

研究

銅レーザー光の第二高調波発生における ノンコリニアー相互作用モデル

尾松 孝茂・志村 努・黒田 和男・千原 正男
伊藤 雅英・小倉 磐夫

東京大学生産技術研究所 T106 東京都港区六本木 7-22-1

(1988年9月16日受理)

Non-Collinear Interaction Model in the Second Harmonic Generation of the Copper Vapor Laser Beam

Takashige OMATSU, Tutomu SHIMURA, Kazuo KURODA,
Masao CHIHARA, Masahide ITOH and Iwao OGURA

Institute of Industrial Science, University of Tokyo,
7-22-1, Roppongi, Minato-ku, Tokyo 106

The laser beam of the copper vapor laser (CVL) with the unstable resonator was focused in a nonlinear crystal, barium borate. The ultraviolet light at 255.3 nm was generated with the conversion efficiency of 8.9% at the CVL average power of 2.55 W. We calculated the conversion efficiency on the basis of the model, in which the focused beam of CVL was considered as a set of bundles of rays which propagated to different directions in a crystal and non-collinear interaction between these bundles of rays was investigated. This model was called non-collinear interaction model. We found that the result of the calculation agreed with the result of the experiment.

1. はじめに

最近、半導体リソグラフィーをはじめとして高繰返し、高出力紫外光の産業的要望が高まりつつある。この要望にこたえる光源として、エキシマーレーザーがあげられるが、エキシマーレーザーの繰返し周波数を高めることは、技術的困難が大きい。また、エキシマーレーザーはガスの取扱いが問題となる。

銅レーザー^{1,2)}は、可視域(510.6, 578.2 nm)で発振する高繰返し($\sim 4 \text{ kHz}$)、高出力レーザー(平均出力 $\sim 10 \text{ W}$)である。また、銅の蒸気を用いるレーザーであるため、排気等の取扱いが問題とならない。

その発振波長 510.6 nm のレーザー光の第二高調波(255.3 nm)は紫外域での高繰返し、高出力光として、非常に期待できる。われわれは、紫外域すぐれた非線形結晶 $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ を用いて、第二高調波発生を実験し、最大変換効率 8.9% を観測している³⁾。

銅レーザーは大口径($\sim 20 \text{ mm}$)レーザーである。第

二高調波発生を行なう際には、パワー密度を大きくするため、レンズを用いて非線形結晶中に集光する。ところが、銅レーザーは高ゲインであるため、レーザー光の空間的コヒーレンスが低く、指向性が悪い。このため、完全にコヒーレントなガウスピームとは大きく異なる。その結果、第二高調波発生において、発生効率等を議論する際に、銅レーザー光をガウスピームで近似するのは良い近似とはいえない。

われわれは、結晶中に集光された銅レーザー光を異なる波数ベクトル k をもつ光線の集合として考え、それぞれの間で相互作用が働くとするモデルをたて、理論計算を行ない、実験結果と比較した。その結果、変換効率を最大にするレンズの焦点距離が、理論と実験の両方の間で、よく一致することがわかった。

2. 理 論

Fig. 1 に示すように、口径 D 、指向性 $\Delta\theta_0$ である銅レーザー光が、焦点距離 f のレンズを用いて、非線形

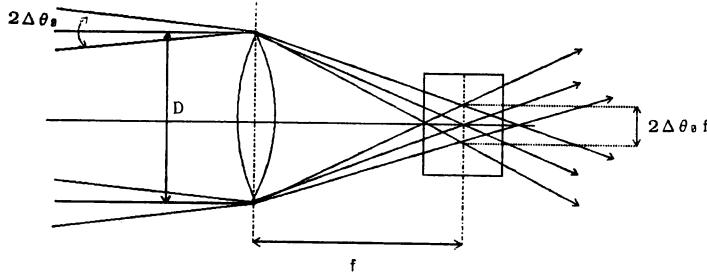


Fig. 1 The copper vapor laser beam with the beam divergence $\Delta\theta_0$ focused in a crystal. The spot size is $2\Delta\theta_0 f$.

