$$\mathbf{P}(t) = \text{Re}\{\mathbf{P}_1 \exp(j\omega_1 t) + \mathbf{P}_2 \exp(j\omega_2 t) + \mathbf{P}_3 \exp(j\omega_3 t)\} \quad (2.63)$$

と表される。ただし、 $\mathbf{E}_1, \mathbf{E}_2, \mathbf{E}_3, \mathbf{P}_1, \mathbf{P}_2, \mathbf{P}_3$ はそれぞれの角周波数を持つ電界と分極の複素数表現である。これらを式(2.5)に代入し、式(2.11)を用いると

$$\mathbf{P}_1 = 2\varepsilon_0 d \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_2^*, \quad \mathbf{P}_2 = 2\varepsilon_0 d \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_1^*, \quad \mathbf{P}_3 = 2\varepsilon_0 d \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2 \quad (2.64)$$

となる。ここで、 $\chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2)/2 = d$ とした。SHG と同様に CW での波長変換ではそれぞれの角周波数においてそれぞれ 1 つのモードのみが存在していると仮定してよい。ため、式(2.32)のように規格化電界と伝搬定数を用いて電界を表現すると、

$$\mathbf{E}_1(x, y, z) = A_1(z) \mathbf{E}_1(x, y) \exp(-j\beta_1 z), \quad (2.65)$$

$$\mathbf{E}_2(x, y, z) = A_2(z) \mathbf{E}_2(x, y) \exp(-j\beta_2 z), \quad (2.66)$$

$$\mathbf{E}_3(x, y, z) = A_3(z) \mathbf{E}_3(x, y) \exp(-j\beta_3 z) \quad (2.67)$$

と書ける。ここで、 $A_1(z), A_2(z), A_3(z)$ は電界振幅である。SHG のときと同様に 1 次 QPM での分極反転周期 Λ_{SFG} を求めると、

$$\Lambda_{\text{SFG}} = \left[\frac{N_3}{\lambda_3} - \left(\frac{N_1}{\lambda_1} + \frac{N_2}{\lambda_2} \right) \right]^{-1} \quad (2.68)$$

となる。励起光と SH 光を用いた SFG の場合 $\omega_1 = \omega, \omega_2 = 2\omega, \omega_3 = 3\omega$ となるため、式(2.68)は

$$\Lambda_{\text{SFG}} = \frac{\lambda_\omega}{3N_{3\omega} - 2N_{2\omega} - N_\omega} \quad (2.69)$$

と書ける。よって、伝搬定数とグレーティングベクトルの関係は

$$\beta_\omega + \beta_{2\omega} + qK = \beta_{3\omega} \quad (2.70)$$

となる。図 2.6 に 1 次 QPM での SFG の位相整合時の波動ベクトルダイアグラムを示す。

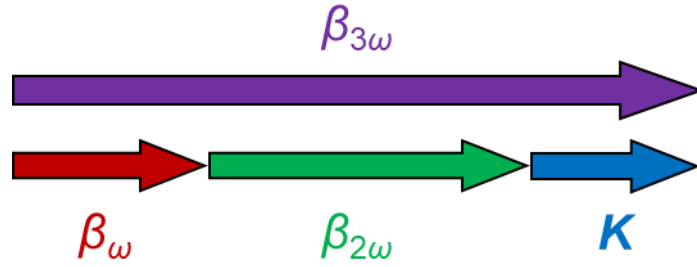


図 2.6 1 次 QPM での位相整合時の SFG の波動ベクトルダイアグラム

式(2.65)–(2.67)を式(2.17),(2.18)に代入し、その結果を式(2.34)に代入すると、

$$\frac{d}{dz}A_1(z) = -j\kappa_1 A_3(z)A_2(z)^* \exp[-j(2\Delta_{\text{SFG}})z], \quad (2.71)$$

$$\frac{d}{dz}A_2(z) = -j\kappa_2 A_3(z)A_1(z)^* \exp[-j(2\Delta_{\text{SFG}})z], \quad (2.72)$$

$$\frac{d}{dz}A_3(z) = -j\kappa_3 A_1(z)A_2(z) \exp[+j(2\Delta_{\text{SFG}})z], \quad (2.73)$$

$$2\Delta_{\text{SFG}} = \beta_3 - (\beta_1 + \beta_2 + qK), \quad (2.74)$$

となる。ここで、 Δ_{SFG} は SFG における位相不整合量である。結合係数は

$$\kappa_1 = \frac{\omega_1 \epsilon_0}{2} \iint [E_1(x, y)]^* d_q(x, y) E_3(x, y) [E_2(x, y)]^* dx dy, \quad (2.75)$$

$$\kappa_2 = \frac{\omega_2 \epsilon_0}{2} \iint [E_2(x, y)]^* d_q(x, y) E_3(x, y) [E_1(x, y)]^* dx dy, \quad (2.76)$$

$$\kappa_3 = \frac{\omega_3 \epsilon_0}{2} \iint [E_3(x, y)]^* d_q(x, y) E_2(x, y) E_1(x, y) dx dy \quad (2.77)$$

となる。なお、固有置換対称性を用いることで、これらの結合係数間には

$$\frac{\kappa_1}{\omega_1} = \frac{\kappa_2}{\omega_2} = \frac{\kappa_3^*}{\omega_3} \quad (2.78)$$

という関係が成り立つ。

式(2.71)–(2.73)を解くことで、SFG 効率を理論的に求めることができる。 $z=0$ で電界振幅が A_{10} の角周波数 ω_1 の励起光と電界振幅が A_{20} の角周波数 ω_2 の励起光をデバイスに入射させるとき、境界条件は

$$A_1(0) = A_{10}, \quad A_2(0) = A_{20}, \quad A_3(0) = 0 \quad (2.79)$$

である。励起光のうち、 $|A_2(z)|$ に比べて $|A_1(z)|$ が大きく、 $A_1(z)$ の増減が $|A_1(z)|$ に対して無視できる、つまり $A_1(z) \cong A_{10}$ という NPDA を用いると、式(2.71)–(2.73)は

$$A_1(z) \cong A_{10}, \quad (2.80)$$

$$\frac{d}{dz}A_2(z) \cong -j\kappa_2 A_{10}^* A_3(z) \exp[-j(2\Delta_{\text{SFG}})z], \quad (2.81)$$

$$\frac{d}{dz} A_3(z) \cong -j\kappa_3 A_{10} A_2(z) \exp[+j(2\Delta_{\text{SFG}})z] \quad (2.82)$$

と書くことができる。式(2.81),(2.82)は線形微分方程式であり、式(2.79)の境界条件と式(2.78)の関係をを用いることで以下のように解くことができる。

$$A_2(z) \cong A_{20} \exp(-j\Delta_{\text{SFG}}z) \times \left[\cos\left(\sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_3} \kappa^2 P_{10} + \Delta_{\text{SFG}}^2} z\right) + \frac{j\Delta}{\sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_3} \kappa^2 P_{10} + \Delta_{\text{SFG}}^2}} \sin\left(\sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_3} \kappa^2 P_{10} + \Delta_{\text{SFG}}^2} z\right) \right] \quad (2.83)$$

$$A_3(z) \cong A_{20} \exp(+j\Delta_{\text{SFG}}z) \times \frac{-j\kappa A_{10}}{\sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_3} \kappa^2 P_{10} + \Delta_{\text{SFG}}^2}} \sin\left(\sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_3} \kappa^2 P_{10} + \Delta_{\text{SFG}}^2} z\right) \quad (2.84)$$

ここで、 $P_{10} = |A_{10}|^2$ は励起光パワーを示している。なお、 κ_3 を κ_{SFG} とし、さらに損失は無いとすると、 κ_{SFG} は実数である。式(2.83),(2.84)より、相互作用長を L としたときのこれら3つの光の出力パワーは

$$P_1(L) = |A_1(L)|^2 = P_{10} - \frac{\omega_1}{\omega_3} P_3(L), \quad (2.85)$$

$$P_2(L) = |A_2(L)|^2 = P_{20} - \frac{\omega_2}{\omega_3} P_3(L), \quad (2.86)$$

$$P_3(L) = |A_3(L)|^2 = P_{10} P_{20} \kappa_{\text{SFG}}^2 L^2 \left\{ \frac{\sin\left(\sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_3} \kappa_{\text{SFG}}^2 P_{10} + \Delta_{\text{SFG}}^2} L\right)}{\sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_3} \kappa_{\text{SFG}}^2 P_{10} + \Delta_{\text{SFG}}^2} L} \right\}^2 \quad (2.87)$$

となる。ここで、 $P_{20} = |A_{20}|^2$ は角周波数 ω_2 の入射パワーを示している。なお、式(2.86)を得るために、式(2.71)–(2.73)と式(2.78)を用いて出てくる Manley-Rowe の関係⁴を用いた。Manley-Rowe の関係は、エネルギー保存則が満たされるように ω_1 と ω_2 の光子1つずつから ω_3 の光子が1つ生成されることを表しており

$$\frac{d}{dz} \left(\frac{|A_1(z)|^2}{\omega_1} + \frac{|A_3(z)|^2}{\omega_3} \right) = 0, \quad \frac{d}{dz} \left(\frac{|A_2(z)|^2}{\omega_2} + \frac{|A_3(z)|^2}{\omega_3} \right) = 0 \quad (2.88)$$

と表される。

位相整合時($\Delta_{\text{SFG}} = 0$)、式(2.87)は

$$P_3(L) = \frac{\omega_3}{\omega_2} P_{20} \sin^2 \left(\kappa_{\text{SFG}} \sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_3}} P_{10} L \right) \quad (2.89)$$

となる。SF パワーはデバイス長 L に依存して周期関数になっている。これは、SFGにより角周波数 ω_2 の光パワーが全て角周波数 ω_3 の光に移った後、 $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ のDFG

が起るためである。 $\kappa_{\text{SFG}}\sqrt{(\omega_2/\omega_3)P_{10}}L$ が小さいとき、式(2.89)はさらに簡略化され

$$P_3(L) = P_{10}P_{20}\kappa_{\text{SFG}}^2L^2 \quad (2.90)$$

となる。これを用いると、規格化変換効率は

$$\eta_{\text{norm}} = \frac{P_3(L)}{P_{10}P_{20}} = \kappa_{\text{SFG}}^2L^2 \quad (2.91)$$

となる。

SFG の場合も SHG と同様に横モードは Gaussian 分布を仮定し、 κ の計算を行う。規格化モード電界 $E_\omega, E_{2\omega}, E_{3\omega}$ は規格化されていないモード電界 $e_\omega, e_{2\omega}, e_{3\omega}$ と規格化定数 $C_\omega, C_{2\omega}, C_{3\omega}$ により

$$E_\omega(x, y) = C_\omega e_\omega(x, y) \quad (2.92)$$

$$E_{2\omega}(x, y) = C_{2\omega} e_{2\omega}(x, y) \quad (2.93)$$

$$E_{3\omega}(x, y) = C_{3\omega} e_{3\omega}(x, y) \quad (2.94)$$

と書ける。電界は式(2.27)により規格化されているため、規格化定数は

$$C_\omega = \left[\frac{\beta_\omega}{2\omega\mu_0} \iint |e_\omega|^2 dx dy \right]^{-\frac{1}{2}}, \quad C_{2\omega} = \left[\frac{\beta_{2\omega}}{2(2\omega)\mu_0} \iint |e_{2\omega}|^2 dx dy \right]^{-\frac{1}{2}},$$

$$C_{3\omega} = \left[\frac{\beta_{3\omega}}{2(3\omega)\mu_0} \iint |e_{3\omega}|^2 dx dy \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (2.95)$$

と計算できる。これらを式(2.77)に代入することで

$$\kappa_{\text{SFG}} = \varepsilon_0 \sqrt{\frac{18\omega^2}{N_\omega N_{2\omega} N_{3\omega}} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{(d'_{\text{eff}})^2}{S'_{\text{eff}}}}, \quad (2.96)$$

$$d'_{\text{eff}} = \frac{\iint [e_{3\omega}]^* d_q e_{2\omega} e_\omega dx dy}{\iint [e_{3\omega}]^* e_{2\omega} e_\omega dx dy}, \quad (2.97)$$

$$S'_{\text{eff}} = \frac{\iint |e_{3\omega}|^2 dx dy \iint |e_{2\omega}|^2 dx dy \iint |e_\omega|^2 dx dy}{[\iint [e_{3\omega}]^* e_{2\omega} e_\omega dx dy]^2} \quad (2.98)$$

となる。

モード電界分布 e が伝搬方向(z 方向)には依存せず、 x, y 方向に Gaussian 分布すると仮定すると、実効断面積 S'_{eff} は

$$S'_{\text{eff}} = \frac{\pi}{32} \left[\frac{(W_x^{3\omega} W_x^{2\omega})^2 + (W_x^{2\omega} W_x^\omega)^2 + (W_x^\omega W_x^{3\omega})^2}{W_x^{3\omega} W_x^{2\omega} W_x^\omega} \right]$$

$$\left[\frac{(W_y^{3\omega} W_y^{2\omega})^2 + (W_y^{2\omega} W_y^\omega)^2 + (W_y^\omega W_y^{3\omega})^2}{W_y^{3\omega} W_y^{2\omega} W_y^\omega} \right] \quad (2.99)$$

となる。なお、全てのモードの電界の中心位置が一致していると仮定した。ここで、バルクデバイスのように $W_x^\omega = \sqrt{2}W_x^{2\omega} = \sqrt{3}W_x^{3\omega} = 2w_{x0}$, $W_y^\omega = \sqrt{2}W_y^{2\omega} = \sqrt{3}W_y^{3\omega} =$

$2w_{y0}$ とおくと

$$S'_{\text{eff}} = \frac{3}{4}\pi w_{x0}w_{y0} \quad (2.100)$$

と書ける。

考えている波長域において非線形光学テンソルの波長分散が小さいと仮定する。また、 $\omega_1 \approx \omega$, $\omega_2 \approx 2\omega$, $\omega_3 \approx 3\omega$ を満たすとき、式(2.57),(2.96)より

$$\kappa_{\text{SFG}} \approx 2 \sqrt{\frac{3N\omega}{N^{3\omega}}} \kappa_{\text{SHG}} \quad (2.101)$$

となる。

2.5 スクイーズド光発生⁶

本論文の第5章では高効率スクイーズド光発生に向けた MgO:CLN/GaN 横型 QPM デバイスについて述べる。本節ではまず量子化された電界の揺らぎの大きさを生成消滅演算子の揺らぎを用いて表現する。次に、生成消滅演算子によりコヒーレント状態とスクイーズド状態を定義し、それらの量子揺らぎを確認する。次に、縮退 OPDC により発生した光がスクイーズド状態となることを述べる。最後に損失を考慮した縮退 OPDC によるスクイーズド光発生について述べる。なお、本節では虚数単位として量子論にてよく使われる i を用いる。これまで用いてきた工学でよく用いられる j とは $i = -j$ の関係がある。

調和振動子のエネルギーの量子化と同様に、ある体積中に存在するレーザ光のエネルギーを量子化することで電界の量子化を行うことができる。導波路中を $+z$ 方向に伝搬定数 β_ω で伝搬している角周波数 ω のレーザ光の規格化電界 $E(t)$ は規格化複素電界振幅 a を用いて、

$$\begin{aligned} E(t) &= \text{Re}[a \exp\{i(\beta_\omega z - \omega t)\}] \\ &= \frac{1}{2} [a \exp\{i(\beta_\omega z - \omega t)\} + a^* \exp\{-i(\beta_\omega z - \omega t)\}] \end{aligned} \quad (2.102)$$

ここでの規格化は式(2.27)とは異なり、長さ L_Q の導波路中にエネルギー $\hbar\omega(aa^* + a^*a)/2$ が存在するという規格化である。なお、 \hbar は Dirac 定数である。エネルギーはパワー×時間である。電磁波のパワーは Poynting ベクトルによって表され、屈折率 n を感じるモードが長さ L_Q だけ進むのにかかる時間は光速を c とすると nL_Q/c だから、

$$\int_0^{\frac{nL_Q}{c}} \frac{1}{2} \iint [\mathbf{E}_t \times \mathbf{H}_t]_z dx dy dt = \frac{\hbar\omega}{2} (aa^* + a^*a) \quad (2.103)$$

である。ここで右辺の \mathbf{E}_t と \mathbf{H}_t はそれぞれ規格化されていない電界と磁界である。なお、式(2.32),(2.33)を式(2.103)に代入し式(2.27)の規格化条件を用いることで、2.4 節まで出てきた電界振幅 A と本節で出てきた規格化複素電界振幅 a の間に

$$A = \sqrt{\frac{\hbar\omega c}{nL_Q}} a \quad (2.104)$$

という関係があることが分かる。ここで、規格化複素振幅 a, a^* を消滅生成演算子 \hat{a}, \hat{a}^\dagger で置き換えることにより量子化を行う。なお、この量子化は調和振動子のエネルギーの量子化からの類推である。このとき消滅生成演算子 \hat{a}, \hat{a}^\dagger は

$$[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1 \quad (2.105)$$

という交換関係を満たす。このとき、式(2.103)は

$$\int_0^{\frac{nL_Q}{c}} \frac{1}{2} \iint [\mathbf{E}_t \times \mathbf{H}_t]_z dx dy dt = \hbar\omega \left(\hat{N} + \frac{1}{2} \right), \quad \hat{N} = \hat{a}^\dagger \hat{a} \quad (2.106)$$

となる。 \hat{N} は数演算子であり、式(2.103)は長さ L_Q の導波路中に光子 N 個分のエネルギーが存在するという規格化を行っていたことが分かる。また、量子化された電界の演算子 $\hat{E}(t)$ は式(2.102)より

$$\hat{E}(t) = \frac{1}{2} [\hat{a} \exp\{i(\beta_\omega z - \omega t)\} + \hat{a}^\dagger \exp\{-i(\beta_\omega z - \omega t)\}] \quad (2.107)$$

と書ける。電界の量子揺らぎ $\Delta\hat{E}(t) = \hat{E}(t) - \langle\hat{E}(t)\rangle$ の分散 $\langle\Delta\hat{E}(t)^2\rangle$ は $\Delta\hat{a} = \hat{a} - \langle\hat{a}\rangle$ と $\Delta\hat{a}^\dagger = \hat{a}^\dagger - \langle\hat{a}^\dagger\rangle$ を用いて

$$\begin{aligned} \langle\Delta\hat{E}(t)^2\rangle &= \frac{1}{4} \{ \langle\Delta\hat{a}\Delta\hat{a}\rangle e^{-2i(\beta_\omega z - \omega t)} + \langle\Delta\hat{a}\Delta\hat{a}^\dagger\rangle + \langle\Delta\hat{a}^\dagger\Delta\hat{a}\rangle + \langle\Delta\hat{a}^\dagger\Delta\hat{a}^\dagger\rangle e^{2i(\beta_\omega z - \omega t)} \} \quad (2.108) \end{aligned}$$

となる。

まずはコヒーレント状態について述べる。消滅演算子 \hat{a} の固有値と固有状態をそれぞれ $\alpha, |\alpha\rangle$ とする。

$$\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle, \quad \langle\alpha|\hat{a}^\dagger = \langle\alpha|\alpha^* \quad (2.109)$$

このとき $|\alpha\rangle$ をコヒーレント状態という。式(2.107),(2.109)よりコヒーレント状態における電界の期待値は

$$\begin{aligned} \langle\alpha|\hat{E}(t)|\alpha\rangle &= \frac{1}{2} [\alpha \exp\{i(\beta_\omega z - \omega t)\} + \alpha^* \exp\{-i(\beta_\omega z - \omega t)\}] \\ &= \text{Re}[\alpha \exp\{i(\beta_\omega z - \omega t)\}] \quad (2.110) \end{aligned}$$

となる。これは角周波数 ω のレーザ光の電界と一致する。また、電界の量子化の過程からもわかる通り、単一角周波数のレーザ光はコヒーレント光とも呼ばれる。

消滅生成演算子の量子揺らぎ $\Delta\hat{a} = \hat{a} - \langle\hat{a}\rangle, \Delta\hat{a}^\dagger = \hat{a}^\dagger - \langle\hat{a}^\dagger\rangle$ と式(2.109)を用いるとコ

ヒーレント状態において

$$\begin{aligned}\langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a} \rangle &= 0, & \langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a}^\dagger \rangle &= 1, \\ \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a} \rangle &= 0, & \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a}^\dagger \rangle &= 0\end{aligned}\quad (2.111)$$

と計算できる。式(2.111)を式(2.108)に代入することで、コヒーレント状態における電界の量子揺らぎの分散 $\langle \Delta \hat{E}(t)^2 \rangle$ は

$$\langle \Delta \hat{E}(t)^2 \rangle = \frac{1}{4} \quad (2.112)$$

となる。よってコヒーレント状態における電界の揺らぎの分散は時間に依存せず一定である(図 2.7(a))。この値を標準量子限界 (standard quantum limit, SQL) という。

次にスクイーズド状態について述べる。実数 s ($s \geq 0$) を導入して以下の消滅生成演算子の線形結合を考える。

$$\begin{aligned}\hat{b} &= \mu \hat{a} + \nu \hat{a}^\dagger, & \hat{b}^\dagger &= \mu^* \hat{a}^\dagger + \nu^* \hat{a}, \\ \mu &= \cosh s, & \nu &= \exp(i\Psi) \sinh s\end{aligned}\quad (2.113)$$

\hat{b} 、 \hat{b}^\dagger の交換関係は式(2.105)を用いることで

$$[b, b^\dagger] = 1 \quad (2.114)$$

となり、消滅生成演算子と同じ交換関係を満たす。 b の固有値と固有状態をそれぞれ β 、 $|\beta\rangle$ とする。なお、この β は伝搬定数 β_ω とは全く無関係の変数である。

$$b|\beta\rangle = \beta|\beta\rangle \quad (2.115)$$

このとき、 $|\beta\rangle$ をスクイーズド状態という。式(2.107)、(2.113)よりスクイーズド状態における電界の期待値は

$$\begin{aligned}\langle \beta | \hat{E}(t) | \beta \rangle &= \frac{1}{2} [\langle \beta | \hat{a} | \beta \rangle \exp\{i(\beta_\omega z - \omega t)\} + \langle \beta | \hat{a}^\dagger | \beta \rangle \exp\{-i(\beta_\omega z - \omega t)\}] \\ &= \frac{1}{2} [\alpha \exp\{i(\beta_\omega z - \omega t)\} + \alpha^* \exp\{-i(\beta_\omega z - \omega t)\}] \\ &= \text{Re}[\alpha \exp\{i(\beta_\omega z - \omega t)\}]\end{aligned}\quad (2.116)$$

となる。よってスクイーズド状態における電界の期待値はコヒーレント状態と同じである。

式(2.113)を用いるとスクイーズド状態において

$$\begin{aligned}\langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a} \rangle &= -\frac{1}{2} \exp(i\Psi) \sinh 2s, & \langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a}^\dagger \rangle &= \cosh^2 s, \\ \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a} \rangle &= \sinh^2 s, & \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a}^\dagger \rangle &= -\frac{1}{2} \exp(-i\Psi) \sinh 2s\end{aligned}\quad (2.117)$$

と計算できる。式(2.117)を式(2.108)に代入することで、スクイーズド状態における電界の量子揺らぎの分散 $\langle \Delta \hat{E}(t)^2 \rangle$ は

$$\langle \Delta E(t)^2 \rangle = \frac{1}{4} \{ \cosh 2s - \cos(\Psi + \beta_\omega z - 2\omega t) \sinh 2s \} \quad (2.118)$$

となる。よって、スクイーズド状態における電界の量子揺らぎの分散は時間 t と伝搬方

向の位置 z に依存する。式(2.116),(2.118)から $z = 2\pi m/\beta_\omega$ ($m \in \mathbb{Z}$) のときの $\Psi = 0$ と $\Psi = \pi$ での電界とその量子揺らぎの時間依存性を図 2.7(b),(c)に示す。図 2.7 からわかるように $\Psi = 0$ では電界の振幅の量子揺らぎが圧搾されており、 $\Psi = \pi$ では電界の位相の量子揺らぎが圧搾されている。 Ψ は実験上任意に変更することができるためここからは $\Psi = 0$ と仮定する。量子揺らぎの最小値は $\beta_\omega z - 2\omega t = 2\pi m$ ($m \in \mathbb{Z}$) のとき

$$\begin{aligned}\langle \Delta E(t)^2 \rangle &= \frac{1}{4} \{ \langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a} \rangle + \langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a}^\dagger \rangle + \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a} \rangle + \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a}^\dagger \rangle \} \\ &= \frac{1}{4} \{ \cosh 2s - \sinh 2s \} = \frac{1}{4} \exp(-2s)\end{aligned}\quad (2.119)$$

となる。ここで $s \geq 0$ なのでスクイズド状態の電界の量子揺らぎの分散は SQL より小さくなっていることが分かる。最大値は $\beta_\omega z - 2\omega t = 2\pi(m+1)$ ($m \in \mathbb{Z}$) のとき

$$\begin{aligned}\langle \Delta E(t)^2 \rangle &= \frac{1}{4} \{ -\langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a} \rangle + \langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a}^\dagger \rangle + \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a} \rangle - \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a}^\dagger \rangle \} \\ &= \frac{1}{4} \{ \cosh 2s + \sinh 2s \} = \frac{1}{4} \exp(+2s)\end{aligned}\quad (2.120)$$

となる。量子揺らぎの最小値と最大値が SQL と比べてそれぞれ何倍になっているかをスクイーピングレベル S_- とアンチスクイーピングレベル S_+ と呼び、式(2.112)と式(2.119),(2.120)から

$$S_\pm = \exp(\pm 2s) \quad (2.121)$$

と計算できる。

また、消滅演算子の量子揺らぎの実数成分と虚数成分をそれぞれ $\Delta \hat{X}$ 、 $\Delta \hat{Y}$ で表すと ($\Delta \hat{a} = \Delta \hat{X} + i\Delta \hat{Y}$ 、 $\Delta \hat{a}^\dagger = \Delta \hat{X} - i\Delta \hat{Y}$)、

$$\langle \Delta \hat{X}^2 \rangle = \frac{1}{4} \{ \langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a} \rangle + \langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a}^\dagger \rangle + \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a} \rangle + \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a}^\dagger \rangle \}, \quad (2.122)$$

$$\langle \Delta \hat{Y}^2 \rangle = \frac{1}{4} \{ -\langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a} \rangle + \langle \Delta \hat{a} \Delta \hat{a}^\dagger \rangle + \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a} \rangle - \langle \Delta \hat{a}^\dagger \Delta \hat{a}^\dagger \rangle \} \quad (2.123)$$

となる。式(2.119),(2.120)と式(2.112)からわかる通り、コヒーレント状態の消滅演算子の量子揺らぎの実数成分と虚数成分をそれぞれ $\langle \Delta \hat{x}^2 \rangle$ と $\langle \Delta \hat{y}^2 \rangle$ とすると、

$$S_- = \frac{\langle \Delta \hat{X}^2 \rangle}{\langle \Delta \hat{x}^2 \rangle}, \quad S_+ = \frac{\langle \Delta \hat{Y}^2 \rangle}{\langle \Delta \hat{y}^2 \rangle} \quad (2.124)$$

となる。

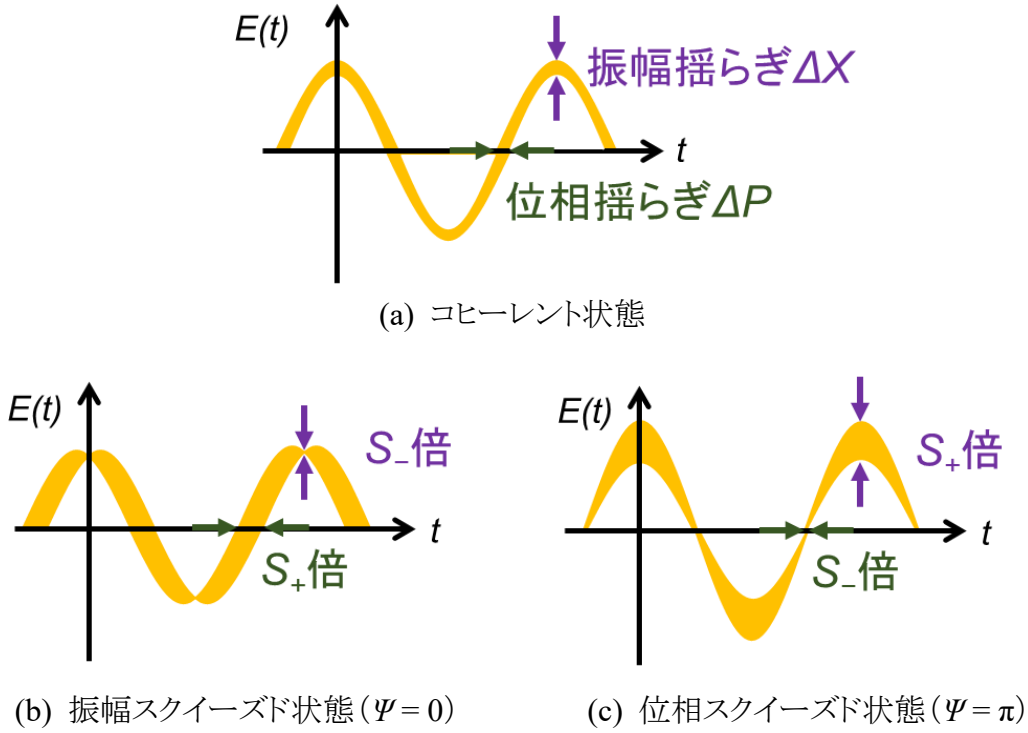


図 2.7 コヒーレント状態とスクイズド状態の電界の時間依存性

ここまででスクイズド状態を定義してその特徴を見た。次に縮退 OPDC によってスクイズド光が生成されることを確認する。損失の無い非線形媒質内に角周波数 ω と角周波数 2ω の 2 種類の光が存在するときを考える。規格化複素電界振幅 a_ω 、 $a_{2\omega}$ は式(2.34)のモード結合方程式を満たす。

$$\frac{d}{dz} a_\omega(z) = iK^* a_\omega^*(z) a_{2\omega}(z), \quad (2.125)$$

$$\frac{d}{dz} a_{2\omega}(z) = \frac{1}{2} iK [a_\omega(z)]^2 \quad (2.126)$$

ここで、簡単のため位相不整合量は 0 とした。また、 K は光子数で規格化を行った非線形結合係数で式(2.104)より $K = \kappa_{\text{SHG}} (\hbar 2\omega c / nLQ)^{-1/2}$ となる。 κ_{SHG} は式(2.45)で表される。式(2.126)で 1/2 の係数がついている理由は式(2.47)ではパワーで規格化した電界振幅を用いているのに対して、式(2.126)では光子数で規格化した複素電界振幅を用いているためである。また、一般性を失わずにこれより iK を正の実数として議論する。このモード結合方程式に量子揺らぎを導入する。複素電界振幅の量子揺らぎを Δa_ω 、 $\Delta a_{2\omega}$ とすると、量子揺らぎを導入した複素電界振幅は $a_\omega + \Delta a_\omega$ 、 $a_{2\omega} + \Delta a_{2\omega}$ と書ける。この複素電界振幅もモード結合方程式を満たすため、複素電界振幅の量子揺らぎに対して

$$\frac{d}{dz} \Delta a_\omega(z) = iK^* a_{2\omega}(z) \Delta a_\omega^*(z) \quad (2.127)$$

$$\frac{d}{dz} \Delta a_{2\omega}(z) = iK a_\omega(z) \Delta a_\omega(z) \quad (2.128)$$

となる。ここで、一般に縮退 OPDC において角周波数 2ω の励起光のパワーは量子揺らぎより十分に大きく古典的な電磁波として近似できるため $a_{2\omega} + \Delta a_{2\omega} = a_{2\omega}$ とした。縮退 OPDC を考えているため境界条件を $a_\omega(0) = 0$ 、 $a_{2\omega}(0) = a_{p0}$ として式(2.125),(2.126)を解くと

$$a_\omega(z) = 0, \quad a_{2\omega}(z) = a_{p0} \quad (2.129)$$

となり、角周波数 2ω の励起光は角周波数 ω の光を生成せずに非線形媒質内を伝搬していきことが分かる。また、量子揺らぎについて議論するために式(2.127),(2.128)において $a_{2\omega}(z) = a_{p0}$ ($a_{p0} \in \mathbb{Z}$) とし、 $a_\omega + \Delta a_\omega \rightarrow \hat{a}_\omega + \Delta \hat{a}_\omega$ と置き換えた後 $\Delta \hat{a}_\omega = \Delta \hat{X} + i\Delta \hat{Y}$ 、 $\Delta \hat{a}_\omega^\dagger = \Delta \hat{X} - i\Delta \hat{Y}$ を代入すると

$$\frac{d}{dz} \Delta \hat{X}(z) = -|K| a_{p0} \Delta \hat{X}(z), \quad \frac{d}{dz} \Delta \hat{Y}(z) = +|K| a_{p0} \Delta \hat{Y}(z) \quad (2.130)$$

となる。相互作用長が L のときこれらの微分方程式を解くと、初期条件 $\Delta \hat{X}(0) = \Delta \hat{x}$ 、 $\Delta \hat{Y}(0) = \Delta \hat{y}$ より、

$$\Delta \hat{X} = \Delta \hat{x} \exp(-|K| a_{p0} z), \quad \Delta \hat{Y} = \Delta \hat{y} \exp(+|K| a_{p0} z) \quad (2.131)$$

と計算できる。よって、

$$S_- = \frac{\langle \Delta \hat{X}^2 \rangle}{\langle \Delta \hat{x}^2 \rangle} = \exp(-2|K| a_{p0} L), \quad S_+ = \frac{\langle \Delta \hat{Y}^2 \rangle}{\langle \Delta \hat{y}^2 \rangle} = \exp(+2|K| a_{p0} L) \quad (2.132)$$

となる。これはまさに式(2.121)において $s = |K| a_{p0} L = \kappa_{\text{SHG}} \sqrt{P_0} L$ (P_0 は励起光パワー) としたときと同じである。つまり、縮退 OPDC によってスクイーズド光を発生させることができる。

実際のデバイスでは吸収や散乱損失などをすべて含めた損失を考慮しなければならない。図 2.8 のように損失のある非線形媒質を l 個の長さ Δz の微小区間に分け、微小区間での導波路損失の分だけ位相変化のないビームスプリッタにより真空場が侵入していると考えerことで損失を考慮することができる⁵。まず、長さ Δz の損失の無い非線形媒質中で

$$a'_{p\,m-1} = a_{p\,m-1}, \quad (2.133)$$

$$\Delta \hat{X}'_{m-1} = \Delta \hat{X}_{m-1} \exp(-|K| a_{p\,m-1} \Delta z), \quad (2.134)$$

$$\Delta \hat{Y}'_{m-1} = \Delta \hat{Y}_{m-1} \exp(+|K| a_{p\,m-1} \Delta z) \quad (2.135)$$

という変換を受ける。ビームスプリッタでは入力 of 2 つのポートの消滅演算子を \hat{a}_{in0} 、 \hat{a}_{in1} 、ビームスプリッタの透過率と反射率をそれぞれ T 、 R とすると出力の消滅演算子 \hat{a}_{out} は

$$\hat{a}_{out} = \sqrt{T} \hat{a}_{in0} + \sqrt{R} \hat{a}_{in1} \quad (2.136)$$

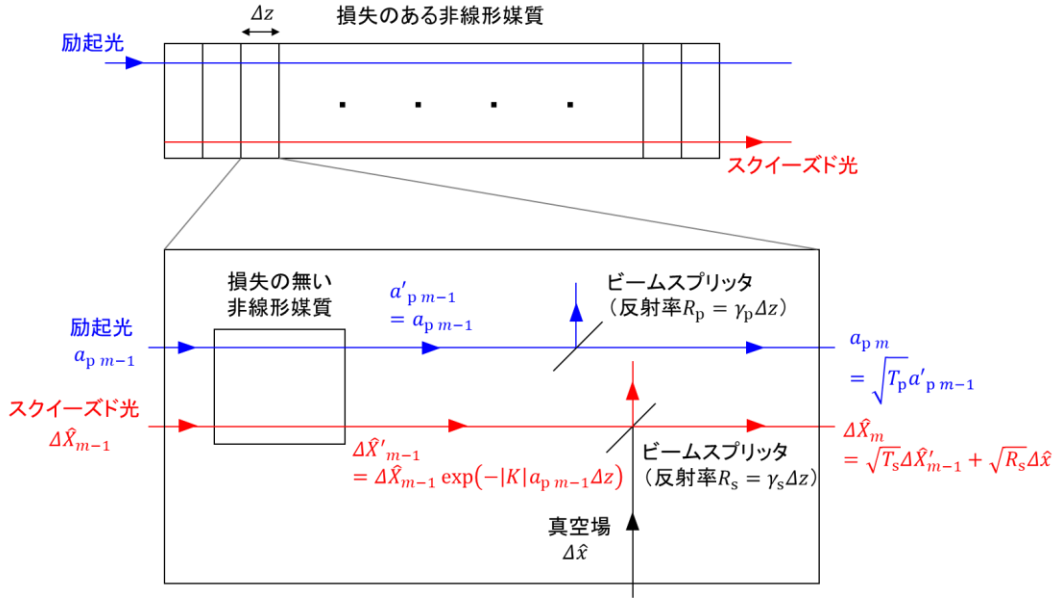


図 2.8 損失のある非線形媒質の計算モデル

となるため、 $a'_{p,m-1}$ 、 $\Delta X'_{m-1}$ 、 $\Delta Y'_{m-1}$ はビームスプリッタにて

$$a_{p,m} = \sqrt{T_p} a'_{p,m-1}, \quad (2.137)$$

$$\Delta X_m = \sqrt{T_s} \Delta X'_{m-1} + \sqrt{R_s} \Delta x, \quad (2.138)$$

$$\Delta Y_m = \sqrt{T_s} \Delta Y'_{m-1} + \sqrt{R_s} \Delta y \quad (2.139)$$

という変換を受ける。なお、 $a_{p,m}$ は古典近似されていることに注意されたい。ここで、 T_p 、 T_s 、 R_p 、 R_s はそれぞれ励起光とスクイズド光のビームスプリッタでの透過率と反射率であり、励起光とスクイズド光の導波路損失をそれぞれ γ_p 、 γ_s とすると

$$\begin{aligned} R_p &= \gamma_p \Delta z, & T_p &= 1 - R_p, \\ R_s &= \gamma_s \Delta z, & T_s &= 1 - R_s \end{aligned} \quad (2.140)$$

となる。式(2.134),(2.135),(2.138),(2.139)をまとめると、

$$\Delta X_m = \sqrt{T_s} \exp(-|K| a_{p,m-1} \Delta z) \Delta X'_{m-1} + \sqrt{R_s} \Delta x, \quad (2.141)$$

$$\Delta Y_m = \sqrt{T_s} \exp(+|K| a_{p,m-1} \Delta z) \Delta Y'_{m-1} + \sqrt{R_s} \Delta y \quad (2.142)$$

となる。よって、

$$\langle \Delta X_m^2 \rangle = T_s \exp(-|K| a_{p,m-1} \Delta z) \langle \Delta X_{m-1}^2 \rangle + R_s \langle \Delta x^2 \rangle, \quad (2.143)$$

$$\langle \Delta Y_m^2 \rangle = T_s \exp(+|K| a_{p,m-1} \Delta z) \langle \Delta Y_{m-1}^2 \rangle + R_s \langle \Delta y^2 \rangle \quad (2.144)$$

のように漸化式的に解くことができる。ここで、計算の途中に侵入してくる真空場と非線形媒質を通過してきた電界の演算子は交換するので $[\Delta X, \Delta x] = 0$ 、 $[\Delta Y, \Delta y] = 0$ 、つまり、 $\langle \Delta X \Delta x \rangle = 0$ 、 $\langle \Delta Y \Delta y \rangle = 0$ となることを用いた。また、初期条件は $a_{p,0} = a_{p0}$ 、 $\Delta X_0 = \Delta x$ 、 $\Delta Y_0 = \Delta y$ である。

バルク bow-tie 共振器等で励起光の損失が無視できるとき、式(2.143),(2.144)の漸化式は解析的に解くことができる。

$$\begin{aligned} \langle \Delta \hat{X}_m^2 \rangle &= T_s^m \exp(-|K|a_{p0}\Delta zm) \langle \Delta \hat{X}_0^2 \rangle \\ &+ \{1 - T_s^m \exp(-|K|a_{p0}\Delta zm)\} \frac{R}{1 - T_s \exp(-|K|a_{p0}\Delta z)} \langle \Delta \hat{x}^2 \rangle \end{aligned} \quad (2.145)$$

$$\begin{aligned} \langle \Delta \hat{Y}_m^2 \rangle &= T_s^m \exp(+|K|a_{p0}\Delta zm) \langle \Delta \hat{Y}_0^2 \rangle \\ &+ \{1 - T_s^m \exp(+|K|a_{p0}\Delta zm)\} \frac{R}{1 - T_s \exp(+|K|a_{p0}\Delta z)} \langle \Delta \hat{y}^2 \rangle \end{aligned} \quad (2.146)$$

相互作用長が $L (= L\Delta z)$ のとき、 $\Delta \hat{X}_0 = \Delta \hat{x}$ 、 $\Delta \hat{Y}_0 = \Delta \hat{y}$ と式(2.140)より S_{\pm} は

$$\begin{aligned} S_- &= \frac{\langle \Delta \hat{X}_l^2 \rangle}{\langle \Delta \hat{x}^2 \rangle} \\ &= \left\{ 1 - \frac{\gamma_s \Delta z}{1 - (1 - \gamma_s \Delta z) \exp(-2|K|a_{p0}\Delta z)} \right\} (1 - \gamma_s \Delta z)^{\frac{L}{\Delta z}} \exp(-2|K|a_{p0}L) \\ &\quad + \frac{\gamma_s \Delta z}{1 - (1 - \gamma_s \Delta z) \exp(-2|K|a_{p0}\Delta z)}, \end{aligned} \quad (2.147)$$

$$\begin{aligned} S_+ &= \frac{\langle \Delta \hat{Y}_l^2 \rangle}{\langle \Delta \hat{y}^2 \rangle} \\ &= \left\{ 1 - \frac{\gamma_s \Delta z}{1 - (1 - \gamma_s \Delta z) \exp(+2|K|a_{p0}\Delta z)} \right\} (1 - \gamma_s \Delta z)^{\frac{L}{\Delta z}} \exp(+2|K|a_{p0}L) \\ &\quad + \frac{\gamma_s \Delta z}{1 - (1 - \gamma_s \Delta z) \exp(+2|K|a_{p0}\Delta z)} \end{aligned} \quad (2.148)$$

と計算できる。 $\Delta z \rightarrow 0$ の極限を取ると、

$$S_- = \frac{\gamma_s + 2|K|a_{p0} \exp\{-(\gamma_s + 2|K|a_{p0})L\}}{\gamma_s + 2|K|a_{p0}}, \quad (2.149)$$

$$S_+ = \frac{\gamma_s - 2|K|a_{p0} \exp\{-(\gamma_s - 2|K|a_{p0})L\}}{\gamma_s - 2|K|a_{p0}} \quad (2.150)$$

となり、これは文献 5 での計算結果と一致する。更に、励起光の損失が無視できるとき、スクイージングレベル S は $L \rightarrow \infty$ において

$$S_- = \frac{\gamma_s}{\gamma_s + 2|K|a_{p0}} \quad (2.151)$$

と収束することが分かる。この状態はデバイスのゲインによるスクイージングレベルの向上と損失によるスクイージングレベルの悪化が釣り合っていると定性的に理解することができる。

シングルパスの導波路デバイス等で励起光、スクイズド光両方の損失が無視できないとき、式(2.143),(2.144)は解析的に解くことはできない。しかし、 Δz を十分小さい値にすることで数値的に解くことができる。本論文 5 章では、式(2.143),(2.144)を数値的に解き、スクイージングレベルの見積もりを行う。

2.6 まとめ

本章では、強誘電体波長変換デバイスの設計と解析に必要な理論をまとめた。まず、非線形分極について説明し、2 次の非線形光学テンソルを導出した。次に波長変換を含む異なるモード間の相互作用を記述するモード結合方程式について述べ、応用上重要な SHG と SFG の理論を説明した。最後にスクイーズド状態を定義し、縮退 OPDC によってスクイーズド光が発生できることを理論的に説明し、損失がある場合のスクイーピングレベルについて述べた。

参考文献

1. T. Suhara and M. Fujimura, *Waveguide Nonlinear-Optic Devices* (Springer, Berlin, 2003). Chap. 2.
2. D. A. Kleinman, Phys. Rev. **128**, 1761 (1962).
3. D. L. Lee, *Electromagnetic principles of integrated optics* (John Wiley & Sons, Inc. United States of America, 1986), Chap. 8.
4. T. Suhara and M. Fujimura, *Waveguide Nonlinear-Optic Devices* (Springer, Berlin, 2003), Chap. 3.
5. C. M. Caves and D. D. Crouch, J. Opt. Soc. Am. B **4**, 1535 (1987).
6. T. Suhara and M. Fujimura, *Waveguide Nonlinear-Optic Devices* (Springer, Berlin, 2003), Chap. 5.

第3章 定比組成 LiTaO₃ 擬似位相整合

アニールプロトン交換導波路の横モード拡大

3.1 はじめに

半導体産業のニーズの多様化による多品種少量生産に対応するためにレーザ直接描画装置の発展が望まれている。まずは i 線レジスト感光のために波長 350 nm 帯の高出力 CW レーザを開発することが目標である。波長 350 nm のレーザ光は YAG レーザの第三高調波によって達成できる。強誘電体導波路型波長変換デバイスはその非線形光学定数の高さからシングルパスで高効率な波長変換デバイスとして用いられてきた。しかし導波路の横モード直径が数 μm と小さいためレーザ直接描画装置のような高パワー用途には用いられてこなかった。横モード直径を数十 μm と従来の 10 倍程度に拡大することでワットクラスの高パワー領域においても高効率な波長変換デバイスとして用いることができる。この用な横モードサイズの大きな導波路として、横モード $1/e^2$ 直径 22 μm のフェムト秒レーザ直描導波路が報告されているが、コアとクラッドの屈折率差が大きくマルチモード導波路となってしまう。一方、APE 導波路は基板とコアの屈折率差が小さくグレーテッドインデックス型の導波路であるため大きな横モードの導波路においても高次モードが抑制されやすいことは第 1 章で述べたとおりである。横モードサイズの大きなシングルモード導波路型波長変換デバイスの第一歩として、本章ではまず MgO:SLT 上に一様な PP 構造の作製を行った。次に PP MgO:SLT 上の APE 導波路の横モード拡大を行った。最後に低パワー領域で SHG を行い、励起光と SH 光の横モードを確認し、変換効率を見積もった。

3.2 結晶の選定

まずは用いる強誘電体結晶の選定を行った。波長変換でよく用いられている強誘電体結晶として、第 1 章でも示したように MgO:CLN、MgO:SLN、MgO:CLT、MgO:SLT、KTP などがある。これらの光学特性を表 3.1 にまとめる。MgO:CLN や MgO:SLN の LN 結晶は非線形光学定数 d_{33} の値が 25.0 pm/V と強誘電体結晶の中でも高いため高効率波長変換デバイスとして用いられてきた¹⁾。バルク結晶を用いた CW 光の波長 532 nm の SHG にて出力 1.4 W を達成しており、導波路においてもストリップ導波路にて出力 400 mW を達成している^{2,3)}。しかし、高パワー密度領域では

表 3.1 代表的な強誘電体結晶の特性と波長変換実績

結晶	非線形光学定数 d_{33} (pm/V)	フォトリフラクティブ損傷閾値 @CW 532 nm (MW/cm ²)	GRIIRA @25 kW/cm ² ($\times 10^{-4}$ /cm)	熱伝導率 (W/(m·K))	バルク CW での 変換光出力(波長)
MgO:CLN	25.0 ¹	>2 ⁵	11 ¹⁰	4.63 ⁷	1.4 W (532 nm) ² 30 mW (355 nm) ⁸
MgO:SLN	25.0 ¹	>2 ⁵	6 ¹⁰	5.62 ⁷	N/A
MgO:CLT	13.8 ¹	N/A	N/A	N/A	8.5 W (532 nm) ⁹
MgO:SLT	13.8 ¹	>2 ⁵	None ¹⁰	8.43 ⁷	18.8 W (532 nm) ¹¹ 96 mW (355 nm) ¹²
KTP	13.7 ⁴	1.2 (常光) ⁶ 0.13 (異常光) ⁶	N/A	13	6.2 W (532 nm) ¹⁴

GRIIRA が起こってしまうことによって波長変換効率が下がってしまう¹。また、高パワーレーザを照射することによりデバイスの温度が上昇して熱光学効果により屈折率に変化してしまうという問題もある。通常、高パワー波長変換時にはデバイスを空冷や水冷しながら用いるが、結晶の熱伝導率が低いと冷却が間に合わない。レーザ照射時の温度上昇の主な理由は GRIIRA であると考えられており¹、MgO:CLN は熱伝導率も 4.63 W/(m·K) と低いためワットクラスの高パワー領域で用いることは難しい⁷。また、バルク結晶を用いた CW 光の波長 355 nm の SFG にも成功しているが、光吸収によるデバイス内の光軸方向の温度勾配により位相整合条件がデバイス一部のみでしか満たされないため出力は 30 mW にとどまっている⁸。

MgO:CLT や MgO:SLT の LT 結晶は非線形光学定数が 13.8 pm/V と LN や KTP に比べて低いが、GRIIRA が非常に小さいといった利点がある^{1,10}。さらに、熱伝導率も 8.43 W/(m·K) であり、MgO:CLN の 2 倍程度である⁷。このような特徴から高パワー領域では、特に MgO:SLT を用いた波長変換デバイスは研究が進んでいる。バルク結晶を用いた CW 光の波長 532 nm の SHG にて MgO:CLN の 10 倍以上の出力である 18.8 W を達成しており、横方向と縦方向のビーム品質もそれぞれ $M^2 = 1.19, 1.05$ と非常に高品質である¹¹。また、バルク結晶を用いた CW 光の波長 355 nm の SFG においても 2 次の QPM デバイスを用いることで出力 96 mW を達成している¹²。この SFG で

は2次のQPM構造を用いているため実効的なデバイス長を長くすることが難しい。しかし波長変換効率の飽和は見られていないため、導波路を装荷しデバイス長を長くすることができれば高パワーCW波長変換の可能性も十分ある。実際にパルス幅 50 ns、周波数 60 kHz の Nd:YAG レーザを励起光源とし、SHG と SFG のカスケード接続によって励起光平均パワー 7.0 W、SH 光平均パワー 2.9 W から平均パワー 0.7 W の波長 355 nm の SFG に成功している¹³。

KTP はここで紹介している強誘電体結晶の中で最もフォトリフラクティブ損傷閾値が低いため、高パワー領域では容易に屈折率変化が起きてしまい、熱レンズ効果により SH 光のビーム品質が悪くなってしまう。実際、バルクデバイスにおいて、6.2 W の波長 532 nm の SHG に成功しているが SH 光パワー約 5 W 以上の高パワー領域ではビームが歪み、MgO:SLT よりもビーム品質が悪くなってしまうことが報告されている¹⁴。ビームが歪むとカスケード接続する SFG の波長変換効率の低下やレーザ直接描画装置の光源として用いる際の解像度や均一性の低下を招く。以上より、高パワー波長変換のための光学特性が良いことと、バルクでの実績があることから、非線形光学結晶としては MgO:SLT を選んだ。

3.3 設計

本章で作製する周期分極反転 MgO:SLT を用いた APE 導波路 SHG デバイスの概念図を図 3.1 に示す。相互作用長は 15.0 mm とした。このデバイスでは MgO:SLT の非線形光学テンソルの最大成分である d_{33} を用いるために、励起光、SH 光共に電界の向きが結晶 Z 軸方向である異常光を用いた。このように励起光、SH 光共に異常光

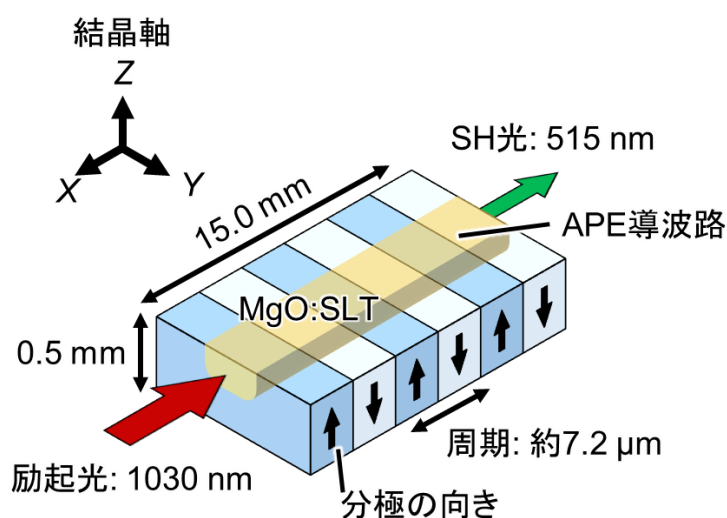


図 3.1 QPM-SHG デバイスの概念図

である位相整合を Type 0 の位相整合と呼ぶ。

励起光光源としては YAG レーザを用いた。第 1 章でも言及したように、YAG レーザは他の固体レーザと比べて出力を高くでき、ビーム品質も良い。YAG レーザには Nd をドープした波長 1064 nm の Nd:YAG レーザや Yb をドープした波長 1030 nm の Yb:YAG レーザ等がある¹⁵⁻¹⁹。Nd:YAG レーザは波長 808 nm の半導体レーザ光を結晶に当てることで Nd:YAG を励起している¹⁵。一方、Yb:YAG レーザの励起波長は 940 nm である¹⁵。Nd:YAG レーザに比べて Yb:YAG レーザの方が励起波長と発振波長が近い、すなわち、量子効率が良い。また、レーザ発振時の発熱も Yb:YAG の方が少ないという利点もある¹⁵。そこで本節では波長 1030 nm の Yb:YAG レーザを励起光源とした SHG デバイスの設計を行った。

3.3.1 分極反転周期

本項では式(2.40)を用いて APE 導波路型 SHG デバイスの分極反転周期を計算する。導波路型 SHG デバイスの分極反転周期計算には厳密には励起光 SH 光の実効屈折率が必要であるが、APE 導波路は屈折率分布を正確に見積もることが難しいため実効屈折率を厳密に計算することはできない。一方、本章では横モードの大きな APE 導波路を長時間アニールにより作製する。このとき、APE 導波路コアの屈折率差は 10^{-4} 程度と小さいため、APE 導波路の実効屈折率はバルク MgO:SLT の屈折率とほとんど変わらないと予想される。そこで、本章ではバルク MgO:SLT の屈折率を用いて分極反転周期の設計を行った。本章では MgO 1.0 mol% 添加 SLT を用いるが、この結晶の温度分散を加味した Sellmeier の分散式の報告が無かったため、代わりに MgO 0.5 mol% 添加 SLT の Sellmeier の分散式を用いた²⁰。その分散式は、

$$n_e^2 = a_1 + b_1 f + \frac{a_2 + b_2 f}{\lambda^2 - (a_3 + b_3 f)^2} + \frac{a_4 + b_4 f}{\lambda^2 - (a_5 + b_5 f)^2} - a_6 \lambda^2, \\ f = (T - 24.5^\circ\text{C})(T + 24.5^\circ\text{C} + 2 \times 273.16) \quad (3.1)$$

である。ここで、 $a_1 = 4.5615$ 、 $a_2 = 0.08488 \mu\text{m}^2$ 、 $a_3 = 0.1927 \mu\text{m}$ 、 $a_4 = 5.5832 \mu\text{m}^2$ 、 $a_5 = 8.3067 \mu\text{m}$ 、 $a_6 = 0.021696 \mu\text{m}^{-2}$ 、 $b_1 = 4.782 \times 10^{-7} \text{K}^{-2}$ 、 $b_2 = 3.0913 \times 10^{-8} \mu\text{m}^2 \text{K}^{-2}$ 、 $b_3 = 2.7326 \times 10^{-8} \mu\text{mK}^{-2}$ 、 $b_4 = 1.4837 \times 10^{-5} \mu\text{m}^2 \text{K}^{-2}$ 、 $b_5 = 1.3647 \times 10^{-7} \mu\text{mK}^{-2}$ である。 T は結晶温度、 λ は波長であり単位はそれぞれ $^\circ\text{C}$ 、 μm である。

本研究で用いる Yb:YAG レーザの発振波長は 1030.4 nm であり波長可変レーザではない。屈折率の温度依存性から位相整合条件を満たす分極反転周期はデバイス温度に依存する。つまり、デバイス温度を変調することで位相整合条件を満たすように調整することができる。一般に、デバイスをヒータに載せて加熱することでデバイス温度の調整を行うため、デバイス温度 55°C 付近の位相整合条件を求める。励起光波長 1030.4 nm の SHG における位相整合条件を満たす分極反転周期のデバイス温度依

