

令和 6 年 6 月 8 日現在

機関番号：34303

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04714

研究課題名（和文）超高速広角レーザースキャナーに向けた新電気光学結晶の研究

研究課題名（英文）Research on novel electrooptic crystals for ultrafast and wide-angle laser scanners

研究代表者

今井 欽之（Imai, Tadayuki）

京都先端科学大学・工学部・教授

研究者番号：70566695

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000 円

研究成果の概要（和文）：KTa_{1-x}Nb_xO₃ (KTN) 結晶の電気光学効果（電界印加で屈折率が変化する現象）を用いた光スキャナは、従来のデバイスよりも圧倒的に高速であり、レーザー加工を革新的に高性能化する可能性を秘めている。偏向角が小さいことが課題であり、屈折率変化量 Δn の飛躍的増大のため、本研究では誘電特性の検討を行った。市販のKTN結晶の多くにはLiが添加されているが、本研究により、Liの添加量を少なくすることで、格段に高い誘電率が得られ、さらにLiを多く含むものと同様に電界に誘発された相転移が起こり、分極が急増することが確認された。これより、Li添加量が少ないKTNで Δn が飛躍的に増大することが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光スキャナは、レーザー光線の向きをスキャンするデバイスである。レーザー加工を含む光を用いる造形技術において威力を発揮するが、加工精度向上や加工品内部の歪の低減のため、スキャンの高速化が期待される。従来の機械式デバイスでは高速化に限界があることから、非常に高速な電気光学効果を用いたスキャナが注目されている。ただし、偏向角が小さいことが課題であり、解決のためには材料であるKTN結晶の屈折率変化 Δn の増強が必須である。本研究の成果は、この屈折率変化量を現状よりも一桁以上改善できることを示唆しており、この光スキャナの偏向角を一桁近く改善し、レーザー加工技術に大きな革新をもたらす可能性を示している。

研究成果の概要（英文）：Optical scanners that use the electrooptic effect (a phenomenon in which the refractive index changes when an electric field is applied) of KTa_{1-x}Nb_xO₃ (KTN) crystals are overwhelmingly faster than conventional devices. They have the potential to dramatically improve the performance of laser processing. The problem is that the deflection angle is small. To solve this problem, considerable amount of increase in the refractive index change Δn is required. In this study we investigated dielectric properties of KTN to realize this. Most commercially available KTN crystals are doped with Li. This research has shown that a significantly higher dielectric constant can be obtained for a KTN crystal with less doping ratio of Li. Moreover, for this crystal, we observed drastic increase in polarization due to field induced phase transition as well as crystals with high doping ratio. This suggests that we can realize ultrahigh Δn for KTN with a small amount of Li added.

研究分野：電気光学結晶材料およびデバイス

キーワード：KTN 電気光学効果 光偏向器 レーザースキャナ 誘電特性

1. 研究開始当初の背景

タンタル酸ニオブ酸カリウム($\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$, KTN)の結晶を用いた光偏向器は、KTN の優れた電気光学効果を活用し、屈折率変調によって光線を曲げるビームスキャナである。可動部がないため、従来の機械式ビームスキャナと比べてはるかに高速に動作し、たとえばレーザー加工機の性能も革新的に進歩させる可能性を秘めている。しかしこの光偏向器には、偏向角がやや小さいという問題点があった。10 度程度にとどまる偏向角は、数 10 度はある他の偏向器に比べて見劣りする。デバイス設計による改善にも限界があり、それは KTN で電気光学効果による屈折率変化がどれだけとれるかによって決まっている[1]。つまり、数 10 度クラスの偏向角をこの偏向器で実現するためには、屈折率変化量 Δn の大きさを 1 桁改善する必要がある。

2. 研究の目的

報告者の最終目標は、数 10 度クラスの偏向角を有する KTN 光偏向器の開発のため、KTN の電気光学効果において大きさ 10^{-2} を超える Δn を実現することである。電気光学効果は、物質に電界を印加することによって屈折率が変化する現象とされるが、KTN を含む多くの酸化物電気光学結晶では、結晶格子を構成する陽イオンと陰イオンの相対位置関係が、電界を印加したときに変化することが屈折率変化の直接原因であると考えられる。この相対位置変化はいわゆる分極という形で評価することができ、つまり Δn を改善するためには分極の増大が必要だと考えている。分極は、印加電界が弱いときには電界に比例し、その比例定数はほぼ誘電率に等しく、誘電率は KTN 結晶の組成と温度に依存する。また、電界が強くなると比例からずれていく。KTN 結晶は、結晶成長の都合でリチウム(Li)を添加することが多く、市販の結晶の多くはリチウムを含んでいて、またこのリチウムは KTN 結晶の誘電特性(印加電圧と分極との関係性)に影響を与えるとされている。このため本研究では、KTN の分極に着目し、印加電界に対する応答がリチウム濃度とどのように関係していくかを検討し、分極の増大を追求することとした。

