LBO結晶とその全固体型青色SHGレーザーへの応用

佐藤 正純, 牧尾 諭, 宮本 晃男

日立金属 (株) 磁性材料研究所 (〒360-0843 埼玉県熊谷市三ヶ尻 5200)

Application of LBO Single Crystal to All Solid State Blue SHG Laser

Masayoshi SATO, Satoshi MAKIO, and Akio MIYAMAOTO

Hitachi Metals, Ltd., Magnetic and Electronic Materials Research Laboratory, 5200 Mikajiri Kumagaya, Saitama 360-0843

(Received January 22, 1998)

Absorption band of Cr:LiSAF crystal is wide so output laser power from the crystal does not so sensitive for a wavelength change of LD used as excited source. Though non-linear constant of LBO crystal is small, its high transparency and wide tolerance for phase-matching are suitable to an intra-cavity resonator. As a result of these characters of the two crystals output stability of the blue SHG laser ICD-430 shows a level of practical use.

Key Words: All solid state laser, Blue SHG laser, LD pumped intra-cavity resonator, LiB_3O_5 crystal, Cr:LiSAF₆ crystal

1. はじめに

光産業分野では、画像の高精細化や動画像の処理のためにさらなる光記録容量の向上や高速度処理化技術が進展を見せている。半導体産業分野でも半導体プロセスの一層の高精細化を実現していくことが急務となっている。そのために取り扱いが容易で質の良い短波長レーザー光源への要求が高まっている。

3MのII-VI化合物半導体レーザー(LD)の発振が報告され¹⁾,さらには日亜化学によるIII-V化合物半導体レーザーの発表²⁾もあり,青色域におけるLDの研究・開発が世界の多くの企業や公的機関で活発化しており,実用化も時間の問題³⁾とされるに到っている。一方,アルゴンイオンレーザーやHeCdガスレーザー等,青色域に発振波長を持つ幾つかのガスレーザーは,既に工業製品として製造ラインや計測機器等に用いられてきており,小型化や光源の質の向上等,引き続き改良が加えられてきている。これに対し非線形結晶を用いて2次の高調波を取り出す全固体型SHG(Second Harmonic Generation)レーザーは,小型で効率が良く,取り扱いが容易であり,非常に近い未来に短波長域のレーザー光源を実現出来るものと期待され,研究・開発が進められてきた。現在,全固体型SHGレーザーでは,KTP(KTiOPO_4)結晶を用いた青緑域のレーザー光源が実用化され,最近では数Wクラスの質の良いレーザーを供給できる段階にある。また,青色SHGレーザー光源に関しても幾つかのメーカーから製品レベルのものが出されてきており,工業製品としての評価が進められている。さらには非線

形結晶を用いたより短波長の,紫外域の固体レーザーの研究開発も活発化している。今後,これらLD,ガスレーザー,固体レーザーは,一部で競合と代替を進めつつ,波長域,出力,光源の質,使い勝手等,各々の特徴を活かし,棲み分けの方向に行くものと思われる。

我々は工業製品としての観点から,製造が容易であり,種々の作業環境下でも安定に使用出来るような全固体型の青色域レーザーとして,LD励起LiSAF(LiSrAlF_6)レーザーにSHG結晶としてLBO(LiB_3O_5)結晶を組み合わせた構造を提案し⁴⁾¹¹⁾,実験的な検証を進めてきた。また,その製品化を米国のメレスグリオ社と共同で進め,昨年春には製品(ICD-430)として販売を開始した。ここでは特にSHG結晶に関する実験的な検証を中心として述べると共に,製品レベルでの青色SHGレーザーの特性や今後の課題についても言及する。

2. 全固体型青色SHGレーザーの構成

SHGの原理を使った短波長光源として幾つかの方式が提案され検討されてきたが,工業的な製品としての観点から問題とされてきたのは,温度環境等実際の使用条件下での出力不安定性や製品としての組立調整の困難さ等である。これらの問題を解消するために我々はLiSAF結晶とLBO結晶を組合せた内部共振方式を採用したが,以下にこれら結晶の選定理由を述べる。

Table 1 SH characters of various non-linear crystals for blue region.

