

氏 名 河瀬 広樹

学位(専攻分野) 博士(工学)

学位記番号 総研大甲第 2223 号

学位授与の日付 2021年3月 24日

学位授与の要件 物理科学研究科 核融合科学
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 水素同位体計測に向けた高出力 3 μ m 中赤外固体レーザー
の開発

論文審査委員 主 査 村上 泉
核融合科学専攻 教授
安原 亮
核融合科学専攻 准教授
後藤 基志
核融合科学専攻 准教授
宮本 克彦
千葉大学 大学院工学研究院 准教授
藤 貴夫
豊田工業大学 教授

博士論文の要旨

氏 名 河瀬 広樹

論文題目 水素同位体計測に向けた高出力 3 μm 中赤外固体レーザーの開発

重水素(D)が含まれている水の安定同位体 HDO は、地球科学分野において環境中の水の動向を知るためのトレーサーとして利用され、三重水素(T)が含まれているトリチウム水 HTO は、核融合科学分野において将来の核融合炉の冷却水系に存在する。上記の分野において、水の水素同位体の移動・輸送現象の解明や三重水素の取り扱いを目的に、これら同位体のリアルタイム計測が重要である。これまで、質量分析装置や液体シンチレーションカウンタを用いた水の水素同位体の計測がなされてきたが、その場・連続測定はなされていない。その場・連続測定の方法として、中赤外レーザー光源を用いた分光学的な方法が有効である。H₂O、HDO、HTO は、それぞれ、3.0 μm 、4.0 μm 、及び 4.4 μm 帯に OH 基、OD 基、及び OT 基の伸縮振動に起因した強い吸収ピークを持っており、この吸収特性の違いを利用することで、単色性、指向性に優れた中赤外レーザーを用いた簡便な水の水素同位体の連続測定が期待できる。そこで、これまで計測が困難であった環境中における水の水素同位体の動的な移動・輸送現象の連続計測および可視化を実現すべく、高出力中赤外固体レーザーの開発とそれを用いた水の水素同位体計測システムの開発を目指した。本博士論文では、高出力 3 μm 中赤外固体レーザーの開発と、中赤外レーザーを用いた水の水素同位体計測の初期段階として、3 μm レーザーを用いた軽水(H₂O)と重水(D₂O)の水の水素同位体計測を行い、吸収特性の違いを確認した。

計測用の波長 3.0 μm 、4.0 μm 、及び 4.4 μm 帯レーザーの性能として、室温で安定なワットレベルでの発振、小型で取り扱いが容易であること、および放射線耐性が要求される。3 μm 帯では、Er:YAlO₃ 結晶(Er:YAP)をレーザー媒質として用いた半導体レーザー励起固体レーザーに着目した。Er:YAP は、非輻射遷移による損失が小さく、高い熱伝導率、優れた機械特性を持っているため、高性能な中赤外固体レーザー材料として有望である。また、誘導放出によるレーザー光の発生のし易さを表す誘導放出断面積を評価したところ、3 μm 帯において $3.0\text{--}24 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ の値が得られた。本結晶は、代表的な媒質である Er:YAG や Er:Lu₂O₃ と比べて、それぞれ 3.4 倍、8 倍大きな誘導放出断面積を有しており、高効率な発振が可能な媒質であることが明らかになった。ErYAP のレーザーLD 励起連続波(CW)レーザー発振実験を行ったところ、最大レーザー出力 1.44 W、発振効率 31%、発振波長 2920 nm が得られ、これは Er³⁺添加固体レーザーとしては、トップクラスの性能である。以上の結果より、室温における LD 励起 2920 nm Er:YAP CW レーザーとして世界最高効率・最大出力を実証し、計測に必要な性能を達成した。

次に、水の水素同位体計測の高感度化に向けたレーザーの高出力化を行った。高出力化の方法として、共振器内損失の程度を表す Q 値を短時間に切り替え、強力なパルス出力を得る Q スイッチ発振方法が有効である。Q 値を切り替えるためには、損失を大きく変調させる Q スイッチ素子を共振器に挿入する必要がある、Q スイッチによる損失の大きさ(変

調度)が大きいほど一度に取り出されるパルスのピークパワーも増加する。この発振方式の一つに、Q スイッチ素子として可飽和吸収体(SA)を用いた受動 Q スイッチ発振がある。SA は、共振器内のビーム強度によって透過率が変化する吸収特性を有しており、この吸収の変化によって Q 値を切り替えることが可能である。このように Q 値の変調を外部のモジュレーターなどによって操作する必要が無く、SA を挿入するだけで良いため、コンパクトなレーザーの開発が可能である。また、繰り返し周波数は、励起パワーに依存しており、より高いパワーで励起することにより高繰り返し発振が可能である。SA であるグラフェンは、高いダメージ閾値、低コストで作製可能、及び波長依存性が無いといった特徴を持っており、3 μm 帯受動 Q スwitching 用 SA として有望である。しかし、LD 励起グラフェン Q スイッチ Er:YAP レーザーは、実証されていなかったため、レーザー発振とパルス特性の解明を試みた。実験より、平均出力 503 mW、発振効率 13%、発振波長 2921 nm が得られ、時間波形から安定したパルス発振を確認した。また、励起パワーの増加に従って、繰り返し周波数とピークパワーが増加し、最大繰り返し周波数 114 kHz、最大ピークパワー 10 W を達成した。以上から、世界で初めて、グラフェン SA を用いた高繰り返しな 2921 nm 受動 Q スイッチ Er:YAP レーザー発振に成功した。

