

氏 名 鈴木 祐 仁

学位（専攻分野） 博士(工学)

学位記番号 総研大甲第711号

学位授与の日付 平成15年3月24日

学位授与の要件 先導科学研究科 光科学専攻

学位規則第4条第1項該当

学位論文題目 紫外固体レーザーCe:LiCAFの励起源開発と評価

(励起紫外光源の開発と電子線パルス励起源の評価)

論文審査委員 主 査 助教授 中島 一久

助教授 猿倉 信彦

助教授 山本 樹

助教授 服部 利明 (筑波大学)

近年、高密度光メモリ、紫外線リソグラフィ、紫外線レーザー加工、レーザー医療、レーザーアブレーションを用いた CVD 等多くの分野で紫外光が必要とされるようになってきている。現在レーザーは高効率化、小型化、長寿命化が求められてきており、これらが重要な研究テーマとなっている。気体、色素レーザーは寿命が短く、固体レーザーは長寿命で装置の小型化、ならびに高出力化が可能である。そこで今ある気体、色素レーザーを固体レーザーに置き換えようとする動きが出ている。

我々のグループが近年著しい成果を上げている紫外固体レーザー結晶に $\text{Ce}^{3+} : \text{LiCaAlF}_6$ (Ce:LiCAF) がある。Ce:LiCAF は Nd:YAG レーザーの第 4 高調波 (266 nm) で励起可能であり、発振波長は 280 nm ~ 320 nm に及ぶ広い蛍光スペクトルを持ち、 115 mJ/cm^2 と比較的高い飽和フルエンスを持つ優れた紫外固体レーザー結晶である。これまでに我々のグループが行った研究において、Ce:LiCAF レーザーの高出力化に成功した例を報告している。最近行われた研究ではチャープパルス増幅システム (Chirped pulse amplification, CPA) による超短パルス高ピーク出力レーザーを紫外領域において世界で初めて構築することに成功した。CPA とは高ピーク出力の超短レーザーパルスを発生することができる有効な方法である。実際にチタンサファイア結晶を用いた CPA レーザーシステムによりテラワット (TW) レベルのピーク出力が実現可能となっていることから、紫外領域で発振する Ce:LiCAF-CPA レーザーシステムを更に高出力化することによって、TW レベルで発振可能な超短パルス高ピーク出力紫外レーザーも実現の可能性を帯びてくる。

超短パルス高ピーク出力紫外レーザーシステムを構築するには大きく分けて 3 つの方法がある。1 つはチタンサファイアレーザーを用いた波長変換による紫外光発生である。チタンサファイアレーザーの波長変換により発生する紫外光は、波長可変領域が広いというのが利点だが、変換効率が 20 % 程度とあまり効率が良くなく、パルス幅もナノ秒レベルまでしか到達しておらず、超短パルスと呼べる領域まで達成されていない。2 つ目は KrF エネルギーエキシマレーザーを励起光に用いた増幅システムである。この方法はエキシマレーザー自体が多くの問題を抱えており、波長可変性に乏しく利得帯域幅が狭いことから超短パルス化に向いておらず、ランニングコストが固体レーザーに比べて高いなどの点が挙げられる。3 つ目は全固体紫外レーザーである。特に我々が研究を進めている Ce:LiCAF を用いた増幅システムは、変換効率やランニングコスト等の面から考えると有用な装置であるといえる。

Ce:LiCAF レーザーも欠点は抱えている。その 1 つとして Ce:LiCAF を用いたレーザーの出力は、励起光源である Nd:YAG レーザーの第 4 高調波のエネルギー不足により制限されてきたことが挙げられる。この問題を解決することが TW 化するにあたって必要不可欠である。

Nd:YAG レーザーの第 4 高調波を高出力化する上で重要になってくるのは非線形結晶である。その中でも酸素とホウ素の組み合わせを基本構造に持つボレート系非線形光学結晶はバンドギャップの大きいものが多く、他のリン酸系結晶である KTiOPO_4 (KTP)、ニオブ酸系結晶の LiNbO_3 (LN) や KNbO_3 (KN) に比べて紫外域まで透明で、ダメージ損傷閾値が高いなどの特性を持つため、紫外光の発生に適している。代表的なボレート結晶と

して、 β -BaB₄O₄ (BBO)、LiB₃O₅ (LBO)、CsB₃O₅ (CBO)、CsLiB₆O₁₀ (CLBO)、KBe₂BO₃F₂ (KBBF)、Sr₂Be₂B₂O₇ (SBBO) などが挙げられる。しかしながらこれらの多くは潮解性があり、反射防止薄膜作成が難しいなど、デバイス化の際に特殊な技術や工夫を必要としている。さらに結晶成長が難しく、適当な大きさの高品質結晶が得られにくい材料もあるため、現在もなお新材料開発が行われている。

