

平成 21 年 5 月 26 日現在

研究種目：若手研究(B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19760038
 研究課題名（和文）
 マグネシウム添加タンタル酸リチウムを用いた高効率・高出力中赤外レーザー光発生
 研究課題名（英文）
 Highly efficient and high energy mid-infrared laser generation using Mg-doped LiTaO₃
 研究代表者
 石月 秀貴 (ISHIZUKI HIDEKI)
 分子科学研究所・分子制御レーザー開発研究センター・助教
 研究者番号：90390674

研究成果の概要：多様な中赤外波長域レーザー実現のための波長変換技術に適した新たな非線形光学材料である、マグネシウム添加コングレント組成タンタル酸リチウム (Mg:LiTaO₃) 結晶について、透過特性、熱伝導特性、反転抗電界特性などの基礎評価と、これを用いた高出力波長変換に適した最大 5mm 厚までの周期分極反転構造を実現したほか、初めての光パラメトリック発振実験を行い、この結晶の有用性を確認した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,900,000	0	1,900,000
2008年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	420,000	3,720,000

研究分野：非線形光学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用光学・量子光工学

キーワード：擬似位相整合、周期分極反転、タンタル酸リチウム、ニオブ酸リチウム、波長変換、中赤外光

1. 研究開始当初の背景

現代社会において、いわゆる「レーザー装置」は日常の至る所で使用されている。その用途を挙げてみても、物質の加工、光通信、CD や DVD 等の光ディスクピックアップ、大気等や排ガス等の環境計測、ガス分析・同定等での利用など多種多様の例があり、これに必要なレーザー光波長は、可視から赤外域までの広い領域に及んでいる。しかし直接にレーザー発振可能な光波長はそれほど多くない。したがって多様な波長

を実現するため、通常は高強度の励起用レーザーと光波長変換素子との組み合わせがよく用いられるのが実状であり、これが応用範囲を制限している。

特に、環境計測やガス分析・同定等に必要性が高いにもかかわらず、実用的な光源の乏しい中赤外波長域（ここでは波長 2 ミクロン以上と定義する）における実用的光源の実現に不可欠なものは、新たな光学材料であり、その探索が多く研究者により今もなお進められているという状況があった。

2. 研究の目的

このような背景を元に本研究では、光波長変換素子用材料として近年開発されてきたマグネシウム添加コングルエント組成タンタル酸リチウム結晶（以下 Mg:LiTaO₃）の有用性を確認することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究の期間は2年であり、初年度に基礎的物性値の評価、2年目には光学実験のための素子作成およびこれを用いた波長変換実験を、それぞれ実施した。

初年度の基礎的物性値の評価としては、光学透過特性、熱伝導特性、分極反転抗電界特性を評価した。これらの物性値評価にあたっては、従来よりよく利用されているマグネシウム添加コングルエント組成ニオブ酸リチウム結晶（Mg:LiNbO₃）や、無添加コングルエント組成タンタル酸リチウム結晶（LiTaO₃）なども同一手法で評価することで、材料同士の比較を容易にした。これに加え、マグネシウム添加時の特異な分極反転特性を考慮し、従来より汎用性の高い分極反転抗電界測定法（REFVR法）を提案した。

2年目では、初年度の特性評価結果、特に分極反転抗電界の測定結果をもとに、結晶分極を数十ミクロン周期で周期的に反転させる「周期分極反転構造」を備えた「擬似位相整合波長変換素子」を Mg:LiTaO₃ で初めて作製し、これを用いた波長変換による光パラメトリック発振実験を行った。

以下でその内容を詳細に示す。これ以降、特に記載無き場合は、マグネシウム添加濃度 7mol% の Mg:LiTaO₃ を Mg7CLT、マグネシウム添加濃度 5mol% の Mg:LiNbO₃ を Mg5CLN、無添加 LiTaO₃ を CLT と記す。またタンタル酸リチウムを LT、ニオブ酸リチウムを LN、マグネシウムを Mg と記す。

4. 研究成果

(1) LT や LN は、紫外～中赤外波長域で透明な非線形光学結晶である。図1および2に、紫外域および中赤外域における結晶異常光方向透過特性を示す。Mg7CLT は MgCLN などの LN 系材料に比較して紫外域および中赤外域ともに若干透明域が広い他、Mg 添加により通常の CLT に比較して紫外域で若干透過域が短波長側に拡大することが確認できた。

