

ホウ酸系非線形光学結晶の高品質・大型化

森 勇介

大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻

背景

非線形光学結晶 $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ (CLBO) は深紫外コヒーレント光の発生特性に優れ、半導体フォトマスクやウェハの検査光源に広く利用されている。近年、ガラス複合基板や炭素繊維強化プラスチックなど難加工性材料の微細加工に対して高出力深紫外レーザーが必要となっており、ピコ秒パルス赤外光源を基本波に用いた深紫外光源開発を産学連携体制で進めている。今年度は平均出力 10W の波長 266nm 深紫外光を発生させ、5000 時間以上の長期安定動作を報告したが[1]、更なる高出力化に向けてビーム径の拡大によるレーザー損傷の回避が不可欠な状況となっている。そこで、本研究では大口径素子の供給を可能にする高品質・大型 CLBO 結晶の開発に取り組んだ。また、出力の増大に伴って CLBO 素子内で紫外光吸収に起因する温度勾配が形成され、熱位相不整合による変換効率の飽和、出力の立ち上がり遅延などが課題となっている[2]。本研究では深紫外ピコ秒パルス発生時に CLBO で生じる熱位相不整合の影響を明らかにし、開発を進めている高品質結晶の評価指標とすることにも取り組んだ。

実験・結果

CLBO は結晶を引き上げない TSSG 法 (Kyropoulos 法) を用いて、セルフフラックス溶液から成長させている。従来は Fig.1 に示すような固定式攪拌翼と坩堝回転を組み合わせた攪拌方法により高粘性溶液から高品質な結晶が得られることを報告してきたが、直径 150mm の坩堝から得られる結晶は低重量 (300 g 以下) のものに限られていた。流動解析の結果から、水平方向への成長が優先される対流環境が原因であることが分かり、鉛直方向の対流を強化する攪拌翼を導入したところ、昨年度は鉛直方向の成長が促進され、重量 621g の大型バルク結晶が得られた。今年度は装置に直径 200mm の大型坩堝を導入し、更なる結晶の大型化に取り組んだ。育成溶液はフラックス組成比 $\text{Cs}:\text{Li}:\text{B} = 1.2:0.8:6.25$ となる Li-poor 組成原料を採用した。Li-poor 組成の優位性については、今年度 Applied Physics Express 誌にて、レーザー科学研究所の共同研究者らとの論文成果発表を行っている[3]。

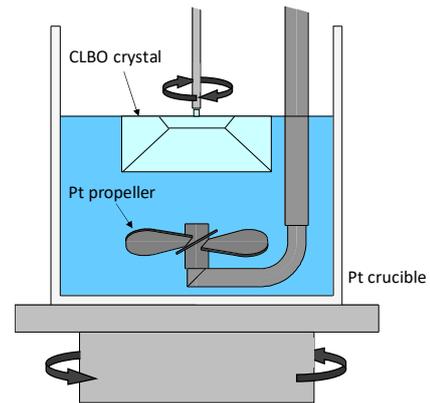


Fig.1 従来の CLBO 結晶育成法の様子

Fig.2 に示す成長履歴で 23 日間の結晶成長を行ったところ、Fig.3 の大きさ $a \times a \times c = 161\text{mm} \times 90\text{mm} \times 65\text{mm}$ 、重量 1020g の大型単結晶の育成に成功した。水平方向 (a 軸両側分) の平均成長速度は 7.2mm/day であった。結晶内部にはマクロ、ミクロな欠陥が少

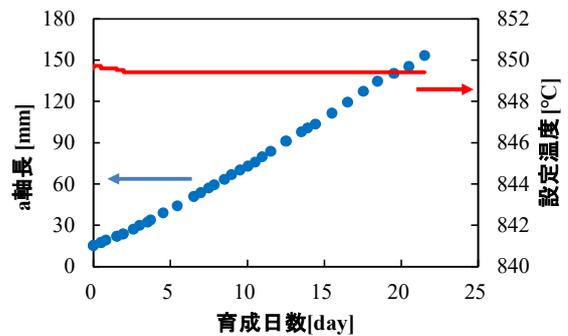


Fig.2 大型 CLBO 結晶の育成履歴

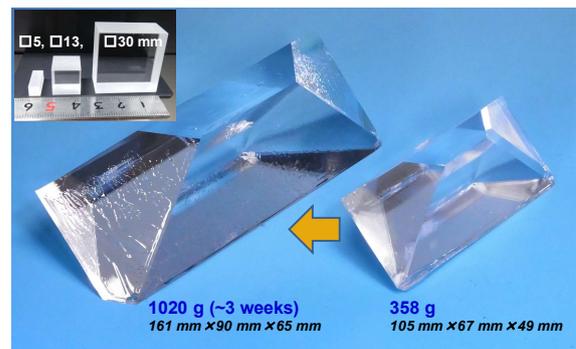


Fig.3 従来結晶と比較した大型 CLBO 結晶

ないことを確認している。大型結晶を実現することで、Fig.3にも示している大口径波長変換素子の作製が歩留まり良くできるようになり、紫外光のピークパワー密度を劣化閾値以下に抑えたまま高出力化が可能となる。現在、さらに垂直方向の成長を促進させることで、結晶重量が1.5kgとなる超大型結晶の作製に取り組んでいる。

