

C 1 周期ドメイン構造による非線形波長変換

Nonlinear Frequency Conversion based on the Periodic domain Grating

伊藤 弘 昌

Hiromasa ITO

東北大学 電気通信研究所

Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University

Abstract Domain reversed bulk gratings in ferroelectric materials are successfully fabricated by means of a direct electron beam writing on LiNbO_3 and LiTaO_3 substrates at room temperature without any DC bias. The e-beam writing condition as well as the performance of the quasi-phase matched second harmonic generation are studied experimentally and theoretically. It is known from the experiment that the accelerating voltage of the e-beam is less sensitive to fabricate volume domain grating rather than the beam current.

1 まえがき

非線形光学相互作用を効率よく行うには、良く知られるように非線形光学係数が大きな物質を位相整合条件の下で高い光エネルギー密度において利用することが必要である。一般に短波長域ほど材料の分散が大きくなり、複屈折のみでは分散の補償はできなくなって、位相整合が取れなくなる。また材料自体の短波長域の吸収端と非線形光学係数の間には、Fig. 1 に示すように強い相関があり、非線形分極を大きくすると、吸収端は長波長側にずれてくる傾向にある。このため短波長で使用できる非線形光学材料が限定されてしまう。

また、数多い2次非線形光学テンソルの成分中で、 d_{33} (d_{zzz}) が最も大きい値をもつ材料も多い。代表的な非線形光学材料のいくつかについて、この d_{33} の値と他の成分の値（ここでは代表的な d_{31}) を Table 1 に比較して示す。いずれも大きな d_{33} 成分をもつが、従来の複屈折を利用した位相整合法では直交した偏光成分を基本波と高調波に用いることが必須であることから、このテンソル成分を用いることができていない。

疑似位相整合法は、従来の位相整合の制約に捕らわれずに、非線形性の最も大きな材料を最適な動作条件の下で利用できる¹⁾ことから、比較的出力レベルでの非線形相互作用に特に適している。最近、強誘電体材料のドメインを周期的に制御する新しい方法の提案とその成果が報告され、その優れた特性が見直されている²⁾。

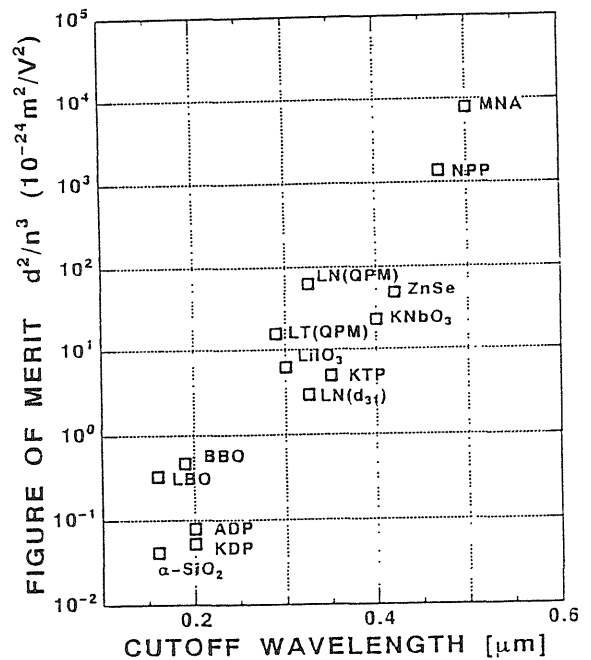


Fig. 1 代表的な2次非線形光学材料に対する性能指数 d^2/n^3 と透過短波長限界の関係

Table 1 代表的な非線形光学結晶の d_{33} および d_{31} テンソル成分の比較

結晶	透過域 (nm)	d_{33} (pm/V)	d_{31} (pm/V)
LiNbO_3	320-5000	-38	-6
LiTaO_3	280-5000	-18	-1
KTP	350-4500	-14	-7
KNbO_3	350-4000	-27	-16

2 疑似位相整合

周期ドメイン反転構造の実効的な非線形係数の定量的な見積りは、ドメイン反転に伴う非線形光学係数の周期的な空間分布をフーリエ展開して、注目する周波数成分に付いての係数を求めることにより得られる。

非線形光学係数の分布モデルとして、任意の矩形の周期ドメイン反転構造を仮定し、実効的非線形係数を計算する。周期 T に対するドメイン反転層幅の割合を ξ とし、2次非線形光学係数の z 方向の分布を $d(z)$ 、その振幅を $\pm d$ とし、 $d(z)$ をフーリエ展開し、 m 次における振幅成分を実効的な非線形光学係数 $d_{eff}^{(m)}$ として書き表すと、

$$d_{eff}^{(m)} = \frac{2}{m\pi} \sin\{m\pi(1-\xi)\} d \quad (1) \quad (m \neq 0)$$

