

研究

分極反転構造を持つ LiTaO₃ 光導波路 によるブルー光発生

山本 和久*・水内 公典*・竹重 邦彦**
佐々井洋一**・谷内 哲夫*

松下電器産業(株) *部品デバイス研究センター光デバイス研究所,
**半導体研究センター 〒570 守口市八雲中町 3-15

(1991年8月23日受付, 1991年9月25日受理)

Blue Light Generation from Periodically Domain-Inverted LiTaO₃ Waveguide

Kazuhisa YAMAMOTO,* Kiminori MIZUCHI,* Kunihiko TAKESHIGE,**
Yoichi SASAI** and Tetsuo TANIUCHI*

* Optical Devices Research Laboratory, Components and Devices Research Center,
** Semiconductor Research Center, Matsushita Electric Industrial Co. Ltd.,
3-15, Yagumonakamachi, Moriguchi 570

(Received August 23, 1991; Accepted September 25, 1991)

We report quasi-phase matched second harmonic generation from a LiTaO₃ waveguide with a periodically domain-inverted structure, in comparison with a conventional LiNbO₃ waveguide. Using pyrophosphoric proton-exchange, a deep domain-inverted region have been formed in a low-loss LiTaO₃ waveguide. As a result, 2.4 mW of harmonic blue light has been generated without optical damage. The conversion efficiency is 24%/W.

1. はじめに

コンパクトなブルーレーザー光源は多くの応用が期待され、特に光ディスク、レーザープリンタ、リソグラフィー等の分野で有望である。いまのところ半導体レーザーの直接発振は 630 nm の赤外が発振できたところであり、現状の AlGaAs ではグリーン、ブルー領域の発振は困難である。

赤外半導体レーザーの SHG (second-harmonic generation) はコンパクトなブルー光源を実現する有効な手段である。中でも quasi-phase-matched (QPM)-SHG¹⁾ は周期を変えるだけで、任意の波長に対する波長変換が可能となること、および複屈折を利用した場合には使えない非線形光学定数 d_{22} , d_{33} 等も使えるため LiNbO₃^{2,3)}, KTP⁴⁾ を用いて盛んに研究が進められている。

LiTaO₃ は LiNbO₃ と並ぶ大きな非線形定数を持ち、

また LiNbO₃ に比べて光損傷に強い⁵⁾ という特長もある。しかしながら LiTaO₃ は通常の複屈折を用いる方法では位相整合が得られないためブルーの SHG は実現されていなかった。われわれはこの LiTaO₃ に周期的分極反転層を形成し QPM を用いることにより SHG の発生が可能であることを示した⁶⁾。

本報告では非線形光学定数が大きく高効率化が期待できる LiTaO₃ および LiNbO₃ を用いて分極反転構造を持つ光導波路の作製を試みた。この光導波路および QPM-SHG の特性を評価し LiTaO₃ が LiNbO₃ に比べて優れていることを明らかにしたので報告する。

2. 構造

われわれは QPM-SHG 材料として LiTaO₃ に着目した。Table 1 に LiTaO₃ と LiNbO₃ の材料特性の比較を示す。LiTaO₃ の非線形光学定数 d_{33} は 26 pm/V

Table 1 Comparison of characteristics of LiTaO₃ and LiNbO₃.

	LiTaO ₃	LiNbO ₃
Nonlinear coefficient (d_{33}) (pm/V)	26	34.4
Refractive index ($\lambda=830$ nm)	$n_e=2.16$ $n_o=2.15$	$n_e=2.17$ $n_o=2.25$
Transmission wavelength range (nm)	280-4,400	330-4,400
Curie temperature (°C)	604	1,140

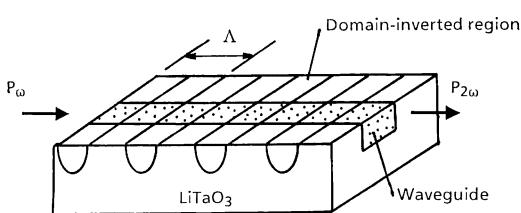


Fig. 1 Structure of QPM-SHG device with a periodically domain-inverted structure in LiTaO₃.

