全固体高出力深紫外コヒーレント光源

非 会 員 佐 久 間 純、 Andrew Finch
 出 来 恭 一、 北 柝 直 樹
 大 迫 康、 堀 口 昌 宏
 横 田 利 夫
 正 員 森 勇 介、 佐 々 木 孝 友

(株式会社ウシオ総合技術研究所)

(大阪大学工学部電気工学科)

Development of all-solid-state, high-power, DUV coherent source

Jun Sakuma, Andrew Finch, Kyoichi Deki, Naoki Kitatochi, Yasu Ohsako,

Masahiro Horiguchi, Toshio Yokota, Non-member (Ushio Research Institute of Technology)

Yusuke Mori, Takatomo Sasaki, Member (Osaka University)

We have developed an all-solid-state deep-ultraviolet(DUV) coherent source based on sum-frequency-mixing(SFM) of two single-frequency lasers operating at a 5kHz repetition-rate. The system consists of a CW diode-pumped, Q-switched Nd:YLF laser operating at 1047nm, a Ti:sapphire laser at 785-nm, and cascading SFM stages. The system generated 16.2W of 349nm and 3.4W of 241.6nm as the intermediate outputs. By using a temperature-tuned CLBO crystal for the final mixing stage, 1.5W of 196.3nm output was produced. The linewidth of the DUV output was measured to be less than 200MHz.

キーワード：LD 励起固体レーザー、波長変換、非線形光学結晶

1. はじめに

赤外域で発振するレーザー光の2次非線形光学効果を利用した波長変換は、コヒーレントな紫外光を発生する重要な技術である。発生紫外光の特性は、入射レーザー光の特性が反映され、紫外光を直接発振するエキシマレーザーに比して一般に、低広がり角、狭スペクトル、高繰返し動作等の特性が可能である。特に、近年発展の目覚ましいレーザーダイオード(LD)励起固体レーザーを用いた全固体構成紫外光源は、取扱い性、ランニングコスト等の実用面においても優れた装置という期待が高く、半導体製造、電子部品製造、医療等の各種産業分野での応用を視野に入れた研究開発が活発化している。

しかしながら、産業用の高出力全固体紫外レーザーとしては、現状、波長355nmのNd:YAG第3高調波で5W程度の装置が製品化されているにすぎず、その高出力化および短波長化が課題となっている。kW級出力も達成されているLD励起Nd:YAGレーザー技術の進展を考慮すると、課題解決のキーは主に非線形光学結晶にあると言える。有力候補の一つは、1995年に大阪大学より報告されたセシウム・リチウム・ボーレート(CLBO)結晶である⁽¹⁾。BBO等の従来の結晶に比して広い位相整合許容幅と低吸収の特性を有する上、損傷閾値もLBOに次ぐ程に高く、高出力紫外光発生の報告が相次いでいる。Nd:YAGレーザー第4高調波発生(波長266nm)では20Wを超える出力達成も

報告され⁽²⁾、同目的のCLBO結晶における課題は、結晶の寿命確保、効率向上、出力安定化、実装といった実用面に関わる段階に移行しつつある。

しかし、光リソグラフィーやファイバグレーティング製造等の魅力ある分野では、266nmより更に短波長のKrFエキシマレーザー(248nm)やアルゴンイオンレーザー第2高調波(244nm)等が既に選択され、その発振波長に周辺技術が同調されつつある。このため、その代替ないし評価用等の全固体紫外光源としては、240nm付近での発振が求められる。またArFエキシマレーザーの独壇場とも言える波長200nm未満の全固体光源も強く期待されている。後者については、和周波混合等による発生が過去に様々試みられてきたが、その殆どの報告例は精々mWオーダーの平均出力に止まる上、手段としても色素レーザーやランプ励起のNd:YAGレーザー等を利用した低繰返しでの実験結果であった。このような波長変換による深紫外光発生に最も多く使われてきたBBO結晶は、吸収端波長が190nmであるが、CLBO結晶の吸収端波長はより短い180nmであり、第4高調波発生に止まらない深紫外光発生、特に200nm未満の光発生にもより適するものと期待される。

本論文では、このような背景の元で、波長240nm近傍ならびに200nm未満のkHz繰返し、W級出力を目標として筆者らが開発した全固体構成の深紫外光源について述べる。各紫外光の発生には、CLBO結晶の利用を目的とした独自の和周波混合方式を適用した。結果として、2台の独立し

たレーザー装置による和周波混合出力としては筆者等の知る限り最大となる平均出力 3.4W、波長 242nm の深紫外光を発生させた。更に波長変換による 200nm 未満の光発生出力として最大の平均出力 1.5W、波長 196nm を得た。各紫外光は、5kHz の高繰り返し動作、および各レーザーの単一モード発振動作によるバンド幅 200MHz 未満というエキシマレーザーでは達成困難な特性として実現した。本論文では、特に CLBO 結晶に関する実験的検証結果を主眼として、開発された光源の特性と応用例について述べる。

2. 全固体紫外光発生方式

(2.1) 和周波発生

2 次の非線形光学効果を利用した和周波混合 (SFM : Sum-Frequency-Mixing)における発生波長 λ_3 は、入射する 2 光 (波長 λ_1 、 λ_2) との変換媒質内での相互作用のエネルギー保存則

$$\frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2}, \quad (\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \quad \cdots\cdots\cdots[1]$$

