



## ホウ酸バリウム (BBO) による銅蒸気 レーザー光の第二高調波発生

黒田 和男・尾松 孝茂

東京大学生産技術研究所 T106 東京都港区六本木 7-22-1

### 1. まえがき

銅蒸気レーザーは 510.6 nm と 578.2 nm に発振線をもつ、高効率、高繰返しの金属蒸気パルスレーザーである。これに、二次の非線形光学効果を応用し、高繰返しの紫外光源とすることができる。次世代光リソグラフィー技術の光源として、248 nm-KrF エキシマーレーザーの使用が有力視されている。しかし、色収差除去のための発振スペクトルの狭帯域化、露光量制御のための発振の高繰返し化などの点で必ずしも実用の域まで達していない。銅蒸気レーザーは、スペクトル幅は狭く(約 5 GHz)、繰返し周波数も高いから、変換効率さえ上がれば、リソグラフィー用光源とする可能性がある。

この波長で使える非線形光学結晶は少ない。ADP を  $-30^{\circ}\text{C}$  まで冷却して使った例があるが、レーザー光の吸収による発熱が問題となり、安定な動作が得られない<sup>1)</sup>。現在まで知られている非線形光学結晶中では、 $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$  (BBO) が最も優れた特性を示す<sup>2)</sup>。われわれは、BBO と銅蒸気レーザーを組み合わせ、波長 255.3 nm において、平均出力 230 mW、繰返し周波数 4 kHz の紫外光を得た<sup>3,4)</sup>。このときの変換効率は 9% であった。その後、より高出力の銅蒸気レーザーを用いた実験が行われたが、現時点では、変換効率は 10% を越えていない<sup>5,6)</sup>。以下、銅蒸気レーザーの第二高調波発生に対し、基本的な考え方と、実験結果について述べる。

### 2. 実験配置

実験配置を図 1 に示し、非線形光学結晶と銅蒸気レーザー光についてのパラメータを表 1 にまとめる。銅蒸気レーザーの第二高調波発生では、銅蒸気レーザー光が空間的に部分的コヒーレント光であることが問題になる。波長変換効率を上げるために、指向性のよいコヒーレント光を使うほうが望ましいが、現実には銅蒸気レーザー光を完全にコヒーレントにすることは難しい。対策

としては、不安定共振器を用い銅蒸気レーザー光の空間的コヒーレンスができるだけ上げること、さらに、与えられた空間的コヒーレンスとパワーのもとで変換効率を最大にするような光学配置を見つけることにある。

### 3. 理論<sup>3,7)</sup>

コヒーレント光では平行光にしたときの指向性は回折効果によって決まるが、空間的コヒーレンスが悪くなると、面光源から出た光線束のように、光線方向が統計的に分布し、指向性が落ちる。このような光を焦点距離  $f$  のレンズで集光すると、指向性の角度広がり(半角)を  $\Delta\theta$  として、スポット径は  $2f\Delta\theta$  となる。また、ビームエクスパンダーのようなアフォーカル光学系を使うと、平行光の径  $D$  を変えることができるが、このときは角度広がりも変化し、積  $D\Delta\theta$  が一定となることが、近軸光学系に対するラグランジュ・ヘルムホルツの公式から結論できる。

第二高調波発生の特徴は、(1) 位相整合条件が課せられること、(2) 効率が光の強度に比例すること、にある。条件(2)より、強度が強いほどよい。BBO の第二高調波発生では、 $100 \text{ MW/cm}^2$  程度の強度が望まれる。われわれの銅蒸気レーザーの強度は  $8 \text{ kW/cm}^2$  である。よって、上記の値を達成するにはビーム径を 0.2 mm 程度まで絞る必要がある。不安定共振器を用いたときの銅蒸気レーザーの角度広がりは 0.1 mrad であったから、集光レンズの焦点距離は 1 m となり、収束光束全体の角度広がり(半角)は 10 mrad となる。

位相整合条件に対する許容角度幅は、位相整合角が  $90^{\circ}$  の場合を除けば、一般に非常に狭い。許容角度幅は相互作用長に反比例するから、両者の積で許容量を表すが、BBO では基本波の波長が 510.6 nm のとき  $0.18 \text{ mrad} \cdot \text{cm}$  である。用いた結晶の長さは 7.7 mm であったが、実際の相互作用長は別の要因で決まる。位相整合には複屈折を利用するため、入射光と第二高調波光の法

