

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  $\kappa$  の2乗に比例する。SHGにおける  $\kappa$  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、 $\kappa$  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、 $\kappa$  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  $\kappa$  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<sup>85-87</sup>。また、LNを用

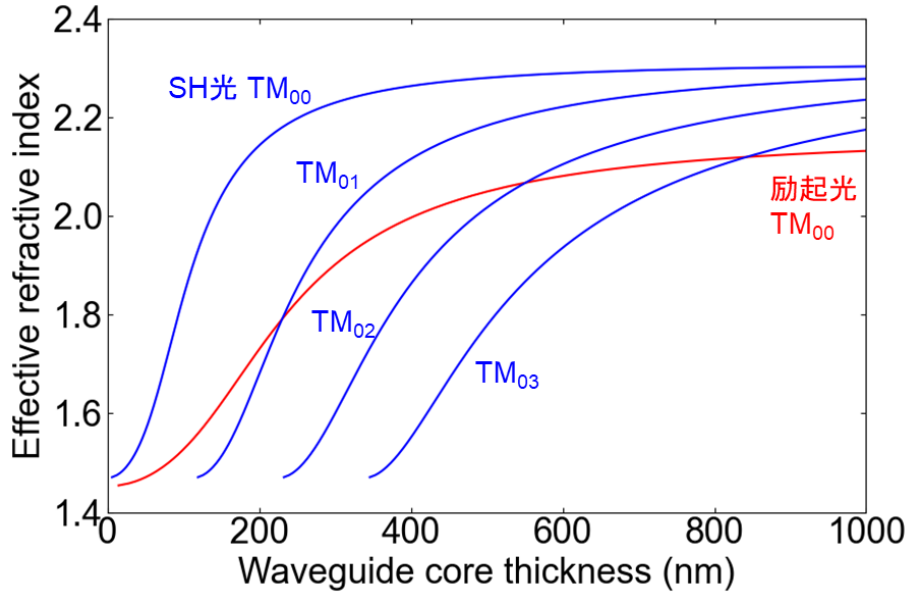


図 1.4 SiO<sub>2</sub>/MgO:CLN/SiO<sub>2</sub> スラブ導波路における実効屈折率の導波路厚さ依存性  
(励起光波長 808 nm、SH 光波長 404 nm)

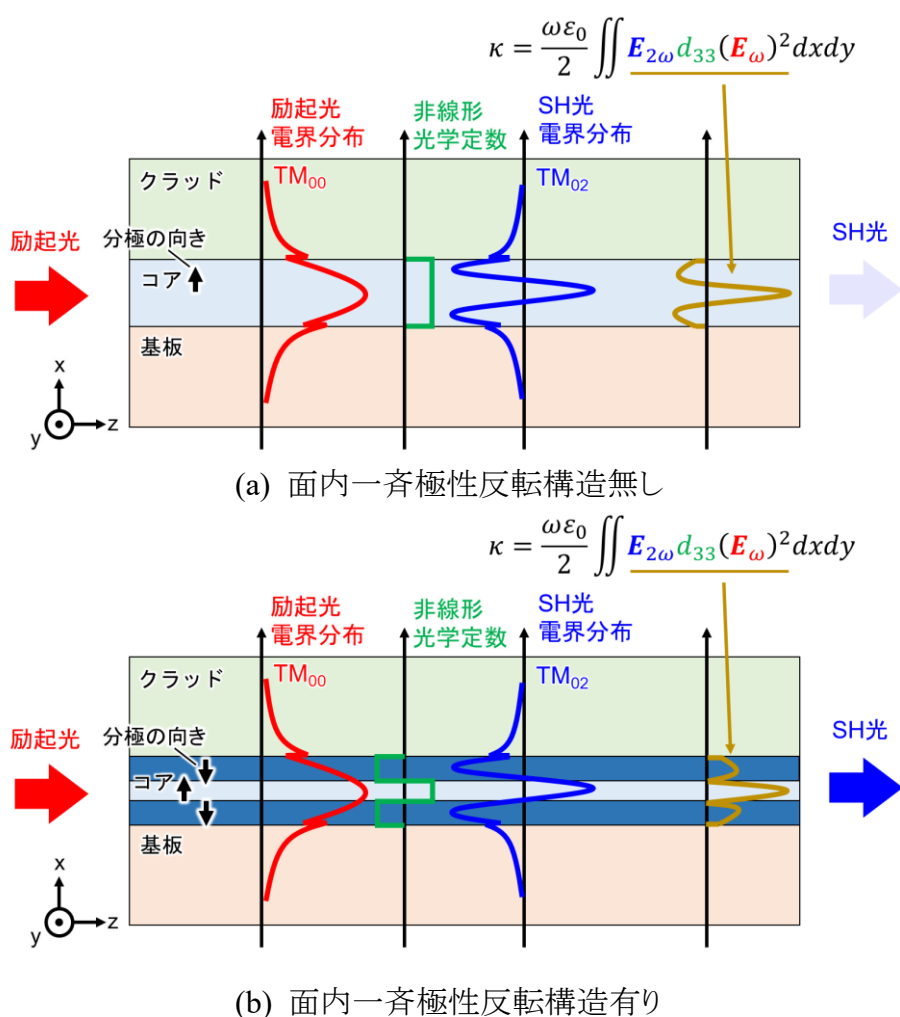


図 1.5 導波路断面図と非線形結合係数の被積分関数

いたデバイスの報告もある<sup>88</sup>。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<sup>89)</sup>。フォトリソグラフィにおける解像度  $R$  は露光波長を  $\lambda$ 、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<sup>90)</sup>。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<sup>90)</sup>。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  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  程度である。実際、数  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  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く、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<sup>89)</sup>。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。

## 2.3 モード結合方程式<sup>1,3</sup>

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  $\omega$  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。 $\beta_m$  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

