

## 分極反転光デバイスの光第二高調波による非破壊評価

栗村 直<sup>\*,\*\*\*</sup>・上江洲由晃<sup>\*,\*\*</sup>

早稲田大学 <sup>\*</sup>理工学部物理学科, <sup>\*\*</sup>理工学総合研究センター 〒169 東京都新宿区大久保 3-4-1

### Nondestructive Characterization of Polarization-Inverted Optical Devices by Optical Second-Harmonic Generation

Sunao KURIMURA<sup>\*,\*\*\*</sup> and Yoshiaki UESU<sup>\*,\*\*</sup>

<sup>\*</sup>Department of Physics, <sup>\*\*</sup>Advanced Research Institute for Science and Engineering, Waseda University, 3-4-1, Okubo, Shinjuku-ku, Tokyo 169

A ferroelectric polarization-inverted (PI) structure realizes multi-functions and their integration in conventional optical devices. The polarization inversion reverses the sign of nonlinear-optical susceptibility  $\chi^{(2)}$  so that spatial modulation is accomplished in the 2nd-order nonlinear constant and the 1st-order electro-optic constant. Quasi-phase-matched (QPM) wavelength conversions such as second-harmonic generation (SHG) have developed the polarization inversion techniques, which have been widely spread to the field of electro-optic modulators and deflectors. The PI optical devices use  $180^\circ$  domains whose spontaneous polarizations are antiparallel to each other. The domain structure is generally invisible by conventional optical techniques, which makes it difficult to characterize domains. We propose here application of the SHG microscope as a nondestructive tool, instead of a conventional destructive etching technique, to reveal the domains. Nondestructive characterization of periodic domain structures is demonstrated in QPM wavelength converters.

#### 1. はじめに

光デバイスは情報通信・情報記録において盛んに研究され、医療など他の分野へも広がりを見せている。なかでも  $\chi^{(2)}$  (2次の非線形感受率) デバイスは、2次の非線形光学効果や1次の電気光学効果を有し、波長変換や電気光学変調のデバイスとして広く受け入れられている。近年、これら  $\chi^{(2)}$  デバイスにおいて分極反転 ( $\chi^{(2)}$  変調) 構造を導入すると、新たな機能を付加したり、従来の特性を大きく改善できることがわかってきた。元来2次の非線形光学効果では、 $\chi^{(2)}$  の空間変調による変換効率の向上が指摘されていたが<sup>1)</sup>、分極制御が困難であるために顧みられてこなかった。特に無機の材料で最大クラスの特性定数をもつニオブ酸リチウム (LN:  $\text{LiNbO}_3$ )、タンタル酸リチウム (LT:  $\text{LiTaO}_3$ ) は、かつては「凍結した強誘電体 (frozen ferroelectrics<sup>2)</sup>)」

と呼ばれ、室温での安定的分極反転は不可能といわれていた<sup>3)</sup>。ところが、この5年ほどの間に分極反転技術は大きく進歩、拡散し、今や一部研究機関だけの独占技術ではなくなった。「凍結した強誘電体」という呼び名は完全に歴史の一頁になった。本稿ではこれら反転技術を用いた分極反転 ( $\chi^{(2)}$  変調) 光デバイスにスポットをあて、分極反転形状と実現される機能について述べる。また特性を左右する分極反転の非破壊評価法に対して、筆者らが新しく考案した光第二高調波発生 (SHG: second harmonic generation) 顕微鏡とデバイス評価の実例を紹介する。

#### 2. 分極反転光デバイス

自発分極をもち、電界印加により分極反転可能な材料は強誘電体と呼ばれている。一般に強誘電体では電子ポテンシャルの非対称性が大きいので、 $\chi^{(2)}$  も大きくなる傾向にある。強誘電体内で等しい自発分極をもつ領域を分域と呼んでいるが、これらのうち互いに自発分極が反

<sup>\*\*\*</sup>E-mail: kurimura@mn.waseda.ac.jp

Present address: Ginzton Laboratory, Stanford University, Stanford, CA 94305, USA