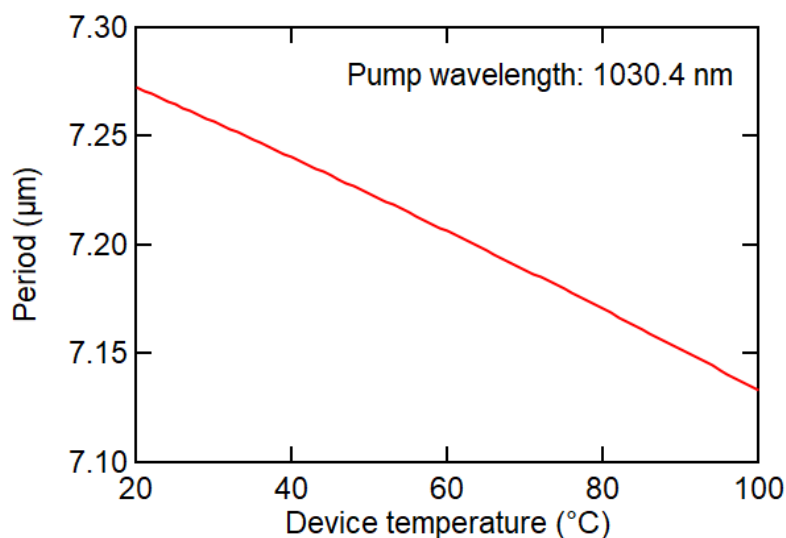


図 3.2 励起光波長 1030.4 nm の SHG デバイスの
分極反転周期のデバイス温度依存性

存性を図 3.2 に示す。デバイス温度 55°C のとき、分極反転周期が 7.125 μm となることが分かった。バルク MgO:SLT の屈折率の違いと APE 導波路の実効屈折率や式(3.1)の Sellmeier の分散式と実際に用いる MgO:SLT の屈折率分散の違い、フォトマスクの作製誤差を考え、分極反転周期 7.146 μm 、7.163 μm 、7.180 μm 、7.198 μm 、7.215 μm 、7.232 μm 、7.249 μm の 7 種類のパターンを作製することにした。

3.3.2 横モード直径

前述のとおり、ワットクラスの高パワー波長変換を強誘電体導波路で行うためには光損傷防止のために横モードの拡大が必須である。本デバイスの最終目標である 1 W クラスの CW 350 nm 帯レーザに対して光損傷が起こらないような横モードサイズを求めた。ここで、 MgO:SLT の CW 350 nm 帯レーザ光に対する光損傷閾値の報告は無い。しかし、APE 導波路 MgO:SLT において波長 355 nm のピコ秒パルスレーザ(パルス幅 15 ps、繰り返し周波数 80 MHz)を用いた際に平均パワー密度 2.7 kW/cm^2 、ピークパワー密度 4.5 MW/cm^2 では光損傷が起きないという報告がある²¹。また、 MgO:CLN において、波長 530 nm のピコ秒パルスレーザ(パルス幅 20 ps、繰り返し周波数 230 MHz)での光損傷閾値はピークパワー密度 3.75 MW/cm^2 、波長 532 nm の CW レーザでの光損傷閾値は >2 MW/cm^2 との報告があり^{5,22}、光損傷閾値は同じオーダーである。そのため、 MgO:SLT の CW 350 nm 帯レーザ光に対する光損傷閾値も波長 355 nm のピコ秒パルスレーザに対する光損傷閾値と同じオーダーであると考え、2 MW/cm^2 と仮定した。さらに、大きな導波路における横モード分布はガウシアンで良く近似できる。ガウシアン形状をもつビームのピークパワー密度は平均パワー密度の 2

倍であるため、1 W の 350 nm 帯レーザ光に対して光損傷を起こさないようにするためには $100 \mu\text{m}^2$ の横モード断面積、つまり $1/e^2$ 直径約 $11 \mu\text{m}$ の導波路が必要である。ここで横モード断面積とは 2 次元ガウシアン分布の $1/e^2$ 長半径・短半径を長半径・短半径とする楕円の面積である。また、4.2 節で説明する MgO:SLT のアニール時の拡散定数をもとにシミュレーションを行うと、APE 導波路の 1000 nm 帯レーザ光の横モード直径は 350 nm 帯レーザの横モード直径の約 2.4 倍となる。よって、1000 nm 帯レーザの $1/e^2$ 直径は約 $27 \mu\text{m}$ 、つまり横モード断面積は約 $580 \mu\text{m}^2$ 必要である。ここから、 x 方向、 y 方向の横モード直径を W_x 、 W_y とすると

$$W_x W_y \geq \frac{4 \times 580 \mu\text{m}^2}{\pi} \quad (3.2)$$

であれば良い。図 3.3 に式(3.2)のグラフを示す。1000 nm 帯レーザの横モード直径が図 3.3 の境界線より右上の領域であれば 1 W の 350 nm 帯レーザにおいて光損傷は起こらないと考えられる。

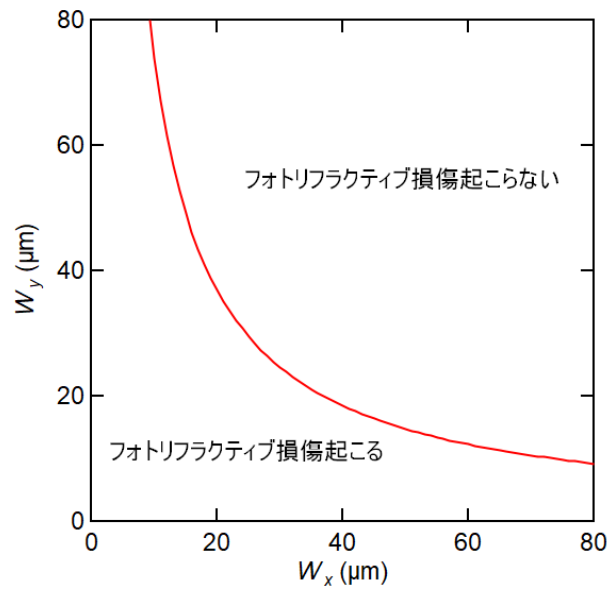


図 3.3 横モード直径とフォトリフラクティブ損傷の関係

3.3.3 規格化変換効率

APE 導波路 SHG デバイスの規格化変換効率の設計値を求めた。規格化変換効率を厳密に計算するためには励起光と SH 光の横モードが必要であるが、設計段階でこれらは不明であった。また APE LN において、プロトン交換直後のプロトン交換領域以外では非線形光学定数はバルクと同一であるが、プロトン交換直後のプロトン交換領

域では非線形光学定数が小さくなり、アニールにより回復するという報告がある²³。従って MgO:SLT においても、厳密には APE 導波路を装荷した MgO:SLT の非線形光学定数はバルク MgO:SLT の非線形光学定数と異なると考えられるが、設計段階ではこれらを簡略化して以下の仮定のもと求めた。なお、測定した励起光と SH 光の横モードから規格化変換効率を求める方法と求めた結果については 3.6.3 項で説明する。

- ① 励起光と SH 光の横モード分布は Gaussian であり、SH 光の横モード直径は励起光の横モード直径の $1/\sqrt{2}$ とする。
- ② 励起光と SH 光のモードの中心位置のずれはないものとする。
- ③ APE 導波路の非線形光学定数 d_{33} はバルクと同一とする。

①、②を仮定すると κ の計算の際に式(2.56),(2.57),(2.61)を用いることができる。横モード直径が $(W_x, W_y) = (30 \text{ } \mu\text{m}, 25 \text{ } \mu\text{m})$ のとき、式(2.56),(2.57),(2.61)より $\kappa = 0.019 \text{ W}^{-1/2}\text{mm}^{-1}$ となった。励起光パワーが 10 W のとき、デバイス長 8.0 mm で 2 W の SH 光が見込まれた。さらに、式(2.89),(2.101)を用いると、SHG 後の励起光パワー 8 W と SH 光パワー 2 W のとき、SFG デバイス長 4.5 mm で 1 W の SF 光の発生が見込まれた。SHG デバイス長が 15 mm のとき、分極反転周期が $7.215 \text{ } \mu\text{m}$ のデバイスに関して式(2.52)から規格化変換効率のデバイス温度依存性を求めた。図 3.4 に結果を示す。デバイス温度が 55.0°C のとき、規格化変換効率は最大で $8.2\%/W$ となった。 sinc^2 関数の半値全幅 (FWHM) は 1.8°C であった。

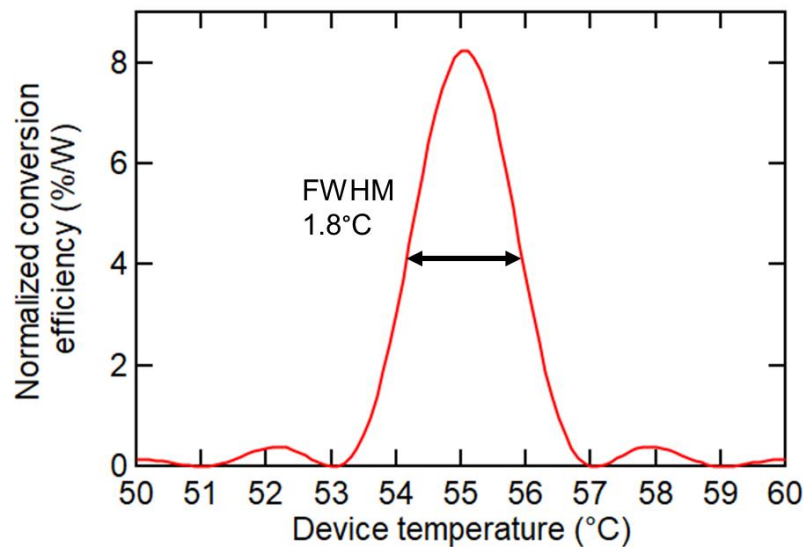


図 3.4 SHG デバイスの規格化変換効率のデバイス温度依存性

3.4 周期分極反転構造作製と一様性改善

MgO:SLT を用いた波長変換のためには PP 構造を形成しなければならない。本節では電界印加法を用いた PP 構造作製について述べる。まず、電界印加法について説明し、その後、一様な PP 構造を得るための実験結果を述べる。

3.4.1 周期分極反転構造作製の原理

MgO:SLT などの強誘電体は抗電界程度以上の大きな電界を与えると自発分極の向きが反転する。そこで、周期的な電極を結晶の表面に形成し電界を印加することで周期的に分極が反転した構造を形成できる。この方法を電界印加法という。電界印加法による PP 構造の一般的な作製手順を図 3.5 に示す。(a)まず、設計した分極反転周期を持つグレーティングパターンを結晶の片面にフォトリソグラフィや電子線リソグラフィ等で形成する。一般に分極反転領域はグレーティングの開口幅よりも広がるため、グレーティング開口幅は小さめに設計する。(b)結晶の両面に金属を蒸着することでレジストグレーティングが形成された面には波板電極を、もう一方の面には一様電極を形成する。(c)結晶の自発分極と逆向きに高電界を印加する。高電界を印加した際、電極が結晶に触れている領域が選択的に分極反転されることで PP 構造が形成できる。ここで、結晶厚さは数百 μm から数 mm であるのに対して、レジスト厚さは $1\ \mu\text{m}$ 程度である。すなわち、一様電極に近い部分ではレジストグレーティングによる電界コントラストはほとんどない。それにもかかわらず分極反転が進む過程は図 3.6 のように説明される²⁴。図 3.7 に示すように波板電極を装荷した結晶面において、電極とレジストの境目では電界が集中するため、そこに分極反転核が生成される。このとき分極反転核の大きさは MgO:CLN において直径 $1\text{--}5\ \mu\text{m}$ である²⁵。 MgO:SLT でも MgO:CLN と同程度の大きさの分極反転核が形成されると予想でき、本研究での分極反転周期は $7.2\ \mu\text{m}$ 程度であるため電極下全体に分極反転核が形成される。分極反転核の先端部分では

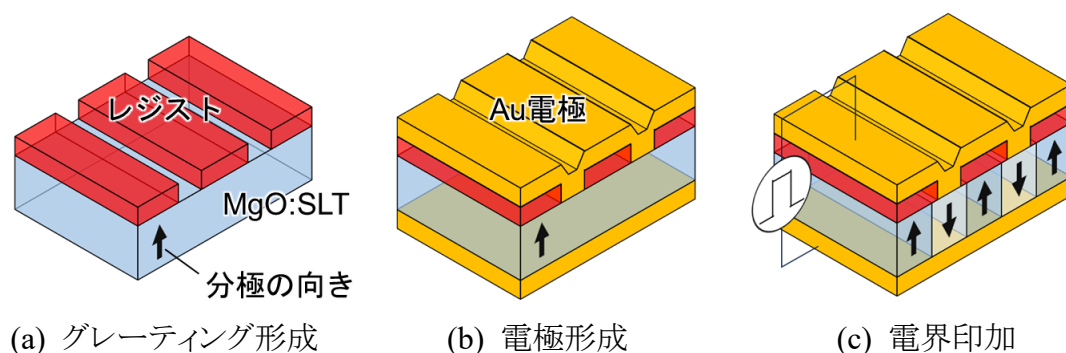


図 3.5 電界印加法による PP 構造作製手順

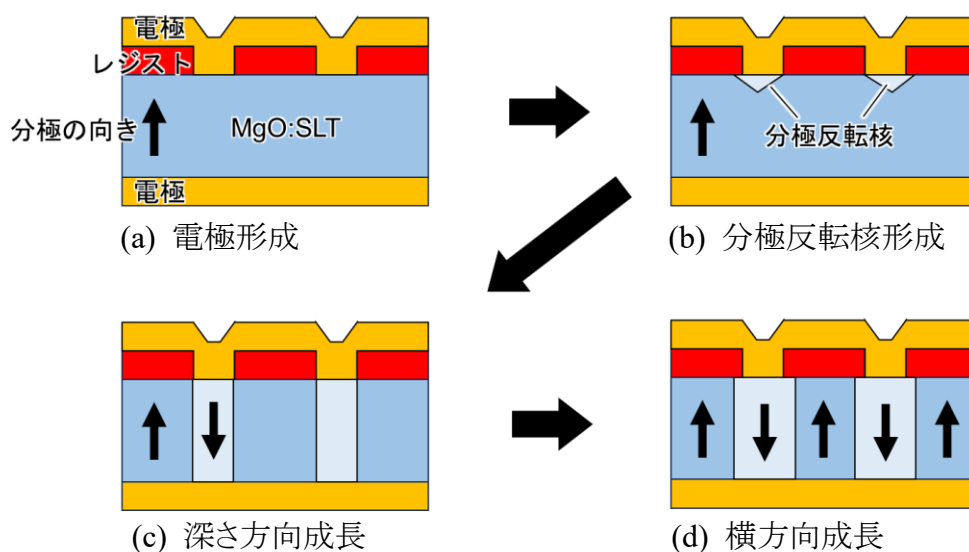
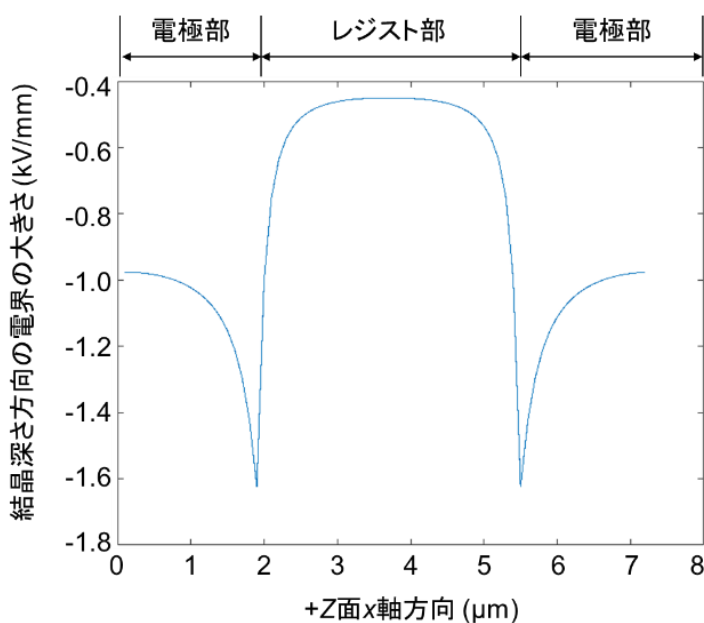


図 3.6 分極反転が進む過程


 図 3.7 +Z 面に周期 $7.2 \mu\text{m}$ の波板電極、-Z 面に一様電極を形成し、 850 V/mm の電界を印加したときの +Z 面での電界強度分布

同じ符号の分極同士が向かい合っており静電エネルギーが高くなっている。このとき、分極反転核が結晶面内方向に成長すると結晶全体での静電エネルギーの合計が多くなってしまうため分極反転核は面内方向にはあまり成長せず深さ方向に成長する。分極反転ドメインが結晶のもう一方の面まで到達した後も電界印加を続けると分極反転ドメインは面内方向にも広がり、レジスト直下も分極反転する。

分極反転形成プロセスにて結晶に与える合計の電荷量 Q は、自発分極密度 P_s と

反転面積 S から、

$$Q = 2P_s S \quad (3.3)$$

と計算できる。また、反転面積 S は PP 領域面積 A と duty 比 a を用いると $S = Aa$ と表すことができるため、

$$Q = 2P_s Aa \quad (3.4)$$

と書ける。本研究で用いる $\text{MgO}:\text{SLT}$ の自発分極密度は $P_s = 55 \pm 3 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ である²⁶。

3.4.2 周期分極反転構造の作製手順

本項では厚さ 0.5 mm の Z-cut $\text{MgO}1.0 \text{ mol}\%$ 添加定比組成 LiTaO_3 ウエハ (OXIDE 製) を用いた周期分極反転構造の作製手順について述べる。

(a) フォトリソグラフィによるレジストグレーティング形成

ダイシング装置を用いて $\text{MgO}:\text{SLT}$ を X 軸が長辺と平行になるように $17.5 \times 9.0 \text{ mm}^2$ に切り出した。切り出したサンプルをトリクロロエタンとアセトンを用いてそれぞれ 15 分間超音波洗浄した後、エタノール、超純水の順に置換した。洗浄中は有機溶媒が蒸発し、不純物がサンプル表面に付着しないように常にサンプルが有機溶媒に浸かっている状態とした。サンプルを超純水中から取り出し、窒素ガンで水分を吹き飛ばした。サンプルを、図 3.8(a) のようなアルミホイルで覆われたシャーレに入れ、 140°C のオーブン (Drying-Oven DX-38, Yamato) で 30 分間脱水ベークを行った。脱水ベーク中に水蒸気がシャーレ内にたまらないようにシャーレのふたを図 3.8(b) のようにわずかに開けておいた。また、ベークの際にホットプレートで

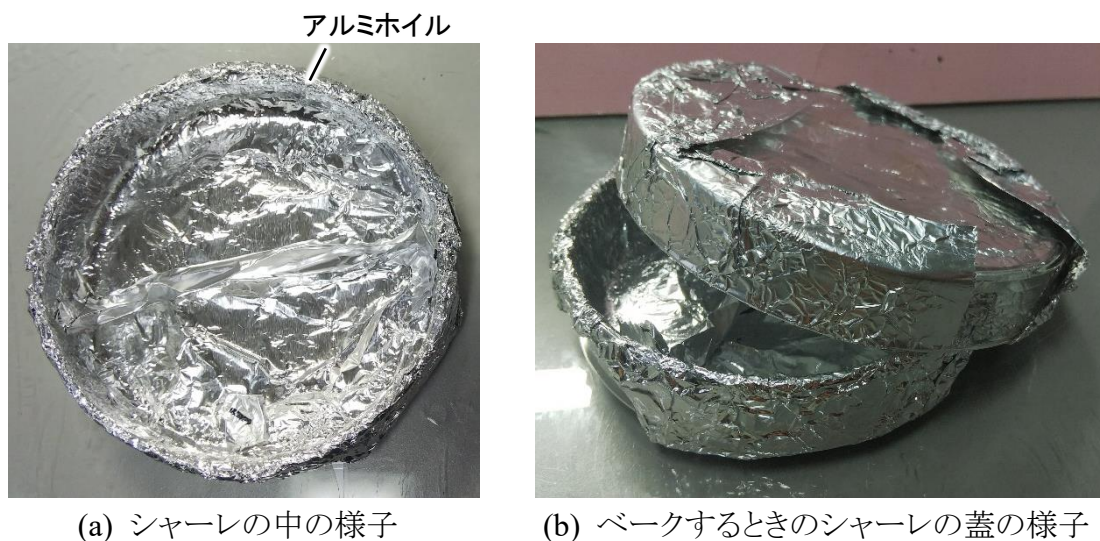


図 3.8 ベークの際に用いたシャーレ

はなくオープンを用いる理由は急な温度上昇を抑え、 MgO:SLT の焦電効果による意図しない分極反転を防ぐためである。脱水ベーク後室温で 30 min 静置しサンプルを冷却した。

スピンのコート (MS-A 100, MIKASA) を用いてポジ型フォトレジスト (MICROPOSIT S1813G, SHIPLEY) をサンプル+Z 面に塗布した。スピンのコートの条件は「slope 5 s \rightarrow 1000 rpm, 10 s \rightarrow slope 5 s \rightarrow 5000 rpm, 30 s \rightarrow slope 10 s \rightarrow END」とした。参照用のサンプルに同様の条件でレジストをスピンのコートし、フォトマスクを用いて露光、現像した後、触式段差計 (DEKTAK) を用いてレジスト厚を測定したところ $1.6 \mu\text{m}$ であった。レジスト塗布後、サンプルをアルミホイルで覆われたシャーレに入れ、 90°C のオープンで 30 min 脱水ベークを行った。プリベーク後室温で 30 min 静置しサンプルを冷却した。

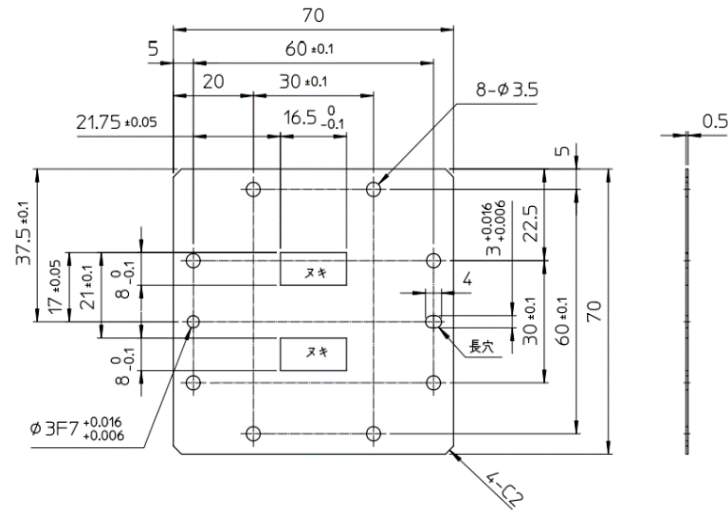
マスクアライナ (MA-10, MIKASA) を用いて周期 $7.146 - 7.249 \mu\text{m}$ 、duty 比 0.5 の PP パターンを露光時間 11.5 s でフォトレジストに転写した。 23°C の現像液 (MICROPOSIT 351 DEVELOPER : 超純水 = 1 : 5, 体積比) を用いて 90 s で現像した。現像の際は反応が起こるサンプルの表面付近の現像液の濃度が不十分にならないかつレジストグレーティングパターン形状が崩れないように現像液をゆっくり攪拌した。その後、 23°C の超純水で 90 s リンスを行い、窒素ガンでレジストグレーティングが壊れないように窒素の流速を抑えて丁寧に水分を吹き飛ばした。

(b) Au 電極蒸着

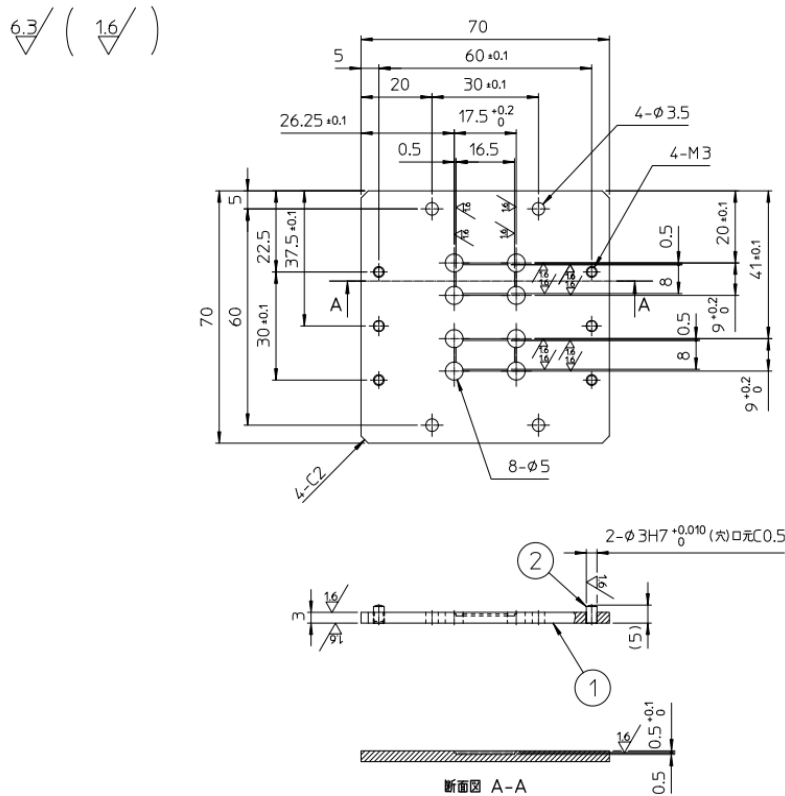
サンプル側面に Au が蒸着されサンプル+Z 面と-Z 面が短絡することを防ぐために図 3.9 に示す蒸着治具を用いて側壁を保護して Au 電極の蒸着を行った。サンプルによっては時間短縮のために 1 つのサンプルで複数の電界印加条件を試すために図 3.10 に示すようにシリコンラバーシートを用いて区切りを形成した。シリコンラバーシートは厚さ 0.1 mm であり、幅約 1 mm のリボン状に切り出し使用した。抵抗加熱蒸着装置 (SVC-700TM, SANYU ELECTRON) を用いて表 3.2 に示す蒸着条件で+Z 面、-Z 面の順に Au を 250 nm 蒸着した。

(c) 電圧印加

図 3.11 に示す電界印加セットアップを用いて電界印加を行った。サンプルはシリコンオイル中に入れ、 120°C に到達するまで 30 min かけて昇温した。 MgO:CLN で報告されているように 120°C では室温に比べて抗電界が約半分となる²⁷。加熱後すぐにプローブをサンプル+Z 面側の Au 電極に接触させ電界印加を行った。印加電界波形はファンクションジェネレータ (FG120, 横河計測) を用いて作り出し、その信号を高圧増幅器 (609E-6, TREK) に入力することで電圧を 1000 倍に増幅した。電界印加時、図 3.11(b) に示すようにサンプルを流れる反転



(a) 蒸着治具カバー



(b) 蒸着治具台座

図 3.9 蒸着治具の図面

電荷はパルス制御装置内のキャパシタに蓄積される。キャパシタの電圧が可変抵抗(Q ADJ)で設定された参照電圧より大きくなるとコンパレータからの信号がロジック回路に送信され、Gate In より電界印加終了の信号がファンクションジェネレータに送信される。このように、反転電荷が一定以上サンプルに流れると電界印加

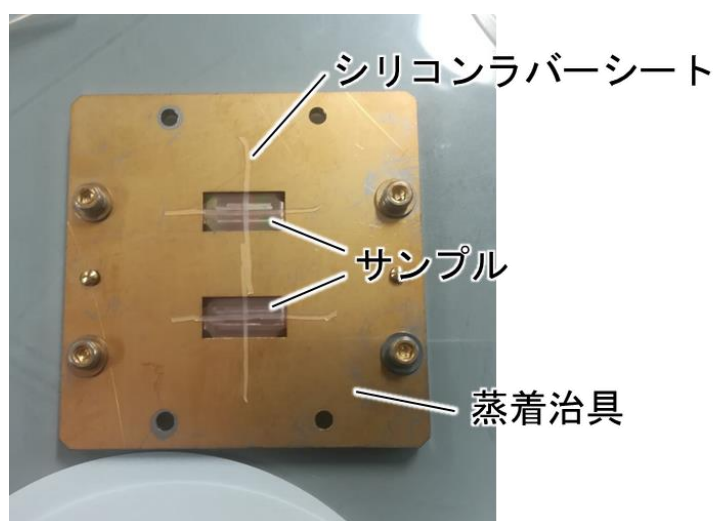


図 3.10 蒸着時の蒸着治具とシリコンラバーシート

表 3.2 Au 電極の蒸着条件

背圧 (Pa)	温度 (°C)	ボート	電流 (A)	レート ($\text{\AA}/\text{s}$)
2.0×10^{-3}	90	W ボート	60	3.0-3.5

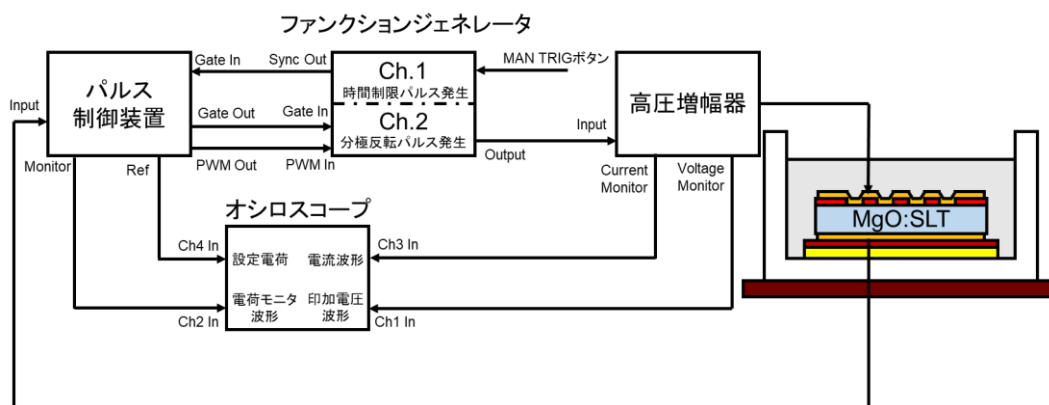
が自動で止まるような装置構成になっている。電界印加後、サンプル温度が 50°C を下回るまでシリコンオイル中で自然冷却し取り出した。サンプルに付着したシリコンオイルはトリクロロエタンにより除去した。その後、アセトン、エタノール、超純水と置換したのち窒素ガンで水分を吹き飛ばした。

(d) 電極・レジスト除去

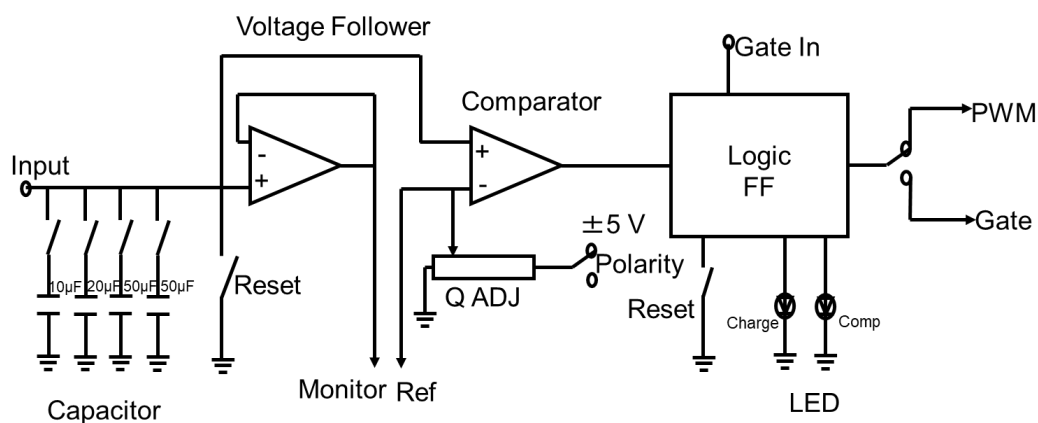
サンプルを 70°C の Au エッチング液 ($\text{KI} : \text{I}_2 : \text{H}_2\text{O} = 4 \text{ g} : 1 \text{ g} : 40 \text{ mL}$) に約 30 min 漬けることで Au 電極を除去した。その後、サンプルをアセトンで超音波洗浄することでフォトリジストをアセトンで除去した。エタノール、超純水と置換した後サンプルを取り出し、窒素ガンで水分を吹き飛ばした。

(e) フッ硝酸エッチング

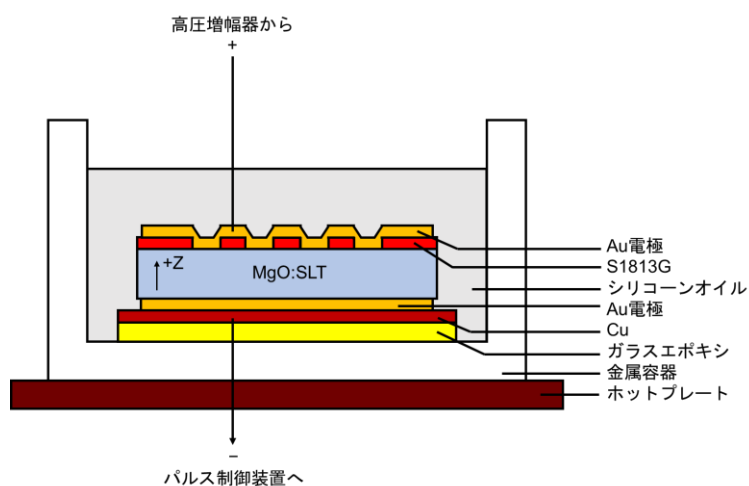
フッ硝酸 (HF (50%) : HNO_3 (69%) = 1 : 2, 体積比) を用いて 70°C で 45 min エッチングを行った。MgO:SLT のエッチングレートは $\pm Z$ 面、 $\pm Y$ 面で異なるため、フッ硝酸エッチングを行うことで PP 構造を可視化できる。フッ硝酸エッチングはサンプル表面の PP 構造を簡単に可視化できるため評価を行いやすいが、破壊的手法であるため次節の APE 導波路装荷の際には行わなかった。



(a) 電界印加装置全体図



(b) パルス制御装置内部の回路図



(c) 結晶部の拡大図

図 3.11 電界印加装置セットアップ

3.4.3 印加電界の最適化

まず、シングルパルスでの最適な印加電界の大きさを調べた。シングルパルスでの印加電界の時間波形を図 3.12 に示す。印加電界の条件を表 3.3 に示す。このときサンプルの 1 エリア当たりの分極反転面積は 0.11 cm^2 であったため、サンプルに与える電荷量は式(3.3)より $12 \text{ } \mu\text{C}$ とした。

フッ硝酸エッチング後の光学顕微鏡観察結果を図 3.13 に示す。印加電界が 544 V/mm 以上のサンプルではレジストグレーティングを形成した+Z 面の 9 割以上の面積で PP 構造が得られていた。しかし、電界が 348 V/mm 以下の条件では PP 構造が得られなかった。これは印加電界が低すぎたことにより、分極反転核がサンプル全体に形成されなかったためである。試した条件のうち、 544 V/mm の電界を印加した際に+Z 面 PP 構造の均一性が最も高かった。しかし、-Z では分極反転領域はほとんど見られなかった。

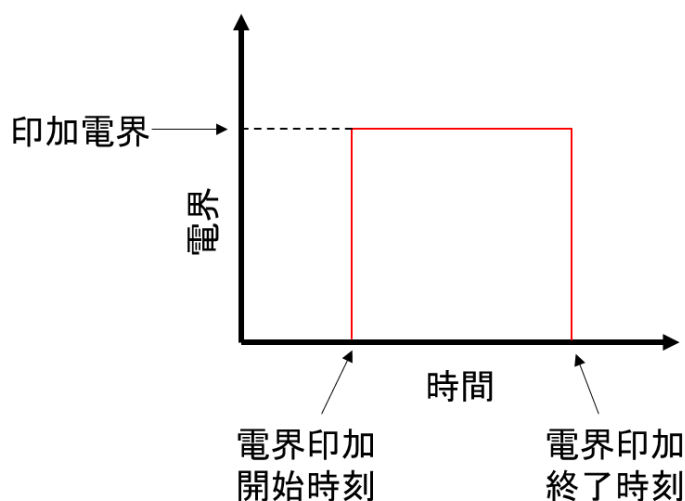


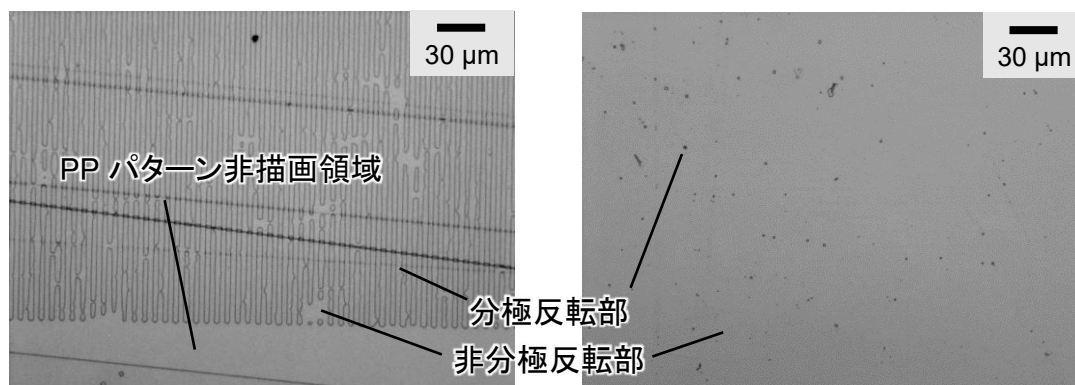
図 3.12 印加電界（シングルパルス）の時間波形

表 3.3 電界印加条件

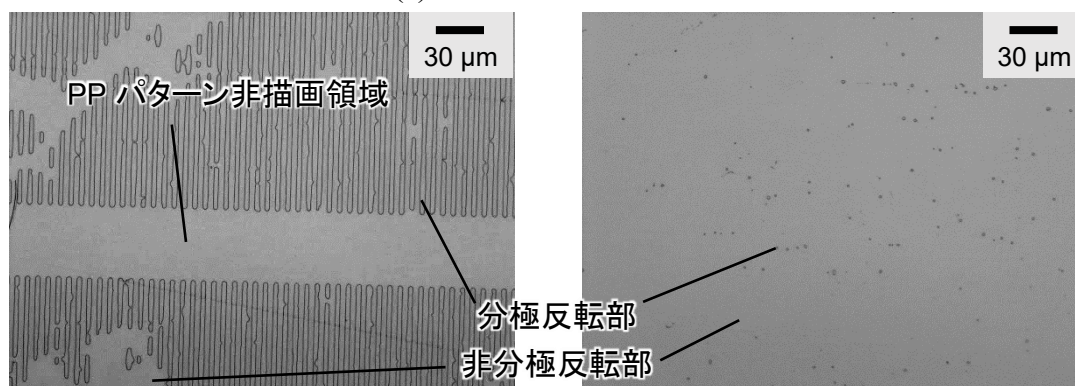
エリア	パルスの種類	印加電界 (V/mm)	パルス周期 (ms)	パルス幅 (ms)	電荷量 (μC)
A1	シングル	850	-	-	12
A2	シングル	680	-	-	12
A3	シングル	544	-	-	12
A4	シングル	※	-	-	12

※100 V/mm で 3 分間 → 200 V/mm で 1.5 分間

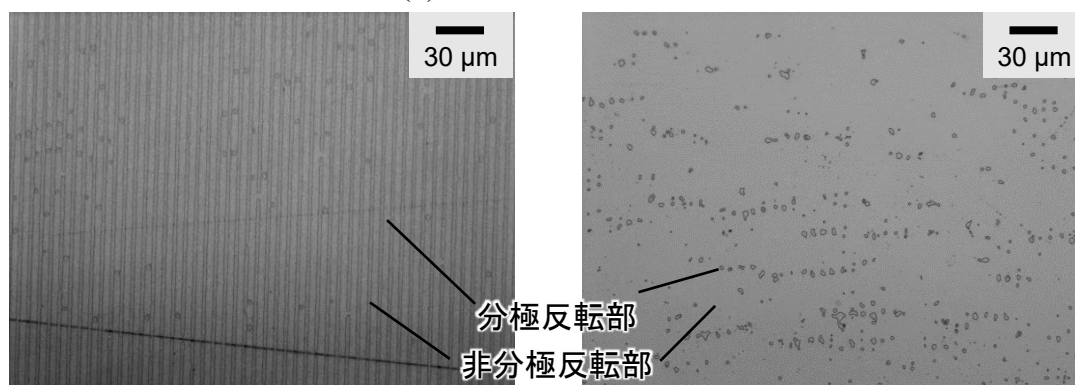
→ 348 V/mm で電荷がたまるまで行った。



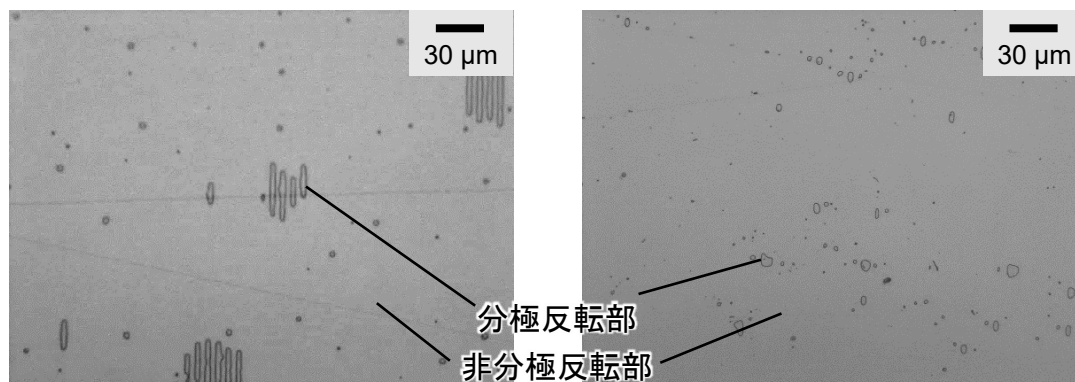
(a) A1 電界 850 V/mm



(b) A2 電界 680 V/mm



(c) A3 電界 544 V/mm



(d) A4 電界 100 V/mm \rightarrow 200 V/mm \rightarrow 348 V/mm

図 3.13 光学顕微鏡観察結果(左:+Z 面、右:-Z 面)

MgO:CLN においてマルチパルスで電界印加を行うことで PP 構造の一様性が改善されるという報告がある²⁹。 MgO:SLT においても一様性改善の期待ができるため、マルチパルスでの電界印加を行った。マルチパルスでの印加電界の時間波形を図 3.14 に示す。電界印加条件を表 3.4 に示す。パルス周期とパルス幅はそれぞれ 1.5 ms、0.5 ms とした。また、本実験でのサンプル 1 エリア当たりの分極反転面積は 0.08 cm^2 であったためサンプルに与える電荷量は $8.7 \mu\text{C}$ とした。

印加電圧波形とフッ硝酸エッチング後の +Z 面の光学顕微鏡観察結果を図 3.15 に示す。設定電界が 544 – 1190 V/mm では所望の電界をサンプルに与えることができていた。しかし、設定電界 1360 V/mm と 3400 V/mm では電界印加開始数 ms は所望の電界をサンプルに与えることができていたが、その後は下がっていた。原因は定かではないが、印加電界が高すぎるために結晶の一部が破壊され大量のリーク電流が流れたことにより電圧降下が起こったのではないかと考えられる。PP 構造について、+Z 面では電界が 544 V/mm のサンプルでは duty 比が約 0.5 であった。印加電界を高くするにつれて分極反転領域の幅が広がっていき duty 比が大きくなっていった。

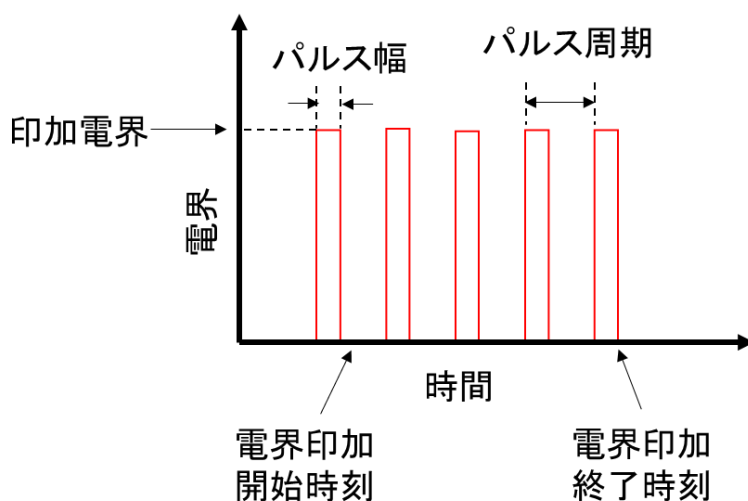


図 3.14 印加電界(マルチパルス)の時間波形

表 3.4 電界印加条件

エリア	パルスの種類	印加電界 (V/mm)	パルス周期 (ms)	パルス幅 (ms)	電荷量 (μC)
B1	マルチ	544	1.5	0.5	8.7
B2	マルチ	850	1.5	0.5	8.7
B3	マルチ	1020	1.5	0.5	8.7
B4	マルチ	1190	1.5	0.5	8.7
B5	マルチ	1360	1.5	0.5	8.7
B6	マルチ	3400	1.5	0.5	8.7

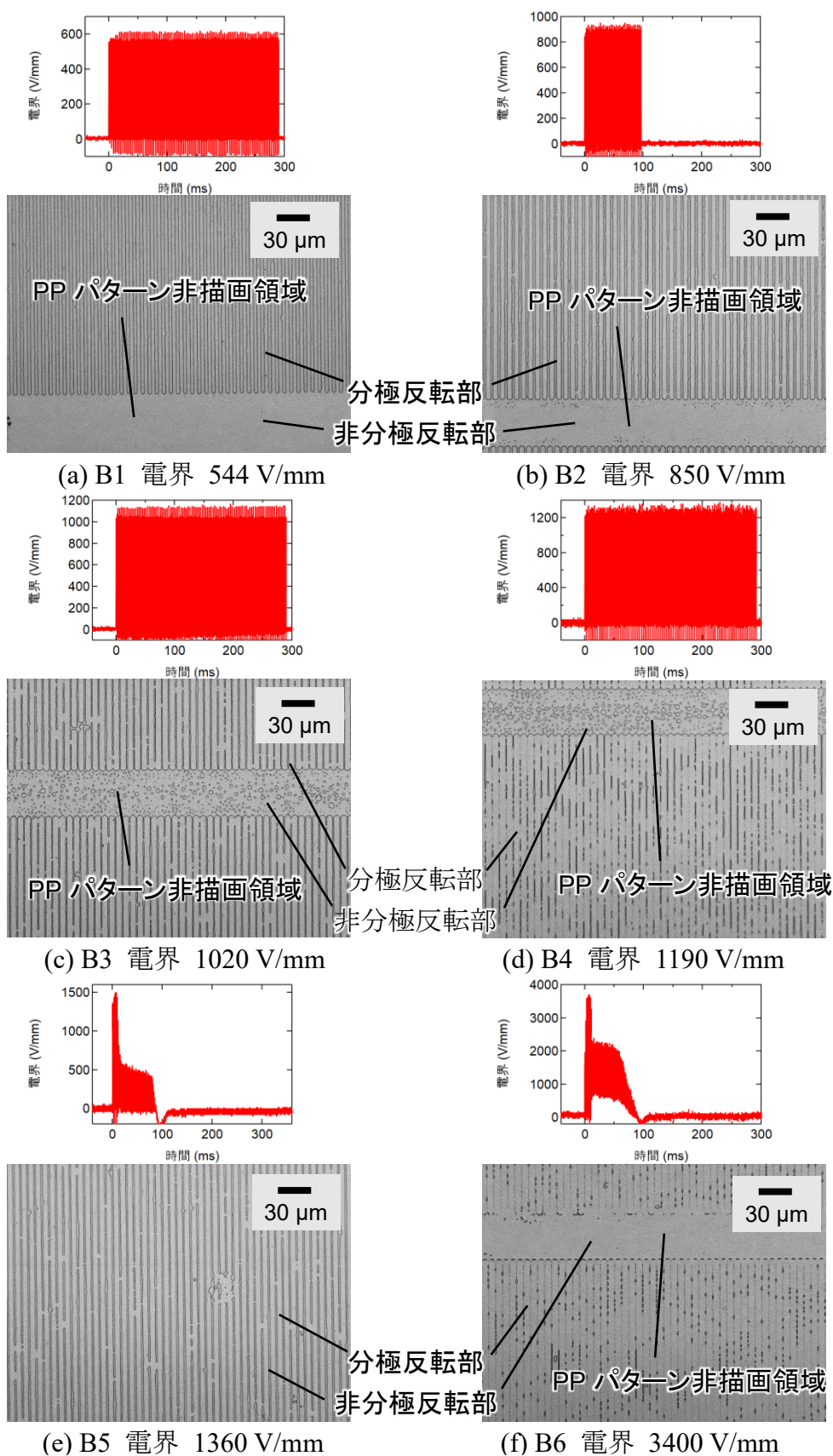


図 3.15 電界印加波形(上)と+Z面の光学顕微鏡観察結果(下)

これは印加電界を高くすると、電極下部だけでなくレジスト下部も静電エネルギーを超える高い電界がかかり、分極反転核のドメイン横方向への成長が促進されたためと考えられる。+Z 面では電界 544 V/mm や 850 V/mm で PP 構造が形成されていたが、-Z 面ではどの印加電界でも分極反転領域はほとんど観測されなかった。代表してエリア B1 の-Z 面の光学顕微鏡像を図 3.16 に示す。

次にマルチパルスでのパルス周期の最適化を行った。印加電界条件を表 3.5 に示す。電界と電荷量はそれぞれ 850 V/mm、8.7 μC とした。パルス周期 0.15 ms、パルス幅 0.05 ms で電界印加したサンプルのフッ硝酸エッチング後の光学顕微鏡観察結果を図 3.17 に示す。+Z 面の duty 比はどのパルス条件でも同じであり約 0.4 であった。また、どのパルス条件でも図 3.17(b)に示すように-Z 面では PP 構造はほとんど観測されなかった。

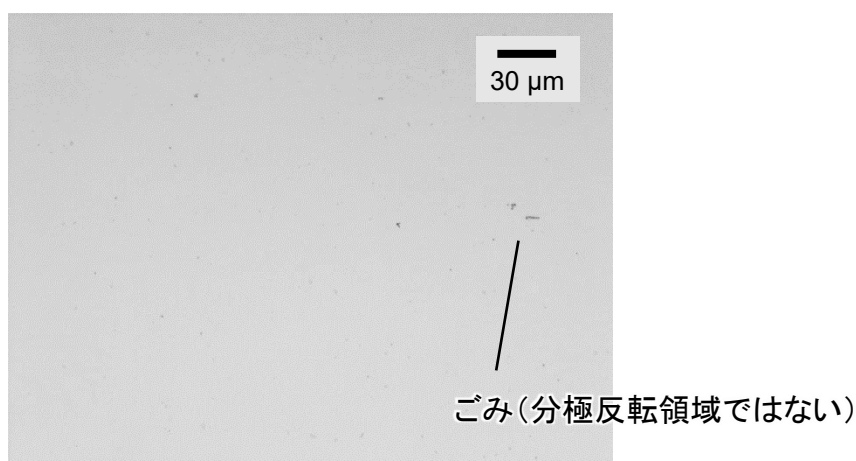


図 3.16 B1 の-Z 面光学顕微鏡観察結果

B2～B6 も同様に分極反転領域は観測されなかった

表 3.5 電界印加条件

エリア	パルスの種類	印加電界 (V/mm)	パルス周期 (ms)	パルス幅 (ms)	電荷量 (μC)
C1	マルチ	850	0.15	0.05	8.7
C2	マルチ	850	0.75	0.25	8.7
C3	マルチ	850	1.5	0.5	8.7
C4	マルチ	850	15	5.0	8.7
C5	マルチ	850	75	25.0	8.7

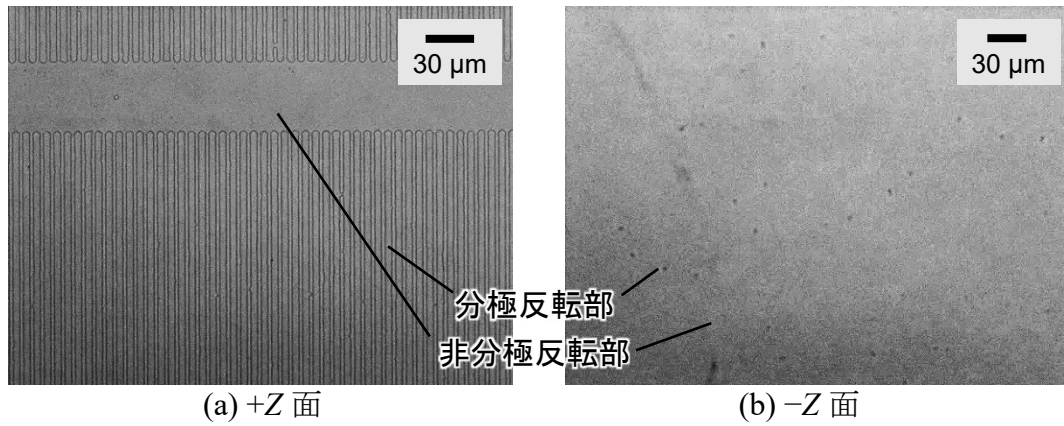


図 3.17 C1 の光学顕微鏡観察結果

3.4.4 波板電極を形成する面の検討

MgO:CLN において、分極反転核は+Z 面側の電極直下に形成され、そのドメインは-Z 面に向かって成長しやすいという報告がある²⁵。しかし、 MgO:SLT では+Z 面 -Z 面どちらに分極反転核が形成されやすいかの報告は無い。もし、-Z 面に分極反転核が形成されやすく+Z 面に向かって分極反転ドメインが成長しやすいのであれば、-Z 面に波板電極を形成して電圧印加することで分極反転ドメインが貫通する領域を増やせるのではないかと考えた。そこで-Z 面に波板電極を形成し、結晶の自発分極とは逆向きに -850 V/mm のパルス電界を与えた。このとき、GND は+Z 面としたため、与えた電界にマイナスの符号がついている。パルス周期と幅はそれぞれ 0.15 ms 、 0.05 ms とし、電荷量は $8.7 \mu\text{C}$ とした。図 3.18 にフッ硝酸エッチング後の光学顕微鏡観察結果を示す。-Z 面ではわずかし分極反転しておらず、+Z 面側には分極反転ドメインは見られなかった。そのため、 MgO:SLT も MgO:CLN と同様に波板電極は+Z 面に形成し電界印加を行ったほうが良い。

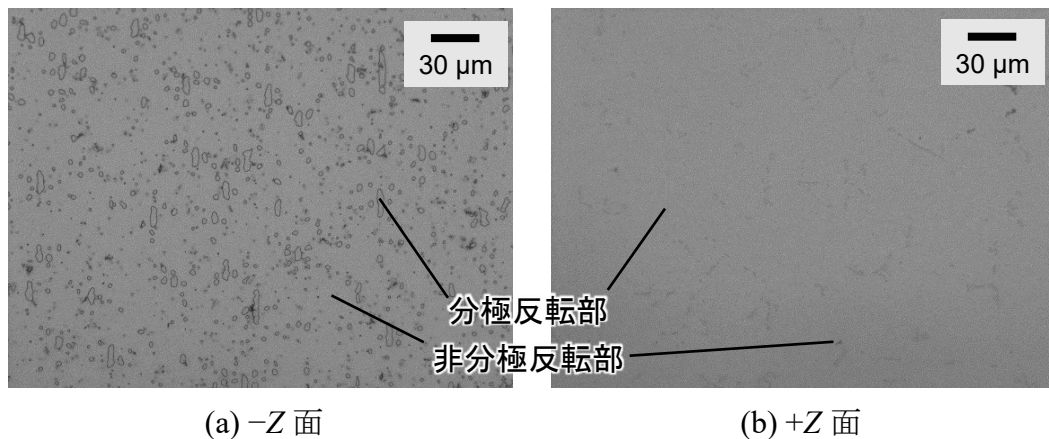


図 3.18 光学顕微鏡像観察結果

表 3.6 電界印加条件

エリア	パルスの種類	印加電界 (V/mm)	パルス周期 (ms)	パルス幅 (ms)	電荷量 (μC)
D1	マルチ	850	0.15	0.05	4.4
D2	マルチ	850	0.15	0.05	8.7
D3	マルチ	850	0.15	0.05	13.1
D4	マルチ	850	0.15	0.05	17.4
D5	マルチ	850	0.15	0.05	21.8
D6	マルチ	850	0.15	0.05	26.1

3.4.5 結晶に与える電荷量の検討

分極反転ドメインが $-Z$ 面まで到達していないのは分極反転に必要な電荷が不足しているからであると考えた。そこで、電圧印加時にサンプルに与える電荷量を表 3.6 のように変更した実験を行った。このときの電界、パルス周期、パルス幅はそれぞれ 850 V/mm、0.15 ms、0.05 ms とした。

