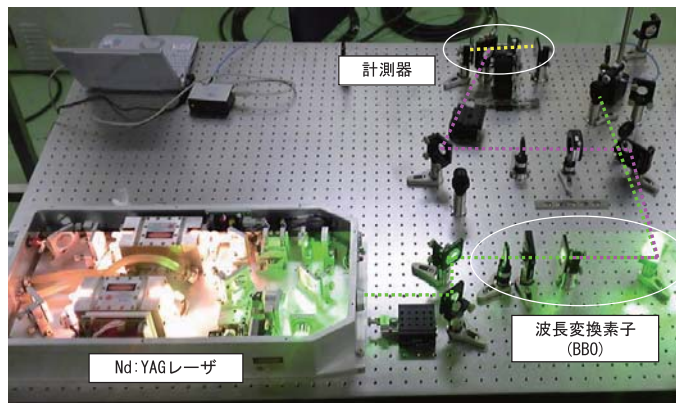


紫外光波長変換における第4高調波発生用結晶の最適長さの解析

Numerical Analysis of Optimal Length of FHG Crystal for Wavelength Conversion into UV Light



井上典洋	Norihiro Inoue	①
大淵隆文	Takafumi Ofuchi	①
中山耕一郎	Koh-ichirow Nakayama	①
福田直晃	Naoaki Fukuda	②
滝谷俊夫	Toshio Takiya	②
熊谷寛	Hiroshi Kumagai	③

あ ら ま し

太陽電池の電極や光吸収層の材料の進化に対応するため紫外波長域のレーザー光が必要となっている。レーザー光が短波長になると、波長変換結晶でのレーザー光の吸収率の増大により、変換効率の低下が起こることが知られている。我々は、結晶内部の温度分布と位相不整合による変換効率の低下の関係を、熱伝導方程式とMaxwell方程式とを連成させることで解析する手法を考案した。解析手法の妥当性を確認するために、BBO結晶によるNd:YAGレーザーの第4高調波発生を行った。これにより、レーザー強度と結晶長さの相互関係が波長変換に及ぼす影響を定量的に把握でき、最適な結晶長さの選定を行う手法として期待できる。

Abstract

The laser beam is a requirement for UV light region to correspond to evolution in the light-absorbing layer and the electrode material of the solar cell. It is known that conversion efficiency decreases due to the increase in the absorption rate of light in a nonlinear optical crystal when the wave length of light becomes shorter. We have devised a method that couples the Maxwell equation with the heat conduction equation to analyze the relationship between reduction in conversion efficiency due to phase mismatch and temperature distribution inside the crystal. To confirm the validity of the analysis, we carried out the fourth harmonic generation of laser light through the BBO crystal. This method allows a quantitative assessment of the effect of the relationship between light intensity and crystal length on wave length conversion, and can be expected to serve as a technique for selecting the optimum crystal length.

1. 緒 言

最近、大型太陽電池パネルのパターン加工に、固体レーザーが利用されるようになっており、当社もすでに固体レーザーによるレーザーパターンニング装置を商品化している。しかし、発電効率の向上を目指した回路パターンの微細化に伴って、レーザー波長のさらなる短波長化が求められている。また、スクライブに際しては電極や光吸収層を構成する材料の進化によって、より高強度のUV光が必要となっている。

一方、パターン加工に用いられる波長 $1\mu\text{m}$ の固体レーザーでは、第2高調波発生 (Second Harmonic Generation, SHG)、第4高調波発生 (Forth Harmonic Generation, FHG) のために種々の非線形光学結晶が利用されている。特に、第4高調波への変換技術はUVレーザー光の各種応用にとって重要であり、現状ではCLBO、LB4、BBO、KDPなどの結晶が利用されている。しかし、これらの結晶では、固体レーザーの大出力化、及び短波長化に伴い、レーザー光の吸収量増加による結晶内の発熱が問題となっている。

レーザー光を有効に利用するためには、このような熱の問題を解明することによって効率的な温度制御方法を考案することが重要であり、これまでにいくつかの研究が試みられている。例えば、Eimerlら^①はBBO結晶において、温度上昇が波長変換に及ぼす影響を

