

Title	微小共振器型深紫外第二高調波発生デバイスに関する研究
Author(s)	南部, 誠明
Citation	大阪大学, 2023, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/92952">https://doi.org/10.18910/92952</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

## 論文内容の要旨

氏 名 ( 南部 誠明 )

論文題名

微小共振器型深紫外第二高調波発生デバイスに関する研究

## 論文内容の要旨

本論文は、小型、高効率な深紫外 (DUV) レーザ光源の実現に向けた低複屈折性常誘電体結晶を用いた微小共振器型第二高調波発生 (SHG) デバイスに関する研究をまとめたもので、全7章で構成される。

第1章では、まずレーザの歴史と波長変換の基本原理についてまとめた。次に、既存のDUVレーザ光源が抱える問題 (大型、高価、不安定) について言及し、それらを解決可能な波長変換を用いた全固体DUVレーザ光源の現状を説明した。従来型の波長変換結晶とデバイス構造の組み合わせでは、小型、高効率なDUVレーザ光源を実現することは難しい。そこで、これまで波長変換結晶に必須であると考えられてきた物性 (強い複屈折性、強誘電性) を持たない低複屈折性常誘電体結晶に着目した。これらの結晶の中には、DUV領域で透明かつ強い光学非線形性と光損傷耐性を有する結晶が存在する。そこで本論文では、これらの結晶を波長変換デバイスに応用するために必要な新たな原理にもとづくデバイス構造として、モノリシック微小共振器型SHGデバイスを提案した。第2章では、まず低複屈折性常誘電体結晶であるGaN、AlN、SrB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> (SBO) の波長変換結晶としての優れた物性を紹介した。このうち特にSBOは、真空紫外 (VUV) 領域の波長130 nmまで透明で強い光学非線形性と光損傷耐性も併せ持つ、DUV波長域向けの優れた波長変換結晶といえるが、複屈折位相整合や周期分極反転擬似位相整合による高効率な波長変換はこれまで不可能であった。この状況を踏まえて、本論文で新規提案するモノリシック微小共振器型SHGデバイスの構造、動作原理、設計手法について説明した。長さをコヒーレンス長としたSHG領域の両側に基本波に対して高い反射率を有する分布ブラッグ反射鏡 (DBR) を設け基本波を共振させ、SHG領域内で基本波の強度を顕著に増強させる。増強された基本波から効率良く発生したSH波に適切な反射位相シフトを与えることで、低複屈折性常誘電体結晶においても高効率な波長変換が達成可能となる。第3章では、c面GaNを用いたモノリシック微小共振器型SHGデバイスによる青色SHG原理実証を行った。デバイスは多段階のエッチング工程を駆使して作製され、完成したデバイスに中心波長856 nmのフェムト秒レーザを入射した結果、中心波長428 nmのSH波が発生し、提案したデバイスの動作原理実証に成功した。第4章では、SBOモノリシック垂直微小共振器型SHGデバイスによる波長234 nmのDUV SHG実証を行った。デバイスは研磨によって薄膜化したSBOの上下をスパッタリングにより作製したDBRによって挟み込むことで作製した。完成したデバイスに中心波長468 nmのピコ秒レーザを入射した結果、中心波長234 nmのSH波が発生し、DUV SHGを実証した。第5章では、a面GaNモノリシック垂直微小共振器型SHGデバイスによる詳細なSHG特性の評価を行った。第3章および第4章で説明したデバイスは、連続波 (CW) レーザによる励起を前提に設計、作製されているが、実際のSHG実証実験では基本波共振波長を速やかに見つけるために、励起光源にパルスレーザを使用した。CW励起を前提としたデバイスは基本波の波長許容幅が狭く、広いスペクトル幅を有するパルスレーザでは効率良くデバイスを励起できない。また、基本波がデバイス内部で高強度な定常状態になる前に、基本波のパルス照射が終わってしまう。そこで本章では、パルスレーザ励起を前提としたデバイスの構造を設計した。レーザリフトオフ技術を駆使して作製したデバイスに中心波長856 nmのフェムト秒レーザを入射した結果、中心波長428 nmのSH波が発生した。実測した規格化波長変換効率は0.15%/Wであり、理論規格化波長変換効率である0.20%/Wと高い精度で一致した。また、発生したSH波はガウシアンビームに近いビーム形状を有することを確認した。この結果は、CWあるいは長パルスレーザ励起によるさらなる高効率SHG実現の可能性を示唆している。第6章では、第5章で提案したパルスレーザ励起用のSBOモノリシック垂直微小共振器型SHGデバイスによるさらなる短波長化、高効率化を試みた。研磨により薄膜化したSBOの上下をスパッタリングにより作製したDBRによって挟み込むことでデバイスを作製した。完成したデバイスに中心波長398 nmのピコ秒レーザを入射した結果、中心波長199 nmのSH波が発生し、VUV SHGを実証した。この波長は広く実用化している波長変換結晶であるBaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO) の理論最短SH波長である205 nmより短波長であり、SHGと和周波発生 (SFG) を組み合わせて構成される複雑なシステム構成の既存の全固体VUV光源を置き換える可能性を有している。第7章では、本研究で得られた成果をまとめ、残された課題と将来の展望を述べ、本論文の結論とした。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 南部 誠明 )			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教授	片山 竜二
	副 査	教授	小島 一信
	副 査	教授	吉村 政志
	副 査	教授	森 勇介
	副 査	招へい教授	光井 将一
	副 査	准教授	谷川 智之

