

増田陽一郎・馬場 明

Yoichiro Masuda and Akira Baba

八戸工業大学・電気工学科

Department of Electrical Engineering, Hachinohe Institute of Technology

This paper describes the and electrooptic and nonlinear optical properties of PLLZT ceramics.

A intense light SHG was observed on PLLZT ceramics when the ceramics were pumped by Q-switched Nd^{3+} glass laser light.

A conversion efficiency was about 0.177% at 13MW pumped power for PLLZT10/70/30 ceramics.

1. まえがき 化合物半導体レーザの発振波長は、エネルギーギャップ ($E_g = h\nu$) に依存し、材料の種類により制約される。オプトエレクトロニクスでは波長変換やパラメトリック増幅など光通信情報処理の技術に強誘電体の非線形効果を応用することが考えられている。¹⁾ここでは非線形光学デバイスの応用の一つとして、強誘電体セラミックスの光第2高調波発生について述べる。

2. 透明PLLZTセラミックスの透過率T、吸収係数 α および屈折率nの波長依存性

Fig.1,2は透明セラミックスPLLZT10/65/35の波長依存性を示したものである。吸収端は約350nm近傍に依存する。この吸収端から求められるセラミックスのBand gapは約 $E_g = 3.54 \text{ eV}$ である。長波長側での吸収は酸素八面体構造を示す結晶の格子振動のsoft modeによるものと考えられる。

Fig.3は吸収係数の波長依存性を示したものである。これは $(\text{La}_{0.5}\cdot\text{Li}_{0.5})$ イオンの増加にしたがって結晶の異方性が減少し、立方晶相に近づくためであり、透明度の向上は結晶構造変化の実験結果とも良い一致を示す。Fig.4は屈折率nの波長依存性を示したものである。 $\lambda = 800\text{nm}$ での屈折率は $n = 2.6$ を示す。これは吸収係数 α と同様にPhoton-energyの指数関数に依存した波長分散を示す。屈折率nは $(\text{La}_{0.5}\cdot\text{Li}_{0.5})$ イオン固有の屈折率に依存し、吸収係数 α は結晶の異方性に伴う結晶構造的因子や粒界や強誘電分域、空孔および原料の不純物などカオスによるミュー散乱に依存するものと推定される。

3. Nd^{3+} ガラスレーザの発振特性(ノーマル発振特性)

Fig.5は Nd^{3+} ガラスレーザの(出力ミラーの反射率 $R=60\%$ を使用したとき)ノーマル発振特性を示した。この特性よりArガス圧の増加に従って出力が増大する傾向を示し、ガス圧100~300Torrで飽和の傾向を示す。しかしガス圧400Torrでは最大入力エネルギー2700Jにおいてもまだ飽和はみられず、入力エネルギーの増加により出力の増大が計られる。このグラフから入力2700Jにおいて出力が約3.2となった。

Fig.6は発振効率を示したものである。このことからガス圧の増大とともに発振効率も上昇していることがわかる。ガス圧300Torrについて見ると入力エネルギーを増加させても発振効率は必ずしも上昇するものではなく、あるエネルギーまでは効率は上昇するがそれ以上では逆に、発振効率は低下している。Xeランプの場合は200Jで飽和し、発振効率は約0.26%である。Arガスランプでは2000Jのときの発振効率は約0.1%程度でありXeガスランプの約半分の値となる。ArガスランプとXeガスランプの発光強度を比較すると、この値はほぼ妥当な値である。Fig.7(a)に試作したArガスフラッシュランプの発光波形を(b)に Nd^{3+} ガラスレーザの発振波形を示した。レーザ発振波形はフラッシュランプの発光スペクトルと類似の波形である。レーザ発振波形中に見られるスパイク波は Nd^{3+} ガラスロッドの組成の不均一性に依存するものと考えられる。