① Hitz日立造船(株) 事業・製品開発本部 技術研究所 精密研究室

② Hitz日立造船(株) 事業・製品開発本部 技術研究所 精密研究室 博士(工学)

③ 大阪市立大学 大学院工学研究科 教授 博士(工学)

理論的に解析した。また、BBO結晶長さを調整することで第2高調波を安定化し、波長変換システムを最適化する研究がKangら^[2]によって、KDP結晶の波長変換効率に対するレーザ強度と結晶長さの影響がLiら^[3]によって詳細に解析されている。しかし、結晶中の熱解析を波長変換解析と連成させ、レーザ強度と結晶長さの相互関係が波長変換効率に及ぼす影響を体系的に論じた研究は見当たらない。そこで本稿では、UV透過特性、非線形光学定数、損傷しきい値がいずれも高い結晶として利用されているBBOをFHG結晶として選び、Maxwell方程式に基づいた結晶中の電磁波伝播計算、及び、熱伝導方程式に基づいた結晶中の温度上昇計算の連成シミュレーションによって波長変換効率を計算する。また、シミュレーションの妥当性を確認するためにNd:YAGレーザのSHG光を用いてFHG実験を行い、計算結果との比較を行う。

2. 基礎方程式と計算方法

2.1 2波結合方程式 ここでは、結晶中の電磁波の伝播についてMaxwell方程式を元にして解析的に扱うことにする。

今、結晶に入射するレーザ光の光電場による電界を E_1 とすると、その伝播は次式によって表わされる。

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} E_1 - \varepsilon\mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} E_1 = 0 \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 x は光の伝播方向距離、 t は時間、 ε は結晶の誘電率、 μ_0 は真空透磁率である。一方で、入射光が結晶中を伝播する間に、その非線形効果によって非線形分極 P_2 が発生する。この分極によって生じた新たな電界を E_2 とすると、その伝播は次式で表わされる

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} E_2 - \varepsilon\mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} E_2 = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P_2 \quad \dots\dots\dots (2)$$

電界強度を複素振幅の式で表わし、式(1)および式(2)に代入して解くと、入射光と出射光の波長に対応する複素振幅の伝播方程式が得られる。

入射光をNd:YAGレーザの第2高調波、出射光を第4高調波として伝播方程式を連立させて解くことによって、結晶中で発生する第4高調波の成長の過程が解析できることになる。

2.2 熱伝導方程式 結晶中の光伝播における自己吸収によって発熱が生じる。この時、単位時間、単位体積あたりの発熱量を w [W/m³]とすると、結晶中の熱伝導の方程式は、

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = k \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + k \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + w \quad \dots\dots\dots (3)$$

のように表わされる。ここで、 ρ は結晶の密度、 c は熱容量、 T は温度、 k は結晶の熱伝導率、 x は光軸方向距離、 y は光軸と直角方向の距離、 t は時間である。発

熱量 w は自己吸収による光強度の減衰率から次式のように見積もられる。

$$w = -\frac{dI}{dx} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 I は結晶中の光強度[W/m²]である。

2.3 結晶の物性 前節までに述べたように、波長変換解析を行うためには、屈折率や吸収係数などの光学物性、熱伝導率や熱容量などの熱物性が必要である。

本研究で使用したBBO結晶の基本光学特性を表1～3に示す。表1は、解析上最も基本的となる非線形光学定数を含む各種物性値である^[1]。表2はいわゆるセルマイヤー係数であり、各波長に対する正常及び異常屈折率の値を与えている^[2]。これらの数値はいくつかの文献から求められるが、吸収係数についてはSandia National Laboratoriesで開発された非線形光学結晶ソフトウェアSNLO^[4]から引用した。SNLOではBBO結晶の波長に対する透過率の分布を提供しているが、これは屈折率による表面反射の効果を除去した数値である。したがって、これらの透過率の数値より直ちに吸収係数が求められる。実際の結晶では耐潮解性コーティングなどの反射損失があり、実験との比較においてはこれを考慮しなければならない。