	Transparency range (nm)	Absorption coefficient α (%/cm)	Nonlinear coefficient d (pm/V)	Phase matching wavelength (nm)	Temperature acceptance width (°C · cm)	Wavelength acceptance width (nm · cm)	Wavelength temperature dependence (nm/K)	Angle acceptance width (deg · cm)	Walk-off angle (deg)
KNBO ₃ ¹⁵⁾	400 ~ 5500	1.0	20.5	857 ~ 2200	0.26	0.09	0.35	3.74	~ 0
LiB ₃ O ₅ ¹⁶⁾	160 ~ 2600	< 0.1	1.02	554 ~ 2910	7.3	1.1	0.15	0.14	0.9
β -BaB ₂ O ₄ ¹⁷⁾	190 ~ 3300	~ 0.2	2.06	409 ~ 3000	1.4	0.6	0.42	0.03	3.8
K ₃ Li ₂ Nb ₅ O ₁₅ ^{18,19)}	385 ~	< 0.3	13	800 ~	0.9	-	-	-	-
CsLiB ₆ O ₁₀ ²⁰⁾	180 ~ 2750	-	0.53	472 ~	-	1.21	-	0.06	2

2.1 LiSAF結晶の特徴

LDで励起可能なレーザー結晶は開発中のも含めいくつかあるが¹²⁾、この中でCrを添加したLiSAF結晶は以下のような特徴を有している^{13,14)}。

Cr:LiSAF結晶の吸収スペクトラムは、670~680nm域にピークを持ち、その半値幅は従来から用いられてきているLD励起YAG結晶に比べると約60倍も広い。このため励起用のLDの発振波長に対する制限は緩く、また温度その他の原因によりLDの発振波長に変動が生じていてもLiSAFレーザーの発振には影響が少ないと予想された。

Cr:LiSAF結晶は本来波長可変レーザーとして開発されたものであり、このため広い発光帯域を持っている。この結晶をSHGの基本波用のレーザーとして用いる場合、水晶板の複屈折フィルタを1枚、ないしは厚さの異なる数枚を組合せ、光軸に対してブルースター角に傾けた波長板面内で回転することにより、位相整合条件に合わせた特定の波長を選択出来る⁸⁾。LiSAF結晶の波長可変性という特徴を活かすと、上記の波長制御法により、基本波の波長をある範囲で任意に設定できる。半導体レーザー励起の共振器方式では、現在830nm~900nmの範囲でCr:LiSAF結晶の基本波発振が得られており、従って415nm~450nmの範囲の青色域をカバーするレーザー光源として期待できる。Cr:LiSAF結晶の放射光効率が760nm~830nmの波長域でも高い^{13,14)}にも関わらず基本波発振が見られないが、これはCr:LiSAF結晶の吸収の裾野がこの波長域まで伸びていることによるものと考えられる。

2.2 青色域発生用各種非線形結晶の比較

次にSHG結晶の選定について述べる。SHG結晶を内部共振器型で使用する場合、特性の微妙な差が製品となるレーザーの特性に強く影響するため、単に非線形性の大小を比較するだけでは選定することができず、結晶の種々の特性を考慮する必要がある。さらに工業的観点から見ると結晶育成の容易さや化学的機械的安定性も重要な特性となる。Table 1に青色レーザーを発生できる各種SHG結晶の性能・特徴を示す¹⁵⁻²¹⁾。

KN(KNbO₃)結晶は大きな非線形光学定数を有しており、高いSHG変換効率が得られると期待され入手も容易であり、現在、最もよく用いられている。欠点としては、結晶の吸収損失が大きい、SHG位相整合に対する許容幅が狭い、複雑な分極反転構造を有し、かつ分域形成が容易であるため単分域結晶が得にくいといった点がある。