4. PLLZT透明セラミックスの第2高調波発生²⁾³⁾⁴⁾

Fig.8は光第二高調波発生の実験の模式図を示した。Qスイッチ発振により得られたレーザー光を透明セラミックスに照射し、発生した光第二高調波をピンダイオードで受光し、オシロスコープに画かせた。このときピンダイオードの位置は試料から50mm離し50度の角度を持たせて配置した。その理由はレーザー光の基本波を同時に検出しないためである。さらにフォトダイオードの受光面には赤外線除去用フィルターを取付けた。Fig.9はPLLZT 10/70/30セラミックスのSHG出力の励起電力密度依存性を示した。測定結果からSHG出力は、励起電力の2乗に比例した結果が得られた。またSHG出力の測定は試料の前方および後方で測定を行った。このときのレーザー光は特に集光はしていない。ここでSHG出力 P_{SHG} は次式より求めた。

$$P_{SHG} = S \left[\frac{V_0}{R_L} \right] \left[\frac{4\pi}{d\Omega} \right] \left[\frac{1}{T} \right] \left[\frac{\eta 5300 \text{ \AA}}{\eta 6328 \text{ \AA}} \right]$$

S : フォトダイオードの波長6328Åにおける感度 (10mm/mA)
 V₀ : 出力電圧
 R_L : 負荷抵抗50Ω
 dΩ : フォトダイオードの立体角 $4\pi/d\Omega = 2 \times 10^5$
 η : 量子効率
 T : 赤外線除去フィルターの透過率92%

この式よりたとえば $V_0 = 77.5\text{mV}$ とすれば $P_{SHG} = 12.6\text{kW}$ ともとまる。本実験では前方散乱SHGは12.6kW後方散乱では6.6kWという値が得られた。Fig.10に格子常数の組成依存性を示した。Fig.11からも明らかなようにXが増すにつれて格子定数は増加しはじめ $X = 12$ で最大値を示し、さらに置換量が増加するに従い逆に減少する傾向を示した。Fig.12にSHGの組成依存性を示した。Xが増加するに伴いSHGの出力は減少し始め $X = 12$ で最少を示している。更にXが増加するとSHG出力は増加する傾向が見られた。X線回析から得られた格子常数、体積密度および単位格子歪の値は $X = 12$ で最大を示しているが、SHG出力は $X = 12$ で最小を示している。この結果は結晶構造に依存することを示唆しており非常に興味ある結果である。Fig.12にQスイッチ出力パワーを13MW一定とした時のセラミックスのSHGの変換効率を示した。これらの実験結果より得られたSHGの半値幅は20nSであり基本波電力の二乗に比例していると考えられる。セラミックスによるSHG強度の角度依存性では試料の角度50度一定として行った結果、前方の測定結果より後方の測定結果の方がSHG強度が強いことが分かった。SHGの出力は組成比に大きく依存していることが明らかとなった。SHG出力は $X = 18$ で最大を示した。変換効率は励起電力13MWの時0.16%であった。この13MWにQスイッチされたレーザー光をセラミックスに照射したがセラミックスは光損傷を生じていなかった。セラミックスは単結晶とは異なり位相整合を取る必要がなく、厚みおよび透過率を変化することによりSHG発生をコントロールできるので、今後デバイスとして応用する場合この面の詳細な実験が必要と考えられ重要な問題となる。

5. 結言

本報告ではNd³⁺ガラスレーザー発振器の試作および透明PLLZT X/70/30セラミックスの光第2高調波発生について述べた。得られた結果を要約すると次のようになる。

(1) 固体レーザーの励起光源としては一般にXeガスランプが使用されているが高価であるので発振スペクトルがXeに非常に類似しているArガスランプを試作してNd³⁺ガラスレーザーの発振を行った。Arガス圧400Torr、入力エネルギー2700Jの時3.17Jのレーザー出力が得られた。この時の変換効率は約0.114%であった。Xeランプ励起では入力エネルギーが1300Jのとき3Jであり変換効率は約20%であった。Arガスの発光スペクトル強度はXeガスのやく50%でありこの値は妥当な値である。

(2) Xeランプ励起では色素濃度 $2.5 \times 10^{-5} \sim 5 \times 10^{-6} \text{mol/l}$ の範囲で、またArランプ励起では色素濃度 $1.5 \times 10^{-5} \sim 3.5 \times 10^{-6} \text{mol/l}$ の範囲でQスイッチ発振が得られた。

