

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05317

研究課題名(和文) 擬似位相整合水晶を用いた高強度紫外パルス光源の研究

研究課題名(英文) Intense UV-pulse source using quasi phase matched quartz

研究代表者

石月 秀貴 (ISHIZUKI, Hideki)

国立研究開発法人理化学研究所・放射光科学研究センター・研究員

研究者番号：90390674

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：水晶は高い光学透過特性とレーザー光耐久性を持つ優れた光学材料であると同時に、非線形光学材料でもある。しかし複屈折性極小のため高効率波長変換での有効活用は通常では不可能である。しかし非線形材料の周期構造化で実現できるQPM波長変換を可能とするQPM水晶を実現できれば、真空紫外域まで出力可能で、従来のUV用波長変換結晶の欠点を克服する高安定で高耐久な高強度UVパルス光源が構築できる。

本研究では水晶を用いた擬似位相整合(QPM)波長変換素子について、その実現のための作成手法の提案と実証、および実現したQPM水晶を用いた波長変換を実現し、新たな高強度紫外波長変換素子材料としての水晶の検討を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来のガスレーザーによる紫外レーザー光源や、大型のランプ励起レーザー励起光源を置き換える、小型高安定な高出力全固体式UVパルス光源を実現するため、水晶という古いからあるが波長変換素子材料としては有効利用されてこなかった結晶を用いた擬似位相整合(QPM)に基づく波長変換素子を実現する。

研究成果の概要(英文)：Crystal quartz is one of major optical materials because of its excellent optical and mechanical properties. Also, crystal quartz is well known as a nonlinear material used for the first demonstration of second-harmonic generation (SHG). Although its practical use by conventional birefringent phase matching scheme has been prevented because of its small birefringence, an artificial control of nonlinear coefficient enables crystal quartz both efficient and arbitrary wavelength conversions, which is called a quasi phase matching (QPM).

In this research, we proposed and realized a stress-induced polarity inversion of crystal quartz using a QPM stamp method. Periodic polarity inversion of crystal quartz could be demonstrated using a periodically patterned QPM stamp. QPM-SHG characteristics was evaluated by a sub-ns pulse-laser-pumped experiments.

研究分野：非線形光学

キーワード：水晶 擬似位相整合 レーザー 紫外光 極性反転

### 1. 研究開始当初の背景

紫外線波長域光を出力する UV 光源の用途は近年ますます広がりを見せている。特に高強度コヒーレント光を発する UV パルスレーザーは、その高い空間分解能と光子エネルギーから、様々な材料の微細加工やマーキング、殺菌や洗浄、あるいはフォトリソグラフィ応用などの産業応用はもとより、質量分析用光イオン化や分光用光源など基礎研究分野でも広く活用が期待できる。しかし従来からの UV 光源、特にエキシマレーザーに代表されるガスレーザーによる UV 光直接発生には、有毒ガスの利用、装置の大型化、劣悪なレーザービーム品質など、多くの問題が存在する。

その一方、赤外パルスレーザーからの多段階の非線形光学波長変換を利用する手法が急速に進展している。第二高調波、第三高調波、第四高調波などで得られる可視/紫外レーザー光は、基本波光源の高ビーム品質と高安定性を引き継ぐことで、従来のガスレーザーのビーム品質問題を解消できる。さらに近年のランプ励起から半導体レーザー励起への転換による固体レーザーの小型化・高出力化とも相まって、波長変換に基づく小型高安定な高出力全固体式 UV パルス光源の開発が進展している。

### 2. 研究の目的

本研究では、光学耐久性および材料安定性に優れた水晶を用いた擬位相整合 (QPM) 波長変換素子を実現し、これを用いた高強度紫外域 (UV) パルス光源を構築するとともに、その高分解・高エネルギー特性を活かした微細加工や質量分析への適用検討を行うことを目的とする。

