

無添加および MgO 添加定比組成 LiNbO₃ の電気光学定数精密測定

Accurate measurement of electro-optic coefficients of undoped and MgO-doped stoichiometric LiNbO₃

電気電子情報通信工学専攻 秋山 和己
16N5100002H Kazuki AKIYAMA

1. 研究背景・目的

ニオブ酸リチウム(LiNbO₃: 略称 LN)は電気光学(EO)結晶の中で最も代表的な結晶の一つであり、優れた非線形光学特性を持っていることから、光変調器や光スイッチなど、光情報処理等の分野に広く用いられている。このようなデバイスを正確に設計するには、EO 定数 r を高精度に測定することが重要である。組成比が Li:Nb=50:50 である定比組成 LiNbO₃(SLN)は最近になって二重のつぼチョクラルスキー(DCCZ)法により高品質結晶が作成可能になった。従来の Li:Nb=48.5:51.5 である一致溶融組成 LiNbO₃(CLN)に比べ吸収端が短いことや[1]、分極反転に必要な印加電圧が 5 分の 1 以下であり、分極反転構造を作りやすいこと[2]、耐光損傷性向上のための MgO 添加量が少なく済むといった優れた特性が報告されている[3]。電気光学定数については報告値が異なっており確定されていない。代表的な報告値を Table 1.1 に示す。T. Fujiwara らの報告では DCCZ 法により作成された高品質な結晶を使用しているが、直流電場印加法を用いており、光源である He-Ne レーザのパワー変動などの影響を考慮できなかった[4]。一方、J. A. de Toro らは測定に交流電場印加法を用いたことで、He-Ne レーザのパワー変動の影響を考慮した精度の高い測定を行っているが、使用した結晶の品質は不明であった[5]。

Table 1.1. 無添加 LN における過去の報告値(pm/V)

	Fujiwara <i>et al.</i> [4]		Toro <i>et al.</i> [5]	
	SLN	CLN	SLN	CLN
r_{33}	38.3 ± 1.4	31.5 ± 1.4	29.4 ± 0.2	31.4 ± 0.2
r_{13}	10.4 ± 0.8	10.0 ± 0.8	9.25 ± 0.07	10.49 ± 0.07

本研究では、DCCZ 法による高品質な結晶と交流電場印加法を用いた精度の高い測定方法を用いる事により精密測定を行う事で SLN および MgO 添加 SLN の電気光学定数を明らかにすることを目標とする。

2. 電気光学効果

電気光学効果は、結晶に電場を印加する事で屈折率が変化する現象である。特に屈折率が印加電場に比例して変化する効果をポッケルス効果と呼ぶ。ポッケルス効果における印加電場 E に対する屈折率 $n(E)$ は以下の関係で表すことが出来る。

$$n(E) = n - \frac{1}{2}rn^3E \quad (1)$$

電気光学定数 r は 6 行 3 列の 18 個のテンソル成分を持ったテンソル量であり、それぞれが物質固有の定数である。三方晶、点群 3m の LN において、電場を $\mathbf{E}=(0, 0, E)$ 、すなわち光軸に沿った方向に印加すると、常光線屈折率 $n_o(E)$ と異常光線屈折率 $n_e(E)$ は、

$$n_o(E) \approx n_o - \frac{1}{2}n_o^3r_{13}E \quad (2)$$

$$n_e(E) \approx n_e - \frac{1}{2}n_e^3r_{33}E \quad (3)$$

となる。本研究では LN 結晶に対して z 軸方向(光軸)に電圧を印加し、 z 軸偏光を入射する事で EO 定数 r_{33} 、 x 軸偏光を入射する事で r_{13} を測定する。

3. 電気光学定数測定原理

3.1 測定系

測定試料として日立金属社製の無添加 LN および MgO 添加 LN を使い、光源を He-Ne レーザ($\lambda_0 = 632.8 \text{ nm}$)としたマッハツェンダー干渉計を構築した。測定系を Fig. 3.1 に示す。ハーフミラー1 を透過した光はハーフミラー2 において経路 I₁ と経路 I₂ の

