

多重反射干渉法の測定精度改善と LiNbO₃ 結晶の電気光学係数 r_{22} の測定

米倉 和也^{*1}, 金 蓮花^{*2}, 滝沢 國治^{*3}

Improvement of Measurement Accuracy of the Multiple Reflection Interference Method and Measurement of Electro-Optic Coefficient r_{22} of LiNbO₃ Crystal

Kazuya YONEKURA^{*1}, Lianhua JIN^{*2}, Kuniharu TAKIZAWA^{*3}

ABSTRACT: Multiple reflection interferometry obtains electro-optic coefficient from the phase of interference signal between the light, which passes through the sample crystal without internal reflection and the lights which after proceeding several internal reflection inside the crystal. To simplify the data process, conventional interferometry considered only two beam interference, which results in theoretical systematic error. We have analyze the error caused by the theory and form tolerance of the EO crystal, furthermore, propose two measurement techniques to minimize these errors. EO coefficient r_{22} of non-doped congruent LiNbO₃ crystal was measured with multiple reflection interferometry, and the measurement results was $6.54 \pm 0.02\text{pm/V}$ at 632.8nm by null method.

KEYWORDS: Electrooptic coefficient, Dispersion, Electrooptic crystal, interference

(Received October 13, 2006)

1. はじめに

強誘電性 LiNbO₃(LN) 結晶は, (1)大きな電気光学 (Electro-Optic;EO)係数, (2)大型結晶の製造が容易, (3)潮解性などを持たず環境に対して安定, (4)加工性に優れる, (5)比較的安価, など多くの優れた特質をもつ. そのため LN結晶は青色光を用いるホログラム記録デバイス [1-3], 可視光を用いる光画像処理デバイス [4], 赤外光を用いる光通信デバイス [5,6]など多くの光機能性デバイスに利用されている. LN結晶は, この様に幅広い波長領域で用いられているがEO係数と波長の関係は不確定なところが多

い. そのため, 可視光から赤外光までEO係数の波長依存性を一貫して測定することが求められている.

ここでは, EO係数の波長依存性測定の現状を明らかにすることにより, 本論文の目的を明確にする.

EO係数測定法には, Mach-Zehnder干渉法 [7-9]及び Michelson干渉法 [10], 光ヘテロダイン法 [11-13], Fabry Perot干渉法 [14], Senarmont法 [15]などの方法があるが, 測定された波長は限られている.

図1に示すMach-Zehnder干渉法及びMichelson干渉法は二つの光路間の光の位相差からEO係数を測定する方法であり, 2光路干渉法とも呼ばれる. これらの方法は直線偏光した光の電界による位相変化を測定してEO係数を求める方法であり, 幅広い周波数領域にわたりすべてのEO係数を高感度で測定可能である. Mach-Zehnder干渉法を応用したEO係数測定法として, 光の電界による位相変化の基本波成分と第2高調波成分を比較することにより高精度にEO係数を測定する方法が開発されている [16]. しかし, 二つの光路を通る光の干渉を利用した測定であるため, 図1に示すように多くの光学部品が必要であり, 空気の揺らぎや振動に対して脆弱であり, 防振台, 風防, 防塵

^{*1} 成蹊大学工学研究科物理情報工学専攻科学生
(Doctor Candidate, Dept. of Applied Physics,
e-mail:dd053501@cc.seikei.ac.jp)

^{*2} 成蹊大学理工学部物質生命理工学科助手
(Research Associate, Dept. of Materials and Life Science,

^{*3} 成蹊大学理工学部物質生命理工学科教授
(Professor, Dept. of Materials and Life Science

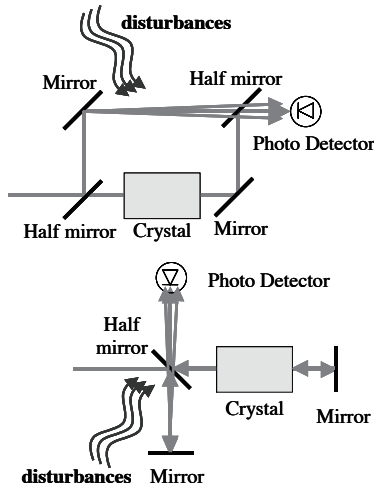


図1 2光路干渉計と外乱(上; Mach-Zehnder干渉計, 下; Michelson干渉計)

カバーなどを必要とする。更に、紫外光や赤外光の不可視光における測定では、安定した干渉信号を得ること自体が困難である。

光ヘテロダイン法は位相変調された光の搬送波信号と側帯波信号の振幅を比較する方法である。この方法では高周波のEO係数を測定することはできるが、低周波におけるEO係数を測定することは困難である。

Senarmont法は直線偏光した二つの光の位相差(リタデーション)を測定することによりEO係数を求める方法であり、古くからよく知られたEO係数測定法の一つである。この測定法は、図2に示すように直交配置された偏光子と検光子の間に測定対象となる結晶を設置してEO係数を測定する方法であり、LN結晶やLiTaO₃結晶などの点群3mの結晶の r_{22} の測定に適している。しかしSenarmont法でLN結晶のEO係数 r_{13} , r_{33} , r_{51} を正確に測定することはできない。

Fabry-Perot(FP)干渉法は、薄膜加工されたLN結晶の両面にミラーを施したFP共振器の光共振特性からEO係数を求める方法である。しかし、この方法は環境温度変化による影響を非常に強く受ける。またFP共振器そのものの製造や、幅広い波長域にわたって反射率に波長依存性を持たないミラーの製造が困難である。そのためFP共振器を用いて

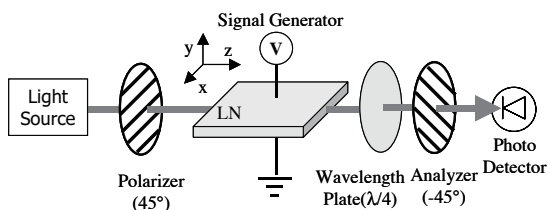


図2 Senarmont法

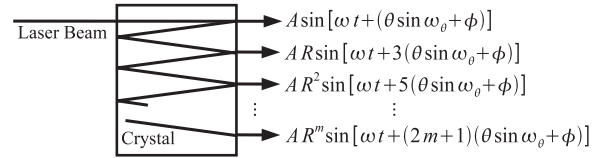


図3 結晶面で多重反射した光の振幅と位相の関係。

幅広い波長領域にわたりEO係数を求めることは難しい。

そのほかプリズム形状の結晶を用いてレーザを偏向し、その偏向角からEO係数を求める方法 [12, 17], パルス電圧を結晶に印加して歪み一定の状態にある結晶のEO係数を測定する方法 [18–20], ラマン散乱と結晶に印加する交流電界に対する第2高調波成分を測定することによりEO係数を測定する方法 [21, 22]などが提案されているが、高精度の測定は容易ではなく、複雑な実験設備を必要とする。

FP干渉法を除くすべての測定方法に共通する問題点として、結晶内の多重反射光がEO係数測定時の理論系統誤差となる点が挙げられる。この問題はEO結晶の両端面に反射防止膜を施すことにより改善できる。しかし反射防止膜の有効波長帯域は一般に狭い。そのため、幅広い波長領域でEO係数を高精度に測定するには、各々の波長に対応した反射防止膜が施されたEO結晶を用意する必要がある。

EO係数の波長分散を測定するには以上のような様々な問題と困難がある。そのため系統だった波長分散測定はほとんど行われていない。LN結晶の場合、EO係数の波長分散測定は、ChirakadzeらによるノンドープコングレントLN結晶の波長420-1150nmにおける r_{22} [22]の測定や、Méndezらによるノンドープコングレント及び準ストイキオメトリLN結晶の波長458-632.8nm及び1.04 μm における r_{13} 及び r_{33} [23]が測定があるのみである。

2光路干渉法やFP干渉法の課題を解決し、広い波長領域にわたってEO係数を測定できる方法として多重反射干渉法がある [24]。この測定法は、図3に示すように、結晶内で反射せずにそのまま透過する光と結晶内で複数回反射した後結晶を透過する光の干渉を利用してEO係数を測定する。FP干渉器の特徴である共振用ミラーを取り除くことによりFP干渉法の欠点である狭帯域性を排除すると共に、すべての多重反射光が同じ光路をたどる単一光路を実現することにより、2光路干渉計のもつ振動や空気のゆらぎなどの外乱に対して脆弱であるという問題を解決している。