平行であるような分域を180°分域という。屈折率、吸収係数など線形光学的には全く等価であるため、180°分域の存在は通常の光学特性に影響を与えない。一方 $\chi^{(2)}$ を起源とする2次の非線形光学定数 $d_{ijk}$ 、1次の電気光学定数 $r_{ijk}$ はともに3階のテンソルであり、自発分極の反転とともにその符号を変える。このため、自発分極を空間的に反転すれば、分域間で定数を変調することが可能である(自発分極と $d$ 、 $r$ が同じ既約表現に属せば、自発分極の反転とともに $d$ 、 $r$ も反転する)。ここでは $d$ 、 $r$ を変調することで実現できるようになってきた新たなデバイスについて述べる。 $d_{ijk}$ 、 $r_{ijk}$ は3階のテンソルであるが、慣例に従い添字を縮約して $d_{ij}$ 、 $r_{ij}$ と表す。

### 2.1 $d$ の変調—擬似位相整合波長変換デバイス—

テクノロジードライバーとして分極反転技術を進展させてきたのが、代表的な分極反転デバイスである擬似位相整合(QPM: quasi phase matching)波長変換デバイスである。QPMは、2次の非線形光学定数 $d_{ij}$ を周期的に変調して変換波の位相をブロック単位で合わせこむ方法である。本来打ち消しあう変換波どうしを加算的に干渉させるため変換効率は飛躍的に上がる<sup>4)</sup>。分極反転以外にも $d$ の変調方法は提案されていたが、分極反転では $\pm d$ と変調度が深いことから(変調深さ $2d$ )、効率の点で注目されてきた。また反転分域間では原理的に光学損失がないことから、効率向上に有利であった。分極反転QPMを利用してめざましい成果を挙げたのがSHGデバイスである(Fig. 1(a))。分極反転周期を3~4 $\mu\text{m}$ とすれば、CDで用いられる安価な半導体レーザー(800 nm帯)から400 nm帯青紫光が得られる。導波路と組み合わせると出力数mWが比較的容易に得られる。青色領域の小型固体光源として期待されており、光ディスクなど高密度記録システムへも搭載を狙っ

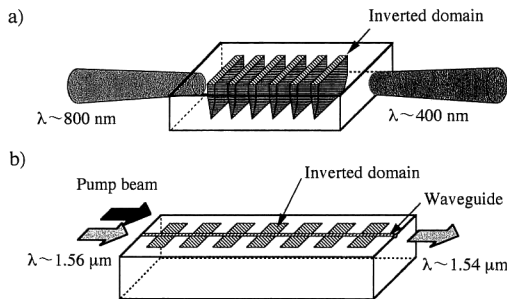


Fig. 1. Polarization-inverted wavelength converters: (a) blue light generator, (b) channel converter (0.78  $\mu\text{m}$  pump).

ている。青色半導体レーザーの発振が報告されてきているが、出力、寿命の点ではいまだQPM-SHGデバイスに一日の長があるようである。実際この構造を用いた青色SHG光源は、写真用デジタルラボシステムとして実用化で先行した<sup>5)</sup>。

当初分極反転にはイオン交換などの手法が用いられていたが、電界印加による分極反転法が確立されて<sup>6,7)</sup>、変換効率はさらに向上した。またこれまで位相整合波長は材料自身の屈折率分散で制約されていたが、QPMでは反転周期によってあらゆる波長に対応できるため、最近では紫外領域(分極反転周期2~3 $\mu\text{m}$ )への波長変換も可能になってきている<sup>8,9)</sup>。

QPMの適用範囲の広さを示す例がFig. 1(b)である。光通信の大容量化には波長多重が必須となっており、異なる波長のチャンネル間切換に波長変換デバイスが有望視されている。反転周期18 $\mu\text{m}$ 、ポンプ光0.78 $\mu\text{m}$ とすると1.55 $\mu\text{m}$ を中心とする差周波発生が可能になり、低ノイズで波長帯域の広いチャンネル変換が実現できる<sup>10)</sup>。分極反転周期を14 $\mu\text{m}$ とすれば、光ファイバーの通信波長1.3と1.5 $\mu\text{m}$ 間でも変換が可能であり、変換波長の設計自由度が高い。

### 2.2 $r$ の変調—電気光学位相変調器/偏向器—

電気光学変調においても、分極反転による $r_{ij}$ の反転を利用したデバイスが報告されている。反転周期を2 mm程度に設計すると、マイクロ波-光波間の速度不整合をブロック単位で合わせこむことができ、擬似的に速度整合がとれる<sup>11,12)</sup>(Fig. 2(a))。高い周波数の位相変調においても長い相互作用長が実現できるため、広帯域のサイドバンド生成などに利用されている。

