

擬似位相整合による紫外・青色波長変換デバイス

水内 公典, 山本 和久

松下電器産業(株)メディア制御システム開発センター(〒570-8501 大阪府守口市八雲中町3-1-1)

Blue and Ultra-Violet Radiations Using Quasi-Phase-Matched Second Harmonic Generation Devices

Kiminori MIZUUCHI and Kazuhisa YAMAMOTO

Storage Media Systems Development Center, Matsushita Electric Industrial Co. Ltd.

3-1-1 Yagumo-Nakamachi, Moriguchi, Osaka 570-8501

(Received September 12, 2003)

Quasi-phase matched (QPM) second-harmonic generation (SHG) device offers various application for blue and ultra-violet (UV) radiations. Advanced poling technology made it possible to realize micron and sub-micron poling geometry in efficient nonlinear materials. Using these techniques, first-order nonlinear gratings have been realized for high power blue and UV SHG. Based on these devices, high power short wavelength laser sources were demonstrated for practical use. Recent progress in this area is reviewed with emphasis on research work of the author's group using bulk and waveguide QPM devices.

Key Words: SHG, QPM, Bulk, Waveguide, MgO:LiNbO₃

1. はじめに

SHG (Second Harmonic Generation: 第2高調波発生)を用いると、光の波長を半分にできるため、長寿命、高出力化容易な赤色、赤外半導体レーザーと組み合わせると紫外～青色域のSHGレーザーが実現できる¹⁻³⁾。主な高効率化方式として導波路型とバルク共振器型の2種類があり、それぞれ使い分けられている。導波路を用いたSHGは、半導体プロセスを用いた量産化、低コスト化が可能であり、光情報処理用として期待できる³⁾。またバルク型は高出力化に特徴を発揮する。この両方式に効果的な位相整合方式として周期分極反転構造を基本としたQPM(Quasi-Phase Matching: 擬似位相整合法)がある⁴⁾。QPMは任意の波長での位相整合が可能で、かつ高い非線形性を利用できるという特長を有する。ここでは、QPMを用いたSHGレーザーについて紫外～青色発生を中心に説明する。

2. SHG方式

小型化、長寿命化を可能にするレーザーの固体化技術は、半導体レーザーおよび固体レーザーを中心に飛躍的に進歩した。同時に固体化したレーザーの波長域拡大を実現するため、SHGを中心とする非線形光学効果を利用した波長変換技術の開発が進められてきた。SHG研究開発の方向性は大きく3つに大別され、半導体レーザー励起

固体レーザーをベースとしたハイパワー化、紫外域をねらう短波長化、そして光導波路をベースとした超小型・低コスト化に分かれる。擬似位相整合方式は非線形材料の応用を飛躍的に広げるものであり、各研究開発の方向への貢献が大きい。

QPMは周期分極反転形成技術の開発^{5,6)}によりデバイスが実現されており、光情報処理用としては光メモリ、プリンタ、表示装置としてのレーザーディスプレイ等への普及が期待されている。またバイオ、計測応用については紫外光発生に加え分極反転構造の設計により任意波長を発生可能な特徴が目ざされている。Fig. 1に短波長光源の応用分野に必要な波長とパワーの関係を示した。干渉または蛍光分光を中心とした医用、バイオ関連、計測には波長の短い紫外光源が有効である。光メモリおよび計測分野においては、小型、低コスト化が要求

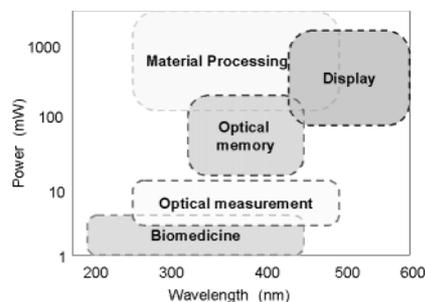


Fig. 1 Application fields of short wavelength lasers.

