

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19340085

研究課題名(和文) 常誘電体における極性制御非線形光学の開拓

研究課題名(英文) Challenge for polarity-controlled nonlinear optics in dielectrics

研究代表者

栗村 直 (KURIMURA SUNAO)

独立行政法人物質・材料研究機構・光材料センター・主幹研究員

研究者番号：10287964

研究成果の概要：材料内で細かい極性（電氣的プラスマイナス）構造を制御すると高機能なデバイスが実現できる。細かく制御して均一な周期構造を得るためには、核生成（初期の発生）過程の制御が重要であり高い密度が要求される。本研究では周期 $10\mu\text{m}$ 相当の微細構造を実現する、高密度発生条件が得られている。周期 $18\mu\text{m}$ のデバイスで、波長 532nm の緑色レーザーを波長 266nm の紫外光に変換することに成功した。極性制御による波長変換としては最短波長の記録であり、分野横断的に波及する可能性がでてきた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	4,900,000	1,470,000	6,370,000
2008年度	3,700,000	1,110,000	4,810,000
年度			
年度			
年度			
総計	8,600,000	2,580,000	11,180,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：誘電体、非線形光学、ツイーン、極性

1. 研究開始当初の背景

誘電体における極性構造の制御は新しい高次構造を生み出し新規機能を発現させる。高電界印加による周期的な分極反転構造をもつ非線形光学材料は、既に高効率擬位相整合 (QPM) 波長変換に適用されている。高電界印加の手法は自発分極をもつ強誘電体にしか適用できないため、波長領域を拡張するために強誘電体以外の材料では拡散接合や反転結晶成長による周期構造の導入が試みられてきた。これらの手法では光学損失が大きい、素子の長尺化・大面積化が難しい

などの問題があり、波長変換時に困難を伴う。一方水晶、BaB₂O₄ (BBO)、LiB₄O₇ (LBO) などは紫外 200nm 程度まで透明領域をもち、LiNbO₃ や KTiOPO₄ に比べて損傷しきい値が高いため、紫外光発生もしくは高出力の可視光発生において従来材料の限界を打破する材料になりうる。しかし分域 (ツイーン) の制御方法が存在しないため QPM の検討対象とされてこなかった。強誘電体以外の材料においてツイーンの制御技術が確立されれば、新たな非線形光学材料においても極性構造導入が可能になり、第二高調波発生 (SHG) や

光パラメトリック発振 (OPO) の波長範囲を拡げるだけでなく、新たな光 IC へも可能性が広がる。またツイン制御技術が確立することで圧電素子としても新たな自由度が獲得でき、高周波発振素子や温度無依存高周波フィルター等への展開も見通せる。従来我々が開発してきた強誘電体の手法とは全く異なる独創的な着想であり、エレクトロニクスデバイスへの波及効果も大きいことから大きな意義がある。またツインの発展過程は極性領域の揺らぎに起因する核発生現象から始まるものと考えられ、学術的にも核生成の物理に実験的知見を与える。

レーザーや非線形光学の分野において水晶は広く標準試料として用いられており、熱的にも化学的にも安定な材料であることが実証されている。屈折率分散や屈折率の温度係数が小さいことから波長変動、温度変動に対する許容度も大きく、BBO や CsLiB6O10 (CLBO) などの潮解性結晶しかなかった紫外領域では出力安定性や長期信頼性の問題を解決できるブレークスルーになりうる。非線形光学定数の大きい QPM-KTP、QPM-LN では損傷により数W程度に出力が制限されており、比較的損傷閾値の高い LBO でも変換効率の長期劣化が観測されるため一定時間後に照射位置を移動させる必要がある。損傷閾値の高い (>400MW/cm²@1064nm, 10ns pulse) 水晶ではさらなる高出力・長寿命が望め、メンテナンスフリーな真空紫外レーザーシステムを実現できる可能性がある。また CW レーザーで高い波長変換効率を得ようとするれば共振器が必要であるが、共振器構成では光学損失が最も重要であり、可視光の領域でも光学損失の小さい水晶は波長変換デバイスとして適している。