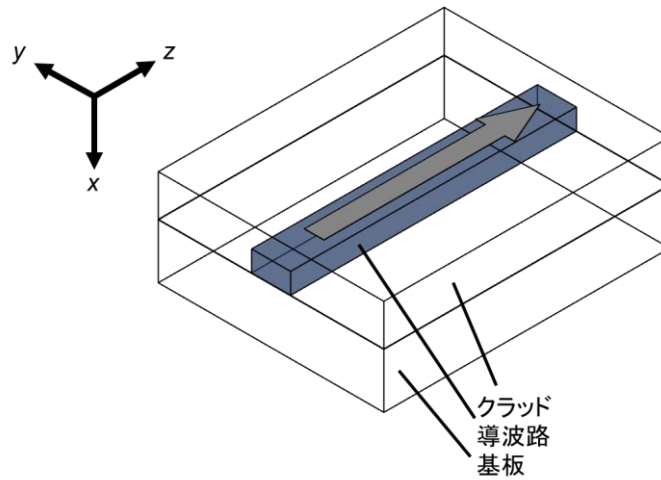


図 2.1 導波路と座標系

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

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  $\omega$  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<sup>1,4</sup>

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  $\Lambda$  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

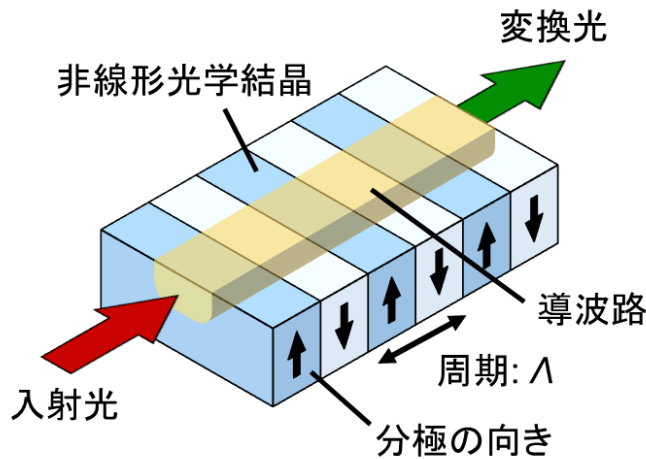


図 2.2 導波路型 QPM デバイスの構造

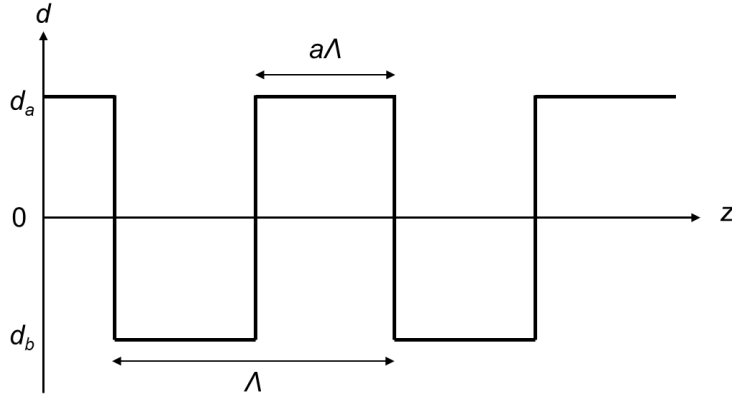


図 2.3 PP 構造中の非線形光学定数の分布

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  $\omega$  の光が感じる実効屈折率を  $N_\omega$ 、波数を  $k_\omega$  とすると、角周波数  $\omega$  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  $\pi$  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  $\pi$  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、 $\lambda_\omega$  は角周波数  $\omega$  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  $\Lambda_{\text{SHG}}$  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。



