連続発振アルゴンイオンレーザーの共振器内周波数通倍

平 洋一, 末岡 邦昭

日本アイ・ビー・エム(株) 東京基礎研究所 (〒242-8502 神奈川県大和市下鶴間1623-14)

Intra-Cavity Frequency Doubling of CW Argon Ion Lasers

Yoichi TAIRA and Kuniaki SUEOKA

IBM Research, Tokoyo Research Laboratory, 1623-14 Shimotsuruma, Yamato, Kanagawa 242-8502

(Received May 17, 1999)

Over one-watt continuous coherent light in a quarter micrometer wavelength region is obtained by the frequency doubling of ion lasers and solid state lasers. It is shown experimentally as well as theoretically that more than a half of the fundamental output of the source laser is converted to the UV light when the intracavity loss is sufficiently low. The applications of such UV light are also discussed.

Key Words: Frequency doubling, CW ion laser, SHG, BBO, CLBO

1. はじめに

非線型光学効果を用いたレーザーの波長変換は直接発振が得にくい領域でのコヒーレント光を得るのに有効である。このような領域のひとつとして連続な紫外光領域があるが、これは微細加工や、ポリマー加工そのほか、多くの興味ある応用が広がっている分野でもあり、特別な特徴を有する紫外光源があればそれに対応する応用分野が開けてくることが期待される。

一般に非線型光学効果による波長変換の変換効率はいわめて小さい¹⁾。最も効果の大きい2次の非線型光学効果である2倍波の発生においても、飽和を無視すれば、出力パワーは入射光パワーの2乗に、変換効率は1乗に比例するので、効率を上げるには入射光のピークパワーを上げる必要がある²⁾。しかし連続光ではパルス光と異なり、平均パワーがピークパワーに等しいので、高い変換効率を得るには、共振器内通倍技術を用いることが必要になる。

可視光の通倍としてはじめの頃は冷却したKDPやADPの結晶を用いたレーザー共振器内通倍が用いられたが、結晶の温度安定性や光吸収などのため、得られる2倍波パワーには限界があった³⁾。その後、新しいBBO⁴⁾など低損失で光強度に強い新世代結晶が試みられたが、基本波出力が数W級のアルゴンイオンレーザーを用いても⁵⁾、1Wを超えることは簡単ではなかった。そこで、共振器内通倍において高出力を得る条件について改めて考察し、実験を行なった結果を、以下に述べる。

2. 共振器内波長変換モデル

一般に、有限のビーム径のレーザー光を用いて非線型光学結晶によって2倍波の発生を行なうとき、光が理想的なコヒーレント光であり、結晶の光強度による損傷が無視できるなら、最適な集光条件が結晶の大きさによって決められる。このとき得られる最大の変換効率は結晶の性質だけで決まり、結晶の大きさにはよらず、一定である⁶⁾。実際、連続可視光の倍波を発生させると倍波のパワーを P_{sh} 基本波パワーを P とすると

$$P_{sh} = \eta P^2 \quad (1)$$

の関係があるが、ここで、可視光を基本波とするときの波長変換係数 η の値は結晶への基本波の集光条件や光のコヒーレンスによって異なるが、最善の場合でも、角度位相整合のBBO結晶等の場合 $10^{-4}W^{-1}$ 、より非線型効果の大きなKTP結晶等の場合 $10^{-3}W^{-1}$ 程度である⁷⁾。したがって、高効率の結晶の場合でも1kW以上の入射光を用いなければ、1に近い十分な変換効率は得られないことになる²⁾。しかし、連続光の場合には、共振器によって、波長変換素子内の光パワーを上げることができる。つまり、スペクトル幅が狭いという特徴を生かせば、基本波のパワーを共振器内に閉じ込めて K 倍のパワーにして共振器内で2倍波を発生させれば、出力および変換効率は K^2 倍となり、高い変換効率が可能である¹⁾。

Fig.1のように共振器内に連続な基本波を導き入れれば、おおよそ共振器の共振帯域幅と同等までの周波数幅のレーザー光を共振器に閉じこめることができる。したがって、連続レーザー光の波長変換では、共振器を用いる

Fig.1 Frequency doubling using an external ring resonator. P_{in} , P_1 , P_2 , P_3 and P_{sh} are: fundamental input power, power before SHG crystal, power before the coupling mirror, and output SHG power, respectively.