一方プリズム型分極反転を作製し電界印加によりビームを曲げる偏向器も報告されるようになった<sup>13)</sup>。これは分極反転を三角形状で作製して、これを含む形で電極を

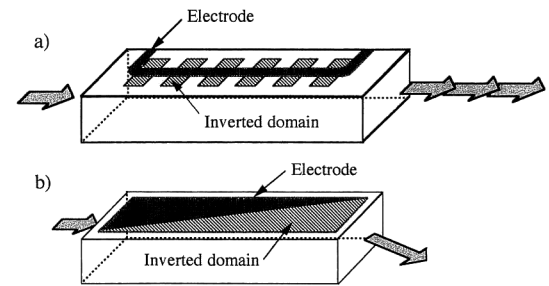


Fig. 2. Polarization-inverted electro-optic modulator/deflector: (a) quasi-velocity-matched modulator, (b) triangular-domain patterned deflector.

形成する素子で、均一電界に対して分極反転領域/非反転領域で屈折率変化が逆符号であることを利用している (Fig. 2(b)). 電界印加によって透明領域にプリズムをつくり出すことができる。プリズムの屈折率変化は印加電界の大きさに制御できるため、偏向角制御が行える。同様の原理を利用して、回折効率が電界で可変なブラッグスイッチも報告されている<sup>14)</sup>。分極反転デバイスでは電界ゼロのときに分域間の屈折率差がないので、過剰な光学損失を生じないことが大きなメリットである。

### 2.3 *d* 変調素子, *r* 変調素子の集積化

分域間で光学損失が生じないという事実は、同一基板上への複数素子の集積化を可能にする。従来は個別の素子を光学的に結合、アラインメントすることで実現してきた多機能素子が容易に実現できる。特に波長変換素子では従来はバルクの複屈折を利用する手法が主であったため、位相整合領域を空間的に限定することは困難であった。QPMでは整合領域をパターンニングできるため、整合領域を分割して干渉により相殺させれば変調器との集積化も可能である<sup>15)</sup>。またQPM素子と偏向器との集積化が実際に試みられている<sup>16)</sup>。さらにQPM以外にも、レーザーと分極反転偏向器を組み合わせるQスイッチ動作を実現した例もあり、汎用性の高さは実証されつつある<sup>17)</sup>。素子の光学結合による結合損失が避けられるため、分極反転は集積化に有望な技術といえる。

分極反転デバイスのメリットをまとめると以下のようになる。

- ①分極反転に伴う屈折率変化がないので、過剰な光学損失がない。
- ② $d_{ij}$ ,  $r_{ij}$ の変調度が深いので、効率の点で有利である。
- ③空間的に波長変換部、位相変調部、偏向部などをパターンニングできるので集積化に向く。

## 3. 分極反転の評価法

### 3.1 従来の分域観察法

分極反転構造の形状は波長変換デバイス、変調器/偏向器の特性に大きな影響を及ぼす。例えばQPM波長変換デバイスでは、変換波長は反転周期で決まり、変換効率は分極反転比 (周期に対する分極反転部の比: 50%で効率最大) で決まる。そのため分極反転は厳密にパターンニングする必要があり、その評価も重要である。また変調器においては反転周期が変調帯域を決めるために、波長変換デバイスほどではないもののパターンニング周期の制御が要求される。

ではデバイス特性に重要な影響を及ぼす分極反転は、どのように評価されてきたであろうか。従来主に行われてきた方法はエッチング (化学的腐食) による破壊観察であった。これは分域間でエッチングの速度が異なることを利用して分域壁で段差を生じさせるものである (Fig. 3)。素子の上面 (C面) においては+C面と比べて-C面のエッチング速度が速いため、分域の境界が段差として観察できる。しかし酸によって表面が荒れるため、特性が良いデバイスでも破壊して初めて評価できる。この事実がデバイス作製のプロセスにおいて負担となっていたことは否めず、原因のきり分けをする際の障害となっていた。分域の非破壊観察手法は表面電荷を利用する方法などが検討されているが、デバイスが汚染される、空間分解能が低い、再現性が悪いなどの問題を抱えており、これといった決め手がない。そこで筆者らは独自に分域の観察法を検討し、SHGを利用した分域の可視化に取り組んだ。

