



Title	希土類・カルシウム・オキシボレート結晶の育成と波長変換応用に関する研究
Author(s)	古屋, 博之
Citation	大阪大学, 2001, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/42374
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、 https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed 大阪大学の博士論文について

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏名	古屋 博之
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 16279 号
学位授与年月日	平成13年3月23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	希土類・カルシウム・オキシボレート結晶の育成と波長変換応用に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 佐々木 孝友
	(副査) 教授 松浦 虔士 教授 熊谷 貞俊 教授 辻 育一郎 教授 伊藤 利道 教授 平尾 孝 教授 山中 龍彦 教授 中塚 正大 教授 斗内 政吉

論文内容の要旨

本論文は、学位申請者が大阪大学工学研究科電気工学専攻電気材料・物性工学講座電気物性工学領域において実施した研究結果をまとめたものである。産業応用可能なコヒーレント紫外光源の構築を目的として、希土類・カルシウム・オキシボレート系結晶の材料開発、基礎物性の評価および光損傷の低減について検討を行っており、論文は5章で構成されている。

第1章は序論であり、本論文に関する研究分野において概観し、本研究の背景と目的を明らかにしている。

第2章では、本研究で取り上げる希土類・カルシウム・オキシボレート系結晶の諸特性について述べている。特に、1997年大阪大学で開発され、特性評価が行われた新材料、イットリウム・カルシウム・オキシボレート $YCa_4O(BO_3)_3$ について、育成条件を検討することで、結晶に生じる割れ及び気泡混入の問題を解決している。また、この結晶は水に強く機械的に安定であり、加工が比較的容易で優れた紫外光特性を持つことを明らかにしている。

第3章では、新材料ガドリニウム・イットリウム・カルシウム・オキシボレート : $Gd_xY_{1-x}Ca_4O(BO_3)_3$ について得た知見をまとめている。 $Gd_xY_{1-x}Ca_4O(BO_3)_3$ で Gd の混合比率 x を変化させることで結晶の複屈折率を制御することに成功している。また、単結晶を育成し、優れた波長変換特性を持つ室温非臨界位相整合条件下で Nd : YAG レーザーの第3高調波を発生させている。さらに $Gd_xY_{1-x}Ca_4O(BO_3)_3$ を用いて 10Hz 低繰り返しレーザー及び 62.5 kHz 高繰り返しレーザーによる近紫外光発生を行い、その際 gray-track や光誘起屈折率変化（フォトリフレラクティブ損傷）等の光損傷や結晶自己加熱による位相不整合が生じ、近紫外レーザー出力が低下することを明らかにしている。

第4章では、 $Gd_xY_{1-x}Ca_4O(BO_3)_3$ に生じる光損傷の原因について電子スピン共鳴分析を行い考察している。さらに $Gd_xY_{1-x}Ca_4O(BO_3)_3$ に生じる光損傷を低減するための指針を示し、光損傷の改善を試みている。具体的には加熱した状態で非臨界位相整合となる組成の $Gd_xY_{1-x}Ca_4O(BO_3)_3$ を育成し、高繰り返しレーザーによる紫外光発生試験を行っている。併せて、育成原料準備法の改善や育成雰囲気の変更を行い、結晶の高品質化による光損傷の改善を試みている。

第5章では研究全体の総括を行い結論としている。

論文審査の結果の要旨

固体レーザーと非線形光学結晶の組み合わせにより得られる全固体紫外光源は、従来の固体レーザーと比べて装置の小型化、長寿命化が可能で、取り扱いが容易、維持費が安いといった利点を有している。ホウ酸系（ボレート系）非線形光学材料は、紫外光発生を念頭に置いた材料探索、特性評価、理論計算等が世界中で進められてきたが、十分な波長変換特性を持ちなおかつ量産性、加工性や素子の信頼性の点においても優れている結晶は存在せず、現在もなお新材料の開発が望まれている。

本論文は、新型結晶である希土類・カルシウム・オキシボレート系結晶を産業用紫外光源用結晶として実用化させることを目標とし、材料開発から特性改善までを対象として行ってきた研究成果をまとめている。新しい知見を以下に要約する。

- (1)Nd : YAG レーザーの第3高調波発生が可能な非線形光学結晶イットリウム・カルシウム・オキシボレート ($\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$)において、種結晶方位、育成条件の検討を行うことで、結晶のクラック発生およびバブル混入の問題を解決し、直胴の ($\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$) 単結晶（直径20mm×長さ約80mm）の育成に成功している。
- (2)ガドリニウム・イットリウム・カルシウム・オキシボレート ($\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$) がガドリニウム (Gd) とイットリウム (Y) の固溶体として存在する事を見出すとともに、GdとYの組成比を任意に変化させることで複屈折率が制御可能であることを明らかにしている。
- (3)GdとYの組成比が $x = 0.28$ となる $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ において、y軸方向 type-I 非臨界位相整合条件で Nd : YAG レーザーの第3高調波が発生できることを明らかにしている。
- (4) $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ における紫外光発生時に光損傷の発生や紫外光吸収による発熱により、紫外光出力が低下することを明らかにしている。
- (5) $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ に生じる光損傷は結晶加熱により緩和され、加熱しながら波長変換を行うことで出力低下も改善されることにより、最大で 1 W の紫外光出力を得ることに成功している。
- (6) 希土類・カルシウム・オキシボレート結晶に生じる光損傷は、結晶中の欠陥と関係している可能性が大きいことを明らかにするとともに、結晶中の酸素と関係があることを見出し、光損傷を解決する指針を示している。
- (7) $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ を大気中で育成することにより、光損傷のしきい値を約 3 倍程度向上することに成功している。

以上のように、本論文では新しい紫外光発生用非線形光学結晶 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ を開発している。さらに、この結晶における第3高調波発生時に光損傷が生じることを明らかにし、この光損傷を低減するための考察を行うとともに具体的な解決方法を与えている。この結晶は実用化の点からも国内外のレーザーメーカーから注目されており、本研究の成果はレーザー工学、非線形光学及び産業の発展に貢献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。