基礎物理からみた核発生・成長のプロセスは、分域の制御のみならず宇宙創生期のビッグバンとの類似点が語られており、密度揺らぎに起因する核発生現象が実験室の中で再現できる可能性もある。同様に微細周期ツインを実現する際に重要なのは、ツイン発生の際の高い核生成密度である。十分に高い核生成密度が得られなければツインの発生基点の数が不足し、微細な周期構造は得られない。一般に高温では高い核生成密度が得られるが、ツインウォールの移動速度が高くなるため、制御は困難になる。核生成条件の評価を行、微細構造を得られるパラメータ領域を見極めていく。

2. 研究の目的

応力印加による微細周期ツインの基礎特性評価および QPM 波長変換による特性評価を行う。水晶基板に垂直応力を印加して水晶のツイン形成特性を各作製パラメータにおいて評価し、精密制御に適した応力印加条件を探索していく。特に温度、印加時間、印加パルス波形は重要なパラメータであり、核生成密度やツインの異方性成長に与える影響の詳細な依存性を明らかにする。強誘電分域と同様に、ツインは微細周期になると制御が困難になる。特に深さ方向の拡がり (波長変換デバイスとしての実効的な開口を決定する) を確保しつつ、短周期化を進めることは容易ではない。ツインは深さ方向の伸張に伴い横方向に拡がり、多くの場合隣接するツインと接触して周期構造が破壊される。このためツインの形状自体に高いアスペクト比 (深さ/幅) を実現する方法を検討する。

3. 研究の方法

周期極性反転構造の作製には基板上に周期状に外力を印加する必要がある。垂直応力印加法において高いアスペクト比 (ツインの深さ/幅) が得られるため、周期ツインの形成には水晶表面に周期的段差を形成し垂直応力を印加する方法をとる。段差構造はフォトリソグラフィおよび反応性イオンエッチングを用いて形成される。段差構造を形成した後、応力印加装置を用いて部分的に応力を印加した (図 1)。応力印加装置は二つのヒーターブロックから成り、油圧もしくは空気圧を利用して応力を電氣的に制御している。段差面温度 325-375° として、上面のみ選択的にツイン発生させ周期構造を形成している。水晶の X 面に LED 光を入射し、直交偏光子による複屈折観察によりツイン形成過程の実時間観察を実現している。実時間観察系によりここではツインが Y 軸方向に成長することがわかったため高いアスペクト比を実現すべく結晶軸を選択している。微細ツインの振る舞いを観察し基本特性の評価を行った。

