The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	深紫外シングルモード全固体レーザーの開発と高速応答中性子シンチレーター開発への応用
Author(s)	坪井, 瑞輝
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/61713
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

博士学位論文

深紫外シングルモード全固体レーザーの開発と高速応答中性子シンチレーター開発への応用

2017 年 1 月

坪井 瑞輝

大阪大学大学院工学研究科

目次

第一章序論 1
1-1 ArF リソグラフィ光源 1
1-2 APLF+Pr 中性子シンチレータ 2
1-3 193nm レーザーによる APLF+Pr の発光時間測定 4
1-4 本研究の論文の構成 4
第二章　904nm、6kHz Ti:sapphire レーザーの開発 7
2-1 はじめに 7
2-2 904nm、6kHz、縦単一モード Ti:sapphire オシレータ 7
2-2-1 縦単一モード 7
2-2-2 注入同期法 7
2-2-3 共振器長の制御 8
2-3 6 kHz、904nm、Ti:sapphire オシレータの設計 11
2-3-1 熱レンズ焦点距離の見積もり 11
2-3-2 非点収差の補正 12
2-3-3 シミュレーションを用いた光学素子配置の最適化 13
2-4 期による波長の引き込みと共振器長の制御 15
2-4-1 CW による共振器長制御 15
2-4-2 6kHz 発振時の共振器長制御 20
2-5 6kHz、904nm オシレータの特性 27
第三章マルチパス増幅器システム 30
3-1 はじめに 30
3-2 熱レンズの測定 30
3-3 小信号利得 33
3-4 マルチパス増幅器の分割 33
3-5 6 パス増幅器 34
3-6 4 パス増幅器 36
3-7 2 パス増幅器 38
3-8 出力光の特性 39
第四章　波長変換 44
4-1 はじめに 44
4-2 非線形光学効果 44
4-3 位相整合 45
3-4 複屈折を用いた角度位相整合 46
3-5 波長変換 47

3-5-1 LBO を用いた二倍波発生 47
4-5-2 BBO を用いた四倍波発生 48
3-5-3 CLBO を用いた和周波発生 48
4-6 波長変換の実験 50
4-6-1 二倍波発生 50
4-6-2 四倍波発生 51
4-6-3 193nm 光発生 52
4-7 まとめ 54
第五章　APLF+Pr 中性子シンチレータ 56
5-1 はじめに 56
5-2 3 価プラセオジムイオン 56
5-3 APLF ガラス 57
5-4 APLF+Pr による散乱中性子計測 57
5-5 蛍光(PL)スペクトル、励起蛍光(PLE)スペクトルについて 58
5-6 APLF ガラスサンプル 58
5-7 実験 59
5-8　結果と考察 62
5-8-1　PL スペクトル 62
5-5-2　PLE スペクトル 64
5-8-3　Pr^{3+}の電子準位 65
5-9 結論 66
第六章 APLF+Pr の 193nm による発光寿命の測定 68
6-1 はじめに 68
6-2 APLF+Pr の 193nm 励起による PL スペクトル 68
6-3 APLF+Pr の発光時間特性の測定 69
6-4 結論 71
第七章　結論 72
謝辞 73

第一章序論

1-1 ArF リソグラフィ光源

現在、半導体を用いた集積回路は人々の生活の隅々にまで利用されている。集積回路の製造においては、シリコンの基板上にレーザーを用いて高密度に回路を焼き付ける、縮小投影露光が行われている。使用するレーザーの波長が短いほどより高密度な回路の製造が可能となる。現在半導体製造の場で最も広く用いられているのは、発振波長 193nm の ArF エキシマレーザーである 。液浸リソグラフィ技術により 65nm 以下のプロセスが行われており、NAND フラッシュメモリの量産においてはダブルパターニング技術を用いて 32nm、22nm プロセスが実現している。現在 ArF エキシマレーザーを置き換える光源として、波長 13.5nm の EUV(Extreme ultraviolet)光源の開発が進められているが、半導体量産に十分なパワーの達成が遅れており、今後数年間は、最微細プロセスの場では ArF エキシマレーザーが使用され続けると見られる。193nm 光源を用いたリソグラフィのさらなる微細化のために、現在クアドロプルパターニング(QP)や Directed self-assembly(DSA)が研究されている。

半導体製造に使われる ArF レーザーシステムは、狭帯域化した ArF 発振器と ArF 増幅器により構成されている。現在 120W の出力のレーザーが市販されているが[1]、電力効率が 0.1%程度であり、その場合消費電力は 120kW と非常に大きい。

ArF レーザーシステムの内、ArF オシレータ部分のみであっても、発振波長の 193nm の全固体レーザーで置き換ることができれば、消費電力を大きく削減することができる[2]。固体レーザーでは、レーザー光を縦シングルモードレベルまで狭帯域化させることも可能になる。狭帯域レーザー光では干渉露光が可能になり、Directed self-assembly[3]との組み合わせなど、露光技術のさらなる発展につながることが期待できる。他にも狭帯域 193nm 全固体レーザーは、非線形光学結晶の開発[4][5][6][7]や、リソグラフィのためのウェーハやマスクの評価のためにも研究されてきた[6][7]。

全固体 193nm レーザーの開発は今後の半導体製造に大きく貢献することが予想される。そのため本研究では、ArF 発振器を置き換えるための、全固体レーザーの開発に取り組んだ。ArF オシレータを置き換えるには発振波長 193nm で 200mW 以上の出力が求められるため、出力 200mW 以上を目標とした。

ArF エキシマレーザーの発振波長は 193nm となっているが、固体レーザーの発振波長は一般的に赤外であるため、193nm の光源として利用するためには波長変換が不可欠である。本研究では波長変換の基本波の光源として、Ti:sapphire 結晶を用いて 904nm で発振するオシレータを開発した。Ti:sapphire 結晶は広い発光スペクトルを持ち、660nm~1180nm で発振させることが可能である。

現在使用されている ArF エキシマレーザーシステムは 6kHz で運転している。そのため全

固体レーザーシステムも 6kHz で発振する必要がある。高強度 Ti:sapphire オシレータはこれまでに 5kHz で動作するものがすでに開発されている[8,9]。Tisapphire オシレータの繰り返し数としてはかなり高いものである。

波長変換により光強度が落ちることを考慮すると、波長変換の基本波には高強度が要求される。このため、オシレータ後に光増幅器を設置し、強度を上げる必要がある。

以上より、全固体 193nm レーザーシステムを、Ti:sapphire オシレータと、増幅器システム、波長変換システムから構成することにした。まず Ti:sapphire オシレータで波長変換の基本波となる 904nm のパルスを発生させ、それを 3 段階のマルチパス増幅器で増幅した。これにより発生させた 904nm のパルスを、非線形光結晶による波長変換を行った。まず 904nm 光に対して LBO による二倍波発生(452nm)、BBO による四倍波発生(226nm)を経て、1.3μm の $Nd:YVO_4$ レーザーと CLBO 結晶における和周波発生により、193nm を発生させた。

1-2 APLF+Pr 中性子シンチレータ

将来のエネルギー源として、核融合発電の実現が期待されている。

核融合の手法の一つとして、高速点火方式レーザー核融合が研究されている[10]。

この方式では、重水素と三重水素の燃料ペレットをレーザー照射により爆縮し、高密度状態にしてから、点火用レーザーを照射することにより、核融合に必要な高温、高密度を達成する。

核融合発電の実用化には、核融合効率を高めることが重要である。核融合プラズマの面密度（密度の径積分，ρR）は核融合効率を決める重要なファクターである。30%以上の効率が求められる商業核融合プラントでは、ρR は 3g/cm^2 以上になることが求められる[11]。プラズマの面密度はノックオンイオンの測定[12]や、二次中性子の測定[13]などにより求められる。しかしこれらの手法は低いρR でしか使えなかったり、燃料に不純物を加える必要があるなど、それぞれ問題点を抱えている。

燃料ペレット自体に手を加えることなく、3.2 g/cm^2 までのρR の測定が可能な手段として、散乱中性子計測法が挙げられる[14]。DT 反応で生じる中性子（一次中性子）の内一定数はプラズマ中で重水素や三重水素と弾性衝突し散乱中性子（二次中性子）となる。弾性衝突の確率はρR に比例するため、一次中性子と二次中性子の強度の割合より、ρR を知ることができる。

散乱中性子の計測を行うにあたり最も重要な課題は、散乱中性子の強度が一次中性子に比べてはるかに低いことである。燃料ターゲットから 2m 離れた位置での中性子の time of flight スペクトルを計算したところ、まず一次中性子の大きな信号が来て、その後散乱中性子が連続して飛来する結果が得られている。散乱中性子の信号を計測するためには、一次中性子の信号が散乱中性子が来るまでに減衰するシンチレータが必要である。シンチレータと核融合プラズマの距離を離せばそれだけ一次中性子と散乱中性子の到達時間差は大き

くなるが、ここでは核融合炉の炉壁によっても中性子が散乱されることを考慮にいれる必要がある。米国リバモア国立研究所の National Ignition Facility(NIF)で開発中の核融合炉を例に上げると、ターゲットチャンバーは半径 5m であり、炉壁により散乱された中性子と、プラズマ内部より生じた散乱中性子とを見分けるためには、核融合炉プラズマより少なくとも 2m の位置にシンチレータを設置する必要がある。この距離で散乱中性子の計測を行うには、一次中性子の信号を 200ns 以内に 1000 分の 1 まで減衰させることのできるシンチレータの開発が必要であった。

シンチレータ開発において、散乱中性子を捉える材料として、^{6}Li が注目された。^{6}Li は ^{6}Li (n,T)^{4}He の反応により、10^{4}~5×10^{8}eV のエネルギーの中性子に対して大きい反応断面積を持つ。また、反応で生じるエネルギーも 4.8MeV[15]と高く、散乱中性子の検出に適している。

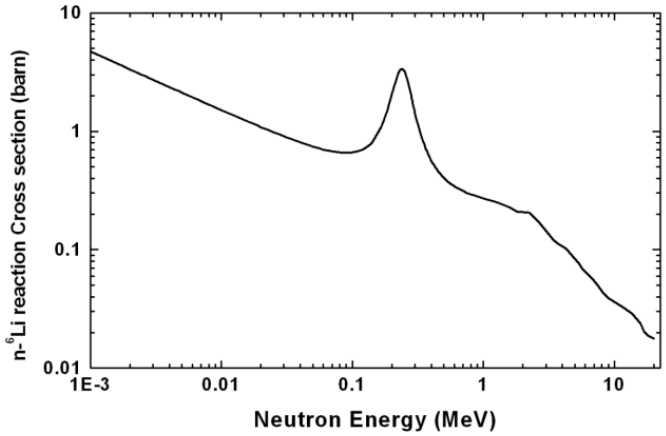

図 1　6Li の中性子に対する反応断面積

現在市販されている、GS2、GS20、KS20 といった ^{6}Li を含むシンチレータは発光核として Ce^{3+}がドープされており、50ns から 70ns の速い発光と 200ns の遅い発光(After glow)を持つ[16]。この After glow のため、散乱中性子の計測には不向きであった。
Pr^{3+}を発光核としてドープした $Lu_3Al_5O_{12}$(Pr:LuAG)は、応答速度 20ns の紫外の発光を持つことが報告されている[17]。この発光は Pr^{3+}の 4f5d→4f^{2} 遷移による。これに続いて、Pr^{3+}を発光核とし^{6}Li を豊富に含むシンチレータとして $20Al(PO_3)_3$-80LiF+Pr^{3+} (APLF+Pr)[18]が開発された。このシンチレータは熱中性子を応答速度 5.7ns で捉えられることが確認されており、散乱中性子を測定するのに十分速い応答速度を持っているといえる。しかし APLF+Pr の量子効率は比較的小さく、さらなる改良が求められる。

本研究で APLF+Pr シンチレータのさらなる開発を目指し、APLF+Pr の発光特性の研究を行った。

1-3 193nm レーザーによる APLF+Pr の発光時間測定

APLF+Pr は高速の時間応答に注目されて開発されたシンチレータである。発光寿命は ns のオーダーで起きる。本研究では APLF+Pr が 160nm~200nm の励起により紫外の発光を生じることを明らかにするが、時間応答を知るためには 160~200nm の波長域で短パルスの光源が必要となる。本研究で開発したレーザーは発振波長 193nm、発光時間幅 4.8ns であり、APLF+Pr の紫外光発光の時間応答を知ることが可能になる。

本研究では APLF+Pr に 193nm のレーザーパルスを照射し、紫外の発光波長および 400nm の発光波長について測定を行った。

1-4 本研究の論文の構成

本論文は七章より構成されている。第二章から四章では ArF エキシマレーザーを置き換えるための 193nm 全固体レーザーシステムの開発を行った。本研究で開発したシステムは 904nm で発振するオシレータの出力をマルチパス増幅器を用いて増幅し、非線形光学結晶による波長変換により 193nm を達成する。第一章では波長変換の基本波を発生させるための Ti:sapphire オシレータを開発した。発振波長 904nm、縦単一モード、繰り返し数 6kHz、出力 1.1W のオシレータを開発した。

第三章では第二章で作成した発振器の出力を増幅するためのマルチパス増幅器を開発した。高繰り返しのために励起光強度が大きくなり、結晶上に形成される熱レンズの影響が非常に大きくなった。高励起強度では熱レンズの影響でマルチパス増幅器の構築が困難であったことから、マルチパス増幅器を 3 段階化することで熱レンズの影響を許容可能なレベルにした。第一章のオシレータと合わせて、出力 10W、6kHz、904nm、縦単一モードのレーザーシステムを開発した。

第三章の増幅器の出力を基本波として、第四章では波長変換による 193nm 光の発生を行った。非線形光学結晶を用いた波長変換を行い、904nm 光源に対して LBO 結晶により二倍波の 452nm を発生させ、さらに BBO 結晶を用いて四倍波(226nm)を発生させた。さらに四倍波と 1.3μm とで和周波発生を行い、193nm を発生させた。

第五章では核融合炉プラズマの燃料密度の計測への応用が期待されている、APLF+Pr 中性子シンチレータの発光特性の研究に取り組んだ。放射光を用いた分光測定により APLF の発光核である Pr^{3+}の電子準位を調べ、シンチレータ特性の向上について検討した。

第六章では本研究で開発した 193nm レーザーシステムを APLF+Pr シンチレータの発光時間特性の測定に応用した。APLF+Pr の発光時間は $4f5d \rightarrow 4d^2$ 遷移による発光だけでなく、$^1S_0$ からの遷移も非常に高速であることを確認した。

第七章では結論を述べた。

Reference

[1] T. Asayama, Y. Sasaki, T. Nagashima, A. Kurosu, H. Tsushima, T. Kumazaki, K. Kakizaki, T. Matsunaga, and H. Mizoguchi: Proc. SPIE, **8683** (2013)

[2] S. Ito, T. Onose, K. Kakizaki, T. Matsunaga, J. Fujimoto, H. Mizoguchi: Advanced Solid-State Photonics (San Diego, 2012) paper AT4A

[3] D. P. Sanders, J. Cheng, C. T. Rettner, W. D. Hinsberg, H.-C. Kim, H. Trung, A. Fritz, S. Harrer, S. Holmes, M. Colburn: J. Photopolym. Sci. Tech. **23** (2010) 11

[4] C. T. Chen, T. Kanai, X. Y. Wang, Y. Zhu, and S. Watanabe: Opt. Lett. **33** (2008) 282

[5] T. Kanai, X. Y. Wang, S. Adachi, S. Watanabe, and C. T. Chen: Opt. Exp. **17** (2009) 8696

[6] H. Kawai, A. Tokuhisa, M. Doi, S. Miwa, H. Matsuura, H. Kitano, and S. Owa: Conference on Lasers and Electro-Optics (Baltimore, 2003), paper CTuT4.

[7] J. Sakuma, K. Moriizumi, and H. Kusunose: Opt. Exp. **19** (2011) 15020

[8] Y. Nabekawa, Y. Kuramoto, T. Togashi, T. Sekikawa, S. Watanabe:Opt. Lett. **23** (1998) 1384

[9] Y. Nabekawa, T. Togashi, T. Sekikawa, S. Watanabe, S. Konno, T. Kojima, S. Fujikawa, and K. Yasui: App. Phys. B **70** (2000) s- 171

[10] M. Tabak, J. Hammer, M. E. Glinsky, W. L. Kruer, S. C. Wilks, J. W. E. M. Campbell, and M. D. Perry: Phys. Plasmas **1** (1994) 1626.

[11] *Energy from Inertial Fusion*, ed. W. J. HOGAN (International Atomic Energy Agency, Vienna, 1995) Chap. 2.2.

[12] F. H. Séguin, J. A. Frenje, C. K. Li, D. G. Hicks, S. Kurebayashi, J. R. Rygg, B.-E. Schwartz, and R. D. Petrassoc: Rev. Sci. Instrum. **74** (2003) 975.

[13] V. Yu. Glebov, D. D. Meyerhofer, C. Stoeckl, and J. D. Zuegel: Rev. Sci. Instrum. **72** (2001) 824.

[14] Y. Arikawa, K. Yamanoi, T. Nakazato, E. S. Estacio, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Nakai, H. Hosoda, T. Norimatsu, Y. Hironaka, H. Azechi, N. Izumi, T. Murata, S. Fujino, H. Yoshida, K. Kamada, Y. Usuki, T. Suyama, A. Yoshikawa,N. Satoh,9 and H. Kan: Rev. Sci. Instrum. **81** (2010) 10D303.

[15] Kanapathipillai, Murukesapilliai: Jpn. J. Appl. Phys. 28 (1989) 1462.

[16] G. C. Tyrrell: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **546** (2005) 180.

[17] H. Ogino, A. Yoshikawaa, M. Niklb, K. Kamadaa, T. Fukuda: J. Crystal Growth **292** (2006) 239.

[18] T. Murata, S. Fujino, H. Yoshida, Y. Arikawa, T. Nakazato, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Nakai, T. Norimatsu, H. Azechi, K. Kamada, Y. Usuki, T. Suyama, A. Yoshikawa, N. Sato, and H. Kan: IEEE Trans. Nucl. Sci. **57** (2010) 1426.

[19] V. N. Makhov, N. Y. Kirikova, M. Kirm, J. C. Krupa, P. Liblik, A.Lushchik, C. Lushchik, E. Negodin, and G. Zimmerer, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*, **486** 437 (2002)

[20] T. Suganuma, H. Kubo, O. Wakabayashi, H. Mizoguchi, K. Nakao, Y. Nabekawa, T. Togashi, and S. Watanabe, *Opt. Lett.* **27** 46 (2002)

[21] D. J. Jones, R. H. French, H. Müllejans, S. Loughin, A. D. Dorneich, and P. F. Carcia *J. Mat. Res.* **14** 4337 (1999)

[22] M. Tanaka, M. Nishikino, H. Yamatani, K. Nagashima, T. Kimura, Y. Furukawa, H.

Murakami, S. Saito, N. Sarukura, H. Nishimura, K. Mima, Y. Kagamitani, D. Ehrentraut, and T. Fukuda *Appl. Phys. Lett.* **91** 231117-1 (2007)

[23] Y. Furukawa, M. Tanaka, T. Nakazato, T. Tatsumi, M. Nishikino, H. Yamatani, K. Nagashima, T. Kimura, H. Murakami, S. Saito, N. Sarukura, H. Nishimura, K. Mima, Y. Kagamitani, D. Ehrentraut, and T. Fukuda, *J. Opt. Soc. Am. B,* **25** B118–B121 (2008)

[24] R. Visser, P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk, A. Meijerine, and H. W. den Hartog, *J. Phys. Condens. Matter*, **5** 8437 (1993)

[25] P. Dorenbos, J. T. M. de Haas, and C. W. E. van Eijk, *J. Lumin.* **69** 229 (1996)

[26] S. Nakamura, M. Senoh, and T. Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**, L8 (1993)

[27] N. Sarukura, K. Hata, T. Adachi, R. Nodomi, M. Watanabe, and S.Watanabe, *Phys. Rev. A*, **43**, 1669 (1991)

[28] E. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, *Opt. Lett.*, **27**, 1920 (2002)

[29] N. Sarukura, H. Murakami, E. Estacio, S. Ono, R. El Ouenzerfi, M.Cadatal, T. Nishimatsu, N. Terakubo, H. Mizuseki, Y. Kawazoe, A. Yoshikawa, and T. Fukuda, *Opt. Materials*, **30** 15 (2007)

[30] R. El Ouenzerfi, S. Ono, A. Quema, M. Goto, M. Sakai, N. Sarukura,T. Nishimatsu, N. Terakubo, H. Mizuseki, Y. Kawazoe, H. Sato, D. Ehrentraut, A. Yoshikawa, and T. Fukuda, *J. Appl. Phys*,. **96**, 7655 (2004)

[31] M. A. Dubinskii, A. C. Cefalas, E. Sarantopoulou, S. M. Spyrou, C. A.Nicolaides, R. Y. Abdulsabirov, S. L. Korableva, and V. V. Semashko, *Journ. Opt. Soc. Am. B*, **9**, 1148 (1992)

[32] M. Cadatal, Y. Furukawa, Y. S. Seo, S. Ono, E. Estacio, H. Murakami, Y. Fujimoto, N. Sarukura, M. Nakatsuka, K. Fukuda, R. Simura, T. Suyama, A. Yoshikawa, and F. Saito, *J. Opt. Soc. Am. B*, **25**, B27 (2008)

[33] M. Cadatal, Y. S. Seo, S. Ono, Y. Furukawa, E. Estacio, H. Murakami, Y. Fujimoto, N. Sarukura, M. Nakatsuka, T. Suyama, K. Fukuda, R. Simura, and A. Yoshikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46** L985 (2007)

第二章　904nm、6kHz Ti:sapphire レーザーの開発

2-1 はじめに

まず 904nm の波長変換の基本波を発生させる Ti:sapphire オシレータの開発を行った。目標の 193nm の ArF レーザーシステムが 6kHz で発振することから、基本波のオシレータも 6kHz で発振する必要がある。

193nm の線幅は 0.5pm 以下であることが求められる。固体レーザーでは比較的簡単な条件なので、さらに狭い線幅の 0.1pm(800MHz)を目標とした。波長変換では原理的に基本波に対し高調波の線幅が広がることから、基本波の線幅は 400MHz 以下であることが求められる。また、光増幅においても線幅が広がることが懸念されるため、オシレータでの発振光はさらに狭帯域化する必要がある。発振光の空間コヒーレンス M^2 は 1.0 程度が望ましい

以上がオシレータに求められる条件である。

2-2 904nm、6kHz、縦単一モード Ti:sapphire オシレータ

904nm での狭帯域化の手法としては注入同期を用いた。

Ti:sapphire 共振器はリングキャビティで組み、904nm 狭帯域単一モードレーザーダイオードを用いて注入同期を行い、共振器の単一縦モード化を図った。

2-2-1 縦単一モード

共振器の発振光は、共振器内で、波長の整数倍が共振器長となる波長のみが発振する。それぞれの波長を共振器の縦モードと呼ぶ。隣り合う縦モードの周波数の差を Free Spectra Range (FSR)と呼び、共振器長のよって決まる。リングキャビティの場合、FSR は共振器長を L として

$$\Delta\upsilon = \frac{c}{L} \qquad (2\text{-}1)$$

で表される。

共振器の発振光は $\Delta\nu$ ごとに周波数の異なる多数の縦モードより構成される。発振光の狭帯域化のためには、この内の一つの縦モードのみで発振するようにすることが重要である。これを縦単一モード化という。

2-2-2 注入同期法

縦単一モード化の手法として、注入同期法がある。この手法では、リングキャビティに seed 光として外部から CW 狭帯域縦単一モード光を注入する。Ti:sapphire 結晶を励起すると seed 光と同じ波長で発振の引き込みが起こる。これが他の縦モードよりも早く成長するため、発振パルスの波長の縦単一モード化が達成される。この現象は Injection seeding と呼

ばれる。この時注入する CW レーザーの強度は発振光の強度よりもはるかに低くても構わない。リングキャビティは、本来二方向に発振光が出力されるが、注入同期を行った場合は注入したレーザーと発振光の向きが一致し、一方向へ倍の強度の出力が得られる。注入同期において折り返し共振器でなくリング型共振器を用いるのは、注入光を入れるミラーにおいて、注入光と発振光のパスが重ならないからである。折り返し共振器だと、外部に発振光と注入光を分けるような光学系を組む必要がある。また、リング型共振器は内部に定在波が生じないため、結晶の励起エネルギーを効率よく使えるという利点がある。折り返し共振器の場合発振光は定在波となるため、結晶内の節の部分で励起エネルギーを取り出せない。

本研究ではこの Injection seeding による注入同期で、6kHz、Ti:sapphire レーザーの縦単一モード化を行った。

2-2-3 共振器長の制御

前述した通り発振波長はその整数倍が共振器長となる。そのため注入同期による縦単一モード化を行うには、注入光と共振器長を対応させる必要がある。共振器長と注入光の波長がずれた場合でも、注入光の近くの縦モードで波長の引き込みが起こる。しかしこれは発振波長の不安定につながったり、発振光がマルチモードになることもある。

共振器長は外部からの振動や温度変化などで変動するため、適切な制御を行う必要がある。本研究ではヘンシュ方式を用いて共振器長の制御を行った。

注入光が共振しているかどうかは共振器内部の光の強度（以下、内部強度と呼ぶ）を測定することで知ることができる。注入光を入れた状態で共振器周波数を掃引すると、内部強度は図 1 のように変化する。

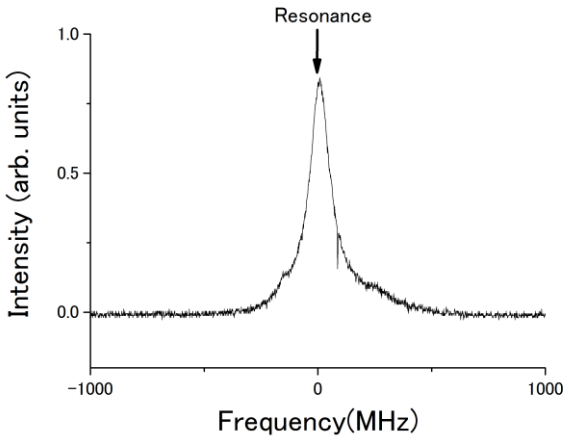

図 1　共振器周波数と共振器内部強度

ピーク値に達しているところが共振しているところである。しかし、共振器長の制御にこ

の信号は不適切である。何故ならば、共振器長がずれた時に、正しい長さより、短い方にずれたのか長い方にずれたのかが、この信号からは判別出来ないためである。
一方、Hansch らにより提案された手法[1]は共振器長がどちらにずれたのかを判別することができる。
共振器と制御システムの概略を図 2 に示す。

