

理想的な構造と組成均一性を持つ究極のニオブ酸リチウム単結晶の開発

東北大（宇田聡教授，谷内哲夫教授）の研究グループは、過去200年にわたる“定比化合物”の概念を一新し、理想的な構造と組成均一性を持つ究極のニオブ酸リチウム単結晶を開発し、これまでにない安定した波長変換特性（光の色を変える機能）を実現しました。

ニオブ酸リチウム（ LiNbO_3 ）は、 Li_2O と Nb_2O_5 がおよそ1:1の割合で構成される結晶材料です。この結晶は、入射した光の波長（色）を変える波長変換素子や、携帯電話で特定の周波数帯域の電波のみを通すバンドパスフィルターとして利用されています（図1）。このようなデバイスの機能特性は、結晶の組成（構成元素の割合）と結晶の構造に強く依存します。

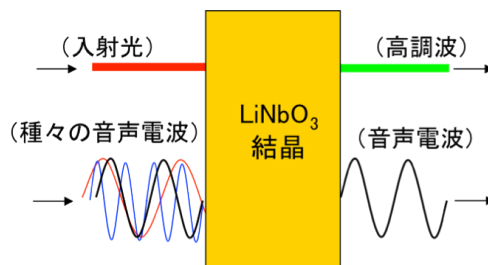


図1 LiNbO_3 結晶の持つ機能（イメージ図）

1. 理想的な構造と組成均一性を持つ究極のニオブ酸リチウム単結晶の開発に成功

本研究では、イギリスの化学者ダルトンにより19世紀初頭に提唱された「定比化合物」の概念を一新し、あえて欠陥や不純物を結晶に取り込むことにより、育成が容易で定比構造を持つ究極のニオブ酸リチウム結晶（図2の cs-MgO:LN ）の育成に成功しました。本結晶は、従来の結晶に比べ均質性、光学特性に優れています。

図2の s-LN は、 Li_2O と Nb_2O_5 の成分が厳密に1:1の量比を持ち、結晶内ではLi, Nb, Oがそれぞれ規定の位置（サイト）を過不足なく占有し、完全な構造を持つ結晶（定比化合物^{*1}）です。この結晶は、優れた光学特性を示すことが知られています。しかし、結晶育成中に組成ずれが起こりやすく、結晶育成が困難であるという問題点があります。一方、図2の c-LN は、育成が容易で均質な組成を持ちますが、 Li_2O と Nb_2O_5 の成分比は、1:1からずれているため定比化合物でないため光学特性は良くありません。我々の開発した cs-MgO:LN は、これらの問題を解決しました。この結晶は、 MgO を不純物として添加し、また、空格子という欠陥をあえて結晶に導入することにより、 s-LN と c-LN のそれぞれの良い特性を兼ね備えた結晶（育成が容易で組成ずれの起きない定比化合物）となっています。その結果、半世紀にもわたり研究されてきたニオブ酸リチウムに対し、育成の容易性、均質性、優れた光学特性を有する究極の結晶の作製が実現できました。

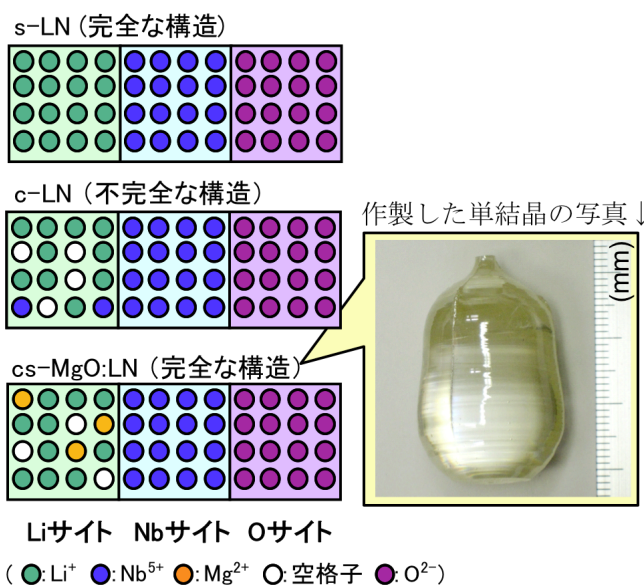


図2 ニオブ酸リチウムの結晶構造

2. 安定で高効率の波長変換特性を実現

単結晶の作製では、融液（原料を融かした液体）から成長させる方法が主流となっていますが、結晶成長時の結晶と融液の界面では、様々な物質のやりとりが行われます（図3）。この時、融液中に存在する物質が結晶内に取り込まれ易かったり、または、取り込まれ難かったりする場合は、育成に伴い結晶内で組成むらができてしまいます。組成むらのある結晶では、安定したデバイス特性の発現が困難となってしまうだけでなく、結晶育成自体も困難となります。我々が開発した cs-MgO:LN は、融液中に存在している全ての物質を結晶内にス

ムースに取り込むので、理想的な組成均一性を持ちます。その結果、**cs-MgO:LN** は育成が容易で、しかも安定で高効率の波長変換特性の発現を可能とします(図4の①)。一方、従来用いられてきた組成の結晶(図4の②~④)では、育成に伴う組成むらが原因して、安定した波長変換が困難となります。

