

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

田丸 裕基

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 4 (2022) 年度

# 内容

第 1 章 序論.....	6
1.1 研究背景.....	6
1.1.1 中性粒子密度および温度の計測.....	6
1.1.2 レーザー誘起蛍光法.....	8
1.2 深紫外領域における研究状況.....	12
1.2.1 レーザー誘起蛍光法用深紫外光源の研究状況.....	12
1.2.2 高繰り返し周波数深紫外光源の研究状況.....	13
1.2.3 深紫外領域における光アイソレータおよびファラデー回転子の研究状況.....	14
1.3 核融合分野におけるレーザー誘起蛍光法による中性粒子計測.....	15
1.3.1 これまでに報告されてきたレーザー誘起蛍光法による中性粒子計測.....	15
1.3.2 レーザー誘起蛍光法による中性粒子密度の計測.....	16
1.3.3 レーザー誘起蛍光法による中性粒子温度の計測.....	17
1.4 本研究の目的と本論文の構成.....	18
第 2 章 高繰り返し深紫外光源の発生方法の検討.....	20
2.1 はじめに.....	20

2.2 高繰り返し深紫外光源の発生方法のスキーム検討.....	20
2.3 高繰り返し種光の発生.....	25
2.4 増幅方式の検討.....	26
2.4.1 レーザー増幅.....	26
2.4.2 再生増幅器.....	27
2.4.3 レーザー媒質の検討.....	28
2.5 波長変換方式の検討.....	29
2.5.1 非線形結晶を用いた波長変換.....	29
2.5.2 位相整合.....	30
2.5.2 深紫外光発生用非線形結晶の検討.....	32
第 3 章 高繰り返し深紫外光源の開発.....	35
3.1 はじめに.....	35
3.2 高繰り返し種光の評価結果.....	35
3.3 Yb:KGW を用いた再生増幅.....	37
3.3.1 再生増幅器構築に向けた共振器の構築.....	37
3.3.2 再生増幅器による種光の増幅結果.....	39

3.4 波長変換による深紫外光発生 .....	44
3.4.1 2倍波発生 .....	44
3.4.2 4倍波発生 .....	46
3.4.3 5倍波発生 .....	47
3.5 まとめ .....	50
第4章 光アイソレータおよびファラデー回転子の諸原理 .....	51
4.1 はじめに .....	51
4.2 ファラデー効果 .....	51
4.2.1 ファラデー効果による偏光面の回転 .....	51
4.2.2 ヴェルデ定数 .....	55
4.2.3 ヴェルデ定数の波長依存性モデル .....	56
4.3 ファラデー効果に基づく光アイソレータ .....	58
第5章 深紫外領域における光アイソレータの研究 .....	61
5.1 はじめに .....	61
5.2 候補材料の選定 .....	61
5.2.1 光アイソレータ用候補材料に要求される性能 .....	61

5.2.2 選定した候補材料.....	62
5.3 ヴェルデ定数の評価光学系.....	65
5.4 候補材料の評価結果および考察.....	67
5.4.1 合成石英.....	67
5.4.2 $\text{LiY}_{1-x}\text{Er}_x\text{F}_4$ .....	71
5.4.3 フッ化マグネシウム.....	74
5.5 まとめ.....	76
第6章 総括.....	78
6.1 本論文におけるまとめ.....	78
6.2 本研究の今後の課題と展望.....	79
謝辞.....	83
参考文献.....	84
研究業績.....	93