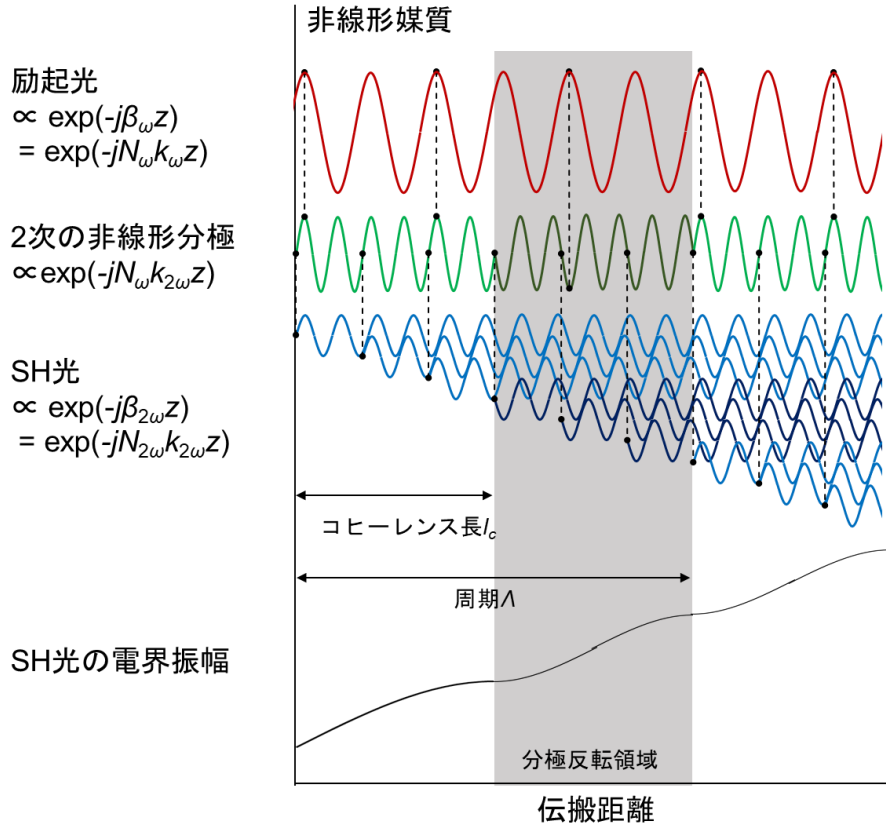


図 2.4 媒質中での電界と非線形分極のふるまい

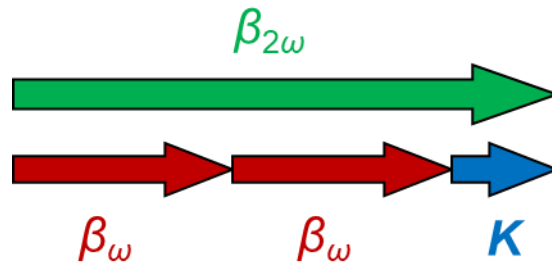


図 2.5 1 次 QPM での位相整合時の SHG の波動ベクトルダイアグラム

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、 $\kappa_{\text{SHG}}$  の上付き文字( $q$ )は省略した。 $\kappa_{\text{SHG}}$  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  $\kappa_{\text{SHG}}$  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  $\eta$  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  $\eta_{\text{norm}}$  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  $\kappa_{\text{SHG}}$  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、 $\text{H}^+$ 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  $\kappa_{\text{SHG}}$  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。

$\kappa_{\text{SHG}}$  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、 $\mu_0, \varepsilon_0$  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、 $d_{\text{eff}}$  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。

$S_{\text{eff}}$  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 ( $\omega_1, \omega_2$ ) 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  $\Lambda_{\text{SFG}}$  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。

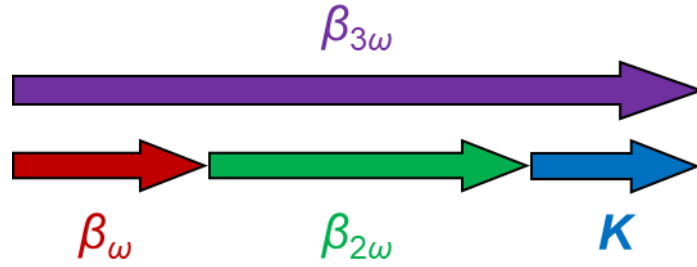


図 2.6 1 次 QPM での位相整合時の SFG の波動ベクトルダイアグラム

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、 $\Delta_{\text{SFG}}$  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  $\omega_1$  の励起光と電界振幅が  $A_{20}$  の角周波数  $\omega_2$  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、 $\kappa_3$ を $\kappa_{\text{SFG}}$ とし、さらに損失は無いとすると、 $\kappa_{\text{SFG}}$ 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 $\omega_2$ 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<sup>4</sup>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 $\omega_1$ と $\omega_2$ の光子1つずつから $\omega_3$ 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 $\omega_2$ の光パワーが全て角周波数 $\omega_3$ の光に移った後、 $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ のDFG

が起こるためである。 $\kappa_{\text{SFG}}\sqrt{(\omega_2/\omega_3)P_{10}}L$ 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、 $\kappa$  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  $S'_{\text{eff}}$  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<sup>6</sup>

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  $\beta_\omega$  で伝搬している角周波数  $\omega$  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、

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



- 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  $\mu\text{m}$  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<sup>+</sup>と酸中の H<sup>+</sup>が交換される。この過程をプロトン交換 (PE) と呼ぶ。Li<sup>+</sup>が H<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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<sup>33</sup>。

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

ここで  $D$  は温度依存性のある H<sup>+</sup>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<sup>+</sup>の拡散係数は Li<sup>+</sup>の濃度が小さい領域では大きく、Li<sup>+</sup>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<sup>34</sup>。このモデルで式(3.6)の拡散方程式を解くと H<sup>+</sup>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<sup>33,35</sup>。このとき、PE 領域の結晶表面からの深さ  $d_{\text{PE}}$  は PE 温度  $T_{\text{PE}}$  と PE 時間  $t_{\text{PE}}$  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<sup>36</sup>。ここで、 $D_{\text{PE}}$  は PE での拡散係数、 $D_{\text{PE}0}$  は PE での拡散定数、 $Q_{\text{PE}}$  は PE での活性化エネルギー、 $k_{\text{B}}$  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  $\text{H}^+$  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  $\text{H}^+$  濃度分布  $C(x)$  は  $\text{H}^+$  が  $d_{\text{PE}}$  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

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

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

となる。ここで、 $A$  は  $\text{MgO:SLT}$  の原子密度である  $h_{\text{PE}}$  は PE により交換された  $\text{Li}^+$  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  $\text{H}^+$  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、

$$d_a = 2\sqrt{D_a t_a} \quad (3.11)$$

$$D_a = D_{a0} \exp\left(-\frac{Q_a}{k_{\text{B}}T_a}\right) \quad (3.12)$$

と書ける。ここで、 $D_a$  はアニールでの拡散係数、 $D_{a0}$  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  $\text{H}^+$  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  $\text{H}^+$  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。 $\text{H}^+$  が取り込まれた領域と元の領域の屈折率差は  $\text{H}^+$  の濃度が低いときは  $\text{H}^+$  の濃度に比例することが知