Q スイッチ発振の原理に立ち戻ると、高ピークパワーを得るためには、変調度の大きさが重要である。大きな変調度を得られる方法として、変調度が 0% から 100% へと大きく変化する能動 Q スイッチ発振がある。この方式で使用される Q スイッチ素子に、波長依存性が無く、安価で比較的小型な光学チョッパーがあり、これを用いることによって、小型で高出力な中赤外レーザー光源を開発が可能になる。そこで、光学チョッパーを用いた能動メカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザー発振を試み、チョッパーの回転周波数を変えたときのパルス特性を調査した。実験より、回転周波数 10 kHz、励起パワー 2.4 W において、平均出力 773 mW、発振効率 15%、発振波長 2796 nm が得られ、時間波形より、安定したパルス発振を確認した。また、周波数を 10 kHz から 7 kHz に下げるに従って、ピークパワーが上がり、最大ピークパワー 22 W が得られた。以上から、大きな変調度を得られる光学チョッパーを用いて、3 μm 帯の能動メカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザーの発振に世界で初めて成功し、世界最大出力を達成した。

以上の結果より、パルス発振にしたことで、CW レーザーに比べて 10 倍、20 倍の高出力化を実現でき、高出力・高繰り返し発振可能な 3 μm パルスレーザーを開発した。本レーザーを計測応用することで、将来、高感度な水の水素同位体計測の実現が期待できる。

以上で開発したレーザーを用いて、水の水素同位体計測の初期実験を行った。サンプルセル中の同位体種が変化した際の、CW レーザー透過光の出力時間変化をリアルタイムで計測し、本レーザーの波長における水素同位体の吸収特性を調査した。セルの中身が、 H_2O から D_2O 、および D_2O から H_2O へと変化した際、セルを透過したレーザー光の出力の増加、および減少を確認した。以上から、中赤外レーザーを使った同位体の種類が動的に変化したときの吸収の違いを世界で初めてリアルタイム観測することができた。

以上の研究より、Er:YAP を用いた高出力中赤外固体レーザーの開発と高出力化に成功し、本レーザーを用いて軽水と重水の吸収特性の違いを陽にリアルタイム観測したことで、将来の中赤外レーザーを用いた水素同位体計測の実証が期待できる結果が得られた。

博士論文審査結果

Name in Full
氏 名 河瀬 広樹

Title
論文題目 水素同位体計測に向けた高出力 3 μm 中赤外固体レーザーの開発

本論文では、環境中における水の水素同位体について、動的な移動・輸送現象のリアルタイム計測を実現するために、高出力 3 μm 中赤外レーザーの開発研究と、開発した 3 μm レーザーを用いた軽水(H_2O)と重水(D_2O)検出の原理実証を行った。

水素同位体検出のために用いられるプローブレーザー光には、波長 3 μm 帯でレーザー出力 1 W レベルの安定発振、小型で優れた可搬性、取り扱いの容易さ、及び放射線耐性が要求される。出願者は、フォノンエネルギーが小さく熱的遷移が生じにくいイットリウムアルミニウムペロブスカイト (YAP) 結晶に、エルビウムイオンを添加した、Er 添加 YAP 結晶を用いることで高効率なレーザー動作が可能であることを分光評価によって見出した。Er 添加 YAP 結晶についてレーザーの分光特性を表す主要な指標である、誘導放出断面積を評価したところ、3 μm 帯において $3.0 - 24 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ の値が得られた。これは先行研究で明らかにされていた Er:YAG や Er:Lu₂O₃ と比べて、それぞれ 3.4 倍、8 倍大きな値であり、高効率な発振が可能な媒質であることを明らかにした。本レーザー媒質は、レーザー媒質から中赤外光を高効率で抽出することが可能となり、水素同位体検出用プローブレーザー光源に最適である。分光評価結果を基に Er 添加 YAP 結晶をレーザー媒質としてレーザー共振器を構築し、発振実験を行ったところ、分光評価を立証する理論限界に近いレーザー発振効率を得た。このとき最大レーザー出力 1.44 W、発振効率 31%、発振波長 2920 nm が得られ、Er³⁺添加固体レーザーとしては、トップクラスの性能であった。

水素同位体計測の高精度化に向けたレーザー高出力化への取り組みでは、グラフェンを用いた受動 Q スイッチと光学チョップを用いたメカニカル Q スイッチによるパルスレーザー発振を試みて、ピーク出力向上に成功した。CW レーザーに比べて 10 倍以上の高ピーク出力化が実現され、高感度な水の水素同位体計測に適した高輝度光源が得られた。

これらの作成したレーザーを用いてマイクロ流路内の軽水から重水への置換過程を観測し、水素同位体検出の原理実証を行った。サンプルセルの中身を H_2O から D_2O 、および D_2O から H_2O へと変化した際に、セルを透過したレーザー光の出力変化をリアルタイム計測したところ、それぞれの同位体種に対応した出力変化が観測された。本実験結果は、中赤外レーザーを用いた水の水素同位体種の置換現象のリアルタイム計測について画期的な実証結果であり今後の研究の発展を示唆するものである。

以上について、博士論文を論理的かつ明快に執筆し、成果の一部は主著者として三編の査読付き論文が出版された。また主要な役割を果たした共著者として一編の論文が出版されている。出願者による研究成果は、博士論文の内容として相応しく、本審査委員会は本論文が博士学位論文として十分な価値を有するものと判断した。