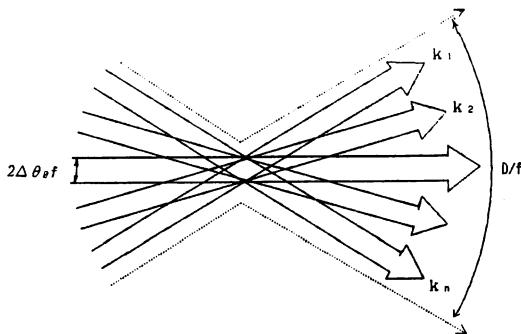


Fig. 2 Model of the focused copper vapor laser beam. The beam consists of the bundles of the rays which propagate to different directions.

結晶中に集光されている場合を想定する。レンズの焦点面ではレーザー光は、 $2\Delta\theta_0 f$ にしほらされている。ここで、結晶中に集光されているレーザー光を Fig. 2 で示すように、異なる波数ベクトル k をもち、幅が $2\Delta\theta_0 f$ である平行光束の集合として考える。このうちの任意の二つの光線 i, j から生じる二次の非線形分極により放出される第二高調波を考える。ここで、問題の取扱いを容易にするため、非線形結晶は一軸結晶を想定し、結晶の光学軸と基本波（銅レーザー光）の進行方向とのなす平面内での二次元モデルを考える。また、Type I の位相整合を考える。第二高調波の波面の進行方向は、 i, j のなす角の二等分線方向とすると、位相不整合 Δk は

$$\Delta k = 2k_0 \cos \theta - k_{20} \quad (1)$$

θ : 基本波と第二高調波のなす角, k_0 : 基本波の波数, k_{20} : 第二高調波の波数となる。Fig. 3 で太線で囲まれた領域（以下、相互作用領域と呼ぶ）で二つの光束が相互作用するものとする。結晶の複屈折のため、第二高調波の波面は X 方向に伝播するが、第二高調波の光線は X 方向に対し、 ρ だけ傾いた方向に伝播する。このため、Fig. 3 に示される全領域から発生する第二高調波は、 Y 軸上の $Y_1 \sim Y_2$ の各点で観測される第二高調波のパワーの加算とな

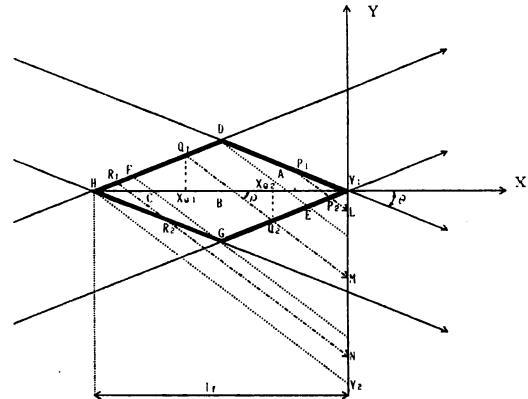


Fig. 3 Non-collinear interaction area between two bundles of rays. Area A: $\triangle Y_1 DE$, Area B: $\square DEGF$, Area C: $\triangle FGH$, l_t : non-collinear interaction length between two bundles of rays.

る。 Y 線上の異なる点 L, M, N では、相互作用領域中の $P_1 P_2, Q_1 Q_2, R_1 R_2$ の経路を経て発生した第二高調波が観測される。第二高調波の発生する経路の違いから相互作用領域を三つの領域 A, B, C に分割すると、それぞれの領域から発生する第二高調波の観測点の代表点が L, M, N となる。ここで、 M 点で観測される第二高調波について考える。 M 点では $Q_1 Q_2$ の X 軸への斜影 $X_{Q1} X_{Q2}$ の範囲で振幅が加え合わされた第二高調波が観測されることになる。 M 点の座標を $(0, y_2), X_{Q1}, X_{Q2}$ の座標を $(x_{Q1}, 0), (x_{Q2}, 0)$ とすると観測される第二高調波のパワー $P_{20ij}(M)$ は次のようになる。ただし、 ρ, θ は角度の絶対値を表わし、 $0 < \rho, \theta \ll 1$ とする。また、第二高調波発生の過程で、銅レーザー光の出力は低減しないものとする。