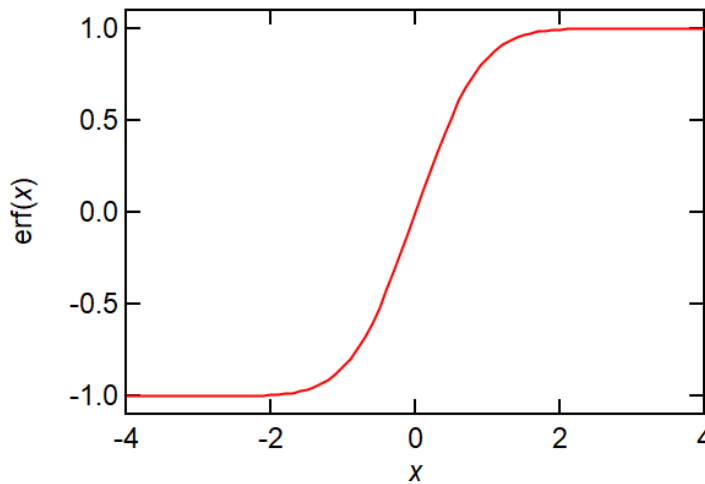


図 3.29 誤差関数

られている<sup>35</sup>。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。

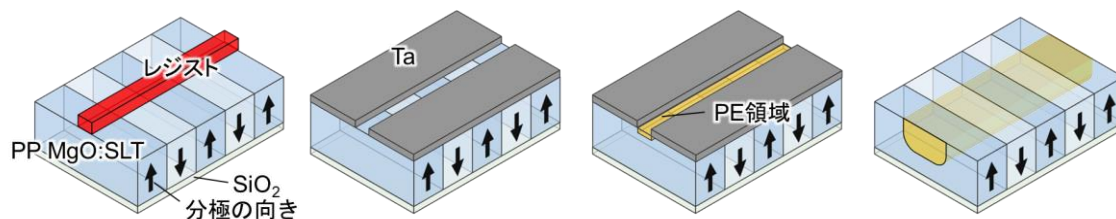
MgO:SLT 上のスラブ APE 導波路において PE 温度を  $230^\circ\text{C}$ 、PE 時間を 20 min、アニール温度を  $400^\circ\text{C}$ 、アニール時間を 242 h とすることで波長 355 nm のレーザ光の横モード  $1/e^2$  深さが  $30\text{ }\mu\text{m}$  の導波路が報告されている<sup>21</sup>。しかし、本章では波長 1030 nm のレーザ光に対するチャンネル導波路の作製を目指しているため PE 条件とアニール条件を最適化しなければならない。PE による屈折率変化は波長が短い光ほど小さくなる<sup>36</sup>。一方、同一の  $\text{H}^+$  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  $\text{H}^+$  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  $\text{H}^+$  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  $\text{H}^+$  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、 $\text{H}^+$  の取り込み量を多くし、 $\text{H}^+$  の拡散量を少なくする必要がある。本章では、PE 温度は  $230^\circ\text{C}$  に固定し PE 時間を長くすることで  $\text{H}^+$  の取り込み量を多くした。また、アニール温度は  $400^\circ\text{C}$  に固定し、アニール時間を短くすることで  $\text{H}^+$  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、 $140^\circ\text{C}$  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

### 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  $0.5^\circ\text{C}$  ずつ上げていくと、 $46.0^\circ\text{C}$  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  $1030.4\text{ nm}$  から波長  $515.2\text{ nm}$  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  $55.0^\circ\text{C}$  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  $46.0^\circ\text{C}$  のピークの半値全幅は  $2.6^\circ\text{C}$  であった。半値全幅が 3.3.3 項で求めた  $1.8^\circ\text{C}$  より

