

紫外レーザーの最新技術

安井 公治・小島 哲夫・今野 進・藤川 周一

Advanced Ultraviolet Solid-State Laser Technology

Koji YASUI, Tetsuo KOJIMA, Susumu KONNO and Shuichi FUJIKAWA

High-power ultraviolet lasers are discussed to conclude that diode-pumped solid-state ultraviolet lasers are promising for scientific and industrial applications when the drawbacks of low powers and short-life time are solved. Based on the conclusion, we discussed the forecast on high-power diode-pumped solid-state ultraviolet lasers by referring experimental results that have proved 23 W at the wavelength of 266 nm.

Key words: solid-state lasers, ultraviolet, diode-pumped, harmonic generation, high-power

この光学誌を代表とする光学関係の雑誌に掲載される発表論文には、しばしば紫外レーザーが登場する。しかも、そのほとんどがエキシマーレーザーである。エキシマーガスとよばれる XeCl, KrF, ArF, F₂ などを用いるエキシマーレーザーは、新しいプロセスを開発するレーザーとして期待されている。エキシマーレーザーは、①使用するガスの取り扱いが難しい、②ガスがレーザーの構造物を腐食することから、そのメンテナンスに費用がかかる、③高圧ガスを用いることから、放電の維持が難しく、特殊な電源の開発が必要であり高コストである等の課題をかかえながらも、プロセス開発に用いる数十～数百 W の紫外出力を発生できる唯一のレーザーとして開発が進展してきた。特に、リソグラフィー用光源として採用されてからの進展には目を見張るものがあり、そこで得た安定性をもとに、産業用途への展開も展望できる。

しかしながら、今後の紫外レーザーの他の分野への適用を想定した場合、エキシマーレーザーのリソグラフィー光源としての適用は、半導体生産装置への適用という特殊な環境下であったことに注意する必要がある。長期ロードマップに基づいて開発を進める半導体産業では、光源の波長が決まると、それに付随したマスク材などの周辺部材が開

発され、したがって、一度波長が決まると、たとえナノメートルオーダーの波長変更も難しい状況がある。

一方、アブレーションや各種プロセスなど、紫外レーザーを待望する多くの用途では、波長に対しての要求は、半導体リソグラフィーに比べてはるかに緩い。やや極端な事例で検討する。最近の携帯電話や、各種情報機器に搭載される高密度基板の穴は、直径が最小で 100 μm 程度であり、これを 1 秒間に 100～500 個程度あける必要がある。このような微細な穴あけは、通常の金属ドリルでは難しく、レーザーによる穴あけが必須である。このアプリケーションに対して、当初は、エキシマーレーザーを用いた穴あけが提案された。しかしながら、エキシマーレーザーのコストが生産ラインの要求するコストに合わず、各種の代替レーザーが探索され、現在では、当初試験されたエキシマーレーザーと比較して波長が 30 倍程度長い炭酸ガスレーザーを用いて実用化が図られている。さらに、今後必要な 100 μm 以下の穴あけにおいては、固体レーザーの波長変換により発生させた波長 355 nm の紫外固体レーザーの適用も始まっている。

同類のことが、他の分野でも起きている。産業用途を想定した場合、生産コストを基準に複数の光源が量産段階

りぎりまでコンペを繰り返して選択され、さらに量産後も絶えず見直しが行われる。すなわち、新しい光源には常にチャンスがあるといえる。また、ファイバークレーティング作成のように、光源のコヒーレンシーが要求される分野では、エキシマーレーザーの適用が難しく、代替光源の開発を求める声は高い。

