レーザー解説

導波路型SHGデバイス

山本和久*

(1991年2月18日 受理)

Second Harmonic Generation in a Waveguide

Kazuhisa YAMAMOTO*

(Received February 18, 1991)

As compact, solid-state sources for blue coherent light, laser diode-based second harmonic generation (SHG) devices are greatly expected to be useful in high density optical memory, laser printers and so on. SHG in waveguide can realize a high conversion efficiency, because of its strong confinement. This paper describes recently reported SHG in a waveguide, including Cherenkov and quasi-phase matching.

Key Words : Second harmonic generation, Frequency conversion, Nonlinear optics, Waveguide, Blue coherent light

1. はじめに

半導体レーザー(LD)は小型、軽量、高効率、長寿命、直接変調可能などの優れた特長を持ちCDなどの光情報処理分野、光通信分野で実用化されている。しかしながら、現在のところ半導体レーザーの発振波長は赤色ないし近赤外(波長 $0.63\sim 1.55\mu\text{m}$)に限られている。半導体レーザーの短波長化のアプローチとして、AlGaInP系化合物半導体を用いた $630\sim 680\text{nm}$ 帯LDの開発が活発に進められているが、ほぼ 570nm が短波長化の限界とされており、青～緑色光を発生させるためには他の材料系の研究が必要とされ実現までかなり時間がかかると考えられる。一方非線形光学現象を用いると波長変

換による波長の広帯域化、および連続的な波長可変などが可能となる。そのためさまざまな研究がなされてきたが、GW級の大出力レーザーを用いるような特殊分野でしか実用化がなされていなかった。最近光ディスクの高密度化、レーザープリンターの高精度化、フルカラー化等による短波長レーザー光源の要望、技術的にはKTPやBBOなどの新しい非線形光学材料の開発、あるいはYAGレーザーや半導体レーザーを基本波としたSHG(Second Harmonic Generation)デバイスの開発、製品化などにより、再び研究が活発化している。

赤外LDあるいはLD励起YAGレーザーを励起光源として2次の非線形光学効果であるSHGを用いて波長を $1/2$ に変換することで、青～緑

* 松下電器産業(株)半導体研究センター(〒570 守口市八雲中町3-15)

* Department of Semiconductor Research Center, Mtsushita Electric Industrial Co., Ltd., (3-15 Yagumo-nakamachi, Moriguchi, Osaka 570)

色光源の実現が可能である^{1,2)}。このようにレーザー単体では発振が困難な波長を実現することにより、レーザーの利用範囲の拡大を図ることができる。中でも最近高効率変換が可能な光導波路を用いたSHGデバイスが注目されている。導波路型SHGデバイスには、位相整合法としてバルクでは困難なチェレンコフ位相整合、擬似位相整合等を用いることができ材料および波長範囲の自由度を向上させることができるという特長もある。ここでは、進展がめざましい光導波路型SHGデバイスについて、より実用化が近い無機材料を中心としてその現状を紹介する。

2. 光導波路による波長変換

高調波発生は、多くの非線形光学効果の中で最も利用されており、既にYAGレーザー装置の中に製品として組み込まれているものもある。SHGでは入射する光に対して波長が1/2の高調波が発生するために、赤外から可視光への変換、あるいは可視から紫外光への変換に利用されている。本節では導波路用材料および形成方法について述べる。

2.1 導波路デバイスの特徴

半導体レーザーレベルの低いパワーで使用するためには変換効率の大幅向上が必要であり、そのためのアプローチとして光導波路化がある。一般的な導波路型SHG(チェレンコフ放射、擬似位相整合は除く)において効率が低い場合、SHG出力 $P_{2\omega}$ は基本波 P_{ω} 、非線形光学定数 d 、光導波路長 L 、ビーム断面積 S 、屈折率 n 、電界間の重畳積分 I 、定数 A を用いて簡単に表すことができる。

$$P_{2\omega} = A \frac{d^2 L^2 I^2 P_{\omega}^2}{n^3 \cdot S} \left[\frac{\sin(\Delta \beta L / 2)}{\Delta \beta L / 2} \right]^2$$