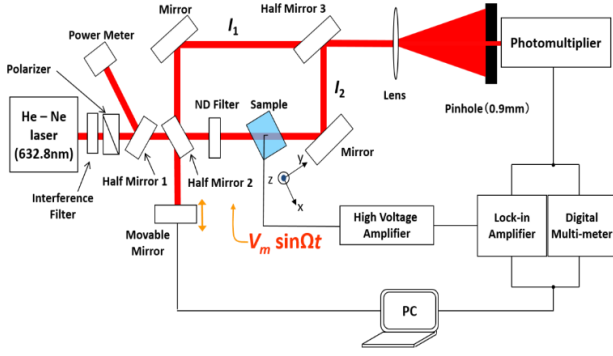


Fig.3.1. マッハツェンダー干渉計を用いた測定系

2 経路に分かれ、ハーフミラー3 でビームが重なる。その 2 経路の光路差によって干渉光が発生する。このときのビームをレンズで広げてからピンホールを通すことで干渉光の一点を取り出し、干渉光断面各場所における位相のずれの影響を減らしている。経路 I_1 において可動鏡を用いて光路長を変化させることで、静的位相差を与える。また、経路 I_2 には 9 mm ($// X$) x 10 mm ($// Y$) x 9 mm ($// Z$)の試料を挿入し、この試料の z 軸方向にロックインアンプから交流電圧 $V_m \sin \Omega t$ (周波数 $\Omega = 1$ kHz, 振幅 V_m) を高電圧増幅器により増幅し印加することで、電気光学効果に屈折率を変調させ動的な位相差を与える。結晶の z 軸方向と平行な偏光を入射した場合 r_{33} が、 x 軸方向と平行に偏光を入射した場合 r_{13} が有効となり測定が可能となる。これよりポラライザで適切な方向の偏光を取り出すことによって r_{33} 及び r_{13} を測定を行う。ここから生じる変調成分のうち、周波数 Ω の基本波成分と 2Ω の第 2 高調波成分をロックインアンプで測定する。これらの成分の振幅の比を使って電気光学定数を算出していくことで、He-Ne レーザのパワー変動や直流成分のゆらぎ、温度変動の影響を受けないため、高精度な測定が可能となる。

3.2 原理

光路 1, 2 の強度をそれぞれ I_1, I_2 としたとき、この 2 つのよりなる干渉光の強度は、

$$I = I_1 + I_2$$

$$+ \frac{2\sqrt{I_1 I_2}}{\Delta\phi} \int_{\Delta\delta_0}^{\Delta\delta_0 + \Delta\phi} \cos\left(\Delta\delta_0 + \frac{\pi}{V_\pi} V_m \sin \Omega t\right) d\Delta\delta_0 \quad (4)$$

と表せる。 $\Delta\delta_0$ は可動鏡の移動による位相変化、その次の項は試料に電圧を印加することで生じる電気光学効果による位相変化をそれぞれ表している。 $\Delta\phi$ は光電子増倍管に入射するレーザー光の位相幅である。また、 V_π は位相を π 変化させるために必要な半波長電圧であり、以下のように表すことができる。

$$V_\pi = \frac{\lambda z_s}{2y_s \left[(n_{e(o)} - 1) d_{32} - \frac{1}{2} n_{e(o)}^3 r_{3(1)3} \right]} \quad (5)$$

ここで、 z_s は試料厚さ、 y_s は結晶内での光路長、 d_{32} は圧電定数であり、 $d = -0.86 \pm 0.02$ pm/V を用いた。また、それぞれの結晶の屈折率を Table 3.1 に示す。ここで、式(4)をベッセル関数を用いてフーリエ級数展開すると、基本波成分と第二高調波成分は、

$$\Delta I_\Omega = -4\sqrt{I_1 I_2} J_1\left(\frac{\pi V_m}{V_\pi}\right) \frac{\sin\left(\frac{\Delta\phi}{2}\right)}{\Delta\phi} \sin\left(\Delta\delta_0 + \frac{\Delta\phi}{2}\right) \quad (6)$$

$$\Delta I_{2\Omega} = 4\sqrt{I_1 I_2} J_2\left(\frac{\pi V_m}{V_\pi}\right) \frac{\sin\left(\frac{\Delta\phi}{2}\right)}{\Delta\phi} \cos\left(\Delta\delta_0 + \frac{\Delta\phi}{2}\right) \quad (7)$$