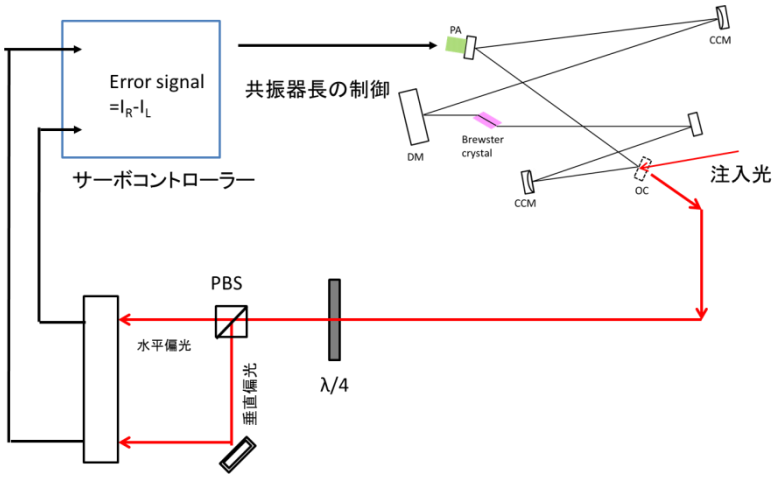

図 2　ヘンシュ法による共振器制御の概略図

共振器内のミラーの一つにピエゾ素子を取り付け、共振器長をコントロールする。
注入光は単一方向に偏光しているものとする。注入光をアウトプットカプラーを通して共振器内に入れ、内側で共振するようにする。このとき、アウトプットカプラーの反射光は２種類の光が重なっている。一つは共振器内部からアウトプットカプラーを通して出てきた光であり、もう一つはアウトプットカプラーで反射してきた光である。このうち共振器内から出てきた光は、共振器内のブリュースターカットされた結晶のために、偏光方向は水平となっている。一方アウトプットカプラーで反射した光は偏光方向は入射光と同じである。
この重ね合わせの光の電場を垂直(E_H)と水平(E_V)に分ける。注入光の電場を E_0、偏光方向の水平方向からの傾きを θ とすると、E_H、E_V はそれぞれ、

$$E_H = E_0\cos\theta\left\{\sqrt{R_1} - \frac{T_1}{\sqrt{R_1}}\frac{Re^{i\delta}}{1-Re^{i\delta}}\right\} \tag{2-2}$$

$$E_V = \sqrt{R_1}E_0\sin\theta \tag{2-3}$$

となる。δ は共振器を一周回った時の位相、R はその時の損失を表したものである。R_1 はアウトプットカプラーの反射率で、T_1 はアウトプットカプラーの透過率である。共振器内には水平方向の偏光が透過するように置いたブリュースターカットの結晶があるため、垂直方向の偏光成分は共振器内にはなく、重ね合わせ光に含まれる垂直方向の成分はアウトプットカプラーで反射した光のみである。

この式より出射光を右回り偏光成分と左回り偏光成分に分けて、それぞれの電場を E_r、E_l とすると

$$E_r = \frac{1}{2}(E_H + iE_V) \tag{2-4}$$

$$E_V = \frac{1}{2}(E_H - iE_V) \tag{2-5}$$

で表される。

この式より、２成分の強度差を計算すると、

$$\mathrm{I}_r - \mathrm{I}_l = \frac{c\varepsilon}{2}(|E_r|^2 - |E_l|^2) = \mathrm{I}_0 \cdot 2\cos\theta\sin\theta \frac{T_1\, R\, \sin\delta}{(1-R)^2 + 4R\sin^2\frac{1}{2}\delta} \tag{2-6}$$

となる。$I_0 = \frac{c\varepsilon}{2}E_0^2$であり、注入光強度である。

ここで重要なのは、共振点付近では(sin δ =0)、I_r–I_l は位相のズレに比例することである。したがって I_r–I_l の測定により共振器長の変化をその方向も含めて知ることができる。I_r–I_l を測定するには出射光を二つの円偏光成分に分割する必要があるが、それはλ/4 板と偏光ビームスプリッタを用いることで可能である。円偏光の光に対してλ/4 板を挿入すると、それぞれの偏光は軸に対して 45° ずつ異なり互いに直角となる二つの直線偏光に変換される。λ/4 板の後ろに偏光ビームスプリッタを設置し、λ/4 板の軸がビームスプリッタに対して 45° になるように設置することで、円偏光の二成分を分離できる。それぞれの光をフォトダイオード(PD)で捉えれば強度差を測定できる。

式(1-6)において I_0=1、T_1=1、R=0.9 とした場合の$\mathrm{I}_r - \mathrm{I}_l$を図 3 に示す。

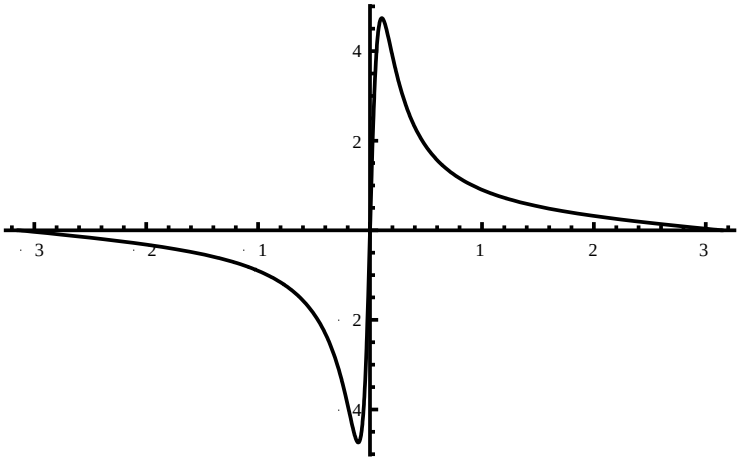

図 3　　円偏光成分の強度差

ヘンシュ法では共振点付近での共振器長のズレが検出できることに加え、位相が π 近くまでずれても、その共振器のずれの方向が検出できることから、共振器の安定化のために広く使われている。

2-3 6 kHz、904nm、Ti：sapphire オシレータの設計

本研究で構築した Ti:sapphire オシレータを図 4 に示す。リングキャビティは多くの場合、二枚の凹面鏡と一枚の平面ミラー、一枚のアウトプットカプラーで構成されるが、今回は後述の理由から、さらに二枚の平面ミラーを追加した。

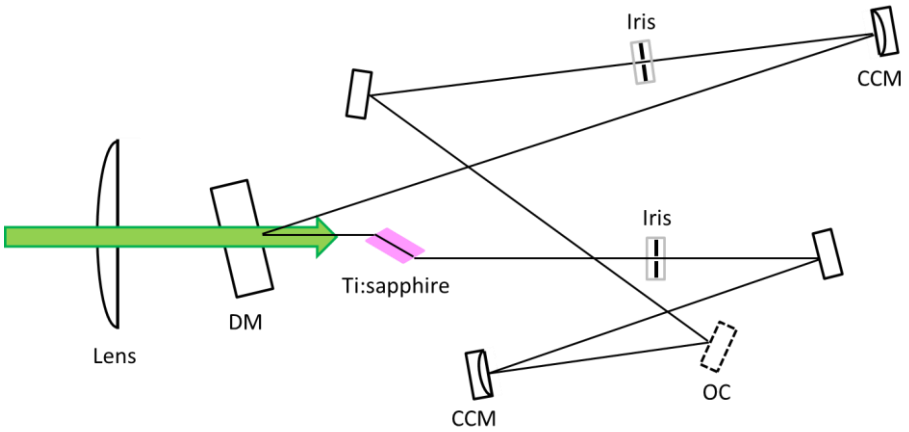

図 4　6kHz、904nm 発振器の光学素子配置（CCM:凹面鏡, DM:ダイクロイックミラー, OC:出力鏡 T=90%）

励起光源には Nd:YLF レーザーの二倍波(Evolution-HE)を使用した。このレーザーは 6kHz、波長 527nm で 80W の出力を持つ。この内 11.8W をビームスプリッタを用いて取り出し、Ti:sapphire 結晶の励起に使用した。切り出した残りは後述するマルチパス増幅器システムに使用した。焦点距離 70 mm のレンズを用いて集光し、ダイクロイックミラーを通してキャビティ内に入れた。この時結晶内に生じる熱レンズ効果を考慮する必要がある。本システムは 6kHz という高繰り返しで、ゲインの低い 904nm で発振させるため、11.8W という Ti:sapphire オシレータとしてはかなり高い強度で励起している。そのため熱レンズの影響も大きくなるため、事前に見積を行った。

2-3-1 熱レンズ焦点距離の見積もり

結晶上に生じる熱レンズの焦点距離は以下の式で近似される[2]。

$$f_{th} = \frac{\pi \cdot K_{th} \cdot \omega_p^2}{P_{all} \cdot (1 - \frac{\lambda_p}{\lambda_{fl}}) \cdot (1 - \exp(-\alpha l)) \cdot \frac{\partial n}{\partial t}} \qquad (2\text{-}7)$$

ここで K_{th} は Ti:sapphire の熱伝導率、ω_p は励起光のビーム半径（$1/e^2$）、P_{all} は励起光強度、λ_p は励起光の波長, λ_{fl} は Ti:sapphire の発光の波長、α は結晶の励起光に対する吸収係数、

lは結晶の長さ、∂n/∂t は結晶の屈折率の温度微分である。
上式より、ω_p =150mm、K_{th}=46J/msk [3]、λ_p =527nm、λ_{fl} =800nm、α=2.5/cm、l=12mm、∂n/∂t=1.3×10^{-5}/K [3]として熱レンズ焦点距離を計算すると 77 mm であった。共振器の設計は、結晶の位置に焦点距離 77mm のレンズが存在すると仮定して行った。

2-3-2 非点収差の補正

共振器内の Ti:sapphire 結晶は Brewster カットされたものを用いた。この時結晶内を進む光は水平方向が拡大される。これにより、水平方向と垂直方向について、実効的な光路長が異なることになる。結晶の光路長は以下の式で表される[4]。

$$\mathrm{dx} = t \cdot \frac{\sqrt{n^2+1}}{n^4} \tag{2-8}$$

$$\mathrm{dy} = t \cdot \frac{\sqrt{n^2+1}}{n^2} \tag{2-9}$$

ここで n は結晶の屈折率、t は Brewster カットした結晶の厚さである。本研究で用いた Ti:sapphire 結晶の場合、n=1.76、t=10.6mm である。

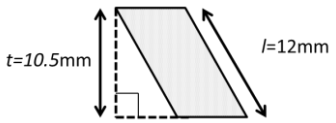

図 5　Ti:sapphire 結晶サイズ

この光路長差を補正するために、凹面ミラーの入射角の調整を行った。焦点距離 f の凹面ミラーに対し、水平面の入射角 θ で光を入射させた場合、水平方向の焦点距離 fx と垂直方向の焦点距離 fy は以下の式で表される[4]。

$$\mathrm{f}_x = \mathrm{f} \cdot \cos\theta \tag{2-10}$$

$$\mathrm{f}_y = \frac{f}{\cos\theta} \tag{2-11}$$

したがって斜め入射の場合、垂直方向の方が焦点が長くなる。共振器中に凹面鏡は二枚あるので、合計の焦点距離の差は

$$2(\mathrm{f_y} - \mathrm{f_x}) \tag{2-12}$$

となる。したがって、
$d_x - \mathrm{d}_y = 2(\mathrm{f_y} - \mathrm{f_x})$をみたす θ を二枚の凹面鏡の入射角とすれば、Brewster カットの結晶で生じた光路長差を補正できる。t=10.6mm、n=1.76、f=200mm より θ を計算すると 12°であった。

2-3-3 シミュレーションを用いた光学素子配置の最適化

共振器の設計で重要な事は、光が Ti:sapphire 結晶上にある程度集光されることと、共振器が発振波長で安定条件を持つことである。このため、WinLase ソフトウェア[5]を用いたシミュレーションにより、安定条件をもつ配置を検討した。共振器長は長くなるほど熱や振動の影響が大きくなり、共振器の不安定化につながる。75cm の共振器長で単一モードでの発振を行った事例[6]があるので、今回はそれに倣い 75cm 付近にした。ミラー・結晶間の距離などを変えてシミュレーションを行ったところ、r=−400m の凹面鏡(f=200mm) 2 枚を用いて図 6 の構成なら、結晶でのスポットサイズが半径 0.2mm 程度で、共振器が安定条件となり、また熱レンズが計算値とある程度異なっていても安定条件になることがわかった。なおシミュレーションでは凹面鏡を凸レンズに置き換えている。

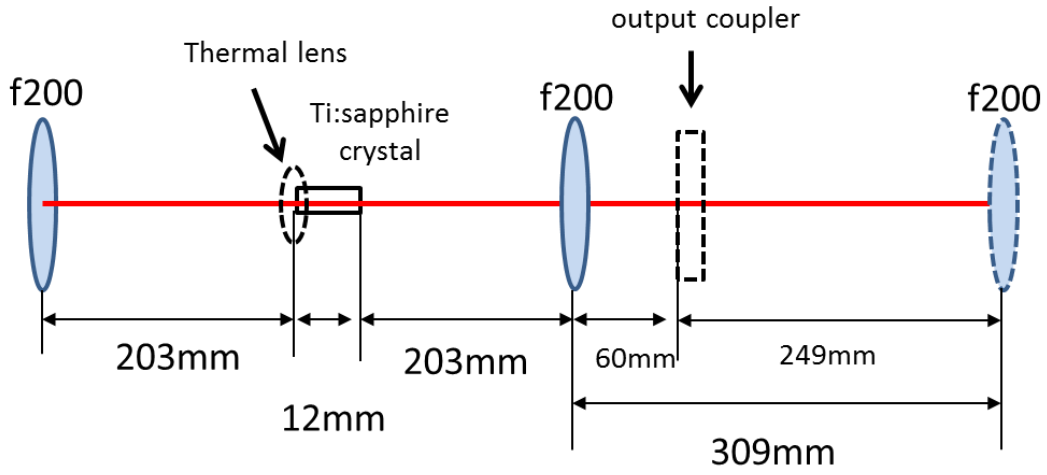

図 6 計算に用いた光学素子配置図 左右端のレンズは同一

図 7 に図 6 の配置による共振器内のビーム径を示す。

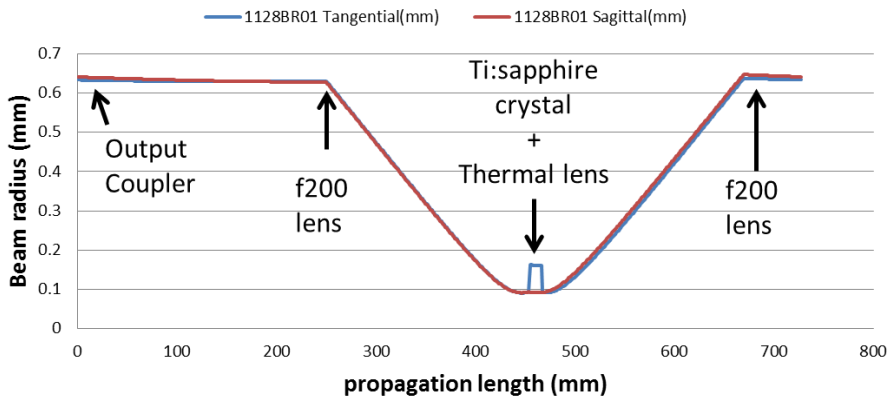

図 7　シミュレーションで求めた共振器内ビーム径の変化。図 6 に対応している

オシレータは、温度変化の影響を減らすために、30cm ×30cm の水冷定盤の上に構築した。水冷定盤はチラーで 18℃の水を流して冷却した。実験中の水冷定盤の温度を測定したところ 18.9~19.1℃であった。計算で求めたミラー・結晶間距離で、水冷定盤上に構築するため、図 4 のような光学素子の配置とした。

オシレータの Ti:sapphire 結晶は銅製のホルダーに固定した。銅製ホルダーは内部に水道水を流して冷却した。後に説明するが本システムのマルチパス増幅器は 6 パス増幅器、4 パス増幅器、2 パス増幅器の 3 段階に分割しており、全て Ti:sapphire 結晶を銅製ホルダーに固定して構築している。冷却水をオシレータ→6 パス増幅器→4 パス増幅器→2 パス増幅器の順に流れるようにした。

共振器内の二つのアイリスの内、Ti:sapphire 結晶と平面ミラーの間にあるものはアライメントの目印として入れているものである。もう一つの凹面鏡とピエゾ付ミラーの間に入れたアイリスは、ビームプロファイルの整形のために挿入した。ここのアイリスを全開にした場合は、ビームプロファイルが横モード TEM_{00} よりも明らかに崩れた形になっていた。TEM_{00} 以外の横モードで発振することはビームの集光特性の悪化につながり、後の増幅率や、波長変換の効率の低下につながることが考えられるため、このアイリスの開口を調整してビームプロファイルが向上するようにした。その結果、ビームプロファイルは図 8 のようになった。

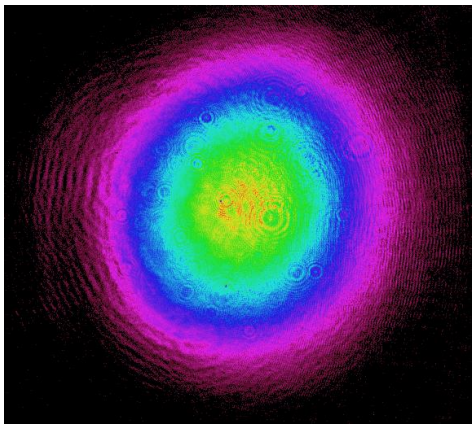

図 8 発振光ビームプロファイル

この時発振光強度は 0.6W であった。この時点ではまだ注入光を入れていないので、発振光はアウトプットカプラーから 2 方向に同時に出ている。

図 9 に励起光パルスと発振光の立ち上がり時間を示す。発振光のパルス幅は 60ns 程度であった。励起光のパルス幅は約 300ns で、発振光のパルス幅や立ち上がり時間と比べかなり長いが、パルス毎の強度が非常に安定しているため、発振光のジッターはパルス幅の半分以下であった。

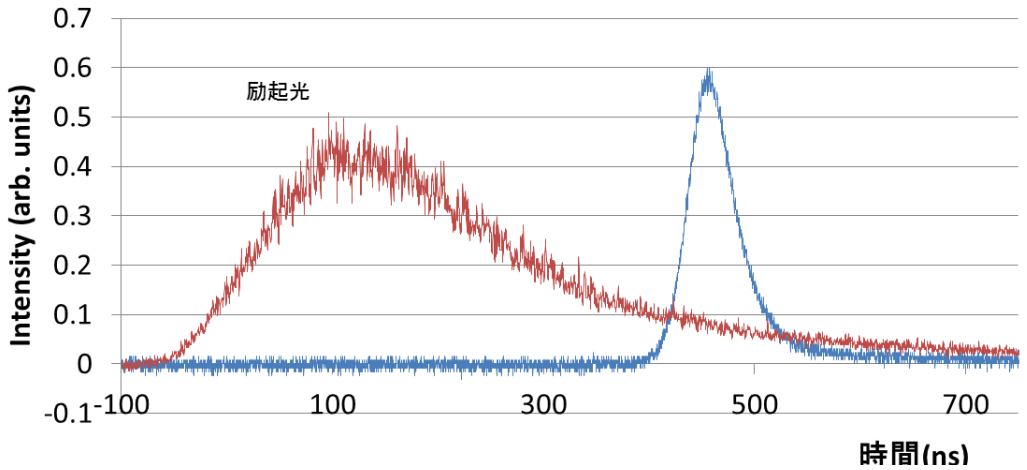

図 9 励起光パルス(赤線)と発振光パルス(青線)

2-4 期による波長の引き込みと共振器長の制御

2-4-1 CW による共振器長制御

本システムにおけるインジェクションロックの注入光源として、外部共振器型レーザーダイオード (LD)を使用した。このレーザーは 904nm で発振する縦単一モードのレーザーである。予め線幅をファブリーペロー干渉計で測定したところ、10MHz 程度であった。

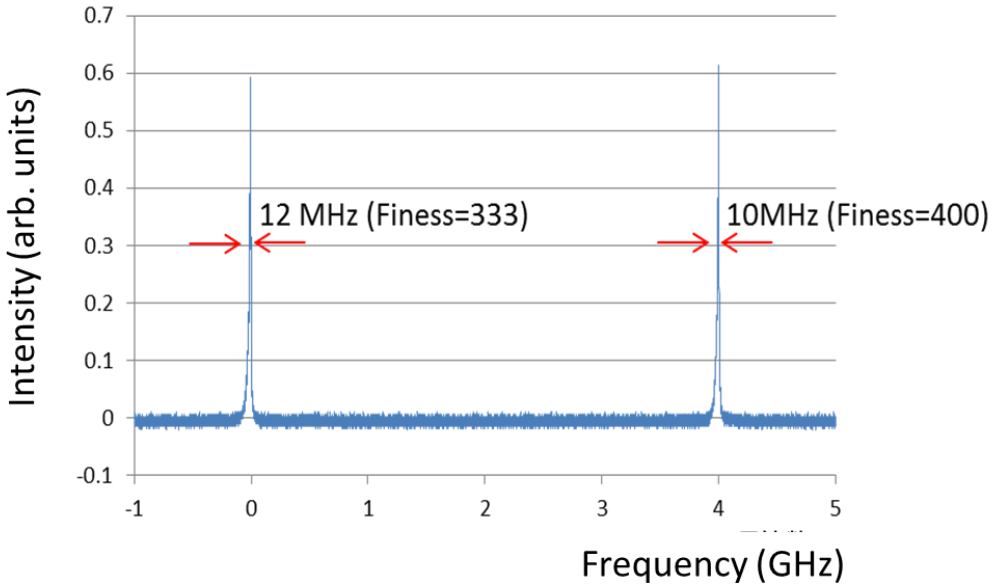

図 10　注入光源 LD のファブリーペロー干渉計掃引スペクトル

10MHz はファブリーペロー干渉計の分解能であり、実際はもっと狭い可能性があるが、どちらにしてもインジェクション光源としては十分狭い線幅である。

LD は本レーザーシステムとは別の定盤に設置し、シングルモード偏波保持光ファイバー

(PMF)を用いて共振器への注入に使用した。図 11 に LD の出力光を PMF に導入するまでの光学系を示す。

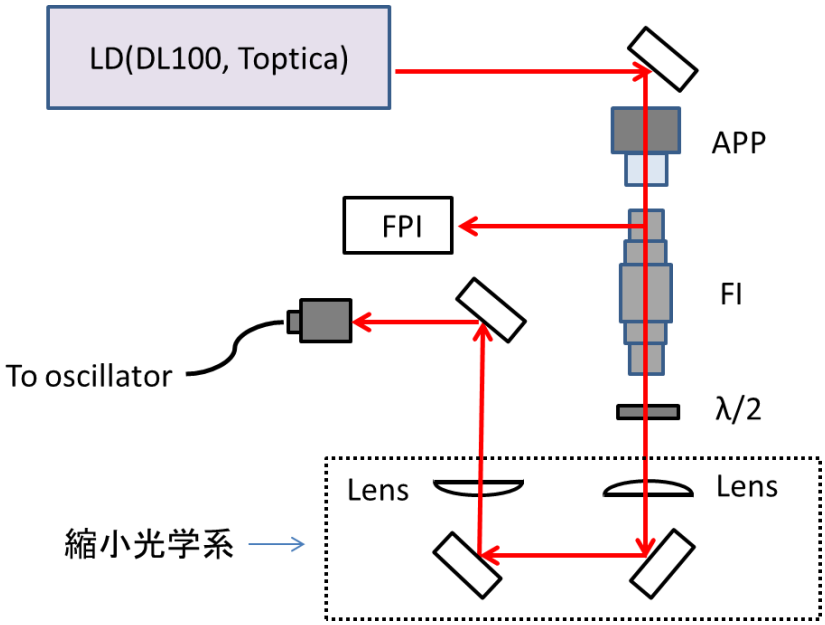

図 11　注入光源の PM ファイバー導入光学系(APP:アナモルフィックプリズムペア, FI:ファラデーアイソレータ, λ/2:半波長板,FPI:ファブリーペロー干渉計)

LD は光学素子による戻り光の影響に弱い。例えばファイバーカプラーやレンズなどによる反射が LD の共振器に入ると、発振モードの不安定化につながる。これを防ぐために、LD とファイバーカプラーの間にアイソレータを設置した。また、LD の出射光は楕円形をしていたため、ファイバーカプラーとのカップリング効率を上げるために、アナモルフィックプリズムペア(APP)を用いて円形に近くなるように整形した。アナモルフィックプリズムペアは本来入射光を 1 方向にのみ広げるように設計されたものであるが、本システムでは逆向きに設置することで、横に長いレーザーを円形に近づけるようにした。APP 挿入前と挿入後のビームプロファイルを図 12 に示す。

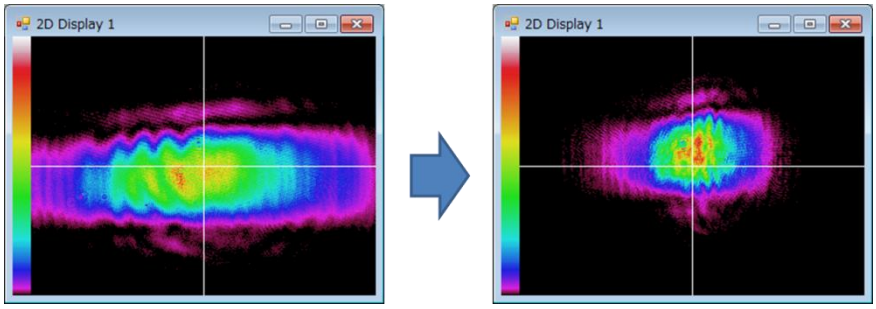

図 12　APP 挿入前と挿入後の LD のビームプロファイル

さらに、縮小光学系を挿入してファイバーカプラーの入射光径と合うようにした。

アイソレータの入口側プリズムで反射された光をファブリーペロー干渉計(FPI)に導入して、実験中に発振モードがシングルモードになっているかどうかの確認を行った。

出口側のファイバーカプラーは図 13 に示す通りオシレータと同じ 30×30cm の水冷定盤に設置した。ファイバーカプラーの前方には、発振光による戻り光が LD を不安定化させるのを防ぐために、ファラデーアイソレータをもう一つ挿入した。その後にλ/2 板を入れ、偏光方向をヘンシュロックのために最適化した。さらに f500mm のレンズを挿入し、ビームの発散角をオシレータとのカップリングが強くなるように調整した。