されるため、高効率化が容易な光導波路型が必要とされる。一方、ディスプレイ分野には、高出力なRGB光発生が必要とされ、レーザーマーキングや微細光加工への応用が注目されている光加工分野においては、高出力特性が特に重要である。これの広い応用分野において分極反転型の光波長変換素子の応用が広がる可能性を持っている。

半導体レーザーレベルの低パワー域では一般にSHG光は位相整合状態でも小さく、さらに2~4桁程度高効率化する必要がある。SHG高効率化としては大きく分けてバルク形の共振器を用いるもの、光導波路を用いるものがある。Fig. 2に高効率アプローチとしての共振器構造および光導波路構造の基本構成を示している。固体レーザーをベースとした共振器型は超小型化および高速変調が困難ということで光情報処理にはあまり適さないが、一方で端面でのパワー密度がそれ程高くないために光損傷、端面破壊が生じにくく、高出力化に適している。光導波路型SHGは、非線形光学材料に光導波路を形成し、その中に基本波を閉じこめることで高効率化が可能である。小さなビーム面積を保ったまま、長い相互作用長をとれるからである。また、光導波路デバイスは通常の半導体プロセスを用いて量産可能であり、基板材料を選ぶことで、十分な低コスト化が図れる。半導体レーザーと同じ平面導波路デバイスであるためモードの相性も良く、レンズレス結合が可能である。これにより、究極の小型・低コスト化が達成できるが一方でWクラスのハイパワー化は困難であり、バルク型デバイスとの使い分けが必要である。

3. バルク型SHG素子

バルク型の分極反転素子はLiNbO₃、LiTaO₃、KTPを中心に可視から赤外波長域で広く実用化されているが、青色から紫外にかけての短波長域での応用は限られていた。その理由は、短波長光発生に必要な短周期分極反転構造の形成が難しいこと、および短波長領域において顕著になる光損傷やグレートラックといった波長変換の不安定性の2点である。Fig. 3に短波長域におけるSHG波長と分極反転周期の関係を示す。青色領域で周期3 μm 程度、

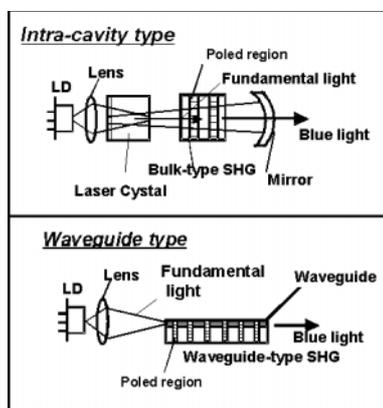


Fig. 2 Comparison of approaches for highly efficient frequency doubling.

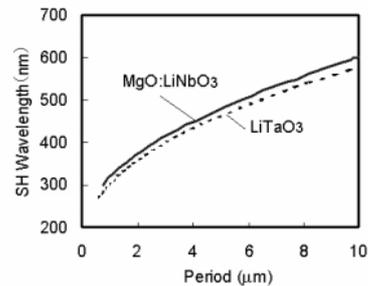


Fig. 3 Second-harmonic wavelength as a function of period of periodically-poled MgO:LiNbO₃ (solid line) and LiTaO₃ (dotted line).

紫外領域では2 μm 以下の周期構造が必要となり、サブ μm の分極反転形状が要求される。特にバルク型QPM-SHG素子は伝搬ビームとの十分なオーバーラップを実現する100 μm 以上の深さが必要なため、分極反転部分のアスペクト比(深さ/幅)が100以上の高アスペクト構造が要求される。最近、これらの問題を解決するブレイクスルーがMgO:LiNbO₃分極反転技術によって達成された。MgO:LiNbO₃が利用可能となったことで光損傷の問題がほぼ解決し、短周期分極反転技術により高効率、高出力なバルク型QPM素子が実現された。今後、短波長領域におけるバルク型QPMデバイス応用が急速に進展すると考えられる。