となる。ここで J_1, J_2 はそれぞれ基本波と第二高調波のベッセル関数でありロックインアンプから振幅 $|\Delta I_\Omega|, |\Delta I_{2\Omega}|$ が得られる。これらの二つの振幅の比が

$$\frac{\Delta I_{2\Omega, m}}{\Delta I_{\Omega, m}} = \frac{J_2\left(\frac{\pi V_m}{V_\pi}\right)}{J_1\left(\frac{\pi V_m}{V_\pi}\right)} \quad (8)$$

となる。よって I_1, I_2 を含まないことから、He-Ne レーザの変動や測定系の揺らぎ、温度変動の影響や位相幅 $\Delta\phi$ を無視することが出来る。測定で得られる $V_m - \Delta I_{2\Omega, m} / \Delta I_{\Omega, m}$ 特性と式(8)を用いたフィッティングより半波長電圧 V_π を求めることができる。このようにして求めた V_π と式(5)から、電気光学定数 r を算出する。

Table 3.1. 各 LN の屈折率($\lambda=632.8$ nm)[6]

Crystal	n_o	n_e
Undoped SLN	2.2877	2.1913
1.7% MgO-doped SLN	2.2852	2.1889
Undoped CLN	2.2864	2.2027
3.0% MgO-doped CLN	2.2691	2.1924

4. 無添加及び MgO 添加 LN での EO 定数の決定

4.1 無添加 SLN の測定

試料に変調電圧 $V_m \sin \Omega t$ を印加し、可動鏡の位置を変化させたときの干渉光の基本波，第二高調波成分の可動鏡位置依存性を実験的に得た。

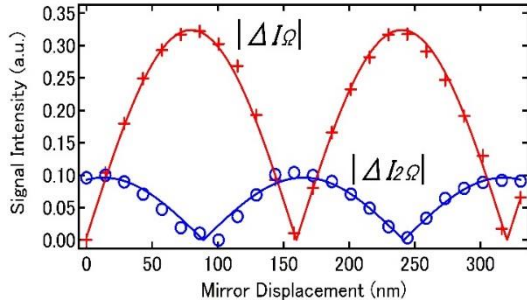


Fig.4.1. SLN の r_{33} における基本波，第二高調波の静的位相差依存性 ($V_m = 700$ V)

Fig.4.1 に無添加 SLN の r_{33} において，可動鏡位置 $\Delta\delta_0$ に対する基本波と第二高調波成分 $|\Delta I_\Omega|$ ， $|\Delta I_{2\Omega}|$ の依存性の結果を示す．同様の測定を印加電圧 $V_m = 200$ から 1000 V まで 100 V ステップで行う．これより得られた無添加 SLN，及び比較のため用いた CLN の $V_m - \Delta I_{2\Omega,m}/\Delta I_{\Omega,m}$ 特性を Fig.4.2 に示す．

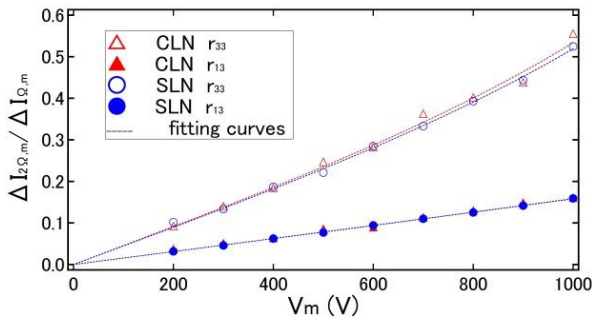


Fig.4.2. 無添加 SLN 及び CLN における $V_m - \Delta I_{2\Omega,m}/\Delta I_{\Omega,m}$ 特性

Fig.4.2 を式(8)でフィッティングすることで半波長電圧が求まり，無添加 SLN での r_{33} において $V_\pi = 1763 \pm 30$ V， r_{13} では $V_\pi = 5049 \pm 86$ V とそれぞれ得られた。