$$P_{20ij}(M) = d_0 P_{0i} P_{0j} \left| \int_{x_{Q2}}^{x_{Q1}} \exp(i \Delta k x) dx \right|^2 \quad (2)$$

$$x_{Q1} = (y_2 - w_0)/(\rho + \theta) \quad (3)$$

$$x_{Q2} = y_2/(\rho + \theta) \quad (4)$$

を用いると、

$$P_{2\omega ij}(M) = 4d_0 P_{\omega i} P_{\omega j} \sin^2 \{\Delta k w_0 / 2(\rho + \theta)\} / \Delta k^2 \quad (5)$$

となる。ここで、

$$d_0 = 2(\mu_0)^{3/2} (\epsilon_0)^{1/2} \omega^2 d_{\text{eff}}^2 / (n_{2\omega} n_\omega^2 A^2) \quad (6)$$

ϵ_0 : 真空中の誘電率, μ_0 : 真空中の透磁率, d_{eff} : 有効非線形定数, A : 光束の断面積, n_ω : 基本波の波長に対する屈折率, $n_{2\omega}$: 第二高調波の波長に対する屈折率

$$P_\omega = \sum_i P_{\omega i} \quad (7)$$

$$l_f = w_0 / \theta = 2\Delta\theta_0 f / \theta \quad (8)$$

$$w_0 = 2\Delta\theta_0 f : スポットサイズ$$

である。このことから、 B 領域全体から発生する第二高調波のパワー $P_{2\omega ij}(B)$ は

$$P_{2\omega ij}(B) = (4d_0 P_{\omega i} P_{\omega j} / \Delta k^2) \times \int_{(-w_0 - \rho l_f)/2}^{(w_0 - \rho l_f)/2} \sin^2 \{\Delta k \theta l_f / 2(\rho + \theta)\} dy_2 \quad (9)$$

となる。同様に L 点で観測される第二高調波のパワーは、 L 点の座標を $(0, y_1)$ とすると、

$$\begin{aligned} P_{2\omega ij}(L) &= d_0 P_{\omega i} P_{\omega j} \left| \int_{x_{R1}}^{x_{R2}} \exp(i\Delta k x) dx \right|^2 \\ &= 4d_0 P_{\omega i} P_{\omega j} \sin^2 \{\Delta k \theta y_1 / (\rho^2 - \theta^2)\} / \Delta k^2 \end{aligned} \quad (10)$$

となる。ここで、

$$x_{R1} = y_1 / (\rho - \theta) \quad (11)$$

$$x_{R2} = y_1 / (\rho + \theta) \quad (12)$$

を用いた。 N 点で観測される第二高調波のパワーは N 点の座標を $(0, y_3)$ とすると、

$$\begin{aligned} P_{2\omega ij}(N) &= d_0 P_{\omega i} P_{\omega j} \left| \int_{x_{R1}}^{x_{R2}} \exp(i\Delta k x) dx \right|^2 \\ &= 4d_0 P_{\omega i} P_{\omega j} \sin^2 \{\Delta k \theta (y_3 + \rho l_f) / (\rho^2 - \theta^2)\} / \Delta k^2 \end{aligned} \quad (13)$$