光学特性の面でこのKN結晶の対極に位置するのがLBO

結晶である。KN結晶の長所である非線形性は小さいが、KN結晶の短所である許容幅は広く、吸収損失は小さい。つまりこれらの結晶は長短所が入れ替わっており、どちらの結晶を使用するかでそのレーザーの特性が大きく変わってくる。育成はフラックス法により比較的容易に行え、当社でもFig.1に示すような3-4cm程度の良質な単結晶を得ることに成功している²²⁾。

BBO(β -BaB₂O₄)結晶やKLN(KaLi₂Nb₅O₁₅)結晶は非線形性、許容幅、吸収損失の点から見てKN結晶とLBO結晶の中間の特性を持つ結晶である。しかしBBO結晶はウォークオフ角が大きすぎるため内部共振方式に適さないと考えられる。KLN結晶は結晶育成が困難で良質な結晶が得られないという問題点²³⁾を有しており、さらに位相整合特性に関しても不明の点が多く、現状ではこの結晶を青色SHG素子に採用しがたい。

CLBO(CsLiB₆O₁₀)結晶は高効率紫外光発生用結晶として脚光を浴びている結晶である²⁴⁾。この結晶は育成が容易なために工業的観点から見ると有望な結晶と考えられるが、青色域では非線形性が小さく、変換効率を上げるために長尺結晶を使用する必要がある。また結晶表面が大気中の水分子と反応し結晶内屈折率分布を時間と共に変化させるという問題²⁵⁾もある。これらの理由から、CLBO結晶も青色SHG素子に適した結晶であるとは言いがたい。

なお、ボレート系の結晶では一般に吸湿性があるとされており、工業的な観点から大きな問題と考えられる。我々の実験では吸湿性はCLBO、BBO、LBO結晶の順になっており、また結晶の表面状態に大きく依存することが明らかにされた。

Fig.1 (110) side view of grown LBO single crystal.

Fig.2 Effects of inserted KN and LBO crystals to an output power of LiSAF laser. (a) Output power of LiSAF laser depends on a length of KN crystal. (b) Output power of LiSAF laser does not so depend on a length of LBO crystal.

上記の理由から我々はKN結晶とLBO結晶に着目し、それぞれのSHGレーザー特性について調べた。

2.3 KN結晶とLBO結晶の実験的な検討

Cr:LiSAF結晶を用いた内部共振器型青色SHGレーザーにKN結晶およびLBO結晶を実際に組み込み、その発振特性について調べた。本実験ではCr添加量1.5%、長さ5mmのCr:LiSAF結晶を用いた。またKN結晶は非線形性が大きいいため長さ3mmと5mmのものを、LBO結晶は非線形性が小さいため5mmと10mmのものを使用した。

KN結晶、LBO結晶の光学的損失が基本波の発振特性にどの程度影響を与えるかを調べるために、各結晶を挿入した時のCr:LiSAFレーザーの基本波の発振特性について調べた。得られた結果をそれぞれFig.2 (a), (b)に示す。比較のために非線形結晶を挿入していない時の発振特性も示す。レーザー共振器の内部損失がその出力値に強く影響することから、KN結晶を挿入した時に出力が低くなっているのは、KN結晶に施したコーティングの損失によるものと考えられる。また、KN結晶では、3mmと5mmの場合でその出力特性が大きく異なっていることがわかる。各KN素子は同じコーティングを施してあることから、この差はKN結晶の吸収係数が大きいことに起因したものと考えられる。一方、LBO結晶の場合、コーティングの損失によると見られる出力低下は見られるが、結晶の長さには依存して