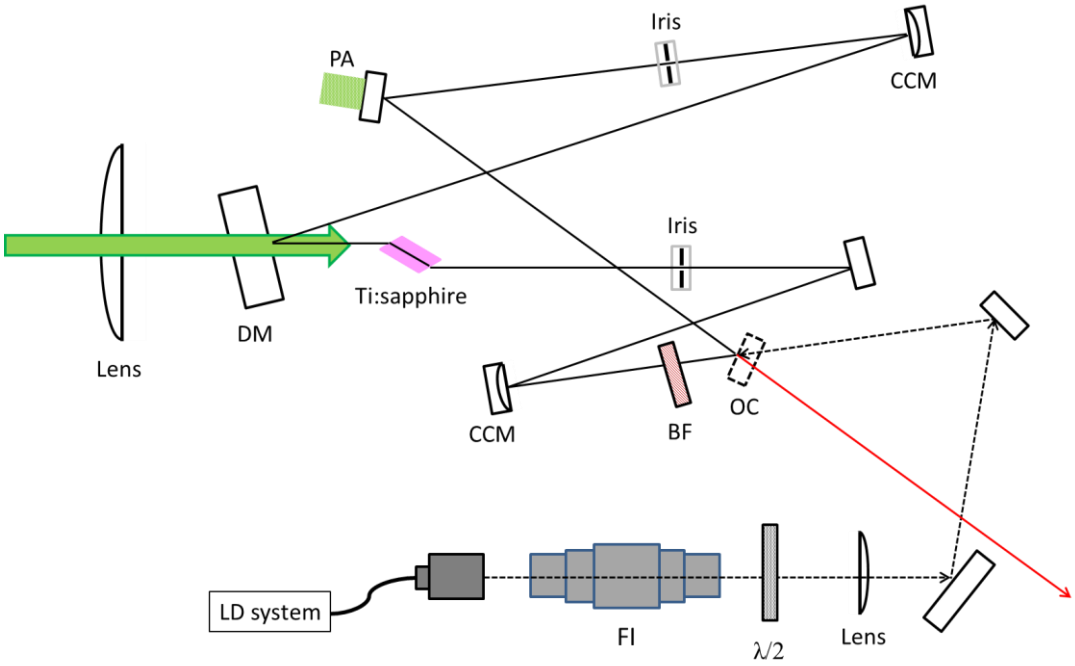

図 13　オシレータとインジェクション光源の配置(PA:ピエゾアクチュエータ, CCM 凹面ミラー, DM:ダイクロイックミラー,BF バンドパスフィルター,OC:出力鏡,FI ファラデーアイソレータ, λ/2:半波長板)

共振器内に 904nm 透過のバンドパスフィルターを 850nm 付近での発振を抑えるために挿入した。これについては 2-4-2 で述べる。

オシレータの出力は、発振光の他に、注入光の共振器透過成分と、アウトプットカプラーによる反射成分よりなる。これを偏光無依存ビームスプリッタを用いて Ti:sapphire 増幅器への入力とヘンシュロックシステムへの入力に分割した。

ヘンシュ法による共振器長の制御システム、オシレータ、内部強度測定システムを図 14 に示す。

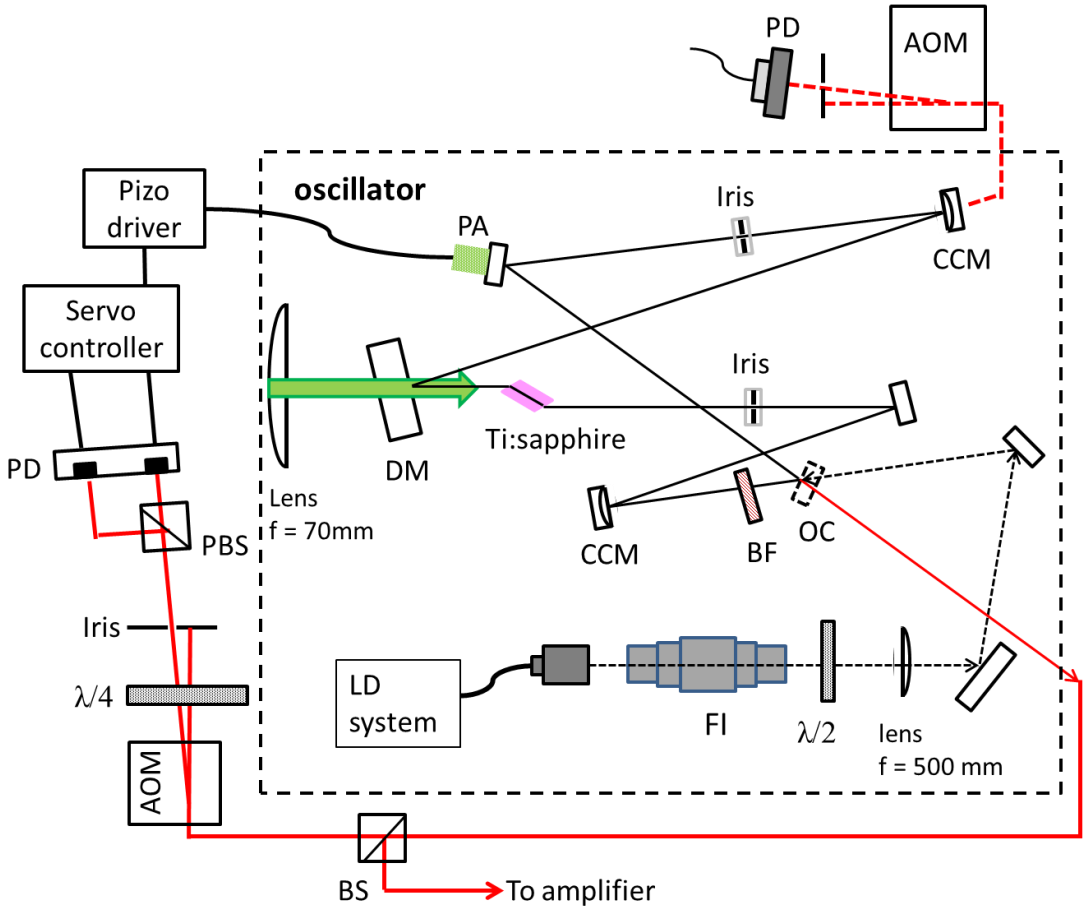

図 14　オシレータ、注入光源、制御システム概略図（PD:フォトダイオード, PBS:偏光ビームスプリッタ, AOM 音響光学素子, BS:偏光無依存ビームスプリッタ, λ/4: 1/4 波長板, CCM:凹面鏡, PA:ピエゾアクチュエータ, DM:ダイクロイックミラー, BF:バンドパスフィルター, OC:アウトプットカプラー, FI:ファラデーアイソレータ, λ/2:半波長板）

右回り偏光、左回り偏光の光はλ/4 板と偏光ビームスプリッタを通して分割し、それぞれの強度を PD により測定した。PD のそれぞれの信号はサーボコントローラ(LB1005)に送られる。このサーボコントローラは、差分増幅器、P-I フィルタ、加算増幅器で構成されている。差分増幅器には差分のオフセット調整機能があり、P-I フィルタはゲインとカットオフ周波数を調整することができる。加算増幅器では外部入力の信号を加える事ができる。サーボコントローラの出力はピエゾドライバーを通して、共振器内のミラーに取り付けたピエゾアクチュエータに伝えられる。したがって共振器長は I_r–I_l をエラーシグナルとした P-I 制御によりコントロールされる。測定した I_r–I_l の値を以下エラーシグナルと呼ぶ。

まず励起していない状態の共振器に対して、ヘンシュ法による共振器長の制御を行った。同時に、注入光が共振していることを確認するために、共振器内部強度の測定も行った。

内部強度は一枚の凹面鏡の透過光の強度より測定した。図 15 に共振器周波数を掃引した時の内部強度とエラーシグナルを示す。共振器周波数の掃引はサーボコントローラの加算増幅器に外部から掃引波形を入力することで行った。掃引波形は鋸歯状波形であり、ファンクションジェネレータより入力した。

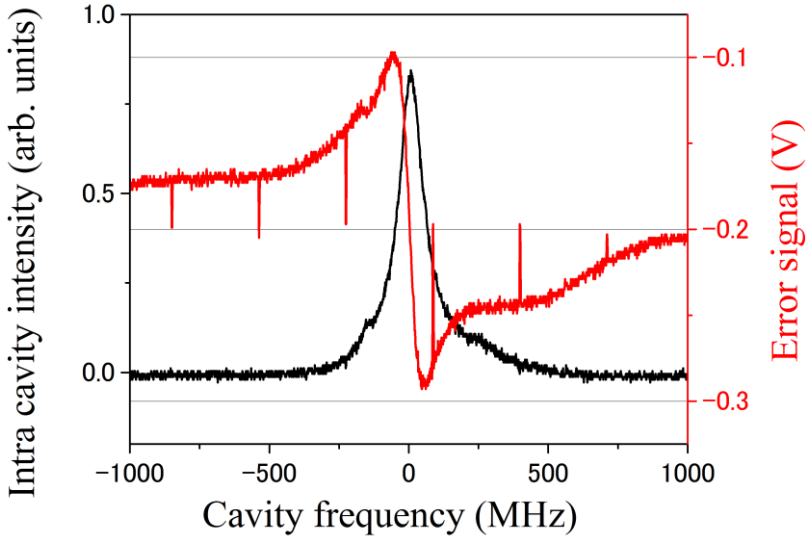

図 15　共振器周波数掃引時の内部強度(黒線)とエラーシグナル(赤線)（スパイクは AOM による）

内部強度がピーク値に達する点を中心として、エラーシグナルは正と負に二つのピークを持っている。このエラーシグナルを用いて共振器長制御をかけると、図 16 のようになった。

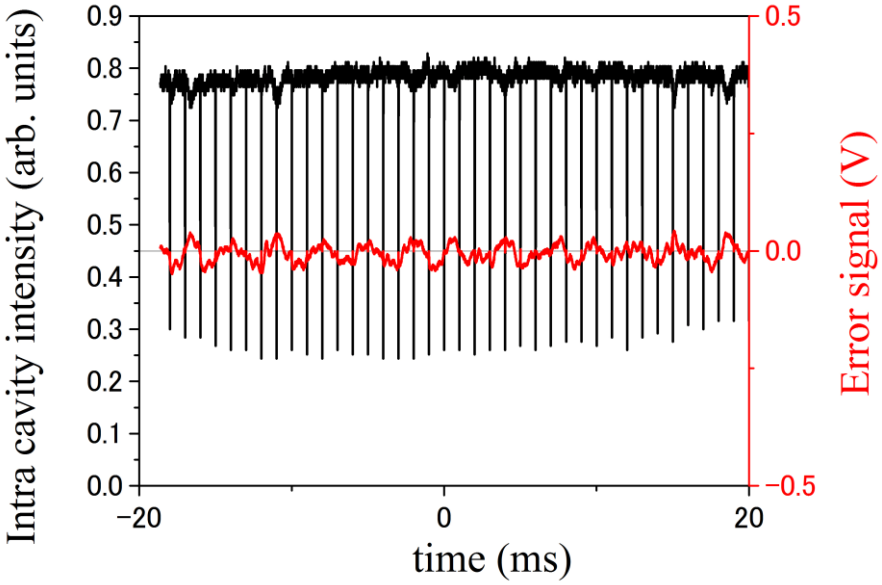

図 16　　共振器長制御下での内部強度とエラーシグナル（スパイクは AOM による）

制御をかけると内部強度は常にピークの値を保つ用になった。これにより、共振器が常に入射光と共振するように制御できる事が確認された。
掃引時、制御時の出力に見られる 6kHz のスパイクは、後述する音響光学素子(Acousto-optic modulator, AOM)によるものである。

2-4-2 6kHz 発振時の共振器長制御

次にオシレータを励起し、発振させるのと同時に注入光を入れた。
通常はインジェクションにより、発振光は注入光の波長周辺のみとなるが、本システムではゲインの低い 904nm を注入しているため、同時に 850nm 付近の発振が起きた。これを防ぐために、共振器内にバンドパスフィルターを挿入した。図 17 にそれぞれの条件での発振スペクトルを示す。

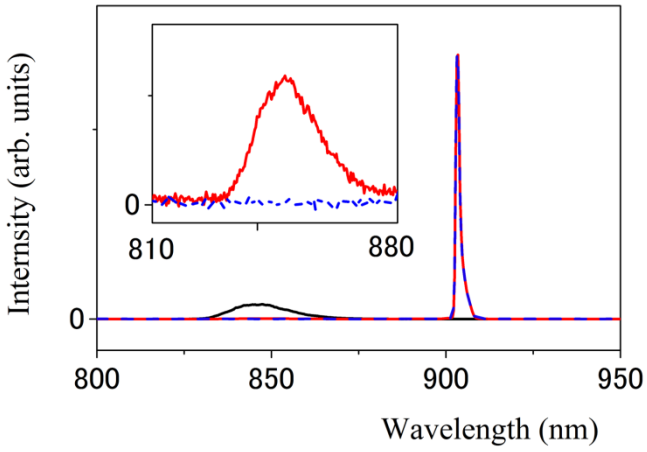

図 17　発振光スペクトル

黒実線はバンドパスフィルターと注入光が無いときの発振波長。赤実線はバンドパスフィルターなしで注入光を入れた時の波長。青点線はバンドパスフィルターを入れて注入光を入れた時の波長である。904nm の線幅は分光器のスペクトル分解能に達している。インセットは 850nm 付近の強度を拡大したものである。拡大図より、バンドパスフィルターを挿入したことで、850nm 付近の発振を抑えられている事がわかる。

2-4-2-1 発振光による PD の飽和

これまでと同様に、共振器長の制御には CW の信号を利用するのであるが、発振させた場合、同時に共振器の発振パルスも含まれる。オシレータ出力の内、発振光の強度が最も高いが、発振光のパルス幅は 40ns で、発振の繰り返し間隔 167μ秒(6 kHz)とくらべて十分短く、制御には問題無いと考えた。しかし実際にシステムを組んでみると、発振光パルスによりヘンシュロック制御のための二つの PD が飽和してしまうことが判明した。飽和時間は 200μs 以上であり、繰り返し間隔より長かった。発振光パルスの強度を ND フィルタを挿入して PD が飽和しない程度まで落とすと、CW の信号光が弱くなりすぎて制御が出来なかった。そのため、発振光パルスが来るタイミングでのみ光をカットすることが必要であった。これを解決するために、音響光学素子(Acousto-optic modulator, AOM)を導入した。AOM は圧力により屈折率が変化するガラス材料を、音波を発生させる素子と、音波吸収板で挟んだ構造になっている。音波を出すことで、結晶上に屈折率の周期的な分布が形成される。これは光に対して回折格子として働く。したがって音波の入力を切り替えることで、回折光の ON、OFF を切り替えることが可能である。AOM の働きの概略図を図 18、図 19 に示す。

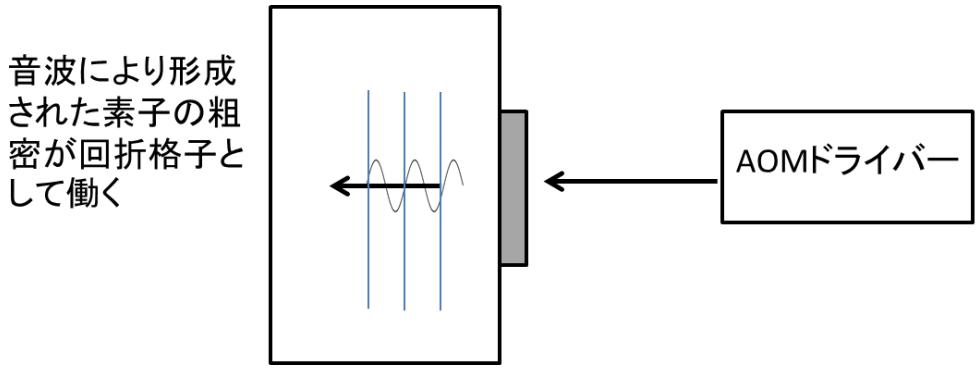

図 18　AOM における回折格子の生成

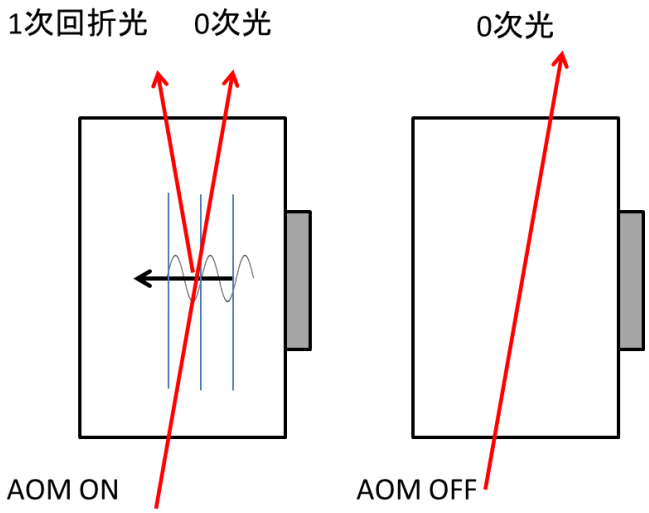

図 19　AOM を用いた光のスイッチング

AOM を用いて発振パルスの信号を減衰させるには、次の二通りの方法がある。(1) 1 次回折光を制御に利用し、パルスの来るタイミングのみ AOM をオフにして 1 次回折光を落とす。(2) 0 次光を制御に利用し、パルスの来るタイミングで AOM をオンにすることで、0 次光の強度を落とす。このうち(2)では CW の信号は強いが、AOM を ON にしても 0 次光は完全にはなくならない。一方(1)の 1 次回折光を制御に使用する方では、AOM をオフにすれば原理的に 1 次回折光は生じないので、パルスの信号を完全に落とすことができると考え、(1)の方法を選択した。

これにより図 20 に示す通り、発振光の信号を落とすことに成功した。散乱光が入ってきてはいるが、その信号の時間は 3.6μs 程度であり、AOM を再び ON にした時は問題なく CW の信号を測定できている。AOM をオフにする時間は 10μs とした。これは発振の繰り返し間隔 167μs に比べ十分短いので制御に問題はないと考えた。実際に図 16 に示す通り、AOM

を挿入しても制御は働いていた。

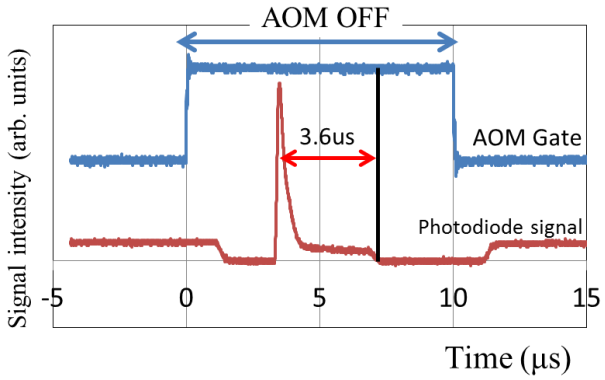

図 20　AOM 導入後のパルス入力におけるフォトダイオードの出力

同様の理由で内部強度を測定する PD の手前にも、AOM を挿入した。

2-4-2-2 励起パルスによる共振器長の変化

AOM を挿入したことにより、発振させた状態でも内部強度とエラーシグナルが測定できるようになった。

共振器を 10W、6kHz で励起し、共振器周波数を掃引した時の、内部強度およびエラーシグナルを図 21 に示す。

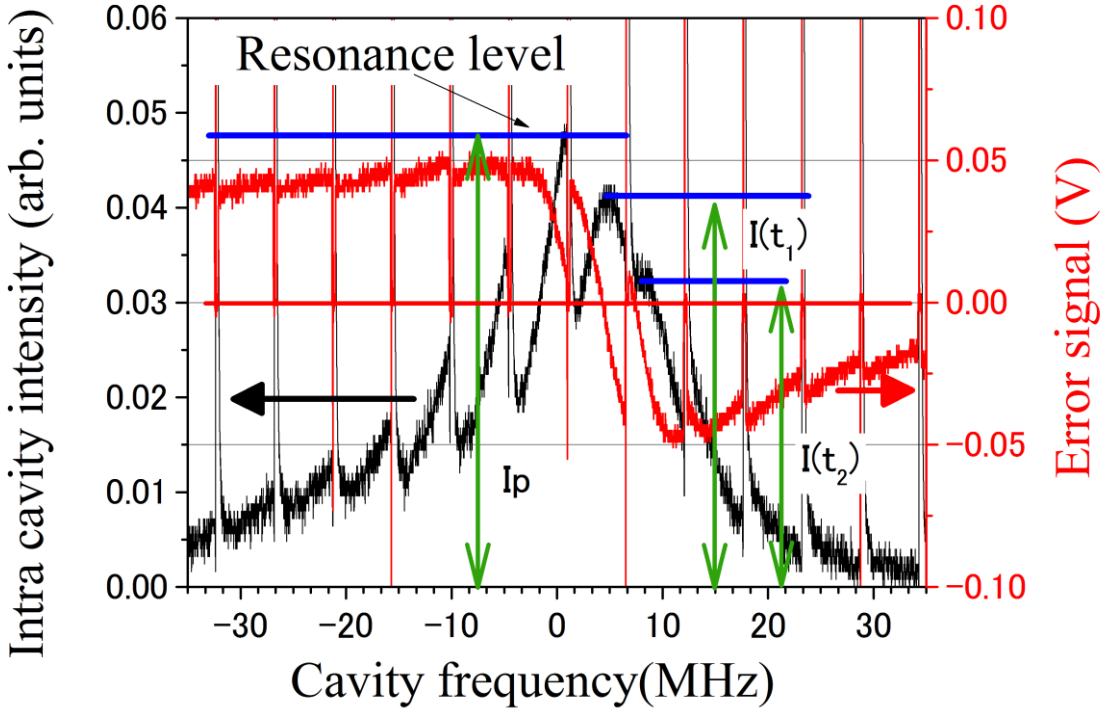

図 21　6kHz、11.8W 励起、共振器周波数掃引時の内部強度とエラーシグナル スパイクはレーザー発振(6kHz に対応する)

励起光のない時と異なり、内部強度、およびエラーシグナルが、パルスの入射の前後で離散的に変化している。内部強度とエラーシグナル両方が変化していることから、共振器の長さが、パルスの入射の前後で変動していることになる。共振器長の変動の原因としては、熱による結晶の屈折率の変動による、結晶内の光路長の変化が考えられる。また、内部強度、エラーシグナル共に、CW のみの時と比べて波形がブロードになった。これは結晶に熱レンズが生じたことで共振器の特性が変わった結果だと考えられる[7][8]。

励起パルスの熱による結晶長の変化を以下のように見積もった。

熱レンズの計算時と同様に、励起光は結晶の中でビーム径は一定で、結晶内の進行方向一様に吸収されるとする。またこの時、径方向にも一様に熱が分布すると仮定すれば、励起パルスによる、結晶の温度変化は、

$$\Delta t = C\,d\,\frac{P_{all}}{f}\frac{\left(1-\frac{\lambda_p}{\lambda_{fl}}\right)(1-\exp(-\alpha l))}{\pi\omega_p^2}l \qquad (2\text{-}13)$$

となる。C は結晶の比熱で d は密度、f は繰り返し周波数である。熱レンズの計算に用いた値に加えて、Sapphire の比熱 26.85 度での比熱 0.78(J/gK)、密度 3.90(g/cm^3)繰り返し周波数 6kHz を用いると、温度変化は Δt=0.68K となる。
この温度変化による結晶の屈折率の変化およびそれによる光路長の変化は、

$$\Delta l = l\,\frac{\partial \mathrm{n}}{\partial \mathrm{t}}\Delta \mathrm{t} \qquad (2\text{-}14)$$

となる。Δ*l*=98nm であり、ほぼ波長の 1 割程度の変動であると考えられる。これは掃引波形でのエラーシグナル、内部強度の変化から見積もられる変動量（3%程度）に近いオーダーで、共振器長が変化しているのは主に熱が原因だと考えられる。
図 21 では左から右に行くほど、共振器に取り付けたピエゾ素子が伸びている。そのため共振器長は短くなっているのであるが、パルスが入ることで結晶内の光路長が伸びる効果のため、エラーシグナルが 0V になる点(入射光が共振)が三点見られる。したがってこの掃引波形では実効的な光路長は三度共振器長に達しているとみられる。
ところが、三点のピーク値に見られる共振器内部強度はそれぞれ異なっている。これは励起光による 6kHz の熱変化が、共振器長だけでなく共振器のロスにも影響しているからだと考えられる。これを確認するために同様の掃引波形を複数回測定し、エラーシグナルが 0V の時の内部強度の値と、励起光の入射からの経過時間の関係を調べた。

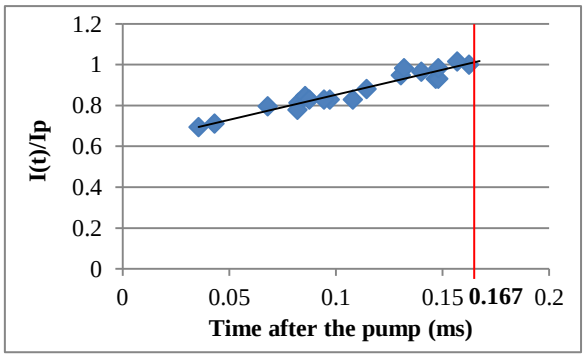

図 22　共振器内部強度ピーク値の、励起パルスからの経過時間に対する依存性

図 22 に示す通り、励起光からの経過時間が短いほど、共振時の内部強度は低くなっていることがわかった。共振器のロスが変化する原因としては、熱レンズが変化することで共振器内のアイリスによるロスが増えることなどが考えられる。
多数回の測定により、図 21 の一番左の共振時の内部強度ピーク値が内部強度の最大値であった。そのため共振器制御の目的としては内部強度の値をこの値(I_p)に保つ事となる。
励起光を入れて制御をかけた時の内部強度およびエラーシグナルを図 23 に示す。