印加電界波形、電荷量波形とフッ硝酸エッチング後の光学顕微鏡観察結果を図 3.19 に示す。電荷量が計算値の半分である $4.4 \mu\text{C}$ のときは、 $+Z$ 面の波板電極領域の約半分に PP 構造が形成されていた。電荷量が $8.7 \mu\text{C}$ のときは $+Z$ 面の波板電極領域のほぼ全面に PP 構造が形成されていた。電荷量が $8.7 \mu\text{C}$ 以上のときは電荷量に関わらず $+Z$ 面の波板電極領域の全面に PP 構造が形成されていた。しかし、 $26.1 \mu\text{C}$ の電荷量を与えたサンプルにおいても $-Z$ 面は分極反転していなかった。また、電荷量を $8.7 \mu\text{C}$ 以上としたエリアにおいて、式(3.3)の計算値の $8.7 \mu\text{C}$ あたりから電荷量の変化が遅くなっていた。

サンプル断面の PP 構造を観察するために $+Z$ 面で PP 構造が形成された領域をグレーティングに垂直にダイシングし、端面研磨した。フッ硝酸エッチング後のパルス周期 0.15 ms、パルス幅 0.05 ms で電界印加したサンプルの断面を図 3.20 に示す。断面においても、パルス周期の違いによる分極反転構造の違いはほとんど見られなかった。裏面まで分極反転が進行した領域もあったが、全体でみるとおおよそ半分の深さで分極反転が停止し、ばらつきが顕著であった。分極反転ドメインの幅は $+Z$ 面付近では大きく $-Z$ 面に近づくにつれ小さくなっていた。また、分極反転領域が結晶内部でつながった領域も見られた。更に、結晶 $+Z$ 面付近においても分極反転領域の幅にばらつきがあった。図 3.20 から結晶 $+Z$ 面から $30 \mu\text{m}$ の深さの位置における分極反転ドメインの幅を測定した。平均の分極反転ドメインの幅は周期の $1/2$ である約 $3.6 \mu\text{m}$ のときに波長変換効率が最大となるが、この電界印加条件では分極反転ドメインの幅の平均は

4.2 μm となった。また、分極反転ドメインの幅の分散は $0.27 \mu\text{m}^2$ であることが分かった。分極反転ドメインの幅に分散が存在する理由は次節で説明する分極反転ドメインの成長によるものであるため、電荷量や電極幅を最適化し、分極反転ドメインの幅の平均を 3.6 μm に調節しても分極反転ドメインの幅の分散の値は変わらないと予想される。分極反転ドメインの幅の平均が分極反転周期 A の $1/2$ のとき、周期の分極反転ドメインの幅の分散を σ^2 とすると、デバイスが十分長いとき変換効率は分散が 0 のときの理想的な変換効率の $1-2\pi^2\sigma^2/A^2$ 倍となる²⁸。分散が $0.27 \mu\text{m}^2$ のときこの式より変換効率は理想値の 0.98 倍に減少する。よって、導波路波長変換デバイスとして結晶+Z 面付近のみ用いる際は分極反転ドメインの幅のばらつきによる変換効率の減少はわずかであるが、もちろん変換効率の減少は無いことが望ましい。また、バルクデバイスとして用いる際は分極反転ドメインが結晶深さのおおよそ半分で停止していることは問題となる。

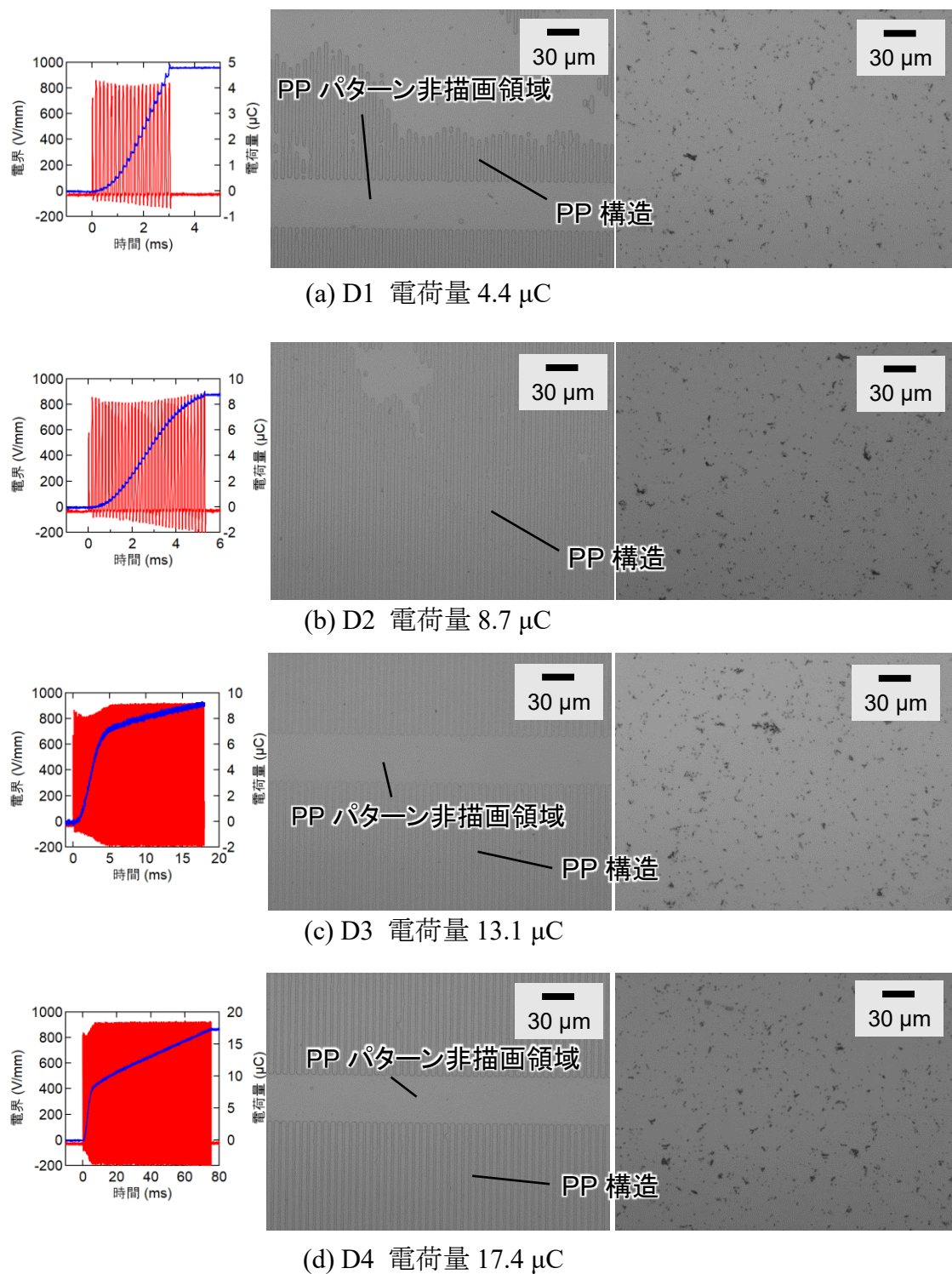
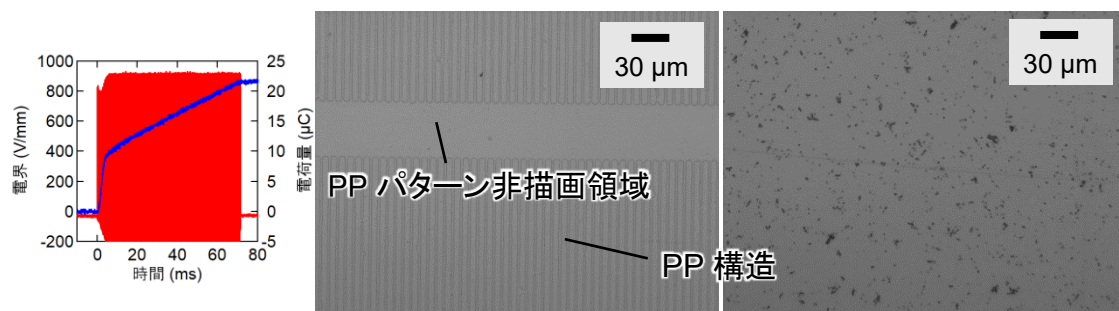
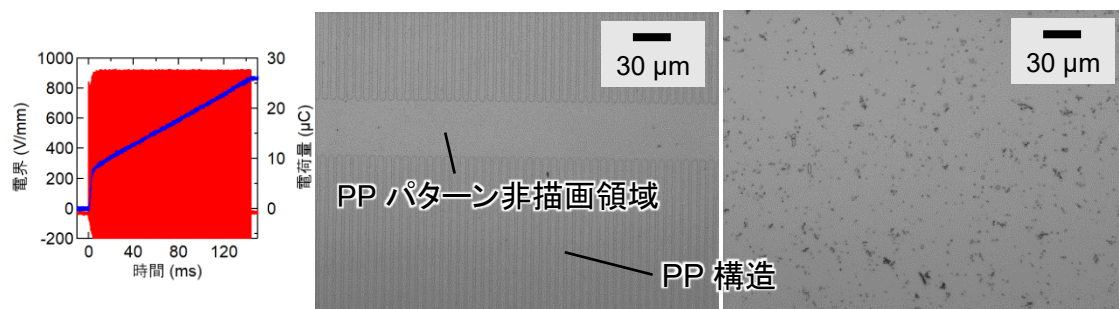


図 3.19 印加電界波形、電荷量波形と光学顕微鏡像
(左:印加電界波形(赤)・電荷量波形(青)、中:+Z 面、右:-Z 面)



(e) D5 電荷量 21.8 μC



(f) D6 電荷量 26.1 μC

図 3.19 印加電界波形、電荷量波形と光学顕微鏡像

(左:印加電界波形(赤)・電荷量波形(青)、中:+Z 面、右:-Z 面)

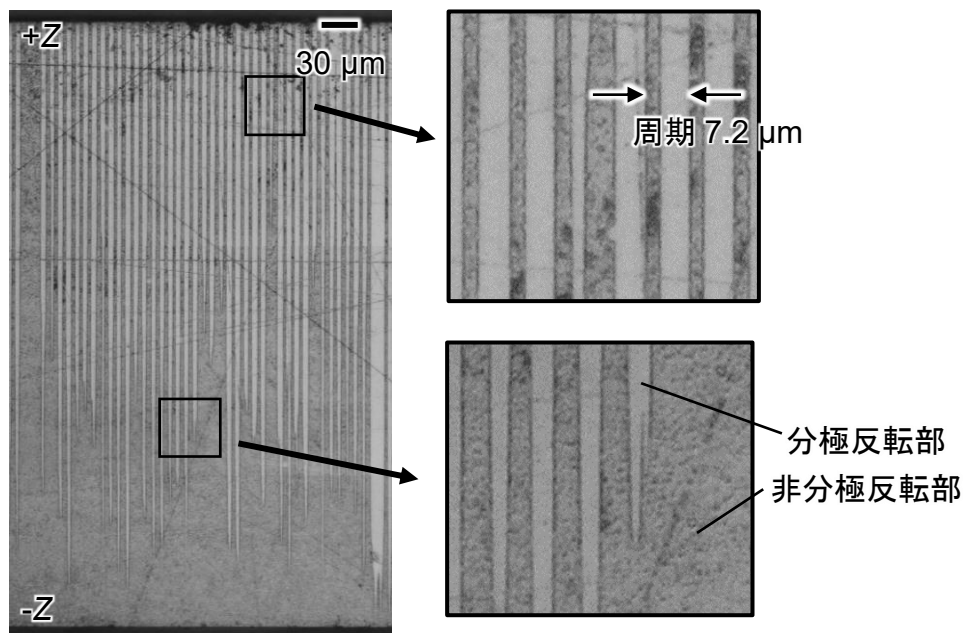


図 3.20 D2 断面の光学顕微鏡像

3.4.6 SiO_2 絶縁層の検討

様々な条件での電界印加を試みたが図 3.20 のように分極反転ドメインの幅が一樣ではなく分極反転ドメインの成長が結晶内部で停止している理由として、電界印加時にリーク電流が流れていることが挙げられる。実際、 MgO:CLN では電界印加時のリーク電流の発生が報告されており、そのときの PP 構造の断面図は図 3.17(c)と酷似していた^{29,30}。このようなことが起こる理由は以下のように説明されている。 MgO:CLN や MgO:SLT は本来絶縁体であるが、分極反転ドメインは抵抗値が著しく下がる。このリーク電流のため、分極反転形成が図 3.6 のようには進まず、図 3.21 のように進むと考えられる。(a)結晶+Z 面に波板電極、-Z 面に一様電極を形成し高電界をかけると、(b)波板電極とレジストの境目で分極反転核がランダムに形成される。分極反転核は図 3.6 で説明したように結晶 Z 軸に沿って成長していく。(c)一部の分極反転領域が結晶を貫通し-Z 面に到達すると、分極反転直後の抵抗値は低いためここをリーク電流が流れる。大きなリーク電流によって他の分極反転核へ電荷が供給されなくなり、新たな分極反転核の形成や他の分極反転ドメインの成長が阻害される。

このリーク電流を阻止するために MgO:CLN では SiO_2 絶縁層の装荷が有効と報告されている³⁰。そこで本研究でも同様に結晶-Z 面と一様電極の間への SiO_2 絶縁層の装荷を行った。 SiO_2 を装荷することにより SiO_2 膜で電圧降下が生じるため、サンプルに適切な電界を掛けるためには印加電圧を上げる必要がある。電界印加開始時の分極反転構造が形成されていないときは MgO:SLT 、 SiO_2 共に絶縁体である。よってこれらはコンデンサであるとみなせる。このときの等価回路は図 3.22 のようになる。ここで、並行平板の面積を S 、並行平板同士の距離を d 、並行平板間の誘電体の比誘電率を ϵ 、真空の誘電率を ϵ_0 とすると、静電容量 C は $C = \epsilon\epsilon_0 S/d$ となる。CLT と SiO_2 の比誘電

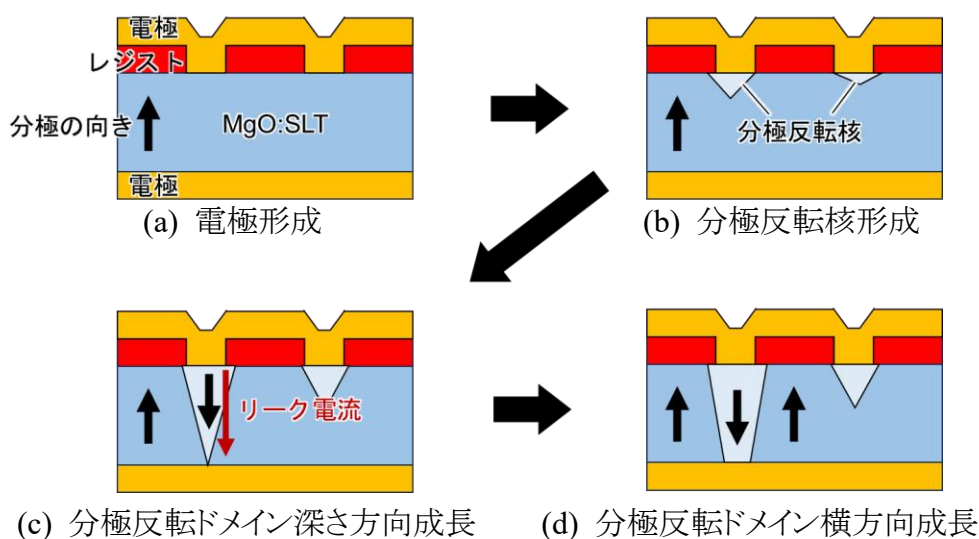


図 3.21 電流リークがあるときの分極反転が進行する過程

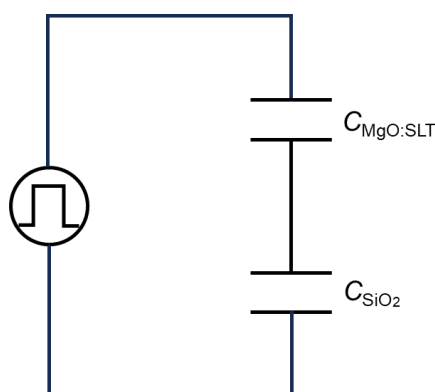


図 3.22 電界印加中、分極反転領域が-Z 面に到達していないときの等価回路

率はそれぞれ 44.5、3.8 であり^{31,32}、MgO:SLT の比誘電率は CLT の比誘電率と等しいと仮定すると、MgO:SLT に E の電界を印加するためには全体に

$$\frac{C_{\text{SiO}_2} + C_{\text{MgO:SLT}}}{C_{\text{SiO}_2}} \times E \quad (3.5)$$

の電界を印加すればよい。

SiO₂ の装荷は 3.4.2 項で説明した PP 構造作製手順のフォトリソグラフィの前に行った。切り出したサンプルの-Z 面をトリクロロエタンとアセトンを用いてそれぞれ 15 min 超音波洗浄した後、エタノール、超純水の順に置換した。サンプルを超純水中から取り出し、窒素ガンで水分を吹き飛ばした。RF スパッタ装置 (L-210S-FH, ANELVA) を用いて、SiO₂ を MgO:SLT の-Z 面に 1.0 μm スパッタ堆積した。このときのスパッタ条件を表 3.7 に示す。その後は 3.4.2 項と同様に作製を進め、表 3.8 に示す条件で電界印加

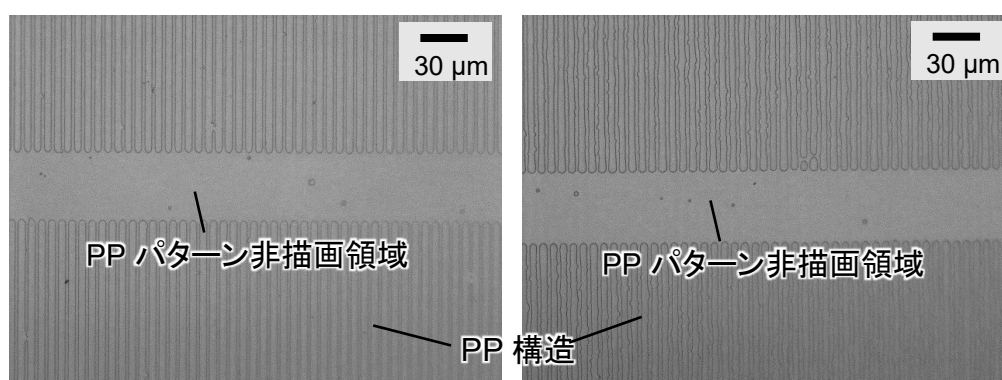
表 3.7 SiO₂ 堆積のスパッタ条件

背圧 (Pa)	電力 (W)		堆積時圧力 (Pa)	堆積時間 (min)
	FWD	REF		
1.0×10^{-3}	100	2	2.66	130

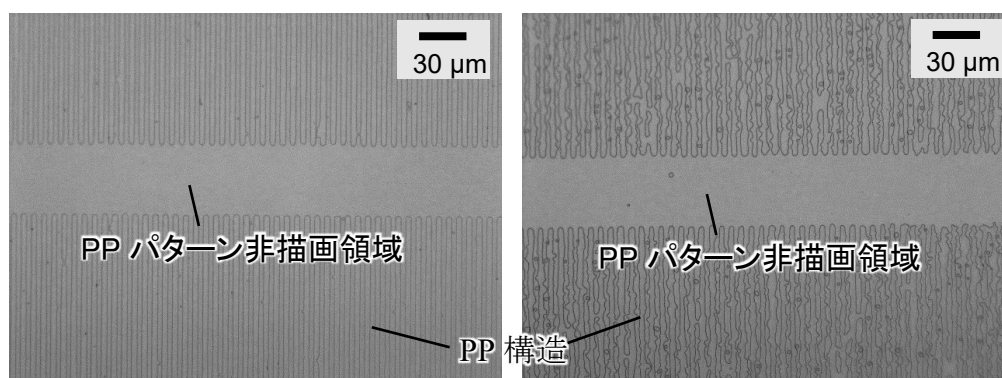
表 3.8 電界印加条件

エリア	パルスの種類	印加電界 (V/mm)	パルス周期 (ms)	パルス幅 (ms)	電荷量 (μC)
E1	シングル	544	-	-	8.7
E2	シングル	850	-	-	8.7
E3	シングル	1276	-	-	8.7
E4	マルチ	544	0.15	0.05	8.7
E5	マルチ	850	0.15	0.05	8.7
E6	マルチ	1276	0.15	0.05	8.7

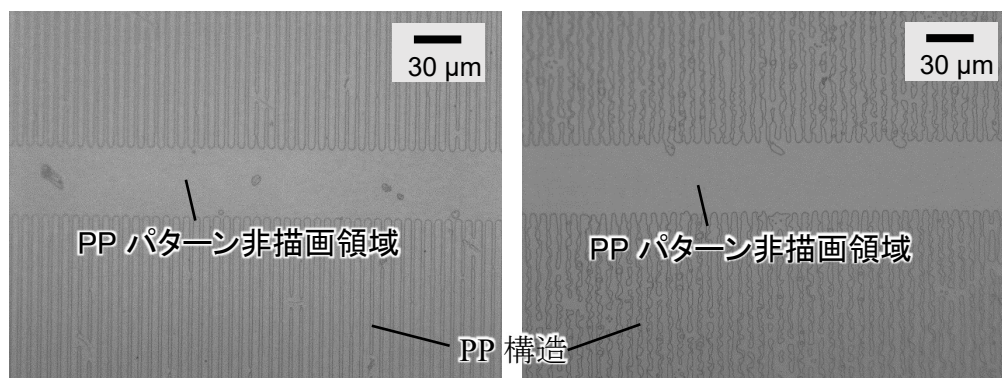
を行った。なお、パルスの種類がマルチパルスの場合、パルス周期と幅はそれぞれ 0.15 ms、0.05 ms とした。フッ硝酸エッチング後の光学顕微鏡観察結果を図 3.23 に示す。 SiO_2 を装荷することで分極反転領域を -Z 面まで到達させることができた。+Z 面はどの電界印加条件でも均一な PP 構造が作製できていた。-Z 面において、マルチパルス印加の方が分極反転領域と非分極反転領域の境界線のがたつきが少なくきれいに作製できていた。また、シングルパルス印加、マルチパルス印加ともに、印加電界が



(a) E1 電界 544 V/mm、シングル

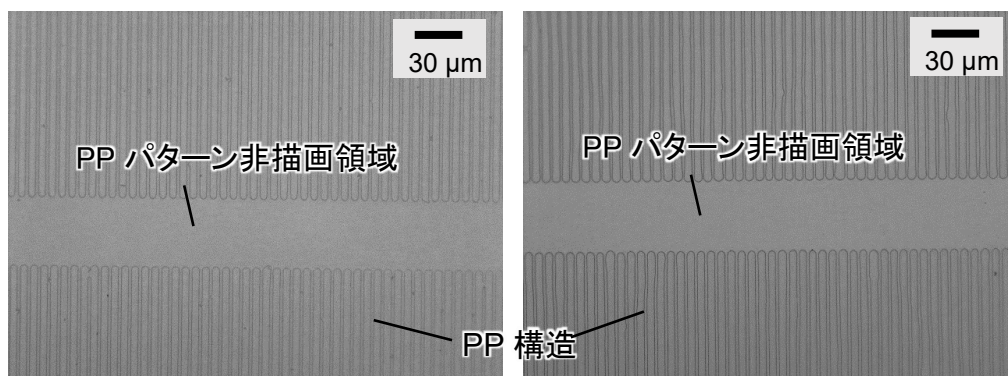


(b) E2 電界 850 V/mm、シングル

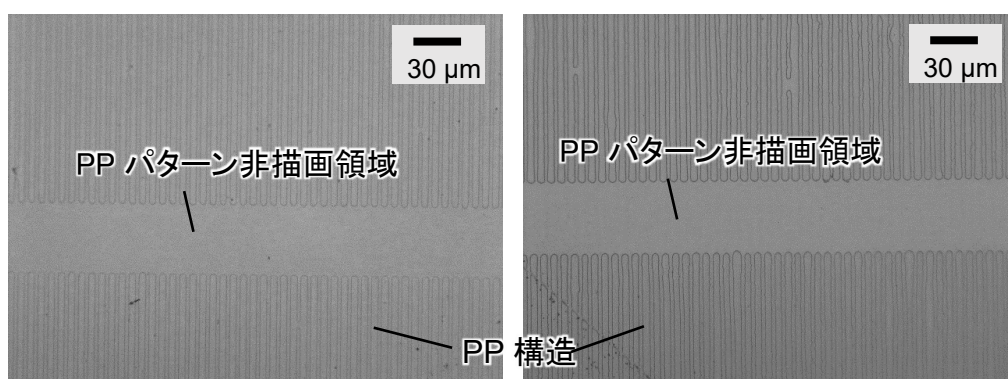


(c) E3 電界 1276 V/mm、シングル

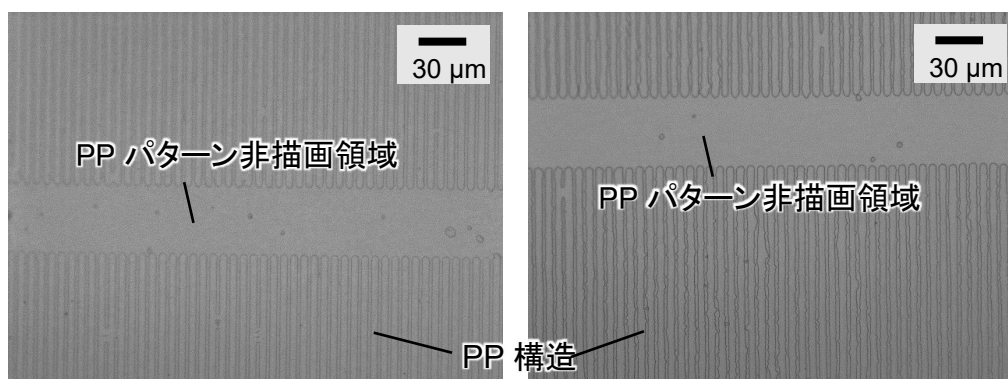
図 3.23 光学顕微鏡像(左:+Z 面、右:-Z 面)



(d) E4 電界 544 V/mm、マルチパルス



(e) E5 電界 850 V/mm、マルチパルス



(f) E6 電界 1276 V/mm、マルチパルス

図 3.23 光学顕微鏡像 (左: +Z 面、右: -Z 面)

低いほど -Z 面の分極反転部と非分極反転部の境界線のがたつきが少なくきれいに作製できていた。duty 比は +Z 面で測定するといずれの条件においても 0.65 程度であった。

3.4.7 duty 比の制御

SiO_2 絶縁層を装荷することで+Z 面、-Z 面両方で一様な PP 構造が形成されたが、duty 比は 0.65 程度であった。式(2.37),(2.45)より 1 次 QPM の場合 duty 比 0.5 のときに波長変換効率が最大となるため duty 比を少し小さくしなければならない。ここで分極反転面積は式(3.3)よりサンプルに与える電荷量に比例するため、電荷量を少なくすることで duty 比を小さくすることができるのではないかと考えた。電界印加条件を表 3.9 に示す。このときの電界、パルス周期、パルス幅はそれぞれ 850 V/mm、0.15 ms、0.05 ms とした。フッ硝酸エッチング後の+Z 面の光学顕微鏡観察結果を図 3.24 に示す。電荷量が 4.4 μC 、6.1 μC 、7.8 μC のときの duty 比はそれぞれ 0.52、0.52、0.63 と電荷量を小さくするにつれて duty 比が 0.5 に近づく傾向がみられた。しかし、電荷量を小さくするにつれて PP 構造が形成された領域も減少した。したがって、サンプルに与える電荷量を減らす方法は duty 比を制御した PP 構造形成には適していないことが分かった。

またこの結果より、 SiO_2 を装荷した PP 構造形成プロセスは図 3.25 のように説明できる。波板電極を装荷した結晶に高電界が掛かると 3.4.1 項で説明したように波板電極とレジストの境目に分極反転核が形成される。分極反転核は抵抗値が下がり導電性を持つようになるため、分極反転核の電位は結晶深さが同じ他の場所に比べて高くなる。すると分極反転核に電荷が集中するため、電荷が集中した分極反転核は選択的に結晶深さ方向に成長していく。選択的に成長した分極反転領域は結晶深さが同じ他の場所に比べて電位が高くなるためますます電荷が集中し-Z 面に到達する。-Z 面には SiO_2 絶縁層があるためリーク電流は流れず、他の部分に電荷が供給され始めるため他の分極反転核の成長が始まる。これが繰り返されることによって PP 構造が形成される。

表 3.9 電界印加条件

エリア	パルスの種類	印加電界 (V/mm)	パルス周期 (ms)	パルス幅 (ms)	電荷量 (μC)
F1	マルチ	850	0.15	0.05	7.8
F2	マルチ	850	0.15	0.05	6.1
F3	マルチ	850	0.15	0.05	4.4

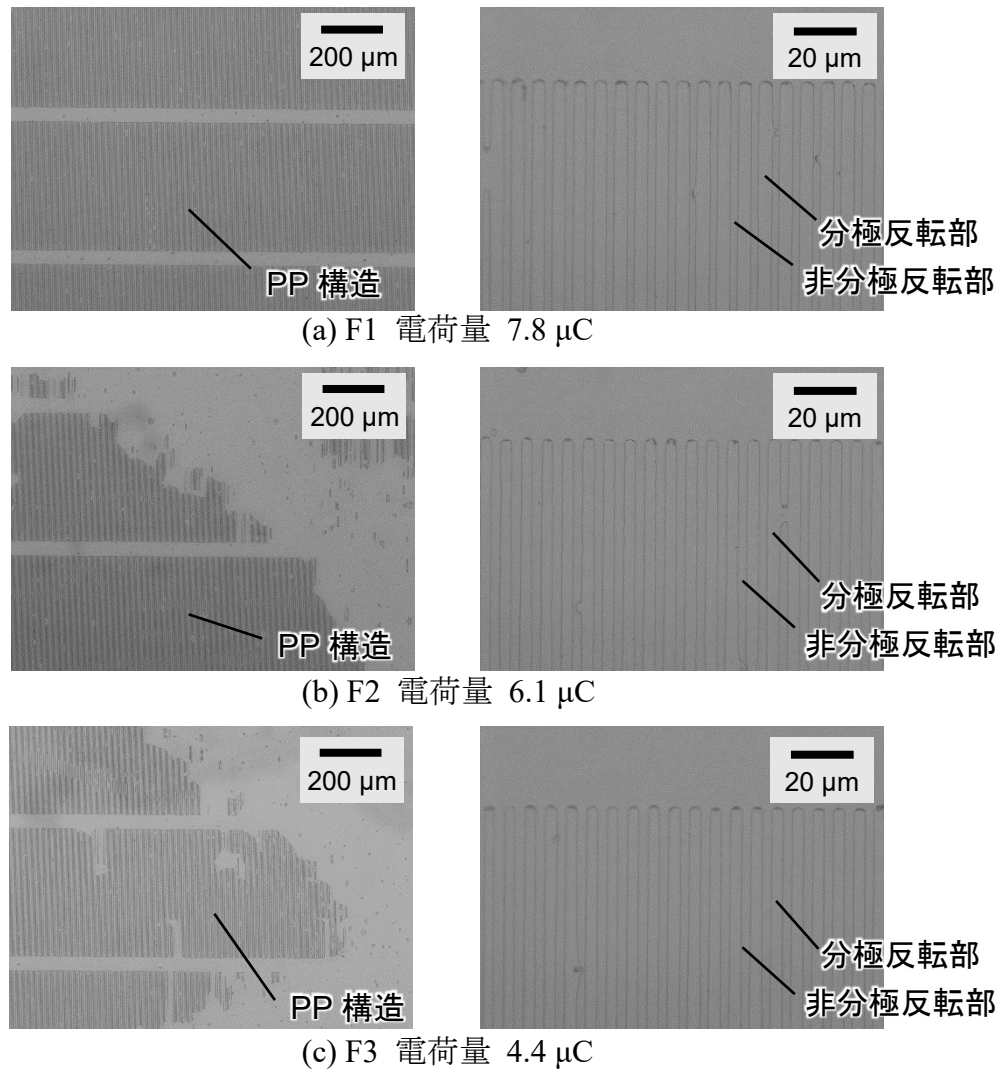


図 3.24 +Z 面の光学顕微鏡像(左:低倍率、右:高倍率)

次にレジストグレーティングの開孔幅を小さくすることで波板電極の結晶に接触する幅を狭くし、duty 比を 0.5 に近づけることを試みた。図 3.26(a)に示すようにフォトリソグラフィの露光時間が 11.5 s のとき、レジストグレーティングの周期に対する開孔幅の比は 0.4 であった。このとき、図 3.20 に示すように PP 構造の duty 比は 0.65 であった。つまり、電界印加中に電極の幅よりも 0.25 周期分、分極反転ドメインの幅が広がったことが分かった。どのような電極幅においても電界印加中に 0.25 周期分、分極反転ドメインの幅が広がると仮定すると、duty 比 0.5 の PP 構造を形成するためには電極幅は周期の 0.25 倍にする必要がある。本研究では、フォトリソグラフィの際の露光時間を短くすることでレジストグレーティングの開孔幅を小さくした。露光時間を 7.0 s とすることで図 3.26(b)に示すように所望のレジストグレーティングを形成することができた。

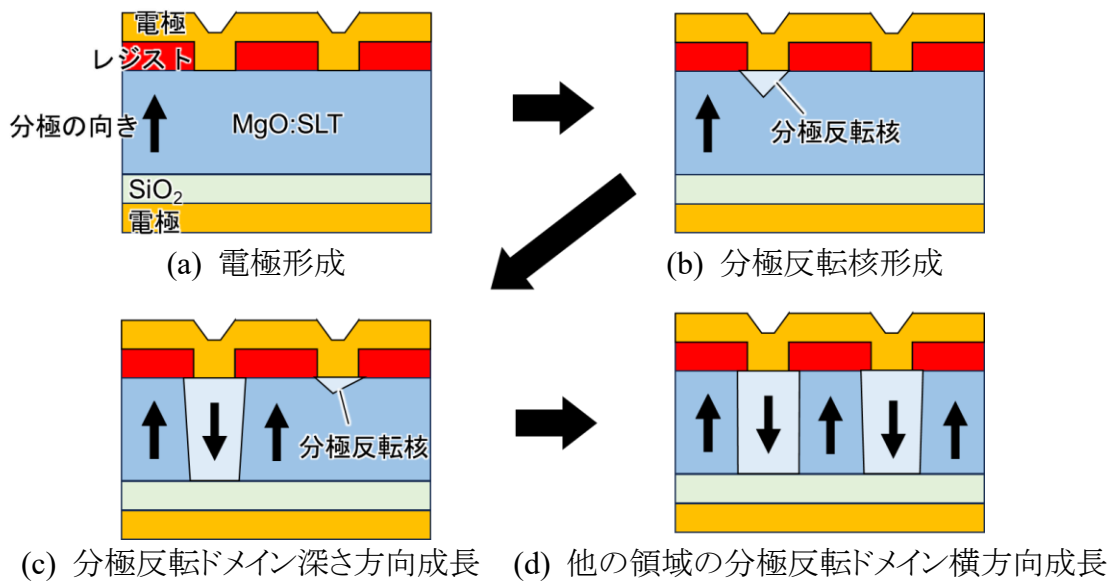


図 3.25 SiO_2 絶縁層があるときの分極反転が進む過程

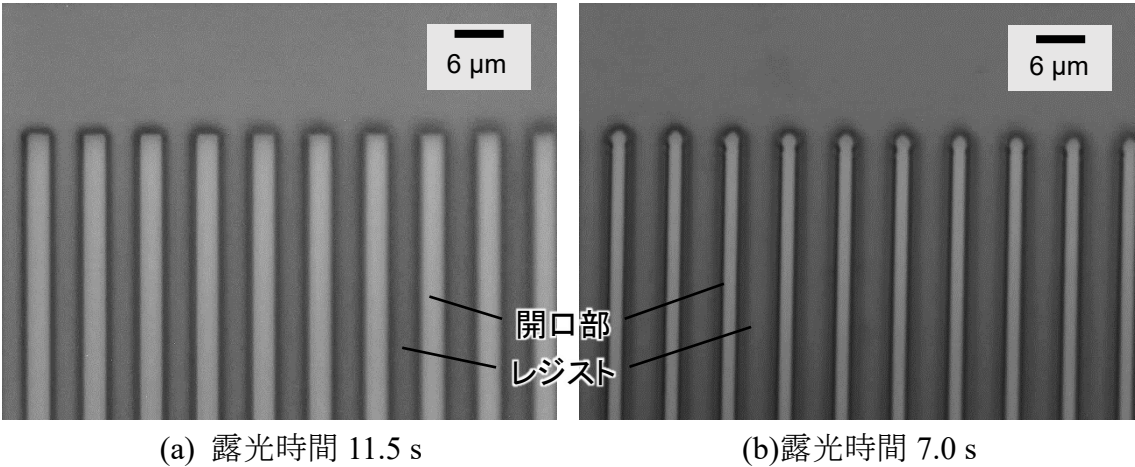


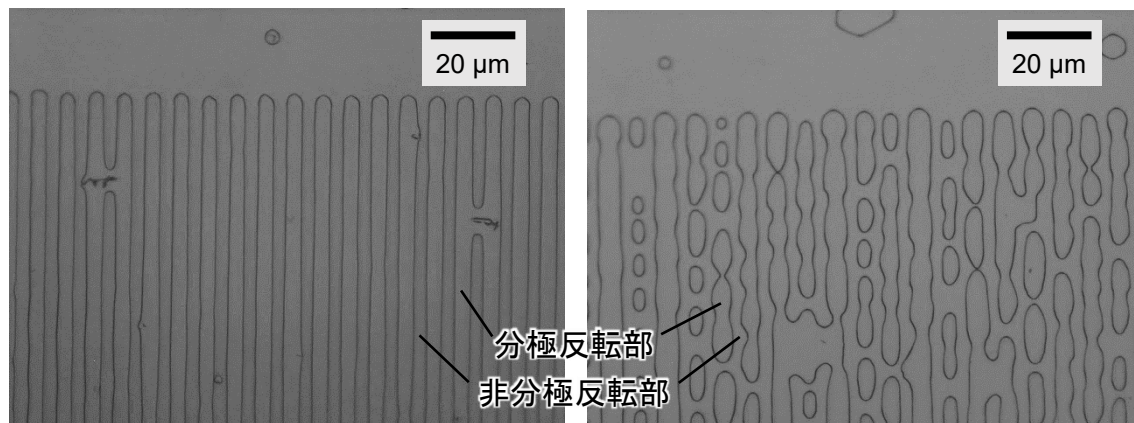
図 3.26 露光時間の違いによるレジスト開口幅の違い

4 分の 1 周期の電極幅を持つ波板電極を形成したサンプルの電界印加条件を表 3.10 に示す。このときのパルス周期、パルス幅はそれぞれ 0.15 ms、0.05 ms とした。フッ硝酸エッチング後の光学顕微鏡観察結果を図 3.27 に示す。+Z 面はどの電界印加

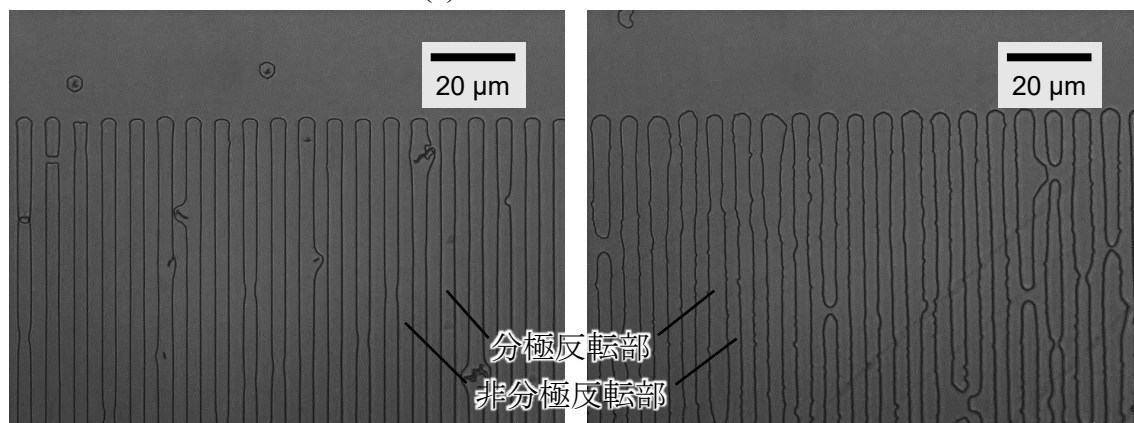
表 3.10 電界印加条件

エリア	パルスの種類	印加電界 (V/mm)	パルス周期 (ms)	パルス幅 (ms)	電荷量 (μC)
G1	マルチ	544	0.15	0.05	5.2
G2	マルチ	696	0.15	0.05	4.0
G3	マルチ	1064	0.15	0.05	4.0

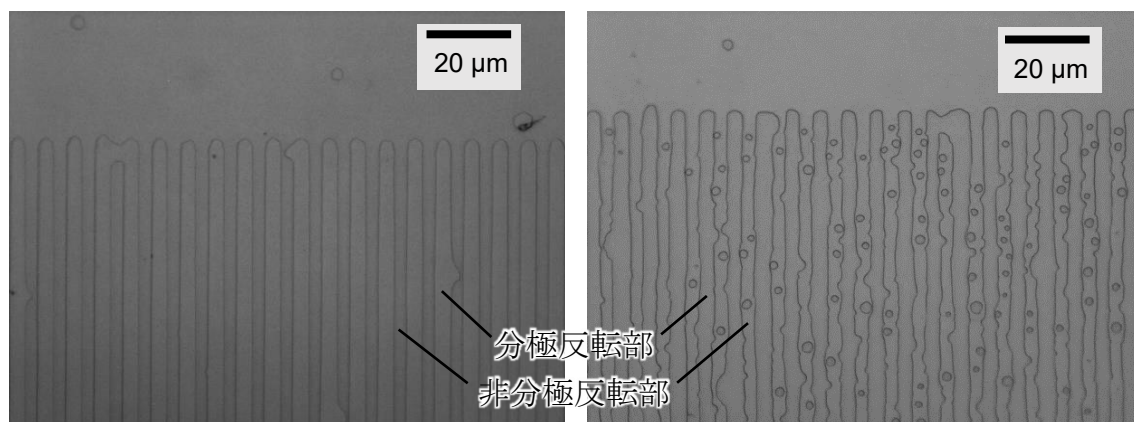
条件でも均一で duty 比が約 0.5 の PP 構造が作製できていた。 $-Z$ 面において、電界 544 V/mm では分極反転領域が途切れたり隣同士がつながったりしており、幅も広がっていた。電界 696 V/mm ではこの 3 条件の中では最も均一な PP 構造を形成できた。1064 V/mm では本来の PP 構造のほかに泡状の分極反転領域が形成されていた。サンプル断面の PP 構造を観察するために PP 構造が形成された領域をグレーティングに垂直にダイシングと端面研磨し、フッ硝酸エッチングを行った。696 V/mm の電界印



(a) G1 電界 544 V/mm



(b) G2 電界 696 V/mm



(c) G3 電界 1064 V/mm

図 3.27 光学顕微鏡像(左:+Z 面、右:-Z 面)

加を行った領域の断面の光学顕微鏡観察結果を図 3.28 に示す。結晶+Z 面から $30\ \mu\text{m}$ の深さにおける分極反転ドメインの幅は平均 $3.6\ \mu\text{m}$ であり、duty 0.5 の PP 構造を作製することができた。また、分散は $0.013\ \mu\text{m}^2$ であり、 SiO_2 を装荷せずに作製した PP 構造(図 3.20)より 1 桁良くなった。この分散の値から、変換効率は理想値の 0.99 倍以上となることが計算できた。

以上の結果から、 SiO_2 を装荷し、電極幅を周期の 0.25 とし、電界 $698\ \text{V/mm}$ 、パルス周期 $0.15\ \text{ms}$ 、パルス幅 $0.05\ \text{ms}$ で電界印加することで均一な $7.2\ \mu\text{m}$ PP 構造が作製できることが分かった。最後に、最適化した $7.2\ \mu\text{m}$ 周期 PP 構造の作製手順を以下に示す。

- ① -Z 面有機洗浄
- ② -Z 面 SiO_2 スパッタ堆積 ($1.0\ \mu\text{m}$)
- ③ +Z 面有機洗浄
- ④ 脱水バーク (90°C , 30 min)
冷却 (30 min)
- ⑤ +Z 面レジスト (S1813G) 塗布
(slope 5 s \rightarrow 1000 rpm, 10 s \rightarrow slope 5 s
 \rightarrow 5000 rpm 30 s \rightarrow slope 10 s \rightarrow END)
- ⑥ プリバーク (90°C , 30 min)
冷却 (30 min)
- ⑦ フォトリソグラフィ
 - 露光 (7.0 s)

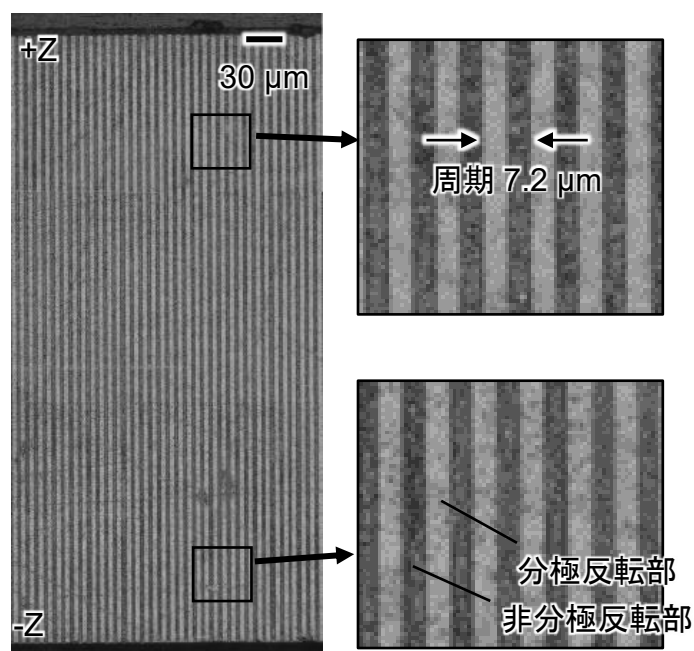


図 3.28 断面の光学顕微鏡像

- 現像 (351 DEVELOPER, 23°C, 90 s)
- リンス (超純水, 23°C, 90 s)
- ⑧ +Z 面 Au 蒸着 (90°C, 250 nm 厚)
- ⑨ -Z 面 Au 蒸着 (90°C, 250 nm 厚)
- ⑩ 電界印加
(120°C, シリコーンオイル中, 696 V/mm,
パルス周期 0.15 ms, パルス幅 0.05 ms)

3.5 アニールプロトン交換導波路の作製と横モード拡大

前節で均一な 7.2 μm 周期の PP 構造の作製プロセスを確立した。PP 構造のみでもバルクデバイスとして波長変換を行うことはできるが、本研究では波長変換効率向上と SHG デバイス、SFG デバイスの集積のために横モードサイズの大きな導波路を形成する。導波路として APE 導波路を選択したことは前述のとおりである。本節ではまず、APE 導波路作製の原理について説明し、その後、APE 導波路の横モード拡大についての実験結果を述べる。

3.5.1 アニールプロトン交換の原理

MgO:SLT は高温ピロリン酸等に入れることで結晶中の Li^+ と酸中の H^+ が交換される。この過程をプロトン交換 (PE) と呼ぶ。 Li^+ が H^+ に置き換わった領域は元の領域と比べて異常光屈折率が高くなり常光屈折率は低くなるため、異常光に対して導波路となる。APE 導波路の屈折率分布は H^+ 濃度分布に依存する。スラブ導波路における PE 後やアニール後の H^+ 濃度分布は式(3.6)で示す一次元拡散方程式の解となっている³³。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial C}{\partial x} \right) \quad (3.6)$$

ここで D は温度依存性のある H^+ の拡散係数である。また、図 2.1 のように x は基板に垂直な方向、 y は導波路に垂直で基板面に平行な方向、 z は導波路に沿った方向 (伝搬方向) とした。PE での H^+ の拡散係数は Li^+ の濃度が小さい領域では大きく、 Li^+ の濃度がある値まで減少すると急激に小さくなるというモデルでよく近似することができることが報告されている³⁴。このモデルで式(3.6)の拡散方程式を解くと H^+ 濃度分布はステップ型でよく近似でき、実際の測定結果と良い一致を示す^{33,35}。このとき、PE 領域の結晶表面からの深さ d_{PE} は PE 温度 T_{PE} と PE 時間 t_{PE} を用いて、

$$d_{\text{PE}} = 2\sqrt{D_{\text{PE}} t_{\text{PE}}} \quad (3.7)$$

$$D_{\text{PE}} = D_{\text{PE}0} \exp\left(-\frac{Q_{\text{PE}}}{k_{\text{B}}T_{\text{PE}}}\right) \quad (3.8)$$

と書ける³⁶。ここで、 D_{PE} は PE での拡散係数、 $D_{\text{PE}0}$ は PE での拡散定数、 Q_{PE} は PE での活性化エネルギー、 k_{B} はボルツマン定数である。

その後アニール処理を行うことで結晶に取り込まれた H^+ が結晶内を拡散する。PE 後すぐにアニールした場合のアニール後の H^+ 濃度分布 $C(x)$ は H^+ が d_{PE} の厚さの層から拡散するという状況のもと拡散方程式を解くことで

$$C(x) = \frac{Ah_{\text{PE}}}{2} \left[\text{erf}\left(\frac{d_{\text{PE}} + x}{d_{\text{a}}}\right) + \text{erf}\left(\frac{d_{\text{PE}} - x}{d_{\text{a}}}\right) \right], \quad (3.9)$$

$$\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt \quad (3.10)$$

となる。ここで、 A は MgO:SLT の原子密度である h_{PE} は PE により交換された Li^+ の割合である。また拡散方程式を解く際、結晶内では拡散定数が一定の値 D_{a} であり、空気と H^+ の反応が生じないと仮定し結晶と空気の境界では拡散定数が 0 であるとした。式(3.10)は誤差関数と呼ばれ図 3.29 のような関数である。 d_{a} は PE 領域の結晶表面からの $1/e^2$ 深さであり PE のときと同様にアニール温度 T_{a} とアニール時間 t_{a} を用いて、

$$d_{\text{a}} = 2\sqrt{D_{\text{a}}t_{\text{a}}} \quad (3.11)$$

$$D_{\text{a}} = D_{\text{a}0} \exp\left(-\frac{Q_{\text{a}}}{k_{\text{B}}T_{\text{a}}}\right) \quad (3.12)$$

と書ける。ここで、 D_{a} はアニールでの拡散係数、 $D_{\text{a}0}$ はアニールでの拡散定数、 Q_{a} はアニールでの活性化エネルギーである。前述のとおり PE 後の H^+ 分布はステップ型であるが、式(3.9),(3.10)よりアニールにより H^+ 分布が滑らかに変化していくことがわかる。なお、拡散時間が十分に長いとき式(3.9)はガウス関数で近似できる。 H^+ が取り込まれた領域と元の領域の屈折率差は H^+ の濃度が低いときは H^+ の濃度に比例することが知

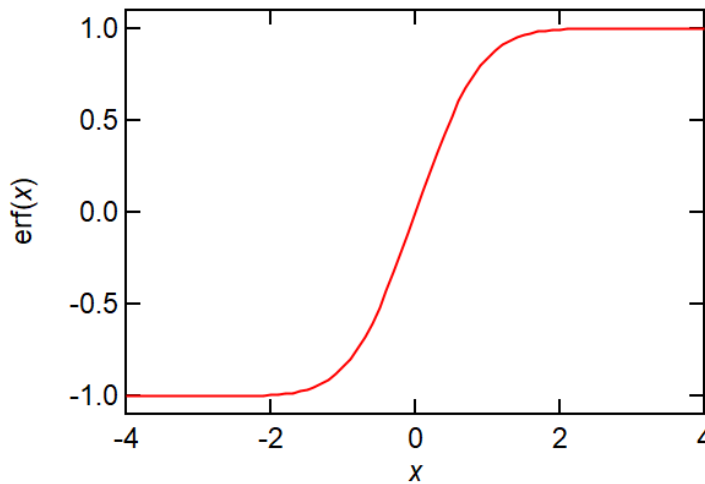


図 3.29 誤差関数

られている³⁵。つまり、APE 導波路はアニールを行うことでグレーデッドインデックス型の導波路となる。

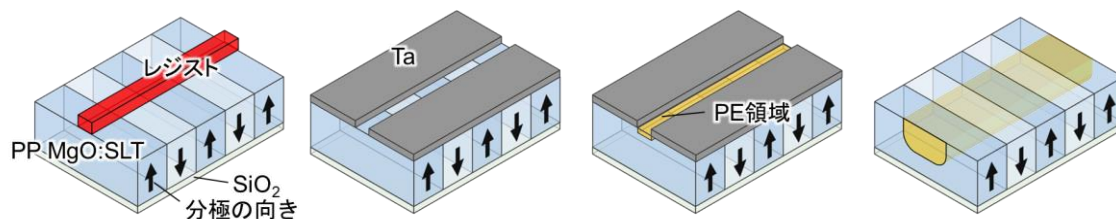
MgO:SLT 上のスラブ APE 導波路において PE 温度を 230°C 、PE 時間を 20 min、アニール温度を 400°C 、アニール時間を 242 h とすることで波長 355 nm のレーザ光の横モード $1/e^2$ 深さが $30\text{ }\mu\text{m}$ の導波路が報告されている²¹。しかし、本章では波長 1030 nm のレーザ光に対するチャンネル導波路の作製を目指しているため PE 条件とアニール条件を最適化しなければならない。PE による屈折率変化は波長が短い光ほど小さくなる³⁶。一方、同一の H^+ 濃度分布をもつ APE 導波路において導波路のカットオフとなるコアと基板の屈折率差は波長が長いほど大きくなる。また、横モードサイズは波長が長いほど大きくなる。更に、スラブ導波路では結晶に取り込まれた H^+ は実質的に結晶深さ方向にのみ拡散するが、チャンネル導波路では結晶に取り込まれた H^+ は結晶の深さ方向だけでなく幅方向にも拡散していくため、同条件でアニールした場合チャンネル導波路の方がアニール後の H^+ 濃度は小さい。これらのことより、波長 1030 nm 用のチャンネル導波路の作製条件は波長 355 nm のスラブ導波路の作製条件に比べて、 H^+ の取り込み量を多くし、 H^+ の拡散量を少なくする必要がある。本章では、PE 温度は 230°C に固定し PE 時間を長くすることで H^+ の取り込み量を多くした。また、アニール温度は 400°C に固定し、アニール時間を短くすることで H^+ の拡散量を少なくした。

3.5.2 アニールプロトン交換導波路の作製手順

本項では図 3.30 に示すように PP MgO:SLT を用いた APE 導波路の作製手順について述べる。

(a) フトリソグラフィによるレジストライン形成

前節で最適化した条件で作製した周期 $7.215\text{ }\mu\text{m}$ の PP MgO:SLT サンプルをトリクロロエタンとアセトンを用いてそれぞれ 15 min 超音波洗浄した後、エタノール、超純水の順に置換した。サンプルを超純水中から取り出し、窒素ガンで水分を吹き飛ばした。サンプルを、アルミホイルで覆われたシャーレに入れ、 140°C のオー



(a) フトリソグラフィ (b) Ta マスク形成 (c) プロトン交換 (d) アニール

図 3.30 APE 導波路作製プロセス

ブンで 30 min 脱水ベークを行った。脱水ベーク後室温で 30 min 静置しサンプルを冷却した。

スピコート (MS-A 100, MIKASA) を用いてポジ型フォトレジスト (MICROPOSIT S1813G, SHIPLEY) をサンプル+Z 面に塗布した。スピコートの条件は「slope 5 s \rightarrow 1000 rpm, 10 s \rightarrow slope 5 s \rightarrow 5000 rpm, 30 s \rightarrow slope 10 s \rightarrow END」とした。レジスト塗布後、サンプルをアルミホイルで覆われたシャーレに入れ、90°C のオーブンで 30 min 脱水ベークを行った。プリベーク後室温で 30 min 静置しサンプルを冷却した。

マスクアライナ (MA-10, MIKASA) を用いて幅 1, 2, 3, 5, 7, 10, 15, 20, 25, 30 μm の導波路パターンを露光時間 11.0 s でフォトレジストに転写した。23°C の現像液 (MICROPOSIT 351 DEVELOPER : 超純水 = 1 : 5, 体積比) を用いて 90 s で現像した。現像の際は反応が起こるサンプルの表面付近の現像液の濃度が不十分にならないかつレジストグレーティングパターン形状が崩れないように現像液をゆっくり攪拌した。その後、23°C の超純水で 90 s リンスを行い、窒素ガンでレジストグレーティングが崩れないように窒素の流速を抑えて丁寧に水分を吹き飛ばした。

(b) Ta マスク形成

DC スパッタ装置 (SPF-210H, ANELVA) を用いて Ta を成膜した。スパッタ条件は表 3.11 に示す通りであり、106 s のスパッタを行った。参照用のサンプルに同様の条件で Ta スパッタを行った後 DEKTAK で Ta 厚さを測定したところ、50 nm であった。

アセトンが入ったビーカーに Ta をスパッタしたサンプルを入れ、超音波を数十秒当てることでリフトオフを行った。開口幅が 1 μm と 2 μm のマスクはうまくリフトオフできなかったが、図 3.31 に示すように 3 μm 以上の開口幅においてはこの方法で Ta マスクをサンプル全面に形成することができた。