3.1 MgO:LiNbO₃における開発

高効率、高出力な短波長変換素子として期待されているのがMgO:LiNbO₃である。MgO:LiNbO₃は高い非線形光学定数と優れた耐光損傷強度を有する材料であり、青から紫外にかけての最も有望な非線形光学材料と注目されていた。また、吸収端も320 nm程度に有り、LiTaO₃に次ぐ短波長透過特性を有している。しなしながら、分極反転技術の困難さより開発が遅れていた。特に、バルク型に必要なZ板MgO:LiNbO₃においては、電荷量による分極反転領域の制御が難しいため^{7,8)}、微細な分極反転構造の形成が困難であった。通常のパターン電極による分極反転⁸⁾とコロナ放電⁹⁾による短周期化が考案されたが、周期4 μm 程度に限界があり紫外領域への応用は難しかった。最近、ナノメータ構造の分極反転を可能にする方法が提案され、高効率な紫外光発生を初めて実現した¹⁰⁾。Z板MgO:LiNbO₃における電界印加分極反転形成の阻害要因が分極反転部の抵抗特性の変化にあることが見いだされた。これを解決するため、厚膜基板(2 mm)を利用したマルチパルス電界印加法が提案されたことで、短周期分極反転形成が初めて可能になった。Fig. 4に提案された作製方法を示す。基板の表裏に形成したパターン電極により電界を印加する方法である。分極反転部を通して電極間が導通するのを避けるため、通常使われている厚み0.5 mm程度の基板に代わり2 mm厚の基板を用いている。MgO:LiNbO₃は分極反転電圧がLiNbO₃の1/4と小さいため、厚い基板においても絶縁破壊を起こすことなく電界印加による分極反転が可能である。さらに、基板温度を上げることで反転電圧を大幅に低減できるという利点も有する¹¹⁾。分極反転の成長を抑圧するため短パルスを印

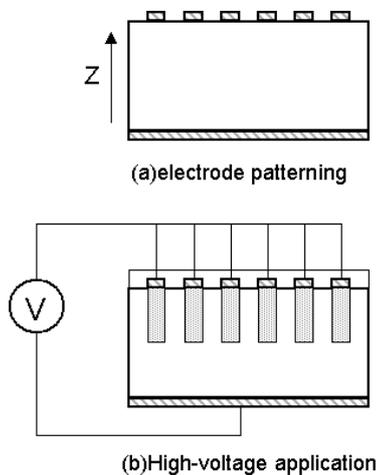


Fig. 4 Fabrication process of periodically poled MgO:LiNbO₃.

加することで、分極反転の成長深さを300~500 μm程度に抑え、均一な分極反転構造の形成に成功している。形成された分極反転部の幅は1 μm以下に抑えられナノメータ構造の分極反転が形成されている。Fig. 5は本方法により形成された短周期分極反転構造の断面顕微鏡写真である。周期1.4 μm、相互作用長10 mmに渡り均一な反転構造が形成されている。分極反転MgO:LiNbO₃を用いたシングルパスの波長変換により、変換効率5.4 %/W、出力1.2 mWの紫外光(波長341.5 nm)を実現している¹²⁾。また、周期1.8 μmの分極反転構造を用い、変換効率11 %/W、出力30 mWの362.5 nm紫外光の発生にも成功している¹³⁾。MgO:LiNbO₃によるバルクQPM-SHG素子は高効率変換が可能のため、シングルパスによる変換が可能であり、耐光損傷性に優れるため高出力化を達成している。従来、実用的な紫外光発生非線形光学結晶はCLBO¹⁴⁾等の材料に限られていたが、MgO:LiNbO₃のQPM-SHGデバイスにより2桁近い変換効率の向上が可能となる。今後は、第2高調波発生のみならず、固体レーザーの3倍波(波長355 nm)への応用等も期待される。

3.2 LiTaO₃における開発

さらなる短波長光発生を可能にする高非線形材料としてLiTaO₃が期待されている。LiTaO₃は吸収端が280 nmに有り、MgO:LiNbO₃よりさらに短波長のSHG発生が可能な

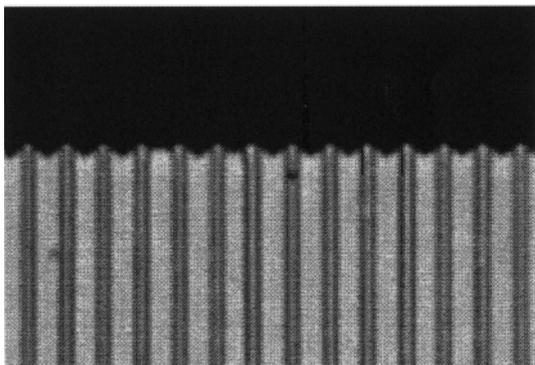


Fig. 5 Cross sectional micro-photograph of periodically poled MgO:LiNbO₃ ($\Lambda = 1.4 \mu\text{m}$).