(3) 透明セラミックスPLLZT X/70/30($X=8 \sim 18$)の組成について光第2高調波発生の実験を行った結果、PLLZT10/70/30のポンピングパワー13MWのときSHGの変換効率は0.17%が得られた。SHG出力は $X = 12\text{mol}$ の近傍で最少値を示し結晶構造的には $X = 12\text{mol}$ 近傍でいずれも最大値を示しておりSHG出力の組成依存性とは全く逆の傾向を示していることが明らかとなった。今後透明セラミックスの透過率およびセラミックス基板の厚みをパラメータとしてSHG出力の変換効率を調べ変換用光学デバイスの開発を試みている。

参考文献

- 1) 1989年春季 第36回応用物理学関係連合講演会シンポジウムダイジェスト「有機非線形光学材料と素子化技術の進展」
- 2) 増田, 馬場, 十文字: 第9回レーザーシンポジウム(1983)Arガスフラッシュランプを用いたNd³⁺ガラスレーザーのQスイッチ発振特性
- 3) 十文字, 葛西, 増田 第3回強誘電体応用会議予稿集、p.21-22(1981)透明セラミックスPLLZTによる光第2高調波発生
- 4) M. JYUMONJI, K. KASAI and Y. MASUDA Japanese J. Appl. Phys. Vol 20, p.71-74(1981) Supplemens: Second Harmonic Generation from Trans-parant PLLZT Ceramics Excited by a Q-Switched Nd³⁺ Grass Laser.

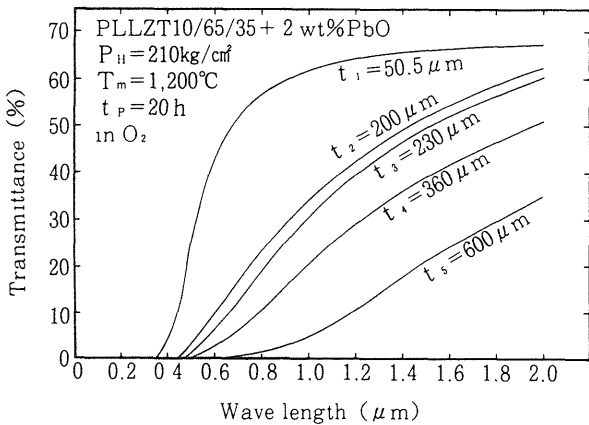


Fig.1 Wave-length dependence of light transmittance for PLLZT ceramics.

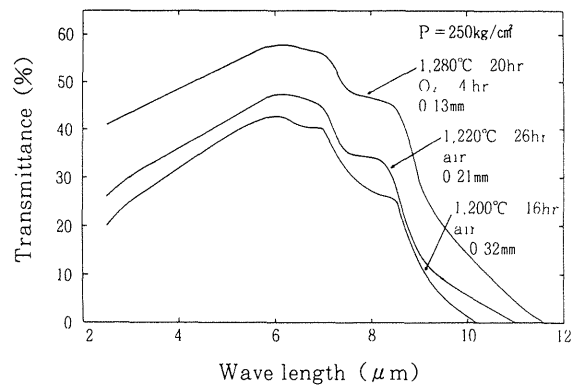


Fig.2 Wave-length dependence of light transmittance for PLLZT ceramics.

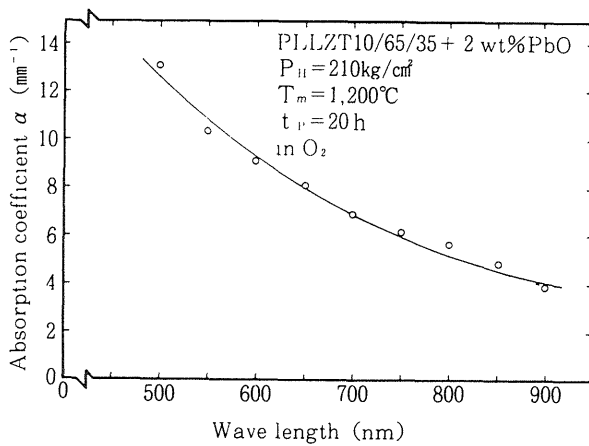


Fig.3 Wave-length dependence of absorption coefficient.