であり LiNbO₃ と同程度に大きく、また吸収端は 280 nm まで伸びており短波長の波長変換材料として有望である。QPM-SHG デバイスの構造図を Fig. 1 に示す。LiTaO₃ 基板に光導波路が作製されておりこれと直交して周期的分極反転層が形成されている。分極反転層の周期 A は

$$A = m\lambda/2(n_2 - n_1) \quad (1)$$

ここで m は 1, 3, 5, ..., λ は基本波の波長、 n_2 , n_1 はそれぞれ高調波および基本波の伝搬モードの実効屈折率である。Fig. 2 に計算により得られた波長に対する分

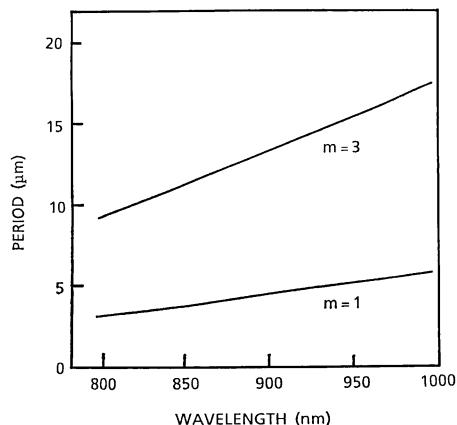


Fig. 2 Calculation result of domain-inverted period as a function of the phase matched fundamental wavelength.

極反転周期の関係を示す。840 nm の基本波に対して 1 次 ($m=1$) QPM 構造では LiTaO₃ における周期が 3.6 μm であり、3 次 ($m=3$) QPM で 10.8 μm となる。また、LiNbO₃ ではそれぞれ 3.0 μm , 9.0 μm となる。高効率変換を行うためには形成される光導波路に対して十分深い分極反転層が必要である。そのため光導波路に対してのオーバーラップを考え、より深い反転層が得られる 3 次 QPM の検討を行った。

3. 作製プロセス

安息香酸を用いたプロトン交換により LiTaO₃ 基板の Li を低減し表面層に分極反転層を形成することができる⁷⁾。LiTaO₃ および LiNbO₃ へ部分的プロトン交換を行い分極反転層の形成を試みた。

3.1 プロトン交換

LiTaO₃ へのプロトン交換^{8,9)}をピロ磷酸 ($\text{H}_4\text{P}_2\text{O}_7$)¹⁰⁾を用いて検討した。LiNbO₃ ではピロ磷酸を用いて均一なプロトン交換が行え、低損失光導波路が実現されている。作製されたプロトン交換層の LiTaO₃ と LiNbO₃ との比較を Table 2 に示す。LiTaO₃ のプロトン交換層の最大屈折率変化 Δn_e は 0.02 と LiNbO₃ に比べ 1/7 となっている。また、拡散定数も LiTaO₃ は LiNbO₃ に比べて 1/4 と小さい。LiTaO₃ では LiNbO₃ に比べてプロトン交換されにくくなっていると考えられる。ピロ磷酸は安息香酸（沸点：248°C）とは異なり 300°C まで液体であるため高温処理も可能であり拡散定数の小さな LiTaO₃ に適している。また、プロファイルは SIMS (secondary ion mass spectrometry) を用いた H 濃度深さ方向測定結果より LiNbO₃ と同じくステップ分布をしていた。

3.2 分極反転層

プロトン交換法を利用して LiTaO₃ 基板への分極反転層形成を試みた。Ta マスクの周期状パターンで覆われた LiTaO₃ の -C 面にピロ磷酸で部分的にプロトン交換処理 (260°C, 50 分間) をした後、600°C で 10 分間熱処理（キュリー点：604°C, コングルエント組成にて）を行った。プロトン交換することにより LiTaO₃

Table 2 Comparison of characteristics of proton-exchanged layer in LiTaO₃ and LiNbO₃.