3. 研究の方法

(1) KTN 結晶

試料としては、基本的に単結晶を用いた。結晶成長法は、KTN に一般的な top seeded solution growth(TSSG)法である。KTN の結晶構造はペロブスカイト型の立方晶であるが、温度を下げると正方晶に相転移し、この相転移温度付近ではキュリーワイス則に従って誘電率が増大する。比誘電率は 10,000 を越え、これが大きな分極を発生させ、非常に大きな電気光学効果を発現する。一方、相転移温度は組成に強く依存し、一般的に ABO_3 と表記されるペロブスカイト型結晶の B サイトを占めるタンタル(Ta)とニオブ(Nb)の割合によっても変化するし、A サイトを占めるカリウム(K)をリチウムが置き換える割合にも依存する。高い誘電率を利用するため、相転移温度が室温付近になるような組成が選択されるのが一般的であり、リチウムの入っていないものの組成はおおよそ $\text{KTa}_{0.65}\text{Nb}_{0.35}\text{O}_3$ 、リチウム 5 % 添加のものはおおよそ $\text{K}_{0.95}\text{Li}_{0.05}\text{Ta}_{0.73}\text{Nb}_{0.27}\text{O}_3$ である。本研究でもこれらの組成を用いた。

(2) 試料

立方晶であるので、(100)面で切り出して研磨し、 $3.2\text{ mm} \times 4.0\text{ mm} \times 1.2\text{ mm}$ のサイズに整形している。 $3.2\text{ mm} \times 4.0\text{ mm}$ の二面に電極膜を形成し、この電極間に電圧を印加することにより、 1.2 mm の方向の電界を印加している。KTN は高い誘電率の影響で、数 100 V の電圧を印加したとき、KTN 結晶に電極から電子が注入されやすくなる。注入された電子は結晶中にトラップされて負の空間電荷を形成するため、結晶内の電界は場所によって変化し、均一でなくなる。正確な誘電特性の測定のためには、電子の注入を防ぐ必要があり、このために白金の膜を KTN 結晶に堆積して電極とした。白金の仕事関数の大きさのため、KTN との界面には障壁が形成され、電子の KTN への注入を抑えている。

(3) 誘電特性の測定

測定は、上記の試料をペルチェ素子とサーミスタを使って 0.1°C 以下の精度で温度調節した銅ブロックに取り付けて行った。銅ブロックは電極を兼ねている。上記のように、試料の構造は平行平板コンデンサそのものであるので、この試料のキャパシタンスを LCR メータで測定することにより、誘電率を得た。キャパシタンス測定時の周波数は 1 kHz、印加最大電圧は 1 V である。試料の電極ギャップが 1.2 mm であるので、1 V は 833 V/m (0.0083 kV/cm)の電界に相当し、一般的なコンデンサに比べて十分に小さい電界である。

4. 研究成果

(1) 誘電率の組成による違い

誘電体に外部電界 E を印加したときの誘電体中の電束密度を D 、分極を P とすると、 $D = \epsilon E = \epsilon_0 E + P$ である。ここで ϵ は誘電体の誘電率、 ϵ_0 は真空の誘電率で、 ϵ はさらに比誘電率

ϵ_r を用いて $\epsilon_0\epsilon_r$ と表される。つまり $P = \epsilon_0(\epsilon_r - 1)E$ であり、比誘電率が 10,000 を越えるような KTN の場合、括弧中の 1 は無視できて、分極は比誘電率に比例すると考えて良い。図 1 は、測定した誘電率の温度依存性である。リチウム 0 % と 5 % との双方とも、42℃ 付近で誘電率が最大となり、この温度が相転移温度である。またこの付近で 20,000 前後の大きな比誘電率が得られている。しかし、市販品に多いリチウム添加のものよりも添加しないものの方が大幅に高い誘電率が得られていて、この組成が高い分極を得るのに有望であることが分る。リチウム 0 % のものがキュリーワイス則にかなり近いふるまいを示すのに対し、5 % のものではずれが大きく、リチウムによる結晶場の乱れの影響が考えられる。