表1 BBO結晶の光学物性及び熱物性

Nonlinear coefficient	2.00×10 ⁻²³ [Fm ⁻¹]
Density	3840 [kgm ⁻³]
Specific heat at 298K	490 [Jkg ⁻¹ K ⁻¹]
Thermal conductivity at 293K	1.60 [Wm ⁻¹ K ⁻¹]
Absorption coefficient for 532nm	0.269 [m ⁻¹]
Absorption coefficient for 266nm	10.26[m ⁻¹]

表2 BBO結晶のセルマイヤー係数

	A	B μm ²	C μm ⁻²	D μm ⁻²
n_e	2.3730	0.0128	-0.0156	-0.0044
n_o	2.7405	0.0184	-0.0179	-0.0155

表3 BBO結晶の屈折率に関する温度依存性

λ (μm)	$dn_e/dT \times 10^6$ [K ⁻¹]	$dn_o/dT \times 10^6$ [K ⁻¹]
1.0140	-9.76	-16.64
0.5790	-9.42	-16.35
0.4047	-8.84	-16.83

表2中の数値は次式における定数を表している。

$$n^2 = A + \frac{B}{\lambda^2 - C} - D\lambda^2 \quad \dots\dots\dots (5)$$

また、表3は、今回の熱解析を実施するにあたって

必要な屈折率の温度変化率である⁽³⁾。屈折率は一般に温度の関数となり、次式

$$n(T) = n_{T=T_0} + \frac{dn}{dT} \Delta T \quad \dots\dots\dots (6)$$

によって表される。ここで、 ΔT は温度 $T = T_0$ からの変化量である。

2.4 計算モデルと計算方法

すでに述べたように、レーザー照射中の自己吸収によって結晶内で発熱が起こる。その温度変化により屈折率が影響を受けると、位相整合角がシフトすることによって自己吸収自体が変化する。一方で、ここで発熱する熱量は結晶表面から放熱するが、発熱が定常的に放熱されるような状態になるには一定の時間が必要である。したがって、1パルスの解析では定常解が得られず、定常解を求めるためには、結晶が熱平衡状態となるまでパルスの入力を繰り返さなければならない。

入射光の減衰と変換光の成長を計算するためには、入射光と変換光の伝播方程式の連立微分方程式を解くことによって複素振幅を求めなければならない。次に、結晶中の光強度の総量を計算する。即ち、次式

$$I = \frac{\epsilon_0 c E^2}{2} \quad \dots\dots\dots (7)$$

より、結晶中の光強度を求めて、式(4)に代入して発熱量を計算する。発熱量が求められたら式(3)に基づいて温度分布を計算し、定常解を求めればよい。

以上、自己吸収による発熱を考慮した波長変換効率の計算に関する準備がすべて整った。結晶を円筒状とした計算モデルを図1に示す。この円筒の中心軸は光軸に等しく、レーザー照射部は図において斜線の領域である。

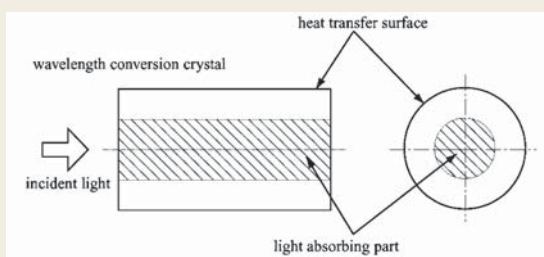


図1 計算モデル

表4 計算条件

素子: β -BBO結晶		
半径	6.0mm	(メッシュ寸法0.3mm/メッシュ数 20)
長さ	2.0, 4.0, 6.0mm	(メッシュ寸法0.3mm/メッシュ数 20)
周囲との熱伝達係数	側面(空気冷却)	100.0W/m ² ·K
	上面(金属支持)	10000.0W/m ² ·K
レーザー		
波長	532nm	
ビームパルス幅	10ns	
繰り返し周波数	10Hz	
ビーム半径	3.0mm	
パワー密度	2.0×10 ¹¹ , 4.0×10 ¹¹ , 6.0×10 ¹¹ , 8.0×10 ¹¹ , 1.0×10 ¹² W/m ²	
平均出力	0.566, 1.13, 1.70, 2.26, 2.83W	
計算パラメータ		
時間ステップ	10ns	
初期温度	結晶 20.0°C	
	周囲 20.0°C	