にて決定される。ただし、高出力コヒーレント光として発生される光の波長は、混合媒質内での相互作用がコヒーレントに重ね合わせられる位相整合条件

$$\frac{n_3}{\lambda_3} = \frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} \quad \cdots\cdots\cdots[2]$$

を満足する場合に実質限られる (上記は Collinear の場合)。実用的な変換媒質の条件としては、入射両光と発生光に対する透明性、適度な有効非線形光学定数、高い損傷閾値、広い位相整合許容幅等も要求される。通常よく行われる単一の基本波からのカスケード混合による高調波発生では 2ω 、 3ω 、 4ω 、... という離散的な波長しか発生できないが、波長可変レーザーの出力を基本波とすれば波長同調が可能である。全固体波長可変光源としては、光パラメトリック発振器 (OPO:Optical Parametric Oscillator)、やチタンサファイアレーザー等がある。いずれも近年発展が著しい光源技術ではあるが、その高調波発生でエキシマレーザーの代替化の可能性が議論されるような特性は達成されていない。そこで、[1]式右辺の一方の波長 (λ_1 とする) は、比較的高出力の高い Nd:YAG レーザー等の基本波ないし高調波とし、他方 (λ_2 とする) にのみ波長可変光源を適用することが考えられる。例えば、Nd:YAG レーザー第 5 高調波 ($\lambda_1=213\text{nm}$) と赤外 OPO 光 ($\lambda_2=2100\text{nm}$) の SFM により ArF レーザー波長の 193.4nm が発生される (図 1) ⁽³⁾。

図 1 OPO を用いた 193nm 光発生方式構成
Fig.1. Schematic of 193nm source based on the fifth harmonic of Nd:YAG laser and OPO.

光周波数の観点からは、発振波長 1064nm の Nd:YAG レーザー光の光周波数 ω に対し 5.5ω に相当する混合結果を得ることに相当し、193nm はその過程に依らず発生される。例えば、Nd:YAG レーザー第 4 高調波 (4ω) に波長 708nm (1.5ω) の近赤外光を混合すれば 193nm 光が発生する⁽⁴⁾。後者の光源としては、チタンサファイアレーザーの適用が考えられる。一般に、和周波混合においては混合される光子数の比が等しいことから、波長可変光源は比較的低出力で良いとされる。例えば、図 1 の方式の場合、赤外 OPO の出力は第 5 高調波出力の約 10%程度でよいことになる。

図 2 チタンサファイアレーザーを用いた 193nm 光発生構成
Fig.2. Schematic of 193nm source based on FHG of Nd:YAG laser and Ti:sapphire laser.

(2.2) 非線形光学結晶

上記のような混合過程に依らず、最終の和周波混合段階では少なくとも 193nm を透過する非線形光学結晶が必要である。現状、その入手性等の点において適用可能な結晶としては、BBO、CLBO、LBO の 3 種類が考えられる。LBO は、吸収端波長が最短 (~160nm) で損傷にも強い結晶であるが、複屈折が小さく [2] 式の位相整合条件を満たす混合波長が最も制限される。逆に BBO は、吸収端波長が最長 (~190nm) であるが、複屈折は最大で幅広い混合波長の組み合わせに対し位相整合する。しかし、その大きさ故に小さくなる角度許容幅は、高出力動作を阻害する大きな要因でもある。CLBO の特性はこれらの中間に位置するが、最も新しい結晶で和周波混合への適用例は殆ど報告されておらず、その特性に関しては未知な点も多い。非線形光学定数は BBO が比較的大きい。図 1 の場合の 193nm 光発生用結晶としては、BBO、CLBO、LBO 全てにおいて角度位相整合が得られるが、図 2 の方式には BBO だけが位相整合する。表 1 に各結晶の特性を示す。

表 1 193nm 光発生における BBO、LBO、CLBO 結晶の位相整合特性計算値

Table 1. Calculated phase-matching properties of BBO,CLBO,and LBO for the193nm generation.

λ_1 (nm)	λ_2 (nm)	λ_3 (nm)	結晶	位相 整合角 (deg)	角度許容幅 FWHM (mrad/cm)	分散 方程式 (参考文献)
213	2100	193.4	BBO	40.7	0.08	(5)
213	2100	193.4	CLBO	48.1	0.24	(6)
213	2100	193.4	LBO	54.0	0.41	(7)
709	266	193.4	BBO	75.9	0.21	(5)