このように多重反射干渉法は優れた特徴をもつが、その測定精度は測定試料の屈折率に依存するという問題点を抱えている。本論文ではEO係数の波長分散特性を求めることを目的として、多重反射干渉法のもつこの問題を改善することにより、容易な測定と高い測定精度の両立を図る。

本論文では幅広い波長領域においてEO係数の精密測定

可能な多重反射干渉法について、研究結果を8節にわたりとりまとめて記述する。第2節では、EO係数の波長分散特性取得に適した多重反射干渉法について述べる。第3節ではnull法が持っていた理論系統誤差について検討し、その誤差を解消するための解析方法について詳細に述べる。第4節では振幅比較法が持っていた理論系統誤差について検討し、その誤差を解消するための解析方法について詳細に述べる。第5節では結晶のもつ形状誤差が測定結果に与える影響について述べる。第6節では多重反射干渉法ならびにnull法・振幅比較法の特徴について述べる。第7節では、理論系統誤差を解消した多重反射干渉法を用いてノンドープコングルエントLN結晶のEO係数 r_{22} を波長632.8nmで測定した結果を報告する。第8節は本研究の成果をまとめである。

2. 多重反射干渉法

結晶内の多重反射を積極的に利用することによりEO係数を測定する多重反射干渉法 [24]は、両端面を平行に研磨したEO結晶にレーザ光を垂直に入射させるだけの非常にシンプルな光学系で構成される。この方法は結晶内で反射せずにそのまま透過する光と結晶内で2回反射したあとに透過する光との干渉を利用して結晶のEO係数を測定する。

多重反射干渉法は透過光と結晶内往復光が同じ光路をたどるため、

- (1) 振動や空気の揺らぎの影響を受けずに安定した干渉測定が可能、
- (2) 防振台が不要、
- (3) 赤外光や紫外光などの不可視光の測定が容易、

などの特徴をもつ。

また、多重反射干渉法はEO係数を測定する際に結晶内の多重反射を積極的に利用するため、精密にEO係数を測定する際、従来の多くの干渉計測法では欠かせない結晶端面への反射防止膜の蒸着が不要ある。更に位相変化を直接測定するため、

- (1) 一つの結晶で高精度な波長分散特性を可能、
- (2) すべてのEO結晶のすべてのEO係数を測定可能、

という特徴をもつ。

著者の1人はこの方法でLN結晶と、LiTiO₃結晶の応力一定状態でのEO係数 r_{13}^T と r_{33}^T を測定した [24]。また、Ti拡散LN光導波路における屈折率分布と導波光分布の重なり係数 Γ とEO係数 r_{22}^T の積で表される光導波路の実効EO係数 Γr_{22}^T を測定し、Ti膜厚と Γr_{22}^T の関係を明らかにした [25]。更にNH₄H₂PO₄結晶やKH₂PO₄結晶のEO係数

r_{41}^T を測定し、圧電定数 d_{14} との相対的符号関係を明らかにした [26]。

多重反射干渉法によるEO係数測定には、2種類の実験・解析方法がある。

一つは光検出器信号のうち結晶に印加する交流電圧と等しい角周波数をもつ信号（基本波成分）の強度が最小になる電圧値からEO係数を求める方法である。ここではこれをnull法と呼ぶことにする。他方は、光検出器信号の基本波成分と第3高調波成分の信号強度を比較することによりEO係数を求める方法である。我々はこれを振幅比較法と呼ぶことにする。

次節以降で双方の方法について説明を行い、それぞれの方法の利点と欠点を明らかにする。

3. null法

3.1 null法の原理

多重反射干渉法の測定ブロックを図4に示す。実験系は、両端面を平行に研磨した結晶に交流電圧 $V_{AC} \sin(\omega t)$ を加え、レーザ光を結晶の端面から入射させるだけの簡単な光学系から構成される。ここで、結晶に印加する交流電圧の振幅を V_{AC} 、交流電圧の角周波数を ω とする。結晶の端面で反射せずに透過する光と結晶内を1.5回往復した後に透過する光との干渉信号は非常に小さいが、光検出器からの信号を中心角周波数 ω に設定したロックインアンプやバンドパスフィルタに導けば、雑音の少ない基本波成分 $\sin \omega t$ を検出することができる。この濾過信号が最小になるときの印加交流電圧の振幅を測定することにより実効EO係数を求めることができる。次にその原理を述べる。

図3に示すようにレーザ光を結晶端面に対して垂直に入射させるとき、レーザビームは結晶の両端面間で多重反射するため結晶からの透過光は様々な位相をもつ複数のビームからなる。結晶面のパワー反射率を R 、結晶内で反射せずに透過する光の振幅を A 、交流電圧 $V_{AC} \sin \omega t$ により誘起される光の動的位相変化を $\theta \sin \omega t$ 、結晶に印加する直流電圧を V_{DC} 、 V_{DC} により誘起される

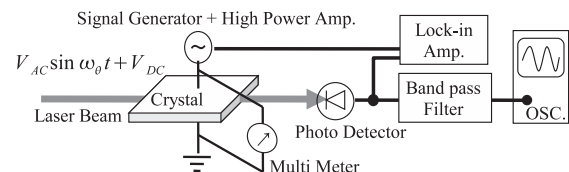


図4 多重反射干渉法を用いてEO係数を測定するための実験ブロック図。

光の静的位相を ϕ とすると、結晶内で反射せずにそのまま透過する光の電界は $A \sin[\omega t + (\theta \sin \omega \theta t + \phi)]$ と表される。ここで $\theta \sin \omega \theta t$ 及び ϕ は結晶への印加電圧により生じるレーザ光の動的位相変化及び静的位相であり、それぞれ結晶内を1回伝搬することにより生じる大きさである。結晶内で1.5回往復（結晶端面で2回反射）したあとに透過する光は、結晶内で反射せずに透過する光に比べ、3倍の距離を伝搬することになる。よって動的位相及び静的位相の変化量は $3(\theta \sin \omega \theta t + \phi)$ となる。結晶から透過するレーザ光の位相は、振幅 A に振幅反射率 \sqrt{R} を2回乗じて $AR \sin[\omega t + 3(\theta \sin \omega \theta t + \phi)]$ と表される。同様に結晶内を2.5回往復したあとに透過する光は、 $AR \sin[\omega t + 3(\theta \sin \omega \theta t + \phi)]$ で表される。

単一縦モードレーザ光（以後、解析も含めて横モードは常に TEM_{00} ）が結晶内部を $(m+0.5)$ 回往復すると仮定すると、 $(m+1)$ 本のレーザ光の干渉により生じる光強度信号 I は式(1)で与えられる。

$$I = A^2 \left\{ \sum_{k=0}^m R^k \sin[\omega t + (2k+1)(\theta \sin \omega \theta t + \phi)] \right\}^2 \quad (1)$$

よって T を $2\pi/\omega \theta (\gg 2\pi/\omega)$ で与えられる光検知器の積分時間とすれば、式(1)より光検出器の出力信号 P は、

$$P = \frac{A^2}{T} \int_0^T \left\{ \sum_{k=0}^m R^k \sin[\omega t + (2k+1)(\theta \sin \omega \theta t + \phi)] \right\}^2 dx \quad (2)$$

となる。式(2)を展開して積分計算をすると、 P は

$$\begin{aligned} P &= \frac{A^2}{2} \sum_{k=0}^m R^{2k} + A^2 \sum_{l=0}^{m-1} \sum_{k=1}^{m-l} R^{k+2l} \cos[2k(\theta \sin \omega \theta t + \phi)] \\ &= \frac{A^2}{2} \sum_{k=0}^m R^{2k} + A^2 \sum_{l=0}^{m-1} \sum_{k=1}^{m-l} R^{k+2l} \\ &\quad \left\{ \begin{array}{l} \cos(2k\phi) \left[J_0(2k\theta) + 2 \sum_{h=1}^{\infty} J_{2h}(2k\theta) \cos(2h\omega \theta t) \right] \\ -2 \sin(2k\phi) \sum_{h=0}^{\infty} J_{2h+1}(2k\theta) \sin[(2h+1)\omega \theta t] \end{array} \right\} \end{aligned} \quad (3)$$