水晶 ( $\alpha$  石英) は、高い光学透過特性とレーザー光耐久性を持つ優れた光学材料であると同時に、非線形光学材料でもある。しかし複屈折性が極小のため波長変換用途での有効活用は通常では不可能である。しかし非線形材料の周期構造化で実現できる QPM 波長変換を可能とする QPM 水晶を実現できれば、真空紫外域 (波長  $< 200\text{nm}$ ) まで出力可能で、従来の UV 用波長変換結晶の欠点を克服する高安定で高耐久な高強度 UV パルス光源が構築できる。

この QPM 水晶を用いて実現される高強度 UV パルス光源は、高い空間分解能と光子エネルギーを備え、これを活かした光イオン化光源、微細加工、殺菌・洗浄や分光利用など、基礎研究から産業応用まで広範囲の分野での応用が期待できる。

### 3. 研究の方法

QPM 水晶の実現に必要な QPM 構造周期  $\Lambda$  は、水晶の屈折率分散式より計算できる (図 1)。例えば第 2 高調波発生に基づく 532nm 緑色光発生 (励起光 1064nm) では  $\Lambda=42$  ミクロン、同じく 266nm 紫外光発生 (励起光 532nm) で  $\Lambda=6$  ミクロンの微細構造が必要であり、短波長化に伴い高精細な QPM 構造が必要となる。しかし QPM に基づく波長変換では図 1 で示す基本周期  $\Lambda$  に対し奇数倍大きな周期構造  $\Lambda_m$  (高次構造周期  $\Lambda_m = m \times \Lambda$ ,  $m$ : 奇数) を利用しても、変換効率は低下するが波長変換が可能である。このため研究初期段階では作成の容易な高次構造での波長変換特性評価を行いつつ、並行して周期構造形成条件の最適化を図ることで周期構造の短周期化を実現し、それにより効率向上を試みるという手順をとる。

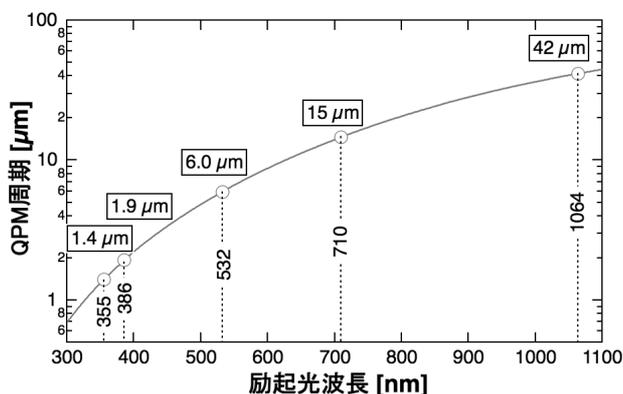


図 1 水晶の QPM 構造周期

この QPM 実現のための水晶の QPM 構造形成には、薄膜積層、結晶成長、バルク結晶の周期反転など、幾つかの手法がある (図 2)。特に高効率波長変換に着目する場合、その実現に必要な短周期構造形成を考慮すると、フォトリソグラフィ技術との組み合わせで短周期構造の取扱

が容易で大口径化にも繋がりやすい、バルク結晶の周期反転に基づく手法が最適と考えられる。また特に水晶では、圧力（応力）印加により結晶構造の反転が達成できることから、周期的応力印加法を基本としたバルク水晶結晶の周期反転が最適と思われる。

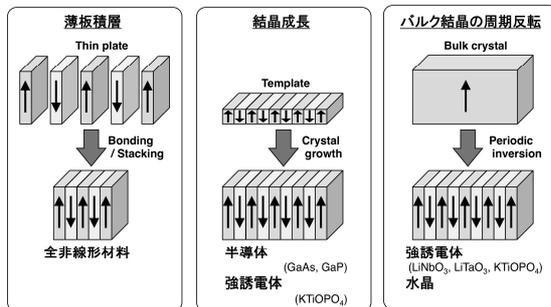


図2 QPM 構造形成手法

そこで本研究では、応力印加法の具体的なプロセス検討による QPM 水晶の実現と、これを用いた高強度 UV パルス光源の実現を最終目的とした。研究手順としては、以下のような計画であった。