ことによって基本波の単位周波数帯域あたりのパワー、つまり輝度が大きいという特徴を生かした高効率の波長変換が実現できることとなる。共振器として、レーザーの外に置いた外部共振器を用いる場合と、レーザーの共振器そのものを用いる場合とがある。外部共振器に光を閉じ込めるには、外部共振器とレーザー光の周波数のマッチングをとらなければならない。このためには、2つの周波数の同調状態を検出する方法と、レーザーあるいは外部共振器の周波数を同調する機構が必要になる。また、レーザー光を共振器にカップルさせ、十分にレーザーパワーが共振器に導き入れられるようにするには、レーザー光と外部共振器の横モードもマッチングさせなければならない。このための技術として、周波数同調の検出法や、横モードのマッチング法についての進展もあるが、詳しくは別の機会に述べたい。一方、レーザー共振器内での波長変換では、レーザーの発振状態が共振している状態であり、可視のレーザーでは、共振器長を調整して周波数を合わせなくても発振状態になる。しかしながら、レーザー増幅器内でのモード体積を最適化し、かつ波長変換素子内のビーム径や集光条件を適切にするための共振器設計は、レーザー共振器内での波長変換においても重要である。

さてFig.1のような配置の外部共振器に基本波のレーザー光を導き入れる場合について簡単なモデルを作ってみる。レーザーの基本波パワー P_{in} を基本波のパワー反射率 R 、透過率 T の1つの入射鏡と、基本波を全反射し、2倍波を100%透過する3つの鏡を用いて共振器を構成して基本波を閉じ込めることとする。共振器長は入射光の周波数に完全に同調しており、横モードも完全に一致していると仮定する。このとき、入射鏡の前後での共振器内の基本波および入射鏡で反射される入射光のパワーをそれぞれ P_2 , P_1 , P_3 , それぞれの電場の振幅を E_2 , E_1 , E_3 , また入射光の振幅を E_{in} と表すとすれば、入射鏡の振幅反射率 r ($r^2 = R$) および振幅透過率 t ($t^2 = T$) を用いて、電場の振幅の間に次の関係が得られる。

$$E_1 = rE_2 + tE_{in} \quad (2)$$

$$E_3 = -rE_{in} + tE_2 \quad (3)$$

これから、基本波パワーの入射鏡の前後での増分 $\Delta P = P_1 - P_2$ は、 $P = P_1 \cong P_2$ を用いて

$$\Delta P = -(1-R)P + 2\sqrt{RT}\sqrt{P_{in}}\sqrt{P} + TP_{in} \quad (4)$$

となる。

さらに基本波が共振器内を一周するときの吸収・散乱・反射による損失の割合を A とすると、2倍波に変換されるパワー P_{sh} は、共振器一周したときの基本波パワーが保存する条件 $\Delta P = AP + P_{sh}$ から

$$P_{sh} = 2\sqrt{RT}\sqrt{P_{in}}\sqrt{P} - (1-R+A)P + TP_{in} \quad (5)$$

と求められる。この解は式(1), (5)を P_{sh} を P の関数として2つのグラフを描いたときの交点として求められる。Fig.2に $P_{in} = 1\text{W}$, $R = 0.99$, $T = 0.01$ としたときのグラフをいくつかの A の値について示す。これから、共振器の入射鏡反射率の設定が適切で、共振器の基本波の損失が十分少なければ十分高い効率での変換が可能であることがわかる。なお、式(3)の値をゼロとおけば、入射レーザー光がすべて共振器に入る条件、

$$RP_{in} = TP \quad (6)$$

が求まる。このような外部共振器を用いる場合、いかに入射光の周波数と横モードを共振器のそれと一致させるかが課題となり、共振器長の制御、横モードの同調について多くの興味ある成果が得られているが、これらについては別の機会に述べる。