1. 波長変換による紫外レーザー

エキシマーレーザーに代わる光源として開発が待望されているものが、LD (半導体レーザー) 励起の固体レーザーから発せられる赤外レーザー光を、波長変換結晶 (非線形学結晶) 2つにより2段階に波長変換して発生させる紫外固体レーザーである。主要部が消耗の少ない固体結晶で構成され、エキシマーレーザーに付きまとうメンテナンスの課題も払拭される。しかし、高出力の紫外レーザーの発生に耐える波長変換結晶がなく、これが紫外固体レーザーの実現を阻んでいた。現在、生産ラインで実用化されている出力レベルは最大でも5W程度にとどまっている。加工に必要な10Wレベルの紫外発生については、実験室レベルでの発生が可能であることは知られているが、産業用途に必要な100~1000時間レベルの寿命を満たす発生の報告はなかった。

もう1つの代替光源として銅蒸気レーザーから発生されるグリーンレーザーを1回波長変換する方式も検討されている。銅蒸気レーザーの場合、銅の蒸気をレーザー媒質で用いる。エキシマーレーザーのようなガスの取り扱いの難しさはないが、光源の立ち上がりに長時間を要求される、メンテナンスが難しいという課題は残る。波長変換結晶の課題である、低出力、低寿命については、固体紫外レーザーと共通である。

エキシマーレーザーの最新の進展については、半導体という巨大な市場をベースとした開発であるために解説記事が多い。そこで、ここでは、固体紫外レーザーをメインテーマとし、現状での高出力発振実施例をもとに、今後の展望を解説する。

2. 固体レーザーの波長変換

LD励起固体レーザーの波長変換により発生する紫外レーザー開発への要望は高く、世界的に高出力化の競争状態にある。しかしながら、これまでに報告された値は実験室レベルで10Wであり、市販レベルではワットレベルである。

高出力化のための条件を考えると、第一には高ビーム品質、すなわち高集光の赤外レーザーが必要である。これは、

赤外レーザー光が高ビーム品質であるほどに、グリーン・紫外レーザー光への変換効率が向上するためである。次に、高出力化のためには、高出力の赤外レーザー光、グリーンレーザー光による熱変形の影響が少ない高品質の波長変換結晶の開発が必須である。

波長変換効率を考慮すると、ビーム品質としては理論限界の10倍以内 (ビーム品質指標値: $M^2 < 10$) が基準となる。ビーム品質が低い場合、変換効率が低く高出力の赤外レーザー光を結晶に入射させる必要があり、結晶の破壊につながる。

応用を考えた場合、ビーム品質が $M^2 < 10$ であれば、市販エキシマーレーザーのビーム品質を十分上回っており、その応用の自由度が増す。 $M^2 < 10$ のレベルのビーム品質をもつ高集光の赤外レーザーについては、キロワットクラスの開発がみえてきている¹⁻³⁾。キロワットクラスの赤外レーザーが実用化されれば、グリーンで500Wクラス、紫外レーザーで100Wクラスの実現も展望できる。ただし、マスク転写を行う場合には、ビーム品質が高すぎることに起因するスペckルの発生もあり、この場合には、外部でビーム品質を劣化させて対応できる。

プリント基板加工、グレーティング加工などにおいては、 $M^2 = 1$ の理論限界のビーム品質が要求されるが、この場合の紫外出力は、 $M^2 = 1$ 光源の出力で制限される。 $M^2 = 1$ 光源については、最近になって200Wクラスの赤外出力を安定に取り出せる開発が進展してきており^{4,5)}、この赤外レーザーが実用化されれば、グリーンで100Wクラス、紫外レーザーで20Wクラスの実現も展望できる。

しかし、波長変換結晶には大きな課題がある。現在市販レベルでは波長355nmの紫外レーザー光は、LBO結晶による数ワットレベルの実用化が進展しているにすぎない。しかし、さらに波長が短く発生が困難な266nmの紫外レーザー光発生用の結晶は、ワットクラスの発生で産業用に適用の可能性をもつ結晶が存在しなかった。

