

## 定比組成 $\text{LiNbO}_3$ 及び $\text{LiTaO}_3$ の屈折率温度依存性精密測定

Accurate measurements of temperature-dependent refractive indices of stoichiometric  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$

電気電子情報通信工学専攻 岩本 祐輝

19N5100005G Yuki IWAMOTO

### 1. はじめに

定比組成  $\text{LiNbO}_3$  (SLN),  $\text{LiTaO}_3$  (SLT) は高品質結晶が作製可能になり, 従来的一致熔融組成  $\text{LiNbO}_3$  (CLN),  $\text{LiTaO}_3$  (CLT) に比べ吸収端が短いことや, 分極反転に必要な印加電圧が5分の1以下であるなど優れた性能が複数報告されていることから波長変換材料として研究が活発に行われている. SLN, SLT は電気光学定数や非線形光学定数が大きい, 光損傷も大きくなる. 光損傷とは入射した光の空間的強度分布に応じて結晶内に屈折率変化が誘起される現象のことであるが, Mg-doped により耐光損傷耐性が向上される.

波長変換デバイスを設計するためには, 屈折率を高い精度で得ることが不可欠である. 波長変換デバイスを作製するにあたり屈折率は  $1 \times 10^{-4}$  以下の精度が必要であり,  $10^{-3}$  程度の測定精度でのデバイス作製では最適効率の4割程度となってしまいう事もある. しかしながら, これまで SLN, SLT の屈折率はプリズムカップラー法によって測定された  $10^{-3}$  程度の精度でしか報告されていなかった[1,2]. 本研究では過去に, 温度  $23^\circ\text{C}$  の条件で無添加及び Mg 添加 SLN, SLT の屈折率を波長  $399\text{-}1545\text{ nm}$  の範囲で  $1 \times 10^{-4}$  の精度で直接測定し, その範囲で有効な Sellmeier 方程式を導出している.

さらに SLN, SLT は光パラメトリック発振(OPO)などにも期待されている. OPO による波長変換では, 波長変換材料の温度を変化させ, 屈折率を変化させることで, 出力波長を連続的に変化させることができるが, SLN と SLT の屈折率温度依存性は直接測定されていなかった. そこで, 本研究では無添加及び Mg 添加 SLN, SLT の屈折率温度依存性の直接測定を目的とする.

### 2. 測定試料

測定試料として, オキサイド社製の無添加 SLN, 1.3 mol% Mg 添加 SLN, 無添加 SLT, 1.0 mol% Mg 添加 SLT を用いた. 試料はそれぞれ, 頂角約  $30^\circ$ , 側面約  $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$  の二等辺三角形の形状を持つプリズムである. SLN, SLT とも一軸結晶であるので, p 偏光として常光線屈折率  $n_o$ , s 偏光として異常光線屈折率  $n_e$  両方を測定可能にするため, 図 2.2 のように光軸 (Z 軸) を二等辺三角形の面と垂直に取った. 作製した結晶の軸のずれは無添加 SLN, 1.3 mol% Mg 添加 SLN, 無添加 SLT, 1.0 mol% Mg 添加 SLT において Z 軸と Y 軸ともに6分以下である. 光軸のずれによる屈折率の誤差率は  $\pm 1 \times 10^{-6}$  以下であった.

また, 測定用光源には, Nd:YVO<sub>4</sub> レーザの基本波 ( $1064\text{ nm}$ ) と第2高調波発生 ( $532\text{ nm}$ ), Hg ランプ ( $436, 546, 577, 579\text{ nm}$ ), He-Ne レーザ ( $633\text{ nm}$ ), 近赤外半導体レーザ ( $671, 782, 818, 981, 1311, 1545\text{ nm}$ ) を用いた. 可視光は肉眼で, 赤外光は IR ビューアを使用することによって屈折光を観測した.