連続発振のレーザー共振器内での波長変換についてFig.3のようなモデルを用いて考える。簡単のため、発振モードはひとつの軸モードだけとする。すると、共振器を一周するときの基本波パワーの増分は、増幅媒質による増幅から、2倍波発生によるパワー変換および線形の損失を引いたものになる。増幅によるパワーの増加は、増幅定数 G および、飽和出力パワー S を用いて $GSP/(S+P)$ と表される。一方、一周したときの吸収・散乱・反射による線形損失の割合を A とおけば、定常状態での基本波パワーは変わらないことから

$$P_{sh} = \frac{GSP}{S+P} - AP \quad (7)$$

Fig.2 Determination of the operating condition of SHG using an external resonator. The operating point is obtained as the intersection of parabolic SHG output and the extractable power curve from Eq. (5).

Fig.3 Model of intracavity doubling of CW laser.

ここで通常のイオンレーザーのような往復型の共振器では基本波は一往復につき非線型結晶を2度通るので、取り出される2倍波パワー P_{sh} は2倍になり、

$$P_{sh} = 2\eta P^2 \quad (8)$$

となる。この式(7)、(8)の解は先ほどと同様、Fig.4に示すように P_{sh} を P の関数として式(7)、(8)のグラフを描き、その交点を求めることによって得られる。Fig.4は $S = 100W$, $G = 0.2$ の場合を示す。Fig.4において一点鎖線で示した直線は、非線型結晶の代わりに内部パワーの5%を取り出せるような出力鏡を置いた場合をあらわし、通常の基本波出力はこの直線と式(7)の交点が動作点となる。したがって、2倍波変換係数の値が適切で、非線型光学結晶および光学系の追加による線形損失が同じならば、原理的には共振器内通倍の出力は、基本波出力と同じになる。共振器内通倍ではこの2つの出力の比を便宜的に実効効率と呼ぶことがある。BBO結晶によるアルゴンイオンレーザー共振器内での2倍波発生によって、1Wを超える十分なパワーを得るには、線形損失を減らして、共振器内パワーが100Wを超えるようにする必要があることがわかる。なお、式(7)、(8)の解析解は、

$$P = -\frac{A}{4\eta} - \frac{S}{2} + \frac{1}{4\eta} \sqrt{8G\eta S + (A - 2\eta S)^2} \quad (9)$$

となる。また、2倍波パワーを最大にする最適な非線型係数の条件は

$$\eta = \frac{A}{2S} \quad (10)$$

Fig.4 Determination of the operating condition of an intracavity doubled laser. The operating point is obtained as the intersection of parabolic SHG output and the extractable power curve from Eq. (9).

であり、この時の共振器内パワーおよび2倍波出力パワーは次のように得られる。

$$P = S(\sqrt{G/A} - 1), \quad P_{sh} = S(\sqrt{G} - \sqrt{A})^2 \quad (11)$$

G はレーザー媒質の構造と励起条件によって一義的に決まるが、 S はレーザー媒質内のモード体積にほぼ比例するので、非線型結晶を含むレーザー共振器は、非線型結晶内での基本波のビーム形状を最適にしてかつレーザー媒質のモード体積を十分取れるように設計する必要がある。実はFig.6のような配置は、2つの凹面鏡の距離を適切に調整することによって、この条件を満たすことができる。

3. イオンレーザーの共振器内周波数通倍

共振器内通倍では基本波のパワーの増大には共振器内素子による光損失を減らすことが重要である。このようなレーザー共振器内通倍および、外部共振器内通倍は、簡単なモデルで特性を表現でき、装置を設計することができる。実際、BBO, LBO, CLBOといった結晶の基本波損失は非常に少なく、損失源としては、誘電体ミラーの散乱・吸収と、結晶表面の反射損失、そしてレーザー媒質内の吸収が主なものとなる。損失1万分の1以下という誘電体鏡も利用可能であるので、共振器内での光学部品の低損失化が高効率のための重要な条件となる⁸⁾。