となる。この結果、次数 m と反転構造の幅のパラメータ ξ に従って、フーリエ展開の係数の因子分だけ減少する。従って光パラメトリック相互作用の動作解析は、この実効的な非線形光学係数の値を相互作用方程式に取り込むことにより行うことができる。

疑似位相整合における実効的な非線形光学係数 $d_{eff}^{(m)}$ の自乗の値を、 ξ に対して図示した結果が Fig. 2 である。図より、疑似位相整合で最大効率を与える条件は、 $m=1$ で $\xi=0.5$ であり、2次以上の高次動作では $m=2$ 、 $\xi=0.25$ が最も高い効率を示す。

分極波の符号を周期的に反転させるには非線形光学係数の符号を反転させればよく、強誘電体ではドメインの反転、すなわち光軸方向の 180° 反転特性を利用できる。LiNbO₃ や LiTaO₃ 結晶では強誘電性のドメイン構造が c 軸方位に 180° 反転領域を持ち、とくに $+Z$ 面では不純物や歪応力、熱や電界等の様々な外部要因によってドメイン反転を生じ易いことが知られる。このように任意の形状のドメイン反転周期構造を表面プロセスによって製作できれば、従来の結晶引き上げ時の製作に比べ、デバイス展開の自由度を飛躍的に高めることができる。また用いる結晶材料として、LiNbO₃ や LiTaO₃ 結晶の d_{33} 成分は、Fig. 1 および Table 1 に示すようにこの波長域で最大の非線形性を示すものの一つであり、期待できる。

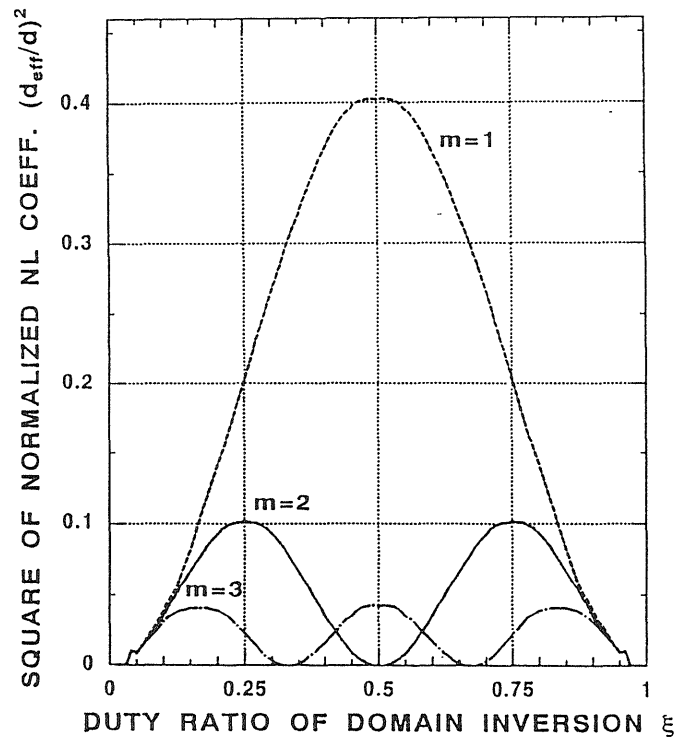


Fig. 2 規格化した非線形係数の2乗のドメイン反転領域の周期に対する比 ξ 依存性

3. 電子ビーム照射による周期ドメイン反転構造の製作

ドメイン反転を電子ビーム照射や電場のみで形成できれば、屈折率変化を伴わない周期ドメイン反転構造の実現が期待できる。従来、キューリー温度の $1/2$ 程度の温度と DC 電界の下で、LiNbO₃ の $-Z$ 面への電子ビーム照射により、ドメイン反転層形成が報告されていた³⁾。これに対して試料に全く熱および電界を印加することなく、電子ビーム照射のみによりドメイン反転を生じさせることができることを我々は明らかにした^{4, 5, 6)}。

簡単に製作法を述べる。LiNbO₃ 基板の $+Z$ 面に先ずクロム等の金属を蒸着し、電子ビーム露光機（走査電子顕微鏡 HITACHI S570 を改造して使用）の試料ステージに取り付ける。あらかじめプログラムされたパターン命令に従って、電子ビームを何の蒸着も施されていない $-Z$ 面に照射する。露光条件は、基板の厚さ $500 \mu\text{m}$ の時、加速電圧 25 kV 、ドーズ量 2×10^{10} electrons/sec であり、全プロセスは室温、ゼロ DC バイアスで行う。