# 第 1 章 序論

## 1.1 研究背景

### 1.1.1 中性粒子密度および温度の計測

電荷をもたない粒子である中性粒子(Neutral particle)は、核融合実験装置において重要な役割を果たしている。例えば、核融合科学研究所において研究がおこなわれている大型ヘリカル装置(Large Helical Device: LHD) [1]に代表される核融合装置においても中性粒子は活用されている。図 1-1 に LHD の外観図を示す。LHD においては、高速な中性水素原子ビームをプラズマに入射させることで、そのエネルギーによってプラズマ中のイオンや電子を加熱する中性粒子ビーム入射(Neutral Beam Injection: NBI) [2]や、ダイバータへの熱負荷を抑えるために高温プラズマがダイバータへ流入する前に、プラズマと中性ガスとの相互作用によってプラズマ熱負荷を低減させる非接触プラズマ(Detached Plasma)に由来する中性粒子 [3,4]が存在している。この中性粒子の密度や温度といった物理量を評価することは、核融合装置内の振る舞いを理解する上で需要であり、これまでも核融合装置内の中性粒子密度や温度の計測が試みられてきた。その中でも局所的な現象を観測することが可能な空間分解能と、高速な現象が観測できる時間分解能、この 2 つの分解能を両立するような計測方法が望ましいと言える。初期のプラズマ計測装置としては、静電プローブが用いられてきた [5]。しかしながら核融合プラズマのような非常に高温なプラズマの場合、プローブの損傷が避けることができず、またプローブ自体が不純物となり計測結果に変化を与えてしまうために、非接触な計測が望ましい。従来最もよく使われてきた非接触の計測方法は、プラズマからの自発光を分光器によって分光することによってその情報を求める Optical Emission Spectroscopy(OES)である [6-8]。この手法は、求めたい粒子の発光スペクトルが既知であれば、様々な原子の相対密度や温度を計測することが可能な手法である。一方、絶対密度を求めるためには、計測結果に加えて Collisional Radiative Model(CRM)等のシミュレーション結果との組み合わせが必要だが、このモデルには電子分布の情報が必要であり、別の計測法による結果を用いる必要がある [9]。またこの OES は、一般的には得られる発光が線積分されて分光器に届いてしまうため空間分解能を向上させることが難しい。近年、京都大学の Fujii らは、LHD から計測された水素原子の  $H_{\alpha}$  線スペクトルを高精度に分光することによって空間的な中性粒子密度を得る手法を開発した [10,11]。この方法は、高波長分解能な分光器によってスペクトルを分光することによって、図 1-2 のようなスペクトルを得ている。このスペクトル形状は、ガウス関数と異なる裾の広がったスペクトル形状を示しており、この裾形状を含めた  $H_{\alpha}$  スペクトルが、複数の温度領域で荷電交換衝突によって生成された成分の足し合わせによるモデルによって説明が可能なことを示した。このスペクトルから得られた情報に加えて、別途他の手法で計

測されたイオン温度の空間分布を考慮することによって図 1- 3 のように水素原子密度の中性粒子密度分布を求めた。このような手法によって OES においても空間分解能を向上させることが可能である。この OES の時間分解能は、分光器のフレームレートによって決定される。例えば、前述の Fujii らの研究においては、分光器内の CMOS センサーの時間分解能が 13 ms であることが報告されている。原理上は、このセンサーのフレームレートを上げることによって時間分解能を高めることによって、時間分解能を上げることが可能になるが、より高速なカメラ等を用いる場合は、感度が悪くなってしまい S/N の悪化に伴い計測が困難になってしまうなどの問題が生じてしまう。上記のような OES における特性を空間・時間分解能の観点からまとめると、

- ・空間分解能：これまでの手法においては向上が難しく、近年開発された方法においてもシミュレーションとの組み合わせが必要

- ・時間分解能：分光器内のカメラのフレームレートによって決定されるが高速カメラを使うと感度が悪くなってしまう

となる。

上記のような観点より、空間・時間分解能を両立、かつ密度や温度の情報を導出するためにシミュレーションが不要かつ直接的に中性粒子の情報を計測できる方法があれば、様々な条件下の計測に対応することが可能となるために望ましい。