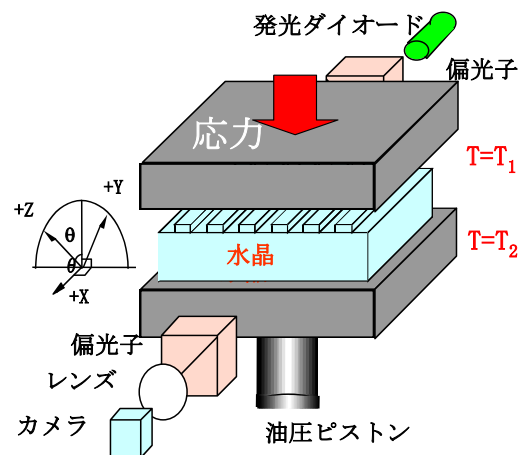


図 1 極性反転のための高温下応力印加法

バルク光学デバイスに適した周期ツイン構造を得るために、応力印加条件・基板温度・基板形状を検討対象として、以下の評価を行った。水晶基板に各温度において垂直応力を印加して水晶のツイン形成過程を実時間観察する。従来の微細ツインの制御条件を突破口として周期 $10\mu\text{m}$ のパラメータの探索を行いその振る舞いを調査した。ツイン形成のプロセスは強誘電体の分極反転と同様に四段階の過程を経る (図2)。これは a)核生成、b)Y軸方向伸張、c)面内成長、d)安定化の過程として知られている。均一な周期構造を得るために、a)における核生成プロセスが重要であり高い密度が必要である。バルクの光デバイスを実現するためには b)において高いアスペクト比 (深さ/幅) が要求される。ツイン同士の結合を抑制して周期構造を破壊しないためには、c)のプロセスの面内成長を精密に制御することが重要になる。周期構造の応力解放後のバックスイッチを抑制するために、d)の安定化のプロセスも検討しなければならない。

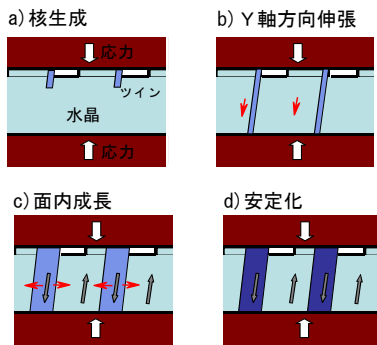


図2 ツイン形成の四過程

4. 研究成果

微細周期構造の制御を目的として高速応力印加装置を用いて短パルスを印加し核生成過程を実時間で評価した。核生成過程は応力・温度の強い関数であり、適切な制御を行う必要がある。実時間法を用いて各温度において核密度の評価を行い、極性反転の周期に対して要求される温度を求めたのが図3である。短周期に進むに連れて高い核密度を与える高温側に条件が移行することがわかる。目標とする周期 $10\mu\text{m}$ の微細周期ツインに対応する核生成密度が得られ、実時間画像にて周期構造が確認できた (図4)。高いアスペクト比が同時に得られていることがわかる。

得られた微細な周期構造の評価には、第二高調波発生 (SHG) における効率評価を用いた。ここでは波長可変チタンサファイアレーザー、温度スキヤニングシステムおよび2次元スキヤニングシステムを用いて計算値

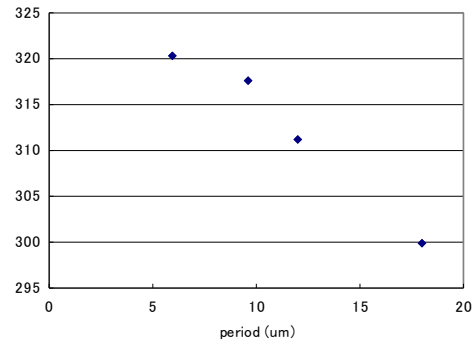


図3 各周期における反転温度

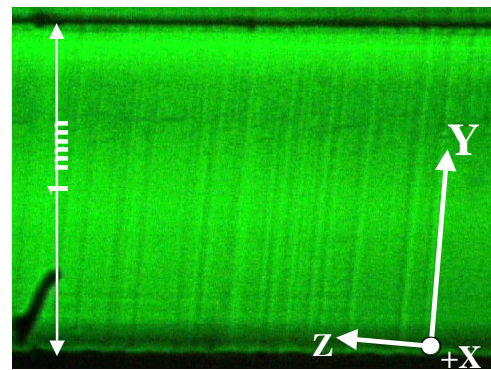


図4 微細周期ツイン用高核生成密度の実現

から推測される SHG の波長・温度プロファイルと実測値の比較対照を行った。波長許容幅から見積もられる相互作用長は約 2mm であり、実時間観察の結果よりも短い。これは実時間観察で確認できた構造の一部が応力解放時にバックスイッチしたものと考えられ d)安定化の条件にあっていなかったものと思われる。強誘電体のドメインウォールと同様に、応力印加時に極性領域の境界に弾性エネルギーが蓄積される可能性があり、これがバックスイッチを誘発するトリガーとも考えられる。試料の境界条件に変更を加えることで、弾性エネルギーを解放するなど、極性反転構造の安定化にさらなる研究が必要である。