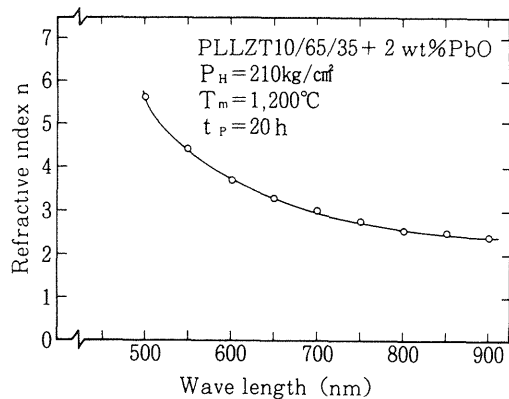


Fig.4 Wave-length dependence of refractive index.

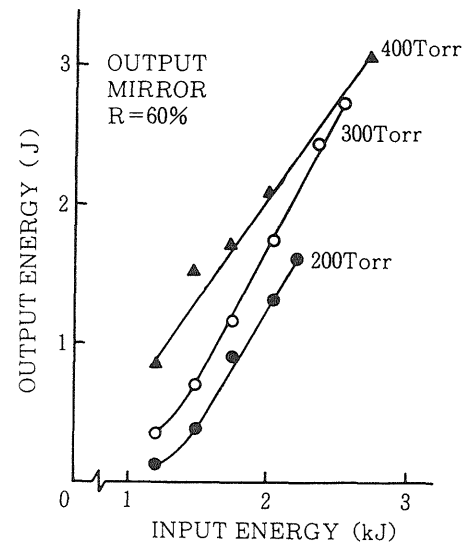


Fig.5 In-put power dependence of out-put power for normal laser oscillation.

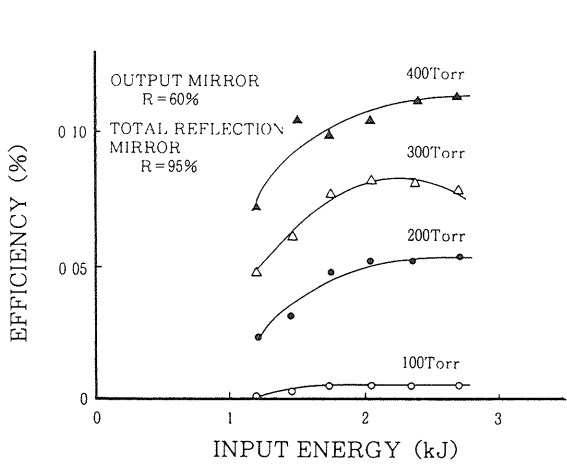


Fig. 6 Conversion efficiency of Nd^{3+} laser for Xe and Ar flushed lump.

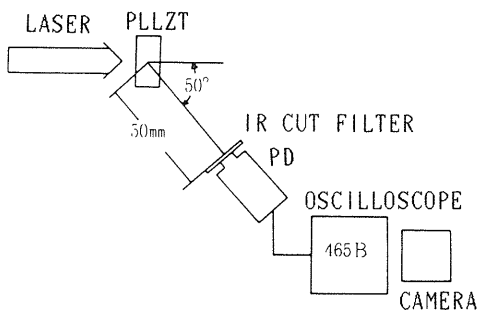


Fig. 8 Schematic picture for second harmonic generation measurement.