	LiTaO ₃	LiNbO ₃
Δn_e	0.02	0.145
D ($\mu\text{m}^2/\text{h}$) at 230°C	0.08	0.33
Profile	Step	Step

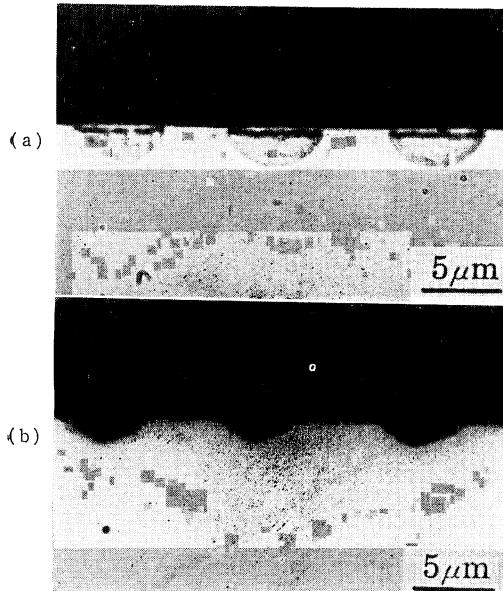


Fig. 3 Cross-sectional photographs of periodically domain-inverted structure as seen on y -face of (a) LiTaO₃ and (b) LiNbO₃.

基板の Li の濃度を低減することができ LiTaO₃ のキュリー温度を部分的に低下させる。Fig. 3(a)に得られた周期状分極反転構造の断面写真を示す。サンプルは断面形状を観察するために HF-HNO₃ にてエッチングを行っている。分極反転周期 10 μm で幅 6.5 μm , 厚み 2.7 μm の半円形状の分極反転層が得られた。

同様のプロセスを LiNbO₃ に対して試みた。しかしながら、LiNbO₃ はキュリー点が高く (1, 140°C, コングルエント組成にて) そのため分極反転を行うための処理温度が高温となるため、拡散によりプロトン交換層が互いにつながってしまい微細な周期パターンは得られなかった。LiNbO₃ の 1,000°C での拡散定数は LiTaO₃ の 600°C での定数に比べて約 3 衍大きいためである。

LiNbO₃ に対しては、従来よりよく用いられている SiO₂ マスク法³⁾ を用いて周期分極反転層を形成することを試みた。厚み 200 nm の SiO₂ を LiNbO₃ の +C 面上にスパッタにより蒸着した後、フォトリソとドライエッティングによりパターン化する。この基板を 1,080°C, 90 分間熱処理を行った。SiO₂ に LiNbO₃ 中の Li が拡散しキュリー点が部分的に低下し SiO₂ 直下が反転した。HF-HNO₃ (25°C) にてエッチングしたサンプルの断面写真を Fig. 3(b) に示す。分極反転層周期 9 μm にて幅 8 μm , 厚み 1.5 μm の三角形状の反転層が得られた。基板表面との角度は 30 度と浅

く、これ以上深くすると横方向でつながってしまう。LiTaO₃ では基板との角度 45 度であり LiNbO₃ に比べ深い反転層が得られる原因となっている。

LiTaO₃ の反転層形状が半円となるのは、プロトン交換の拡散形状が半円であることが影響していると思われる。

4. プロトン交換光導波路

4.1 光導波路の作製

分極反転層が形成された LiTaO₃ および LiNbO₃ にピロ磷酸を用いたプロトン交換により三次元光導波路の形成を試みた。ピロ磷酸によるプロトン交換は高屈折率(閉じ込めがよい)で、なおかつ低損失光導波路の形成が可能である。LiTaO₃ に光導波路を形成する前にプロトン交換による部分的屈折率変化(分極反転層作製時に形成された)を消失させるため、400°C のアニールを行いプロトン交換層をつなげることにより屈折率変化をなくした。Fig. 4 に光導波路の作製方法を示す。まず、形成された分極反転層上に 30 nm の Ta 膜をスパッタ蒸着する。次にフォトリソとドライエッティングによりスリットを Ta 膜上に形成する。ピロ磷酸中 260°C で 16 分間プロトン交換を行った後、380°C, 10 分間アニール処理を行った。