これまでに、Fig.5の配置の実験ではBBOを用いた大型のアルゴンイオンレーザーの共振器内通倍によって、257nmでの単一ビーム出力3W(両方向で6W)が得られている。このレーザーは基本波の出力として10Wを出すことができるので、実効効率として60%が得られたことになる。また同じ装置を用いた実験において、244nmで一方向で1.2W、両方向の和で2.4Wが得られている。Fig.6は長さ6.5mmのBBOによって257nmで一方向3Wの出力を得た実験結果であり⁹⁾、両方向に出る紫外光パワーの和を縦軸にとってある。CLBOではFig.7に示すようにBBOの約1.4倍の変換効率が得られた¹⁰⁾。なおBBOの場合受容角が小さいため、楕円形の周りに周期的な細かい縞状のリップルに乗った断面形状を持った出力光となる。Fig.8に示すような円筒鏡を用いた共振器を用いることで断面形状を円形に近づけることが可能であり、光学系の複雑化に伴う損失の増大などが高出力化の課題であるが、一方向あたり1.1Wのガウス型のビーム形状の257nm出力が得られている⁹⁾。

このような高効率の共振器内波長変換において、実用時の問題は紫外出力の時間的な低下である。実際、現在数100mWまでの257nmのBBOを用いた紫外出力の装置では、

Fig.5 Experimental setup for an intracavity doubling of an argon ion laser.

Fig.6 Experimental result of an intracavity doubling of an argon ion laser. Maximum SHG output at 257 nm of 6 W was recorded by using a BBO crystal as the SHG crystal.

Fig.7 Comparison of the intracavity doubling outputs by BBO and CLBO.

Fig.8 Experimental setup of an intracavity doubling of an argon ion laser using elliptical focusing.

毎日5時間運転しても、1年以上の期間にわたって紫外光が得られるが、1W以上の動作では出力パワーが1日単位で低下する。なお、結晶内の損失が十分小さく、劣化が光強度による場合、結晶を大きくすれば、寿命を延ばすことは原理的には可能である。たとえば、ある結晶でのビーム径が w であるとする、結晶の大きさを a 倍したときの同じ変換条件を与えるビーム径は aw となる。そこで高品質の大きな結晶を作ることができれば、結晶内の基本波強度を十分に下げることが可能となる。発生した紫外光吸収による劣化も同様に減らすことができるので、大出力を長時間安定に出すためには大型の良質の結晶が鍵になる。

BBOは高強度の基本波で劣化することもあったが、この点は最近著しく改良された。より問題なのは紫外光の吸収による劣化である。結晶の劣化が紫外光の吸収による

温度上昇で起こるのか、あるいは電子励起状態を経て結晶内にカラーセンター等ができるのかは定かではないが、結晶の製造元や製造時期にこの劣化特性が大きく依存し、非常に劣化の少ないものもある。したがって、より高度な不純物制御、あるいは新しい結晶材料の開発によって劣化特性が改善されることを期待している。これまでのところCLBO結晶ではこの紫外光による影響が顕著であり、257nmにおいても安定な出力を得るにはFig.9のような結晶の振動装置を用いて約2秒周期で、結晶を光軸と垂直方向に振動させることが必要であった¹⁰⁾。またある特定のBBO結晶を用いたアルゴンレーザーの通倍装置において窒素パージによって紫外出力が数時間で低下する現象を確認した。窒素パージをせず通常の空気中では、このような現象は起こらず、BBO結晶表面から酸素がなくなることが原因との指摘もあるが¹¹⁾、結論を出すにはまだ研究が必要である。

4. 紫外光の応用

連続でコヒーレントな紫外光源は、指向性が高く、また偏光度の高い光源であり、周波数幅をせばめることも容易である。この特徴を応用して、フォトリソグラフィ、顕微鏡による微細構造の観察、材料の表面改質たとえば液晶の配向膜の加工^{12,13)}、ホログラム作成、ファイバ内や平面状の回折格子作成、3次元リソグラフィとも呼ばれる光硬化樹脂を用いた3次元形状の形成などへの利用が行われている。パルスのフォトリソグラフィではスペックルを平均化するため拡散条件を変えて多数ショットの露光が行なわれるが、連続光では、より簡単にスペックルが平均化できる。いずれにしても、広範な応用のためにはさらに結晶の寿命を上げ、装置としての信頼性を上げることが重要であると思われる。