(c) プロトン交換

図 3.32 に示す PE 装置を用いて PE を行った。230°C に加熱したピロリン酸を用いた。室温から 230°C への急激な温度変化により MgO:SLT が割れたり焦電効果により意図しない分極反転が起こったりすることを防ぐために、 MgO:SLT はサンプルホ

表 3.11 Ta マスクスパッタ条件

背圧 (Pa)	スパッタ圧力 (Pa)	電力 (kW)	電圧 (V)	スパッタ時間 (s)
4.0×10^{-5}	1.0	0.1	521	106

ルダにセットした後、 230°C のピロリン酸の蒸気で 10 min 蒸らした。その後、サンプルをピロリン酸に漬け、PE を行った。所望の時間 PE を行った後、サンプルを高温ピロリン酸から取り出した。サンプルに残ったピロリン酸を除去するために、サンプルをアセトンで 15 min 超音波洗浄を行い、エタノール→超純水と置換し、窒素ガンで水分を飛ばした。

(d) Ta マスク除去と端面研磨

Ta エッチング液 ($\text{H}_2\text{O}_2(31\%) : \text{NaOH}(10\%) = 1 : 9$, 質量比) を用いて 80°C で Ta とエッチング液の反応が終わるまで約 30 min エッチングを行い、Ta マスクを除去した。

次に導波路の両端面を研磨した。まず図 3.33 に示すように、サンプルを同サイズにダイシングしたアクリル板で挟み込んだ状態で専用の治具に固定した。アクリル板でサンプルをはさむ目的は研磨中にサンプル表面を保護するためである。精密研磨装置 (MA-150, ムサシノ電子) と自動噴霧装置 (MS-2, ムサシノ電子) を用いて粒形 $3\ \mu\text{m}$ ダイヤモンドスラリーを塗布して、61 rpm で 15 min 研磨を行った。このとき、研磨盤は溝有の銅盤 (MF 銅盤, ムサシノ電子) を用いた。次に、

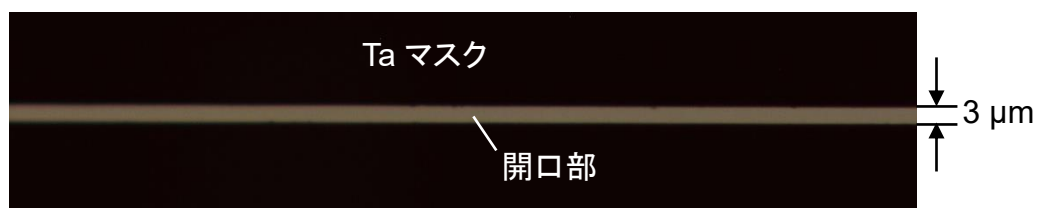


図 3.31 開口幅 $3\ \mu\text{m}$ のリフトオフ後の光学顕微鏡観察結果(透過光)

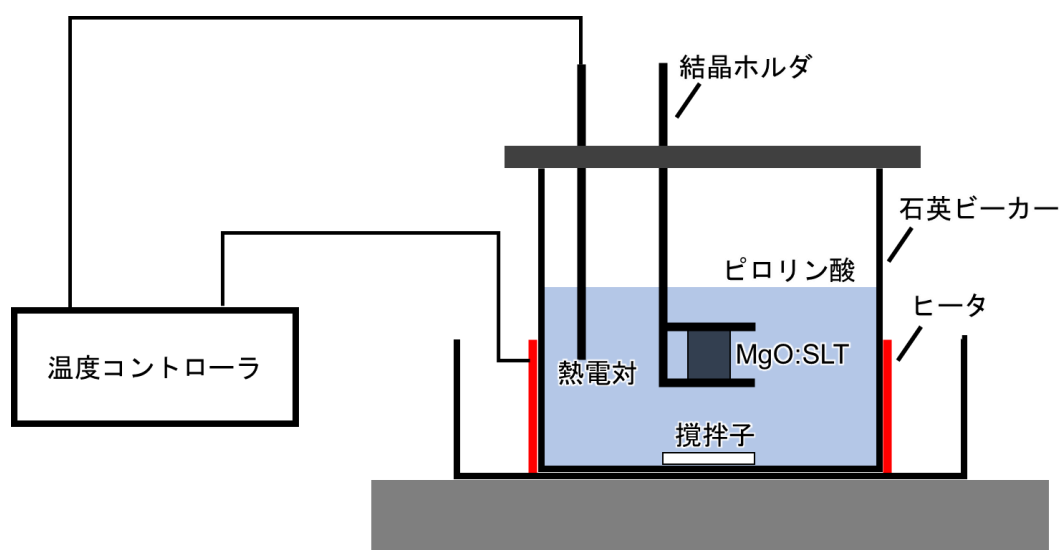


図 3.32 プロトン交換装置の概形

粒形 $0.5\ \mu\text{m}$ ダイヤモンドスラリーを塗布して 61 rpm で 15 min 研磨を行った。このとき、研磨盤は溝有の錫盤 (MF 錫盤, ムサシノ電子) を用いた。最後に精密研磨装置 (MA-200D, ムサシノ電子) を用いてコンポール 80 (コロイダルシリカ研磨剤)、30 rpm で 20 min 研磨した。このときの研磨盤は CMP パッド (IC1000, ムサシノ電子) を用いた。

(e) 酸素雰囲気中アニール

サンプルを石英管に入れた後、電気炉 (KTF453V, KOYO) に石英管を固定した。焦電効果による意図しない分極反転を防ぐために 100°C/h でゆっくりと 400°C まで昇温させた。このとき、 MgO:SLT の酸素欠損を防ぐために昇温時から O_2 を $50\ \text{mL/min}$ で石英管内に流して O_2 雰囲気でのアニールを行った。所望のアニール時間だけ 400°C で保持した後、 100°C/h でゆっくりと降温した。石英管内の温度が 100°C 以下になったことを確認して O_2 の供給を停止した。

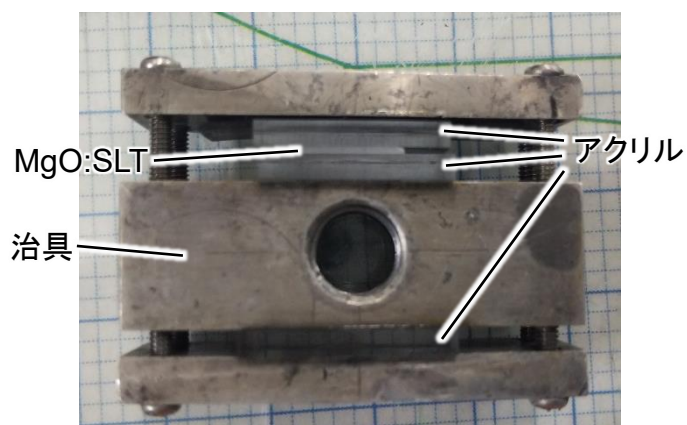


図 3.33 端面研磨治具と固定方法の様子

3.5.3 プロトン交換幅依存性

図 3.34 に示す光学セットアップで導波路出射光の近視野像観察を行った。光源は波長 1030.4 nm、出力 150 mW の Yb:YAG レーザ (MSL-FN-1030, Changchun New Industries Optoelectronics) を用いた。レーザ光を熱線吸収フィルタ F1 (HA-30, HOYA) と可変 ND フィルタによって減衰させた。その後、 $f = 75 \text{ mm}$ のレンズ L1 (AC-127-075-B-MI, Thorlabs) と、 $f = 60 \text{ mm}$ のレンズ L2 (AC-254-060-B-ML, Thorlabs) によってデバイス入射端面に結像した。このとき、レンズ L1、L2 の中心間距離は 47 mm であり、2 つのレンズの合計焦点距離は 51 mm である。この組み合わせレンズを用いることでレーザ光の焦点位置での $1/e^2$ 直径は約 $34 \mu\text{m}$ となった。デバイスを透過してきたレーザ光を 20 倍対物レンズで CCD カメラ (XC-75, Sony) に結像し、出射端面の近視野像観察を行った。このとき、デバイスには PP 構造が形成されているが、ヒータにより位相整合温度からずらすことによって SHG を起こさずに励起光の横モードの観察を行った。

図 3.35 に PE 時間 8 h、アニール時間 50 h のデバイスの出射光近視野像を示す。PE 幅が $7 \mu\text{m}$ のとき基底次モード導波が確認され、このときの横モードの $1/e^2$ 直径は幅 $44 \mu\text{m}$ 、深さ $34 \mu\text{m}$ と観測された。PE 幅が $10 \mu\text{m}$ の導波路では明るく見えるメインの横モード分布の他にも周囲に少し暗い横モード分布が観察された。このことから TM_{00} モード、 TM_{01} モード、 TM_{20} モードが同時に伝搬していることが分かり、この導波路はマルチモード導波路であることが分かった。PE 幅が $15 \mu\text{m}$ の導波路も TM_{00} モード、 TM_{01} モード、 TM_{20} モードが同時に伝搬しており、マルチモード導波路であることが分かった。PE 幅が $10 \mu\text{m}$ 以上の導波路では高次モード導波が確認されたため、正確な横モードサイズの測定は行うことができなかった。PE 幅が広くなるにつれて横モードサイズが小さくなり、より高次のモードが伝搬している様子が確認できた。これは PE 幅が広いほど PE 時により多くの H^+ が結晶中に取り込まれたためアニール後の屈折率差 Δn が大きくなり、導波路の実効屈折率が大きくなったためである。

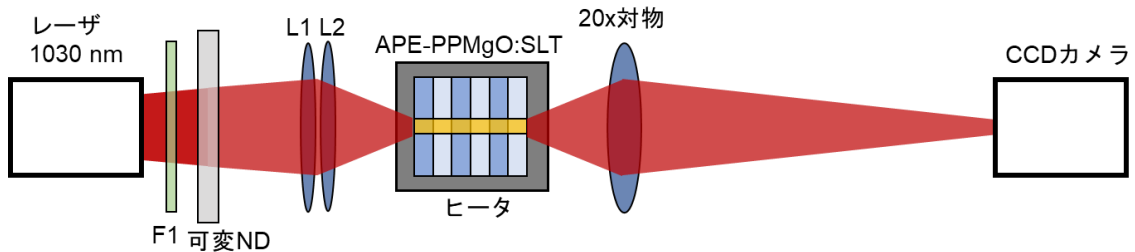


図 3.34 横モード観察時の光学系セットアップ

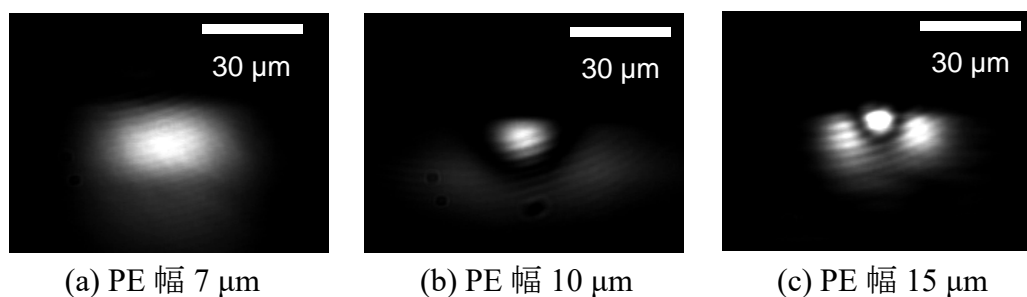
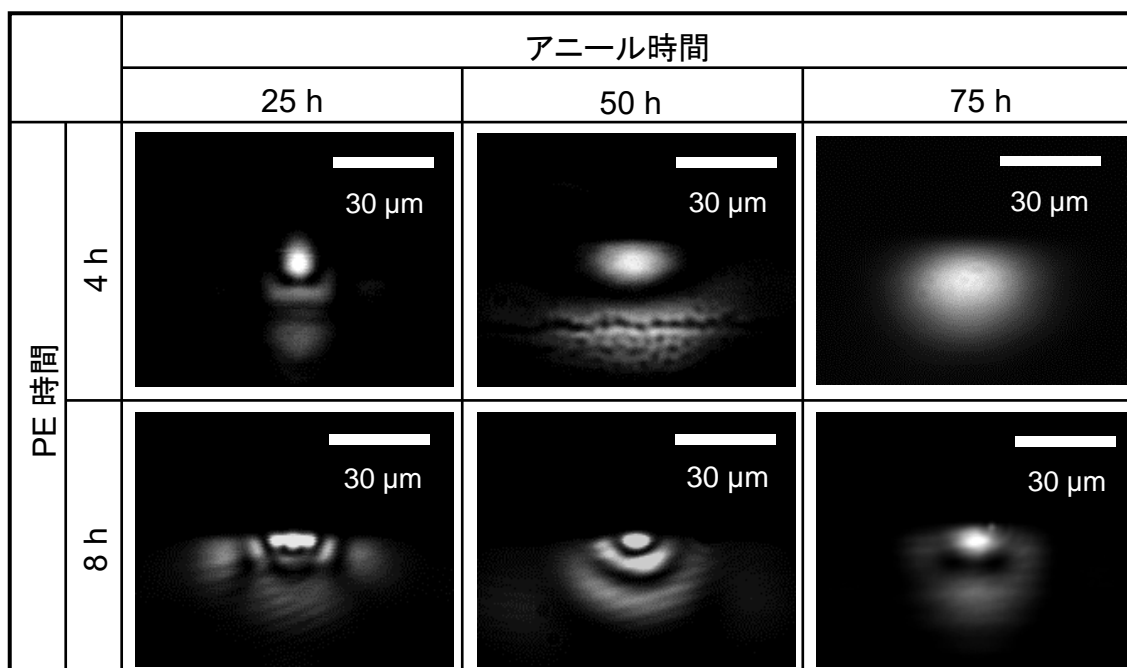


図 3.35 PE 時間 8 h、アニール時間 50 h のデバイスの出射光近視野像

3.5.4 プロトン交換時間依存性

横モードの PE 時間とアニール時間依存性を調べるために PE 幅 20 μm の導波路の観察を行った。PE 幅が 20 μm のデバイスの出射光近視野像を図 3.36 に示す。本章では PE 時間 4 h と 8 h を試した。アニール時間 25 h、50 h、50 h のいずれの導波路においても PE 時間が 8 h の導波路は PE 時間 4 h の導波路に比べて横モードサイズが小さくなり高次モードが導波していた。これは図 3.37 に示すように PE 時間が長いとき PE により H^+ がより多く取り込まれたためアニール後の屈折率差が大きくなり、導波路の実効屈折率が大きくなったためである。

図 3.36 PE 幅 20 μm のデバイスの出射光近視野像

3.5.5 アニール時間依存性

図 3.36 に示す通り、PE 時間 4 h、8 h いずれの導波路においてもアニール時間を長くするにつれて横モードサイズが大きくなり、より低次のモードが導波していることを確認できた。例えば、PE 時間 4 h、アニール時間 50 h の導波路では TM_{00} モード、 TM_{01} モード、 TM_{20} モードが同時に伝搬しており、PE 時間 8 h、アニール時間 50 h の導波路では TM_{00} モード、 TM_{01} モード、 TM_{02} モード、 TM_{20} モード、 TM_{40} モードが同時に伝搬していることが確認された。これは図 3.38 に示すようにアニール時間が長くなると導波路の屈折率差が小さくなることに加えて、より広い範囲に H^+ が拡散したためである。PE 時間 4 h、アニール時間 75 h のとき基底次モード導波が確認され、このときの横モードの $1/e^2$ 直径は幅 $43\text{ }\mu\text{m}$ 、深さ $28\text{ }\mu\text{m}$ と観測された。これは 3.3.2 項で見積もった 1 W クラス CW 350 nm 帯レーザーに対して光損傷が起こらないような励起光横モードサイズである。

PE 幅 $7\text{ }\mu\text{m}$ 、PE 時間 8 h、アニール時間 50 h もしくは PE 幅 $20\text{ }\mu\text{m}$ 、PE 時間 4 h、アニール時間 75 h のとき横モードサイズが大きく、基底次モードを導波することが確認できた。リッジ導波路等においては導波路近視野像とともに、導波路断面の屈折率分布からシミュレーションによりシングルモード導波路であることを確認するが、APE 導波路では屈折率分布が正確には分からないため、作製したこれらの導波路がシングルモード導波路であるかどうかは断定できなかった。しかし、基底次モードへの結合は容易に行うことができたため、マルチモード導波路であったとしても比較的低次のモードでカットオフとなっている可能性が高い。チャンネル APE 導波路においてシングルモード導波路であるかどうかの確認手法の確立は今後の課題である。

MgO:CLN において、APE 導波路形成によりフォトリフラクティブ損傷耐性は高くな

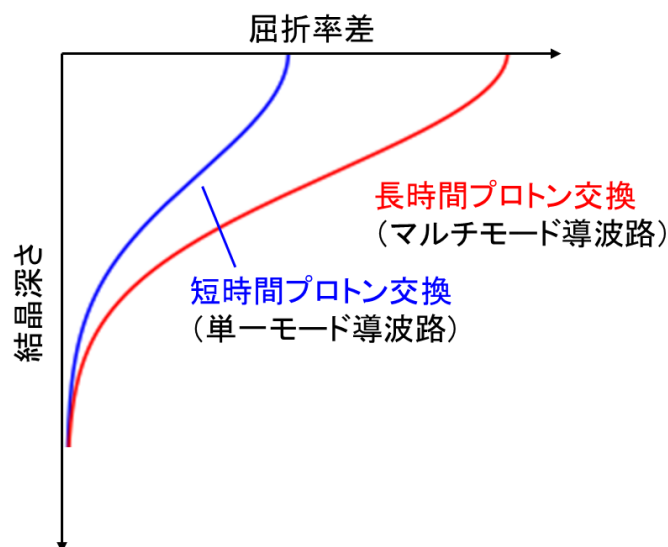


図 3.37 プロトン交換時間の違いによる導波路の屈折率差の概念図

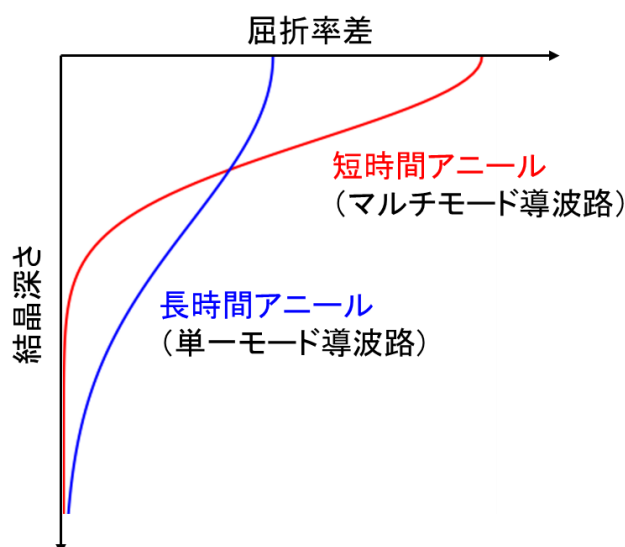


図 3.38 アニール時間の違いによる導波路の屈折率差の概念図

るが GRIIRA は多くなるという報告がある^{37,38}。また、非線形光学定数も PE により小さくなるが、長時間アニールにより回復することが報告されている²³。MgO:SLT においてもより長時間の PE によって取り込まれる H^+ の量が多いと GRIIRA が多くなり、非線形光学定数が小さくなる恐れがあるため、最適な作製条件は PE 幅 20 μm 、PE 温度 230°C、PE 時間 4 h、アニール温度 400°C、アニール時間 75 h とした。

3.6 第二高調波発生実験

3.6.1 光学実験セットアップ

作製した APE 導波路 QPM-SHG デバイスの光学実験を行った。測定したデバイスは分極反転周期 7.215 μm 、PE 時の PE 幅 20 μm 、PE 時間 4 h、アニール時間 75 h のものである。光学実験のセットアップを図 3.39 に示す。光源は波長 1030.4 nm、出力 150 mW の Yb:YAG レーザ (MSL-FN-1030, Changchun New Industries Optoelectronics) を用いた。レーザ光を熱線吸収フィルタ F1 (HA-30, HOYA) と可変 ND フィルタによって減衰させた。その後、 $f = 75 \text{ mm}$ のレンズ L1 (AC-127-075-B-M1, Thorlabs) と、 $f = 60 \text{ mm}$ のレンズ L2 (AC-254-060-B-ML, Thorlabs) によってデバイス入射端面に絞った。このとき、レンズ L1、L2 の中心間距離は 47 mm であり、2 つのレンズの合計焦点距離は 51 mm である。この組み合わせレンズを用いることでレーザ光の焦点位置での $1/e^2$ 直径は約 34 μm となった。ヒータの温度を調整した後、図 3.39(a) のようにデバイスを透過してきたレーザ光を 20 倍対物レンズで CCD カメラ (XC-75, Sony) に結像し、出射端

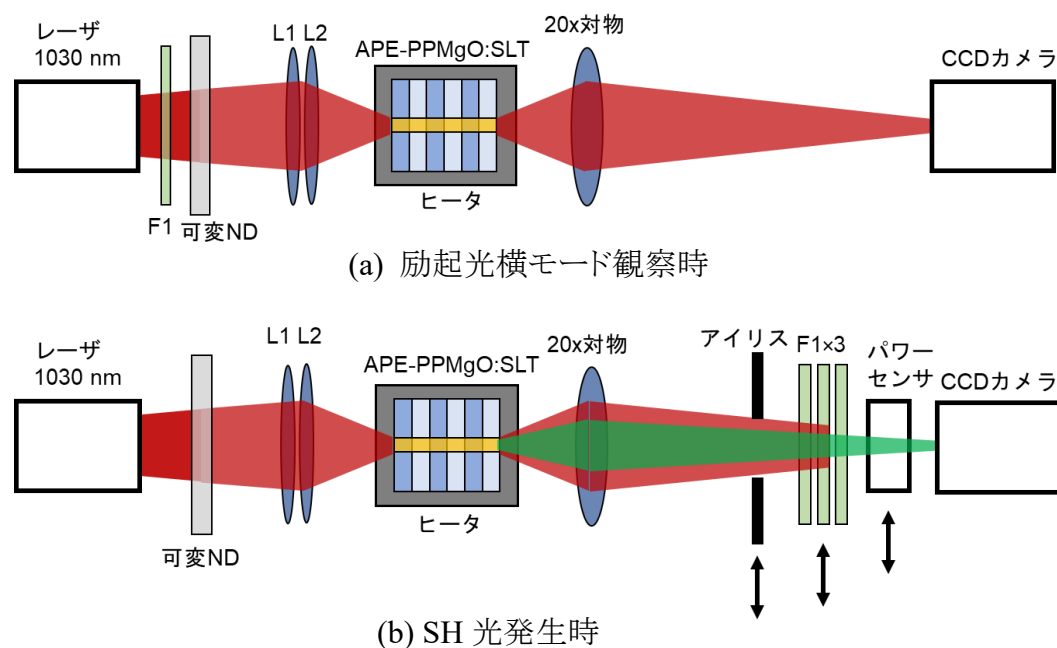


図 3.39 導波路 SHG 測定用の光学実験セットアップ

面の近視野像観察を行った。次に図 3.39(b)のように導波光のみがアイリスを透過するように調節した後、熱線吸収フィルタ F1 を取り外しサーマルパワーセンサ (S401C, Thorlabs) で励起光パワーを測定した。このとき、デバイスの温度によっては SH 光が発生していたが、SH 光パワーは最大でも励起光パワーの 1/1000 程度であり、各波長の感度を考慮しても有効数字以下であったため、SH 光パワーは無視した。次に、パワーセンサをより低パワーを測定できる薄型パワーセンサ (S130VC, Thorlabs) に変更し、熱線吸収フィルタをセンサの直前に置くことで励起光を十分減衰させてから SH 光パワーの測定を行った。最後に、パワーセンサを取り除き可変 ND フィルタを調整したあと、SH 光の出射端近視野像を CCD カメラで観察した。この光学系におけるデバイスのフレネル反射率や各光学素子の透過率を表 3.12 に示す。次節以降のパワーや変換効率はこれらを考慮した値である。

表 3.12 各波長の光に対する透過率とフレネル反射率

波長	透過率		フレネル反射率
	20 倍対物レンズ	HA30	デバイス
1030 nm	0.86	0.0014	0.13
515 nm	0.89	0.84	0.14

3.6.2 規格化変換効率のデバイス温度依存性

規格化変換効率のデバイス温度依存性を調べた。規格化変換効率のデバイス温度依存性を図 3.40 に示す。デバイス温度を 0.5°C ずつ上げていくと、 46.0°C で位相整合し、規格化変換効率が最大となった。そのときの励起光と SH 光の波長スペクトルを光スペクトラムアナライザ (AQ6373B, Yokogawa) で測定した結果を図 3.41 に示す。測定波長レンジに最適なコア径のファイバを用いていなかったためスペクトル幅が広がっているが、ピーク位置を読み取ると波長 1030.4 nm から波長 515.2 nm の SHG が起こっていることを確認した。位相整合温度が 3.3.3 項で求めたバルク $\text{MgO}:\text{SLT}$ SHG デバイスの位相整合温度の理論値 55.0°C より低くなった理由として以下のように考えられる。位相整合温度は励起光と SH 光の屈折率差により決定される。結晶温度が低くなると屈折率差は小さくなるため、位相整合温度における理論値と測定値の違いは、PE により励起光と SH 光の屈折率差が大きくなったことを示している。デバイス温度が 46.0°C のピークの半値全幅は 2.6°C であった。半値全幅が 3.3.3 項で求めた 1.8°C より

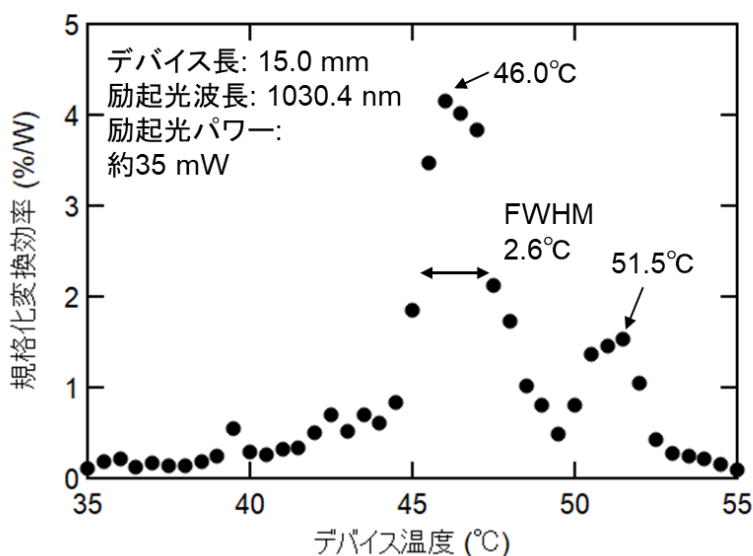


図 3.40 規格化変換効率のデバイス温度依存性

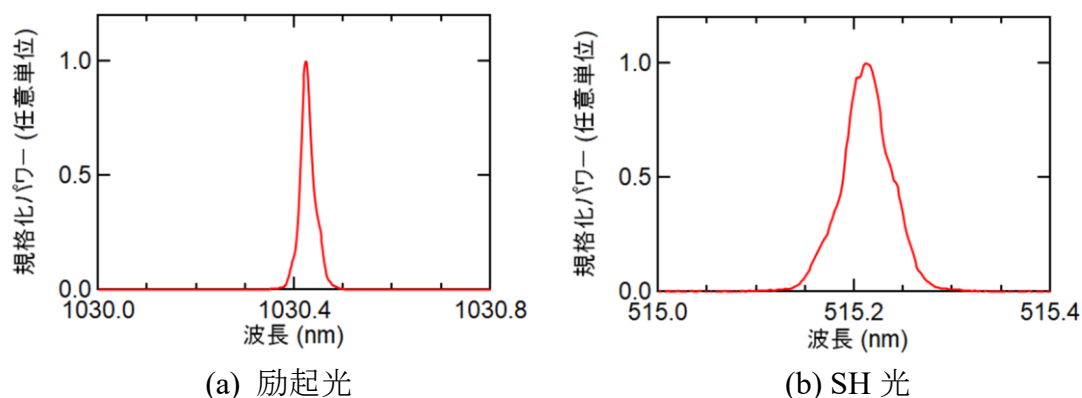


図 3.41 波長スペクトル

りも大きくなっている理由として導波路内の温度むらがあった可能性が挙げられる。

更にデバイス温度を上げていくとデバイス温度 51.5°C のときも規格化変換効率のピークがみられた。デバイス温度 46.0°C と 51.5°C のときの SH 光の横モードを図 3.42 に示す。デバイス温度が 46.0°C のときは TM_{00} モードが、デバイス温度が 51.5°C のときは TM_{01} モードが観察された。これは図 3.43 のように説明できる。デバイス温度が 46.0°C のとき、励起光 TM_{00} モードと SH 光 TM_{00} モードが位相整合している。 MgO:SLT を含む多くの材料では実効屈折率の温度分散は吸収端に近い短波長ほど大きくなる。また、 MgO:SLT ではデバイス温度が高くなるほど実効屈折率が大きくなる。さらに、 TM_{01} モード等の高次のモードは低次のモードに比べて実効屈折率が小さいためデバイス温度が 46.0°C より高いときに SH 光 TM_{01} モードと励起光 TM_{00} モードが位相整合する。ここで、屈折率が結晶深さ方向に対称な導波路では励起光 TM_{00} モードと SH 光 TM_{01} モードの非線形結合係数 κ は式(2.45)より 0 となり、位相整合したとしても波長変換は起こらないが、APE 導波路は屈折率が結晶深さ方向に非対称であるため κ の値が 0 より大きくなり、波長変換が起こった。実際に図 3.36 の励起光横モードや図 3.42 の SH 光横モードを見ると、深さ方向に非対称なモード分布となっていることから、屈折率が深さ方向に非対称である。これは式(3.9)からわかる通り、APE 導波路の H^+ 濃度はサンプル表面で最も高くなるためである。非対称な屈折率分布によって今後 SFG による紫外光発生の際に励起光と SH 光の電界の腹の位置がずれることにより非線形結合係数が小さくなり、変換効率が低くなってしまう恐れがある。また、非対称な横モードは応用先であるレーザ直接描画装置の光源として使用する際に解像

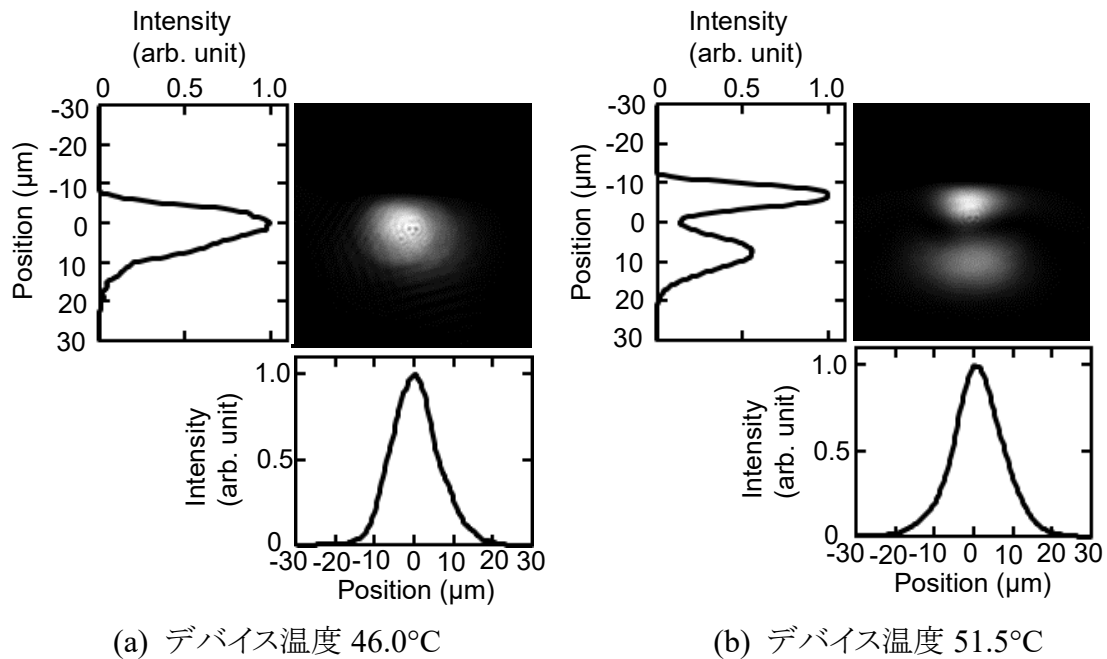


図 3.42 SH 光横モード

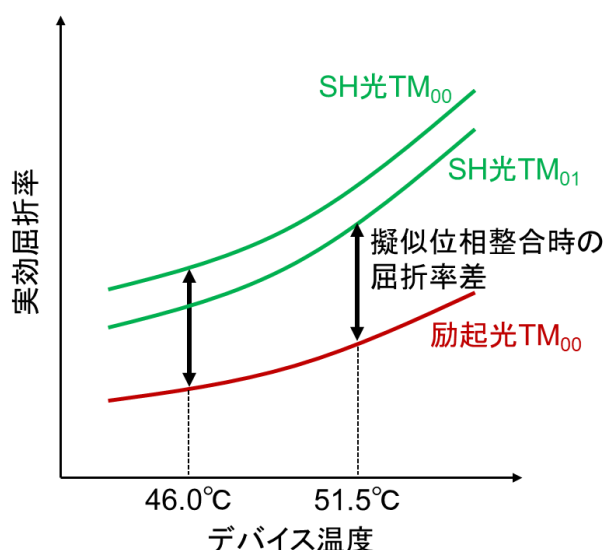


図 3.43 実効屈折率のデバイス温度依存性の概念図

度を下げたことと描画の不均一性の原因となる。対称性の改善は次章で述べる。

また、デバイス温度 46.0°C のときの SH 光の $1/e^2$ 直径は幅方向 $24\ \mu\text{m}$ 、深さ方向 $18\ \mu\text{m}$ であり、横モード断面積は $340\ \mu\text{m}^2$ となった。前述のとおり、CLN や MgO:CLN において APE 導波路形成によりフォトリラクティブ損傷耐性が高くなるという報告がある^{37,39}。 MgO:SLT における APE 導波路形成によるフォトリラクティブ損傷耐性の変化は報告されていないが、CLN や MgO:CLN と同様に損傷耐性が高くなると仮定すると、波長 $532\ \text{nm}$ におけるフォトリラクティブ損傷閾値は少なくとも $2\ \text{MW}/\text{cm}^2$ である。この値と測定された SH 光の横モード断面積よりこの導波路は $3.4\ \text{W}$ までの SH 光発生を行うことができると見積もられた。高パワー緑光発生時には高パワーレーザ入射により媒質の屈折率が変化する恐れがある。前述のとおりこの原因は GRIIRA による赤外吸収によりデバイスの内部温度が上昇するためであると考えられており、 MgO:SLT は GRIIRA が少ないため高パワー波長変換時のデバイス温度上昇は MgO:CLN などと比べて少ないと考えられる。また、 MgO:SLT は熱伝導率が MgO:CLN の 2 倍程度高いため、デバイス温度が上昇した場合、ステージ温度を調節することでデバイスを位相整合温度に合わせることができる。

3.6.3 第二高調波パワーと変換効率の励起光パワー依存性

次に規格化変換効率の測定を行った。デバイス温度を 46.0°C にし、可変 ND フィルタで励起光パワーを調整しながら SH 光パワーを測定した。図 3.44 に SH 光パワーと変換効率の励起光パワー依存性を示す。図 3.44 中の赤線と青破線はそれぞれ SH 光パワーを 2 次関数でフィッティングした曲線と変換効率を 1 次関数でフィッティングした直線である。励起光パワーと SH 光パワーの 2 乗特性が測定されたため、2 次の

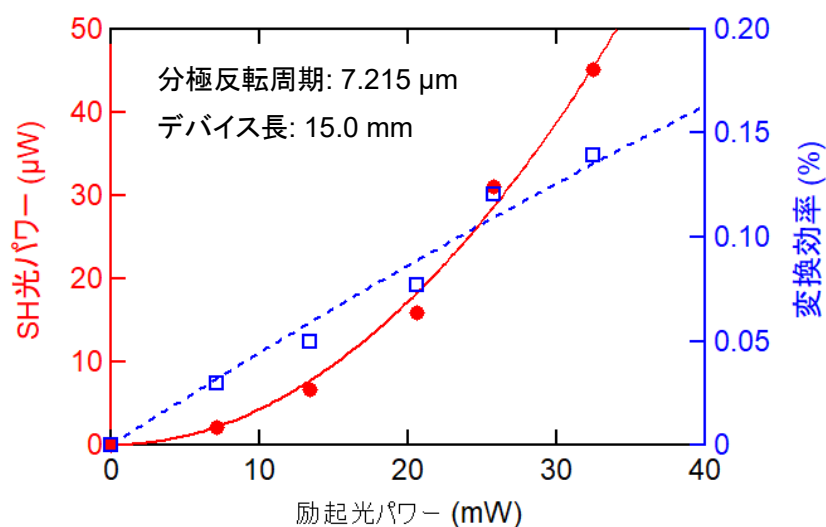


図 3.44 SH 光パワーと変換効率の励起光パワー依存性

非線形光学効果による波長変換であることが確認できた。変換効率の傾きが規格化変換効率であり、その値は 4.3%/W と見積もられた。非線形光学定数 $d_{33} = 13.8 \text{ pm/V}$ を用いると、式(2.52)より $\kappa = 0.014 \text{ W}^{-1/2}\text{mm}^{-1}$ と計算された。高パワー SHG においても規格化変換効率が変わらないと仮定すると、励起光パワー 10 W のとき、SHG デバイス長を 11.0 mm とすることで 2 W の SH 光が見込まれ、さらに、デバイス長 5.8 mm の SFG デバイスをカスケード接続することで 1 W の SF 光が見込まれる。なお、GRIIRA が生じた場合や高パワー光導波により導波路内に温度勾配が生じた場合は変換効率が下がるため、高パワー SHG における規格化変換率は実験的に求める必要がある。縦横共にシングルモードの 10 W YAG レーザを用いた高パワー波長変換実験は今後の課題である。

3.3.3 項の理論計算では APE 導波路の横モードは楕円型のガウシアン分布を持っていると仮定した。しかし、実際の横モードは APE 導波路の屈折率の結晶深さ方向の非対称性により楕円形のガウシアン分布とはならない。測定された規格化変換効率と理論予測を比べるために、測定された励起光と SH 光の横モードから以下の方法で非線形結合定数 κ と規格化変換効率の理論予測値を求めた。まず、CCD カメラ上において 0–255 で表される各ピクセルの明るさはそのピクセルで受光したパワーに比例することをあらかじめ確認した。つまり、観測した励起光と SH 光の各ピクセルでの値はそのピクセルでのパワー密度に比例している。この各ピクセルでのパワー密度から式(2.27)を用いて各ピクセルでの電界を求め、式(2.45)を用いて非線形結合係数の計算を行った。このとき非線形光学定数は $d = 13.8 \text{ pm/V}$ を用いた。また、励起光と SH 光の位置はまず結晶深さ方向に対してデバイスの境界で合わせ、結晶幅方向に対しては κ の値が最大となる位置で計算した。その結果、 $\kappa = 0.015 \text{ W}^{-1/2}\text{mm}^{-1}$ と計算された。式(2.52)より、規格化変換効率の理論値は 5.1%/W と見積もられた。実測規格化変換

効率が理論値より小さかった理由として、PP 構造の duty 比がデバイス端で 0.5 より低かったことや、デバイスの温度がデバイス内で一定ではなかったことが挙げられる。PP 構造の duty 比が結晶端で 0.5 より低かった理由はフォトリソグラフィの不均一性に起因しているため、フォトリソグラフィの精度を高める、または、大きな結晶の中央付近のみをデバイスとして用いることで改善が期待できる。ただし、実測規格化変換効率は理論値の 84%以上であるため、十分に高い値となった。

3.7 まとめ

レーザ直接描画装置の光源に向けた高出力 CW 波長変換デバイス実現には横モードサイズを $1/e^2$ 直径 30 μm 程度まで拡大しなければならない。本章ではレーザ直接描画装置の光源への第一歩として、MgO:SLT 上の均一な PP 構造作製と高出力波長変換に向けて APE 導波路の横モード拡大を行い、そのデバイスを用いて SHG の実証を行った。本章で得られた知見と今後の課題を以下にまとめる。

PP 構造作製では、MgO:SLT は MgO:CLN で報告のあるように分極反転直後は抵抗率が下がり、先に結晶を貫通した分極反転ドメインにリーク電流が流れることで一様な PP 構造の形成が妨げられていることが分かった。リーク電流を防ぐために SiO₂ 絶縁層を装荷することで一様な PP 構造が作製できた。電界印加中、分極反転ドメインは結晶深さ方向だけでなく幅方向にも広がるため、電極幅の周期に対する割合を 0.25 程度にすることで、duty 比が約 0.5 の PP 構造を作製することができた。

APE 導波路の横モード拡大について、長時間 PE により MgO:SLT に H⁺を多く取り込んだ後、長時間アニールを行うことにより取り込んだ H⁺をより遠くに拡散させることで目標としていた $1/e^2$ 直径 30 μm 程度まで横モードを拡大することに成功した。作製した導波路の基底次モードへのレーザ光の結合は容易に行うことができたが、この導波路がシングルモード導波路であるかどうかの確認手法の確立は今後の課題である。

横モードサイズの大きな APE 導波路 SHG デバイスでの光学実験では、デバイス温度 46.0°C のときに TM₀₀ モード、51.5°C のときに TM₀₁ モードの SH 光が発生していた。TM₀₁ モードの SH 光が発生したことや励起光、SH 光の横モード形状から作製した APE 導波路は結晶深さ方向に非対称な屈折率分布をもっていることが分かった。非対称な屈折率分布の導波路は SFG 効率の低下やレーザ直接描画装置に応用する際の均一性の低下につながるため、改善が必要である。対称性の改善については次章で述べる。

対称性の改善は必要であるが、APE 導波路の横モードを目標としていた $1/e^2$ 直径 30 μm 程度まで拡大することに成功した。

参考文献

1. I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 2268 (1997).
2. N. Pavel, I. Shoji, T. Taira, K. Mizuuchi, A. Morikawa, T. Sugita, and K. Yamamoto, Opt. Lett. **29**, 830 (2004).
3. J. Sun and C. Xu, Opt. Lett. **37**, 2028 (2012).
4. F. C. Zumsteg, J. D. Bierlein, and T. E. Gier, J. Appl. Phys. **47**, 4980 (1976).
5. K. Kitamura, Y. Furukawa, S. Takekawa, T. Hatanaka, H. Ito, and V. Gopalan, Ferroelectrics **257**, 235 (2001).
6. J. Wang, J. Wei, Y. Liu, X. Hu, Z. Shao, and M. Jiang, Prog. Crystal Growth and Charact. **40**, 3 (2000).
7. 北村健二, 竹川俊二, 羽田 肇, 応用物理 **74**, 573 (2005).
8. Y. K. Yang, C. L. Tsai, J. Y. Lai, C. S. Hsu, Y. Y. Lin, C. C. Fu, and S. D. Yang, CLEOPR 26P_44 (2015).
9. M. K. Shukla, S. Kumar, and R. Das, IEEE Photon. Technol. Lett. **27**, 1379 (2015).
10. J. Hirohashi, T. Tago, O. Nakamura, A. Miyamoto, and Y. Furukawa, Proc. SPIE **6875**, 687516 (2008).
11. S. Sinha, M. J. F. Digonnet, and R. L. Byer, J. Light. Technol. **26**, 3866 (2008).
12. J. Hirohashi, Y. Tomihari, T. Fukui, S. Makio, K. Suzuki, K. Imai, H. Motegi, and Y. Furukawa, ASSP AT4A.22 (2012).
13. J. Hirohashi, K. Imai, H. Motegi, Y. Tomihari, T. Fukui, and Y. Furukawa, CLEO, CMG4 (2010).
14. S. C. Kumar, G. K. Samanta, and M. E. Zadeh, Opt. Express **17**, 13711 (2009).
15. D. C. Brown, IEEE J. Quantum Electron. **QE-33**, 861 (1997).
16. D. L. Yu and D. Y. Tang, Opt. Laser Technol. **35**, 37 (2003).
17. H. Bruesselbach, D. S. Sumida, R. Reeder, and R. W. Byren, in *Advanced Solid-state Lasers*, ed. by M. Fejer, H. Injeyan, U. Keller. OSA Trend in Optics and Photonics Series, Vol. 10 (Opt. Soc. America, Boston, 1997), p. 285.
18. E. C. Honeda, R. J. Beach, S. C. Mitchell, J. A. Skidmore, M. A. Emanuel, S. B. Sutton, S. A. Payne, P. V. Avizonis, R. S. Monroe, and D. G. Harris, Opt. Lett. **25**, 805 (2000).
19. T. Dascalu, T. Taira, and N. Pavel, Jpn. J. Appl. Phys. **41**, L606 (2002).
20. I. Dolev, A. Ganany-Padowicz, O. Gayer, A. Arie, J. Mangin, and G. Gadret, Appl. Phys. B **96**, 423 (2009).

21. M. Okazaki, T. Chichibu, S. Yoshimoto, H. Mizuno, and T. Suhara, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 070301 (2015).
22. F. Kienle, D. Lin, S. Alam, H. S. S. Hung, C. B. E. Gawith, H. E. Major, D. J. Richardson, and David P. Shepherd, J. Opt. Soc. Am. B **29**, 144 (2012).
23. M. L. Bortz, L. A. Eyres, and M. M. Fejer, Appl. Phys. Lett. **62**, 2012(1993).
24. 宮澤信太郎, 栗村直, 分極反転デバイスの基礎と応用 光・電子デバイスの新機軸を開く材料テクノロジー (オプトロニクス社, 東京, 2005) 第1版, 3章.
25. 栗村直, レーザー研究 **37**, 254 (2009).
26. K. Kitamura, Y. Furukawa, K. Niwa, V. Gopalan, and T. E. Mitchell, Appl. Phys. Lett. **73**, 3073 (1998).
27. H. Ishizuki, I. Shoji, and T. Taira, Appl. Phys. Lett. **82**, 4062 (2003).
28. M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, IEEE J. Quant. Electron. **28** 2631 (1992).
29. K. Mizuuchi, A. Morikawa, T. Sugita, and K. Yamamoto, J. Appl. Phys. **96**, 6585 (2004).
30. N. Horikawa, T. Tsubouchi, M. Fujimura, and T. Suhara, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, 5178 (2007).
31. LiTaO_3 , 株式会社ネオトロン (<http://www.neotron.co.jp/crystal/9/LiTaO3.html>) 2023/11/30 閲覧
32. セラミック加工 (<https://ceramics.s-projects.net/material/every-property/sio2.html>) 2023/11/30 閲覧
33. J. Crank, *The mathematics of diffusion* (Oxford university press, 1975) Second edition, chap. 7.
34. S. T. Vohra, A. R. Mickelson, and S. E. Asher, J. Appl. Phys. **66**, 5161 (1989).
35. P. J. Matthews, A. R. Mickelson, and S. W. Novac, J. Appl. Phys. **72**, 2562 (1992).
36. T. Suhara and M. Fujimura, Waveguide Nonlinear-Optic Devices (Springer, Berlin, 2003) Chap. 6.
37. J. F. Campos, Y. Wang, W. L. C. Q. Xu, and I. V. Baca, Proc. SPIE **6796**, 679619 (2007).
38. J. Sun and C. Q. Xu, J. Opt. Soc. Am. B **31**, 2779 (2014).
39. O. C. Calero, A. G. Cabañes, J. M. Cabrera, M. Carrascosa, and A. Alcázar, J. Appl. Phys. **100**, 093103 (2006).

第4章 定比組成 LiTaO_3 擬似位相整合

アニールプロトン交換導波路の横モード対称化

4.1 はじめに

第3章では高パワー波長変換に向けた MgO:SLT を用いた APE 導波路縦型 QPM-SHG デバイスの横モード拡大と SHG を行った。しかし、APE 導波路の屈折率分布は結晶深さ方向に非対称であり、それにより横モードも非対称になった。非対称の横モードは例えばレーザ直接描画装置に応用する際に解像度を下げってしまうことや不均一性の原因となること等の応用上のデメリットが存在する。また、波長 355 nm の SFG の際に励起光と SH 光の電界の腹の位置がずれることにより非線形結合係数が小さくなり、変換効率が低くなってしまう恐れもある。そこで本章では横モードの対称化を行った。

横モードの対称化を行うために、従来の横モード直径数 μm の APE 導波路においては逆プロトン交換 (reverse proton exchange, RPE) という手法が研究されてきた¹⁻³。RPE 導波路はプロトン交換とアニールを行った結晶を Li^+ が含まれる高温溶液に漬けることで APE 結晶中の H^+ と溶液中の Li^+ を交換する。この交換によって、図 4.1 のように屈折率の極大位置が結晶の内部に移動するため、横モードが対称に近づく。実際、RPE 導波路において従来の APE 導波路の 3 倍の変換効率も報告されている¹。しかし、RPE 時の Li^+ の拡散定数はアニールによる H^+ の拡散定数の 1/5 程度の 0.257

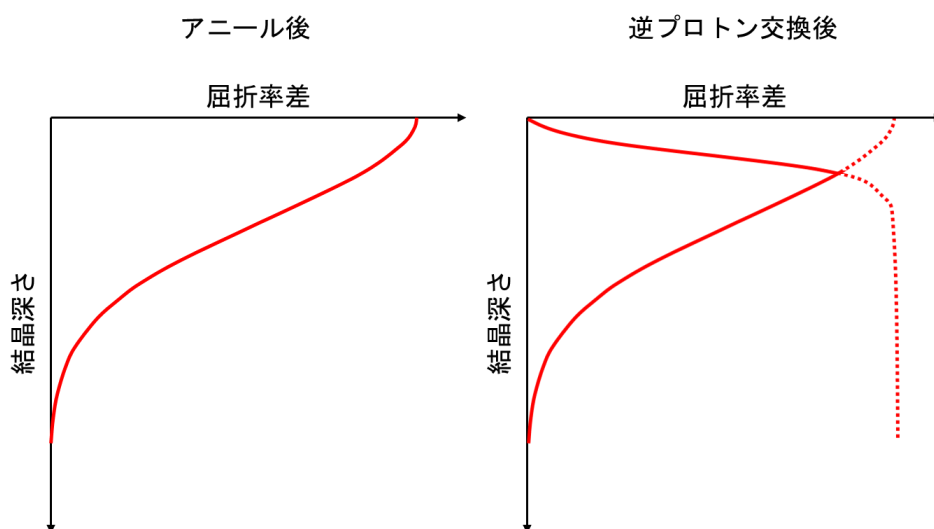


図 4.1 逆プロトン交換導波路の屈性率分布

$\mu\text{m}/\text{h}^2$ と報告されている²。この遅い拡散定数のため、RPE を横モードサイズの大きな導波路に適用すると、1 つの導波路を作製するために1ヵ月以上かかってしまう。従ってこの手法を横モードサイズの大きな導波路に適用することは難しい。一方で、MgO:CLN において PE 後に結晶の直接接合を行ってからアニールすることで結晶に取り込まれた H^+ が接合界面を超えて拡散するため対称な横モードが得られたという報告がある⁴。この手法では拡散定数の遅い RPE を用いなくてよいため、導波路の作製を1週間以内で終わらせることができる。しかし、文献4では直接接合による埋込 APE 導波路の作製のみを行っており、PP 構造を装荷した波長変換デバイスの報告は無い。本章では、横モード対称化の手法として直接接合による埋込 APE 導波路を採用し、PP MgO:SLT に埋込 APE 導波路を装荷し、SHG 実験を行った。

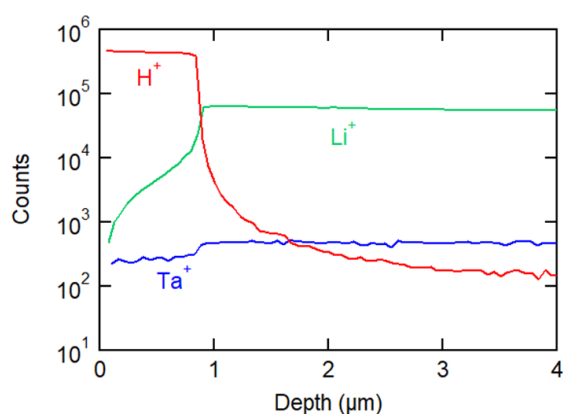
4.2 プロトン拡散係数

埋込 APE 導波路作製において H^+ の拡散係数は重要なパラメータの一つである。そこで、本節では PE とアニールを行った MgO:SLT に対して 2 次イオン質量分析 (secondary ion mass spectrometry, SIMS) を行うことにより H^+ の結晶中での濃度を調べ、拡散係数を見積もった。

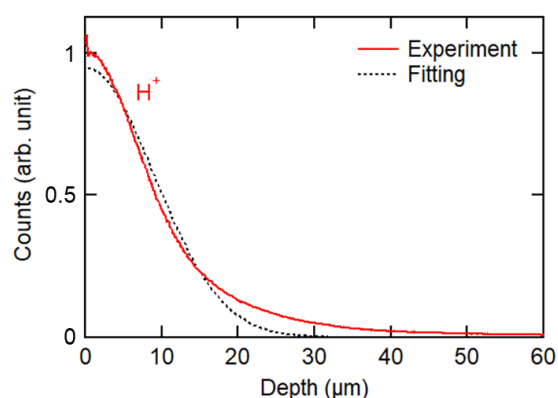
式(3.7),(3.11)中の PE とアニールにおける拡散係数 D_{PE} 、 D_{a} を求めるために +Z-MgO:SLT を3枚準備した。これらのサンプルをトリクロロエタンとアセトンを用いてそれぞれ 15 min 超音波洗浄した後、エタノール、超純水の順に置換し、窒素ブローした。230°C の高温ピロリン酸中で、3.5.2 項と同様に PE を行った。まず、急激な温度変化によりサンプルが割れたり焦電効果により意図しない分極反転が起こったりすることを防ぐために、MgO:SLT はサンプルホルダにセットした後、230°C のピロリン酸の蒸気で 10 min 蒸らした。その後、サンプルをピロリン酸に漬け、4 時間 PE を行った。サンプルを取り出した後、サンプルの表面に残ったピロリン酸を除去するために、アセトンで 15 min 超音波洗浄を行い、エタノール→超純水と置換し、窒素ガンで水分を飛ばした。3.5.2 項と同様に、PE を行った3つのサンプルのうち2つのサンプルを石英管に入れた後、電気炉 (KTF453V, KOYO) に石英管を固定した。MgO:SLT の酸素欠損を防ぐために昇温時から O_2 を 50 mL/min 流し続け、100°C/h でゆっくりと 400°C まで昇温させた。25 時間 400°C で保持した後、100°C/h でゆっくりと降温した。石英管内の温度が 100°C 以下になったことを確認して O_2 の供給を停止した。これらのサンプルのうち1つのサンプルはもう一度 25 h のアニールを行い、合計アニール時間を 50 h とした。

PE 時間 4 h、アニール時間 0 h、25 h、50 h のサンプルの SIMS 測定を行った。図 4.2 に SIMS 結果を示す。図 4.2(a) 示すように PE 後の H^+ 分布はほとんどステップ型であり、その深さ d_{PE} は 0.85 μm であった。PE 直後の H^+ の SIMS データは一つしかない

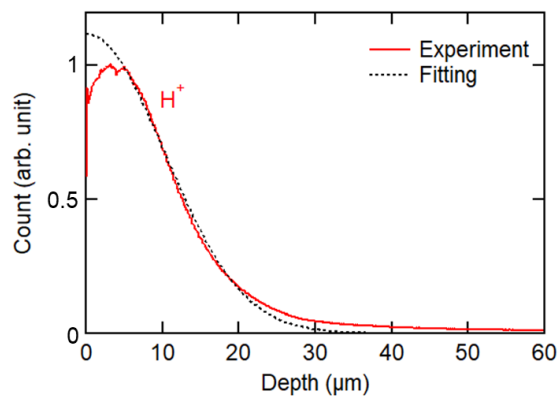
が、このデータから 230°C のピロリン酸による PE での拡散係数 D_{PE} は $0.045 \mu\text{m}^2/\text{h}$ と見積もられた。同様の PE 条件での +Z-CLT の拡散係数は $0.08 \mu\text{m}^2/\text{h}$ との報告がある⁵。MgO:SLT の拡散係数は CLT のそれよりも 0.56 倍程度の小さい値となった。CLN と MgO:CLN の拡散係数はそれぞれ $0.33 \mu\text{m}^2/\text{h}$ 、 $0.2 \mu\text{m}^2/\text{h}$ であり、MgO 添加により 0.61 倍の拡散係数の減少が報告されている⁵。LT においても MgO を添加することで拡散係数が減少することが分かった。図 4.2(b), (c)よりアニールにより H^+ 分布はグレーテッドインデックス型となることが確認できた。式(3.9)から APE 導波路の H^+ 割合は結晶表面が一番高いと予想できるが、図 4.2(c)を見ると、アニール時間 50 h のサンプルの H^+ 割合は結晶表面から $5 \mu\text{m}$ あたりが一番高かった。これはアニール中に H^+ が雰囲気中の酸素と反応し結晶表面から離脱してしまったためと考えられる。アニール時間 50 h のサンプルにおいて結晶表面から深さ $5 \mu\text{m}$ までのデータは除外し式(3.9)でフィッティングすると、アニールによる拡散深さ d_a はそれぞれ $11.8 \mu\text{m}$ 、 $17.9 \mu\text{m}$ となった。アニ



