

■9 群 (電子材料・デバイス) - 6 編 (受動・機能デバイス)

8 章 非線形光学デバイス

【本章の構成】

本章では以下について解説する.

- 8-1 光非線形効果
- 8-2 非線形光学材料
- 8-3 導波路型非線形光学デバイス

■9 群-6 編-8 章

8-1 光非線形効果

■9群-6編-8章

8-2 非線形光学材料

(執筆: 吉村政志, 森 勇介) [2011年12月受領]

非対称中心の構造を有する光学結晶にレーザーを入射し, その2倍周波数の光を得る第2高調波発生 (SHG: Second-Harmonic Generation) はよく知られた非線形光学効果で, 最初の実験はレーザー誕生の翌年1961年に水晶を用いて行われている¹⁾。以来, レーザーとほぼ同じ歳月にわたって新材料の開発が進められ, 数多くの非線形光学結晶, 波長変換デバイスが実現している。高密度光ディスクへの応用が可能な青, 緑色を発生するSHG用非線形光学結晶として, 非線形光学定数の大きい KTiOPO_4 (KTP), LiNbO_3 (LN) などの強誘電体無機材料, ニトロアニリンやカルコンの誘導体などをはじめ多数の有機材料が研究されてきた。80年代後半からホウ酸系非線形光学結晶が登場し始め, 近赤外の基本波レーザー光源とSHG, 和周波発生 (SFG: Sum-Frequency Generation) 用の無機結晶を複数組み合わせ, 集光性・加工性に優れた短波長紫外光を得る研究が盛んになった。現在, 得られる波長は真空紫外域まで短波長化が進んでいる。一方, 90年代に InGaN 系青色半導体レーザーが実現したことも影響し, 有機結晶の波長変換は差周波発生 (DFG: Difference-Frequency Generation) などを使った中赤外, テラヘルツ (THz) 波などの長波長側へと研究対象が移っている。

非線形光学結晶でこれらの波長変換を行う場合, 多くは結晶の持つ複屈折を利用した複屈折位相整合 (BPM: Birefringence Phase-Matching) が採用されている。位相整合角により結晶方位, 偏光方位が規定されることから, その入射条件での非線形光学定数 (実効非線形光学定数 d_{eff}) が波長変換の重要なファクタとなる。周期的な分極反転領域が形成できる強誘電体結晶では, 擬位相整合 (QPM: Quasi-Phase Matching) が採用される場合がある。大きな非線形光学定数の成分が利用できる長所があり, 特に上述のLNはQPM素子として近紫外～中赤外・テラヘルツ帯までの幅広い波長域の波長変換に利用されている。本節では非線形光学結晶を短波長側と長波長側で材料を大別し, 最新の研究動向と併せて解説する。

8-2-1 短波長波長変換²⁾

近赤外のNd:YAGレーザー (波長1064 nm) などのSHGは, 紫外光発生の前段の波長変換として, また開発が遅れている緑色半導体レーザーに代わる光源として広く研究されている。結晶としてはBPM方式のKTPや LiB_3O_5 (LBO), QPM方式のLNなどが用いられる。紫外光の発生についても, Nd系固体レーザーを基準にした3倍波 (355 nm), 4倍波 (266 nm), 5倍波 (213 nm) などが代表的な波長となっている。また, ArFエキシマレーザーと同一波長の193 nmの光源も波長変換方式で実現している。4倍波は基本波からSHG過程を2回繰り返して得られるが, その他の波長はSFGにより発生させるのが一般的である。SFGは入射光の波長の組合せによっては, SHGでの最短波長よりも短い光を出すことができる。

紫外光を発生する材料には, 吸収端波長が短く, 複屈折と非線形光学定数が大きいことが求められるため, 現在ではホウ素と酸素のネットワーク構造を基本骨格に持つホウ酸系材料が主流となっている。ホウ素と酸素の結合が強いため吸収端が短波長となりやすいことに加え, その基本構造 (BO_3 , BO_4 など) が非対称であるため強い非線形性や複屈折を示す利点がある。

3倍波素子にはLBO, 4・5倍波素子や193 nm光の発生には $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ (BBO), $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$

(CLBO)などが用いられている。フッ素を含む $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ (KBBF) 系結晶は、6倍波 (177 nm)、最近では7倍波 (153 nm) の発生が報告されているが、結晶材料としてはまだ研究開発の段階にある。