(2) P-E カーブ

図 1 はリチウム 0 % の純粋な KTN が 5 % のものに対して最大 40 % 近く改善した誘電率を示し、単純計算で 40 % の分極増大効果があり、さらし電気光学効果の Δn は分極の二乗に比例するため、 Δn としては 2 倍近い増大が期待できることを示唆している。しかし、それでも桁違いとは言えない。一方、リチウム 5 % 添加の KTN について、電界印加によっても温度変化と同じような相転移が起こり、このとき、分極が急激に増大する現象が報告されている[2]。図 2 は、本研究で測定した P-E カーブである。リチウム 0 % の試料であり、図 1 にもみられる誘電率が最大値を取る温度から 1℃ 上の温度で測定したものである。前述のように低電界では分極 P は電界 E に比例するため、このグラフは直線になる。図 2 でも確かに低電界では直線となっているが、2 kV/cm 弱の電界から傾きがやや急になっている。これは、報告例のあるリチウム 5 % の結晶と同様に、リチウム添加のない純粋な KTN でも電界誘起の相転移によって分極を増大することができることを示しており、図 1 に見られる低電界での誘電率の高さと合わせ、 Δn の飛躍的改善に向けて有望なデータである。ただし、図 2 の電界誘起の相転移は、文献[2]に掲載されているリチウム 5 % 添加の P-E カーブほどクリアな傾き変化を示していない。また、電界を強くしてからゼロに戻したところで、分極の値がゼロに戻っておらず、履歴がある。詳しく調べてみると、電界印加したところで、KTN 結晶の中に電子が注入されてしまっていて、この電子の電荷によって結晶中で電界が不均一になっていることが判明した。「研究の方法」で述べたとおり、白金の電極を用いるなど、電子の注入の抑止のための対策は行っているが、これが正常に機能していないことを意味していて、原因はまだ明らかとなっていない。電子注入が予定通り抑制されていれば、P-E カーブはもう少しクリアな電界誘起相転移を示し、分極の改善への道がクリアになると考えられる。今後、本助成事業で導入させていただいた測定系と KTN 結晶試料を用い、分極増大を継続して追求していく予定である。

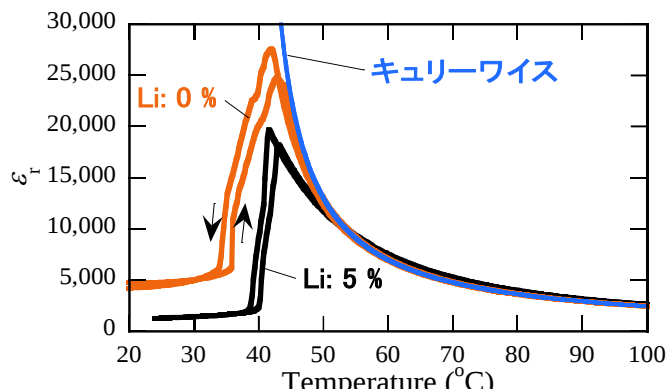


図 1 測定した KTN 結晶の比誘電率の温度依存性。

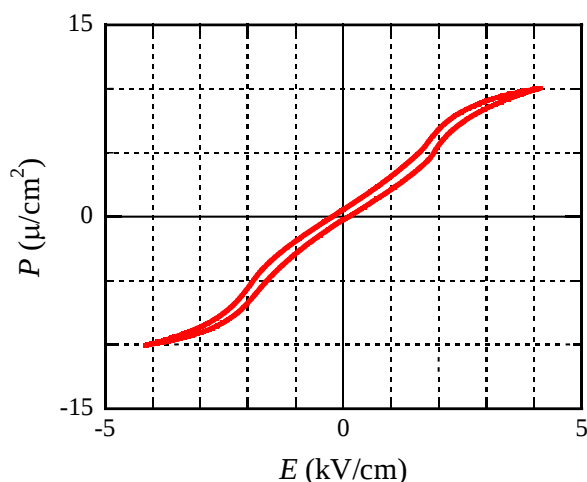


図 2 測定した KTN 結晶の P-E カーブ。

<引用文献>

1. T. Imai, M. Ueno, Y. Sasaki, and T. Sakamoto, Appl. Opt. vol. 54, no. 25, pp. 7277-7285 (2017).
2. T. Imai, S. Toyoda, J. Miyazu, J. Kobayashi, and S. Kojima, Jpn. J. Appl. Phys. vol. 53, 09PB02 (2014).

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6 . 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7 . 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------