また応力印加の際に下側ヒーターブロックの温度を制御することでツインのアスペクト比 (深さ/幅) を制御できることがわかり、微細な極性反転構造を制御するための基本的な知見を構築することができた。

安定的に得られた周期 $18\mu\text{m}$ の極性反転構造を用いて、第二高調波発生により波長 532nm の緑色光から紫外 266nm を得ることに成功し、相互作用長として約 2mm であることを確認している (図5)。

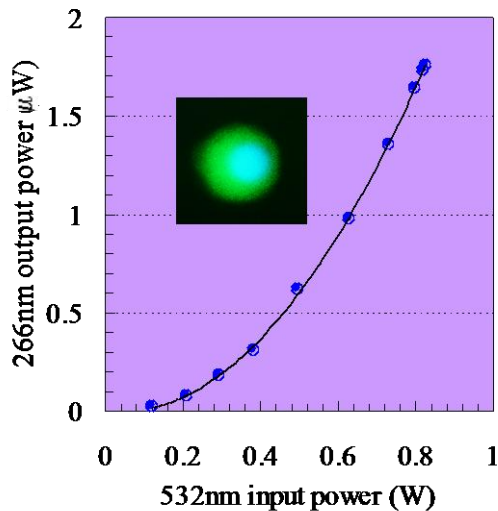


図5 SHGによる極性反転の確認

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計5件)

- ① 栗村直, 「在宅治療にむけた小型高効率レーザー波長変換デバイス」, 日本レーザー医学会誌, Vol. 28, pp. 404-410, 2008, 査読有
- ② 栗村直, 「レーザーディスプレイ用分極反転波長変換デバイス」, レーザー研究, Vol. 36, pp. 194-199, 2008, 査読有
- ③ H. Yokota, S. Kawado, J. Kaneshiro, Y. Uesu, S. Kurimura, "3D IMAGING OF INVERTED DOMAIN STRUCTURES BY CONFOCAL SHG INTERFERENCE MICROSCOPE", Integrated Ferroelectrics, Vol. 98, pp. 156-160, 2008, 査読有
- ④ 栗村直, 「バルクおよび導波路波長変換デバイスの現状と未来」, 光学, Vol. 36, pp. 232-240, 2007, 査読有
- ⑤ 原田昌樹, 栗村直, 山田毅, 足立宗之, 「真空紫外発生をめざす水晶波長変換デバイス」, 光学, Vol. 36, pp. 253-258 2007, 査読有

[学会発表] (計21件)

- ① 栗村直, 「マイクロドメイン制御デバイスの進展」, 第10回レーザー学会「マイクロ固体フォトニクス」専門委員会, 自然科学研究機構分子科学研究所, 岡崎市, 2009. 3. 26
- ② 栗村直, 「分極反転光デバイス」, 電子情報通信学会2009年総合大会, 愛媛大学城北地区, 松山市, 2009. 3. 17
- ③ 栗村直, 「新世代非線形波長変換とグリーンレーザーへの応用」, 基幹技術フォーラム, NEC相模原事業場内システム実装

研究所, 神奈川県, 2008. 12. 19.