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、小型、高効率な深紫外 (DUV) 全固体光源の実現に向けた低複屈折性常誘電体結晶を用いた微小共振器型第二高調波発生 (SHG) デバイスの開発に関する研究成果についてまとめたもので、全7章で構成されている。

第1章は序論であり、まず全固体光源のうち特にレーザ光源の開発の歴史と波長変換の基本原則についてまとめている。続いて、既存の DUV レーザ光源が抱える問題 (大型、高価、不安定性) について言及し、それらを解決可能な波長変換を用いた全固体 DUV レーザ光源の可能性と開発状況を説明している。従来型の波長変換結晶とデバイス構造の組み合わせでは、依然として小型、高効率な DUV レーザ光源を実現することは難しい。そこで本論文では、これまで波長変換結晶に必須であると考えられてきた物性 (強い複屈折性、強誘電性) を持たず、波長変換結晶としては用いられてこなかった材料群である、低複屈折性常誘電体結晶に着目している。これらの結晶の中には、DUV 領域で透明かつ高い光学非線形性と光損傷耐性を有する結晶が存在する。そこで本論文では、これらの結晶を波長変換デバイスに応用するために必要な、新たな原理にもとづくデバイス構造として、モノリシック微小共振器型 SHG デバイスを提案している。第2章では、まず本論文で扱う低複屈折性常誘電体結晶である窒化物半導体結晶 GaN、AlN およびボレート系結晶 SrB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> (SBO) の波長変換結晶としての優れた物性を紹介している。このうち特に SBO は、真空紫外 (VUV) 領域の波長 130 nm まで透明でかつ高い光損傷耐性を有することから高強度レーザ装置の硝材として開発された結晶であるとともに、強い光学非線形性も併せ持つ、DUV 波長域向けの優れた波長変換結晶といえるが、複屈折結晶のような角度位相整合や、強誘電体結晶のような分極反転擬位相整合による波長変換デバイスの形成と高効率な波長変換は、これまで不可能であった。この状況を踏まえて本章では続いて、本論文で新規提案するモノリシック微小共振器型 SHG デバイスの構造、動作原理、設計手法について説明している。このデバイスでは、長さをコヒーレンス長とした SHG 領域の両側に、基本波に対して高い反射率を有する分布ブラッグ反射鏡 (DBR) を隣接して設け、基本波を共振させることで、SHG 領域内で基本波の強度を顕著に増強させる。増強された基本波から効率良く発生した SH 波に適切な反射位相シフトを与えることで、GaN や SBO のようにこれまで波長変換デバイスに用いられてこなかった低複屈折性常誘電体結晶においても高効率な波長変換が達成可能となる。第3章では、c 面 GaN を用いたモノリシック微小共振器型 SHG デバイスによる青色 SHG 原理実証の実験結果について詳述している。デバイスは多段階のエッチングプロセスを駆使して作製し、完成したデバイスに中心波長 856 nm のフェムト秒パルスレーザを入射した結果、中心波長 428 nm の SH 波が発生しており、提案しているデバイスの動作原理の実証に成功している。この成果を論拠に、本論文の以降の章では波長変換の高効率化と発生波長の短波長化の取り組みについて報告している。第4章では、SBO を用いたモノリシック垂直微小共振器型 SHG デバイスによる波長 234 nm の DUV SHG 実証の実験結果について詳述している。デバイスは研磨プロセスによって薄膜化した SBO の上下を、誘電体薄膜のスパッタリングプロセスにより形成した DBR によって挟み込むことで作製している。完成したデバイスに中心波長 468 nm のピコ秒パルスレーザを入射した結果、中心波長 234 nm の SH 波