この問題を打ち破るために大阪大学が新結晶CLBO ($\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$) を発明し、日本発の世界最高レベルの結晶が出現した。この結晶を用いることにより、266nmの紫外出力は、固体レーザーを用いた場合、最大10Wに向上した⁶⁻⁸⁾。しかし、10Wの発生において、結晶へ紫外レーザー光が吸収されることによる温度上昇が顕著となり、これ以上の出力向上のためには、特殊な冷却が必要であるという報告がなされ⁶⁻⁸⁾、実用化に大きな課題が顕在化した。

3. CLBO結晶の進展

この結晶のポテンシャルを見極めるために、大阪大学、

光学技研、三菱電機は、産学連携のフォーメーションで高出力波長変換方式の研究開発を行い、その成果として、これまでに、266 nm の紫外レーザー光の世界最高出力 23 W を発生することに成功している^{9,10}。これまでに国内で得られた 10 W⁶⁻⁸、海外で報告された 2~6 W クラス^{11,12} に比較して、2 倍以上の出力向上が実現できている。さらに、実用化に向けた開発も進められており、その最新成果として、大阪大学が開発した新結晶育成方法である溶液攪拌法(カクハン)と、光学技研の新素子化技術である低湿度研磨技術(ULPEN: ultra-low-moisture polishing environment technology)による CLBO 結晶の高品質化が進展し、結晶の素養で決まる紫外出力の制限が打ち破られる見込みも出てきている。この新しい結晶は、紫外光の吸収率が従来に比べて減少しており、より高出力に耐えることができる。また、均質性が向上しているため、結晶面内で、レーザー照射点を時間移動させることが可能であり、長時間動作が期待できる。その技術詳細については、以下の章で順次報告する。

4. グリーンレーザー光発生のための波長変換結晶の温度分布

高出力紫外レーザー光の発生のためには、高出力グリーンレーザー光が必要である。グリーン光発生用の波長変換結晶については、100 W クラスの高出力に耐えるものが出てきている。さらに高出力化を展望した場合、現状での動作ポイントの把握が重要である。高出力化を阻む要素として結晶の破壊強度と熱変形がある。破壊強度については各種の報告がみられるが、熱変形、特に変形をもたらす要因である結晶の温度上昇の観測結果はこれまで報告がほとんどないが、実測結果が報告されているので、その内容を紹介する¹³。

グリーンレーザー光発生時の、波長変換結晶の端面温度測定装置の構成を図 1 に示す。波長変換結晶の端面温度分布を、高精細サーモビューワにより測定している。この高精細サーモビューワは、空間分解能を通常の約 400 μm から約 55 μm に高め、かつ測定距離を約 180 mm と長く設定可能な特殊近接望遠レンズを付属し、波長変換時の波長変換結晶端面温度分布を高精細に測定できる。

グリーンレーザー装置は、Nd:YAG ロッドを含む LD 励起固体レーザーヘッドを共振器中央に配置し、共振器はレーザーヘッドからみて片側をミラーで 2 回折り返すコの字型である。共振器の折り返した部分に波長変換結晶を配置し、折り返していない部分に AO (acousto-optic)-Q スイッチが配置されている。この構成において、波長変換結

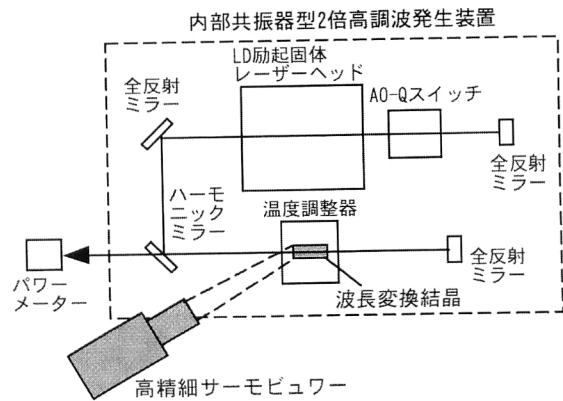


図1 グリーンレーザー光発生のための波長変換結晶の端面温度分布測定構成。

晶と全反射ミラーの距離を一定とし、波長変換結晶を入れ替えて用いて、グリーンレーザー出力および波長変換結晶端面温度分布が測定されている。結晶の断面の大きさは、4 mm×4 mm である。