で与えられる。ただし J_h は h 次のベッセル関数である。

バンドパスフィルタを用いて印加電圧の基本波成分 $\sin \omega \theta t$ を選択すると、基本波成分信号 P_m^F は

$$P_m^F = -2A^2 \sum_{l=0}^{m-1} \sum_{k=1}^{m-l} R^{k+2l} \sin(2k\phi) J_1(2k\theta) \sin \omega \theta t \quad (4)$$

となる。

ここで結晶内で反射せずに透過する光と結晶内を1.5回往復した後に透過する光との干渉（ $m=1$ の場合）だけを考慮すると光検出信号は更に簡単になり、

$$P_1^F = -2A^2 R \sin(2\phi) J_1(2\theta) \sin \omega \theta t \quad (5)$$

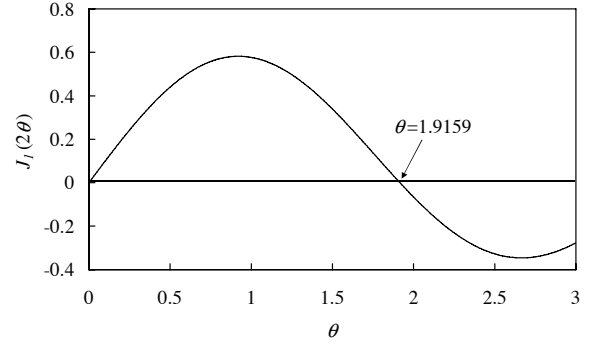


図5 $J_1(2\theta) = 0$ を満足する θ 。

と表される。ここで静的位相 ϕ と動的位相 θ は未知数であるが、 $J_1(2\theta) = 0$ の値を満足する θ の値は図5より明らかである。また動的位相 θ や印加交流電圧 V_{AC} に対する応力一定状態におけるLN結晶のEO係数 r_{22} の関係は以下の式で表される。

$$\theta = \frac{\pi n_o^3 r_{22} L V_{AC}}{\lambda D} \quad (6)$$

ここで n_o はLN結晶の常屈折率、 λ はレーザ光の波長、 L は結晶長、 D は結晶厚である。よって、印加交流電圧を0から順次増大して $P_1^F = 0$ となる電圧を測定すれば、静的位相 ϕ やパワー反射率 R にかかわらず式(6)を用いて実効的EO係数を求めることができる。

以上が、従来の多重反射干渉法の測定原理である。本節では2本の光ビームの干渉（ $m=1$ の場合）について検討したが、実際には結晶内を複数回往復したのちに透過する光の影響も考慮する必要がある。次小節では反射回数 m の検討を行う。

3.2 反射回数 m の検討

$m \rightarrow \infty$ の時に式(3)はよく知られるFabry-Perotの式になり、結晶長がビーム断面径に比べて十分短い場合にはFabry-Perotの式が成立する。しかし、図3の横型光変調器では、 m は有限の値に制限される。本小節ではガウシアンビームであるレーザ光が、横型変調器内において反射可能な回数について検討をする。

両端面を平行に研磨したLN結晶にレーザ光を垂直に入射させた場合、結晶内を透過するレーザ光が等位相面を保ったまま無限回反射する事はできない。それはガウシアンビームが回折現象によるビーム拡がり角をもつため、ある一定以上の距離を伝搬したレーザ光のビーム径が結晶厚を超えてしまうためである。結晶内を伝搬するレーザ光が等位相面を保ったままエネルギー損失無しに伝搬

できる距離は以下の式で表される [11].

$$\frac{D}{L} = S^2 \frac{4\lambda}{n\pi} \quad (7)$$

ここで L は結晶長, D は結晶厚, n は結晶の屈折率, S はセーフティファクタである. 一般に S が 3 ~ 6 より大きければ, 回折損失を無視することができる.

レーザー光が結晶内を $(2m+1)$ 回往復した後に結晶から透過する場合, 光の実際の伝搬距離は $(2m+1)L$ となる. これを式(7)へ適用すると, レーザ光が損失無しに結晶から透過する m は, 以下の式で示される.

$$m = \frac{1}{2} \left(\frac{n_o \pi D^2}{4\lambda L S^2} - 1 \right) \quad (8)$$

ここでノンドープコングレント結晶の波長 $\lambda = 632.8\text{nm}$ の常屈折率 $n_o = 2.2868$ を用いて [27], 結晶サイズを $D = 2\text{mm}$, $L = 20\text{mm}$ とすると, 式(8)から $m = 7.383$ となる. 図6に, この条件下での m と D の関係を示す. よって, この条件で実験を行う場合, レーザ光の結晶内での往復回数は $m = 7$ が一応の目安となる. ただし $m \geq 8$ でも光は回折損失を伴いながら結晶を透過するため, その影響を考慮しなければならない.

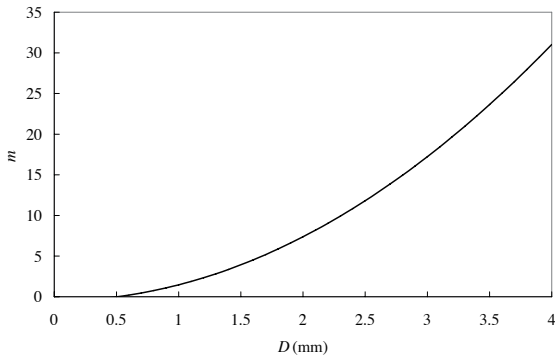


図6 反射回数 m の D 依存性. ($L = 20\text{mm}$, $\lambda = 632.8\text{nm}$, $n = 2.2868$)

3.3 null 法の測定精度

本節は多重反射光が測定精度に与える影響について解析する [24].

結晶内を3往復半した後に透過する光ビームとの干渉 ($m = 3$ の場合) のバンドパスフィルタの出力 P_3^F は,

$$P_3^F = -2 \sum_{i=1}^q A_i^2 R \sin \omega \theta t \left[\begin{array}{l} (1+R^2+R^4) \sin(2\phi) J_1(2\theta) \\ + (R+R^3) \sin(4\phi) J_1(4\theta) \\ + R^2 \sin(6\phi) J_1(6\theta) \end{array} \right] \quad (9)$$

となる.

$\phi = \pi/4$ に設定すれば第2項を消去することができるが, 第3項は残る. 同様に, $m > 3$ の高次項でも $\phi = \pi/4$ として

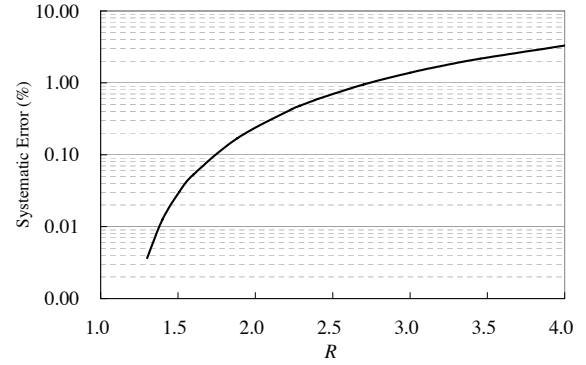


図7 結晶のパワー反射率 R と従来の多重反射干渉法がもつ理論系統誤差の関係.

表1 理論系統誤差

Material	Refractive indices	Power Reflectivity	Wavelength (nm)	Systematic Error(%)
KH_2PO_4	1.5079	0.0410	632.8	0.03
LiIO_3	1.8830	0.0930	632.8	0.17
LiNbO_3	2.3870	0.1677	441	0.58
LiNbO_3	2.2864	0.1532	632.8	0.48
LiNbO_3	2.2364	0.1459	1000	0.43
BaTiO_3	2.4037	0.1701	632.8	0.60
InGaAsP	3.4	0.2975	1550	1.62
GaAs	3.4550	0.3037	1150	2.17

消去できる項は i が奇数の場合のみである. 高次の偶数項が残ると $\phi = \pi/4$ に正確に設定することは困難になる. 従って第2項以降が多重反射干渉法の理論系統誤差となる.