図 1- 1. LHD の外観図

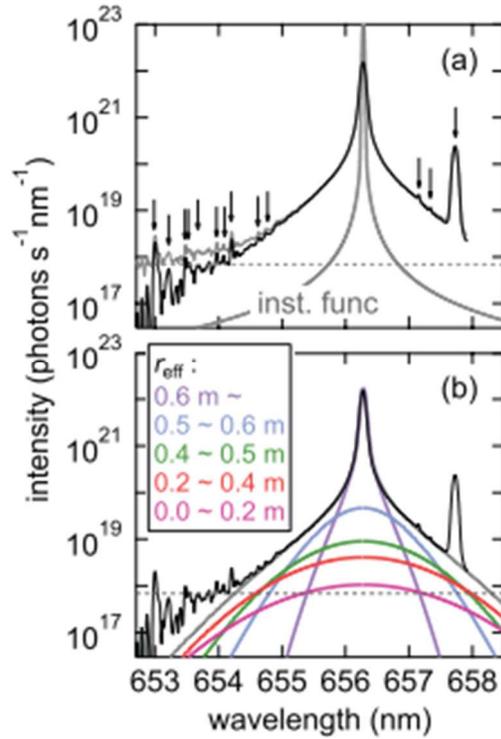


図 1-2. 高分解能分光器によって得られた LHD プラズマに対する  $H_\alpha$  スペクトル [11]

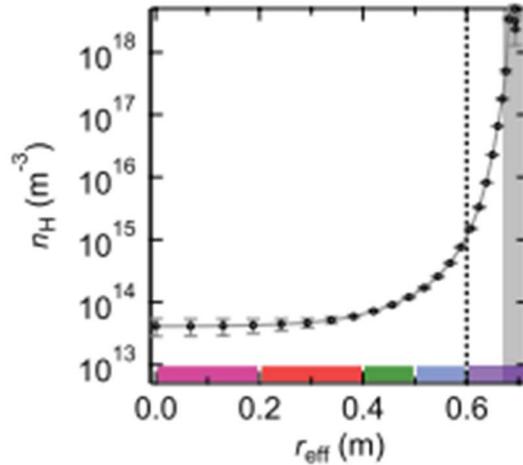


図 1-3. 観測されたスペクトル密度から見積もられた水素中性粒子密度分布 [11]

### 1.1.2 レーザー誘起蛍光法

レーザー誘起蛍光法 (Laser Induced Fluorescence: LIF) は、基底準位と特定の上準位とのエネルギーに相当するレーザー光を照射することによって特定の粒子を励起、上準位からの緩和過程の際に放射される蛍光の強度などから、その粒子に関する情報を導出するという方法である [12]。図 1-4 に、一例として水素原子の LIF モデルを示す。基底準位にあ

る原子は、波長 102.57 nm の光を吸収して、上準位に励起される。上準位に励起された原子は不安定であるために、下の準位に緩和される際に、バルマー系列である  $H_{\alpha}$  線である波長 656 nm の蛍光を発する過程を経て、再び基底状態へ戻る。この波長 656 nm の蛍光を観測することによって密度や温度の情報を得るという計測法である。LIF の特徴としては、i) 対象の粒子の励起準位エネルギーと入射光レーザー光子のエネルギーが一致したときのみ信号が得られる、つまり特定の粒子の選択的な励起および計測が可能である。加えて ii) 得られる蛍光信号強度をフォトダイオードや PMT (Photomultiplier tube, 光電子増倍管) 等で計測することで絶対密度の情報を得ることが可能であり、分光器を用いて波長分解計測をする必要がないため、時間分解能はレーザーの繰り返し周波数によって決定される。つまり高繰り返しで動作するレーザーを用いることで、OES に比べて高い時間分解能を得ることが可能である。また、空間分解能は、レーザーを対象領域に集光することによって領域を選択的に励起することが可能になるため、高い空間分解能を得ることが可能であり、レーザー光を空間的にスキャンすることで空間的な分布を得ることができる [13]。上記のような LIF における特性を空間・時間分解能の観点からまとめると、