いない。この結果はLBO結晶には吸収がほとんどないことを示唆している。

次に各結晶を共振器に挿入したときのSHG特性について述べる。KN結晶を用いた測定では3mm長さのサンプルについてのみを行い、各複屈折フィルタ(1T=0.51342mm厚(発振波長幅1nm)および1T+2T(発振波長幅0.4nm):2T=1.02684mm厚)を挿入した時の発振特性について調べた。Fig.3 (a)に測定結果を示す。使用する複屈折フィルタによりその発振特性が大きく異なることがわかる。また、いずれの場合も発生したSH出力は不安定であり、励起光強度や基本光強度が一定であってもSH強度は不安定で時間と共に変化し続けた。この現象は、KN結晶の位相整合温度・波長許容幅が上述したKN結晶の光学吸収による結晶温度変動、およびそれに起因した波長変動に比べて狭すぎるために生じたものと考えられる。このSH強度の不安定性を改善するにはさらに複屈折フィルタを加え、発振波長幅を狭くする必要があるが、予備実験の結果ではこれ以上のフィルタの追加は極端に基本波強度を低下させることが分かっており⁸⁾、また組立・調整が一層困難になる。さらにこれに加え、精度の高い結晶の温度制御も安定発振のためには必要になる。これらの理由により、KN結晶を使うことは工業製品として好ましくないと考えられた。

LBO結晶を用いた測定結果をFig.3 (b)に示す。複屈折フィルタはKN結晶の場合と異なり、1Tだけ(発振波長幅

Fig.3 SH character of the blue SHG laser. (a) SH character for using KN crystal. (b) SH character for using LBO crystal.

1nm)でSH出力を十分安定に制御することができた。これはLBO結晶の小さな吸収係数、および広い温度・波長許容幅に起因した結果であると考えられる。図中の実線はフィッティング曲線(基本波の自乗曲線)を示す。長さ5mmの結晶に対する出力曲線が実線に乗っているのに対し、10mmの結晶の場合、0.7mW以上の出力で実線から外れている。これは結晶長が10mmとなることで共振ビームの広がりが無視できなくなったことや角度許容幅が狭くなったことによる位相不整合成分の増加等が原因と考えられる。

3. 全固体型青色 SHG レーザー光源 ICD-430 の基本構造と主な特性

3.1 基本構造

Fig.4にLiSAF結晶とLBO結晶を組み合わせた青色SHGレーザーICD-430の基本構造を示す。実際の製品設計においては、使用している狭ストライプ幅のLDとLiSAF結晶との安価で効率の良い結合のために集光系に2ヶのアナモルフィックプリズムを組み、SHG変換効率を高めるためにビームウェストがLBO結晶の位置になるようにし、また共振器長を短くすることでビームウェスト径を小さくする等を行い基本波のエネルギー密度を高くしている。

吸収幅の広いLiSAF結晶と位相整合許容幅の広いLBO結晶を組み合わせた本方式は、安定な出力が得られるという本質的な特長を有するが、製品としてのICD-430では工業製品という観点から、安定製造と安定使用のために共振器をモノリシック化し、共振器その他の熱容量の低減を図る等の設計的な工夫をしてある。また、種々の作業環境下で

Fig.4 An outline of all solid state blue SHG laser ICD-430.

Fig.5 SH out put power of ICD-430.

の使用を可能にするため2ヶのペルチェ素子による精密温度制御、防塵対策等が施されている。さらに長時間に渡る使用下においても安定な出力が得られるようにフィードバック機能(APC機能)を付加している。

3.2 ICD-430の主な仕様

Fig.5に定格出力500mWの励起用LDを用いたときのSH出力特性を示す。430nmの青色域で10mW以上の出力を容易に得ることが出来る。Fig.6とFig.7にSH出力の長時間安定性とノイズスペクトラムを示す。APC機能の付加により、SH出力値の長時間に渡る変動は $\pm 0.7\%$ 以下になっており、安定性の高いレーザー光源になっている。一方、2MHz以下の領域には、縦モード間の競合による高周波ノイズ成分が見られる¹⁾。