〈2.3〉 技術課題

実際の装置構築においては、[1]式、[2]式に表れない課題が存在する。その一つは、入射光の変換媒質内における相互作用領域の整合（オーバーラップ）である。パルス動作の場合は、時間領域の整合も求められる。高調波発生では、敢えてビームを分離して再結合しない限り時間空間ともに整合はほぼ自動的に満足させられ、高効率かつ安定な変換が実現しやすい。特に第2高調波発生は、時空間整合が完全に満たされる理想的な波長変換であり、外部変換方式でも60%以上の効率が得られる場合もある。これに対し、2台のレーザー装置からの和周波混合の場合、ビームの波面、強度分布等を独立に制御した上で結晶内で混合させる必要があり、強度分布、位相分布、ビーム質（M²値）等の差に依存した空間不整合が必ず発生する。時間整合（同期）についても、発生媒体の異なる二つのレーザーの波形を一致させることは一般には容易ではない。特に励起光とレーザー光発生までの時間差のあるチタンサファイアレーザー等を用いる場合では、その同期も課題となる。また、複数段の混合を行う場合、混合回数が増加するに従って、変換の非線形性に起因する発生光のビーム径縮小、パルス幅短縮の効果が強まり、空間時間共に整合はより困難となる。

以上のような整合という課題の他に、高効率な和周波混合の実現には通常の高調波発生と同様、変換結晶の位相整合許容幅、有効非線形光学定数、損傷限界等を考慮した集光条件と結晶長が考慮されなければならない。和周波混合における各波の相互作用は下記の非線形結合方程式により記述される。

$$\frac{dE_1}{dz} = -\frac{\alpha_1}{2} E_1 - jK_1 E_2 E_3^* \exp(-j\Delta kz) \quad \cdots \cdots [3a]$$
$$\frac{dE_2}{dz} = -\frac{\alpha_2}{2} E_2 - jK_2 E_3 E_1^* \exp(-j\Delta kz) \quad \cdots \cdots [3b]$$
$$\frac{dE_3}{dz} = -\frac{\alpha_3}{2} E_3 - jK_3 E_1 E_2 \exp(j\Delta kz) \quad \cdots \cdots [3c]$$

ここで E_i は z 方向に進む複素電界、 α_i は吸収係数、 K_i は結合係数である。和周波混合光の電界強度の増加割合は混合光の電界の積に依存するため、一方が弱いと変換が進み難い。弱くならざるを得ない場合には、もう一方を高めて消耗させることが必要である。式上 100%変換変換が有り得るのは、初期の入射光光子数比 $|E_1|^2/\omega_1 : |E_2|^2/\omega_2$ が 1 : 1 で、吸収が無視でき ($\alpha_i=0$)、出力分布が一様で平面波近似され、ビーム全体で完全位相整合する ($\Delta k=0$) 場合であり、現実には不可能である。高効率というより高出力な和周波混合出力達成の観点からは、光子数比に従わずとも出力に余裕がある方が有利な場合が少なくない。

以上述べたような背景からと推定されるが、これまで和周波混合による紫外光発生は、概して時間整合の考慮の必要がない小出力の連続発振光の発生や、パルスエネルギーの大きな低繰返し用途に限られてきた。前述した第5高調波とOPO光との和周波混合による193nm発生の例では、

低繰返し動作での実験結果から、既存技術範囲内の150W級のNd:YAGレーザー基本波によって10kHz、5Wの193nm光の発生が可能との予測もある⁽⁶⁾。しかし、例えば長さ10mmのLBO結晶を最終段の和周波混合に用いた場合の位相整合許容幅0.47mradに対応する回折限界光の最小スポット径は、213nm光で0.2mm程度となるが、波長が一桁大きい2.1μm光に対しては2mm程度となる等、空間整合と励起強度確保の両立は容易ではない。筆者らの知る限り、この方式による深紫外光出力は最大210mW、繰返し数100Hzに止まっている⁽⁹⁾。このように、高繰返し動作での高効率な和周波混合のためには、概して位相整合許容幅の大きな結晶が適用可能で、混合する波長の比がなるべく小さい変換過程の選択がポイントと考えられる。

3. 深紫外光発生方式

(3.1) 構成

図3に我々が開発した深紫外光源の構成を示す。

図3 全固体深紫外光源の構成
Fig. 3. Schematic of DUV source based on THG of Nd:YLF laser and Ti:sapphire laser .

Nd:YLFレーザーの第3高調波(349nm)とチタンサファイアレーザー光を和周波混合して得た紫外光(SFM1)に、3倍波発生の過程で残存する基本波と再度和周波混合して深紫外光(SFM2)を得る。各和周波の同調範囲はチタンサファイアレーザーの可変範囲に依存するが、700-900nmとすれば、SFM1は233-251nm、SFM2は190-203nmとなる。本方式は前述した第5高調波とOPO光の混合方式に比して以下の点に特徴がある。

- (1) 波長可変範囲が広く、SFM1はKrFエキシマレーザーおよびアルゴンイオンレーザー第2高調波、SFM2はArFエキシマレーザーの発振波長をカバーする。
- (2) 出力に余裕のある基本波を、第2、第3高調波発生、さらに193nm発生の3回混合に用いる。特に、後段の深紫外光発生(SFM2)に利用する。
- (3) 3倍波発生まではLBO、各和周波混合にはCLBOが適用できる。
- (4) 各光混合の過程で混合する光の波長の比は最大でも4程度で、空間的整合が得やすい。

課題としては、第5高調波とOPOを用いる方式より多少構成が複雑化する点と、ゲインスイッチ動作のチタンサファイアレーザーを使用することにより空間だけでなく時間の整合を得る必要があることが挙げられる。

（3.2） CLBO 結晶の位相整合特性

CLBO 結晶の分散方程式は 1999 年以前に 3 件の文献報告があり^{(1),(11),(12)}、それら全てから本方式 SFM1 の 237nm 発生および SFM2 の 193.4nm 発生に Type-I(oo-e)位相整合するとの計算結果が得られる。BBO も位相整合するが、LBO では位相整合が得られない。表 2 に CLBO および BBO における各和周波混合の位相整合特性計算値を示す。

表 2 各和周波混合における CLBO, および BBO 結晶の位相整合特性計算値
Table 2. Calculated phase-matching properties of CLBO and BBO for two SFM stages.