一方、リン酸化合物の KH_2PO_4 (KDP) はホウ酸系結晶に比べて非線形光学定数が小さいが、結晶の大型化が可能なことから、レーザー核融合用の2・3倍波素子 (40 cm×40 cm 断面) として研究が続けられている。

BPM方式の主な非線形光学結晶に関して、SHG (主にタイプ1) 波長とそのときの d_{eff} 値との関係を図2・1にまとめた。紙面の都合上、結晶名は略称を使用した。計算にはAS-Photonics社のDr. Arlee Smithが開発したSNLOソフトを用い、結晶温度は300 Kとした³⁾。 d_{eff} 値は1 pm/V以下のものが多く、最短波長はYAG-4HGの266 nmを前後するものが半数ほどあるのが分かる。紫外光発生用結晶の材料開発では、大きな d_{eff} 値で266 nm光発生が実現できるかどうか1つの指標になっている。実際に際しては、光学損失、レーザー損傷耐性や位相整合の許容幅、機械的・化学的な安定性なども考慮され、必ずしも d_{eff} 値だけでは決まらないのが現状である。 d_{eff} 値の小さいLBOが532 nm光の発生に広く用いられているのはその例である。

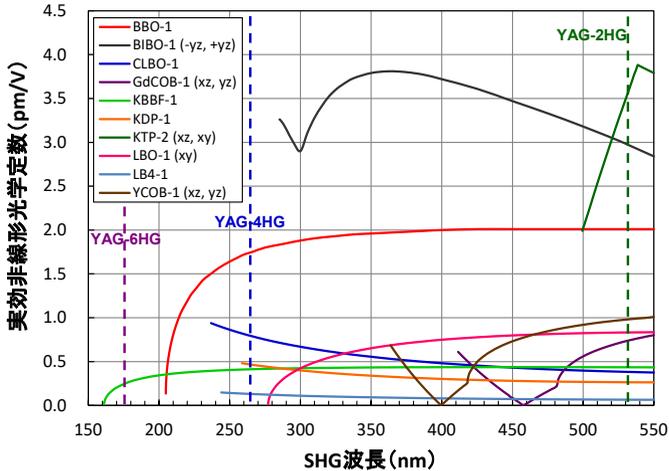


図2・1 BPMで用いられる主な非線形光学結晶のSHG波長と d_{eff} 値の関係

8-2-2 長波長波長変換⁴⁾

近年、非線形光学効果の光整流 (Optical Rectification : OR) あるいはDFGの2つの方式を利用したTHz波の発生が盛んに行われている。前者は超短パルスレーザーを結晶に入射し、入射光の群速度とTHz波の位相速度が速度整合した場合、広帯域THz波を発生できるのが特徴である。後者は波長の近い2つの光を結晶に入射して狭帯域THz波を発生させる方法で、片方のレーザー波長をチューニングして広帯域スペクトルが得られる。何れの方式も、非線形光学定数の大きく、THz帯の吸収が少ない結晶が好ましい。

(1) 無機結晶

閃亜鉛鉱型あるいはウルツ鉱型構造を持つII-VI族 (ZnTe など), III-V族 (GaP など) の化合物半導体結晶, カルコパイライト型構造の ZnGeP₂, Defect-Chalcopyrite 型の GaSe などが THz 波発生素子として研究されている。ZnTe は非線形光学定数が大きく, Ti:Sapphire レーザー光と THz 波が速度整合することから, OR 方式の発生が多くの機関で研究されている。GaP は Yb 系レーザー光と THz 波が速度整合するため, 同じくよく研究されている材料である。CdTe は GaP と同様に 1 μm 光が速度整合し, 非線形光学定数が大きいことから, Yb 系レーザーの励起に適した結晶である。これら各結晶の励起光波長に対する速度整合については, 文献 2) を参考いただきたい。一方, イルメナイト型構造の酸化物結晶 LN は, 2002 年に入射するパルスの波束面を傾斜し, チェレンコフ放射の THz 波と速度整合させる新しいパルス面傾斜法が提案された¹⁴⁾。2007 年には Ti:Sapphir レーザーからパルスエネルギー10 uJ, パルス繰り返し周波数 10 Hz の THz 波発生が報告されている。