となる。ここで、

$$x_{R1} = (y_3 - w_0) / (\rho + \theta) \quad (14)$$

$$x_{R2} = (y_3 + w_0) / (\rho - \theta) \quad (15)$$

を用いた。その結果、 A , C 全領域から発生する第二高調波のパワー $P_{2\omega ij}(A)$, $P_{2\omega ij}(C)$ は

$$\begin{aligned} P_{2\omega ij}(A) &= (4d_0 P_{\omega i} P_{\omega j} / \Delta k^2) \times \int_{(w_0 - \rho l_f)/2}^0 \sin^2 \{\Delta k \theta y_1 / (\rho^2 - \theta^2)\} dy_1 \\ &\quad (16) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} P_{2\omega ij}(C) &= (4d_0 P_{\omega i} P_{\omega j} / \Delta k^2) \times \int_{-\rho l_f}^{(-w_0 - \rho l_f)/2} \sin^2 \{\Delta k \theta (y_3 + \rho l_f) / (\rho^2 - \theta^2)\} dy_3 \\ &\quad (17) \end{aligned}$$

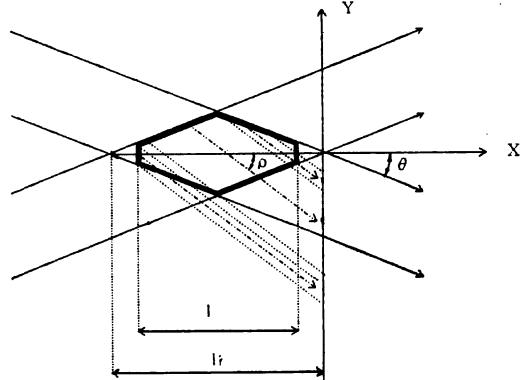


Fig. 4 Non-collinear interaction area between two bundles of rays when crystal length (l) is less than the interaction length (l_f).

となる。Fig. 3 に示される全領域から発生する第二高調波のパワー $P_{2\omega ij}$ は、

$$P_{2\omega ij} = P_{2\omega ij}(A) + P_{2\omega ij}(B) + P_{2\omega ij}(C) \quad (18)$$

となる。

ただし、二つの光束が作用する領域の大きさを表わす l_f が、 l (結晶長) より大きくなる場合には、Fig. 4 に示す領域で同様の計算を行なう。銅レーザー光を構成しているすべての光線に対し、 $P_{2\omega ij}$ の総和をとることにより第二高調波の全力を求めることができる。

$$P_{2\omega}(\text{Total}) = \sum_i \sum_j P_{2\omega ij} \quad (19)$$

このモデルを以下、ノンコリニア相互作用モデルと呼ぶことにする。

銅レーザー光の指向性を $\Delta\theta_0 = 0.1 \text{ mrad}$, 非線形結晶 $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ^{4,5)} を仮定すると、位相整合角 $\theta_m = 51^\circ$, $d_{\text{eff}} \sim d_{31} \cos \theta_m \sim 1.6 \times 10^{-12} \text{ m/V}$, $\rho = 0.08 \text{ rad}$, $P_\omega = 2.5 \text{ W}$ /4 kHz/25 ns~25 kW となる。これらの数値を用いて、レンズの焦点距離をかえて、計算した結果を Fig. 5 に示す。レンズの焦点距離が 450 mm で変換効率が最大となることがわかる。Fig. 6 に、銅レーザー光の指向性が与えられたときに、変換効率を最大にするレンズの焦点距離の計算結果を示す。この結果は基本波の低減を考慮しない近似では、入射パワーによらない。

3. 実験

3.1 銅レーザー光の指向性

通常の plane-parallel 共振器による銅レーザー光は指向性が悪く、十分にしばりこめないためにパワー密度があがらない。第二高調波はその発生効率がパワー密度に比例する。高効率第二高調波発生を行なうには銅レーザー光の指向性の改善が不可欠である。われわれは、銅レ

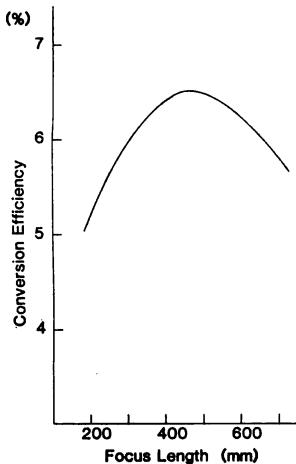


Fig. 5 Theoretical conversion efficiency vs. focus length on the basis of the non-collinear interaction model. Parameters are as follows: beam divergence ($\Delta\theta_0$) = 0.1 mrad, effective nonlinear coefficient (d_{eff}) = $1.6 \times 10^{-12} \text{ m/V}$, walk-off angle (ρ) = 0.08 mrad, CVL peak power (P_s) = 25 kW.