(a) アニール時間 0 h



(b) アニール時間 25 h



(c) アニール時間 50 h

図 4.2 SIMS 測定結果

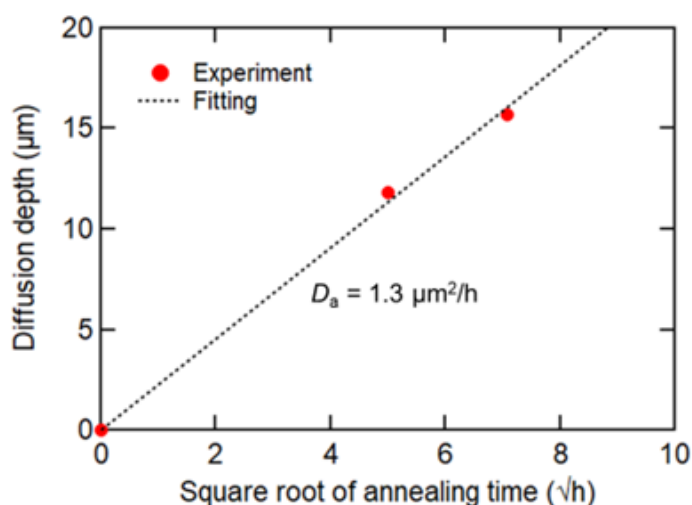


図 4.3 拡散深さの拡散時間依存性

ールによる拡散深さのアニール時間依存性を図 4.2 に示す。式(3.7)を用いてフィッティングすると、 400°C のアニールにおける拡散係数 D_a は $1.3 \mu\text{m}^2/\text{h}$ と見積もられた。これは、横モードサイズから見積もられた拡散係数である $0.9 \mu\text{m}^2/\text{h}$ に近い値であった⁶。これらの拡散係数の差は測定方法による違いであると考えられる。

見積もったプロトン拡散係数 D_{PE} 、 D_a を用いて埋込 APE 導波路の屈折率分布を計算した。ここで、埋込 APE 導波路の作製プロセスはチャンネル導波路形状のマスクを装荷した $\text{MgO}:\text{SLT}$ を 230°C のピロリン酸で PE した後、PE していない $\text{MgO}:\text{SLT}$ と表面活性化接合を行い、 400°C の O_2 雰囲気中でアニールするというを想定した。PE・表面活性化接合後の導波路断面のモデルを図 4.4 に示す。SIMS 測定結果から PE 領域の断面形状は長方形と仮定した。この長方形形状の幅は PE 幅で深さは拡散係数 D_{PE} と PE 時間から式(3.7)を用いて計算された深さ d_{PE} とした。ここで、CLT や CLN において PE 後の格子定数は元の結晶の格子定数より大きくなるという報告がある⁷。 $\text{MgO}:\text{SLT}$ においても同様に PE 後に格子定数が大きくなると仮定して、PE 領域のみ出っ張っているような形状を仮定したため、空気層を PE 領域以外の接合界面に挿入

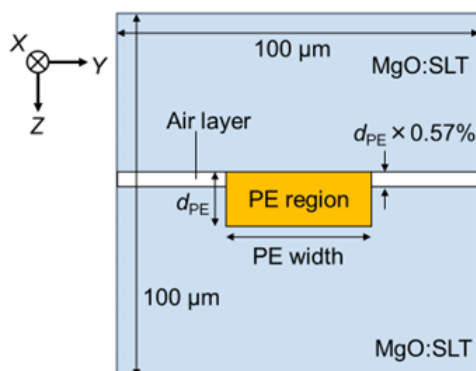


図 4.4 PE・表面活性化接合後の導波路断面のモデル

した。ここで、空気層の厚さは PE 領域の深さによって異なる。PE CLT において格子定数は元の結晶の 0.57% 大きくなると報告がある⁷。MgO:SLT においてもこの値を採用した。チャンネル導波路におけるアニール後の H⁺濃度分布は式(3.6)の微分方程式を二次元に拡張した

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) \quad (4.1)$$

を解くことで求めることができる。ここで、CLT で報告のあるように、結晶 Z 軸方向(座標 x 方向)の拡散係数 D_a は結晶 X、Y 軸方向(座標 z 、 y 方向)の拡散係数に比べて 1.5 倍大きいと仮定した⁸。また、アニールにより H⁺濃度のコントラストがなだらかになり元の結晶の格子定数に近づいていくため、アニール後には空気層が存在しないと仮定した。また、空気層が存在していた領域は MgO:SLT が原子的には接合されていないため、その領域の H⁺の拡散定数は 0 $\mu\text{m}^2/\text{h}$ と仮定した。式(4.1)は 3.5.1 項での仮定のように拡散係数 D_a の分布が考慮している領域全体で変化しない、または、簡単な形状の時のみ解析的に解くことができるが⁹、今回のように複雑な分布を持つ場合は解析的に解くことができない。そこで、式(4.1)を数値的に解くことで H⁺濃度分布を計算した。次に計算した H⁺濃度分布から屈折率分布を計算した。PE 直後の PE 領域での屈折率増加 Δn_0 は波長 1030 nm において 0.012 と仮定した⁸。屈折率増加 Δn は H⁺濃度に比例するため、

$$\Delta n = \Delta n_0 \frac{C}{C_0} \quad (4.2)$$

と計算できる¹⁰。ここで、 C はアニール後の H⁺濃度、 C_0 は PE 直後の PE 領域での H⁺濃度である。図 4.5 に PE 幅 50 μm 、PE 時間 8 h、アニール時間 100 h の導波路における屈折率増加 Δn を示す。導波路はアニールによってグレーデッドインドックス型の導波路となっていることが確認できた。計算した屈折率分布から横モードを計算した。計算には有限要素法によるモードソルバー (FemSIM, RSoft) を用いた。その後、計算

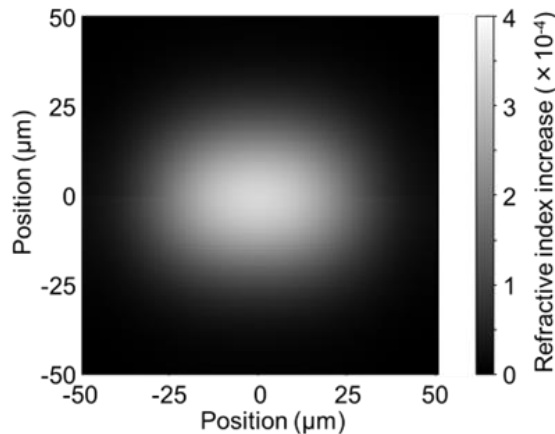
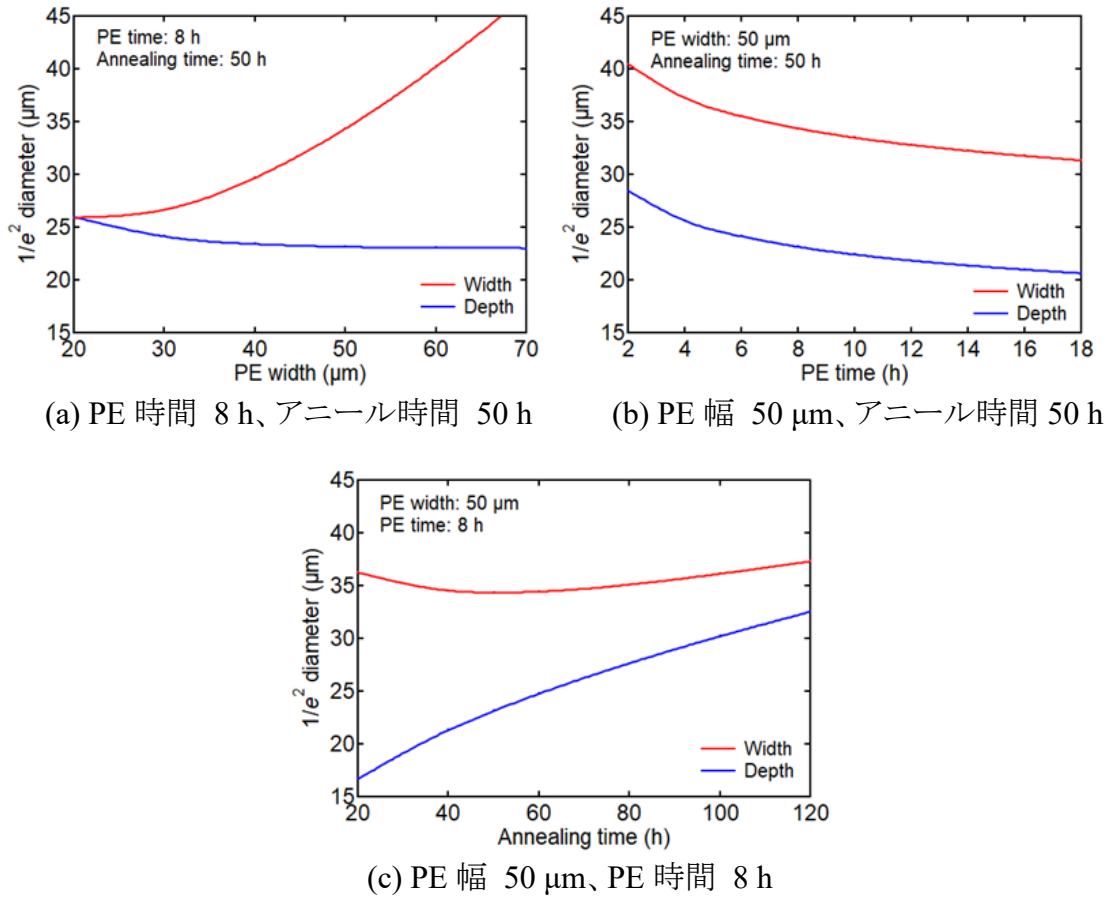


図 4.5 屈折率増加 Δn の分布

図 4.6 基底次横モードの $1/e^2$ 直径

した横モードを 2 次元 Gaussian 関数でフィッティングし、 $1/e^2$ 直径を計算した。図 4.6 に様々な導波路作製条件における埋込 APE 導波路の基底次横モードの $1/e^2$ 直径の計算結果を示す。赤線と青線はそれぞれ横モード幅と深さの $1/e^2$ 直径を表している。図 4.6 (a)に PE 時間 8 h、アニール時間 50 h の導波路における横モード $1/e^2$ 直径を示す。横モード幅は PE 幅に対応して大きくなっていった。一方で横モード深さは PE 幅が大きくなるにつれて単調に減少した。これは PE 幅が大きくなるにつれて PE 時に H^+ がより多く結晶に取り込まれることでアニール後の屈折率増加が多くなり光がより強く深さ方向に閉じ込められたためである。図 4.6 (b)に PE 幅 50 μm 、アニール時間 50 h の導波路における横モード $1/e^2$ 直径を示す。PE 時間が長くなるにつれて H^+ の取り込み量が多くなるため横モード直径は大きくなっていった。また、図 4.6 (c)に PE 幅 50 μm 、PE 時間 8 h の導波路における横モード $1/e^2$ 直径を示す。アニール時間が長くなるほど H^+ の拡散距離が長くなることに加え、屈折率増加 Δn の最大値が小さくなるため横モード直径は大きくなっていった。特に、PE 幅 50 μm 、PE 時間 8 h、アニール時間 100 h の導波路において横モードの $1/e^2$ 直径は幅 36 μm 、深さ 30 μm となった。このときの横モードの計算結果を図 4.7(a)に示す。横モードは結晶深さ方向、幅方向共に対称

な Gaussian 分布をしていることが確認できた。図 4.6 に示した作製条件の導波路の横モードはいずれも結晶深さ方向、幅方向共に対称な Gaussian 分布をしていたことから、接合 APE 導波路を作製することで導波路の横モード対称化ができることが示唆された。PE 幅 $50\ \mu\text{m}$ 、PE 時間 8 h、アニール時間 100 h の導波路の波長 $532\ \text{nm}$ の光における基底次横モードの $1/e^2$ 直径は幅 $23\ \mu\text{m}$ 、深さ $19\ \mu\text{m}$ と計算された。なお、このとき PE 交換直後の PE 領域における屈折率増加 Δn_0 は 0.017 と仮定した。波長 $532\ \text{nm}$ の光において横モード断面積は $3.4 \times 10^2\ \mu\text{m}^2$ と計算でき、 MgO:SLT のフォトリフラクティブ損傷閾値 $2\ \text{MW}/\text{cm}^2$ から $3.4\ \text{W}$ まで導波できる見込みである。

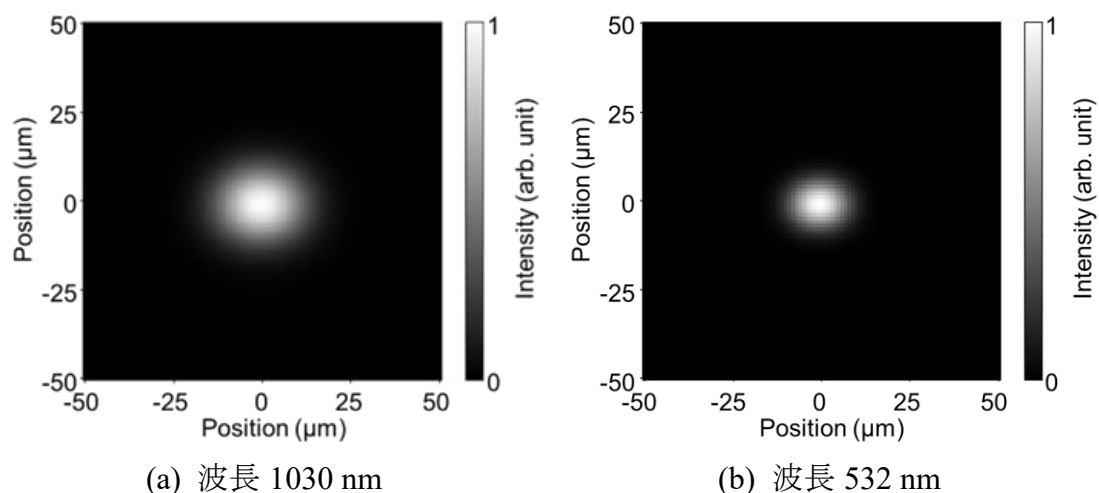


図 4.7 計算された横モード

4.3 埋込導波路の作製と横モード拡大

本節では横モード対称化のために MgO:SLT を用いた直接接合による埋込 APE 導波路の作製プロセスと、PP 構造と埋込 APE 導波路を組み合わせる手法を確立する。本節では直接接合方法として表面活性化接合を用いた。図 4.8 に表面活性化接合の模式図を示す。表面活性化接合では(a)まず結晶を真空中で Ar の高速原子ビーム (fast atomic beam, FAB) を照射することにより表面の不純物を除去し、(b)原子の未結合手をむき出しにする。(c)この状態で結晶同士を向かい合わせて加圧することで界面に不純物の無い接合を行うことができる。なお、接合強度向上のために接合中や接合後に結晶を加温することもある。

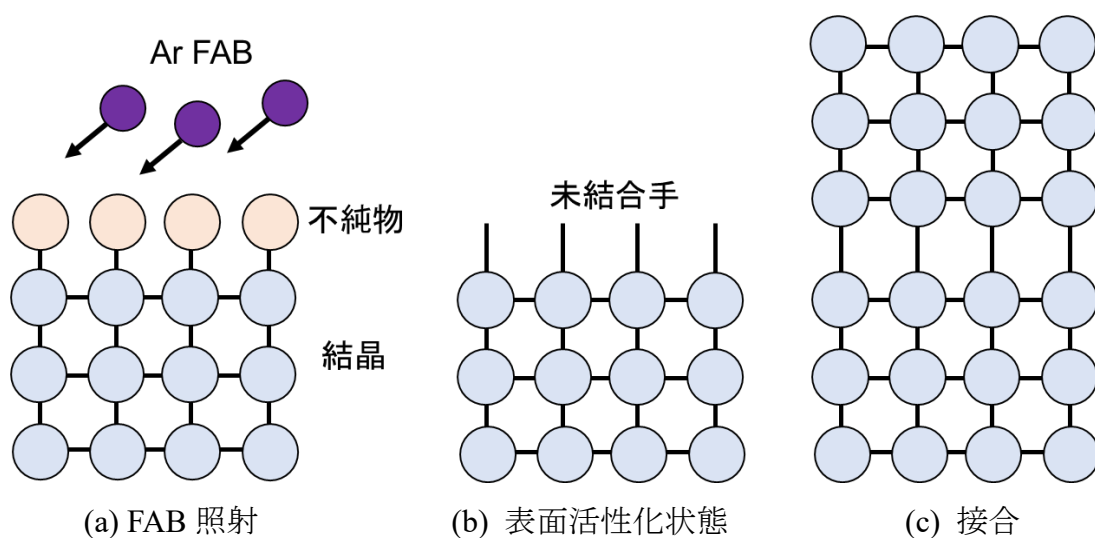


図 4.8 表面活性化接合の仕組み

4.3.1 埋込 APE 導波路作製手順

本項では図 4.9 に示すように MgO:SLT を用いた直接接合による埋込 APE 導波路の作製手順を述べる。

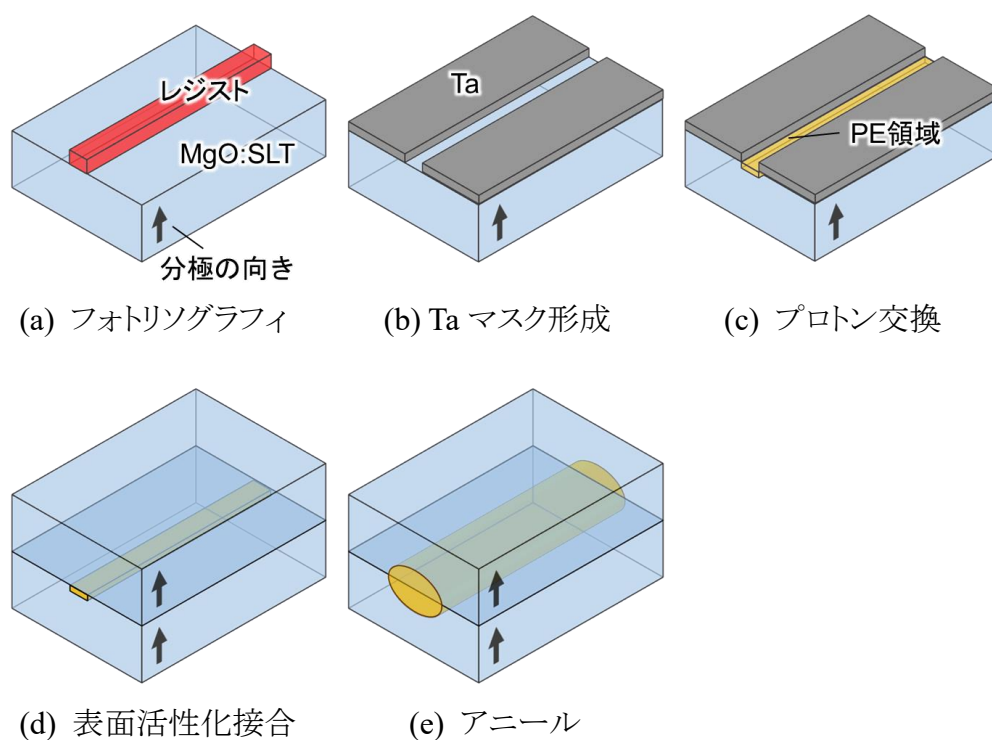


図 4.9 埋込 APE 導波路作製プロセス

(a) フォトリソグラフィによるレジストライン形成

$17.5 \times 9.0 \text{ mm}^2$ にダイシングした $\text{MgO}:\text{SLT}$ サンプルの+Z面をトリクロロエタンとアセトンを用いてそれぞれ 15 min 超音波洗浄した後、エタノール、超純水の順に置換した。サンプルを超純水中から取り出し、窒素ガンで水分を吹き飛ばした。サンプルを、アルミホイルで覆われたシャーレに入れ、 140°C のオーブンで 30 min 脱水ベークを行った。このとき、水蒸気がシャーレ内にたまらないようにシャーレのふたをわずかに開けておいた。脱水ベーク後室温で 30 min 静置しサンプルを冷却した。

スピncerコート (MS-A 100, MIKASA) を用いてポジ型フォトレジスト (MICROPOSIT S1813G, SHIPLEY) をサンプル+Z面に塗布した。スピncerコートの条件は「slope 5 s \rightarrow 1000 rpm, 10 s \rightarrow slope 5 s \rightarrow 5000 rpm, 30 s \rightarrow slope 10 s \rightarrow END」とした。レジスト塗布後、サンプルをアルミホイルで覆われたシャーレに入れ、 90°C のオーブンで 30 min 脱水ベークを行った。プリベーク後室温で 30 min 静置しサンプルを冷却した。

マスクレス露光装置 (DL-1000, ナノシステムソリューションズ) を用いて、幅 20, 30, 40, 50, 60 μm の導波路パターンを dose 量 $150 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ でフォトレジストに転写した。サンプルを 22°C の現像液 (NMD-3, 東京応化工業) に 60 s 漬け現像した。現像の際は現像液が不十分にならないかつレジストグレーティングが崩れないように現像液をゆっくり攪拌した。その後、 22°C の超純水で 60 s リンスを行い窒素ガンでレジストラインが壊れないように丁寧に水分を吹き飛ばした。

(b) Ta マスク形成

DC スパッタ装置 (SPF-210H, ANELVA) を用いて Ta をスパッタした。スパッタ条件は表 4.1 に示す通りであり、212 s のスパッタを行った。アセトンが入ったビーカーに Ta をスパッタしたサンプルを入れ、超音波を数十秒当てることでリフトオフを行った。すべての開口幅においてこの方法で Ta マスクをサンプル全面に形成することができた。

(c) プロトン交換

3.5.2 項と同様に PE を行った。 230°C に加熱したピロリン酸を用いた。室温から 230°C への急激な温度変化により $\text{MgO}:\text{SLT}$ が割れたり焦電効果により意図しない分極反転が起こったりすることを防ぐために、 $\text{MgO}:\text{SLT}$ はサンプルホルダにセットした後、 230°C のピロリン酸の蒸気で 10 min 蒸らした。その後、サンプルをピロリン酸に漬け、PE を行った。所望の時間 PE を行った後、サンプルを高温ピロリン酸から取り出した。サンプルに残ったピロリン酸を除去するために、サンプルをアセトンで

15 min 超音波洗浄を行い、エタノール→超純水と置換し、窒素ガンで水分を飛ばした。

Ta エッチング液 ($\text{H}_2\text{O}_2(31\%) : \text{NaOH}(10\%) = 1 : 9$, 質量比)を用いて 80°C で Ta とエッチング液の反応が終わるまで約 30 min エッチングを行い、Ta マスクを除去した。PE 幅 PE 時間 8 h サンプルの PE と Ta マスクエッチング後のサンプルの白色顕微鏡観察結果を図 4.10 に示す。PE 領域が出っ張っていた。このような凸形状は PE 時間 4 h、8 h、16 h のサンプルでも確認でき、それぞれ 7-9 nm、7-10 nm、8-10 nm 程度 PE 領域が高くなっていた。これは CLN や CLT で報告されているように、 H^+ が取り込まれることにより格子定数が大きくなるためである⁷。SIMS で求めた PE 時の H^+ の拡散係数から、PE 時間 4 h、8 h、16 h のサンプルでは PE 深さがそれぞれ 0.85 μm 、1.2 μm 、1.7 μm となっていることが予想される。PE 後の凸形状の大きさから H^+ が取り込まれたことにより MgO:SLT の格子定数が 0.5-1% 程度大きくなると計算できた。この値は CLT で報告されている 0.57%とよく一致していた⁷。また、PE 領域以外のサンプル表面に直径 10 μm 程度のピットが多数存在していた。このピットの原因は不明であるが、PE 領域の凸形状より埋込 APE 導波路では光は PE 領域直下に閉じ込められると予想されたため、対策は施さずに作製を進めた。

表 4.1 Ta マスクスパッタ条件

背圧 (Pa)	スパッタ圧力 (Pa)	電力 (kW)	電圧 (V)	スパッタ時間 (s)
4.0×10^{-5}	1.0	0.1	521	212

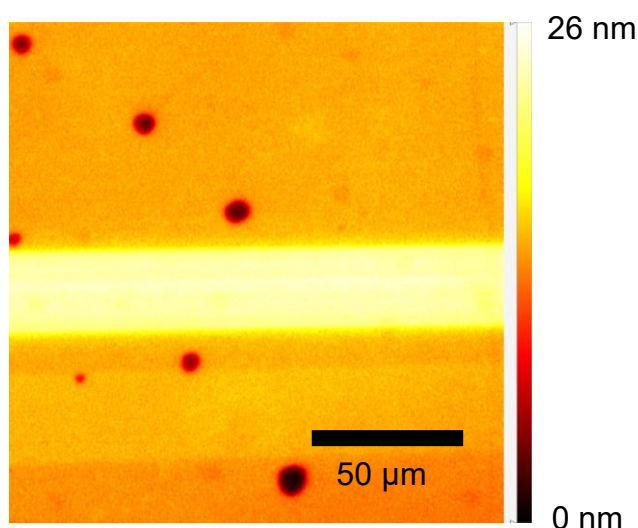


図 4.10 PE 8 h 後の白色干渉顕微鏡像

(d) 表面活性化接合

PE MgO:SLT の+Z 面と MgO:SLT の-Z 面をトリクロロエタンとアセトンを用いてそれぞれ 15 min 超音波洗浄した後、エタノール、超純水の順に置換した。サンプルを超純水中から取り出し、窒素ガンで水分を吹き飛ばした。洗浄後、5 倍の対物レンズによる光学顕微鏡観察でサンプル表面にパーティクルが付着していないかを確認めた。パーティクルが付着していた場合、そのまま表面活性化接合するとパーティクルの部分が接合できないため、もう一度サンプルを超純水に入れ周波数 45 kHz の超音波で数分超音波洗浄を行った。超純水による超音波洗浄と光学顕微鏡観察をサンプル表面のパーティクルが無くなるまで繰り返した。

サンプルを図に示す接合装置 (VE-08-07, アユミ工業) に入れ表 4.2 に示す条件で表面活性化接合を行った。この接合装置は図 4.11 に示す通り FAB 源が 1 つで上部結晶を 180° 回転させることで両方の結晶に FAB 照射を行う。サンプルを図 4.12 に示す治具にカプトンテープとカーボンシートで貼り付けた後チャンバ内に入れた。ここで、カーボンシートを用いる理由は、金属や結晶に比べて柔らかいカーボンシートを用いることで、治具や装置の平行度を補償するためである。真空度が 5×10^{-5} Pa を下回るまで真空引きをし、Ar の高速原子ビーム (fast atomic beam, FAB) を加速電圧 1.0 kV、電流 200 mA で 100 s サンプル表面に照射した。照射後すぐに 10 MPa の加圧を行った。加圧中に接合強度を高めるためにサンプルを 110°C に加熱した。 MgO:SLT の焦電性により意図しない分極反転が起こらないように、昇温時は 110°C まで 1.5 h かけてゆっくりと温度を上げた。温度上昇後

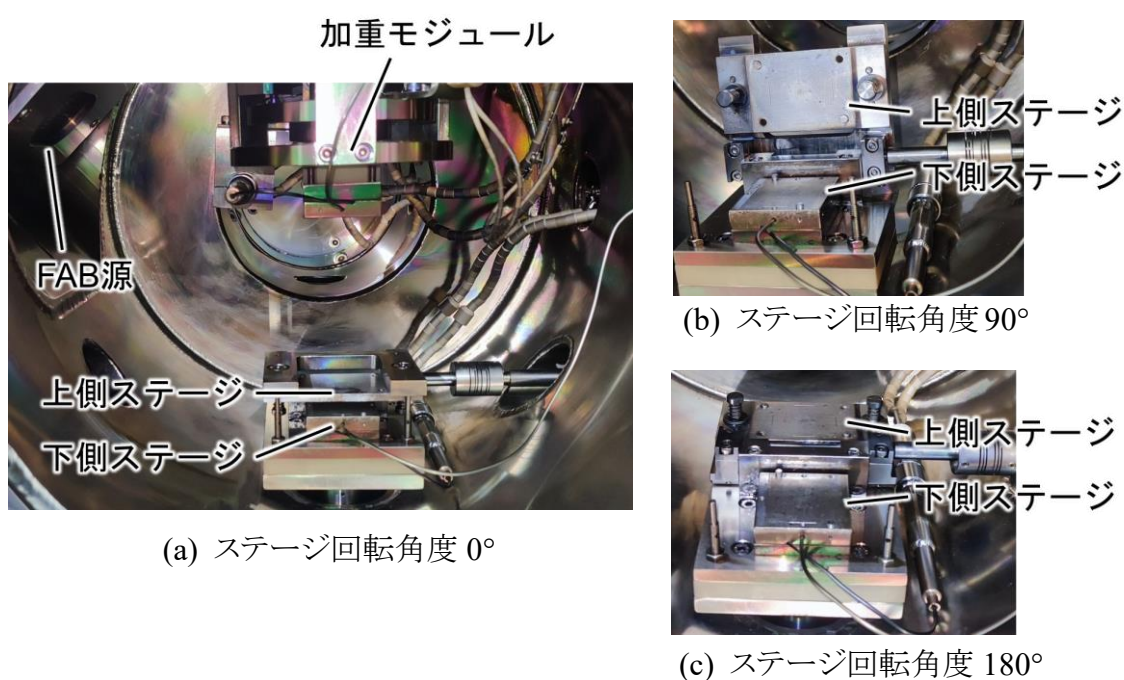
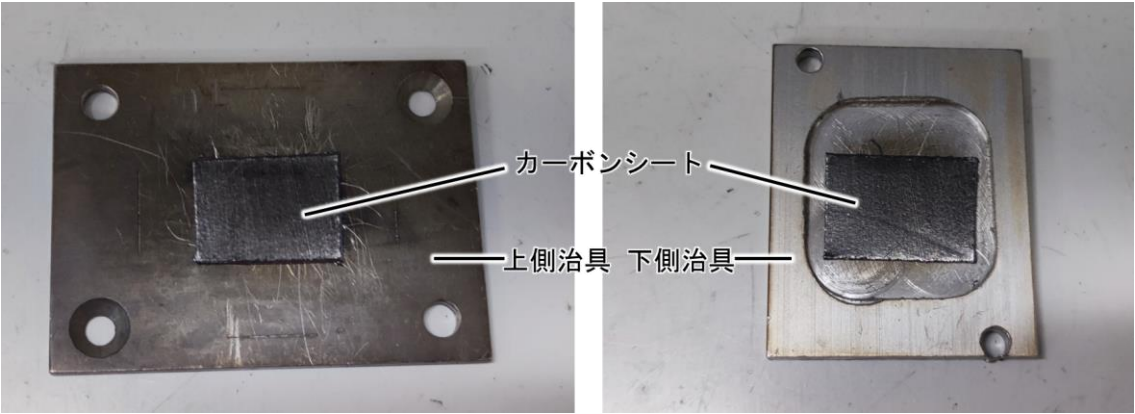
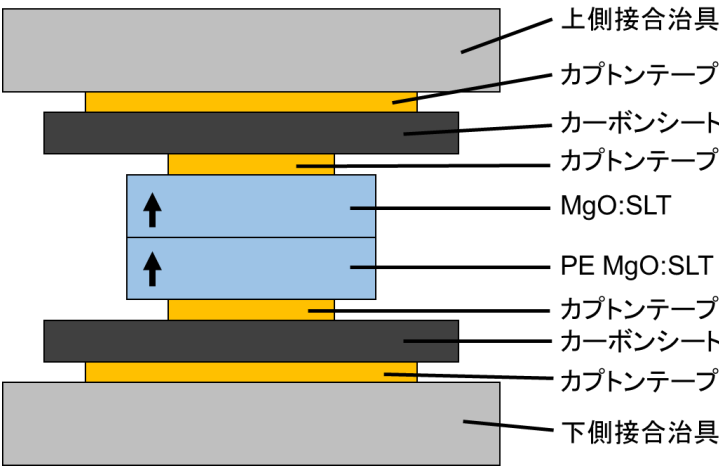


図 4.11 表面活性化接合装置内部



(a) 接合治具



(b) 接合時断面図

図 4.12 接合治具と接合時の断面図

表 4.2 表面活性化接合条件

FAB 電圧	FAB 電流	FAB 照射時間	基板温度	圧力	加圧時間
(kV)	(mA)	(s)	(°C)	(MPa)	(h)
1.0	200	100	115	10	6

110°C で 1.5 h 保持し、ヒータの電源を切り 30°C を下回るまで自然冷却した。ヒータの電源を切ってから 30°C を下回るまで約 3 h かかった。その後、加圧をやめ、サンプルをチャンバから取り出した。

(e) 酸素雰囲気中アニール

3.5.2 項と同様に 400°C の酸素雰囲気中でアニール処理を行うことにより PE にて取り込まれた H^+ の拡散を行った。まず、サンプルを石英管内に入れた後、電気炉 (KTF453V, KOYO) に石英管を固定した。焦電効果による意図しない分極反転を防ぐために 100°C/h でゆっくりと 400°C まで昇温させた。このとき、 MgO:SLT の酸素欠損を防ぐために昇温時から O_2 を 50 mL/min で石英管内に流して O_2 雰囲気でのアニールを行った。所望のアニール時間だけ 400°C で保持した後、 100°C/h でゆっくりと降温した。石英管内の温度が 100°C 以下になったことを確認して O_2 の供給を停止した。

(f) 端面研磨

最後に導波路の両端面を研磨した。まず、サンプルを同サイズにダイシングしたアクリル板で挟み込んだ状態で図 3.33 に示す専用の治具に固定した。精密研磨装置 (MA-150, ムサシノ電子) と自動噴霧装置 (MS-2, ムサシノ電子) を用いて粒形 $3 \mu\text{m}$ ダイヤモンドスラリーを塗布し 61 rpm で 15 min 研磨を行った。このとき、研磨盤は溝有の銅盤 (MF 銅盤, ムサシノ電子) を用いた。次に、粒形 $0.5 \mu\text{m}$ ダイヤモンドスラリーを塗布し 61 rpm で 15 min 仕上げ研磨を行った。このとき、研磨盤はオレンジクロス (2TS8, ムサシノ電子) を用いた。

前述のとおり、PE 直後には PE 領域が数 nm 出っ張っていたが、接合がはがれることなくデバイスを作製することができた。

4.3.2 プロトン交換幅依存性

図 4.13 に示す光学セットアップで出射側の近視野像を観察した。光源は波長 1030.4 nm 、出力 150 mW の Yb:YAG レーザ (MSL-FN-1030, Changchun New Industries Optoelectronics) を用いた。レーザ光を垂直偏光が透過するようにしたグランレーザプリズムに通し、 $f = 60 \text{ mm}$ (AC-254-060-B-ML, Thorlabs) によってデバイス入射

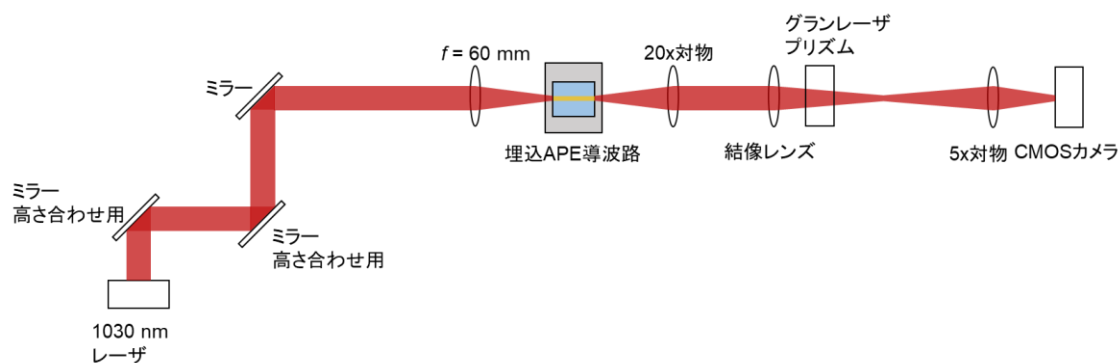


図 4.13 横モード観察時の光学セットアップ

端面に集光した。このときのビームウエストでの $1/e^2$ 直径は約 $30\ \mu\text{m}$ であった。デバイスから出射した光を 20 倍対物レンズ (M-PLAN APO NIR 20X, ミットヨ) でコリメート光にし、結像レンズ (MT-L, ミットヨ) で絞った。結像レンズの後にグレンレーザプリズム (GL10-B, Thorlabs) を置き、光量調節を行えるようにした。結像レンズの焦点と同じ位置に焦点が来るように 5 倍対物レンズ (LMPlan N 5x, OLYMPUS) を置き CMOS カメラ (CS165MU(M), Thorlabs) に結像することで出射端面の近視野像を観察した。近視野像を観察しながら、できるだけ低次のモードで導波するようにデバイス位置を調節した。ここでこのように出射側の光学系が少し複雑になっている理由はこの光学系に光学素子を追加することで次節の SHG の光学実験も行えるようにしたためである。

PE 時間 8 h、アニール時間 50 h の導波路の出射光近視野像を図 4.14 に示す。PE 幅が $20\ \mu\text{m}$ のときは横モードを観察することができなかった。PE 幅が $30\ \mu\text{m}$ のとき対称な横モードが得られ、その $1/e^2$ 直径は幅 $22\ \mu\text{m}$ 、深さ $24\ \mu\text{m}$ であった。PE 幅が $30\ \mu\text{m}$ のときも対称な横モードが得られた。その $1/e^2$ 直径は PE 幅が $30\ \mu\text{m}$ の導波路より小さく、幅 $24\ \mu\text{m}$ 、深さ $22\ \mu\text{m}$ であった。また、PE 幅が $50\ \mu\text{m}$ と $60\ \mu\text{m}$ の導波路は高次モードが観察された。これは 3.5.3 項と同様に開口幅が広いほど PE 時に H^+ がより多く取り込まれたためアニール後の屈折率差が大きくなり、実効屈折率が大きくなったためである。

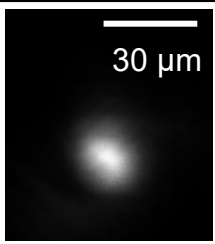
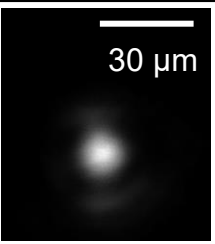
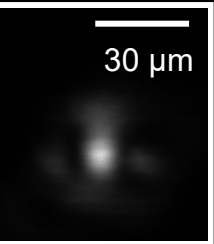
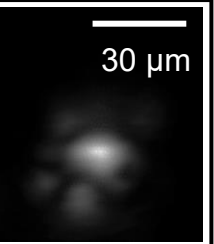
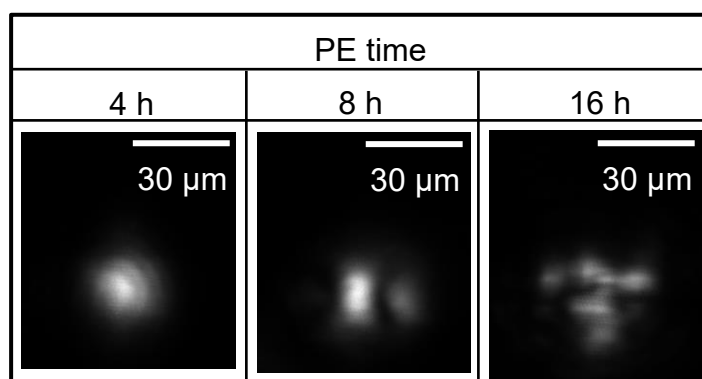
PE width				
20 μm	30 μm	40 μm	50 μm	60 μm
No guided mode				

図 4.14 PE 時間 8 h、アニール時間 50 h の埋込 APE 導波路の出射光近視野像

4.3.3 プロトン交換時間依存性

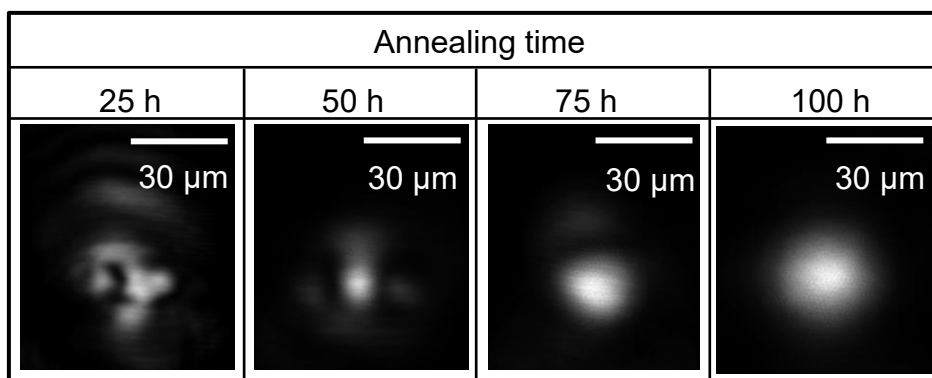
PE 幅 $50\ \mu\text{m}$ 、アニール時間 50 h の導波路の出射光近視野像を図 4.15 に示す。PE 時間が 4 h のとき対称な横モードが得られ、その $1/e^2$ 直径は幅 $22\ \mu\text{m}$ 、深さ $22\ \mu\text{m}$ であった。PE 時間が 8 h と 16 h の導波路では高次モードが観察され、16 h の導波路の方がより高次のモードが伝搬していた。これは 3.4.4 項と同様に PE 時間が長いとき PE により H^+ がより多く取り込まれたためアニール後の屈折率差が大きくなり、導波路の実効屈折率が大きくなったためである。

図 4.15 PE 幅 50 μm 、アニール時間 50 h の埋込 APE 導波路の出射光近視野像

4.3.4 アニール時間依存性

PE 幅 50 μm 、PE 時間 8 h の導波路の出射光近視野像を図 4.16 に示す。アニール時間が 25 h と 50 h の導波路では高次モードが観察され、25 h の導波路の方がより高次のモードが伝搬していた。アニール時間が 75 h の導波路では対称な横モードが得られ、その $1/e^2$ 直径は幅 25 μm 、深さ 22 μm であった。アニール時間 100 h の導波路の横モードとラインプロファイルを図 4.17 に示す。ラインプロファイルから分かる通り、結晶深さ方向、幅方向共に対称な横モードが得られた。その $1/e^2$ 直径はアニール時間が 75 h の導波路よりも大きく、幅 32 μm 、深さ 30 μm であった。

以上より、様々な作製条件において対称な横モードを得ることができた。いずれの導波路においてもデバイス位置を動かすと横モード形状が変わったことからマルチモード導波路になっていると考えられる。しかし、PE 幅 50 μm 、PE 時間 8 h、アニール時間 100 h の作製条件で、3.3.2 項で見積もった 1 W クラス CW 350 nm 帯レーザーに対して光損傷が起こらないような励起光横モードサイズである $1/e^2$ 直径 27 μm 以上の大きな横モードをもつ導波路の作製に成功した。これは報告されている RPE 導波路やフェ

図 4.16 PE 幅 50 μm 、PE 時間 8 h の埋込 APE 導波路の出射光近視野像

ムト秒レーザ直描導波路と比べても大きな横モードを持っており^{2,3,11-13}、高パワーの波長変換が行えると期待される。また、この導波路では基底次モードへの結合は容易に行うことができたため、マルチモード導波路であったとしても比較的低次のモードでカットオフとなっている可能性が高い。

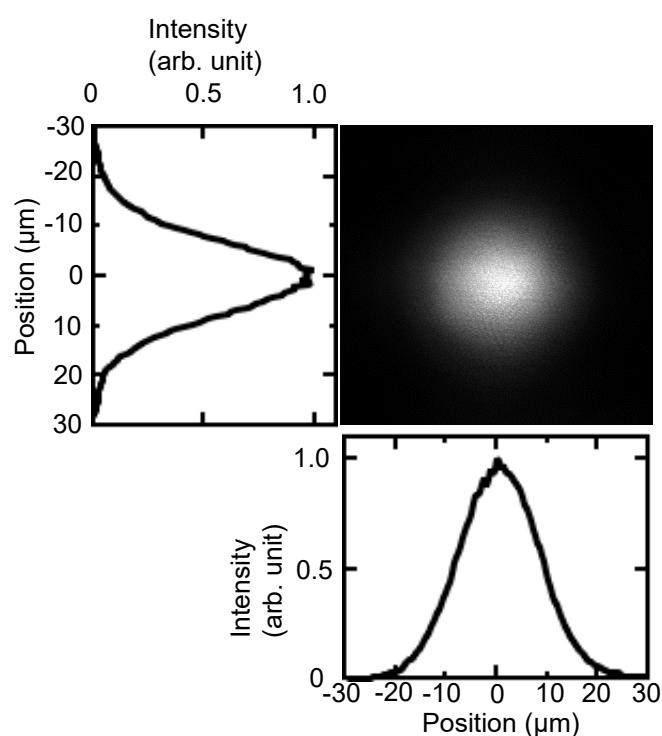
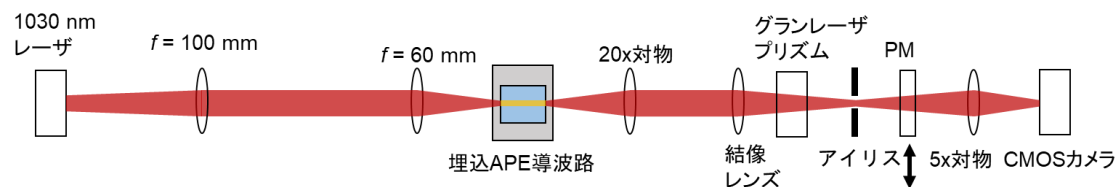


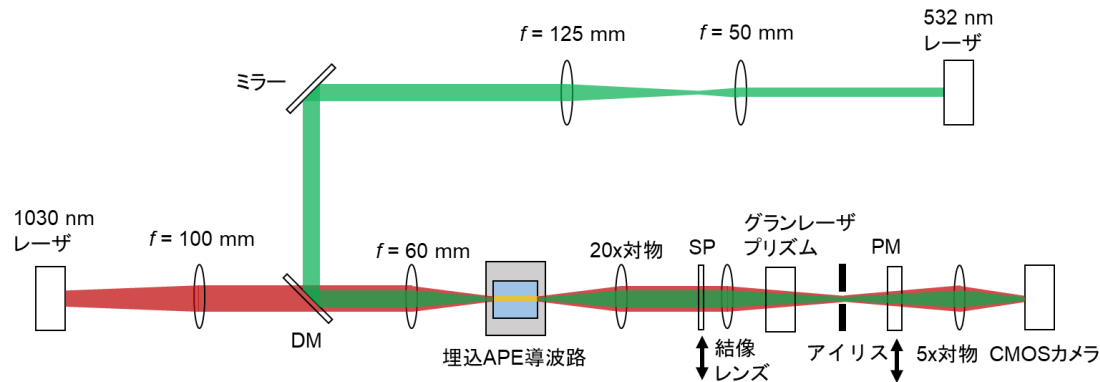
図 4.17 PE 幅 50 μm 、PE 時間 8 h、アニール時間 100 h の埋込 APE 導波路の横モードとラインプロファイル

4.3.5 高パワー導波実験

この導波路に対して、高パワー励起光の導波ができるかどうか実験を行った。光学セットアップは図 4.18(a)に示すとおり、導波光観察の光学系のレーザ光源を変更したものを用いた。光源は自作の波長 1030 nm の縦マルチモードの Yb:YAG レーザ(最大パワー2.5 W)を用いた。なお、このレーザは縦マルチモードであるため、SHG 実験の励起光源としては不向きである。導波光以外の迷光をカットするために結像レンズの焦点の位置に CMOS カメラの映像を見ながらアイリスを入れた。デバイス直前にサーマルパワーセンサ(S401C, Thorlabs)を挿入し、デバイスに照射したパワーを測定した。デバイス直前のサーマルパワーセンサを外した後、5 倍対物レンズの前にサーマルパワーセンサ(S401C, Thorlabs)を挿入し、デバイスを透過したパワーを測定した。図 4.19 に透過パワーの入射パワー依存性を示す。測定した入射パワーと透過パワーは表 4.3 にまとめるデバイス端面でのフレネル反射や各光学素子の透過率を考慮した。



(a) 高パワー赤外光導波実験時



(b) 高パワー緑光導波実験時

図 4.18 光学セットアップ

表 4.3 各波長の光に対する透過率とフレネル反射率

波長	透過率		フレネル反射率
	20 倍対物レンズ	結像レンズ	デバイス
1030 nm	0.86	0.87	0.13
532 nm	0.80	0.88	0.14

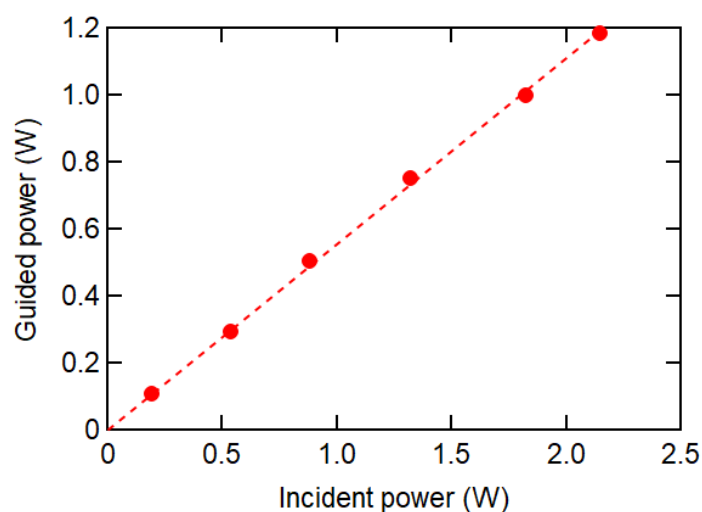


図 4.19 波長 1030 nm レーザ光の透過パワーの入射パワー依存性

結合効率 57%で導波路にレーザを結合させることができた。透過パワーは入射パワーに比例し、入射パワーが 2.1 W のとき 1.2 W の導波が確認できたことからこの導波路は高パワー使用に耐えうると分かった。最終的には 10 W 導波を目指しているが、現状そこまで高パワーのレーザが無い。

次に、図 4.18(b)に示す光学セットアップで高パワー緑光を入射したときのフォトリフラクティブ損傷の有無を確かめた。光源は波長 1030 nm の Yb:YAG レーザと波長 532 nm のレーザ (Samba, Cobolt) を用いた。まずはデバイスを抜いた状態で波長 1030 nm のレーザと波長 532 nm のレーザの光路が一致するように誘電体ミラーや DM の角度を調節した。このとき、CMOS カメラで観察できるように波長 1030 nm のレーザ光量をグラブレーザプリズムを回転させることで調整し、波長 532 nm のレーザ光量はレーザの出力と下辺 ND フィルタで調整した。その後、これらの焦点位置が一致するようにビームエキスパンダ中の $f = 60 \text{ mm}$ のレンズの位置を光軸方向に少しずらした。これらのレーザ光の焦点位置にデバイスの入射端面が来るように置き、デバイスステージの位置を動かして導波路に光を結合した。デバイスから出射した光を 20 倍対物レンズでコリメート光にし、結像レンズで絞った。結像レンズの後にグレンレーザプリズムを置き、光量調節を行えるようにした。結像レンズの焦点と同じ位置に焦点が来るように 5 倍対物レンズを置き CMOS カメラに結像した。励起光近視野像観察の際はカットオフ波長 700 nm のロングパスフィルタ (FELH0700, Thorlabs) を 20 倍対物レンズと結像レンズの間に入れることで SH 光をカットし、SH 光近視野像観察の際はカットオフ波長 550 nm のショートパスフィルタ (FESH550, Thorlabs) を 20 倍対物レンズと結像レンズの間に入れることで励起光をカットした。波長 1030 nm と波長 532 nm の両方のレーザ光の導波を確認した後、導波光以外の迷光をカットするために結像レンズの焦点の位置に CMOS カメラの映像を見ながらアイリスを入れた。デバイス直前にサーマルパワーセンサを挿入し、デバイスに照射したパワーを測定した。デバイス直前のサーマルパワー

センサを外した後、5 倍対物レンズの前にサーマルパワーセンサを挿入し、デバイスを透過したパワーを測定した。波長 532 nm のレーザ光の集光位置をずらすと高次モード導波したことから、波長 532 nm のレーザ光に対してはマルチモード導波路となっていたが、レーザの集光位置を調節することで図 4.20 のように基底次モードを励振して導波光の横モードを観察した。このときの横モードは $1/e^2$ 直径が幅 20 μm 、深さ 15 μm であり結晶深さ方向、幅方向共に対称な形をしていた。図 4.21 に波長 532 nm レーザ光の透過パワーの入射パワー依存性を示す。結合効率 61% で導波路にレーザを結合させることができた。透過パワーは入射パワーに比例し、入射パワー 1070 mW のとき 650 mW の導波が確認できた。図 4.22 に波長 532 nm レーザ光の入射パワーを 0 mW と 1070 mW としたときの波長 1030 nm レーザ光の横モードを示す。波長 532 nm レーザ光を導波させても波長 1030 nm レーザ光の横モード形状の変化はほとんど起こらなかった。横モード形状の変化がほとんど起こらなかったということは導波路の屈折率がほとんど変化しなかったということであるため、フォトリフラクティブ損傷は起こっていなかったと判断した。

導波実験に使用可能なレーザの出力の関係でこれ以上の高パワーでの実験は行うことができなかったが、これらの結果より近赤外の励起光と緑の SH 光両方に対して光損傷耐性の高い埋込 APE 導波路を作製できたと結論付けた。

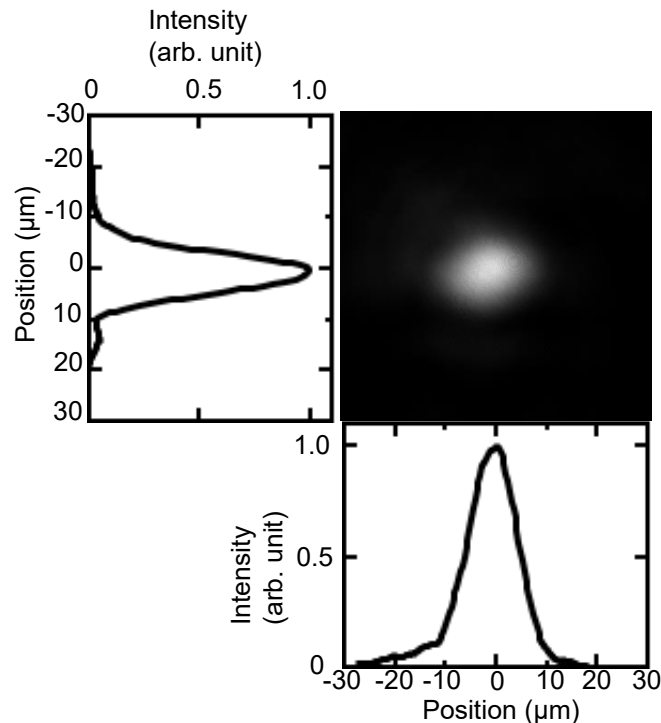


図 4.20 波長 532 nm レーザ光横モードとラインプロファイル

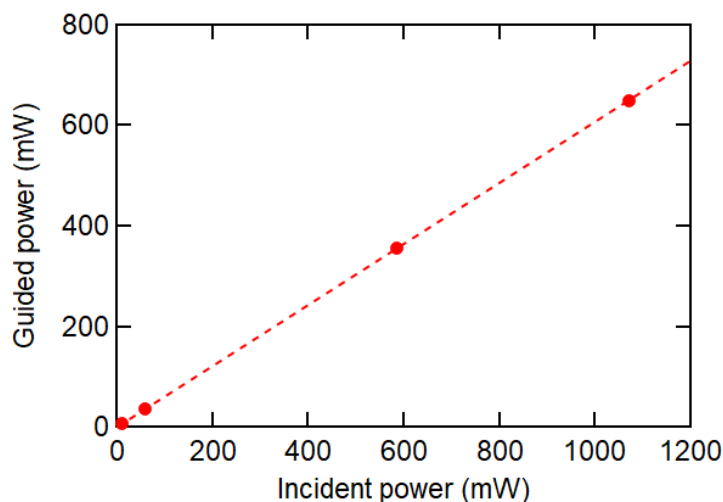


図 4.21 波長 532 nm レーザ光の透過パワーの入射パワー依存性



(a) 波長 532 nm レーザ 0 mW (b) 波長 532 nm レーザ 1070 mW

図 4.22 波長 1030 nm レーザ光横モード

4.3.6 埋込 APE 導波路縦型 QPM-SHG デバイス作製

前項までで表面活性化接合を用いた埋込 APE 導波路を作製することで $1/e^2$ 直径が約 $30\ \mu\text{m}$ の対称な横モードを実現できた。本項ではこの埋込 APE 導波路を縦型 QPM-SHG デバイスに装荷する方法を述べる。

本節では、研究室で使うことのできる縦シングルモードの YAG レーザのうち前節で用いた Yb:YAG レーザよりも出力の高い出力約 700 mW の Nd:YAG レーザを用いて SHG 実験を行うために、分極反転周期を $8.0\ \mu\text{m}$ とした。