λ_1	λ_2	λ_3	結晶	位相 整合角 (deg)	角度 許容幅 (mrad)	Deff (mV)	分散 方程式 (参考文献)
(nm)	(nm)	(nm)					
740	349	237.2	CLBO	68.3	0.50	0.88	(1)
740	349	237.2	CLBO	70.4	0.52		(10)
740	349	237.2	CLBO	67.9	0.53		(11)
740	349	237.2	BBO	52.1	0.14	1.4	(5)
1047	237.2	193.4	CLBO	77.4	0.56	0.93	(1)
1047	237.2	193.4	CLBO	77.3	0.41		(10)
1047	237.2	193.4	CLBO	76.6	0.62		(11)
1047	237.2	193.4	BBO	58.9	0.103	1.21	(5)

いずれの和周波混合においても有効非線形定数は BBO の方が多少大きいものの、角度許容幅は CLBO の方が BBO より数倍広い。特に吸収端が短い点を考慮すると SFM2 用としては CLBO の方が有利と考えられる。しかし筆者等の研究により、TSSG (Top Seeded Solution Growth) 法により育成された CLBO 結晶において SFM1 は計算値通りの位相整合角が得られるが、SFM2 に関しては如何なるカット角の結晶を用いても位相整合が得られないことが明らかとなった⁽¹²⁾。CLBO は Nd:YLF レーザーの第 5 高調波発生である 1047+262nm→209nm の混合には Type-I 位相整合が得られることが報告されている⁽¹³⁾。よって $\lambda_1=1047\text{nm}$ と和周波混合できる λ_2 としては、 $262\text{nm}>\lambda_2>237\text{nm}$ の範囲に限界が存在することが推測される。チタンサファイアレーザー波長の同調による実験検討の結果、室温で位相整合が得られる限界波長は、 $\lambda_2=242\text{nm}$ に対応する $\lambda_3=196.3\text{nm}$ であることが見出された。更にその後実施された詳細な実験検討において、発振波長 1064nm の Nd:YAG レーザーを用いた場合の SFM2 最短波長は 195.0nm であり、それは -180℃程度まで冷却させた CLBO 結晶の屈折率温度変化による同調によって 193.4nm まで短縮されること等が見出された⁽¹⁴⁾。1999 年に報告されたセルマイヤー方程式⁽⁶⁾は、これらの実験結果に非常に一致した結果を与える。図 4 に 1064nm 光を用いた和周波混合の各セルマイヤー方程式から計算される室温での位相整合曲線を示す。SFM2 最短波長に対応する CLBO 結晶の位相整合角は 90° の非臨界位相整合 (NCPM: Noncritical Phase-Matching) であって、その角度許容幅の大きさ故に高繰り返し動作での光発生にも適するものと期待される。

図 4 第 2 和周波混合における位相整合曲線
Fig.4. Calculated tuning curves for 193nm generation by SFM of 1064nm.

1999 年以前の各分散方程式が SFM2 の実験結果に合致しなかった原因としては、CLBO 結晶屈折率の短波長吸収端近傍での波長依存性の変化が通常より大きく、比較的長波長光の位相整合特性を元に導かれた各方程式の外挿とのずれが大きいことによると推測される。その理由としては、比較的長波長光の混合である SFM1 については、角度許容幅も含めて 3 件の方程式がほぼ同等の計算結果を与えるのに対し、SFM2 の場合、角度許容幅のばらつきが大きいことがある。SFM2 の位相整合角計算値がほぼ一致するのは偶然と考えられる。また温度位相整合特性が異なる CLBO 結晶が存在するという報告⁽¹⁴⁾もあることから不純物等の影響も考えられるが、原因は未だ完全に明らかとはならない。

以上述べた結果により、今回開発した発生方式において現状の CLBO 結晶と Nd:YLF レーザーを用いた場合には ArF レーザー発振波長の 193.4nm が発生できず、Nd:YAG ないし Nd:YVO₄ レーザーを用いて更に CLBO 結晶を液体窒素等で冷却する必要があることが明確化した。冷却された CLBO 結晶の使用は、その寿命評価や装置構成複雑化という新たな技術課題を招く。しかし、BBO 結晶において報告された冷却による吸収端の短波長化という効果⁽¹⁵⁾と NCPM 動作を考慮すると、液体窒素冷却された CLBO 結晶を用いた全固体構成の 193nm 光源は、ArF エキシマレーザー (193.4nm) の代替化実現には好材料ともなり得る。また、波長 240nm 前後となる SFM1、および CLBO の室温ないし高温動作で可能となる 195~202nm の全固体光源には新たな応用への期待がある。このような観点から、本研究においては Nd:YLF レーザーを選択したことも踏まえ、SFM1 (242nm)、および CLBO の NCPM 動作による SFM2 (196nm) の特性を実験的に評価した。