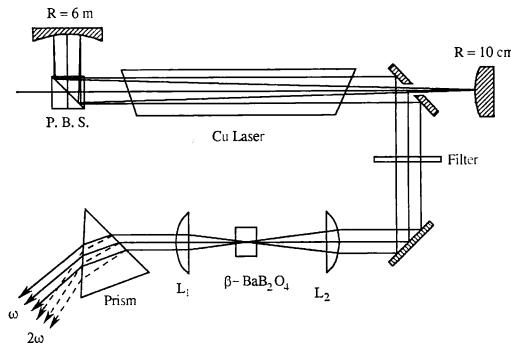


図 1 実験装置。PBS は偏光ビームスプリッターで、銅蒸気レーザーを直線偏光で発振させるために挿入した。フィルターは 510.6 nm 線を選択的に透過する。

表 1 銅蒸気レーザー光 (510.6 nm) の BBO による第二高調波発生

ビーム径	20 mm
角度広がり (半角)	0.1 mrad*
ピークパワー	25 kW
* 角度広がりは、回折限界の約 4 倍	
位相整合方式	type I
位相整合角	50.6°
ウォークオフ角	4.9°
位相不整合の許容量	0.18 mrad·cm
結晶長	7.7 mm

線方向は一致するが、光線方向は異なり、両者は空間的に分離していく。このウォークオフ角は BBO では 4.9° になるから、ビーム径 0.2 mm に対し、相互作用長は 2.4 mm となる。よって位相整合の許容角度幅は 0.75 mrad である。これは、収束光の角度 10 mrad に比べ、はるかに小さい。

では、大部分の光は無駄になるのかというと、必ずしもそうではない。光軸からはずれた光線に対し、ノンコリニア (noncollinear) な位相整合条件が成り立つからである。すなわち、光軸に対しほぼ対称な方向に進む二つの光波が結合し、第二高調波を生成する。結局第二高調波は、単一の位相整合条件ではなく、ノンコリニアな位相整合条件を満足する多数の光線のペアによって生成された成分の総和となる。このとき、第二高調波発生は成分ごとに起こるから、各成分に対する光強度は全光量の一部にすぎない。したがって、さらに絞り込むほうが光強度が増してよいが、絞り込み過ぎると、相互作用長が短くなってしまう。最適の焦点距離がある。

われわれは、幾何光学的な近似を用い、この和を数値的に求めた。この方法を用い、レーザー光の空間的コヒーレンスと結晶長が与えられたときの、レンズの焦点

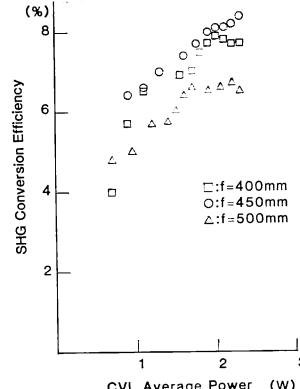


図 2 集光レンズの焦点距離を、400, 450, 500 mm としたときの変換効率

距離の最適値を計算した。これはよく実験と合った<sup>7)</sup>。

現実の銅蒸気レーザー光は、パルスの中でコヒーレンスが時間的に変化する。この効果を考慮する必要がある。

#### 4. 結果とまとめ

図 2 に、集光レンズの焦点距離を変えたときの変換効率を示す。変換効率がレーザーの平均出力に比例して増大しないのは、出力を上げることによってビームの質が変化するからである。

位相整合条件は結晶の *c* 軸と光の方向を制限するが、*c* 軸の回りの角度についてはなにも制限を課さない。ゆえに、第二高調波光は一方向に伸びた線状の光源から出た光のようになる。これを使用するためには、適当なビーム整形が必要になる。

われわれが得た最善の結果は、銅蒸気レーザー出力が 2.5 W のとき、230 mW の紫外光が得られるというものであった。銅蒸気レーザーは単一波長で 50 W を越えるものが開発されている。高出力の発振器では、指向性をよくするのは難しいが、発振器-増幅器型の構成で、回折限界に近いビームを得ることが可能になっている。入力エネルギーを増大することによって、効率をさらに上げることが可能であろう。平均出力 5 W 程度の紫外光が得られるようになれば、利用価値も高まるであろう。

#### 文 献

- 1) A. A. Isaev, et al.: Sov. J. Quantum Electron., **10** (1980) 983.
- 2) C. T. Chen, et al.: Sci. Sinica B, **28** (1985) 235.
- 3) K. Kuroda, et al.: Proc. SPIE, **1041** (1989) 60.
- 4) K. Kuroda, et al.: Opt. Commun., **75** (1990) 42.
- 5) D. W. Coutts, et al.: IEEE J. Quantum Electron., **QE-25** (1989) 1985.
- 6) G. A. Naylor, et al.: Tech. Digest of Conf. Lasers and Electro-Optics (1989) TuJ2.
- 7) 尾松孝茂, ほか: 光学, **18** (1989) 91.