

異方性結晶薄膜を有する電気光学結晶 KTN の相転移近傍における結晶相の温度依存性の定式化と電界・波動伝搬連成解析

渡邊 翼¹, 酒井 寛人¹, 和仁 陽太郎¹, 山田 智明²

1. 浜松ホトニクス株式会社, 〒434-8601 静岡県浜松市.

2. 名古屋大学大学院工学研究科 エネルギー理工学専攻, 〒464-8603 愛知県名古屋市.

概要

電気光学結晶である KTN 結晶に面内方向と面外方向に異方性を有する BST 結晶薄膜を導入し, COMSOL Multiphysics により電界と波動伝搬の連成解析を実施した. KTN の相転移温度近傍における結晶相の温度依存性をモデル化し, 位相変調特性を評価したので, その取り組みを報告する.

キーワード: 電気光学結晶, 異方性結晶薄膜, 温度依存性, 空間光変調器, 電界・波動伝搬.

1. はじめに

空間光変調器 [1] は, 光の位相を空間的かつデジタル的に制御できるデバイスであり, 光計測 [2, 3], 光通信 [4, 5], 波面制御 [6, 7, 8] など幅広い分野への応用が期待されている. 近年は光集積化回路技術 [9] の進展に伴い高速な応答特性 [10] が求められており, 従来の液晶材料に代わる有機ポリマーや結晶材料 [11] を用いた変調方式が検討されている.

これまでに KTN 結晶 [12, 13] を用いた空間光変調器を対象に, COMSOL Multiphysics による結晶内部の電界・波動伝搬解析 [14] を実施し, 結晶の表面状態が位相変調特性に及ぼす影響とその抑制方法 [15] について検討してきた. また, 回折格子型光変調デバイスを作製し, 実験的に時間応答評価を行った [16].

本研究では, 異方性結晶薄膜を導入した KTN について, 電界・波動伝搬解析を行い, 薄膜の面内および面外方向の誘電率が KTN 内部の電界分布および位相変調特性に及ぼす影響を検討する. さらに, 相転移温度近傍において共存すると考えられる立方晶相および正方晶相の存在割合を配分率としてモデル化し, その温度依存性を考慮した屈折率変化量を定式化する. また, 異方性結晶薄膜を適用した場合の構造について, 隣接画素がクロストークに与える影響を検討する.

2. KTN 結晶と BST 結晶薄膜

電気光学結晶では, 外部電界の印加により屈折率が変化し, 光の位相を制御できる. 相転移温度よりも高い温度では立方晶構造となり, 屈折率変化量が電界の 2 乗に比例するカー効果を有する. 一方で, 相転移温度よりも低い温度では正方晶構造となり, 屈折率変化量が電界に比例するポッケルス効果を有する.

KTN は電気光学結晶の中でも極めて高い比誘電率を有し, 相転移温度近傍では 10000 を超える値を示す. 結晶の製造ロットが異なれば, 相転移温度も変わる可能性があり, 図 1 に本研究で使用した結晶のデータを示す. 図 1 は高温から低温に温度を変化させたときの KTN における比誘電率の温度特性である. 相転移温度は 31°C であることが確認できる. KTN は相転移温度近傍において非常に大きな比誘電率を有し, 低電圧で大きな位相変調を実現できる. 一方で, 画素電極間では面内方向の電界 E_x が拡がり, 隣接画素に影響を与える. この面内電界の拡がり がクロストークの主要な要因となり, 画素間の実効的な変調量が低下する.

そこで本研究では, KTN 結晶表面にチタン酸バリウムとチタン酸ストロンチウムの混晶である BST [17, 18, 19] を異方性結晶薄膜として導入した. BST は比誘電率が大きく, 薄膜パラメータによって相転移温度の制御が可能であることから, KTN 表面への導入を検討した. 本研究では BST の面内および面外方向の比誘電率を変化させることで, KTN 内部の電界分布を制御し, 位相変調特性への影響を検討した.

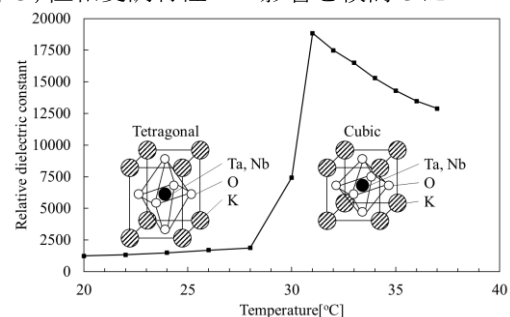


図 1. KTN 結晶が有する比誘電率の温度特性.

