

氏 名 田丸 裕基

学位(専攻分野) 博士(工学)

学位記番号 総研大甲第 2391 号

学位授与の日付 2023 年 3 月 24 日

学位授与の要件 物理科学研究科 核融合科学専攻
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 レーザー誘起蛍光法の高性能化に向けた深紫外レーザー基
盤技術研究

論文審査委員 主 査 村上 泉
核融合科学専攻 教授
安原 亮
核融合科学専攻 准教授
本島 巖
核融合科学専攻 准教授
時田 茂樹
京都大学 化学研究所 教授
東口 武史
宇都宮大学 工学部 教授

(様式3)

博士論文の要旨

氏 名 田丸 裕基

論文題目 レーザー誘起蛍光法の高性能化に向けた深紫外レーザー基盤技術研究

核融合装置において、中性粒子はプラズマ加熱やダイバータ板への熱負荷を緩和するための非接触プラズマとして利用されており、その絶対密度および温度を直接計測することは重要である。その中でも、高速な現象を観測できる時間分解能および局所的な分布を観測できる空間分解能を両立した計測法が望ましい。高い空間分解能を持つ計測法としてレーザー誘起蛍光法(Laser Induced Fluorescence, LIF)、2光子吸収レーザー誘起蛍光法(Two-photon Absorption LIF, TALIF)がある。この方法は、測定対象の粒子をレーザー光によって基底準位から励起準位へ光励起、励起準位から下の準位に自然放出遷移の際の蛍光を観測することによって絶対密度および温度を導出する。レーザー光によって局所的な領域を励起することが可能であるため高い空間分解能を持ち、時間分解能はレーザー光源の繰り返し周波数によって決定される。水素や窒素といった軽元素原子の励起波長は LIF の場合は、200 nm 以下とレーザー光の発生が困難で大気吸収が存在する真空紫外領域となってしまう。一方、TALIF においては、励起波長が LIF に比べて2倍であり、水素の場合 205.14 nm、窒素の場合 206.65 nm と、非線形光学結晶による波長変換で発生が可能な深紫外領域になる。しかしながら深紫外領域においても、その短波長に伴う光源と光学素子にそれぞれ課題が存在している。これまでの水素や窒素における TALIF 計測用光源として、主に色素レーザーの波長変換が用いられてきた。色素レーザーは、高出力化及び波長可変性がメリットである一方、レーザー発振に伴う色素の劣化、定期交換が避けられず、それによって繰り返し周波数が典型的には 10 Hz 程度であり、時間分解能の律速となっている。加えて深紫外領域においては、透明な媒質が少ないことから、可視光領域で一般的な光学素子の一部が未開拓である。その中でも、光学素子等からの戻り光を防ぐことが可能な光アイソレータおよびファラデー回転子は重要な光学素子の1種であるが深紫外領域においては未実現であり、深紫外光源を用いた計測法や光学系の応用の幅を制限している。

本研究では、水素や窒素の TALIF 計測の高度化を目指して波長 205 nm 帯における高繰り返し光源および、光アイソレータ用ファラデー回転子のそれぞれの実証を行った。高繰り返し深紫外光源の実現のために、これまでの色素レーザーの波長変換方式ではなく、波長 1025 nm 帯のファイバーレーザーを種光とした波長変換方式を構築した。ファイバーレーザーは産業用途でも広く使用されており、高繰り返し周波数と長期安定性を両立する一方、1パルスあたりのエネルギーが弱く、波長変換を行うことは難しいため、レーザー増幅による高出力化が必要である。レーザー増幅用の媒質として、検討の結果、波長 1025~1040 nm と広い帯域を持つ Yb:KGW 結晶を採用した。また増幅方式として、増幅媒質を共振器内に配置、ポッケルスセルによって光を共振器内に閉じ込め、多数回増幅の後に再び共振器から取り出す再生増幅器を用いることで高効率な増幅を目指した。設計お

よび構築を行った再生増幅器から得られた増幅光は繰り返し周波数が 1 kHz、平均パワーは 100 mW を超えた。得られた増幅光を 3 回の波長変換によって深紫外光を発生させたところ波長が 206-207 nm 可変でパルス幅が 4.4 ns、出力 3 mW を得た。増幅光から深紫外光への波長変換の効率は、各非線形結晶における集光強度を適切に調整することによって過去に報告された類似研究における効率を超える 3%程度であった。得られた出力から予測される集光強度は、TALIF 計測に必要とされる値に対して十分であり、1 kHz の高繰り返し光源を用いた TALIF 計測が実現可能となった。

次に、深紫外領域において未開拓である光アイソレータ、ファラデー回転子の研究を行った。ファラデー効果に基づくこれらの素子は、深紫外領域において適切な材料を見出すことで実現可能であり、本博士論文において、その候補材料(ファラデー材料)の選定および評価を行った。ファラデー材料は、①使用する波長領域において透明、②磁気光学特性(ヴェルデ定数)が高いこと、③熱的特性が良好であることの3つの性能のバランスが取れている材料を選定することが重要である。ヴェルデ定数は、ファラデー効果の強さを表す指標であり、磁性によって特性が決まり、吸収端に近づく短波長領域で急峻に値が大きくなる。この特徴から深紫外領域で透明で、吸収端が波長 155 nm とその領域の近傍に存在する合成石英を候補材料として選定、そのヴェルデ定数の波長依存性を評価した。得られたヴェルデ定数は波長 205 nm において -56.7 rad/Tm であり、これは光アイソレータ用ファラデー回転子を実現可能な値である。また、ヴェルデ定数の波長依存性の理論式との比較を行い、吸収端に近い深紫外領域においてもその振る舞いが説明可能であることを明らかにした。合成石英に加えて、その他の候補材料として $\text{LiY}_{1-x}\text{Er}_x\text{F}_4$ (Er:YLF) 結晶およびフッ化マグネシウム (MgF_2) 結晶を選定した。Er:YLF 結晶は、合成石英に比べて、5 W/mK と高い熱伝導率を示し、高出力なレーザー動作下においても良好な熱的特性が見込まれる。15%ドープの Er:YLF 結晶におけるヴェルデ定数は、45.0 rad/Tm と、高い値を示した。また Er が添加されていない LiYF_4 (YLF) 結晶のヴェルデ定数を評価し、-31.9 rad/Tm を得た。YLF 結晶は反磁性体だが、希土類である Er は常磁性体であり、15%ドープ Er:YLF 結晶は常磁性体と反磁性体の寄与項が混在しており、その割合からヴェルデ定数が説明できることを明らかにした。また吸収端が波長 110 nm と短いことから MgF_2 を選定、そのヴェルデ定数は -32.2 rad/Tm を示した。十分なヴェルデ定数に加えて、短い吸収端から、 MgF_2 は深紫外領域に留まらず真空紫外領域においても、ファラデー材料として有望であることが示された。上記 3 種類の候補材料の選定、評価から、これまで未実現であった深紫外領域および真空紫外領域において光アイソレータ/ファラデー回転子を実現された。

以上の結果より、高繰り返し深紫外光源および光アイソレータ/ファラデー回転子を実現されたが、この技術によって中性粒子密度の高時間分解能 TALIF 計測が可能となる。また深紫外光源については、TALIF 計測用に留まらず、短波長の利点を用いたレーザー加工や分光、半導体検査用光源などへの応用も期待される。加えて、2 つの技術を組み合わせることによって、これまで実現不可能な光学系であった計測領域を複数回レーザー光で励起する multi-pass TALIF 計測が可能となる。この方式は得られる TALIF 信号強度が増大されるため、これまで要求されてきた TALIF 光源のパルスエネルギーを減少だけでなく信号の SN 比の向上といった、TALIF 計測のさらなる高度化につながる指針となる。

博士論文審査結果

Name in Full
氏 名 田丸 裕基Title
論文題目 レーザー誘起蛍光法の高性能化に向けた深紫外レーザー基盤技術研究

核融合装置において、中性粒子はプラズマ加熱やダイバータ板への熱負荷を緩和するために主要な役割を持ち、その絶対密度および温度の直接計測は重要である。その中でも、高速な現象を観測できる時間分解能および局所的な分布を観測できる空間分解能を両立した計測法が望ましい。高い空間分解能を持つ計測法としてレーザー誘起蛍光法(Laser Induced Fluorescence, LIF)、2光子吸収レーザー誘起蛍光法(Two-photon Absorption LIF, TALIF)がある。この方法は、測定対象の粒子をレーザー光によって基底準位から励起準位へ光励起、励起準位から下の準位に自然放出遷移の際の蛍光を観測することによって絶対密度および温度を導出する。レーザー光によって局所的な領域を励起することが可能であるため高い空間分解能を持ち、時間分解能はレーザー光源の繰り返し周波数によって決定される。水素や窒素といった軽元素原子の励起波長は LIF の場合は、200 nm 以下とレーザー光の発生が困難で大気吸収が存在する真空紫外領域となってしまう。一方、TALIF においては、励起波長が LIF に比べて 2 倍であり、水素の場合 205.14 nm、窒素の場合 206.65 nm と、非線形光学結晶による波長変換で発生が可能な深紫外領域になる。しかしながら深紫外領域においても、光源と光学素子にそれぞれ短波長用途に伴う課題が存在している。これまでの水素や窒素における TALIF 計測用光源として、主に色素レーザーの波長変換が用いられてきた。色素レーザーは、高出力化及び波長可変性がメリットである一方、レーザー発振に伴う色素の劣化、定期交換が避けられず、それらを抑えるため繰り返し周波数が典型的には 10 Hz 程度に留まり、時間分解能の律速となっている。加えて深紫外領域においては、透明な媒質が少ないことから、可視光領域で一般的な光学素子の一部が未開拓である。その中でも、光学素子等からの戻り光を防ぐことが可能な光アイソレータおよびファラデー回転子は重要な光学素子の一種であるが深紫外領域においては未実現であり、深紫外光源を用いた計測法や光学系の応用の幅を制限している。