3.2節に示した結晶サイズの場合, 横型光変調器における光の反射回数は $m = 7$ であることを前節で述べた. そこで $m = 7$ とした場合の実効的EO係数の理論系統誤差とパワー反射率の関係を計算した. その結果を図7に示す. また各種EO結晶のEO係数を種々の波長で測定した場合の理論系統誤差を表1に示す. KH_2PO_4 結晶のように屈折率が小さい場合, そのパワー反射率も小さくなるため, 理論系統誤差は非常に小さい. したがって, KH_2PO_4 結晶では, 多重反射光が測定結果に与える影響は小さい. LN結晶のように屈折率が約2.2前後の結晶の場合, 理論系統誤差は約0.5%程度となり, EO係数を精密に測定する際には, これを無視することはできない. 更に, GaAs 結晶や InGaAsP 結晶のように屈折率が3を超えるような結晶の場合, 理論系統誤差は1%を超え, 測定結果に大きな影響を与える.

3.4 null 法の測定精度の改善

多重反射干渉法がかかえる理論系統誤差を解消するために, 本節では式(4)から直接 $P_m^F = 0$ となる動的位相 θ を求める方法を検討する. 式(4)には m , R , ϕ , θ の4つの未知数が含まれる. このうち R は測定対象となる結晶の種類

と測定波長により決定されるから、この式は3つの変数をもつ関数と見なすことができる。 $P_m^F = 0$ となる m, ϕ, θ の組み合わせは無数に存在する。これは $P_m^F = 0$ から直ちにEO係数を求めることができないことを意味する。

これを解決するためには何らかの方法で m と ϕ を確定し、式(4)を一つの変数 θ をもつ関数に取れんさせる必要がある。3.2節で示した測定条件の場合、 $m = 7$ がひとつの目安であることから、ここでは $m = 7$ として ϕ を確定する方法を示す。

$m = 7$ として、任意の ϕ 及び θ を与えた場合の $P_7^F(\theta, \phi)$ の挙動を計算した。この計算では、パワー反射率 R として $\left(\frac{n_o - 1}{n_o + 1}\right)^2 = 1.5328$ を用いた。一例として、 ϕ の初期値として $0.3, 0.5, 0.9, 1.2$ mrad を与え、 $P_7^F(\theta, \phi)$ が最大になるように ϕ と θ を交互に調整すると、いずれの結果も $\phi = 0.76567$ 、 $\theta = 0.90437$ において P_7^F が最大となった。 ϕ が初期値の時の曲線と $\phi = 0.76567$ の時の曲線を図8に示す。図の $P_7^F(\theta, \phi)$ は、太線の最大値で正規化されている。次に、 $0 < \phi < \frac{\pi}{4}$ の範囲で ϕ を細かく計算した結果を図9に示す。同図は横軸に θ 、縦軸に ϕ を与えた P_7^F に対する等高線図である。この図は $0 \leq \theta \leq 2$ 及び $0 \leq \phi \leq \frac{\pi}{4}$ の範囲内で P_7^F が唯一の最大値をもつ一つの関数に取れんすることを示している。

P_7^F が最大となる ϕ を 0.76567 に固定すれば、式(4)から、 $P_7^F = 0$ となる唯一の θ_0 を得ることができる。図10は、図8

の $P_7^F = 0$ 近傍を拡大したものである。 $\theta_0 = 1.9251$ において $P_7^F = 0$ となる。

従来の多重反射干渉法では $m = 1$ としていたため、 $P_1^F = 0$ となる条件は $\theta_0 = 1.9159$ であった。本節の方式を用いることにより、今回の解析条件では約0.5%の理論系統誤差を解消できることが明らかとなった。

最後に m と θ_0 の関係を明らかにする。前述のLN結晶に対して $\lambda = 632.8$ nm で測定する場合の $m = 1 \sim 10$ について θ_0 を求めた。その結果を図11に示す。この結果から $m \geq 7$ なら $\theta_0 = 1.9251$ に収れんすることが判った。従って、結晶内の多重反射は $m = 7$ まで検討すれば十分であることが明らかになった。

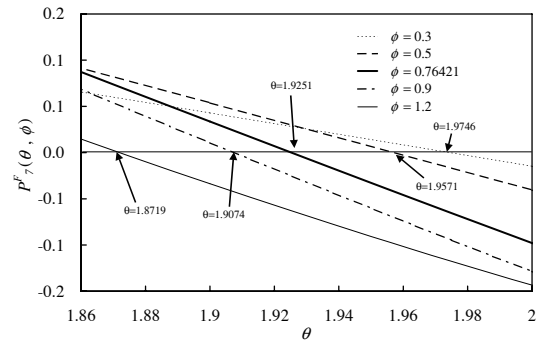


図10 ϕ を変化させた場合の、 θ に対する $P_m^F(\theta, \phi)$ (θ_0 近傍の拡大図) ($m = 7$)。

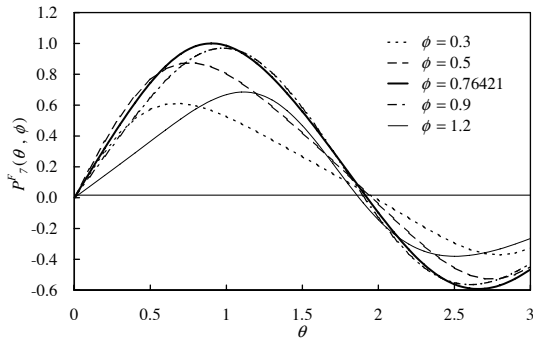


図8 ϕ を変化させた場合の、 θ に対する $P_7^F(\theta, \phi)$ 。

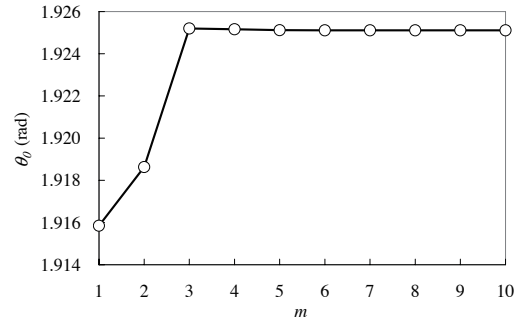


図11 m と θ_0 の関係。

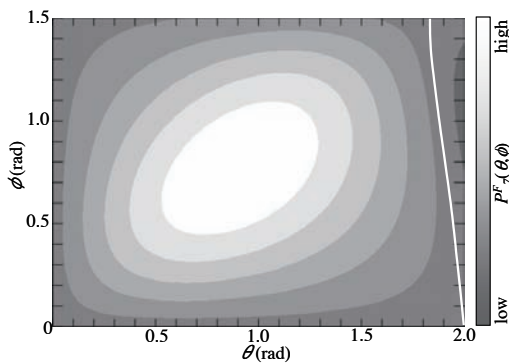


図9 $P_7^F(\theta, \phi)$ の等高線図。

4. 振幅比較法

4.1 振幅比較法の原理

前節より、null法による解析は、光検出器信号の基本波成分が最小になる電圧値からEO係数を求める方法であり、高精度な測定が可能であることが示された。しかし半波長電圧より大きな振幅をもつ交流電圧を結晶に印加する必要があり、電気光学係数の小さなEO結晶や赤外光に対する測定には適さない。その欠点を解消するために振幅比較法 [28] が考案された。

振幅比較法の実験系は図4と、ほぼ同一である。EO係数は、光検出器の出力信号からバンドパスフィルタを用いて基本波成分と第3高調波成分を抜き出し、それぞれの信号の振幅を比較することにより求められる。本論文の著者の1人であるTakizawaは、この方法を用いてノンドーピングングルエントとMgOドーピングされたコングルエントLN結晶の波長632.8nmにおける r_{13} と r_{33} の複合的電気光学係数 r_c を求めた [28]。ここでは従来の振幅比較法の原理とその誤差を示す。