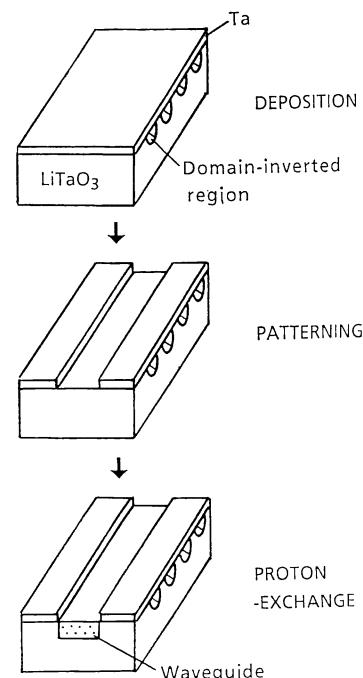


Fig. 4 Fabrication processes of waveguides in domain-inverted LiTaO₃.

分極反転層が形成された LiNbO_3 上にも同様にピロ磷酸を用いてプロトン交換処理(230°C , 2分)を行った。その後、 350°C で1時間アニール処理を行った。

上述の方法により LiTaO_3 および LiNbO_3 ともに幅 $5\sim10\ \mu\text{m}$ 、厚み $2.4\ \mu\text{m}$ の三次元光導波路が形成できた。

4.2 光導波路の評価

作製された分極反転層を持つ LiNbO_3 および LiTaO_3 光導波路の伝搬損失をカットバック法を用いて測定した。測定波長は 840 nm である。幅 $5\ \mu\text{m}$ のシングルモード光導波路では LiTaO_3 が $0.9\ \text{dB/cm}$ と低損失なのに対し LiNbO_3 は $2.9\ \text{dB/cm}$ と大きい。反転構造を持たない LiNbO_3 プロトン交換光導波路の伝搬損失を測定したところ $0.4\ \text{dB/cm}$ であり、反転構造を持つことで LiNbO_3 では大幅な損失の増加が見られる。これは LiNbO_3 の場合、分極反転層形成に用いた SiO_2 が硬化し HF 中での除去後において部分的に残るため、発生する散乱損失のためと考えられる。

次に簡単な方法で短波長領域の光損傷を観察するために、幅 $5\ \mu\text{m}$ 、厚み $2.4\ \mu\text{m}$ の光導波路に He-Cd レーザーを導波させた。 800 nm の波長では単一横モードのみの伝搬であるが、He-Cd レーザーの波長($441.6\ \text{nm}$)では多重横モードが伝搬する。これにシングルモードを励起、He-Cd レーザーのパワーをあげると光損傷が生じれば屈折率が変化しビームがマルチ化する。実験において LiNbO_3 では $20\ \mu\text{W}$ まで導波パワーを上げると多重横モード化した。また分極反転構造を持つ光導波路と持たない光導波路の比較では差が見られなかった。

一方 LiTaO_3 では $1\ \text{mW}$ まで導波させたが損傷は見られなかった。 LiTaO_3 は基板そのものが光損傷に強いことによると考えられる。

5. SHG 特性の評価

分極反転層および光導波路が作製された LiTaO_3 の SHG 特性の評価を行った。比較のため LiNbO_3 についても評価を行った。詳しい特性評価を行うため波長が可変できる Ti サファイアレーザーを光源に用い、光導波路には TM 偏光で端面入射し結合を行った。分極反転は LiTaO_3 および LiNbO_3 ともに3次の QPM 構造であり、 LiTaO_3 では周期 $11.1\ \mu\text{m}$ 、 LiNbO_3 では $9\ \mu\text{m}$ である。光導波路幅はともに $5\sim10\ \mu\text{m}$ 、厚み $2.4\ \mu\text{m}$ である。また素子の長さは 9 mm 、光導波路の全長にわたって分極反転層が形成されている。光導波路は基本波に対してシングルモード伝搬である。

