The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	三酸化ホウ素を基本構造に持つ非線形光学結晶の育成と評価
Author(s)	岩井, 真
Citation	大阪大学, 1997, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/40214
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏　　名　岩井　真（いわい　まこと）
博士の専攻分野の名称　博　士（工　学）
学位記番号　第　13121　号
学位授与年月日　平成9年3月25日
学位授与の要件　学位規則第4条第1項該当
工学研究科電気工学専攻
学位論文名　**三酸化ホウ素を基本構造に持つ非線形光学結晶の育成と評価**

論文審査委員　（主査）
教　授　佐々木孝友
教　授　白藤　純嗣　教　授　青木　亮三　教　授　松浦　虔士
教　授　辻　毅一郎　教　授　熊谷　貞俊　教　授　山中　龍彦
教　授　中塚　正大

論文内容の要旨

本論文は，非線形光学結晶の開発を目的として，三酸化ホウ素を基本構造に持つ二種類のボレート系結晶，すなわち希土類・カルシウム・オキシボレート結晶と希土類・アルミニウム・ボレート結晶の育成と評価に関する研究をまとめたもので，以下の5章から構成される。特にイットリウム・カルシウム・オキシボレート結晶で新しい成果を得ている。

第1章ではまず，レーザー及びその波長を短波長へ変換する非線形光学材料開発の現状および新非線形光学材料の開発の必要性について述べ，本研究の占める役割及び目的を明確にしている。

第2章ではボレート系結晶の特徴と非線形光学結晶の開発のための基本的指針について述べている。

第3章では希土類（Re）・カルシウム・オキシボレート（$ReCa_4O(BO_3)_3$；ReCOB）結晶の育成と評価について述べている。まず，ガドリニウム・カルシウム・オキシボレート（$GdCa_4O(BO_3)_3$；GdCOB）結晶の育成と評価を行っている。この結晶はNd：YAGレーザーの第2高調波発生用結晶としては非常に優れているが，複屈折率が小さいため位相整合限界波長が長波長であり，第3高調波発生は不可能であることが判明した。従って，さらに短波長まで位相整合できる組成を得ることを目的として，置換型結晶の探索を行っている。その結果，複屈折率がGdCOBより大きく，Nd：YAGレーザーの第3高調波発生が可能であるイットリウム・カルシウム・オキシボレート（$YCa_4O(BO_3)_3$；YCOB）の開発に成功している。さらに，この結晶は65℃と非常に大きい温度許容幅を持つことが判明している。また，希土類元素のイオン半径と複屈折率の大きさとの間に成立する一般的関係を見いだしている。

第4章では，希土類（Re）・アルミニウム・ボレート（$ReAl_3(BO_3)_4$；ReAB）の育成技術の開発とレーザー活性イオンの三価クロム（Cr^{3+}）のドーピングについて述べている。ドーピングはレーザー発振と波長変換を一つの結晶で実現することを目的としたものである。この結晶は従来良好なものを得るのが困難であったが，育成溶液の組成を最適化し，インクルージョンのない単結晶の育成に成功している。また，低周波振動法を結晶育成に初めて応用し，成長速度を従来の2倍にすることに成功している。次にCr^{3+}のドーピングを試みた結果について述べている。イットリウム・アルミニウム・ボレート（$YAl_3(BO_3)_4$；YAB）結晶はCr^{3+}の偏析係数が1より非常に大きく，均一にドープできないという問題点があった。これを改善するため，置換型結晶を探索した結果，偏析係数がYAB結晶に比べかなり1に近いガドリニウム・アルミニウム・ボレート（$GdAl_3(BO_3)_4$；GdAB）の開発に成功してい

る。最後にCr^{3+}：YAB，Cr^{3+}：GdAB結晶のレーザー発振の可能性について述べている。

第5章では，本研究で得られた結果を総括し，本論文の結論としている。

論文審査の結果の要旨

レーザー光を短波長へ変換する非線形光学結晶は，緑・青色から紫外領域といった短波長の固体コヒーレント光源を開発する上で，重要な材料である。本論文は，このような非線形光学結晶の開発を目的として，三酸化ホウ素を基本構造に持つボレート結晶の希土類・カルシウム・オキシボレート結晶と希土類・アルミニウム・ボレート結晶の二種について育成と評価に関する研究の結果をまとめたもので，その成果を要約すると次の通りである。

希土類・カルシウム・オキシボレート結晶において，

(1) ガドリニウム・カルシウム・オキシボレート（GdCOB）結晶をチョクラルスキー法により育成し，引き上げ速度7㎜／hにおいてクラックのない単結晶を得ることに成功している。

(2) ガドリニウムを他の希土類で置換した結晶を探索した結果，ルテチウム（Lu），イッテルビウム（Yb），ツリウム（Tm），イットリウム（Y），ジスプロシウム（Dy），サマリウム（Sm），ネオジウム（Nd），ランタン（La）で置換した結晶はSHG活性であることが判明している。

(3) GdCOB結晶より複屈折率が大きいイットリウム・カルシウム・オキシボレート（YCOB）結晶の育成，開発に成功している。SHG位相整合限界波長は約720nmと120nmも短波長で，GdCOB結晶では不可能であったNd：YAGレーザーの第3高調波発生が可能であることを見いだしている。また，温度許容幅が，65℃と非常に広く，優れていることが判明している。

(4) 希土類元素のイオン半径と結晶のa軸とc軸の格子定数の比，複屈折率の大きさに比例関係が成立することを見いだしている。

また，希土類・アルミニウム・ボレート結晶では，

(5) インクルージョンのないイットリウム・アルミニウム・ボレート（YAB）結晶の育成に成功している。インクルージョンのない結晶が得られる範囲は育成温度が1050℃付近の約20℃の狭い領域のみであることが判明している。

(6) 低周波振動法を用いて育成溶液の攪拌効果を改善することにより，育成速度を2倍にし，かつ雑晶の発生を抑えることに成功している。

(7) YAB結晶にCrをドープした場合には，Crの偏析係数が二つの成長セクターで約12，23と非常に大きくなり，均一にドープすることが困難であることが見いだされた。

(8) 置換型結晶の探索を行った結果，Crの偏析係数が約0.4とYABに比べ，かなり1に近い値を持つガドリニウム・アルミニウム・ボレート（GdAB）結晶の開発に成功している。

(9) これらの結晶の誘導放出断面積は0.8×10^{-20}㎠と代表的なCr系レーザー結晶のアレキサンドライトと同程度であることが判明している。また，Cr：YAB結晶は745から850nmにわたる100nm以上の広範囲で光利得があり，最大1.92倍もあることを見いだしている。

以上のように，短波長発生用非線形光学材料として有望と考えられる，三酸化ホウ素（BO_3）を基本構造に持つボレート系結晶のうち，希土類・カルシウム・オキシボレート結晶と希土類・アルミニウム・ボレート結晶の二種について開発を行っている。その結果，特にイットリウム・カルシウム・オキシボレート結晶はNd：YAGレーザーの第3高調波発生が可能であり，しかもチョクラルスキー法で容易に良好な結晶が得られることを見いだしている。この結果は短波長固体レーザーの発展に寄与するところが大きい。よって，本論文は博士論文として価値あるものと認める。