TakizawaはLN結晶の入出力端面に反射防止膜を蒸着し、多重反射光の影響を低減した [28]。前述のとおり、この方法はEO係数の波長依存性を測定するには適さない。多重反射干渉法による光検出信号は式(3)で表される。したがって、多重反射を考慮した干渉信号の基本波成分は式(4)となる。同様にバンドパスフィルタの濾過中心角周波数を印加電圧の角周波数 $3\omega\theta$ と設定することにより、干渉信号のうち第3高調波成分 $\sin 3\omega\theta t$ を容易に検出することができる。したがって干渉信号の第3高調波成分 P_m^T は次の式で与えられる。

$$P_m^T = -2A^2 \sum_{l=0}^{m-1} \sum_{k=1}^{m-l} R^{k+2l} \sin(2k\phi) J_3(2k\theta) \sin 3\omega\theta t \quad (10)$$

従来の振幅比較法では、結晶内をそのまま透過する光と結晶内を一往復半した後に結晶から透過する光の干渉のみを考えていた($m=1$ の場合)。これを式(10)に代入すると、式(11)を得る。

$$P_1^T = -2A R \sin(2\phi) J_3(2\theta) \sin 3\omega\theta t \quad (11)$$

基本波成分は式(5)で与えられる。よって式(5)、式(11)より、基本波成分と第3高調波成分の振幅比は次の式で与えられる。

$$\frac{P_1^F}{P_1^T} \Big|_{rms} = \frac{-\sqrt{2}A^2 R \sin(2\phi) J_1(2\theta)}{-\sqrt{2}A^2 R \sin(2\phi) J_3(2\theta)} = \frac{J_1(2\theta)}{J_3(2\theta)} \quad (12)$$

式(12)は、光干渉信号の基本波成分と第3高調波成分の測定値の比(右辺)が、ベッセル関数 J_1/J_3 で表されることを意味している。すなわち、図12に示される測定値 α が得られれば、それに対応する動的位相 β が一意に求められ、EO係数が決定されることになる。

この方法は非常にシンプルであるが、結晶内の多重反射を考慮していない。3.3節で示したように、結晶の屈折率が2を超えると多重反射光の影響を無視することができなくなる。

4.2 測定精度の改善 II(振幅比較法)

多重反射干渉法と振幅比較法を組み合わせた実験系を図13に示す。図4の実験系と異なるのは、第3高調波成分

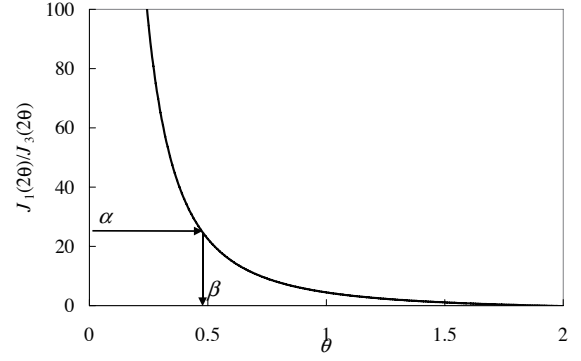


図12 測定された $J_1(\theta)/J_3(\theta)$ から θ の関係及びEO係数を求めるための α の求め方。

を測定するためにロックインアンプを一台追加した点である。図4の実験系でも基本波と第3高調波を別個に測定することが可能であるが ϕ が温度変化にきわめて敏感であることを考慮すると、二つの周波数成分を同時に測定することが望ましい。図13の注意点は二つのロックインアンプの入出力特性をあらかじめ測定して、両者の利得補正項を求めておくことである。

そこで本節では、多重反射干渉法と振幅比較法を組み合わせ、低電圧でEO係数を測定する方法を述べる。

従来の振幅比較法は、null法による解析と同様に、高次の多重反射光による理論系統誤差をもつ。そこで高次の多重反射光を含む式(4)及び式(10)から直接 θ の関数を求めることを検討する。それぞれの式の振幅に注目すると θ は以下のように示される。

$$\frac{P_m^F}{P_m^T} \Big|_{rms} = \frac{\sum_{l=0}^{m-1} \sum_{k=1}^{m-l} R^{k+2l} \sin(2k\phi) J_1(2k\theta)}{\sum_{l=0}^{m-1} \sum_{k=1}^{m-l} R^{k+2l} \sin(2k\phi) J_3(2k\theta)} \quad (13)$$

3.2節の議論に従い $m=7$ とにおいて、null法と同様に、 P_7^F が最大となる ϕ を求めれば、 $\frac{P_7^F}{P_7^T} \Big|_{rms}$ を一つの関数に収めさせることができる。この関数と実験で得られた干渉信号の基本波成分と第3高調波成分の比を比較すれば動的位相 θ が決定され、印加した V_{AC} と式(6)からEO係数が求まる。

以上から、ノンドーピングングルエントLN結晶、結晶温度25°C、測定波長632.8nmの条件で計算を行い $\phi=0.76567$ を得た。得られた ϕ を式(4)及び式(10)に代入し、 P_7^F 、 P_7^T と θ

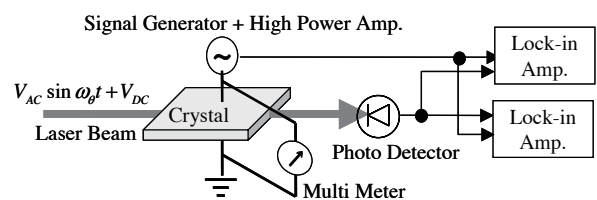


図13 振幅比較法の実験系統図。

の関係を求めた。計算結果を図14に示す。また $\frac{P_7^F}{P_7^F}_{rms}$, $\frac{J_1(2\theta)}{J_3(2\theta)}$ と動的位相 θ の関係を図15に示す。この図を用いれば、実験から求められた基本波成分信号と第3高調波信号の強度比 α から、動的位相 β が得られる。

図15の $\Delta\beta$ が $m=1$ と $m=7$ の理論的な系統誤差となる。

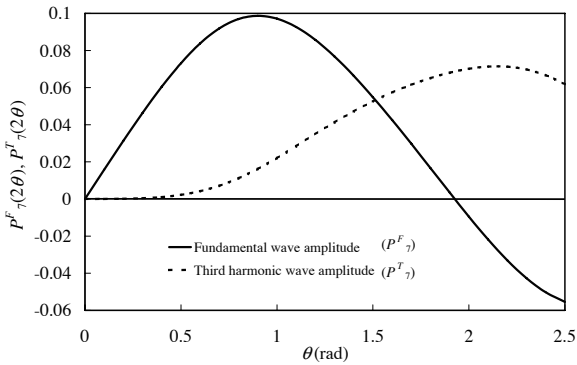


図14 θ に対する基本波及び第3高調波の振幅。

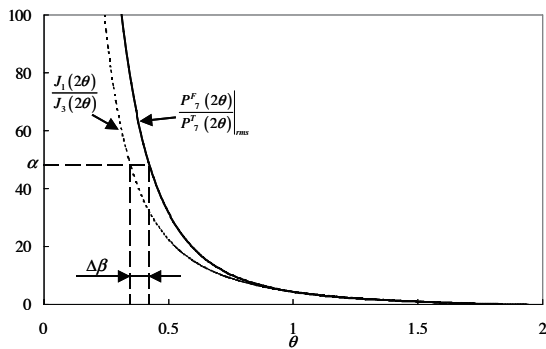


図15 従来の振幅比較法と理論系統誤差を改善した振幅比較法の比較。

5. 結晶の形状誤差による測定への影響

前節までの議論は、結晶の両端面が厳密に平行であることを前提としていた。しかし、測定試料は機械的加工を経て製造されるため、両端面を厳密に平行に加工することは不可能であり、両端面間にはウェッジ角が生じる。本節ではこのウェッジ角が測定精度に与える影響について考察する。

図16に結晶を透過するレーザー光のビーム径内における光路差を示す。ここで ξ はウェッジ角、 W はレーザー光の規格化強度が $1/e^2$ となるビーム径である。ウェッジ角は光軸に対して垂直近傍の角度を持つ2つの面が $[100]$ 軸及び $[010]$ 軸で回転した場合の角度とする。図16では、一方の面が $[010]$ 軸に対して ξ mrad 回転する場合を検討した。結晶を透過するレーザー光はビーム径の両端で $n_o W \tan \xi$ の光