研究所年度は、水晶への応力印加による周期構造形成の確認、および高精度構造実現のためのプロセス条件探索を行う。QPM 水晶の構造周期  $\Lambda$  は、532nm 光発生で 42 ミクロン、266nm 光発生で 6 ミクロンである。まず周期 100 ミクロン程度での構造形成確認から検討開始し、その後短周期構造化を図る。

研究 2 年目以降は、作成した QPM 水晶を用いた UV パルス光源を構築し、その特性評価を行う。申請者のグループでは、レーザー光パルス幅がサブナノ秒で高ビーム品質を持つ小型高輝度近赤外域光源（波長 1064nm）を研究開発しており、これを主たる初段光源として利用することでサブナノ秒 UV パルス光発生を行う。

#### 4. 研究成果

##### (1) 水晶の波長変換特性

水晶を用いた第 2 高調波発生 (SHG) における非線形分極  $P$  は、励起光  $E$  に対し水晶の非線形光学テンソル  $d$  を用いて以下で表される。

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_y E_z \\ 2E_z E_x \\ 2E_x E_y \end{bmatrix}$$

ここで、励起光が  $X$  軸伝搬 ( $E_x=0$ ) の場合、非線形分極成分はいずれも 0 となる。一方、 $Y$  軸伝搬 ( $E_y=0$ ) の場合は、

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x^2 \\ E_z^2 \\ 2E_z E_x \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} E_0^2 \cos^2 \theta \\ 0 \end{bmatrix}$$

と表され、 $X$  軸偏光の非線形分極成分  $P_x$  のみが得られる ( $\theta$ : 励起光偏光角、 $E_0$ : 励起光電界)。さらに  $Z$  軸伝搬 ( $E_z=0$ ) では、

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 \\ 0 & 0 & -d_{11} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ 2E_x E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} E_0^2 \cos 2\theta \\ -d_{11} E_0^2 \sin 2\theta \end{bmatrix}$$

となり、励起光偏光角  $\theta$  に依存した  $X$  軸および  $Y$  軸の両偏光の非線形分極を誘起できる。

つまり水晶を用いた SHG 実現には、 $X$  軸伝搬以外の配置とすることが必須要件である。

## (2) 水晶の旋光性

前記の波長変換特性とは別に、水晶は結晶  $c$  軸 ( $Z$  軸) 方向に光波が伝搬する際にその光波偏光方向が回転する「旋光性」という特性も併せ持つ。図 3 に旋光度  $\alpha$  の波長依存性を示す。 $\alpha$  は波長に大きく依存し、かつ短波長化に伴い増大することから、水晶を用いた波長変換では無視できない特性である。図 4 に波長 1064nm での偏光回転角の実測値を示す。結晶長に応じた偏光回転が確かに生じていることがわかる。