### 3.2 SHGによる分域観察の原理

非線形光学定数  $d_{ij}$  は分極の反転とともにその符号を変えるため、異なる分域からのSH波は互いに位相が反転している。すなわち各分域からのSH波の位相を干渉により強度に変換できれば、180°分域はSH強度の分布として観察できる。この原理は Fig. 4(a) に示されて

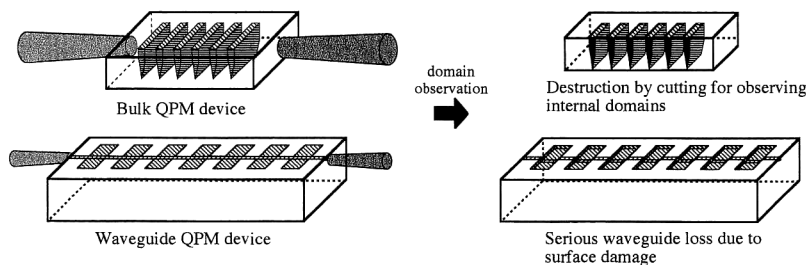


Fig. 3. Destructive etching for domain characterization: observed surface is damaged and frosted by acids.

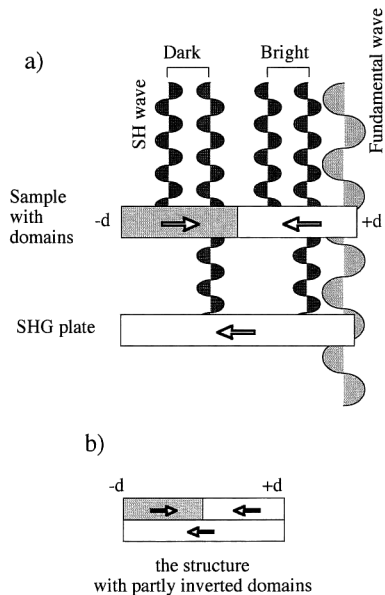


Fig. 4. Principle of domain observation by SHG.

いる。基本波の光路上に、分域をもつ試料と均一な SH 波を発生させる SHG プレートを挿入する。分域をもつ試料からの SH 波は互いに逆位相をもっている。これに均一な SHG プレートからの SH 波を重畳すれば、位相情報が強度情報に変換され分域が可視化できる。この原理は部分的に分極反転した Fig. 4(b) のような場合に拡張できる (実際に多くの波長変換デバイスは部分反転の構造になっている)。この場合には分極反転していない下部が SHG プレートとして機能するため、一枚の試料のみで分域観察が可能である。

## 4. SHG 顕微鏡による分域観察

### 4.1 SHG 顕微鏡光学系

分域を観察するためには SH 波によって画像を構成する必要がある。また QPM 波長変換デバイスなどでは分極反転周期が微細であるため、高い分解能が要求される。そこで筆者らは SH 波で画像を構成する顕微鏡、SHG 顕微鏡 (SHGM) を構築した<sup>18,19)</sup>。SHG を利用した顕微鏡は 1970 年代にも報告例があるが<sup>20,21)</sup>、際だった成果をあげるに至っていない。光源の出力、検出器の感度などの問題のため基本波を集光せざるを得ず、SHGM 独自のメリットを打ち出せなかった。Fig. 5 に筆者らの試作した SHGM を示す。基本波を平行ビームで導入するため、深さ方向の干渉で分域が可視化できる。この顕微鏡はハーフミラーの切換により通常の反射

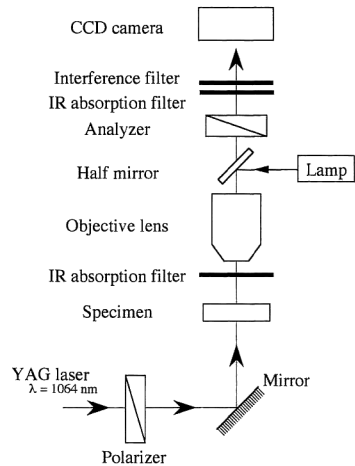


Fig. 5. Optical system of the SHG microscope.