路長差をもつ。よって空気の屈折率を1とすると、ウェッジ角に依存する静的位相差 $\Delta\phi$ は式(14)で与えられる。

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} (n_o - 1) W \tan \xi \quad (14)$$

一例として、 $W = 1\text{mm}$, $\lambda = 632.8\text{nm}$, $n_o = 2.2868$, $\xi = 0.1\text{mrad}$ を仮定すると、レーザー径内の $\Delta\phi$ は 1.277rad となり、null法及び振幅比較法においてこの静的位相差は無視できない測定誤差となる。

そこでウェッジ角の効果を軽減させるため、図17に示すように、倍率 M のビームエキスパンダを用いてレーザー光を拡大し、そのレーザー光をホール径 w のピンホールで抜き出したのちに光検出器に入射させる。抜き出されたレーザー光の両端間の静的位相差は式(15)となる。

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} (n_o - 1) \frac{w}{M} \tan \xi \quad (15)$$

ここで、ビームエキスパンダの倍率 $M = 20$ 、ピンホール径 $w = 0.5\text{mm}$ と仮定すると、レーザー径内の $\Delta\phi$ は 0.0319rad となる。この静的位相 ϕ の誤差が動的位相に与える影響は 0.21% 以下であり、無視することができる。

このようにレーザー光をビームエキスパンダで広げ、そこから一部の光を抜き出すことにより、レーザー径内の静的位相差による測定誤差を減少させることができる。

6. 多重反射干渉法ならびに null 法・振幅比較法の特徴

多重反射干渉法では、すべての透過光の光路が一致するため、次のような特徴を持つ。

- (1) 基本的な光学系はレーザー光源、測定対象となる結晶、光検出器のみで構成可能であり、極めて簡易である。

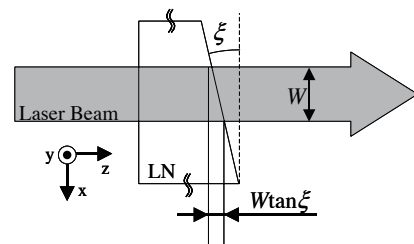


図16 結晶を透過するレーザー径内の光路差。

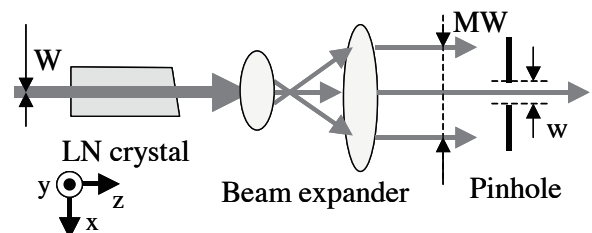


図17 倍率 M のビームエキスパンダによるレーザー光の拡大。

- (2) Mach-Zehnder干渉法やMichelson干渉法などの従来の位相検出法では光学系の振動を抑えるための防振装置が不可欠であるが、本測定法では必要ない。
- (3) 機械的振動や空気の攪乱などの影響のない安定した干渉信号が得られる。
- (4) 安定した干渉信号が容易に得られるため、短時間で測定できる利点をもつ。
- (5) 紫外光及び赤外光のような不可視光による測定も容易に行うことができる。従来の干渉法では可視光以外の光で雑音の少ない干渉信号を得ることは容易ではない。
- (6) 結晶内の反射を積極的に利用してEO係数を測定する方法であるため、結晶に反射防止膜を施す必要がない。このことによりEO係数の波長分散特性を容易に測定することができる。
- (7) 低周波から高周波にわたり結晶のEO係数を測定することが可能である。

次にnull法と振幅比較法の特徴を以下にまとめる

- (1) null法では、EO係数は光検出信号の基本波成分が最小となる交流電圧の振幅から求められ、図8、図10に示されるように、静的位相 ϕ が大きく変化しても動的位相 θ の変動は非常に小さい。測定回数を増やして繰り返し測定を行えば極めて良い精度でEO係数を求めることができる。
- (2) null法では、結晶に半波長電圧より大きな電圧を印加するため、小さなEO係数の測定には適さない。
- (3) 振幅比較法では、EO係数は光検出信号の基本波成分と第3高調波成分の振幅比から求められる。動的位相の大きさには制限がないため、null法に比べ数分の1～10分の1以下の印加電圧でEO係数を測定できる。この方法は小さなEO係数をもつ結晶の測定に適している。
- (4) 振幅比較法の測定精度は、第3高調波成分に依存する。動的位相が小さな信号には静的位相の制御を厳密に行う必要がある。
- (5) 結晶から透過するレーザー光を拡大し一部を抜き出すことにより、結晶がもつ形状誤差(ウェッジ角)による測定値への影響を解消できる。これはnull法や振幅比較法に限らず、すべての計測法に適用できる。

7. 実験及び結果

7.1 測定に使用したLN結晶及びその寸法・平行性の測定

前節までに示した測定法の有効性を確認するため、ノンドーピングコングルエントのY軸カットZ軸伝搬LN結晶のEO係数 r_{22} を測定した。本節では、今回測定した結晶の形状などについて述べる。

本実験で用いた結晶を図18に示す。結晶はNELクリスタル(株)により製造された。EO係数の測定を正確に行うためには、結晶の寸法、平行性及びウェッジ角、並びに、結晶端面と結晶方位の関係を正確に測定する必要がある。結晶寸法、平行性及びウェッジ角についてはニコン製画像計測システムNEXIV VM-150Mで測定した。また結晶方位についてはラムダプレジジョン社に測定を依頼した。結晶サイズ及び軸精度を表2に示す。また結晶がもつウェッジ角を図19に示す。

結晶長 $L = 20.01\text{mm}$ 、結晶厚 $d = 2.00\text{mm}$ であった。LN結晶の結晶面(100)に対して結晶光軸[100]がもつ角度は 90 ± 0.1 度、(010)に対する[010]の角度は 90 ± 0.01 度、(001)に対する[001]の角度は 90 ± 0.1 度であった。

EO係数 r_{22} の測定時には結晶端面間のウェッジ角が 0.05mrad の領域を用いた。

表2 結晶寸法と軸精度

LN Crystal length (mm)		Axial accuracy (deg)		
L	d	X Axis	Y Axis	Z Axis
20.01	2.00	± 0.1	± 0.01	± 0.1

7.2 多重反射干渉計の構成

LN結晶のEO係数 r_{22} を測定する多重反射干渉計の実験系統図を図20に示す。以下に実験系の設置方法を記す。用いた装置は以下のとおりである。

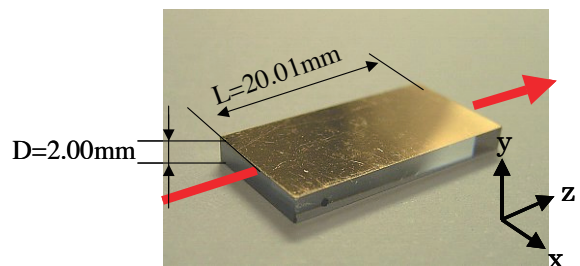


図18 実験に用いた non-doped congruent LN 結晶。

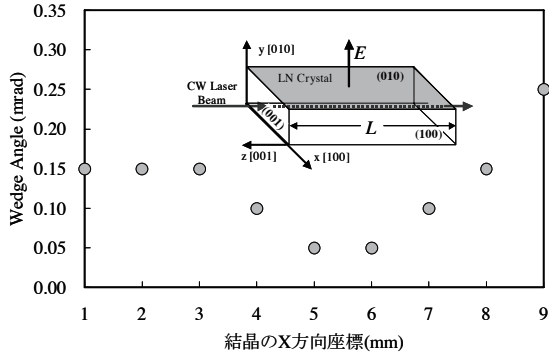


図 19 光軸に対して垂直近傍の2つの(001)面が[010]軸に対して回転することにより生じる ξ .