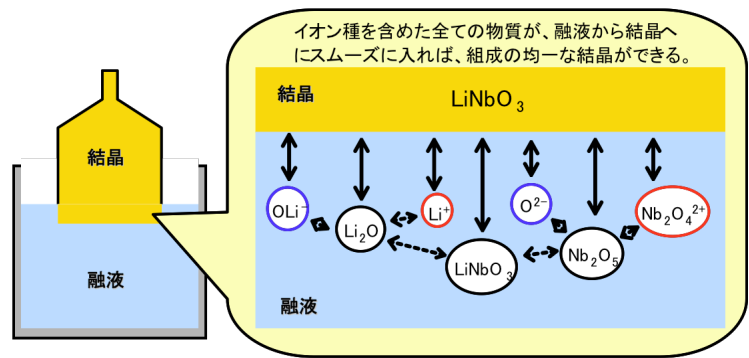


図3 LiNbO₃結晶成長中の結晶 / 融液間での物質のやりとり

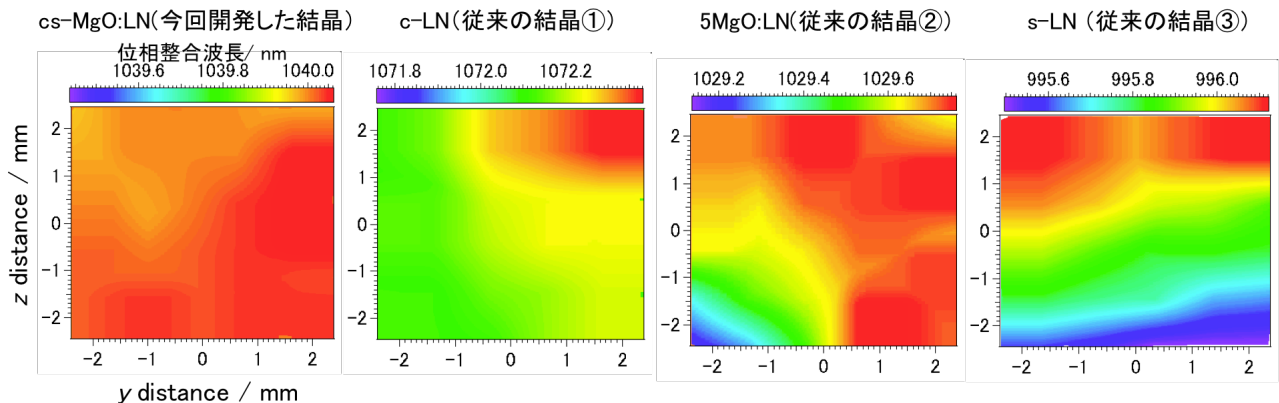


図4 室温における結晶内の位相整合波長*2の分布。色むらは組成むらに対応している。

[応用面]

今回開発した **cs-MgO:LN** 結晶は、理想的な組成均一性を持つため、安定で、高効率の波長変換を行うことが可能となります。この結晶を用いた波長変換によるレーザー光源は、コンパクトで扱いも簡便であることから、大型ディスプレイ用光源や医療、診断、計測用などの光源としての応用が期待できます。

[開発の指針]

ニオブ酸リチウムに代表されるような酸化物結晶材料は、元素の組み合わせにより多種多様な特性を発現するため、新規結晶材料の探索が盛んに行われています。このような中、当研究グループは、新旧の結晶材料のさらなる高品質化、または、育成が困難とされてきた結晶材料の創製を目指して研究を行っています。ニオブ酸リチウムも発見以来、半世紀程度の長い研究開発の歴史を持つ結晶材料ですが、結晶成長の観点からは、まだまだ高品質化の余地が残っていました。我々は、結晶材料の持つ特性を最大限に引き出す方法を原理的に検討し、究極のニオブ酸リチウム単結晶の作製に成功しました。

[問い合わせ先] 東北大学金属材料研究所 宇田研究室 宇田聡

〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1 2号館 5階

Tel. 022-215-2100 Fax. 022-215-2101 E-mail: uda@imr.tohoku.ac.jp

[当日の講演発表] 17p-TV-4 「MgO 添加により化学量論組成と調和融解組成を一致させたニオブ酸リチウムの SHG 特性」 木村博充, 小泉晴比古, 杉山和正, 谷内哲夫, 宇田聡

用語の説明

*1 定比化合物・・・従来は、図2のs-LNのように、結晶を構成する各元素が正規の位置を過不足なく占有した理想的な構造を持つ化合物を指した。本研究では、図4のcs-MgO:LNのように、結晶内に異種元素や空格子を含んだ場合でも、各々の元素がそれぞれ1つのサイトのみに存在する構造を持てば、定比化合物になるという新概念を打ち出した。

*2 位相整合波長・・・波長変換が起こる時の入射光の波長。位相整合波長は結晶の組成に依存するため、位相整合波長のずれは組成ずれに対応する(図4)。