4. 光源の構成と特性

(4.1) 全体構成

光源の構成を図5に示す。光源は、和周波混合に必要な光を発生させる基本波ならびに波長可変光発生用レーザー、および近赤外から深紫外に至る4段階の和周波混合部からなる。検証目標の主眼を、全固体構成での狭帯域、kHz繰返し、W級深紫外光の発生としたことから、基本光源には平均出力40W級の縦横単一モード発振のLD励起QスイッチNd:YLFレーザー-MOPA (Master Oscillator Power Amplifier) システム (MOPA-A) が用られた。Nd:YLFレーザーは、Nd:YAGレーザーに比して、熱レンズ、熱誘起複屈折等の問題が少なく安定な数10W級の単一横モード発振の装置構築に適すること、また長い上準位寿命により波長変換に適した高ピークパワーのQスイッチ発振が可能との観点から選択された。波長可変光源には、第2高調波励起のOPOという選択肢もありうるが、現状の技術的成熟度の高さという点からチタンサファイアレーザー(発振域741~805nm)が選択された。このレーザーも縦横単一モード発振での高出力動作実現を目的としてMOPA構成とし、その主発振器、増幅器の励起源には基本光源とは独立したNd:YLFレーザー(MOPA-B、MOPA-C)の各第2高調波が用いられた。単一縦モード発振は、CW発振レーザー光の注入とQスイッチ制御パルスからレーザー発振立ち上がりまでの時間間隔を最小とする共振器長制御方式⁽¹⁶⁾によった。パルス光励起となるチタンサファイアレーザーのゲインスイッチ動作により発生される近赤外光と、MOPA-Aで発生される光の第3高調波を和周波混合するために、MOPA-B、MOPA-CはMOPA-Aより早く励起する必要がある。その実現のために、各Nd:YLFレーザーのQスイッチトリガーはデジタル遅延パルス発生器により調整された。動作繰返し数は、波長変換光の平均出力最大化の観点から5kHzに設定された。

図5 全固体紫外光源の構成
Fig.5. Schematic of all-solid-state DUV laser source.

(4.2) 基本波特性

上記の3台のNd:YLFレーザー-MOPAには、出力20WのCW動作レーザーダイオードパター2により励起されるYLFのスラブ (Schwartz Electro-Optics社、現Q-Peak社製)のゲインモジュールが、AO-Qスイッチ動作の発振器および増幅器の利得媒体として2~5個ずつ用いられた。5kHz動作時の各MOPAの基本特性を表3に示す。

表3 Nd:YLF MOPAの基本特性
Table 3. Characteristics of Nd:YLF MOPA systems.

	ゲインモジュール (発) (増)	平均 出力	パルス 幅	M ² x y	帯域幅
MOPA-A	2 3	37W	20ns	1.2 1.1	<100MHz
MOPA-B	1 1	19W	20ns	1.1 1.1	-
MOPA-C	1 2	25W	20ns	1.1 1.1	-

(4.3) 第2高調波発生 (SHG)

各Nd:YLF MOPAからの赤外光出力は、温度位相整合によるLBO (サイズ: 3x3x15mm、両面ARコート付き、結晶温度170℃)により、第2高調波 (波長523.5nm)に変換された。その最大平均出力としてはMOPA-Aで23W、Bで11.4W、Cで14W (変換効率55~60%)が得られた。

(4.4) 第3高調波発生 (THG)

MOPA-A出力の第3高調波 (波長349nm)の発生には、基本波と第2高調波を和周波混合するType-II位相整合のLBO結晶 (3x3x15mm、両面ARコート付き)が用られ、その最大平均出力としては16.2W (基本波からの変換効率42%)が得られた。通常、基本波と第2高調波の最適出力比率は光子数均衡の観点から2:1とされるが、本装置では約2:3であった。これは、強度分布が消耗した基本波と第2高調波との空間整合性に起因するものである。ガウシアン型基本波を仮定しSHG結晶への集光強度をパラメータとして、[3]式の数値計算により第3高調波の変換効率を求めた例を図6に示す。最大の第3高調波変換効率を与える基本波からの第2高調波効率は、実験結果の最適混合比率2:3に相当する40%となった。

図6 第3高調波発生第2高調波発生効率依存性
Fig.6. Calculated dependence of THG conversion efficiency on SHG efficiency as a parameter of peak intensity of initial fundamental.

4.5) チタンサファイアレーザー

図7にチタンサファイアレーザーMOPAの構成図を示す。主発振器の共振器は、4枚のミラーで構成される縦横収差補償構成のボウタイ型リングで、共振器内にはブリュースターカットのチタンサファイア結晶と、発振波長粗調用の複屈折フィルターが配置される。注入光源としては、4種類の外部共振器付きのレーザーダイオード（発振波長域741~760、760~780、779~795、785~805nm）が用いられた。MOPA-Bからの2倍波（最大入力9.2W）励起による出力特性としては、同調可能な波長域741~805nmにおいてM²測定値1.1未満、ライン幅測定値0.2pm未満（測定限界）の縦横単一モードで、5kHz動作時の最大平均出力3.4W（波長745nm）、パルス幅14nsecを得た。さらにMOPA-Cを励起源とした増幅において、両側合計10Wの2倍波励起により最大7Wまで増強させられた。

図7 チタンサファイアレーザー構成図

Fig.7. Schematic of Ti:sapphire laser MOPA system.