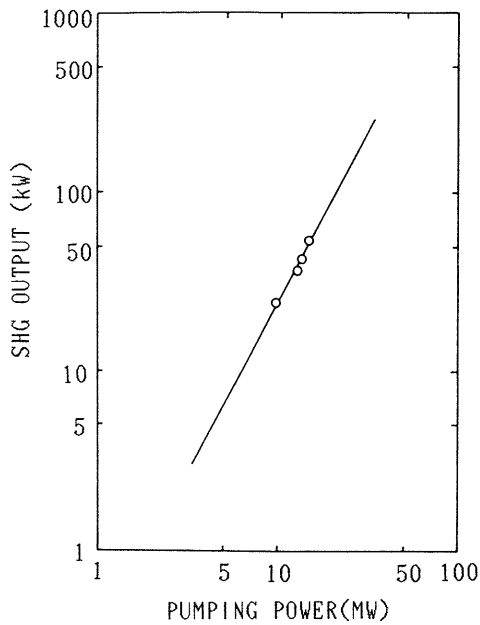


Fig. 9 Pumping power dependence of SHG output for transparent PLLZT 10/70/30 ceramics.

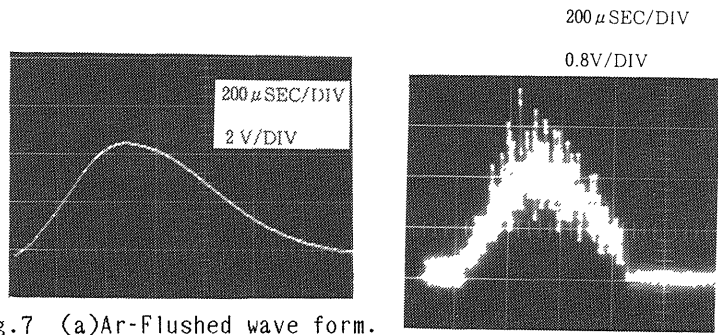


Fig. 7 (a) Ar-Flushed wave form.

Fig. 7 (b) Nd^{3+} Glass laser for oscillation wave form.

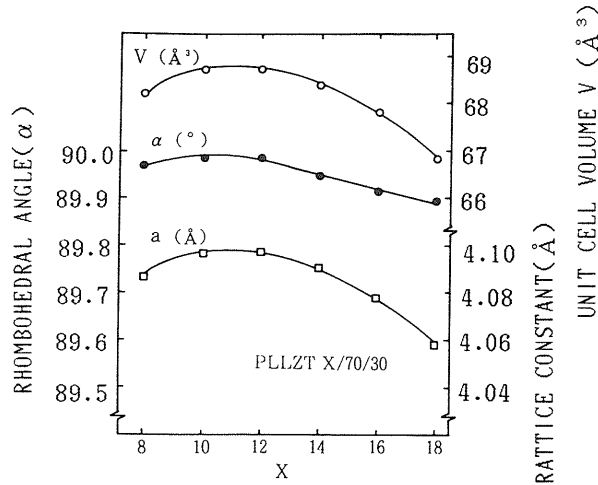


Fig. 10 Composition ratio dependence of lattice parameters for PLLZT X/70/30 system.

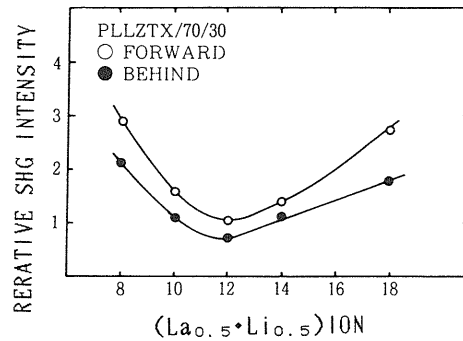


Fig. 11 $(\text{La}_{0.5}\text{Li}_{0.5})$ ion dependence of relative SHG intensity for PLLZT X/70/30 system.

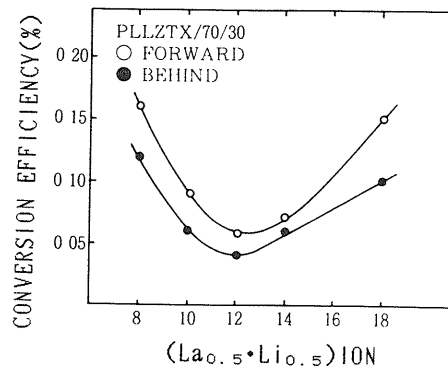


Fig. 12 $(\text{La}_{0.5}\text{Li}_{0.5})$ ion dependence of SHG conversion efficiency for PLLZT X/70/30 system.