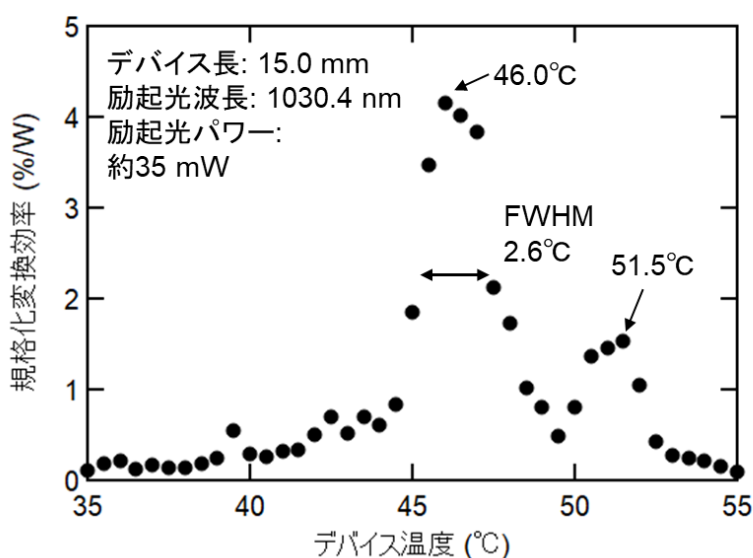


図 3.40 規格化変換効率のデバイス温度依存性

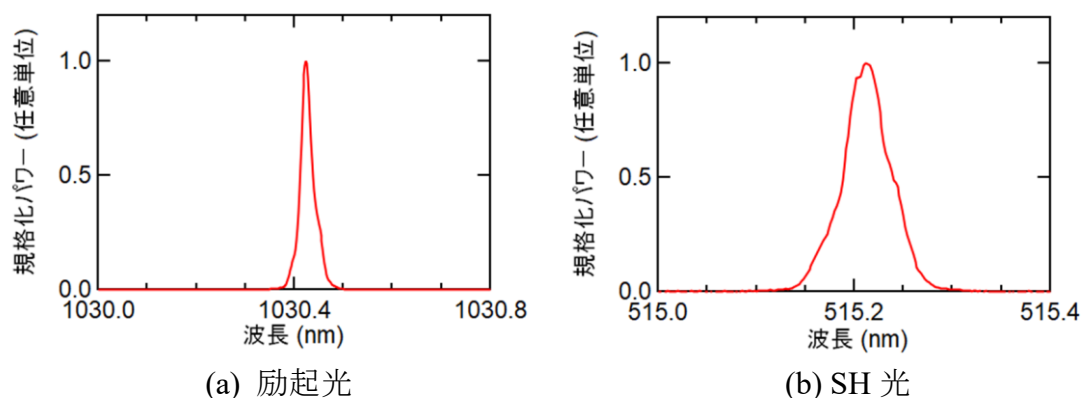


図 3.41 波長スペクトル

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  $51.5^\circ\text{C}$  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  $46.0^\circ\text{C}$  と  $51.5^\circ\text{C}$  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  $46.0^\circ\text{C}$  のときは  $\text{TM}_{00}$  モードが、デバイス温度が  $51.5^\circ\text{C}$  のときは  $\text{TM}_{01}$  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  $46.0^\circ\text{C}$  のとき、励起光  $\text{TM}_{00}$  モードと SH 光  $\text{TM}_{00}$  モードが位相整合している。 $\text{MgO:SLT}$  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、 $\text{MgO:SLT}$  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、 $\text{TM}_{01}$  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  $46.0^\circ\text{C}$  より高いときに SH 光  $\text{TM}_{01}$  モードと励起光  $\text{TM}_{00}$  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  $\text{TM}_{00}$  モードと SH 光  $\text{TM}_{01}$  モードの非線形結合係数  $\kappa$  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  $\kappa$  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  $\text{H}^+$ 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

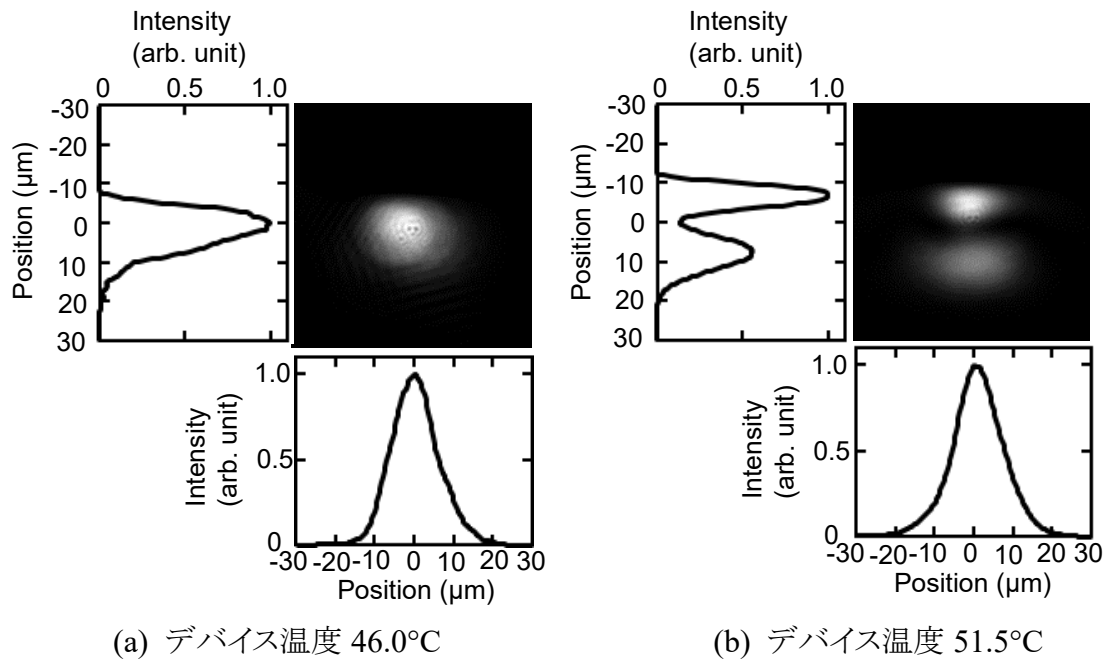


図 3.42 SH 光横モード

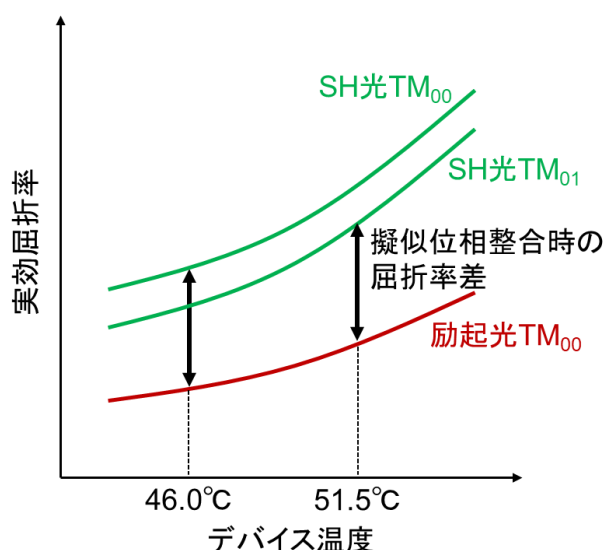


図 3.43 実効屈折率のデバイス温度依存性の概念図

度を下げてしまうことや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  $46.0^\circ\text{C}$  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  $\text{MgO:CLN}$  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が高くなるという報告がある<sup>37,39</sup>。 $\text{MgO:SLT}$  における APE 導波路形成によるフォトリフラクティブ損傷耐性の変化は報告されていないが、CLN や  $\text{MgO:CLN}$  と同様に損傷耐性が高くなると仮定すると、波長  $532\ \text{nm}$  におけるフォトリフ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、 $\text{MgO:SLT}$  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  $\text{MgO:CLN}$  などと比べて少ないと考えられる。また、 $\text{MgO:SLT}$  は熱伝導率が  $\text{MgO:CLN}$  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  $46.0^\circ\text{C}$  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