Fig. 3 に電子ビーム照射した LiNbO₃ 試料をエッチング後、光学顕微鏡で観測した結果を示す。電子ビームの照射により、ドメインの周期構造（この場合周期 $7.5 \mu\text{m}$ ）が電子ビームの照射面の $-Z$ 面のみならず、裏面の $+Z$ 面にまで連続し

て形成されていることがエッチングパターンの比較からわかる。Y面を切断、研磨後エッチングして同様の観測をした結果、ドメイン反転層が-Z面から+Z面まで、極めて規則正しく形成されていることを確認している。LiTaO₃についても同様の現象が観測され、周期ドメイン構造の形成を確認した。

電子ビームの基板内への進入は1~2 μmではない。従って電子ビーム照射によるドメイン反転層の形成機構は、概略次のように考えられる。電子ビームが直接進入する表面近傍部では、原子間の束縛がゆるやかになり、原子は動き易い状態

となる。同時に試料は局部的に荷電される。この局所場により、最も動き易いLiイオンが電子ビーム照射により作られる局所的電場により、その位置を変える。すなわち、Liイオンが、酸素の三角面⁹⁾に対して対称な位置に移動し、ドメイン反転を生じることになる。

LiNbO₃やLiTaO₃では+Z軸方向にこの原子構造が規則正しく連続することから、-Z面からの電子ビーム照射により、ひとたびドメイン反転がある部分で生じると、電場がかけられている方向に玉突のようにこの反転が繰り返されて、最終的に裏面の+Z面まで達するものと理解される。

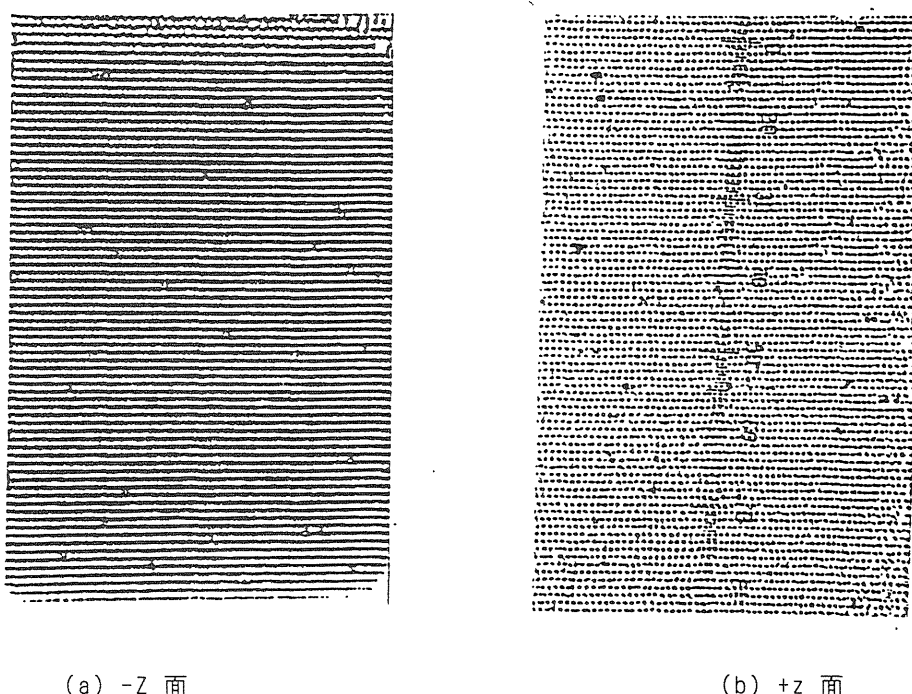


Fig. 3 電子ビームによるLiNbO₃基板の周期ドメイン反転構造の表面エッチング写真

4. SHGの実験

試作した周期ドメイン反転試料の特性評価実験を、Ti:Al₂O₃レーザーを用いて行っている。Ti:Al₂O₃レーザーの発振波長を連続掃引しながら、第2高調波出力を受光し、コンピュータで処理している。

LiNbO₃についてはm=3、LiTaO₃についてはm=1の周期ドメイン反転の試料を用い、疑似位相整合について実験を行った。LiNbO₃についての結果をFig. 4に示している。図中の曲線は屈折率の分散より計算したもので、実験結果とのよ

い対応がみられる。周期ドメイン構造が結晶全体に形成されていることから、バルク形のQPM動作である。

変換効率については、1.5 mmの相互作用長をもつLiNbO₃のドメイン反転試料において、高調波出力3.5 μWが、基本波波長0.83 μmで入力40 mWにおいてm=3の動作で得られている。この値は規格化変換効率に換算すると1.5%/W-cmである。