次に、Fig.4に示す利得変調方式のDFB-LDをシード光源に用いた近赤外固体レーザー（パルス幅42ps, パルス繰り返し周波数100kHz）の2倍波（波長532nm, 最大平均出力30W）を入力光とし、波長変換によって波長266nmの深紫外光を発生させた。内部散乱を基準に評価した品質の異なる2つのCLBOから266nm光発生方位（ $\theta=62^\circ$, $\varphi=45^\circ$, Type1 (ooe)）の10mm長素子、Sample A（低品質結晶）、Sample B（高品質結晶）を作製した。各素子を光学セル内で150°Cに加熱し、Arガスを流量200mL/minで流しながら、脱水処理を施した。入出力特性を調べたところ、Fig.5に示すように出力が6.5W程度（変換効率43%）では結晶品質による違いは見られなかった。

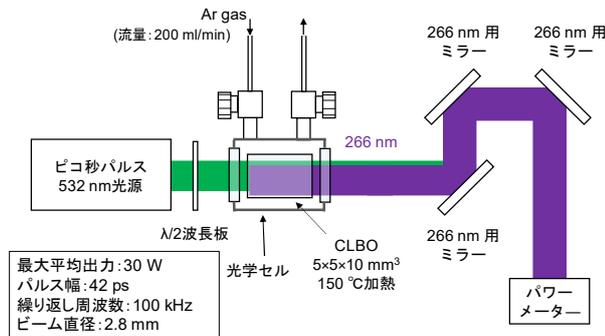


Fig.4 ピコ秒パルス光源を用いた266nm光発生試験

そこで、CLBO素子の前に設けた半波長板を回転させて入射光をe偏光状態に一時固定した後、紫外光を発生するo偏光状態に0.04秒で回転させた際の平均出力の立ち上がり時間を測定した。ここでは、定常出力に到達するまでの時間（10%–90%）を立ち上がり時間と定義した。出力が2.4W時には、Sample A, Bともに0.1秒程度で出力が安定した。一方、Fig.6に示すように、出力を5.0Wに増大するとSample Aは立ち上がりに3.7秒を要した。一方、Sample Bでは0.2秒で出力が安定し、定常状態となることが確認できた。Fig.7に各平均出力に対する立ち上がり時間をまとめた結果を示す。出力が6.5Wの場合、Sample Aは平均時間が8.6秒、Sample Bは2.6秒と、約3倍以上の差が生じた。また、本測定は全て同一スポットで行ったが、Sample Aでは立ち上がり時間がばらつく傾向が顕著に見られた。以上のことから、立ち上がり特性は入出力特性で見られなかった結晶品質の影響を大きく受けることが明らかになった。今後、本評価を活用して、熱位相不整合の影響が生じない高品質結晶の開発を進める予定である。

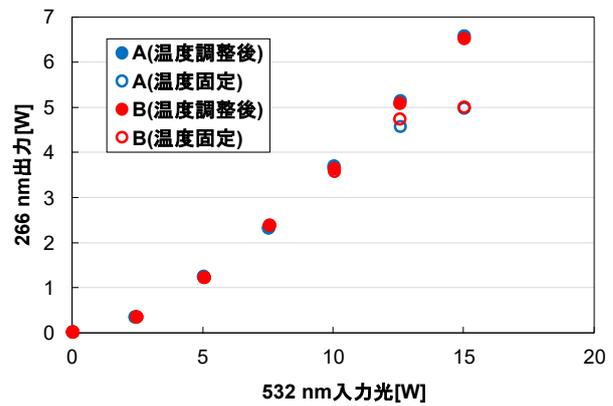


Fig.5 266nm光発生における入出力特性

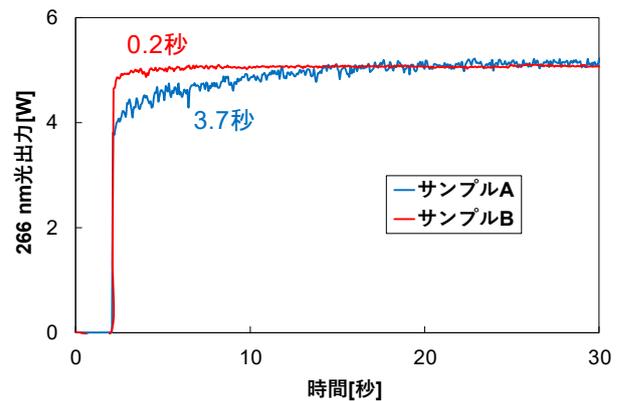


Fig.6 出力5.0Wにおける立ち上がり特性

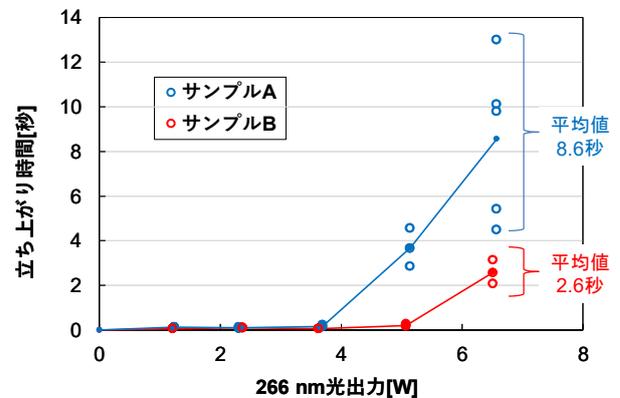


Fig.7 立ち上がり時間の266nm光出力依存性

謝辞

本研究はNEDO「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」事業の支援の下で実施した。

REFERENCES

[1] K. Kohno et al., OPTICS & PHOTONICS International Congress 2019, ALPS-1-01.
 [2] 折井庸亮他, レーザー研究 45, 580 (2017).
 [3] R. Murai et al., Appl. Phys. Express 12, 075501 (2019).