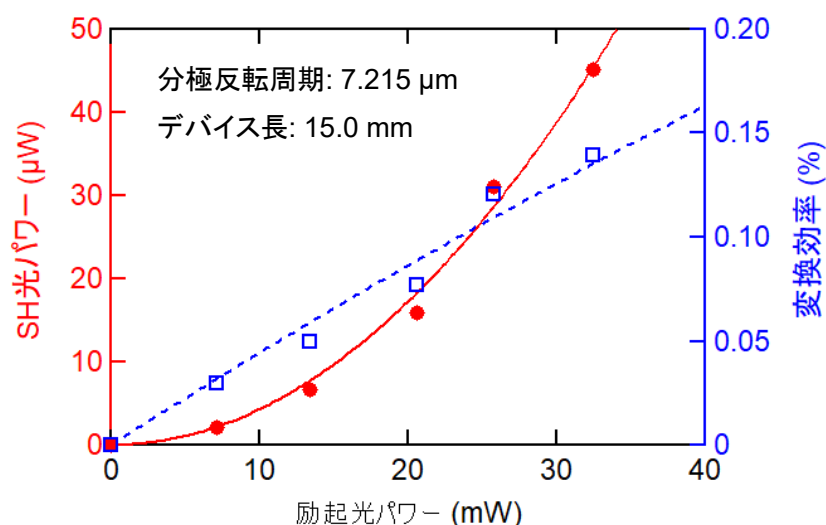


図 3.44 SH 光パワーと変換効率の励起光パワー依存性

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効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  $\kappa$  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  $\kappa$  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  $\mu\text{m}$  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 SiO<sub>2</sub> 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<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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  $\mu\text{m}$  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。

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 TM<sub>00</sub> モード、51.5°C のときに TM<sub>01</sub> モードの SH 光が発生していた。TM<sub>01</sub> 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  $\mu\text{m}$  程度まで拡大することに成功した。



## 第4章 定比組成 $\text{LiTaO}_3$ 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  $\text{MgO:SLT}$  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  $\mu\text{m}$  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<sup>1-3</sup>。RPE 導波路はプロトン交換とアニールを行った結晶を  $\text{Li}^+$  が含まれる高温溶液に漬けることで APE 結晶中の  $\text{H}^+$  と溶液中の  $\text{Li}^+$  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<sup>1</sup>。しかし、RPE 時の  $\text{Li}^+$  の拡散定数はアニールによる  $\text{H}^+$  の拡散定数の 1/5 程度の 0.257

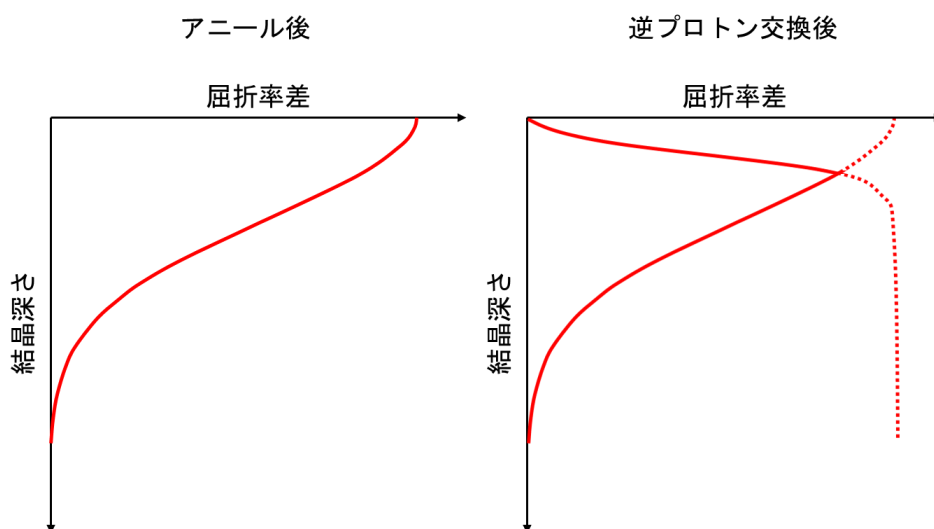


図 4.1 逆プロトン交換導波路の屈性率分布

$\mu\text{m}/\text{h}^2$  と報告されている<sup>2</sup>。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  $\text{H}^+$  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<sup>4</sup>。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。

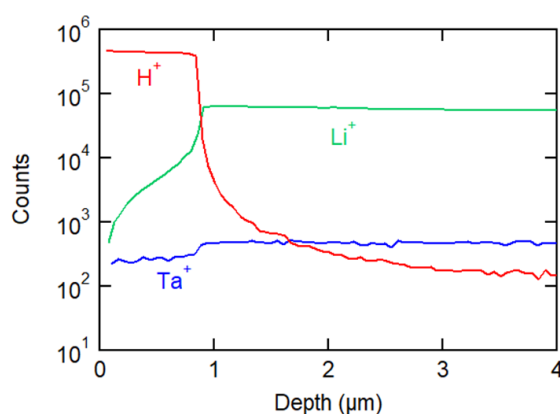
## 4.2 プロトン拡散係数

埋込 APE 導波路作製において  $\text{H}^+$  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  $\text{H}^+$  の結晶中での濃度を調べ、拡散係数を見積もった。

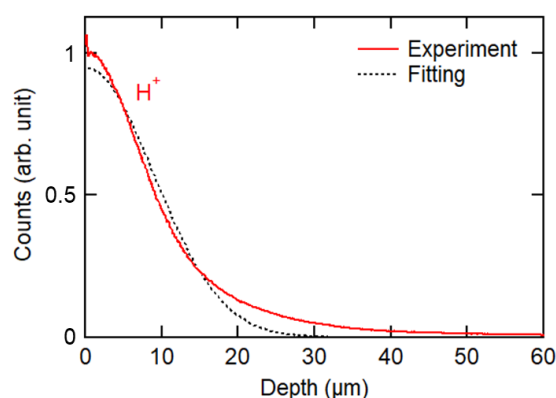
式(3.7),(3.11)中の PE とアニールにおける拡散係数  $D_{\text{PE}}$ 、 $D_{\text{a}}$  を求めるために+Z-MgO:SLT を3枚準備した。これらのサンプルをトリクロロエタンとアセトンを用いてそれぞれ 15 min 超音波洗浄した後、エタノール、超純水の順に置換し、窒素ブローした。230°C の高温ピロリン酸中で、3.5.2 項と同様に PE を行った。まず、急激な温度変化によりサンプルが割れたり焦電効果により意図しない分極反転が起こったりすることを防ぐために、MgO:SLT はサンプルホルダにセットした後、230°C のピロリン酸の蒸気で 10 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  $\text{O}_2$  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  $\text{O}_2$  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  $\text{H}^+$  分布はほとんどステップ型であり、その深さ  $d_{\text{PE}}$  は 0.85  $\mu\text{m}$  であった。PE 直後の  $\text{H}^+$  の SIMS データは一つしかない

