The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	非線形光学結晶Li_2B_4O_7及びβ-BaB_2O_4のQスイッチパルスレーザーの波長変換における非線吸収及び遠紫外光発生に関する研究
Author(s)	髙橋, 正訓
Citation	大阪大学, 2012, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/24738
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

【189】

氏　　名	髙　橋　正　訓（たか はし まさ くに）
博士の専攻分野の名称	博　士（工学）
学　位　記　番　号	第　２５６４７　号
学位授与年月日	平成24年９月25日
学位授与の要件	学位規則第４条第２項該当
学　位　論　文　名	**非線形光学結晶 $Li_2B_4O_7$ 及び $\beta-BaB_2O_4$ の Q スイッチパルスレーザーの波長変換における非線形吸収及び遠紫外光発生に関する研究**
論　文　審　査　委　員	（主査） 教　授　猿倉　信彦 （副査） 教　授　堀池　　寛　　教　授　乗松　孝好　　教　授　中井　光男

論　文　内　容　の　要　旨

工業技術の進歩に伴い、様々な工業製品においてその高機能化のために、微細さ、精密さが際限なく追求されている。高性能化を様々な製造の側面で支える技術として、300nm以下の遠紫外線レーザー光の利用が期待されている。工業的利用の観点で遠紫外線レーザー光源として最も有力なのは、Qスイッチ固体レーザーの発振するパルス化された赤外線レーザー光を非線形光学結晶によって波長変換する高調波レーザーである。高調波レーザーは、Ndイオンをドープした結晶を発振媒体としたレーザーの発する1μm帯のレーザー光を、非線形光学結晶により可視光のグリーン光に変換し、さらにもう一度非線形光学結晶を用いて遠紫外線を発生するのが主なものである。遠紫外線を得るのに多段の変換工程を経て出力を減衰するため、効率のよい波長変換が望まれる。出力の減衰を律速しているのが、グリーン光から遠紫外線に変換する際、非線形光学結晶自身が発生する遠紫外線の非線形吸収である。非線形吸収の影響の低減のために、著者は、三菱マテリアルと理化学研究所が遠紫外線領域での波長変換能力を見出した非線形光学結晶 $Li_2B_4O_7$（以下LB4）及び広く遠紫外線発生用の非線形光学結晶として使われている $\beta-BaB_2O_4$（以下BBO）の遠紫外線吸収に関する温度、繰り返し周波数に対する影響を明らかにし、これらの影響を低減した変換効率改善の方法を開発した。
本論文は、上述の研究成果について纏めているもので、以下の四章で構成した。

第一章では、本研究の背景として、非線形光学結晶によるレーザー波長変換および非線形吸収に関する理論的基礎及び非線形光学結晶を用いた遠紫外線発生における非線形吸収低減による高変換効率化の重要性について述べ、さらに遠紫外線レーザー光応用の工業的意義について述べた。

第二章では、非線形光学結晶LB4の温度及びパルス化された262nmの遠紫外レーザー光の繰り返し周波数に対する非線形吸収特性を測定し、非線形吸収を低減し変換効率を向上させる遠紫外線の波長変換方法を開発したことについて述べた。LB4結晶は、コングルエントで化学量論組成であるため、結晶育成時に取り込まれる不純物が極めて少ない。262nmの線形吸収は0.005cm^{-1}以下であり、電子スピン共鳴においても有意な測定信号は得られず、その活性種の結晶中の含有量は、10^{-14}〜10^{-15}cm^{-1}と見積もられたが、これまで明らかにされてこなかった262nmの非線形吸収係数が、室温でのz-scan法による測定において、2〜4cm/GWと非線形光学結晶の中では大きな値で、波長変換の際、高強度の遠紫外光を結晶自身が吸収することが明らかになった。繰返し周波数10kHzから30kHzでの非線形吸収係数は、繰返し周波数の増加につれて大きくなる一方、結晶の温度を200℃まで増加させることによって10〜20分の1に低減させることを定量的に明らかにした。高い繰返し周波数における結晶を高温に制御すること及び結晶中を遠紫外線が伝播する際の発熱による屈折率分布の発生を抑制するためにウォークオフ面に対して垂直且つ楕円形に集光する波長変換方法を開発した。60mmのLB4結晶を270℃に加熱することで、有効非線形定数が0.16pm/Vと低いながらも、30kHzで4.5Wの262nmを変換効率15%で安定に発生させた。

第三章では、非線形光学結晶BBOの温度及びパルス化された262nmの遠紫外レーザー光の繰り返し周波数に対する非線形吸収特性を測定し、非線形吸収を低減し変換効率を向上させる遠紫外線の波長変換方法を開発したことについて述べた。BBO結晶の温度を室温から151℃の範囲で、また繰返し周波数を1kHz及び10kHzで262nmの非線形吸収係数を測定したところ、入射偏光によって結晶温度、繰返し周波数の影響が著しく異なることが明らかになった。σ偏光に対しては、温度、繰返し周波数の影響を受けないものの、π偏光に対しては、結晶温度の増加と共に非線形吸収係数も増加し、10kHzで室温と151℃で2倍となること、σ偏光とπ偏光の異方性については、1.5〜2倍π偏光の方が大きいことを明らかにした。BBO結晶は、遠紫外線の波長変換では大きなウォークオフ角を持つことが知られており、遠紫外線が伝播する際の発熱による屈折率分布の発生を抑制するのにこの大きなウォークオフ角を積極的に利用するウォークオフ面に対して垂直且つ楕円形に集光する波長変換方法が最良であることが、円形ビームによる集光法及びウォークオフ面に対して水平に集光する方法と比較することで明らかになった。結晶温度50℃、繰返し周波数10kHzで5Wのシングルモードの262nmを変換効率25%で出力し、さらに12kHzで3Wの出力では、300時間以上0.5%以下の出力変動と安定した波長変換方法を開発した。