DFG 方式の THz 波発生の研究は, バルク半導体結晶 GaP, GaSe, 酸化物結晶 LN を用いたものが多い。LN は THz 帯で大きな吸収係数を持つため, DFG を出射面付近で行う面放射方式が採用されている。バルク結晶のノンコリニア位相整合によって 0.7~2.4 THz の発生が報告されていたが, 後にチェレンコフ放射を用いた THz 波光源が開発され, 現在は 0.1~7.2 THz まで THz 波が飛躍的に広帯域化している。一方, 化合物半導体の QPM-DFG 素子を用いた研究も盛んになっている。ウエハ接合技術で作製した GaP や, エピタキシャル技術によって作製した GaAs の素子から THz 波の発生などが報告されている。

(2) 有機結晶

π共役系有機結晶は大きな非線形感受率を有し, THz 波発生素子として優れた特性を示す材料が多い。4-*N,N*-dimethylamino-4-*N*-methyl-4-stilbazolium tosylate (DAST) は巨大な超分子分極率のスチルバゾリウムカチオンを有し, OR 方式と DFG 方式で THz 波の発生に成功して以来, 世界中で研究され, 製品化もしている代表的な有機結晶である。非線形光学定数が大きく, As-Grown の平板面(011)面への垂直入射に対し, 1.5 μm 帯の光が THz 波と速度整合, 位相整合を満足する。最近の研究では, 超広帯域の 1.5~37 THz を高速可変できる DFG 方式の THz 光源が開発されている。中性分子の有機結晶として, 2-methyl-4-nitroaniline (MNA) の置換体 *N*-benzyl-MNA (BNA) などや, OHI などから THz 波の発生が報告されている。BNA は非線形光学定数が大きく, OR, DFG 方式を用いた THz 波の発生が可能である。最近では, 入射光を 780~950 nm で可変し, DFG 方式で 0.1~20 THz を発生している。OHI は 1970 年に報告されていた有機分子であるが, 最近になって THz 波発生特性が優れていることが明らかになった。非線形光学定数が大きく, 入射光 1.2~1.46 μm に対して速度整合条件下で OR 方式による THz 波発生 (0.3~2.5 THz, 1.3 THz がピーク周波数) が確認されている。

■参考文献

- 1) P.A. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters, and G. Weinreich: "Generation of optical harmonics," Phys. Rev. Lett., vol.7, no.4, pp.118-119, Aug. 1961.
- 2) 森 勇介, 吉村政志: "非線形光学結晶育成技術の現状と動向," レーザー研究, vol.38, no.2, pp.84-88, Feb. 2010.
- 3) <http://www.as-photonics.com/SNLO/>
- 4) 吉村政志: "非線形光学結晶," テラヘルツ波新産業, 第3章6節, pp.51-56, CMC 出版, 2011.

■9 群-6 編-8 章

8-3 導波路型非線形光学デバイス

(執筆者： 栖原敏明) [2011 年 10 月 受領]

非線形光学 (NLO) 効果は光強度密度に依存する現象であるので、非線形光学材料内に光導波路を形成して光波を閉じ込め伝搬させることにより非線形相互作用を強めることができる。また、導波路特性を活用すれば種々の位相整合法を利用でき、高効率、高機能、小型安定で実用的な種々の非線形光学デバイスを実現できる。2 次 NLO デバイスは異なる波長の光波間の位相整合を必要とするが、導波型では結晶角度調整による整合は適用できない。チェレンコフ放射型、複屈折温調型、モード分散型の位相整合などが検討されたが、現在では代表的な強誘電体 NLO 結晶を用いたデバイスに対しては、多くの利点がある周期構造による疑似位相整合 (Quasi-Phase Matching : QPM) が主流となっている。本節では導波路型疑似位相整合非線形光学デバイスについて概説する。

8-3-1 導波路型疑似位相整合非線形光学デバイスの基本機能と特徴¹⁾

図 3・1 に導波型 QPM-NLO デバイスの基本構造を示す。第 2 高調波発生 (SHG)、和周波発生 (SFG)、差周波発生 (DFG)、パラメトリック光増幅/発振 (OPA/OPO) などの 2 次 NLO 作用を高効率に行うデバイスを実現するには、位相整合をとる必要がある。疑似位相整合 QPM は伝搬軸に沿って NLO 係数の符号を周期 Λ で反転した構造を設け、NLO 分極の波動ベクトルと発生しようとする波の波動ベクトル β の違いを周期構造の波数ベクトル K ($|K|=K=2\pi/\Lambda$) で補償することで位相整合をとる。相互作用は非線形モード結合方程式で解析できる。QPM では周期さえ適切に選べば結晶の透明域内の任意の波長組合せに対して整合できるので、単一材料で広い波長範囲のデバイスを実現でき、NLO テンソル最大成分を利用できるので高効率化に有利で、導波路に光波を閉じ込めてパワー密度を高めることにより著しい高効率化と小型化が図れる。