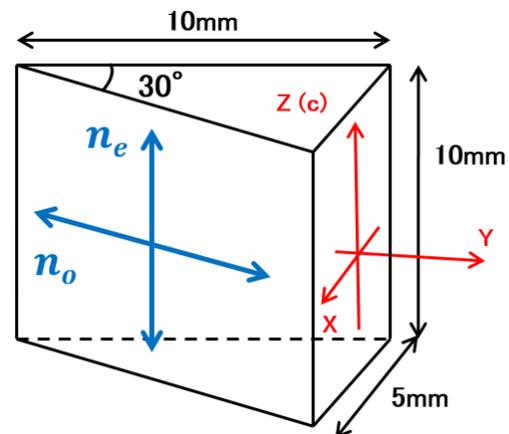


図 2.1 測定用プリズム

### 3. 測定方法

本研究では屈折率の絶対値を最も高い精度で得られる最小偏角法で測定した。測定にはデジタル精密分光計（島津デバイス製造，GM-1D）を使用し，組み込まれているロータリーエンコーダにより±1 秒の精度で角度測定が可能となっている。

最小偏角法の原理を図 3.1 に示す。プリズムの側面から，コリメータを通した測定光源の光を入射し，反対側の側面から出射した光をテレメータで観測する。ここで入射角  $\theta_1$  と出射角  $\theta_2$  が同じ角度になったとき，偏角  $\delta$  は最小値  $\delta_{min}$  をとる。空気の屈折率を  $n_{air}$  とすると，プリズムの屈折率を  $n$  は(3.1)式で示される。従って，屈折率の精度はプリズムの頂角と最小偏角の精度で決定する。本研究では，空気の屈折率は 1.00027 として計算している。

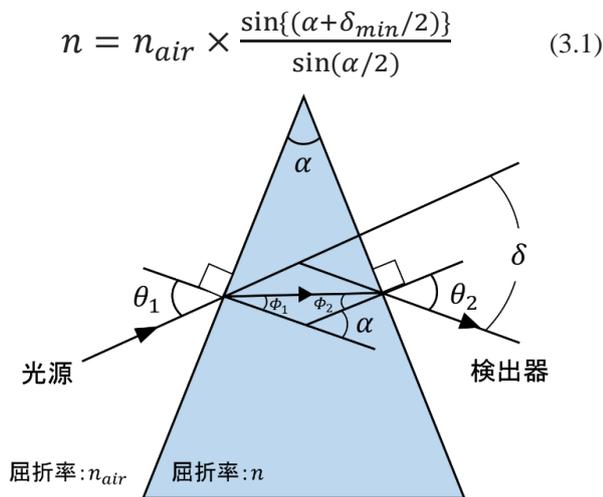


図 3.1 最小偏角法の原理

### 4. 屈折率温度依存性の測定

屈折率温度依存性を測定するためには，結晶の温度を測定したい温度で均一に保つために結晶から外気へ熱が逃げることを防ぐ必要がある。そこで，本研究では図 3.1 に示すアルミニウム製の結晶ホルダーを用いて屈折率温度依存性の測定を行った。温度センサ①でアルミニウムに差し込み，ホルダーの温度を観測し，温度センサ②はホルダー上部の穴からホルダー内に吊り，ホルダー内部の空気の温度を観測する。ホルダー側面にペルチェ素子を固定し，温度センサ①を観測しながらホルダーの温度を調節する。ホルダーの温度を制御することでホルダー内部の空気の温度を制御し，温度

センサ②が表示する温度が測定温度になるように調節する。測定光源からの光は，ホルダーの側面にある幅 2 mm のスリットを通して測定を行う。

測定温度は 23-70 °C の範囲で，±0.1 °C の精度で制御した。また，最小偏角法による屈折率の測定では結晶の頂角の値が重要であるが，結晶の温度を変化させることによって熱膨張し頂角が変化することも考えられる。しかし SLN, SLT の熱膨張率が光軸に垂直な方向に一定であることから本研究においては無視できるものであると考えられる。実際に 23 °C と 70 °C で頂角を測定したが，その差は±1×10<sup>-5</sup> 以下であり，測定機器による誤差の範囲内であったことから本研究では温度による膨張は無視している。