固体レーザー励起用 LD の出力パワーを 361 W、波長変換結晶端面でのビーム半径を約 1.1 mm で一定として、市販の 3 種類の波長変換結晶について、グリーンレーザー光出力、結晶端面の温度分布が報告されている。

グリーン出力は、長さ 5 mm の水熱法育成 KTP 結晶、長さ 10 mm のフラックス法育成 KTP 結晶、および長さ 15 mm のフラックス法育成 LBO 結晶それぞれの場合に 36 W、30 W、および 30 W であり、水熱法育成の KTP 結晶を用いた場合に最も高出力である。

各結晶端面での最高温度を含む水平方向の 1 次元温度分布を図 2 に示す。図の中央がグリーンレーザー光通過部に相当し、したがって温度も最高となっている。結晶端面内の水平方向での最高温度と最低温度の温度差は、長さ 5 mm の水熱法育成 KTP 結晶、長さ 10 mm のフラックス法育成 KTP 結晶、および長さ 15 mm のフラックス法育成 LBO 結晶の場合にそれぞれ 17.9°C、19.5°C、および 1.1°C である。

KTP 結晶の場合は、育成方法によらず結晶端面内の温度分布は約 18°C 以上と大きいのに対し、LBO 結晶の場合は結晶端面内の温度分布が KTP 結晶の約 18 分の 1 と小さい。グリーン出力あたりの温度差をまとめると表 1 となる。

このように、波長変換結晶内に温度分布が発生することは、波長変換結晶の熱レンズ、および波長変換時の位相不整合、動作の不安定さにつながる¹³。温度差と位相整合の不安定性の発生は結晶の特性に依存した検討を踏まえれば¹³、ここで試験された KTP、LBO いずれを用いてもグリーン出力 100 W 程度の発生は容易に見通すことがで

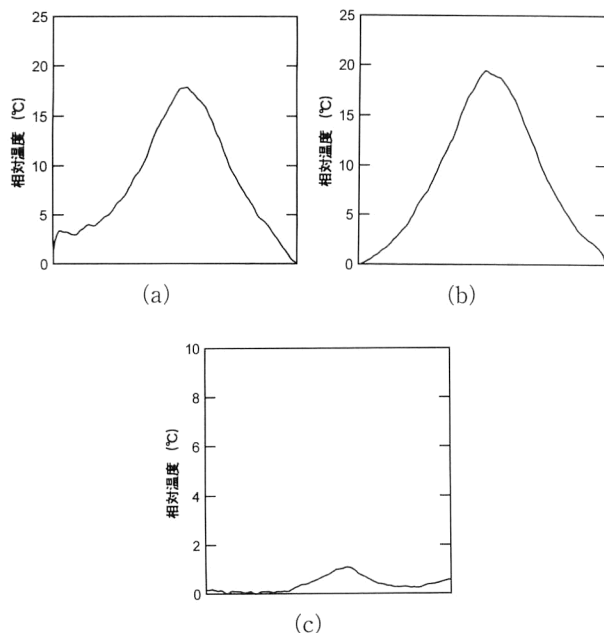


図2 グリーンレーザー光発生用結晶の端面温度分布。(a) 水熱法育成 KTP 結晶, 長さ 5 mm グリーンレーザー光出力 36 W, (b) フラックス法育成 KTP 結晶, 長さ 10 mm グリーンレーザー光出力 30 W, (c) フラックス法育成 LBO 結晶, 長さ 15 mm グリーンレーザー光出力 30 W.