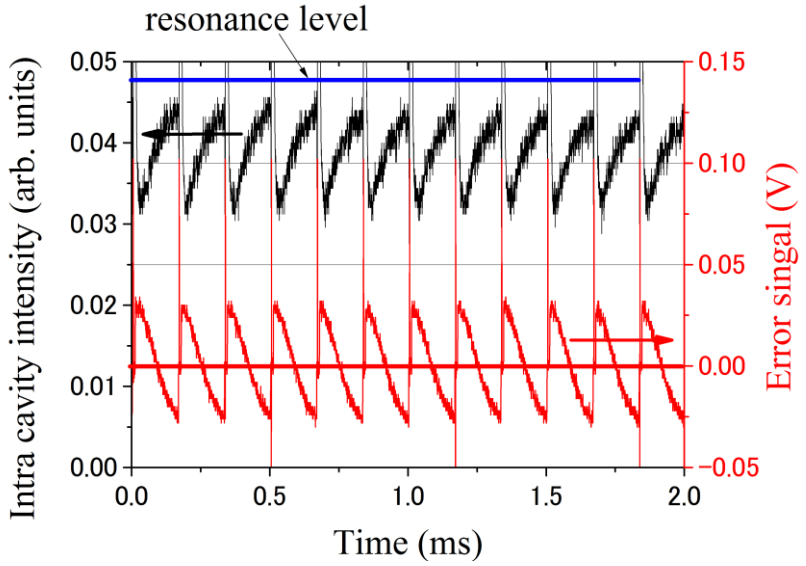

図 23　6kHz、11.8W 励起時における内部強度とエラーシグナル

内部強度およびエラーシグナルは、励起光の入射と共に離散的に変化し、次のパルスの入射までに元の状態に戻る事を繰り返している。エラーシグナルを見ると 0V を中心として変動を繰り返していることから、共振器長は励起光の入射直後に注入光との共振点よりも長くなり、次の励起までの 167us の間、Ti:sapphire 結晶の温度が下がるにしたがって共振器長が短くなり、共振長を通りすぎるところまで短くなっていると考えられる。内部強度を見ると励起光の入射直後に最も強度が低くなり、その後強度が上がるが、強度は Ip には達していない。エラーシグナルから想定される共振器長の変動を考慮すると、80us 近くで共振長に達していると思われるが、前述したキャビティロスの時間変化も重なって、図 23 のような右肩上がりの強度変化になっていると思われる。

このシステムにおいて重要なことは発振の瞬間に共振器が共振長になることである。励起光に対する発振光の強度が 1 割程度であることを考えると、熱の大部分は Ti:sapphire が励起され発振器が発振した後、使われなかった励起準位の自然発光に次ぐ緩和に起因するものが大部分だと考えられる。そのため、発振の瞬間と共振長を合わせるには、励起光入射直前に共振器を共振長になる（エラーシグナルが 0V になる）ように制御することが必要である。ところがヘンシュロックシステムでは 167us で起きる変動は速すぎて対応できなかった（167us で起こる共振器長の変動を打ち消すようにピエゾ素子に固定したミラーを動かすことができなかった）。これは 6kHz、904nm レーザーの発振周波数安定化を目指す上で、大きな課題であった。

2-4-2-3 サーボコントローラの最適化

熱による共振器長の変動幅は毎回ほぼ一定であった。ここに着目し、ヘンシュロックに

おける制御をかける目標値を共振長から、熱による変動幅の半分だけ長くなるように制御系に手を加えた。具体的にはサーボコントローラにおいて、P-I フィルターの入力にオフセットをかけた。これにより、制御系はエラーシグナルとオフセットが打ち消し合い 0V になるように制御をかけようとする。すなわち、-Eoffset のオフセットを追加した場合、エラーシグナルの平均値は Eoffset となるのである。これにより共振器長は共振長よりも長いところで変動し、励起光入射直前の一番短くなる時に、ちょうど共振長にすることができると考えた。

実際にオフセットをかけた時の内部強度とエラーシグナルを図 24 に示す。

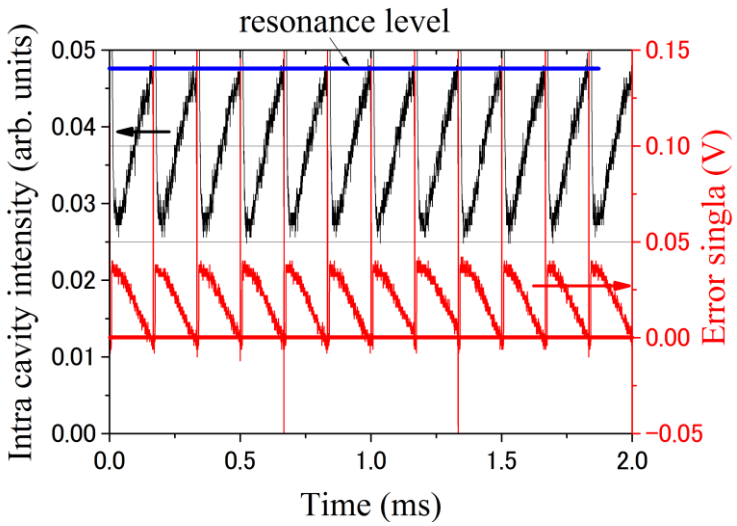

図 24　サーボコントローラ最適化後の内部強度とエラーシグナル

エラーシグナルは発振のタイミングで 0V となり、内部強度は発振の瞬間にほぼ最大ピーク値に達している。したがって発振の瞬間に共振器は共振長に達していると考えられる。

2-5 6kHz、904nm オシレータの特性

共振器の出力は注入光を入れた時で 1.1W、注入光なしだと 0.6W であった。発振光の M^2 を測定したところ 1.0 であった。

発振光の線幅はファブリーペロー干渉計を用いて測定した。ヘンシュロックによる共振器長の制御を行った場合、縦単一モードで発振していることが確認できた。この時の線幅は 13MHz という値が得られたが、これは測定器の分解能近くである。いずれにしても十分に狭い線幅で安定していることが確認できた。測定した線幅を図 25 に示す。

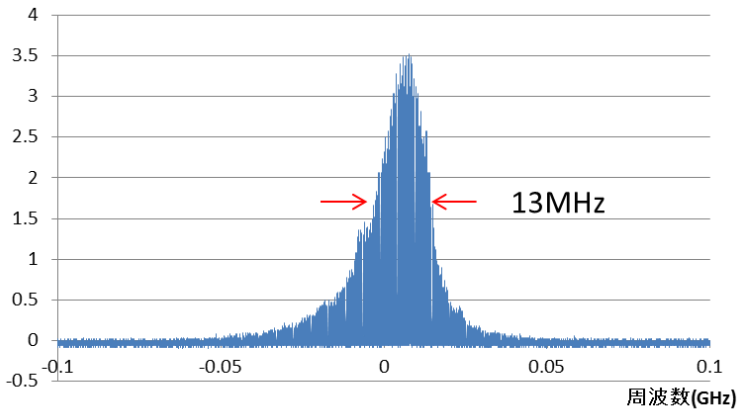

図 25　共振器長制御下での発振光のスペクトル

一方注入光を入れるのみで共振器長に制御をかけなかった場合ではマルチモードでの発振が見られた。

発振光のパルス時間幅は 40ns であったが、立ち上がり時間には 15~20ns のジッターが見られた。後の和周波発生で用いる 1.3μm 光源はパルス幅が 15ns であるため、このままでは両方のパルスを時間的に一致させることができない。和周波発生を効率よく行うためには、発振光のパルス幅を 1.3μm 光源と同程度にし、ジッターを解決する必要がある。これらの問題を解決するために、ポッケルスセルを挿入し、パルスの切出しを行った。ポッケルスセルによる短パルス化はマルチパス増幅器で受け取るエネルギーを短い時間領域に集中させることにつながり、和周波発生だけでなく、二倍波発生や四倍波発生での変換効率を高めることにもつながる。

図 26 にポッケルスセルを挿入した時の発振光の時間波形を示す。

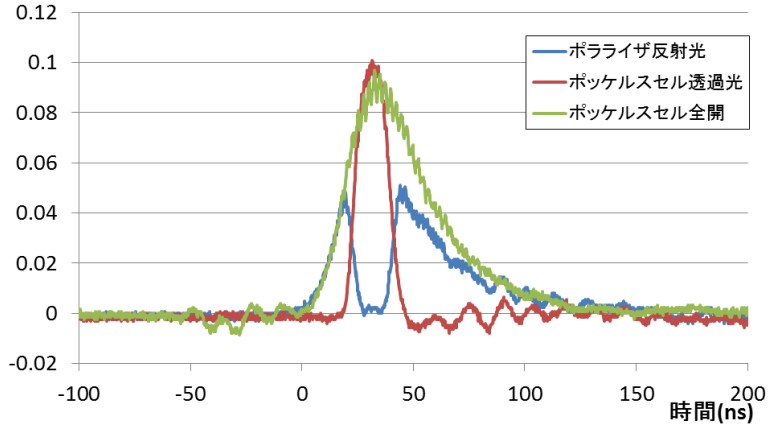

図 26 ポッケルスセルによる短パルス化

発振光はポッケルスセルにより 40ns から 16ns に短パルス化した。

図 27 に本研究で作成したオシレータの写真を載せる。赤線は発振光のパスを示している。

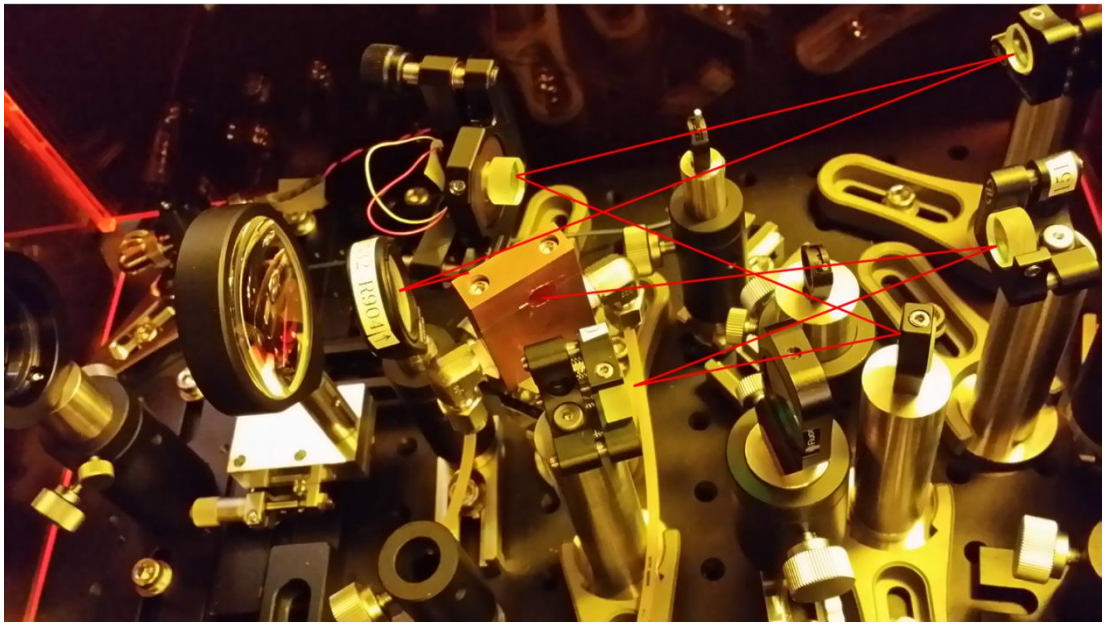

図 27 オシレータの写真

Reference

[1] T. W. Hansch and B. Couillaud: Opt. Commun. **35** (1980) 441

[2] M. E. Innoccenzi, H. T. Yura, C. L. Fincher, and R. A. Fields: App. Phys. Lett. **56** (1990) 1831

[3] S. Backus, C. G. Durfee III, G. Mourou, C. Kapteyn, and M. M. Murnane: Opt. Lett. **22** (1997) 1256

[4] H. W. Kogelnik, E. P. Ippen, A. Dienes, C. V. Shank: IEEE J. QUANTUM ELECTRON. **QE-8**, (1972) 373

[5] http://www.winlase.com/

[6] T.D.Raymond and A.V.Smith: Opt. Lett., **16** 33(1991)

[7] K. F. Wall, R. L. Aggarwal, M. D. Scicca, H. J. Zeiger. R. E. Fahey, and A. J. Strauss: Opt. Lett. **14** (1989) 180

[8] S. Hannemann, E.-J. van Dujin, and W. Ubachs: Rev. Sci. Instrum. **78** (2007) 103102

第三章マルチパス増幅器システム

3-1 はじめに

発振光の強度をマルチパス増幅器を用いて増幅を行った。
レーザーの増幅には一般に、再生増幅器とマルチパス増幅器が使用される。再生増幅器は通常弱い信号を増幅するのに使われるが、本システムではすでに 160mW が得られているため、使用しない。

本研究では当初の予定では、25W 励起のマルチパス増幅器と残りのエネルギーを使った 40W 励起のシングルパス増幅器で 10W までの増幅を達成しようとしていた。しかし励起光強度 25W だと熱レンズ効果が大きく、結晶後のビームが広がりすぎてしまうため、6 パスで増幅器を組むのが困難であった。そこでまず励起光強度にたいしてどの程度の熱レンズが結晶内に形成されるのかを予め測定することにした。

3-2 熱レンズの測定

共振器の設計に熱レンズの見積が必要だったことと同様に、準共振器構造のマルチパス増幅器においても熱レンズの値は重要である。また、増幅器では励起強度がオシレータよりも大きくなり、熱レンズ効果はさらに大きくなることが予想される。
以下に測定の手法を述べる。図 1 のような光学系を用いた。

コリメートされた光を、焦点距離 200mm のレンズを用いて Ti:sapphire 結晶上に集光した。結晶はオシレータに用いたものと同様で、長さ 12mm、直径 7mm の Brewster カットされたロッドである。Ti:sapphire 結晶に集光した光は後ろのダイクロイックミラーで反射後に f200mm のレンズでコリメートした。励起光はレンズを用いて TI:sapphire 結晶上に集光した。スポット半径($1/e^2$)は 0.134×0.132mm であった。この f=200mm レンズ、ダイクロイックミラー、励起光の配置は、後述する 6 パス増幅器でそのまま使用する。

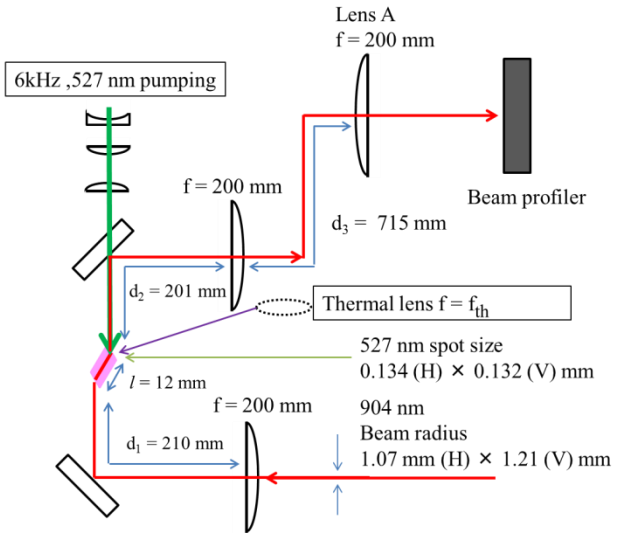

図 1　熱レンズ測定のための光学素子配置図

f 200mm レンズでコリメートした光はその後ろで f200 レンズ(レンズ A)で集光した。一方、同様の光学系によるビーム径の伝搬をソフトウェア(WinLase)でシミュレートした。計算に用いた光学素子の配置図を図 2 に示す。

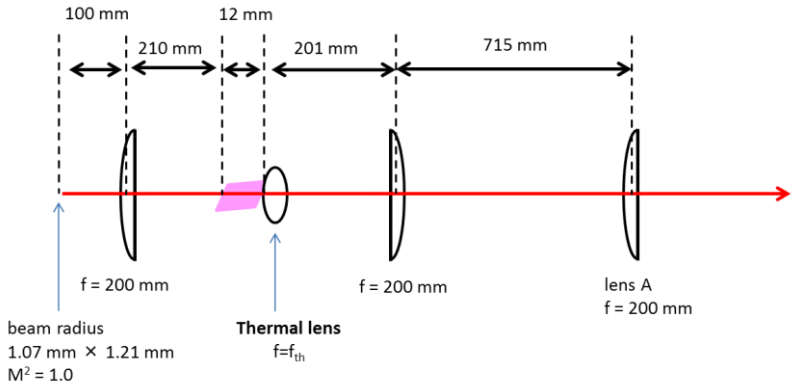

図 2　数値計算に用いた光学素子配置

熱レンズの位置は Ti:sapphire 結晶の励起側表面と仮定した。その上でシミュレートしたときのレンズ A の後ろでのスポットサイズおよび焦点位置が測定値と一致するような、f_{th} を求めた。測定は励起光強度 15~40W において行い、励起光強度と熱レンズ焦点距離の関係を調べた。また、同時に小信号利得も測定した。

しかし両者が同時に一致することは難しく、その場合スポットサイズを指標とした。表 1 に各励起光強度でのビームの焦点位置及びスポット径の測定値示す。

表 1　励起強度と、レンズ A 後の焦点位置およびスポットサイズ

	水平		垂直	
励起強度 (W)	焦点位置(mm)	スポットサイズ(mm)	焦点位置 (mm)	スポットサイズ (mm)
15	177	0.09	156	0.074
20	200	0.066	170	0.095
25	215	0.055	194	0.099
31	206	0.027	205	0.058
35	213	0.021	214	0.05
40	212	0.016	213	0.037

以上よりそれぞれ WinLase によるシミュレーションから熱レンズ焦点距離を見積もった結果を図 3 に示す。

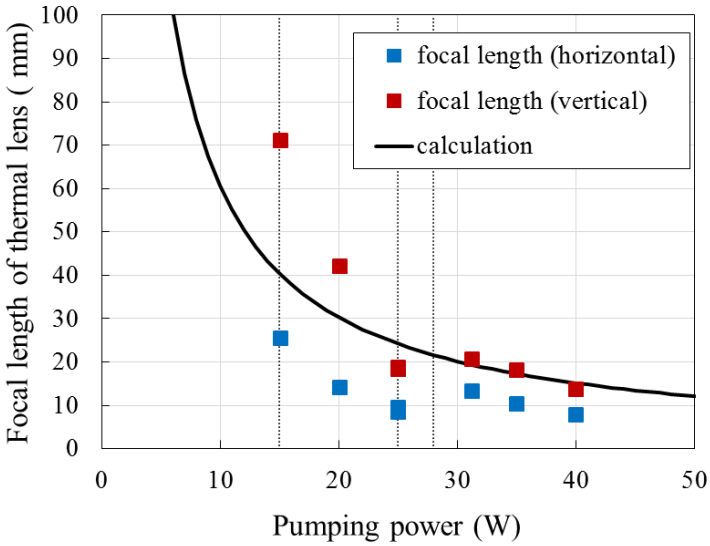

図 3　熱レンズ焦点距離と小信号利得の励起光強度依存性　縦点線は励起強度 15W、25W、28W であり、それぞれ後に示す 6 パス、4 パス、2 パスアンプの励起強度に対応している。

赤方形ドットおよび青方形ドットはそれぞれ水平方向と垂直方向の熱レンズ焦点距離を示している。また、黒実線は式(2–7)と励起光強度より計算した熱レンズ焦点距離である。

測定したビーム径は水平方向、垂直方向で異なっている。この収差は Brewster カットした結晶では垂直方向と水平方向でビーム径が異なる事により生じると考えられる[2]。

励起強度 28W 以下では式(2-7)より求めた値と、測定により求めた値が異なっている。励

起強度が 30W 以上の場合、熱レンズ位置を結晶内部で変えても求められる熱レンズ焦点距離は変わらないが、励起強度が低い場合、15W では熱レンズ位置が 5mm 変化すると求められる熱レンズ焦点距離は 20%変化した。熱レンズ焦点距離が測定用のレンズの焦点距離と近くなるため、熱レンズの効果のみ取り出すのが難しくなるためと考えられる。

3-3 小信号利得

小信号利得の励起光強度依存性を図 4 に示す。小信号利得は励起強度に対してほぼ線形に比例する値となっていたが、励起光強度 40W では、35W 励起の時よりも増幅率がわずかに落ちていた。これは beam break-up のためだと考えられる。

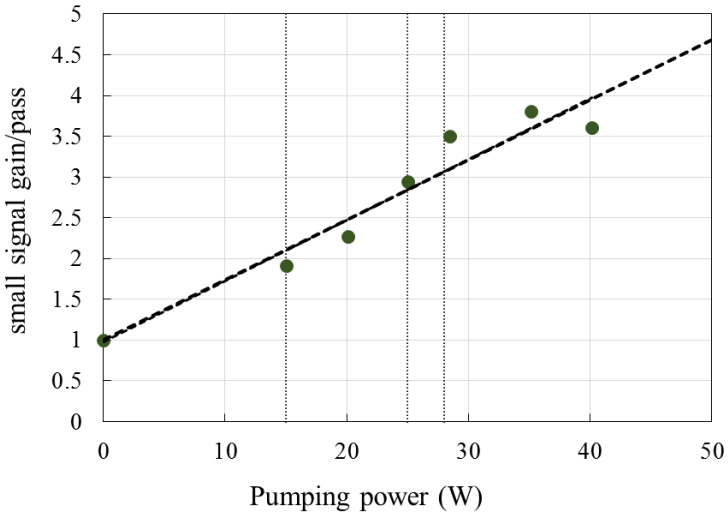

図 4　小信号利得の励起光強度依存性

3-4 マルチパス増幅器の分割

この測定において励起光強度 20W 以上の場合、水平方向の熱レンズ焦点距離は 15mm 以下となった。この時、f200mm のコリメートレンズでのビーム径は直径 8mm 以上となった。レンズの直径 50mm であることを考慮すると、1 パスあたり直径の 2 倍の 16mm を使うとすれば、3 パス程度が限界である。一方励起光強度を 15W にすればレンズ位置のビーム径はそれほど広がらず、6 パスの増幅器を組むことが期待できる。3-3 より小信号利得は 15W 励起で 1.9、20W 励起で 2.3 である。この値が 2 パス目以降も変わらないと仮定すると、15W 励起で 6 パスのマルチパス増幅器を組んだほうが多くのエネルギーを取り出すことが期待できる。

そのため当初の予定であった 1 つのマルチパス増幅器と 1 つのシングルパス増幅器を使用する案を変更し、まず 15W 励起の 6 パス増幅器で発振光を増幅し、後段にもマルパス増

幅器を構築するようにした。80W の励起光のうち、オシレータと 6 パス増幅器に使用した残りのエネルギーは約 55W であるが、これは一つの増幅器で使用するには大きすぎるため、6 パス増幅器後の増幅器を、更に二段階に分割した。

最終的に増幅器系は、マルチパス増幅器の、6 パス増幅器、4 パス増幅器、2 パス増幅器の 3 段階で構成することにした。オシレータでの発振光は 6 パス増幅器、4 パス増幅器、2 パス増幅器の順に増幅される。それぞれの増幅器は Ti:sapphire 結晶を挟んでダイクロイックミラー、平凸レンズ、折り返しミラーが設置されており、準共振器の構成となっている。励起光はオシレータを含めて一つの光源を用いており、オシレータに使用した 11.8W の残りをビームスプリッタで分割して各増幅器の励起に使用した。4 パス増幅器と 2 パス増幅器の励起強度はそれぞれ 25W と 28W とした。

3-5 6 パス増幅器

6 パス増幅器の構成を図 5 に示す。励起入力は 15W で、3 枚のレンズよりスポット半径($1/e^2$) 0.13(H)×0.13(V)mm に集光した。

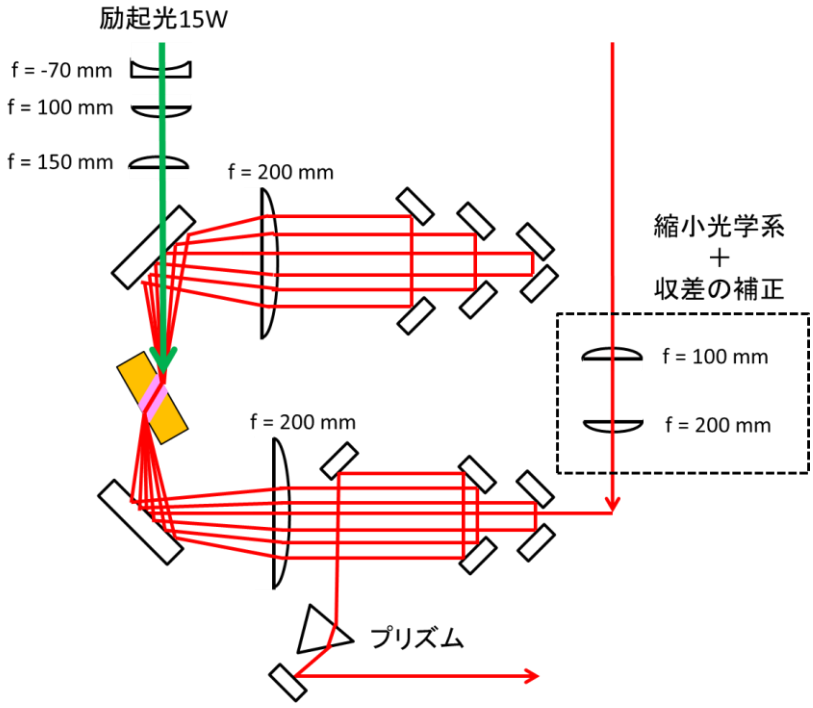

図 5　6 パス増幅器の概略図

二枚の f=200mm レンズとダイクロイックミラー、Ti:sapphire 結晶の配置は、熱レンズ焦点距離を測定した時と全く同じである。レンズの後ろに 2×2cm の方形誘電体多層膜ミラー対を設置してビームを折り返し、入射光側にも同様にミラーを設置して再び折り返して、合計 6 パス結晶を通る増幅器を組んだ。この時の各パスでの出力を表 2 に示す。また、ビ

ームプロファイルを図 6 に示す。

表 2　6 パス増幅器の各パスでの出力

	6-pass amplifier output (W)
Input	0.16
1 pass	0.33
2 pass	0.6
3 pass	1.0
4 pass	1.4
5 pass	2.0
6 pass	2.3

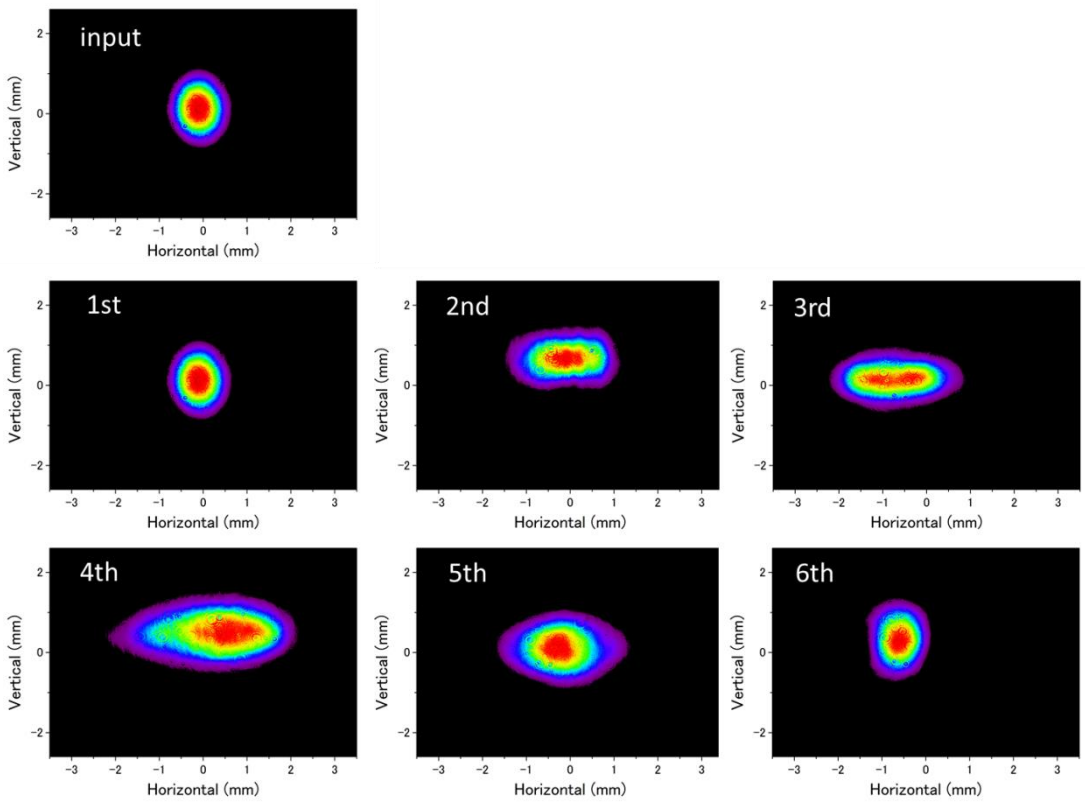

図 6　6 パス増幅器の各パスでのビームプロファイル

Brewster 結晶による水平と垂直の非等方性のためかパスを重ねるとビームプロファイルは楕円形になった。しかしその後の増幅で打ち消され、6 パス目にはほぼ円形のプロファイルとなった。