ここで基本波と高調波の伝搬定数差 $\Delta \beta$ を0にする(位相整合する)ことが高効率化の基本条件である。この場合SHG出力は非線形光学定数 d 、光導波路長 L および入射パワー P_{ω} の2乗に比例することとなる。ただしチェレンコフ放射型

の場合SHG出力は長さ L に比例する。また擬似位相整合では $\Delta \beta - 2\pi/\Lambda$ (Λ :反転層の周期)を0にする必要がある。

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光導波路型SHGは、バルク型では実現の困難な高効率化と高機能化(例えば位相整合可能な波長範囲の拡大)を図ることができる特長がある。光導波路型SHGの特長を以下にまとめる。

- ・高い光パワー密度を保ったまま大きな相互作用長 L をとることができるので、高効率化が図れる。
- ・バルク型では利用が困難な非線形光学定数(例えば d_{11} , d_{33} など)を、モード分散等を利用した位相整合法により有効に利用できる。

2.2 光導波路型SHG用材料

波長変換用材料として実用上必要な条件として非線形光学定数が大きいこと以外に以下に示すことがあげられる。

- ・使用波長の透過特性が良いこと。
- ・耐レーザー損傷性が高く化学的に安定で、機械的にも強いこと。
- ・光学的に均一で大型の単結晶が得られること。

非線形光学材料には無機材料、有機材料、半導体材料、ガラス材料があるが、波長変換用としては安定で透過特性が良く大きな非線形性を示す無機材料が現在最も実用に近い。以下無機材料に絞って説明を行う。Table I に波長変換に用いられる主な無機非線形光学材料のうち光

Table I Materials for a nonlinear waveguide.

	LiNbO ₃	LiTaO ₃	KTP
Crystal symmetry	3m monoaxial	3m monoaxial	mm2 biaxial
Nonlinear coefficient (pm/V)	$d_{31}=6.5$ $d_{33}=34.4$	$d_{31}=1.7$ $d_{33}=26$	$d_{31}=6.5$ $d_{32}=5.0$ $d_{33}=13.7$
Transparent wavelength range (μm)	0.33~4.4	0.28~4.4	0.35~4
Refractive index change ($\lambda=830\text{nm}$)	$n_o=2.25$ $n_e=2.17$	$n_o=2.15$ $n_e=2.16$	$n_a=1.75$ $n_b=1.76$ $n_c=1.85$

導波路化の報告があるものの諸特性を示す。

2.2.1 LiNbO₃

LiNbO₃は、三方晶系に属する一軸性結晶であり、SAWデバイス用材料として実用化され、最近では光IC用基板としても用いられている。この材料は大きな複屈折を利用した位相整合が可能であり、非線形光学定数も大きいために、従来からSHG、光パラメトリック変換の研究に広く用いられている。この結晶の特長を以下にまとめる。

- ・非線形光学定数が大きい(d_{33} は34.4pm/V)
- ・YAGレーザーとの温度位相整合が容易
- ・材料が安価で大きな結晶が入手可能

この結晶は、チョクラルスキー法(CZ法)により直径4～5インチの大型結晶が引き上げられ、従来の難点であった光損傷に対してもMgO³⁾あるいはZnO⁴⁾ドーブなどによる改良が進んでいる。

2.2.2 LiTaO₃

LiTaO₃はLiNbO₃と同様に三方晶に属する一軸性結晶でありLiNbO₃と同じく直径3～4インチの大型結晶が引き上げられている。以下にその特徴を示す。

- ・非線形光学定数(d_{33})がLiNbO₃と同様に大きい(26pm/V)
- ・吸収端が短く(280nm)、短波長までの変換が可能

しかしながら複屈折変化が小さいため位相整合に用いることができないことから現在までSHGに関する報告がほとんどない。

2.2.3 KTP

KTP(KTiOPO₄)はYAGレーザーのSHG特性に優れており、最近フラックス法による結晶育成法⁵⁾が開発されたことから大型で高品質な単結晶が得られ、実用化が進んでいる。この結晶の特長を以下にまとめる。

- ・屈折率の温度変化が小さく、位相整合時の温度許容値が大きい。
- ・耐レーザー損傷しきい値が高い

最近、KTPを用いた半導体レーザー励起YAGレーザーのSHGによるグリーンレーザー

Table II Fabrication methods for an optical waveguide.