5. 和周波混合による紫外光発生

5.1) CLBO結晶による242nm光の発生（SFM1）

Nd:YLFレーザー第3高調波とチタンサファイアレーザー光の混合には、サイズ7x8x20mm、カット角64°のType-I型CLBOを用いた。結晶は、防湿等を目的とした加熱オープンにより温度を150℃に保持しながら実験を行った。各入射ビームは、縦横収差を除去とコリメートのため複数のシリンドリカルレンズによって縦横独立に調整した後、紫外光透過、近赤外光反射のダイクロイックミラーにより同軸として結晶に入射させた。結晶透過後の各入射光と発生光は石英製プリズムで分離した。チタンサファイアレーザー光波長同調範囲741~805nmに対し、上記CLBO結晶の位相整合角調整により、237.3~243.5nmの範囲で和周波が発生することを確認した。各光学部品での損失および損傷に制限され、結晶に入射させられた各光の最大出力は、349nm光が9.0W、波長785nmに同調された近赤外光は6.0Wであった。使用したCLBO結晶の位相整合許容角は約0.25mradであり、完全位相整合を得るために必要な入射光のビームスポットサイズは結晶において349nm光に対し0.6mm以上、785nmに対しては1.2mm

となる。しかし、実験において発生出力が最大となった349nm光および785nm光のスポットサイズ（横x縦）は、それぞれ0.6x0.35mm、0.5x0.3mmであり、許容幅方向に対応する横方向の785nm光スポットサイズは上記限界値の40%程度であった。これは、励起強度増加による変換効率の向上分が角度許容幅を超えたことによる犠牲性を勝った結果と考えられる。この条件での発生光（波長241.6nm）の出力は、プリズム分離後の実測で最大3.4W（総合効率23%）に達した。混合前の各入射光と発生光のパルス波形を図8に示す。非線形変換に伴うパルス幅圧縮効果を経た349nm光と785nm光のパルス幅がほぼ等しくなったことが和周波混合の高効率化に寄与したと考えられる。

図8 パルス波形測定例

Fig.8. Measured pulse shapes of Ti:sapphire, THG, and SFM1 outputs(10ns/div).

図9に、349nm光の入力を9W一定として785nm光の入力を変化させた際の発生光の出力特性を示す。実線は、理論式[3]においてガウシアン型空間分布を仮定し、ウォークオフと吸収を0と近似した際の数値計算結果に対応している。実験においては、和周波出力が約1.5W程度を超える領域で2光子吸収等によると推測される熱誘起不整合が表れ、位相整合角の調整が必要であった。しかし測定範囲内で、発生出力はほぼ計算曲線に従って増加しており、結晶軸方向ならびに面方向の温度分布は、位相不整合の影響が無視できる程度に均一化されていたと考えられる。

図9 SFM1の入出力特性

Fig.9. Output power of the SFM1 as a function of the input power of 785nm light.

(5.2) NCPM CLBO による 196nm 光の発生 (SFM2)

主目的となる 200nm 未満の深紫外光発生には、サイズ 7x8x10mm、カット角 90° の CLBO 結晶が用いられた。241.6nm 光と 1047nm 光の結合には、前者に対する反射率 91.5%、後者に対する透過率 85%の誘電体多層膜コートのミラーが用いられた。Type-I 位相整合実現のため、1047nm 光は 3 倍波発生後に半波長板により偏光面が 90° 回転させられた。実験時に CLBO 結晶に入射した 1047nm 光および 241.6nm 光出力は 2 枚用いた上記ミラーの損失によりそれぞれ 7.8W、2.8W であった。結晶温度 34℃において位相整合が得られ、発生した波長 196.3nm 光の最大出力は、分離用プリズムでの損失を考慮して 1.53W (和周波発生効率 14.4%) であった。図 10 に、1047nm 光入力是一定、241.6nm 光入力変化に対する 196nm 光出力の特性を示す。

図 10 SFM2 の入出力特性

Fig.10. Output power of the SFM2 as a function of the input power of 242nm light.

図中実線は、図 9 と同様の計算結果に対応しており、測定範囲内ではほぼ線形に増加しているのに対し、実測値は明らかな飽和傾向を示している。これは、波長 196nm 光の吸収と、それに伴う熱誘起位相不整合の影響と考えられる。低入力時の実測値が計算値を上回っている原因は不明である。

(5.3) 帯域幅評価

高調波ないし和周波の帯域幅は、混合光の帯域幅が結晶のスペクトル許容幅より狭い場合、混合光バンド幅のコンボリューションで近似される。インジェクションシーディングによる Nd:YLF レーザー基本波およびチタンサファイアレーザー光のスペクトルアナライザー (Burleigh RFP-3600) によるバンド幅測定値はいずれも測定限界の 100MHz 以下と評価されており、それぞれ 100MHz と仮定した場合の各出力のバンド幅計算値は表 3 のようになる。

表 3 各出力のバンド幅計算値

Table 3. Estimated bandwidth of each output.

