

最近の技術から

KNbO₃ 単結晶の育成と非線形光学

村田 浩一*・熊谷 博彦*・鬼頭 信弘*・田 辺 譲*・福田 承生**

* (株)旭硝子電子商品開発センター 〒221 横浜市神奈川区羽沢町 1160

** 東北大学金属材料研究所 〒980 仙台市片平 2-1-1

1. ま え が き

ニオブ酸カリウム (KNbO₃) は、1968年に Kurtz らにより、非常に大きな非線形光学効果をもつ物質として報告された¹⁾。以来、基礎物性研究や、SHG, リアルタイムホログラム媒体等のデバイスを指向した、非線形光学効果, 電気光学効果の応用研究が盛んに行なわれている²⁻⁶⁾。

とくに、SHG は半導体レーザーと組み合わせることにより、高記録密度光ディスクメモリスシステムや、高品位レーザープリンタへの応用が期待でき、また半導体レーザー励起固体レーザーの可視光化などへの応用も考えられる。

ここでは、KNbO₃ 単結晶育成と、SHG 特性、応用例として半導体レーザー光の SHG, 半導体レーザー励起固体レーザー光の SHG について紹介する。

2. 単結晶育成と単一分域化

KNbO₃ は、コングルエント溶融しないために、チョクラスキー法による単結晶育成はできない。そのため、フラックスを用いた TSSG (top seeded solution growth) 法により育成を行なっている^{7,8)}。

原料は、K₂CO₃ と Nb₂O₅ (4 Nup) を用い、K₂CO₃ を化学量論比より過剰に加え、これを、フラックスとして育成を行なっている。結晶育成条件を表1に示す。

KNbO₃ は高温から立方晶系→正方晶系 (強誘電相)→斜方晶系 (強誘電相) へとそれぞれ 435°C, 225°C で二度構造相転移する。このため、溶液から育成した後、室温まで冷却する際に、結晶中にいくつかの方位の双晶・多重分域構造が発生する。育成した結晶は、150~200°C で約 1kV/cm の電圧を数時間印加し、双晶除去と単一分域化することにより、SHG 可能な単結晶とすることができる。

3. 非線形光学特性

KNbO₃ の主な光学定数を表2に示す。この結晶の SHG 用材料としての特徴は、

- (1) SHG 性能指数 ($M=d^2/n^3$) が大きい。KNbO₃ は、 $M \approx 30$ (KTP の約4倍弱) で、GaAs 等の可視光域で使用不可能な半導体材料を除くと、無機化合物では最大の性能指数をもつ材料の一つであり高効率な SHG が可能である。
- (2) Nd: YAG レーザーに対して *b* 軸、また約 850~940 nm の波長に対して *a* 軸でそれぞれノンクリティカル位相整合が可能である⁹⁾。
- (3) 化学的に安定で、加工性も良い。
- (4) LiNbO₃ に比べレーザーダメージに対して強い¹⁰⁾。

表1 KNbO₃ 単結晶育成条件

出発原料	K ₂ CO ₃ : Nb ₂ O ₅ (4 Nup) 51: 49~55: 45 (mol 比)
育成温度	1055°C 付近
シード方位	<100> (立方晶)
育成冷却速度	0.2~2.0°C/h
結晶回転数	30~90 rpm
育成雰囲気	Air
結晶徐冷速度	5~30°C/h

表2 KNbO₃ の光学特性

屈折率 (1064 nm, 室温)	$n_a=2.2200$ $n_b=2.2574$ $n_c=2.1196$
透過波長域	0.4~5.5 μm
非線形光学定数 (pm/V, 1064 nm, 22°C)	$d_{31}=-15.8$ $d_{15}=16.5$ $d_{32}=-18.3$ $d_{24}=17.1$ $d_{33}=-27.4$
SHG 性能指数	$M \approx 30$ KN d_{32} ($M \approx 8$ KTP d_{31})
SHG 変換効率	~90% (1.06 μm) ⁴⁾

表 3 KNbO₃ による半導体レーザー SHG

LD ピーク出力	9 W (500 Hz)
波 長	904 nm
結晶入力パワー	86 mW
第二高調波パワー	0.15 mW
変換効率	0.17%

等である。

このように、KNbO₃ 単結晶は SHG 用として優れた材料といえる。

4. 第二高調波発生 (SHG)

KNbO₃ の応用の一つとして半導体レーザー励起固体レーザー SHG がある。われわれは励起光源として 813 nm, 240 mW 半導体レーザー、レーザーホストとして、Nd:YAG 単結晶を用い、共振器内に KNbO₃ 単結晶を置くことにより緑色 (532 nm) レーザー光発生に成功している。

また、半導体レーザー直接 SHG は、超小型の青色レーザー光源を可能にし、広い分野に応用できると考えられる。しかし、半導体レーザーの SHG は難しく、LiNbO₃ を用いた導波路、および KNbO₃ バルク結晶による SHG の例はあるが数少ない^{5,11)}。

われわれは、育成した KNbO₃ 単結晶を用いて半導体レーザーの SHG 実験を行なった。ピーク出力 9 W (500 Hz) のパルス半導体レーザー光をボールレンズで集光し結晶に導くことで、変換効率 0.17% の第二高調波を

得た。その結果を表 3 に示す。この変換効率は、光学系を改善し、結晶に入力できる実効パワーを高めることで改善できると考えている。

5. む す び

非常に大きな非線形光学定数をもつ KNbO₃ 単結晶は、半導体レーザーの直接 SHG や半導体レーザー励起固体レーザー SHG に応用することにより超小型可視光レーザー実現が期待される。

文 献

- 1) S.K. Kurtz and T.T. Perry: J. Appl. Phys., **39** (1968) 3793.
- 2) Y. Uematsu: Jpn. J. Appl. Phys., **13** (1974) 1362-1368.
- 3) E. Wiesendanger: Ferroelectrics, **6** (1974) 263-281.
- 4) Y. Uematsu and T. Fukuda: Jpn. J. Appl. Phys., **12** (1973) 841-844.
- 5) J.C. Baumert, P. Günter and H. Melchior: Opt. Commun., **48** (1983) 215-220.
- 6) P. Günter: Opt. Lett., **7** (1982) 10.
- 7) T. Fukuda and Y. Uematsu: Jpn. J. Appl. Phys., **11** (1972) 163-169.
- 8) 熊谷博彦, 村田浩一, 田辺 譲, 福田承生: 電子情報通信学会報告, **OQE-88** (1988) 43-49.
- 9) K. Kato: IEEE J. Quantum Electron., **QE-15** (1979) 410-411.
- 10) Y. Uematsu and T. Fukuda: Jpn. J. Appl. Phys., **4** (1971) 507.
- 11) 谷内哲夫, 山本和久: 応用物理, **56** (1987) 1637.

(1988年11月2日受理)