バルク結晶でのconfocal focusing動作におけるSHG⁹⁾の規格化変換効率をLiNbO₃のQPMにおけるSHGについて求めると、m=1の最適条

件では、波長 $0.8 \mu\text{m}$ の基本波に対して $24\% / \text{W-cm}$ という大きな効率を示すことが分かる。これは、例として作用長 5mm 、基本波出力 200mW で 9mW の高調波出力が期待できることを示している。

上述の実験条件では、規格化変換効率の理論値は 2.4% であり、実験値は理論値の約 63% となっている。(2) で述べた疑似位相整合においての周期ドメイン反転構造の幅の最適化が現在成されていないことが効率を低下させているが、ほぼ理論値に近い値となっていることがわかる。

LiTaO_3 の周期ドメイン反転構造についても、 LiNbO_3 と同程度の変換効率を得られている。なお、周期ドメイン反転構造における光損傷については、反転部と非反転部でその効果が相殺され、光損傷が表れにくいとの指摘もあり、今後の検討が必要である。

5. まとめ

極限性能を追究した種々の非線形光デバイスの実現が求められている。周期ドメイン反転構造を用いることにより、高効率なバルク非線形光学素子が極めて小型に実現出来ることが明らかになった。さらに、超小型の光共振器をモノリシックに構成することが容易であり、共振器型の SHG および光パラメトリック発振器や変換が実現できる。また、広帯域な利得スペクトルを持ち、高効率な動作が得られる LD 励起 Cr:LiSrAlF_6 レーザなどとの組み合わせにより、新しい周期ドメイン反転非線形光装置の展開も期待される。

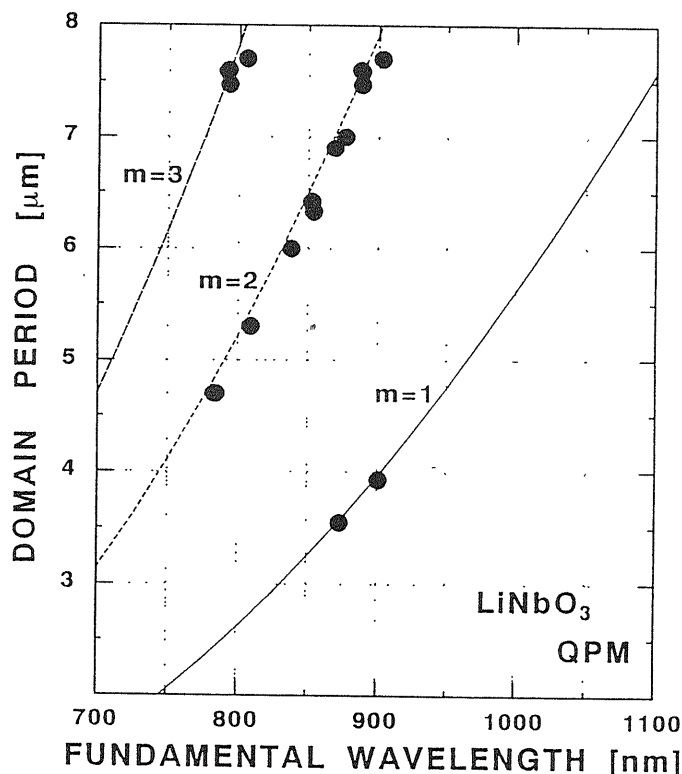


Fig. 4 LiNbO_3 のドメイン反転周期に対する疑似位相整合波長の実験結果と計算結果(実線)

謝辞 日頃ご指導頂く東北工業大学稲場文男教授に深謝いたします。また議論いただいた STANFORD 大学 Byer 教授、および Fejer 助教授に感謝します。

参考文献

- 1) J.A. Armstrong, N. Bleombergen, J. Ducuing and P.S. Pershen, Phys. Rev., 127, No.6, 1918 (1962)
- 2) 伊藤弘昌、光学, 19, No.6, 373 (1990)
- 3) R.W. Keys, A. Loni, R.M. De La Rue, C.N. Ironside, J.H. Marsh, B.J. Liff, and P.D. Townsend, Electron. Lett., 26, No.3, 188 (1990)
- 4) H. Ito, C. Takyu, and H. Inaba, Electron. Letters, 27 (1991) 1221.
- 5) M. Yamada and K. Kishima, Electron. Letters, 27 (1991) 828.
- 6) W-Y. Hsu and M.C. Gupta: Appl. Phys. Lett., 60 (1992) 1.
- 7) P.W. Haycock and P.D. Townsend, Appl. Phys. Lett., 48 (1986) 698.
- 8) A. Yariv : Quantum Electronics (John Wiley & Sons, Inc., New York 1975) p.430.