分極反転材料である。この材料を用いた赤色半導体レーザー(680 nm)の波長変換が実現されている。LiNbO₃, LiTaO₃における強誘電体自発分極の分極反転現象は、分極反転核の発生をトリガーとして自発分極の方向に反転領域が拡大する。このためZ板の結晶表面に形成した電極構造を結晶中の深い部分まで転写できる。LiTaO₃は分極反転の深さ方向の成長と幅方向の成長が一意的に決定されるため、基板の薄膜板化により深さ方向の成長を抑圧することで短周期の分極反転構造の形成が可能となった。電界印加法による分極反転によって1.7 μmまでの反転が達成され、680 nmの赤色半導体レーザーより、340 nmの紫外光発生が実現されている¹⁵⁾。

耐光損傷性に優れた材料としてストイキオメトリック構造のLiTaO₃も開発されており、今後の紫外光デバイスへの応用が期待される。さらなる短波長化技術として石英のツイン構造による擬位相整合も注目されており、窒化物半導体レーザーの波長変換による遠紫外光発生も期待される¹⁶⁾。

4. 導波路型SHG素子

光導波路を利用したQPM-SHGは古くから提案されてきたが、それを実現する光導波路形成技術、結晶成長技術、分極反転技術等が大幅に進化したため高効率のデバイス化が可能となった¹⁷⁻¹⁹⁾。以下、周期状分極反転構造を有する光導波路型SHGデバイスおよびその応用について説明する。

4.1 導波路型SHG素子の開発

SHGデバイスの構造としては、周期状に形成した分極反転層と直交して光導波路が形成されている。導波路としては、プロトン交換導波路、機械加工リッジ導波路(リッジ化により結晶そのままをコアに用いる方法)、エピタキシャル成長を用いる方法、Zn等の金属拡散導波路、イオン注入導波路がある。以下、均質でかつ閉じこめの良いプロトン交換導波路およびリッジ導波路について述べる。

MgO:LiNbO₃にプロトン交換法を用いて1次の擬位相整合用分極反転層(周期3.2 μm)が形成されている¹⁹⁾。この周期分極反転構造内にプロトン交換光導波路を形成しSHGデバイスを形成している。プロトン交換法は、低温で光導波路を形成できる方法で分極反転層を破壊することはない。より閉じ込めが大きい光導波路、深い分極反転層を形成することで大幅に効率が向上している。光導波路のサイズは幅4 μm、厚み2 μm、長さ10 mmのもので、Tiサファイアレーザーの基本波20 mWのパワーに対して、最大6 mWのSHG出力が得られている(波長426 nm)。また、換算効率は15 %/10 mWの値が得られている。

また光導波路として結晶そのままを用いるリッジ導波路のアプローチもある²⁰⁾。リッジ導波路を用いたQPM-SHGデバイスは、対称なステップ型屈折率分布を有するため基本波との結合効率が高く、非線形性の劣化がないため、高効率の波長変換が期待できる。Fig. 6にリッジ導

波路を用いたQPM-SHGデバイスの構成を示す。X板MgO:LiNbO₃基板の+X面に楕円電極を形成し、電界を印加することにより、周期2.8 μmの分極反転構造を形成した。分極反転を形成したMgO:LiNbO₃基板をLiNbO₃基板に樹脂にて張り合わせ、薄板化研磨によりMgO:LiNbO₃基板の厚みを制御し、その後3次元光導波路を精密切削加工により形成している。光導波路のサイズは幅4 μm、厚み2.5 μm、長さ12 mmのもので、換算変換効率は15%/10 mWが得られている(波長410 nm)。基本波の光導波路出射パワー210 mWに対して、SHG出力132 mWが得られている。

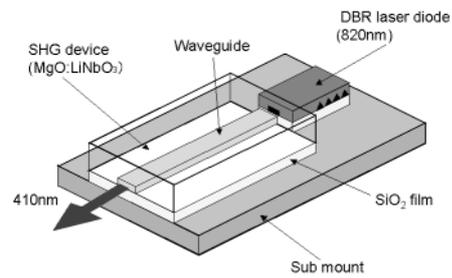


Fig. 7 Configuration of a SHG laser.