Table 2に、現在製品として発表しているICD-430の主な仕様をまとめる。この表に示した特性からも判るように、ICD-430は波長 $\sim 430\text{nm}$ 、出力10mW以上のレーザー光を簡便に取り出す事が可能な光源であり、出力安定性、取り扱い易さ、低ランニングコスト等の点で全固体レーザーの特色を活かした製品となっており、R&Dへの適用やいくつかの工業製品での搭載試験が進みつつある。

4. 今後の課題

当青色SHGレーザー光源の産業分野、工業製品としてのさらなる広範な適用のためには、高周波ノイズの低減、高出力化、波長範囲の拡大、小型化、低価格化等が課題である。高周波ノイズは縦モード間のモード競合によるもので

Fig.6 Long time stability of SH out put power for ICD-430.

Fig.7 A spectrum of SH out put for ICD-430.

Table 2 Fundamental specifications for ICD-430.

Wavelength	430 nm (415 nm-450 nm selective)	Polarization ratio	990 : 1
SH out put power	> 10 mW	SH beam quality	> 99.85 %
Wavelength width	~ 0.12 nm	Cooling	air cool
Out put stability	< 1 %p-p	Head size	70 × 70 × 150 mm (0.7 t)
High frequency noise	4-5 %rms	Supplier size	200 × 80 × 250 mm (4 t)
Beam diameter	~ 0.2mm ϕ	Warm up time	about 1 min.
Longitudinal mode	TEM ₀₀	Consumption power	< 100 W/100 V
Transverse mode	multi-modes	Life time	5000-10000 h (expectation value from LD life time)

あるため、シングルモードにすることにより低ノイズ化が可能である^{11,12)}。一方、我々は、特定のモード状態に固定することにより、マルチモード状態でも良好な低ノイズが得られることを見出しており、この現象を利用した低ノイズ青色SHGレーザーの製品化の検討を行っている。このマルチモード状態でもモード競合が起こらないことは物理現象としても大変興味のもたれるところであり、原理解明を進めているところである。

高出力化に関しては、1W出力の励起用LDを用いた予備実験で、70mW程度のSH出力値を得ているが^{10,11)}、励起系の改良や複数個のLDと結合させる等の工夫により、さらなる高出力化も可能になると期待している。波長範囲は、先述のように415~450nmの間で可能と考えられるが、LiSAF結晶の発光強度のスペクトラムより、430nmから離れた波長ほど出力値が得にくくなると予想される。小型化に関しては、励起LDのストライプ幅が $1\mu\text{m} \times 250\mu\text{m}$ であるため集光系がICD-430のヘッド体積の半分以上を占めており、コンパクトな集光系の採用により、大幅な改善が出来ると考えている。

5. まとめ

LiSAF結晶とLBO結晶の組み合わせにより、全固体レーザーとして期待される特長を持った実用レベルの青色域のSHGレーザー光源を実現できた。また、内部共振方式に共通の問題とされているモード間競合による高周波ノイズを抑え、ノイズレベルを1%rms以下に出来る可能性が見えてきた。さらに、100mW程度の高出力も手の届くところに来ている。今後、今回製品として発表したICD-430に、これらの機能を付加し、製品の幅を広げていくことにより、R&Dにおける使用や各種工業製品への搭載評価が進み、青色SHGレーザーに対しても緑色SHGレーザーと同様に工業製品としての認知が進むとともに、従来無かった波長域をカバーするレーザーとして、医療・バイオ分野等での新しい応用展開があるものと期待している。

謝 辞

CLBO結晶の育成・評価に際しては大阪大学の佐々木孝友教授と森 勇介博士に種々ご教授頂いた。LBO結晶の育成・評価は現MIMC ELECTRONIC MATERIALS INC.のDr. Steven A. Markgrafと現科学技術庁無機材質研究所の