3. 電界・波動伝搬連成解析

シミュレーションに用いたジオメトリは, KTN の上部に共通電極が形成されており, 下部には BST 薄膜を形成し, BST の下部から画素状に 50 μm ピッチで分割された電極を構築した. 結晶厚は計算時間を考慮して 25 μm , 幅は 4 画素分として 200 μm とした. 本解析には, COMSOL Multiphysics の AC/DC モジュールおよび波動光学モジュールを使用した. 静電場解析結果から得られた面内電界 E_x , および面外電界 E_y を用いて局所的な屈折率変化量を計算し, その結果を波動光学解析の材料特性として入力した. メッシュは高誘電率材料の界面で生じる局所的な電界集中の影響を低減するために, ジオメトリ形状に合わせて 4 辺形メッシュを適用した. 波動伝搬解析では媒質中の波長に対して, 十分小さい要素サイズとなるように最大要素サイズを設定した.

AC/DC モジュールでは, 静電場解析を行った. 上部の共通電極に 216 V, 下部の画素電極に 1 V および 11 V の回折格子型電圧パターンを印加し, BST を形成した KTN 内部の電界分布をガウスの法則に従って計算した. 図 2 に結晶内部の電位分布を示す. このときに得られた電界成分 E_x , E_y から局所的な屈折率変化量を計算した. その結果を波動光学モジュールへ入力し, 波動伝搬解析を行った.

波動光学モジュールでは, 電界によって屈折率変化が生じた結晶において, 波長 632.8 nm, 垂直入射の場合にヘルムホルツ方程式を反映することで波動伝搬解析を行った. 出射光の電場振幅における複素共役と, 入射光の電場振幅の積から位相を計算し, 変調波形および位相変調量を評価した.

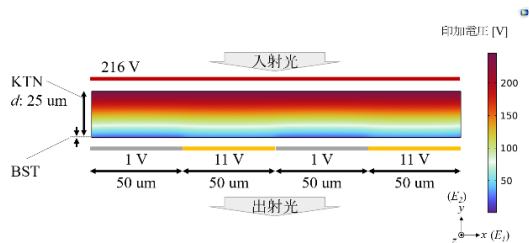


図 2. 共通電極の電圧を 216 V, 下部電極の電圧を 1 V と 11 V に設定したとき, BST を形成した KTN の結晶内部における電位分布.

3.1 異方性結晶薄膜の効果評価

異方性結晶薄膜である BST が KTN 内部の電界分布および位相変調特性に与える影響を評価するため, まずは, BST の面内方向と面外方向の比誘電率をそれぞれ設定して解析を行った. 式(1)に面内方向, 式(2)に面外方向の屈折率

変化式を示す. 第 1 項はカー効果による屈折率変化, 第 2 項はポッケルス効果による屈折率変化を表す. 屈折率を n , 面内方向の比誘電率を ϵ_x , 面外方向の比誘電率を ϵ_y , カー係数を g_{12} , ポッケルス係数を r_{42} , 共通電位を V_{bias} , 内部電位を V_{in} , 結晶厚を d とする.

$$\Delta n_x = -\frac{1}{2}n^3\epsilon_0^2\epsilon_x^2g_{12}\left\{\left(\frac{V_{bias}}{d}\right)^2 - \left(\frac{V_{in}}{d}\right)^2\right\} - \frac{1}{2}n^3r_{42}\left(\frac{V_{bias}}{d} - \frac{V_{in}}{d}\right) \quad (1)$$

$$\Delta n_y = -\frac{1}{2}n^3\epsilon_0^2\epsilon_y^2g_{12}\left\{\left(\frac{V_{bias}}{d}\right)^2 - \left(\frac{V_{in}}{d}\right)^2\right\} - \frac{1}{2}n^3r_{42}\left(\frac{V_{bias}}{d} - \frac{V_{in}}{d}\right) \quad (2)$$

面内方向と面外方向で BST の比誘電率を変えたときの位相変調量の比較を図 3 に示す. 面内および面外の比誘電率が 1000 の場合に最大の位相変調量が得られた. この結果から, 誘電率異方性を小さくした条件において位相変調量が大きくなることが得られた.