- ④ S. Kurimura, "Recent advances in quasi-phase-matching nonlinear optics", IEEE Technical seminar, TELECOM ParisTech, Paris, France, 2008. 9. 29
- ⑤ 栗村直, 「レーザープロジェクタに向けた緑色レーザー技術」, 技術情報協会, 五反田ゆうぼうと, 東京都, 2008. 09. 11
- ⑥ 栗村直, 「レーザーディスプレイおよびレーザー光源の進展」, 情報機構セミナー, 東京理科大学森戸記念館, 東京都, 2008. 9. 5
- ⑦ 栗村直, 「分極反転波長変換デバイスの新展開」, 第69回応用物理学学会学術講演会, 中部大学春日井キャンパス, 春日井市, 2008. 09. 04
- ⑧ 中西淳, 足立宗之, 栗村直, 林健一, 「水晶の2次擬位相整合による266nm光の発生」, 第55回応用物理学関係連合講演会, 日本大学理工学部船橋キャンパス, 船橋市, 2008. 03. 28
- ⑨ 足立宗之, 中西淳, 栗村直, 林健一, 「水晶における極性反転と波長変換デバイス」, 第55回応用物理学関係連合講演会, 日本大学理工学部船橋キャンパス, 船橋市, 2008. 03. 27
- ⑩ 栗村直, 「分極反転光デバイス-その進展と拡がり-」, 第55回応用物理学関係連合講演会, 日本大学理工学部船橋キャンパス, 船橋市, 2008. 03. 27
- ⑪ 栗村直, 「緑色半導体レーザー原理・特性と高出力波長変換デバイスの現状・展望」, 情報機構セミナー, 大井町きゅりあん, 東京都, 2008. 3. 11
- ⑫ S. Kurimura, "Quasi-phase matched SHG for display application", The 6th Asia Pacific Laser Symposium, Nagoya Congress Center, Nagoya, 2008. 01. 31
- ⑬ S. Kurimura, M. Adachi, J. Nakanishi, K. Hayashi, "QPM Wavelength Converters Based on Crystal Quartz," 2008 Advanced Solid-State Photonics Topical Meeting, Nara Prefecture New Public Hall, Nara, 2008. 01. 29
- ⑭ S. Kurimura, M. Adachi, J. Nakanishi, K. Hayashi, "Crystal-quartz-based wavelength converter for deep ultraviolet generation," 13th Microoptics Conference, Sunport Takamatsu, Kagawa, 2007. 10. 31
- ⑮ 栗村直, 「非線形光学導波路デバイスの進展」, 第2回量子ICT運営会議, テレコム先端技術研究支援センター, 東京都, 2007. 10. 05
- ⑯ 足立宗之, 中西淳, 栗村直, 林健一, 「擬位相整合水晶波長変換デバイスの短周

- 期化」, 第 68 回応用物理学会学術講演会,
北海道工業大学, 札幌市, 2007.09.05
- ⑰ S. Kurimura, "Quasi-phase-matched
nonlinear optical devices", The 7th
Pacific Rim Conference on Lasers and
Electro-Optics, Convention &
Exhibition Center (COEX), Seoul, Korea,
2007.08.26
- ⑱ S. Kurimura, "Nonlinear optical
devices with polarization-reversed
structures" ISDS 2007, Ural State
University, Ekaterinburg, Russia,
2007.08.23
- ⑲ S. Kurimura, "Quasi-phase-matched
nonlinear-optical devices," ICONO/LAT
2007, National Cultural Center, Minsk,
Belarus, 2007.05.28
- ⑳ M. Adachi, S. Kurimura, K. Hayashi, K.
Kitamura, "Deep Ultraviolet Light
Generation at 266nm by
Quasi-Phase-Matched Quartz", CLEO2007,
Baltimore Convention Center,
Baltimore, USA, 2007.05.08
- ㉑ M. Harada, S. Kurimura, K. Kitamura, K.
Muramatsu, M. Ueda, "Polarization
Dependence of SHG Efficiency in
Periodically-Twinned QPM Quartz",
CLEO2007, Baltimore Convention Center,
Baltimore, USA, 2007.05.08

[産業財産権]

○取得状況 (計 1 件)

名称: 押圧装置および相転移型双晶を有する
水晶の製造方法

発明者: 栗村直

権利者: (独)物質・材料研究機構

種類: 特許

番号: 第 4209162 号

取得年月日: 2008.10.31

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

栗村 直 (KURIMURA SUNAO)

独立行政法人物質・材料研究機構・光材料セ
ンター・主幹研究員

研究者番号: 1 0 2 8 7 9 6 4

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし