

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

河瀬 広樹

博士（工学）

総合研究大学院大学
物理科学研究科
核融合科学専攻

令和 2（2020）年度

目次

第1章 序論.....	5
1.1 水の水素同位体研究.....	5
1.1.1 水の水素同位体	5
1.1.2 磁場閉じ込め核融合分野における水の水素同位体研究	7
1.2 先行研究における水の水素同位体計測方法	12
1.2.1 既存の水の水素同位体の計測方法とその課題.....	12
1.2.2 水の水素同位体の光の吸収特性.....	13
1.2.3 既存の光源および光学的手法を用いた水の水素同位体の計測	16
1.3 本研究の目的.....	19
参考文献(第1章)	20
第2章 中赤外レーザーを用いた水の水素同位体計測方法の検討.....	22
2.1 中赤外レーザー吸収分光を用いた水の水素同位体計測システム	22
2.1.1 レーザー吸収分光の原理.....	22
2.1.2 水の水素同位体を計測する際に使用する波長.....	25
2.1.3 中赤外レーザー吸収分光法を用いた水の水素同位体計測システム	28
2.2 中赤外レーザー光源の検討.....	32
2.2.1 計測用レーザー光に要求される条件.....	32
2.2.2 既存の中赤外レーザー光源の比較	32
参考文献(第2章)	34
第3章 中赤外固体レーザー光源開発.....	35
3.1 レーザーとは.....	35
3.1.1 固体レーザー	35
3.1.2 光の吸収と放出	38
3.1.3 反転分布と光の増幅.....	41
3.1.4 レーザー共振器の構成	42
3.1.5 レーザーの発振条件.....	45
3.2 Er系固体レーザー媒質の検討	46
3.2.1 レーザー媒質	46
3.2.2 発光物質: 希土類イオン:エルビウム Er.....	46
3.2.3 ホスト材料: YAlO ₃ (YAP)	48
3.3 Er:YAP 光学特性.....	51
3.3.1 吸収スペクトル	51
3.3.2 蛍光スペクトル	53
3.3.3 蛍光寿命	54

3.3.4 誘導放出断面積	56
3.4 Er:YAP を用いたレーザー発振実験.....	60
3.4.1 CW 発振実験セットアップ	60
3.4.2 入出力特性.....	61
3.4.3 出力鏡(OC)の透過率最適化.....	65
3.4.4 LD の高励起パワー実験.....	68
3.4.5 レーザービーム品質	70
3.4.6 レーザー出力時間安定性.....	70
3.5 まとめ.....	72
参考文献(第 3 章)	73
第 4 章 Er:YAP レーザーの高出力化	75
4.1 パルス発振による高出力化.....	75
4.1.1 高出力化の目的	75
4.1.2 高強度の光による吸収の飽和に対する検討.....	75
4.1.3 Q スイッチングによるパルス発振.....	76
4.2 グラフェンを用いた受動 Q スイッチ発振.....	78
4.2.1 受動 Q スイッチング	78
4.2.2 Q スイッチング素子としてのグラフェン可飽和吸収体	79
4.2.3 実験体系	81
4.2.4 レーザー入出力特性	82
4.2.5 パルス波形.....	83
4.2.6 励起パワーに対するパルス特性	84
4.2.7 発振波長	84
4.2.8 考察.....	86
4.3 光チョッパーを用いたメカニカル Q スイッチング発振.....	88
4.3.1 能動 Q スイッチング	88
4.3.2 Q スイッチング素子としての光チョッパー	88
4.3.3 実験体系	90
4.3.4 レーザー入出力特性	91
4.3.5 パルス波形.....	92
4.3.6 チョッピング周波数に対するパルス特性	95
4.3.7 発振波長	96
4.4 まとめ.....	97
参考文献(第 4 章)	98
第 5 章 中赤外レーザーを用いた水の水素同位体計測	100
5.1 水の水素同位体置換実験	100

5.1.1 レーザー吸収分光測定実験体系	100
5.1.2 レーザー出力の時間変化	103
6. 総括	104
6.1 本論文におけるまとめ	104
6.2 本研究の今後の課題と展望	106
参考文献(第 6 章)	111
謝辞	112
研究業績	114

第 1 章 序論

1.1 水の水素同位体研究

1.1.1 水の水素同位体

軽水素(H)以外に、水素同位体として重水素(D)と三重水素(T: トリチウム)が存在している。軽水素、水素同位体、及び酸素 ^{16}O の組み合わせより考えられる水分子の種類として、図 1-1 で示される H_2O 、 HDO 、 D_2O 、 HTO 、 DTO 、及び T_2O が存在し、これらの液体が水の水素同位体である。これらのうち、環境中の H_2O と HDO の存在比は、約 99.76% と 0.032%である[1-1]。 D_2O は、環境中にはほとんど存在しないが、医薬品研究や生化学実験などで使用する試薬として、高濃度のサンプルが市販されており[1-2]、入手がしやすい水の水素同位体である。また、トリチウムは、軽水素や重水素に比べて非常に微量な物質であるため、 HTO や DTO 、 T_2O は、環境中において上記の水の水素同位体と比べると、はるかに低濃度であり、存在比は無視される場合が多い。水の水素同位体の中で、 HDO は、地球科学分野や農学分野において、環境中の水循環や水資源の起源を調べるためのトレーサーとして利用されている[1-3][1-4][1-5][1-6]。上記の分野では、同位体の存在量の変動を定量的に分析するために、水の水素同位体組成が調べられている。環境中の水の H と D の存在比(H/D)を測定し、それと標準試料である標準平均海水(SMOW: Standard Mean Ocean Water)[1-7]の存在比とを比較することで、標準的な水の水素同位体の組成からの変化量 (δD)を算出することができる。これによって、標準試料に対する計測された水の中の重水素の存在比の偏りが分かり、各地域やサンプル毎の存在比の差を比較することで、水の起源や降水、河川・地下水の流れ、蒸発散などの水循環の過程を定量的に評価することが可能になる。実際に、植物中の δD を測定することで、その植物がどの資源から水を得ているのかが定量的に評価されている[1-8]。また、水の水素同位体をトレーサーに用い、地球上の水循環のデータを駆使した地球温暖化の予測モデル評価がなされている[1-9]。現在、降水、水蒸気、及び地下水などを採取することで、水の水素同位体の存在比などの情報が得られている。1.2 章で詳細を述べるが、これらのデータは、サンプル採取後にフィールド外の実験室まで持ち運ぶ必要があり、その後、測定装置を用いて取得される。そのため、フィールドでのその場測定やリアルタイム測定ができず、日や月単位のデータしか得られないのが現状である。より短い時間スケール、さらにはリアルタイムでの測定が可能になれば、従来困難であったより詳細な水の循環、移動、および拡散のプロセスが議論できる。

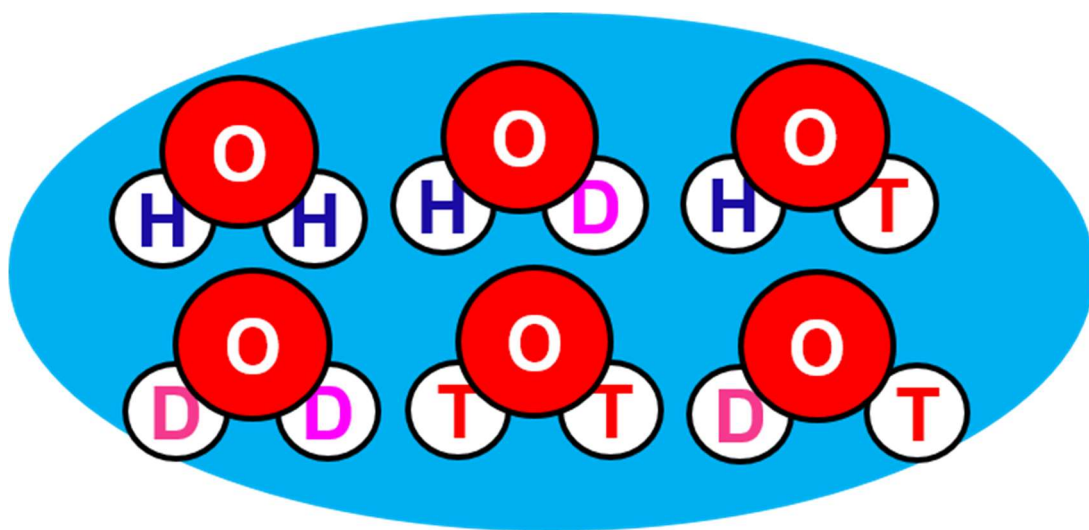
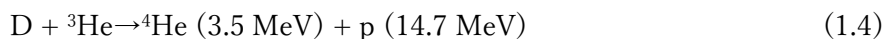


図 1-1 様々な水の水素同位体 O: 酸素原子、H: 軽水素、D: 重水素、及び T: 三重水素(トリチウム)

1.1.2 磁場閉じ込め核融合分野における水の水素同位体研究

図 1-2 は、2020 年における主要国の一次エネルギー構成を示しており、図より、現在、世界のエネルギー源の主力は、石油、天然ガス、及び石炭であることが分かる。2020 年における人口は、77.9 億人であるが、2100 年には約 108 億人にまで達し、人口増加に伴うエネルギー資源の消費量の増加が予想される[1-10]。しかし、上記のエネルギー資源は、有限であり、将来的に枯渇する可能性がある。また、化石燃料を用いた火力発電は、多量の二酸化炭素を排出するため、大気中の二酸化炭素濃度は、年々増加することとなり、大気中の二酸化炭素濃度の増加による大気温度の上昇が懸念されている。現在と比べて、2100 年時点での大気中の二酸化炭素濃度と大気温度が大きく変化していると予想されており、世界の二酸化炭素平均濃度が、2019 年時点の 410 ppm[1-11]から 550 ppm ~950 ppm まで増加し、気温が 1.3 °C~5.8 °C上昇すると考えられている[1-12]。また、大気中の二酸化炭素濃度が 550 ppm になると、温暖化が進行し、台風や感染症の増加、異常気象による穀物の生産量に変化などが懸念されている[1-12]。以上から、二酸化炭素の排出量を可能な限り抑えられる新たな発電方法が必要である。現在、二酸化炭素を発生させずに発電する方法として、再生可能エネルギーが利用されている。例として、太陽光発電や風力発電がある。これらの発電は燃料を必要としないが、発電量が自然環境に左右されるため、安定した電力供給が行えない。したがって、二酸化炭素を排出せず、発電量を安定的に維持可能な方法として、以下に述べる核融合発電が有望である。

核融合発電は、核融合反応を利用してエネルギーを取り出す発電方法である。核融合反応とは、図 1-3 で示すように、二つの原子核が十分に近づいたとき、量子トンネル効果により原子核同士が融合し、他の原子核が生成する反応である。図 1-4 は、核融合反応率 $\langle\sigma v\rangle$ の燃料イオン温度依存性を表しており、各反応は、イオン温度に対して、核融合反応率の最大値を持つ。赤い曲線で示されている重水素-三重水素反応(D-T 反応)(式(1.1))は、青と水色の曲線で表された D-D 反応(式(1.2、1.3))、緑の曲線で描かれた D- ^3He 反応(式(1.4))と比べて、低いエネルギー領域で大きな反応率が得られる。したがって、将来の第一世代の核融合炉では、D-T 反応の利用が検討されている。



D と T の原子核が核融合反応を高い頻度で起こすためには、図 1-4 において、核融合反応率が最大になる数十 keV までイオン温度上げる必要がある。そこで、高い頻度で核融合反応を起こす方法として考案されたのが D と T を高温のガス状態にし、イオンの熱運動で

原子核同士を衝突させるものである。高温になったガスは、やがて原子核と電子が遊離を起こし、自由運動が可能なプラズマの状態になる。核融合発電には核融合反応を起こすために、非常に高温なプラズマが要求される。現在、高温のプラズマを閉じ込める方法として、主に磁場を用いてプラズマを閉じ込め、形状を維持する磁場閉じ込め核融合研究が進められている。核燃焼プラズマを生成・維持する実験装置として、国際熱核融合実験炉（ITER）が考案され(図 1-5)、建設が進められている。

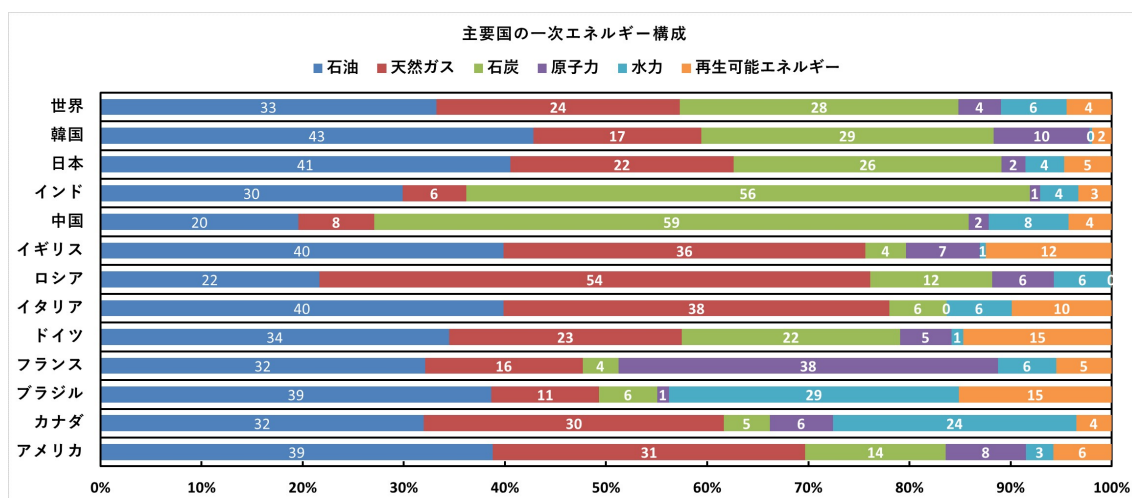


図 1-2 2020 年における主要国の一次エネルギー構成[1-10]: 多くの国において、化石燃料である石油、天然ガス、石炭を用いた発電の割合が多い。

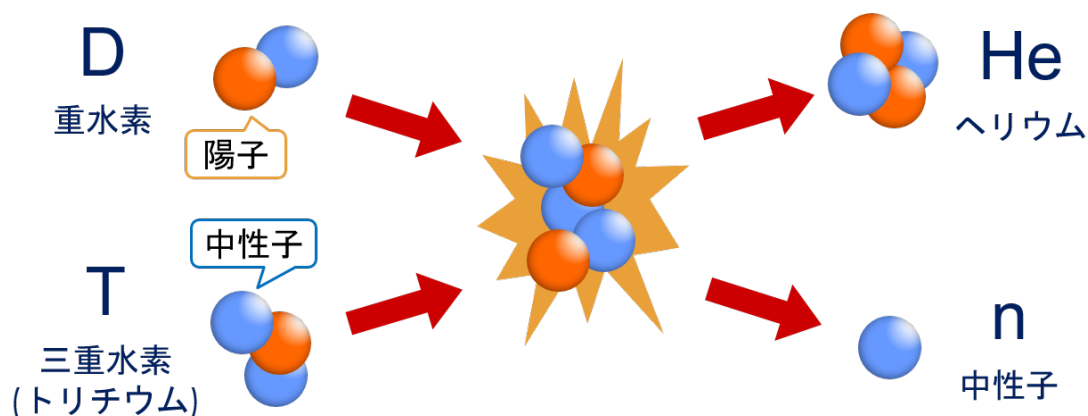


図 1-3 核融合反応

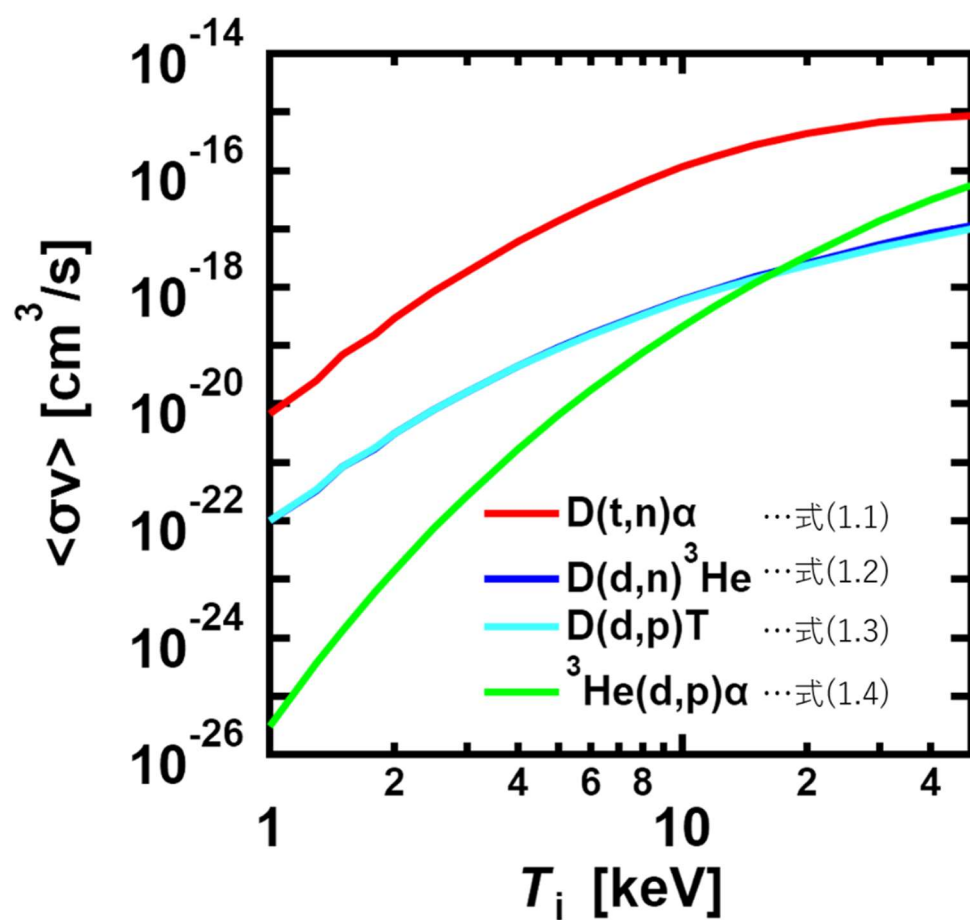


図 1-4 核融合反応率 $\langle \sigma v \rangle$ の燃料イオン温度依存性[1-13]

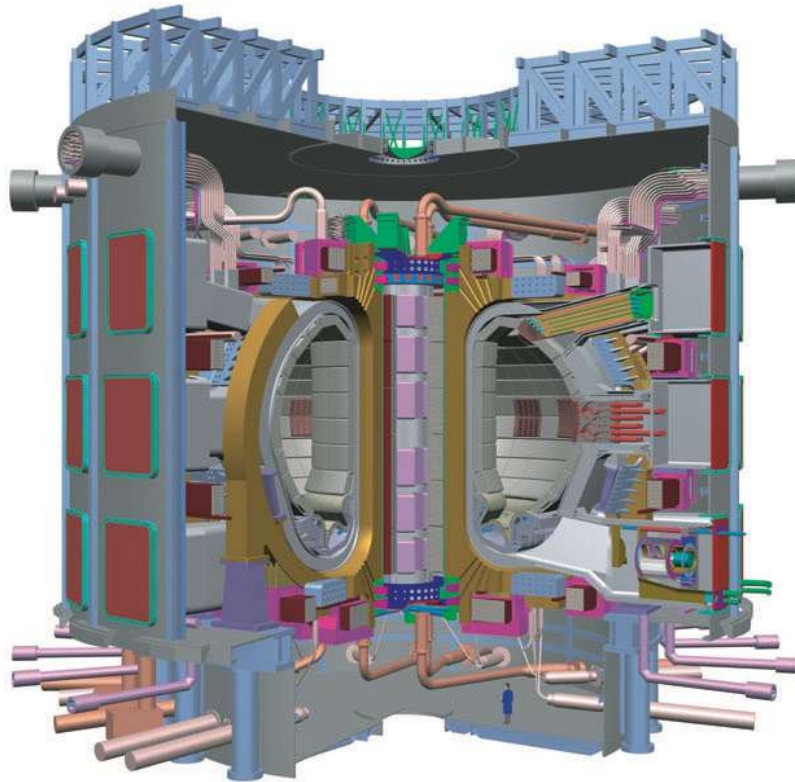


図 1-5 国際熱核融合実験炉 ITER の外観[1-14]

核融合発電を実現させるには、物理的・工学的アプローチが求められる。物理的アプローチとは、高温・高密度の核融合プラズマを長時間安定して保持するために核融合プラズマ物理の知見を蓄積することである。そのため、様々な国で核融合炉プラズマの物理的知見を集めるための核融合実験装置が建設され、プラズマ実験が行われている。これらの結果を ITER、そして DEMO 炉[1-15]にフィードバックし、核融合炉において、高温高密度のプラズマ制御を目指している。

一方で、工学的なアプローチにおいては、核融合炉の設計と開発が重要である。特に、核融合分野においては、核融合燃料であるトリチウムの取り扱いが非常に重要になっている。将来の核融合炉において核融合反応に利用される T が、図 1-6 の将来の核融合燃料循環システムにおいて、冷却水中にトリチウム水(HTO)として存在している。トリチウムは、希少性の高い物質であるため、燃料として回収し、再利用する必要がある。また、放射性同位体でもあることから、トリチウム濃度 60 Bq/cc という厳格な基準以下にならないとプラント外に放出できない [1-16]。さらに液体のトリチウム水は、気体(トリチウムガス)に比べて、生物学的な危険性が高いとされているため[1-17]、被爆防止の観点から、厳格な管理が要求される。以上から、トリチウム水の高精度な定量測定が要求されており、核融合発電実現に向けて、この問題は最重要課題の一つとなっている。

将来の核融合炉において、核融合反応により発生する中性子を受け止め、熱への変換とト

リチウム生成の役割を果たすブランケットの冷却システムの候補として水冷方式が挙げられている[1-18]。生成されたトリチウムがブランケット内で輸送され、冷却水中に溶解し、トリチウム水となることも予想される。トリチウムの冷却管への透過を防ぐために、透過防止膜も現在研究開発中であるが[1-19]、突発的なアクシデントにより、防止膜が破損すると、トリチウムが冷却水に溶解し込む可能性がある。また、多くの排水管が核融合炉周辺に複雑に張り巡らされるため、トリチウムの透過によって、トリチウムの移動や拡散による汚染も懸念されている。以上から、貴重な資源の回収と放射性同位体の管理の観点から、核融合プラントにおけるトリチウム濃度の連続的測定がより安全な核融合炉の実現には不可欠である。

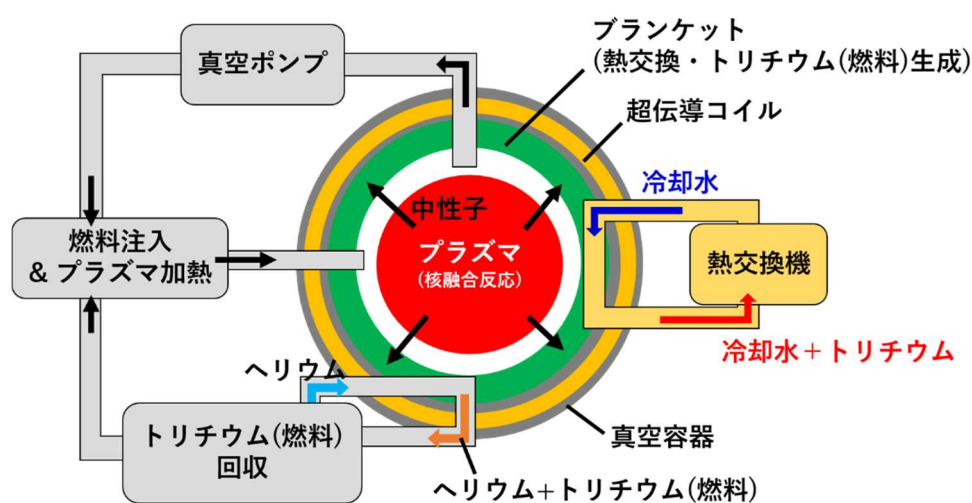


図 1-6 将来の核融合燃料循環システム

1.2 先行研究における水の水素同位体計測方法

1.2.1 既存の水の水素同位体の計測方法とその課題

既存の水の水素同位体の計測方法として、図 1-7(a)及び(b)で示される質量分析装置[1-20][1-21]や液体シンチレーションカウンタ[1-22]を使用したものが挙げられる。質量分析装置は、非常に高価であり、使用する際の真空度の調節には専門的な技術を要するなど課題がある[1-23]。トリチウム水を測定する液体シンチレーションカウンタは、高濃度測定が難しいことが課題である。また、これら手法に共通した課題として、試料を事前に直接採取しなければならず、その場測定・リアルタイム観測ができないことが挙げられる。そこで、上記課題を克服する方法として、光学的な手法を用いた非接触なその場計測を検討した。



(a)



(b)

図 1-7 既存の水の水素同位体計測方法: (a)質量分析装置[1-24]: 水試料中の重水素を測定する。(b)液体シンチレーションカウンタ[1-25]: 水試料中のトリチウム水を測定する

1.2.2 水の水素同位体の光の吸収特性

水分子に吸収される光の波長は、次のような力学モデル[1-26]より説明できる。図 1-8 は、波長 λ の光が照射されたときの H_2O 分子をモデル化している。 H_2O に波長 λ の光が照射されると、光の一部は、水酸基(OH 基)ので伸縮振動（振動数 ν ）と共鳴し、吸収される。この時、吸収された波長 λ は、式(1-5)で求められる。

$$\lambda = \frac{c}{\nu} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{k}{\mu} \right)^{1/2} \quad (1-5)$$

ここで、 k と μ は、バネ定数と換算質量を表し、それぞれ、761 N/m[1-27]と 1.56×10^{-27} kg である。 c は、光の速さ 3.0×10^8 m/s である。換算質量 μ は、酸素原子と水素原子の質量 m_1 と m_2 の重さで決まる。また、ばね定数 k は、原子核の電荷が変わらなければ、ほぼ値は変わらないため、他の水の水素同位体でも同様な値を使用した。式(1-5)より、吸収される波長は水酸基の質量つまり換算質量で決まるため、水酸基の種類によって吸収波長が異なることが分かる。式(1-5)より、水酸基伸縮振動による H_2O 、 HDO 、及び HTO の吸収波長は、それぞれ、波長 2.70 μm 、3.71 μm 、4.43 μm である。また、先行研究において明らかにされている H_2O 、 HDO 、及び HTO の吸収波長の文献値は、それぞれ、波長 3.04 μm 、4.00 μm 、及び 4.47 μm である[1-28][1-29] (図 1-9)。気相に比べて液相では、水素原子と酸素原子間の水素結合の影響が大きくなるため、実効的なバネ定数が小さくなり、吸収ピークが長波長側にシフトするため[1-30]、水素結合を考慮していない計算値と実測値が異なっている。この水酸基伸縮振動の吸収ピークは、図 1-10 の軽水(H_2O)と重水(D_2O)の混合溶液の透過スペクトルを見ると、他の吸収ピークなどに比べて非常に大きいため、その波長の光に対して吸収量が非常に高い。このような吸収波長の違いと高い吸収特性を利用することで、天然水、およびトリチウム含有水中の水の水素同位体計測への応用が期待できる。特に、特定の吸収波長に限定し、非接触で遠方の試料を対象にリアルタイム測定する上で、単色性、指向性、リアルタイム性の高いレーザーが光源として優れている。また、液相は、凝縮系であるため、分子間相互作用が顕著になり、図 1-10 の振動モード起因の吸収スペクトルは、ブロードなスペクトルとなる[1-31]。そのため、光源波長が吸収のピーク波長と一致せず、ピークから数百 nm 程度離れた波長を利用しても、十分に大きな吸収の変化を測定することが可能である。

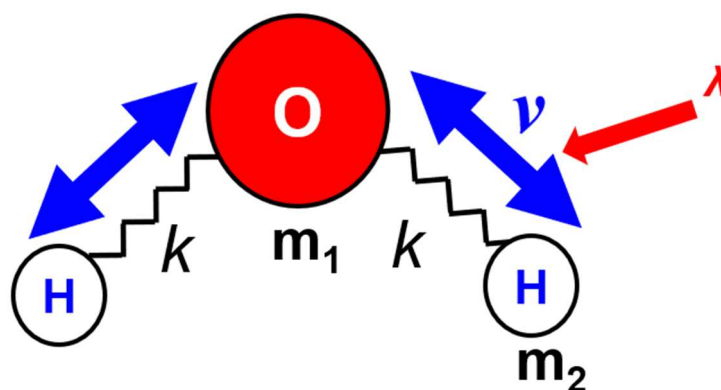


図 1-8 波長 λ の光が照射されたときの H_2O 分子のモデル: 波長 λ の光が照射された際に光の一部が水分子の水酸基伸縮の振動モードと共鳴し、吸収される。 k : ばね定数、 m_i ($i = 1$ あるいは 2): 原子の質量、 ν : 水酸基の振動数、 λ : 照射する光の波長。

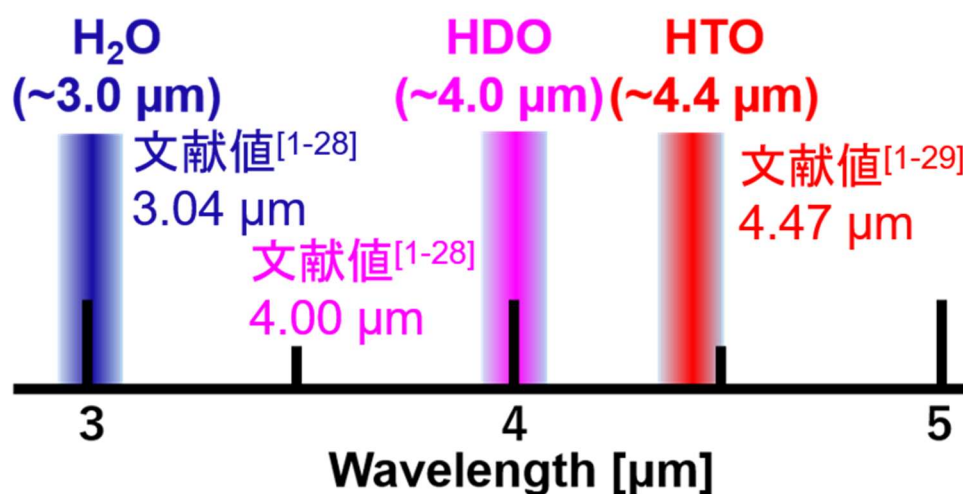


図 1-9 力学モデルと先行研究から得られた水の水素同位体の水酸基 (O-H、O-D、O-T) 伸縮振動モードに起因した吸収波長

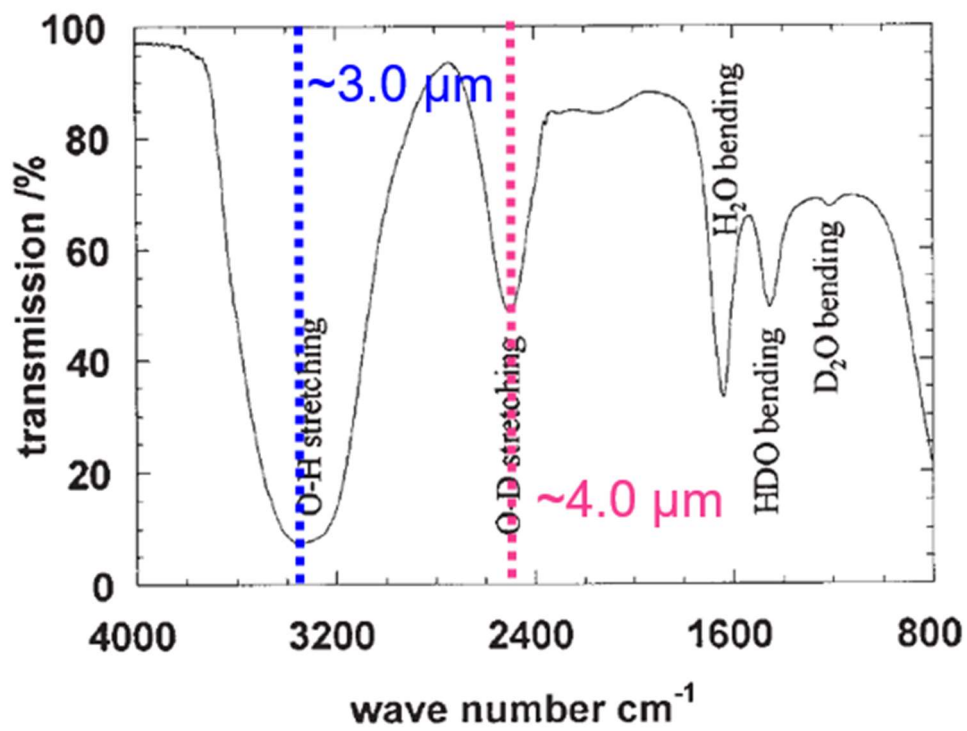


図 1-10 先行研究において測定された軽水(H_2O)と重水(D_2O)の透過スペクトル[1-31]

1.2.3 既存の光源および光学的手法を用いた水の水素同位体の計測

既存の光源や手法を用いた水の水素同位体計測の方法がいくつか考えられる。最も簡単な光学的な測定手法は、タングステン光源を用いた吸収分光である。図 1-11 は、市販されているタングステン光源の温度 1900 K の黒体放射スペクトルを示している。図 1-11 を見ると、波長 5500 nm までブロードな黒体放射スペクトルを有しており、水の水素同位体の吸収波長をカバーしている。しかし、ランプ光源のスペクトルを見ると、波長 3000 nm 帯から光の強度が低下しており、4400 nm 帯ではかなり低強度となっている。このため、SN 比が低い、低感度な計測になってしまう。また、ランプ光源の指向性は、レーザー光源に比べて低いため、遠隔計測が難しいといった課題がある。一方で、波長 1.3 μm 付近にトリチウム水の倍音と結合音による吸収ラインがある。この倍音と結合音は、励起状態を表す 3 種類の量子数 $v(=0, 1, 2, \dots)$ の組み合わせで指定される基底状態からの遷移である。まず、基底状態は、3 種類の量子数を $v_1 = v_2 = v_3 = 0 : (000)$ と書き表す。倍音は、基底状態からいずれか 1 種類の量子数が 2 以上を取る状態(例: (200), (300), (002))への遷移である。一方、結合音は、基底状態から 2 種類以上の量子数が値をとる状態(例: (120), (210), (113))への遷移である。このような近赤外領域の吸収特性を活かし、図 1-12 のレーザー光源として波長 1.3 μm の半導体レーザー(LD: Laser Diode)を使用した実験系において、トリチウム水(HTO と T_2O)の吸収分光計測が報告されている[1-31]。しかし、波長 1.3 μm 帯の吸収が小さいため、直接吸収分光による高感度計測は、困難であった。この先行研究は、その課題を解決するために、半導体レーザーの周波数を電気光学効果結晶(EOM)によって変調し、高感度測定を試みたものであった。しかし、高感度計測のために計測システムの複雑化・大型化が避けられず、さらに、LD の出力が 1 W にも満たないため SN 比が低いことなどが課題として挙げられる。

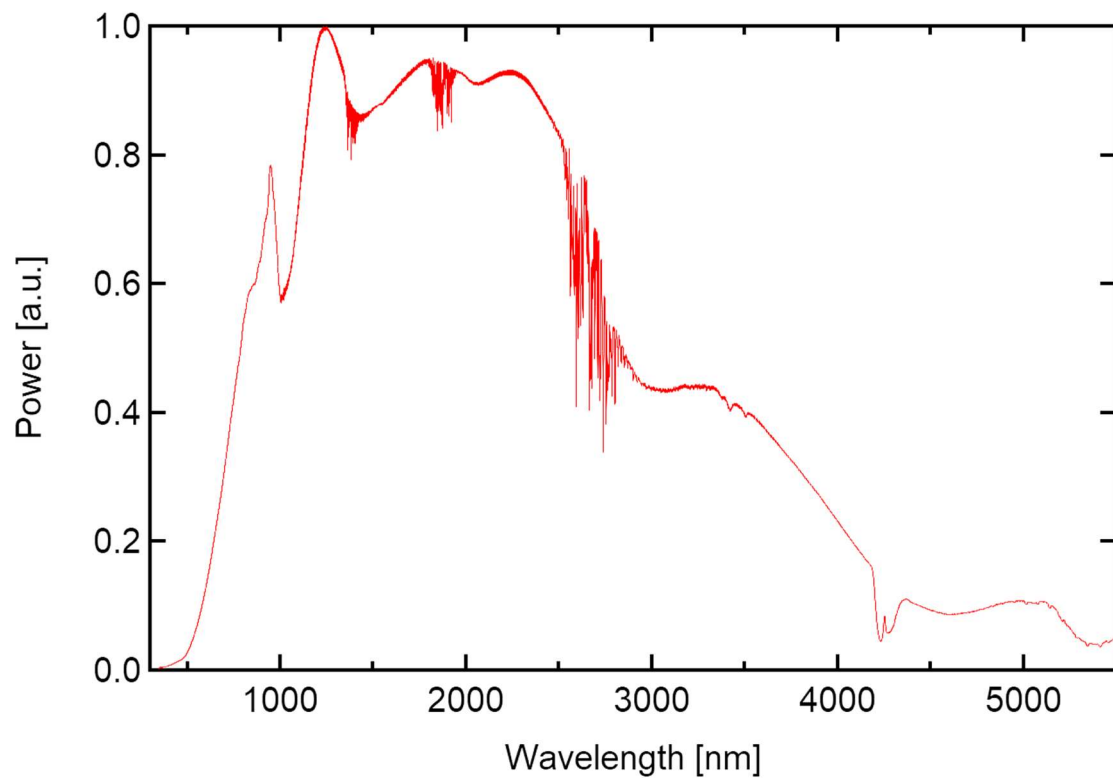
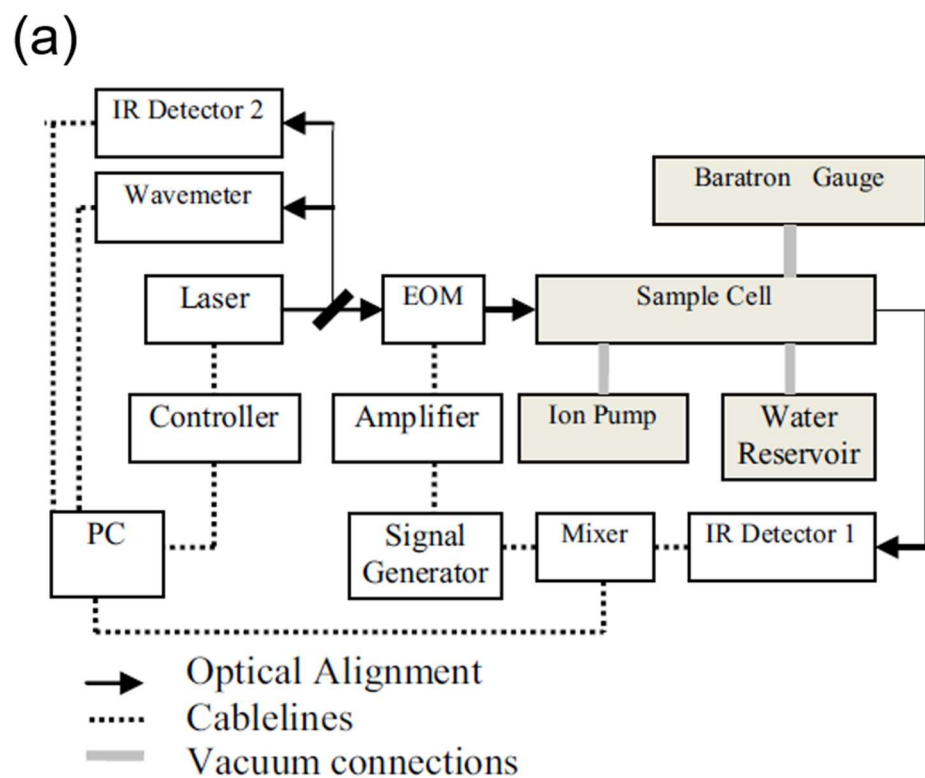


図 1-11 温度 1900 K の黒体放射光源(タングステンランプの)スペクトルの例[1-32]



(b)

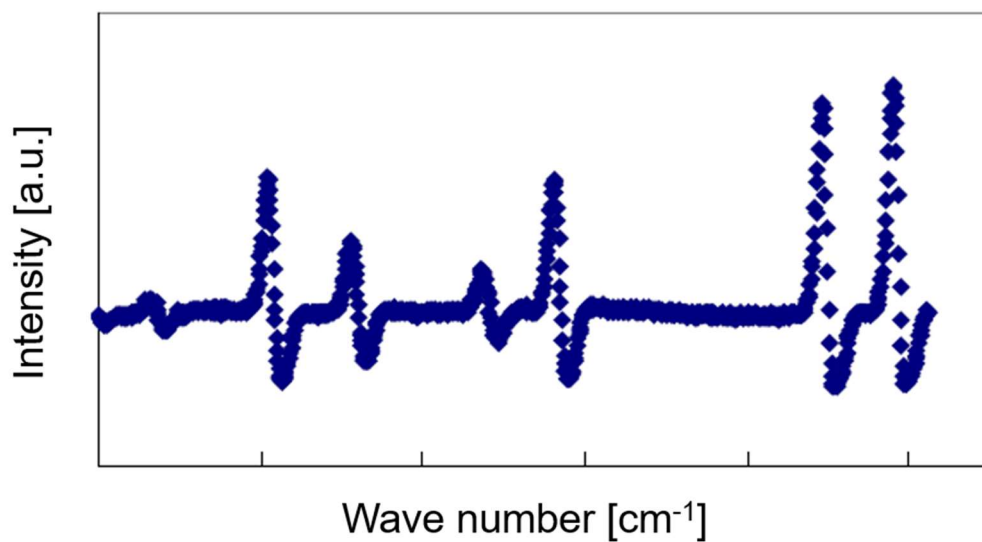


図 1-12 波長 1.3 μm の半導体レーザーを用いた波長変調分光によるトリチウム水の先行研究[1-33]: (a)実験体系、(b)波数 7220 cm^{-1} (波長 $\sim 1.3 \mu\text{m}$)におけるトリチウム水の吸収スペクトル

1.3 本研究の目的

水の水素同位体の移動現象の解明や管理を目標としている地球科学や核融合科学分野において、微量な水の水素同位体のその場・リアルタイム計測が、非常に重要な課題となっている。従来の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固定的な閉空間に限られた計測方法では、その場・リアルタイム計測はできなかった。一方で、光学的手法としてランプ光源を用いた吸収分光計測では、光源の指向性や光の強度が低く、微量計測が困難であった。また、ランプ光源よりも指向性が優れている近赤外 LD を用いた測定では、この波長帯でのトリチウム水の吸収係数が小さく、感度が低いことから、変調分光法による微量計測が行われたが、光学素子や計測機器などを複数使用したことによるシステムの大型化などの問題があった。さらに、LD の出力が 1 W 未満のため、SN 比が低いことも課題であった。

以上の計測における問題を解決するために、本研究では水の水素同位体の水酸基伸縮振動モードによる中赤外光の強い共鳴吸収に注目した。近赤外領域よりもはるかに吸収が強い波長の光源を利用することで、より簡便で高感度な計測が期待できる。また、これまで高感度化のために使用されていた光学素子が削減され、従来の計測システムよりも小型化で、より可搬性に優れた計測システムが実現可能と考えられる。一方、使用する光源として単色性に優れ、小型で高効率・高出力発振可能な中赤外レーザーが求められるが、これら条件を満たす実用光源は不在である。以上から、本研究では、単色、指向性に優れた小型で高出力・高効率に発振する小型な波長 3.0、4.0、4.4 μm レーザーを開発することを目的とした。開発したレーザー光源を適用することで、高 SN 比で、高感度でコンパクトな水の水素同位体システムの実現を目指す。

上記の目的達成のために、レーザー計測システムの検討、計測用レーザー光源の選定を行った。室温において高出力発振可能な波長 3.0 μm 固体レーザーを目指し、半導体レーザー励起 Er:YAP レーザーの開発を行った。実験より、高効率・高出力な連続波(CW)発振を実証し、また、更なる高感度化計測のために、パルス発振による高ピーク出力化にも成功した。また、開発した Er:YAP CW レーザーを用いて、水の水素同位体である軽水(H_2O)と重水(D_2O)のレーザー発振波長における吸収特性の違いを確認し、世界で初めて、中赤外レーザーを用いた水の水素同位体計測を行った。

参考文献(第 1 章)

- [1-1] 長倉三郎ほか編、『岩波理化学辞典』、岩波書店、1998 年、項目「重水」より。
ISBN 4-00-080090-6
- [1-2] <https://labchem-wako.fujifilm.com/jp/product/detail/W01W0104-3424.html>
- [1-3] 檜山哲也、阿部理、栗田直幸、藤田耕史、池田健一、橋本重将、辻村真貴、山中勤、
水門・水資源学会誌、**21**, 158, (2008).
- [1-4] 早稲田周、中井信之、地球科学、**17**、83 (1983).
- [1-5] T. Yamanak, J. Shimada, and K. Miyaoka, J. Geophys. Res, **107**, ACL6 (2002).
- [1-6] K. Yoshimura, T. Oki, N. Ohte, and S. Kanae, J. Geophys. Res, **108**, AC13 (2003).
- [1-7] 芳村圭：水の安定同位体比情報を用いた広域大気水循環過程の解明に関する研究、
東京大学大学院工学系研究科修士論文、8p (2002).
- [1-8] 関谷 信人, 矢野 勝也, 根の研究, **11**, 35 (2002).
- [1-9] http://www.env.go.jp/policy/kenkyu/suishin/kadai/syuryo_report/pdf/J09RF083000.pdf
- [1-10] 「原子力・エネルギー」図面集
https://www.jaero.or.jp/data/03syuppan/energy_zumen/energy_zumen.html
- [1-11] 温室効果ガスセンター、「WMO 温室効果ガス年報」、気象庁、2020、p1、16 号、
ISSN 2078-0796。
- [1-12] 時松宏治、J. Plasma Fusion Res., **78**, 1186 (2002).
- [1-13] H.-S. Bosch et al., Nucl. Fusion 32, 611 (1992).
- [1-14] R Aymar et al., Plasma Phys. Control. Fusion 44, 519 (2002).
- [1-15] Y. Someya, K. Tobita, R. Hiwatari, Y. Sakamoto,
Joint Special Design Team for Fusion DEMO, Fusion Eng. Des., **136**, 1306 (2018).
- [1-16] 西川正史、田辺哲朗、朝倉大和、J. Plasma Fusion Res., **88**, 480 (2012).
- [1-17] 野口宏、加藤正平、保健物理、**20**, 49 (1985).
- [1-18] 鈴木哲、秋場真人、斉藤正克、J. Plasma Fusion Res., **82**, 768 (2006).
- [1-19] 小西哲、J. Plasma Fusion Res., **78**, 1157 (2002).
- [1-20] 山中勤、「環境同位体による水循環トレーシング」、共立出版株式会社、2020、p211、
ISBN 978-4-320-04739-6。
- [1-21] 地球水循環研究センター水同位体分析システム運営委員会、
水文・水資源学会誌、**18**、531 (2005).
- [1-22] 原正憲、赤丸悟士、中山将人、日本原子力学会誌、**61**、41 (2019).
- [1-23] <https://unit.aist.go.jp/hokkaido/technote/TN48.htm>
- [1-24] https://www.chikyu.ac.jp/laboratories/instruments/lab0_EA-IRMS.html
- [1-25] <https://www.jcac.or.jp/site/service-lineup/service-env-torichium.html>

- [1-26] 中川一郎、中川:分光学第5講分子スペクト
「振動スペクトル9回転スペクトル,分子の力学的取扱い」、**20**, 267 (1971).
DOI: <https://doi.org/10.5111/bunkou.20.267>
- [1-27] S. BELL, J Mol Spectrosc **16**, 205413 (1965).
- [1-28] J. G. Bayly et al., Infrared Physics, **3** (1963).
- [1-29] M. J. Down et al., J. Molec. Spectrosc., 289 (2013).
- [1-30] 芦原聡、光学、**40**, 409 (2011).
- [1-31] S. Heinze, B. Vuillemin, and P. Giroux, Analusis, **27**, 549 (1999).
- [1-32] https://www.thorlabs.co.jp/newgrouppage9.cfm?objectgroup_id=7269
- [1-33] K. Kobayashi et al., Fusion Science & Technology, **60**, 941, (2011).

第 2 章 中赤外レーザーを用いた水の水素同位体計測方法の検討

2.1 中赤外レーザー吸収分光を用いた水の水素同位体計測システム

2.1.1 レーザー吸収分光の原理

光学的に試料の定性・定量分析を行う方法として、光の強度変化を測定する吸収分光法がある。先の章で述べたように、レーザー光は単色性に優れており、ランプ光源を使用した場合のようにランプ光源の白色光を回折格子やフィルタ等で分光する必要が無いため、計測システムを小型にできる。この原理は、次のように説明できる。図 2-1 は、レーザー吸収分光法を用いた時の測定方法であり、レーザー光源、試料が入ったサンプルセル、及び検出器を使用する。この時、セル中に単一成分の液体試料が入っており、単一の波長で測定している場合を考える。この時、パワー I_0 の光を試料で満たされたセルに照射し、透過光のパワー I を検出器で測定する。ここで、 I_0 と I の関係は、式(2.1)の Beer-Lambert の法則で書き表すことができ[2-1]、

$$I = I_0 10^{-\varepsilon CL} \quad (2.1)$$

ε 、 C 、および L は、それぞれ、モル吸光係数 [$L/mol \cdot cm$]、モル濃度 [mol/L]、試料の厚さ [cm]である。このうちモル吸光係数は、波長ごとに決まっている物質固有の値のため、一意的に決まる値である。この時、 I と I_0 を用いて吸光度 A という量を書き表すと次式のようになる。

$$A = \log_{10} \frac{I_0}{I} = Ck \quad (2.2)$$

$$k = \varepsilon L \quad (2.3)$$

式(2.2)と(2.3)より、測定される量 I 、 I_0 、及び L と物性値 ε が既知であれば、試料の濃度 C を推定することが可能である。

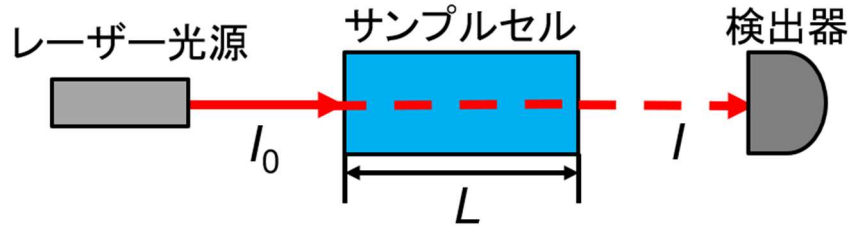


図 2-1 レーザー吸収分光の原理

しかし、単一成分の試料を測定する以外に、多成分の試料を測定する状況も考えられる。ここで、図 2-2 は、波長 1 と波長 2 に吸収ピークをそれぞれ持つ二種類の試料の吸光度スペクトルの模式図である。今、成分 a は波長 1 に吸収ピークを持ち、成分 b は波長 2 に吸収ピークを持つとする。また、成分 a と成分 b で構成された二成分混合試料を波長 1 と波長 2 の複数波長で測定する場合を考える。この時、得られる吸光度は、それぞれの波長における二成分の吸光度が足し合わされた値になるため、波長 1 と波長 2 の成分 a と成分 b に対する吸光度 A_1 と A_2 は、

$$A_1 = C_a k_{a1} + C_b k_{b1} \quad (2.4)$$

$$A_2 = C_a k_{a2} + C_b k_{b2} \quad (2.5)$$

と書き表せる。これを行列表示として書き表すと、

$$\begin{pmatrix} A_1 & A_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_a & C_b \end{pmatrix} \begin{pmatrix} k_{a1} & k_{a2} \\ k_{b1} & k_{b2} \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

となる。式(2.6)を濃度について解くと、

$$\begin{pmatrix} C_a & C_b \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_1 & A_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} k_{a1} & k_{a2} \\ k_{b1} & k_{b2} \end{pmatrix}^{-1} \quad (2.7)$$

となり、二成分の試料においても k_{ij} と A_j ($i = a, b$, および $j = 1, 2$) の値が既知であるなら、二波長のレーザー光源を用いることで、それぞれの成分の濃度が推定できる[2-2]。三波長での測定の場合は、式が三式になり、三式の項がそれぞれ三つになる。

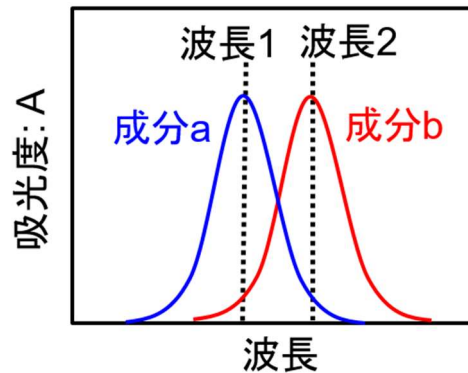


図 2-2 成分 a と成分 b で構成された多成分試料を波長 1 と波長 2 の複数波長で測定した場合のそれぞれの波長における試料の吸収特性

将来の核融合プラントでは、ブランケットから冷却水管中へのトリチウムの透過が考えられるため、トリチウムの取り扱いの観点から、冷却水管中のトリチウム水の連続測定が必要となる。図 2-3 は、将来の核融合プラントの冷却水管中を流れるトリチウム水の計測方法である。ブランケットから流れてくる冷却水は、配管によって発電システムに運ばれてくる。この運ばれてきた冷却水にレーザーを照射し、トリチウム水を測定するために、冷却水管から水を分岐させる。分岐した水をサファイア窓付きのサンプルセルに通過させることで、常時セル内に冷却水管の水が流れている状態にすることができる。この時、サファイア窓にレーザーを照射し、透過光を検出器で測定することによって、レーザー吸収分光法を用いたトリチウム水の濃度の連続モニタリングが可能になる。また、この方法は、非接触の測定であるため、作業者がサンプル試料を直接採取する必要がなくなり、放射線被爆防止の観点からも優れた測定方法である。

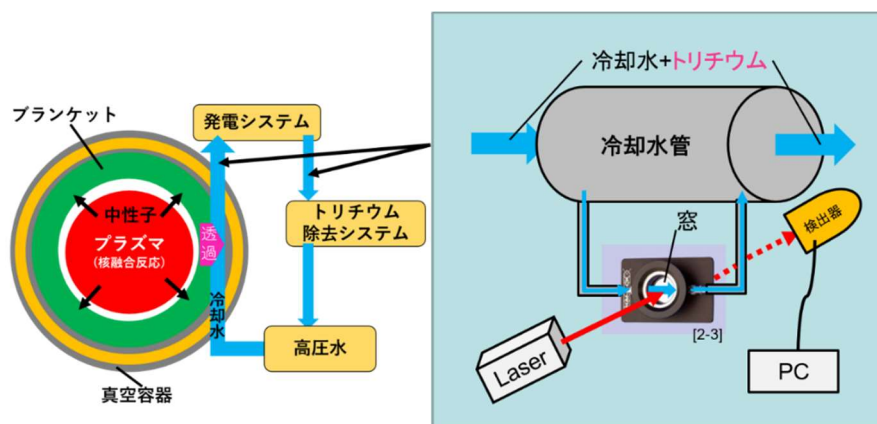


図 2-3 将来の核融合プラントにおける計測方法の提案

2.1.2 水の水素同位体を計測する際に使用する波長

実際に水の水素同位体計測で必要となるレーザー波長について検討した。現在のところ、測定対象である水の水素同位体として、HDO や HTO を考えている。ITER のプラント中では、トリチウム水処理システムにおいて、最大トリチウム濃度 3.7×10^{11} Bq/kg を 20 kg/h で処理できるような設計になっており、非常に高濃度のトリチウム水がプラント内に存在していることが想定される[2-4]。これを濃度の単位である ppm に変換すると数 ppm 程度であり、DEMO 炉や商業炉などの ITER よりも大型の核融合装置では、さらに高濃度のトリチウム水を取り扱うことが予想される。一方で、HDO は、天然水中に 320 ppm 程度存在する[2-5]。環境中の水は、99.76%の軽水(H_2O)で構成されているため、HDO や HTO の存在量は軽水に対して少ない。 H_2O は HDO に対して濃度比が約 3000 倍であるため、 H_2O の吸収が支配的で、HDO の吸収は非常に小さい。

天然水中の HDO による波長 4.0 μm 帯の吸収を確認可能か確かめるために、FTIR(Fourier Transform Infrared Spectrometer)を用いて、天然水の吸収スペクトルを測定した。図 2-4 は、測定した純水の吸収スペクトルである。図 2-4 の測定結果において、 H_2O の OH 伸縮振動モードによる吸収のピークが波長 3.0 μm を中心に顕著に確認でき、一方で、波長 4.0 μm における HDO の OD 伸縮振動による吸収が見られず、HDO の吸収が非常に小さいことを表している。しかし、純水の吸収スペクトルは、複数の水の水素同位体の吸収スペクトルを合計したものである。今、 H_2O と HDO の吸収スペクトルに着目した場合、先行研究において測定された H_2O と HDO の吸収スペクトルである図 2-5 の(a)と(b)より、 H_2O は波長 3.0 μm に、HDO は波長 3.0 μm と 4.0 μm に吸収ピークがある。2-4(c)は、天然水の吸収スペクトルと、それを同位体成分ごとにピーク分離した模式図である。天然水中の HDO の濃度は、 H_2O に比べて 3 桁程小さいため、赤い曲線の様なスペクトルになり、波長 3.0 μm と 4.0 μm 帯において吸収係数は非常に小さい。一方で、 H_2O は、非常に高濃度のため、波長 3.0 μm 帯で大きな吸収ピークを持ち、さらに 4.0 μm 帯においても大きなバックグラウンド吸収が存在する。そのため、HDO を波長 4.0 μm のレーザーで計測しても、 H_2O によるバックグラウンド吸収と HDO の吸収を測定することになってしまう。そこで、 H_2O の吸収の情報を取り除くため、波長 3.0 μm と 4.0 μm のレーザーを使用し、前節で示した吸収分光の原理を応用することで、天然水中の HDO の濃度測定が可能になると考えられる。さらに HTO の量は、HDO よりも一桁少ないことが知られており、波長 4.4 μm の吸収を見るためには H_2O と HDO の吸収を除去するために、波長 3.0、4.0、4.4 μm の三種類のレーザーを使用する必要がある。波長 3.0 μm 、4.0 μm 、及び 4.4 μm のレーザーを使用することで、天然水中の H_2O 、HDO、および HTO の濃度測定の実現が期待できる。

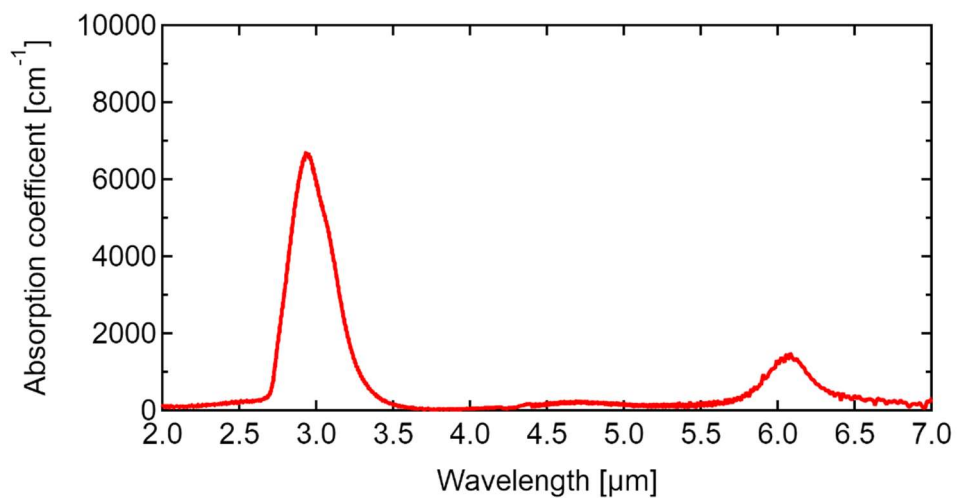
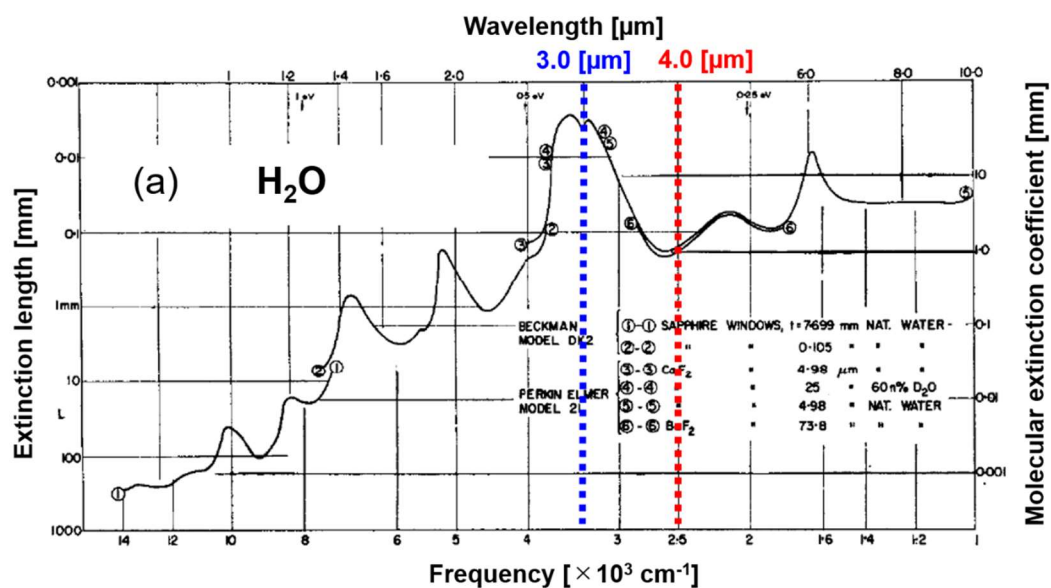


図 2-4 FTIR で測定した純水の赤外吸収スペクトル



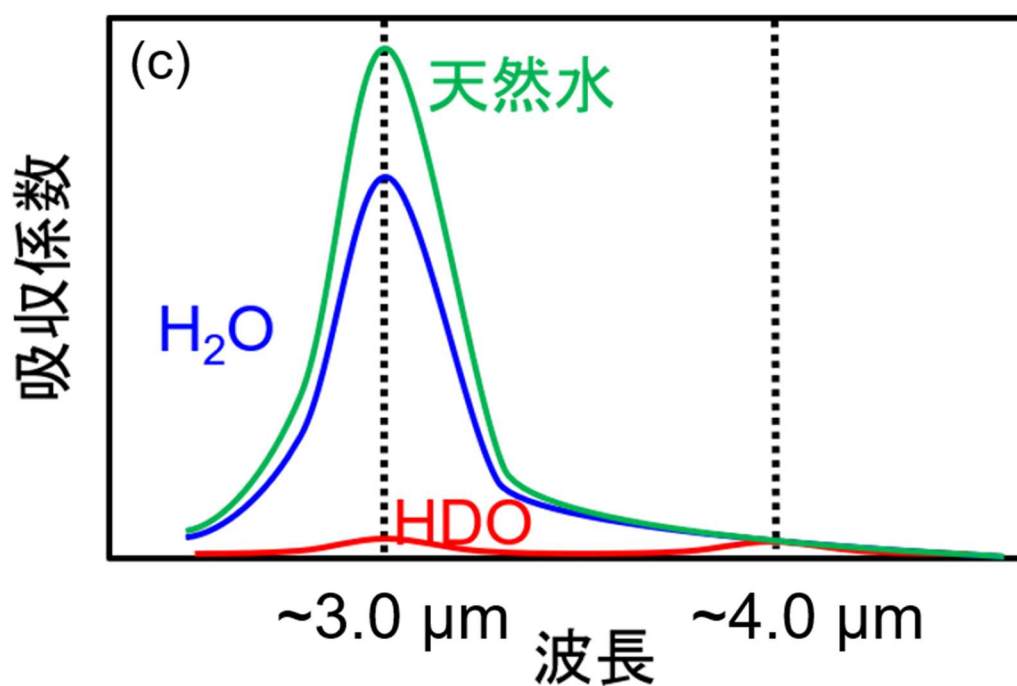
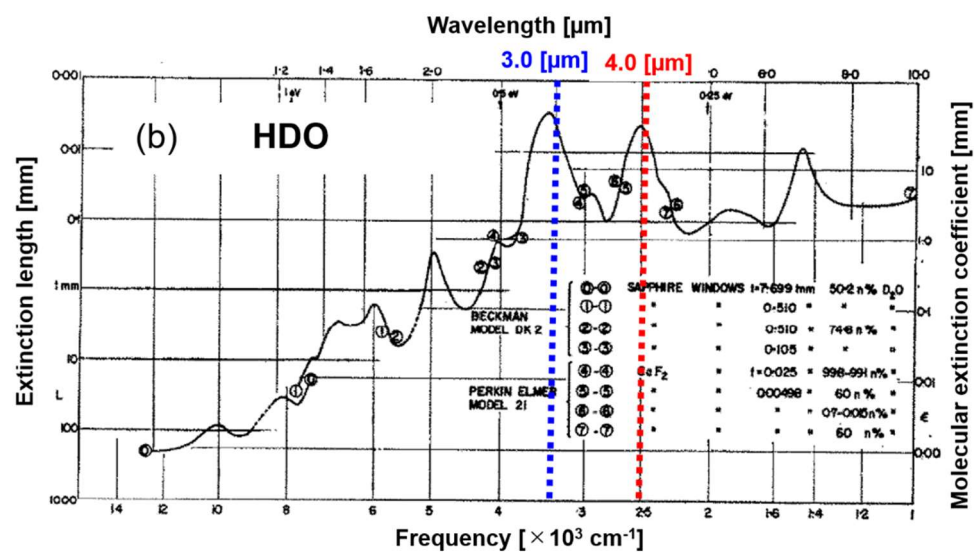


図 2-5 水の水素同位体の吸収スペクトル: (a)液体の H_2O の吸収スペクトル[2-6]、(b)液体の HDO の吸収スペクトル[2-6]、(c) H_2O と HDO の吸収スペクトルを重ね合わせた時の天然水の吸収スペクトルの模式図

2.1.3 中赤外レーザー吸収分光法を用いた水の水素同位体計測システム

環境中や核融合プラント中の HDO や HTO の濃度変化は、ppm オーダーであると考えられるため、計測システムには、ppm オーダーの濃度変化を測定できる性能が要求される。そこで、微量な水の水素同位体の濃度変化を測定するべく、中赤外レーザー吸収分光を用いた高感度な水の水素同位体計測システムの検討を行った。

図 2-6 は、天然水中の H_2O と HDO を波長 $3.0\ \mu\text{m}$ と $4.0\ \mu\text{m}$ のレーザーで測定する光学系である。核融合プラントにおける HTO の測定は重要であるが、HTO の調達、管理、及び取り扱いが非常に難しいため、本試料を用いた計測のハードルが高い。また、トリチウム水の中赤外領域のモル吸光係数は、先行研究においても調べられていないため、吸収量の定量的な検討や評価が難しい。一方で、HDO のモル吸光係数は、先行研究において報告されており、定量的な検討・推定が HTO に比べて比較的容易である。また HDO は天然水中(純水)に 320 ppm 存在するため、市販されている純水中の HDO を試料として利用することができ、水道水と同じように扱うことができる。以上から、中赤外レーザー吸収分光を用いた水の水素同位体計測システムの原理実証実験として、第一に、純水を天然水と見立てた H_2O と HDO の濃度測定を目標としている。計測用光源には出力 1 W の波長 $3.0\ \mu\text{m}$ レーザー、および出力 0.3 W の $4.0\ \mu\text{m}$ レーザーを使用し、これらのレーザービームをサンプルとリファレンスの 2 経路に分岐する。そして、それぞれの経路を通過してきたレーザー光のパワーを測定する。また、リファレンスを通過する入射パワー I_0 のレーザーを同時測定することによって、レーザーの出力変動を打ち消すことが可能になり、レーザー出力変動による吸光度変化を抑制することができる。

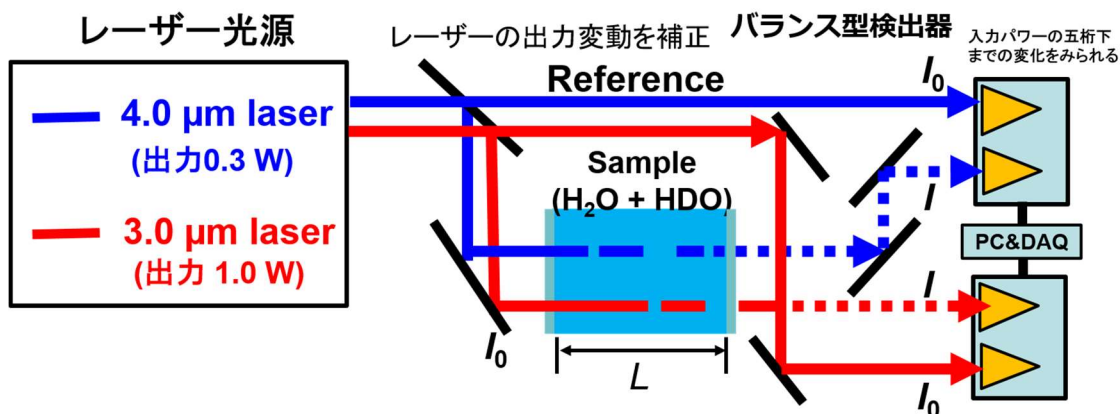


図 2-6 純水中の H_2O と HDO を測定するために中赤外レーザーを用いた水の水素同位体計測システム

本計測システムで透過光の強度変化を測定する場合、セルの長さ L が重要である。天然水は、 H_2O の濃度が非常に高いため、波長 $3.0\ \mu\text{m}$ 光を強く吸収する。そのため、セル長が長い場合、光が試料中で非常に大きく減衰してしまい、光がセルから出てこないため、濃度変化が起こった際に強度変化が測定できない。一方で、セルの長さを短くした場合、光が十分に吸収されず、小さな光の強度変化しか測定できず、SN 比が低下してしまう。以上から、十分な透過光強度変化を得ることで、SN 比が向上し、高精度な計測が実現する。そのため、透過光強度変化の最大値が得られる最適なセルの長さの検討を行った。今、波長 $3.0\ \mu\text{m}$ (出力 $0.5\ \text{W} = I_{3,0}$) と波長 $4.0\ \mu\text{m}$ (出力 $0.15\ \text{W} = I_{4,0}$) のレーザーを試料に入射する場合を考えた。また、試料は天然水とし、その中の $320\ \text{ppm}$ の HDO 濃度が $10\ \text{ppm}$ 減少し、 H_2O の濃度が $10\ \text{ppm}$ 増加したとする。以上の条件において、試料を通過した波長 $3.0\ \mu\text{m}$ と $4.0\ \mu\text{m}$ の透過光のパワー I_3 と I_4 は、以下の式(2.8)と式(2.9)より計算できる。

$$I_3 = I_{3,0} 10^{-(\varepsilon_{3,\text{H}} C_{\text{H}} + \varepsilon_{3,\text{D}} C_{\text{D}}) L} \quad (2.8)$$

$$I_4 = I_{4,0} 10^{-(\varepsilon_{4,\text{H}} C_{\text{H}} + \varepsilon_{4,\text{D}} C_{\text{D}}) L} \quad (2.9)$$

ここで、 C_{H} と C_{D} は、 H_2O と HDO のモル濃度 $[\text{mol/L}]$ を表し、 H_2O と HDO の濃度が $10\ \text{ppm}$ 変化する前とした後のモル濃度は、表 2-1 の通りである。また、 $\varepsilon_{3,\text{H}}$ 、 $\varepsilon_{3,\text{D}}$ は、波長 $3\ \mu\text{m}$ における H_2O と HDO のモル吸光係数 $[\text{L} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}]$ を表し、 $\varepsilon_{4,\text{H}}$ 、 $\varepsilon_{4,\text{D}}$ は、波長 $4.0\ \mu\text{m}$ における H_2O と HDO のモル吸光係数 $[\text{L} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}]$ を表す。計算した際に使用したモル吸光係数を以下の表 2-2 にまとめた。但し、この時使用したモル吸光係数は、波長 $3.0\ \mu\text{m}$ と $4.0\ \mu\text{m}$ における値ではなく、波長 $3.0\ \mu\text{m}$ と $4.0\ \mu\text{m}$ 近傍の代表的な値を用いている。これは、すべての波長に対するモル吸光係数が先行研究において得られていないためである。各セルの長さ L における濃度変化前後でのそれぞれの透過光の出力パワーを計算し、そこから濃度変化した時の透過光のパワーの差 ΔI を計算した。

表 2-1 $10\ \text{ppm}$ の濃度変化前と後の H_2O と HDO のモル濃度

	濃度変化前のモル濃度 $[\text{mol/L}]$	-10 ppm 濃度変化後のモル濃度 $[\text{mol/L}]$
H_2O	55.422	55.423
HDO	0.0168	0.0163

表 2-2 波長 $3.0\ \mu\text{m}$ 帯と $4.0\ \mu\text{m}$ 帯における H_2O と HDO のモル吸光係数[2-6]

	モル吸光係数@ $3.0\ \mu\text{m}$ $[\text{L} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}]$	モル吸光係数@ $4.0\ \mu\text{m}$ $[\text{L} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}]$
H_2O	$\varepsilon_{3,\text{H}} = 54.54$	$\varepsilon_{4,\text{H}} = 3.23$
HDO	$\varepsilon_{3,\text{D}} = 62.5$	$\varepsilon_{4,\text{D}} = 41.4$

図 2-7 は、セルの長さに対する HDO 濃度が 320 ppm から 310 ppm 変化した際の透過光のパワー変化 ΔI を表す。この図より、波長 3.0 μm レーザーの強度変化が最大になるセルの長さは、2.5 μm であり、波長 4.0 μm レーザーでは 25 μm が得られた。2つの波長で比較した際、4.0 μm レーザーよりも 3.0 μm レーザーの ΔI の最大値におけるセル長 L が短い。これは、 H_2O の OH 基伸縮振動モードによる強い吸収によって、波長 4.0 μm よりも 3.0 μm 光が強く吸収され、短い距離で大きく減衰したためである。ここで、波長 4.0 μm レーザーにおける最適値である $L = 25 \mu\text{m}$ で測定した場合、波長 3.0 μm レーザーの透過パワーの変化量は 0 であるため、3.0 μm レーザーの透過光のパワー変化が最大になるセル長 $L = 2.5 \mu\text{m}$ が計測システムには適した長さである。 $L = 2.5 \mu\text{m}$ において濃度が 10 ppm 変化した時、波長 3.0 μm レーザーと 4.0 μm レーザーのパワーの変化は、それぞれ、1.1 μW と 1.4 μW と見積もられる(図 2-8)。

微小な信号の変化を測定する検出器として、バランス検出器がある。バランス検出器は、レーザーの出力変動によるノイズや回路特有のコモンモードノイズを打ち消すため、DC 信号の微小な変化を測定することが可能である。この検出器は、入力パワーに対して 5 桁低い -50 dB のダイナミックレンジで測定可能である。上記の条件で、セルを透過したレーザーのパワーは、波長 3.0 μm と 4.0 μm でそれぞれ、90 mW と 140 mW と見積もられる。これに対する測定下限値は、それぞれ、0.9 μW と 1.4 μW と計算できる。これらが測定可能なダイナミックレンジとなり、上記のパワー変化 1.1 μW と 1.4 μW より小さいか、或いは同じであるため、10 ppm の濃度変化が測定可能である。

以上のことから、バランス検出器とワットレベルの中赤外レーザー光源を用いた場合、天然水試料の長さ 2.5 μm で、HDO の測定感度 10 ppm の高精度な計測が可能になると見積もられる。

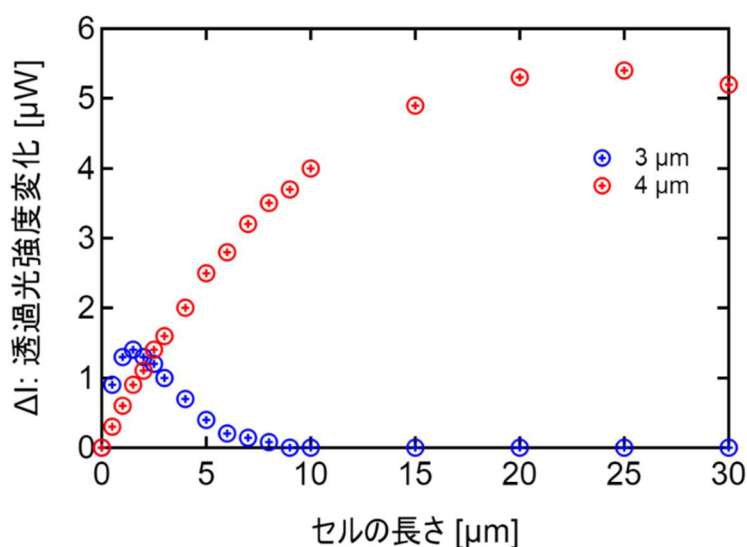


図 2-7 同位体濃度が 10 ppm 変化した際の透過光強度の変化量

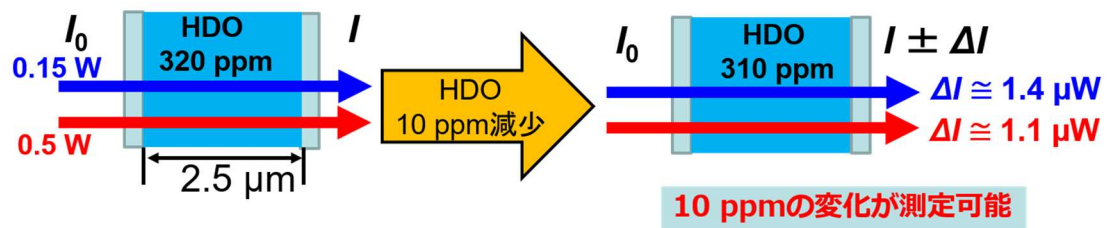


図 2-8 HDO (10 ppm) の濃度変化を波長 3.0 μm と 4.0 μm のレーザーで計測する場合の出力変動値

2.2 中赤外レーザー光源の検討

2.2.1 計測用レーザー光に要求される条件

計測用レーザーに要求される性能は、次の4つが挙げられる。まず初めに、発振波長が波長 3.0 μm 、4.0 μm 、及び 4.4 μm であることが要求される。それぞれの波長は、 H_2O 、HDO、及び HTO の水酸基伸縮振動モードに起因する吸収ピークに一致し、さらに他の遷移による吸収に比べて非常に大きい。そのため、他の波長に比べて、プローブ光の強度変化が大きくなり、高感度化できることが期待される。2つ目に、室温において安定的にワットレベルの高出力発振が可能であること。節 2.2.3 で述べたように、ワットレベルのレーザーを使用することで、ppm オーダーの同位体計測が可能になる。また、出力が時間的に不安定な場合、SN 比が変わり、計測結果の信頼性が低下するため、出力安定性が高いことが望ましい。また、低温で発振する必要がある場合、冷却装置を使用する必要があるため、レーザーが大型で複雑になる。室温で発振が可能であれば、これらの装置が必要無いため、コンパクトで低コストなレーザーにすることができる。3つ目に、長期間の安定な使用を考えると、メンテナンス性に優れ、構成が複雑でなく、ロバストなレーザーであることも挙げられる。そして、最後に、トリチウム水(HTO)を測定する場合、核融合発電所などの放射線環境である原子力施設での使用が想定されるため、放射線耐性も要求される。

2.2.2 既存の中赤外レーザー光源の比較

表 2-3 は、既存の中赤外レーザー光源に対し、上述した4つの条件の可否をまとめた表である。半導体レーザー (LD) と量子カスケードレーザー (QCL) は、市販されており、入手しやすいレーザー光源である。波長 4.0 μm と 4.4 μm 帯では、QCL が製品化されており、マルチモード発振であれば 1 W 程度の出力のものが入手可能である[2-7]。一方、波長 3.0 μm の LD・QCL は上市されておらず、波長 3.0 μm LD は現在研究段階であり、出力も数百ミリワットにとどまっている。LD・QCL は、媒質に GaAsP (ガリウムヒ素リン) などの半導体を使用されており放射線耐性が低いが、光ファイバーを用いて光伝送することで、放射線の影響を低減することができる。光パラメトリック発生、光パラメトリック増幅、差周波発生などの非線形光学効果を利用した波長変換レーザーは、中赤外波長域をカバーしているが[2-8]、波長変換素子を複数使用していることから、出力の安定性が低く、システムが大型・高価であり、使用するには課題が残る。そして、波長 3.0 μm 、4.0 μm 、及び 4.4 μm で直接発振する固体レーザーに関しては、高出力・高効率発振を目指し、様々な媒質を用いたレーザー発振研究が全世界で盛んに行われている。非線形光学効果を用いないことから、安定した高出力発振が可能である。また、宇宙での使用を想定した放射線耐性の検証もされており、固体レーザーは、放射線耐性の観点においても優れている[2-9]。以上

から、LD・QCL と直接発振固体レーザーが 4 つの条件を満たしており、計測用光源として応用が可能であると考えられる。波長 4.0 μm と 4.4 μm のレーザーには、市販の QCL が適用可能である。一方で、波長 3.0 μm の固体レーザーに関しては、先に述べたように研究段階であり、様々な Er イオン添加結晶を媒質として用いたレーザー発振が報告されている。そこで、本研究では、計測用途として実用に足る高出力・高効率な波長 3.0 μm 帯の Er 添加强体レーザー光源の開発を行った。

表 2-3 既存の中赤外固体レーザー光源の性能比較

	発振波長	高出力	コンパクト	放射線耐性
半導体レーザー(LD), 量子カスケードレーザー (QCL)	△	○	○	△
非線形光学結晶を用いた 波長変換デバイス	○	○	×	○
固体レーザー	○	○	○ (cm サイズ)	実績有 (JAXA: γ 線)

参考文献(第 2 章)

- [2-1] 日本分光学会 編、「分光測定入門シリーズ第 1 巻 分光測定の基礎」、講談社、p94-p95、2009。
- [2-2] 日本分光学会 編、「分光測定入門シリーズ第 6 巻 赤外・ラマン分光法」、講談社、p153-p154、2009。
- [2-3] https://www.jascofrance.fr/wp-content/uploads/2020/06/Cellule-liquide-IR-Demountable_DLC.pdf
- [2-4] 山西敏彦、岩井保則、磯部兼嗣、杉山貴彦、J. Plasma Fusion Res. 83, 545 (2007).
- [2-5] 長倉三郎ほか編、『岩波理化学辞典』、岩波書店、1998 年、項目「重水」より。
ISBN 4-00-080090-6
- [2-6] J. G. Bayly, V. B. Kartha, and W. H. Stevens, Infrared Physics, **3**, 211 (1963).
- [2-7] https://www.thorlabs.co.jp/newgrouppage9.cfm?objectgroup_id=6932
- [2-8] 芦澤弘明、大原忍、山口滋、応用物理、**71**、219 (2002).
- [2-9] 中山 通雄、東芝レビュー、**56**、66 (2001).

第 3 章 中赤外固体レーザー光源開発

本章では、水の水素同位体計測に向けて開発した Er:YAlO₃(YAP)レーザーの発振実験やその性能評価について述べる。3.1 節では、レーザー発振の原理を述べる。3.2 節では、レーザー固体媒質である YAP 結晶、3.3 節では、結晶の光学特性を述べる。これらの節では、Er 系固体レーザーの解説と先行研究について触れたのち、Er:YAP 結晶の光学特性の測定結果を基に、波長 3.0 μm レーザー発振する上での Er:YAP の優位性を明らかにした。そして、3.4 節では、LD 励起 Er:YAP レーザーの発振実験、レーザー出力特性、レーザーパラメータの特性を調べ、計測用光源としての実用可能性を検討した。

3.1 レーザーとは

3.1.1 固体レーザー

レーザー(Laser: Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation)とは、原子や分子の誘導放出現象を利用して光を作り出す装置、およびその光自身のことを表す。レーザーは、主に、励起光、共振器、レーザー媒質の三つから構成されている。レーザー光の波長は、レーザー媒質を変えることによって、紫外、可視光、及び赤外の様々な波長で発振することが可能である。さらに、レーザー光はほとんど一直線に進む指向性を有し、また、タングステンランプのような白色光ではなく 1 本のスペクトル線で表される単色性を有する、などの特徴がある。これら特徴を活かし、レーザーは、学術分野では計測用光源や励起用光源、医療分野・産業分野ではレーザーメスや加工用光源として使用されている[3-1][3-2][3-3]。

現在までに、様々な種類のレーザー光源が開発されており、媒質の違いによって、色素レーザー、ガスレーザー、半導体レーザー、及び固体レーザーに分類される。固体レーザー研究は、1960 年に Hughes 研究所の Mainman 博士によって開発されたフラッシュランプ励起ルビーレーザーから始まった。翌年以降、共振器内の光の閉じ込め効率を表す Q 値を素早く切り替えることによって結晶内に蓄えたエネルギーをパルス光として一気に放出する Q スイッチ発振やピコ秒領域のパルス幅を持つ超短パルス光の発振が可能なモード同期発振などの高出力発振方法が開発された。さらに、レーザー増幅器を多段に設置して高利得にする方法やチャープパルス増幅法によって、レーザーの高出力化に成功した。以上のような方法によって、TW 級や PW 級の高出力レーザーが実現された[3-4][3-5]。1980 年代ごろから、半導体レーザー(LD)の高出力化、長寿命化、及び小型化が進み、それに伴って、放電ランプに代わり、LD が励起用光源として利用され始めた。LD 光源の発振波長とレーザー媒質の吸収波長を一致させることで、フラッシュランプ励起では得ることのできない高効率なレーザー発振が実現された。LD 励起固体レーザーの登場によって、限界に達してい

たフラッシュランプ励起固体レーザーの性能を大きく改善できることが明らかになり、これ以降、固体レーザー研究の中心は、LD 励起固体レーザーへと移り変わっていった。

固体レーザーは、媒質を変えることによって、発振波長を制御することができ、現在までに様々な波長でのレーザー発振が確認されている(図 3-1)。1982 年に開発された Ti^{3+} :サファイアレーザーは、色素レーザーに比べて安定性や寿命の特性が優れており、波長可変レーザーとして実用化されている。近赤外領域の波長 $1.06\text{ }\mu\text{m}$ 及び $1.03\text{ }\mu\text{m}$ で発振する Nd^{3+} :YAG、 Yb^{3+} :YAG レーザーは、量子効率が非常に高く、高出力レーザーとして最も普及しているレーザーである。また、波長が $1.5\text{ }\mu\text{m}$ より長い中赤外領域は、可視光と比べて4桁から5桁も人間の目への安全性が高いことから、この波長帯で発振する Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 、 Er^{3+} を添加した固体レーザーは、レーザーレーダー用光源として利用されている。本研究で開発を試みた Er^{3+} 添加固体レーザーは、結晶の Er^{3+} 添加濃度を調整することによって、波長 $\sim 1.6\text{ }\mu\text{m}$ と $\sim 2.8\text{ }\mu\text{m}$ で発振可能である。この波長は、特に水の波長 $3.0\text{ }\mu\text{m}$ 帯の吸収ピークとよく一致し(図 3-2)、水を含んだ皮膚などに波長 $3.0\text{ }\mu\text{m}$ 光が非常に良く吸収されるため、医療や産業分野への Er 系固体レーザーの応用開発が期待されている[3-7]。また、波長 $4.0\text{ }\mu\text{m}$ から $5.0\text{ }\mu\text{m}$ 付近で発振する Fe^{2+} 添加固体レーザーの発振波長は、 CO_2 分子などの共鳴線の領域と一致しており、このレーザーのガスセンシングなどへの応用が期待されている。

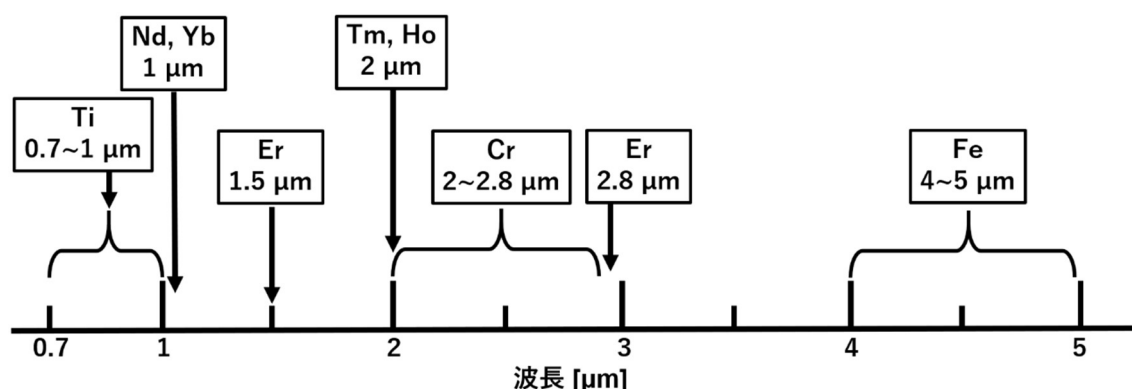


図 3-1 代表的な固体レーザーの発振波長

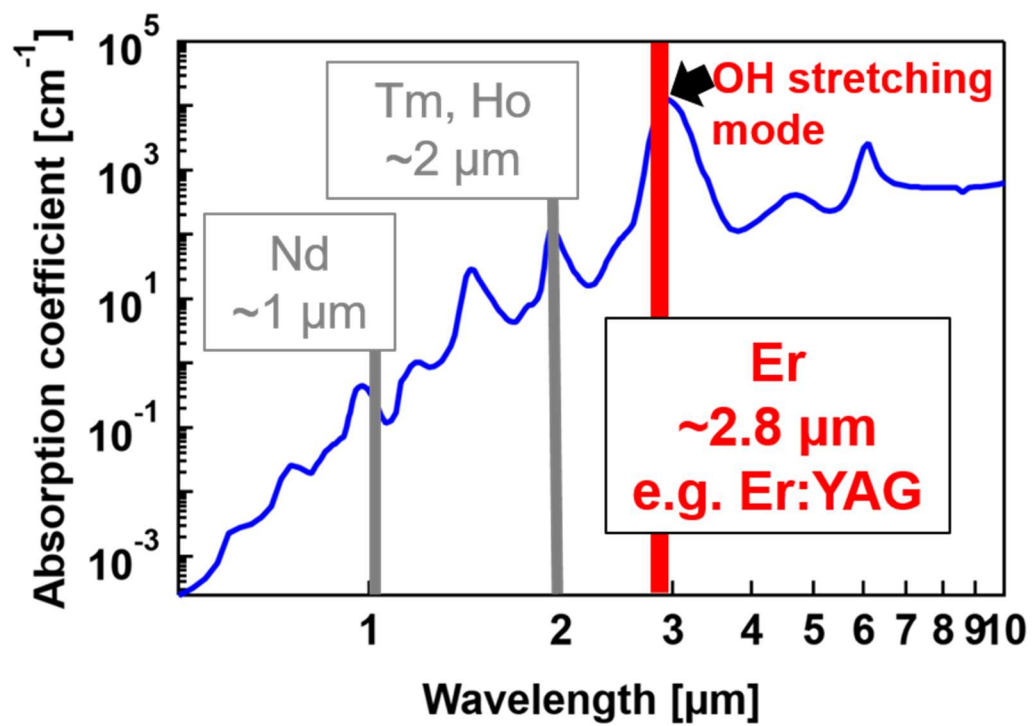


図 3-2 水(H₂O)の吸収スペクトル[3-6]

3.1.2 光の吸収と放出

レーザー物理における最も基礎的な現象は、物質中の電子と光の相互作用である。今、振動数 ν_{21} の光が真空中を伝搬しているとき、その光のエネルギーは、プランク定数 h を用いて、 $h\nu_{21}$ と書ける。ここで、図 3-3(a)-(c) は、二準位状態を取りうる電子を持つ物質における誘導吸収、自然放出、及び誘導放出過程の模式図である。今、物質中の電子が基底状態 E_1 と励起状態 E_2 のエネルギー準位を有している場合を考える。物質に光が照射された際、電子の準位間のエネルギー差が $E_2 - E_1 = h\nu_{21}$ であると、光の一部が電子に吸収される(図 3-3(a))。これを誘導吸収、或いはただの吸収という。また、光で電子の状態を状態 1 から状態 2 へ遷移させることを励起という。この時、状態 1 から状態 2 へと遷移する確率は、誘導吸収確率 $W_{12} [\text{s}^{-1}]$ と定義され、入射された光の単位体積・単位周波数当たりのエネルギー密度を $\rho [\text{J} \cdot \text{s} \cdot \text{cm}^{-3}]$ 、ある比例定数 B_{12} を用いると、 W_{12} は次式(3.1)で書き表せる。

$$W_{12} = B_{12}\rho \quad (3.1)$$

また、 ρ は、プランクの放射式(3.2)として知られている。

$$\rho = \frac{8\pi h \nu^3}{c^3} \frac{1}{\exp\left(-\frac{h\nu}{k_B T}\right) - 1} \quad (3.2)$$

ここで、 c と k_B は、それぞれ、光の速度とボルツマン定数である。 T は、温度である。

逆に、電子が初めから励起状態 E_2 であった場合、ある緩和時間 $\tau [\text{s}]$ で自らこの準位差に相当する光を放出し、基底状態に戻る。この時に発生する光と緩和時間のことをそれぞれ、蛍光と蛍光寿命(Spontaneous lifetime)と呼び、この時の蛍光の放出過程を自然放出(Spontaneous emission)という(図 3-3(b))。また、自然放出によって発生した光は、蛍光として等方的に発生しており、レーザー光の様なコヒーレント性はない。このとき、状態 1 と状態 2 にそれぞれある電子の数を $N_1 [\text{m}^{-3}]$ と $N_2 [\text{m}^{-3}]$ とすると、 N_2 の時間変化は次式(3.3)のように書き表せる。

$$\frac{dN_2}{dt} = -A_{21}N_2 \quad (3.3)$$

ここで、 A_{21} は、状態 2 から 1 へ自然放出によって遷移する確率、すなわち自然放出確率 $A_{21} [\text{s}^{-1}]$ であり、蛍光時間 τ と次のような関係がある。

$$A_{21} = \frac{1}{\tau} \quad (3.4)$$

一方で、照射された光の強さに刺激されて光を放出する過程も存在する。電子が初めから励起状態 E_2 にあり、光が物質に入射した場合、電子が刺激されて、光の発生を伴って状態 2 から状態 1 へと輻射遷移する。この時の光の刺激による光の放出過程を誘導放出 (Stimulated emission) という (図 3.3(c))。誘導放出によって発生した光は、振動数(エネルギー、波長)、位相、進行方向、及び電場の方向が、電子に入射された光と同じであることが特徴であり、自然放出によって発生した光とは大きく違う点である。また、誘導放出で発生した光は増幅される。ここで、状態 2 から 1 へと誘導放出する確率を B_{21} とすると、平衡状態において、自然放出と誘導放出、及び誘導吸収は、釣り合うため、以下の式が成立する。

$$N_2(B_{21}\rho + A_{21}) = N_1B_{12}\rho \quad (3.5)$$

平衡状態において、 N_1 と N_2 は、ボルツマン分布に従うことから、 N_1/N_2 の比は、次のように書ける。

$$\frac{N_2}{N_1} = \exp\left[-\frac{(E_2-E_1)}{k_B T}\right] = \exp\left[-\frac{h\nu_{21}}{k_B T}\right] \quad (3.6)$$

また、(3-5)と(3-6)を用いて、 ρ を次のように書き直すことができる。

$$\rho = \frac{A_{21}/B_{21}}{(B_{12}/B_{21})\exp(h\nu/k_B T)-1} \quad (3.7)$$

ここで、式(3.2)と式(3.7)と比べると、次の様な関係式が得られる。

$$\frac{A_{21}}{B_{21}} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \quad (3.8)$$

$$\frac{B_{12}}{B_{21}} = 1 \quad (3.9)$$

以上の式(3.8)と(3.9)は関係式をアインシュタインの関係式と呼ぶ。

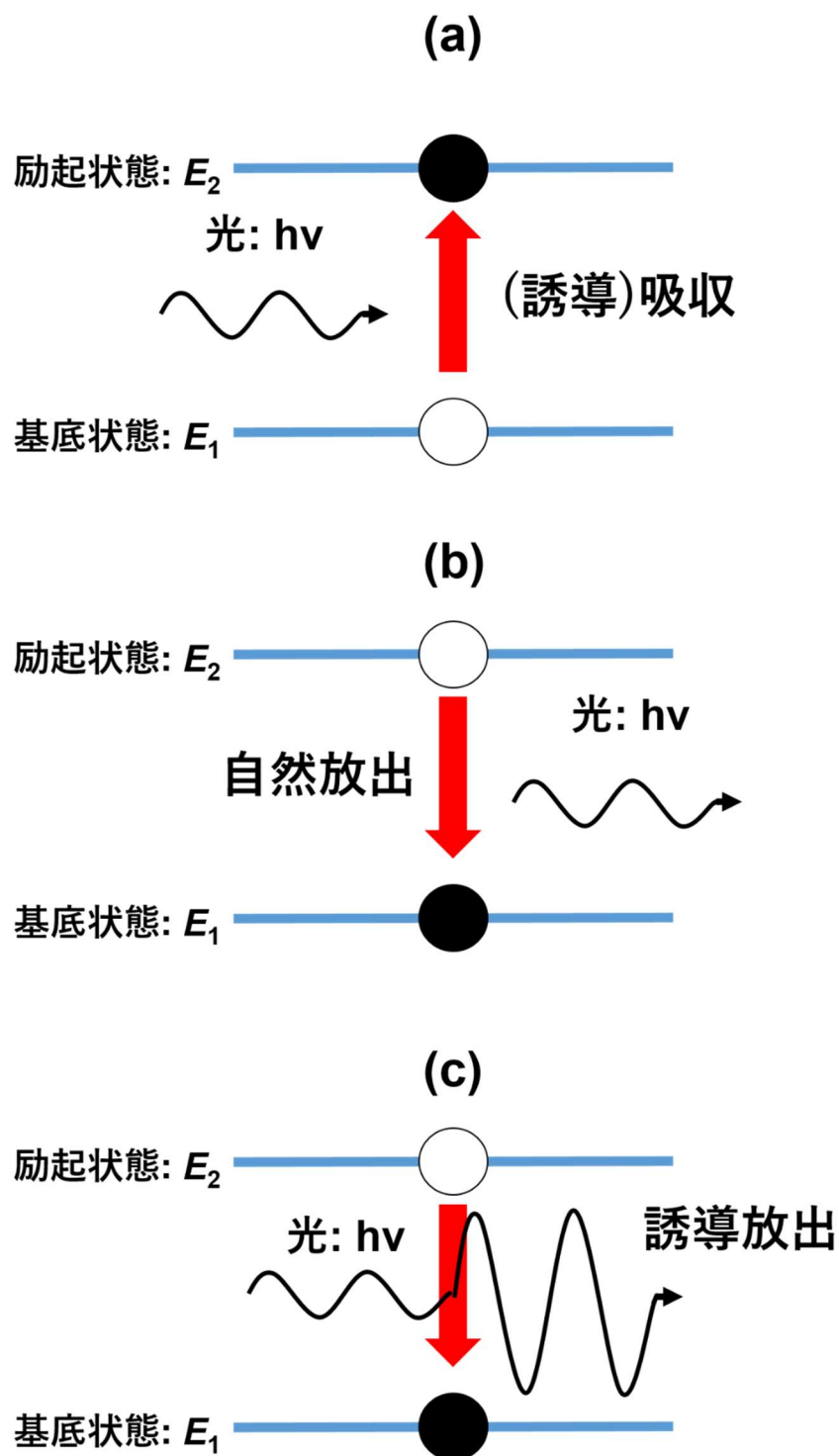


图 3-3 (a)誘導吸收、(b)自然放出、(c)誘導放出

3.1.3 反転分布と光の増幅

式(3.6)により、 $N_1 > N_2$ の状態は、図 3-4(a)で示される粒子数の分布を持っている熱平衡状態である。この場合、物質に光が入射されても誘導放出よりも吸収が支配的なため、光の増幅は起こらない。逆に、図 3-4(b)で示される $N_2 > N_1$ の状態では、誘導放出の割合が吸収よりも多くなるため、光の増幅が可能になる。 $N_2 > N_1$ の状態の時に反転分布と呼び、これを有している原子の集団の中を光が進むと、徐々に光を増幅していき、最終的に周波数(波長)、位相、進行方向、および電場方向が揃った大きな振幅を持つコヒーレントで単色な強い光となる。この光をレーザー光と呼ぶ。すなわち、レーザーを発振させるためには、この反転分布を形成する必要がある。そのため、より大きな反転分布をつくることができれば、より光の増幅、すなわちレーザーの高出力化が可能になる。そこで、反転分布を作る方法、基底準位から励起準位に効率良く電子をくみ上げる方法として、励起(ポンピング)がある。この方法では、固体媒質中の電子のエネルギー準位と一致した光子エネルギーの強い光を照射することで、基底状態から励起状態に移転する。さらに強度の強い光を照射することで、より大きな反転分布を作ることにも可能である。

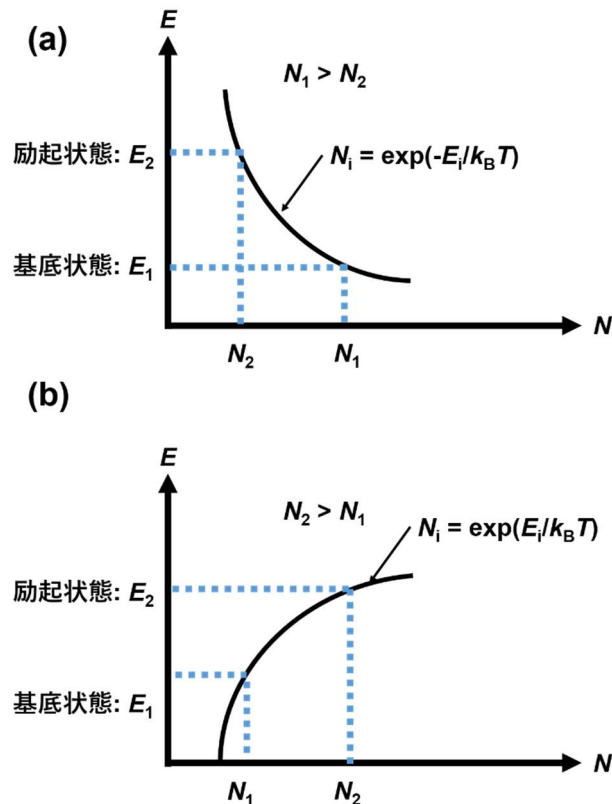


図 3-4 ボルツマン分布に従う原子集団におけるエネルギー分布。(a)熱平衡状態、(b)反転分布状態

次に、物質に光の強度 I_0 が入射した時の光の増幅について考える。物質に光が入射した際の光の強度変化 $I(z)$ は、次式(3.10)で表される。

$$I(z) = I_0 \exp(-\alpha z) \quad (3.10)$$

ここで、 α は、物質の吸収係数、 z は、媒質中を光が進んだ距離である。この式より、 α が正の値を取る場合、光の強度は、物質中を進んだ距離に対して指数関数的に減少することが分かる。熱平衡状態 $N_1 > N_2$ である物質に光が入射した場合、誘導吸収によって、光の強度が指数関数的に減少するため、 α は正の値を取る。一方、反転分布状態 $N_2 > N_1$ では、誘導放出によって光が増幅されるため、 α は負の値をとることになる。そこで、 $\gamma = -\alpha$ としたとき、この γ を小信号利得係数と呼び、この γ と式(3.10)より、光の増幅率 G が以下の式(3.11)で書き表すことができる。

$$G = \frac{I(z)}{I_0} = \exp(\gamma z) \quad (3.11)$$

この光の増幅率 G は、一般的に利得と呼ばれ、後述する共振器内の光の増幅率を表す重要なパラメータである。また、小信号利得係数 γ は、物質の誘導放出の起こりやすさを表す誘導放出断面積 σ と、基底状態と励起状態の粒子数の差(反転分布密度) $\Delta N = N_2 - N_1$ に比例するため、

$$\gamma = \sigma \cdot \Delta N = \sigma \cdot (N_2 - N_1) \quad (3.12)$$

と書き表すことができる。式(3.12)より、より大きな光の増幅を得るためには、大きな誘導放出断面積、大きな反転分布状態を作ることが重要であると分かる。

3.1.4 レーザー共振器の構成

図 3-5 は、固体レーザーの構成を表している。図 3-5 の固体レーザーは、①媒質を反転分布状態にする励起光源、②反転分布状態になり誘導放出によって光を発生させるレーザー媒質、及び③媒質から発生した光を閉じ込めて増幅する光共振器、で構成されている。図 3-5 の励起光源には、発振波長の線幅が非常に短く、長寿命で高出力な半導体レーザー(LD)が用いられる。また、図 3-5 の光共振器は、平行平板の二枚のミラーで構成されているファブリ・ペロー型共振器であり、光の閉じ込めや取り出しを行う役割がある。使用するミラーの一方は、反射鏡(DM: Dichroic Mirror)であり、励起光の一部を透過させ、レーザー光に対して高い反射率を持つ。そのもう一方は、出力鏡(OC: Output Coupler)であり、レーザー

光の一部を透過させる役割を持つ。この共振器内に光を発生させるためには、光を発するレーザー媒質を共振器内に配置する必要がある。配置する媒質として、結晶や透明セラミックスなどの固体媒質が固体レーザーでは用いられる。この媒質は、励起光源によって励起され、反転分布状態になる。反転分布状態になった媒質は、等方的に蛍光を発するが、光共振器によって光の一部が閉じ込められ、さらにその光が往復することで誘導放出が起こり、光の増幅が行われる。

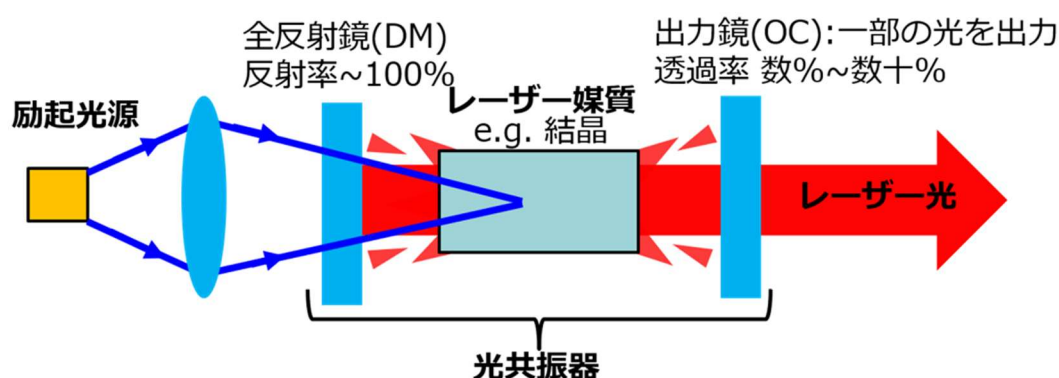


図 3-5 固体レーザーの構成

このときの共振器内に閉じ込められる光は、ミラーの位置が節となる定在波として存在している(図 3-6)。このとき、共振器の長さ L は、定在波の半波長 $\lambda/2$ の整数倍($\lambda q/2$ 、 $q=1, 2, \dots$)に等しいため、 $L=\lambda q/2$ と書くことができる。ここで、波数 $k=2\pi/\lambda$ より、共振器長と波数の関係式が得られる。

$$k_q = \frac{q\pi}{L} \quad (3.13)$$

但し、 q は、整数(1, 2, ...)である。式(3.13)は、共振器内に波数 k_q を持った光だけが存在していることを表している。すなわち、式(3.13)は、共振器内に存在できる光の条件を表しており、これが共振条件となる。また、この共振条件を波長 λ で書き表した場合、 $\lambda=2L/q$ となる。この共振条件を満たした光は、効率よく共振器内に閉じ込められるため、媒質を往復する回数が増え、共振器内の光強度が増加する。この様に効率よく閉じ込められ、増幅された光の一部は、最終的に、OC から取り出され、この光がレーザー出力として使用される。

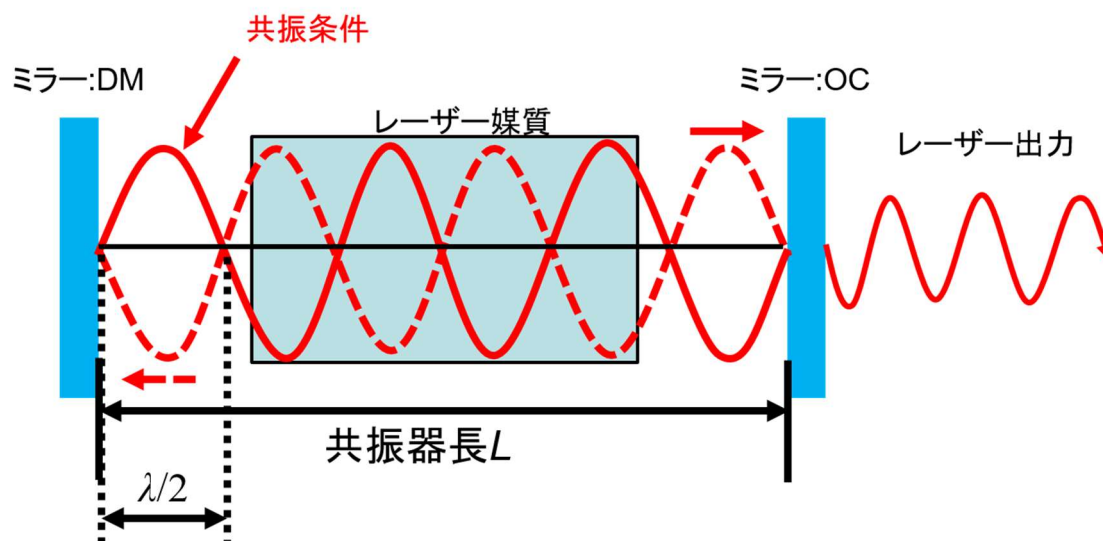


図 3-6 ファブリ・ペロー型共振器における定在波と共振条件

また、共振条件を満たす固有の状態を持った光の形態をモード(mode)と呼ぶ。この条件の時の周波数 ν_q は、周波数 $\nu = ck/2\pi$ (c : 光速)と式(3.xx)を用いて表され、式(3.14)で書き表される。

$$\nu_q = \frac{qc}{2L} \quad (3.14)$$

式(3.14)より、レーザーは、周波数間隔 $c/2L$ で発振しており、この周波数間隔で発振するモードが縦モードである。これに対して、ビームの断面積の強度分布が横モードである。レーザーの断面積において、中央の強度が最も高い場合、そのモードは基本横モード(TEM_{00} モード)と定義され、レーザー光は、ガウシアンビームである。その際、ビーム品質を表すパラメータ M^2 (エムスクエア)は、1である。この M^2 が1に近いほど、レーザーを回折限界に近いスポット径までレンズで集光することが可能になる。一方で、高次の横モードで発振した場合、 M^2 が大きくなり、集光性が悪くなる。そのため、レーザー加工などの高いエネルギー密度を要求される実験などにおいて、 M^2 が重要なパラメータとなる。

3.1.5 レーザーの発振条件

次に、レーザー光が共振器から取り出される条件、すなわちレーザーの発振条件について述べる。前述した共振条件である光は、共振器内を往復し、誘導放出により増幅される。しかし、光の増幅は、共振器における利得と損失を考慮する必要がある。弱い励起状態においては、共振器内の損失が誘導放出による利得よりも大きいため、光は増幅されず減衰する。一方、励起が強くなると、徐々に利得が増加し、利得が損失を上回ったとき、レーザーが発振する(発振閾値)。この発振条件は、利得係数 γ を用いて次のように説明できる。ここで、利得係数 γ 、誘導放出断面積 σ 、反転分布密度 $\Delta N = N_2 - N_1$ 、及び媒質の長さ l の関係は、式(3.15)で書き表すことができる。

$$\gamma l = \sigma \Delta N = \sigma (N_2 - N_1) \quad (3.15)$$

さらに共振器内の光が一往復した時の利得 G は、 γl と DM と OC の反射率 R_1 と R_2 を用いて式(3.16)となる。

$$G = R_1 R_2 \exp(2\gamma l) \quad (3.16)$$

ここで、共振器内の損失がミラーによる損失のみであるとした場合、レーザーが発振する条件は、 $R_1 R_2 \exp(2\gamma l) = 1$ となる。

また、レーザー発振によって共振器から取り出されたレーザー出力は、励起パワーに比例して増加する。図 3-7 は、励起パワーに対するレーザー出力の関係を示した模式図である。この図の直線の傾き η は、スロープ効率と呼び、レーザーの発振効率を示すパラメータである。また、出力が立ち上がる励起パワーのことを発振閾値と呼ぶ。

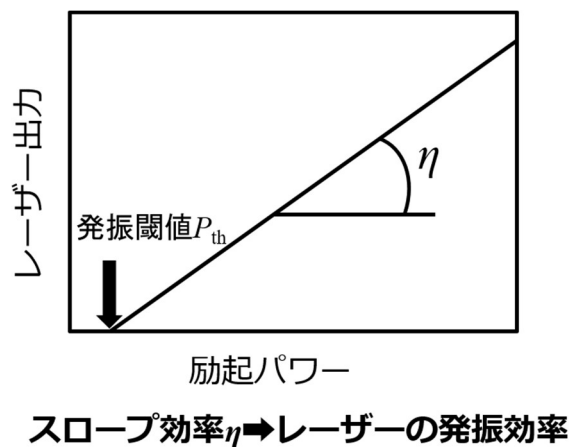


図 3-7 スロープ効率と発振閾値の定義

3.2 Er 系固体レーザー媒質の検討

3.2.1 レーザー媒質

レーザー媒質とは、誘導放出によってレーザー光を発生させる物質である。そのため、レーザー発振器を構成する要素の一つとして、レーザー媒質は非常に重要である。気体レーザーや液体レーザーは、寿命が短く、メンテナンスが必要である、一方で、固体レーザーは、気体・液体レーザーと比べて、高出力・高効率発振が可能で、小型化でき、長寿命である。また、固体レーザー媒質は、結晶の母材とそれに添加された発光物質で構成される。発光物質は、励起光を吸収し、光を発生させる役割を持つ。結晶母材は、発光物質を母材内に閉じ込め、一様に分布させ、固定する役割がある。また、結晶の母材に要求される第一の条件は、励起波長と発振波長に対して透明であること、つまりその波長における吸収が小さいことが要求される。吸収が大きい場合、励起光が発光原子に吸収されず、励起できなくなり、レーザーが発振しない。発振されるレーザー光の波長は、発光物質の種類によって決まり、また、母材の結晶場によってもわずかに変化する。

3.2.2 発光物質: 希土類イオン:エルビウム Er

波長 3.0 μm 帯のレーザー光を発生させるための固体レーザー媒質として、エルビウム (Er) を母材 (結晶やセラミックス) に添加した Er 添加固体媒質が用いられる。図 3-8 は、母材に発光原子を添加したレーザー媒質の概念図であり、Er 添加固体媒質の場合、Er 原子が発光物質として母材中に均等に添加されている。この Er は、原子番号 68 番目の元素であり、母材中において Er^{3+} イオンとして存在し、発光は、 Er^{3+} の 4f 軌道内での電子遷移に伴うものである。図 3-9 は Er イオンのエネルギー準位図である。 Er^{3+} に波長 $\sim 976 \text{ nm}$ の光を入射すると、光を吸収して基底状態 ($^4I_{5/2}$) から励起状態 ($^4I_{11/2}$) に遷移する。その後、Er イオンは、ある確率で $^4I_{11/2}$ 準位から $^4I_{13/2}$ 準位へと緩和する。このうち、光の放出を伴う緩和を輻射緩和、輻射を伴わない緩和を非輻射緩和という。この時発生する光の波長は、母材の種類に依るが $\sim 3.0 \mu\text{m}$ であり、これに対応するエネルギー遷移 ($^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$) が 3.0 μm レーザーに利用されるため (レーザー遷移)、この場合の $^4I_{11/2}$ 準位をレーザー上準位、 $^4I_{13/2}$ 準位をレーザー下準位という。先行研究として、Er:YAG 単結晶や、Er:Lu₂O₃ セラミックスを用いた半導体レーザー (LD) 励起 CW レーザー発振実験の報告がなされており、媒質の種類によっては、発振波長などレーザーの性能が異なっているため、媒質の選定がレーザーを開発する上で非常に重要である。

固体レーザー媒質 母材中の発光原子

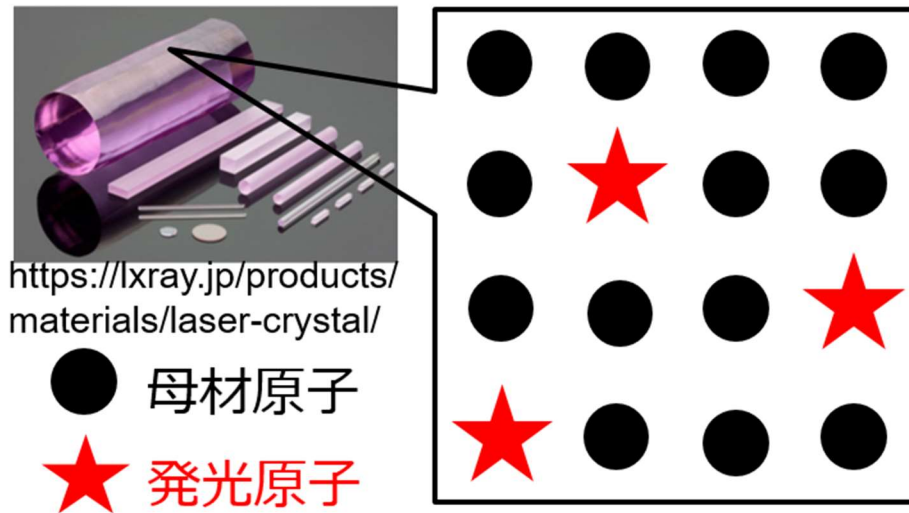


図 3-8 レーザー媒質における母材と発光原子の概念図

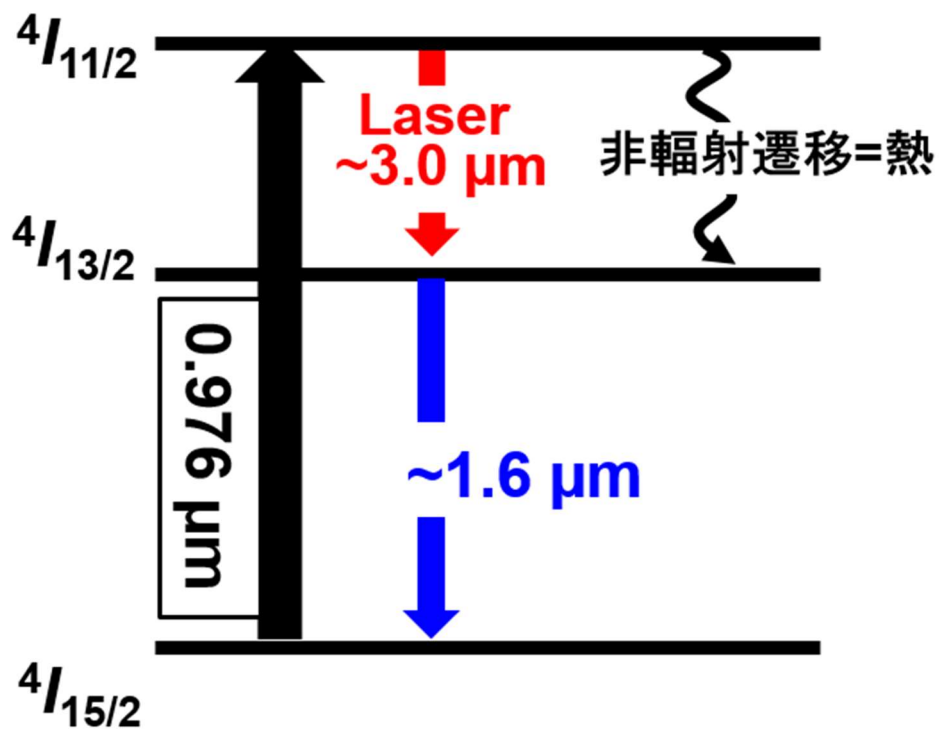


図 3-9 Er イオンのエネルギー準位図

3.2.3 ホスト材料: YAlO_3 (YAP)

高出力・高効率発振するためには、高い熱伝導率、優れた機械特性、低いフォノンエネルギーがレーザー固体媒質に要求される。

優れた機械特性を持つ媒質は、壊れにくく、傷つきにくいいため高出力化が可能なおうえ、レーザーを開発する際、媒質の取り扱いが容易になる。

次に、熱伝導率が高い媒質は、光励起した際に結晶内に発生した温度分布を平坦化させる効果が高い。高出力発振を実現する上で問題となるのは、励起した際結晶に発生する熱効果である。 Er^{3+} イオンの場合、結晶を励起した際、励起光の約 67%が量子欠損によって熱に変わってしまい、結晶内に温度分布が形成される(図 3-10)。この時、媒質の屈折率 n は、温度 T の関数であるため、温度分布に対応した屈折率分布が形成される。それに伴い屈折率が変化し、結晶がレンズの様な振る舞いをする熱レンズ効果が発生する。この効果によって、媒質は、レンズのような振る舞いをし、共振器内に閉じ込められていた光がうまく閉じ込められなくなり、共振器の状態が不安定になり、レーザー出力が制限されてしまう(図 3-11)。また、結晶内に温度分布が発生すると、結晶内に熱応力が発生する。最終的に、温度が非常に高くなった場合、結晶の熱破壊限界を迎え、結晶が破壊されてしまう。熱応力を軽減するためには、結晶内の温度分布を平坦化し、熱レンズ効果を抑制するために、結晶が高い熱伝導率を有している必要がある。

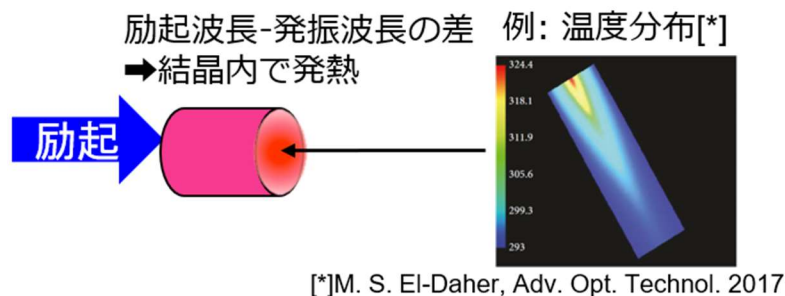


図 3-10 励起に伴って発生する媒質内の温度分布

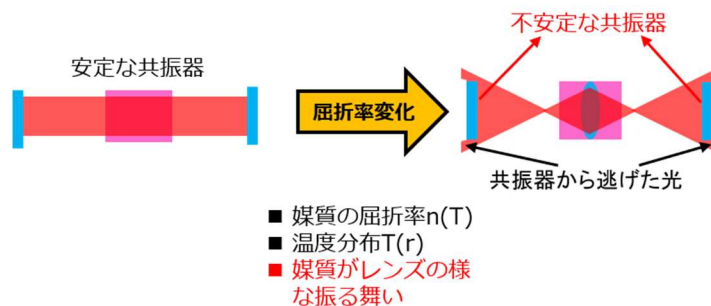


図 3-11 熱レンズ効果によるレーザー共振器の不安定化

また、フォノンエネルギーとは、母材のフォノン振動のエネルギーを表し、非輻射遷移と深くかかわるパラメータである。光を発生させる遷移として輻射遷移がある一方で、光の放出を伴わない遷移として非輻射遷移がある。この非輻射遷移のひとつが多フォノン緩和過程であり、イオンが持つ励起状態のエネルギーを周りの母材に伝えることで、母材間の振動を励起し、熱を放出しながら失活するため、発光効率を下げてしまう。多フォノン緩和は、図 3-12 で示されるようなエネルギー差 ΔE の二準位を考えた場合、フォノンエネルギー E_p を持った複数のフォノンを励起する過程である。フォノンエネルギーが高ければ、緩和に必要なフォノンの数が少なくすむため、多フォノン緩和の確率が高くなる。一方で、エネルギーが低いと、緩和に必要なフォノン数が多くなるため、多フォノン緩和の確率が低くなる。以上から、フォノンエネルギーが低い媒質は、多フォノン緩和速度が遅く、発光効率が高い媒質であるため、高効率なレーザー発振を実現できる可能性を有している。図 3-9 で示したように、Er イオンにおいても、 $^4I_{11/2}$ から $^4I_{13/2}$ への非輻射遷移によって熱が発生するため、高効率発振には、非輻射遷移の発生確率が低いことが要求される。

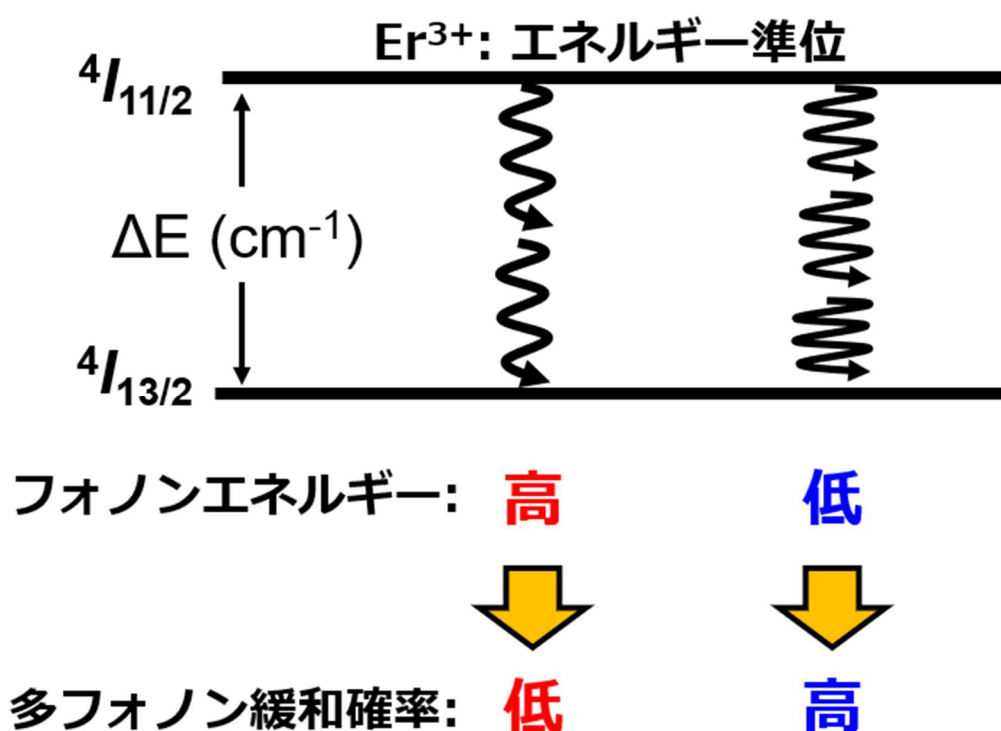


図 3-12 フォノンエネルギーが異なるときの多フォノン緩和において緩和に要するフォノン数の違い

本研究では、これら 3 つの物理パラメータに優れた母材結晶として斜方晶のペロブスカイト構造を有する YAlO_3 [3-8]、通称 YAP (イットリウム・アルミニウム・ペロブスカイト)、に注目した(図 3-13)。YAP 結晶は、レーザー媒質としてよく利用されている YAG ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$: イットリウム・ガーネット) や酸化物結晶の Lu_2O_3 に比べて、比較的高い熱伝導率、優れた機械特性、及び低フォノンエネルギーを有している(表 3-1)ことから、YAP 結晶は、高出力・高効率発振が期待できるレーザー媒質であると期待できる。Er:YAP の吸収係数、蛍光寿命、および誘導放出確率のパラメータである誘導放出断面積の測定を本研究で行い、光学特性の評価を行った。

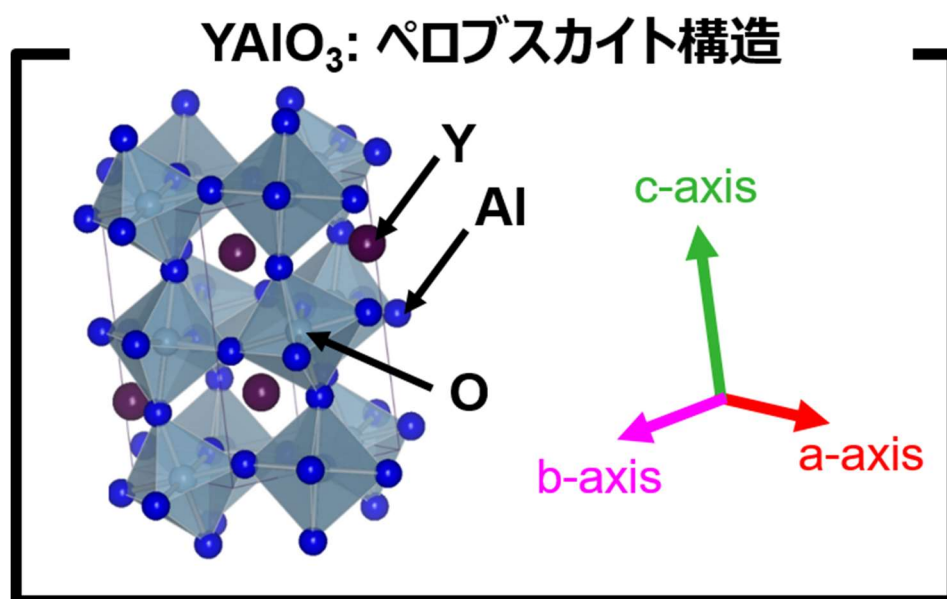


図 3-13 YAP の結晶構造[3-8]

表 3-1 YAP と他の代表的な母材結晶との物性値比較

	YAG	Lu_2O_3	YAP
フォノンエネルギー [cm^{-1}]	857 ^[3-9]	618 ^[3-10]	550 ^[3-11]
熱伝導度 [W/mK]	10.7 ^[3-12]	12.8 ^[3-10]	13.3 ^[3-13]
モース硬度	8.5 ^[3-14]	6.5 ^[3-10]	8.5-9.0 ^[3-11]

3.3 Er:YAP 光学特性

本研究では、5 at.% の Er を添加した YAP 結晶(Er:YAP)をレーザー媒質として使用した。結晶を励起し、レーザー光の発生および評価をするためには、レーザー媒質の光学特性の情報(吸収スペクトル、蛍光スペクトル、蛍光寿命、誘導放出断面積)が必要である。吸収スペクトルは、励起光の吸収波長の同定や吸収効率を示し、蛍光寿命及び誘導放出断面積は、レーザー発振のし易さを表す定量的な指標となる。そこで、レーザー性能の定量的な評価を行う為に必要なパラメータである吸収スペクトル、蛍光スペクトル、蛍光寿命、及び誘導放出断面積を明らかにするべく、これらの Er:YAP のパラメータを測定した。

3.3.1 吸収スペクトル

吸収スペクトルとは、単位長さ当たりのある波長(λ)における光吸収の大きさ、つまり吸収係数 $\alpha(\lambda)$ [cm^{-1}]を波長ごとにプロットしたものである。図 3-14 は吸収分光法の簡単な測定原理であり、厚さ x の媒質に入射した光の強度 I_0 は、Beer-Lambert 則に従って変化し、光の強度 $I(x)$ は次式で表される。

$$I(x) = I_0 \exp(-\alpha(\lambda)x) \quad (3.17)$$

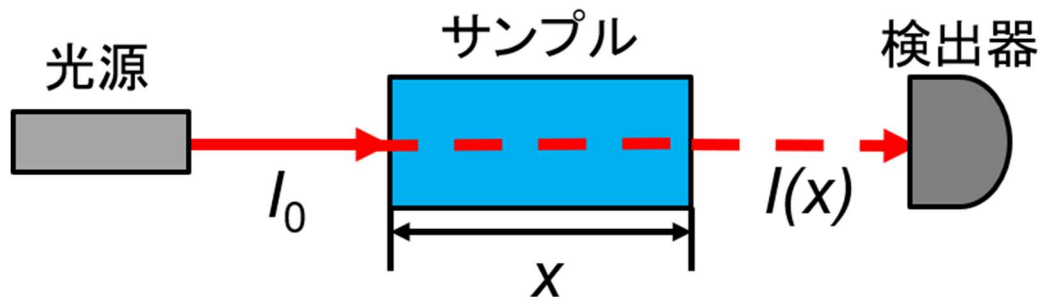


図 3-14 入射光 I_0 と透過光 $I(x)$ との関係

この時、透過率 $T=I/I_0$ を導入すると、透過スペクトルが得られ、さらにこれを式変形すると、吸収係数 $\alpha(\lambda)$ が次式で表される。

$$\alpha(\lambda) = -\frac{1}{x} \ln T \quad (3.18)$$

吸収スペクトルから得られる吸収係数は、励起光の励起光吸収効率やレーザーの入出力特性で使用する吸収パワーを定量的に議論・定義する上で重要なパラメータである。また、後述の誘導放出断面積の導出や励起中の発熱分布を求める際に必要なパラメータの一つで

もあり、結晶特性の解析や熱解析において重要な役割を果たす。以上のことから、レーザー及び媒質の特性・性能を議論する上で、吸収スペクトルおよび吸収係数は、重要な物性値であり、測定が必要不可欠である。

本研究では、波長 325 nm から 3200 nm の範囲で室温における 5 at.% Er:YAP の吸収スペクトルを測定した。測定に使用した Er:YAP は、光の入射面 2 mm×5 mm、厚さ 8 mm の直方体であり、入射面には反射防止コートはされていない。また、YAP の結晶構造は斜方晶の為、結晶軸の異方性を有している。本研究では、b-cut の Er:YAP 結晶を使用した。透過スペクトルの測定には、紫外・可視・赤外分光光度計(UV3600 Plus, SHIMADZU Co., Ltd.)を使用し、得られた透過スペクトルを基に、式(3.18)から吸収スペクトルを求めた。図 3-15 は、室温における Er:YAP の吸収スペクトルの測定結果である。図 3-15 より、Er:YAP の $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 遷移によるレーザー発振波長の領域である波長 3000 nm 帯に基底状態吸収が無いことから、再吸収によるレーザー発振の障害が無いことを確認した。また、Er³⁺イオンによる吸収が波長 340 nm から 1660 nm までの間で確認でき、これらの吸収は、Er³⁺イオンの基底準位から各エネルギー準位への光学遷移に対応している[3-15]。図 3-15 の挿入図は、Er³⁺イオンの $^4I_{15/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 遷移に由来する波長 1000 nm 帯の吸収バンドである。976 nm における吸収係数は、1.6 cm⁻¹であり、十分な吸収を有している。従って、波長 976 nm の半導体レーザー(LD)による基底準位からレーザー上準位状態への励起が可能であることが分かった。また、波長 1000 nm 帯の吸収バンドにおいて、複数の吸収ピークがある。これらのピークの分裂は、シュタルク効果によるものである[3-15]。

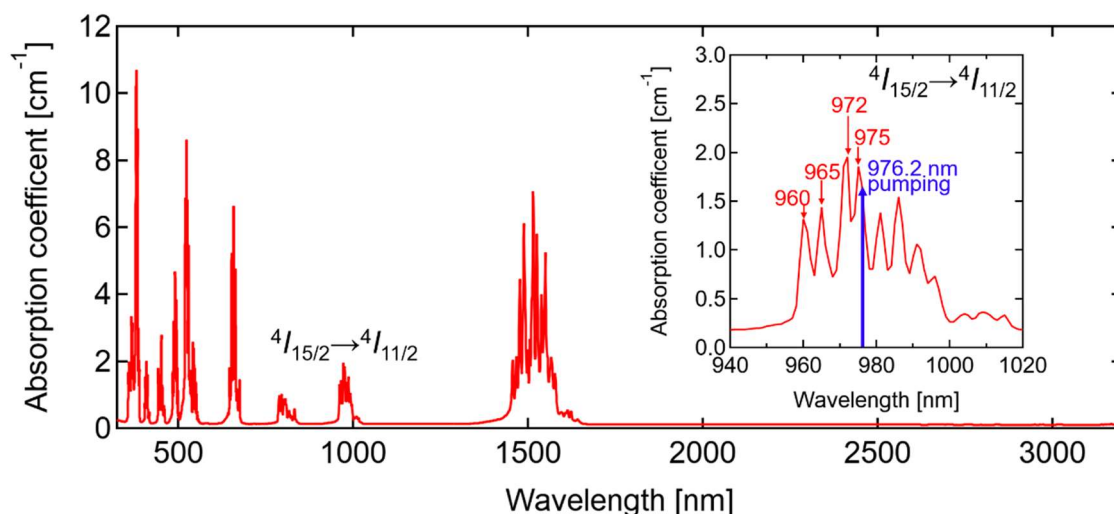


図 3-15 室温における Er:YAP の吸収スペクトル

3.3.2 蛍光スペクトル

蛍光スペクトルは、Er イオンがどの波長において発光するか、すなわちどの波長のレーザー光を発生させることが可能であるかを表す指標であるため、光学結晶の基礎的な光学パラメータである。そこで、本研究では、半導体レーザー(LD)で Er:YAP を励起し、室温下での $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 遷移及び $^4I_{3/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ 遷移に伴う蛍光スペクトルの測定を行った。励起光源として中心波長 976 nm (半値全幅 0.4 nm) で、コア径 105 μm 、開口数(NA)0.22 のファイバーカップル LD (K976A02RN 9.00WN0N-10255I10ESM0, BWT BEIJING)を使用した。図 3-16 は、測定した Er:YAP の蛍光スペクトルである。波長 1600 nm 帯において $^4I_{13/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ 遷移起因の発光と波長 3000 nm 帯において $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 遷移起因の発光が見られた。この結果より、波長 976 nm の LD による光励起によって、Er:YAP が波長 3.0 μm 帯の発光を呈することを確認した。

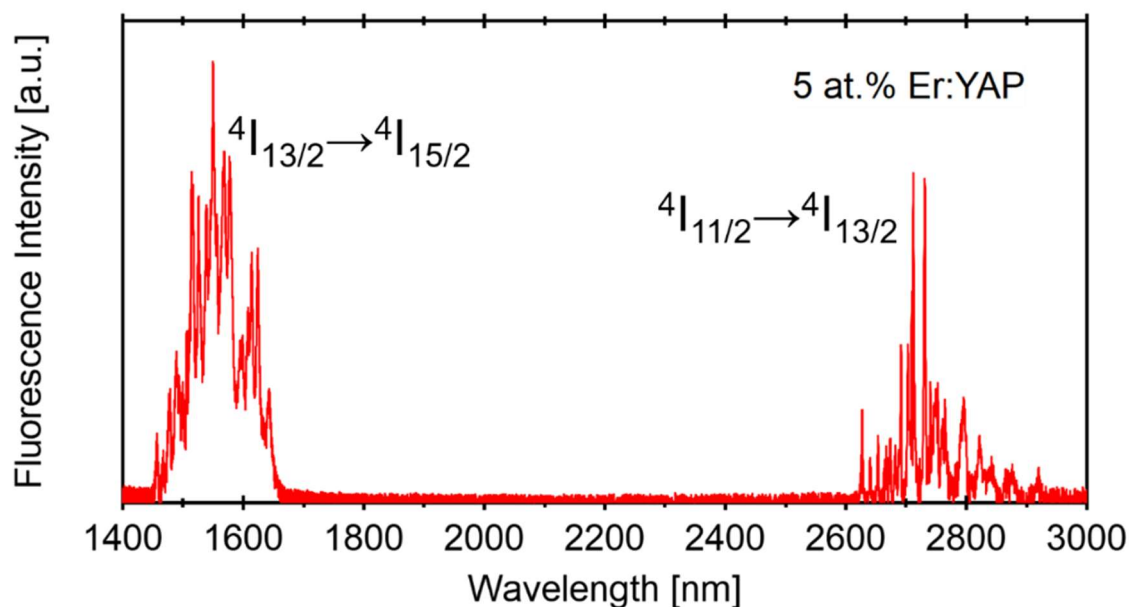


図 3-16 室温における 5 at.% Er:YAP の蛍光スペクトル。

3.3.3 蛍光寿命

先に述べた蛍光は、電子の準位間の遷移、すなわちエネルギー緩和の際に生じる。蛍光寿命 τ は、とある励起状態にあるイオンの数が $1/e$ まで減衰する時定数である。レーザー上準位の寿命（蛍光寿命）は、媒質の反転分布の形成のし易さ（励起エネルギーの蓄積のし易さ）を表す指標となっている。蛍光寿命は、蛍光強度の時間変化を追跡し、指数関数フィッティングを行うことで得られる。そこで、5 at.% Er:YAP の蛍光寿命の測定を行った。図 3-17 は、蛍光寿命を測定した際の実験体系である。実験において、Er:YAP をパルス幅 100 μ s、波長 976 nm の LD で励起し、蛍光を発生させた。励起直後に発生した蛍光の強度の時間変化を InAs 赤外線検出器(C12492-210, HAMAMATSU)で測定し、500 MHz の帯域幅のオシロスコープ(TDS5054B, Tektronix)を用いてデータ収集を行った。図 3-18 は、Er:YAP の波長 1600 nm 帯と 3000 nm 帯における蛍光寿命の測定結果である。測定したデータに対して、蛍光の強度 $F(t)$ の関数である $F(t)=F_0\exp(-t/\tau)$ をフィッティングし、蛍光寿命 τ を求めた。 $^4I_{1/2}$ 準位と $^4I_{13/2}$ 準位の蛍光寿命は、それぞれ、0.85 ms と 7.3 ms であった。表 3-2 より、代表的な Er 添加固体媒質である Er:YAG 結晶の上準位の蛍光寿命と比べると、Er:YAP の蛍光寿命は、Er:YAG に対して約 7.1 倍長く、反転分布が形成し易い結晶であることが明らかになった。

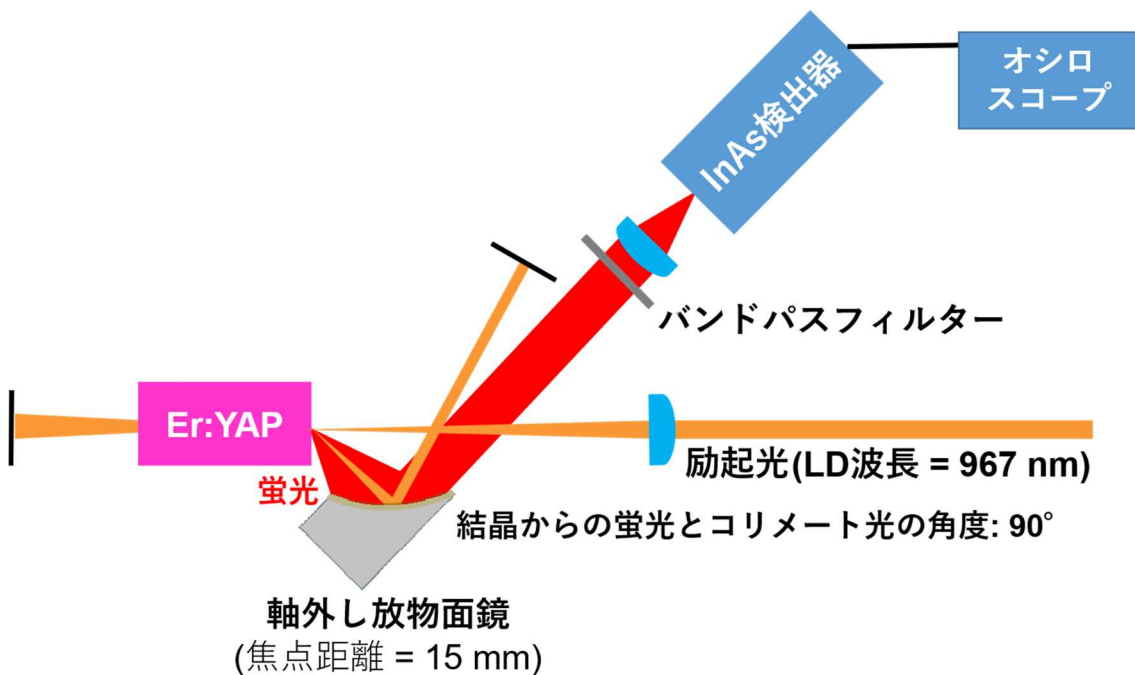


図 3-17 蛍光寿命測定実験体系

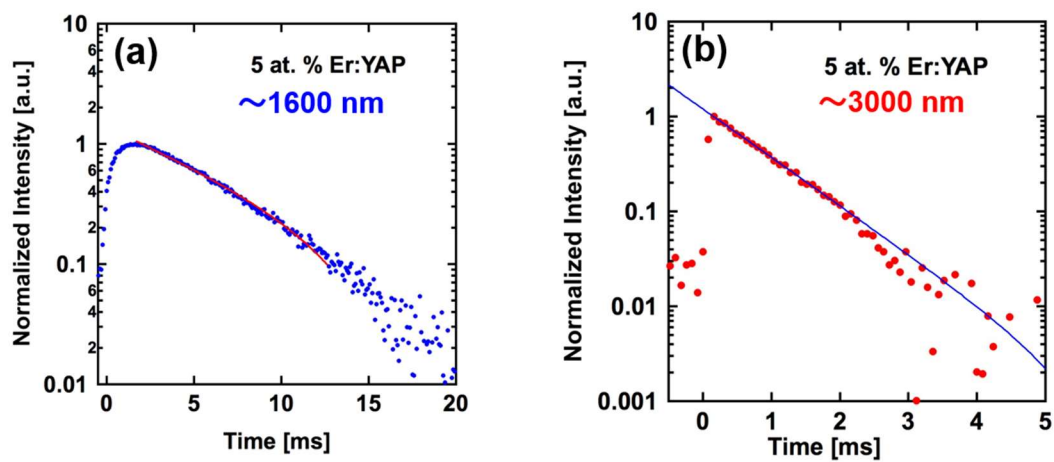


図 3-18 室温における Er:YAP の蛍光強度の時間変化。(a)波長 1600 nm における蛍光寿命、(b) 波長 3000 nm 帯における蛍光寿命。

表 3-2 Er 添加媒質の物性値比較

	Er:YAG [3-16]	Er:YAP
上準位(${}^4I_{11/2}$)寿命	0.12 ms	0.85 ms
下準位(${}^4I_{13/2}$)寿命	7.3 ms	7.3 ms

3.3.4 誘導放出断面積

誘導放出によって光が増幅され、レーザーが発振する。この誘導放出の確率は、媒質におけるレーザー発振のし易さを表す指標として誘導放出断面積と定義される。これを求めることによって、媒質のレーザーの発振のし易さを定量的に評価することができるため、媒質を選定する上で重要なパラメータの一つである。先行研究において、5 at.% Er:YAP の誘導放出断面積が得られていなかったため、誘導放出断面積の評価を行った。

誘導放出断面積 σ (Stimulated Emission Cross Section) は、Fuchtbauer-Ladenburg (F-L) 関係式で評価可能であり、以下の式で書き表される。

$$\sigma(\lambda) = \frac{\lambda^5}{8\pi c n^2 \tau_{\text{rad}}} \frac{I(\lambda)}{\int \lambda I(\lambda) d\lambda} \quad (3.19)$$

ここで、 λ 、 c 、 n 、 τ_{rad} 、および $I(\lambda)$ は、それぞれ、波長、光の速度、結晶の屈折率、輻射寿命 (Radiative lifetime)、および蛍光強度 (波長依存) である。式 (3.19) で表される誘導放出断面積を求めるには、輻射寿命 τ_{rad} と、蛍光スペクトルを用いて表される $I(\lambda)/\int \lambda I(\lambda) d\lambda$ の情報が必要になる。 $I(\lambda)/\int \lambda I(\lambda) d\lambda$ は、測定から得られた蛍光スペクトルのデータを使用し、計算される (図 3-19)。

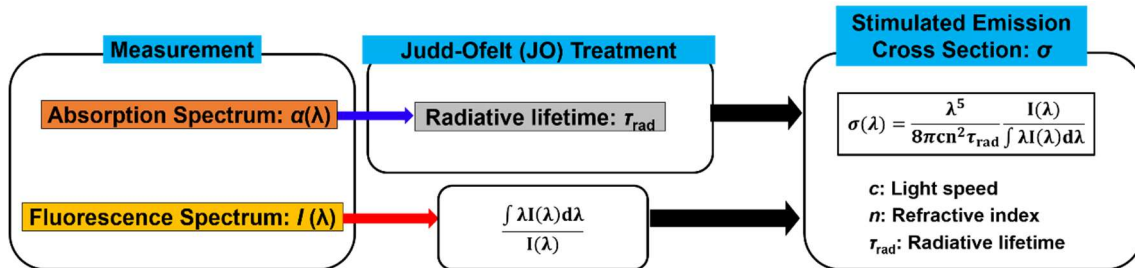


図 3-19 誘導放出断面積を求める過程と計算に必要な諸パラメータ。

一方、輻射寿命 τ_{rad} は、準位間の輻射遷移のみによる緩和時間であり、遷移確率 A_{rad} の逆数で表され、直接の測定が困難であるため、分光学的解析手法である Judd-Ofelt 解析 (J-O 解析) より得られる [参考文献]。この J-O 解析によって、初状態から終状態間の遷移における線強度 S を計算し、準位間の遷移確率を計算することができる。この線強度 S は、式 (3.20) で書き表され、

$$S(U \rightarrow U') = \sum_{t=2,4,6} \Omega_t \left| \left\langle (S, L) J \left| U^{(t)} \right| (S', L') J' \right\rangle \right|^2 \quad (3.20)$$

ここで、 Ω_i は、強度パラメータを表し、さらに、三種類の量子数(S, L, J)で特徴づけられる $|(S, L)J\rangle|(S', L')J'\rangle$ は、初状態 $|(S, L)J\rangle$ から終状態間 $|(S', L')J'\rangle$ へ遷移する電気双極子モーメントの単位テンソル演算子の行列の要素である。また、 $|(S, L)J\rangle|U^{(t)}|(S', L')J'\rangle$ は、結晶場(母材の種類)に依存せず、発光原子の種類(例: Er)によって決まっており、固有の値を持つ。表 3-3 は、Er イオンにおける 4f 軌道電子の準位間遷移の演算子の行列要素である。

表 3-3 Er イオンにおける各遷移の $|(S, L)J\rangle|U^{(t)}|(S', L')J'\rangle$ の行列要素[3-17]

Transition	U^2	U^4	U^6
$^4I_{13/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$	0.0195	0.1173	1.4316
$^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$	0.0331	0.1708	1.0864
$^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$	0.0282	0.0003	0.3953
$^4I_{9/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$	0.003	0.0674	0.1271
$^4I_{9/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$	0.0004	0.0106	0.7162
$^4I_{9/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$	0	0.1732	0.0099
$^4F_{9/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$	0.1279	0.059	0.0281
$^4F_{9/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$	0.0704	0.0112	1.2839
$^4F_{9/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$	0.0101	0.1533	0.00714
$^4F_{9/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$	0	0.5354	0.4619
$^4F_{7/2} \rightarrow ^4F_{9/2}$	0.0121	0.0342	0.0151
$^4F_{7/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$	0.0163	0.0954	0.4277
$^4F_{7/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$	0.0035	0.2648	0.1515
$^4F_{7/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$	0	0.3371	0.0001
$^4F_{7/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$	0	0.1468	0.6266

線強度 S を求めるには、強度パラメータ Ω_i を求める必要がある。その方法として、式(3.21)で表される実験から得られるデータを用いて計算した遷移強度 S_M と、既知である Er イオンの行列演算子を使用し、最小二乗法フィッティングによって、 Ω_2 、 Ω_4 、 Ω_6 を求めることができる。その時の実験値 S_M は、特定の吸収バンドにおける吸収スペクトルの積分値 $\int \alpha(\lambda)d\lambda$ 、吸収バンドにおける遷移の中心波長 λ_c 、Er イオンの密度 ρ 、 λ_c における媒質の屈折率 $n(\lambda_c)$ 、光の速度 c 、電気素量 e 、規定準位の全角運動量 J を用いて、式(3.21)で書き表せる。

$$S_M = \frac{3ch(2J+1)}{8\pi^3 e^2 \lambda_c \rho} \left[\frac{9n(\lambda_c)}{\{n(\lambda_c)^2 + 2\}^2} \right] \int_{\text{band}} \alpha(\lambda) d\lambda \quad (3.21)$$

また、状態 J から J' への遷移確率 $A(J \rightarrow J')$ は、強度パラメータ Ω_t を用いて表した線強度 S と式(3.22)の関係がある。

$$A(J \rightarrow J') = \frac{64\pi^4 e^2}{3h(2J+1)\lambda_c^3} \frac{n(n^2+2)^2}{9} S(J \rightarrow J') \quad (3.22)$$

そして、式(3.22)から得られる状態 J から J' への遷移確率 $A(J \rightarrow J')$ の逆数を計算することで、状態 J から J' への輻射寿命 τ_{rad} が得られる(式(3.23))。

$$\tau_{\text{rad}} = \frac{1}{A(J \rightarrow J')} \quad (3.23)$$

以上から得られた輻射寿命 τ_{rad} と $I(\lambda)/\int I(\lambda)d\lambda$ より誘導放出断面積が得られる。

上記の方法と先の節で測定した吸収スペクトルと蛍光スペクトルをもとに、5 at.% Er:YAP の波長 3.0 μm 帯と 1.6 μm 帯の誘導放出断面積を求めた。J-O 解析より、 $^4I_{13/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ と $^4I_{13/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ の輻射寿命は、9.59 ms と 2.70 ms が得られた。これらの値と F-L 関係式より、図 3-16(a)-(b)で示されるような波長 3.0 μm 帯と 1.6 μm 帯の誘導放出断面積が得られ、また、3.0 μm 帯の誘導放出断面積の結果を表 3-4 にまとめた。また、様々な代表的な Er 添加固体レーザーの $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 遷移の誘導放出断面積を表 3-5 にリスト化した。表 3-5 より、Er:YAP は $0.3-2.4 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ 、Er:YAG は $1.0-7.0 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ [3-18]、Er:Lu₂O₃ は $0.4-3.0 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ [3-19]、及び、Er:Y₂O₃ は $0.1-1.0 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ [3-20]、の誘導放出断面積が得られた。Er:YAP の誘導放出断面積は、上記の媒質に比べて大きい値であることが明らかになり、Er:YAP の $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ のレーザー遷移を用いることで、室温において非常に高効率なレーザー発振が期待できる。

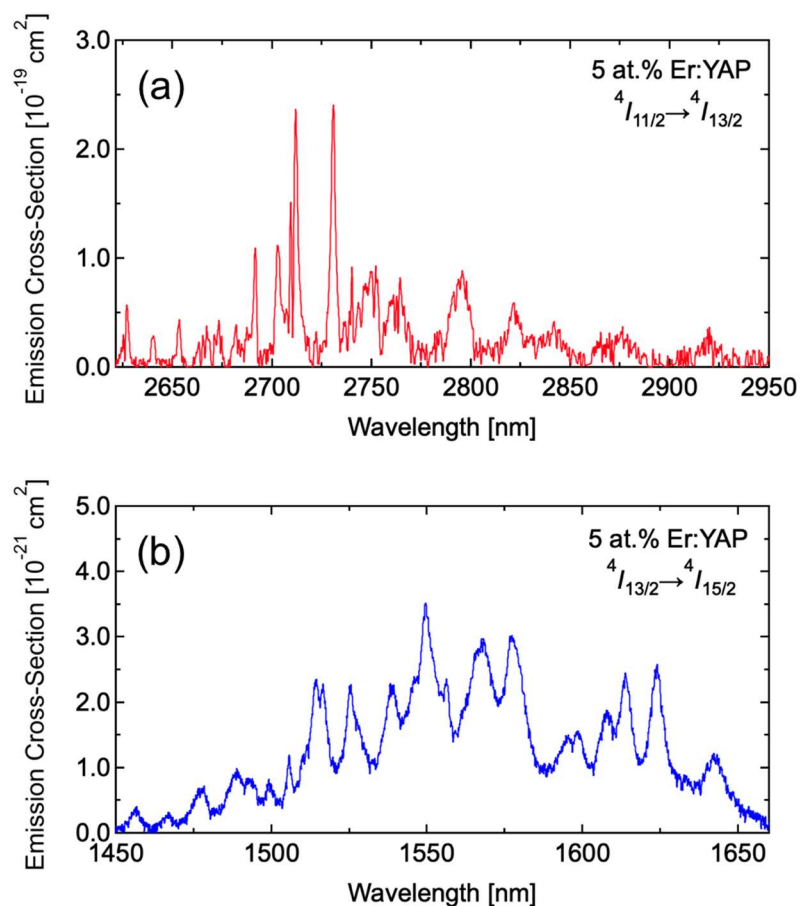


図 3-20 室温における Er:YAP の誘導放出断面積 (a)波長 3.0 μm ($^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 遷移に伴う発光)、(b)波長 1.6 μm ($^4I_{13/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ 遷移に伴う発光)

表 3-4 5 at.% Er:YAP の様々な波長における誘導放出断面積

	2712 nm	2131 nm	2796 nm	2920 nm
σ_{em} of $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ in Er:YAP [cm^2]	2.4×10^{-19}	2.4×10^{-19}	0.9×10^{-19}	0.3×10^{-19}

表 3-5 様々な Er 添加强体レーザーの $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 遷移の誘導放出断面積

	Er:YAP	Er:YAG [3-18]	Er:Lu ₂ O ₃ [3-19]	Er:Y ₂ O ₃ [3-20]
σ_{em} of $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ [cm^2]	$0.3 - 2.4 \times 10^{-19}$	$1.0 - 7.0 \times 10^{-20}$	$0.4 - 3.0 \times 10^{-20}$	$0.1 - 1.0 \times 10^{-19}$

3.4 Er:YAP を用いたレーザー発振実験

Er:YAP のレーザー出力特性を明らかにするべく、高出力・高効率発振が期待される Er:YAP を用いた室温における LD 励起連続波(CW)レーザー発振実験を行った。また、出力鏡の透過率の最適化、レーザー発振波長を測定した。

3.4.1 CW 発振実験セットアップ

図 3-21 は、CW レーザー発振実験体系である。励起光は、先に述べた波長 976 nm の LD を使用した。この励起光は、焦点距離 20 mm と 30 mm の 2 つの平凸レンズを用いて、結晶位置において集光されており、そのビーム直径は 165 μm である。利得媒質には 5 at.% Er:YAP 単結晶(Crytur Co., Ltd.)を使用し、サイズは、開口面 2 mm \times 5 mm、長さ 8 mm である。また、開口面は、AR コーティングが施されておらず、Er:YAP の結晶軸である b 軸に対して垂直の向きになっている。結晶は、反射鏡(Dichroic Mirror: DM)と出力鏡(Output Coupler: OC)の二枚の平面ミラーで構成された長さ 18 mm の共振器中に挿入されている。このときの DM は、波長 976 nm において高い透過率と波長 2.9 μm 帯において高い反射率を有したミラーとなっている。また、本実験において、4 種類の透過率(1%、2%、2.5%、および 5%)を持つ OC を使用し、OC の透過率(T_{OC})の最適化を行った。CW 発振実験の間、結晶は、銅で作製されたヒートシンクによってマウントされ、16 $^{\circ}\text{C}$ の水で冷却されている。出力鏡から取り出されたレーザー出力は、波長 2.5 μm -3.0 μm 帯バンドパスフィルター(FB2750-500, Thorlabs)を通過して、パワーメータ(3A-SH, OPHIR)によって測定した。また、スペクトル分解能 0.1 nm の光学スペクトラムアナライザ(OSA205C, Thorlabs)を用いてレーザー発振波長(λ_{output})を測定した。

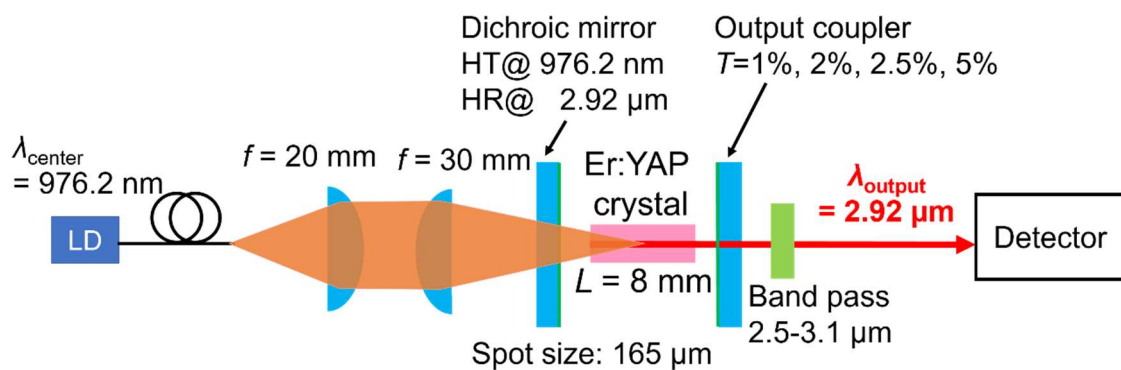


図 3-21 Er:YAP CW レーザー発振実験体系

3.4.2 入出力特性

図 3-22 は、OC 透過率を変えた時の Er:YAP CW レーザー入出力特性の実験結果である。ここで、LD の励起パワーのうち結晶に吸収されたパワーを吸収励起パワー(Absorbed Pump Power)と定義し、結晶を通過した前後の LD の出力パワーの差から求めた。図 3-22 より、各 T_{OC} において、レーザー出力は、励起パワーに対して、線形的に増加したことが分かる。ここで、 $T_{OC} = 2.5\%$ において、発振閾値 1.19 W、3.49 W 励起で最大出力 0.674 W、最高スロープ効率 31%が得られた。この時、Optical-Optical 効率(出力パワー/励起パワー)は、19%が得られた。一方で、 $T_{OC} = 5\%$ では、出力 0.35 W、スロープ効率 21%が得られた。

図 3-23 は、 $T_{OC} = 2.5\%$ における入力パワーを変えたときのレーザー発振波長(λ_{output})である。発振閾値付近である励起パワー1.19 W において、発振波長 2796 nm が得られた。次に励起パワー1.91 W において、2796 nm と 2920 nm の二波長発振となった。さらに、励起パワーが 1.98 W に増加すると、線幅(FWHM)0.8 nm を有する 2920 nm の単一波長発振が得られた。最終的に、最大励起パワー3.49 W においても、波長 2920 nm で発振することを確認した。この発振波長のレッドシフトは、他の Er 添加固体レーザーにおいても報告されており[3-9]、次のように説明できる。まず、レーザー上準位と下準位は、電場の影響によって図 3-24 のように複数のエネルギー準位に分裂しており、これをシュタルク分裂と言う。これらの個々の準位は、それぞれ別の準位として捉えることができる。低い励起パワーのとき、最も誘導放出断面積が大きい短波長側で発振する。しかし、励起パワーが上がった際、下準位寿命が長いため、下準位状態にある Er イオンの数が多くなり、反転分布が形成できなくなり、短波長でのレーザーが発振しなくなる。しかし、下準位内におけるより上部のシュタルク準位をレーザー下準位とした場合、反転分布が形成されているため、このエネルギー差に対応したより長波長のレーザーが発振するようになる。

励起光からレーザー光への変化効率の限界値を表す量子欠損効率(η_s)は、励起波長に対するレーザー発振波長の比で計算可能である。この時、 $\eta_s = 976 \text{ nm}/2920 \text{ nm} = 33\%$ という値が計算でき、実験より得られたスロープ効率はこの値に対して 94%であり、本レーザーは高効率な発振をしていることが分かった。

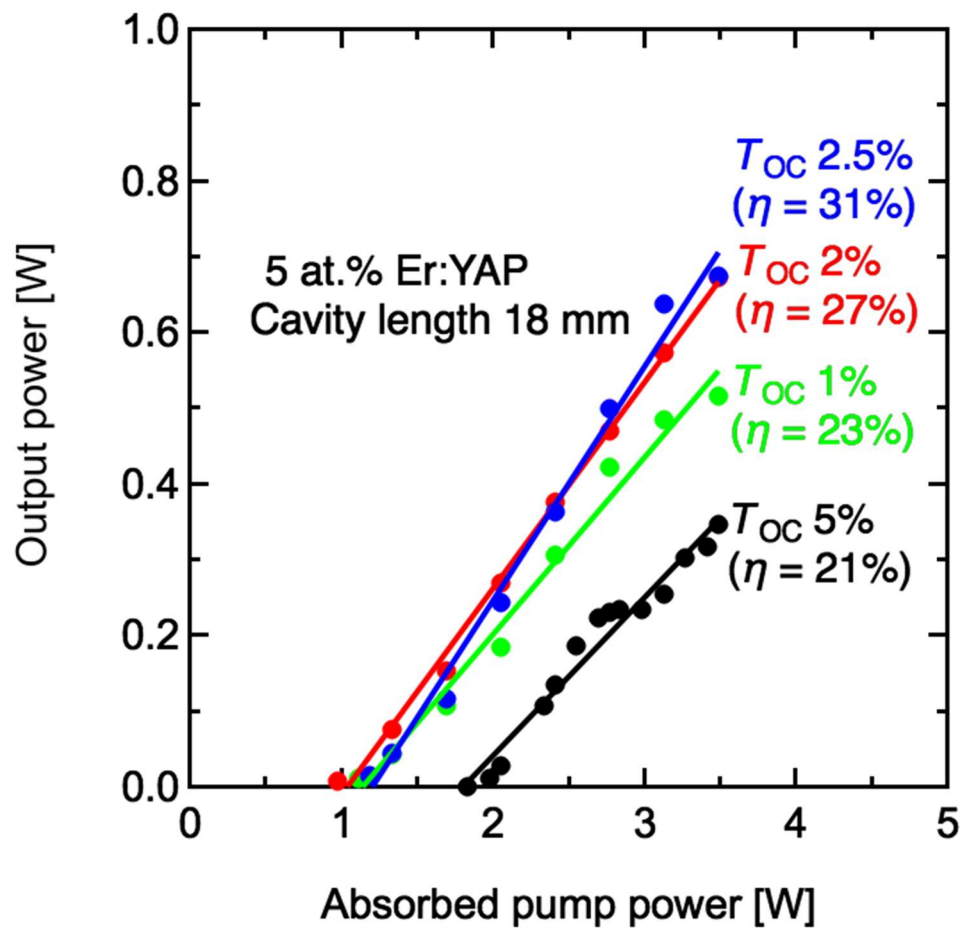


図 3-22 $T_{OC} = 1\%$ 、 2% 、 2.5% 、及び 5% における Er:YAP CW レーザーの入出力特性

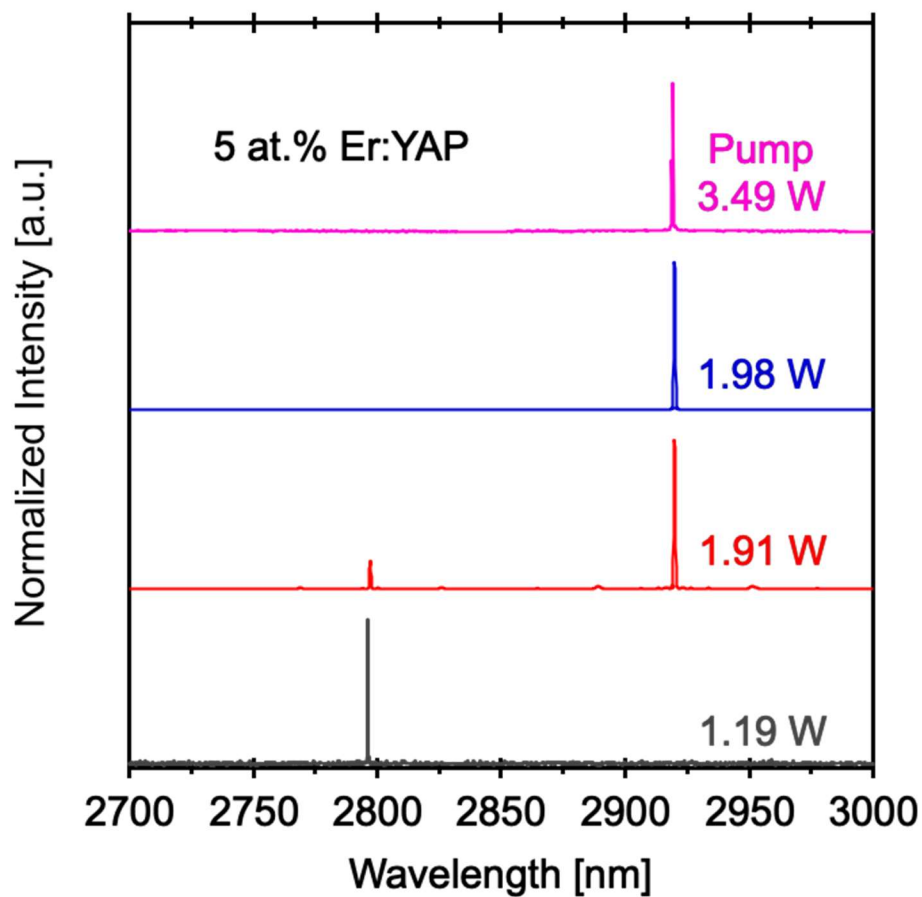


図 3-23 $T_{OC} = 2.5\%$ におけるレーザー発振波長の励起パワー依存性

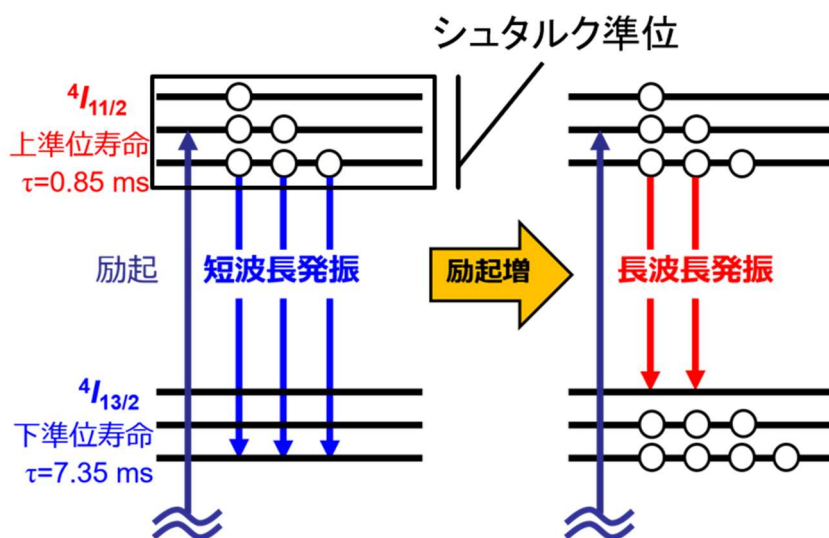


図 3-24 励起パワーの増加に伴う発振波長シフトの概念図

先行研究ではスロープ効率 12.1%の室温での LD 励起 Er:YAP CW 発振の報告があるが [3-21]、本研究に比べて低効率である。本レーザーが高効率発振した原因として、Energy transfer upconversion (ETU)が効率的に起こっていることが考えられる。ETU は、隣接した Er イオン間でのエネルギー移動による励起過程である [3-22][3-23]。その過程を図 3-21 に示す。図 3-21 で示す様に、波長 976nm で励起し、3.0 μm で発振（もしくは自然放出、無輻射緩和）すると、Er イオンは下準位状態に遷移する。下準位状態にある Er イオンの数が増加すると、2 つのイオン間でのエネルギー移動が効率的に起こり、一方のイオンは、基底状態に、もう一方のイオンは、さらに高いエネルギー状態に遷移する。この過程によって、レーザー下準位状態であるイオンの数が減少し、より大きな反転分布が形成される。さらに、この図 3-25 の右側の準位図のように高いエネルギー状態に遷移したイオンは、フォノン緩和によって素早くレーザー上準位の状態に遷移し、エネルギーが再びレーザー発振にリサイクルされる。また、ETU の発生確率は、下準位状態にある Er イオンの数に依存するため、その数を増やすことによって高い確率で発生するようになる。本研究では、ビーム径を小さくしたことで励起強度が、先行研究に比べ高くなっており、これによって励起効率が増加し、下準位状態の Er イオンの数が増え、ETU の発生確率がより高くなったと考えられる。以上の好循環によって、本レーザーは、先行研究に比べて非常に高い効率を実現したと考えられる。

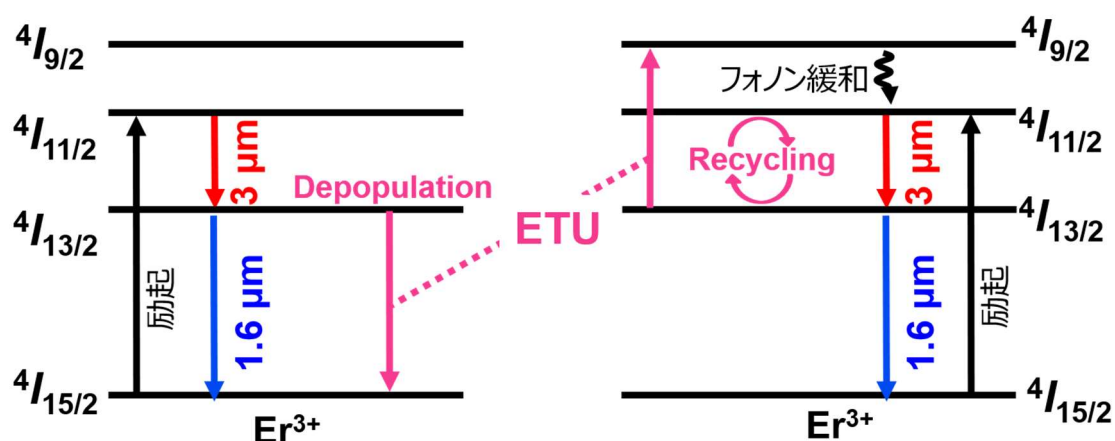


図 3-25 隣接する Er イオン間での ETU による下準位のデポピュレーションとエネルギーリサイクリングプロセス。

3.4.3 出力鏡(OC)の透過率最適化

レーザー共振器において、光の増幅には、光を閉じ込める必要がある。OC の透過率を低くした場合、光はよく閉じ込められるが、逆にレーザー光を共振器外に取り出すことが難しくなる。一方で、光を取り出すために、高い透過率の OC を使用した場合、光は効率よく閉じ込められず、大きな増幅が起こらないため、取り出されるレーザーのパワーが小さくなる。以上から、与えられた励起パワーに対して最大のレーザー出力を得るために、最適な透過率を求めることが重要である。ここで、レーザー出力(P_{out})と T_{OC} の関係は、次式のように書き表せる[3-24]。

$$P_{\text{out}} = A \left(\frac{T_{\text{OC}}}{2 - T_{\text{OC}}} \right) I_s \left(\frac{2g_0 l}{\delta - \ln(1 - T_{\text{OC}})} - 1 \right) \quad (3.24)$$

A は LD のビーム面積(=0.000214 cm²)、 I_s は励起ビームの飽和密度、 g_0 は不飽和利得係数、 l は媒質の長さ、および δ は共振器内損失である。式(3.24)を $\partial P_{\text{out}} / \partial T_{\text{OC}} = 0$ と計算することで、最適な OC の透過率(T_{opt})が得られ、式(3.24)は、以下のような式になる。

$$-\ln(1 - T_{\text{opt}}) = \left(\sqrt{2g_0 l / \delta} - 1 \right) \delta \quad (3.25)$$

式(3.25)より、 T_{opt} を計算するためには、 g_0 と δ を決める必要がある。そこで、各 OC の透過率に対する 3.49 W 励起での出力との関係をプロットし、式(3.24)でフィッティングすることで g_0 と δ の値を求めた。図 3-26 は、実験から得られた各 T_{OC} に対する励起パワー 3.5 W における出力パワーの関係である。フィッティングの結果より、 g_0 、 δ 、及び I_s は、それぞれ 0.05887 cm⁻¹、0.02707、および 310 kW/cm² が得られた。また、フィッティングのパラメータ g_0 と δ の誤差は、 ± 0.000313 cm⁻¹と ± 0.000646 であった。この時の g_0 と δ の正確度は、それぞれ、0.53%と 2.34%と計算でき、両パラメータは高い正確度を持つ値である。以上から、得られた g_0 と δ を式(3.25)に代入すると、 $T_{\text{opt}} = 2.3\%$ が得られた。

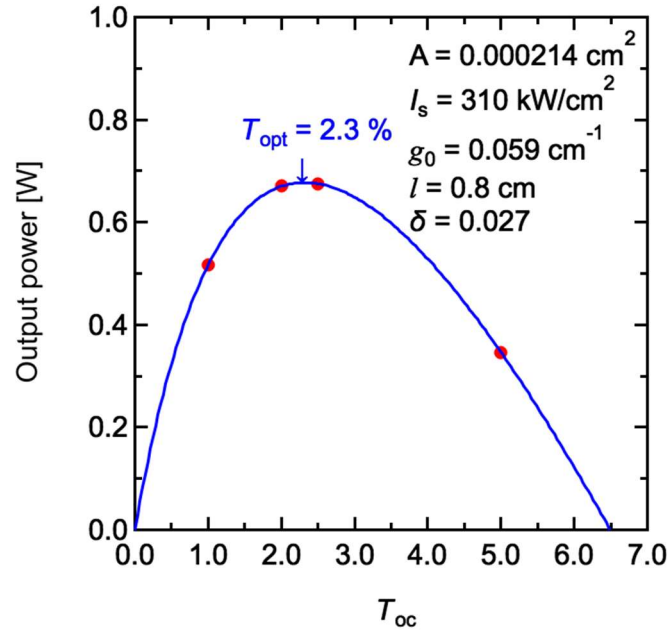


図 3-26 各 T_{OC} に対する励起パワー3.5 W における出力パワーとの関係。

g_0 と誘導放出断面積 σ_{em} は、次式のような関係がある [3-24]。

$$g_0 = \sigma_{em} \tau_f \eta_Q \eta_S \eta_B P_{abs} / h\nu_L V \quad (3.26)$$

ここで、 τ_f 、 η_Q 、 η_B 、 P_{abs} 、 $h\nu_L$ 、および V は、それぞれ、 $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 遷移における蛍光寿命、 $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 遷移における遷移確率である量子効率、励起光と共振器内のレーザー光の領域の重なりを度表すモードマッチング効率、励起パワー、レーザー光の光子エネルギー、および結晶内を励起光が通過した際の領域であり、これらのパラメータを表 3-6 にまとめた。これらの値を式(3.26)に代入し、波長 3.0 μm 帯の σ_{em} の値は、 $5.4 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ であり、測定より得られた波長 2.92 μm での値 $3.0 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ と同じオーダーが得られた。

表 3-6 g_0 より σ_{em} を計算するための各パラメータ

不飽和利得係数(g_0)	0.059 [cm^{-1}]
蛍光寿命(τ_f)	0.85 [ms]
量子効率(η_Q)	31 [%]
量子欠損効率(η_S)	33 [%]
モードマッチング効率(η_B)	33 [%]
励起パワー (P_{abs})	3.49 [W]
レーザー光の光子エネルギー ($h\nu_L$)	6.8×10^{-20} [J]
Region of the pump beam that passes through the medium (V)	0.0051 [cm^3]

3.4.4 LD の高励起パワー実験

レーザーの高出力化を目的に、LD のパワーを高くし、高出力化を図った。先の CW 発振実験に比べて、励起パワーの値を 3.49 W から 5.64 W へと増加し、入出力特性を取得した。また、結晶ホルダーの改善によって、共振器長を 18 mm から 12 mm へと短くし、共振器内損失の低減も試みた。図 3-27 が、実験結果である。発振閾値 0.68 W が得られ、先の発振実験の 1.19 W の閾値から 0.51 W 低下した。これは、共振器長を短くしたことによって、共振器内損失が減少したことによるものと考えられる。また、スロープ効率 31%、5.64 W 励起において、最大出力 1.44 W が得られ、測定用光源として 1 W を超える出力の波長 3.0 μm 光源の開発に成功した。ここで、様々な媒質の Er イオンの添加濃度に対する発振効率を図 3-28 で比較した。図 3-28 において、赤い星が我々の結果を表し、他の Er 添加固体レーザーに比べて高効率に発振しており、Er:YAP は、Er 添加固体媒質として有望な媒質であることが実証された。

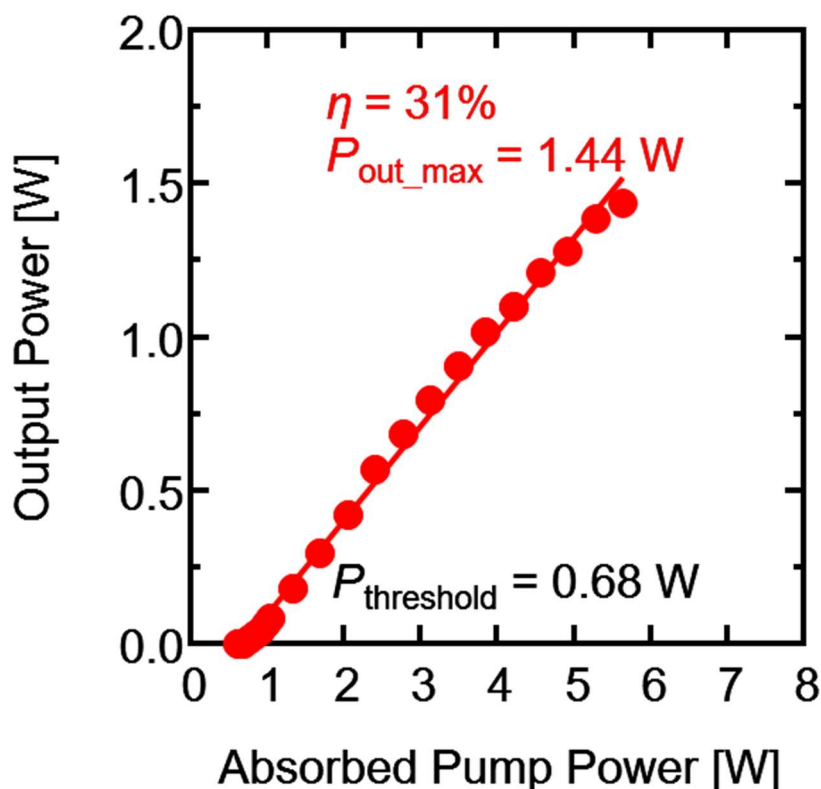


図 3-27 共振器長を短くし、励起パワーを 3.49 W から 5.64 W へ上げた際の Er:YAP CW レーザー入出力特性

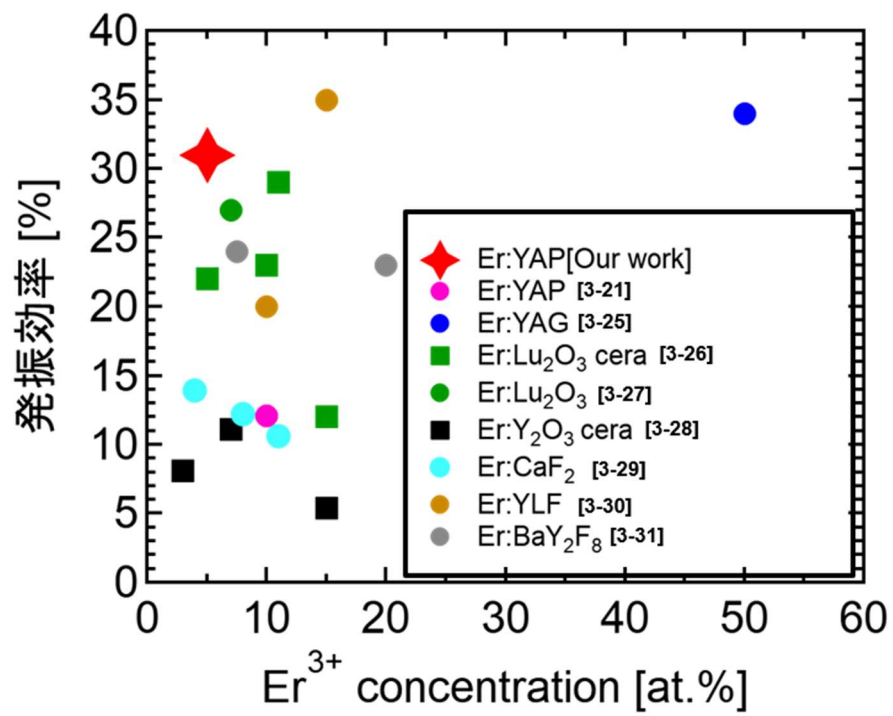


図 3-28 様々な Er 添加固体レーザーの Er 添加濃度と発振効率の比較

3.4.5 レーザービーム品質

レーザー光の伝搬する方向を z 軸とすると、レーザー光の半径 $W(z)$ は次式で書き表せる [3-32]。

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + \left(\frac{M^2 \lambda (z - z_0)}{\pi W_0^2} \right)^2} \quad (3.27)$$

ここで、 W_0 、 λ 、 z_0 、及び M は、高次モードを含んだレーザー光の最小半径、レーザー光の波長、最小半径位置、及び、レーザー横モードのビーム品質を示す量である。また、 $z = 0$ は、OC の位置である。図 3-29 は、Er:YAP CW レーザーのビーム品質の測定結果である。 $M_x^2 = M_y^2 = 1.9$ が実験より得られた。

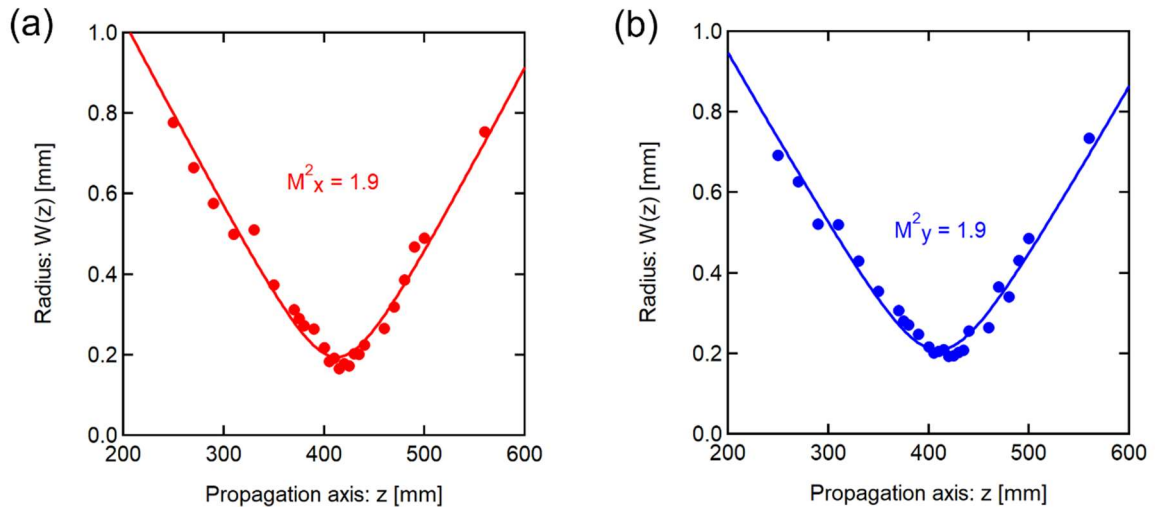


図 3-29 Er:YAP CW レーザーのビーム品質

3.4.6 レーザー出力時間安定性

レーザー計測において、レーザーの出力安定性は重要である。ある定格の出力で一定の濃度のサンプルを測定できるレーザーシステムがあった場合、レーザー光源の出力が大きく変化した際に測定可能な濃度領域から逸脱し、測定できなくなることが考えられる。精度よく測定するためには、レーザー光源に高い出力安定性が要求される。CW レーザーの出力安定性を測定するため、図 3-30 は、レーザー出力の時間変動を測定した実験体系であり、レーザー出力を 1 時間(60 分)測定した。使用したパワーメータの応答時間は、1.8 秒である。

図 3-31 は、測定したレーザー出力の時間変化の測定結果である。レーザーの出力の平均値 \bar{I} は、以下の式(3.28)のように、各時刻で測定した出力 I_n を合計し、それをサンプル数で割った値になる。

$$\bar{I} = \frac{I_1 + I_2 + I_3 + \dots + I_n}{n} \quad (3.28)$$

また、平均値からの変動は次式のように定義した。

$$I_{\text{rms}} = \sqrt{\frac{(\bar{I} - I_1)^2 + (\bar{I} - I_2)^2 + (\bar{I} - I_3)^2 + \dots + (\bar{I} - I_n)^2}{n}} \quad (3.29)$$

以上から、出力の平均値は 1.42 W、揺動は 3%であることが分かり、本レーザーは、出力変動が 30 mW と高い出力安定性を有していることがわかった。

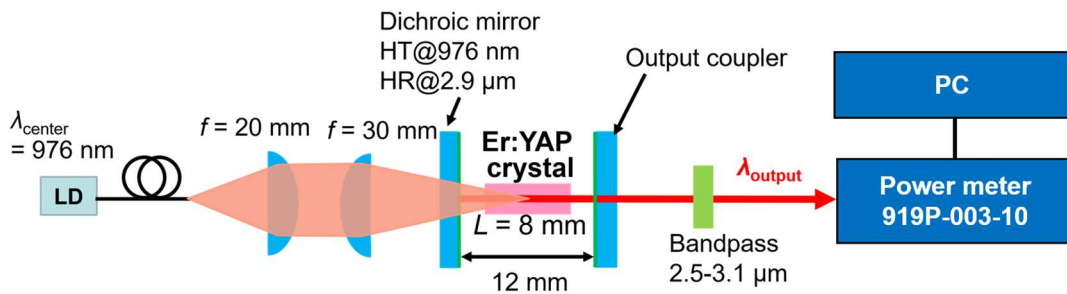


図 3-30 1 時間のレーザー出力時間変化測定実験体系

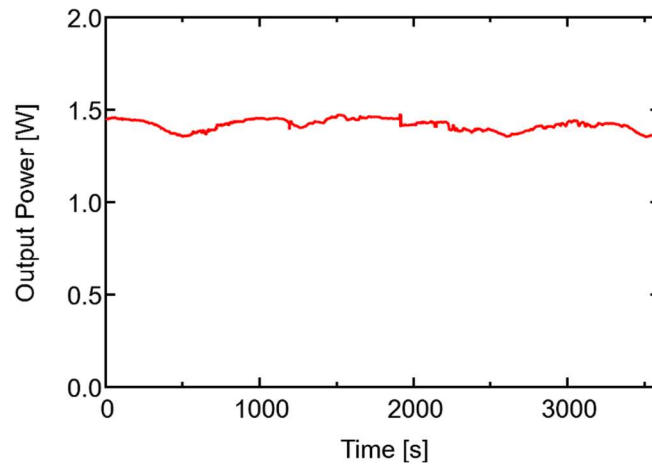


図 3-31 1 時間測定した Er:YAP CW レーザーの出力時間変化: 平均値は 1.42 W、出力変動は 3%。

3.5 まとめ

水の水素同位体を中赤外レーザーで計測するためには、高出力な波長 3.0 μm レーザー光源が必要である。波長 3.0 μm レーザー光源として、現在、世界中で様々な媒質を用いて高効率・高出力発振を目指して開発が進められている Er 添加固体レーザーが有望である。本研究では、高効率・高出力発振が可能な媒質として、Er:YAP 結晶に注目した。本結晶は、他の媒質と比べ、比較的高い熱伝導率を有し、優れた機械特性、及び低いフォノンエネルギーを有している。また、レーザー発振のし易さの指標である誘導放出断面積を測定したところ、他の媒質に比べて波長 3.0 μm 帯の誘導放出断面積が大きいことが明らかになった。すなわち、Er:YAP は、他の媒質に比べて波長 3.0 μm レーザー光を発振させやすい媒質である。以上の物性値の比較、及び測定した誘導放出断面積から、Er:YAP を用いて高効率・高出力レーザーの開発が期待できる。

Er:YAP を用いて、室温において波長 976 nm の LD で光励起し、CW レーザー入出力特性を評価したところ、最大平均出力 1.44 W、スロープ効率 31%、及び発振波長 2.92 μm が得られた。これは、室温における LD 励起 3.0 μm Er:YAP CW レーザーとして、世界で初めて高効率・高出力発振した結果であり、先行研究のスロープ効率 12.1% を大きく上回った。高効率発振することができた理由として、先行研究に比べて、励起強度を高くすることで、レーザー下準位の占有確率を高くし、隣接する Er イオン間での ETU 現象を起こし、下準位を枯渇とエネルギーのリサイクリングによって高効率に発振できたと考えられる。

また、レーザービーム品質である $M_x^2 = M_y^2 = 1.9$ と一時間にわたるレーザー出力の時間安定性 3% を測定し、比較的に良好なビーム品質と高い出力安定性を有しているレーザーを開発することができた。

以上から、開発した高出力・高効率な Er:YAP CW レーザーは、水の水素同位体計測に応用可能な性能を達成し、高い出力安定性を持つ光源であることが明らかになり、高精度な水の水素同位体計測が期待できる結果が得られた。

参考文献(第 3 章)

- [3-1] 竹島徳幸、桑子彰、兼本茂、東芝レビュー、**55**、42 (2000).
- [3-2] 遠藤英樹、JJSLSM、**27**、289 (2007).
- [3-3] 片山聖二、生産と技術、**67**、18 (2015).
- [3-4] 近藤公伯、J. Plasma Fusion Res.、**83**、619 (2007).
- [3-5] 山川考一、光学、**41**、596 (2012).
- [3-6] G. M. Hale and M. R. Querry, Appl. Opt., **12**, 555, (1973).
- [3-7] 栗津邦男、レーザー研究、**28**、291 (2000).
- [3-8] M G Brik, I Sildos, M Berkowski, and A Suchocki, J. Phys.: Condens. Matter, **21**, 025404 (2009).
- [3-9] L. Wang, H. Huang, D. Shen, J. Zhang, H. Chen, Y. Wang, X. Liu, and D. Tang, Opt. Express, **22**, 19495 (2014).
- [3-10] C. Krankel, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **21**, 1602013 (2015).
- [3-11] M. Fibrich, H. Jelínková, J. Šulc, K. Nejezchleb, and V. Škoda, Laser Phys. Lett. **8**, 559 (2011).
- [3-12] S. Chénais, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, A. Brenier, G. Boulon, Opt. Mater., **22**, 99 (2003).
- [3-13] R. L. Aggarwal, D. J. Ripin, J. R. Ochoa, and T. Y. Fan, J. Appl. Phys. **98**, 103514 (2005).
- [3-14] Y. Jia, C. E. Rüter, S. Akhmadaliev, S. Zhou, F. Chen, and D. Kip, Opt. Mater. Express, **3**, 433 (2013).
- [3-15] D. K. Sardar, S. Chandrasekharan, K. L. Nash, and J. B. Gruber, J. Appl. Phys. **104**, 23102 (2008).
- [3-16] B. J. Dinerman and P. F. Moulton, Opt. Lett. **19**, 1143 (1994).
- [3-17] A. A. Kaminski, V. S. Mironov, A. Kornienk, S. N. Bacaev, G. Boulon, A. Brenier, and B. D Bartolo, physica status solidi (a), **151**, 231 (1995).
- [3-18] L. K. Smith, S. A. Payne, and W. F. Krupke, OSA Proc. Adv. Solid State Lasers Conf. **14**, 171 (1994).
- [3-19] H. Uehara, S. Tokita, J. Kawanaka, D. Konishi, M. Murakami, S. Shimizu, and R. Yasuhara, Opt. Express **26**, 3497 (2018).
- [3-20] T. Sanamyan, J. Simmons, and M. Dubinskii, Laser Phys. Lett. **7**, 569 (2010).
- [3-21] C. Quan, D. Sun, J. Luo, H. Zhang, Z. Fang, X. Zhao, L. Hu, M. Cheng, Q. Zhang, and S. Yin, Opt. Express **26**, 28421 (2018).
- [3-22] X. Zhu, and R. Jain, Opt. Lett., **32**, 2381 (2007).
- [3-23] T. Wei, F. Chen, Y. Tian, S. Xu, J Quant Spectrosc Radiat Transf, **133**, 663 (2014).

- [3-24] W. Koechner, Solid-State Laser Engineering (Springer, Berlin, 2006) 6th ed., p. 119.
- [3-25] D. Chen, C. L. Fincher, T. S. Rose, F. L. Vernon, and R. A. Fields, **24**, 385 (1999).
- [3-26] H. Uehara, R. Yasuhara, S. Tokita, J. Kawanaka, M. Murakami, and S. Shimizu, Opt. Express **25**, 18677 (2017).
- [3-27] T. Li, K. Beil, C. Kränkel, and G. Huber, Opt. Lett., **37**, 2568 (2012).
- [3-28] L. Wang, H. Huang, D. Shen, J. Zhang, H. Chen, D. Tang, Opt. Mater., **71**, 70 (2017).
- [3-29] W. Ma, L. Su, X. Xu, J. Wang, D. Jiang, L. Zheng, X. Fan, C. Li, J. Liu, and J. Xu, Opt. Mater. Express, **6**, 252805 (2016).
- [3-30] T. Jensen, A. Dening, and G. Huber, Opt. Lett., **21**, 585 (1996).
- [3-31] M. Pollnau, W. Lüthy, H. P. Weber, T. Jensen, G. Huber, A. Cassanho, H. P. Jenssen, and R. A. McFarlane, Opt. Lett., **21**, 48 (1996).
- [3-32] 平等 拓範、「レーザービーム品質測定の基礎」、レーザー研究、**26**、723 (1998).

第 4 章 Er:YAP レーザーの高出力化

4.1 パルス発振による高出力化

4.1.1 高出力化の目的

測定対象である水試料の大半は軽水(H_2O)分子であり、波長 $3.0\text{ }\mu\text{m}$ の光を強く吸収する。それ以外にも、重水(HDO)やトリチウム水(HTO)が微量含まれており、これらの結合音遷移による吸収やバックグラウンド吸収がある。これにより、透過光がさらに減少し、SN 比が低下することで、データの信頼性が低くなる。高い SN 比を得る方法の一つとして、以下の測定器の SN 比(S/N)の式[4-1]より、レーザーの高出力化が挙げられる。

$$S/N = \frac{P \cdot A^{\frac{1}{2}} \cdot D^*}{\Delta f^{\frac{1}{2}}} \quad (4.1)$$

ここで、 P 、 A 、 D^* 、及び Δf は、入射エネルギー [W/cm^2]、検出器の受光面 [cm^2]、比検出能力 [$\text{cm} \cdot \text{Hz}^{1/2}/\text{W}$]、及び雑音帯域幅 [Hz]を表す。上式から、 P を大きくする、すなわちレーザーの出力を上げることによって、 S/N が向上、すなわち計測感度が向上する。前述したように固体レーザーの CW 発振では、数 W の出力が得られるが、Q スイッチングなどの手法でパルス発振にすることで、高ピーク化による数十 W もの出力が得られるようになる。また、パルスレーザーを高繰り返し発振することで、計測時間の短縮化、統計精度の向上、及び高時間分解能が可能になる。以上のことから、高感度計測のためのレーザーの高ピーク出力化が必要であり、本研究では Er:YAP パルスレーザーの開発を行った。

4.1.2 高強度の光による吸収の飽和に対する検討

高強度の光で測定する際に、吸収の飽和が懸念される。 H_2O と HDO 分子の飽和吸収が起こるビーム強度 [W/cm^2]は、波長 $2.94\text{ }\mu\text{m}$ においてそれぞれ、 $85\text{ MW}/\text{cm}^2$ と $100\text{ GW}/\text{cm}^2$ であると先行研究で報告されている[4-2][4-3]。一方で、波長 $2.92\text{ }\mu\text{m}$ 、直径 1 mm の Er:YAP レーザーを仮定した場合、 1 W 入力と数十 W 入力でのビーム強度は、それぞれ、 $130\text{ W}/\text{cm}^2$ と数 kW/cm^2 と計算できる。以上から、想定しているレーザーのビーム強度は、 H_2O と HDO の可飽和吸収が起こるビーム強度に比べて、十分に小さいため、飽和の懸念が無く、パルスレーザーによる信頼性の高い計測が可能である。

4.1.3 Q スイッチングによるパルス発振

固体レーザーにおけるパルス発振の方法として、共振器の損失の程度を表す Q 値（光閉じ込め効率）を周期的に変調し、強力なパルスを周期的に発振させる Q スイッチングがある。Q 値は、共振器内に蓄えられたエネルギーと単位時間当たりの共振器内のエネルギー損失の比で書き表すことができ、以下の式(4.2)で書き表せる。Q 値の変化は、共振器内の損失の変化に相当し、共振器内の損失が大きいと Q 値は低下し、損失が小さいと Q 値は高くなる[4-4]。

$$Q = \frac{\text{共振器に蓄えられたエネルギー}}{\text{単位時間当たりの共振器内の損失エネルギー}} \quad (4.2)$$

図 4-1 は、Q スイッチ発振方法における共振器の構成を表しており、Q スイッチ発振において、共振器内の損失を変調するために、Q スイッチ素子が共振器内に挿入される。この発振方法では、まず初めに、挿入した Q スイッチによって共振器の損失を大きくする。その間、レーザーは発振せず、励起エネルギーは結晶に反転分布として蓄積される。その後、ある程度のエネルギーが結晶に蓄積されたら、損失を急激に変化させ、発振可能な状態にすることで、蓄積されたエネルギーを一気にパルスとして放出する。そして、再び、共振器損失を大きくする。以上のプロセスが繰り返し行われ、連続してパルスが発生する。このような方法によって、図 4-3 のように、エネルギーを短時間に集中することが可能になり、CW 発振に比べて非常に高いピークパワーが得られ、高出力化が可能になる。

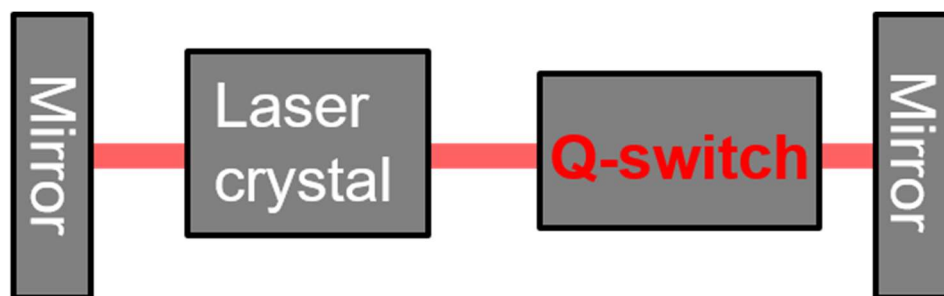


図 4-1: Q スイッチ発振方法における共振器の構成

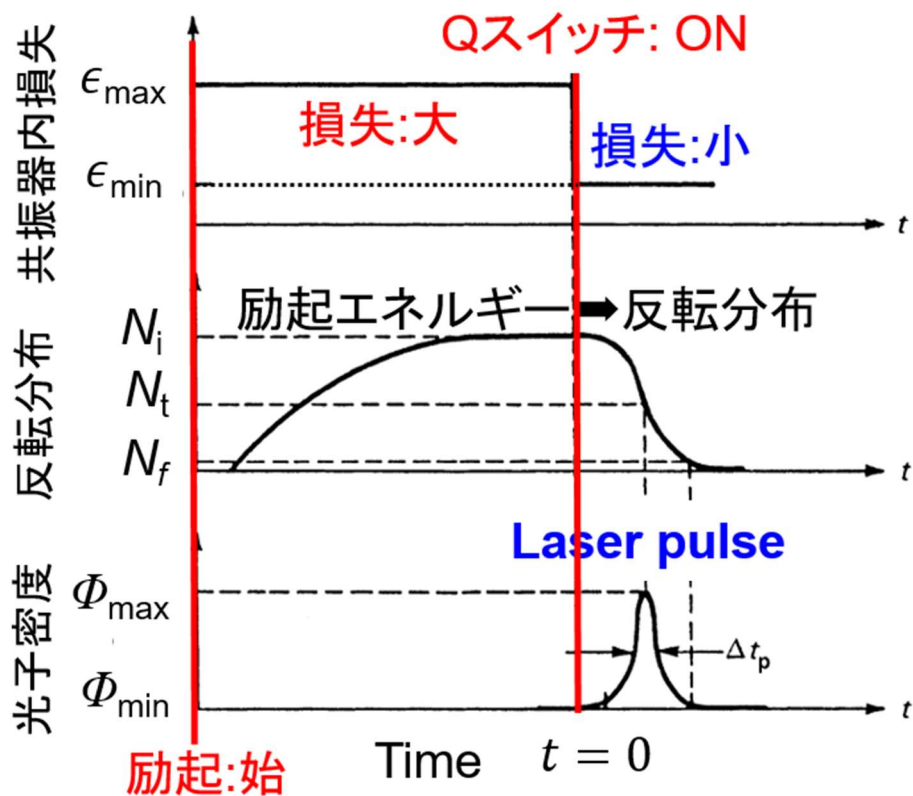


図 4-2 Q スイッチ発振における共振器内損失、反転分布、及び共振器内光子密度の時間変化

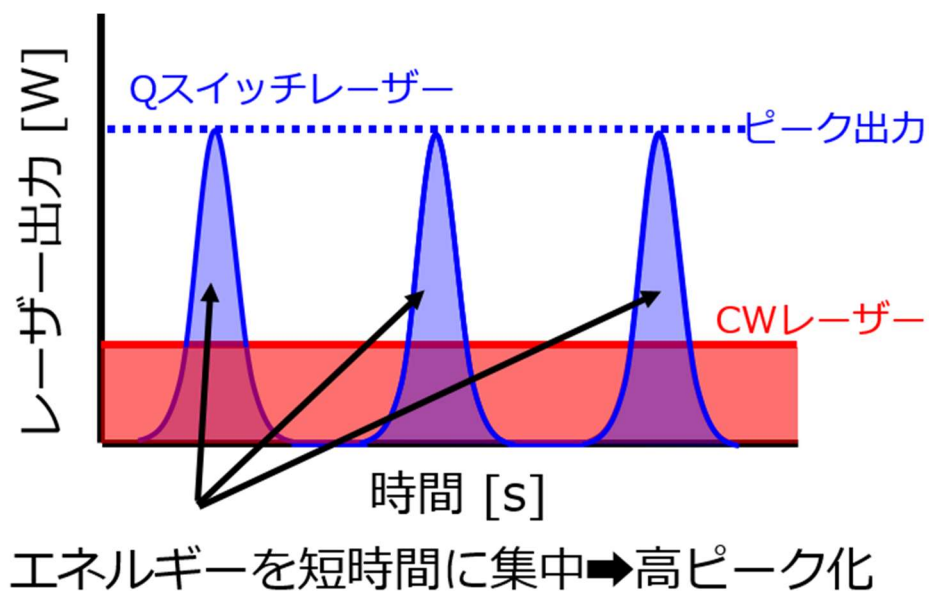


図 4-3 CW 発振と Q スイッチ発振のエネルギー出力比較の概念図

4.2 グラフェンを用いた受動 Q スイッチ発振

4.2.1 受動 Q スイッチング

Q スイッチ素子として、共振器内の光の強度によって吸収特性が変化する可飽和吸収体 (SA: Saturable absorber) がある[4-5]。図 4-4 は、SA の飽和フルエンスに対する非線形透過性を表しており、SA は、弱い光の強度を照射した場合、吸収体として働き、強い光の強度を照射すると透明体として働く物質である。この SA を共振器内に挿入することで、外部からの変調を加えずに、受動的に Q スイッチ発振が起こるため、このような手法を受動 Q スイッチングという。励起パワーが低い時、共振器内の光強度も低いため、Q スイッチ位置におけるフルエンス(E)が低く、SA の透過率は低く吸収体であることで、共振器内の損失が高い(Q 値が低い)状態にある。励起パワーを上げていくと、フルエンスが上昇し、SA の透過率も徐々に増加する。ここで一般的に SA の透過率変化が最大変化量の 1/2 になるフルエンスが飽和フルエンス(E_s)と定義される。さらに励起パワーが増加すると、SA の透過率も増加し、共振器内を光が往復し、誘導放出が起こることで、強力なパルスが発振する。発振後、共振器内の光強度が低下するため、Q スイッチ位置でのフルエンスも低下し、再び吸収体として機能し、Q 値を低く保つことになる。このようにして、吸収体と透明体の間を行き来することで、パルスが繰り返し発振される。受動 Q スイッチ発振は、以上のように、外部のモジュレータによる Q 値の切り替えを必要とせず、SA を共振器内に挿入するシンプルな構成から、共振器をコンパクトに設計できる。また、高い励起パワーによって、より高繰返しなパルスレーザー発振が可能である。以上より、SA を用いた受動 Q スイッチ発振を採用することによって、コンパクトで高繰返しな高出力パルスレーザーの作製が可能になる。

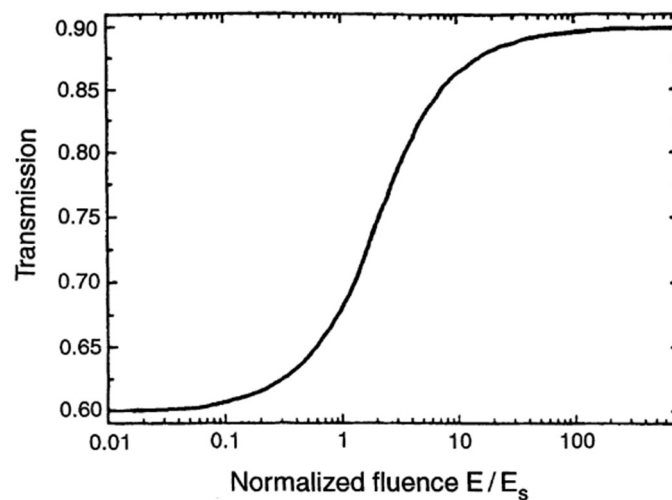


図 4-4 可飽和吸収体の飽和フルエンスに対する非線形透過性[4-5]

4.2.2 Q スイッチング素子としてのグラフェン可飽和吸収体

受動 Q スイッチの可飽和吸収体として、優れた特性を有しているグラフェンが有望である。図 4-5(a)は、グラフェンの六角形格子構造を表す。図 4-5(a)で示されるグラフェンは、炭素原子が sp^2 結合によって結合しており、六角格子構造を取っている二次元平面の物質である。グラフェンの炭素原子の電子軌道は、グラフェン平面上の σ 軌道と平面に対して垂直方向にある π 電子である(図 4-5(a))。このうち、 π 電子は、図 4-5(b)の様なコーン状のバンド構造を持ち、ディラックポイントである原点において価電子帯と伝導帯が接していることから、エネルギー(E)は、波数(k)に対して線形な分散関係 $E = \hbar v_F |k|$ を有している[4-7]。すなわち、グラフェンの光吸収は、波長に対して依存性が無いことを表しており、中赤外領域においても可飽和吸収体として使用可能である。また、このバンド間における共鳴吸収率は、単層のグラフェンにおいて 2.3%であることが知られている[4-8]。

グラフェンの可飽和吸収が起こる理由は、このバンド構造に起因している。図 4-6(a)で示すように、グラフェンに光子エネルギー $h\nu$ の光が照射されると、価電子が光励起され、そのエネルギーに対応したエネルギー準位に電子が価電子帯から伝導帯に遷移する。その際、価電子帯にはホールが発生し、さらに励起されると、図 4-6(b)のように、ディラックポイントから $h\nu/2$ 以内の価電子帯と伝導帯は、キャリアで満たされ、光を吸収できなくなり、飽和する。この時、吸収できなくなった光は、グラフェンを透過し、グラフェンは透明体として働く。光子エネルギーが小さいほど飽和強度が低くなるため、レーザーでは比較的に長波長な中赤外域での可飽和吸収体利用に特に適している。励起された価電子は、熱化などのバンド内緩和によってホールと再結合し、再び光を吸収することが可能になる。そのときの飽和回復時間は、サブピコ秒($1 < ps$)と非常に高速であるため、グラフェンは、光の共振器周囲時間よりも速い回復が求められるモード同期発振用の可飽和吸収体としても有望である。

グラフェンの作製が非常に簡単であることも特徴の一つである。グラファイトにテープを貼り付け、剥がし、それをサファイア基板などに転写することで、機械的にグラフェンを作製することが可能である(スコッチテープ法)。この方法では、mm 単位のグラフェンが作製可能であるが、これより大面積のものは、化学蒸着法(CVD 法)によって基板上にグラフェンを成膜することで作製可能になる。

また、グラフェンのダメージ閾値は、 300 GW/cm^2 [4-9]と高く、高い励起パワーで発振を試みても破損の心配が必要ないため、高出力化が期待できる。

以上から高出力・高繰返しな受動 Q スイッチパルスレーザーを開発する上で、グラフェンは中赤外領域の可飽和吸収体として有望である。

今日まで、グラフェンを用いた受動 Q スイッチ発振がいくつも報告されているが、Er:YAP を用いたグラフェン受動 Q スイッチ発振は実証されたことがない。本研究では、CW レーザーに比べてより高いピーク出力を得るため、グラフェン可飽和吸収体を用いた受動 Q スイッチ Er:YAP パルスレーザー発振を試みた。

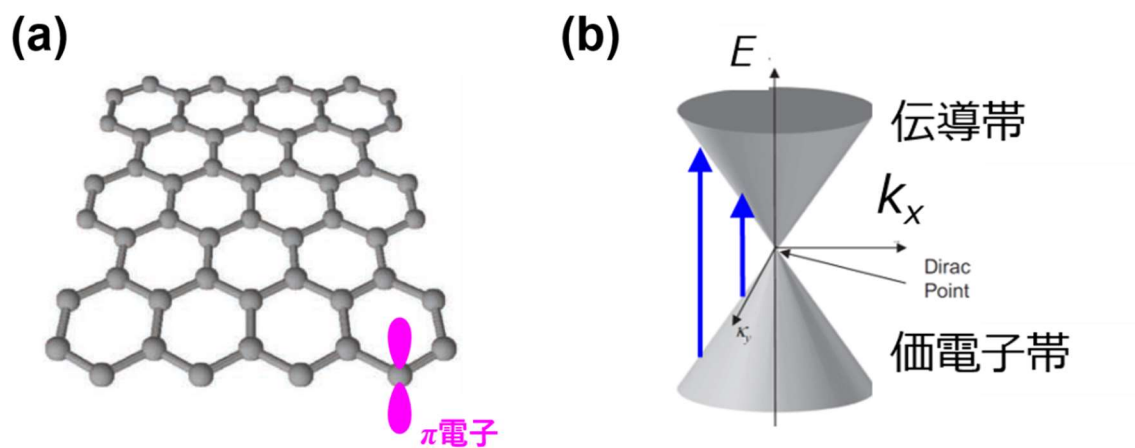


図 4-5 (a) グラフェンの六角形格子構造とグラフェンに垂直な π 軌道を持つ π 電子[4-6]。
(b) グラフェンの π 電子のバンド構造[4-7]。

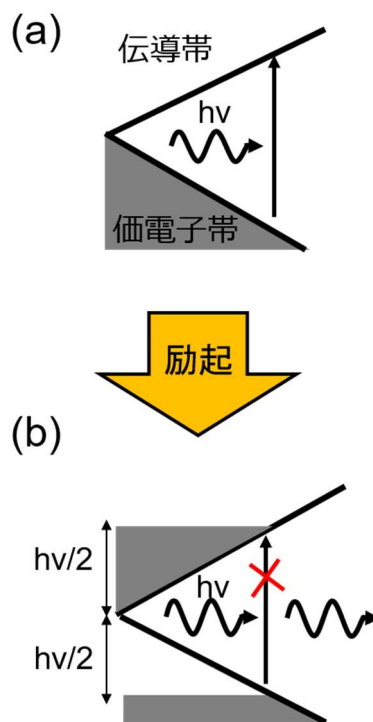


図 4-6 グラフェンの可飽和吸収過程。(a) グラフェンにおける光の吸収過程、(b) グラフェンにおける光の透過現象。励起が強くなると、ディラックポイントを中心に伝導体と価電子帯の $h\nu/2$ の付近において、キャリアで満たされるため、吸収が阻害され、光がグラフェンを透過する。

4.2.3 実験体系

図 4-7 に、グラフェンを用いた受動 Q スイッチ Er:YAP パルスレーザー発振実験体系を示す。グラフェン Q スイッチ発振実験において、CW 発振実験時に使用した 5 at.% Er:YAP を媒質として使用した。Q スイッチ発振中、CW 実験で使用した二枚の平凸レンズを用いて、LD 光を結晶位置において直径 165 μm に絞り、結晶を励起した。DM と OC 二枚の平面ミラーで構成された長さ 21 mm の共振器内に本結晶を挿入した。DM は、波長 976 nm において高い透過率を持ち、波長 2.9 μm において高い反射率を持つ。OC の透過率最適化のため、波長 2.92 μm で透過率 1%、2%、及び 2.5% の OC を使用した。結晶は、銅で作製されたサンプルホルダーにより 16°C の水で冷却されている。Q スイッチ素子として、化学気相成長法で作製したグラフェンをサファイア基板上に転写した単層グラフェン基板を使用し、結晶と OC の間に挿入した。また、単層グラフェンの品質は、ラマン散乱スペクトル測定で確認されている。単層グラフェンにおける吸収率は、2.3% [4-10] であり、変調度は、最大で 1.5% である [4-10]。ここで、基板を含めた、グラフェンの透過率は、定常状態において 96% である。

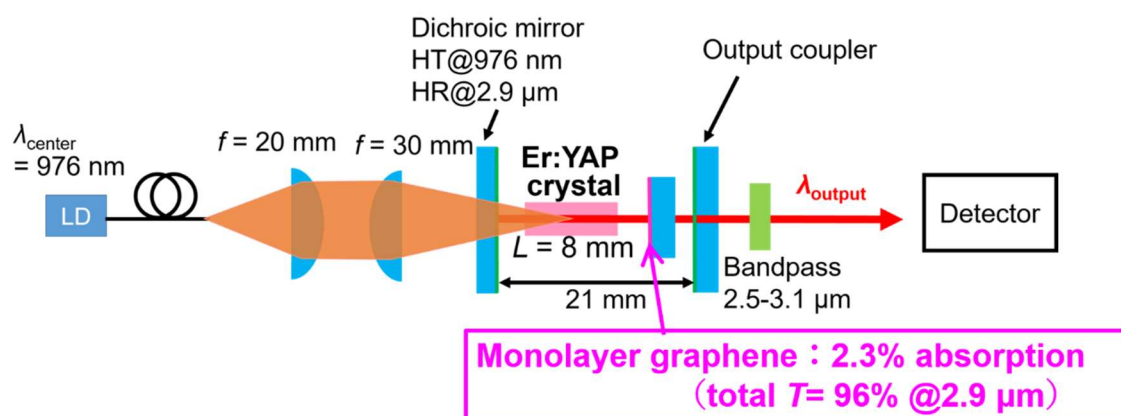


図 4-7 グラフェンを用いた受動 Q スイッチ Er:YAP パルスレーザー発振実験体系

4.2.4 レーザー入出力特性

図 4-8 に、Q スイッチ発振時における入出力特性の実験結果を示す。励起パワーは、結晶に吸収された励起 LD のパワー(Absorbed Pump Power)である。この吸収励起パワーは、結晶を通過した前後の LD のパワーの差から求めた。各 OC におけるレーザー出力は、パワーの増加に伴って増加した。 $T_{OC}=2\%$ において、最大スロープ効率 13%、5.64 W 励起において最大平均出力 503 mW が得られた。またこのとき、発振閾値は 1.47 W であった。

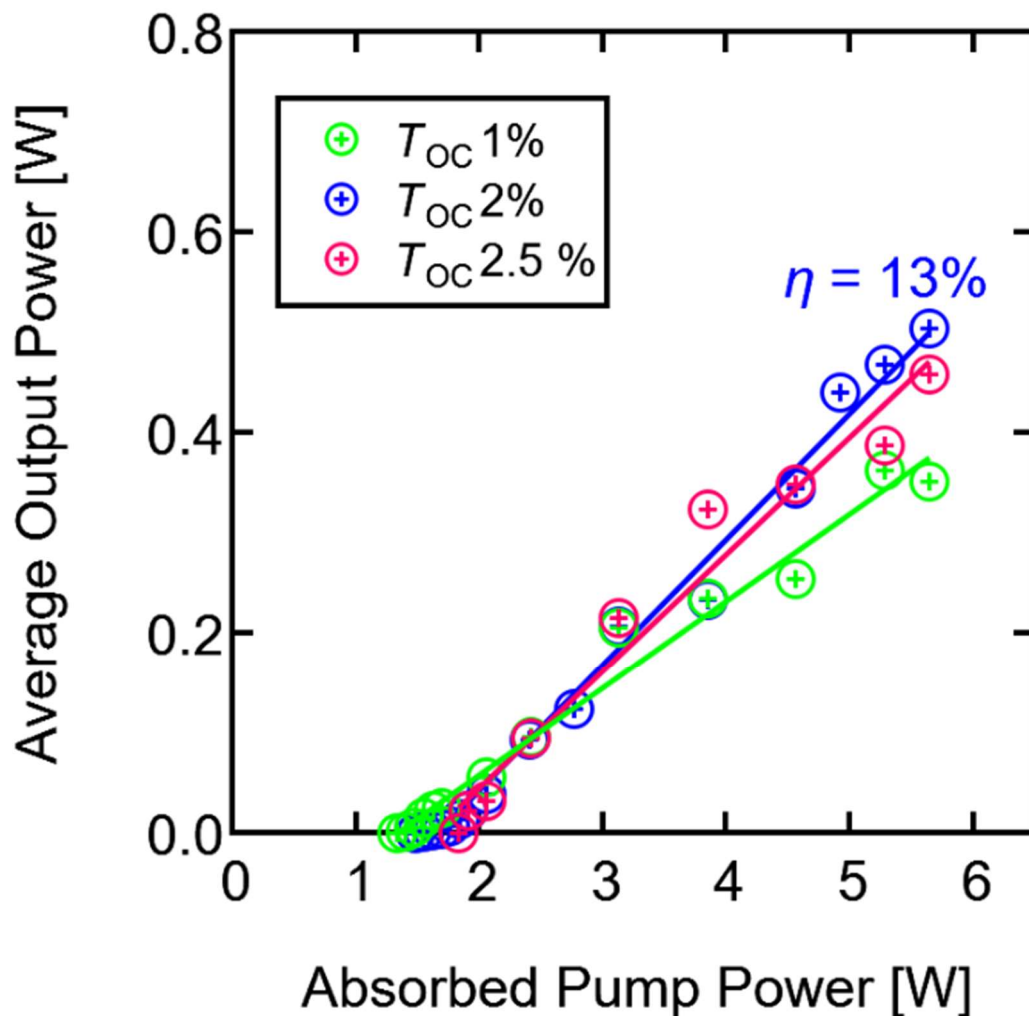


図 4-8 グラフエン Q スイッチ Er:YAP レーザーの入出力特性

4.2.5 パルス波形

図 4-9 のような時間波形から安定したパルス発振を確認し、繰り返し周波数 114 kHz、最短パルス幅 460 ns が得られた。以上から、波長 3.0 μm 帯におけるグラフェン可飽和吸収体を用いた受動 Q スイッチ Er:YAP レーザー発振を世界で初めて実証した。

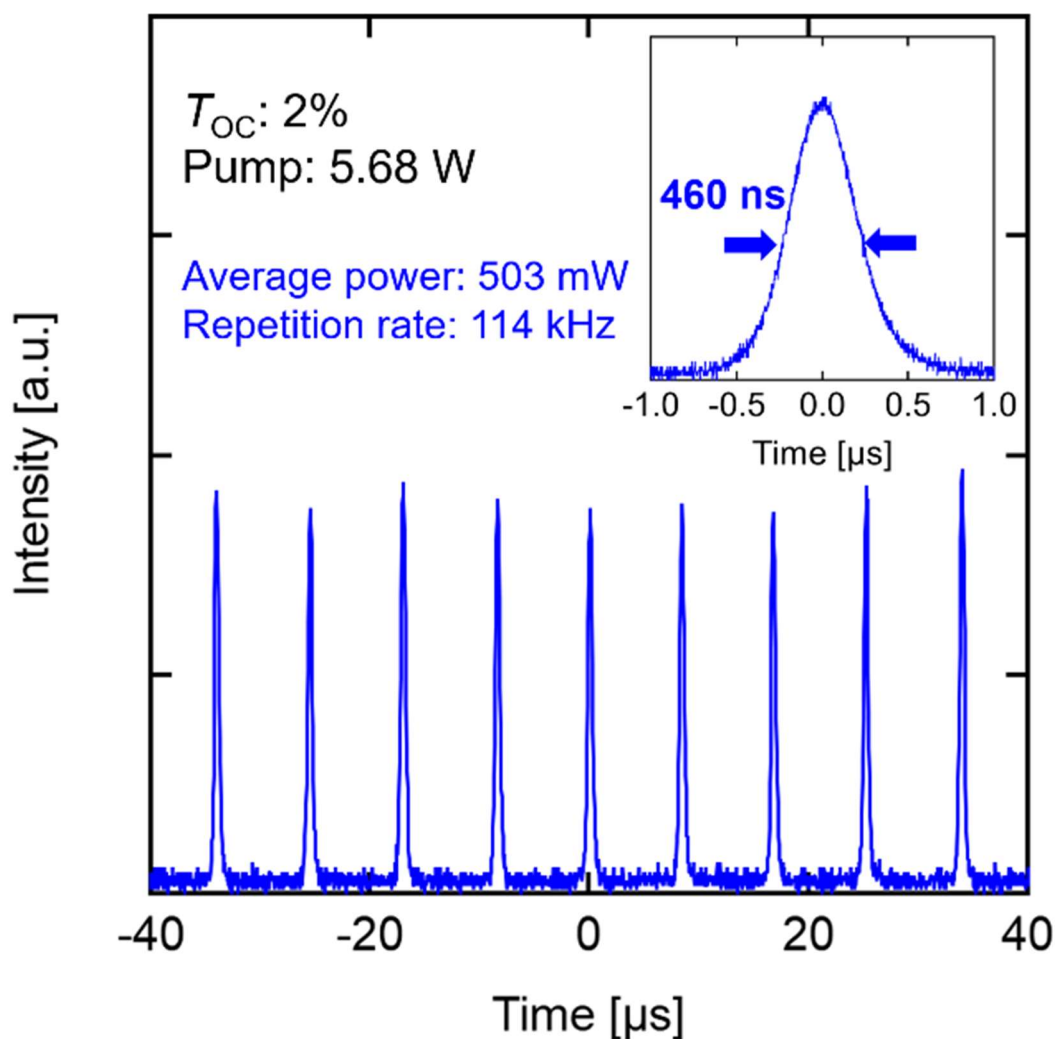


図 4-9 $T_{\text{OC}} = 2\%$ 、励起 5.64 W におけるグラフェン Q スイッチ Er:YAP レーザーのパルス列の波形。挿入図;パルス列中における単一パルス波形。

4.2.6 励起パワーに対するパルス特性

図4-10(a)は、繰り返し周波数とパルス幅の励起パワー依存性をプロットした結果である。図4-10(a)より、励起パワーが2.77 Wから5.64 Wへ増加した際、繰り返し周波数は49.9 kHzから114 kHzへと増加し、一方で、パルス幅は1336 nsから460 nsへと短くなった。図4-10(b)は、励起パワーを変えた時のパルスエネルギーとピークパワーの測定結果である。ここで、パルスエネルギーとピークパワーは、それぞれ、パルスエネルギー [J] = 平均出力 [W]/繰り返し周波数 [Hz]、ピークパワー [W] = パルスエネルギー [J]/パルス幅 [s] で計算することができ、このとき、励起5.28 Wにおいて最大パルスエネルギー5.1 μ Jと最大ピークパワー10 Wが得られた。以上より、グラフェン Q スイッチ Er:YAP レーザーとして最大ピークパワーとパルスエネルギーを達成した。

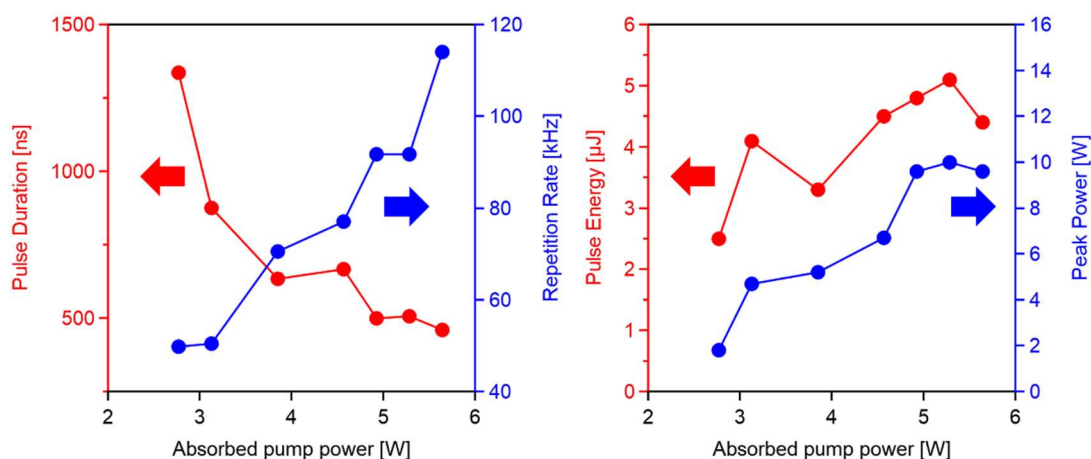


図 4-10 $T_{OC} = 2\%$ でのグラフェン Q スイッチ Er:YAP レーザー発振時における励起パワーに対する (a)パルス幅と繰り返し周波数 (b) パルスエネルギーとピークパワー

4.2.7 発振波長

次に、様々な励起パワーにおけるレーザー発振波長を測定した結果を、図 4-11 に示す。発振閾値付近である励起パワー2.05 W において、発振波長は 2750 nm であった。次に、2.55 W 励起において、2918 nm での発振を確認し、波長 2750 nm からのレッドシフトを確認した。励起パワーをさらに上げ、励起 3.85 W において、波長 2918 nm と 2921 nm で発振し、最大励起パワー5.64 W においても同様の波長での発振を観測した。また、図 4-11 の挿入図は、励起 5.64 W におけるビームプロファイルであり、ガウシアン分布に類似した強度分布を示している。この発振波長のレッドシフトは、3 章で述べたように Er:YAP CW レーザー発振においても観測されている[4-11]。