一方で, 本モデルでは KTN および BST において, 相転移温度近傍のカー効果とポッケルス効果を一様に適用したが, 結晶構造の変化が連続的に起こると考えられる. そのため, 正方晶相と立方晶相が局所的に共存すると考えられるので, 巨視的な電気光学応答にはポッケルス効果とカー効果の双方が寄与すると仮定した. 我々は相転移温度近傍で共存する異なる結晶相の存在割合を配分率として定義し, その温度依存性を考慮した屈折率変化量を定式化した. これに基づき位相変調特性を評価した.

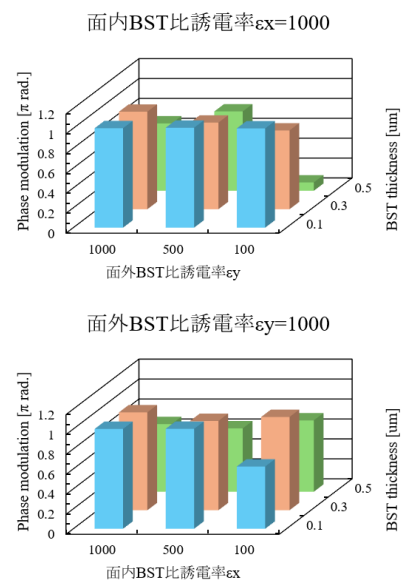


図 3. 異方性 BST 薄膜における面外 (上) と面内 (下) の比誘電率および膜厚が位相変調量に与える影響.

3.2 相転移温度近傍における結晶相の温度依存性の定式化

相転移温度近傍では複数の結晶相が共存するため、単純なカー効果またはポッケルス効果のいずれか一方として扱うことは困難である。そこで、正方晶相の実効的な配分率を α として定義し、実験で得られた KTN の比誘電率の温度特性データを基にして定式化した。式(3)に $\alpha(T)$ を示す。正方晶相と立方晶相の相転移が温度に対して連続的に発生する様子を表現するためにロジスティック関数を適用した。相転移温度近傍における $\alpha(T)$ の範囲は $0 \leq \alpha \leq 1$ とし、 $\alpha(T)=1$ を正方晶相、 $\alpha(T)=0$ を立方晶相に対応させ、 $\alpha(T)$ をカー効果およびポッケルス効果の寄与に反映した。 T_c は相転移温度、 ΔT は比誘電率の温度特性におけるピークの半値幅に対応する温度幅、 T は制御温度である。本研究では KTN は 1 次相転移を想定し、 $T_c=31^\circ\text{C}$ 、 $\Delta T=0.05$ 、BST は 2 次相転移を想定し、 $T_c=31^\circ\text{C}$ 、 $\Delta T=0.65$ に設定した。

$$\alpha(T) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{T - T_c}{\Delta T}\right)} \quad (3)$$

さらに、電界方向と光軸方向の関係を考慮するため、屈折率楕円体に基づいて電気光学効果による屈折率変化量を定式化した。式(4)に屈折率変化量の式を示す。

$$\Delta n(T) = -\frac{1}{2}n^3\varepsilon_0^2\varepsilon_r^2(T)(1 - \alpha(T))(g_{11}E_x^2 + g_{12}E_y^2) - \frac{1}{2}n^3\alpha(T)r_{42}E_y \quad (4)$$

KTN の比誘電率 $\varepsilon_r(T)$ は図 1 をキュリーワイス則でフィッティングすることで温度依存性をモデル化した。式(1)、式(2)で設定した $\frac{V_{bias}}{d}$ と $\frac{V_{in}}{d}$ では面内方向の電界が表現できないため E_x, E_y を用いて面内方向と面外方向の電界を表現した。式(4)で得られる屈折率変化量に静電場解析から得られる E_x および E_y を入力することで、相転移温度近傍における局所的な屈折率分布を算出した。