このモデルを使用した実際の計算条件を表4に示す。また、本解析方法を図2の計算フローに示す。

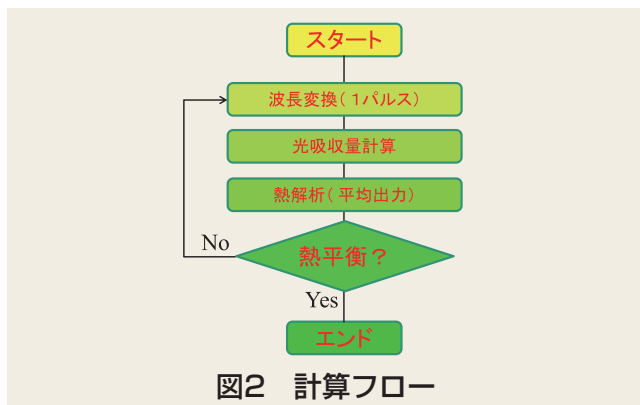


図2 計算フロー

まず1パルス分の波長変換解析を行い、その結果に基づいて光吸収量を求める。その光吸収量に対応した発熱による熱解析を、次のパルスまでの時間内に行なう。これを多数パルス回数繰り返しながら、算出された結晶温度と前回パルス時の温度を比較して温度平衡に達したか否かを確認する。温度平衡に達した場合は、それを定常解と考える。

3. 計算結果

3.1 熱平衡到達時間

図2で示したように、本研究においては熱平衡に達するまで繰り返し計算を行う。一例として、結晶長さ4mm及び6mmに対してレーザー強度が1.0×10¹²W/m²の場合の熱平衡過程を図3に示す。これは結晶中心部の温度変化であり、パルス毎に温度が上昇していき、やがて温度平衡に達していく様子がわかる。図には1パルス毎の温度変化分を同時にプロットしているが、本計算ではある一定の温度変化分を温度平衡に達したか否かの判定基準として用いることにする。この基準値を1.0×10⁴K / pulseとすると、l=4.0mmの場合92sで温度平衡に到達しており、レーザー照射時間100sで十分ということになる。結晶長さl=6.0mmの場合も168sで飽和しており、今後の計算では200パルスを温度平衡に達するための基準パルス数と定めた。

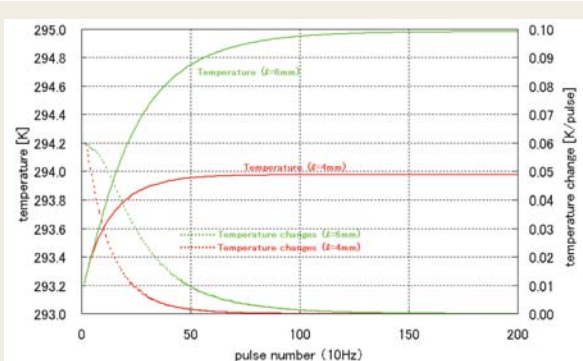


図3 熱平衡計算結果

3.2 結晶中の光強度分布と波長変換効率

ここでは、伝播方程式を具体的に解いて、FHGの波長変換効率を計算する。結晶長さl=6.0mmの場合に対し

て、結晶媒質中の入射光である第2高調波及び変換光である第4高調波の強度分布を計算した例を図4に示す。

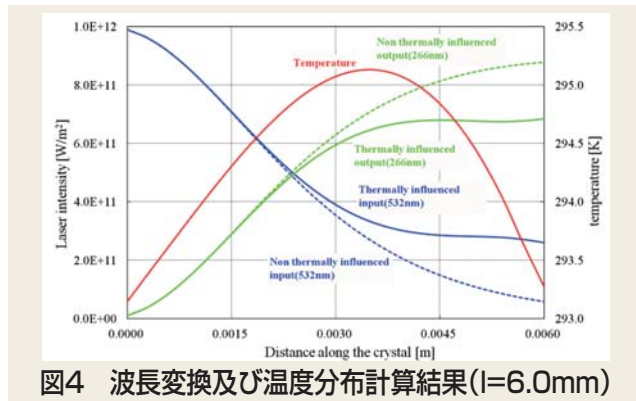


図4 波長変換及び温度分布計算結果($l=6.0\text{mm}$)