4.2 半導体レーザーの波長変換技術

分極反転をベースとした擬似位相整合SHGの基本波波長に対する許容幅は0.1 nm程度と小さい。これに対して半導体レーザーは温度、戻り光の変化により発振波長が変化する。これを防ぐためには光フィードバックによる半導体レーザーの波長ロックが効果的である。

光通信分野で用いられてきたDBR (Distributed Bragg Reflector)半導体レーザーを短波長で実現している。半導体レーザーそのものが選択性グレーティングにより波長ロックされており、最も小型化が容易である²¹⁾。

また、半導体レーザーの発振波長を光導波路型QPM-SHGデバイスの位相整合波長に調整し、高効率な波長変換特性を得るためには、連続的な波長可変特性が必要不可欠である。そのため半導体レーザーは活性領域、位相調整領域、DBR領域の3つの領域から構成されている。それぞれの領域に電流を注入することにより、出力、発振波長の位相、発振波長をそれぞれに制御することができる。

SHGレーザーモジュールとして、DBR半導体レーザーとSHGデバイスをSiサブマウント上で高精度の光結合が行われている。この際、半導体レーザーの活性層面とSHGデバイスの光導波路面がサブマウントに対向するように100 nm高精度実装技術を用い固定することで厚み方向位置決めが容易となる。Fig. 7にプレーナ方式の直接結合SHGレーザーモジュールを示す^{22,23)}。この構成は、機械的にも安定になり長期信頼性に優れている。試作されたSHGレーザーをFig. 8に示す。容量は0.3 cc(幅5 mm、長さ18 mm、高さ3 mm)で、重さは0.9 gである。得られた青色光の諸特性をTable 1に示す。波長は410 nmである。横モードはシングルで、その広がり角は垂直方向が9度、水平方向が5度であった。ノイズ特性も、相対雑音強度が -145 dB/Hzと小さい。変調しても波長広がりには抑制され、変調SHG出力として62 mWが得られている。

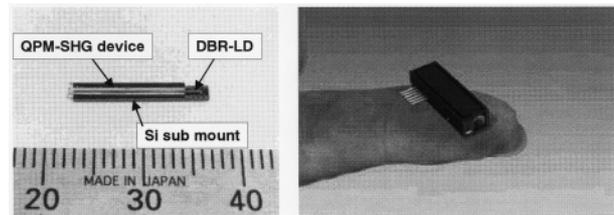


Fig. 8 Photograph of a SHG laser.

Table 1 Characteristic of SHG laser.

Wavelength	410 nm
Relative Intensity noise	-145dB/Hz
Focusing	Diffraction Limit
Output Power	62 mW
Wavelength Difference	< 0.1 nm
Operation Voltage	2 V

4.3 短波長化技術

導波路型デバイスによる紫外光発生は、MgO:LiNbO₃プロトン交換導波路による擬似位相整合により1.2 mW(波長380 nm)の紫外光発生が確認されている²⁴⁾。その後、リッジ型導波路により短波長化、高出力化を実現した。半導体レーザーとの偏光を一致させ導波路との高効率結合を達成するため基板はオフカットのMgO:LiNbO₃が利用される。オフカットMgO:LiNbO₃基板における2次元電界印加法によって、周期1.4 μmの短周期分極反転構造が達成された。オフカット基板においては、結晶の対称性によって分極反転部のアスペクト比が1程度に限定されるため、短周期構造においては光導波路とのオーバーラップが十分とれないという問題があった。これを解決するため新たなマスクシフト法が提案された²⁵⁾。電界印加のマスク位置をシフトさせて2重に電界印加分極反転構造を形成する方法である。この方法で、周期1.4 μm、深さ1.4 μm、分極反転部のアスペクト比2の構造を形成するのに成功している。Fig. 9に分極反転構造の断面SEM写真を示す。この構造をリッジ導波路と組み合わせることで、高効率化、高出力化を図り、Tiサファイアレーザーより、22 mW(波長: 340 nm)、34 mW(354 nm)の紫外光発生が実現された(Fig. 10)。変換効率は340%/Wであり、導波路型で初めて、高効率高出力の紫外光発生に成功している²⁵⁾。