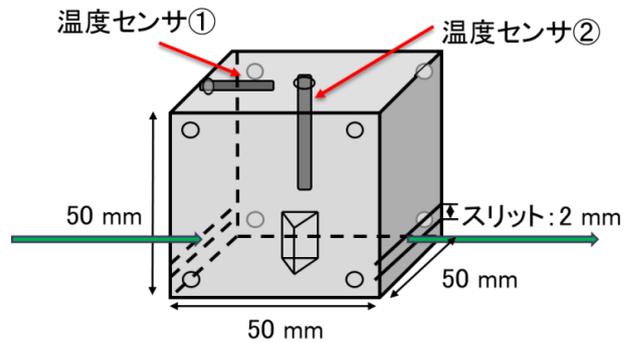


図 4.1 温度依存性測定用ホルダー

### 5. 過去の報告値との比較と Sellmeier 方程式の導出

過去に無添加 SLT の異常光線屈折率  $n_e$  については Bruner ら[3]に，1.0 mol% Mg 添加 SLT の異常光線屈折率  $n_e$  については Lim ら[4]によってそれぞれ温度依存性を含む Sellmeier 方程式が報告されている。過去の報告値と本研究の測定値の比較を行った。例として 1.0 mol% Mg 添加 SLT の異常光線屈折率の波長 532 nm と 981 nm と 1545 nm における比較をそれぞれ図 5.1-図 5.3 に示す。532 nm, 1545 nm とともに本研究の値の方が過去の報告値よりも屈折率の絶対値は大きく，温度係数も大きかった。これは本研究で測定した他の波長の比較においても同様の結果であり，無添加 SLT においても，本研究の測定値の方が屈折率の絶対値は大きく，温度係数も大きかった。また，長波長になるにつれて過去の報告値では温度

係数が 0 に減衰していくのに対し、本研究の測定値では長波長においても  $10^{-5} \text{ K}^{-1}$  程度の有していた。そこで、本研究では過去の報告では含まれなかった Sellmeier 方程式の長波側への寄与である右辺第 3 項にも温度依存性を加えて最小 2 乗 fitting を行った。その式を(5.1)式に示す。ここで、 $\lambda$  は波長( $\mu\text{m}$ )、 $T$  は温度( $^{\circ}\text{C}$ )を表す。

$$n^2(\lambda, T) = A + \frac{B+b(T)}{\lambda^2 - [c+d(T)]^2} + \frac{E+e(T)}{\lambda^2 - [F+f(T)]^2} + D\lambda^2 \quad (5.1)$$

本研究の測定値を元に温度依存性を含む Sellmeier 方程式の導出を行ったところほとんどの波長と温度において  $1 \times 10^{-4}$  の制度で測定値と一致させることに成功した。例として、1.0 mol%Mg 添加 SLT の測定値と導出した Sellmeier 方程式の理論値との比較を図 5.4 に示す。グラフには見づらくなるのを防ぐため 0.05 ずつオフセットをかけている。

一方で、本研究の測定値と過去の報告値で基本波波長を 1064nm とした第 2 高調波発生におけるコヒーレンス長の比較を行ったところ、無添加 SLT, 1.0 mol% Mg 添加 SLT とともにコヒーレンス長が 0.5% 以内で一致した。過去の報告では波長変換実験を元にコヒーレンス長つまり屈折率の差を求めており、そこから屈折率波長分散式を導出していた。また、波長分散式の初期値にはプリズムカップラー法によって求められた  $\pm 1 \times 10^{-3}$  以下の精度のデータを用いていた[1,2]。そのため屈折率の差は正しく求まるが、屈折率の絶対値と温度依存性は正しくない可能性があった。それに対し、本研究では最小偏角法を用いて屈折率の絶対値を直接測定しているため、屈折率の絶対値および温度依存性が正しく求まり、屈折率の差も正しく求まったと考えられる。コヒーレンス長がよく一致していたことを利用して、本研究では(5.2)式を用いて無添加 SLT, 1.0 mol% Mg 添加 SLT の長波長(無添加 SLT は 3600 -4100 nm, 1.0 mol% Mg 添加 SLT は 3400 -3600 nm)における異常光線屈折率  $n_e$  を求め、長波長域にも対応する Sellmeier 方程式の導出をした。

$$L = \frac{1}{2 \left\{ \frac{n_e^{pump}}{\lambda_p} - \left( \frac{n_e^{signal}}{\lambda_s} + \frac{n_e^{idler}}{\lambda_i} \right) \right\}} \quad (5.2)$$