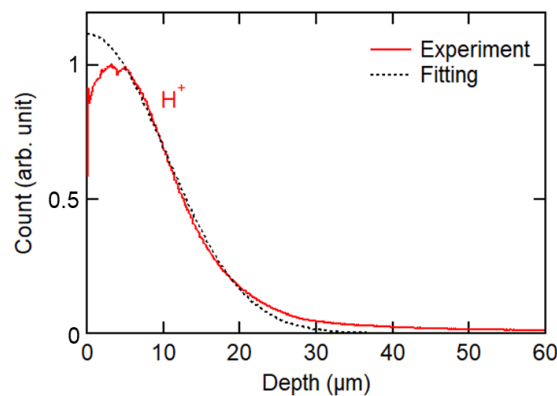
が、このデータから  $230^\circ\text{C}$  のピロリン酸による PE での拡散係数  $D_{\text{PE}}$  は  $0.045 \mu\text{m}^2/\text{h}$  と見積もられた。同様の PE 条件での +Z-CLT の拡散係数は  $0.08 \mu\text{m}^2/\text{h}$  との報告がある<sup>5</sup>。MgO:SLT の拡散係数は CLT のそれよりも 0.56 倍程度の小さい値となった。CLN と MgO:CLN の拡散係数はそれぞれ  $0.33 \mu\text{m}^2/\text{h}$ 、 $0.2 \mu\text{m}^2/\text{h}$  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<sup>5</sup>。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  $\text{H}^+$  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  $\text{H}^+$  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  $\text{H}^+$  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  $\text{H}^+$  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

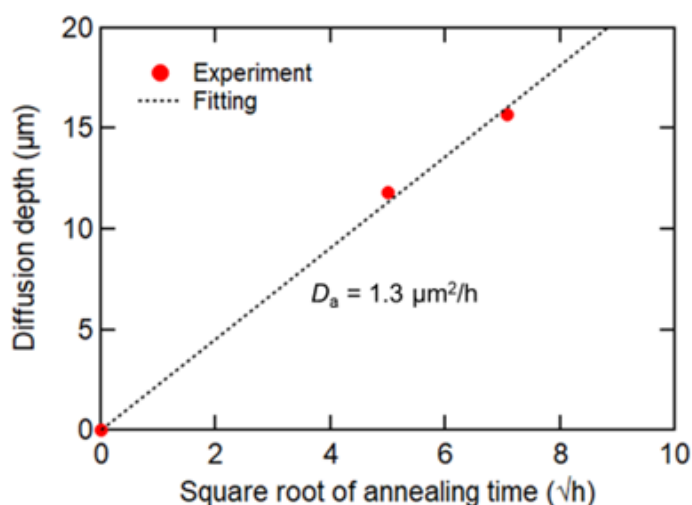


図 4.3 拡散深さの拡散時間依存性

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、 $400^\circ\text{C}$  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<sup>6</sup>。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  $D_{\text{PE}}$ 、 $D_a$  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  $230^\circ\text{C}$  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、 $400^\circ\text{C}$  の  $\text{O}_2$  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  $D_{\text{PE}}$  と PE 時間から式(3.7)を用いて計算された深さ  $d_{\text{PE}}$  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<sup>7</sup>。 $\text{MgO}:\text{SLT}$  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

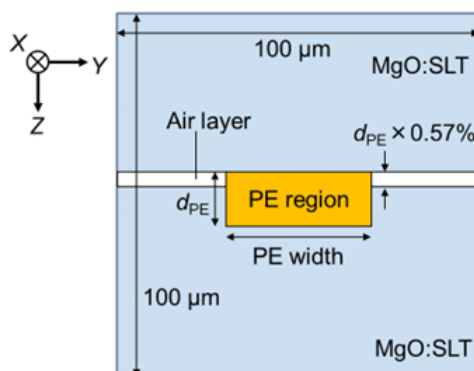


図 4.4 PE・表面活性化接合後の導波路断面のモデル

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<sup>7</sup>。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<sup>+</sup>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<sup>8</sup>。また、アニールにより H<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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<sup>9</sup>、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<sup>+</sup>濃度分布を計算した。次に計算した H<sup>+</sup>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  $\Delta n_0$  は波長 1030 nm において 0.012 と仮定した<sup>8</sup>。屈折率増加  $\Delta n$  は H<sup>+</sup>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<sup>10</sup>。ここで、 $C$  はアニール後の H<sup>+</sup>濃度、 $C_0$  は PE 直後の PE 領域での H<sup>+</sup>濃度である。図 4.5 に PE 幅 50  $\mu\text{m}$ 、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  $\Delta n$  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