- He-Neレーザー光源：MELLES GRIOT製05-LHP-171 (波長 $\lambda=632.8\text{nm}$, 最大出力15mW),
- Si-PIN光検出器：NEOARK製RD-252,
- シグナルジェネレータ：Agilent製33220A,
- マルチメータ：Agilent製34401A (分解能：6 1/2桁),
- バンドパスフィルタ：NF回路設計ブロック製3628 (1オクターブ減衰比48dB),
- ロックインアンプ：NF回路設計ブロック製LI5640,
- パワーアンプ：松定プレジジョン製HEOPS-3B10,
- オシロスコープ：ケンウッド製CS-4125.

実験では直線偏光したHe-Neレーザー光の振動面を回転させ、垂直または水平に設定し、NDフィルタで約 $100\mu\text{W}$ に減衰させたのちに結晶へ入射させた。レーザー光の動的位相と静的位相を制御するためLN結晶に交流電圧 $V_{AC} \sin(\omega_{\theta}t)$ 及び直流電圧 V_{DC} を加えた。光検出器からの光検出器信号 P を二つに分岐し、一つは中心角周波数を ω_{θ} に設定したバンドパスフィルタに入力し、バンドパスフィルタからの出力信号 P_m^F をオシロスコープを用いて観測した。もう一方の検出器信号 P はロックインアンプの一つに入力し、 P の基本波成分である P_m^F の信号強度を正確に測定した。ロックインアンプにはリファレンス信号としてシグナルジェネレータからの信号 $\sin(\omega_{\theta}t)$ を加えた。同様に、基本波信号の第3高調波成分である P_m^T は、ロック周波数を $\sin(3\omega_{\theta}t)$ に設定したロックインアンプを用いて測定した。

結晶温度を、実験装置全体を測定状態(電圧印加・レーザー照射・測定雰囲気 25°C)で十分にエージングした後に電圧印加用の二つの電極に埋め込んだ熱電対を用いて、間接的に測定した。測定値はそれぞれ 25°C であった。

結晶端面からの反射光がレーザー発振部に戻ることで生じる縦モード不安定を防ぐため、結晶端面の法線に対するレーザー入射角を 0.05mrad とした。また、ビーム径内の静的位相差による測定誤差を極小化するために、透

過したレーザー光を倍率 $M=20$ のビームエキスパンダで拡大し、 $w=1\text{mm}$ のピンホールで抜き出したレーザー光を光検出器に入射した。

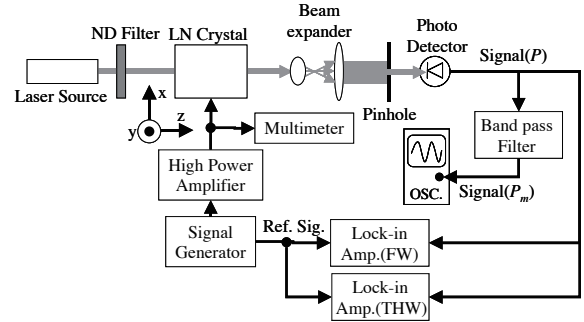


図 20 詳細な実験ブロック図.

7.3 null法による測定

前節の多重反射光干渉計を用いて、null法でEO係数 r_{22} 測定を行った。測定では、結晶に半波長電圧以下の直流電圧と交流電圧を同時に印加し、それらの電圧を交互に調整して P_m^F の信号強度が最大となる V_{DC} と V_{AC} を見出し V_{DC} を固定した。その状態で V_{AC} を徐々に増加させ A が最小となる最初の V_{AC} を測定し、式(6)を用いてEO係数 r_{22} を測定した。ここで n_o は 2.2868 [27]を用いた。

以上よりEO係数 $r_{22} = 6.54 \pm 0.02\text{pm/V}$ を得た。 0.02pm/V は測定回数20回における標準偏差である。

本測定法と従来の多重反射干渉法の比較のため、光検出器信号から基本波成分を抽出し、それが最小になる V_{AC} からEO係数を求める従来の多重反射干渉法で r_{22} を測定し 6.51pm/V を得た。本測定法を用いることにより従来の多重反射干渉法が抱えていた約0.5%の理論系統誤差を解消した。

7.4 振幅比較法による測定

null法による測定と並行して、振幅比較法でEO係数 r_{22} を測定した。

null法による測定において、 P_7^F が最大となる V_{DC} と V_{AC} を定めたとき、干渉信号の第3高調波成分である P_7^T を測定し、その時の V_{AC} を記録した。測定した $\left. \frac{P_7^F}{P_7^T} \right|_{rms}$ から、4.2節の手順に従い図15より動的位相を得た。その結果、 $V_{AC} = 168.0\text{V}$ において P_7^F が最大となり、 $\beta = 5.83$ を得た。式(6)に $\theta = \beta$ を代入し、 $r_{22} = 6.50 \pm 0.05\text{pm/V}$ を得た。 0.05pm/V は測定回数20回における標準偏差である。

7.5 測定結果のまとめ

null法による測定値及び振幅比較法による測定値と、これまでの測定値を表3にまとめた。null法及び振幅比較法による測定値は従来の測定値とよく一致した。また従来は2桁であった測定精度は、null法及び振幅比較法を用いることにより3桁へ向上した。

表3 これまでの r_{22} 測定値と今回の測定値

r_{22} (pm/V)	測定者
6.54±0.02	Our group (null 法)
6.50±0.05	Our group (振幅比較法)
6.3	Iwasaki [29]
6.4	Chirakadze [22], Abdi [30], Abarkan [31]
6.7	Lenzo [12], Smakula [32]
6.8	Smakula [32]

8. 結言

EO係数の波長分散測定に適している多重反射干渉法について詳細に検討した。

- (1) 多重反射干渉法は両端面を平行に研磨したEO結晶にレーザ光を入射し、結晶内で反射せずに透過する光と結晶内を複数回往復した後に透過する光の干渉信号よりEO係数を求めるものである。本方法は、
 - 機械的振動や空気の攪乱に影響されない安定した干渉信号の測定が可能、
 - 光学系が極めて簡単であり、防振装置も不要、
 - 低周波から高周波にわたり測定が可能、
 - 可視光だけでなく、紫外光や赤外光を用いても測定が容易、
 - 一つの結晶で全波長領域の測定が可能、
 など従来の位相検出法にない多くの特徴を有している。
- (2) $L = 20\text{mm}$, $D = 2\text{mm}$ のノンドープコングルエントLN結晶内を複数回往復した後に透過するレーザ光($\lambda = 632.8\text{nm}$)が、回折損失無しに結晶から透過する反射回数 m について検討を行った。その結果、この条件では $m \leq 7$ ならレーザ光が回折損失無しに結晶から透過できることが判った。
- (3) θ_0 と m の関係から $m \geq 8$ では、 $\theta = 1.9251$ に収れんすることから、多重反射干渉法では、結晶内をそのま

ま透過するレーザ光から結晶内を7.5往復した後に透過する光までの、8本のビームによる干渉について検討を行えば十分な精度で測定できることが判った。

- (4) null法は光の干渉信号の基本波成分が最小となる動的位相 θ からEO係数を求めるものである。本方式は
 - EO係数を測定する時の静的位相 ϕ が大きく変化しても θ の変化が少なく、高精度な測定が可能、
 - 小さなEO係数の測定には適さない、
 という特徴を有している。
- (5) 振幅比較法は光の干渉信号の基本波成分と第3高調波成分の振幅を比較することにより、EO係数を求めるものである。本方法は、
 - null法に比べ、1～10分の1以下の印加電圧でEO係数の測定が可能、
 - 測定精度は動的位相変化に敏感な第3高調波に依存するため、静的位相の制御を厳密に行う必要がある、
 - 小さなEO係数の測定に適している、
 という特徴を有している。
- (6) 結晶のウェッジ角による動的位相差が測定結果に大きな影響を与えることを明らかにした。また、ビームエキスパンダとピンホールを用いて結晶から透過したレーザ光の一部を抜き出すことにより、その影響を極小化できることが判った。この方法は反射光干渉法に限らず、すべての干渉計測法に適用可能である。
- (7) ノンドープコングルエントLiNbO₃結晶の波長632.8nmにおけるEO係数 r_{22} を測定した。その結果は、
 - $6.54 \pm 0.02\text{pm/V}$ (null法)、
 - $6.50 \pm 0.05\text{pm/V}$ (振幅比較法)、
 であった。
- (8) 測定結果を従来の多重反射干渉法並びに過去の測定結果と比較した。両者はよく一致していた。