顕微鏡と SHGM とが使い分けでき、2重露光も可能である。光源は YAG レーザーを用いており、波長 1064 nm を繰り返し周波数 1~10 kHz、パルス幅 110 ns で利用している。試料より発生した SH 波は波長 532 nm の緑色光であるため、容易にフィルタリングでき高い S/N 比が得られる。SH 波はリレーレンズ、干渉フィルターを通過後、CCD カメラに至る。CCD カメラの露光時間はシャッターにより調整し、取得された SH 像はコンピュータにデジタル画像として送られる。

### 4.2 柱状分域の観察

180°分域が可視化できるかどうかの確認を、まず十分大きい分域で行うことにする。ここでは観察の対象として LN の柱状分域を選んだ<sup>22)</sup>。分域は電子ビームの点状照射により作製しており、照射領域に対応した円柱形をしている。試料は柱状分域の中央を Y 面に平行に切断・研磨した。分極反転部の観察写真を Fig. 6 に示す。図の (a), (b), (c) はそれぞれエッチング前の光学顕微鏡像、エッチング前の SH 像、エッチング後の光学顕微鏡像である。分極反転に対応した SH 像が得られていることがわかる。なお SHG 観察には、LN の非線形光学定数  $d$  のうち最大の成分である  $d_{33}$  (32 pm/V) を利用している。以上より数百  $\mu\text{m}$  大の柱状分域に関しては、筆者らの SHG 顕微鏡で十分観察可能なことがわかり、微細な分極反転構造をもつ QPM-SHG デバイスへの応用を検討した。

### 4.3 X-カット QPM-SHG デバイスの観察

QPM デバイスにおいては高い分解能で観察する必要があるため、CCD 面上での SH パワー密度は低下する。そこで十分な S/N 比を確保するため入射ビーム径を平

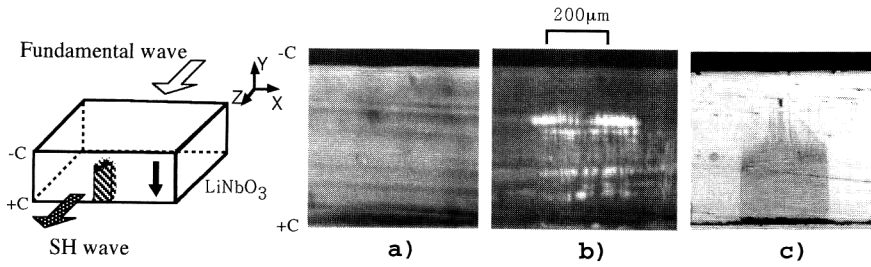


Fig. 6. Images of a pillar-shaped 180° domain. a) optical microscope before etching, b) SHG microscope before etching, c) optical microscope after etching.

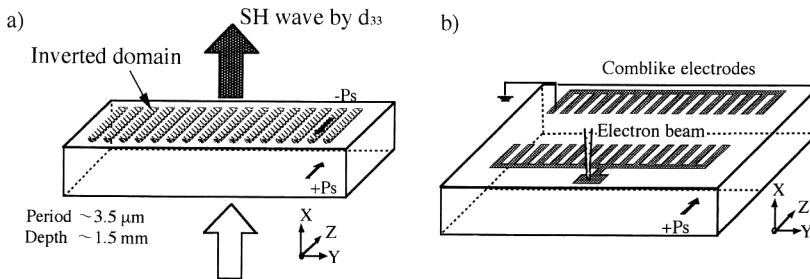


Fig. 7. Device orientation and geometry. a) optical geometry for observation, b) fabrication by electric-field-induction by an electron beam.

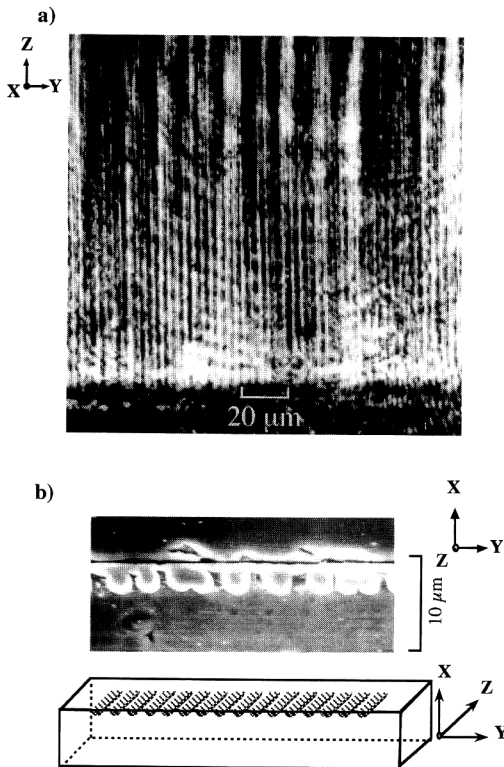


Fig. 8. Images of an X-cut QPM device. a) SH image, b) SEM image after etching.