きる。

現在の市販結晶はばらつきが大きく, 産業用途を想定した場合, 品質向上の余地が多い。ランダムに入手した市販波長変換結晶において, グリーン出力 100 W 程度が見通せたことから, 産業用途を想定した結晶の高品質化開発を行えば, 数百 W も展望できると考える。

5. 高出力紫外レーザー光発生構成

前章で見出したグリーンレーザー光発生用の波長変換結晶を用いたグリーンレーザーを用いた高出力紫外レーザー光発生の構成を図3に示す¹⁴⁾。グリーン光源としては, 三菱電機が開発した 100 W 級の LD 励起 AO-Q スイッチ共振器内部波長変換 Nd: YAG レーザー (AO-Q スイッチグリーンレーザー) を用いている。このレーザーは, Nd: YAG レーザーの 2 倍高調波 (波長 532 nm) を発生するレーザーであり, 繰り返し周波数 10 kHz, パルス幅約 70 ns, ビーム品質 $M^2 \sim 10$ のグリーンレーザー光を発生する。

AO-Q スイッチグリーンレーザーから発生したグリーンレーザー光は, 平凸レンズにより半径約 300 μm に集光さ

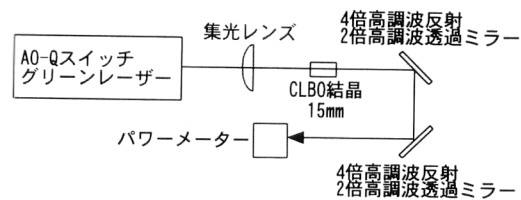


図3 高出力紫外レーザー光発生構成。

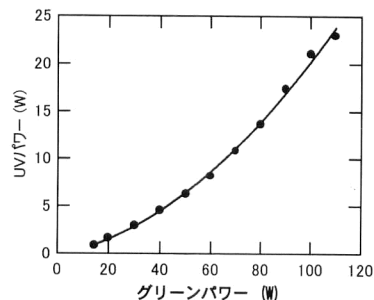


図4 カクハン育成 CLBO 結晶を用いた場合の高出力紫外レーザー光発生入出力特性。

れ, CLBO 結晶に入射される。CLBO 結晶により発生した 4 倍高調波 (波長 266 nm) 紫外レーザー光は, 波長選択ミラーにより, グリーンレーザー光と分離されて, パワーメーターで平均パワーを測定されている。CLBO 結晶は, 吸湿による劣化を防ぐため, 140°C で用いられている^{9,10)}。

CLBO 結晶は, 新育成方法カクハンにより育成したものと, 従来法により育成したものがあり, 育成方法の違いによる高出力紫外レーザー光発生の違いが調査されている。いずれの結晶も, ULPEN により, Type-I 方向に切り出し, 端面研磨を行っており, 素子の大きさは断面 6 mm \times 6 mm, 長さ 15 mm である。

6. 高出力紫外レーザー光発生試験結果

カクハン育成 CLBO 結晶を用いた場合の高出力紫外レーザー光発生の入出力特性を図4に示す。図の横軸は, CLBO 結晶に入射するグリーンレーザー光の平均パワー, 縦軸は CLBO 結晶により発生した紫外レーザー光の平均パワーで表している。この結晶を用いることにより, 300 nm 以下の紫外レーザーパワーの世界最高値である紫外パワー 23.0 W が発生する。入射グリーンパワーは 110 W であり, グリーンレーザー光から紫外レーザー光への変換効率率は 21% となる。また, 繰り返し周波数は 10 kHz, 入射グ

表1 グリーン発生特性まとめ。

結晶	グリーン出力 (W)	結晶端面温度差 (°C)	温度差/グリーン出力 (°C/W)
KTP 5 mm 水熱	36	17.9	0.50
KTP 10 mm フラックス	30	19.5	0.65
LBO 15 mm フラックス	30	1.1	0.036