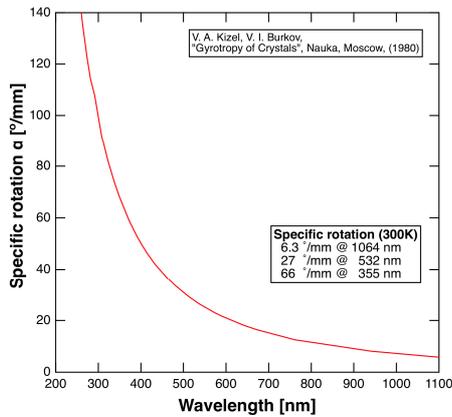


図 3 水晶の旋光度

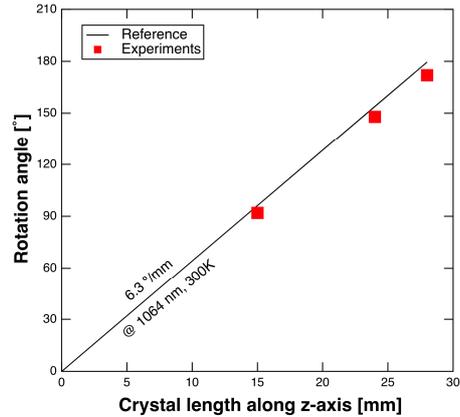


図 4 波長 1064nm での偏光回転角

非線形光学波長変換では、通常は変換素子の素子長増大で変換効率が向上する。しかし旋光性を伴う場合、入力励起光と出力波長変換光の双方の偏光が独立に回転するため入出力特性が複雑化すると共に、特に出力光偏光が非直線偏光化するという問題を生じる。

多くのコヒーレント光応用では、その直線偏光特性を重視する。このため本研究では、水晶の旋光性が無視でき、かつ 2 次の非線形光学波長変換が可能な、 $Y$  軸伝搬配置を基本構成として採用した。

## (3) QPM スタンプ法による水晶の極性反転

水晶の双晶構造の 1 つであるドフィーネ式双晶は、QPM に適する極性反転構造を有し、外部応力印加等で人為的形成可能である ( 図 5 )

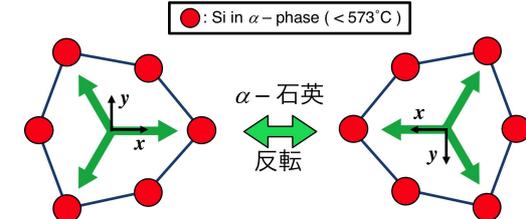


図 5 ドフィーネ式双晶構造 ( Si 原子のみ )

我々は、凹凸構造を有する構造形成用治具 ( QPM スタンプ ) を用い、これを水晶平板に接触させた状態で加熱加圧処理を行う QPM スタンプ法を独自に提案した ( 図 6 )。従来は水晶板表面に凹凸パターンを直接形成し、高温加圧処理する手法が報告されてたが、水晶を直接加工する点や水晶の加工異方性が問題であった。これに対し我々の QPM スタンプ法は水晶への直接加工が不要である他、スタンプの繰り返し利用によるプロセス簡素化や、再現性向上などが期待できる。

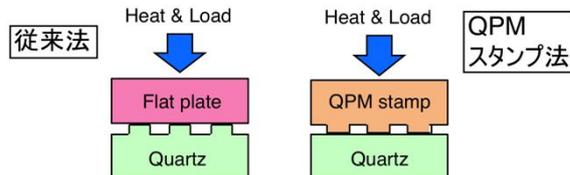


図 6 従来法と QPM スタンプ法

## (4) 微細周期反転構造形成

QPM スタンプ法の初期検討として、波長 1064nm 光の SHG に必要な周期  $\Lambda = 42$  ミクロンに対してその 3 次 QPM に相当する高次構造  $\Lambda_{m=3} \sim 124$  ミクロンの QPM 構造を形成した。図 7

にその表面写真を示す（構造はエッチング処理で可視化したものである）。現時点では反転条件の最適化が継続中であり、一部に反転不完全な領域が存在するものの、QPM スタンプ法により平板水晶に QPM に適した周期反転構造を形勢可能であることを実証した。

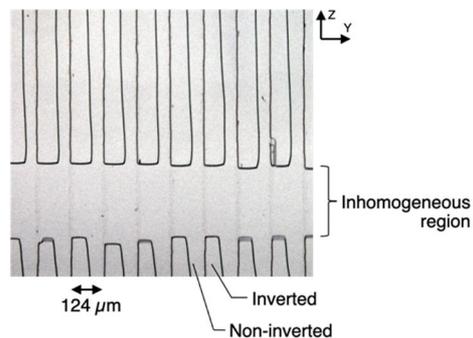


図7 従来法と QPM スタンプ

(5) 波長変換特性評価

作成した 3 次 QPM 構造を有する QPM 水晶を用い、波長 1064nm 光（0.7ns パルス幅）励起 SHG 実験を行った。図 8 にその入出力特性をバルク水晶の場合と比較して示す。バルク水晶に対して 1000 倍以上の SH 光が得られており、極性反転構造形成により QPM 波長変換が達成されていることが確認できた。図 9 は出力光強度の励起光偏光方向依存性である。Y 軸伝搬において予測される励起光偏光依存性が確認出来た。