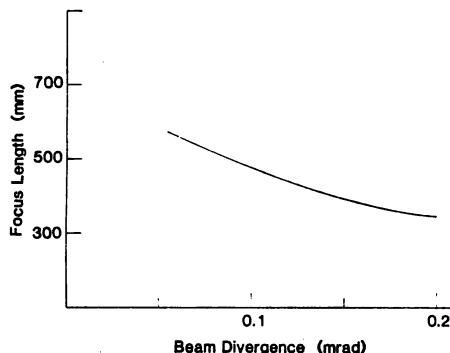


Fig. 6 Optimum focus length vs. CVL beam divergence on the basis of the non-collinear interaction model.

レーザーを positive confocal type の不安定共振器⁶⁾構成にした。

用いた銅レーザー (510.6 nm) は、放電長 80 cm、管径 20 mm、繰返し周波数 4 kHz、通常の共振器構成において平均出力 3 W である。不安定共振器の倍率は、20 倍、60 倍 (凸面鏡曲率 30 cm, 10 cm, 凹面鏡曲率 600 cm) の二つの場合を試みた。レーザー光をレンズ ($f=1000 \text{ mm}$) を用いてしばりこみ、そのスポットサイズから (19) 式にしたがい、指向性をもとめた。

$$\Delta\theta_0 = D_0/2f \quad (20)$$

D_0 : スポットサイズ, f : レンズの焦点距離

その結果、plane-parallel 共振器構成で 0.4 mrad であった指向性が、倍率 20 倍のときには、0.15 mrad、倍

率 60 倍のときには、0.1 mrad まで改善された。一方、回折限界は 0.025 mrad である。

3.2 非線形結晶

われわれが、今回、用いた非線形結晶 $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ は次のようなすぐれた特徴をもつ^{4,5)}。

- (1) 200~3300 nm で透明
- (2) 400~3300 nm で位相整合が可能 (Type I)
- (3) 非線形定数が KDP の 4 倍
- (4) 損傷閾値が大きい (2 GW/cm^2)

銅レーザー光の第二高調波発生に適した結晶と考えられる。われわれの使用した結晶の厚みは 7.7 mm である。

3.3 第二高調波発生

このように、指向性の改善された銅レーザー光を用いて、第二高調波発生を行なった。実験配置を Fig. 7 に示す。共振器内に偏光ビームスプリッターを配置し、銅レーザー光を直線偏光にしている。また、焦点距離 350, 400, 450, 500 mm のレンズを用い、結晶中に銅レーザー光を絞り込んでいる。

上記 4 種類のレンズについて、銅レーザー光平均出力を変えて、第二高調波変換効率を調べた。Fig. 8, Fig. 9 は、不安定共振器の倍率がそれぞれ 20 倍、60 倍のときの実験結果である。

このグラフにおいて、第二高調波の変換効率が原点を通る直線とはならない。この原因是、銅レーザー光平均出力変化に伴い、レーザー光のパルス波形および指向性が変化するためである。Fig. 10 は、銅レーザー光出力を変えたときのレーザー光のパルス波形の変化を示す。銅レーザー光の出力が増すに従い、極大値の数が増す。平均出力は大きくなっても、ピークパワーはそれほど大きくなっていないことがわかる。このため変換効率はし