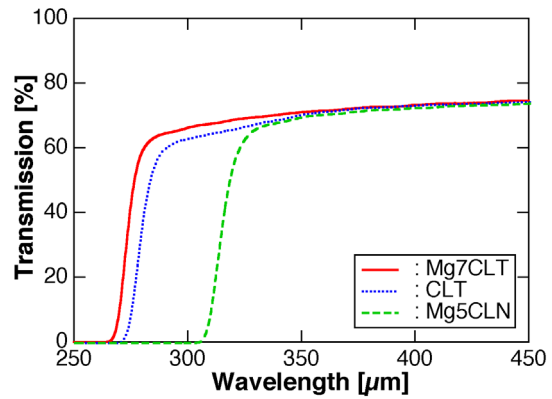


図1 紫外波長域透過特性（1mm厚、異常光方向）

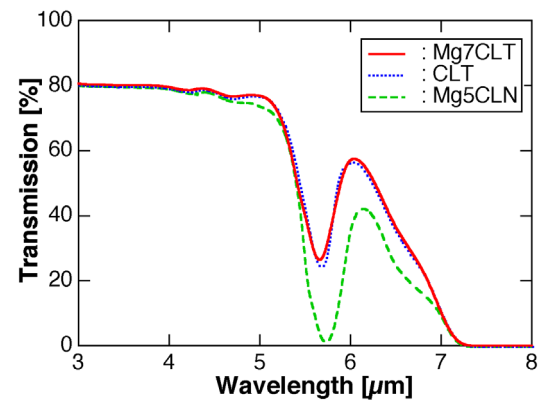


図2 赤外波長域透過特性（1mm厚、異常光方向）

(2) 近年の励起用レーザーの高出力化と非線形光学波長変換の高効率化により、波長変換時に結晶内部で発生する熱による結晶温度上昇が問題のひとつとなっている。その上で結晶の熱伝導率は重要な指標の一つである。表1に、測定した熱伝導率を Mg 添加濃度依存性と併せて示す。熱伝導率は LN に比較して LT の方が高く、また Mg 添加により向上することが確認できた。Mg7CLT では CLT に比較して約 10% の向上が確認できた。

表1 熱伝導率

Doping level of Mg [mol%]	Thermal conductivity κ [W/mK] @25°C			
	LiTaO ₃		LiNbO ₃	
	z-axis	x-axis	z-axis	x-axis
0	4.04	3.45	3.55	3.08
1	4.21			
3	4.56			
5	4.54	3.83	4.03	3.97
7	4.44			

(3)分極反転抗電界は、本結晶を用いた擬似位相整合素子作製にあたって極めて重要な指標である。結晶構造および特性の近いLNが、Mg添加によりその分極反転抗電界を大幅に低下させていることから、同様の特性をLTも示すことが期待されていた。図3にその評価結果を示す。事前の予測どおり、Mg添加による分極反転抗電界の大幅な低下が確認でき、7mol%添加時では、無添加時の1/5程度まで低減した。この特性は、擬似位相整合素子作製が容易になるため極めて有用なものである。

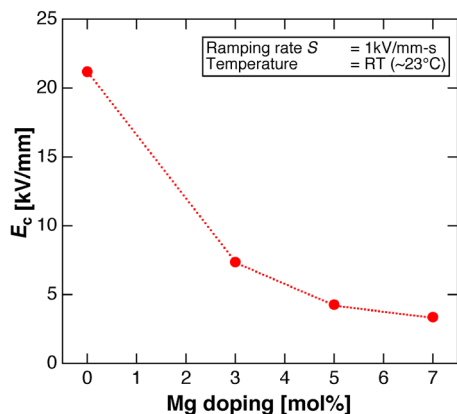


図3 反転抗電界のMg濃度依存性

図4には、Mg7CLTの分極反転抗電界の温度依存性を示す。温度の上昇に従い分極反転抗電界が低下し、温度150°Cでは室温時の1/2程度まで低減することを確認した。

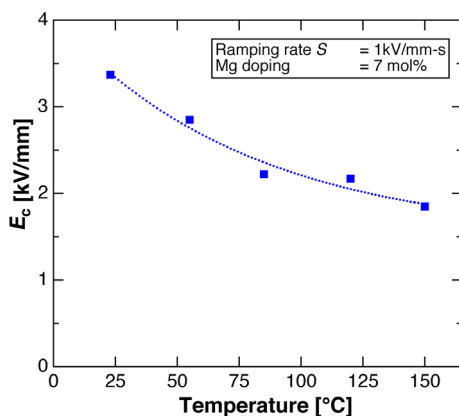


図4 反転抗電界の温度依存性 (Mg7mol%添加)

図3および図4で示した分極反転抗電界の評価にあたっては、Mg添加時の分極反転特性の変化を考慮し、従来用いられていたヒステリシスループ測定でない新たな手法として、より汎用性の高い分極反転抗電界測定法 (REFVR法) を提案して測定した。こ

れは、Mg添加時に導電率が上がることでヒステリシスループ測定ができなくなるという問題を解決するものであり、Mg添加量にかかわらず同一手法で測定できるという利点を持つ。