行ビームのまま約 60%に縮小した。SH 強度は入射ビーム径の 4 乗に反比例するため、これにより約 7 倍の高感度化ができる。

最初に X-カット基板上に作製された導波路型青色発生 SHG デバイス (Fig. 7(a)) の観察を行った。これは X-カット LT 基板上に、電子ビーム誘導電界により周期分極反転を作製したものである (Fig. 7(b))<sup>23)</sup>。電子ビームを楕円電極 (手前側) に照射すると、接地した楕円電極 (奥側) との間に誘導電界が生じる。この電界が結晶の抗電界を超えると、分極反転が生じ、周期的にパターンニングされる。この素子は波長 860 nm 帯を 430 nm 帯の青色光に変換するデバイスであり、反転周期は 3.5 μm、平均反転深さは 1.5 μm である。観察には LT における最大成分  $d_{33}$  (16 pm/V) を利用することにした<sup>24)</sup>。

X-カット QPM デバイスの SH 像を Fig. 8 に示す。反転周期 3.5 μm に対応する周期構造が観察されている。高倍率においても高い S/N 比が得られている。露光時間は約 18 秒であり、このときの基本波パワー密度は平均で 36 W/cm<sup>2</sup>、尖塔値で 110 kW/cm<sup>2</sup> であった。観察像からは分極反転の周期に不均一がみられ、均一性を改善することでさらなる高変換効率が期待できると思

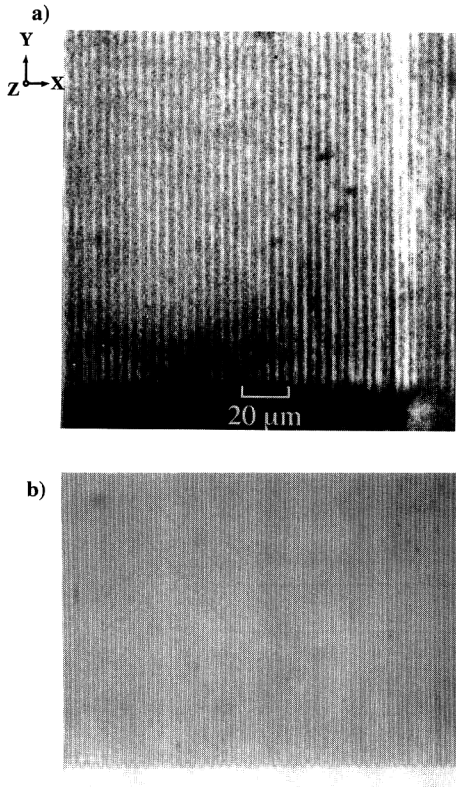


Fig. 9. Images of a Z-cut QPM device. a) SH image, b) optical microscope image after etching.

われる。QPM-SHG デバイスとしての規格化変換効率は約 60%/Wcm<sup>2</sup>であった。エッチングによって分極反転構造の存在も確認され (Fig. 8(b)), SH 像の不均一とも対応がたった。

#### 4.4 Z-カット QPM-SHG デバイスの観察

プロトン交換や電界印加で作製される QPM デバイスは、Z-カット基板の上に作製される。これは分極反転のメカニズム上やむを得ず、ほとんどの報告は Z-カット QPM デバイスである。すなわち実際のデバイス評価に SHGM が貢献するためには、Z-カットデバイスの観察を行うことが必須となる。ところが SHGM では基本波を垂直に入射するため、Z-カットデバイスにおいては最大成分  $d_{33}$  が利用できない。このため分極反転とともに符号の変わるその他の成分を用いなければならない。今回筆者らは  $d_{33}$  に次いで大きな値をもつ  $d_{22}$  (1.7 pm/V) を使用することにした。点群 3m に属する LT・LN では、180° 分域は X 軸を回転軸とする 2 回の回転軸で結びつけられ、分極反転とともに Z および Y 軸が反転する。このため  $d_{33}$  のみならず  $d_{22}$  も符号をか