図の左端は結晶の光入射面であり、ここでは入射光の強度が100%であるが、結晶内部に進むにしたがって第4高調波が生成し、入射光が消耗していく様子がわかる。同じ図には中心軸上における平衡状態の温度分布を示している。温度の最大値はおよそ $x=3.5\text{mm}$ で生じており、やや後方に偏った分布となっている。これは、結晶の後方部分で第4高調波の発生が増加しており、自己吸収による発熱量が多くなることによって説明できる。グラフの最初と最後で温度が低下しているのは、結晶表面での放熱の影響である。図には、自己吸収による発熱を考慮しない場合と考慮した場合の変換効率を同時にプロットしている。 $x=2.0\text{mm}$ よりから実線と破線の乖離が始まっており、発熱を考慮した場合は変換効率が大幅に低下している。この時の最大温度上昇は約2Kであり、変換効率の低下が温度により影響を受けることが伺える。結晶長さ $l=4.0\text{mm}$ についても計算を行ったが、温度上昇の最大値は0.85K程度であり、そのときの変換効率への影響は非常に小さく、0.1%以下であった。一般に変換効率の低下は、ウォークオフ角、熱レンズ効果、非線形屈折率変化、自己吸収等の要因から位相整合角がシフトすることによって生ずるが、今の場合次節でも述べるように、これらの要因よりも吸収による温度変化が招く屈折率の

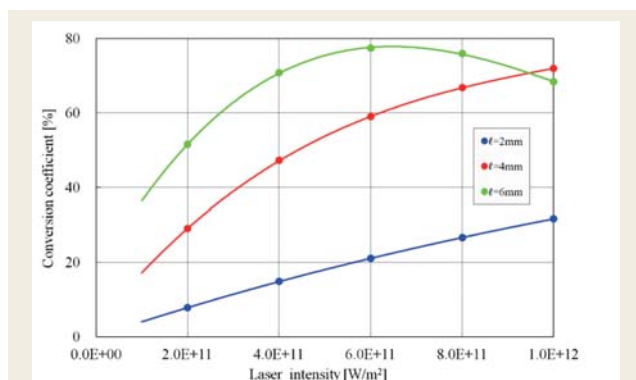


図5 波長変換効率に及ぼすレーザー出力の影響(計算結果)

変化が効いているようである。

いずれの結晶長さに対しても、波長変換効率は入射

レーザー光強度によって影響を受ける。本研究では、いくつかの光強度に対して波長変換効率を計算し、その結果を図5にまとめた。図によると、結晶長さが大きいほど、また光強度が高いほど変換効率が向上する傾向が見られる。ただし、 $l=6.0\text{mm}$ の場合は、光強度が高くなりすぎると変換損失が大きくなり効率が低下することがわかる。即ち、結晶の最適長さは変換長さによる利得と熱影響による損失のバランスによって決定される。

4. 討論

4.1 位相不整合の影響 まず、位相不整合による損失について考える。位相整合条件は、結晶の複屈折現象を利用した複屈折位相整合 (Birefringent Phase Matching: BPM) という方法によって満たされる。結晶の屈折率における入射角依存性は、常光線に対しては無く、異常光線に対しては現れる。したがって、入射光が常光線になるように、かつ、変換された出射光が異常光線になるように偏光状態を調整した上で入射角度を調整すれば屈折率を一致させることができる。即ち、入射角度を θ_i とすると、屈折率 n との関係は次式のように表わされる。

$$\frac{1}{n_e^2(\theta_i)} = \frac{\cos^2 \theta_i}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta_i}{n_e^2} \quad \dots \quad (8)$$