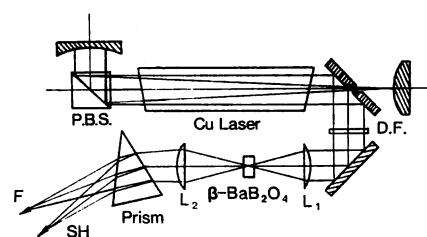


Fig. 7 Experimental setup. F: the fundamental light at 510.6 nm, SH: the second harmonic light at 255.3 nm, PBC: a polarizing beam splitter, DF: a dichroic filter which transmits the green laser beam and reflects the yellow one. A pair of concave and convex mirrors forms a confocal type unstable resonator.

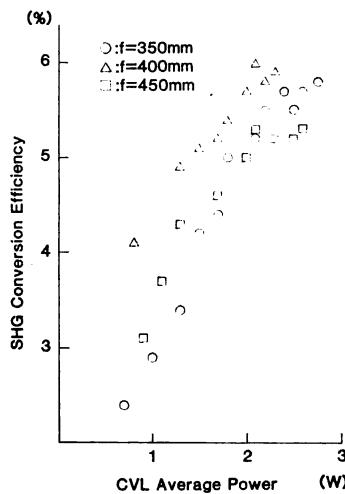


Fig. 8 The conversion efficiency as a function of average power for three different focusing lenses when the magnification of the unstable resonator is 20.

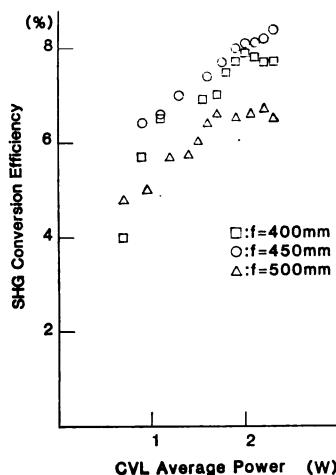


Fig. 9 The conversion efficiency as a function of average power for three different focusing lenses when the magnification of the unstable resonator is 60.

だいに飽和していく。

最大変換効率は、倍率が 20 倍、60 倍でそれぞれ 6%，8.9% である。そのときのレンズの焦点距離は 400 mm, 450 mm である。

3.4 考 察

変換効率を最大にするレンズの焦点距離をノンコリニア相互作用モデルの計算結果と実験結果を比較し、Table 1 にまとめる。このことから、銅レーザー光の指向性が与えられたとき、変換効率を最大にするレン

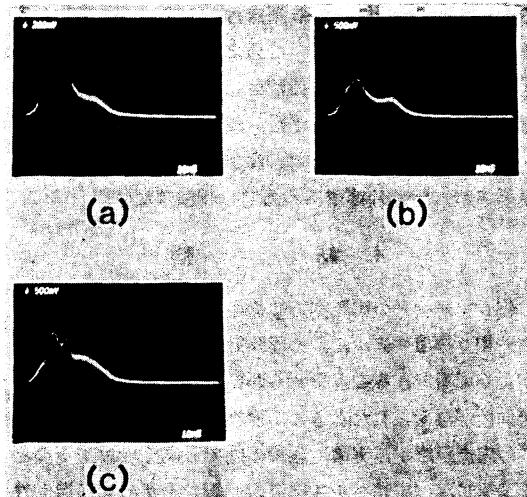


Fig. 10 CVL pulse shapes. (a) at the average power of 0.8 W, (b) at the average power of 1.5 W, (c) at the average power of 2.3 W.

Table 1 Comparison between the experimental result and the theoretical calculation.

	Max conversion efficiency (%)		Optimum focus length (mm)	
	A	B	A	B
Measured	6.0	8.9	400	450
Noncollinear	4.0	6.5	350	450

A : Magnification of the unstable resonator = 20,
 $\Delta\theta_0 = 0.15 \text{ mrad}$.

B : Magnification of the unstable resonator = 60,
 $\Delta\theta_0 = 0.1 \text{ mrad}$.