える。ここでの観察試料は選択プロトン交換と急加熱処理によって作製された QPM-SHG デバイスであり、その規格化変換効率は 230%/Wcm<sup>2</sup> にも達する<sup>25)</sup>。反転周期、反転深さは 3.8 μm, 2.0 μm であり、波長 430 nm 帯の青色発生デバイスである (Z-カット QPM-SHG デバイスの概観図は、基板方位を除き Fig. 7(a) と酷似しているので省略する)。このデバイスの SHG 写真 (露光時間 600 s) を Fig. 9(a) に示す。効率からも類推できるように非常に高い均一性を示し、良好な周期構造が作製されている。同面でのエッチング写真を Fig. 9(b) に示す。縮尺は Fig. 9(a) と一致させてある。SHGM で確かに分極反転構造が観察されていることがわかり、 $d_{22}$  を用いても分域の可視化が可能であることが示された<sup>26)</sup>。

#### 5. ま と め

$\chi^{(2)}$  の変調構造を利用した分極反転光デバイスと分域の非破壊観察について報告した。180° 分域を用いた分極反転デバイスは、分極反転にともなう  $d_{ij}$ ,  $r_{ij}$  の反転を利用しており、高機能・低損失でかつ集積化に優れる。本研究では分極反転構造の新たな評価方法として SHG による手法を提案し、デバイスの非破壊観察を実現した。今後 SHGM により、分極反転デバイスの作製プロセスを効率化できるものと思われる。SHGM は、線形光学で識別不可能な 180° 分域を観察可能にするため、基礎・応用両面にインパクトを与えるものと期待され、今後揮発性メモリの劣化メカニズム解明など、光デバイス以外の強誘電体においても貢献が待たれる。

日頃御議論頂く早稲田大学理工学部の大井喜久夫教授、中島啓幾教授、小松進一教授、大阪大学工学部の森本朗裕教授に感謝いたします。X-カット QPM-SHG デバイスを提供していただいたパイオニア(株)の尾上篤氏、宮口敏氏、當摩照夫氏、Z-カット QPM-SHG デバイスを提供していただいた松下電器産業(株)の山本和久氏、水内公典氏に感謝いたします。

本研究の一部は池谷科学技術振興財団の助成を受けており、ここに感謝いたします。

#### 文 献

- 1) J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing and P. S. Pershan: "Interactions between light waves in a non-linear dielectric," *Phys. Rev.*, **127** (1962) 1918-1939.
- 2) H. D. Megaw: "Ferroelectricity and crystal structure. II," *Acta Crystallogr.*, **7** (1954) 187-194.
- 3) A. A. Ballman and H. Brown: "Ferroelectric domain