	Advantages	Disadvantages
Proton-exchange	High refractive index change (0.14) Low propagation loss (0.4dB/cm)	
Ti-diffusion	Low propagation loss (0.1dB/cm)	Optical damage
Ion implantation	High refractive index change (0.1)	High propagation loss
Epitaxy	Ability to change composition	Non uniformity of film

が製品化されている。

2.3 光導波路の形成方法

非線形材料への光導波路の形成方法としては、Ti拡散法⁶⁾、プロトン交換法⁷⁾等のイオン交換法、イオン注入、エビ成長法がある。Table IIに種々の光導波路形成が可能なLiNbO₃基板への形成方法の比較を示す。中でもプロトン交換方法は屈折率変化が大きいため閉じ込めの良い光導波路が形成できることやTi拡散法に比べ光損傷に強いことからSHG用光導波路として有望である。この方法はLiNbO₃基板のLiと溶液である酸中のHを交換し高屈折率層を形成するものである。プロトン交換源として、ピロ燐酸(H₄P₂O₇)をプロトン交換源として用いる⁸⁾と、伝搬損失が導波路幅2μm(単一モード領域)において0.7dB/cm、MgOドーブ基板を用いると0.4dB/cm⁹⁾と従来の安息香酸(2～3dB/cm)より大幅な低ロス化が実現されている。また、LiTaO₃基板にもピロ燐酸を用いたプロトン交換光導波路の形成が可能である¹⁰⁾。LiTaO₃はキューリー点が低く拡散法等高温処理が必要な場合分極がランダムになり再分極処理が必要である。これに対してプロトン交換法は300℃以下の低温で処理できるため有効な方法である。

イオン注入法は基本的には材料を選ばず光導波路が作製できるという特長がある。LiNbO₃の場合2MeVの加速エネルギーでHeイオンを注入して深さ1μm程度の層をアモルファス化し、屈折率を低下させることで上部の非注入層

がコアとなり光導波路が形成される¹¹⁾。コアはもとの基板のまま保たれるため電気光学定数等の劣化が見られない。伝搬損失(現状スラブ導波路で約1 dB/cm)の低減が図られればおもしろい方法である。

最近注目されているKTPに対してはRbNO₃溶液中350℃で熱処理を行うことでRbとKが交換し高屈折率層($\Delta n \sim 0.03$)が得られる¹²⁾。Z方向への拡散速度が極めて大きくZ板を用いた深い光導波路が形成できる。今のところKTP基板に光導波路を形成できる唯一の方法である。

3. SHGデバイス

光導波路を利用した位相整合方法は古くから提案されてきたが、最近それを実現する光導波路作製技術、結晶成長技術等が大幅に進展したため各種デバイスが実現可能となった。ここではこれら光導波路型SHGデバイスについて述べる。

3.1 複屈折位相整合

光導波路を利用したSHGとして、Ti拡散LiNbO₃光導波路を利用した報告が多い^{13,14)}。基本波として1.06~1.15 μm の波長を用い非線形光学定数 d_{33} による温度位相整合を利用しており、バルク型に比べほぼ二桁の高効率化を図っている。位相整合温度は、多少結晶によりばらつくが、1.15 μm の基本波において170.4℃、1.06 μm において-2℃である。この方法は複屈折特性の関係でブルーの発生は困難という問題がある。

これに対しMgOドーパLiNbO₃上にLiNbO₃を液相エピタキシャル成長し光導波路を形成し、TE-TMモード間位相整合によりグリーン光が得られている¹⁵⁾。また、LiTaO₃上にMgOドーパLiNbO₃を成長し0.15mWの基本波に対して 5×10^{-4} の効率でブルー光(415nm)を得た¹⁶⁾という報告もある。これらエピ成長を用いた方法はエピにより自由に膜の組成が変えられ位相整合範囲を広げることができるため今後注目される方法である。

Fig. 1 Structure of a proton-exchanged LiNbO₃ waveguide for Cherenkov SHG.