この時、入射光の波数 k_1 と変換された出射光の波数 k_2 との差

$$\Delta k = k_2 - 2k_1 \quad \dots \quad (9)$$

が零になるように光軸と結晶軸の傾きを決めることができる。BBO結晶の場合、Nd:YAGのFHGに対して位相不整合の角度許容幅はFWHMで $190 \mu\text{rad}\cdot\text{cm}$ となる。

4.2 熱レンズ効果の影響 レーザ光の空間分布は完全なトップハット形状と仮定しており、前節の変換効率計算では、結晶内部の光軸上の温度を代表温度として用いている。しかし、このビームによって得られる結晶中の実際の温度分布は周囲への熱拡散の影響により完全なフラットトップではない。結晶長さ

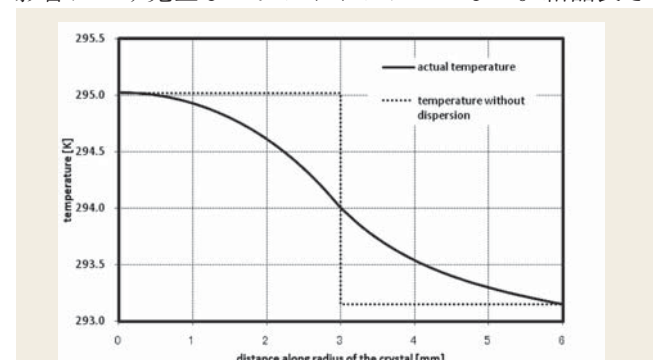


図6 結晶中心部の温度分布

$l=6.0$ mmに対して、 1.0×10^{12} W/m²のレーザを入射させた場合の結晶中心部における温度分布を図6に示す。

この温度分布によって熱レンズ効果が発生し、位相不整合を招く恐れが生じる。ここでは、この熱レンズ効果の影響について考察する。

図6に示した温度分布より計算した屈折率分布を図7に示す。

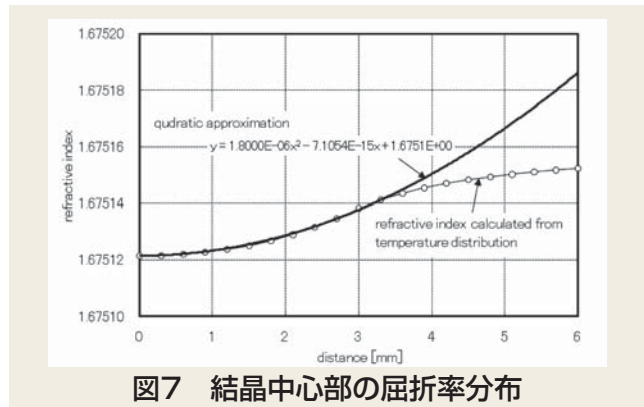


図7 結晶中心部の屈折率分布

表3で示したように、BBO結晶の屈折率の温度依存性は温度上昇に対して負の勾配を持つ。したがって、レーザ照射中心から周囲へ行くほど屈折率は大きくなる。この結果、熱レンズ効果によりレーザビームは発散する傾向を示す。一般に、屈折率分布 n は半径方向 r に対して

$$n(r) = n_{r=0} \left(1 + \frac{2r^2}{b^2} \right) \dots\dots\dots (10)$$

のように表される。ここで b は定数である。この時、熱レンズ効果による偏向角 θ_t は、

$$\theta_t = \tan^{-1} \left(\frac{R}{f} \right) \dots\dots\dots (11)$$

と計算される。ここで、 R はレーザ光の半径、 f は熱レンズ効果によって生じたレンズの焦点距離であり、次式で表される。

$$f = \frac{b^2}{4n_{r=0} L} \dots\dots\dots (12)$$

式(10)における b は1732と見積もられ、これを式(11)に代入すると偏向角 θ_t は87 μ radとなる。

4.3 ウォークオフ角の影響 結晶の複屈折性によって、異常光線のポインティングベクトルは入射光に対して偏向角 δ を持つ。

入力レーザのビーム径が小さい場合、発生する高調波ビームと入力ビームは、結晶中にてウォークオフ角 δ で分れ、変換効率の低さの原因となる。したがって、集光されたビームや共振器内高調波発生では、ウォークオフが変換効率を抑制する要因となる。位相整合角を θ とすると、ウォークオフ角 δ は

$$\tan \delta = n_e(\theta) \left\{ \left(\frac{1}{n_e^2} - \frac{1}{n_o^2} \right)^2 \right\}^{1/2} \frac{\tan \theta}{\tan^2 \theta + 1} \dots\dots (13)$$