- reversal in Lithium Metatantalate,” *Ferroelectrics*, **4** (1972) 189-194.
- 4) 栗村 直：“光第二高調波発生と分極反転”，*固体物理*, **1** (1994) 75-82.
  - 5) A. Harada and Y. Nihei: “Bulk periodically poled MgO-LiNbO<sub>3</sub> by corona discharge method,” *Appl. Phys. Lett.*, **69** (1996) 2629-2631; S. Sonoda, I. Tsuruma and M. Hatori: “Second harmonic generation in electric poled x-cut MgO-doped LiNbO<sub>3</sub> waveguides,” *Appl. Phys. Lett.*, **70** (1997) 3078-3080.
  - 6) 佐脇一平, 三浦道雄, 栗村 直：“LiTaO<sub>3</sub> への深い周期的分極反転の作製(II)”, 1992 年秋応用物理学会予稿 18 a-X-2.
  - 7) M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh and K. Watanabe: “First-order quasi-phase matched LiNbO<sub>3</sub> waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation,” *Appl. Phys. Lett.*, **62** (1993) 435-436.
  - 8) K. Mizuuchi, K. Yamamoto and M. Kato: “Generation of ultraviolet light by frequency doubling of a red laser diode in a first-order periodically poled bulk LiTaO<sub>3</sub>,” *Appl. Phys. Lett.*, **70** (1997) 1201-1203.
  - 9) K. Kintaka, M. Fujimura, T. Suhara and H. Nishihara: “Efficient ultraviolet light generation by LiNbO<sub>3</sub> waveguide first-order quasi-phase-matched second-harmonic generation devices,” *Electron. Lett.*, **32** (1996) 2237-2238.
  - 10) C. Q. Xu, H. Okayama and K. Kawahara: “1.5 μm band efficient broadband wavelength conversion by difference frequency generation in a domain-inverted LiNbO<sub>3</sub> channel waveguide,” *Appl. Phys. Lett.*, **63** (1993) 3559-3561.
  - 11) 田丸誠宏, 猿渡栄道, 森本朗裕, 小林哲郎：“電気光学位相変調による数 THz サイドバンド生成への応用”, *電子情報通信学会技報*, LQE 94-62 (1994) 7-12.
  - 12) Q. Chen, Y. Chui, D. N. Lambeth, T. E. Schlesinger and D. D. Stancil: “Guided-wave electro-optic beam deflector using domain reversal in LiTaO<sub>3</sub>,” *J. Lightwave Technol.*, **12** (1994) 1401-1404.
  - 13) 森本朗裕, 井邨泰之, 小林哲郎：“分極反転形電気光学偏向器”, 1993 年春応用物理学会予稿 30 a-SA-23.
  - 14) M. J. Brinkman, A. Romanovsky, X. Shao, S. J. Field, D. A. G. Deacon and W. K. Bischel: “Electro-optic switches in poled lithium niobate,” *Conference on Lasers and Electro-Optics* (1996) CWD 3.
  - 15) S. Kurimura and Y. Uesu: “Proposal of a modulator-integrated structure in quasi-phase-matched second harmonic generation,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33** (1994) 5457-5459.
  - 16) V. Gopalan, M. J. Kavas, T. E. Schlesinger, M. C. Gupta and D. D. Stancil: “Integrated solid state blue laser with electro-optic scanner on LiTaO<sub>3</sub> single crystals,” *Conference on Lasers and Electro-Optics* (1996) CPD 18.
  - 17) K. S. Abedin, T. Tsuritani, M. Sato, H. Ito, K. Shimamura and T. Fukuda: “Integrated electro-optic Q switching in a domain-inverted Nd:LiTaO<sub>3</sub> laser,” *Opt. Lett.*, **20** (1995) 1985-1987.
  - 18) Y. Uesu, S. Kurimura, and Y. Yamamoto: “Second harmonic images of 90° domain structure in BaTiO<sub>3</sub> and periodically inverted antiparallel domains in LiTaO<sub>3</sub>,” *Appl. Phys. Lett.*, **66** (1995) 2165-2167.
  - 19) Y. Uesu, S. Kurimura and Y. Yamamoto: “New non-linear optical microscope and its application to the observation of ferroelectric domain structure,” *Ferroelectrics*, **169** (1995) 249-257.
  - 20) R. Hellwarth and P. Christensen: “Nonlinear optical microscopic examination of structure in polycrystalline ZnSe,” *Opt. Commun.*, **12** (1974) 318-322.
  - 21) J. N. Gannaway and C. Sheppard: “Second-harmonic imaging in the scanning optical microscope,” *Opt. Quantum Electron.*, **10** (1978) 435-439.
  - 22) S. Kurimura, I. Shimoya and Y. Uesu: “Domain inversion by an electron-beam-induced electric field in MgO:LiNbO<sub>3</sub>, LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35** (1996) L31-L33.
  - 23) A. Onoe, S. Miyaguchi and T. Tohma: “Fabrication of TE-mode type LiTaO<sub>3</sub> QPM-SHG device,” *Microoptics Conference* (1993) G 10.
  - 24) S. Kurimura, S. Tanaka and Y. Uesu: “Nondestructive observation of 180° domains in a quasi-phase-matched SHG device using an SHG microscope,” *Conference on Lasers and Electro-Optics* (1995) CFA 4.
  - 25) K. Mizuuchi and K. Yamamoto: “Domain inversion in LiTaO<sub>3</sub> using proton exchange followed by heat treatment,” *J. Appl. Phys.*, **75** (1994) 1311-1318.
  - 26) S. Kurimura and Y. Uesu: “Application of the second harmonic generation microscope to nondestructive observation of periodically-poled ferroelectric domains in quasi-phase-matched wavelength converters,” *J. Appl. Phys.*, **81** (1997) 369-375.