5. まとめ

イオンレーザーや連続発振固体レーザーの共振器を用いた周波数通倍によって、1W以上の連続な0.25μm領域の波長のコヒーレント光を得られる。共振器内は周波数通

Fig.9 Mechanism to continuously vibrate the crystal position.

倍では、共振器内の基本波の損失を十分に減らすことによって、基本波の50%を超える出力を得ることが、解析的に求められ、実験的にも示された。この深紫外域の光源は微細加工など多くの応用分野があるが、装置としての寿命や信頼性の向上がさらに必要とされる。

謝 辞

この研究の一部は新エネルギー産業技術開発機構(NEDO)より委託を受けた事業として実施した。関係各位のご協力に感謝する。

参考文献

- 1) D. Hon: in *Laser Handbook Vol. 3 ed. M. L. Stitch*, (North-Holland, Amsterdam, 1986) p.421.
- 2) D. Eimerl, L. Davis, S. Velsko, E. K. Graham, and A. Zalkin: J. Appl. Phys. **62** (1987) 1968.
- 3) P. Huber: Opt. Commun. **15** (1975) 196.
- 4) K. Kato: IEEE J. Quantum Electron. **QE-22** (1986) 1013.
- 5) H. Souma, T. Sato, T. Nishimata, and I. Shindo: *Tech. Digest of 16th Int. Conf. Quantum Electron., Tokyo, 1988*, PD-7 (Japan Soc. Appl. Phys., Tokyo, 1988) p.19.
- 6) G. D. Boyd and D. A. Kleinman: J. Appl. Phys. **39** (1968) 3597.
- 7) Y. Taira: Jpn. J. Appl. Phys. **31** (1992) L682.
- 8) 伊沢孝男, 山村史彦, 内村龍三, 葉王輝雄: 応用物理 **62** (1993) 911.
- 9) Y. Taira: *Proc. CLEO, Baltimore, 1993* (OSA, Washington DC., 1993) p.634.
- 10) Y. Taira, K. Sueoka, Y. Mori, and T. Sasaki: *Technical Digest of OSA Annual Meeting, Long Beach, 1997* (OSA, Washington DC., 1997).
- 11) R. Wallenstein: private communication (1992).
- 12) M. Hasegawa and Y. Taira: *Proc. Int. Display Research Conference, Monterey 1994* (SID, New York, 1994) p.213.
- 13) F. Yamada, A. Nishikai, and Y. Taira: *Digest of Tech. Papers SID Int. Symposium Vol. XXVIII, Boston, 1997* (SID, New York, 1997) p.715.

レーザーワード

ベータホウ酸バリウム ($\beta\text{BaB}_2\text{O}_4$) 結晶 (BBO crystal)

1軸性の非線型および電気光学結晶として、中国のC. Chenらによって1980年代に発表された。200nmまで透明で、タイプ1のSHGで約200nmまでの紫外光を発生可能。基本波および二倍波の吸収が極めて少なく、レーザー光強度に対する耐性が高く、屈折率の温度変化が少なく、位相整合範囲が大きいという特長を持ち、レーザーによる紫外光発生に一大革命をもたらした。LBO, CLBO等のさきがけともいえる結晶である。現在中国で大量に製造されており、SHG,

およびQスイッチ等に使用されている。結晶の対称性のため90度位相整合では有効な非線型光学定数がゼロになる。位相整合範囲が広いので結晶への入射角変化には敏感であるが、温度安定性が高く、通常のSHGでは温度制御は必要ない。若干の潮解性があるが、表面にARコートを施し、低湿度の環境であれば、特別の窓付きの容器なしで利用できる。
(平 洋一)