(4)ここまでの基礎特性評価結果をもとに、Mg7CLTを用いて実際に擬似位相整合素子実現のための周期分極反転構造形成を試みた。その結果、現段階で3mm厚×3mm幅の開口サイズまでは、光学実験に適用可能な精度を持つ周期構造が実現できることを確認した。図5は、3mm厚結晶に形成した周期約30ミクロンの周期構造の断面構造写真である。結晶の+z面から-z面に至る周期構造が形成できていることがわかる。これに加え、現時点では5mm厚結晶にも同程度の周期構造が形成できる見通しを得ている。

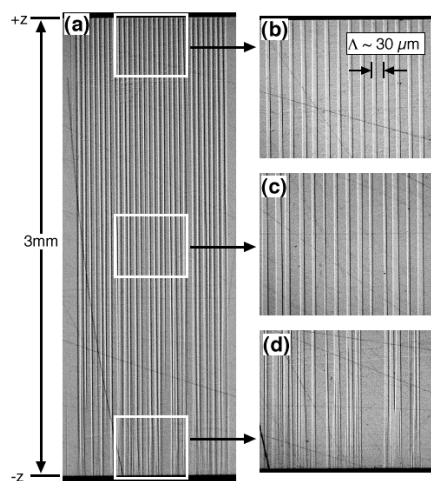


図5 周期分極反転構造 (断面をエッチングで可視化)

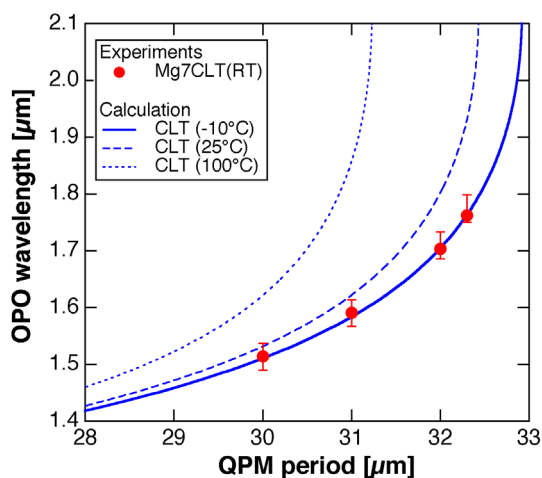


図6 光パラメトリック発振の出力波長特性 (横軸：反転周期、縦軸：発振波長)

(5) Mg7CLT を用いて作製した 3mm 厚×3mm 幅開口の中赤外光発生用大口径擬似位相整合波長変換素子を用いて、光パラメトリック発振実験を実施した。図 6 にその出力波長の分極反転周期依存性を示す。反転周期を 30～32.3 ミクロンまで変化させた場合、1.51～1.76 ミクロンの波長域のシグナル光が得られた。これに対応するアイドラ光波長域は 3.58～2.68 ミクロンである。出力シグナル光の波長が 1.65 ミクロンの場合で、励起光エネルギー67mJ 時に全出力エネルギー24mJ を得た。スロープ効率は約 39%である。図 6 中で実線および点線で示したのは、CLT の屈折率セルマイヤー方程式より計算した理論特性であり、Mg7CLT の実験結果とは温度で 35℃程度の違いがある。Mg7CLT の屈折率セルマイヤー方程式は未だ報告されておらず、今後の検討項目である。

以上、2年間の本研究により、Mg:LiTaO₃ 結晶の基礎特性評価と、これを用いた波長変換による高出力中赤外光発生を実現し、その有用性を確認することができた。

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 1 件)

- ① Hideki Ishizuki, Takunori Taira, Mg-doped congruent LiTaO₃ crystal for large-aperture quasi-phase matching device, *Optics Express*, vol. 16, no. 21, 16963-16970, 2008, 査読有り

[学会発表] (計 3 件)

- ① Hideki Ishizuki, Takunori Taira, Mg-Doped Congruent LiTaO₃ Crystal for Large-Aperture Quasi-Phase Matching Device, *Conf. on Lasers and Electro-Optics (CLEO2008)*, CWG1, 米国カリフォルニア州、2008 年 5 月 7 日
- ② 石月秀貴, 平等拓範, Mg 添加コングルエント LiTaO₃ 結晶の特性評価(2)、平成 19 年秋季応用物理学会講演会、5a-P5-8、北海道札幌市、2007 年 9 月 5 日
- ③ Hideki Ishizuki, Takunori Taira, Study on the field-poling dynamics in Mg-doped LiNbO₃ and LiTaO₃, *Nonlinear Optics 2007 (NLO2007)*, WE35, 米国ハワイ州、2007 年 8 月 1 日

6. 研究組織

(1)研究代表者

石月 秀貴 (ISHIZUKI HIDEKI)
分子科学研究所・分子制御レーザー開発
研究センター・助教
研究者番号：90390674

(2)研究分担者

無し

(3)連携研究者

無し