によって表される。ここで、 n_e 、及び、 n_o はそれぞれ、異常光線、及び、正常光線に対する屈折率である。BBO結晶の場合、波長532nm、及び、波長266nmに対して、それぞれ、73.09mrad、及び、85.30mradとなる。

4.4 パルス形状の影響 一方で、波長変換効率はパルスの時間変化にも影響される。即ち、レーザ光のパルス形状は矩形波と仮定したが、パルス形状の違いによっても波長変換効率が異なることが予想される。例えば、ガウス分布のように裾広がりを持つ分布では、波長変換に寄与できるほどの強度を持たない光が裾野部分に存在するため、総変換効率が低下する。したがって、微小時間毎に波長変換された光強度をカウントし、時間平均を取りパルス毎の変換効率を算出する必要が生じる。そこで、ここでは実際に実験に使用するレーザ光のパルスをフォトダイオードで測定し、計算における入射光として取り込むことにした。測定したパルス形状を図8に示す。

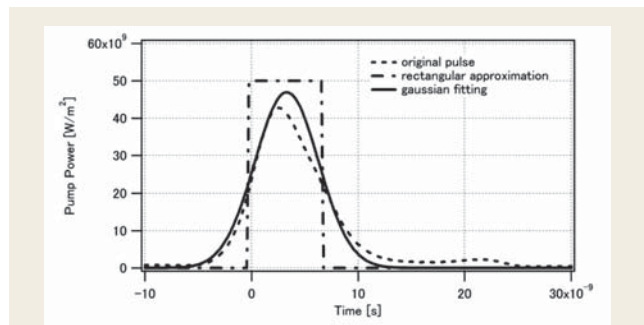


図8 レーザパルスの近似モデル

実際のパルスは図中の破線で表わされているが、計算上の便宜によりこれを実線のガウス分布で近似した。また、参考のために矩形波近似したパルスを一点鎖線で示す。これらは、いずれもレーザ光の1パルス当たりのエネルギーが一致するように規格化されている。

矩形波近似及びガウス分布近似による波長変換効率を入射光強度に対して計算した結果を図9に示す。

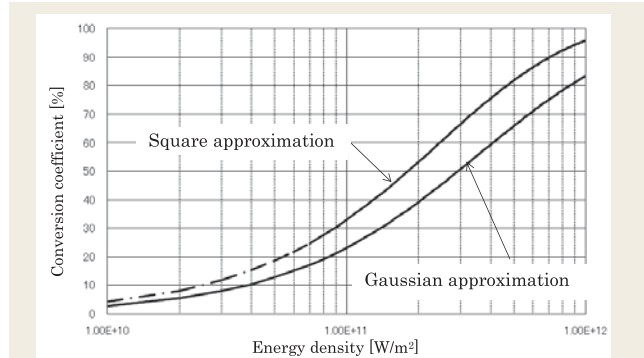


図9 波長変換効率に及ぼすレーザパルス近似モデルの影響

入射光強度に対して波長変換効率は単調増加するが、矩形波近似の方がその勾配は大きい。現実には、矩形波に近いほど変換効率が高くなることが推察される。ガウス分布近似による波長変換効率の低下は矩形波近似に対して10%程度である。

4.5 実験値との比較 波長変換解析の妥当性を実証するために次に示す実験を実施した。レーザ発振器から出射された光は波長板及び偏光ビームスプリッターを経て出力調整された後に、テストサンプルであるBBO結晶に入射する。結晶を通過した光は、波長変換された光だけダイクロックミラーによってパワーメータに導かれる。パワー測定は出力が安定した後、10分間の計測データより統計処理を行なうことによって評価した。また、光学系に挿入された光学部品による光の損失はあらかじめ測定し、以後の実験データの整理中にこれらを考慮して結晶の前後での波長変換効率を算出した。このようにして求めた波長変換効率をレーザ光入射強度に対してまとめたグラフを図10に示す。