15W の励起に対して 2.3W が取り出せた。ここでパスを増やすことができれば更にエネルギーを取り出せる可能性もあるが、6 パス目ですでに直径 50mm レンズおよびダイクロイックミラーをほぼ端まで使っているためにこれ以上パスを増やせなかった。

6 パス増幅器後の出射光をミラーで取り出し、プリズムで 904nm の光を他の波長と分かれるようにした。もともと増幅光には 904nm 以外の波長は含まれないが、後段の増幅器とカップリングを起こし、他の Ti:sapphire のゲインの高い波長で Amplified spontaneous emission (ASE) が発生する可能性があったため、それを抑止するために挿入した。

6 パス増幅器から取り出したビームは収差がのっていたため、f=100mm のレンズペアを用いて補正を行った後、4 パス増幅器に導入した。

3-6 4 パス増幅器

図 7 に 4 パス増幅器の配置図を示す。励起入力は 25W で、3 枚のレンズよりスポット半径(1/e²) 0.19(H)×0.18(V)mm に集光した。

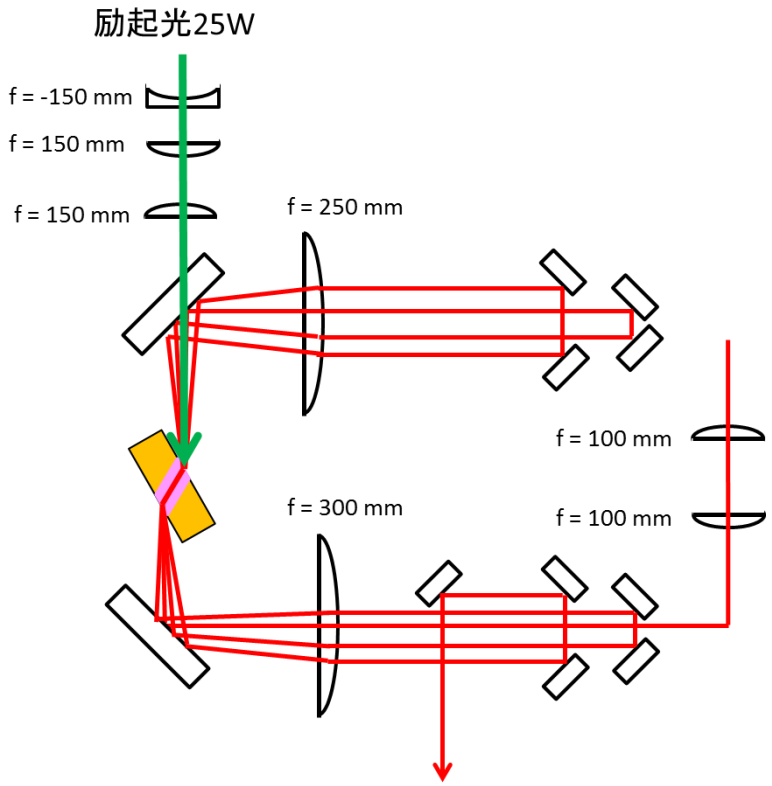

図 7　　4 パス増幅器概略図

4 パス増幅器は励起光を 25W とした。4 パス増幅器ではすでに入射光は 2W 以上となっているため、6 パス増幅器ほど集光すると飽和により増幅率が下がる。そのため集光のレンズの焦点距離は 300mm とした。また、結晶の反対側に焦点距離 250mm のレンズを設置した。

4 パス増幅器では 1 パス目と 3 パス目で、増幅されたビームプロファイルが楕円形に変形した。これは結晶での水平垂直の非等方性が原因と考えられる。この変形は偶数パスである程度相殺されて、円形に近い形に戻った。各パスでの強度を表 3 に示す。また、各パスでのビームプロファイルを図 8 に表示する。

表 3　4 パス増幅器の各パス後の出力

	4 pass amplifier output (W)
Input	2.3
1 pass	4.1
2 pass	5.5
3 pass	6.8
4 pass	7.3

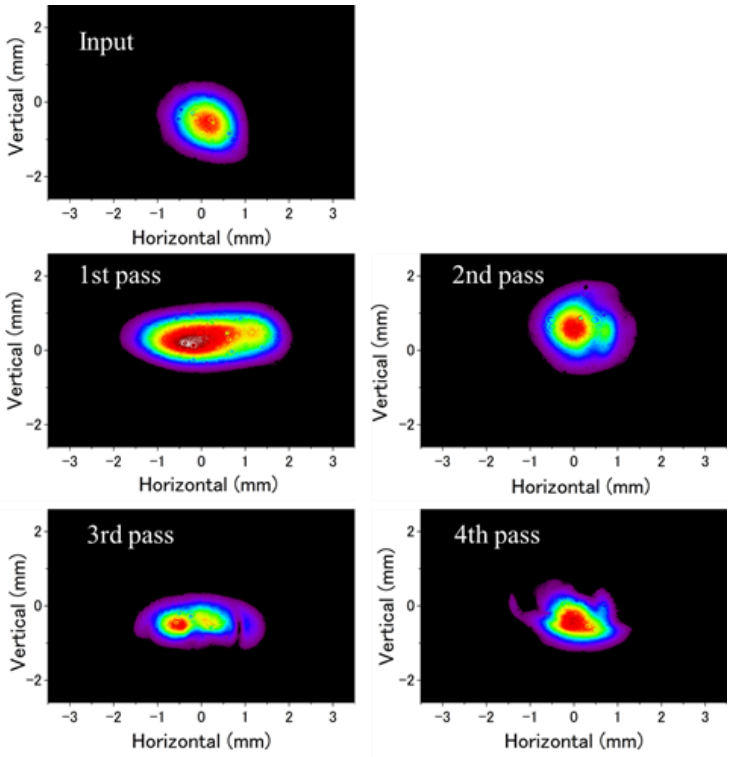

図 8　4 パス増幅器各パスでのビームプロファイル

25W の励起に対して、5W を 904nm のレーザーとして取り出すことができた。4 パス目の取り出しエネルギーが 1~3 パス目に比べて落ちており、これ以上パスを増やしてもあまり

取り出しエネルギーを増やすことは期待できなかった。また、ビームが楕円形になることから 4 パス目の時点でレンズ径のほぼ端近くまでを使用しており、これ以上パスを増やすのは困難であった。

3-7 2 パス増幅器

4 パス目の出力は 7.3W であり、これを最後の 2 パス増幅器に導入した。2 パス増幅器の手前でビームの強度は 7.1W であった。2 パス増幅器の光学素子配置を図 9 に示す。励起入力は 28W で、3 枚のレンズよりスポット半径(1/e²) 0.19(H)×0.18(V)mm に集光した。

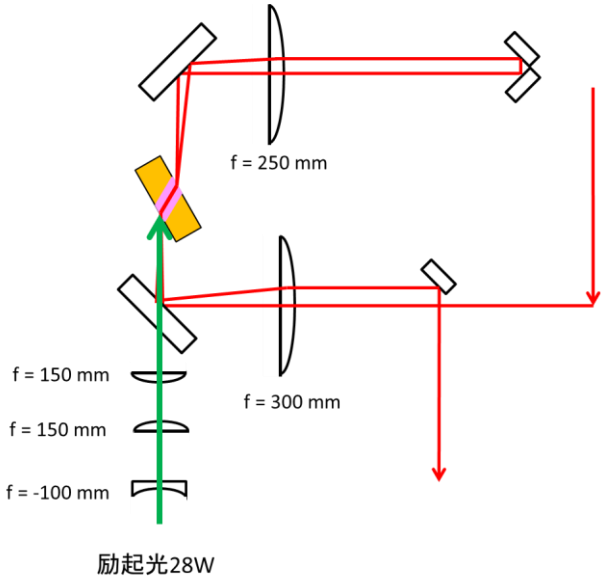

図 9　　2 パス増幅器の概略図

2 パス増幅器は 4 パス増幅器と同様に焦点距離 300mm のレンズと、250mm のレンズを用いて構築した。励起光は 28W で、元の 80W の励起光からオシレータと 6 パス増幅器、4 パス増幅器の励起に使用した残りの全エネルギーである。2 パス増幅器では 7.1W の入力に対して、1 パス目の強度が 12W、2 パス目の強度が 13W であった。28W の励起に対して約 6W の取り出しができたが、1 パス目に比べて 2 パス目はほとんど増幅されなかった。また 2 パス増幅器でも、4 パス増幅器と同様に 1 パス後のビームプロファイルが楕円形になってしまっており、2 パス目は比較的円形に近づいた。しかし発振光のほぼ TEM_{00} に近い波形から比べるとかなりプロファイルが崩れてしまっていた。2 パス増幅器でのビームプロファイルを図 10 に示す。

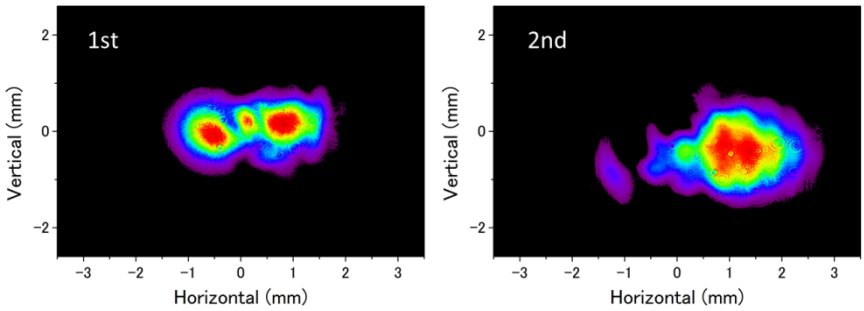

図 10　2 パス増幅器でのビームプロファイル

波長変換では一般的に光強度が高いほど変換効率が良くなるため、レンズにより非線形結晶への集光を行うが、ビームプロファイルが崩れているとビームの集光径が拡大してしまうことにつながる。そのためアイリスを使用して周辺部の光をカットすることで、ビームプロファイルの品質の向上を試みた。アイリスの挿入前後のプロファイルを図 11 に示す。

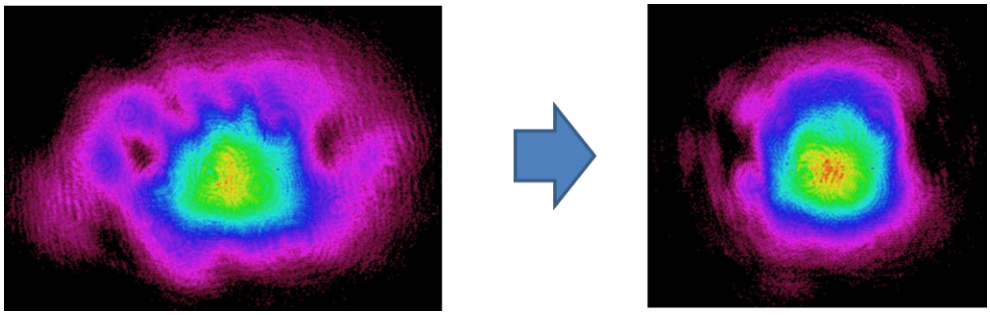

図 11　　アイリスによるビームプロファイル整形

これにより出力は 13W から 10.5W となったが、波長変換後の強度の向上につながった。

3-8 出力光の特性

図 12 に波長変換系手前でのビームプロファイルを示す。

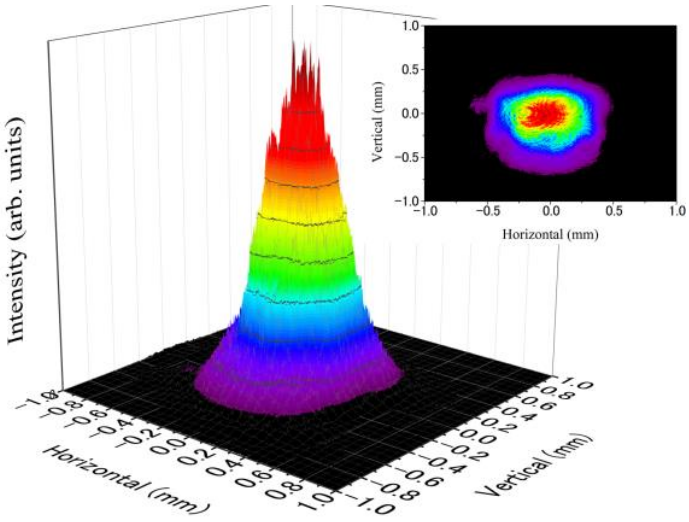

図 12　整形後のビームプロファイル

マルチパス増幅器システム後のビームの M^2 は 1.0 であった。焦点距離 500mm のレンズによる集光特性を図 13 に示す。

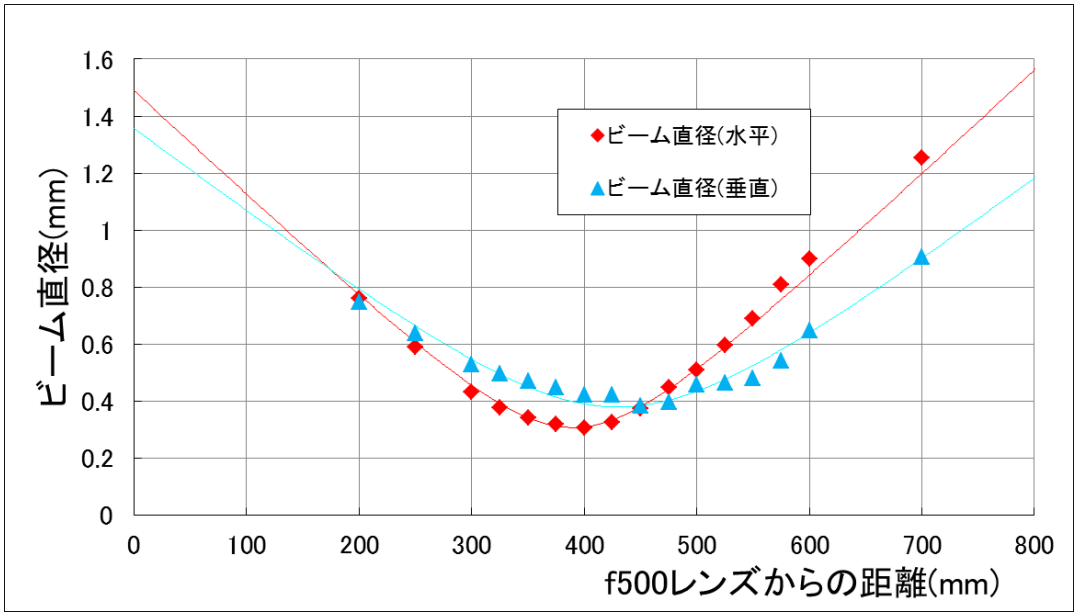

図 13　アイリスで整形後のビームの集光特性

パルスの時間幅を測定したところ 7.4ns であり、FPI で線幅を測定すると 160MHz となっていた。それぞれ図 14、図 15 に示す。また図 16 にスペクトルの拡大図を示す。

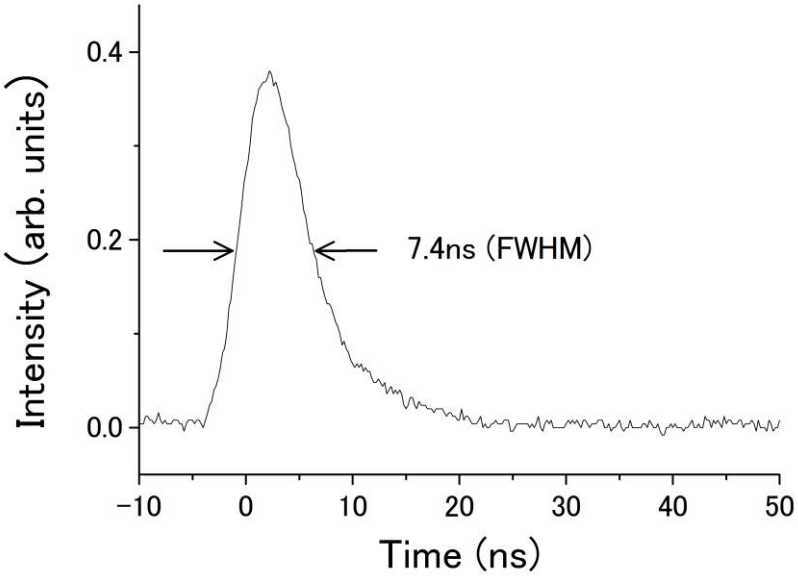

図 14　増幅後パルス波形

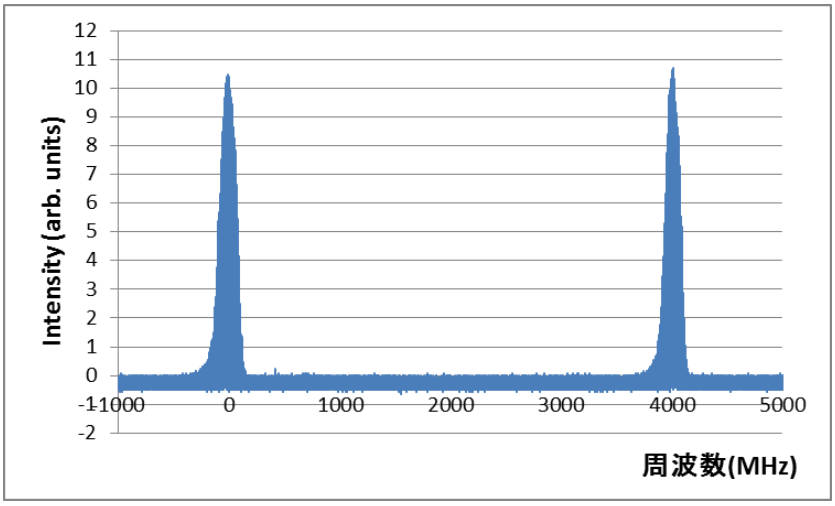

図 15 増幅後の 904nm 光のスペクトル

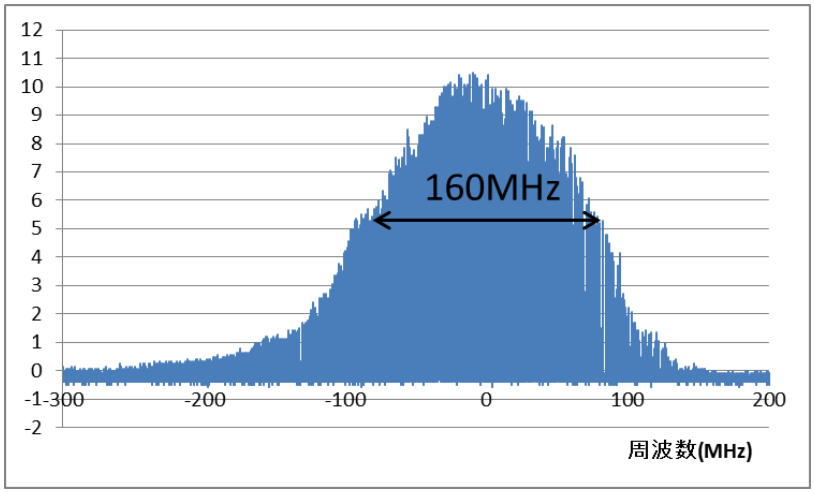

図 16　増幅後 904nm 光スペクトル 拡大図

パルスの時間幅が短くなったのは、マルチパス増幅器で増幅時にパルスの先行部分が励起エネルギーを消費し、後部のゲインが下がったためだと考えられる。線幅 160MHz は要求されていた 400MHz 以下を達成している。

共振器長の制御が正しくかかっていない場合(注入光がキャビティに共振していない場合)では図 17 に示す通り、マルチモードの発振が見られた。

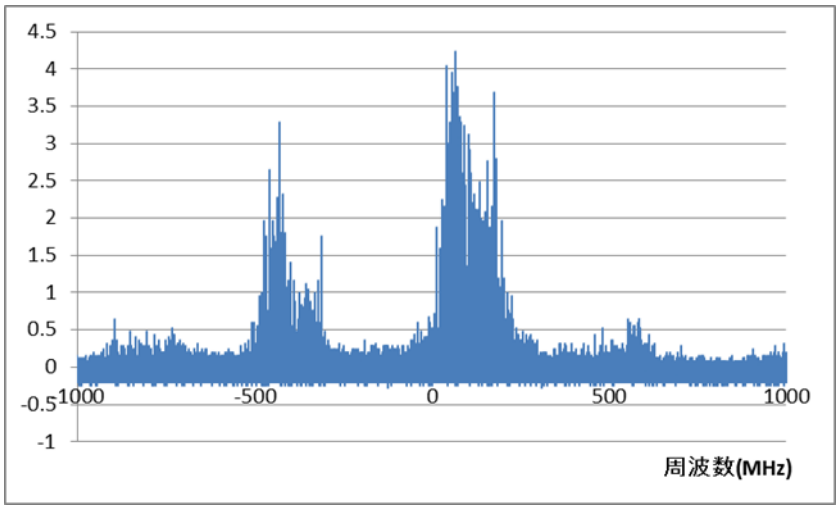

図 17 マルチモード発振時のスペクトル

マルチモード発振時の線幅は共振器の FSR(410MHz)程度であると考えられる。この場合線幅は 0.1pm 以下にはならないが、ArF オシレータの置き換えの条件として必要な線幅 0.5pm 以下は達成している。

Refernce

[1] S. Backus, C. G. Durfee III, G. Mourou, C. Kapteyn, and M. M. Murnane: Opt. Lett. **22** (1997) 1256

[2] G. Wagner, M. Schiler, V. Wulfmeyer: Opt. Exp, **13** (2005) 8045

第四章　波長変換

4-1 はじめに

Ti:sapphire オシレータシステムの出力に対し、193nm への波長変換を行った。波長変換には非線形光学結晶を用いた二倍波発生(Second-Harmonics Generation, SHG)と和周波発生(Sum-Frequency Generation, SFG)を利用した。

4-2 非線形光学効果

まず非線形光学効果による二倍波発生、和周波発生について説明する。反転対称性を持たない結晶では、結晶内の強い電場 E に対し、分極 P(E)に二次の項が現れる。P(E)を線形の成分 P^L と二次の成分 P^{NL} にわけ、

$$P(E)=P^L+P^{NL}=\varepsilon_0\,(\chi^{(1)}E+\chi^{(2)}E^2) \tag{4-1}$$

とすると、非線形成分は、

$$P^{NL}=\varepsilon_0\,\chi^{(2)}E^2 \tag{4-2}$$

とあらわせる。入射光による電場を sin 波とする。

$$E(\omega)=E_0\sin\omega t \tag{4-3}$$

この時二次の分極は、

$$P^{NL}=\varepsilon_0\,\chi^{(2)}E_0^2 sin^2\omega t=\frac{1}{2}\varepsilon_0\,\chi^{(2)}E_0^2(1-\cos 2\omega t) \tag{4-4}$$

となり、分極は二倍の周波数成分を含む。

また、結晶内に異なる周波数(ω_1、ω_2)を持つ二つの光を入れた場合、それぞれの電場を $E(\omega_1)$、$E(\omega_2)$とすると、

$$\begin{aligned}P^{NL}=\varepsilon_0\,\chi^{(2)}[&E_1^2 sin^2(\omega_1 t)+E_2^2 sin^2(\omega_2 t)\\&+E_1E_2\{\cos(\omega_1+\omega_2)\,t+\cos(\omega_1-\omega_2)\,t\}]\end{aligned} \tag{4-5}$$

となり、周波数 $\omega_1+\omega_2$ または $\omega_1-\omega_2$ の分極が生じる。これらの非線形な分極はその周波数の光を発生させるため、光の周波数変換がなされることになる。入射光の二倍の周波数が発生する現象を第 2 次高調波発生(second harmonic generation, SHG)とよび、和周波($\omega_1+\omega_2$)や差周波($\omega_1-\omega_2$)が発生する現象をそれぞれ和周波発生(sum frequency generation, SFG)および差周波発生(difference frequency generation, DFG)とよぶ。

非線形光学定数の三次の項は二次の項に比べ非常に小さいことから、SHG や SFG には二次の非線形効果を持つ結晶が使われる。

4-3 位相整合

誘電媒質中におけるマクスウェル方程式は、媒質中の電荷分布および電流がないものとして、以下のように記述される。

$$\nabla \times \boldsymbol{E} = -\mu_0 \frac{\partial \boldsymbol{H}}{\partial t} \tag{4-6}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{H} = \frac{\partial \boldsymbol{D}}{\partial t} \tag{4-7}$$

$$\nabla \cdot \boldsymbol{D} = 0 \tag{4-8}$$

$$\nabla \cdot \boldsymbol{H} = 0 \tag{4-9}$$

ここで、

$$\boldsymbol{D} = \varepsilon_0 \boldsymbol{E} + \boldsymbol{P}^L + \boldsymbol{P}^{NL} = \varepsilon \boldsymbol{E} + \boldsymbol{P}^{NL} \tag{4-10}$$

とする。

上式より、

$$\nabla^2 \boldsymbol{E} = \varepsilon \mu_0 \frac{\partial^2 \boldsymbol{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \boldsymbol{P}^{NL}}{\partial t^2} \tag{4-11}$$