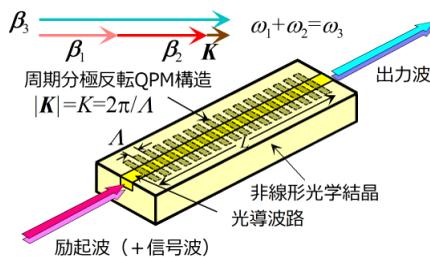


図 3・1 疑似位相整合非線形光学デバイスの基本形

周波数 ω の基本波を 2ω の高調波に変換する SHG では、QPM 条件下で出力パワー $P^{2\omega}$ は入力基本波パワー P_0 増大と素子長 L 増大に対して単調増大し、低出力領域では近似的に $P_0^2 L^2$ と結合係数の自乗 κ^2 の積で $P^{2\omega} = P_0^2 \kappa_{\text{SHG}}^2 L^2$ と表される。周波数 ω_1 の信号波と ω_2 の強い励起波を入力して $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ の波に変換する SFG では、QPM 条件下で、出力パワー P^{ω_3} は L が小さな範囲では入力波パワーの積 $P^{\omega_1} P^{\omega_2}$ と $\kappa_{\text{SFG}}^2 L^2$ に近似的に比例して増大する。しかし、SFG に

伴って ω_1 の波は減衰し、 κL または $P^{01}P^{02}$ が大きいときは伝播途中でSFGからDFGに転じ、入力と位相反転した ω_1 の波が生じる。周波数 ω_1 の信号波と ω_3 の強い励起波を入力して $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ の波に変換するOPA/DFGでは、同法則に従って差周波(アイドラ波)が発生(DFG)するとともに信号波が増幅(OPA)される。QPM条件での変換効率率は近似的に L^2 と入力光パワーに比例し、波長帯域は L に反比例する。

8-3-2 導波路形成技術と疑似位相整合構造形成技術^{1),2)}

光波長変換のため開発された多数のNLO結晶のうち、導波型デバイスへの応用がなされている材料は導波路形成技術が開発されているLiNbO₃、LiTaO₃、KTiOPO₄、KNbO₃など少数の強誘電体結晶に限られている。代表的なLiNbO₃とLiTaO₃では短波長励起光による光損傷を回避するためMgやZnをドーブした結晶が用いられ、一致組成結晶に加えて、反転抗電界が低い利点を持つ定比組成結晶も開発され市販されるようになり、各種のドーブ/組成のLiNbO₃、LiTaO₃が利用されている。これらのNLO結晶に導波路を形成する標準的技術としてTi拡散法やプロトン交換法が用いられている。最近では強閉じ込めや常光/異常光導波を可能にし、光損傷耐性を高めるため、埋込み導波路、結晶直接接合導波路、リッジ導波路、細線導波路などの新しい導波路形成技術の開発がなされている。

強誘電体NLO結晶ではQPM構造は自発分極の周期的反転で実現できる。周期分極反転構造形成はQPM-NLOデバイス作製のキー技術である。多くの研究がなされた後、周期電極を用いたパルス電圧印加法の有利性が示され、分極反転特性の理解も進み、先ず一致組成のLiNbO₃やLiTaO₃において各種金属膜電極や液体電極などの周期電極を用いた分極反転構造形成技術が確立された。短波長光発生デバイス用の短周期(2.0~7.0 μm)のQPM構造作製では、金属薄膜の梯子型電極や波板状電極を用いることで良好な結果が得られる。光通信波長用デバイスでは周期は10 μm以上と長いので、簡便な液体電極の利用で良好な結果が得られる。図3・2(a)に作製装置の例を示す。z-cut LiNbO₃基板(厚さ0.5 mm)の+z面にレジストグレーティングを設け、濾紙含浸LiCl水溶液を電極として電圧パルス(～反転抗電界21 kV/mm×結晶厚さ0.5 mm = 10.5 kV)を印加する。必要電荷量(=自発分極電荷密度70 μC/cm²×2×反転面積)を与えたとき印加を停止するようにパルス幅を自動制御する。図3・2(b)に分極反転構造の例を示す。分極反転特性は結晶のドーピングや組成により著しく異なるため継続して研究の対象になってきた。MgO:LiNbO₃に対しては加熱電圧印加法³⁾やUV照射電圧印加法⁴⁾が開発されている。

