

水晶の周期極性反転構造を目指して

霜野 貴也 (しもの たかや)

所属：工学研究科 電子情報系専攻

専門分野：応用分光計測学研究室

趣味：ヨット, ドライブ, YouTube



1. 研究背景

近年、半導体プロセスやレーシック（近眼治療）など、波長 200nm 以下の真空紫外レーザーが幅広く活用されており、その光源はエキシマレーザー（波長 193nm）が主役を担っております。しかし、そのガスレーザー特有の煩雑なガス交換や小型化の困難さから、固体素子としての真空紫外光の発生が求められております。現在、直接発光させる手法としては LED の研究が盛んに行われています。世界最短波長の LED としては波長 210nm の窒化アルミニウムが挙げられますが、真空紫外光発生となれば材料すら見出されておられません。

そこで、既存の可視光レーザーと非線形光学素子を用いて真空紫外光を発生させる、波長変換技術に着目しました。なかでも、水晶は赤外域から真空紫外域（吸収端波長 145nm）まで広い透明領域を有し、化学的安定性にも優れています。また、水晶振動子の市場で量産されているため、低コストで調達することができます。

2. 水晶を用いた波長変換の原理

物質中に光が入射した場合、入射光の電場 E によって振動する物質内の電子分極 P は真空の誘電率 ϵ_0 と物質の感受率 χ と電場 E を用いて以下のように表されます。

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} EE + \epsilon_0 \chi^{(3)} EEE + \dots$$

二次の非線形分極

レーザーのような集光された強い光に対しては電場の二乗に比例する、二次の非線形分極が無視できなくなり、これに対応した第二高調波（波長が 1/2 の光）が発生します。しかし、物質特有の屈折率の波長分散により、この第二高調波の進む速さが入射波のそれとは異なります。このため、結

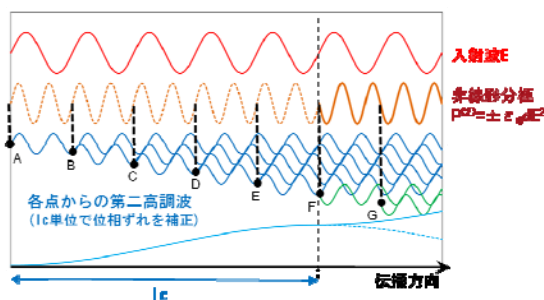
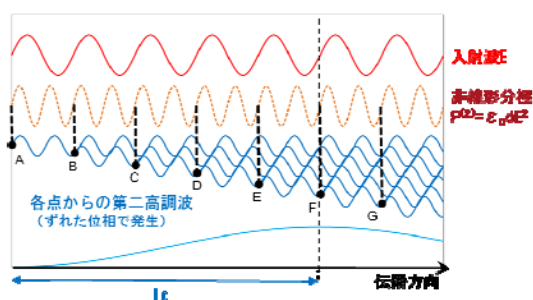


図 1 非線形媒質中での第二高調波の振る舞い。(上)位相不整合な状態。(下)疑似位相整合な状態。

晶の入り口付近で発生した第二高調波(図1のA点)と、内部で発生した第二高調波(B点からE点)では位相がずれて重なることになり、効率よく光が強め合うことができません。またF点以降では弱めあってしまいます。そこで、F点で結晶の極性軸方向を反転させることにより、F点以降の二次の非線形分極を反転させ、結果的にF点以降の光も強め合わせます。このように一定周期毎に極性を反転させ、最終的に強い第二高調波を得る技術を疑似位相整合といいます。

水晶は、加熱しながら十分な応力を加えることにより結晶構造を変化させることができます。図2のように、部分的に結晶構造を変化させると、極性軸が180°反転した状態(ツイン)をつくることができます。このツインを周期的に作成できれば水晶ツインを用いた疑似位相整合により真空紫外光を発生させることができます。これまで

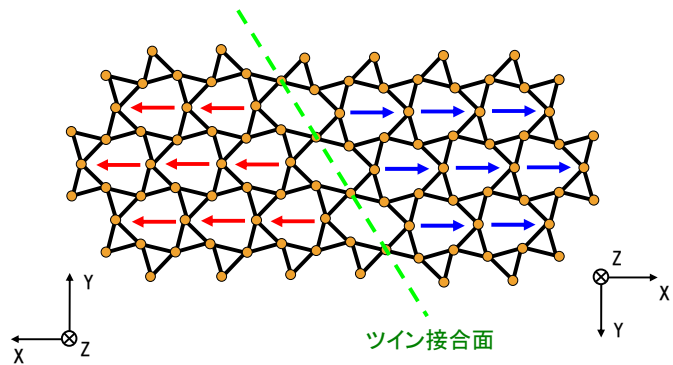


図2 水晶ツインの(0001)面上へのSi原子の投影.