が発生し、DUV SHG の実証に成功している。第 5 章では、a 面 GaN を用いたモノリシック垂直微小共振器型 SHG デバイスによる、最適設計手法による高効率化と、より定量的な SHG 特性評価結果について詳述している。第 3 章および第 4 章で説明しているデバイスは、狭帯域な連続波 (CW) レーザによる励起を前提として設計、作製されているが、本論文において報告している SHG 実証実験ではいずれも、共振基本波波長を速やかに見つけることを目的とし、励起光源として広帯域なパルスレーザを使用している。ただし、CW 励起を前提として設計したデバイスは、基本波の波長許容幅が狭く、広いスペクトル幅を有するパルスレーザでは効率良くデバイスを励起できない。また、基本波のパワーがデバイス内部に徐々に移行し高強度な定常共振状態に至る前に、基本波のパルス照射が終了してしまう。そこで本章では、パルスレーザ励起を前提としたデバイス構造の再設計の手法を提案し、実際にその効果を実証した結果を報告している。デバイスはレーザリフトオフ技術を駆使して作製し、中心波長 856 nm のフェムト秒パルスレーザを入射した結果、中心波長 428 nm の SH 波が発生している。また、その実測した規格化波長変換効率は 0.15%/W であり、理論規格化波長変換効率である 0.20%/W と高い精度で一致することを述べている。加えて、発生した SH 波はガウシアンビームに近いビーム形状をしており、本デバイスにより発生する SH 波のビーム品質が優れることも、併せて報告している。この結果は、本論文で提案しているモノリシック微小共振器型波長変換デバイスが既存デバイスに匹敵する高い効率を有することを示すとともに、CW あるいは長パルスレーザ励起によるさらなる高効率 SHG 実現の可能性も示唆している。第 6 章では、第 3 章で述べた SBO モノリシック垂直微小共振器型 SHG デバイスにおける共振波長の変更と、第 5 章で提案したパルスレーザ励起用の最適設計手法の適用による、さらなる短波長化、高効率化への試みについて報告している。研磨プロセスにより薄膜化した SBO の上下をスパッタリングプロセスにより作製した DBR によって挟み込むことでデバイスを作製し、完成したデバイスに中心波長 398 nm のピコ秒パルスレーザを入射した結果、中心波長 199 nm の SH 波が発生し、VUV SHG の実証に成功している。この波長は、現在広く実用化している波長変換結晶である BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO) の理論最短 SH 波長である 205 nm よりも短波長である。この VUV 波長域の全固体レーザは現在、SHG だけではなく、SHG と和周波発生 (SFG) なる波長変換デバイスや多数の光学部品を多段に組み合わせて構成した複雑なシステムとなることから、大型で高価、大消費電力という問題を抱えている。一方で、本研究で実証した SBO 垂直微小共振器型 SHG デバイスは、例えば既に実用化されている高出力 GaN 系半導体レーザを一度の波長変換で直接 VUV 波長域に変換することができる。そのため、既存の全固体レーザと比較して劇的な小型化、低価格化、低消費電力化の可能性を有しており、これら既存の全固体 VUV 光源を置き換えることが期待される。第 7 章では、本研究で得られた成果をまとめるとともに、残る課題と将来への展望を述べることで、本論文の結論としている。

以上のように本論文では、低複屈折性常誘電体結晶などの従来用いられてこなかった広範な材料にも適応可能な、モノリシック微小共振器なる新たな SHG デバイスを提案することで、従来未踏であった VUV 波長域への波長変換の実証に成功している。この成果は量子光学および非線形光学分野を革新する極めて高い学術的意義が認められるだけでなく、この方法論を用いることで新たな応用領域の開拓が期待されることも鑑みて、本論文は博士論文として価値あるものと認める。