

佐々木孝友

大阪大学光科学センター・特任教授

真空紫外レーザー光発生用非線形光学結晶の開発

§1. 研究実施の概要

昨年度、フォトマスク欠陥検査用の連続波 199nm 光源に用いられる紫外光発生結晶 $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ (CLBO) の高品質化に成功し、高出力化・長寿命化の最終目標を達成することができた。一方で、パルス方式の紫外光源では CLBO からの出力ビーム形状の経時変化、出力低下が課題となっていた。本年度、異種元素添加を CLBO に対して試み、Al 元素を数百 ppm 含有し、かつ結晶性が良好な単結晶を作製することに成功した。この結晶は 266nm 紫外光発生時において、素子寿命が無添加結晶に比べて大幅に伸びることが明らかになった。波長 179nm の和周波発生を行う予備検討として、現行光源の波長とのちょうど中間にあたる 189nm 付近の真空紫外光発生を試み、短波長領域での各種結晶の位相整合特性、波長変換特性を明らかにした。本結果を踏まえた上で、次年度に 179nm 光発生に取り組む予定である。また、CLBO の高品質化に伴い、パルス方式の 199nm 検査光源では $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ (BBO) 結晶の寿命問題が顕在化している。本年度は、古川グループで開発してきた BBO 育成技術と、CLBO に対して導入してきた技術を組み合わせ、高品質 BBO の研究開発にも取り組んだ。

§2. 研究実施体制

(1) 「佐々木」グループ

- ① 研究分担グループ長: 佐々木孝友 (大阪大学光科学センター、特任教授)
- ② 研究項目
 - ・真空紫外光発生用結晶の開発とレーザー損傷耐性のメカニズム解明
 - ・波長 179nm 紫外レーザー光源の開発

(2) 「古川」グループ(株式会社オキサイド)

- ① 研究分担グループ長: 古川 保典 (株式会社オキサイド、代表取締役社長)
- ② 研究項目
 - ・育成結晶の評価技術・素子化技術の開発
 - ・レーザー損傷メカニズム解明に向けたデータ蓄積
 - ・実用化検討(大型化・高歩留まり化)

§3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(4-1)に対応する)

(1) 真空紫外光発生用結晶の開発とレーザー損傷耐性のメカニズム解明

昨年度開発した CLBO 素子¹⁾によって、フォトマスク検査用の連続波 199nm 光源の高出力化、長寿命化の最終目標は達成できたが、素子の劣化を防ぐには至らなかった。また、パルスレーザータイプのフォトマスク検査用 199nm 光源では、CLBO は 266nm 発生素子として使われているが、この種のレーザーでビーム形状の経時変化と、出力低下が生じることが明らかになった。そこで本年度は、パルス紫外光発生を利用して加速寿命試験を行った(図 1)。他の非線形光学結晶で光損傷抑制効果が知られている異種元素添加を CLBO に対して試み、Al 元素を数百 ppm 含有し、かつ結晶性が良好な単結晶を作製することに成功した。図 1 に示すように、Al 添加 CLBO では市販の CLBO と比べて出力低下が始まるまでの安定動作期間が大幅に延びることが明らかになった。異種元素添加した CLBO による紫外レーザー特性の変化は世界で初めて明らかにした結果であり、今後 Al 元素の取り込み状態や母材結晶への影響などを、基礎研究を通じて明らかにする必要がある。また、結晶内部の欠陥、損傷形成のメカニズムを解明するため、結晶のイオン伝導率を測定する系を構築し、評価に着手した。

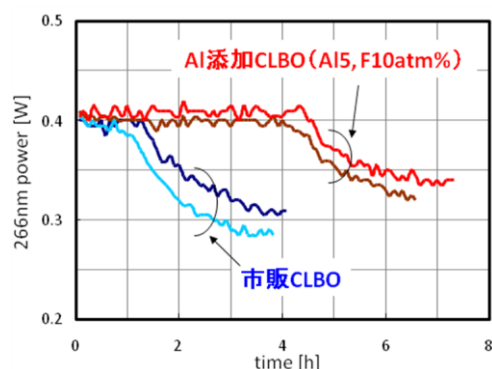


図 1 パルス 266nm 紫外光発生出力の経時変化

(2) 波長 179nm 紫外レーザー光源の開発

波長 179nm の和周波発生を行う予備検討として、目標波長と現在のフォトマスク検査光源の波長とのちょうど中間にあたる 189nm 付近の真空紫外光発生を試み、短波長領域での各種結晶の位相整合特性・波長変換特性を明らかにした。図 2 は Nd:YAG レーザーの 5 倍波 (213nm) と赤外光(横軸下段)の和周波により真空紫外光(横軸上段)を発生させた際の、各結晶の位相整合角の計算予測値(曲線)と実験値をプロットしたものである。本研究で開発した CsB₃O₅ (CBO)²⁾においても 190nm 光発生に成功したが(記載は省略)、過去の計算予測(179nm 発生に有利な位相整合条件)とは位相整合角が大きく異なっていることが明らかになった。そのため、この波長域では位相整合角を反映し、実効非線形光学定数が大きい CLBO が最も高効率に波長変換することが分かった(ただし、179nm 光の発生は吸収端波長の

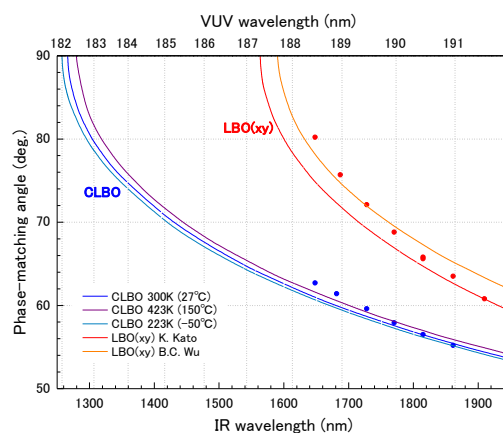


図 2 真空紫外光(189nm 近傍)発生時の CLBO、LBO 結晶の位相整合角

関係で不可)。LiB₃O₅(LBO)は計算予測と実験値が短波長側で異なっているため、この結果を考慮した上で次年度に別のレーザー系で 179nm 光発生を試みる予定である。また本結果を受け、179nm 光発生に適した屈折率を有する CBO 結晶を開発するため、結晶欠陥・屈折率を制御する研究に着手した。

§4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

●論文詳細情報

1. T. Kawamura, Y. Shimizu, M. Yoshimura, Y. Fukushima, M. Nishioka, Y. Kaneda, Y. Kitaoka, Y. Mori, and T. Sasaki, “Characterization of CsLiB₆O₁₀ crystal grown in a dry atmosphere,” Japanese Journal of Applied Physics, No.49, pp.065502-1-4 (2010.6). (DOI: 10.1143/JJAP.49.065502)
2. Z. Wang, D. Rajesh, M. Yoshimura, H. Shimatani, Y. Kitaoka, Y. Mori, and T. Sasaki, “Enhancement of the CsB₃O₅ (CBO) crystal quality by fast cooling after crystal growth,” Journal of Crystal Growth, Vol.318, pp.625-628 (2011.3). (DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2010.11.094)

(4-2) 知財出願

- ① 平成22年度特許出願件数(国内 1 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 4 件)