が得られる。

ここで、非線形分極 P^{NL} を外部から入力された平行平面波により誘起されるとする。また、入射光を結晶内で減衰しないとすると、それにより誘起される P^{NL} の振れ幅も結晶内で一定であると考えることができる。入射光の進行方向を z 軸上に取ると、入射光と二次の分極はそれぞれ、

$$E_1(z) = \frac{1}{2} e_1 \exp[\mathrm{i}(\mathrm{k}_1 \mathrm{z} - \omega \mathrm{t})] + \mathrm{c.c} \tag{4-12}$$

$$P^{NL}(z) = \frac{1}{2} p^{NL} \exp\left[\mathrm{i}\left(\mathrm{k_p z} - \omega \mathrm{t}\right)\right] + \mathrm{c.c.} \tag{4-13}$$

となる。二次の分極 $P^{NL}(z)$により誘起される電場 $E_r(z,t)$を次の式でおく

$$E_r(\mathrm{z,t}) = \frac{1}{2} A(\mathrm{z}) \exp[\mathrm{i}(\mathrm{k_r z} - \omega \mathrm{t})] + \mathrm{c.c.} \tag{4-14}$$

A(z)は電場 E の複素振幅である。A(z)について解けば、二次の分極により誘起される電場 E_r の式が得られる。A(z)の z 方向への変化は電場の変化に比べはるかに小さいと仮定する(緩包括波近似,$\left|\frac{d^2A(z)}{dz^2}\right| \ll \left|k_2 \frac{dA(z)}{dz}\right|$)と、マクスェル方程式を解いて次の式が得られる。

$$\frac{dA(z)}{dz} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \frac{i\omega p^{NL}}{2n} \exp(i\Delta k z) \tag{4-15}$$

ここで、$\Delta \mathrm{k} = k_r - k_p$とおいた。

非線形光学結晶の厚さを L とおいて、式を積分すると次が得られる。

$$\mathrm{A(L)} = \frac{i\mu_0\omega^2 p^{NL} L}{2k_r}\mathrm{sinc}\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)\exp\left(\frac{i\Delta kL}{2}\right) \tag{4-16}$$

高調波の強度 Ir は電場強度の二乗に比例することから、

$$\mathrm{Ir} \propto |\mathrm{A(L)}|^2 \propto \mathrm{L}^2\,\mathrm{sinc}^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right) \tag{4-17}$$

sinc(x)は x=0 で最大値をとる。高強度を得るためには$\Delta\mathrm{k} = 0$すなわち$\mathrm{k}_r = k_p$となることが重要である。これを位相整合条件とよぶ。以上の式を 3 次元に拡張しても同様に、発生する高調波の波数ベクトル $\mathbf{k_r}$ と二次の分極の波数ベクトル $\mathbf{k_p}$ が一致する必要がある。二次の分極の波数 k_p は入射光の波数によって決まる。例えば入射光として波数 k_1 と k_2 の二つの光を入れた場合は、$k_p=k_1+k_2$ となる。二倍波発生では入射光の波数を k_1 とすると、$k_p=2k_1$ である。位相整合条件$\Delta\mathrm{k} = 0$は、$\mathrm{k}_r = k_1 + k_2$と表せる。

3-4 複屈折を用いた角度位相整合

位相整合条件を周波数を用いた表現に書き換えると、

$$\omega_r \cdot n(\omega_r) = \omega_1 \cdot n(\omega_1) + \omega_2 \cdot n(\omega_2) \tag{4-18}$$

となる。二倍波発生を例に取ると、$\omega_\mathrm{r} = 2\omega_1$より、位相整合条件は

$$n(2\omega_1) = n(\omega_1) \tag{4-19}$$

となる。

ところが通常の結晶では屈折率は周波数に依存し、周波数が高いほど屈折率も高くなる。そのため位相整合をとることができない。

異なる二つの波長での屈折率を合わせる手法として、複屈折を持つ結晶を用いる方法がある。複屈折材料は結晶の軸により異なった屈折率を持っており、入射角を変えることで屈折率を調整する事ができる。

負性一軸性結晶の場合、入射角 θ に対して屈折率 $n_e(\theta)$は、

$$\frac{1}{\mathrm{n}_e(\theta)^2} = \frac{\cos^2\theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2} \tag{4-20}$$

となる。$n_e(2\omega,\theta)=n_o(\omega)$となる角度 θ を位相整合角という。この場合入力光の偏光方向は光軸に直交し、出力光の偏光とも直交する。

複屈折結晶を用いた位相整合のしかたには、Type I と Type II の二通りがある。TypeI では入射光(ω_1、ω_2)の偏光方向が平行で、TypeII では垂直である。なお二軸性の結晶では本来常光と異常光の区別がつかないが、一つの結晶軸を選びそれに平行な偏光方向の光を常光として、それに垂直な偏光を異常光として入射角の調整を行う。

非線形光学結晶に求められる特性は反転対称性を持たない事や位相整合角を持つことだけでなく、基本波や二倍波に対して透明であることや、高強度の光に耐えられること、二次の感受率が高い事等が求められる。これまで開発されてきた非線形光学結晶には、LBO、

BBO、CLBO、KBBF 等が存在する。

本研究では 904nm からの二倍波発生(452nm)に LBO 結晶、それに続く四倍波発生(226nm)に BBO 結晶、1.3um との和周波発生(193nm)に CLBO 結晶を使用した。

3-5 波長変換

3-5-1 LBO を用いた二倍波発生

LBO 結晶のそれぞれの軸方向の屈折率はセルマイヤ方程式より計算される。

$$n_x^2 = 2.4542 + \frac{0.01125}{\lambda^2 - 0.01135} - 0.01388\lambda^2 \tag{4-21}$$

$$n_y^2 = 2.5390 + \frac{0.01277}{\lambda^2 - 0.01189} - 0.01848\lambda^2 \tag{4-22}$$

$$n_z^2 = 2.5865 + \frac{0.0130}{\lambda^2 - 0.01223} - 0.01861\lambda^2 \tag{4-23}$$

二倍波発生では、基本波の 904nm 光から二倍波(452nm)を発生させる。この両方の波長についてセルマイヤ方程式から屈折率を計算すると表の用になる。

表 1　二倍波発生における LBO の屈折率

LBO	904nm	452nm
n_x	1.5674	1.5842
n_y	1.5937	1.6130
n_z	1.6086	1.6280

基本波 904nm は n_z で最大の屈折率をもつため、基本波の偏光方向は n_z 方向とし、二倍波の偏光方向は n_x から n_y のあいだで変えて位相整合をとる。そのため$\theta = 90°$である。入射光の x 軸からの角度をφとすると、位相整合条件は以下の式で表される。

$$\frac{1}{n_z(\omega)^2} = \frac{\cos^2\varphi}{n_y(2\omega)^2} + \frac{\sin^2\varphi}{n_x(2\omega)^2} \tag{4-24}$$

位相整合角を計算すると、$\theta = 90°, \varphi = 22.5°$で位相整合角が存在した。概要を図 1 に示す。結晶のサイズは 5×5×30mm である。

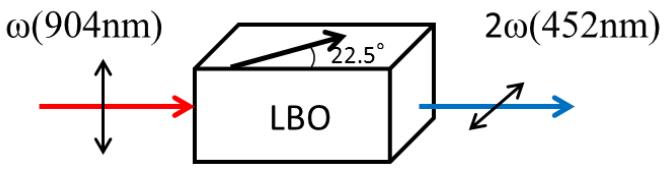

図 1　LBO による二倍波発生。黒両矢印は偏光方向を示しており、結晶内の矢印は y 軸を示している

4-5-2 BBO を用いた四倍波発生

BBO は 1 軸性結晶であるため、屈折率の異なる二つの軸を持つ。BBO 結晶のセルマイヤ方程式は以下の通りである[2]。

$$n_o^2 = 2.7359 + \frac{0.01878}{\lambda^2 - 0.01822} - 0.01354\lambda^2 \tag{4-25}$$

$$n_e^2 = 2.3753 + \frac{0.01224}{\lambda^2 - 0.01667} - 0.01516\lambda^2 \tag{4-26}$$

これより二倍波、四倍波での屈折率を計算すると表 2 のとおりである。

表 2 四倍波発生における BBO の屈折率

BBO	452nm	226nm
n_o	1.6832	1.7696
n_e	1.5612	1.6201

四倍波発生については Type I の位相整合を行った。θ = 62.7°に位相整合角が存在した。二倍波発生において二倍波は水平偏光で出ているので、BBO は結晶軸を垂直になるように設置し、四倍波が垂直偏光で出るようにした。結晶のサイズは 5×5×10mm である。

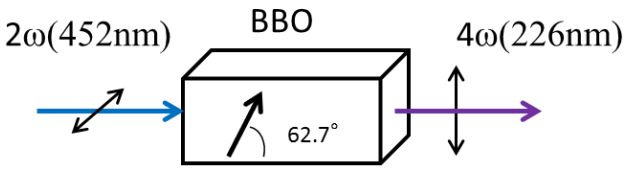

図 2　BBO による四倍波発生。黒両矢印は偏光方向を示しており、結晶内の矢印は光学軸をあらわしている

3-5-3 CLBO を用いた和周波発生

CLBO のセルマイヤ方程式は以下のとおりである[3]。

$$n_o^2 = 2.2104 + \frac{0.01018}{\lambda^2 - 0.01424} - 0.01258\lambda^2 \tag{4-27}$$

$$n_e^2 = 2.0588 + \frac{0.00838}{\lambda^2 - 0.01363} - 0.00607\lambda^2 \tag{4-28}$$

これより、193nm、1.3μm、226nm での屈折率を計算すると、表 3 のようになった。

表 3　和周波発生における屈折率

CLBO	226nm	1.3um	193nm
n_o	1.5518	1.4810	1.6286
n_e	1.4899	1.4327	1.5535

CLBO における和周波発生は、Type I の位相整合を行った。
この時和周波の位相整合条件は、

$$\omega_{193nm} \cdot \mathrm{n}_e(193nm, \theta) = \omega_{226nm} \cdot \mathrm{n}_o(226nm) + \omega_{1.3\mu m} \cdot \mathrm{n}_o(1.3\mu m) \tag{4-29}$$

となる。
四倍波の垂直偏光光と、1.3μm の垂直偏光光を CLBO 結晶に入射させ、193nm の水平偏光光を発生させた。θ = 68.3°で位相整合角が存在した。結晶のサイズは 5×5×20mm である。

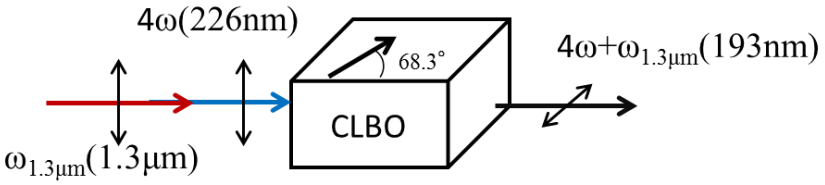

図 3　CLBO による Type I 和周波発生。黒両矢印は偏光方向を示しており、結晶内の矢印は光学軸をあらわしている

波長変換系の概略図を図 4 に示す。

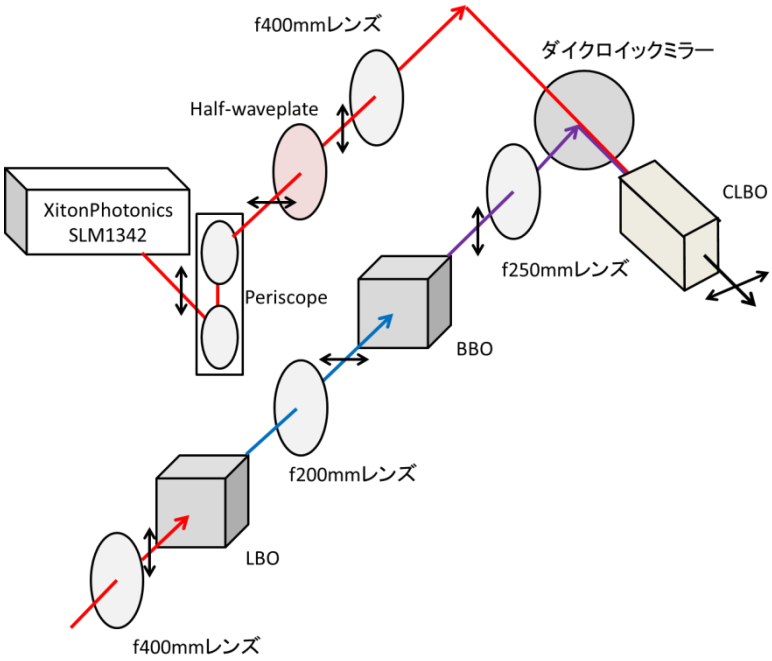

図 4 波長変換結晶の概略図

4-6 波長変換の実験

4-6-1 二倍波発生

まず基本波をレンズを用いて LBO に集光し、二倍波発生を行った。LBO 結晶の後ろに二枚のダイクロイックミラー(904nm 透過、452nm 反射)を置いて二倍波から基本波の残りを取り除いた。

波長変換では入力光の強度が強いほど変換効率がよくなるため、レンズを用いて基本波を集光することは、変換効率の向上に重要である。焦点距離の短いレンズほどより小さいスポットに集光できるが、焦点前後でのビーム径の広がりが大きいため、焦点距離が小さいレンズほど変換効率が良くなるというわけではない。そのため焦点距離 500mm のレンズの場合と 400mm のレンズの場合でどちらが変換効率が良くなるのか比較を行った。

図 5 に集光レンズの焦点距離 500mm の場合と 400mm の場合について、基本波(904nm)の強度に対する、二倍波の強度依存性を示す。入力光の強度は可変ビームスプリッタを用いて調節した。

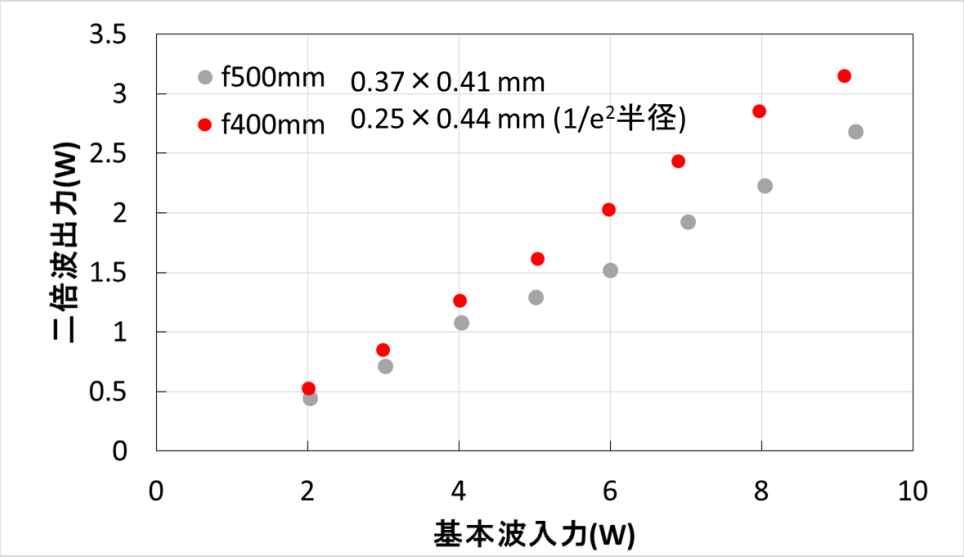

図 5　基本波入力強度に対する二倍波の強度

集光レンズの焦点距離を 400mm にしたほうが高変換効率が得られたため、f400mm のレンズを選択した。二倍波は最大で 3.2W が得られた。

4-6-2 四倍波発生

得られた二倍波(452nm)より、BBO 結晶を用いた四倍波(226nm)の発生を行った。二倍波発生では基本波を焦点距離 400nm のレンズで集光していたため、発生する二倍波にも発散角がのっていた。これを一枚のレンズを用いて BBO 結晶に集光して四倍波発生を行った。BBO 結晶の後ろにダイクロイックミラー(452nm 透過、226nm 反射)を設置し、四倍波から二倍波の残りの成分を取り除いた。

BBO 結晶に集光するレンズは焦点距離 200mm の場合と、焦点距離 250mm の場合について、変換効率の比較を行った。結果を図 6 に示す。

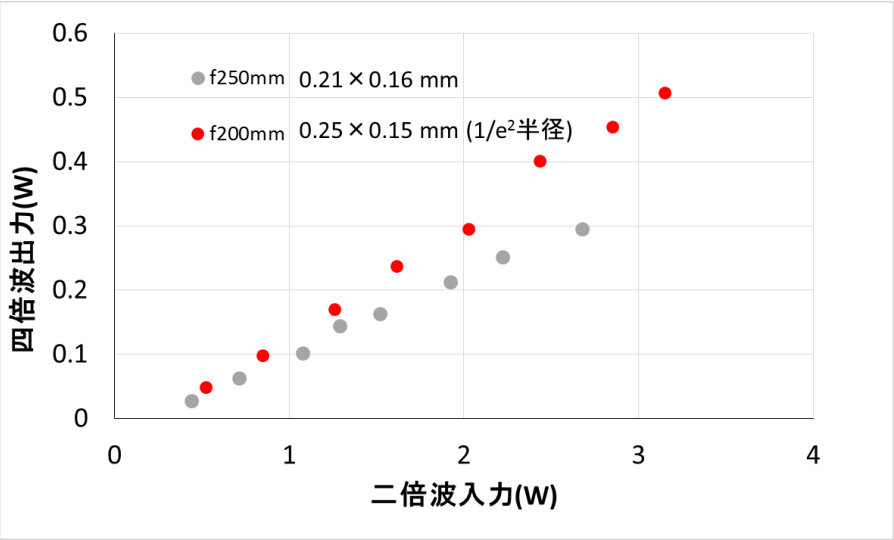

図 6　二倍波入力に対する四倍波出力の強度

f=200mm レンズの方が高い変換効率が得られたため、それを選択した。
3.2W の二倍波の入力に対し、500mW の四倍波出力が得られた。

4-6-3 193nm 光発生

CLBO 結晶を用いて四倍波(226nm)と 1.3μm 光の SFG により、193nm を発生させた。1.3μm 光源には Xitonphotonics 製レーザーダイオード SLM1342(強度 2.4W、繰り返し周波数 6kHz、パルス幅 15ns)、を使用した。CLBO 結晶は潮解を防ぐために、Ar ガス雰囲気下に置き、ヒーターで温度を 150 度に保った。四倍波と 1.3μm 光は、1.3μm 透過 226nm 反射のダイクロイックミラーを用いてパスを一致させ、CLBO に入射させた。CLBO で発生した 193nm 光は石英プリズムを用いて四倍波や 1.3μm 光と分離した。
1.3μm パルスの発振タイミングは励起光源(Evolution-HE)のトリガ出力を用いて、四倍波のタイミングと合わせた。1.3μm 光は f400mm レンズ、四倍波は f250mm を用いて CLBO に集光した
193nm の出力の四倍波強度依存性を図 7 に示す。

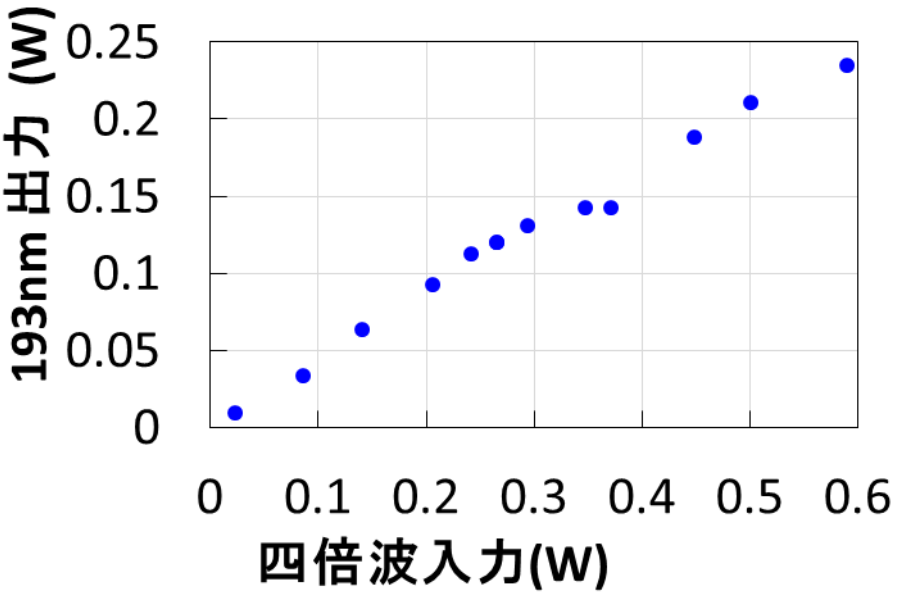

図 7　四倍波入力に対する 193nm 光強度

193nm で 200mW 以上の出力が達成できた。パルス幅時間幅 4.8ns であった。

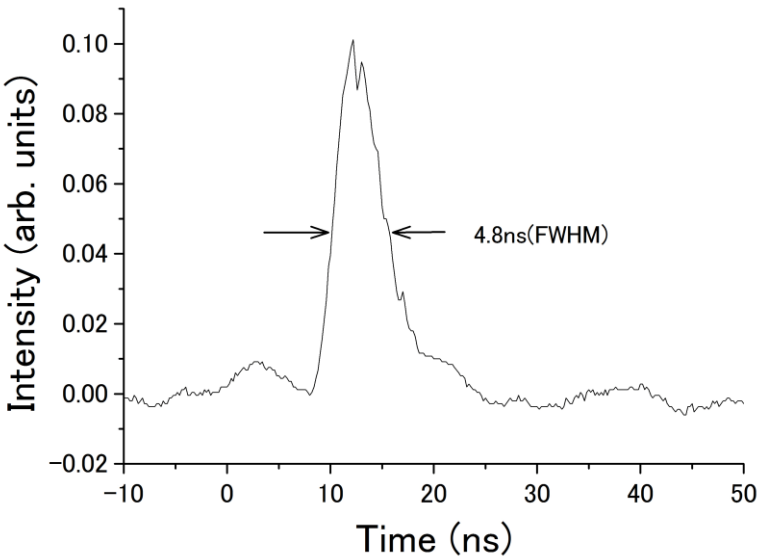

図 8　193nm 光のパルス波形

線幅は直接測定できていないが、904nm の線幅が 160MHz であったことから計算すると、350MHz 程度であると考えられる。

4-7 まとめ

本研究で開発した Ti:sapphire レーザーシステム、マルチパス増幅器システム、波長変換システムより、繰り返し周波数 6kHz、発振波長 193nm が出力 230mW で得られた。この値は現在紫外線リソグラフィに用いられている ArF のオシレータの置き換えに要求される値を満たしている。200mW の出力を持つ全固体 193nm 光源が今回実現したことにより、リソグラフィ装置の省エネルギー化が期待できる。また、線幅が現在リソグラフィに用いられるオシレータよりも狭帯域なことから、干渉露光と DSA の組み合わせなど、リソグラフィ技術の新しい発展につながることが期待できる。本研究では 80W の 527nm 励起光源より、10W の 904nm 光を取り出し、193nm で 230mW を達成した。527nm から 193nm までの変換効率としては十分なものであるといえる。一方 527nm の光源（Evolution-HE）は 80W の出力を得るために約 2kW の電力が必要であり、さらに改良する余地がある。Ti:sapphire の励起光源としては、Laser Diode による直接励起での発振も報告されており [4]、今後、エネルギー効率のさらなる向上が期待できる。

図 9 に本研究で開発した、193nm、6kHz 全固体レーザーシステムの写真を示す。

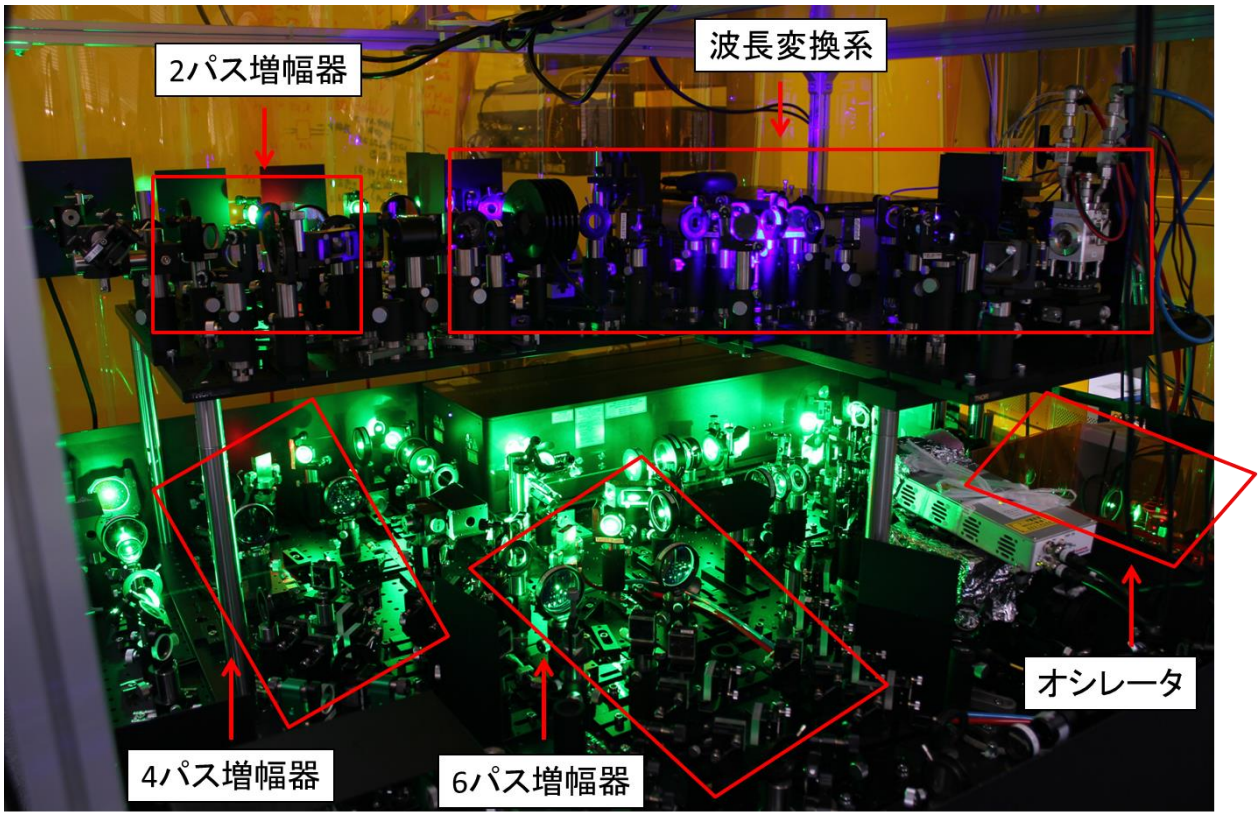

図 9　193nm、6kHz 全固体レーザーシステム

Reference

[1] K kato. IEEE J.Quantum Electron., QE-22,1013(1986)

[2] K.Kato. IEEE J.Quantum Electron., QE-21, 119(1985)