ズの焦点距離が、ノンコリニア相互作用モデルを用いて、よく説明できることがわかる。

Boyd らはガウスビームによる第二高調波発生について、詳細に研究し、最適条件を導出した⁷⁾。しかし、銅レーザー光のように、空間的コヒーレンスが低く、指向性の悪い光では、空間的に完全なコヒーレント光であるガウスビームで近似することはできず、幾何学的な光線の集合として近似したほうが、現象を正しくとらえることができる。

また、変換効率がノンコリニア相互作用モデルに基づく計算結果では、 $\Delta\theta_0 = 0.1 \text{ mrad}$ のとき、6.5%，0.15 mrad のとき、4.0%，であるのにに対し、実験結果では、それぞれ 9%，6% となる。このことは、銅レーザー光の指向性が 1 光パルス内で変化すること、また、ピークパワーの見積りの誤差による。1 光パルスでの、レーザー光の指向性はパルスの後部にいくにしたがいよくな

る⁸⁾。われわれの指向性の測定は、1光パルスにわたる平均値の測定であるため、このような効果は計算モデルには考慮していない。この結果、上記のような相違が生じるものと考えられる。また、理論計算において、銅レーザー光出力の低減を考慮しなかったが、第二高調波変換効率が、10%程度があるので、問題はない。

4. 結 論

銅レーザー光の第二高調波発生において、ノンコリニア相互作用モデルによる理論計算を行ない、実験結果がよく説明できることを明らかにした。銅レーザー光の指向性が与えられたときに、変換効率を最大にするレンズの焦点距離が、実験、理論の間で、よく一致することを確認した。1光パルス内での、銅レーザー光の指向性はパルスの後部にいくにしたがいよくなる。今回の理論計算では1光パルス全体にわたる時間平均された指向性しか考慮していない。銅レーザー光の指向性を時間分解測定し、その結果を理論計算にとりいれることにより、さらに、第二高調波発生の定量的な考察が可能となる。また、今回の理論計算では銅レーザー光出力の低減は考慮していない。さらに第二高調波変換効率が向上した場合、銅レーザー光出力の低減まで考慮して計算する必要がある。

文 献

- 1) W. T. Walter, N. Solimene, M. Piltch and G. Gould: "Effective pulsed gas discharge lasers," IEEE J. Quantum Electron., **QE-2** (1966) 474-479.
- 2) A. A. Isaev, M. A. Kazaryan and G. G. Petrashev: "Effective pulsed copper-vapor laser with high average generation power," Sov. Phys. JETP Lett., **16** (1972) 27-29.
- 3) K. Kuroda, T. Shimura, T. Omatsu, M. Chihara and I. Ogura: "Second harmonic generation of a copper vapor laser in β -BaB₂O₄," Tech. Dig. CLEO '88, **7** (1988) 278.
- 4) K. Kato: "Second harmonic generation to 2048 Å in β -BaB₂O₄," IEEE J. Quantum Electron., **QE-22** (1986) 1013-1014.
- 5) C. T. Chen, B. C. Wu, A. D. Jiang and G. M. You: "A new-type ultraviolet SHG crystal- β -BaB₂O₄," Sci. Sinica B, **28** (1985) 235-243.
- 6) K. I. Zemskov, A. A. Isaev, M. A. Kazaryan, G. G. Petrashev and S. G. Rautian: "Use of unstable resonators in achieving the diffraction divergence of the radiation emitted from high-gain pulsed gas laser," Sov. J. Quantum Electron., **4** (1974) 474-477.
- 7) G. D. Boyd and D. A. Kleinman: "Parametric interaction of focused gaussian light beams," J. Appl. Phys., **39** (1968) 3597-3639.
- 8) R. S. Hargrove, R. Grove and T. Kan: "Copper vapor laser unstable resonator oscillator and oscillator-amplifier characteristics," IEEE J. Quantum Electron., **QE-15** (1975) 1228-1233.