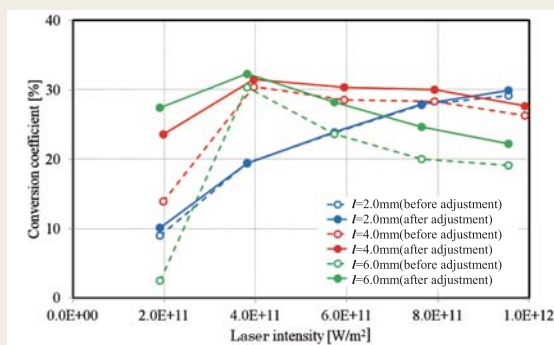


図10 波長変換効率に及ぼすレーザ出力の影響(実験値)

図には結晶長さをパラメータとして整理してあるが、いずれも最大30%程度の変換効率を得られた。最適な結晶長さは入射光強度に依存し、結晶長さが小さいほど高い入射光強度に対して最適となる傾向を示した。これは、厚い結晶では波長変換の距離を稼げるが、前節で述べた理由により結晶中の温度勾配が大きくなって屈折率の変化を引き起こすからである。また、図5と比較すると結晶長さが小さいほど計算値との一致が良くなる。熱影響がある場合は、実際の結晶表面の熱的境界条件を推定することが困難なため、実験と計算の正確な一致は得られない。今後、結晶の温度計測、レーザ光の吸収係数の計測を行うことによって熱解析の妥当性を検証していく必要がある。

5. 結言

BBO結晶を用いた第4高調波変換素子の設計に向けて、結晶中の温度分布と位相不整合による変換効率低下の関係を解析により定量的に把握した。また、本計算で得られた結晶中の温度分布は、入射レーザ光の吸

収だけでなく、結晶中の波長変換部位が局所的に関係していることが確認できた。したがって、熱影響を受けた後の位相不整合をチューニングするためには、積極的な結晶の冷却が必要であることを示唆した。これらの結果、結晶の熱解析を行い最適な入射光強度と結晶長さを選定することで、BBO結晶が十分効率的に利用できることが分かった。

また、本計算の結果、レーザ光の自己吸収を考慮した波長変換解析において、最終的に熱平衡状態が現れ、解が収束することを確認した。波長変換効率に及ぼす結晶長さの定量的検討を行うことによって、一般的な波長変換結晶の選定が可能となった。一方、波長変換と熱吸収の連成解析手法(軸対称2次元熱解析)による解析結果を実験値と比較した。その結果、本解析手法の妥当性を結晶内温度分布、レーザパルス近似、熱レンズ効果、ワークオフ角を考慮することによって確認した。

最後に、本研究では、非線形光学定数、吸収係数、屈折率、熱伝導率等のデータがあれば、結晶の違いによる波長変換効率の性能予測が可能となった。今後は、結晶データベースをさらに充実し、最適な材料予測が可能となるように準備するとともに、連続発振レーザへの適用を検討していく予定である。

参考文献

- [1] H. J. Eimerl et al., "Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate", J. Appl. Phys. 62-5, 1987, 1968-1983
- [2] J. Kang et al., "Design of a highly stable, high-conversion-efficiency pumping source for optical parametric amplifier by extending efficient crystal length" Optics & Laser Technology 39, 2007, 1084-1088
- [3] K. Li et al., "Theory and experiment analysis of factors affecting THG efficiency for the TIL prototype laser facility" Optik 120, 2009, 1-8
- [4] SNLO nonlinear optics code available from A. V. Smith, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM 87185-1432.

【文責者連絡先】

Hitz日立造船(株) 事業・製品開発本部
技術研究所 精密研究室
井上 典洋
Tel : 06-6551-9128 Fax : 06-6551-9841
e-mail : inoue_no@hitachizosen.co.jp



井上 典洋



大 淵 隆 文



中 山 耕 一 郎



福 田 直 晃



滝 谷 俊 夫



熊 谷 寛