波長(nm)	1047	524	349	242	196
帯域(MHz)	100	141	173	200	223

スペクトルアナライザーに用いられた紫外光測定用エタロンは FSR7.5GHz であるが、フィネス値 40 は波長 193.4nm での規定値であり、196.3nm 光の評価には適用出来なかった。そこで、チタンサファイアレーザーを波長 741nm で動作させて SFM1 光波長 237.3nm を発生させ、SFM2 用結晶として BBO を用いて発生させた波長 193.4nm の SFM2 光による間接的測定を行った。4.5W の 349nm 光と 1.1W の 741nm 光の CLBO での混合により 1.0W の 237.6nm が発生した。その光をカット角 59°、長さ 10mm の BBO 結晶により 5W の 1047nm 光と混合したところ、最大 40mW の 193.4nm 光が発生した。発生した 193nm 光のスペクトルアナライザーによる帯域測定例を図 11 に示す。測定値は解像限界の 186MHz(0.023pm)を示しており、それ以下であることが確認された。NCPM CLBO により発生させられた 196nm 光と BBO による 193nm 光の帯域が異なる本質的理由は考えられず、同等であると評価される。なお、196nm 光のパルス幅は約 11nsec であり、ガウシアンパルス近似した際のフーリエ限界帯域は約 40MHz と見積もられる。

図 11 深紫外光の帯域測定例

Fig.11. Measured data for bandwidth of DUV output.

6. 深紫外光の応用例

本開発で得られた深紫外光のビームパターンや M² 値は評価されていないが、明らかにエキシマレーザー光に比して狭帯域かつ指向性の高いコヒーレント光である。また現状のアルゴンレーザー第 2 高調波では達成困難な高出力である上、一定範囲での波長可変も可能である。過去このような光源が存在していなかったことから、その応用開拓は、光源の信頼性向上等とともに今後の課題である。現在、KrF エキシマレーザーないしアルゴンレーザー第 2 高調波が適用されているファイバブラッググレーティング (FBG) の製作は、その特徴が活かされる応用の一つである。FBG 製作の方式は、二光束干渉法と位相格子法に大別されるが、

いずれも高い可干渉性と高出力な光源が望まれる。現状用いられている上記各レーザーは、いずれかの特性において課題がある。図 12 は、波長 241.6nm の SFM1 光を用い、位相格子法によりファイバグレーティング作成を行った際の透過スペクトルの一例である。実験に用いた SFM1 光の出力は 0.6W で、位相格子法にて作成した。アライメントが不十分であったために短波長側にサイドピークが発生したが、本応用に適用可能であることが確認された。

図 12 全固体コヒーレント光源により作成された FBG の透過スペクトル例

Fig.12. Transmission spectrum of a fiber grating written by an all-solid-state coherent light source.

7. むすび

CLBO 結晶を用いた和周波混合による高繰返し、高平均出力、狭帯域の全固体構成コヒーレント深紫外光源の開発結果について述べた。繰返し数 5kHz の Nd:YLF レーザー第 3 高調波とチタンサファイアレーザー光の CLBO 結晶を用いた混合により、波長 241.6nm において平均出力 3.4W、また NCPM 条件での CLBO 結晶による Nd:YLF レーザー基本波との再混合により、波長 196.3nm において 1.5W が得られた。いずれも帯域 200MHz 以下と評価される狭帯域光であり、前者はファイバグレーティング作成にも適用可能であることが実験的に示された。装置としての信頼性向上、結晶寿命の評価等は今後の課題であるが、既存の光源にはない特性を実現した本光源の応用は様々期待される。

(平成 12 年 2 月 21 日受付, 同 12 年 4 月 24 日再受付)