3.2 チェレンコフ放射位相整合

LiNbO₃の非線形光学定数 d_{33} はTable I に示されるように無機材料ではきわめて大きい、この定数はバルク型では位相整合が困難であるために有効に利用されなかった。そこで光導波路化により d_{33} の利用を図るとともに光の閉じこめ効果の大きなプロトン交換光導波路を利用し、光パワー密度を高めることにより高効率化を図ったアプローチがある¹⁷⁾。

Fig. 1 にプロトン交換LiNbO₃光導波路を用いたSHG素子の構造を示す。Z-cutのLiNbO₃基板に形成したプロトン交換導波路(幅2 μm , 厚み0.4 μm)の一端に半導体レーザーを入射すると、基板内に放射モードによる高調波が発生する。本方式はチェレンコフ放射SHG¹⁸⁾ともよばれ、Fig. 2 に示すように基本波は最低次TM導波モードであるのに対し、高調波はTM放射モード(モードスペクトラムは連続している)であるために、基本波長に対して、位相整合条件を容易に満足させることができる。ここで基本波および高調波のいずれも異常光であるために、非線形光学定数 d_{33} を利用することができる。放射角 α と基本波導波モードの実効屈折率 N 、基板の屈折率 n (高調波)は次式の関係にある。

$$\cos(\alpha) = N/n$$

0.84 μm の基本波に対して導波路厚み d は、ほぼ0.4 μm でSHG出力が最大となり、室温で温度制御なしで安定した波長0.42 μm の青色高調波

Fig. 2 Cherenkov radiation scheme

Fig. 3 Structure of a compact blue laser source by SHG.

が基板内に放射角16度で発生する。

Fig. 3 はさらにこれを応用したもので、LiNbO₃光導波路型SHG素子と0.84 μm半導体レーザーを一体モジュール化した超小型ブルーレーザー光源の試作例である。40mWの半導体レーザーを用いて0.1mWの出力のものが実用化されている。Fig. 4 は青色レーザーによるピコ秒超短パルス光の発生結果¹⁹⁾であり、波長415nm、光ピークパワー12.3mW、パルス幅29.7psが得られている。電流非注入領域を有する半導体レーザーをゲインスイッチングし発生したパルス光を非線形光学効果によりピークを

Fig. 4 Picosecond blue light generation by SHG.

強調し²⁰⁾、S/Nの良いピコ秒青色パルスの発生を実現している。ここに用いたSHG素子には光導波路に高効率結合するための入射部が形成されており半導体レーザーからの基本波の損失を1.2dBまで低減している。また、現状の最短波長としては380nmまでが得られている²¹⁾。このような、青色域の超高速パルス光は、光化学分野における時間分解蛍光分光計測、蛍光寿命計測、光化学反応機構の解析、あるいは半導体材料のキャリア寿命測定などの光計測分野に今後広く利用されることが期待される。

チェレンコフの特徴として波長許容度が広いことがある。これを利用して2つの半導体レーザーの基本波から同時にRGB3原色のレーザー光の発生が可能である²²⁾。Fig. 5 に示されるよ

Fig. 5 Spectrum of red, green, and blue light generation.

Fig. 6 Structure of a periodically domain-inverted LiNbO₃ waveguide for QPM-SHG.

うに1.3 μm と0.86 μm の半導体レーザーよりそれぞれのSHGとして赤(0.65 μm), 青(0.43 μm)そして2つの波長の和周波として緑(0.52 μm)の同時発生を確認している。