さらなる高効率化のアプローチも盛んである。非線形性能指数が2倍程度あるストイキオLiNbO₃を使用するという研究が注目を集めている²⁶⁾。この結晶は短波長域も拡大するという特長も備えており、今後の特性向上が期待

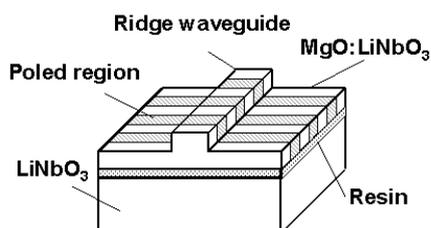


Fig. 6 Schematic structure of a ridge-type waveguide QPM-SHG device.

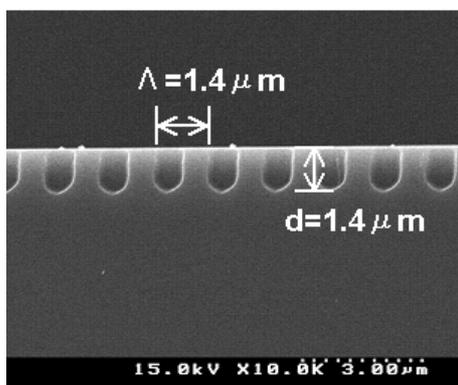


Fig. 9 Cross-sectional microphotograph of a first-order periodically domain-inverted structure with period of 1.4- μm and depth of 1.4- μm , as seen on z-face of $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$.

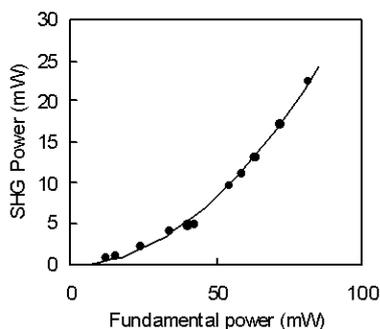


Fig. 10 Measured SHG power plotted against the fundamental power in a single pass through the QPM-SHG device. The line shows the quadratic relation with normalized conversion efficiency of 340 %/W.

される。

5. おわりに

青色光発生を目的として始まった分極反転による波長変換技術は、飛躍的な進歩を遂げ、既に340 nmでの高出力紫外光発生を導波路およびバルク構造で実現している。バルク型の分極反転構造は従来難しかった紫外領域における高効率波長変換を可能にし、QPM結晶は新たな高非線形材料として、広い分野への応用が期待される。一方、導波路型のSHG素子は小型SHGレーザーモジュールが実現され、1)低ノイズであり、戻り光にも強い、2)波長ばらつき、変動が極めて小さかつ波長選択制がある、3)高いコヒーレンスを有する等の特長が示された。

そのため、従来の半導体レーザー単体では成し遂げられなかった、新たな光情報処理装置の創出が期待されるだけでなく、半導体レーザーと組み合わせた所望の波長が出せる特長を活かし、バイオ・計測への展開が期待される。