測定の精度を決定する主な要因は，基本波と第二高調波の振幅 $|\Delta I_\Omega|$ ， $|\Delta I_{2\Omega}|$ における測定誤差である．これらは半波長電圧 V_π を得る際の誤差原因となり， V_π が電気光学定数に与える誤差は 1.7% である．他の

要因として圧電定数，結晶内光路長，屈折率などが挙げられるが，これらを与える影響は合計で 0.2% 未満であり全体誤差は 2% 以下だと見積もることが出来る．無添加 SLN の電気光学定数 r_{33} ， r_{13} はそれぞれ，

$$r_{33} = 30.2 \pm 0.6 \text{ pm/V} \quad r_{13} = 9.1 \pm 0.2 \text{ pm/V}$$

と求まる．本研究では二つのサンプルを用いて再現性を確認したが，誤差の範囲以内で同じ値となった．

4.2 1.7 % MgO 添加 SLN の測定

LN では近赤外より短波長の強い光の照射により屈折率変化が生じ（光損傷），デバイスの動作不安定や効率低下の要因となる．そこで，LN と同等の非線形性を有し，耐光損傷性に優れた MgO 添加 LN が注目されている．耐光損傷性を増大させるための目的で MgO を添加する方法が一般的に用いられるが，SLN において耐光損傷性を最大にするために 1% 程の MgO 添加が必要である．本研究では 1.7% MgO 添加 SLN および比較用に 3.0% MgO 添加 CLN の測定を行った．得られた 1.7% MgO 添加 SLN，及び 3.0% MgO 添加 CLN の $V_m - \Delta I_{2\Omega,m}/\Delta I_{\Omega,m}$ 特性を Fig.4.3 に示す．

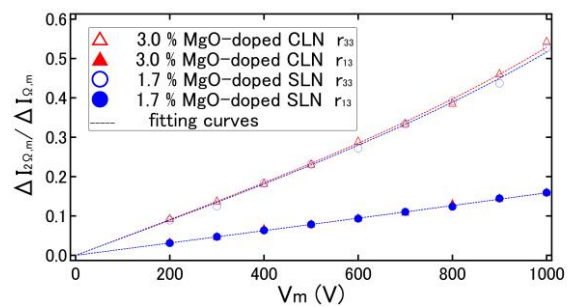


Fig.4.3. MgO 添加 SLN 及び CLN における $V_m - \Delta I_{2\Omega,m}/\Delta I_{\Omega,m}$ 特性

これより， 1.7% MgO 添加 SLN の半波長電圧 V_π は r_{33} ， r_{13} それぞれ 1770.3 ± 11.4 V， 5025.7 ± 20.3 V と得られる．したがって， 1.7% MgO 添加 SLN の電気光学定数は，

$$r_{33} = 29.8 \pm 0.6 \text{ pm/V} \quad r_{13} = 9.1 \pm 0.2 \text{ pm/V}$$

と決定した．

4.3 電気光学定数の波長依存性

これまでの光源とは別に波長が 405 nm の光源を用いて 4.2 と同様の測定を行った。Fig.4.4 に r_{33} での静的位相差 $\Delta\delta_0$ に対する基本波と第二高調波成分 $|\Delta I_{2\Omega}|$, $|\Delta I_{\Omega}|$ の依存性の結果を示す。

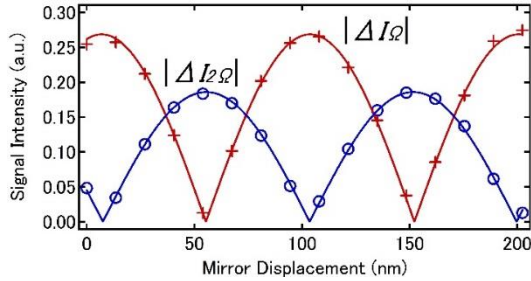


Fig.4.4. 紫光源を用いた 1.7% MgO 添加 SLN の r_{33} における基本波, 第二高調波成分の静的位相差依存性 ($V_m = 600$ V)