BST は薄膜化による誘電率低下を考慮し、比誘電率を想定されるピーク値を定数 1000, 500, 100 で仮定した。また、バイアスとして印加している共通電極の電圧を 50 V に設定し、同様の解析フローを適用した。このときに制御温度 T をパラメータとして、29-34 $^\circ\text{C}$ の範囲を計算した。図 4 に BST の比誘電率 1000、結晶厚 $d=0.1\text{ }\mu\text{m}$ のときに温度ごとの位相変調波形を示す。相転移温度より低い温度では、ほぼ応答がないのに対して、相転移温度よりも高い温度では $T=31.5^\circ\text{C}$ を最大とした位相変調量が得られることが分かった。本解析はシングルパスの結果であるの

で、反射型にしてダブルパスにし、共通電極の電圧設定を調整することで 1 波長の位相変調が可能な見積もりを得た。

次に隣接画素間でのクロストークの影響を検討するため、 $x=25$ と $x=75$ において位相変調波形を規格化し、比誘電率の大きさを比較したときの $x=50\text{ }\mu\text{m}$ 付近の位相ディップを図 5 に示す。BST の比誘電率が 500 のときに位相ディップが小さくなり、矩形形状に近づくことが確認された。

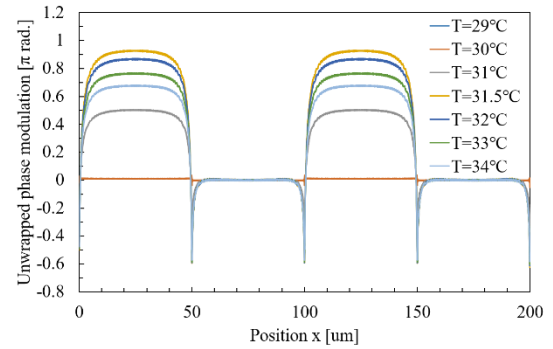


図 4. BST の比誘電率 1000、厚み 0.1 μm のときの位相変調波形。

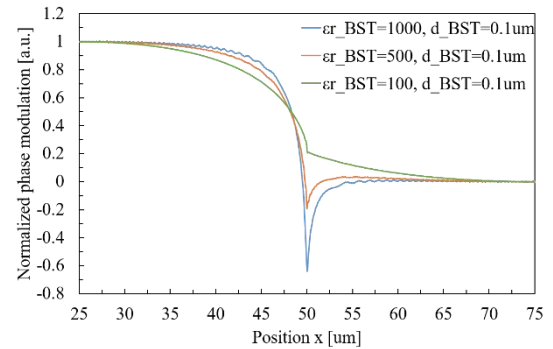


図 5. $T=31.5^\circ\text{C}$ において BST の比誘電率を変えたときの隣接画素間の位相ディップ。

4. まとめ

本稿では、異方性結晶薄膜として BST を電気光学結晶である KTN に形成し、相転移温度の近傍における電界・波動伝搬連成解析を行った。異方性を有する BST の比誘電率を等方性に近づけることで光変調に効果的であることを報告した。さらに、正方晶相と立方晶相の配分率を定義し、位相変調特性のエッジに与える影響について考察した。

今後は本研究で得られた BST の設計パラメータを基にして、実験的に効果を確認する予定である。また、画素電極間には 2 μm 程度のギャップが生じるため、ギャップの影響を反映させたシミュレーションを実施する予定である。