[3] N. Umemura, K.Yoshida, T.Kamimura, Y.Mori, and T.Sakai OSA Trends in Optics and Photonics **26** 715-719 (1999)

[4] C. Wood, S. Backus, J. Squiter, and C. Durfee: Laser Focus World **48** 35 (2012)

第五章　APLF+Pr 中性子シンチレータ

5-1 はじめに

APLF+Pr 中性子シンチレータは核融合プラズマ密度を知るための散乱中性子計測への応用が期待されている。APLF+Pr の発光特性は発光核である Pr^{3+}の電子状態に依存するが、Pr^{3+}の 5d 軌道および発光特性はドープするホスト材料により大きく異なる[1]。Pr^{3+}をドープした材料の紫外光の発光特性は、例えば $LiCaAlF_6$(LiCAF)[2]や LiYF4[3]といったフッ化物結晶や、$Pr(PO_3)_3$[4]等が報告されてきた。ガラス材料では APLF+Pr について、234nm で励起した時の蛍光(PL)スペクトルと、測定波長 278nm、励起波長 200nm から 260nm での励起蛍光(PLE)スペクトルが測定されている[5]。Pr^{3+}の 5d バンドについてのさらなる調査はシンチレータの量子効率向上へつながる。今回の研究では APLF+Pr および Pr:LiCAF について、PL および PLE スペクトルを真空紫外光を利用可能なシンクロトロン放射光施設において測定した結果を述べる。それにより、量子効率の更なる向上について考察した。

5-2 3 価プラセオジムイオン

Pr(プラセオジム)は原子番号 59 の希土類元素であり、電子配置は、$[Xe]4f^36s^2$ である。3 価のイオンである Pr^{3+}の電子配置は$[Xe]4f^2$ となり、電子は閉殻の他に 4f 軌道に二つ存在する。この二つの電子が Pr^{3+}の発光特性を決める。

4f 軌道にある二つの電子の角運動量の合計とスピン角運動量の合計によりエネルギー準位が異なり、二つの電子の 4f 軌道内での遷移により発光が起こる。Pr^{3+}イオンの場合、軌道角運動量の合計は 0~6(S~I)であり、基底状態は $^3H_4$ で、最もエネルギー準位の高いものは $^1S_0$ である。Pr^{3+}4f 軌道のエネルギー準位の詳細は Diekes diagram より得られる[6]。

Pr^{3+}の 5s、5p 軌道は電子でうまっており、4f 軌道より上の準位には 5d 軌道がある。5d 軌道はバンド構造をしている。電子殻の内側にある 4f 軌道はホスト材料などの外部の影響を受けにくいが、外側の 5d 軌道は Pr^{3+}の置かれた場に大きく依存する。4f 軌道、5d 軌道の準位は Pr^{3+}の発光特性としてあらわれる。$4f^2$ 軌道の最上準位である $^1S_0$ からの発光は、主に 200nm~300nm の紫外光である[7]。5d 軌道はバンド構造をしているため、発光はバンドのエネルギー準位の下端から起こる。5d バンドの下端はホスト材料により異なるが、$^1S_0$ の近くである。そのため 4f5d からの発光も波長 200nm~300nm の紫外で起こる。ホスト材料によって $^1S_0$ より上の場合と下の場合がある。

4f5d 軌道からの発光は数 ns スケールの高速でおこる。このためシンチレータの発光殻として選ばれた。

5-3 APLF ガラス

序論で述べたとおり ^{6}Li は散乱中性子に対して高い反応断面積を持つ。したがって ^{6}Li を豊富に含む材料がシンチレータ開発の目標とされた。Pr^{3+}の発光は紫外で起きる。そのため、シンチレータ材料は紫外で透明である必要がある。LiF は紫外で透明な材料として有名である。しかし LiF は潮解性がありそのままでは使用が難しい。Li を豊富に含むシンチレータ材料としてはケイ酸リチウムガラスである KG20 が知られている[8]。しかしこの材料は Li の濃度を上げると非架橋酸素の割合が増え、Pr^{3+}の紫外発光域に吸収を持つようになる。そのため、新しいシンチレータ材料の開発が必要とされた。

$Al(PO_3)_3$は紫外で透明なガラス材料である。これを安定剤として LiF と合成することで、紫外で透明で豊富に Li を含む材料が開発できると考えられ、$20Al(PO_3)_3$-80LiF ガラスが開発された。LiF を高濃度に含むにもかかわらずガラス化を達成している画期的な材料である。

発光核である Pr^{3+} のドープは PrF_3 を添加することで行われた。最大 3mol%($20Al(PO_3)_3$-80LiF+3Pr^{3+})までドープしてもガラス化が達成された。

5-4 APLF+Pr による散乱中性子計測

APLF+Pr シンチレータを用いた核融合に由来する中性子の計測は、大阪大学レーザーエネルギー学研究センターで行われたことがある[5]。APLF+Pr3mol%を核融合プラズマから 10cm 離れた場所に設置し、背面に光ファイバーを設置して発光を核融合炉外に設置した光電子増倍管に導入して、測定が行われた。

これまでに核融合プラズマに由来する中性子の信号を、X 線の信号から分別することに成功している。しかしシンチレータと核融合プラズマへ距離が近いため、中性子の信号を一次中性子によるものと散乱中性子によるものに分離するまでには至っていない。

激光 XII のターゲットチェンバーは 内半径が 82cm である。この場合炉壁による散乱中性子と燃料プラズマ由来の散乱中性子を分けるには、シンチレータをターゲットより 30cm 離した位置に置く必要がある。APLF+Pr シンチレータをそのまま用いることでは、この距離で一次中性子と散乱中性子を見分けることはできない。

激光 XII において核融合炉プラズマから 30cm の距離で APLF+Pr により一次中性子と散乱中性子を捉える試みとして、シンチレータの多チャンネルアレイ化が行われた事がる。図に示すように APLF+Pr の 2×2×20㎜ のロッドを並べ、背面にマルチアノード光電子増倍管に取り付けた。

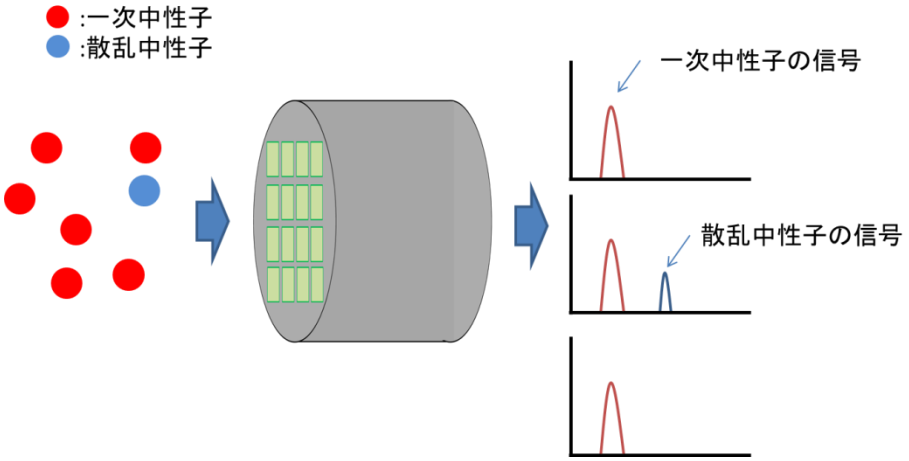

図 1　APLF+Pr シンチレータアレイによる散乱中性子の計測

これにより一つのチャンネルに入る一次中性子の数が減る一方、数の少ない散乱中性子は、チャンネルによって入るものと入らないものがある。そのためチャンネルを増やした場合、一次中性子の強度は下がるが、散乱中性子が検出されるチャンネルの強度は下がらない。

しかし一つの散乱中性子による発光が高電子増倍管の信号スレッショルド値よりも低いため、現在のところこの方式による散乱中性子の測定には成功していない。そのため、APLF+Pr の量子効率を上げる開発が必要とされている。

5-5 蛍光(PL)スペクトル、励起蛍光(PLE)スペクトルについて

ここでまず固体材料の特性の研究手法である PL 測定、および PLE 測定について述べる。PL は任意の励起波長での発光スペクトルの測定であり、PLE は、特定の波長について、励起波長を掃引した時の強度変化を調べるものである。APLF+Pr および LiCAF 結晶は可視光や紫外で透明であるため、これらの材料についての、PL、PLE の測定はドープされた Pr^{3+}の特性を主に表すことになる。発光スペクトルや励起光の吸収は材料の電子準位によってきまるため、これらの測定を行うことで、ホスト材料中の Pr^{3+}の電子状態を調べる事ができる。

5-6 APLF ガラスサンプル

APLF ガラスサンプルは Murata et al[9]により作成された。

純度 99.99%の $AL(PO_3)_3$ と LiF、および純度 99.9%の PrF_3 を原料とした。LiF のリチウムは ^6Li の同位体比を 95.5mol%まで濃縮したものを使用した。原材料を窒素ガス雰囲気下のガラスカーボン製るつぼで 1100℃まで加熱した後、解けた材料を 400℃まで急冷し、ガラス転移温度付近で 3-4 時間アニールした。

5-7 実験

APLF+Pr 試料は図 2 の通り、それぞれ 10×10×2.5mm にカットした。Pr:LiCAF サンプルは 13×2×1mm にカットした。

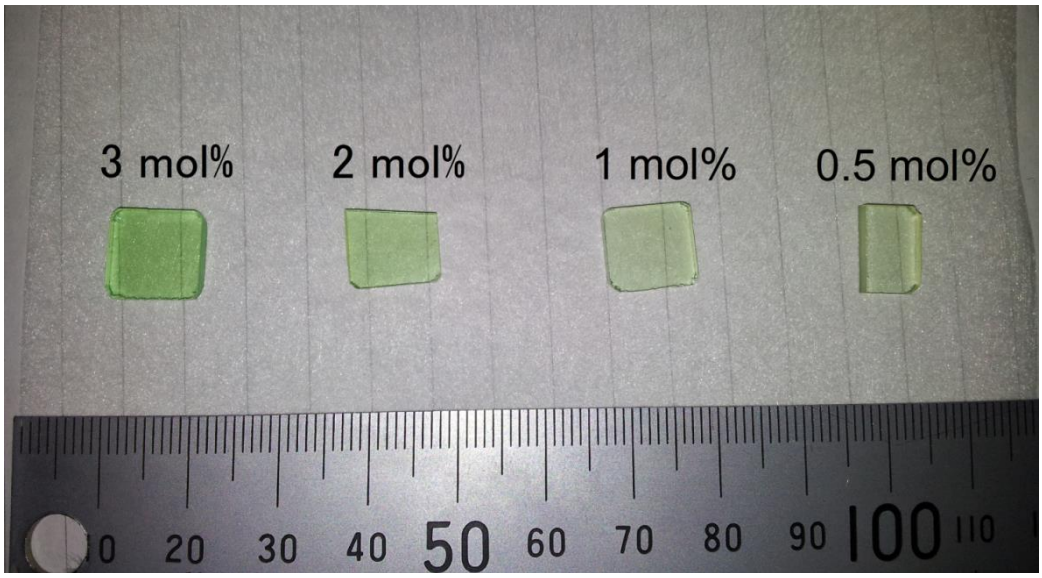

図 2　APLF+Pr ガラスサンプル

それぞれの試料について、PL、PLE を測定し、比較した。

本測定は自然科学研究機構分子科学研究所の極端紫外光施設 UVSOR において行った。以下 UVSOR について説明する。UVSOR ではシンクロトロンによる放射光が利用可能な施設である。シンクロトロンとは円形の粒子加速器であり、UVSOR では電子を用いる電子シンクロトロンを所有している。この装置は小型の加速器と大型のシンクロトロン（ストレージリング）から成る。小型の加速器から放出した電子をストレージリングで周回させ続ける構造になっている。

ストレージリングは電子を中に保持するための高真空（10^{-12}Pa 以下）のビームダクトとアンジュレータ、偏光用電磁石、高周波加速空洞などから成る。

UVSOR では、ストレージリングの湾曲部分でのシンクロトロン放射光や、直線部のアンジュレータにより生じた放射光を利用する事ができる。アンジュレータとは磁石を S と N 交互に並べたもので、ここで電子を蛇行させることで、強い光が得られるようにしたものである。

現在UVSORにおいては全ユーザータイムにおいて電流値300mAでトップアップモードでの運転が行われている。詳細は表 1 に示す。

表 1　UVSOR 運転仕様[10]

周長		53.2 m
電子エネルギー		750 MeV
ビーム電流値	多バンチモード	300 mA
	単バンチモード	70 mA
ビーム入射時間		6 hour
光パルス周期	多バンチモード	11 ns
	単バンチモード	176 ns
光パルス幅		約 400 ps
ビームエミッタンス		27 nmrad

今回使用したビームライン(BL7B)は、固体材料の蛍光測定（PL）、蛍光励起スペクトル測定(PLE)および透過率測定に用いるために用意されたビームラインである。光源としてストレージリング湾曲部分のシンクロトロン放射光を用い、3-m 垂直入射モノクロメータにより、40~1000nm の間で波長域を選択することができる。ビームラインの詳細は[11]より得られる。表 2 に BL7B の仕様を以下に示す。

表 2 BL7B Specifications[12]

Monochromator	3-m Normal-Incidence Monochromator
Wavelength Range	50 - 1000 nm (1.2 - 25 eV)
Resolution	$E/\Delta E$ = 4000-8000 for 0.01 mm slits
Experiments	Absorption, reflection, and fluorescence spectroscopy, mainly for solids

選択した波長の光は真空チェンバー内に導入される。真空チェンバーのと測定装置の構成を図 3 に示す。

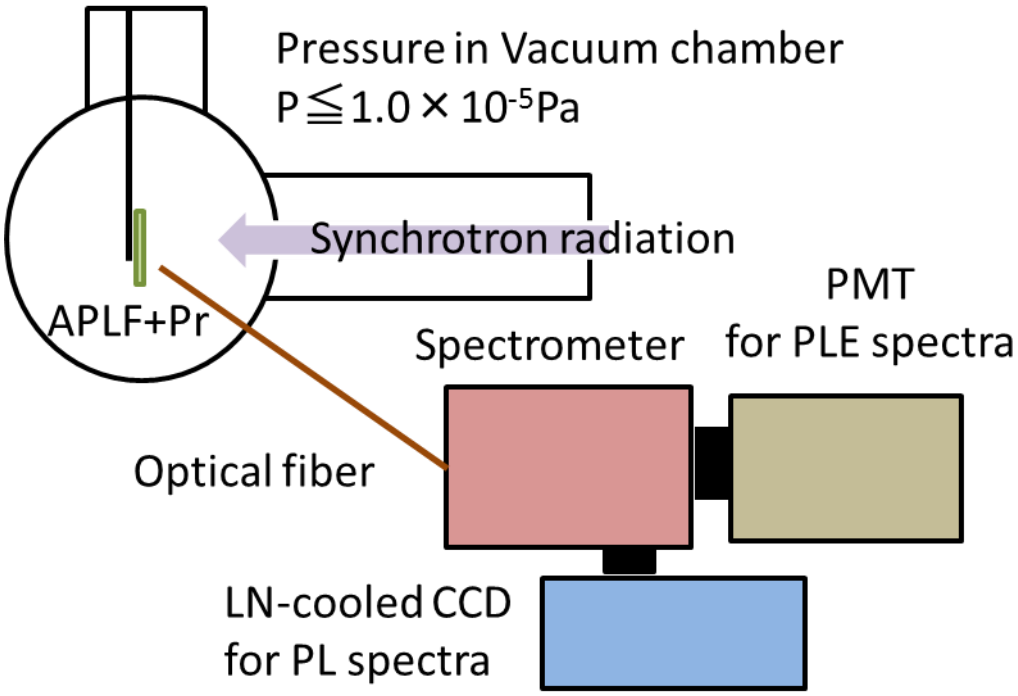

図 3　固体材料発光特性測定装置

試料を設置する真空チェンバーは 10^{-5}Pa 以下に保たれている。放射光が当たる部分にサンプルホルダーが設置されている。ここに設置したサンプルの発光をサンプル表面近くに設置されている、紫外透過の光ファイバーにより、分光器に導入する。分光器は PL 測定のための液体窒素冷却 CCD カメラと、PLE 測定のための光電子増倍管(PMT)が設置されている。光ファイバにより導入した試料の発光は、分光器内のグレーティングにより波長分解された後、ミラーにより、CCD か PMT かのいずれかに導入される。どちらの測定器を使うかはミラーにより切り替えが可能となっている。また、分光器内のグレーティングの手前に光学フィルターを設置することが可能となっており、回折格子による二次の回折の信号などを落とす必要があるとき等に使用できる。分光器内は真空ではないため、真空紫外光は検出することはできない。

サンプルホルダーは銅製で、励起光透過用の穴が空いた銅板で試料を挟み込むことで固定する方式となっている。サンプルホルダー内に液体ヘリウムを循環させることにより試料を冷却することも可能である。

図 4 に分光器と PMT、CCD の概略図を示す。

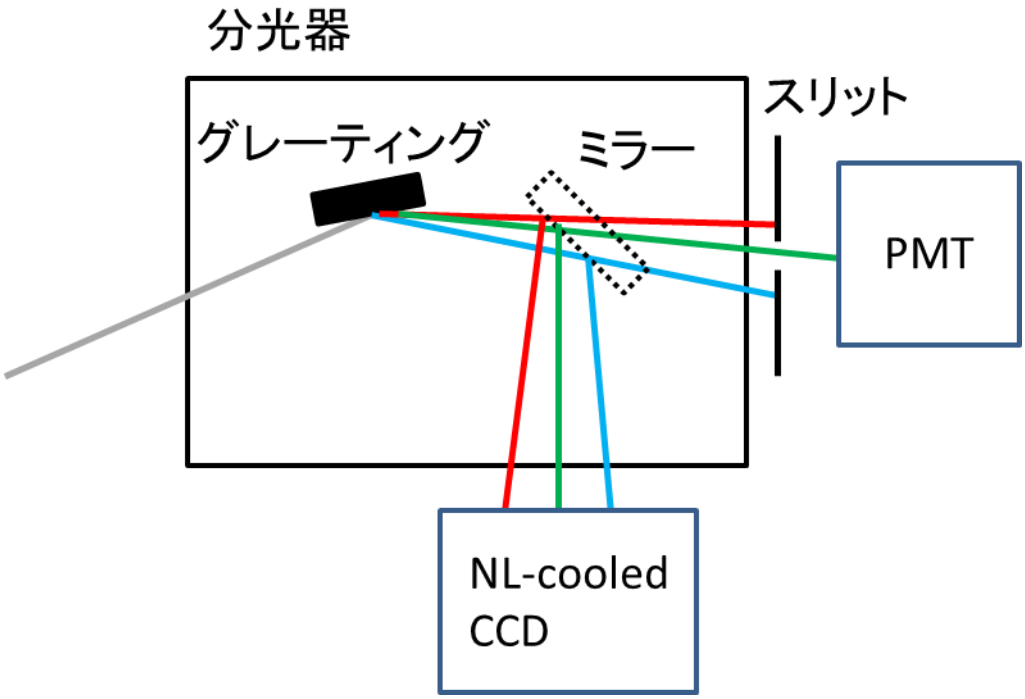

図 4　ファイバー分光器の構成

分光器ではグレーティングにより散乱光の方向を変えることができる。PMT の前にはスリットが設置されており、PLE 測定における測定波長を選択している。また、ミラーで CCD のカメラ側に反射させることで、PL の測定が可能となっている。CCD の中心に来る波長は PMT 側のスリット中心を通る波長と同じになるように構成されておいる。グレーティングの角度調整は付属のコンピュータより測定波長を入力することで自動的に調整されるようになっている。

本測定での測定値については、PL スペクトルは、CCD カメラの感度の波長依存性については補正されていない。PLE スペクトルは、励起光強度の波長分布については補正を行った。

5-8　結果と考察

5-8-1　PL スペクトル

図 5 に、励起光波長 180nm での APLF+Pr、Pr3+濃度 0.5、1、2、3mol%の PL スペクトルを緑線で、Pr:LiCAF の PL スペクトルを赤線で示す。Pr:LiCAF の PL スペクトルは測定した強度を 5 倍して表示している。

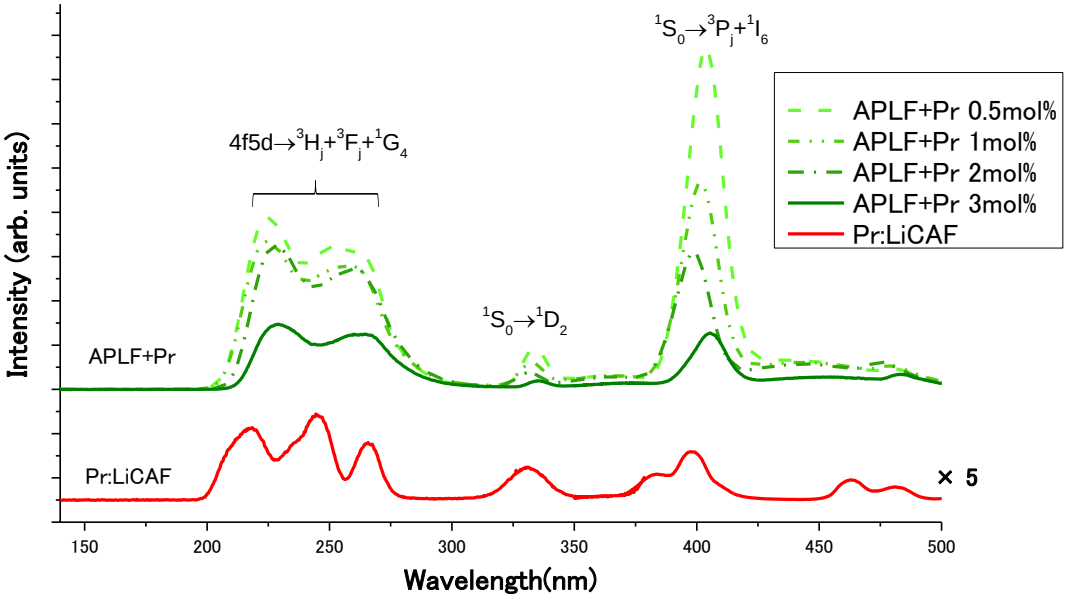

図 5　180nm 励起による APLF+Pr と Pr:LiCAF の発光スペクトル

Pr:LiCAF の発光スペクトルは以前報告されている 200nm の放射光励起により得られたスペクトル[7]と同じ形をしており、180nm 励起による多結晶の Pr:LiCAF の発光スペクトル[13]に近いスペクトルをしている。

Pr:LiCAF の、218、245、265、400nm の発光ピークは、それぞれ $^1S_0 \rightarrow {}^3H_{3,4}$、$^1S_0 \rightarrow {}^3H_6$、$^1S_0 \rightarrow {}^1G_4$、$^1S_0 \rightarrow {}^1I_6$ の遷移に対応している。480nm の発光ピークは $^1I_6 \rightarrow {}^3P_0$ に続く $^3P_0 \rightarrow {}^3H_4$ の遷移に対応している。

APLF+Pr、Pr:LiCAF はどちらも同様に 250、340、400nm 付近に発光ピークを持つが、プロファイルはわずかに異なっている。例えば 250nm 付近の発光スペクトルは、APLF+Pr は２つのピークに分かれているのに対し、Pr:LiCAF では３つに分かれている。また、400nm 付近のスペクトルも、同様にピークの数が異なっている。これらの違いについては後にエネルギー準位図を用いて説明する。

APLF+Pr の遷移過程は Pr:LiCAF とのスペクトルとの一致により類推できる。APLF+Pr の 250、340、400nm 付近の発光ピークはそれぞれ 4f5d→$^3H_j + {}^3F_j + {}^1G_4$、$^1S_0 \rightarrow {}^1D_2$、$^1S_0 \rightarrow {}^7P_j + {}^1I_6$ の遷移に対応していると考えられる。

250nm 付近の APLF+Pr の発光特性は室温の Pr^{3+}:$LaPO_3$[14]の発光特性に近い。Pr^{3+}:$LaPO_3$ では 4f5d 軌道の下端は $^1S_0$ 軌道のエネルギー準位よりも下に伸びており、$^1S_0$ からの遷移は起こらない。

一方 APLF+Pr では $^1S_0 \rightarrow {}^1D_2$ (350nm)や $^1S_0 \rightarrow {}^1I_6 + {}^3P_j$(400nm)の発光が見られる。4f5d 軌道、$^1S_0$ 両方からの発光は、Pr^{3+}をドープした $BaSO_4$ と SrO_4[3]、または液体ヘリウム温度での

Pr:$LaPO_3$[14]で報告されている。　APLF+Pr の 400、340nm のピーク強度は、Pr^{3+}濃度が大きくなるほど弱くなっている。一方 250nm 周辺の発光強度は 0.5~2mol%の間では Pr^{3+}濃度にかかわらずほぼ一定である。このことは 4f5d に比べ $4f_2$ 軌道では、Pr^{3+}濃度が増した時の交差緩和の増加が大きいことを示している[15]。濃度が 2mol%より大きくなると紫外光の強度も下がった。2mol%以上では濃度消光の効果が大きくなり、交差緩和の差が目立たなくなったためと考えられる。

PL スペクトルの測定で見られた濃度消光と交差緩和について簡潔に説明する。濃度消光は発光核（本実験においては Pr^{3+}）の発光を他の発光核が吸収してしまう事により起きる発光効率の低下であり、交差緩和とは励起された発光核と未励起の発光核とのエネルギーのやりとりにより励起準位が減ることである。

217nm 励起による APLF+Pr1mol%の PL スペクトルを図 6 に示す。

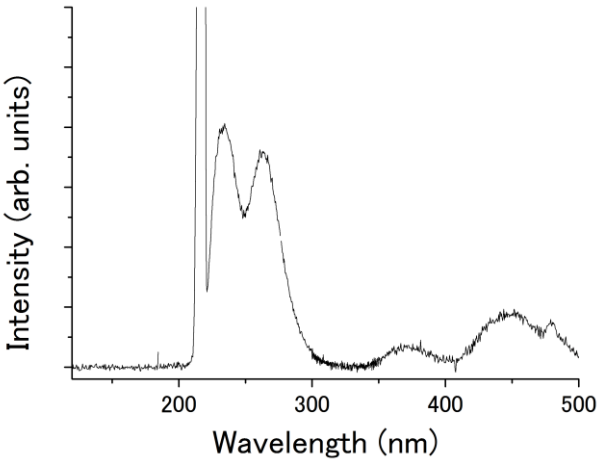

図 6　217nm 励起による APLF+Pr の発光スペクトル

紫外での発光が見られているが 400nm の発光はほぼ見られない。励起波長 217nm では励起される準位が $^1S_0$ よりも下であるため、$^1S_0$ に起因する 400nm の発光がほとんど起きないと考えられる。