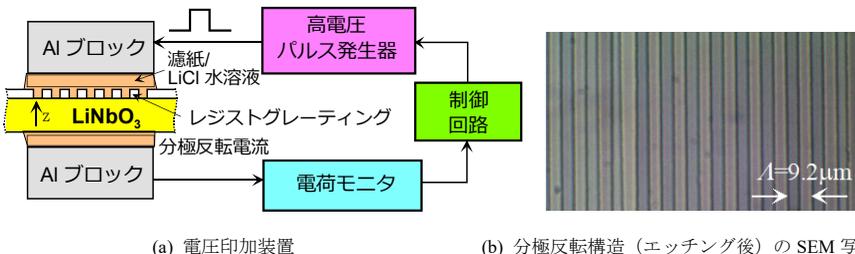


図3・2 電圧パルス印加法による周期的分極反転疑似位相整合構造形成

分極反転 QPM 導波路を用いて、2 次高調波発生、和・差周波数発生、パラメトリック発振/増幅など殆んどすべての 2 次 NLO デバイスが開発されてきた。励起光源として半導体レーザー、半導体レーザー励起固体レーザーやファイバレーザーを含めて多様な種類のレーザーが利用されている。レーザー共振器内に QPM 結晶を配置する共振器内波長変換方式も用いられる。高効率を得られるチャンネル導波路だけでなく高出力化に有利なプレーナ導波路を用いたデバイスも開発されている。

8-3-3 導波路型疑似位相整合非線形光学デバイスの応用^{1),2)}

導波型 NLO デバイス研究は当初、高密度光メモリ用小型短波長光源実現を目的として推進された。この目的で確立された青色 SHG レーザーの技術は、レーザーディスプレイ³⁾に必要な小型緑色 SHG レーザーに活用されて高性能化が続いている。10 W 以上の出力のデバイスも実現されレーザーテレビへの応用も実証された。NLO 結晶の進化に伴って出力光波長域は紫外域や中赤外域、テラヘルツ域にも拡大している。これらの波長変換レーザーは、各種のセンシング、計測、加工、パターン形成のための光源として、多くの応用がある。光通信分野では、波長多重 (WDM) フォトニックネットワークにおいて信号衝突回避とルーティング効率化に要求される波長変換デバイスの有力方式として、導波型 QPM-DFG デバイスが精力的に研究され⁶⁾、多チャンネル一括波長変換デバイスや利得を持つ波長変換デバイスも実現されている。ファイバ分散補償への応用もある。QPM 導波路を用いた光サンプリングデバイスや光ゲートスイッチなど超高速信号処理デバイスも実証されている。将来技術として研究が活発化している量子情報通信 (QIT) 分野では、単一光子レベルの光子操作や量子状態変換の機能を果たすデバイスが要求されるが、これらの機能の多くは非線形光学で実現できる。単一光子検出用光子波長変換や、スクイズド光、単一光子、相関光子対、量子エンタングル光子対などを発生する導波型 QPM-NLO デバイスが考案・作製され、量子光学基礎実験や QIT 開発研究に利用されている⁷⁾。

■参考文献

- 1) T. Suhara and M. Fujimura: "Waveguide Nonlinear-Optic Devices," Springer, Berlin, 2003.
- 2) 宮澤信太郎, 栗村 直(監修): "分極反転デバイスの基礎と応用," オプトロニクス社, 2005.
- 3) N. Horikawa, T. Tsubouchi, M. Fujimura, and T. Suhara: "Formation of domain-inverted grating in MgO:LiNbO₃ by voltage application with insulation layer cladding," Jpn. J. Appl. Phys., vol.46, no.8A, pp.5178-5180, 2007.
- 4) M. Fujimura, E. Kitado, T. Inoue, and T. Suhara: "MgO:LiNbO₃ waveguide quasi-phase-matched second-harmonic generation devices fabricated by 2-step voltage application under UV light," IEEE Photon. Tech., Lett., vol.23, no.18, pp.1313-1315, 2011.
- 5) 黒田和男, 山本和久, 栗村 直(編): "レーザーディスプレイ," オプトロニクス社, 2010.
- 6) 柘原敏明: "疑似位相整合導波路を用いた非線形光学波長変換・信号処理デバイス," 応用物理, vol.72, no.11, pp.1381-1386, 2003.
- 7) T.Suhara: "Generation of quantum-entangled twin photons by waveguide nonlinear optic devices," Laser & Photon. Rev., vol.3, pp.370-393, 2009.