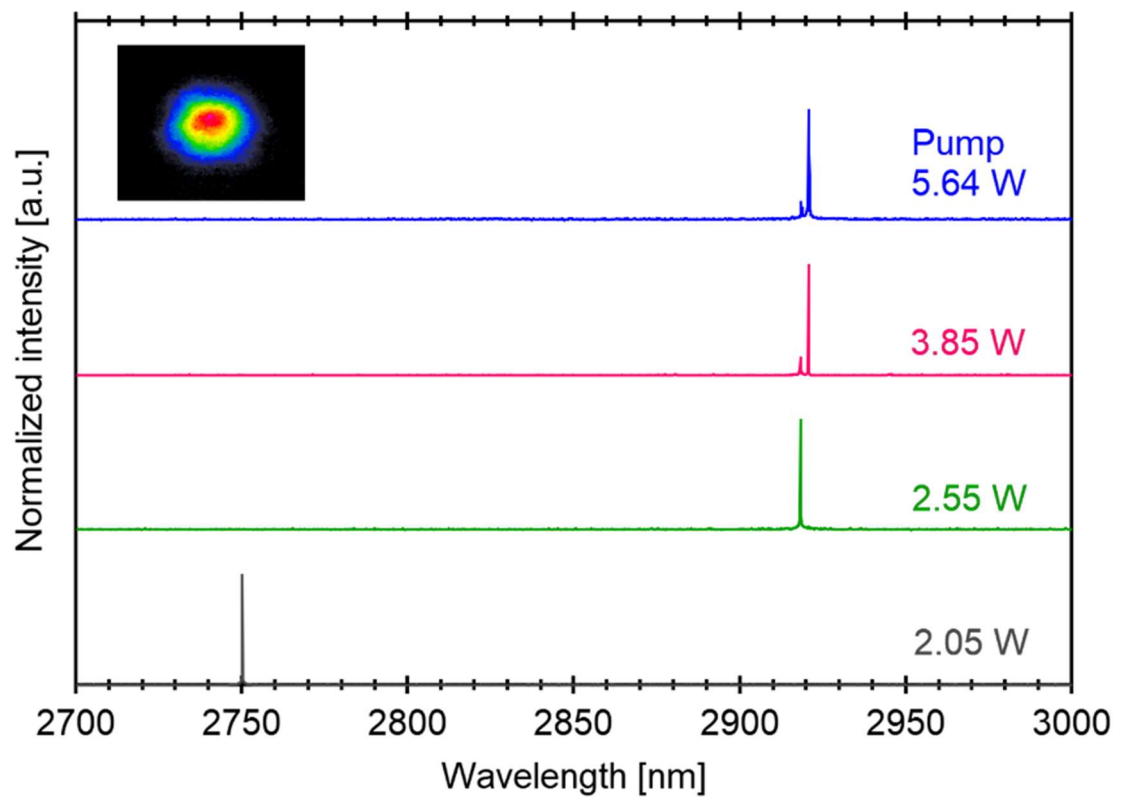


図 4-11 $T_{oc} = 2\%$ での各励起パワーに対するグラフェン Q スイッチ Er:YAP レーザーの発振スペクトル

4.2.8 考察

表 4-1 は、2 次元可飽和吸収体(2DSA)を用いた 3 μm 受動 Q スイッチ Er 添加固体レーザーの先行研究をまとめたものである。Er:Lu₂O₃ レーザーは、11 W までの非常に高出力な LD で励起しているため、他の 2DSA に比べ高平均出力、高ピークパワー、高いパルスエネルギーを達成している[4-12]。一方で、本研究は、最大励起 5.64 W で発振しており、平均出力は LD の励起パワーによって制限されている。また、図 4-7 で示されるように、最大励起 5.64 W における平均出力の低下、および飽和が起こっていないため、高出力 LD 励起によるパワースケーリングが可能である。

受動 Q スイッチ発振において、パルス幅(t_p)、光が共振器内を往復する時間(T_R)、及び可飽和和吸収体の変調度(ΔR)の関係は、次の式で書き表せる[4-13]。

$$t_p \cong \frac{3.52 \cdot T_R}{\Delta R} \quad (4.3)$$

単層グラフェンの変調度 $\Delta R = 1.5\%$ [4-10]と $T_R = 0.2$ s のとき、理論的なパルス幅 t_p は、式(4.3)より、48 ns と計算される。一方で、計測より得られたパルス幅 460 ns を式(4.3)に代入すると、 $T_R = 0.2$ s のときの実験時のグラフェンの変調度は、0.16%と計算できる。実験時の変調度と理論的な変調度が異なる理由として、グラフェンにおける共振器内ビームモードのパワー密度が、吸収が飽和しきる大きさに達していなかった可能性がある。そこで、グラフェン上でのパワー密度を推定した。励起した際、媒質内には、発振波長と励起波長との差に相当した余剰エネルギー分の熱が発生し、媒質内において、温度分布が形成される。媒質の屈折率は、温度に依存するため、媒質内で屈折率分布が形成され、これによってレンズの様な振る舞いをする。このような効果を熱レンズ効果と呼び、共振器内の光をある焦点距離において集光する。この熱レンズ効果による焦点距離は、式(4.4)で書き表すことができる。この時、励起 5.64 W における Er:YAP の熱レンズ焦点距離(f)は、次式(4.4)[4-14]を用いて、13 mm と得られた。

$$f = \frac{\pi K_c w_p^2}{P_{ph}(dn/dT)} \left(\frac{1}{1 - \exp(-\alpha l)} \right) \quad (4.4)$$

ここで、熱伝導率(K_c)、結晶位置での励起ビーム半径(w_p)、量子欠損効率 67%を考慮した時の結晶内での発熱量(P_{ph})、Er:YAP の屈折率の温度係数(dn/dT)、5 at.% Er:YAP の波長 976 nm の吸収係数(α)は、それぞれ、13.3 Wm⁻¹ K⁻¹[4-15]、82.5 μm [4-11]、3.8 W、 8×10^{-6} K⁻¹[4-15]、1.6 cm⁻¹[4-11]である。熱レンズ焦点距離 f を考慮した ABCD マトリクス解析

より、グラフェン上での共振器内モード直径は、 $140\text{ }\mu\text{m}$ と計算された。また、 $T_{\text{oc}}=2\%$ での共振器内のビームパワーは、 25 W であると推定された。以上より、グラフェン上でのビームモードのパワー密度は、 0.2 MW/cm^2 と計算される。単層グラフェンの飽和強度 0.53 MW/cm^2 [4-16]に対して、実験時のパワー密度は、38%であった。これから、グラフェンでのパワー密度をさらに大きくすることによって、より短いパルス幅が得られることが可能である。また、共振器長をさらに短くする、すなわち、 T_R を小さくすることによってもパルス幅を短くすることが可能である。さらに、より高出力な LD で励起することで、高繰り返し発振が可能になり、計測時間の短縮、あるいはサンプル数の増加によっても、高精度な計測が期待される。

以上のような共振器長の短縮や変調度の増加によって、グラフェン Q スイッチ Er:YAP レーザーは、さらなる高性能化が期待される。結晶長とグラフェン基板を考慮した最短共振器長 11 mm において、変調度 4.8%の 6 層グラフェンを用いることで、 $100\text{ }\mu\text{J}$ レベル、 10 ns 、数十 kW 級のパルス発振が可能である。このような高出力化された $2.9\text{ }\mu\text{m}$ レーザーは、計測用光源以外に、ガラスや樹脂などの OH を含んだ透明材料の加工用光源に応用が期待できる。さらに、波長 $4\text{--}5\text{ }\mu\text{m}$ の Fe:ZnSe レーザーや中赤外領域を網羅するスーパーコンテニウム光源の励起用光源としても有望である。以上から、半導体レーザー励起グラフェン Q スイッチ $2.9\text{ }\mu\text{m}$ Er:YAP レーザーは、有望な高出力中赤外レーザー光源の候補の一つといえる。

表 4-1 2 次元可飽和吸収体を用いた $3\text{ }\mu\text{m}$ 受動 Q スイッチ Er 添加固体レーザーの研究

Material	SA	Average output [mW]	Slope efficiency [%]	Pulse width [ns]	RPR [kHz]	Peak power [W]	Pulse energy [μJ]	RF
Er:Lu ₂ O ₃	Graphene	1300	15	247	174	33	9.4	[4-12]
Er:Y ₂ O ₃	Graphene	132.5	-	408	51.1	6.35	2.58	[4-17]
Er:CaF ₂	Graphene	172	10.4	1324	62.7	2.07	2.74	[4-18]
Er:SrF ₂	BP	180	7.9	702	77.03	3.3	2.34	[4-29]
Er:YSGG	Bi ₂ Te ₃ /G	110	-	243	88	5.14	1.25	[4-20]
Er:YAP	ReSe ₂	526	14.8	202.8	244.6	10.6	2.2	[4-21]
Er:YAP	Graphene	503	13	460	114	10	5.1	This work

4.3 光チョッパーを用いたメカニカル Q スイッチング発振

4.3.1 能動 Q スイッチング

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。大きな変調度が得られる方法として、能動 Q スイッチ発振がある。Q スイッチ発振において、共振器内の光の往復損失 ϵ は、次式のように書き表すことができ[4-22]、

$$\epsilon = -\ln R_2 + L_i + \delta(t) \quad (4.5)$$

ここで、 R_2 、 L_i 、及び $\delta(t)$ は、それぞれ、出力鏡の反射率、散乱などによる共振器内の損失、及び Q スイッチによる共振器内損失を表す。受動 Q スイッチの場合、可飽和吸収体の飽和によって周期的に $\delta(t)$ が減少するが、可飽和吸収体の非飽和損失によって $\delta(t)$ は完全にゼロになることはないため、0%から 100%の変調度が得られない。一方で、能動 Q スイッチ発振では、外部モジュレータによって $\delta(t)$ を 0%から 100%へと大きく変化させることが可能である。

4.3.2 Q スイッチング素子としての光チョッパー

能動 Q スイッチングで使用される Q スイッチ素子として、光学チョッパーがあり、図 4-12 のように金属性で作製されており、いくつかのスリットがある。これを共振器内に Q スイッチ素子として挿入し、共振器内の損失を変化させることができる。図 4-13 のように、チョッパーを回転させることで、光を周期的に遮断することでき、光の透過率を 0%から 100%へと変調することで共振器内の損失を変化させている。チョッパーのブレードによって光が遮られている間、共振器内の損失が大きくなっており、その間、レーザー発振せず、励起エネルギーは結晶に蓄積される。チョッパーのスリットに光が通過するようになると、光が共振器内を往復できるようになり、損失が小さくなることで、利得が損失を上回り、蓄積されたエネルギーが一気にパルスとして放出される。その後、スリットが閉じると、再び共振器の損失が大きくなる。上記の様なプロセスが繰り返し行われ、繰り返しパルス発振が起こる。また、外部コントローラで回転周波数を変えることが可能であるため、エネルギーが蓄積される時間を操作することで、出力されるパルスのエネルギーが増加し、高出力化が可能である。チョッパーは、比較的安価で入手可能であり、薄型であることから、小型で安価な高出力中赤外レーザー光源の開発が可能となる。そこで、本研究では、グラフェン Q スイッチ発振よりもさらに高いピークパワーを得るため、光学チョッパーを用いた能動 Q スイッチ 3 μm Er:YAP レーザー発振を試みた。

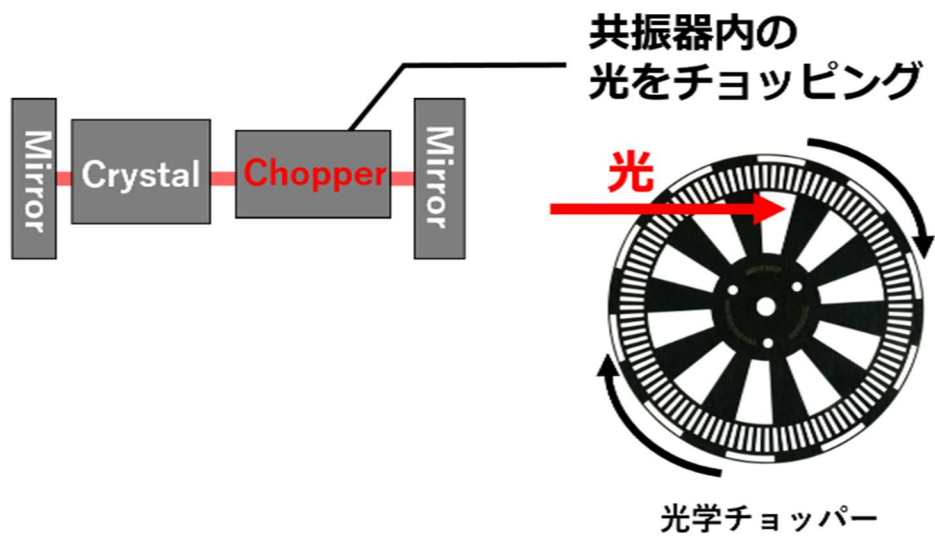


図 4-12 Q スイッチ素子としての光学チョッパー(Thorlabs, MC1F10HP)[4-23]

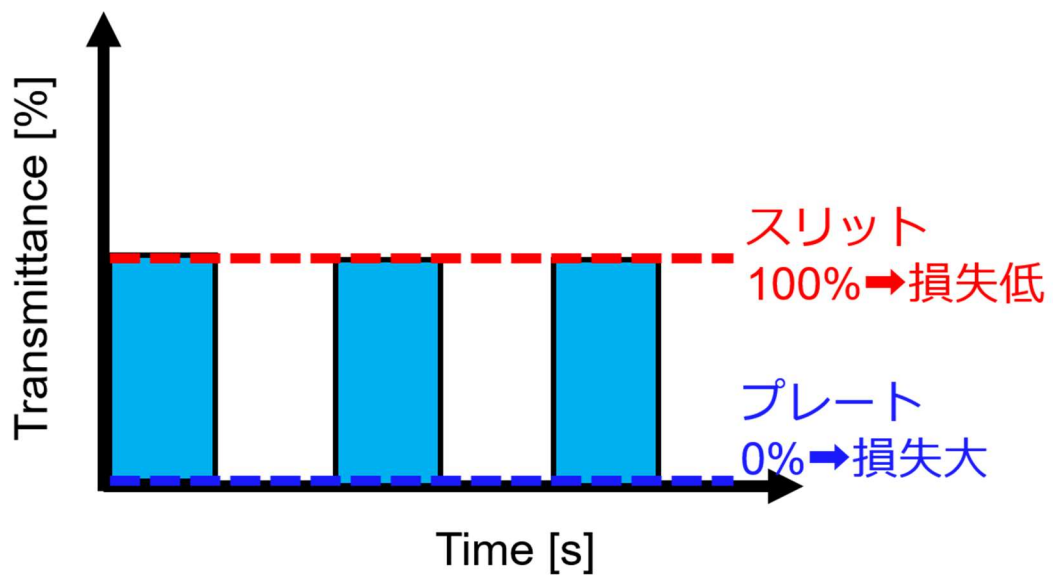


図 4-13 光学チョッパーによる光のチョッピング

4.3.3 実験体系

図 4-14 は、光学チョッパーを用いたメカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザーの実験体系であり、励起光源、集光するレンズ、光共振器、及び検出器で構成されている。励起光源の LD は、CW、およびグラフェン Q スイッチ発振実験で使用したものである。結晶位置において、LD 光は、焦点距離 $f = 20 \text{ mm}$ と $f = 75 \text{ mm}$ の平凸レンズによって、直径約 $400 \mu\text{m}$ に集光されている。光共振器は、平面ミラーであるダイクロイックミラー(DM)とアウトプットカプラー(OC)で構成されており、共振器長は 17 mm である。DM は、先の発振実験と同様のものを使用し、OC については、 $2.9 \mu\text{m}$ 帯で透過率 5%、10%、および 20% のものを使用した。共振器内に先の実験で使用した 5 at.% Er:YAP を挿入し、銅製のヒートシンクでマウントされており、 16°C で水冷した。また、結晶と OC の間に図 4-14 の挿入図のような光学チョッパーを Q スイッチ素子として挿入した。光学チョッパーの厚さ、スリット幅、およびスリット数は、それぞれ、 0.3 mm 、 1 mm 、および 100 である。また、開口率は、50% である。回転スピードは、2 rps から 100 rps まで変えることが可能であり、これらは、ロス変調の周波数(変調周波数) 200 Hz から 10 kHz に相当する。共振器から取り出されたレーザー光は、波長 $2.5 \mu\text{m}$ から $3.1 \mu\text{m}$ の光を透過するバンドパスフィルターを通過する。通過したレーザー光の出力とパルス波形を、それぞれ、パワーメータ(919p-003-10, Newport)とフォトディテクタ(PVI-4TE-3-1, VIGO)で測定した。また、波長分解能 0.8 pm の光スペクトラムアナライザを用いてレーザー発振波長の測定を行った。

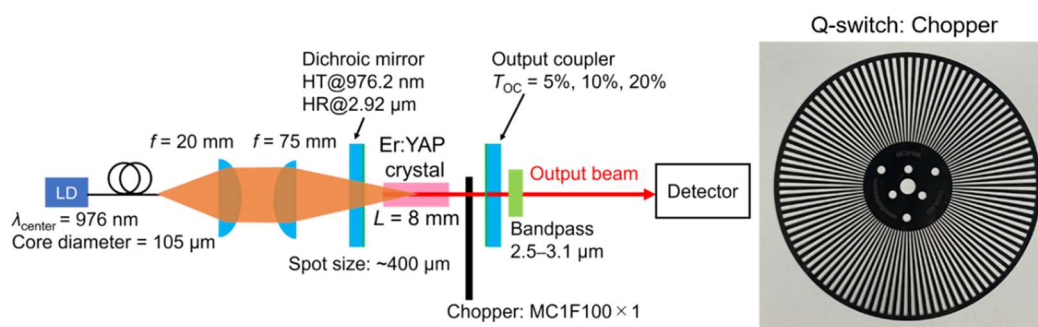


図 4-14 光学チョッパーを用いたメカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザー発振実験体系

4.3.4 レーザー入出力特性

まず初めに、チョッパーの変調周波数を 10 kHz に設定し、平均出力($P_{\text{out,avg}}$)を測定した。図 4-15 は、 $T_{\text{OC}}=5\%$ 、10%、及び 20%の三種類使用した時のメカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザーの入出力特性の測定結果を表す。励起パワーは、結晶に吸収された LD 光のパワーに相当する。レーザーの発振閾値は、 T_{OC} の透過率が大きくなるに従って、増加した。発振閾値は、OC の透過率に依存しているため、 T_{OC} の α 値が大きくなるほど、発振閾値も高くなったためである。 $T_{\text{OC}}=5\%$ において、7.4 W 励起時に最大平均出力 773 mW、スロープ効率 15%が得られた。

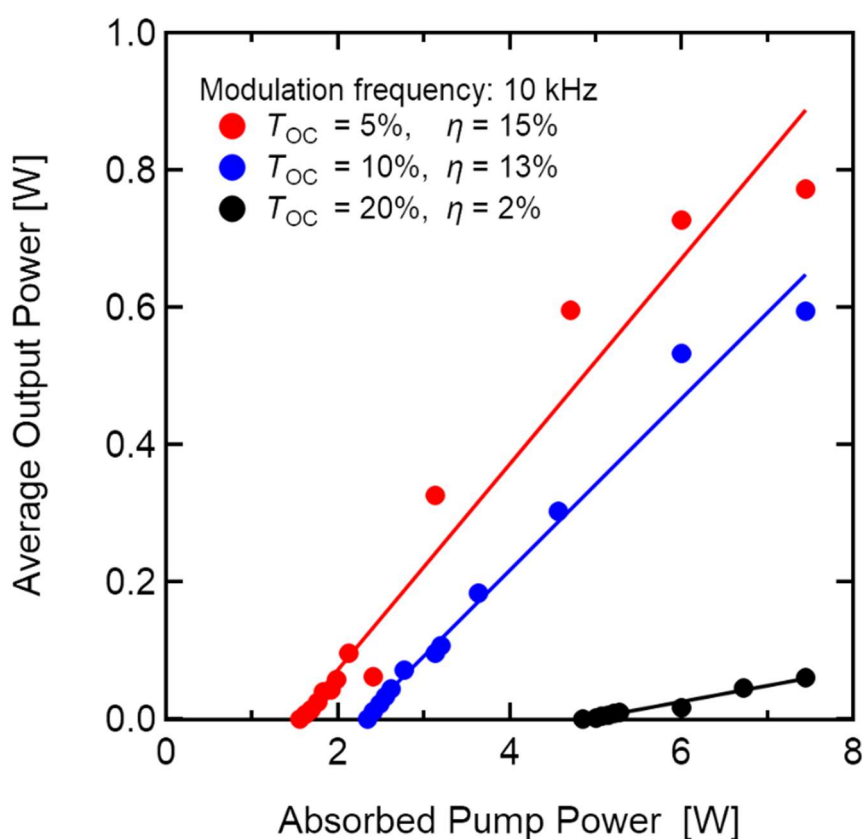


図 4-15 モジュレーション周波数 10 kHz における $T_{\text{OC}}=5\%$ 、10%、及び 20%でのメカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザーの入出力特性。

このとき、結晶内の温度分布による熱レンズ効果を考慮した ABCD 解析を用いて、スリット幅に対するモード径の大きさを推定・評価した。熱レンズ効果によって発生する熱レンズ焦点距離は、式(4-6)[4-24]と書き表され、これを用いて、励起パワー(P_{abs})2.4W と 7.4 W において、それぞれ、86 mm と 30 mm が得られた。

$$f_{th} = \frac{2\pi K_c \omega_p^2}{\xi P_{abs}(dn/dT)} \quad (4.6)$$

ここで、熱伝導率(K_c)、結晶位置での励起ビーム半径(ω_p)、および Er:YAP の屈折率の温度係数(dn/dT)は、それぞれ、 $13.3 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ [4-15]、 $200 \mu\text{m}$ 、及び $8 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ [4-15]である。また、 ξ は、結晶内で励起パワーが熱に変わる割合を表しており、 $1 - (P_{out,avg}/P_{abs})$ と表す。 P_{abs} が 2.4 W と 7.4 W の時、 ξ は、 0.98 と 0.90 である。以上から、計算から得られた熱レンズ焦点距離を用いて推定されたチョッパ位置でのモード直径は、約 $350 \mu\text{m}$ と $260 \mu\text{m}$ であり、スリット幅よりも十分に小さいため、全ビームモードがチョッパを通過できることを確認した。

4.3.5 パルス波形

図 4-16 は、 $T_{oc}=5\%$ において、変調周波数 10 kHz で励起 2.4 W 、 4.7 W 、及び 7.4 W のように励起パワーを変えた時のパルス波形を測定した結果である。図 4-16(a)、(c)、及び(c)より、励起 2.4 W において、安定したシングルパルス発振を確認し、それ以上の励起パワーでは、安定したマルチパルス発振を観測した。また、図 4-16(a)-(b)より、励起 2.4 W では、安定したシングルパルス発振を確認し、パルス幅 296 ns と平均出力 47 mW が得られた。このとき、パルスエネルギーは $4.7 \mu\text{J}$ 、ピークパワーは 16 W であった。励起パワーを上げると、図 4-16(c)-(d)のようにマルチパルス発振を確認した。励起 7.4 W においても図 4-16(e)-(f)のように、マルチパルス発振を確認し、励起パワーの増加に従って、一回のロス変調の際に発生するパルスの数も増加した。この時のパルスの強度が一番大きいパルス幅は、 75 ns であった。このパルスのパルスエネルギーは、1 サイクルに発生した全パルスエネルギーの内、 $34 \mu\text{J}$ に相当し、ピークパワーは 456 W であった。

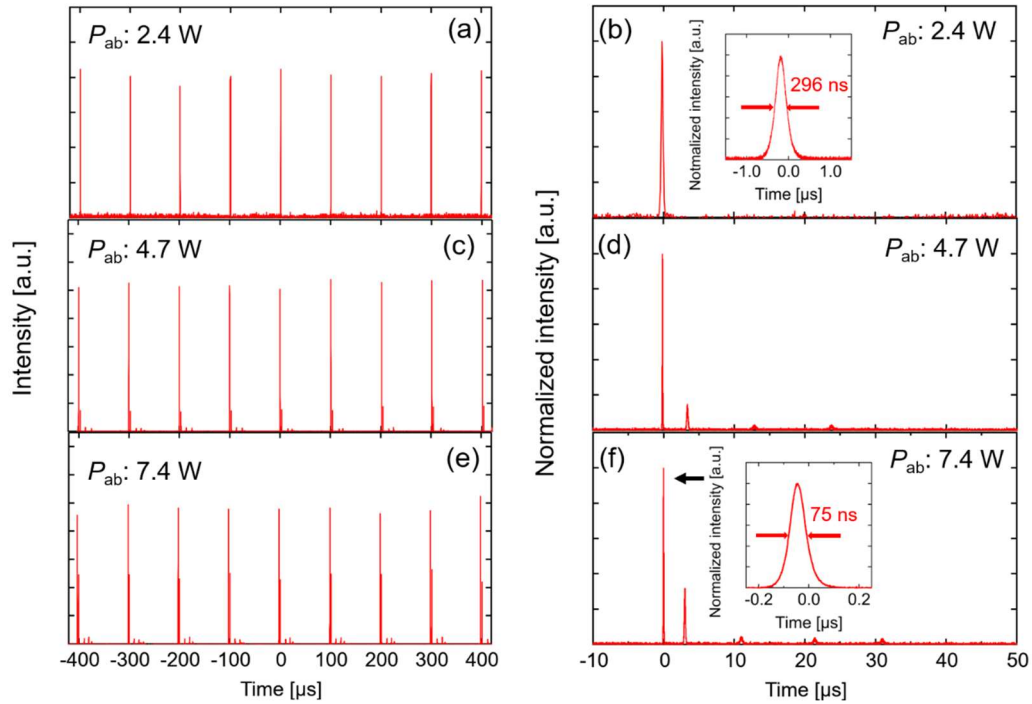


図 4-16 変調周波数 10 kHz において励起パワーを変えた時のメカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザーのパルス波形 ($T_{OC} = 5\%$)。

このようなマルチパルス発振は、いくつかの先行研究で報告されており [4-25] [4-26] [4-27]、図 4-17 のような Slow Q-switching モデルで説明ができる [4-28]。メカニカル Q スイッチングは、変調周波数を高くできず、変調の立ち上がり（立下り）時間も遅い手法であるため、slowly Q-switched レーザーの一つとされており、その発振モデルに従う。図 4-16 は、反転分布と共振器内損失の時間変化を表したものであり、時刻 0s において、スリットは閉じているため共振器内の損失が高い状態になっている。また、結晶には大きなエネルギーが蓄積されており、スリットが少しずつ開き始めると、共振器内の損失は徐々に減少する。図 4-17 中の①のとき、チョッパーのスリットが完全に開く前であり、共振器の損失が高い状態であるが、レーザー発振可能な状態になり、最初のパルスが発生する。その後、反転分布の一部は、減少するが、レーザー発振するには十分な反転分布が結晶内に残っている。さらにスリットは開き続けるため、共振器内の損失は減少し続け(②)、再度ゲインがロスを超えたとき(③)、二番目のパルスが発生する。また、ゲインは、励起パワーの増加に伴って、増加する。従って、低い励起パワーに比べて、高い励起パワーのとき、ゲインがロスを容易に超え、マルチパルスが発生しやすくなるため、光チョッパーの回転速度を変えずに励起パワーが増加したとき、マルチパルス発振が報告されている [4-27]。二番目のパルス(二次パルス)は、以上のように、最初のパルス発振の後、再度レーザー発振可能な反転分布の状態で、共振器内損失が減少し、ゲインがロスを再度超えてしまうため発生する。一度のパ

ルス発振において、反転分布を大きく消費させるには、発振時に共振器内の損失が可能な限り小さい状態にする、すなわち、スリットが完全に開いている状態にする必要がある。その際、パルスが完全に立ち上がる前に、スリットが素早く開き、共振器内の損失を最小値にするような高い回転周波数を有するチョッパーを使用することで二次パルスの抑制が可能になる。

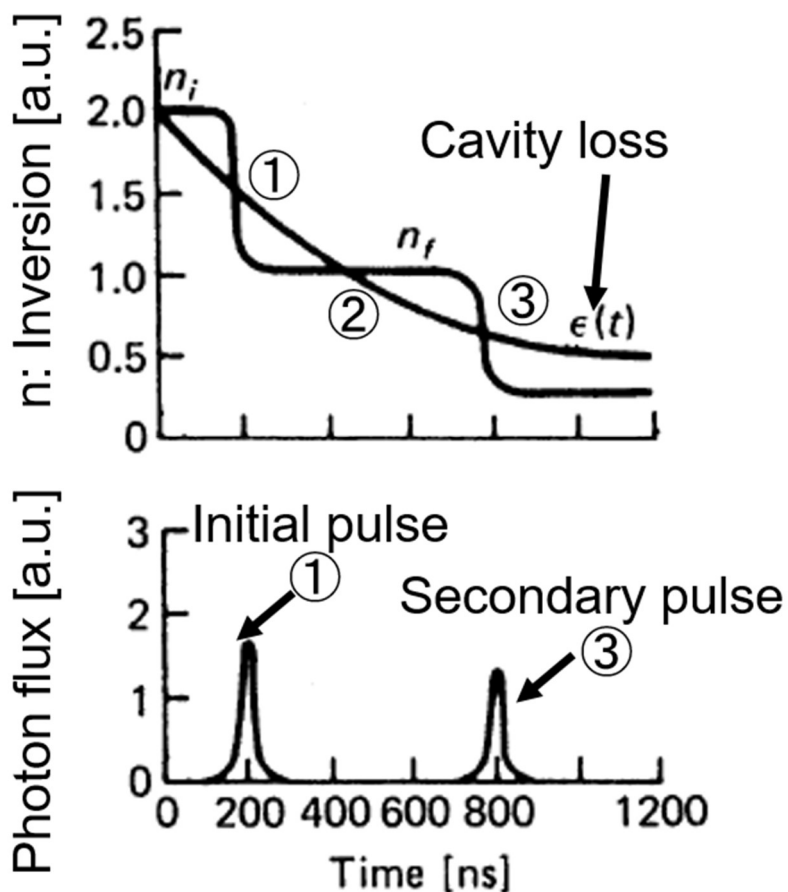


図 4-17 Slow Q-switching モデルにおけるマルチパルス発生[4-28]。

4.3.6 チョッピング周波数に対するパルス特性

次に、シングルパルス発振した 2.4 W 励起における、変調周波数を変えた場合のパルス特性を評価した。図 4-18 は、 $T_{oc} = 5\%$ 、2.4 W 励起における変調周波数を 10 kHz から 7 kHz に変えた時のメカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザーの平均出力、パルスエネルギー、およびピークパワーの測定結果である。図 4-18(a)において、周波数を下げると、平均出力の減少とパルス幅の短縮が確認された。この時、平均出力は、47 mW から 41 mW へ減少し、パルス幅は、296 ns から 264 ns まで短くなった。一方で、図 4-18(b)では、周波数を同様に下げた際、パルスエネルギーとピークパワーがともに増加した。この時、最大パルスエネルギー 5.9 μJ と最大ピークパワー 22 W が、7 kHz において得られ、室温における LD 励起 3.0 μm 帯 Q スイッチ Er:YAP レーザーとして、最大値を達成した。7 kHz 以下では、二次パルスが発生し、同様の現象が先行研究においても確認されている[4-29]。これは、周波数を下げた際にゲインが増加したためである。

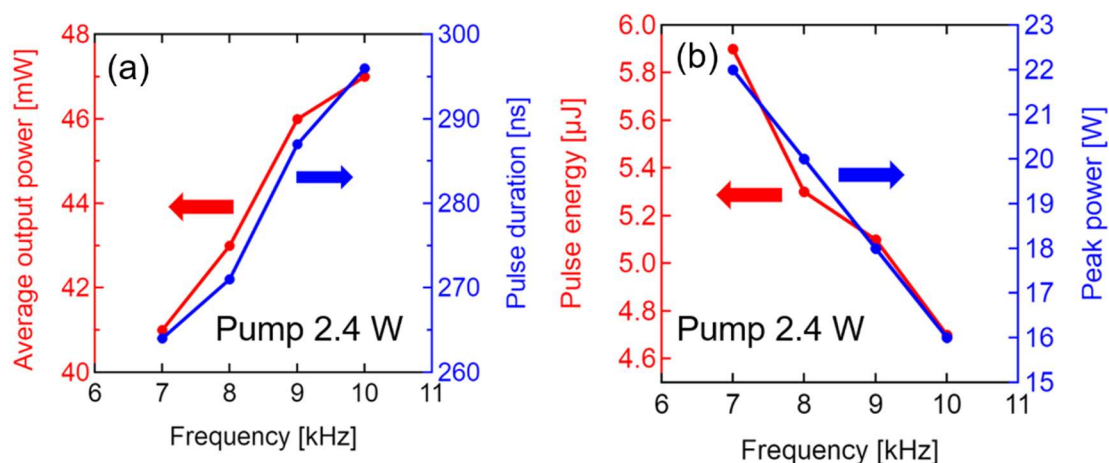


図 4-18 $T_{oc} = 5\%$ で 2.4 W 励起におけるモジュレーション周波数を変えた時のメカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザーの(a)平均出力とパルスエネルギー、(b)パルスエネルギーとピークパワー。

マルチパルス発振の場合、1 サイクルの内、単一パルスのエネルギーが複数のパルスに分散されてしまうため、1 パルスのピークパワーが減少してしまう。これをシングルパルスにすることでより高エネルギー、高ピークなレーザーにすることで高精度な計測が期待される。そのために、マルチパルス発振を抑制する方法の一つとして、より高いモジュレーション周波数の光学チョッパーの使用が挙げられる。例として、周波数 110 kHz の市販されている光学チョッパー[4-30]は、実験で使用した 10 kHz のチョッパーより 11 倍高速であるため、複数の二次パルスが発生する前に共振器内の損失を最大にし、そしてすぐさま Q スイッチを閉じることができると考えられる。これによって、シングルパルス発振となり、分

散していたパルスエネルギーを単一のパルスに集中させることで、より高ピークなレーザー出力が得られることが期待できる。

4.3.7 発振波長

図 4-19 は、 $T_{OC} = 5\%$ 、周波数 10 kHz の時、励起 2.4 W と 7.4 W におけるレーザー発振波長を測定した結果である。励起 2.4 W の時、発振波長 2796 nm が得られ、周波数を下げても、発振波長のシフトは見られなかった。次に励起 7.4 W の時、波長 2921 nm が得られた。このような励起パワーの増加に伴う発振波長の長波長シフトは、CW 発振とグラフェン Q スイッチ発振時にも観測された。

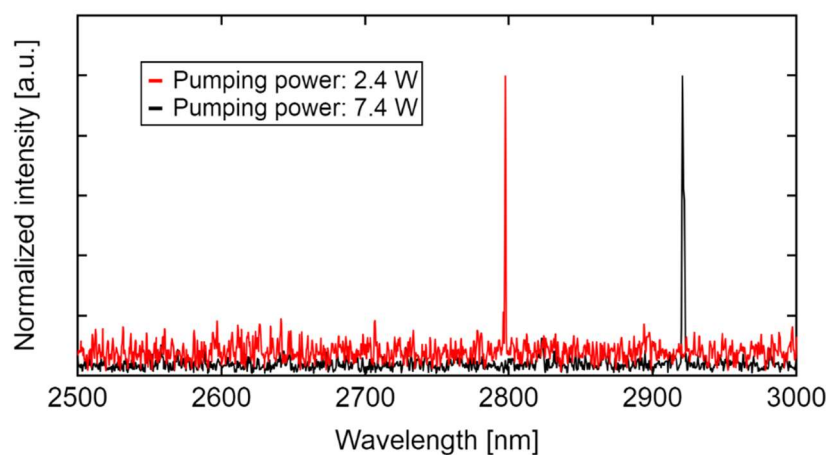


図 4-19 $T_{OC} = 5\%$ 、周波数 10 kHz の時の励起 2.4 W と 7.4 W におけるメカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザーの発振波長。

4.4 まとめ

高 SN 比での高精度計測を可能にする光源開発を視野に入れ、Er:YAP レーザーの更なる高出力化のため、高ピーク出力が得られるパルス発振を試みた。パルス発振方法に、受動 Q スイッチ、及び能動 Q スイッチ発振を採用した。受動 Q スイッチ発振では、Q スイッチ素子として単層のグラフェン可飽和吸収体を使用し、能動 Q スイッチ発振では、光学チョッパーを使用した。実験から、Q スイッチ発振によって、CW 発振と比べ 10 から 20 倍の高出力化を実現した。グラフェン Q スイッチ Er:YAP レーザーは、小型で高繰り返しなパルスレーザーであるため、可搬性に優れており、高時間分解能計測に応用できるレーザー光源である。メカニカル Q スイッチ Er:YAP レーザーは、グラフェン Q スイッチレーザーに比べて高いピークパワーを有しているため、高感度計測に応用が期待できるレーザー光源である。以上のことから、本研究では、Er:YAP レーザーの高出力化に成功し、また、グラフェン Q スイッチ、及びメカニカル Q スイッチレーザーのパルス特性を明らかにした。

また、レーザー性能の向上による更なる高感度化計測の方法として、励起パワーの増加による高出力化や、グラフェンの多層化による変調度の増加による高ピーク化による S/N 比の向上、さらに光学チョッパーの回転数を上げ、高繰り返しなレーザーにすることで高時間分解能計測の実現が考えられる。

参考文献(第 4 章)

- [4-1] https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/ssd/infrared_kird9001e.pdf
- [4-2] K. L. Vodop'yanov, L. A. KulevskK P. P. Pashinin, and A. M. Prokhorov, Sov Phys. JETP 55, 1049 (1982).
- [4-3] K. L. Vodopyanov, J. Chem. Phys. 94, 5389 (1991).
- [4-4] レーザー学会 編、「先端固体レーザー」、p28、オーム社、2011 年。
ISBN978-4-27421124-9
- [4-5] W. Koechner, Solid-State Laser Engineering (Springer, Berlin, 2006) 6th ed., p. 522.
- [4-6] K. Erickson, R. Erni, Z. Lee, N. Alem, W. Gannett, and A. Zettl, Adv. Mater., **22**, 4467 (2010).
- [4-7] 山下真司、「グラフェンを用いた超短パルスファイバーレーザー」、光学、**42**、446 (2013).
- [4-8] P. A. Loiko, J. M. Serres, X. Mateos¹, J. Liu, H. Zhang, · A. S. Yasukevich, · K. V. Yumashev, V. Petrov, U. Griebner, M. Aguiló, F. Díaz, Appl. Phys. B, **122**, 105 (2016).
- [4-9] G. Xing, H. Guo, X. Zhang, T. C. Sum, C. Hon, and A. Huan, Opt. Express **18**, 4564 (2010).
- [4-10] H. Uehara, S. Tokita, J. Kawanaka, D. Konishi, M. Murakami, and R. Yasuhara, Appl. Phys. Express **12**, 022002 (2019).
- [4-11] H. Kawase and R. Yasuhara, Opt. Express **27**, 12213 (2019).
- [4-12] H. Uehara, S. Tokita, J. Kawanaka, D. Konishi, M. Murakami, and R. Yasuhara, Appl. Phys. Express **12**, 022002 (2019).
- [4-13] G. J. Spuhler, R. Paschotta, R. Fluck, B. Braun, M. Moser, G. Zhang, E. Gini, and U. Keller, J. Opt. Soc. Am. B **16**, 376 (1999).
- [4-14] M. E. Innocenzi, H. T. Yura, C. L. Fincher, and R. A. Fields, Appl. Phys. Lett. **56**, 1831 (1990).
- [4-15] R. L. Aggarwal, D. J. Ripin, J. R. Ochoa, and T. Y. Fan, J. Appl. Phys. **98**, 103514 (2005).
- [4-16] Q. Bao, H. Zhang, Z. Ni, Y. Wang, L. Polavarapu, Z. Shen, Q. H. Xu, D. Tang, and K. P. Loh, Nano Res. **4**, 297 (2011).
- [4-17] X. Guan, L. Zhaan, Z. Zhu, B. Xu, Z. Cai, W. CAi, X. Xu, J. Zhang, and J. Xu, Appl. Opt. **57**, 371 (2018).
- [4-18] C. Li, J. Liu, S. Jiang, S. Xu, W. Ma, J. Wang, X. Xu, and L. Su, Opt. Mater. Express **6**, 1570 (2016).
- [4-19] J. Liu, J. Liu, Z. Guo, H. Zhang, W. Ma, J. Wang, and L. Su, Opt. Express **24**, 30289 (2016).
- [4-20] Z. You, Y. Sun, D. Sun, Z. Zhu, Y. Wang, J. Li, C. Tu, and J. Xu, Opt. Lett. **42**, 871 (2017).
- [4-21] Y. Yao, N. Cui, Q. Wang, L. Dong, S. Liu, D. Sun, H. Zhang, D. Li, B. Zhang, and J. He,

- Opt. Lett. **44**, 2839 (2019).
- [4-22] 小林喬郎 編、「日本分光学会 測定法シリーズ 37 固体レーザー」、p.38、学会出版センター、2000 年。ISBN4-7622-0851-5
- [4-23] https://www.thorlabs.co.jp/newgrouppage9.cfm?objectgroup_id=287
- [4-24] Y. F. Chen, J. Opt. Soc. **17**, 1835 (2000).
- [4-25] R. Scheps and J. F. Myers, Appl. Opt. **33**, 969 (1994).
- [4-26] N. M. Wannop, M. R. Dickinson, A. Charlton, and T. A. King, J. Mod. Opt. **41**, 2043 (1994).
- [4-27] D. J. Coleman, T. A. King, D. Ko, and J. Lee, Opt. Commun. **236**, 379 (2004).
- [4-28] W. Koechner, Solid-State Laser Engineering (Springer, Berlin, 2006) 6th ed., p. 493.
- [4-29] P. S. Golding, S. D. Jackson, P. K. Tsai, B. C. Dickinson, and T. A. King, Opt. Commun. **175**, 179 (2000).
- [4-30] Scitec Instruments Ltd. [https://scitec.uk.com/optical_chopper/310cd.php].