今後、多重反射干渉法を用いてノンドープコングルエントLN結晶、5% MgO ドープコングルエントLN結晶、1.8% MgO ドープ準ストイキオメトリLN結晶の青色(440nm)から中赤外領域(3,39 μm)におけるEO係数 r_{22} , r_{13} , r_{33} の波長分散特性を測定する。

参考文献

- [1] E. Kraetzig and H. Kurz: "Photorefractive and photovoltaic effects in doped linbo3", Journal of Modern Optics, **24**, 4, pp. 475–482 (1977).
- [2] S. Kawada: "The trend of the high-density optical

- recording technology. the multilayer optic recording by the application of the photo-refractive material”, *O plus E*, 201, pp. 72–79 (1996).
- [3] V. B. Markov, Y. N. Denisyuk and R. Amezquita: “3-d speckle-shift hologram and its storage capacity”, *Opt Mem Neural Netw*, **6**, 2, pp. 91–98 (1997).
- [4] R. Grousseau and S. Mallick: “White-light image processing with LiNbO₃”, *Appl. Opt.*, **19**, 11, pp. 1762–1767 (1980).
- [5] T. Kawanishi, T. Sakamoto, S. Shinada, M. Izutsu, K. Higuma, T. Fujita and J. Ichikawa: “LiNbO₃ high-speed optical fsk modulator”, *Electro. Lett.*, **40**, 11, pp. 691–692 (2004).
- [6] M. Doi, M. Sugiyama, K. Tanaka and M. Kawai: “Advanced LiNbO₃ optical modulators for broadband optical communications”, *IEEE J Sel Top Quantum Electron*, **12**, 4, pp. 745–750 (2006).
- [7] J. Zook, D. Chen and G. Otto: “Temperature dependence and model of the electro-optic effect in LiNbO₃”, *Appl. Phys. Lett.*, **11**, 5, pp. 159–161 (1967).
- [8] Y. Fujii and T. Sakudo: “Interferometric determination of the quadratic electro-optic coefficients in SrTiO₃ crystal”, *J. Appl. Phys.*, **41**, 10, pp. 4118–4120 (1970).
- [9] K. Onuki, N. Uchida and T. Saku: “Interferometric method for measuring electro-optic coefficients in crystal”, *J. Opt. Soc. Am.*, **62**, pp. 1030–1032 (1972).
- [10] H. Y. Zhang, X. H. He, Y. H. Shih and S. H. Tang: “A new method for measuring the electro-optic coefficients with higher sensitivity and higher accuracy”, *Opt. Commun.*, **86**, 6, pp. 509–512 (1991).
- [11] I. P. Kaminow: “Barium titanate light phase modulator”, *Appl. Phys. Lett.*, **7**, 7, pp. 123–125 (1965).
- [12] P. V. Lenzo, E. H. Turner, E. G. Spencer and A. A. Ballman: “Electrooptic coefficients and elastic-wave propagation in single-domain ferroelectric lithium tantalate”, *Appl. Phys. Lett.*, **8**, 4, pp. 81–82 (1966).
- [13] E. H. Turner: “High-frequency electro-optic coefficients of lithium niobate”, *Appl. Phys. Lett.*, **8**, 11, pp. 303–304 (1966).
- [14] S. K. Mathew: “Experimentally determined r₁₃ electro-optic coefficient for a lithium niobate crystal”, *Appl. Opt.*, **42**, 18, pp. 3580–3582 (2003).
- [15] M. Aillerie, M. Fontana, F. A. C. Carabatos-Nedelec, N. Theofanous and G. Alexakis: “Influence of the temperature-dependent spontaneous birefringence in the electro-optic measurements of LiNbO₃”, *J. Appl. Phys.*, **65**, 65, pp. 2406–2408 (1989).
- [16] J. A. de Toro, M. D. Serrano, A. G. Cabañes and J. M. Cabrera: “Accurate interferometric measurement of electro-optic coefficients: application to quasi-stoichiometric LiNbO₃”, *Opt. Commun.*, **154**, pp. 19–22 (1998).
- [17] R. Johannes and W. Haas: “Linear electrooptic effect in potassium tantalate niobate crystals”, *Appl. Opt.*, **6**, 6, p. 1059 (1967).
- [18] A. R. Johanson: “The strain-free electro-optic effect in single-crystal barium titanate”, *Appl. Phys. Lett.*, **7**, 7, pp. 195–198 (1965).
- [19] D. F. Nelson and E. H. Turner: “Electro-optic and piezoelectric coefficients and refractive index of gallium phosphide”, *J. Appl. Phys.*, **39**, 7, pp. 3337–3343 (1968).
- [20] H. Vesser, U. Bogner and W. Eisenmenger: “Analysis of the acoustic transients in the pulse response of the linear electro-optic effect”, *Phys. Status. Solidi*, **A37**, p. 161 (1976).
- [21] Y. Berozashvili, S. Machavariani, A. Natsvlshvili and A. Chirakadze: “Dispersion of the linear electro-optic coefficients and the non-linear susceptibility in GaP”, *J. Phys. D*, **22**, 5, pp. 682–686 (1989).
- [22] A. Chirakadze, S. Machavariani, A. Natsvlshvili and B. Hvitia: “Dispersion of the linear electro-optic effect in lithium niobate”, *J. Phys. D*, **23**, pp. 1216–1218 (1990).
- [23] A. Méndez, A. Garacés, E. Diéguez and J. M. Cabrera: “Wavelength dependence of electro-optic coefficients in congruent and quasi-stoichiometric LiNbO₃”, *Electro. Lett.*, **35**, 6, pp. 498–199 (1999).
- [24] K. Takizawa and M. Okada: “Simple method for measuring electro-optic coefficients by detecting the interference signal between transmitted and reflected beam”, *J. Opt. Soc. Am.*, **72**, 72, pp. 809–811 (1982).
- [25] K. Takizawa, M. Okada and T. Aida: “Polarization-independent and optical-damage-insensitive LiNbO₃ interferometric waveguide modulator”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **27**, 4, pp. L696–L698 (1988).
- [26] K. Takizawa and M. Okada: “Determination of relative signs of electro-optic and piezoelectric coefficients by measuring optical phase shifts caused by an applied electric field”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **2**, 2, pp. 289–293 (1985).
- [27] K. H. Hellwege Ed.: “Landolt-Börnstein: Numerical Data and Functional Relationships in Science and

Technology, New Series, Group III ; Crystal and Solid State Physics, Vol.11, Elastic, Piezoelectric, Pyroelectric, Piezooptic, Electrooptic Constants, and Nonlinear Dielectric Susceptibilities of Crystals”, Springer (1979).

- [28] K. Takizawa and Y. Yokota: “High accuracy and high sensitivity measurements of the electrooptic effect in undoped and mgo-doped LiNbO₃ crystals”, *Opt. Rev.*, **13**, 3, pp. 161–167 (2006).
- [29] H. Iwasaki, H. Toyoda, N. Niizeki and H. Kubota: “Temperature and optical frequency dependence of the d. c. electro-optic constant r'_{22} of LiNbO₃”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **6**, 12, pp. 1419–1422 (1967).
- [30] F. Abdi, M. Aillerie, P. Bourson, M. Fontana and K. Polgar: “Electro-optic properties in pure LiNbO₃ crystals from the congruent to the stoichiometric composition”, *J. Appl. Phys.*, **84**, 4, pp. 2251–2254 (1998).
- [31] M. Abarkan, J. P. Salvestrini, M. Aillerie and M. D. Fontana: “Frequency dispersion of electro-optical properties over a wide range by means of time-response analysis”, *J. Appl. Phys.*, **84**, 13, pp. 2346–2253 (2003).
- [32] P. H. Smakula and P. C. Claspy: “The electro-optic effect in LiNbO₃ and ktn”, *Trans. Metall. Soc. AIME.*, **239**, pp. 421–423 (1967).