参考文献

- 1) 山本 和久：レーザー研究, **19** (1991) 403および**21** (1993) 1089.
- 2) 栖原 敏明, 西原 浩：レーザー研究 **21** (1993) 1097.
- 3) 山本 和久：レーザー研究 **28** (2000) 576.
- 4) J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan: Phys. Rev. **127** (1962) 1918.
- 5) E. J. Lim, M. M. Fejer, R. L. Byer, and W. J. Kozlovsky: Electron. Lett. **25** (1989) 731.
- 6) J. Webjorn, F. Laurell, and G. Arvidsson: IEEE Photon. Technol. Lett. **1** (1989) 316.
- 7) A. Kuroda, S. Kurimura, and Y. Uesu: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 1565.
- 8) K. Mizuuchi, K. Yamamoto, and M. Kato: Electron. Lett. **32** (1996) 2091.
- 9) 神山 宏二, 岡崎 洋二, 原田 明憲：レーザー研究 **26** (1998) 234.
- 10) K. Mizuuchi, A. Morikawa, T. Sugita, and K. Yamamoto: 1st NIMS Inter. Conf. Tsukuba, (2003) p. 47.
- 11) H. Ishizuki, I. Shoji, and T. Taira: Appl. Phys. Lett. **82** (2003) 4062.
- 12) K. Mizuuchi, A. Morikawa, T. Sugita, and K. Yamamoto: Jpn. J. Appl. Phys. Part 2. **42** (2003) L90.
- 13) K. Mizuuchi, A. Morikawa, T. Sugita, and K. Yamamoto: Opt. Lett. **28** (2003) 935.
- 14) 小野 利一, 神村 共住, 福本 悟, 西岡 志行, 吉村 政志, 森 勇介, 佐々木 孝友：レーザー研究 **30** (2002) 538.
- 15) K. Mizuuchi, K. Yamamoto, and M. Kato: Appl. Phys. Lett. **70** (1997) 1201.
- 16) 原田 昌樹, 村松 健一, 栗村 直, 北村 健二：2003年秋応用物理学会予稿30-a-YK-2.
- 17) K. Mizuuchi, K. Yamamoto and M. Kato: Electron. Lett. **33** (1997) 806.
- 18) S. Sonoda, I. Tsuruma and M. Hatori: Appl. Phys. Lett. **70** (1997) 3078.
- 19) K. Mizuuchi, H. Ohta, K. Yamamoto and M. Kato: Opt. Lett. **22** (1997) 1217.
- 20) T. Kawaguchi, K. Mizuuchi, T. Yoshino, J. Kondo, A. Kondo, M. Imaeda, and K. Yamamoto: Proceeding of ISOM in 2000, **Th-F-03** (2000) 66.
- 21) 横山 敏史, 杉田 知也, 北岡 康夫, 水内 公典, 山本 和久, 飯尾 晋司, 平田 隆昭：電気学会論文誌C, **120-C** (2000) 938.
- 22) 北岡 康夫, 森川 顕洋, 横山 敏史, 杉田 知也, 水内 公典, 笠澄 研一, 山本 和久, 高山 徹, 折田 賢児, 持田 篤範, 瀧川 信一, 油利 正昭, 清水 裕一：レーザー研究 **30** (2002) 676.
- 23) 北岡 康夫, 鳴海 建治, 水内 公典, 山本 和久, 横山 敏史, 加藤 誠：レーザー研究 **26** (1998) 256.
- 24) T. Sugita, K. Mizuuchi, Y. Kitaoka, and K. Yamamoto: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) 1751.
- 25) 杉田 知也, 水内 公典, 山本 和久, 川口 竜生, 吉野 隆史, 今枝 美能留：第50回応用物理学会学関係連合講演会27p-W-15 (2003).
- 26) Y. Furukawa and K. Kitamura: Opt. Lett. **23** (1998) 1892.

レーザーワード

擬似位相整合 (QPM: quasi-phase match)

非線形光学効果を用いた波長変換において基本波と高調波の位相を整合させる方法。非線形媒質(非線形光学結晶)中を伝搬する基本波と高調波は媒質の分散特性により異なる位相速度で伝搬するため、高効率な波長変換が難しい。非線形分極を周期的に変調した非線形グレーティング構造により位相不整合量を補償することで擬似的に

位相整合条件を得るのが特徴である。非線形グレーティングは結晶の自発分極を周期的に反転させる周期分極反転構造により構成される。QPMは従来不可能であった高非線形材料での位相整合条件を任意の波長で成立することを可能にし、高効率な波長変換特性を実現している。

(水内 公典)