5-5-2　PLE スペクトル

$4f5d \rightarrow 4f^2$ の発光である紫外の発光と、$^1S_0 \rightarrow 4f_2$ と考えられる 400nm の発光について PLE を測定した。

APLF+Pr および Pr:LiCAF の PLEa スペクトルを図 7(a)、6(b)にそれぞれ示す。

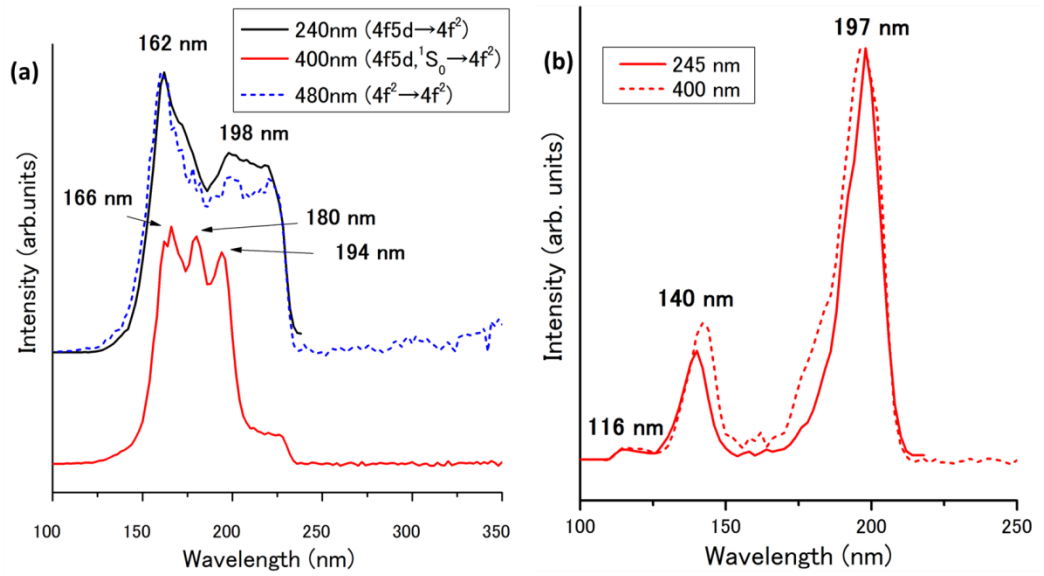

図 7　APLF+Pr の PLE スペクトル(a)と Pr:LiCAF の PLE スペクトル(b)

APLF+Pr では、240nm と 480nm の PLE スペクトルはほぼ同じ形を示している。励起波長 150~230nm の間で発光が見られ、発光ピークは 160nm となっていた。

400nm の PLE スペクトルでは、発光が見られる励起波長は同様に 150~230nm であったが、スペクトルの形状は異なっていた。励起波長 200nm で急激な強度の低下が見られ、200~230nm では発光強度は非常に小さくなっていた。また、150~200nm の間では三つピークが見られた。

400nm 発光強度が 200nm に閾値を持つのは、400nm の発光が二通りの遷移により起こっているためと考えられる[16]。一つは 5d4f→$4f^2$ の直接の遷移で、もうひとつは $^1S_0$ への緩和を経ての発光である。150~200nm の励起ならどちらの発光も起こり、$^1S_0$ からの発光の割合が大きい。一方 200~230nm の励起では $^1S_0$ の下に励起さるため、$^1S_0$ からの遷移は起こらなくなり、4f5d→$4f^2$ の発光のみとなることで、弱い発光が見られるようになったと考えられる。図 7(b)の Pr:LiCAF の PLE スペクトルは、245nm と 400nm でほぼ同じスペクトルを示している。140nm および 200nm 付近に見られるピークは、$4f^2$→4f5d の励起に対応している。120nm に見られる小さなピークは、LiCAF の価電子帯から Pr^{3+}の 4f5d 軌道への遷移だと考えられる。

5-8-3　Pr^{3+}の電子準位

図 8 に PL、PLE のデータを基に描いた APLR+Pr および Pr:LiCAF のエネルギー準位図を示す。

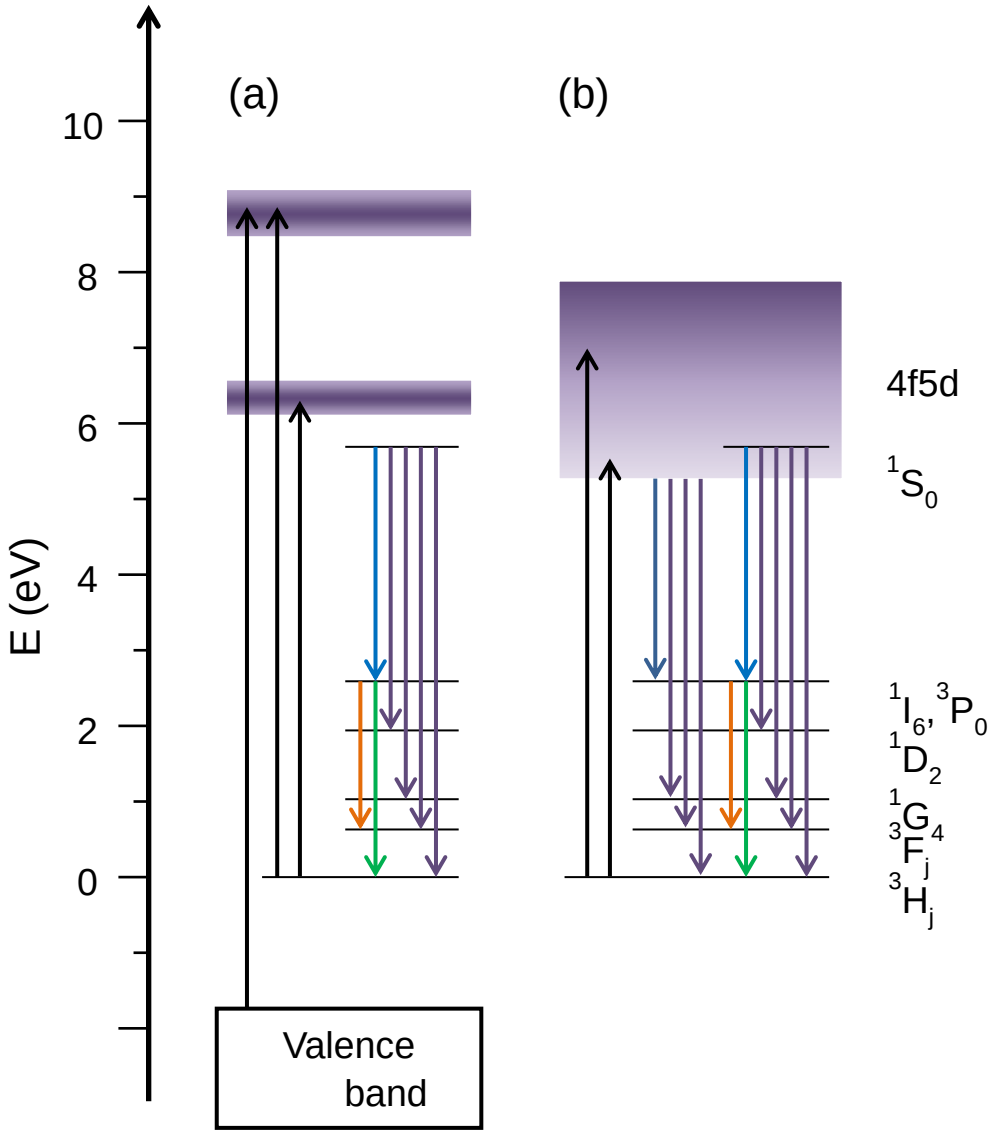

図 8　APLF+Pr の電子準位図

Pr^{3+}の 5d 軌道は 2 つのホスト材料で大きく異なっている。LiCAF では 2 つの 5d バンドが共に $^1S_0$ よりも上にあるため、まず 4f5d→$^1S_0$ の緩和が起こり、発光は主に、$^1S_0$ から生じる[7]。一方 APLF では Pr^{3+}の 5d バンドは $^1S_0$ より低い順位まで広がる。このため、APLF+Pr では 4f5d→$4f^2$ の発光が生じる。また、ガラス構造のため Pr^{3+}の相対位置もそれぞれことなり、5d 軌道の位置はそれぞれの Pr^{3+}でわずかに異なる位置に形成されていると考えられる。これらバンド構造や発光過程の違いにより、APLF+Pr と Pr:LiCAF の発光スペクトルの違いが生じている。

5-9 結論

APLF+Pr シンチレータの更なる開発のため、APLF+Pr の Pr^{3+}の電子状態を、APLF+Pr

および Pr:LiCAF の発光特性から調べた。APLF ホスト内で、Pr^{3+}の 4f5d のバンドは $^1S_0$ 軌道より低い準位まで広がっていることが分かった。このことが 4f5d→$4f^2$ による 250nm 付近の発光を促進していると考えられる。400nm の発光は一部は 4f5d→$4f^2$ に起因するが、主に $^1S_0$→$4f^2$ により生じていると考えられる。UV の発光強度は Pr^{3+}濃度で 0.5mol%のものが一番高かったが、2mol%までは濃度を増やしても UV の強度はそれほど落ちず、さらに全発光に対する UV の割合が大きくなることが分かった。4f5d→$4f^2$ に起因する UV の発光はシンチレータの性能に非常に重要であり、Pr^{3+}の濃度を 2mol%付近で最適化することは APLF+Pr ガラスシンチレータの更なる特性向上につながると考えられる。

Reference

[1] P. A. Rodnyĭ, A. N. Mishin, A. S. Potapov: Opt. Spectrosc. **93** (2002) 714.
[2] T. Yanagida, Y. Yokota, Y. Fujimoto, A. Yoshikawa, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Fukuda, T. Suyama, and N. Sarukura: Jpn. J. Appl. Phys. **48** (2009) 085503.
[3] D. Wanga, S. Huanga, F. Youa, S. Qia, Y. Fub, G. Zhangb, J. Xuc, and Y. Huangc: J. Lumin. **122-123** (2007) 450.
[4] J.C. Gâcon, K. Horchani, A. Jouini, C. Dujardin, and I. Kamenskikh: Opt. Mater. **28** (2006) 14.
[5] Y. Arikawa, K. Yamanoi, T. Nakazato, E. S. Estacio, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Nakai, T. Norimatsu, H. Azechi, T. Murata, S. Fujino, H. Yoshida, K. Kamada, Y. Usuki, T. Suyama, A. Yoshikawa, N. Sato, and H. Kan: Rev. Sci. Instrum. **80** (2009) 113504.
[6] G. H. Dieke and H. M. Crosswhite:App. Opt., **7** (1963) 675
[7] N. Shiran, S.Neicheva , A.Gektin, Y.Boyarintseva, G.Stryganyuk, K.Shimamura, and E.Villora: J. Lumin. **129** (2009) 1542.
[8] D.C. Wilson, W.C. Mead, L. Disdier, M. Houry, J.-L. Bourgade, T.J. Murphy: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **488** (2002) 300
[9] T. Murata, S. Fujino, H. Yoshida, Y. Arikawa, T. Nakazato, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Nakai, T. Norimatsu, H. Azechi, K. Kamada, Y. Usuki, T. Suyama, A. Yoshikawa, N. Sato, and H. Kan: IEEE Trans. Nucl. Sci. **57** (2010) 1426.
[10] UVSOR Pamphlet '09
[11] E. Shigemasa: UVSOR Activity Report 2010, p.25.
[12] ‘Beamlines in 2011’, Current Status of Light Sources and Beamlines, p.27
[13] S. Kück and I. Sokólska: J. Electrochem. Soc. **149** (2002) J27.
[14] A.M. Srivastava, A.A. Setlur, H.A. Comanzo, W.W. Beers, U. Happek, and P. Schmidt: Opt. Mater. **33** (2011) 292.
[15] R. Piramidowicz, K. Ławniczuk, M. Nakielska, J. Sarnecki, and M. Malinowski: J. Lumin. **128** (2008) 708.
[16] E. van der Kolk, P. Dorenbos, A. P. Vink, R. C. Perego, and C. W. E. van Eijk: Phys. Rev. B **64** (2001) 195129.

第六章 APLF+Pr の 193nm による発光寿命の測定

6-1 はじめに

発光過程を裏付けるために、APLF+Pr の発光寿命の測定を行った。発光寿命の測定は紫外光(4f5d)と 400nm($^1S_0$)光両方について行った。5d4f→$4f^2$ の発光はナノ秒オーダーであると考えられ、発光寿命の測定には短パルスのレーザーが必要となる。また、$^1S_0$ からの発光を起こすためには、励起強度は 200nm 以下である必要がある。本研究で開発した 193nm レーザーはこれらの要求を満たしている。

これを用いて 193nm パルス励起による、紫外光、400nm 発光両方の発光寿命の測定を行った。まず、193nm 励起による発光スペクトルの測定を行った。

6-2 APLF+Pr の 193nm 励起による PL スペクトル

193nm で励起した APLF+Pr 1mol% の発光スペクトルを図 1 に示すように、ファイバー付分光器を用いて測定した。

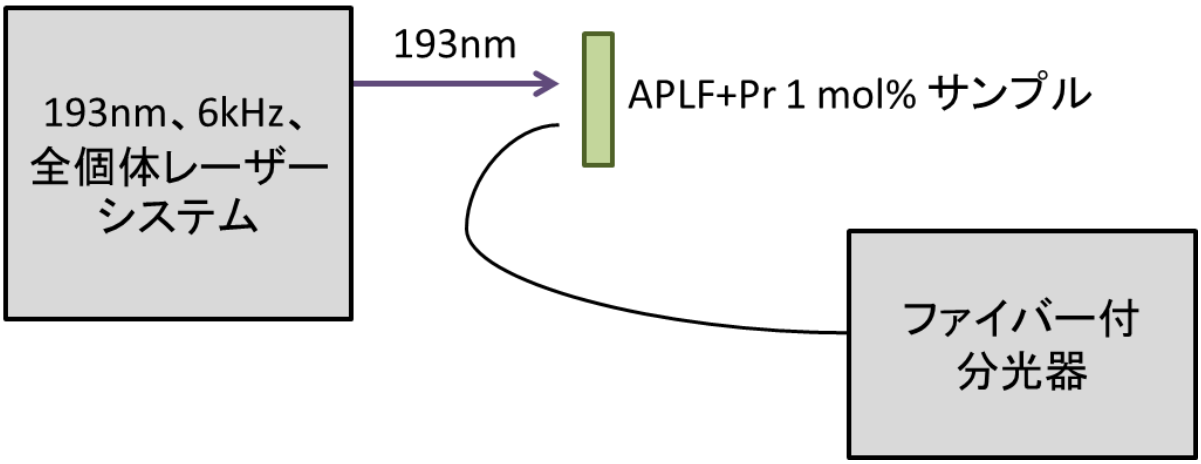

図 1　193nm 励起による発光スペクトル測定

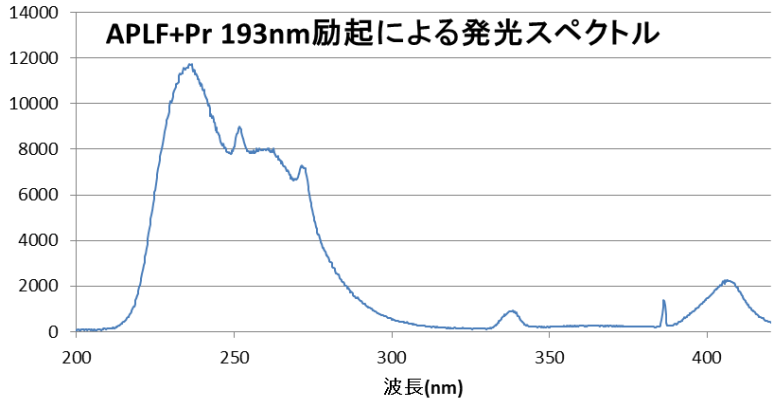

図 2　APLF+Pr の 193nm 励起による発光スペクトル

193nm の励起により、紫外の発光(210~300nm)および 400nm の発光が起きていることが確認された。このスペクトルはは UVSOR で励起波長 180nm で測定した発光スペクトルと似ている。400nm の発光は肉眼でも視認できた。紫外の広いスペクトルの中に 252nm と 272nm に小さいピーク値が見られる。これは $^1S_0 \rightarrow 4f^2$ による発光であると考えられる。

6-3 APLF+Pr の発光時間特性の測定

次に紫外光および 400nm 光それぞれの発光寿命の測定を行った。

測定装置を図 3 に示す。

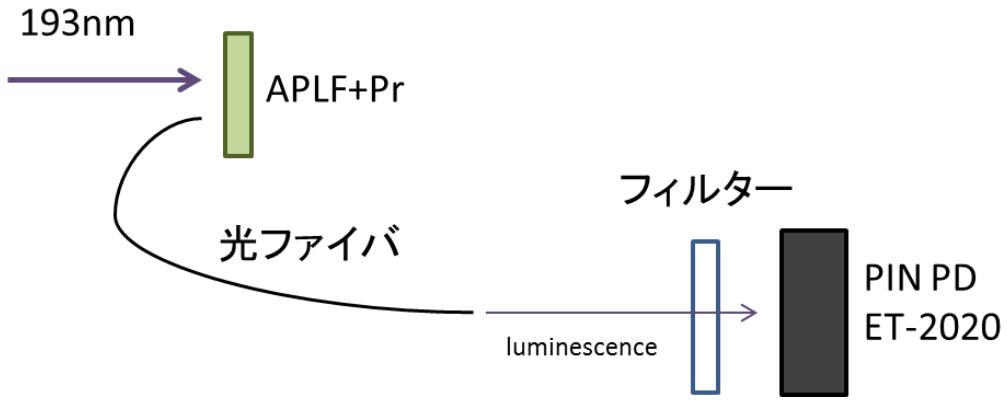

図 3　APLF+Pr の 193nm 励起による発光時間の測定

本研究で開発した 193nm レーザーにより APLF+Pr 1mol%ガラスサンプルの励起を行った。サンプルの発光は光ファイバーを用いて転送し、PINPD で発光寿命の測定を行った。測定する波長は適切なフィルタを PINPD の前に挿入することで選択した。

紫外光の発光時間を図 4、400nm 光の発光時間を図 5 に示す。

測定値に指数関数(exp(-t/τ))をフィッティングすることで、1/e に減衰する時間 τ を求めた。

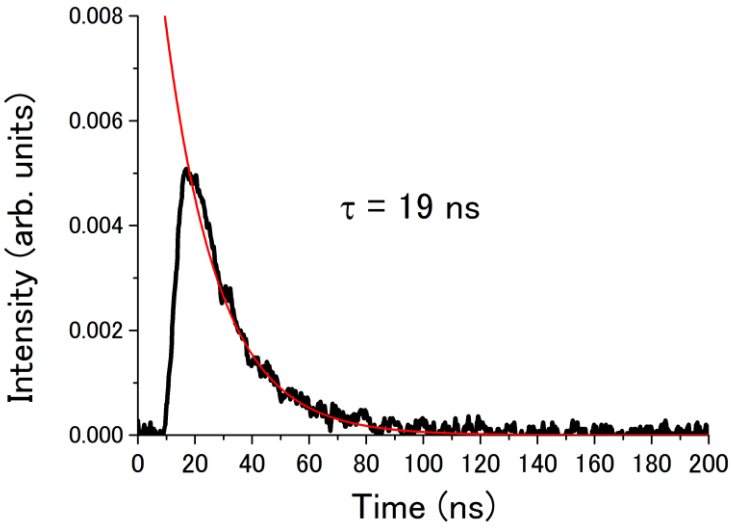

図 4 紫外光の発光時間（黒線は測定値、赤線は指数関数によるフィッティングである）

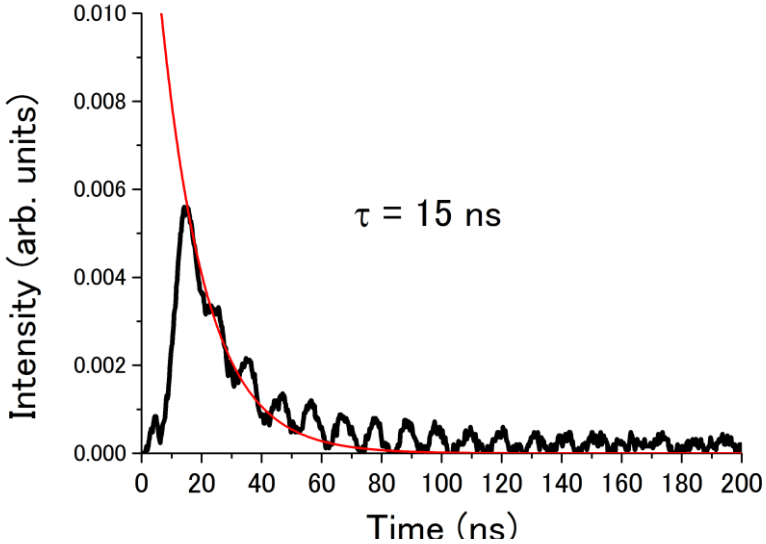

図 5　400nm 光の発光時間（黒線は測定値、赤線は指数関数によるフィッティングである）

紫外光と 400nm 光の発光速度は 1/e 緩和時間でそれぞれ 19ns と 15ns であった。400nm の発光寿命測定で見られるノイズはポッケルスセルに由来するものである。

紫外光の発光寿命の早さは、4f5d→4f^2 の遷移に由来するものだと思われる。一方主に $^1S_0$

からの遷移であるはずの 400nm の発光も紫外光以上に早くなっている。発光寿命が早い原因としては、400nm の発光の大部分を $^1S_0$ ではなく 4f5d からの遷移により生じているという可能性と、$^1S_0$ と 4f5d の準位が重なっているために $^1S_0$ からの発光が早くなるという可能性が考えられるが、前章の PLE 測定の結果は発光の大部分が $^1S_0$ から生じていることを示しているため、後者の現象が起こっているのだと考えらえる。

6-4 結論

いずれにせよ、400nm の発光が紫外と同様に速いことがわかった。そのため、400nm の光でもシンチレータでの使用が期待できる。400nm は APLF+Pr を透過するため、背面に測定器を置くこともできる。そのため核融合炉における散乱中性子強度の測定においては、X 線などの信号との分離に有利に働くことが考えられる。400nm の発光を利用する場合は Pr^{3+}の濃度による交差緩和が大きいため、低濃度でドープしたほうがシンチレータ特性は向上すると考えられる。

第七章　結論

第二章から第四章ではリソグラフィ光源として使われている、ArF エキシマレーザーシステムについて、ArF オシレータを置き換えるための、全個体 193nm、6kHz レーザーシステムの開発について述べた。本システムは非線形光学結晶による波長変換を用いて赤外の Ti:sapphire レーザーを 193nm に変換する。第二章では波長変換の基本波を発生させるための 904nm、6kHz、Ti:sapphire オシレータの開発について述べた。このシステムでは ArF エキシマレーザーの繰り返しに合わせ、6kHz という高繰り返しで発振する。この際 6kHz で共振器の実効光路長が変動し、共振器が注入光との共振からずれてしまったが、測定するエラーシグナルにオフセットを加えることで、ヘンシュ法を用いた共振器制御を可能にした。これにより、Ti:Sapphire のゲインの低い発振波長 904nm において、6kHz の高繰り返し、縦単一モードで発振するのオシレータを開発した。

第三章では第二章で作成した発振器の出力を増幅するためのマルチパス増幅器システムの開発について説明した。高繰り返しのために励起光強度が大きくなり、結晶上に形成される熱レンズの影響が非常に大きくなるが、マルチパス増幅器を三段階に分割し、各増幅器の励起光強度を適切に配分することで、熱レンズの効果を抑え、オシレータと合わせ 80W の 527nm 励起光源より 10W、6kHz、904nm、縦単一モードで発振するレーザーシステムの開発に成功した。

第四章では波長変換による 193nm 光の発生について説明した。904nm 光源に対して LBO 結晶により二倍波の 452nm を発生させ、さらに BBO 結晶を用いて四倍波(226nm)を発生させた。さらに四倍波と 1.3μm とで和周波発生を行い、193nm で 200mW 以上の出力を達成した。これは目標としていた ArF エキシマレーザーの光源を置き換えに要求されたスペックを見たしており、全固体レーザーを用いたハイブリッド ArF レーザーシステムの開発を可能とするものである。

第五章では核融合炉プラズマの燃料密度の計測への応用が期待されている、APLF+Pr 中性子シンチレータの発光特性の研究について説明した。放射光を用いた分光測定により APLF+Pr ホスト材料中での Pr^{3+}の電子準位を調べ、濃度による発光特性の変化を説明した。

第六章では本研究で開発した 193nm レーザーシステムを APLF+Pr シンチレータの発光時間特性の測定に応用した。APLF+Pr の発光時間は $4f5d \rightarrow 4d^2$ 遷移による発光だけでなく、$^1S_0$ からの 400nm の発光も非常に高速であることが確認できた。APLF+Pr の 400nm の発光を用いた、散乱中性子の計測によるプラズマ密度の計測の実現可能性が示された。

謝辞

本論文の作成に関して多くの方々にご協力、ご助言を頂きました。この場をお借りしてお礼申し上げたいと思います。

大阪大学レーザーエネルギー学研究センター猿倉研究室の猿倉教授、清水助教には本研究に多大なお力添えをいただきました。深く感謝いたします。

東京理科大学渡部俊太郎教授には実験や論文の作成に関して多くのご指導・助言をいただき、また支えていただきました。心より深く感謝申し上げます。

中里智治研究員には本研究において多くの指導をいただき、研究活動を支えていただきました。心から感謝いたします。

ギガフォトン株式会社の小野瀬貴志博士にはレーザーシステムの開発にあたり様々なことを教えていただきました。深く感謝いたします。

東京理科大学田中裕一博士には研究について多くの助言をいただき、また励ましていただきました。心より感謝いたします。

熊本大学村田貴広准教授には貴重な APLF+Pr 試料を提供していただきました。大変有り難く思っております。

分子科学研究所の蓮本正美技術職員には UVSOR での実験において多くのご指導・ご助言をいただきました。誠にありがとうございます。

私の研究活動を支えていただきました、大阪大学瀬戸純子事務補佐員、梅村泰史技術補佐員、上田ひろみ事務補佐員、東京理科大学菅原清香事務補佐員に心よりお礼申し上げます。

Marilou Cadatal Raduban 研究員、Melvin John Fernandez Empizo には論文作成に於いて数多くの助言を頂きました。深謝いたします。

研究活動で多くのご協力をいただいた有川安信氏、山ノ井航平氏、河野雅弘君、酒井浩平君、武田耕平君、南佑輝君その他猿倉研究室 OB の皆様に心より感謝申し上げます。

最後に私の研究活動を支えてくださった家族、友人一同に深く感謝いたします。