このようなチェレンコフ放射SHGにも集光のため複雑な光学系が必要という欠点があり今後課題として残る。

3.3 擬位相整合

最近盛んなアプローチとして周期的分極反転層を利用した擬位相整合によるSHG発生がある。コヒーレンス長ごとに分極を周期的に反転させることにより非線形分極波を増大させることができる²³⁾。この方法は周期を変えることで広範囲な波長域の変換が行えるという特長がある。Fig. 6に示すような光導波路に垂直に分極反転層が形成されておりこの幅がコヒーレント長にあたる。LiNbO₃にTi拡散²⁴⁾または外拡散²⁵⁾により部分的にキュリー温度を低下させ分極反転層を形成しプロトン交換光導波路を形成している。15mWのTiサファイアレーザーより0.9 μW のSHG出力(波長410nm)を得ている。我々も5 mWにて2 μW のSHGを確認したが同時に光損傷も観測しており²⁶⁾今後の課題となっている。

KTPを用いた高出力SHGの報告²⁷⁾があり、80mWの基本波より2 mWのブルー光(波長426nm)を得ている。これはKTPにBaを含んだRbNO₃溶液中でのイオン交換により、分極反転

層を形成したものである。

我々はLiTaO₃に周期的Taマスクを形成しピロ燐酸によるプロトン交換を行いキュリー点を低減させ、その後熱処理し3次のQPM用分極反転層(周期10.7 μm)を形成した。この分極反転層上にプロトン交換光導波路を形成しSHG素子を作製した²⁸⁾。基本波32mWのパワーに対して最大0.21mWのSHG出力(波長: 421nm)を得た。1次のQPMを用いれば1桁程度の効率改善が見込める。LiTaO₃は光損傷もなくKTPとともに今後の有望なSHGデバイスと考えられる。これらのデバイスの波長許容度は0.2~0.3nmと狭く、周期をチャープ化する²⁹⁾等、許容度の向上が今後の課題である。

3.4 ファイバーデバイス

最近非線形光学材料の単結晶ファイバー化の研究も進められている。このアプローチは光導波路化と同様の特長を持ち効率、位相整合の点で有効な手段である。現在、LiNbO₃, BBO, BNNなどについて直径数10~数100 μm のものが育成されている。育成法としては、レーザーベデスタル法、マイクロチョクラルスキー法³⁰⁾などが試みられており、作製されたLiNbO₃ファイバーに対してMgイオンを表面から拡散することによりクラッドを形成するというデバイス化の検討も進められている。また、レーザーベデスタル法を用いて周期3.5 μm 、直径250 μm のLiNbO₃分極反転ファイバーを作製し83mWの基本波から6.7 μW のSHG(波長407nm)が得られており³¹⁾、この方法は位相整合範囲の拡大に有効であり、今後の進展が期待される。

4. おわりに

光導波路を用いたSHGデバイスについて無機材料を中心に材料からデバイスまで最近の動向を述べた。導波路型SHGは高効率変換が可能な上にバルク型では使用できない d_{33} 等の非線形光学定数が使用できること、変換波長域が広いこと等の特長がある。そのため、各種光導波路形成技術が進んでいるLiNbO₃によりチェレン

コフ、分極反転、複屈折等の位相整合法を用いたSHGデバイスの研究が進められてきた。中でもチェレンコフ型SHG素子を用いたブルーレーザーはすでに光計測、医用、バイオ分野への応用が行われている。しかしながら LiNbO_3 は分極反転等のさらなる高効率化をねらうアプローチにおいては光損傷による限界も見えつつある。一方従来SHGが発生困難であった LiTaO_3 はQPMを用いたSHGによりブルー光発生が可能となった。この材料は光損傷に強く、非線形光学定数も大きいという吸収端が短いという特長があり、今後KTPと共に注目されるであろう。

高効率SHGを用いた短波長レーザー光源の実用化に際しての課題としては次のことが挙げられる。

- 1) 均一で光損傷のない大型結晶の育成
- 2) プロセス技術の確立(均一で深い分極反転層を得る技術、膜厚および屈折率が均一なエピ成長技術、低損失光導波路形成技術)
- 3) 波長に対する許容度の向上またはSHGデバイス用波長安定化レーザーの開発
- 4) 実装、モジュール化技術

SHGデバイスの実用化に向けて上記課題が解決されていけば今後光計測、医用、バイオだけでなく高密度光メモリ、レーザープリンタ、ディスプレイなどの幅広い応用分野に展開していくことと思う。