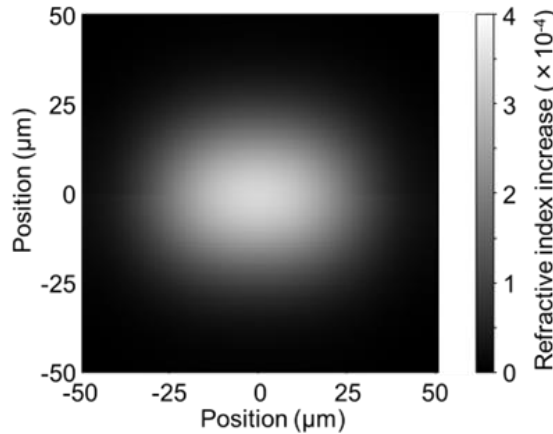
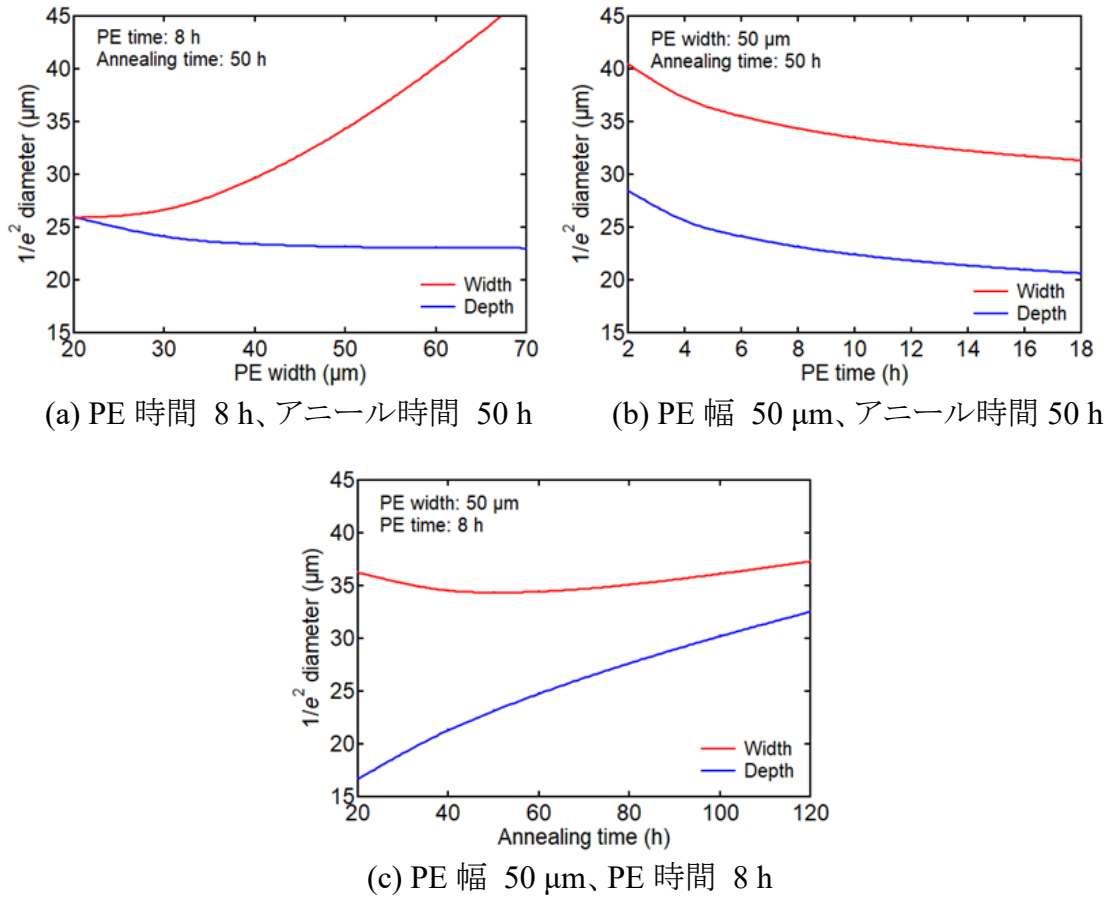


図 4.5 屈折率増加  $\Delta n$  の分布

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  $\text{H}^+$  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  $\mu\text{m}$ 、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  $\text{H}^+$  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  $\mu\text{m}$ 、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  $\text{H}^+$  の拡散距離が長くなることに加え、屈折率増加  $\Delta n$  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  $\mu\text{m}$ 、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  $\mu\text{m}$ 、深さ 30  $\mu\text{m}$  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 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  $\Delta n_0$  は 0.017 と仮定した。波長 532 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 MW/cm<sup>2</sup> から 3.4 W まで導波できる見込みである。

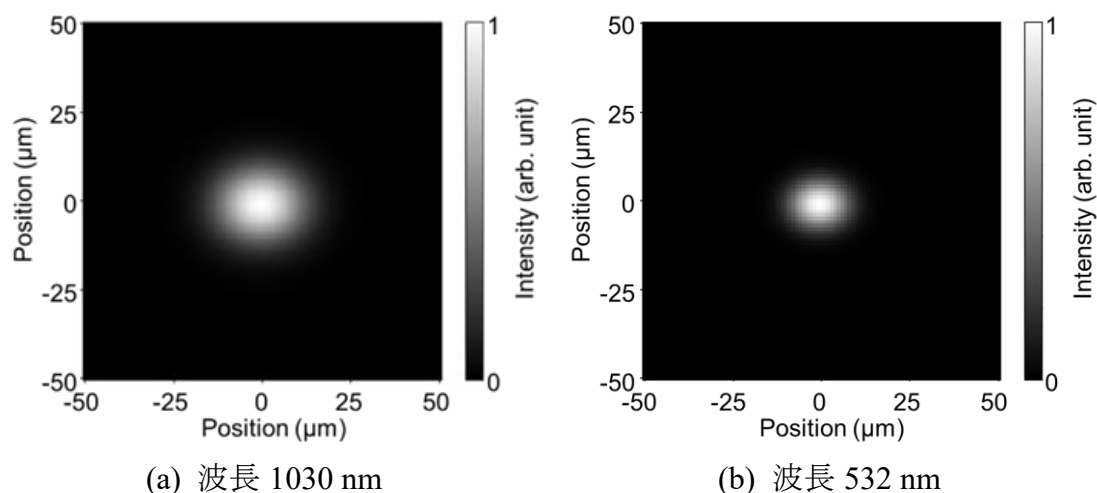


図 4.7 計算された横モード

### 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。