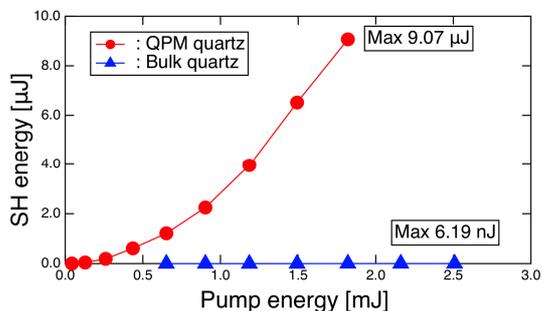


図8 SH 光出力特性特性（バルクと QPM）

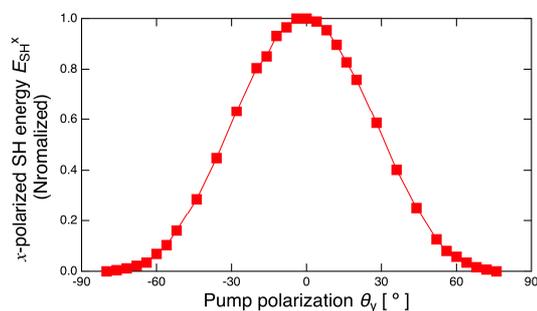


図9 励起光偏光依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ishizuki Hideki, Taira Takunori	4. 巻 28
2. 論文標題 Polarity inversion of crystal quartz using a quasi-phase matching stamp	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 6505 ~ 6510
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.386991	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 0件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 K. Yoshii, N. Arai, H. Ishizuki, and T. Taira
2. 発表標題 12 kW Peak Power at 266-nm Generation by QPM Quartz Device
3. 学会等名 The 10th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2021), ALPS-19-05（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石月秀貴, 平等拓範
2. 発表標題 KTP/PPLN-OP0による狭帯域2ミクロン光源の検討
3. 学会等名 応用物理学会, 2022年（令和4年）第69回春季学術講演会, 25a-D515-3
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hideki Ishizuki, Takunori Taira
2. 発表標題 Characterization of QPM quartz device fabricated by a stamp method
3. 学会等名 The 9th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2020), ALPS15-05（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hideki Ishizuki, Takunori Taira
2. 発表標題 Stamp method for QPM quartz fabrication
3. 学会等名 Mid-Infrared Coherence Sources (MICS), in High-brightness Sources and Light-driven Interactions Congress, MTu3C.1 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ishizuki Hideki, Taira Takunori
2. 発表標題 Polarity inversion of crystal quartz using a QPM stamp
3. 学会等名 Advanced Solid-State Lasers 2019 (ASSL2019), AW1A.5 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石月秀貴, 平等拓範
2. 発表標題 QPMスタンプを用いた水晶の極性反転
3. 学会等名 応用物理学会第80回秋季講演会, 20p-E203-4
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石月秀貴, 平等拓範
2. 発表標題 QPMスタンプを用いた水晶の極性反転に関する検討
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第40回年次大会, B07-22a-III-04
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 石月秀貴, 平等拓範
2. 発表標題 QPM水晶の波長変換特性に関する検討
3. 学会等名 応用物理学会第67回春季講演会, 12p-B508-14
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 水晶素子及びその製造方法、並びに水晶素子を含む光発振装置	発明者 石月秀貴、平等拓範	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2019-160502	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関