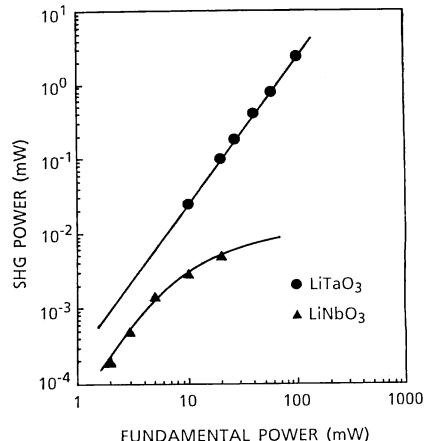


Fig. 5 Measured SHG power plotted for the fundamental power.

SHG 出力は LiTaO_3 、 LiNbO_3 ともに幅 $5\ \mu\text{m}$ の光導波路で最大値が得られた。**Fig. 5** に導波パワーに対する SHG 出力の関係を示す。SHG は LiNbO_3 では 835 nm 、 LiTaO_3 は 848 nm で位相整合ピークが得られた。この実験により得られた位相整合波長は計算結果とほぼ一致した。 LiTaO_3 は光損傷もなく SHG は導波パワーの 2 乗に比例して上昇し、導波出力 $98\ \text{mW}$ にて $2.4\ \text{mW}$ のブルー光が得られ、換算効率は $24\%/\text{W}$ ($29\%/\text{W} \cdot \text{cm}^2$)である。波長許容幅(半値)は $0.2\ \text{nm}$ と狭く今後許容度改善が課題として残る。

LiNbO_3 は基本波 $5\ \text{mW}$ に対して $1.5\ \mu\text{W}$ の出力で換算効率は $6\%/\text{W}$ である。また、 LiNbO_3 は SHG が $3\ \mu\text{W}$ 以上で飽和が見られた。これは発生したブルー SHG による光損傷の影響で屈折率が変化し位相整合条件からずれるためと考えられる。

変換効率の差の主たる原因としては LiTaO_3 は LiNbO_3 に比べ分極反転層の厚みが倍程度あり、光導波路とのオーバーラップが大きいことが考えられる。基本波の電界を E_{ω} 、発生する SHG の電界を $E_{2\omega}$ 、分極反転層の厚みを D とするとオーバーラップ I は以下の式で表される。

$$I = \int_0^D E_{\omega}^2 \cdot E_{2\omega} \, dx \quad (2)$$

SHG 出力 $P_{2\omega}$ は比例定数を A とすると

$$P_{2\omega} = A \cdot I^2 \quad (3)$$

となる。**Fig. 6** に式(2), (3)を用いて計算した光導波路厚み $2.4\ \mu\text{m}$ とした場合の分極反転層厚みと SHG 出力の関係を示す。**Fig. 6** より分極反転層厚みが光導波路厚みを越えると完全にオーバーラップすることがわか

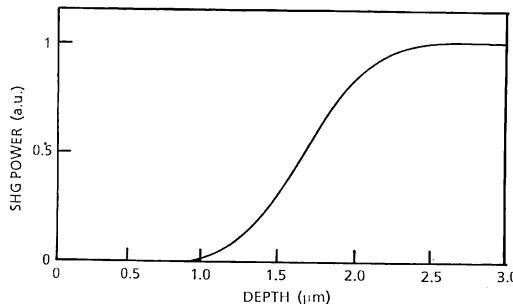


Fig. 6 Calculation result of second harmonic intensity as a function of the domain-inverted depth. The waveguide depth is 2.4 μm .