参考文献

- [1] Tsutomu Hara, Yoshiharu Ool, Yoshiji Suzuki, Ming H. Wu, "Transfer characteristics of the microchannel spatial light modulator," *Appl. Opt.*, vol. 28, pp. 4781-4786, 1989.
- [2] Vinoth Balasubramani, Han-Yen Tu, Xin-Ji Lai & Chau-Jern Cheng, "Adaptive wavefront correction structured illumination holographic tomography," *Sci Rep*, vol. 9, p. 10489, 2019.
- [3] Gilad Hirshfeld, Yehuda Vidal, Yehudit Garcia, Galina Perepelitsa, Avi Karsenty, Yossef Kabessa, Aharon J. Agranat, "Enhanced electro-optic effect in potassium lithium tantalate niobate at the paraelectric phase near T_c ," *Results in Physics*, vol. 23, p. 104059, 2021.
- [4] Qiushi Guo, Ryoto Sekine, Luis Ledezma, Rajveer Nehra, Devin J. Dean, Arkadev Roy, Robert M. Gray, Saman Jahani, Alireza Marandi, "Femtojoule femtosecond all-optical switching in lithium niobate nanophotonics," *Nat. Photon.*, vol. 16, p. 625-631, 2022.
- [5] Mingxiao Li, Jingwei Ling, Yang He, Usman A. Javid, Shixin Xue, Qiang Lin, "Lithium niobate photonic-crystal electro-optic modulator," *Nat Commun*, vol. 11, p. 4123, 2020.
- [6] I. M. Vellekoop, A. P. Mosk, "Focusing coherent light through opaque strongly scattering media," *Opt. Lett.*, vol. 32, pp. 2309-2311, 2007.
- [7] Qingming Chen, Yujiao Zhu, Di Wu, Tenghao Li, Zhaohui Li, Chao Lu, Kin Seng Chiang, and Xuming Zhang, "Electrically generated optical waveguide in a lithium-niobate thin film," *Opt. Express*, vol. 28, pp. 29895-29903, 2020.
- [8] Hiroto Sakai, Yu Takiguchi, Yoshiyuki Ohtake, "Designing diffractive arbitrary shaped top-hat beam in non-paraxial systems," in *Proc. SPIE 11306*, 2020.
- [9] Georgios Sinatkas, Thomas Christopoulos, Odysseas Tsilipakos, Emmanouil E. Kriezis, "Electro-optic modulation in integrated photonics," *J. Appl. Phys.*, vol. 130, p. 010901, 2021.
- [10] Hiroto Sakai, Yu Takiguchi, Naoya Matsumoto, Munenori Takumi, Hiroshi Tanaka, Hirokazu Asaine, Norihiro Fukuchi, Naohisa Mukozaka, Haruyoshi Toyoda, "Improvement of Response Time in Dual-Wavelength Spatial Light Modulators via Overdrive Method," in *IP-19PM-2-6*, 2017.
- [11] Takizawa, Kuniharu, "Analysis of electro-optic crystal-based Fabry-Perot etalons for high-speed spatial light modulators," *Appl Opt.*, vol. 42, no. 6, pp. 1052-67, 2003.
- [12] S. Triebwasser, "Study of Ferroelectric Transitions of Solid-Solution Single Crystals of $\text{KNbO}_3\text{-KTaO}_3$," *Phys. Rev.*, vol. 114, no. 63, 1959.
- [13] Seiji Toyoda, Tadayuki Imai, Jun Miyazu, Yuichi Okabe, Masahiro Ueno, Junya Kobayashi, "Injected-charge-driven increase in electro-optic effect of ktn crystals," *AIP Advances*, vol. 4, no. 5, p. 057109, 2014.
- [14] 酒井 寛人, 渡邊 翼, "2 次電気光学材料を用いた高速空間光変調のための結晶内部波動伝搬シミュレーション," in *COMSOL Conference 2024 Tokyo*, 2024.
- [15] Tsubasa Watanabe, Hiroto Sakai, Hiroshi Tanaka, "Simulation of the effect of geometric structure on electro-optic properties of KTN crystal device with fast response time," in *Proc. SPIE 13360*, 2025.
- [16] Hiroto Sakai, Tsubasa Watanabe, "High-response KTN crystal devices at the phase transition temperature for longitudinal and holographic electro-optic modulation," *Opt. Rev.*, vol. 32, p. 387-395, 2025.
- [17] Tomoaki Yamada, Shogo Matsuo, Takafumi Kamo, Hiroshi Funakubo, Masahito Yoshino, Takanori Nagasaki, "Experimental study of effect of strain on electrocaloric effect in (001)-epitaxial (Ba,Sr)TiO₃ thin films," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 56, 2017.
- [18] Shinya Kondo, Tomoaki Yamada, Alexander Tagantsev, Nava Setter, Masahito Yoshino, Takanori Nagasaki, "Theoretical estimation of the linear electro-optic effect in compressively strained c-domain (Ba, Sr)TiO₃ thin films using a phenomenological thermodynamic model," *J. Ceram. Soc. Jpn.*, vol. 127, no. 6, pp. 348-352, 2019.
- [19] Shinya Kondo, Tomoaki Yamada, Alexander K. Tagantsev, Ping Ma, Juerg Leuthold, Paolo Martelli, Pierpaolo Boffi, Mario Martinelli, Masahito Yoshino, Takanori Nagasaki, "Large impact of strain on the electro-optic effect in (Ba, Sr)TiO₃ thin films: Experiment and theoretical comparison," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 115, no. 9, p. 092901, 2019.