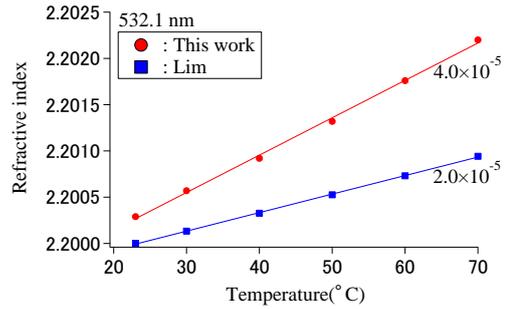


図 5.1 1.0 mol% Mg 添加 SLT の波長 532 nm における異常光線屈折率  $n_e$  の比較

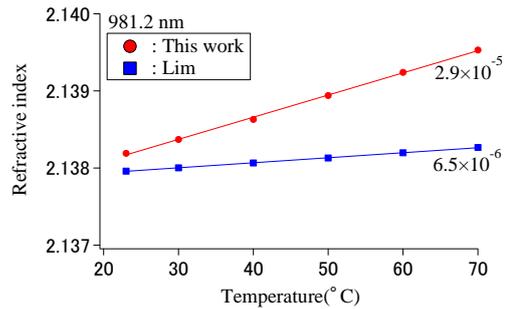


図 5.2 1.0 mol% Mg 添加 SLT の波長 981 nm における異常光線屈折率  $n_e$  の比較

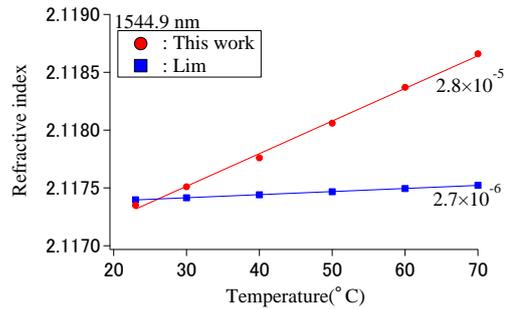


図 5.3 1.0 mol% Mg 添加 SLT の波長 1545 nm における異常光線屈折率  $n_e$  の比較

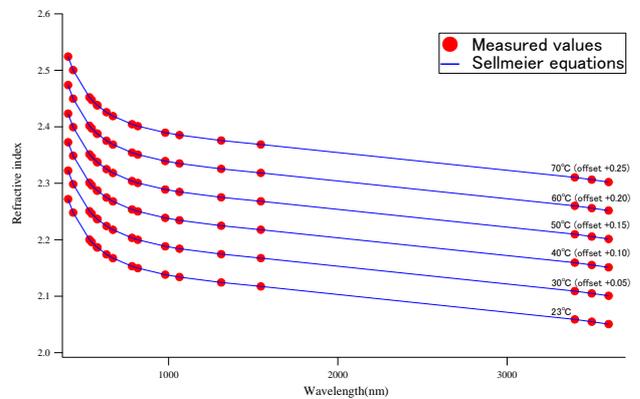


図 5.4 1.0 mol% Mg 添加 SLT の異常光線屈折率  $n_e$  の比較

## 6. 総括

本研究では、無添加及び 1.3 mol% Mg 添加 SLN, 無添加及び 1.0 mol% Mg 添加 SLT について温度 23–70 °C の範囲で最小偏角法を用いた屈折率の絶対値の直接測定をした。測定用光源には、Nd:YVO<sub>4</sub> レーザの基本波(1064 nm)と第 2 高調波発生(532 nm), Hg ランプ(436, 546, 577, 579 nm), He-Ne レーザ(633 nm), 近赤外半導体レーザ(671, 782, 818, 981, 1311, 1545 nm)を使用した。本研究で測定した値と過去に報告された屈折率分散式から求めた屈折率を比較した結果, 絶対値および温度係数はすべての波長においていずれも本研究の方が大きくなり, 一致しなかった。その一方で基本波波長を 1064 nm としたときの第 2 高調波発生におけるコヒーレンス長での比較では 0.5% 以内で一致するという結果になった。過去の報告では波長変換実験の結果からコヒーレンス長つまり屈折率の差を求めており, その値を元に間接的に屈折率を求めている。そのため屈折率の差は正しく求まっているが屈折率の絶対値は正しくない可能性があった。それに対して本研究では最小偏角法によって屈折率の絶対値を直接測定しているため屈折率の絶対値, 温度係数, コヒーレンス長が正しく求めたと考えられる。以上のことより本研究では無添加及び 1.3 mol% Mg 添加 SLN, 無添加及び 1.0 mol% Mg 添加 SLT の屈折率温度依存性を正しく測定できた。また, コヒーレンス長がよく一致したことを利用して過去に報告されたコヒーレンス長と本研究の測定値から無添加 SLT と 1.0 mol% Mg 添加 SLT の長波長域の異常光線屈折率を算出した。そして本研究で測定した値を元にして温度依存性をも含む Sellmeier 方程式の導出を行い, ほとんどの波長と温度において測定値と  $1 \times 10^{-4}$  の精度で一致させることに成功した。

今回, 無添加 SLT と 1.0 mol% Mg 添加 SLT の長波長域の異常光線屈折率は実測値から算出した間接的な値である。また, 無添加 SLN と 1.3 mol% Mg 添加 SLN の常光線屈折率と異常光線屈折率, 無添加 SLT と 1.0 mol% Mg 添加 SLT の常光線屈折率の直接測定はできていない。そこで, 長波長域の屈折率の直接測定が今後の課題である。