本研究では、水素や窒素の TALIF 計測の高度化を目指して波長 205 nm 帯における高繰り返し光源および、光アイソレータ用ファラデー回転子のそれぞれの実証を行った。高繰り返し深紫外光源の実現のために、これまでの色素レーザーの波長変換方式ではなく、波長 1025 nm 帯のファイバーレーザーを種光とした波長変換方式を構築した。ファイバーレーザーは産業用途でも広く使用されており、高繰り返し周波数と長期安定性を両立する一方、1パルスあたりのエネルギーが弱く、波長変換を行うことは難しいため、レーザー増幅による高出力化が必要である。レーザー増幅用の媒質として、検討の結果、波長 1025~1040 nm と広い帯域を持つ Yb:KGW 結晶を採用した。また増幅方式として、増幅媒質を共振器内に配置、ポッケルスセルによって光を共振器内に閉じ込め、多数回増幅の後に再び共振器から取り出す再生増幅器を用いることで高効率な増幅を目指した。設計お

よび構築を行った再生増幅器から得られた増幅光は繰り返し周波数が 1 kHz、平均パワーは 100 mW を超えた。得られた増幅光を 3 回の波長変換によって深紫外光を発生させたところ波長が 206-207 nm 可変でパルス幅が 4.4 ns、出力 3 mW を得た。増幅光から深紫外光への波長変換の効率は、各非線形結晶における集光強度を適切に調整することによって過去に報告された類似研究における効率を超える 3%程度であった。得られた出力から予測される集光強度は、TALIF 計測に必要なとされる値に対して十分であり、1 kHz の高繰り返し光源を用いた TALIF 計測が実現可能となった。

次に、深紫外領域において未開拓である光アイソレータ、ファラデー回転子の研究を行った。ファラデー効果に基づくこれらの素子は、深紫外領域において適切な材料を見出すことで実現可能であり、本博士論文において、その候補材料(ファラデー材料)の選定および評価を行った。ファラデー材料は、①使用する波長領域において透明、②磁気光学特性(ヴェルデ定数)が高いこと、③熱的特性が良好であることの 3 つの性能のバランスが取れている材料を選定することが重要である。ヴェルデ定数は、ファラデー効果の強さを表す指標であり、磁性によって特性が決まり、吸収端に近づく短波長領域で急峻に値が大きくなる。この特徴から深紫外領域で透明で、吸収端が波長 155 nm とその領域の近傍に存在する合成石英を候補材料として選定、そのヴェルデ定数の波長依存性を評価した。得られたヴェルデ定数は波長 205 nm において -56.7 rad/Tm であり、これは光アイソレータ用ファラデー回転子を実現可能な値である。また、ヴェルデ定数の波長依存性の理論式との比較を行い、吸収端に近い深紫外領域においてもその振る舞いが説明可能であることを明らかにした。合成石英に加えて、その他の候補材料として $\text{LiY}_{1-x}\text{Er}_x\text{F}_4(\text{Er}:\text{YLF})$ 結晶およびフッ化マグネシウム(MgF_2)結晶を選定した。 $\text{Er}:\text{YLF}$ 結晶は、合成石英に比べて、5 W/mK と高い熱伝導率を示し、高出力なレーザー動作下においても良好な熱的特性が見込まれる。15% ドープの $\text{Er}:\text{YLF}$ 結晶におけるヴェルデ定数は、45.0 rad/Tm と、高い値を示した。また Er が添加されていない $\text{LiYF}_4(\text{YLF})$ 結晶のヴェルデ定数を評価し、-31.9 rad/Tm を得た。 YLF 結晶は反磁性体だが、希土類である Er は常磁性体であり、15% ドープ $\text{Er}:\text{YLF}$ 結晶は常磁性体と反磁性体の寄与項が混在しており、その割合からヴェルデ定数が説明できることを明らかにした。また吸収端が波長 110 nm と短いことから MgF_2 を選定、そのヴェルデ定数は -32.2 rad/Tm を示した。十分なヴェルデ定数に加えて、短い吸収端から、 MgF_2 は深紫外領域に留まらず真空紫外領域においても、ファラデー材料として有望であることが示された。以上より、上記 3 種類の候補材料の選定、評価から、これまで未実現であった深紫外領域および真空紫外領域において光アイソレータ/ファラデー回転子を実現された。本技術は光アイソレータ応用のみならず、これまで実現不可能な光学系であった計測領域を複数回レーザー光で励起する multi-pass TALIF 計測を可能とする。本方式では得られる TALIF 信号強度が増大される。これまで要求されてきた TALIF 光源のパルスエネルギーに対する要求を緩和させるだけでなく、信号ノイズ比の向上といった、TALIF 計測のさらなる高度化につながる設計が可能となる。

これらの成果に基づいて、審査委員会は、本論文が学位の授与に値すると判断した。