第四章では、本論文を総括した。

論　文　審　査　の　結　果　の　要　旨

本論文は、非線形光学結晶 $Li_2B_4O_7$（以下LB4）及び $\beta-BaB_2O_4$（以下BBO）を用いた、工業製品の高品位，精密加工用の高繰り返し遠紫外線レーザー光の安定且つマルチワットの発生の研究について述べたものである。発生した遠紫外線レーザー光の非線形光学結晶の自己吸収による出力の制限に着目し、遠紫外線吸収に関する温度、繰り返し周波数に対する影響を明らかにし、これらの影響を低減した変換効率改善の方法を提案したところに本論文の特徴が表れている。

工業技術の進歩に伴い、様々な工業製品においてその高機能化のために、微細さ、精密さが際限なく追求されている。高性能化を様々な製造の側面で支える技術として、300nm以下の遠紫外線レーザー光の利用が期待されている。工業的利用の観点で遠紫外線レーザー光源として最も有力なのは、Qスイッチ固体レーザーの発振するパルス化された赤外線レーザー光を非線形光学結晶によって波長変換する高調波レーザーである。高調波レーザーは、Ndイオンをドープした結晶を発振媒体としたレーザーの発する1μm帯のレーザー光を、非線形光学結晶により可視光のグリーン光に変換し、さらにもう一度非線形光学結晶を用いて遠紫外線を発生するのが主なものである。遠紫外線を得るのに多段の変換工程を経て出力を減衰するため、効率のよい波長変換が望まれる。出力の減衰を律速しているのが、グリーン光から遠紫外線に変換する際、非線形光学結晶自身が発生する遠紫外線の非線形吸収である。以上のことで、本研究の背景として遠紫外線レーザー光応用の工業的意義について述べ、非線形光学結晶によるレーザー波長変換および非線形吸収に関する理論的基礎及び非線形光学結晶を用いた遠紫外線発生における非線形吸収低減による高変換効率化の重要性について述べている。

次に、非線形光学結晶LB4の温度及びパルス化された262nmの遠紫外レーザー光の繰り返し周波数に対する非線形吸収特性を測定し、非線形吸収を低減し変換効率を向上させる遠紫外線の波長変換方法を開発したことについて述べている。LB4結晶は、コングルエントで化学量論組成であるため、結晶育成時に取り込まれる不純物が極めて少ない。

262nmの線形吸収は0.001cm^{-1}以下であり、電子常磁性共鳴においても有意な測定信号は得られず、その活性種の結晶中の含有量は、10^{-14}〜10^{-15}cm^{-1}と見積もられたが、これまで明らかにされてこなかった262nmの非線形吸収係数が、室温でのZ-scan法による測定において、2〜4cm/GWと非線形光学結晶の中では大きな値で、波長変換の際、高強度の遠紫外光を結晶自身が吸収することを明らかにした。繰返し周波数10kHzから30kHzでの非線形吸収係数は、繰返し周波数の増加につれて大きくなる一方、結晶の温度を200℃まで増加させることによって20分の1程度までに低減させることを定量的に明らかにした。高い繰返し周波数における結晶を高温に制御すること及び結晶中を遠紫外線が伝播する際の発熱による屈折率分布の発生を抑制するためにウォークオフ面に対して垂直且つ楕円形に集光する波長変換方法を開発している。60mmのLB4結晶を270℃に加熱することで、有効非線形定数が0.16pm/Vと低いながらも、30kHzで4.5Wの262nmを変換効率15%で安定に発生させている。

さらに、非線形光学結晶BBOの温度及びパルス化された262nmの遠紫外レーザー光の繰り返し周波数に対する非線形吸収特性を測定し、非線形吸収を低減し変換効率を向上させる遠紫外線の波長変換方法を開発したことについて述べている。BBO結晶の温度を室温から151℃の範囲で、また繰返し周波数を1kHz及び10kHzで262nmの非線形吸収係数を測定したところ、入射偏光によって結晶温度、繰返し周波数の影響が著しく異なることが明らかになった。σ偏光に対しては、温度、繰返し周波数の影響を受けないものの、π偏光に対しては、結晶温度の増加と共に非線形吸収係数も増加し、10kHzで室温と151℃で2倍となること、σ偏光とπ偏光の異方性については、1.5〜2倍π偏光の方が大きいことを明らかにした。BBO結晶は、遠紫外線の波長変換では大きなウォークオフ角を持つことが知られており、遠紫外線が伝播する際の発熱による屈折率分布の発生を抑制するのにこの大きなウォークオフ角を積極的に利用するウォークオフ面に対して垂直且つ楕円形に集光する波長変換方法が最良であることが、円形ビームによる集光法及びウォークオフ面に対して水平に集光する方法と比較することで明らかにされた。結晶温度50℃、繰返し周波数10kHzで5Wのシングルモードの262nmを変換効率25%で出力し、さらに12kHzで3Wの出力では、300時間以上0.5%以下の出力変動と安定した波長変換方法を開発している。

以上のように、本論文は、波長変換により発生した遠紫外光の出力制限の主因は非線形吸収による熱位相不整合であり、この抑制に結晶の昇温、繰返しの低減が有効であることを見出し、さらにウォークオフ現象を積極的に利用したビーム伝播制御でLB4、BBOによる安定したマルチワットの4倍波出力に成功していることを述べている。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。