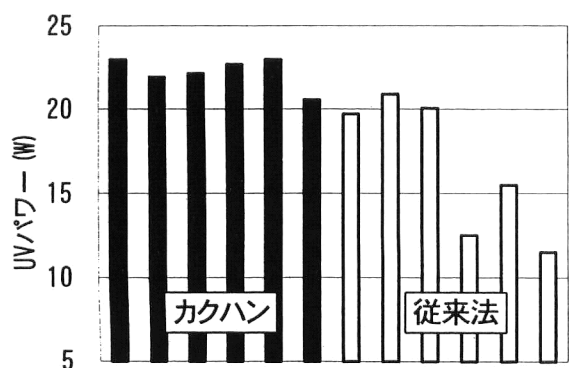


図5 各結晶による紫外レーザーパワーの最大値。

リン光のパルス幅は 69 ns, 紫外レーザー光のパルス幅は 54 ns である。20 W 以上の出力は 50 時間以上の動作でも安定に発生を継続できている。

この高出力紫外レーザー光発生試験で各結晶により得られた紫外レーザーパワーの最大値を図5にまとめ、結晶育成方法による高出力紫外レーザー光発生特性を比較する。カクハン育成 CLBO 結晶の場合、紫外レーザーパワーの最大値の平均値は 22.2 W, また、ばらつきも 21~23 W と小さい。いずれの結晶を用いても、入射グリーンパワー約 110 W で紫外パワー 20 W 以上を発生できている。一方、従来法育成 CLBO 結晶の場合、紫外レーザーパワーの最大値の平均値は 16.7 W と低く、また、ばらつきも 12~21 W と非常に大きい。

以上より、カクハン育成 CLBO 結晶を用いることによって、20 W 以上の高出力紫外レーザー光が安定に発生できることが確認できている。

紫外レーザーの最新技術として、半導体レーザー励起紫外固体レーザーを中心に取り上げ、低出力、低寿命の課題を克服できれば、理科学用途、産業用途において魅力的なレーザーになることを示した。

次に、世界最高出力を発生させる紫外固体レーザーの実験例を紹介し、これをもとに高出力化のための課題を検討した。

グリーン出力については、市販結晶を用いても、数百 W への出力向上も展望できると考える。ただし、このためには、波長変換が実現できる高ビーム品質の赤外レーザーの開発が欠かせない。これについては、実験室レベルでの開発が進んでいることから、さらに実用光源としての開発を着実に進める必要があると考える。

高出力紫外レーザー光の発生試験においては、最新の紫外変換結晶 (CLBO 結晶) を用いることにより、23.0 W の 266 nm 紫外レーザー光が安定に発生できている。しかも、

50 時間以上の動作も実現し、実用化としては入り口に立ったと結論できる。この出力は、理科学用途での各種試験はもちろん、産業用途としても適用できるレベルである。

CLBO 結晶は、開発初期は、このような特性は予想だにしないレベルにあった。産学連携のなかで、産業用途に必要な高い基準への到達を目指し、結晶、研磨、レーザー発生技術の各担当が、専門知識を駆使して開発を進めた 5 年近い長期の産学連携活動で、初めて今回の特性に到達した。結晶開発におけるこの種の活動はこれまでほとんど試みられていないことから、逆に現在市販されている多くのレーザー結晶・波長変換結晶についても、有望な少数に絞って集中的に開発を進めれば、産業用途に適用可能な結晶が新たに出現する可能性もあると考える。

以上を総合し、産業用途を想定した紫外レーザーの開発においては、固体レーザーの波長変換による紫外レーザーが、課題である低出力、低寿命を解決し、理科学、産業の広い分野で適用されていくものと展望できる。

本研究開発は、経済産業省の「フォトン計測・加工技術」プロジェクトの一環として、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託を受け、フォトンセンターの推進体制のなかで、大阪大学佐々木孝友教授、森勇介助教授、株式会社光学技研と三菱電機が実行した。