## 7. 謝辞

本研究に取り組むにあたり, 指導教官である中央大学庄司一郎教授には, 本研究の全てにわたって親身のご指導をいただき, 深く感謝致します。また, ともに研究を進めた研究室の皆さまには, 誠に感謝しております。

## 8. 参考文献

- [1] M. Nakamura, S. Higuchi, S. Takekawa, K. Terabe, Y. Furukawa, K. Kitamaru "Optical Damage Resistance and Refractive Indices in Near-Stoichiometric MgO-Doped LiNbO<sub>3</sub>," Jpn. J. Appl. Phys. **41**, L49 (2002).
- [2] M. Nakamura, S. Higuchi, S. Takekawa, K. Terabe, Y. Furukawa, K. Kitamaru "Refractive Indices in Undoped and MgO-Doped Near-Stoichiometric LiTaO<sub>3</sub> Crystal," Jpn. J. Appl. Phys. **41**, L465 (2002).
- [3] Ariel Bruner, David Eger, Moshe B. Oron, Pinhas Blau, Moti Katz, Shlomo Ruschin "Temperature dependent Sellmeier equation for the refractive index of stoichiometric lithium tantalite" Opt. Lett. **28**, 194 (2003).
- [4] Hwan Hong Lim, Sunao Kurimura, Toshio Katagai, Ichiro Shoji "Temperature-Dependent Sellmeier Equation for Refractive Index of 1.0mol% Mg-doped Stoichiometric Lithium Tantalite" Jpn. J. Appl. Phys. **52**, (2013).

## 9. 研究業績

- [1] 岩本祐輝, 川島潤也, 庄司一郎: "定比組成 LiNbO<sub>3</sub> 及び LiTaO<sub>3</sub> の屈折率温度依存性精密測定 IV" 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 2019 年 9 月, 北海道大学(18a-E205-9)
- [2] 岩本祐輝, 加賀美侑希, 鈴木奏哉, 川島潤也, 庄司一郎: "定比組成 LiNbO<sub>3</sub> 及び LiTaO<sub>3</sub> の屈折率温度依存性精密測定" 第 41 回レーザー学会学術講演会, 2021 年 1 月, オンライン開催(F02-19p-VI-02)