古川 保典博士によるものである。また、LiSAF結晶のSHG応用に際しては京都大学工学部の宮崎 健創教授に、高周波ノイズに関しては電総研の土田 英実博士に多くの貴重なご意見とご議論を頂いた。これらの方々に感謝いたします。

参考文献

- 1) M. A. Haasem, J. Qui, J. M. DePuydt, and H. Chang: Appl. Phys. Lett. **59** (1991) 1272.
- 2) S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh: Appl. Phys. Lett. **64** (1994) 1687.
- 3) 日亜化学：日経 10月30日号 (1997).
- 4) 宮井 剛, 牧尾 諭, 古川 保典, 佐藤 正純：第42回応用物理関係連合講演会 28pZQ-10/III (1995).
- 5) T. Miyai, S. Makio, Y. Furukawa, and M. Sato: Proc. of CLEO/Pacific Rim. ThA3 (1995) p110.
- 6) 牧尾 諭, 安藤 哲生, 宮井 剛, 牧尾 諭, 古川 保典, 佐藤 正純, 宮崎 健創：第43回応用物理関係連合講演会 28aA-2/III (1996).
- 7) 牧尾 諭, 安藤 哲生, 佐藤 正純, 宮崎 健創：MICROOPTICS NEWS **14** (3) (1996) 65.
- 8) 佐藤 正純, 牧尾 諭, 宮井 剛, 安藤 哲生, 宮崎 健創：OPTRONICS No. 5 (1996) 165.
- 9) 佐藤 正純：レーザー学会学術講演会第17回年次大会.
- 10) 佐藤 正純, 安藤 哲生, 牧尾 諭, 宮井 剛, 宮崎 健創：OPTRONICS No. 4 (1997) 120.
- 11) 佐藤 正純, 牧尾 諭, 安藤 哲生：O plus E No. 5 (1997) 118.
- 12) 社団法人日本オプトメカトロニクス協会：平成7年度先端研究報告書「フォトンテクノロジー」(レーザープロセス技術) (1996) p.175.
- 13) S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith, W. L. Kway, and H. W. Newkirk: J. Appl. Phys. **66** (1989) 1051.
- 14) S. A. Payne, L. L. Chase, and G. D. Wilke: J. Luminesc. **44** (1989) 167.
- 15) 浅海 勝征：OPTRONICS No.6 (1993) 165.
- 16) 浅海 勝征, 笠原 一郎：OPTRONICS No.12 (1992) 180.
- 17) 浅海 勝征, 田中 佑一, 古城 健司：OPTRONICS No.1 (1994) 136.
- 18) J. J. E. Eeid, M. Ouwerkerk, and L. J. A. M. Beckers, Philips.: J. Res. **46** (1992) 199.
- 19) M. Adachi, K. Miyashita, and Z. Chen: Proc. International Symposium on Laser and Nonlinear Optical Materials 1997, 3-5 Nov, Singapore, 196.
- 20) T. Sasaki, I. Kuroda, S. Nakajima, K. Yamaguchi, S. Watanabe, Y. Mori, and S. Nakai: Proc. of Advanced Solid-State Lasers Conference, Memphis, Tennessee, Jan. 30-Feb. 2, 1995 (Paper WD3).
- 21) Y. K. Yap, M. Inagaki, S. Nakajima, Y. Mori, and T. Sasaki: Optics Lett. **21** (1996) 341.
- 22) S. A. Markgraf, Y. Furukawa, and M. Sato: J. Crystal Growth **140** (1994) 343.
- 23) T. Fukuda, Y. Uematsu, and T. Ito: J. Crystal Growth **24/25** (1974) 450.
- 24) Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki, and S. Nakai: J. Crystal Growth **156** (1995) 307.
- 25) A. Taguchi, A. Miyamoto, Y. Mori, S. Haramura, T. Inoue, K. Nishijima, Y. Kagebayashi, H. Sakai, Y. K. Yap, and T. Sasaki: OSA TOPS Vol. 10 Advanced Solid State Lasers (1997) 19.