励起光 TM_{00} モードから SH 光 TM_{00} モードに波長変換する本節の波長変換デバイスでは、式(2.45)からわかる通り、上下の PP 構造を持つ結晶の分極の向きが異なっていると κ が 0 となり波長変換が起こらない。したがって、直接接合による埋込 APE 導波路を SHG デバイスに応用する際には上下の結晶の PP 構造の分極の向きを合わせることが重要となる。ここで、PP 構造における非線形光学定数の伝搬方向距離依存性は

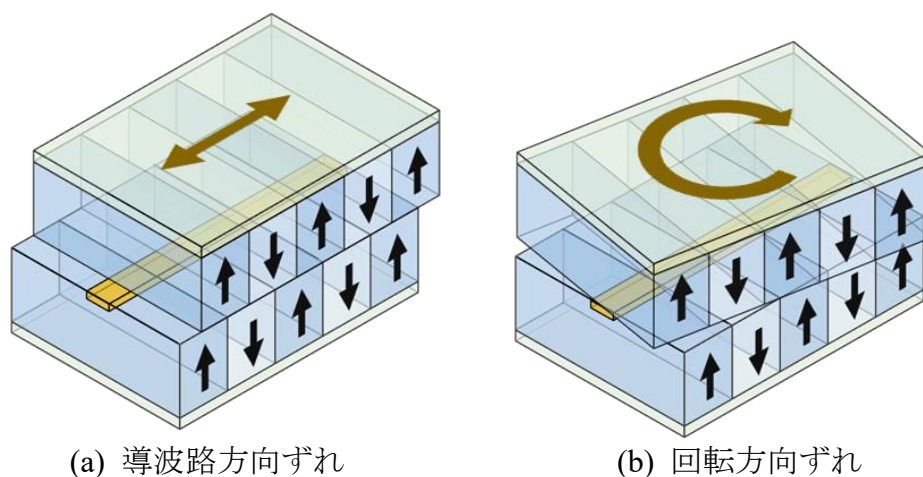


図 4.23 デバイス作製時のずれ

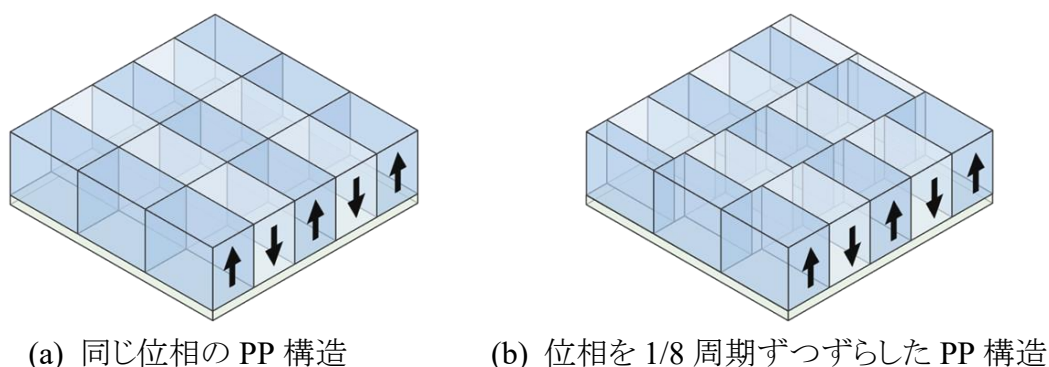


図 4.24 位相ずれを考慮した PP 構造

図 2.3 のように周期的な矩形分布を持っており、矩形波と同じように周期構造の位相を定義すると、PP 構造の位相を合わせることが重要であると言える。PP 構造の位相ずれの原因は図 4.23 に示すように導波路方向の位置ずれと回転方向の位置ずれが考えられる。本研究では導波路方向の位置ずれに関しては片方の結晶に位相の異なる PP 構造を数本形成することで対応し、回転方向の位置ずれに関しては PP 構造の描画と結晶接合の際にできるだけ位置精度を高めることで対応した。

第 3 章で述べたように SiO_2 絶縁層を装荷した PP 構造の形成を行った。ダイシング装置を用いて $17.5 \times 9.0 \text{ mm}^2$ に切り出した MgO:SLT を 2 枚準備した。このとき MgO:SLT の X 軸が長辺と平行になるようにした。3.4.6 項と同様の条件で SiO_2 絶縁層のスパッタを行った後、3.4.2 項のように S1813G のレジスト塗布まで行った。マスクレス露光装置 (DL-1000, ナノシステムソリューションズ) を用いてレジストグレーティングの形成を行った。電極蒸着の際に電極がサンプル全面でつながるためには断面がテーパ状のレジストグレーティングを形成しなければならない。このために dose 量を少なめの 75 mJ/cm^2 とした。上記の通り導波方向の位置ずれに対応するために片方のサンプルは図 4.24(a)に示す PP 構造形成のために位相が同じレジストグレーティングパター

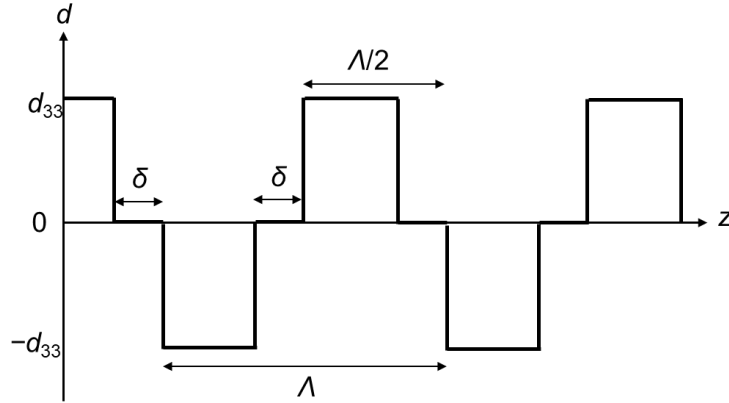


図 4.25 上下の PP 構造が導波路方向にずれたときの
非線形光学定数の分布

ンを、もう片方のサンプルは図 4.24(b)に示す PP 構造形成のために位相がそれぞれ周期の 1/8 ずつずれた 8 種類のレジストグレーティングパターンを転写した。接合後には 8 種類のグレーティングのうちどれか一つが上下の PP 構造の導波路方向のずれが最小になる。このときずれが最小の導波路において、導波路方向のずれは最大でも 0.5 μm となる。図 4.25 より、上下の PP 構造が導波路方向に 0.5 μm ずれたとき、上下の PP 構造がずれている領域では SH 光が発生しないため非線形光学定数が 0 としてよい。図 4.25 のように周期 Λ 、ずれの大きさ δ のとき、2.4 節と同様に非線形光学定数の 1 次のフーリエ係数 $d_1 = d_{\text{eff}}$ は

$$d_1 = d_{\text{eff}} = \frac{2}{\pi} d_{33} \cos\left(\frac{\delta\pi}{\Lambda}\right) \quad (4.3)$$

と計算される。一方、ずれの無いときの d_{eff} は式(2.37)より $d_{\text{eff}} = 2d_{33}/\pi$ である。よって、周期 $\Lambda = 8.0 \mu\text{m}$ 、ずれ $\delta = 0.5 \mu\text{m}$ のときの実効非線形光学定数は、ずれの無いときの実効非線形光学定数に比べて 0.98 倍となる。規格化変換効率は式(2.52)より κ_{SHG}^2 に比例し、 κ_{SHG} は式(2.45)より d_1 に比例する。よって、式(4.3)より規格化変換効率は

$$\kappa \propto \cos^2\left(\frac{\delta\pi}{\Lambda}\right) \quad (4.4)$$

となる。フォトソグラフィの際は回転ずれが起こらないようにサンプルの長辺の端同士で回転アライメントを行った。このマスクレス露光装置は 50 倍の対物レンズでサンプル表面を見ながら位置合わせを行える。このとき、5 μm 以上のずれがあれば確実に視認できる。また、ステージの位置精度は 0.1 μm 以下であるためサンプルの長辺の端で最大でも 10 μm のずれが起こっている。回転角度に直すと、最大でも 0.034°のずれである。サンプルを 22°C の現像液 (NMD-3, 東京応化工業) に 60 s 漬け現像した。その後、22°C の超純水で 60 s リンスを行い窒素ガンでレジストグレーティングが壊れないように丁寧に水分を吹き飛ばした。

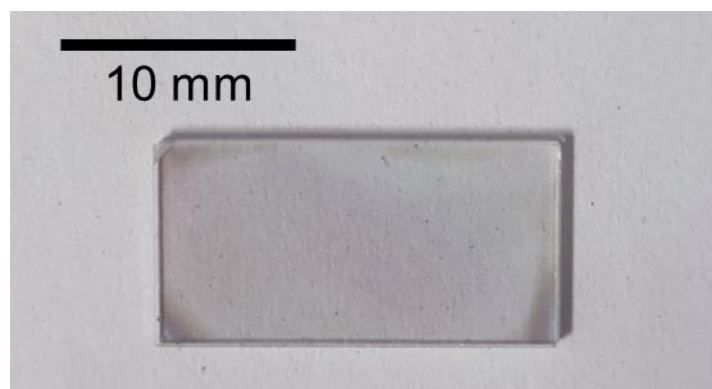


図 4.26 接合後のデバイス写真

3.4.2 項と同様の条件でサンプルの両面に Au を 250 nm 蒸着し、波板電極と一様電極を形成した。サンプルをオイルバスに入れ、30 min かけて温度を 120°C まで上げた後、電界印加法により PP 構造を形成した。このときの MgO:SLT に掛かる電界、パルス周期、パルス幅はそれぞれ 1392 V/mm、0.15 ms、0.05 ms とした。ここで MgO:SLT に掛かる電界が第 3 章と異なる理由は電界 544 V/mm ではサンプル全面に PP 構造が得られなかったためである。 MgO:SLT ウエハによって組成比等の結晶品質に差がある可能性が考えられる。

電界印加後、Au 電極を Au エッチング液 ($\text{KI} : \text{I}_2 : \text{H}_2\text{O} = 4 \text{ g} : 1 \text{ g} : 40 \text{ mL}$) で除去した後、レジストをアセトンで除去した。エタノール、超純水と置換した後サンプルを取り出し、窒素ガンで水分を吹き飛ばした。

次に位相をずらしていない PP 構造を形成したサンプルに 4.3.1 項で述べた手順で 230°C、8 h の PE を行い、両方のサンプルを表面活性化接合した。表面活性化接合後のサンプルの写真を図 4.26 に示す。光学顕微鏡のスケールバーを用いてサンプル長辺の端での上下のサンプルのずれを測長したところ、一方の端では 72 μm でもう一方の端では 69 μm であった。これらの値より、上下のサンプルの接合時の回転精度は 0.01°であり、フォトリソグラフィの回転精度と合わせると最大でも 0.044°の回転ずれとなることが分かった。端面研磨後のデバイス長 14.2 mm から、回転方向のずれを導波方向の位相ずれに直すと約 5 nm のずれであったため、回転精度が十分に良いデバイスを作製できた。4.3.5 項までの横モード拡大時は光源として波長 1030 nm の Yb:YAG レーザを用いていたが、この SHG デバイスの励起光は上記の通り波長 1064 nm である。波長が長くなると同じ H^+ 分布を持つ APE 導波路でも横モードは大きくなるため、このサンプルのアニール時間を 90 h に減らした。その他のアニール条件は 4.3.2 項と同様に O_2 雰囲気中 400°C である。最後に端面研磨を行い、デバイスの完成とした。

4.4 第二高調波発生実験

4.4.1 光学実験セットアップ

作製した表面活性化接合を用いた埋込 APE 導波路縦型 QPM-SHG デバイスの光学実験を行った。光学実験のセットアップを図 4.27 に示す。励起光源として波長 1064.3 nm、出力最大 700 mW の Nd:YAG レーザ (126-1064-700, Lightwave) を用いた。レーザ光を垂直偏光が透過するようにしたグランレーザプリズムに通し、 $f = 60 \text{ mm}$ (AC-254-060-B-ML, Thorlabs) によってデバイス入射端面に集光した。このときのビームウエストでの $1/e^2$ 直径は幅方向 $39 \mu\text{m}$ 、深さ方向 $29 \mu\text{m}$ であった。デバイスから出射した光を 20 倍対物レンズでコリメート光にし、結像レンズで絞った。結像レンズの後にグランレーザプリズムを置き、光量調節を行えるようにした。結像レンズの焦点と同じ位置に焦点が来るように 5 倍対物レンズを置き CMOS カメラに結像した。励起光近視野像観察の際はカットオフ波長 700 nm のロングパスフィルタを 20 倍対物レンズと結像レンズの間に入れることで SH 光をカットした。励起光近視野像を観察しながら、できるだけ低次のモードで導波するようにデバイス位置を調節した。SH 光近視野像観察の際はカットオフ波長 550 nm のショートパスフィルタを 20 倍対物レンズと結像レンズの間に入れることで励起光をカットした。また、励起光と SH 光のパワーを測定する際は結像レンズの後のグランレーザプリズムを抜き、結像レンズの焦点の位置に CMOS カメラの映像を見ながらアイリスを入れ導波光以外をカットした後、5 倍対物レンズの前にサーマルパワーセンサ (S401C, Thorlabs) を挿入した。

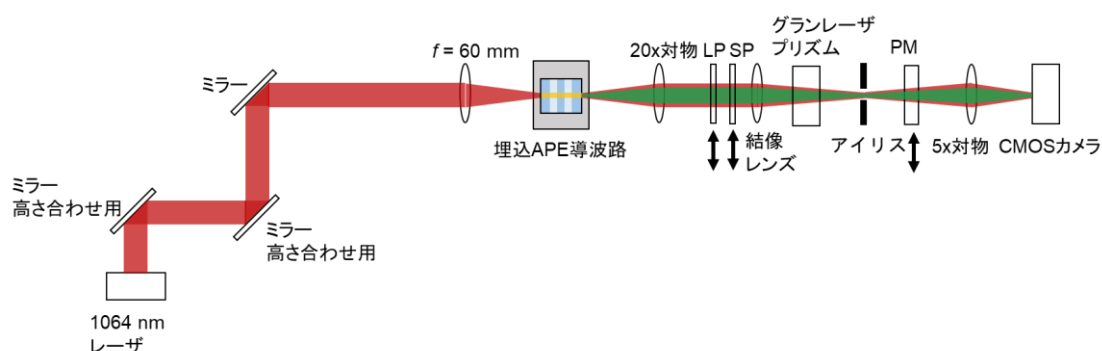


図 4.27 光学セットアップ

4.4.2 規格化変換効率のデバイス温度依存性

作製を試みた8本のデバイスをそれぞれデバイス1-8と名付けた。デバイス1-8はそれぞれ上下のPP構造の位相差が異なる。図4.27に示す光学セットアップで埋込APE導波路縦型QPM-SHGデバイス出射端における励起光近視野像を観察したところ、チップの中心付近のデバイス3-6のみで導波が確認された。なお、デバイス3-6はそれぞれ順に隣り合っているデバイスである。変換効率が最大となるデバイスを予想するために以下の実験を行った。まずデバイス3に励起光を結合させ、デバイス温度を変化させていくとデバイス温度25.5°C付近でSH光強度が最大となった。次にデバイス温度を25.5°Cに固定し、デバイス4-6に励起光を結合させるとデバイス5でSH光強度が最大となったことから、デバイス5において上下のPP構造の位相差が最も小さく規格化変換効率が最大となると予想された。デバイス5の規格化変換効率のデバイス温度依存性を図4.28に示す。デバイス温度を0.5°Cずつ上げていくと、25.5°Cで位相整合し、SH光パワーが最大となることを確認した。半値全幅は2.5°Cであった。また、3.6.2項で見られたSH光 TM_{01} モードの励振は見られなかった。デバイス温度25.5°Cのときの励起光とSH光の波長スペクトルを光スペクトルアナライザ(SPG-V500, SHIMADZU)で測定した結果を図4.29に示す。測定波長レンジに最適なコア径のファイバを用いていなかったためスペクトル幅が広がっているが、ピーク位置を読み取ると波長1064.3 nmから波長532.2 nmのSHGが確認できた。式(3.1)の MgO:SLT の屈折率分散を用いて3.3.3項と同様に分極反転周期8.0 μm 、励起光波長1064.3 nmのときの位相整合温度と半値全幅の理論値はそれぞれ31.5°C、2.3°Cであった。第3章で作製したデバイスと同様に、位相整合温度は励起光とSH光の屈折率差により決定される。結晶温度が低くなると屈折率差は小さくなるため、位相整合温度における理論

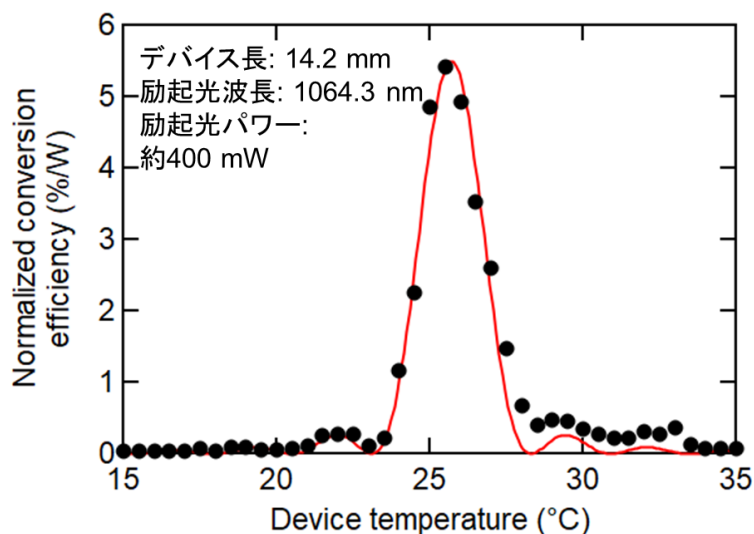


図 4.28 規格化変換効率のデバイス温度依存性

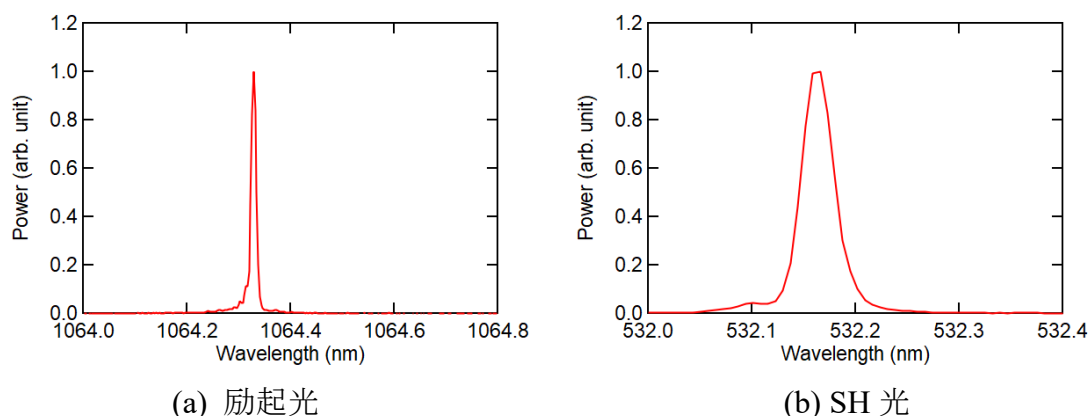


図 4.29 励起光と SH 光のスペクトル

値と測定値の違いは、PE により励起光と SH 光の屈折率差が大きくなったことを示している。また、半値全幅は位相整合温度における励起光と SH 光の屈折率分散の傾きにより決定される。半値全幅が理論値と測定値でほとんど変わらなかったことから、PE では位相整合温度における励起光と SH 光に対する屈折率分散の傾きはほとんど変わらないことが分かった。また、第 3 章で作製した導波路と比べて導波領域がすべて MgO:SLT で囲われているため導波路内の温度むらも少なくなったと考えられる。

デバイス 5 において規格化変換効率が最大となることを確認するために、デバイス温度を位相整合温度である 25.5°C に固定し、デバイス 3–6 に励起光を結合させた。このときのそれぞれのデバイスの規格化変換効率を図 4.30 に示す。デバイス 5, 6, 4, 3 の順で規格化変換効率が高くなっていることを確認した。この結果はデバイス 5 で上下の PP 構造の位相差が最も小さくデバイス 3 で位相差が最も大きいことを示している。デバイス番号を n とすると、隣り合うデバイス間での PP 構造のずれは $1.0\ \mu\text{m}$ であるた

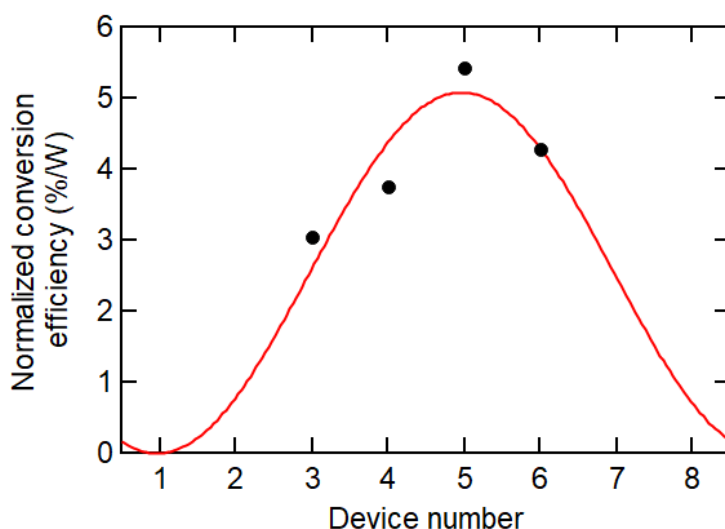


図 4.30 それぞれのデバイスにおける規格化変換効率の最大値

め、位置ずれの大きさ δ は $\delta = 1.0 \times n + \delta_0$ と表すことができる。ここで、 δ_0 はデバイス番号 $8m$ ($m \in \mathbb{N}$) での位置ずれの大きさである。よって、式(4.4)は

$$\kappa \propto \cos^2 \left(\frac{(n + \delta_0)\pi}{\Lambda} \right) \quad (4.5)$$

となる。図中赤線は式(4.5)でフィッティングを行った結果であり、デバイス 5 付近に最大値があることが確認できた。

4.4.3 第二高調波パワーと変換効率の励起光パワー依存性

次に規格化変換効率の測定を行った。デバイス温度を 25.5°C にし、可変 ND フィルタで励起光パワーを調整しながら SH 光パワーを測定した。図 4.31 に SH 光パワーと変換効率の励起光パワー依存性を示す。図 4.31 中の赤線と青破線はそれぞれ SH 光パワーを 2 次関数でフィッティングした曲線と変換効率を 1 次関数でフィッティングした直線である。励起光パワーと SH 光パワーの 2 乗特性が測定されたため、2 次の非線形光学効果による波長変換であることが確認できた。変換効率の傾きが規格化変換効率であり、その値は 4.8%/W と見積もられた。非線形光学定数 $d = 13.8 \text{ pm/V}$ を用いると、式(2.52)より $\kappa = 0.015 \text{ W}^{-1/2}\text{mm}^{-1}$ と計算された。励起光パワー 10 W のとき、SHG デバイス長を 9.9 mm とすることで 2 W の SH 光が見込まれ、さらに、デバイス長 5.3 mm の SFG デバイスをカスケード接続することで 1 W の SF 光が見込まれる。縦横共にシングルモードの 10 W YAG レーザを用いた高パワー波長変換実験は今後の課題である。

3.6.3 項と同様に観測された横モードから非線形結合係数 κ を求め、これを用いて規格化変換効率の理論値を計算すると、非線形結合係数は $\kappa = 0.016 \text{ W}^{-1/2}\text{mm}^{-1}$ 、規格化変換効率の理論値は 5.2%/W と見積もられた。このとき非線形光学定数は $d =$

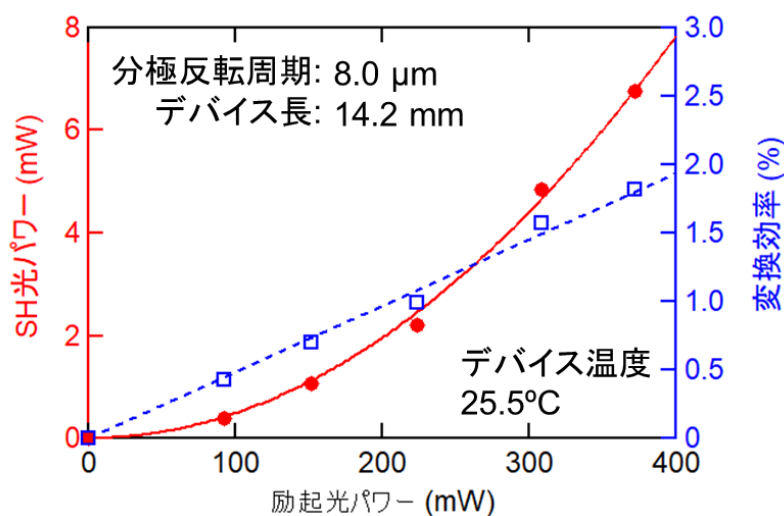


図 4.31 SH 光パワーと変換効率の励起光パワー依存性

13.8 pm/V を用いた。実測規格化変換効率は理論値の 92%以上であるため、十分に高い値となった。

4.4.4 横モード

図 4.32 にデバイス温度が 25.5°C のときの励起光近視野像と SH 光近視野像を示す。励起光の $1/e^2$ 直径は幅方向 31 μm 、深さ方向 31 μm であった。励起光を導波路する際、デバイス位置を動かすと横モード形状が変わったことから励起光に対してマルチモード導波路になっていると考えられる。しかし、4.3.4 項と同様に基底次モードへの結合は容易に行うことができたため、マルチモード導波路であったとしても比較的低次のモードでカットオフとなっている可能性が高い。PE 時間を少し短くすることでシングルモード導波路作製が見込まれる。SH 光の $1/e^2$ 直径は幅方向 19 μm 、深さ方向 16 μm であった。SH 光の $1/e^2$ 直径から横モード断面積を計算すると 240 μm^2 となり、MgO:SLT の波長 532 nm におけるフォトリラクティブ損傷閾値より、この導波路は 2.4 W までの SH 光発生を行うことができると見積もられた。また、励起光、SH 光共に幅方向の横モード形状はほぼ対称であった。深さ方向に関しては特に励起光に関して PE を行ったサンプル側に横モードの裾が長引く形で少し非対称であった。これは、PE 後の凸形状により PE 領域以外では接合界面に空気の層が入っており、接合サンプル側に H^+ が拡散できないことで PE サンプル側の屈折率が高くなったためと考えられる。しかし、3 章で作製した通常の APE 導波路に比べて深さ方向において横モードの対称性が改善した。今後、PE 後に CMP 研磨を短時間行い凸形状を改善し、アニール開

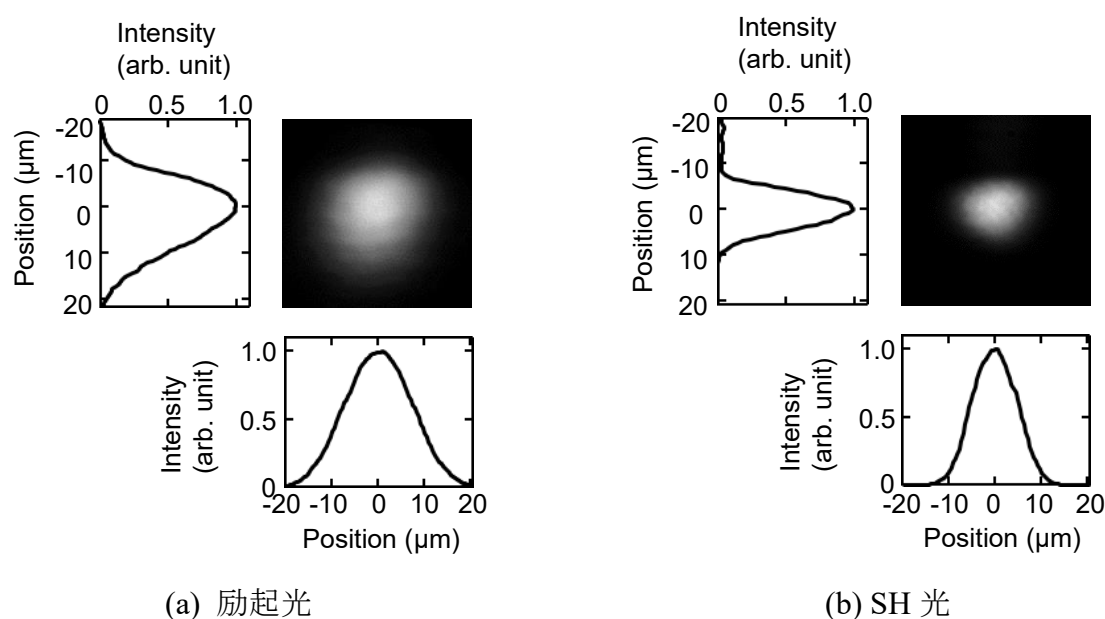


図 4.32 横モードとラインプロファイル

始時の空気層をなくすなどの対策を施すことで更に対称性の良い導波路を作製できると見込まれる。

4.5 まとめ

本章ではレーザ直接描画装置の光源への応用に向けて APE 導波路の横モードの対称化を行った。更に、これまで報告の無かった表面活性化接合を用いた埋込 APE 導波路を縦型 QPM デバイスに装荷する手法の確立を行った。作製された埋込 APE 導波路縦型 QPM デバイスはこれまで報告されている対称導波路である RPE 導波路やフェムト秒レーザ直描導波路より大きな横モードを持つことから高出力波長変換が期待できる。本章で得られた知見と今後の課題を以下にまとめる。

まず、 H^+ の拡散定数を SIMS 測定により求めた。 230°C のピロリン酸を用いた PE の拡散定数は $0.045 \mu\text{m}^2/\text{h}$ 、 400°C でのアニールにおける拡散定数は $1.3 \mu\text{m}^2/\text{h}$ と見積もられた。

表面活性化接合を用いた埋込 APE 導波路作製では、PE 後に表面活性化接合とアニールを行うことで、PE にて結晶中に取り込まれた H^+ がアニールの際に接合界面を拡散するため横モードの対称化に成功した。長時間 PE と長時間アニールを行ったためこの埋込 APE 導波路は $1/e^2$ 直径 $30 \mu\text{m}$ 程度の大きな横モードを有していた。

埋込 APE 導波路を縦型 QPM デバイスに装荷する手法に関して、接合する片方のサンプルには同じ位相の PP 構造を、もう一方のサンプルには位相の異なる PP 構造を形成することで上下の PP 構造の導波方向のずれの軽減を行った。また、PP 構造のリソグラフィや表面活性化接合の際にサンプルの長辺にてアラインメントを行うことで上下の PP 構造の回転方向のずれの軽減を行った。これらの対策を行うことで横モードが対称な埋込 APE 導波路を縦型 QPM デバイスに装荷することに成功した。

光学実験により波長 532 nm の SHG を確認した。横モードは特に励起光に対して PE を行ったサンプル側に裾が長引く形で少し非対称であったが 3 章で作製した APE 導波路に比べると対称となっていることを確認した。今後は PE 時間を少し短くすることでシングルモード導波路を作製することと、CMP 研磨を短時間行い PE 後の凸形状を改善することで更に対称性の良い導波路を作製すること、そして高出力波長変換実験を行うことが課題となる。

以上より、今後の課題はいくつか残されているが、大きく対称な横モードを持つ埋込 APE 導波路の作製に成功した。

参考文献

1. K. R. Parameswaran, R. K. Route, J. R. Kurz, R. V. Roussev, M. M. Fejer, and M. Fujimura, *Opt. Lett.* **27**, 179 (2002).
2. M. Marangoni, R. Osellame, R. Ramponi, S. Takekawa, M. Nakamura, and K. Kitamura, *Opt. Express* **12**, 2754 (2004).
3. M. Marangoni, M. Lobino, R. Ramponi, E. Cianci, and V. Foglietti, *Opt. Express* **14**, 248 (2006).
4. M. Fujimura, K. Beniya, and T. Suhara, *Electron. Lett.* **44**, 856 (2008).
5. K. Yamamoto, K. Mizuuchi, and T. Taniuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, 1059 (1992).
6. M. Okazaki, T. Chichibu, S. Yoshimoto, H. Mizuno, and T. Suhara, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 070301 (2015).
7. T. Yuhara, K. Tada, and Y. S. Li, *J. Appl. Phys.* **71**, 3966 (1992).
8. P. J. Matthews, A. R. Mickelson, and S. W. Novak, *J. Appl. Phys.* **72**, 2562 (1992).
9. J. Crank, *The mathematics of diffusion* (Oxford university press, 1975) Second edition.
10. T. Suhara and M. Fujimura, *Waveguide Nonlinear-Optic Devices* (Springer, Berlin, 2003), chap. 6.
11. 渡辺俊介, 廣橋淳二, 今井浩一, 星正幸, 牧尾諭, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10p-W834-18 (2019).
12. M. Tripkett, J. Khayadarov, X. Xu, A. Marandi, G. Imeshev, J. Arntsen, A. Ninan, G. Miller, and C. Langrock, *Opt. Express* **27**, 21102 (2019).
13. L. Li, B. Zhang, C. Romero, J. R. V. Aldana, L. Wang, and F. Chen, *Results in Physics* **19**, 103373 (2020).

第 5 章 一致溶融組成 $\text{LiNbO}_3/\text{GaN}$ 積層による 横型擬似位相整合導波路

5.1 はじめに

第 1 章で述べたように、量子情報処理デバイスとして用いることができるスクイーズは高効率でなくてはならない。また、垂直電界印加型位相シフタを用いた光回路と集積可能なスクイーズはアライメントフリーで小型・高速な量子情報処理デバイスの実現に向けて重要である。そこで本章では上記要件を満たすスクイーズに向けた非線形光学定数の大きな MgO:CLN とレーザ媒質である GaN を組み合わせた波長変換デバイスの作製を行った。

5.2 結晶の選定

まずは用いる強誘電体結晶の選定を行った。スクイーズ等の波長変換でよく用いられる強誘電体結晶として、第 1 章でも示したように MgO:CLN 、 MgO:SLN 、 MgO:CLT 、 Mg:SLT 、 KTP などがある。これらの光学特性を表 5.1 にまとめる。 KTP は波長 1550 nm スクイーズド光発生デバイスとしてよく用いられている結晶であり、実際にバルク共振器型のデバイスにおいて 15.0 dB の波長 1064 nm のスクイーズド光発生に成功している¹。しかし、本章で目標としている波長 405 nm 励起においてはその大きな青誘起赤外吸収 (BLIIRA) により波長 808 nm のスクイーズド光が吸収されてしまい、スクイーズ

表 5.1 代表的な強誘電体結晶の特性とスクイーズド光発生実績

結晶	非線形光学定数 d_{33} (pm/V)	フォトリフラクティブ損傷閾値 @CW 532 nm (MW/cm^2)	赤外吸収 (BLIIRA 含む) @1 ps, $450 \text{ MW}/\text{cm}^2$ ($\times 10^{-4}/\text{cm}$)	バルクスクイーズド光発生実績 (dB)
MgO:CLN	25.0 ⁴	$> 2^6$	1.4 ²	10.1 ³
MgO:SLN	25.0 ⁴	$> 2^6$	2.0 ²	N/A
MgO:CLT	13.8 ⁴	N/A	N/A	N/A
MgO:SLT	13.8 ⁴	$> 2^6$	0.8 ²	N/A
KTP	13.7 ⁵	1.2 ⁷	4.4 ²	15.0 ¹

ジングレレベルが下がってしまう恐れがある²。また、導波損失や吸収を考慮に入れると、導波路長は短い方が良いが、KTP 結晶の非線形光学定数は表 5.1 に示した強誘電体結晶の中では小さいため、短い導波路長で高い変換効率を達成することが難しい。MgO:CLT や MgO:SLT 等の LT 結晶は BLIIRA は少ないが、非線形光学定数が MgO:CLN に比べて小さいため、短い導波路長で高い変換効率を達成することが難しい。MgO:CLN や MgO:SLN 等の LN 結晶は LT 結晶に比べて BLIIRA が大きい。実際、波長 410 nm のピコ秒レーザ(パルス幅 1 ps, 繰り返し周波数 1 kHz)における BLIIRA 閾値は KTP が 35 MW/cm²、MgO:SLT が 250 MW/cm²、MgO:CLN が <35 MW/cm²、MgO:SLN が <35 MW/cm² との報告されている²。しかし、非線形光学定数がこれらの代表的な強誘電体結晶の中で最も高いため導波路長を短くすることができ、導波損失を考慮に入れると正味の損失や吸収は KTP や LT に比べて小さくすることができる。また、光学特性が良いことから集積光デバイス材料として研究が進んでおり、高品質な薄膜が得られるという利点もある。さらに、バルク共振器 MgO:CLN を用いて波長 1550 nm の 10.1 dB スクイーズド光発生に成功している³。そこで本章では強誘電体として MgO:CLN を用いることに決定した。

5.3 設計

本章で作製する MgO:CLN と GaN を組み合わせた波長変換デバイスの波長変換方式は MgO:CLN/GaN 積層による横型 QPM である。本節では横型 QPM 導波路の設計方法を述べたのち、設計結果と見積られるスクイージングレベルについて記す。

5.3.1 設計方法

モード分散位相整合条件を計算するためには、導波モードの実効屈折率を計算する必要がある。ステップ型の屈折率分布を持つスラブ導波路は Maxwell 方程式から導き出される導波路の波動方程式を解析的に解くことができる。しかし、チャネル導波路の場合は解析解が存在しない。本章では公開されているフルベクトル有限差分法⁸のコードを用いて実効屈折率の計算を行った。なお、計算に用いた言語は MATLAB である。

導波モードも光の一種であるため Maxwell 方程式に従う。Maxwell 方程式から導くことができる磁界 \mathbf{H} に対する波動方程式は

$$\nabla \times (\epsilon^{-1} \nabla \times \mathbf{H}) - \omega^2 \mu_0 \mathbf{H} = 0 \quad (5.1)$$

となる。ここで導波路媒質の透磁率は真空の透磁率と等しい($\mu = \mu_0$)とした。 ω は角周波数である。 ϵ は結晶軸のうち一つの軸が導波方向(z 方向)となっている誘電率テンソ

ルでありそれぞれの方向での誘電率 ε_{ij} を用いて

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \varepsilon_0 \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & 0 \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} \end{bmatrix} \quad (5.2)$$

と表される。光が z 方向に伝搬定数 β で進んでいると仮定すると z 方向の項は $e^{-j\beta z}$ であり、 $\frac{\partial}{\partial z} = -j\beta$ となる。また、 $\nabla \cdot \mathbf{H} = 0$ の関係より

$$H_z = \frac{1}{j\beta} \left(\frac{\partial H_x}{\partial x} + \frac{\partial H_y}{\partial y} \right) \quad (5.3)$$

となる。このとき、導波路中の磁界は 2 つの磁界の横成分 H_x, H_y で完全に表すことができる。 H_x, H_y は

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 H_x}{\partial x^2} + \frac{\varepsilon_{yy}}{\varepsilon_{zz}} \frac{\partial^2 H_x}{\partial y^2} + \frac{\varepsilon_{yx}}{\varepsilon_{zz}} \frac{\partial^2 H_x}{\partial y \partial x} + \left(1 - \frac{\varepsilon_{yy}}{\varepsilon_{zz}} \right) \frac{\partial^2 H_y}{\partial x \partial y} \\ - \frac{\varepsilon_{yx}}{\varepsilon_{zz}} \frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} + k^2 (\varepsilon_{yy} H_x - \varepsilon_{yx} H_y) = \beta^2 H_x, \end{aligned} \quad (5.4)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 H_y}{\partial y^2} + \frac{\varepsilon_{xx}}{\varepsilon_{zz}} \frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} + \frac{\varepsilon_{xy}}{\varepsilon_{zz}} \frac{\partial^2 H_y}{\partial x \partial y} + \left(1 - \frac{\varepsilon_{xx}}{\varepsilon_{zz}} \right) \frac{\partial^2 H_x}{\partial y \partial x} \\ - \frac{\varepsilon_{xy}}{\varepsilon_{zz}} \frac{\partial^2 H_x}{\partial y^2} + k^2 (\varepsilon_{xx} H_y - \varepsilon_{xy} H_x) = \beta^2 H_y \end{aligned} \quad (5.5)$$

と書ける。ここで $k^2 = \omega^2 \mu_0 \varepsilon_0$ であり、 ε_0 は真空の誘電率である。これらの式は H_x と H_y の結合固有値方程式となっており、行列の形で表すと、

$$\begin{bmatrix} A_{xx} & A_{xy} \\ A_{yx} & A_{yy} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} H_x \\ H_y \end{bmatrix} = \beta^2 \begin{bmatrix} H_x \\ H_y \end{bmatrix} \quad (5.6)$$

と書ける。なお、 H_x と H_y の結合を無視して $A_{xy} = A_{yx} = 0$ とするとセミベクトル有限差分法となる。 A_{ij} は式(5.4),(5.5)から微分が含まれることが分かる。有限差分法ではこの微分を計算するために図 5.1 のように計算領域の点 P の東西南北(EWSN)に点 P からの距離が e, w, s, n であるメッシュを考える。詳細は文献 8 に譲るが、 A_{ij} に含まれる微分は磁界 H_x, H_y を点 P の周りでテイラー展開し、2 次の項まで考えるという近似を用いることによって点 P とその東、西、南、北、北東、北西、南東、南西における磁界の項で書くことができる。そのように A_{ij} を書いた後、式(5.6)で表される固有値問題を解くことで、その固有ベクトルから導波モードの磁界を、固有値からその伝搬定数を求めることができる。

MATLAB では固有値ソルバーがすでに用意されているため、それを用いて式(5.6)の固有値問題を解いた。ここで、式(5.6)の解となる固有値・固有ベクトルは TM-like モード、TE-like モード、その他の混合モードが混ざっている。なお、ここより TM-like モード、TW-like モードは単に TM モード、TE モードと記す。また、MATLAB の固

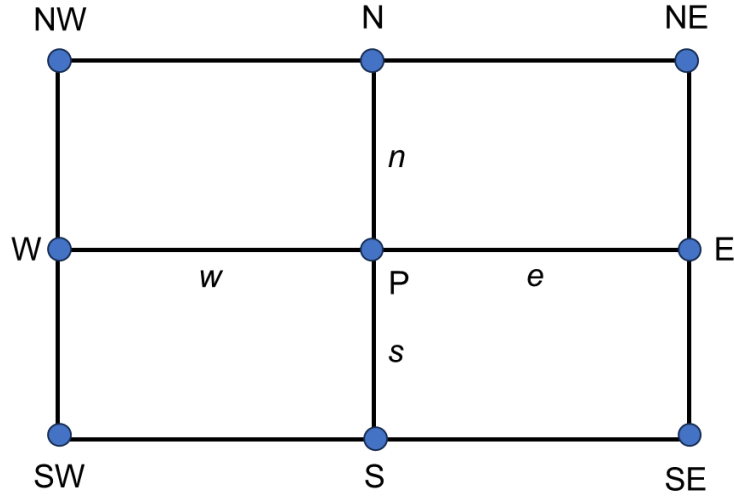


図 5.1 有限差分法におけるメッシュ

有値ソルバーは固有値が大きい方から求めていく。そこで、実際のプログラムでは式 (5.6) を MATLAB の固有値ソルバーを用いて励起光は 50 個、スクイーズド光は 10 個の固有値・固有ベクトルを求めた。そこから、 H_x 成分と H_y 成分の大きさを比べることで TM モードと TE モードを区別し、モードの x 方向と y 方向の節の数を数えることで TM_{00} や TM_{01} などのモード番号を決定した。

このようにして各モードの磁界と伝搬定数を求めることができれば、電束密度は Maxwell 方程式から求めることができ、

$$D_x = -\frac{1}{\omega\beta} \left(\frac{\partial^2 H_x}{\partial y \partial x} + \frac{\partial^2 H_y}{\partial y^2} \right) + \frac{\beta}{\omega} H_y, \quad (5.7)$$

$$D_y = +\frac{1}{\omega\beta} \left(\frac{\partial^2 H_y}{\partial x \partial y} + \frac{\partial^2 H_x}{\partial x^2} \right) - \frac{\beta}{\omega} H_x, \quad (5.8)$$

$$D_z = \frac{j}{\omega} \left(\frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial x} \right) \quad (5.9)$$

となる。これら電束密度から電界は

$$\begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \frac{1}{\epsilon_0(\epsilon_{xx}\epsilon_{yy} - \epsilon_{xy}\epsilon_{yx})} \begin{bmatrix} \epsilon_{yy} & -\epsilon_{xy} \\ -\epsilon_{yx} & \epsilon_{xx} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} D_x \\ D_y \end{bmatrix}, \quad (5.10)$$

$$E_z = \frac{1}{\epsilon_0\epsilon_{zz}} D_z = \frac{j}{\omega\epsilon_0\epsilon_{zz}} \left(\frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial x} \right) \quad (5.11)$$

と計算することができる。

5.3.2 MgO:CLN と GaN の膜厚

波長 405 nm の励起光から波長 810 nm のスクイーズド光を発生させるための MgO:CLN と GaN の膜厚を計算した。本章では、作製を容易にするため MgO:CLN と GaN を一層ずつ積層した横型 QPM デバイスを仮定した。ここで、スクイーズド光は光回路で用いやすいように TM₀₀ モードとし、励起光は TM₀₁ モード、TM₀₂ モード TM₀₃ モードの計算を行った。図 5.2 に計算した導波路断面図を示す。基板は GaN テンプレートを用いることを想定し Al₂O₃ とした。コアは MgO:CLN と GaN が分極の向きが反対になるように積層されている構造とし、クラッドは低屈折率クラッドとしてよく使われる SiO₂ とした。材料の屈折率を求めるために用いた Sellmeier の式を以下に示す⁹⁻¹²。

$$n_{\text{SiO}_2} = 1.447 + \frac{0.00364}{\lambda^2} + \frac{0.0000080032}{\lambda^4} \quad (5.12)$$

$$n_{\text{MgO:CLN}} = \sqrt{4.5583 + \frac{0.091806}{\lambda^2 - 0.048086} - 0.03207\lambda^2} \quad (5.13)$$

$$n_{\text{GaN}} = \sqrt{1 + \frac{4.321\lambda^2}{\lambda^2 - 189.2^2}} \quad (5.14)$$

$$n_{\text{Al}_2\text{O}_3} = \sqrt{1 + \frac{1.5039759\lambda^2}{\lambda^2 - 0.0740298^2} + \frac{0.55069141\lambda^2}{\lambda^2 - 0.1216529^2} + \frac{6.5927379\lambda^2}{\lambda^2 - 20.072248^2}} \quad (5.15)$$

ここで、 λ は波長であり単位は μm である。計算時には Al₂O₃ 基板や SiO₂ クラッドの厚さや幅は導波モードの電界が十分減衰する大きさとした。Al₂O₃ 基板と SiO₂ クラッドの厚さは両方 1.0 μm とした。導波路幅は 1.0 μm とし、導波路の横方向外側の SiO₂ クラ

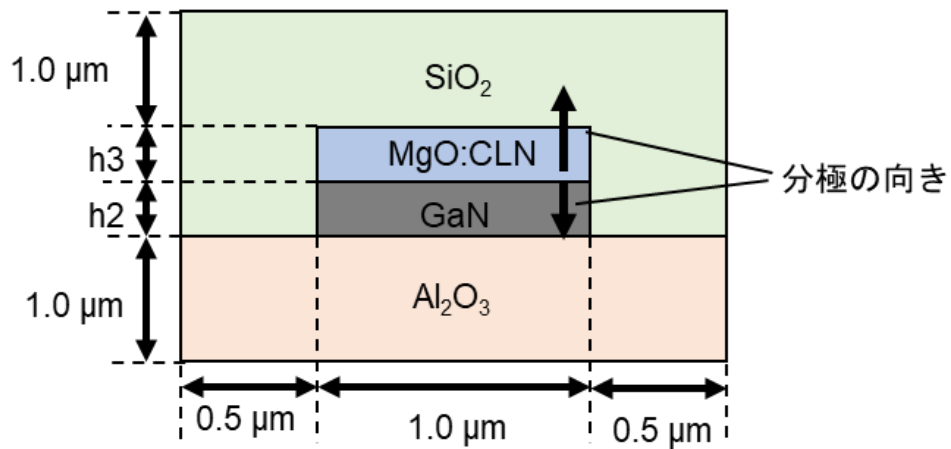


図 5.2 計算した導波路断面図

ッドの幅は $0.5\ \mu\text{m}$ とした。計算メッシュサイズを導波路幅方向、導波路厚さ方向共に $10\ \text{nm}$ として、 MgO:CLN と GaN の膜厚をそれぞれ $100\ \text{nm}$ から $500\ \text{nm}$ まで $10\ \text{nm}$ ずつ増やしていきながら、波長 $405\ \text{nm}$ の励起光と波長 $810\ \text{nm}$ のスクイズド光の実効屈折率差と非線形結合係数 κ を計算した。図 5.3 に結果を示す。図 5.3 中カラーマップが κ の値を表しており、青線が位相整合する MgO:CLN と GaN のそれぞれの膜厚を示している。また、灰色はカットオフによりモードが存在しないまたは用いた固有値ソルバーで解が収束せずモードを見つけることができなかった箇所である。位相整合条件を満たす青線をたどっていくと、図 5.3(a)の励起光 TM_{01} モードでは κ の極大値が 1 つ、図 5.3(b)の励起光 TM_{02} モードでは 2 つ、図 5.3(c)の励起光 TM_{03} モードでは 3 つであった。 κ が極大となる膜厚は MgO:CLN と GaN の境界が励起光の高次モードの節の位置となる膜厚であり、このとき MgO:CLN と GaN の分極の向きが反転しているため、式の κ の値は大きくなる。励起光 TM_{01} モードの場合、 MgO:CLN 膜厚 $120\ \text{nm}$ 、

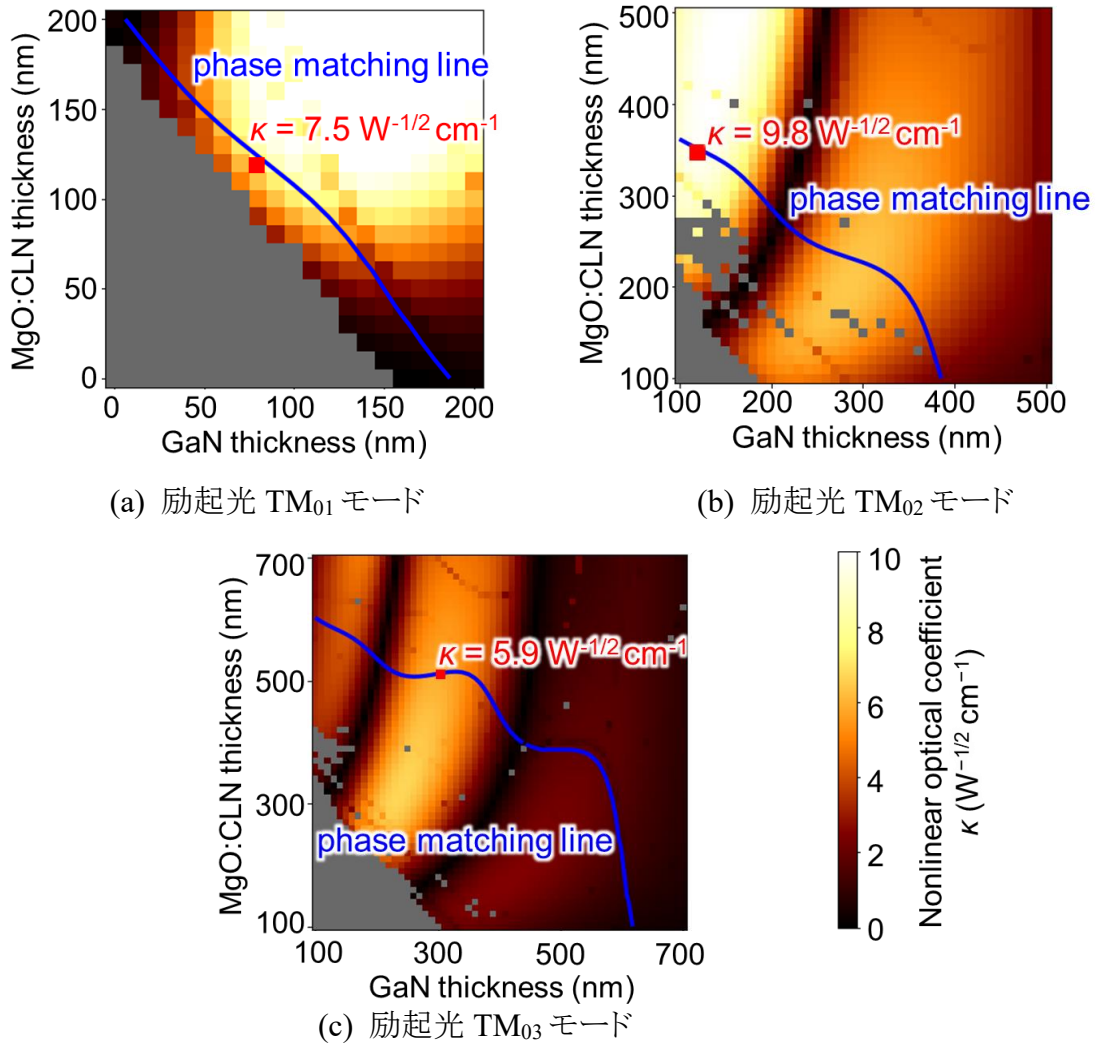
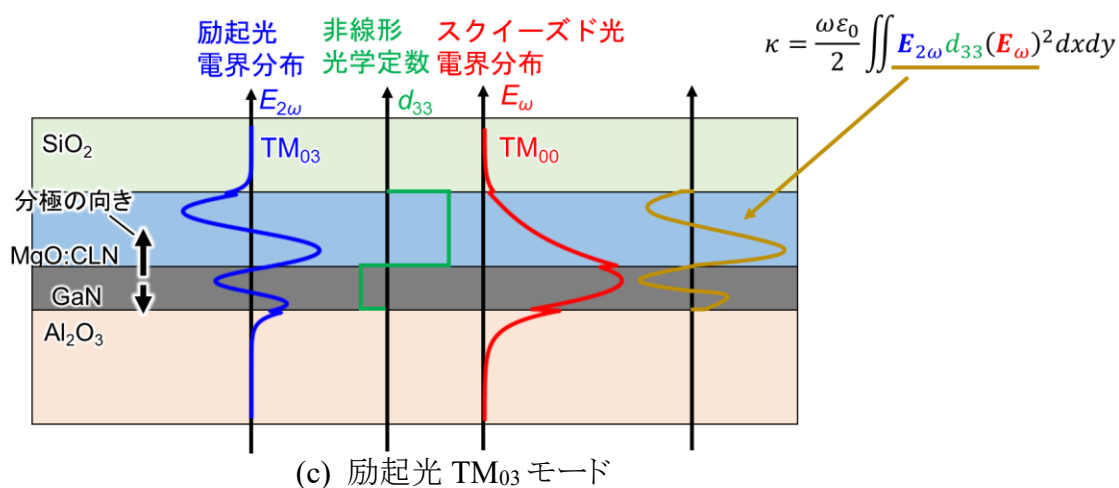
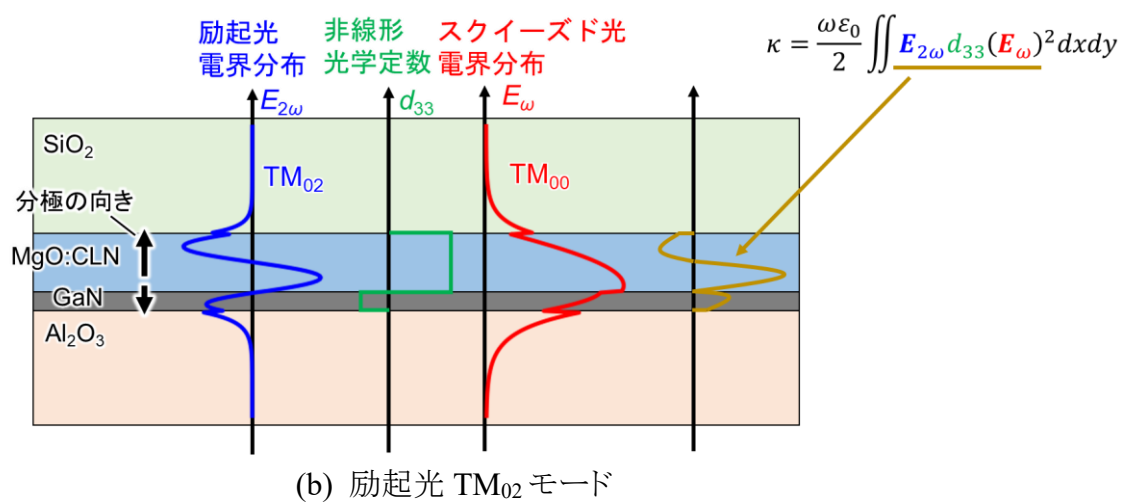
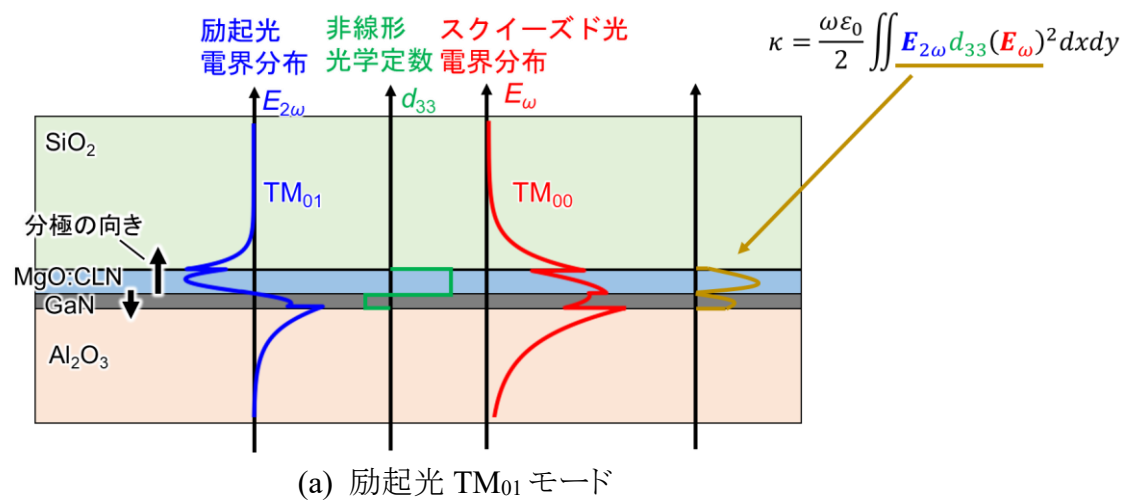