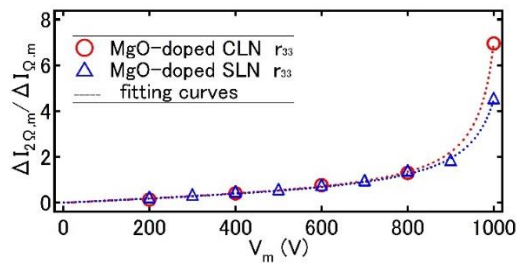


Fig.4.5. 紫光源を用いた MgO 添加 SLN 及び CLN における $V_m - \Delta I_{2\Omega,m}/\Delta I_{\Omega,m}$ 特性

得られた 1.7% MgO 添加 SLN, 及び 3.0% MgO 添加 CLN の $V_m - \Delta I_{2\Omega,m}/\Delta I_{\Omega,m}$ 特性を Fig.4.5 に示す。これより, 1.7% MgO 添加 SLN の r_{33} の半波長電圧 $V_{\pi} = 875.4 \pm 0.9$ V となった。したがって, 波長 405 nm における 1.7% MgO 添加 SLN の電気光学定数は,

$$r_{33} = 39.2 \pm 0.8 \text{ pm/V}$$

と決定した。Table 4.1 に本研究における全ての LN 結晶の電気光学定数の結果をまとめる。

Table 4.1. 本研究における無添加及び MgO 添加 LN の電気光学定数

Crystal	$\lambda = 632.8 \text{ nm}$		$\lambda = 405 \text{ nm}$
	r_{33} (pm/V)	r_{13} (pm/V)	r_{33} (pm/V)
Undoped SLN	30.2 ± 0.6	9.1 ± 0.2	
1.7% MgO-doped SLN	29.8 ± 0.6	9.1 ± 0.2	39.2 ± 0.8
Undoped CLN	30.3 ± 0.6	9.5 ± 0.2	
3.0% MgO-doped CLN	30.1 ± 0.6	9.3 ± 0.2	39.1 ± 0.8

無添加及び MgO 添加 SLN, CLN の屈折率の差は 1% 未満で[6]あり, また無添加及び MgO 添加 SLN の二次非線形光学定数においても無添加 CLN と 5% 未満差である[7]。これにより SLN と CLN の Li/Nb 比が 5% の差があっても, また MgO が数 % 含まれていることが巨視的な光学特性にほとんど影響しないこと, 及び電気光学定数には波長依存性があることが分かった。

5. 総括

He-Ne レーザ ($\lambda = 632.8 \text{ nm}$) を光源に, 交流電圧印加法による高精度な測定法と, 二重つぼ法による高品質な結晶を用いることで今まで確定に至らなかった SLN の電気光学定数 r_{33} 及び r_{13} を決定し, 耐光損傷に優れた 1.7% MgO 添加 SLN の測定も行った。更に波長が吸収端に近い 405 nm の光源を用いて波長分散特性を明らかにすることもできた。今後は光源の安定性の確保や, 他波長での測定も視野に入りたい。

謝辞

本研究を取り組むにあたり, 多くのご指導とご助言を頂いた庄司一郎教授に深く感謝いたします。また, 庄司研究室の仲間にも深く感謝いたします。

参考文献

- [1] K. Kitamura *et al.*, J. Cryst. Growth **116**, 327-332 (1992).
- [2] S. Ganesamoorthy *et al.*, Mater. Sci. Eng. **B120**, 125 (2005).
- [3] Y. Furukawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **77**, 2494-1496 (2000).
- [4] T. Fujiwara *et al.*, Electron. Lett. **35**, 499-501 (1999).
- [5] J.A. de Toro *et al.*, Opt. Commun. **154**, 23 (1998).
- [6] S. Nuki *et al.*, OSA Technical Digest, paper NW4A.28.
- [7] I. Shoji *et al.*, OSA Technical Digest, paper WE30.