に、水晶基板上に金属薄膜を形成し転移点直下で基板の熱膨張係数の差を使用して応力を印加する方法¹⁾や、水晶基板上に周期段差構造を作成しヒーターブロックで加熱しながら垂直応力を印加する方法²⁾などが検証されてきました。しかし、前者は形成されたツインの深さが数 μm 程度しか成長しないという課題があります。また最近、後者の手法を用いて周期9.6 μm の周期ツインを作成し、5次のQPM-SHGとして193.4 μm の真空紫外光の発生が報告されましたが、規格化変換効率 $1.8 \times 10^{-4}(\%/W)$ と、高効率波長変換には至っていません。また、加熱しながら水晶基板に対して数百MPaの垂直応力を印加するなど複雑な装置が必要で、水晶を破損しないよう高い精度が要求されます。

3. 曲げ応力による水晶ツインの作成

そこで私は、曲げ応力を用いてツインを発生させる手法に着目しました。実験の概観は図3の通りです。使用した水晶基板はATカット基板で曲げ応力を印加することを考慮して短冊型にカットしました(10mm×29mm×厚さ0.25mm~1mm)。実験には水晶基板に曲げ応力を印加しながら水晶の相転移温度(573°C)付近まで加熱できる加熱治具(材質には水晶基板への拡散を抑えるためインコネル合金を使用)を用いました。治具は幅10mmのレール、幅26mmのテーブル、おもり、本体からなります。図3(上)のように載せるおもりの枚数で

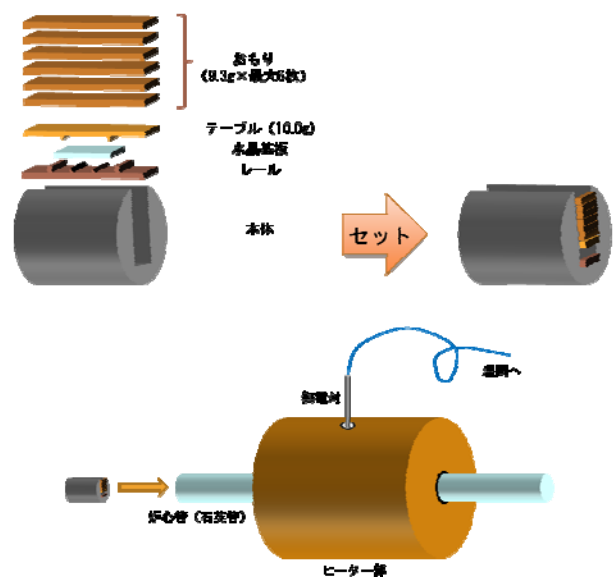


図3 (上)曲げ応力印加治具.(下)加熱装置の概観.

基板に印加する応力を制御できます。この治具を電気炉内に設置し加熱を行います。作成したツインを観察するためには、フッ酸を用いてエッチングを行います。結晶構造が反転したエリアではエッチングレートが低下するため、エッチング後、ツイン境界に対応した段差が現れます。

4. 実験結果

図4(下)がエッチング後の基板のイラストです。曲げ応力の分布に対応したような、二本の境界線(段差)が見えます。反転部(色がついている部分)と非反転部(白い部分)が発生しました。強い曲げ応力が印加された部分が、反転していません。つまり、この場合、曲げ応力が反転を抑止するようにはたらいたと考えることができます。また、この結果は参考文献³⁾の計算結果と一致します。

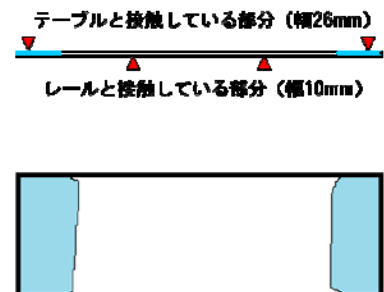


図4 (上)治具内での接点。(下)エッチング後の水晶基板(色がついている部分が反転エリア)。

5. まとめ

工作センターのご協力により加熱治具を作製頂きました。この加熱治具と電気炉を組み合わせた非常にシンプルな曲げ応力印加装置で水晶ツインを作成することができました。またそのツイン境界は直線的であり、疑似位相整合の実現には都合がよいと考えています。今後はいかに周期的に応力を集中させ、周期極性反転構造を作成するかに課題が移ることになります。



図5 炉心管内にセットした加熱治具。

【この装置を使った研究の発表】

T. Shimono, H. Matsukawa, N. Hirano, H. Kumagai, N. Fukuda, T. Takiya, N. Inoue, and K. Nakayama “Study on periodic twinning of quartz crystal under bending stress” Proc. SPIE, 7917(2011)63.

【参考文献】

- 1) 宮澤信太郎, 栗村直監修, 『分極デバイスの基礎と応用』, オプトロニクス社, 2005
- 2) 原田昌樹 他, “疑似位相整合水晶による波長 193nm 真空紫外光発生”, 第71回応用物理学会学術講演会, 16p-G-4 (2010)
- 3) 栗村直 他, “紫外波長変換をめざした疑似位相整合水晶”, 応用物理, 69(2000) 548-552