図 5.3 κ の各膜厚依存性

GaN 膜厚 80 nm のとき位相整合条件を満たす膜厚の中で κ が最大となり、 $\kappa = 7.5 \text{ W}^{-1/2}\text{cm}^{-1}$ となった。励起光 TM_{02} モードの場合、 MgO:CLN 膜厚 350 nm、GaN 膜厚 120 nm のとき位相整合条件を満たす膜厚の中で κ が最大となった。 κ の値は励起光 TM_{01} モードのときより大きくなり、 $\kappa = 9.8 \text{ W}^{-1/2}\text{cm}^{-1}$ となった。励起光 TM_{03} モードの場合、 MgO:CLN 膜厚 510 nm、GaN 膜厚 300 nm のとき位相整合条件を満たす膜厚の中で κ が最大となった。 κ の値は励起光 TM_{02} モードのときより小さい $\kappa = 5.9 \text{ W}^{-1/2}\text{cm}^{-1}$ となった。励起光 TM_{01} モード、 TM_{02} モード、 TM_{03} モードを用いたとき TM_{02} モードの場合の κ の値が最大となった理由は図 5.4 に示すように励起光とスクイーズド光の腹の位置が近いためである。つまり、二層構造においては励行として偶数次モードを用い、励起光の腹が非線形光学定数の大きな材料に含まれるようにすることで κ の値が大きくなる。また、より高次モードを用いると、 MgO:CLN と GaN を一層ずつ積層した横型 QPM デバイスにおいては電界の正負で打ち消しあう成分が多くなるだけでなく導波路断面積が大きくなるため κ の値は小さくなってしまう。従って、励起光 TM_{02} モードを用いるときに κ の値は最大となることが分かる。次に、より正確な位相整合膜厚と κ の値を見積もるために、導波路厚さ方向のメッシュサイズを 1 nm として、 MgO:CLN の膜厚を 110 nm から 130 nm まで 1 nm ずつ、GaN の膜厚を 340 nm から 360 nm まで 1 nm ずつ増やしていき、波長 405 nm の励起光 TM_{02} モードと波長 810 nm のスクイーズド光 TM_{00} モードの実効屈折率差と非線形結合係数 κ を計算した。結果を図 5.5 に示す。 MgO:CLN 膜厚 351 nm、GaN 膜厚 121 nm のとき位相整合する膜厚の中で κ が最大の $\kappa = 9.8 \text{ W}^{-1/2}\text{cm}^{-1}$ となった。これは GaN 極性反転横型 QPM デバイスの 5.1 倍の値であり、非線形光学定数の高い MgO:CLN を用いることでより高効率な波長変換デバイスを実現できることが分かった^{13,14}。このときの励起光とスクイーズド光の電界分布を図 5.6 に示す。励起光は TM_{02} モード、スクイーズド光は TM_{00} モードとなっており、 MgO:CLN と GaN の境界が励起光 TM_{02} モードの下部の節となっていることが確認できた。

図 5.4 電界分布と κ の被積分関数

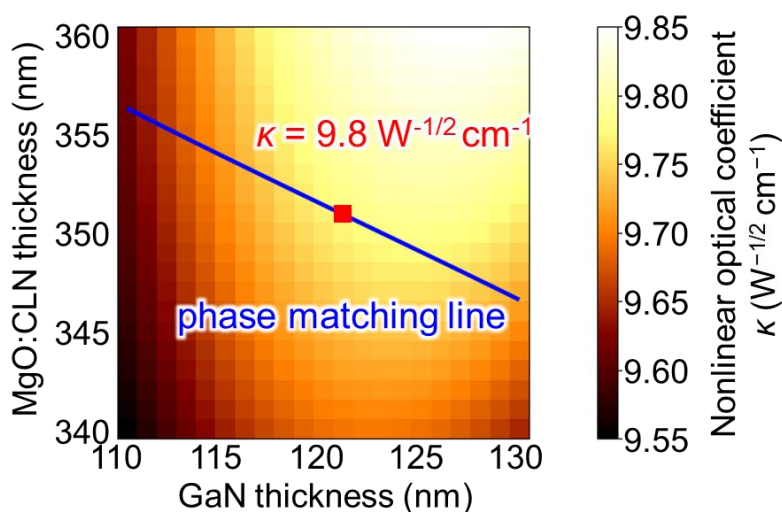
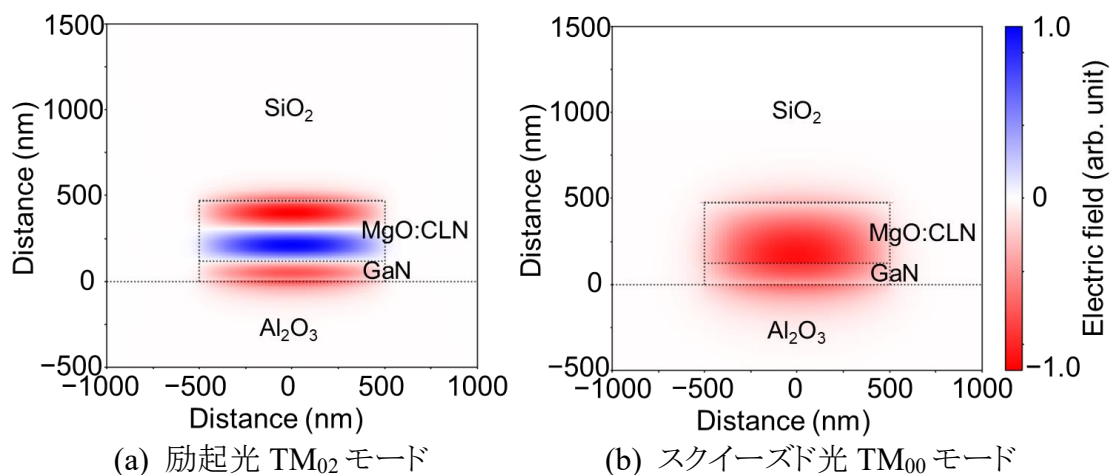
図 5.5 κ の各膜厚依存性

図 5.6 MgO:CLN 351 nm、GaN121 nm のときの電界分布

5.3.3 スクイーミングレベル

前項で求めた $\kappa = 9.8 \text{ W}^{-1/2} \text{ cm}^{-1}$ を用いて式(2.143),(2.144)を数値的に解くことでスクイーミングレベルの見積りを行った。図 5.7 に励起光パワー 3.5 mW、デバイス長 20.0 mm のときのスクイーミングレベルの導波損失依存性を示す。励起光損失とスクイズド光損失では励起光損失の方が許容範囲が大きいことが分かった。これは、スクイズド光損失は直接的にスクイーミングレベルを下げるのに対し、励起光損失はデバイスのゲイン $g(=|K|a_{p0} = \kappa_{\text{SHG}}\sqrt{P_0})$ を小さくするだけであるためである。幅 480 nm、リブ高さ 180 nm、スラブ高さ 120 nm の LN リブ導波路において波長 635 nm の光に対し、0.6 dB/cm の導波路損失が報告されている¹⁵。また、幅 8.0 μm 、高さ 1.0 μm の LN リブ導波路において、405 nm の光の導波損失は 635 nm の光に比べて約 6 倍、810 nm の光の導波損失は 635 nm の光に比べて約 3/5 倍となることが報告されている¹⁶。

また、幅 $1.0\ \mu\text{m}$ 、高さ $1.0\ \mu\text{m}$ の GaN チャネル導波路において、導波路側壁の表面粗さが2乗平均(root mean square, RMS)で $1\ \text{nm}$ のとき $405\ \text{nm}$ の光と $810\ \text{nm}$ の光の導波損失はそれぞれ $0.8\ \text{dB/cm}$, $0.8\ \text{dB/cm}$ と計算されている¹⁷。これらより励起光損失 $3.5\ \text{dB/cm}$ 、スクイズド光損失 $1.0\ \text{dB/cm}$ と仮定したときのスクイーミングレベルの励起光パワーとデバイス長依存性を図 5.8 に示す。励起光パワーが一定のとき、デバイス長が短い領域ではデバイス長が長くなるにつれてスクイーミングレベルが上がっていった。しかし、あるデバイス長を境にスクイーミングレベルが下がっていくことが分かった。これはデバイス長が短い領域ではデバイスのゲインによりスクイーミングレベルが上がるのに対し、デバイス長が長くなってくると励起光パワーが導波損失により少なくなっていく、ゲインが小さくなるためである。また、励起光パワーが大きくなるにつれてスクイーミングレベルが上がっていた。これは励起光パワーが大きくなるにつれてゲインが単調増加するためである。デバイス長 $20\ \text{mm}$ のとき励起光パワーを $3.3\ \text{mW}$ とすることで測定型量子計算に必要な2次元クラスター状態の生成や GBS による近似 cubic phase 状態の生成に必要な $\sim 4.5\ \text{dB}$ スクイーミングレベルを達成できることが分かった。この励起光パワーは GaN 極性反転横型 QPM で $4.5\ \text{dB}$ スクイーミングを達成するために必要な励起光パワーの約 $1/26$ であり、縦単一モード InGaN レーザで十分に達成できるパワーである。また、連続量光子量子において1量子ゲートの実装にも用いられる連続量量子テレポーテーションの閾値である $3.0\ \text{dB}$ には励起光パワーを $1.3\ \text{mW}$ とすればよいことが分かった。図 5.9 よりデバイス長 $20.0\ \text{mm}$ のときの励起光波長許容幅は $0.01\ \text{nm}$ となった。縦単一モード波長可変 InGaN 分布帰還型 (distributed feedback, DFB) レーザにおいて波長スペクトル幅は $0.0062\ \text{nm}$ が報告されており¹⁸、このような光源を用いることで効率よく波長変換することができる。

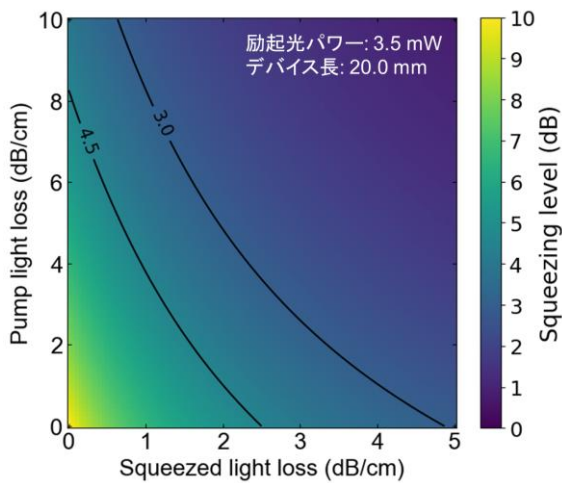


図 5.7 スクイーミングレベルの導波損失依存性

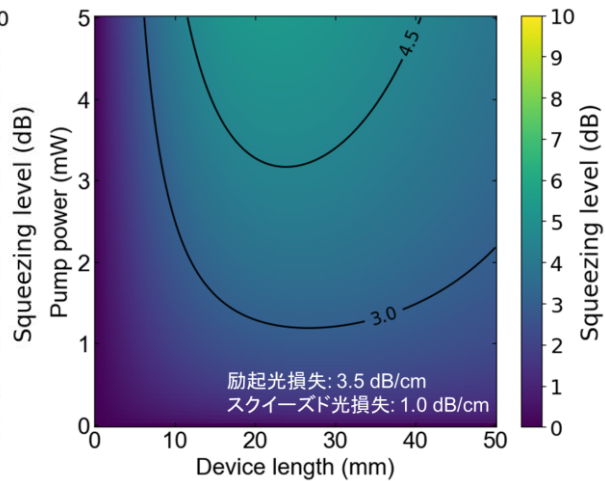


図 5.8 スクイーミングレベルの励起光パワーとデバイス長依存性

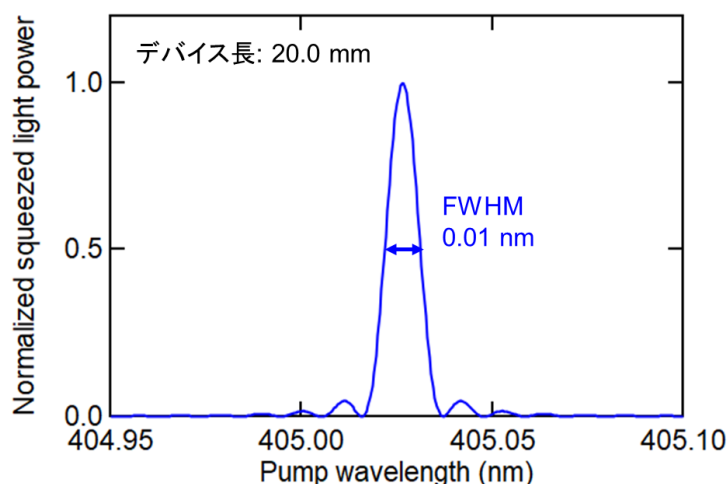


図 5.9 波長許容幅

5.4 MgO:CLN と GaN の表面活性化接合

本章では表面活性化接合により $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ 積層構造を形成し、 $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ 積層横型 QPM デバイスの作製を行う。これまで MgO:CLN と GaN テンプレートの表面活性化接合は接合強度を高めることが難しく、あまり行われてこなかった。少ない報告の中でも、 MgO:CLN と GaN テンプレートの表面活性化接合は界面に数 nm の Fe などの不純物層を形成することで接合強度を高めてきた¹⁹⁻²¹。この表面活性化接合方法は $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ 積層構造を電気デバイスとして応用する際には問題とならない場合もあるが、本研究のような可視光から近赤外光の光デバイスに応用する際は Fe が光吸収源となってしまうため用いることができない。そこで本節では接合条件の最適化により MgO:CLN と GaN の接合強度を高めた。

5.4.1 FAB 照射条件

FAB 照射条件は表面活性化接合において重要な条件の一つである。FAB 加速電圧が低い、または FAB 照射時間が短いと結晶表面の不純物を取り切ることができないため部分的に接合されず、接合強度が低下してしまう。一方、FAB 加速電圧が高い、または FAB 照射時間が長いと結晶表面のダメージが多くなり、アモルファスになってしまうという報告がある^{22,23}。そのため、接合強度が下がってしまう。 $+c\text{-GaN}$ の FAB 条件は本研究室でこれまで行ってきた $+c\text{-GaN}$ 同士の最適条件である FAB 電流 200 mA、FAB 加速電圧 1.0 kV、FAB 照射時間 350 s とした。用いる接合装置 (VE-08-07,

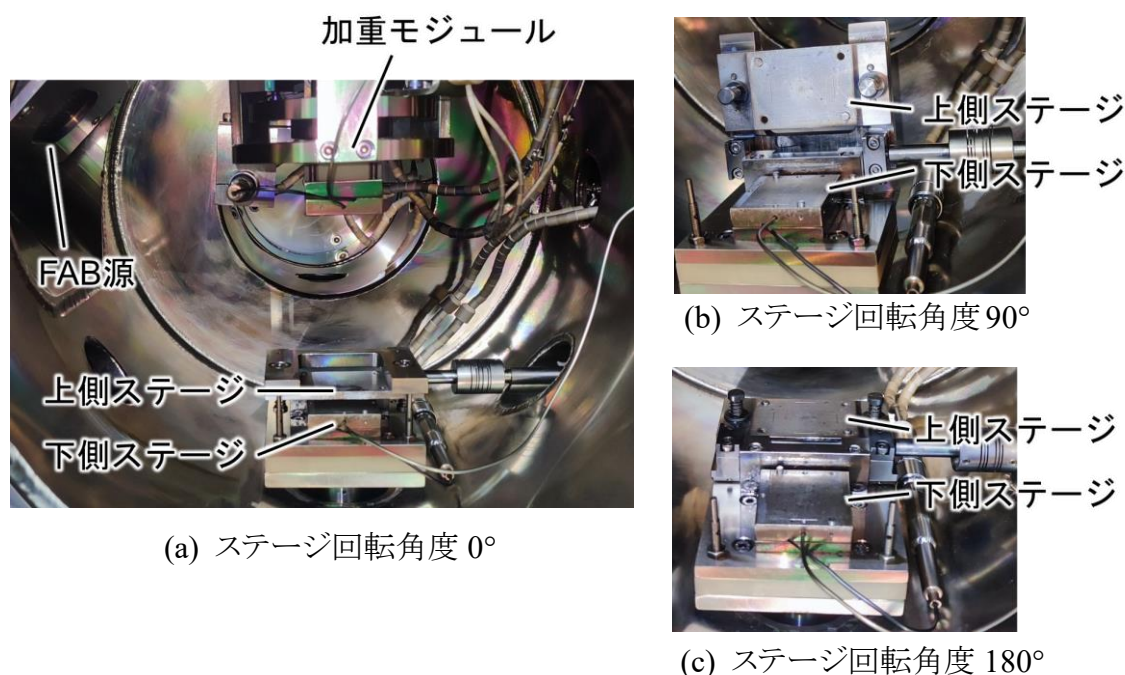


図 5.10 表面活性化接合装置内部

アユミ工業)は図 5.10(a)のように FAB 源が 1 つしかなく、上部結晶を 180° 回転させることで両方の結晶に FAB 照射を行う。よって、接合する両方の結晶に対して同じ FAB 電流と FAB 加速電圧としなければならない。したがって、 MgO:CLN の FAB 条件は FAB 電流 200 mA、FAB 加速電圧 1.0 kV として、FAB の照射時間の最適化を行った。

サンプルとして、 $4.5 \text{ mm} \times 4.5 \text{ mm}$ にダイシングした-Z 面バルク MgO 5 mol%添加一致熔融組成 LiNbO_3 と $5.0 \text{ mm} \times 6.0 \text{ mm}$ にダイシングした as-grown の+c-GaN テンプレートを用了。+c-GaN は Al_2O_3 基板上に有機金属気相成長法 (metal-organic vapor phase epitaxy, MOVPE) 法で成膜されたものであり、膜厚をエリプソメータ (MOC-2000U-OT, J. A. Woollam Co., Inc.) で測定すると、約 900 nm であった。まず、それぞれのサンプルを白色干渉顕微鏡 (VS 1800, Hitachi) で測定し、表面粗さを見積もった。結果を図 5.11 に示す。-Z- MgO:CLN と+c-GaN の表面粗さは $110 \mu\text{m} \times 110 \mu\text{m}$ の範囲において RMS でそれぞれ 0.5 nm、3.9 nm であった。

両方のサンプルをトリクロロエタンとアセトンで有機洗浄し、エタノール→超純水と置換して窒素ブローした。洗浄後、5 倍の対物レンズを用了光学顕微鏡観察によりサンプル表面にパーティクルが付着していないかを確認めた。パーティクルが付着していた場合、そのまま表面活性化接合するとパーティクルの部分が接合できないため、もう一度サンプルを超純水に入れ 45 kHz の超音波で数分超音波洗浄を行った。光学顕微鏡観察と超純水による超音波洗浄をサンプル表面のパーティクルが無くなるまで繰り返した。

サンプルを図 4.10(a)に示す治具にカプトンテープとカーボンシートで貼り付けた後

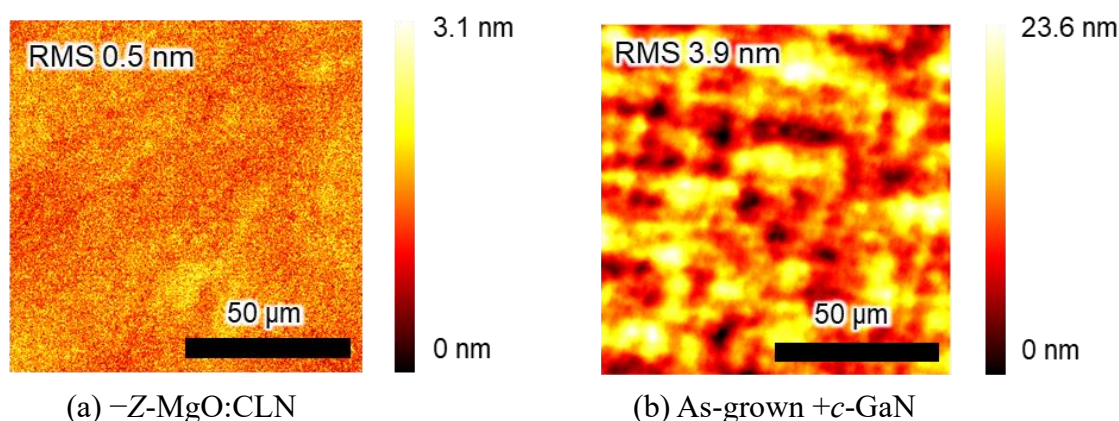


図 5.11 白色干渉顕微鏡像

チャンバ内に入れた。このとき、FAB 照射時間が長い+c-GaNをステージが固定されている下のステージに置き、FAB 照射時間が短い-Z-MgO:CLN を 180° 回転させることができる上のステージに置いた。真空度が 5×10^{-5} Paを下回るまで真空引きをした後、FAB 電流と加速電圧をそれぞれ 1.0 kV、200 mA とした。このとき、+c-GaN と-Z-MgO:CLN は図 5.10(a)のように向かい合わせになっており、FAB は結晶表面には当たらないようになっている。次に-Z-MgO:CLN のステージを 90° 回転させ、図 5.10(b)のように FAB 流と-Z-MgO:CLN 面を平行にした。このとき、+c-GaN は FAB 照射されており、-Z-MgO:CLN は FAB 流と平行となっているため-Z-MgO:CLN はほとんど FAB 照射されていない。最後に-Z-MgO:CLN のステージを更に 90° 回転させ、図 5.10(c)のように-Z-MgO:CLN が FAB 照射されるようにした。所望の時間 FAB 照射を行った後、-Z-MgO:CLN のステージを回転させ、図 5.10(a)のように上下のステージが向かい合っている状態にした。GaN の FAB 照射時間は+c-GaN と-Z-MgO:CLN が向かい

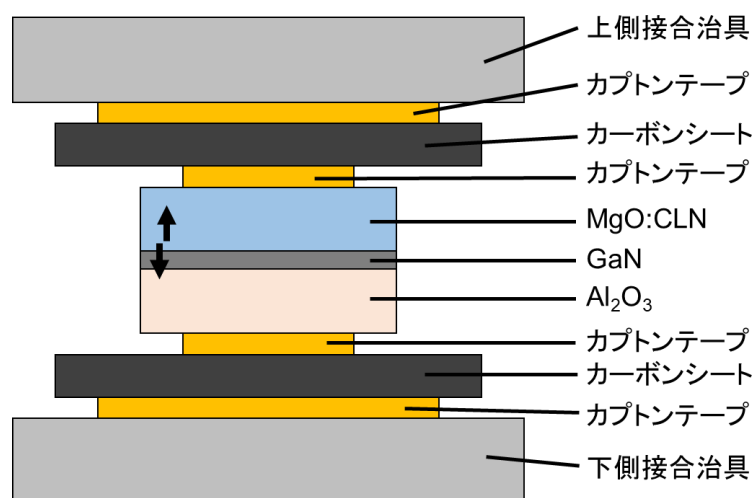


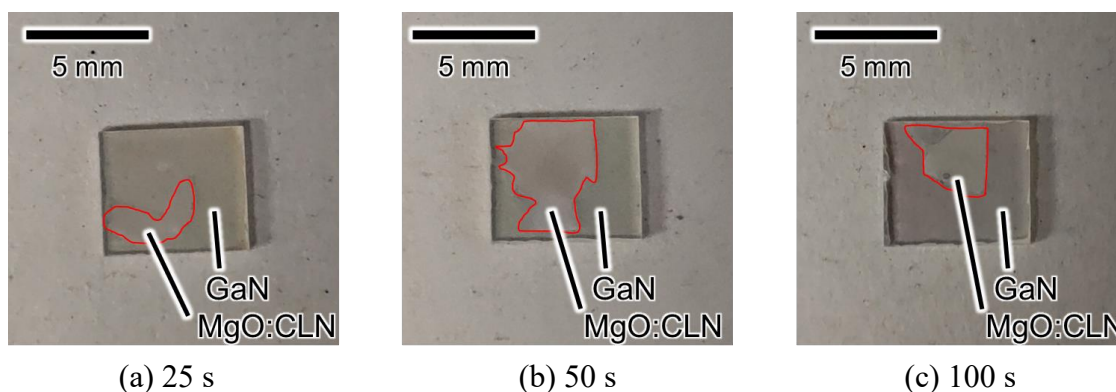
図 5.12 接合治具と接合時の断面図

合わせになっている状態から $-Z\text{-MgO:CLN}$ のステージを 90° 回転させたときに計測開始し、 $-Z\text{-MgO:CLN}$ の FAB 照射時間はステージを更に 90° 回転させたときに計測開始した。 $-Z\text{-MgO:CLN}$ への FAB 照射時間が 25 s, 50 s, 100 s, 200 s, 350 s となり、 $+c\text{-GaN}$ の FAB 照射時間が 350 s となるようにステージを回転するタイミングを変更した。FAB 照射後、すぐに 10 MPa の加圧を行った。その状態で 6 h 保持した後、加圧をやめ、サンプルをチャンパから取り出した。接合条件を表 5.2 にまとめる。

接合状態を以下に示す研磨テストにて評価した。研磨テストでは接合サンプルの MgO:CLN を精密研磨装置 (MA-150, ムサシノ電子) と自動噴霧装置 (MS-2, ムサシノ電子) を用いて $3\text{ }\mu\text{m}$ ダイヤモンドスラリー、61 rpm で MgO:CLN の膜厚が $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下となるように面研磨した。面研磨後に GaN にくっついている MgO:CLN の面積で接合状態を評価した。図 5.13 に面研磨後のサンプルの写真を示す。図 5.13 中赤線は MgO:CLN の境界である。 MgO:CLN への FAB 照射時間が 25 s のサンプルでは研磨後に MgO:CLN が 2 割程度残っており、FAB 照射時間が 50 s のサンプルでは 7 割程度に増えていた。更に FAB 照射時間を増やした 100 s では 4 割程度 MgO:CLN が研磨後に残っていた。 MgO:CLN への FAB 照射時間が 200 s と 350 s のサンプルでは接合できなかった。このように接合状態が FAB 照射時間があるときのみ良くなることは GaN でも報告されている²²。以上の結果から、 MgO:CLN への FAB 照射時間は 50 s が最適であると結論付けた。

表 5.2 接合条件

FAB 電圧 (kV)	FAB 電流 (mA)	GaN FAB 照射時間 (s)	MgO:CLN FAB 照射時間 (s)	基板温度 ($^\circ\text{C}$)	圧力 (MPa)	加圧時間 (h)
1.0	200	350	25, 50, 100, 200, 350	23	10	6

図 5.13 MgO:CLN への FAB 時間が異なるときの研磨テスト後のサンプル

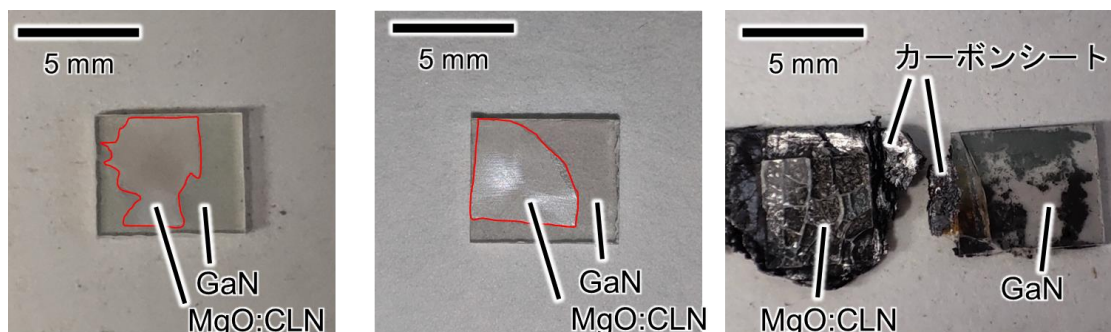
5.4.2 接合温度

GaN 同士の表面活性化接合では接合時の温度が高いほど接合強度が向上することが報告されている²²。そこで MgO:CLN と GaN の表面活性化接合においても温度を上げることによって接合状態が良くなるのではないかと考えた。前項と同様に $-Z$ - MgO:CLN と $+c$ -GaN の有機洗浄とサンプルセットを行い、チャンバの真空度が 5×10^{-5} Pa を下回るまで真空引きをした。FAB 電流と加速電圧をそれぞれ 1.0 kV、200 mA とし、 MgO:CLN には 50 s、GaN には 350 s の FAB 照射を行い、10 MPa の加圧を行った。加圧開始後すぐにステージのヒータの電源を入れ 110°C または装置の最高温度である 258°C を目標に加温した。用いた接合装置はヒータの加熱速度が遅く、目標の温度となるまでに 1.5 h 程度かかる。加熱速度の遅さは今回の実験では MgO:CLN の焦電効果を抑えるためには有利に働いたため、特に対策を施さずに実験を進めた。ステージ温度が目標温度となってから更に 1.5 h 保持した後にヒータの電源を切った。ステージ温度が 30°C を下回るまで 3 h 程度加圧を続けた。従って、合計の加圧時間は 6 h であった。接合条件を表 5.3 にまとめる。

チャンバから取り出し、研磨テストを行った。図 5.14 に研磨テスト後のサンプルの写真を示す。図 5.14(a)の接合温度 23°C のサンプルは図 5.13(b)の FAB 照射時間 50 s のサンプルと同じものである。接合時の温度が 110°C のサンプルは研磨後に MgO:CLN が 9 割程度残っていた。接合時の温度が 258°C のサンプルは MgO:CLN にクラックが入り接合できていなかった。CLN と GaN の熱膨張係数は 500 K において

表 5.3 接合条件

FAB 電圧 (kV)	FAB 電流 (mA)	GaN FAB 照射時間 (s)	MgO:CLN FAB 照射時間 (s)	基板温度 (°C)	圧力 (MPa)	加圧時間 (h)
1.0	200	350	50	23, 110, 258	10	6



(a) 23°C (研磨テスト後) (b) 110°C (研磨テスト後) (c) 258°C (接合試み後)

図 5.14 接合温度が異なるときのサンプル

それぞれ $16.1 \times 10^{-6} / \text{K}$ 、 $4.89 \times 10^{-6} / \text{K}$ である^{24,25}。熱膨張係数差から 258°C での接合時は温度上昇後に MgO:CLN と GaN が接合され、温度を室温まで下げたときに熱膨張係数差により MgO:CLN が GaN に比べてより小さくなったことでクラックが入ったと考えられる。以上の結果から、接合温度は 110°C が最適であると結論付けた。

5.4.3 CMP 研磨による表面平坦性の改善

前項までで FAB 条件と接合温度条件を最適化したが、研磨テスト後の MgO:CLN は一部分が欠損していた。更なる接合状態の改善のために GaN の表面平坦性向上を試した。これまで用いてきた $+c\text{-GaN}$ は as-grown の GaN テンプレートであり、図 5.11(b)で示したように $110 \mu\text{m} \times 110 \mu\text{m}$ での RMS 粗さは 3.9 nm であった。これは GaN の成長によるものであり、MOVPE 条件を変更してさらに表面粗さを改善することは難しい。そこで GaN を $10 \mu\text{m}$ 程度厚く成長させた後、CMP 研磨することで表面平坦性の改善を行った。CMP 研磨後の $+c\text{-GaN}$ テンプレートの白色干渉顕微鏡像を図 5.15 に示す。RMS 粗さは $110 \mu\text{m} \times 110 \mu\text{m}$ で 0.5 nm であった。この GaN テンプレートとバルク-Z- MgO:CLN を用いて表 5.4 に示す条件で表面活性化接合を行った。研磨テスト後のサンプルの写真を図 5.16 に示す。 $4.5 \text{ mm} \times 4.5 \text{ mm}$ 全面での接合と面研磨に成功した。

次に、 $8.5 \text{ mm} \times 8.5 \text{ mm}$ にダイシングしたバルク-Z- MgO:CLN と $9.0 \text{ mm} \times 9.0 \text{ mm}$

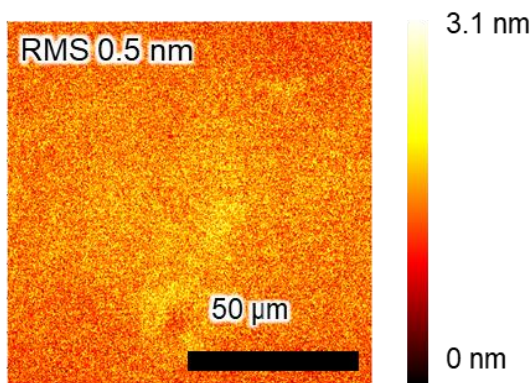


図 5.15 CMP GaN の白色干渉顕微鏡像

表 5.4 最適化された接合条件

FAB 電圧 (kV)	FAB 電流 (mA)	GaN FAB 照射時間 (s)	MgO:CLN FAB 照射時間 (s)	基板温度 ($^\circ\text{C}$)	圧力 (MPa)	加圧時間 (h)
1.0	200	350	50	110	10	6

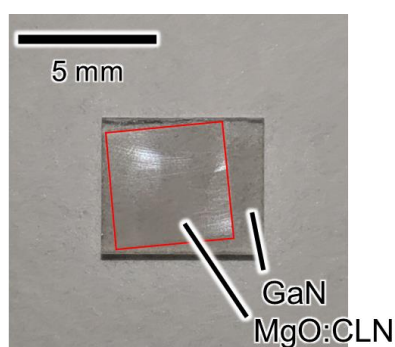


図 5.16 研磨テスト後のサンプル

にダイシングした CMP 研磨後の+c-GaN を表 5.4 に示す最適化した接合条件で接合し、 $8.5\text{ mm} \times 8.5\text{ mm}$ の面積でも接合できることを確認した。この大きさのサンプルを用いて引張試験により接合強度の確認を行った。引張試験用の治具の表面と MgO:CLN の表面をサンドブラスターで細かい傷をつけた。これを行う理由は研磨傷により表面積を大きくすることで治具と試料の接着力を高めるためである。 GaN テンプレート側の Al_2O_3 基板は鏡面加工されていないため、サンドブラスターでの傷つけは行わなかった。治具と試料を、エポキシを用いて接着し、脱泡のためにデシケータにいれ真空引きを行い 2 h 静置した。デシケータから取り出し、一晩静置した。サンプルを引張試験機 (MX2-2500N, IMADA) に設置し引張試験を実施した。引張試験後のサンプルの様子を図 5.17 に示す。大部分は接合界面ではがれているが、一部分だけ接合界面はつながったまま MgO:CLN と引張試験治具がはがれた。サンプルがはがれたときの引張力を引張試験治具に残っていた MgO:CLN の面積で割ることにより MgO:CLN と GaN の引張圧力を求めたところ、 4.4 MPa となっていた。同様の実験をもう一度行ったところ、引張圧力は 4.2 MPa となった。この引張圧力は SiO_2/Si や $\text{SiO}_2/\text{SiO}_2$ の表面活性化接合における引張圧力に匹敵するほど高いことが分かった²⁶。

さらにこの接合後に MgO:CLN 薄膜転写を行った。 $4.5\text{ mm} \times 4.5\text{ mm}$ にダイシングした膜厚 350 nm の-Z- MgO:CLN 薄膜 (NANOLN) と $5.0\text{ mm} \times 7.0\text{ mm}$ にダイシング

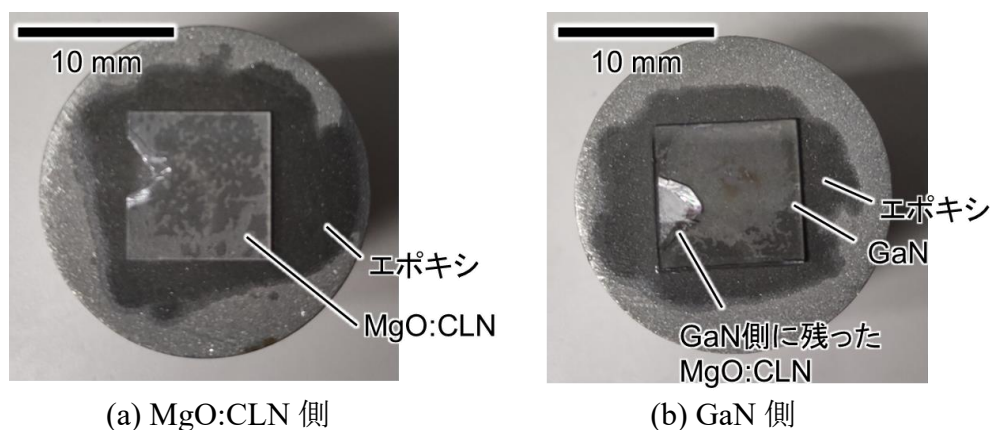


図 5.17 引張試験後のサンプル

した CMP 研磨した膜厚 $\sim 4.2\ \mu\text{m}$ の $+c\text{-GaN}$ テンプレートを用いて表 5.4 の条件で表面活性化接合を行った。接合後のサンプルを Au エッチング液 ($\text{KI} : \text{I}_2 : \text{H}_2\text{O} = 4\ \text{g} : 1\ \text{g} : 40\ \text{mL}$) に入れ、Au を選択的にエッチングすることで CLN を除去した。CLN 除去後のサンプルの写真を図 5.18 に示す。接合温度 23°C では 3 割程度しか転写に成功しなかったが、接合温度 110°C では 9 割以上転写に成功した。図 5.19 にこれらのサンプルと GaN テンプレートのラマンスペクトルを示す。ラマン測定はナノフoton株式会社に行っていた。GaN テンプレートは 5 つのピークを持っており、そのうち、 $378\ \text{cm}^{-1}$ 、 $418\ \text{cm}^{-1}$ 、 $450\ \text{cm}^{-1}$ の 3 つのピークは $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ の A_{1g} と E_g のフォノンモードに対応し、 $557\ \text{cm}^{-1}$ と $567\ \text{cm}^{-1}$ の 2 つのピークはウルツ型 GaN の $E_1(\text{TO})$ と $E_2(\text{high})$ のフォノンモードに対応する。 $-Z\text{-MgO:CLN}$ 薄膜を接合し CLN 剥離したサンプルのラマンスペクトルはこれらのピークに加えて $230\ \text{cm}^{-1}$ 、 $261\ \text{cm}^{-1}$ 、 $326\ \text{cm}^{-1}$ 、 $434\ \text{cm}^{-1}$ の位置にピークがみられた。これらは MgO:CLN の $E(\text{TO})$ のフォノンモードに対応する。 z 軸が GaN の c 軸と MgO:CLN の Z 軸に平行なとき GaN の $E_2(\text{high})$ フォノンモードと MgO:CLN の $E(\text{TO})$ フォノンモードは活性を示すため、このラマン測定結果により $-Z\text{-MgO:CLN}$ 薄膜の $+c\text{-GaN}$ への転写に成功したことが分かった。

以上より、接合条件の最適化と CMP 研磨による GaN テンプレートの表面平坦性改

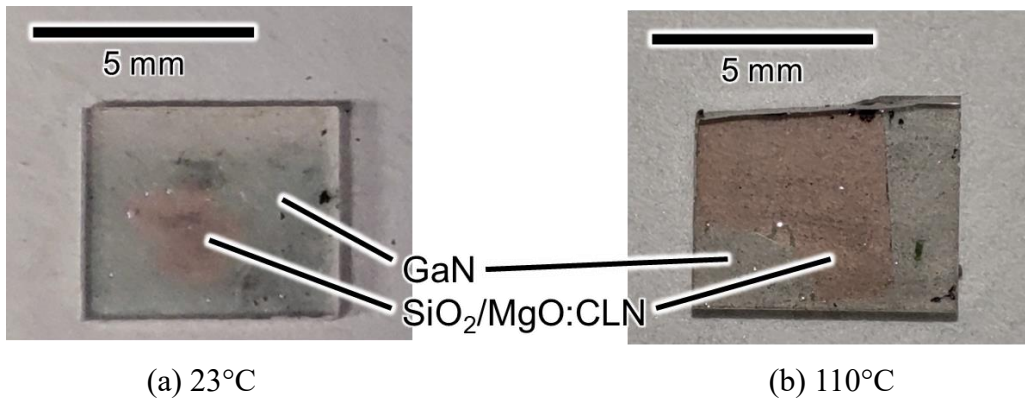


図 5.18 CLN 基板剥離後のサンプル

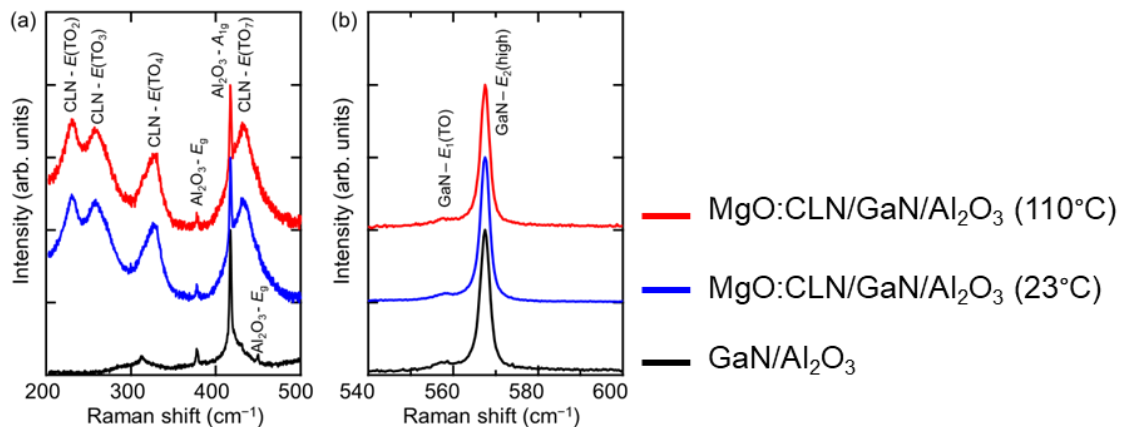


図 5.19 CLN 基板剥離後のサンプルのラマンスペクトル

善により界面に Fe などの不純物のない $\text{MgO}:\text{CLN}$ と GaN の表面活性化接合に成功した。

5.5 $\text{MgO}:\text{CLN}/\text{GaN}$ チャネル導波路作製

本章では前節までに行ってきた $\text{MgO}:\text{CLN}$ と GaN の表面活性化接合を用いた $\text{MgO}:\text{CLN}/\text{GaN}$ 積層による横型 QPM 導波路作製を行った。図 5.20 に示す $4.5\text{ mm} \times 4.5\text{ mm}$ にダイシングした膜厚 350 nm の $-Z\text{-MgO}:\text{CLN}$ 薄膜 (NANOLN) と $5.0\text{ mm} \times 7.0\text{ mm}$ にダイシングした CMP 研磨した膜厚 $\sim 4.2\text{ }\mu\text{m}$ の $+c\text{-GaN}$ テンプレートを用いた。 $-Z\text{-MgO}:\text{CLN}$ 薄膜と $+c\text{-GaN}$ テンプレートの RMS 粗さを白色干渉顕微鏡で測定したところ、 $110\text{ }\mu\text{m} \times 110\text{ }\mu\text{m}$ の領域でそれぞれ 0.5 nm 、 0.5 nm であった。本章ではプロトタイプデバイス作製として小さなサイズのサンプルを用いたが、大きなサンプルに対しても同様の作製プロセスを適用できる。作製プロセスを図 5.21 に示す。

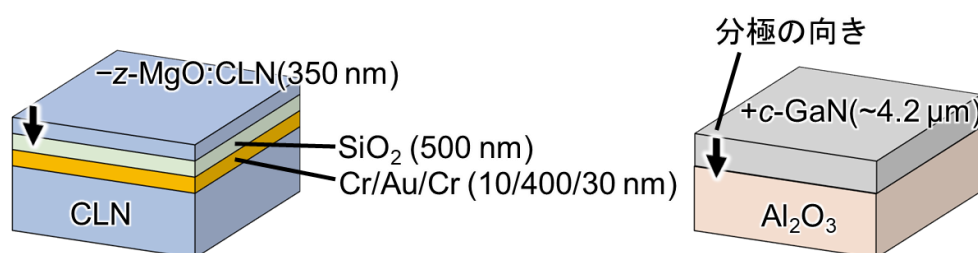
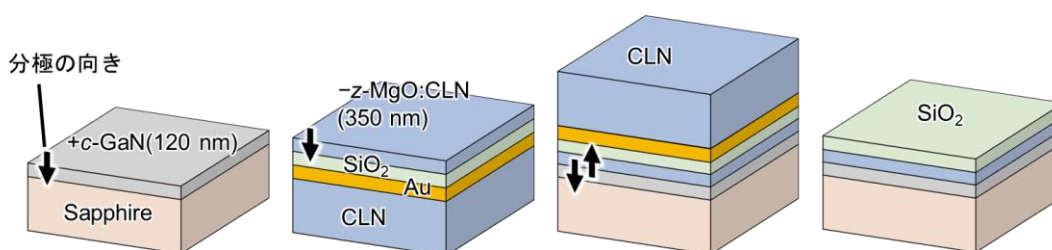


図 5.20 用いた $\text{MgO}:\text{CLN}$ 薄膜と GaN テンプレート

(a) GaN 膜厚調整

(b) 表面活性化接合

(c) CLN 基板除去



(d) Cr/Ni マスク形成

(e) チャネル形成

(f) SiO_2 スパッタ・端面研磨

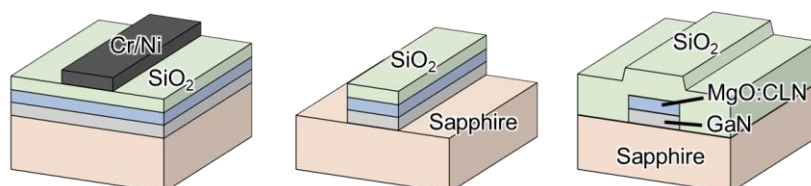


図 5.21 作製プロセス

(a) ICP-RIE による GaN 膜厚調整

+c-GaN をトリクロロエタンとアセトンを用いてそれぞれ 15 min 超音波洗浄した後、エタノール、超純水の順に置換した。洗浄後、5 倍の対物レンズを用いた光学顕微鏡観察によりサンプル表面にパーティクルが付着していないかを確認した。パーティクルが付着していた場合、そのまま誘導結合プラズマ反応性イオンエッチング (ICP-RIE) により膜厚調整を行うと、パーティクルがエッチングマスクとなり表面平坦性が悪化するため、もう一度サンプルを超純水に入れ 45 kHz の超音波で数分超音波洗浄を行った。光学顕微鏡観察と超純水による超音波洗浄をサンプル表面のパーティクルが無くなるまで繰り返した。

+c-GaN の膜厚を ICP-RIE 装置 (NE-730, ULVAC) によって調節した。文献 13 に示すように、Ar 流量を 12 sccm、 Cl_2 の流量を 3 sccm、アンテナパワー 250 W、バイアスパワー 20 W、チャンバ内圧力 0.20 Pa とすることで、GaN の表面平坦性を維持したまま反応副生成物の無いエッチングを行うことができる。この条件でのエッチングレートは約 1.7 nm/s であり、エッチング時間を調整することで GaN を膜厚約 120 nm までエッチングした。GaN の膜厚調整後の白色干渉顕微鏡像を図 5.22 に示す。密度約 $2 \times 10^5 / \text{cm}^2$ でピットがみられた。これは GaN テンプレートの貫通転位密度よりも 2-3 桁小さい値であるため、GaN の欠陥によるものではなく、長時間の ICP-RIE によるものであると考えられる。今後、CMP 研磨で 1 μm 程度まで薄膜化した GaN テンプレートを用いることなどでこの問題を解決できると考えている。ICP-RIE 後の GaN 表面は 110 $\mu\text{m} \times 110 \mu\text{m}$ での RMS 粗さで 0.6 nm となり、表面粗さをほぼ保持したまま膜厚調整を行うことができた。

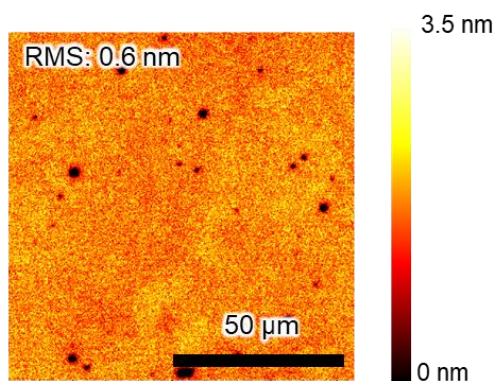


図 5.22 膜厚調整後の+c-GaN 白色干渉顕微鏡像

(b) MgO:CLN 薄膜転写

-Z- MgO:CLN 薄膜と膜厚調整した CMP 研磨+c-GaN テンプレートをトリクロロエタンとアセトンを用いてそれぞれ 15 min 超音波洗浄した後、エタノール、超純水の順に置換した。洗浄後、5 倍の対物レンズを用いた光学顕微鏡観察によりサンプル表面にパーティクルが付着していないかを確認、パーティクルが無くなるまで超純水による超音波洗浄を行った。その後、前節で最適化した表 5.4 に示す条件で表面活性化接合した。

(c) CLN 基板除去

接合後のサンプルを Au エッチング液 ($\text{KI} : \text{I}_2 : \text{H}_2\text{O} = 4 \text{ g} : 1 \text{ g} : 40 \text{ mL}$) に入れ、Au を選択的にエッチングすることで CLN を除去した。CLN 基板除去後のサンプルの写真を図 5.23(a)に示す。エッチング後、 MgO:CLN 薄膜は 8 割程度が+c-GaN に転写されており、残りの 2 割は剥離した。また、CLN 基板除去後のサンプルの光学顕微鏡観察結果を図 5.23(b)に示す。所々斑点がみられたが、斑点の密度や大きさから、これらは GaN 膜厚調整後に見られたピットである。

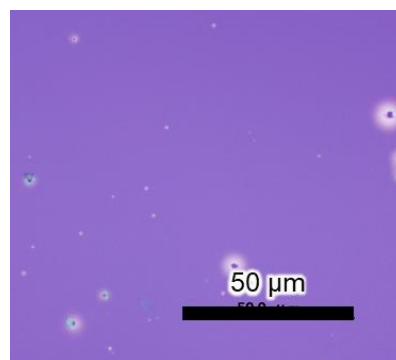
(d) Cr/Ni マスク形成

サンプルをトリクロロエタンとアセトンで有機洗浄し、エタノール→超純水と置換して窒素ブローした。サンプルを、アルミホイルで覆われたシャーレに入れ、 200°C のオーブンで 30 min 脱水ベークを行った。このとき、水蒸気がシャーレ内にたまらないようにシャーレのふたをわずかに開けておいた。脱水ベーク後室温で 30 min 静置しサンプルを冷却した。

スピンコータ (MS-A 100, MIKASA) を用いてポジ型電子線 (electron beam, EB) レジスト (PMMA 495 A, MICRO CHEM) をスピンコート条件「slope 5 s → 500 rpm, 5 s → slope 5 s → 2500 rpm, 45 s → slope 5 → END」で塗布した。サンプルを、アルミホイルで覆われたシャーレに入れ、 170°C のオーブンで 30 min プリベ



(a) カメラ写真



(b) 光学顕微鏡像

図 5.23 転写後のサンプル

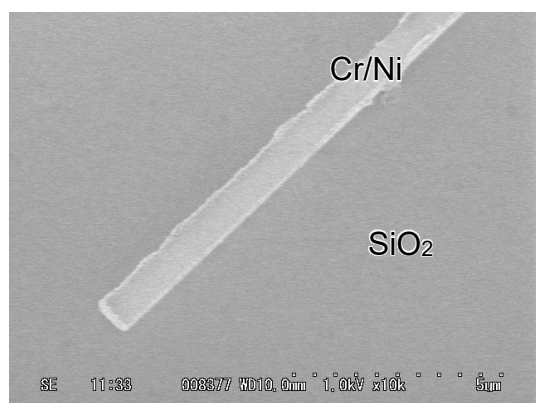
ークを行った。プリベーク後室温で 30 min 静置しサンプルを冷却した。EB 描画の際のチャージアップ防止のために aquaSAVE をスピンコート条件「slope 5 s → 1500 rpm, 60 s → slope 5 s → END」で塗布した。サンプルを、アルミホイルで覆われたシャーレに入れ、75°C のオーブンで 10 min 揮発ベークを行った。

EB 描画装置 (ESL-F125, ELIONIX) を用いて幅 0.8 μm 、1.0 μm 、1.2 μm 、1.4 μm 、1.6 μm のストライプパターンを描画を行った。このときの EB 描画条件を表 5.5 に示す。EB 描画後、超純水で aquaSAVE を除去し、MIBK : IPA = 1 : 2 で混合した 21°C の現像液で 90 s と MIBK : IPA = 1 : 3 で混合した 21°C の現像液で 90 s の合計 180 s で現像した。その後、IPA で 60 s リンスし、レジストラインが壊れないように丁寧に窒素ブローした。

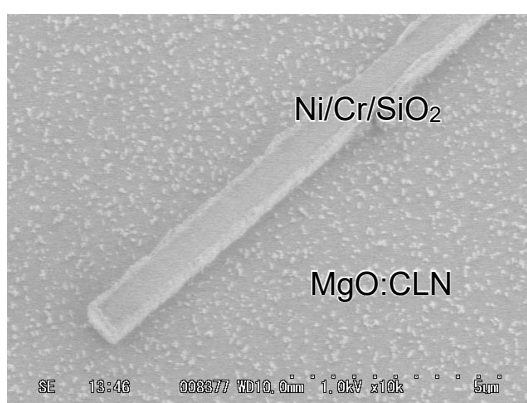
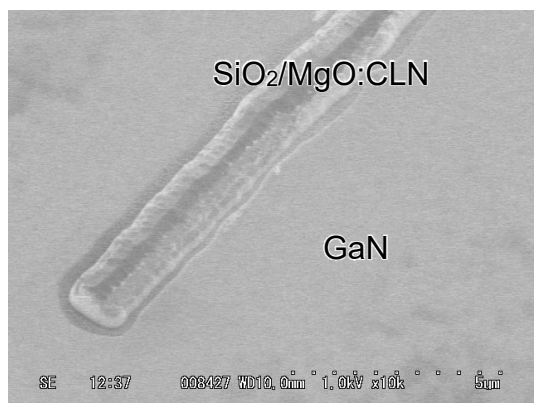
EB 蒸着装置 (L-043E-TN, ANELVA) を用いて背圧 1.5×10^{-3} Pa、レート 1.0-1.5 $\text{\AA}/\text{s}$ で Cr を膜厚 10 nm を目標に抵抗加熱蒸着、Ni を膜厚 200 nm を目標に

表 5.5 EB 描画条件

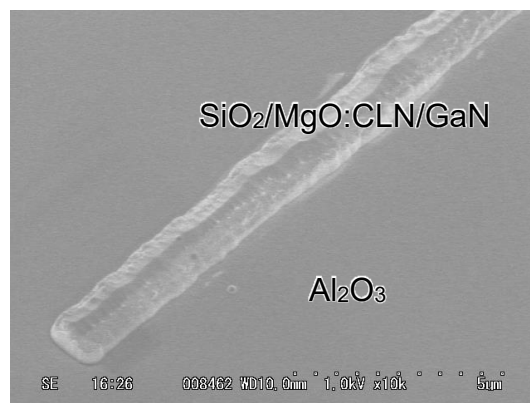
Dose 量 ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Dose 量 ($\mu\text{sec}/\text{dot}$)	電流値 (nA)	フィールドサイズ (cm^2)	Dot 数
770	0.0077	1	0.0025	5 万



(a) Cr/Ni 形成後

(b) SiO_2 CCP-RIE 後

(c) MgO:CLN Ar プラズマエッチング後



(d) GaN ICP-RIE 後

図 5.24 SEM 観察結果

EB 蒸着した。その後、サンプルをアセトンに浸し、リフトオフプロセスにより Cr/Ni マスクを形成した。0.8 μm の幅で描画を行った Cr/Ni マスクの走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察結果を図 5.24(a)に示す。マスク幅は 0.81 μm となった。Cr/Ni マスクの高さを DEKTAK で測定すると 200 nm であった。