文 献

- (1) Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki, and S. Nakai, "New nonlinear optical crystal: Cesium lithium borate," *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1818 (1995).
- (2) T. Kojima, S. Konno, S. Fujikawa, K. Yasui, K. Yoshizawa, Y. Mori, and T. Sasaki, "20-W, 10-kHz, UV beam generation by an all-solid-state laser," *OSA Trends in Optics and Photonics* **26**, 93 (1999).
- (3) R. D. Mead, C. E. Hamilton, and D. D. Lowenthal, "Solid-state lasers for 193nm lithography," *Proc. SPIE* **3051**, 882 (1997).
- (4) H. Masuda, N. Umez, K. Kimura, and S. Kubota, "High-repetition-rate, 192-197nm pulse generation in β -BaB₂O₄ by intracavity sum-frequency-mixing of a Ti:Sapphire laser with a frequency-quadrupled Nd:YAG laser," *OSA Trends in Optics and Photonics* **26**, 63 (1999).
- (5) K. Kato, "Second-Harmonic Generation to 2048Å in β -BaB₂O₄," *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-22**, 1013 (1986).
- (6) N. Umemura, K. Yoshida, T. Kamimura, Y. Mori, and T. Sasaki, "New data on the phase-matching properties of CsLiB₆O₁₀," *OSA Trends in Optics and Photonics* **26**, 715 (1999).
- (7) K. Kato, "Tunable UV Generation at 0.2325 μ m in LiB₃O₅," *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-26**, 1173 (1990).
- (8) R. D. Mead and C. I. Miyake, "Lithography offers market for solid-state lasers," *Laser Focus World*, January, 113 (1998).
- (9) K. Deki, J. Sakuma, Y. Ohsako, N. Kitatochi, T. Yokota, M. Horiguchi, Y. Mori, and T. Sasaki, "200mW 192nm Generation using CsLiB₆O₁₀ Crystal," *Technical digest of CLEO'98, CPD4* (1998).
- (10) N. Umemura and K. Kato, "Ultraviolet generation tunable to 0.185 μ m on CsLiB₆O₁₀," *Appl. Opt.* **36**, 6794 (1997).
- (11) G. Ryu, C. S. Yoon, T. P. J. Han, and H. G. Gallagher, "Growth and characterization of CsLiB₆O₁₀ (CLBO) crystal," *J. Cryst. Growth* **191**, 492 (1998).
- (12) J. Sakuma, A. Finch, Y. Ohsako, K. Deki, M. Yoshino, M. Horiguchi, T. Yokota, Y. Mori, T. Sasaki, "All-solid-state, 1-W, 5-kHz laser source below 200nm," *OSA Trends in Optics and Photonics* **26**, 89 (1999).
- (13) A. Finch, Y. Ohsako, J. Sakuma, K. Deki, M. Horiguchi, Y. Mori, T. Sasaki, K. Wall, J. Harrison, P. F. Moulton, and J. Manni, "Development of a high-power, high-repetition rate, diode-pumped, deep UV laser system," *OSA Trends in Optics and Photonics* **19**, 16 (1998).
- (14) 出来恭一, 佐久間純, 大迫康, Andrew Finch, 横田利夫, 堀口昌宏, 森勇介, 佐々木孝友, "CsLiB₆O₁₀ 結晶 (CLBO) を用いた 193nm 光源の開発," *レーザー研究*, **27**, 531 (1999).
- (15) H. Kouta and Y. Kuwano, "Attaining 186-nm light generation in cooled β -BaB₂O₄ crystal," *Opt. Lett.*, Vol. **24**, 1230 (1999).
- (16) L. Rahn, "Feedback stabilization of an injection-seeded Nd:YAG laser," *Appl. Opt.* **24**, 940 (1985).

佐久間 純 (非会員) 1959 年 1 月 7 日生まれ。1983 年 3 月東京大学教養学部基礎科学科卒業。同年東京芝浦電気株式会社入社。同社生産技術研究所においてレーザー装置の研究開発に従事。1991 年南カリフォルニア大学電気工学科修士課程修了。現在ウシオ電機株式会社勤務。

Andrew Finch (非会員) 1962 年英国生まれ。1984 年オックスフォード大学卒業。セントアンドリュース大学にて、1985 年 MSc、1989 年 Ph.D.取得。1990～1997 年、米国 Schwartz Electro-Optics 社勤務。1997 年より、(株)ウシオ総合技術研究所に勤務。

出来 恭一 (非会員) 1979 年同志社大学大学院工学研究科博士課程単位取得退学。工学博士(京都大学)。ガスレーザーの波長安定化、金属蒸気レーザーの研究開発に従事。日立製作所、柳本製作所を経て、現在ウシオ総合技術研究所に勤務。

北枡 直樹 (非会員) 1970 年 5 月 5 日生まれ。1995 年岩手大学大学院工学研究科修士課程電子工学科修了。同年ウシオ電機株式会社入社。現在ウシオ総合技術研究所にて固体レーザー、およびエキシマレーザーの開発に従事。

大迫 康 (非会員) 1957 年生まれ。1983 年ニューヨーク州立大学化学部卒業。1990 年ペンシルバニア大学物理化学科レーザー分光学卒。同年ウシオ電機株式会社入社。1997 年よりウシオ総合技術研究所勤務。

堀口 昌宏 (非会員) 1962 年早稲田大学第 1 理工学部電気通信学科卒、1964 年同大学理工学研究科電波工学専修修士課程卒。1967 年日本電子(株)入社。1975 年ウシオ電機(株)入社。主に電子ビーム励起 CO₂ レーザー、TEA CO₂ レーザー、レーザーマーキング装置の開発に従事。

横田 利夫 (非会員) 1949 年生まれ。1972 年明治大学電気工学科卒業。同年日本電子(株)入社。1975 年ウシオ電機(株)入社。現在ウシオ総合技術研究所に勤務。

森 勇介 (正会員) 1966 年生まれ。1989 年大阪大学工学部電気工学科卒。1991 年同大学院工学研究科博士前期課程、電気工学専攻終了。1993 年同大学工学部助手。1998 年同大学院工学研究科助手。工学博士。1996 年電気学会論文発表賞、レーザー学会進歩賞、日本結晶成長学会論文賞他多数授賞。

佐々木孝友 (正会員) 1943 年生まれ。1967 年大阪大学工学部電気工学科卒。1970 年同大学工学部助手。1978 年同大学工学部助教授。1992 年同大学工学部教授。1998 年同大学院工学研究科教授。工学博士。1996 年電気学会論文発表賞他受賞歴多数。