文 献

- 1) S. Fujikawa, K. Furuta and K. Yasui: "Highly efficient and high-quality beam generation of a diode-stacks-pumped Nd:YAG rod laser," *Proceedings of Conference on Lasers and Electro-Optics* (2001) pp. 422-423.
- 2) A. Giesen: "High power Yb:YAG thin disc laser," *Proceedings of The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics* (2001) pp. I548-I549.
- 3) R. M. A. Poprawe: "Perspectives and activities in German photonics R & D," *Proceedings of The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics* (2001) pp. I564-I565.
- 4) G. D. Goodno, S. Palese, J. Harkenrider and H. Injeyan: "High average-power Yb:YAG end-pumped zig-zag slab laser," *Proceedings of The Advanced Solid-State Lasers* (2001) pp. 2-4.
- 5) S. Konno, S. Fujikawa and K. Yasui: "200 W continuous-wave TEM₀₀ mode 1064 nm beam generation by a laser-diode-pumped Nd:YAG laser amplifier," *Proceedings of The Conference on Lasers and Electro-Optics* (2001) pp. 420-421.
- 6) Y. K. Yap, M. Inagaki, S. Nakajima, Y. Mori and T. Sasaki: "High-power fourth- and fifth-harmonic generation of a Nd:YAG laser by means of a CsLiB₆O₁₀," *Opt. Lett.*, **21** (1996) 1348-1350.
- 7) Y. K. Yap, Y. Mori, S. Haramura, A. Taguchi, T. Sasaki, K. Deki, Y. Ohsako and M. Horiguchi: "High power all-solid-state ultraviolet laser by CLBO crystal," *OSA TOPS vol. 10 Advanced Solid-State Lasers* (Optical Society of

- America, Washington, DC, 1998) pp. 10-13.
- 8) Y. K. Yap, K. Deki, Y. Kagebayashi, M. Horiguchi, Y. Mori and T. Sasaki: "A new technique to alleviate thermal dephasing of CsLiB₆O₁₀ crystal for improving conversion efficiency of a high-power solid-state UV laser," *OSA TOPS vol. 19 Advanced Solid-State Lasers* (Optical Society of America, Washington, DC, 1998) pp. 380-383.
 - 9) T. Kojima, S. Konno, S. Fujikawa, K. Yasui, K. Yoshizawa, Y. Mori, T. Sasaki, M. Tanaka and Y. Okada: "20-W ultraviolet-beam generation by fourth-harmonic generation of an all-solid-state laser," *Opt. Lett.*, **25** (2000) 58-60.
 - 10) 小島哲夫, 今野 進, 藤川周一, 安井公治: "CLBO 結晶を用いた高出力紫外レーザービームの発生", 第4回フォトシンプोजウム (2001) pp. 102-105.
 - 11) U. Stamm, W. Zschocke, T. Schroder, N. Deutsch and D. Basing: "High efficiency UV-conversion of a 1 kHz diode-pumped Nd:YAG laser system," *OSA TOPS vol. 10 Advanced Solid-State Lasers* (Optical Society of America, Washington, DC, 1997) pp. 7-9.
 - 12) A. Finch, Y. Ohsako, J. Sakuma, K. Deki, M. Horiguchi, Y. Mori, T. Sasaki, K. Wall, J. Harrison, P. F. Moulton and J. Manni: "Development of a high-power, high-repetition rate, diode-pumped, deep UV laser system," *OSA TOPS vol. 19 Advanced Solid-State Lasers* (Optical Society of America, Washington, DC, 1999) pp. 16-18.
 - 13) T. Kojima, S. Fujikawa and K. Yasui: "Stabilization of a high-power diode-side-pumped intracavity-frequency-doubled cw Nd:YAG laser by compensating for thermal lensing of a KTP crystal and Nd:YAG rods," *IEEE J. Quantum Electron.*, **35** (1999) 377-380.
 - 14) S. Konno, T. Kojima, S. Fujikawa and K. Yasui: "High-brightness 138-W green laser based on an intracavity-frequency-doubled diode-side-pumped Q-switched NdYAG laser," *Opt. Lett.*, **25** (2000) 105-107.

(2001年7月31日受理)