謝 辞

本稿執筆に当たって有益な御助言を頂いた当社、谷内哲夫博士、佐々井洋一博士に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 谷内哲夫：電子情報通信学会論文誌C-I, J73-C-I, 5 (1990) 317
- 2) 佐々木孝友：応用物理, 58 (1989) 895
- 3) D. A. Bryan, R. Gerson and H. E. Tomaschke: Appl. Phys. Lett. 44 (1984) 847
- 4) T. R. Volk, V. I. Pryalkin and N. M. Rubinia : Opt. Lett. 15 (1990) 996
- 5) A. A. Ballman, H. Brown and D. H. Olsen : J. Crystal Growth 75 (1986) 4980
- 6) J. Noda and M. Fukuma : J. Appl. Phys. 51 (1980) 1379
- 7) J. L. Jackel, C. E. Rice and J. J. Veselka : Appl. Phys. Lett. 41 (1982) 607
- 8) K. Yamamoto and T. Taniuchi : Technical Digest, OFC/IOOC'87 (1987) TUH2
- 9) 山本和久, 谷内哲夫：第49回応物学会予稿集 (1988, 秋) 7a-ZD-7
- 10) 李玉善, 多田邦雄, 村井徹：第50回応物学会予稿集 (1989, 秋) 29a-ZH-2
- 11) G. L. Destefanis, J. P. Gaillard, E. L. Ligen, S. Valette, P. D. Townsend and A. Perez : J. Appl. Phys. 50 (1979) 7898
- 12) J. D. Bierlein, A. Ferretti, L. H. Brixner and W. Y. Hsu : Appl. Phys. Lett. 50 (1987) 1216
- 13) N. Uesugi and T. Kimura : Appl. Phys. Lett. 29 (1976) 572
- 14) W. Sohler, B. Hampel, R. Regener, R. Ricken, H. Suche and R. Volk : IEEE J. Lightwave Technol. LT-4 (1986) 772
- 15) 玉田仁志, 齊藤真樹：第51回応物学会予稿集 (1990, 秋) 27a-P-5
- 16) 山田雅哉, 宮崎保光：電子情報通信学会技術研究報告, MW89-144 (1990)
- 17) 谷内哲夫, 山本和久：応用物理, 56 (1987) 1637
- 18) P. K. Tien, R. Ulrich and R. J. Martin : Appl. Phys. Lett. 17 (1970) 447
- 19) K. Mizuuchi, K. Yamamoto and T. Taniuchi : Electron. Lett. 26 (1990) 1992
- 20) J. Ohya, G. Tohmon, K. Yamamoto and T. Taniuchi : Appl. Phys. Lett. 56 (1990) 2270
- 21) G. Tohmon, J. Ohya, K. Yamamoto and T. Taniuchi : IEEE Photon. Technol. Lett. 2 M (1990) 629
- 22) K. Yamamoto, H. Yamamoto and T. Taniuchi : Appl. Phys. Lett. 58 (1991) 1227
- 23) J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing and P. S. Person : Phys. Rev. 127 (1962) 1918
- 24) E. J. Lim, M. M. Fejer and R. L. Byer : Electro. Lett. 25 (1989) 731
- 25) J. Webjorn, F. Laurell and G. Arvidsson : IEEE Photon. Technol. Lett. 1 (1989) 316
- 26) 竹重邦彦, 山本和久, 佐々井洋一, 谷内哲夫：第38回応物学会予稿集 (1991, 春) 28a-SF-12
- 27) C. J. van der Poel, J. D. Bierlein and J. B. Brown : Appl. Phys. Lett. 57 (1990) 2074
- 28) 山本和久, 水内公典, 谷内哲夫：第38回応物学会予稿集 (1991, 春) 28a-SF-11
- 29) T. Suhara and H. Nishihara : IEEE J. Quantum Electron. 26 (1990) 1265
- 30) 大西紀男：第89回応用物理学学会結晶工学分科会テキスト (1988) 2月
- 31) G. A. Magel, M. M. Fejer and R. L. Byer : Appl. Phys. Lett. 56 (1990) 108