本論文で使用した紫外非線形結晶 Li₂B₄O₇ (LB4) は弾性表面波 (Surface Acoustic Wave:SAW) 基板として知られている結晶であった。LB4 の非線形光学結晶としての可能性は、1991 年に Nd:YAG レーザーの基本波 (1064nm) による第 2 高調波発生 (532nm) の報告のみで、特に非線形光学結晶として注目されてはいなかった。しかしこの材料が CLBO 程度の複屈折率 (0.054) を持つこと、加工、研磨が容易で耐湿性にも優れていること等から、紫外領域で波長変換特性を測定し、この結晶から Nd:YAG レーザーの第 4、ならびに第 5 高調波 (213nm) が発生可能であることを発見した。LB4 はチョクラルスキー法 (Czochralski method) により育成され、結晶成長技術も発展した現在では最大で直径 6cm の高品質な光学結晶を育成することが可能となった。また LB4 の短波長側の透過端は 170nm となっており、他の紫外固体レーザー結晶に比べて紫外光の吸収率が低いなどの利点がある。本論文では、TW-Ce:LiCAF-CPA レーザーシステム構築のためのパワー増幅モジュールの開発を目的とし、パワー増幅モジュール用励起光源として LB4 を用いた第 4 高調波の高出力化を試みた。またこの LB4 を用いた第 4 高調波の長時間耐久試験を行った結果を示す。また開発した励起光源を用いて同軸励起によるダブルパス型のパワー増幅モジュールを構築した結果について述べ、TW-Ce:LiCAF-CPA システム実現への可能性を示す。

論文審査結果の要旨

近年、リソグラフィ、レーザー加工、レーザー治療など高出力紫外光レーザーへの要求が科学技術の様々な分野で高まっている。本論文は、これらの要求を満たす高出力紫外固体レーザーの開発を目的として行った、新非線形光学材料を用いたパワー増幅モジュール励起光源の開発とその特性評価に関する研究を述べたものである。

本研究は、近年新たに発見された紫外レーザー結晶として優れた特質を持つ Ce:LiCAF を用いて、近赤外線領域で高出力、長短パルスかに成功しているチャープパルス増幅法により、紫外領域でもテラワット級(10^{12} W)の出力のフェムト秒レーザーを実現することを目標に掲げている。このために紫外固体レーザーの高出力化の障害となっている励起源のエネルギー不足の問題点を解決する必要性に着目し、新材料を用いた励起源の高出力かを試み、非線形光学効果によって起こる諸問題を解決する方策を考察して高効率励起光源の開発を達成した。さらにその高出力励起源を用いた紫外固体レーザーのパワー増幅モジュールを構築し、テラワット級紫外固体レーザー実現の可能性を明らかにした。

本研究の主テーマである励起源の開発において、Nd:YAG レーザーの第 4 高調波の高出力化のために従来使われている非線形光学結晶の欠点を補う紫外領域において優れた特性を持つ新たな結晶(LB4)を発掘し、第 4 次高調波発生用の非線形光学結晶に応用するという新しい試みに挑戦し、独自の波長変換方式を採用することにより高出力化に成功した。とくに高出力化において妨げとなる 2 行駆動の効果を抑制する、ユニークな温度制御方式を開発し、改良を加えることにより、最終的に高効率長時間安定な励起光源を完成した。本研究では、実際に開発された LB4 を用いた励起源を組み込んだ Ce:CAF レーザーのパワー増幅モジュールを構築し、パルス当たり 100ml の紫外レーザー（波長 290nm）の発振に至った。これは、パルス圧縮によりテラワット級紫外レーザーの実証を意味するものである。

本論文は、紫外固体レーザー開発の背景、励起光源開発のための非線形光学の理論的基礎について要領よくまとめられており、それら研究の背景を踏まえて、励起光源の開発数値目標を設定し、ほぼその目標を達成する結果をえた研究経過、実験結果が詳しく述べられており、実際にはじめて実用的な高出力紫外固体レーザーを開発した意義は大きい。著者の行った研究成果は、科学技術研究分野の紫外レーザーに対する要求に直接応えるものであり、今後更なる高出力化への展望を開いてくれる。ゆえに本論文は、博士学位論文として十分に相応しい内容であると判断した。