第 5 章 中赤外レーザーを用いた水の水素同位体計測

5.1 水の水素同位体置換実験

開発した Er:YAP CW レーザーを用いて水の水素同位体計測を行った。最終的な計測目標は、中赤外レーザーを用いた水の水素同位体の濃度・移動速度リアルタイム計測である。本研究では、その初期段階として、Er:YAP レーザーの波長において、各同位体の吸収分光計測が可能で、その同位体成分が変化した際の吸収量の時間変化を有意に測定できるのあを確認した。レーザー波長における水の水素同位体の吸収特性を知ること为目标とした。そこで、Er:YAP CW レーザーを用いて、軽水(H_2O)と重水(D_2O)の濃度比が変化した際の吸収特性の変化をリアルタイムで計測した。

5.1.1 レーザー吸収分光測定実験体系

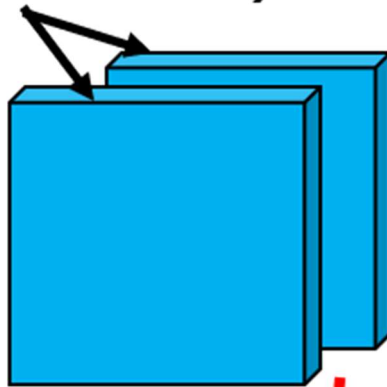
水の水素同位体の吸収特性を調べるために、レーザー吸収分光による Er:YAP レーザーの透過光の時間変化を測定した。図 5-1 は、実験体系である。Er:YAP CW レーザーを直径 1 mm のアパーチャーで絞り、サンプルセルを通過したレーザー光をパワーメータで測定した。この時、サンプルセルが無い状態で測定したレーザー出力は、400 mW であった。



図 5-1 Er:YAP CW レーザーを用いた水の水素同位体置換実験

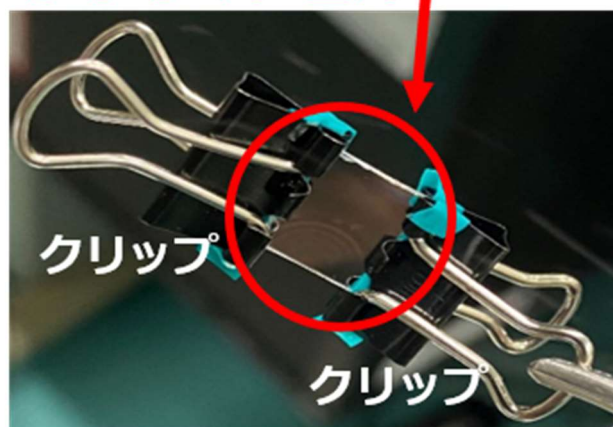
次に、1 mm×1 mm×厚さ(t)0.3 mm のサファイア基板を二枚重ね合わせて(図 5-2(a))、それらをクリップで固定し、図 5-2(b)のようなサンプルセルを作製した。測定中、サンプルセルの中身を[空気→ H_2O → D_2O → H_2O]の順番で変えた。セルの中身の変え方は、次のように行った。図 5-3(a) のように、 H_2O あるいは D_2O が入ったシャーレをステージに載せ、それを上下に動かし、液体をクリップの基板の下辺に接触させた。接触している間、図 5-3(b)で示すように、シャーレの水が、毛細管現象によって徐々にセル内へ染み込み、最終的にセル内を満たす。また、染み込んでいる間、セルの上辺から先に満たされていた水の水素同位体が蒸発する。以上の様な方法で、水の水素同位体がセル内で移動している様子を模擬した。シャーレを交換する間は、レーザーを止めた。また、純水を H_2O として使用し、 D_2O 99.95 %の重水(Merck)を D_2O として使用した。

サファイア基板× 2 枚
(1×1×t0.3 mm)



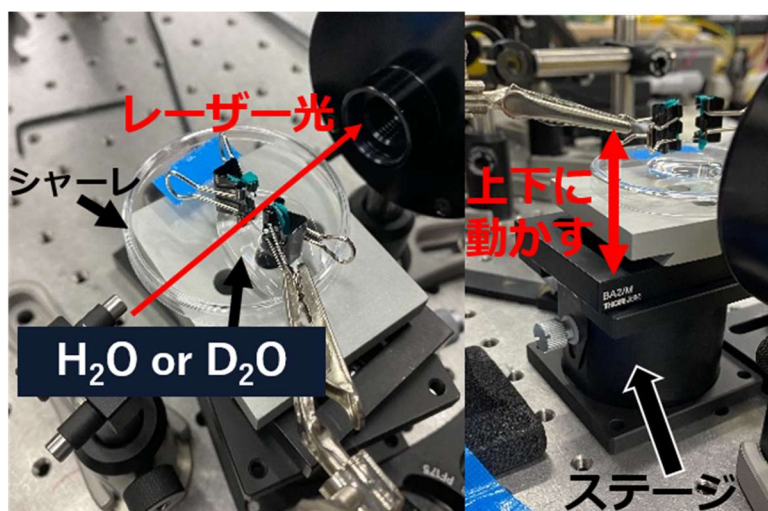
(a)

サンプルセル

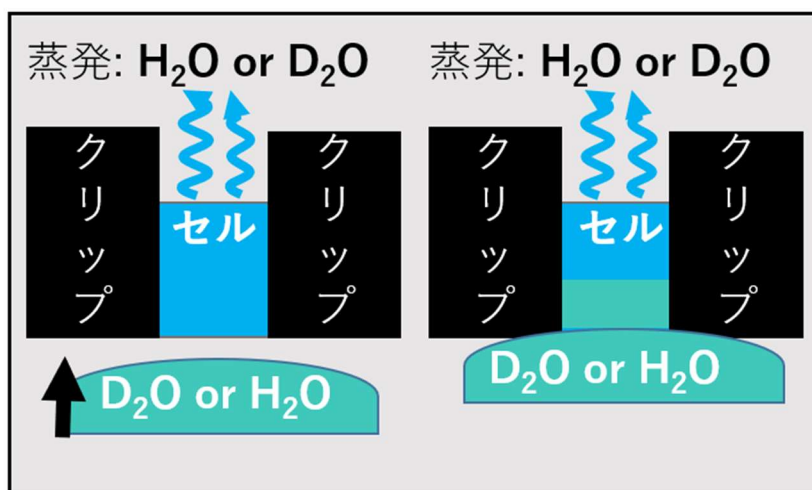


(b)

図 5-2 サンプルセルの作製方法: (a)二枚のサファイア基板を重ね合わせて、(b)クリップで挟み固定した。



(a)



(b)

図 5-3 セル内の水の水素同位体成分の変え方: (a)シャーレ上に H_2O あるいは D_2O を入れて上下するステージ上に載せて、セルの下辺に液体を接着させた。(b)接着している間、毛細管現象によってセル内へ液体が染み込み、一方で、セル上辺から先に満たされていた液体が蒸発することでセル内の水の水素同位体組成の動的な変化を模擬した。

5.1.2 レーザー出力の時間変化

図 5-4 が、セル内の水の水素同位体の種類を変えた時の Er:YAP CW レーザーの透過光出力時間変化の測定結果である。この結果より、同位体種の変化に伴って、セルを透過したレーザー光の出力が変化していることが分かる。セル内の試料が空気から H_2O に変化した時(①)、レーザー出力が、395 mW から 75 mW まで変化し、81%減少した。これは、 H_2O の波長 $3.0\ \mu\text{m}$ 帯の強い吸収によるものである。次に、 H_2O から D_2O へ変化した際(②)、出力が 93 mW から 180 mW に変化し、93%増加した。出力が増加した理由として、同位体の組成が H_2O から D_2O へ変化したことで、波長 $3.0\ \mu\text{m}$ 帯の吸収が減ったからである。最後に D_2O から H_2O へ変化した際(③)、出力が 175 mW から 107 mW まで減少し、これは H_2O に置換したことで波長 $3.0\ \mu\text{m}$ 帯での吸収が支配的になったからである。以上から、二種類の水の水素同位体の吸収の違いを中赤外レーザー計測から確認でき、また、同位体の組成が時間的に変化している様子をリアルタイムで測定できた。これより、波長 $2.92\ \mu\text{m}$ の Er:YAP レーザーを用いて水の水素同位体(H_2O と D_2O)の吸収の違いを見分けることが可能であると実証でき、トリチウム水計測への応用も期待できる結果が得られた。

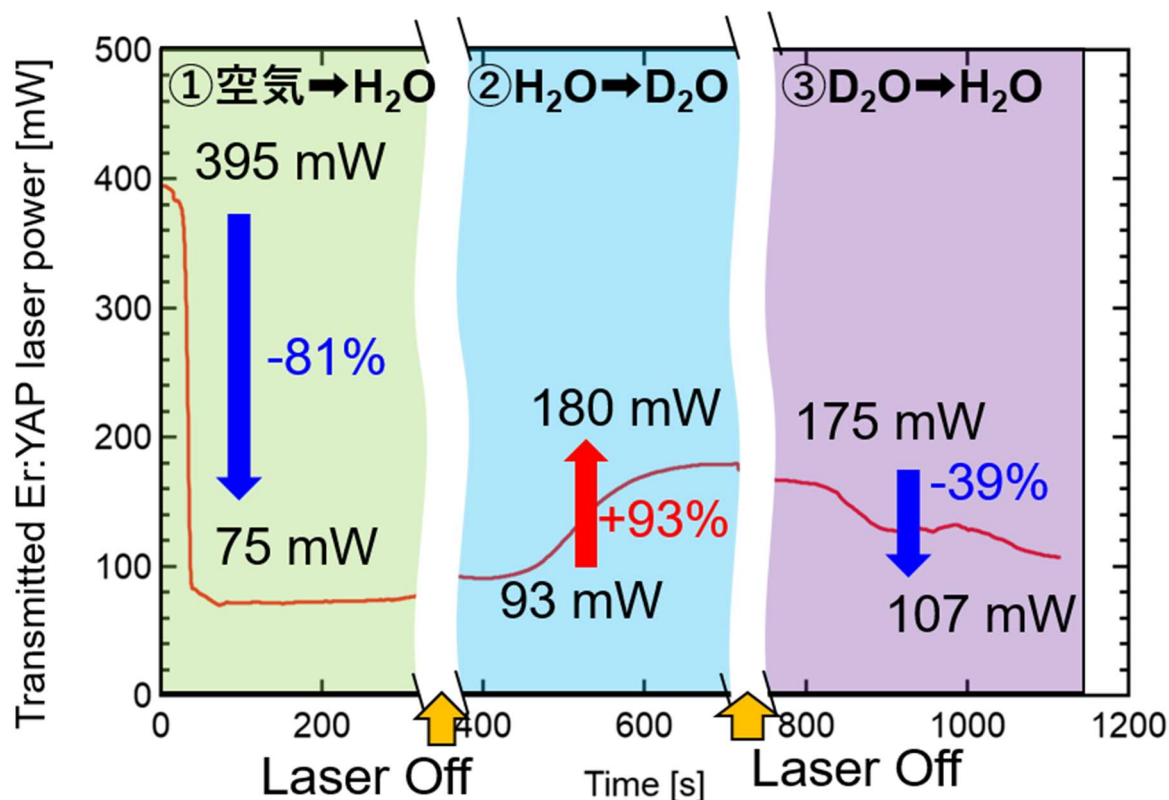


図 5-4 セル内の同位体の種類を変えた時の Er:YAP CW レーザー透過光出力時間変化

6. 総括

6.1 本論文におけるまとめ

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や可視化を実現すべく、計測用高出力中赤外固体レーザーを開発した。さらに、水の水素同位体計測の初期検証として、開発したレーザーを用いて軽水(H_2O)と重水(D_2O)の水の水素同位体計測を行い、同位体濃度の時間変化を追跡することに成功した。

計測用の波長 $3.0\ \mu\text{m}$ 帯レーザーの性能として、室温で安定にワットレベルでの発振、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。このような条件を満たした高出力 $3.0\ \mu\text{m}$ 帯レーザー光源として、Er:YAlO₃ 結晶(Er:YAP)をレーザー媒質に用いた半導体レーザー(LD)励起固体レーザーに着目した。Er:YAP 結晶の誘導放出断面積を評価したところ、波長 $3.0\ \mu\text{m}$ 帯において $3.0\text{--}24\times 10^{-20}\ \text{cm}^2$ の値が得られ、本結晶は、一般的に用いられている 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。LD 励起 Er:YAP 連続波(CW)レーザーの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ある。この発振方式の一つに、グラフェン可飽和吸収体を用いた受動 Q スイッチ発振があるが、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波長 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、変調度が大きい能動 Q スイッチ発振がある。この方式において、波長依存性が無く、安価で薄型な光学チョッパーを Q スイッチ素子として用いることで、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、変調周波数 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、大きな変調度が得られる光学チョッパーを用いて、波長 3.0 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。

パルス発振にした結果、CW レーザーに比べて 10 倍、20 倍の高出力化が実現でき、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。

続いて、開発したレーザーを用いて、水の水素同位体計測の検証実験を行った。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の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は、93%の増加、および 39%の減少を確認した。以上から、中赤外レーザーを用いた水の水素同位体種が動的に変化したときの吸収の違い・変化のリアルタイム計測を世界で初めて実証した。

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。

6.2 本研究の今後の課題と展望

中赤外レーザーによる水の水素同位体計測研究は、現状、開発した波長 3.0 μm Er:YAP レーザーによる軽水と重水の吸収特性の確認まで達成された。次の段階として、波長 3.0 μm と 4.0 μm の 2 波長のレーザーを使用し、 H_2O と D_2O の濃度計測を目指す。2 章で説明したように、2 波長使用することで、吸光度の情報が 2 種類得られ、求める H_2O と D_2O の濃度が 2 つであることから、2 波長に対応する吸光度の二式は、それぞれの濃度の 2 変数についての連立方程式となる。これをそれぞれの濃度について解くことで、 H_2O と D_2O の定量的な濃度の情報が得られる。そのため、 D_2O あるいは、 HDO 濃度の定量分析に向けた波長 3.0 μm と 4.0 μm の 2 波長のレーザーを使用した計測システムの開発を目指す。これを重水、軽水、あるいは混合溶液で行うためには、波長 4.0 μm のレーザーが必要である。2 章で挙げた波長 4.0 μm レーザー光源の候補である QCL を用いることで、2 波長レーザーによる濃度計測が期待できる。波長 4.0 μm レーザーを用いる場合、3.0 μm レーザーと同様に、使用波長における純水と重水の吸収特性を確認する。その後、2 波長のレーザーを用いて、純水および重水中の H_2O と D_2O の濃度測定を行う。さらに、 H_2O と D_2O の濃度比を変えて、計測システムの計測精度の確認を行う。さらに、レーザーで測定した出力の透過率と FTIR で測定したデータを比較し、計測精度を確認する。また、出力の時間変化から、セル内の水の水素同位体の移動速度を計算し、一方で、拡散方程式などを用いて、セル内の同位体の移動現象を再現することで、レーザー測定結果からセル内の同位体移動現象の情報の取得を目指す。また、天然水中の微量な HDO を測定するために、パワーメータより高感度な検出器を用いた計測システムの構築を目指す。検出器の候補として、バランス検出器が挙げられるが、中赤外用のバランス検出器は市販されていないため、中赤外領域において高感度な光検出器としてよく利用されている MCT(HgCdTe)検出器を用いて製作する必要がある。

さらに、レーザー光をレンズでファンアレイ状に拡げ、サンプルに照射し、透過光を測定することで水の水素同位体のイメージング計測が可能になる(図 6-1)。この測定によって、水の水素同位体の濃度の 2 次元測定が可能になり、これによって、空間中の水の水素同位体の動的な現象を 2 次元分布で視覚的に確認でき、同位体の空間的な偏在を定量的に議論することができるようになる。そのために、初期の実験として、 D_2O (あるいは HDO)を用いた 2 波長レーザーによるイメージング計測の原理実証が必要となる。

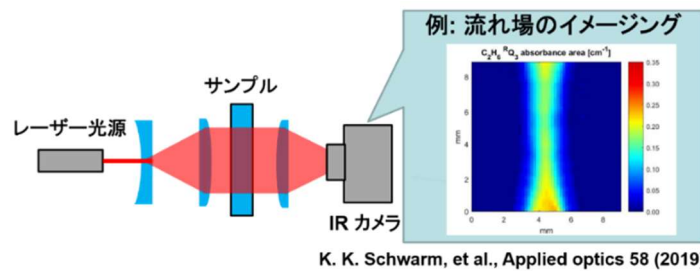


図 6-1 中赤外レーザーを用いた水の水素同位体のイメージング計測の実験体系: 例として挙げているイメージングの測定結果は、エタンの流れ場を表している[6-1]。

重水を測定した後、核融合分野への応用を目指し、トリチウム水の濃度測定を試みる。トリチウムは、波長 $4.4\ \mu\text{m}$ 付近に水酸基伸縮振動モードに起因した強い吸収がある。そのため、3 種類の水の水素同位体を計測するために、先の節で開発した計測システムに波長 $4.4\ \mu\text{m}$ レーザー光源を加えて計測を行う。波長 $4.4\ \mu\text{m}$ レーザー光源の候補として、波長 $4.4\ \mu\text{m}$ QCL を考えており、2021 年度の学振 DC2 の特別研究員奨励費で $4.4\ \mu\text{m}$ QCL を購入予定のため、本レーザーを購入し、計測システムの構築を進める。また、QCL は、最大出力が $1\ \text{W}$ 未満であるため QCL をシード光とし、それを Fe:ZnSe 結晶によって増幅することで高出力な波長 $4.0\text{--}4.4\ \mu\text{m}$ レーザー光源を作製する。これより、SN 比が改善し、より高感度な計測が期待できる。

また同様に、3 種類の波長を使用した計測システムの計測精度の確認のために、同位体混合比を変えて、FTIR で測定した透過スペクトルと測定したレーザーによる測定結果と比較し、レーザー測定の有効性を確認する。

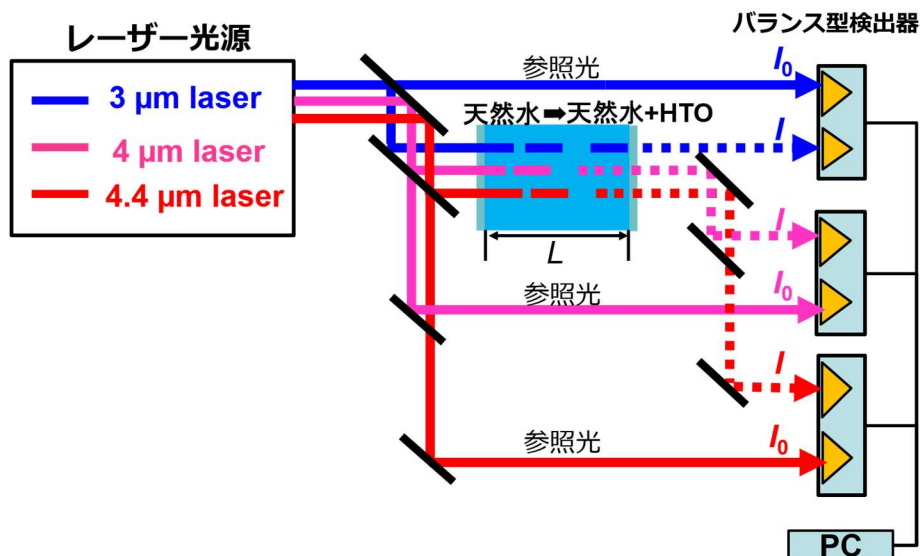


図 6-2 3 波長の中赤外レーザーによるトリチウム水計測システムの概念図

微小な信号を測定する場合、ノイズ・雑音によって信号が埋もれてしまうことがあるため、不要であるノイズの影響を取り除き、信号のみを取り出す必要がある。天然水中の微量な HDO やトリチウム水を測定する本計測システムでは、微小な光の強度変化を測定することになるため、信号に影響を及ぼすノイズを取り除く必要がある。ノイズには、前述したレーザー出力の変動によるノイズや検出器由来のコンモードノイズ、広い周波数成分を持つ熱ノイズ、電源からの特定の周波数を持つハムノイズなどがある。前述したように、出力変動によるノイズと検出器の回路固有のノイズは、バランス検出器によって打ち消すことができる。これに加えて、熱ノイズやハムノイズなどを除去することで、目的の信号から大幅にノイズ成分が取り除かれ、微小信号を精度よく検出でき、さらに高い SN 比で計測が可能になる。このノイズ除去の方法として、ローパスフィルタやノッチフィルタなどのアナログフィルタを使用し、特定の周波数以外を減衰させることで、目的の信号を取り出すことが可能である。しかし、狭くできるフィルタの帯域幅にも限界があるため、周波数値に近い複数のノイズを持つ信号から目的の信号のみを取り出すことが困難である。また、ノイズの周波数信号が変動する場合、フィルタの既定の周波数帯域から外れてしまい、減衰されなくなることもある。しかし、これらの影響を受けず、効果的にノイズを除去する方法として、特定の周波数成分の信号を取り出すロックインアンプがある。ロックインアンプは、交流の電圧や電流を測定し、同期検波という手法によって、直流成分のみの信号を取り出す計測器であり、図 6-3 の様な構成になっている。この方法では、測定信号と参照信号の二つを測定し、これらを掛け算器で積算し、特定の周波数成分を取り出す。その基本原理は、以下のように説明することができる。今、測定信号 V_s (式(6.1))と参照信号 V_r (式(6.2))を考える。測定信号 V_s は、周波数 f_1 の成分と周波数 $f_N (\neq f_1, f_2)$ を持つノイズ成分 V_N で表す。一方で、参照信号 V_r は、周波数 f_2 を持つ。

$$V_s = V_0 \sin(2\pi f_1 t) + V_N \quad (6.1)$$

$$V_r = \sin(2\pi f_2 t) \quad (6.2)$$

これらの信号を掛け算器によって積算すると、式(6.3)で書き表せる信号 V に変換される。

$$V = V_s \cdot V_r = \frac{V_0}{2} [\cos(2\pi t \cdot (f_1 - f_2)) - \cos(2\pi t \cdot (f_1 + f_2))] + V_N \cdot \sin(2\pi f_2 t) \quad (6.3)$$

ここで、 $f_1 = f_2 = f$ の場合、式(6.3)は、以下の式になる。

$$V = V_s \cdot V_r = \frac{V_0}{2} [1 - \cos(2\pi t \cdot 2f)] + V_N \cdot \sin(2\pi f t) \quad (6.4)$$

式(6.4)において、第一項は、直流成分 $V_0/2$ と交流成分で書き表せる。また、第二項では、 $f \neq f_N$ であるため、直流成分にならない。ここで、第一項の交流成分に注目すると、周波数が 2 倍になっており、周波数の変換が行われている。この信号から直流成分 $V_0/2$ をローパスフィルタによって、取り出すことができ、目的の信号を測定することが可能になる(図 6-4)。ここで、図 6-2 の測定系において、波長 $3.0\ \mu\text{m}$ のレーザーを本研究で開発した Q スイッチレーザーにし、パルスの繰り返し周波数で同期検出することによって、ノイズを大幅に低減し、微小な信号の変化をより精度よく測定することが期待される(図 6-5)。

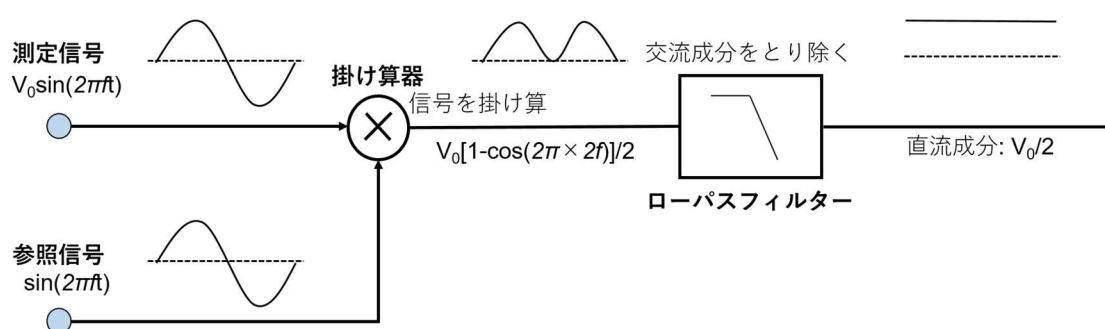


図 6-3 ロックインアンプの構成

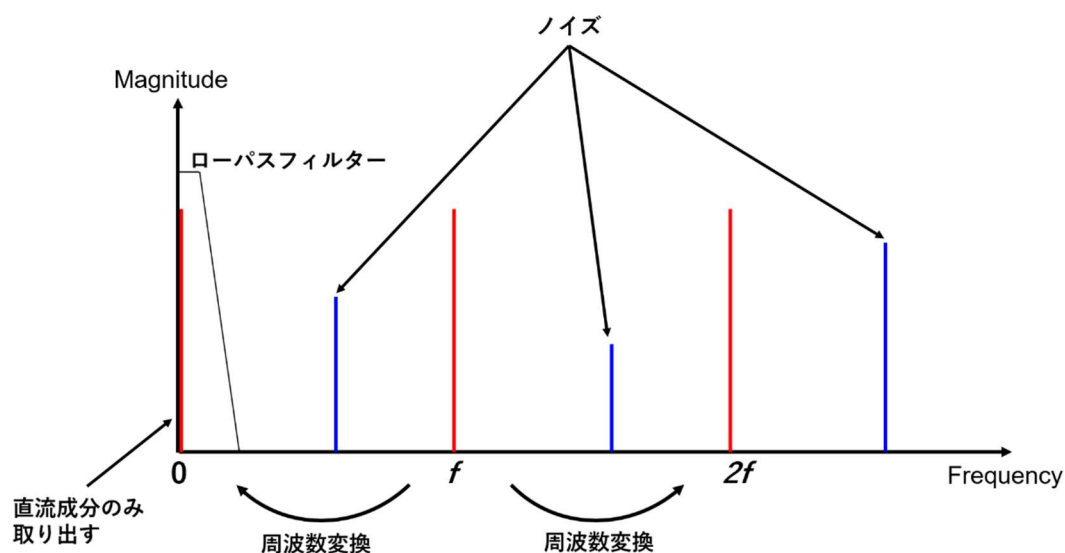


図 6-4 ローパスフィルタによる直流成分のみの取り出し。

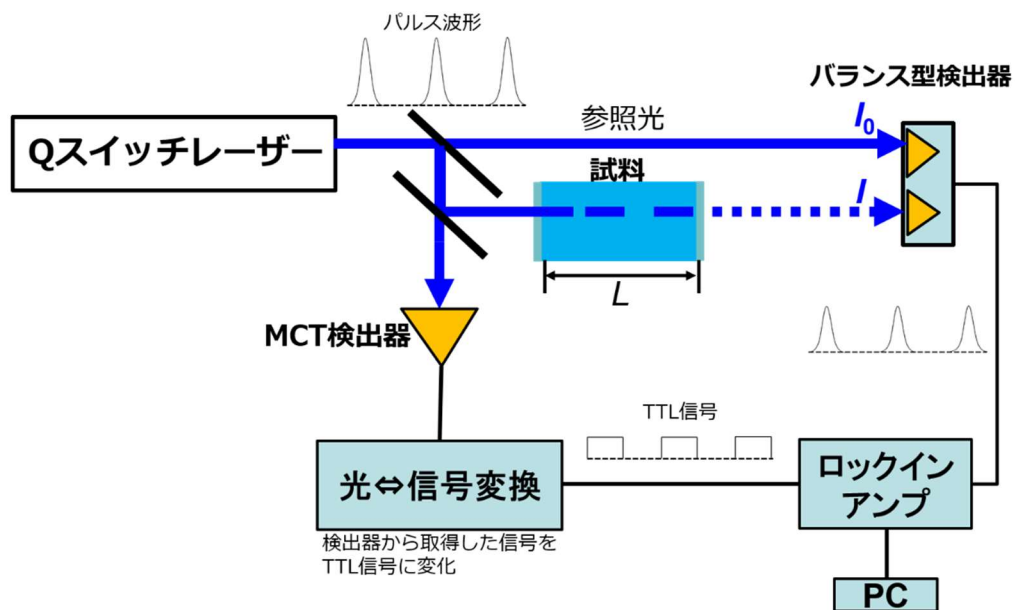


図 6-5 Q スイッチレーザーを用いた際の同位体計測システム。CW レーザーから Q スイッチレーザーにすることによって、繰り返し周波数でロックインアンプによる同期検出を行い、微小信号を計測する際のノイズを低減することが可能になる。

以上の計測方法を実証することで、地球科学において水の水素同位体がどのように移動、拡散、及び偏在していくかという問いに対して、定量的に答えることができるようになり、また、将来の核融合炉内において安全で簡便にトリチウム水を連続測定できることで核融合炉の実現に一步近づくことができる。

参考文献(第 6 章)

[6-1] K. K. Schwarm, C. Wei, D. I. Pineda, and R. M. Spearrin, *Applied optics*, **5** 5656 (2019).

謝辞

本研究を進めるにあたり、ご指導、並びにご鞭撻を賜りました、大学共同利用機関法人自然科学研究機構核融合科学研究所並びに国立大学法人総合研究大学院大学物理科学研究科核融合科学専攻 安原亮 准教授、上原日和 助教、徳澤季彦 准教授、小林真 助教には、謹んで感謝いたします。

本論文の執筆、及び研究を進めるにあたり、数多くの助言、及びご指導を頂きました核融合科学研究所 特任研究員 CHEN Hengjun 博士、YAO Weichao 博士、HiLASE レーザーセンター 主任研究員 Ondřej Slezák 博士に深く感謝いたします。

総合研究大学院大学物理科学研究科核融合科学専攻の村上泉 教授、後藤基志 准教授、豊田工業大学 藤貴夫 教授、千葉大学 宮本克彦 准教授には、本論文の審査を引き受けていただき、有意義なコメントをいただきましたこと、厚くお礼申し上げます。

大阪大学レーザー科学研究所並びに工学研究科電気電子情報通信工学専攻 時田茂樹 講師には、グラフェン Q スイッチ Er:YAP レーザー開発に際し、ご協力いただきましたこと深く感謝いたします。

HiLASE レーザーセンター 主任研究員 Ondřej Slezák 博士、HiLASE レーザーセンター並びにチェコ工科大学 David Vojna 氏、Martin Duda 氏には、チェコ滞在中、研究並びに私生活において大変お世話になりました。

核融合科学研究所の後藤勇樹 助教、総合研究大学院大学 正木伸吾氏、山口敬済氏、山下東洋氏、九州大学大学院総合理工学府先端エネルギー理工学専攻 木下稔基氏には、公私ともに大変お世話になりました。

高温プラズマ物理研究系の事務の入野多佳美様、大学院連携系の河合小奈恵様、増田優様、秋山佳央里様、元大学院連携係の大川純様、池田和生様、篠原智恵子様、安藤志保美様には、大学院在学中に多くの事務手続き等の支援くださりまして誠にありがとうございました。

本研究は JSPS 科研費 JP20J15317 の助成を受けたものです。

本研究を遂行するにあたり、竹入康彦核融合科学研究所長・総合研究大学院大学物理科学研究科核融合科学専攻長、榊原悟 教授・総合研究大学院大学物理科学研究科核融合科学副

専攻長のご指導・ご協力に深く感謝いたします。

最後に、5年間支えてくださいました両親に心より感謝いたします。

研究業績

学術雑誌に投稿した第一著者査読付き論文(3 本)

※①著者名、②論文名、③学術雑誌名、④発行日、⑤巻、ページ数

1. ①Hiroki Kawase, Ryo Yasuhara, ②「2.92- μ m high-efficiency continuous-wave laser operation of diode-pumped Er:YAP crystal at room temperature」, ③「Optics Express」, ④ (2019 年 04 月 17 日) , ⑤Vol. 27, pp. 12213-12220.
2. ①Hiroki Kawase, Hiyori Uehara, Hengjun Chen, and Ryo Yasuhara, ②「Passively Q-switched 2.9 μ m Er:YAP single crystal laser using graphene saturable absorber」, ③「Applied Physics Express」, ④ (2019 年 09 月 05 日) , ⑤Vol. 12, pp. 102006-10209.
3. ①Hiroki Kawase, Hiyori Uehara, Weichao Yao, Hengjun Chen, and Ryo Yasuhara, ②「Optical chopper based mechanically Q-switched $\sim 3 \mu$ m Er:YAP single crystal laser」, ③「Japanese Journal of Applied Physics」, ④ (2020 年 12 月 09 日) , ⑤Vol. 60, pp. 012002-012005.

学術雑誌に投稿した共著者査読付き論文(1 本)

1. ①Weichao Yao, Hiyori Uehara, Hiroki Kawase, Hengjun Chen, and Ryo Yasuhara, ②「Highly efficient Er:YAP laser with 6.9 W of output power at 2920 nm」, ③「Optics Express」, ④ (2020 年 06 月 10 日) , ⑤Vol. 13, pp. 19000-19007.

本論文に関する国際会議発表(3 件)

1. (ポスター): H. Kawase and R. Yasuhara, 「A watt-level efficient continuous wave Er:YAP laser at 2.92 μm 」, 『Advanced Solid State Lasers 2018』, AM6A.31, Boston, United States (November 2018)
2. (口頭発表): H. Kawase and R. Yasuhara, 「Efficient continuous-wave operation of Er:YAP single crystal laser at 2.92 μm 」, 『The 8th Advanced Lasers and Photon Sources』, ALPS-15-03, Yokohama, Japan, (April 2019)
3. (口頭発表): H. Kawase, H. Uehara, and R. Yasuhara, 「Passively Q-switched Er:YAP Single Crystal Laser at 2.92 μm using Graphene Saturable Absorber」, 『CLEO/Europe-EQEC』, CA-10.5, Munich, Germany, (June 2019)

本論文に関する国内会議発表(3 件)

1. (口頭発表): 河瀬広樹、安原亮、「2.92 μm 半導体レーザー励起 Er:YAP 連続波レーザー」、『第 79 回応用物理学会秋季学術講演会』、19a-431B-5、名古屋、2018 年 9 月
2. (口頭発表): 河瀬広樹、安原亮、「半導体レーザー励起による 2.92 μm Er:YAP 連続波レーザーの開発」、『レーザー学会学術講演会第 39 回年次大会』、13aVII-3、東京、2019 年 1 月
3. (口頭発表): 河瀬広樹、上原日和、安原亮、「グラフェン可飽和吸収体を用いた 2.9 μm 帯受動 Q スイッチ Er:YAP レーザー」、『第 80 回応用物理学会秋季学術講演会』、20p-E203-13、北海道、2019 年 9 月

外部資金獲得

1. 令和 2 年度～平成 3 年度 特別研究員奨励費
研究課題名: 「中赤外レーザーの高出力化と環境計測応用」