る。LiTaO₃ は分極反転層厚み 2.7 μm であり光導波路と十分オーバーラップしているのに対し、LiNbO₃ では分極反転層厚みは 1.5 μm であり光導波路との重なりも少なく効率に大きく影響していることがわかる。オーバーラップ改善のため光導波路厚みを薄くすることを試みたが急激な伝搬損失の増加が見られた。

LiTaO₃ においては 1 次の QPM を形成すればさらに 1 衍程度の高効率化も可能であり、半導体レーザーとの組合せで mW オーダーの SHG 発生が期待できる。

6. 結 言

LiTaO₃ および LiNbO₃ の QPM-SHG を行うため分極反転層および光導波路の形成方法を検討し、LiTaO₃ においてピロ磷酸を用いたプロトン交換法を用いて深い分極反転層、低損失光導波路が作製できることを示した。これを基本として LiTaO₃ に QPM-SHG 素子を作製し基本波 98 mW 導波において 2.4 mW の波長 424 nm の SHG 出力を確認した。これには LiTaO₃ は LiNbO₃ に比べ深い分極反転層が形成でき光導波路とのオーバーラップがよいことおよび反転用マスク残りがなく伝搬損失が小さい光導波路を形成できることが影響している。また、LiTaO₃ は LiNbO₃ で観測された光損傷も見られず 1 次の分極反転をするなどでさらなる SHG 変換効率の改善が期待できる。

このように、LiTaO₃ は LiNbO₃ に比べ QPM-SHG

に適しており今後のキーデバイスとして有効である。

本研究の遂行にあたり終始激励いただいた同研究所加藤誠博士および討論いただいた山本博昭氏に感謝いたします。

文 献

- 1) J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing and P. S. Pershan: "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric," *Phys. Rev.*, **127** (1962) 1918-1939.
- 2) E. J. Lim, M. M. Fejer, R. L. Byer and W. J. Kozlovsky: "Blue light generation by frequency doubling in periodically poled lithium niobate channel waveguide," *Electron. Lett.*, **25** (1989) 731-732.
- 3) J. Webjorn, F. Laurell and G. Arvidsson: "Blue-light generated by frequency doubling of laser diode light in a lithium niobate channel waveguide," *IEEE Photon. Technol. Lett.*, **1** (1989) 316-318.
- 4) C. J. van der Poel, J. D. Bierlein and J. B. Brown: "Efficient type 1 blue second-harmonic generation in periodically segmented KTiOPO₄ waveguides," *Appl. Phys. Lett.*, **57** (1990) 2074-2076.
- 5) A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein and K. Nassau: "Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO₃ and LiTaO₃," *Appl. Phys. Lett.*, **9** (1966) 72-74.
- 6) K. Mizuuchi, K. Yamamoto and T. Taniuchi: "Second harmonic generation of blue light in LiTaO₃ waveguide," *Appl. Phys. Lett.*, **58** (1991) 2732-2734.
- 7) K. Nakamura and H. Shimizu: "Ferroelectric inversion layers formed by heat treatment of proton-exchanged LiTaO₃," *Appl. Phys. Lett.*, **56** (1990) 1535-1536.
- 8) W. B. Spillman, Jr., N. A. Sanford and R. A. Soref: "Optical waveguides in LiTaO₃ formed by proton-exchange," *Opt. Lett.*, **8** (1983) 497-498.
- 9) Y. S. Li, K. Tada, T. Murai and T. Yuhara: "Electro optics coefficient r_{33} in proton-exchanged z-cut LiTaO₃ waveguides," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **28** (1989) L263-265.
- 10) K. Yamamoto and T. Taniuchi: "New proton-exchange technique for LiNbO₃ waveguide fabrication," *Technical Digest of the Optical Fiber Communication Conference/ Integrated Optics and Optical Fiber Communication*, OFC/IOOC '87, (Optical Society of America, Washington DC, 1987), paper TuH2.