(e) チャンネル形成

容量結合型プラズマ (CCP) RIE 装置 (RIE-10N, SAMCO) を用いて表 5.6 に示す条件で SiO_2 層をエッチングした。CCP-RIE 後の SEM 観察結果を図 5.24(b)に示す。パターン幅は 0.94 μm となった。また、導波路パターン以外の部分に粒状のものが観察された。図 5.25 に SEM-EDX 結果を示す。用いた SEM-EDX 装置 (JCM-7000, JEOL) は解像度が悪く、粒状のものは見ることはできなかったため、これが何かは分かっていないが、導波路パターン以外の部分で Si の特性 X 線信号が検出されなかったことと Nb が検出されたことから、導波路パターン以外の部分では SiO_2 が除去され MgO:CLN が再表面となっていることを確認した。CCP-RIE 後の Cr/Ni + SiO_2 の高さを DEKTAK で測定すると 680 nm であった。 SiO_2 は 500

表 5.6 SiO_2 CCP-RIE 条件

CF ₄ /H ₂ 流量 (sccm)	電力 (W)		圧力 (Torr)	時間 (min)
	FWD	REF		
14	50	0	0.15	23

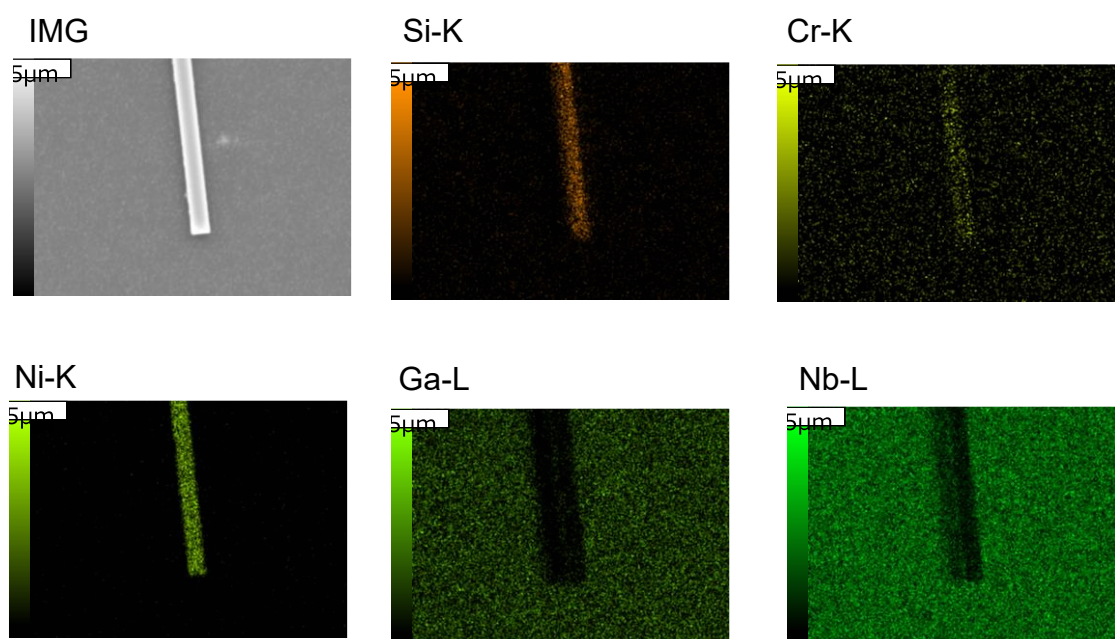


図 5.25 SiO_2 CCP-RIE 後の SEM-EDX 観察結果

nm の厚さであるため、CCP-RIE によって Ni はほとんどエッチングされていないことが分かった。

次に ICP Ar プラズマエッチング装置 (NE-730, ULVAC) を用いて表 5.7 に示す条件で $\text{MgO}:\text{CLN}$ のエッチングを行った。ICP Ar プラズマエッチング後の SEM 観察結果を図 5.24(c) に示す。CCP-RIE 後に見られていた粒状のものは ICP Ar プラズマエッチングにより除去された。パターン幅は $1.4\ \mu\text{m}$ となった。図 5.26 に SEM-EDX 結果を示す。SEM-EDX 結果より導波路パターン以外の部分では $\text{MgO}:\text{CLN}$ が除去されていることを確認した。また、導波路パターン上の Cr/Ni マスクは完全に除去され、パターンの最上部は SiO_2 となっていた。ICP Ar プラズマエッチング後の $\text{SiO}_2 + \text{MgO}:\text{CLN}$ の高さを DEKTAK で測定すると $690\ \text{nm}$ であった。 $\text{MgO}:\text{CLN}$ の厚さは $350\ \text{nm}$ であるため、 SiO_2 は $340\ \text{nm}$ 残っていた。

ICP-RIE 装置 (NE-730, ULVAC) を用いて GaN の膜厚調整時と同じ条件で GaN 層のエッチングを行った。ICP-RIE 後の SEM 観察結果を図 5.24(d) に示す。導波路幅は $1.4\ \mu\text{m}$ と観察された。

表 5.7 Ar プラズマエッチング条件

アンテナパワー (W)	バイアスパワー (W)	チャンバ圧力 (Pa)	時間 (min)
100	70	0.27	40

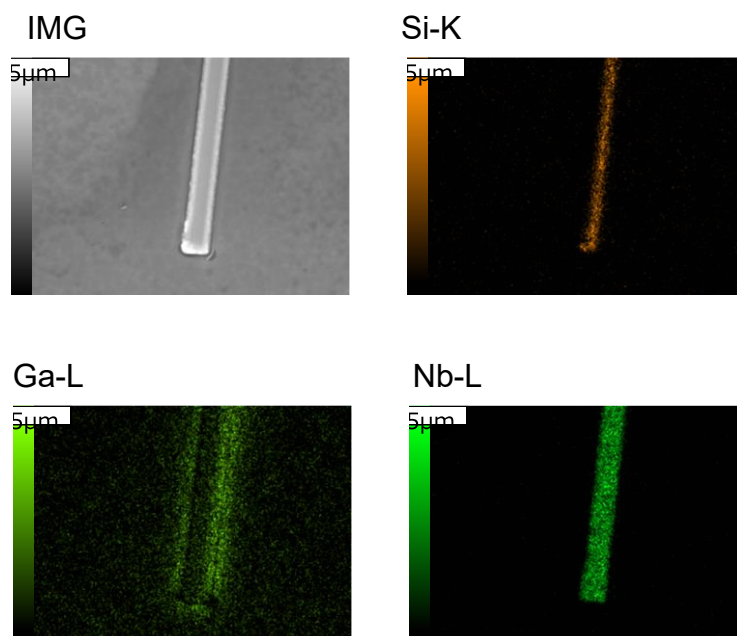


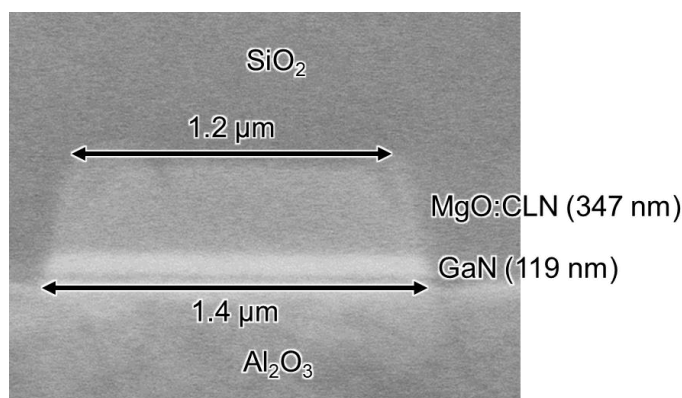
図 5.26 $\text{MgO}:\text{CLN}$ Ar プラズマエッチング後の SEM-EDX 観察結果

(f) SiO_2 スパッタ、端面研磨

スパッタ装置 (L-210S-FH, ANELVA) を用いて表 5.8 に示す条件で SiO_2 クラッド層をスパッタした。同様の条件でスパッタした SiO_2 の膜厚は $1.0\ \mu\text{m}$ であった。その後、研磨によりデバイスの両端面の形成を行った。まずサンプルを同サイズにダイシングしたアクリル板で挟み込んだ状態で専用の治具に固定した。アクリル板でサンプルをはさむ目的は研磨中にサンプル表面を保護するためである。精密研磨装置 (MA-200D, ムサシノ電子) と自動噴霧装置 (MS-2, ムサシノ電子) を用いて $15\ \mu\text{m}$ ダイヤモンドスラリー、 $60\ \text{rpm}$ で $15\ \text{min}$ 研磨を行った。このとき、研磨盤は溝無し (NL ブルー盤, ムサシノ電子) を用いた。精密研磨装置 (MA-150, ムサシノ電子) と自動噴霧装置 (MS-2, ムサシノ電子) を用いて粒形 $3\ \mu\text{m}$ ダイヤモンドスラリーを塗布して $61\ \text{rpm}$ (MA-150 の回転スピード調節つまみを 20 とした) で $30\ \text{min}$ 研磨を行った。このとき、研磨盤は溝有の銅盤 (MF 銅盤, ムサシノ電子) を用いた。次に、粒形 $0.5\ \mu\text{m}$ ダイヤモンドスラリーを塗布して $61\ \text{rpm}$ で $10\ \text{min}$ 研磨を行った。このとき、研磨盤はオレンジクロス (2TS8, ムサシノ電子) を用いた。最後に粒形 $0.1\ \mu\text{m}$ ダイヤモンドスラリーを塗布して $61\ \text{rpm}$ で $10\ \text{min}$ 研磨を行った。このとき、研磨盤はオレンジクロス (2TS8, ムサシノ電子) を用いた。端面研磨後の端面 SEM 観察結果を図 5.27 に示す。 MgO:CLN と GaN の膜厚はそれぞれ $347\ \text{nm}$ 、 $119\ \text{nm}$ であり、上辺と下辺の幅はそれぞれ $1.2\ \mu\text{m}$ と $1.4\ \mu\text{m}$ であった。このとき 5.3.2 項で用いたモードソルバを用いて位相整合波長を求めると $399\ \text{nm}$ となり、設計値より $6\ \text{nm}$ 短波長となっていることが分かった。また、非線形結合係数 κ は、 $\kappa = 8.9\ \text{W}^{-1/2}\text{cm}^{-1}$ となった。設計値より κ の値が小さくなった主な理由は

表 5.8 SiO_2 堆積のスパッタ条件

Ar 流量 (Pa)	電力 (W)		堆積時圧力 (Pa)	堆積時間 (min)
	FWD	REF		
7×10^{-2}	100	3	2.66	130

図 5.27 $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ 横型 QPM 導波路端面 SEM 像

導波路幅が設計値より大きくなったことで導波路断面積が大きくなったためである。しかし、励起光パワーを 4.0 mW に増やすことでデバイス長 20.0 mm のときに 4.5 dB のスキージングレベルを達成できる。

5.6 導波実験

作製した導波路を用いて光学実験を行った。光学セットアップを図 5.28 に示す。光源として波長可変フェムト秒レーザ (Chameleon Discovery, Coherent) を用いた。このフェムト秒レーザの繰り返し周波数と時間幅はそれぞれ 80 MHz、100 fs であり、ビーム品質 $M^2 < 1.2$ である。パワー調整のために 2 組の $\lambda/2$ 波長板 (half wave plate, HWP) とグランレーザプリズムを通した。このとき、デバイス側のグランレーザプリズムは縦偏光が透過するように角度を調整し、TM モードが励振されるようにした。2 組のミラーで光路をアライメントし、100 倍の対物レンズ (MPlanFL N 100x, OLYMPUS) を用いてレーザ光を導波路の入射端面に結合した。このとき、入射端面は CMOS カメラ (DMK 37BUX290, IMAGINGSOURCE) で観察できるようになっている。また、デバイスはピエゾステージ (DRV208, Thorlabs) に乗せた。デバイス出射側は 20 倍対物レンズと CMOS カメラ (DMK 72BUC02, IMAGINGSOURCE) を用いて観察した。

導波確認のためにレーザ波長を位相整合波長から少しずらした 790 nm とし、平均パワーを 100 倍対物レンズ直前で 1 mW として、ピエゾステージを動かして導波路入射側をレーザの集光点にアライメントしたが、導波路出射側では導波光を確認できなかった。導波できなかった理由として、①GaN 表面のピットが原因の散乱損失が大きいことと、②導波路の側壁からの導波損失が大きいことが考えられた。②の導波路側壁からの散乱損失をなくし、①の GaN 表面のピットに起因する散乱損失の寄与のみを評価するためにスラブ導波路を作製し、同様の導波実験を行った。5.5 節と同様に 5.0 mm × 7.0 mm にダイシングした CMP 研磨した c -GaN を膜厚約 140 nm まで ICP-RIE にてエッチングした。その後、4.5 mm × 4.5 mm にダイシングした膜厚 360 nm の $-Z$ -

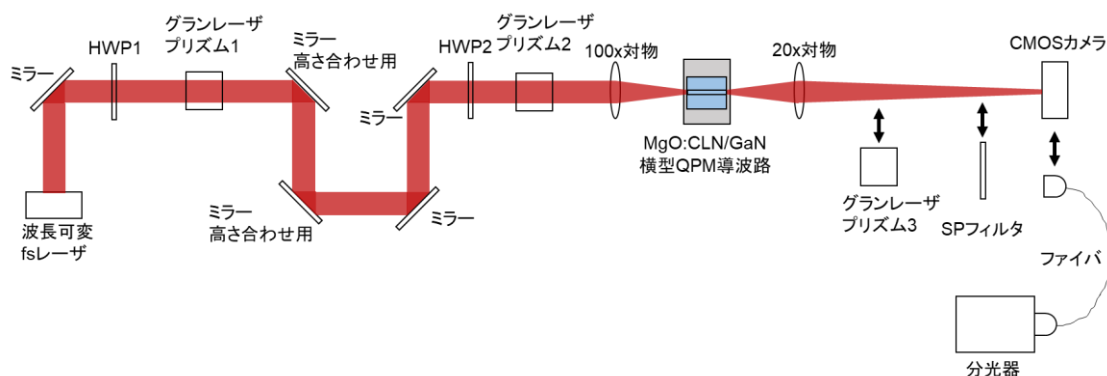
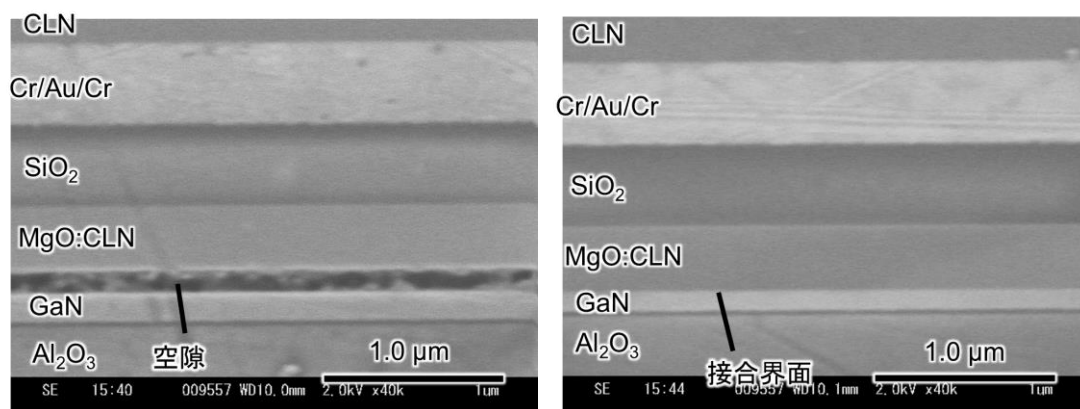


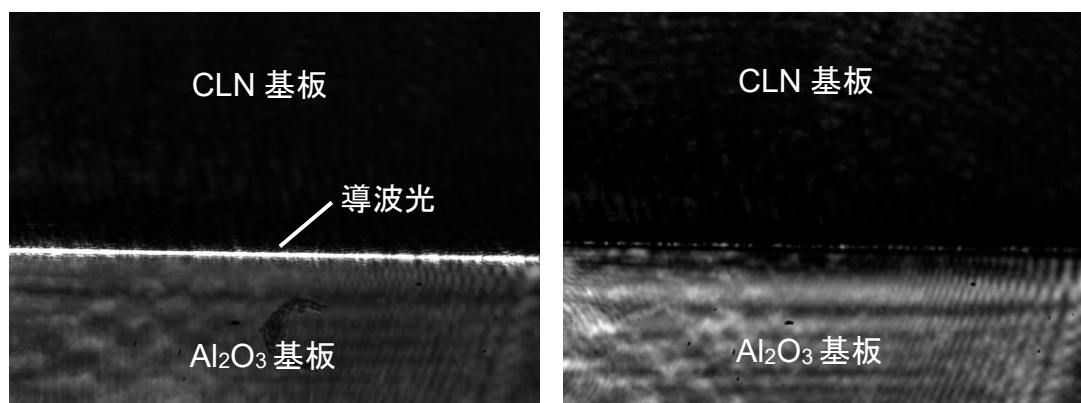
図 5.28 光学セットアップ

$\text{MgO}:\text{CLN}$ 薄膜と表面活性化接合し、端面研磨により入射端と出射端を形成した。端面研磨後の SEM 観察結果を図 5.29 に示す。デバイスの中心では接合が成功していたが、端の方では接合できていなかった。このデバイスにチャネル導波路の実験時と同様の光学系で波長 790 nm のレーザ光を結合した。このときの 100 倍対物レンズ直前での平均パワーは 1 mW であった。出射側の近視野像を図 5.30 に示す。デバイス中央付近の接合成功した領域では導波光をほとんど確認することができなかった。波長を 780 nm から 830 nm まで 2 nm ずつ変化させたが、SH 光は見られなかった。デバイスの端の方の接合できていない領域では導波光が明るく見えた。これらの結果から、 GaN 表面のピットによる散乱損失が大きいことが分かった。



(a) デバイス端

(b) デバイス中央

図 5.29 $\text{MgO}:\text{CLN}/\text{GaN}$ スラブ導波路端面 SEM 像

(a) デバイス端

(b) デバイス中央

図 5.30 出射端近視野像

5.7 スラブ導波路第二高調波発生実験

前節でデバイスに光が導波しなかった理由として ICP-RIE による GaN 膜厚調整時に形成された GaN 表面のピットに原因があることが分かった。そこで、CMP 研磨のみで膜厚調整を行った GaN 薄膜と MgO:CLN 薄膜を用いてスラブ導波路を作製し、導波確認と SHG 実証のための光学実験を行った。まず、厚さ 950 nm の as-grown の GaN テンプレートを CMP 研磨で膜厚調整を行った。このときの GaN 膜厚をエリプソメータで測定したところ 150 nm であった。また図 5.31 に示すように、白色干渉顕微鏡で観察したところ、ピットは見られず、表面粗さは RMS で 0.5 nm であった。この GaN テンプレートを 6.0 mm × 7.0 mm にダイシングし、4.5 mm × 4.5 mm にダイシングした膜厚 350 nm の $-Z$ -MgO:CLN 薄膜と表面活性化接合することでスラブ導波路を作製した。端面研磨により入射端と出射端を形成した。端面研磨後の SEM 観察結果を図 5.32 に示す。ボイドなく接合できていることを確認できた。SEM 断面図より GaN 膜厚、MgO:CLN 膜厚はそれぞれ 135 nm、350 nm であることが分かった。以上より、散乱損失の原因となっていた GaN 表面のピットのないスラブ導波路を作製できた。

図 5.28 に示す光学セットアップを用いて光学実験を行った。まず、波長 790 nm の励起光を導波路に結合した。このときの 100 倍対物レンズ直前での平均パワーは 1 mW であった。出射側の近視野像を図 5.33 に示す。導波光を確認することができた。そこで、縮退 OPDC の逆過程である SHG 実験を行った。20 倍対物レンズを用いて導波光を分光器 (HRS-350, Princeton Instruments) に繋がっているファイバに結合した。分光器で励起光のスペクトルが観察できていることを確認し、分光器の信号が最大となるように 20 倍対物レンズをファイバ端面の位置を調節した。ファイバ端面の直前にショートパスフィルタ (FF01 242/SP-25, Semrock) を挿入し、励起光の平均パワーが 50 mW になるようにグランレーザプリズム 1 と HWP2 の角度を調節した。分光器で SH 光が観測されたため、SH 光の信号が最大となるように 20 倍対物レンズとファイバ端面の位置を微調整したあとデバイスの位置をピエゾステージで微調整した。励起光波長を

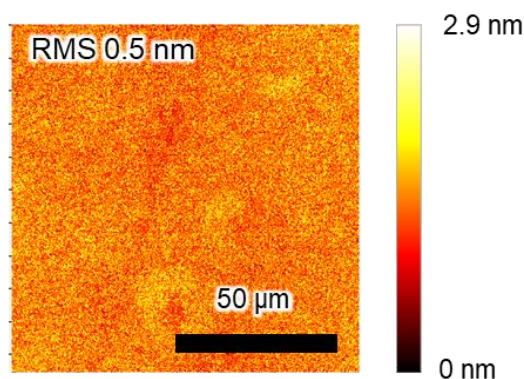


図 5.31 CMP 研磨による膜厚調整後の $+c$ -GaN 白色干渉顕微鏡像

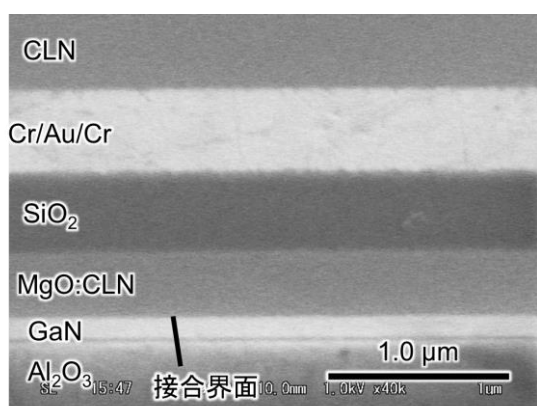


図 5.32 MgO:CLN/GaN スラブ導波路
端面 SEM 像

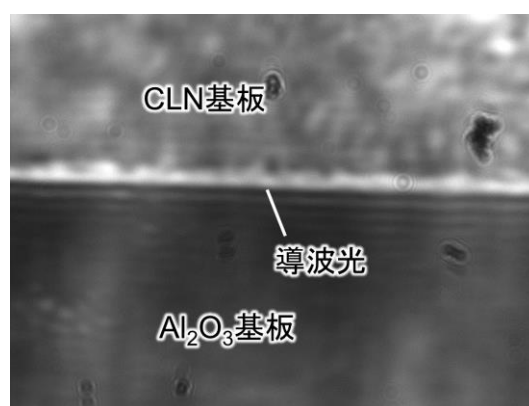


図 5.33 出射端近視野像

750 nm から 850 nm まで 2 nm ずつ走査して SH 光のスペクトルを測定した。このとき、それぞれの波長において、励起光の平均パワーが 50 mW になるようにグラブレーザープリズム 1 と HWP2 の角度を調節し、SH 光の信号が最大となるようにデバイス位置をピエゾステージで微調整した。また、ショートパスフィルタ (FF01 242/SP-25, Semrock) のカットオフ波長は 424 nm であり、測定する最長の励起光波長 850 nm に対応する SH 光波長 425 nm の光は通さない。そこで、励起光波長が 820 nm より長波長の測定においてはショートパスフィルタ (FESH0700, Thorlabs) を代わりに挿入した。図 5.34 に各励起光波長における SH 光のスペクトルを示す。ここで図 5.34 のデータはショートパスフィルタの各波長における透過率と分光器の各波長での検出効率を考慮したデータである。励起光波長が 784 nm のとき SH 光のカウントのピークが最大となり、波長 392 nm の SH 光が発生していることを確認した。励起光波長が 784 nm のときの励起

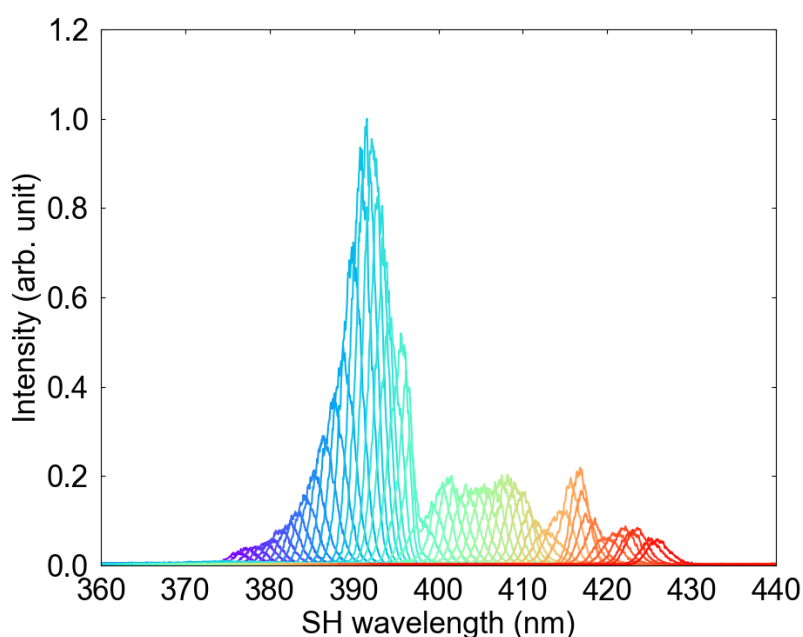


図 5.34 各励起光波長での SH 光スペクトル

光と SH 光のスペクトルを図 5.35 に示す。励起光、SH 光のスペクトルの半値全幅はそれぞれ 9.0 nm、2.4 nm となった。群速度分散を考慮する²⁷と、SH 光スペクトルの半値全幅の理論値は 1.3 nm となった。SH 光スペクトルの半値全幅の差の原因としては GaN の膜厚むらが考えられる。実際に図 5.32 に示した箇所以外の SEM 観察を行うと、GaN の膜厚が約 130 – 140 nm となっている箇所も見られた。GaN 膜厚 130 nm の領域において位相整合波長は 0.8 nm 短波長側にシフトし、GaN 膜厚 140 nm の領域において位相整合波長は 0.9 nm 長波長側にシフトするため、1.1 nm の半値全幅の差は妥当である。

次に励起光波長を 784 nm に固定し、HWP2 の角度を調節することでデバイスに入射する励起光パワーを変えながら分光器の SH 光カウント数を測定した。図 5.36 に結果を示す。SH 光のカウント数のピーク値が励起光平均パワーの 2 乗に比例していることから、2 次の非線形効果を用いた変換であることを確認できた。最後に 20 倍対物レンズの後ろにグランレーザプリズム 3 (GLB10, Thorlabs) を挿入し角度を調節することで SH 光の偏光特性を測定した。図 5.37 に結果を示す通り、発生した SH 光は TM モードが支配的であった。従って、この SHG は d_{33} を利用した非線形光学過程であることが分かった。以上より、異種材料表面活性化接合による $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ 横 QPM SHG デバイスの動作実証に成功した。今後、5.5 節に示した方法でチャネル導波路化することで効率の向上が見込める。チャネル形成後、縮退 OPDC によるスクイーズド光発生のためには SHG における SH 光の波長・横モードで励起しなければならない。本デバイスの SH 光は TM_{02} モードであるため、縮退 OPDC の際には励起光を TM_{02} モードとしなければならない。グレーティング結合器を装荷することで TM_{02} モードに結合することができる。よって、今後はチャネル導波路化とグレーティング結合器装荷を行い、スクイーズド光発生を行うことが課題となる。

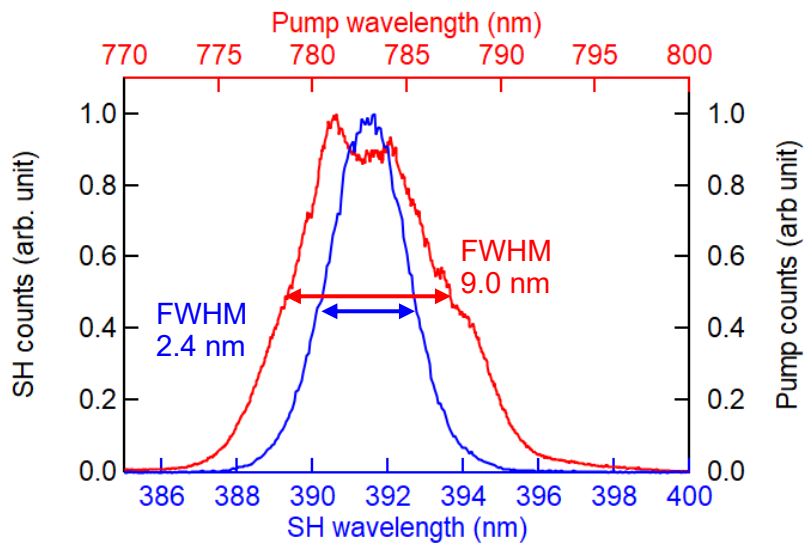


図 5.35 励起光スペクトルと SH 光スペクトル

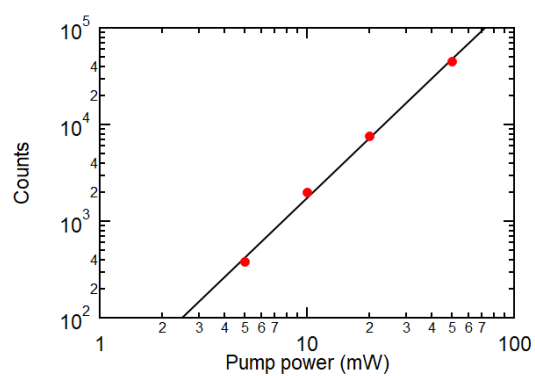


図 5.36 SH 光カウント数の励起光
平均パワー依存性

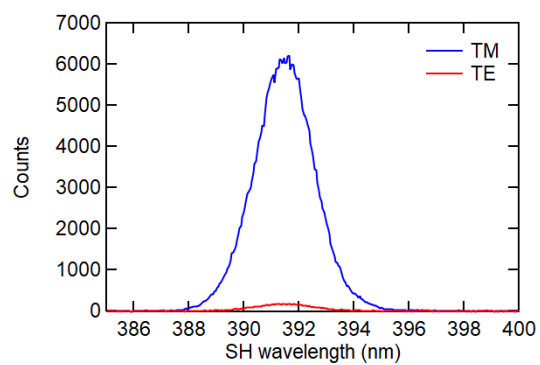


図 5.37 SH 光偏光特性

5.8 まとめ

高効率集積スクイーズド光発生デバイス実現には非線形光学定数の高い MgO:CLN と非線形媒質かつ下部透明電極としてはたらく GaN を積層した波長変換デバイスの開発が望まれる。 MgO:CLN と GaN の積層構造は表面活性化接合にて作製できるが、従来、 $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ の表面活性化接合は接合強度向上のために界面に Fe などの不純物が入っており、 Fe は光を吸収するため光デバイスに用いることは不可能であった。そこで本章では接合界面に不純物の無い MgO:CLN と GaN の表面活性化接合を行った。更に、スラブ導波路にてスクイーズド光発生の逆過程である SHG 実験を行った。本章で得られた知見と今後の課題を以下にまとめる。

デバイス設計では、励起光を TM_{02} モードとすることで TM_{00} モードのスクイーズド光との非線形結合係数が最大となることが分かった。そのときの非線形結合係数は $9.8 \text{ W}^{-1/2}\text{mm}^{-1}$ であり、励起光損失を 3.5 dB/cm 、スクイーズド光損失を 1.0 dB/cm と仮定するとデバイス長 20.0 mm 、励起光パワー 3.3 mW のときに 2 次元クラスター状態の生成閾値である 4.5 dB のスクイーディングレベルを達成できると分かった。

MgO:CLN と GaN の表面活性化接合では接合条件の最適化と CMP 研磨による GaN テンプレートの表面平坦性の改善により、接合界面に不純物の無い MgO:CLN と GaN の表面活性化接合に成功した。そのときの引張強度は 4 MPa を超えており、これは半導体デバイスとしても用いられている Si/SiO_2 や $\text{SiO}_2/\text{SiO}_2$ の接合強度に匹敵するほど高かった。

CMP 研磨 GaN を ICP-RIE にて膜厚調整し、 MgO:CLN 薄膜と表面活性化接合した $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ 積層横型 QPM 導波路の導波実験を行ったが、導波光を確認することができなかった。原因として、ICP-RIE による GaN 膜厚調整時に形成された GaN のピットによる散乱損失が多い可能性が挙げられた。そこで CMP 研磨のみで膜厚調整した GaN テンプレートを用いることで $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ 積層スラブ導波路型横型 QPM デバイスを作製した。励起光波長 784 nm のときに波長 392 nm の SHG に成功した。スクイーズド光発生のためには SHG の逆過程である縮退 OPDC を行えばよい。その際、高次モード励起を行わないといけないため、今後はグレーティング結合器を装荷することが課題となる。更に、チャネル導波路化によって変換効率を向上させることも今後の課題である。

以上より、今後の課題はいくつか残されているが、表面活性化接合を用いた $\text{MgO:CLN}/\text{GaN}$ 積層による横型 QPM デバイスの作製に成功した。

参考文献

1. H. Vajlbruch, M. Mehmet, K. Danzmann, and R. Schnabel, Phys. Rev. Lett. **117**, 110801 (2016).
2. J. Hirohashi, V. Pasiskevicius, S. Wang, and F. Laurell, J. Appl. Phys. **101**, 033105 (2007).
3. H. Vahlbruch, M. Mehmet, S. Chelkowski, B. Hage, A. Franzen, N. Lastzka, S. Goßler, K. Danzmann, and R. Schnabel, Phys. Rev. Lett. **100**, 033602 (2008).
4. I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 2268 (1997).
5. F. C. Zumsteg, J. D. Bierlein, and T. E. Gier, J. Appl. Phys. **47**, 4980 (1976).
6. K. Kitamura, Y. Furukawa, S. Takekawa, T. Hatanaka, H. Ito, and V. Gopalan, Ferroelectrics **257**, 235 (2001).
7. J. Wang, J. Wei, Y. Liu, X. Hu, Z. Shao, and M. Jiang, Prog. Crystal Growth and Character. **40**, 3 (2000).
8. A. B. Fallahkhair, K. S. Li, and T. E. Murphy, J. Lightwave Technol. **26**, 1423 (2008).
9. 山口修平, 深紫外光発生用横型擬似位相整合 AlN 導波路波長変換デバイスに関する研究, 修士学位論文, 大阪大学大学院工学研究科 (2019).
10. T. Suhara and M. Fujimura, *Waveguide Nonlinear-Optic Devices* (Springer, Berlin, 2003).
11. N. A. Sanford, L. H. Robins, A. V. Davydov, A. Shapiro, D. V. Tsvetkov, A. V. Dmitriev, S. Keller, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, J. Appl. Phys. **94**, 2980 (2003).
12. E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, 1998).
13. N. Yokoyama, R. Tanabe, Y. Yasuda, H. Honda, S. Ichikawa, Y. Fujiwara, T. Hikosaka, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, Jpn. J. Appl. Phys. **61**, 050902 (2022).
14. N. Yokoyama, Y. Morioka, T. Murata, H. Honda, K. Serita, H. Murakami, M. Tonouchi, S. Tokita, S. Ichikawa, Y. Fujiwara, T. Hikosaka, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, Appl. Phys. Express **15**, 112002 (2022).
15. B. Desiatov, A. S. Ansari, M. Zhang, C. Wang, and M. Loncar, Optica **6**, 380 (2019).
16. R. Wolf, I. Breunig, H. Zappe, and K. Buse, Opt. Express **26**, 19815 (2018).
17. H. Chen, H. Fu, X. Huang, X. Zhang, T. Yang, J. A. Montes, I. Baranowski, and Y. Zhao, Opt. Express **25**, 31758 (2017).
18. S. Gwyn, Scott Watson, T. Slight, M. Knapp, S. Viola, P. Ivanov, W. Zhang, A. Yadav, E. Rafailov, M. Haji, K. E. Doherty, S. Stanczyk, S. Grzanka, P. Perlin, S. P. Najda, M. Leszczyski, and A. E. Kelly, IEEE Photon. J. **13**, 1 (2021).

19. R. Takigawa, E. Higurashi, and T. Asano, ECS Transactions **86**, 207 (2018).
20. R. Takigawa, E. Higurashi, and T. Asano, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, SJJE06 (2019).
21. R. Takigawa, T. Matsumae, M. Yamamoto, E. Higurashi, T. Asano, and H. Kanaya, ECS J. Solid State Sci. Technol. **9**, 045005 (2020).
22. 田辺凌, 光デバイス応用に向けた薄膜転写による GaN 面方位変調技術に関する研究, 修士学位論文, 大阪大学大学院工学研究科 (2021).
23. H. Takagi, R. Maeda, T. R. Chung, N. Hosoda, and T. Suga, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, 4197 (1998).
24. S. Yao, J. Wang, H. Liu, X. Hu, H. Zhang, X. Cheng, and Z. Ling, **455**, 501 (2008).
25. R. R. Reeber and K. Wang, J. Mater. Res. **15**, 40 (2000).
26. H. Takagi, R. Maeda, T. R. Chung, and T. Suga, Sens. Actuator A **70**, 164 (1998).
27. N. Yokoyama, Y. Morioka, T. Murata, H. Honda, K. Serita, H. Murakami, M. Tonouchi, S. Tokita, S. Ichikawa, Y. Fujiwara, T. Hikosaka, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, Appl. Phys. Express **15**, 112002 (2022).

第6章 結論

本論文では非線形光学定数が高く、高効率な波長変換が実現できる導波路型強誘電体波長変換デバイスに関して、レーザ直接描画装置やスクイーズド光源などのそれぞれの応用の際に必要な横モード制御技術の開発に関する研究に取り組んだ。本章では得られた成果と今後の課題について各章ごとにまとめる

第1章 序論

まず、波長変換の歴史についてまとめ、非線形光学結晶を用いた波長変換の際によく用いられる位相整合方法について述べた。次に近赤外から紫外光の波長変換でよく用いられる非線形光学結晶についてそれぞれの光学的性質をまとめた。波長変換の際の変換効率向上のための導波路構造について述べ、ストリップ導波路の開発が進んだことにより用いることができるようになった横型 QPM について説明した。

次に、導波路型波長変換デバイスの応用先はまだ限られており、横モード制御を行うことでその応用先を広げることができると述べ、応用例として本論文で着目するレーザ直接描画装置の光源とスクイーズド光源を挙げた。レーザ直接描画装置の光源では高パワー350 nm 帯のレーザ光が望まれるが、現状のボレート結晶では潮解性によりメンテナンスコストが高いこと、角度位相整合を用いているため集積化が難しくモノリシックデバイスを実現できないことといった問題点に言及し、それらを解決する強誘電体導波路型波長変換デバイスでは $1/e^2$ 直径 30 μm 程度まで横モード拡大が必須であることを説明した。報告のある横モードの大きな導波路としてはフェムト秒レーザ直描導波路があるが、横モードの $1/e^2$ 直径は約 22 μm であり、マルチモード導波路であることからさらに大きな直径 30 μm まで拡大すると基底次モードへの結合が非常に難しくなると考えられる。そこで本研究では APE 導波路の横モード拡大を行うことを述べた。また、スクイーズド光源では励起レーザ・スクイーズ・光回路・ディテクタからなる光学系を数十 nm オーダで高精度アライメントする必要であるためモノリシック化が進められていることに言及し、 SiN_x を用いた集積デバイスでは高スクイージングレベル達成と高速な光回路実現は難しいことを述べた。強誘電体導波路型デバイスではこれらの問題を解決できることを述べ、透明電極材料を導波路コアの下部に装荷することで強誘電体結晶の電気光学テンソルの最大成分である r_{33} を用いることができ、電極数も少なくすることができる垂直電界印加型の位相シフタを集積できることを示した。薄膜技術が進んでいる透明電極材料として GaN 等の窒化物半導体が挙げられることを

述べ、強誘電体と窒化物半導体を組み合わせた波長変換デバイスが必要なことから横型 QPM を用いることを述べた。

これら応用先において、光学特性の良い強誘電体導波路型デバイスのポテンシャルをそれぞれの応用先に対して十分に引き出すためには横モード拡大やモード分散位相整合等、導波路の横モードを制御することが必要であることを述べた。

第2章 光導波路型波長変換の理論

まず、強誘電体結晶を含む非線形光学結晶中にレーザが入射したときにおこる非線形応答について理論をまとめ、非線形光学テンソルを定義した。次に波長変換の解析を理論的に行えるようにするためにモード結合方程式を導入した。次に、第二高調波発生と和周波発生において波長変換に必要な位相整合の概念を整理した。モード結合方程式を用いて非線形結合係数を導入し、規格化変換効率を求めた。最後に生成消滅演算子を用いてスクイーズド状態を定義した後、縮退パラメトリック下方変換における量子揺らぎをモード結合方程式を用いて解くことで、縮退 OPDC によりスクイーズド光が生成されることを理論的に確認した。また、導波損失や測定損失がある際のスクイージングレベルについて述べた。これらの定式化により SHG や SFG の波長変換効率や縮退 OPDC におけるスクイージングレベルの計算ができる。

第3章 定比組成 LiTaO_3 擬似位相整合

アニールプロトン交換導波路の横モード拡大

レーザ直接描画装置への応用に向けた APE 導波路の横モード拡大を行い、SHG 実験を行った。

目標である 1 W の 350 nm 帯レーザ光を光損傷なく MgO:SLT 中を導波させるためには、励起光となる 1000 nm 帯レーザにおいて $1/e^2$ 直径 30 μm 程度となるように横モードの拡大が必要であることが分かった。まず、PP 構造を電界印加法で作製した。 MgO:CLN で報告されているように、 MgO:SLT においても分極反転直後は結晶の抵抗率が著しく下がるため、電界印加時に先に結晶を貫通した分極反転ドメインにリーク電流が流れることで一様な PP 構造の形成が妨げられていることが分かった。リーク電流を防止するために結晶-Z 面と電極の間に SiO_2 絶縁層を装荷することで一様な PP 構造の作製に成功した。また、電極幅の周期に対する割合を 0.25 程度にすることで、duty 比を最適値の約 0.5 とすることができた。

次に APE 導波路の横モード拡大を行った。長時間 PE により MgO:SLT に H^+ を多く取り込んだ後、長時間アニールを行うことにより取り込んだ H^+ をより遠くに拡散させることで目標としていた $1/e^2$ 直径 $30\text{ }\mu\text{m}$ 程度まで横モードを拡大することに成功した。作製した導波路の基底次モードへのレーザ光の結合は容易に行うことができたが、この導波路がシングルモード導波路であるかどうかの確認手法の確立は今後の課題である。

最後に横モードサイズの大きな APE 導波路 SHG デバイスでの光学実験を行った。デバイス温度が 46.0°C のときに位相整合し、波長 515.2 nm の SH 光が測定された。デバイス温度 46.0°C のときは TM_{00} モード、 51.5°C のときは TM_{01} モードの SH 光が発生していたことと、励起光と SH 光の横モード形状から、作製した APE 導波路は深さ方向に非対称な屈折率分布を持っていることが分かった。非対称な屈折率分布の導波路は SFG 効率の低下やレーザ直接描画装置に応用する際の均一性の低下につながるため、改善が必要である。

第4章 定比組成 LiTaO_3 擬似位相整合

アニールプロトン交換導波路の横モード対称化

第3章で明らかになった横モードの上下方向の非対称性を改善するために表面活性化接合を用いた埋込 APE 導波路の作製を行った。更に、これまで報告の無かった表面活性化接合を用いた埋込 APE 導波路を縦型 QPM デバイスに装荷する手法の確立を行い、SHG 実験を行った。

表面活性化接合を用いた埋込 APE 導波路の作製を行った。片方の結晶を PE した後、表面活性化接合し、アニールを行うことで PE 時に結晶中に取り込まれた H^+ がアニール時に接合界面を超えて拡散するため、対称性の良い屈折率分布を持つ導波路が作製できる。様々な PE 条件とアニール条件を試し、PE 幅 $50\text{ }\mu\text{m}$ 、PE 時間 4 h 、アニール時間 100 h とすることで波長 1030 nm のレーザ光において $1/e^2$ 全幅が深さ方向 $30\text{ }\mu\text{m}$ 、幅方向 $32\text{ }\mu\text{m}$ の対称な横モードをもつ埋込 APE 導波路の作製に成功した。

次に、埋込 APE 導波路を縦型 QPM デバイスに装荷した。SHG デバイス作製にあたって、接合の際の上下の結晶の PP 構造の分極反転境界がずれると実効的な非線形光学定数が減少し、変換効率が下がってしまう。接合する片方のサンプルには同じ位相の PP 構造を、もう一方のサンプルには位相の異なる PP 構造を形成することで上下の PP 構造の導波方向のずれの軽減を行った。また、PP 構造のリソグラフィや表面活性化接合の際にサンプルの長辺にてアラインメントを行うことで上下の PP 構造の回

転方向のずれの軽減を行った。これらの対策を行うことで横モードが対称な埋込 APE 導波路を縦型 QPM デバイスに装荷することに成功した。

次に SHG 実験を行い、波長 532 nm の SHG を確認した。横モードは特に励起光に対して PE を行ったサンプル側に裾が長引く形で少し非対称であったが 3 章で作製した APE 導波路に比べて対称性が大きく向上したことを確認した。また、SH 光 TM_{01} モードへの波長変換がみられなかったことから、この埋込 APE 導波路はほぼ対称な横モードを持つことが確認できた。この埋込 APE 導波路縦型 QPM デバイスはこれまで報告されている対称導波路である RPE 導波路やフェムト秒レーザ直描導波路より大きな横モードを持つことから高出力波長変換が期待できる。

今後は PE 時間を少し短くすることでシングルモード導波路を作製することと、CMP 研磨を短時間行い PE 後の凸形状を改善することで更に対称性の良い導波路を作成すること、そして高出力波長変換実験を行うことが課題となる。

第5章 一致溶融組成 $LiNbO_3/GaN$ 積層による

横型擬似位相整合導波路

励起レーザと光回路との集積可能な高効率スクイーズに向けた $MgO:CLN/GaN$ 積層による横型 QPM 導波路の作製を行った。

デバイス設計では有限差分法により導波路中の電界を計算することで 810 nm のスクイーズド光発生時は励起光が TM_{02} モードのとき非線形結合効率が最も高くなることを示した。非線形結合係数 $\kappa = 9.8 \text{ W}^{-1/2}\text{mm}^{-1}$ と計算され、励起光損失を 3.5 dB/cm、スクイーズド光損失を 1.0 dB/cm とすると、デバイス長 20.0 mm、励起光パワー 3.3 mW のときに 2 次元クラスター状態の生成閾値である 4.5 dB のスクイーディングレベルを達成できると分かり、波長可変縦単一モード InGaN レーザで十分に励起できる励起光パワーであることを確認した。

次に $MgO:CLN$ と GaN の積層構造を作製した。 $MgO:CLN$ と GaN の積層構造は表面活性化接合にて作製できるが、従来、 $MgO:CLN/GaN$ の表面活性化接合は接合強度向上のために界面に Fe などの不純物が入っており、Fe は光を吸収するため光デバイスに用いることは不可能であった。本章では接合条件の最適化と CMP 研磨による GaN テンプレートの表面平坦性の改善により、接合界面に不純物の無い $MgO:CLN$ と GaN の表面活性化接合に成功した。そのときの引張強度は 4 MPa を超えており、これは半導体デバイスとして用いられる Si/SiO_2 や SiO_2/SiO_2 の接合強度に匹敵するほど高い値であった。

次に、CMP 研磨 GaN テンプレートを ICP-RIE にて膜厚調整し、 $MgO:CLN$ 薄膜と

表面活性化接合した MgO:CLN/GaN 積層横型 QPM 導波路を作製した。導波実験を行ったが、導波光を確認することができなかった。これは GaN 膜厚調整時の ICP-RIE により形成された GaN のピットによる散乱損失によるものであると分かった。そこで CMP 研磨のみで膜厚調整を行った GaN テンプレートを用いて MgO:CLN/GaN 積層スラブ導波路型横型 QPM デバイスを作製した。励起光の導波が確認され、縮退 OPDC の逆過程である波長 392 nm の SH 光が発生していることを確認した。今後はチャネル導波路化することで効率向上が期待できる。また、グレーティング結合器等を用いることで高次モード励起を行い、縮退 OPDC によりスクイーズド光発生を行うことがこれからの課題となる。

本論文では様々な応用先において光学特性の良い強誘電体結晶本来のポテンシャルを引き出すために導波路型波長変換デバイスの横モード制御技術を開発した。本研究で得られた成果により半導体製造分野などの大きな市場を持つ分野や量子情報分野などの近年成長が著しい分野が更に発展していくことを強く期待して本論文の結びとする。

謝辞

本研究を進めるにあたり、実験環境の提供および学会発表等の経験を与えて頂くとともに、研究に関する議論など終始懇切丁寧なご指導ご鞭撻を承りました大阪大学大学院工学研究科 博士(科学) 片山竜二教授に甚大な感謝の意を表します。

本研究を進めるにあたり、論文執筆や研究計画、実験に関する議論など終始懇切丁寧なご指導ご鞭撻を賜りました大阪大学大学院工学研究科 博士(工学) 谷川智之准教授に深甚なる感謝の意を表します。

本研究を進めるにあたり、論文執筆や実験結果に関する議論など一貫して懇切丁寧なご指導ご鞭撻を賜りました大阪大学大学院工学研究科 博士(工学) 上向井正裕助教に深甚なる感謝の意を表します。

本研究を進めるにあたり、実験計画や実験結果、また、光学系について一貫して有意義な議論および助言を頂きました株式会社ニコン光学本部 博士(工学) 岡崎雅英様に心から感謝の意を表します。

本論文の作成にあたり、懇切丁寧なご指導ご鞭撻を賜りました大阪大学レーザ科学研究所 博士(工学) 吉村政志教授に深く感謝申し上げます。

ICP-RIE 装置を使用させていただきました大阪大学大学院工学研究科 博士(工学) 藤原康文教授、博士(工学) 舘林潤准教授、博士(工学) 市川修平助教に深く感謝申し上げます。

SEM を使用させていただきました大阪大学大学院工学研究科 博士(工学) 片山光浩教授、博士(理学) 田畑博史助教に深く感謝申し上げます。

CMP 研磨 GaN テンプレートをご提供いただき、作製プロセスに関して議論していただいた日亜化学工業株式会社 博士(工学) 岡田 将典様に深く感謝申し上げます。

ラマン測定を行っていただいたナノフoton株式会社 足立真理子様に深く感謝申し上げます。

分校エリプソメータ、SEM-EDX およびマスクレス露光装置を使用させていただきました大阪大学フォトリソセンターに深く感謝申し上げます。

ICP-RIE 装置を使用させていただきました京都大学マテリアル先端リサーチインフラに深く感謝申し上げます。

装置のメンテナンスや光学部品の作製に関して大変お世話になりました大阪大学工学研究科林由樹雄技術職員に心からの感謝の意を表します。

本研究を進めるにあたり、一貫して有意義な議論をしていただいた大阪大学大学院工学研究科 博士(工学) 南部誠明氏に深く感謝申し上げます。

本研究を進めるにあたり、筆者の研究グループで共に研究と有益な議論をしていた

だいた西垣颯人氏、辛島実氏に深く感謝申し上げます。

本研究を進めるにあたり、有意義な議論をしていただき、また公私問わずにお世話になりました矢野岳人氏、池田和久氏、本田啓人氏、Shahzeb Malik 氏に深く感謝申し上げます。

研究室の事務手続き等で大変お世話になりました阪口勝士事務補佐員に感謝申し上げます。

共に研究生生活を送り、日々多くの刺激と示唆を頂きました大阪大学大学院片山竜二研究室の皆様並びに卒業生の皆様に深く感謝申し上げます。

最後に、いつも応援し支えてくれた両親の野呂哲夫、野呂由美、姉の野呂朱理に心から感謝し、謝辞の結びとします。

2024 年 4 月
野呂 諒介

研究業績

【原著学術論文】

1. **R. Noro**, M. Okazaki, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, “Buried annealed proton-exchanged waveguide in periodically-poled MgO:LiTaO₃ crystal for high power second harmonic generation,” Jpn. J. Appl. Phys. (accepted).
2. **R. Noro**, M. Adachi, Y. Fujiwara, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, “Fabrication of polarity inverted LiNbO₃/GaN channel waveguide by surface activated bonding for high-efficiency transverse quasi-phase-matched wavelength conversion,” Jpn. J. Appl. Phys. **62**, 102001 (2023).
3. **R. Noro**, M. Okazaki, I. Mizobata, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, “Enlargement of mode size in annealed proton-exchanged periodically-poled MgO doped stoichiometric LiTaO₃ waveguide for high power second harmonic generation,” Jpn. J. Appl. Phys. **61**, 072006 (2022).

【国際会議】

1. R. Noro, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, "Design of LiNbO₃/GaN Transverse Quasi-Phase-Matched Wavelength Conversion Device for High Efficiency Squeezed Light Generation," The 11th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2022), Yokohama, Japan, ALPS21-02, April 2022, Oral.
2. R. Noro, M. Uemukai, T. Tanikawa, and R. Katayama, “Fabrication of annealed proton-exchanged waveguide in periodically-poled MgO:s-LiTaO₃ for high-power second-harmonic generation,” The 9th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2020), Online, ALPS15-05, April 2020, Oral.

【国内会議】

1. 野呂諒介, 上向井正裕, 谷川智之, 片山竜二, 「高効率スクイーズド光発生に向けた MgO:CLN/GaN 横型擬似位相整合導波路波長変換デバイスの作製」, レーザー学会学術講演会第 43 回年次大会, 愛知県, F03-19p-XII-02, 2023 年 1 月, 口頭発表.

2. 野呂諒介, 上向井正裕, 谷川智之, 片山竜二, 「高効率スクイーズド光発生に向けた $\text{LiNbO}_3/\text{GaN}$ 横型擬似位相整合波長変換デバイスの設計」, 第 69 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川県, 24p-D215-4, 2022 年 3 月, 口頭発表.
3. 西垣颯人. 野呂諒介, 上向井正裕, 谷川智之, 片山竜二, 「波長 810 nm 量子光源に向けた Mg 添加定比組成 LiTaO_3 3.3 μm 周期分極反転構造の作製」, 第 40 回電子材料シンポジウム(EMS40), オンライン, P2-B14, 2021 年 10 月, ポスター.
4. 野呂諒介, 上向井正裕, 谷川智之, 片山竜二, 「 MgO:SLT を用いた 3.3 μm 周期分極反転構造の作製」, 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, オンライン, 18a-Z21-4, 2021 年 3 月 18 日, 口頭発表.
5. 野呂諒介, 上向井正裕, 谷川智之, 片山竜二, 「高出力第二高調波発生に向けた MgO:SLT 擬似位相整合アニールプロトン交換導波路」, 第 39 回電子材料シンポジウム(EMS39), オンライン, P1-10, 2020 年 10 月, ポスター.
6. 野呂諒介, 上向井正裕, 谷川智之, 片山竜二, 「高出力第二高調波発生に向けた MgO:SLT 擬似位相整合アニールプロトン交換導波路」, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 8p-Z16-1, 2020 年 9 月, 口頭発表.
7. 野呂諒介, 岡崎雅英, 溝端一国雄, 上向井正裕, 谷川智之, 片山竜二, 「高出力第二高調波発生に向けた周期分極反転 MgO:s-LiTaO_3 アニールプロトン交換導波路の作製」, 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 上智大学, 12p-B508-13, 2020 年 3 月, 口頭発表.
8. 野呂諒介, 上向井正裕, 谷川智之, 片山竜二, 「絶縁層装荷 MgO:s-LiTaO_3 の電圧印加法による周期分極反転構造作製」 第 38 回電子材料シンポジウム(EMS38), 奈良県, We-5, 2019 年 5 月, ポスター.
9. 小松天太, 野呂諒介, 上向井正裕, 片山竜二, 「スクイーズド光発生のための光導波路型非線形デバイス」, 第 26 回量子情報関西 Student Chapter, 大阪大学, 2019 年 7 月, ポスター.

10. 小松天太, 野呂諒介, 上向井正裕, 片山竜二, 「シングルパス導波路型光パラメトリック増幅器のための非線形光学結晶のベンチマーク」, 第 37 回電子材料シンポジウム(EMS38), 滋賀県, We1-14, 2018 年 10 月, ポスター.
11. 野呂諒介, 上向井正裕, 片山竜二, 「定比組成 LiTaO_3 導波路型光パラメトリック下方変換デバイスの開発」, 第 11 回窒化物半導体の成長・評価に関する夏期ワークショップ, 立命館大学, 2018 年 9 月, 口頭発表.

【受賞】

1. 優秀ポスター賞, 2022 年度量子リーダ人材研究者交流会, 大阪大学, 2023 年 3 月 2 日.
2. The Best Student Oral Paper Award, The 11th Advanced Lasers and Photon Sources, Yokohama, April 21 2022.
3. 優秀ポスター賞, 2021 年度量子リーダ人材研究者交流会, 大阪大学, 2022 年 3 月 8 日.
4. EMS 賞, 第 39 回電子材料シンポジウム, オンライン, 2020 年 10 月 9 日.
5. The Best Student Oral Paper Award, The 9th Advanced Lasers and Photon Sources, Online, April 23 2020.