- ・空間分解能：典型的にはサブミリオーダー程度(レーザーの集光径等の条件に依存)
- ・時間分解能：レーザーの繰り返し周波数に依存

となり、レーザーの高繰り返し化が達成できれば、高空間/時間分解能を両立することが可能である。一方、LIF の課題としては、励起波長に要求される光源の波長が短波長領域であるという点である。表 1-1 にいくつかの対象粒子の LIF に必要な励起波長および蛍光波長の関係性を示したものである。水素や窒素といった軽元素原子の励起波長は、波長 102~112 nm という波長 200 nm を切るような真空紫外領域(Vacuum-ultraviolet: VUV, 波長 100~200 nm)と呼ばれる短波長領域である。この真空紫外領域は、大気中の吸収が存在するため真空装置の中でしか伝搬することができず、またその高い光子エネルギーから発生自体が困難な領域として知られている。VUV 領域で発振するレーザーとして、希ガスハライドエキシマレーザー、希ガスエキシマレーザーといったものが存在する。希ガスハライドエキシマレーザーとは、希ガス(Ar, Kr, Xe)とハロゲン(F, Cl, Br)が励起状態で結合したエキシマ(Excited Dimer)を用いることによって発振することが可能なレーザーである。なかでも発振波長 193 nm で発振する ArF と発振波長 248 nm で発振する KrF の 2 種類のエキシマレーザーは半導体のリソグラフィ装置に組み込まれる光源として世界中で使用されている [14,15]。また希ガスエキシマレーザーは、波長が 172 nm である Xe<sub>2</sub> エキシマレーザー、波長が 146 nm である Kr<sub>2</sub> エキシマレーザー、波長 126 nm である Ar<sub>2</sub> エキシマレーザーの発振がそれぞれ報告されている [16] [17]が、このエキシマレーザーはガスレーザーの一種であり、大型の装置、そしてガス交換等のメンテナンスコストといった課題が存在している。また、他の VUV 領域の発生方法として、レーザーの波長変換によるものが存在する。

例えば、高効率に短波長光を発生させる一般的な方法である、非線形光学結晶を用いた

波長変換では、位相整合を用いた場合、KBBF( $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ )を用いた波長 149.8 nm がこれまでに報告されてきた最も短波長である [18]。また、ランダム疑似位相整合とよばれる波長変換方式を用いた場合においても、SBO( $\text{SrB}_4\text{O}_7$ )による波長 121 nm がこれまでに報告されてきた非線形光学結晶による波長変換からの最も短波長な光である [19]。非線形光学結晶を用いた波長変換以外の方法として、Saito らは、希ガスをを用いた共鳴 4 光波混合を用いることで波長 121.568 nm の発生を報告している [20]。いずれの発生方法においても VUV 領域は大気の吸収が無視できず、希ガスをを用いているため真空装置を用いる必要があり、装置の大型化は避けられず、この光源としての課題が LIF による中性粒子計測の妨げとなっていた。

この LIF による光源の短波長化の要求を克服している計測法として二光子励起レーザー誘起蛍光法(Two photon absorption laser induced fluorescence: TALIF)が提案された [21]。図 1- 5 に水素原子の TALIF の模式図を示す。図 1- 4 に示した LIF における模式図との違いは、励起波長が波長 102.57 nm から 205.14 nm、つまり倍の波長となっている。一般的にレーザーの波長は短波長になるに従い非常に困難となるため、この要求波長が倍になる TALIF は非常に有用であることが知られている。LIF、TALIF どちらにおいても励起させる上準位は同様であるが、その際の励起過程が 1 光子過程、もしくは 2 光子過程を経ていくかという違いである。表 1- 2 にいくつかの対象粒子の TALIF に必要な励起波長および蛍光波長の関係性を示す。励起波長は 204~226 nm という深紫外領域(Deep-ultraviolet: DUV, 波長 200~300 nm)に変化し、この波長領域は非線形光学結晶を用いた波長変換によって発生が可能である。加えて TALIF の利点として、LIF より高い空間分解能を持つという点がある。図 1- 6 に同様の励起過程を用いている、光学顕微鏡である 1 光子励起顕微鏡と 2 光子励起顕微鏡の空間分解能の違いを示したものである [22]。明るい領域が、励起レーザーによって蛍光色素を励起した領域であり、2 光子励起顕微鏡の方が、径方向および光軸方向どちらにおいても選択的な励起が可能となっている。この違いは、2 光子励起の確率が励起レーザーパワーの 2 乗に比例するため、レーザー光をレンズで集光することによって励起する領域、つまり蛍光を発する領域を限定的にすることができるためである。この特徴によって LIF 法に比べて大幅に空間分解能を高めることが可能となっている。上記のような TALIF における空間・時間分解能の特性をまとめると、

- ・空間分解能：レーザーの集光径に依存するが典型的にはサブミリオーダー程度で LIF に比べても高い
- ・時間分解能：レーザーの繰り返し周波数に依存

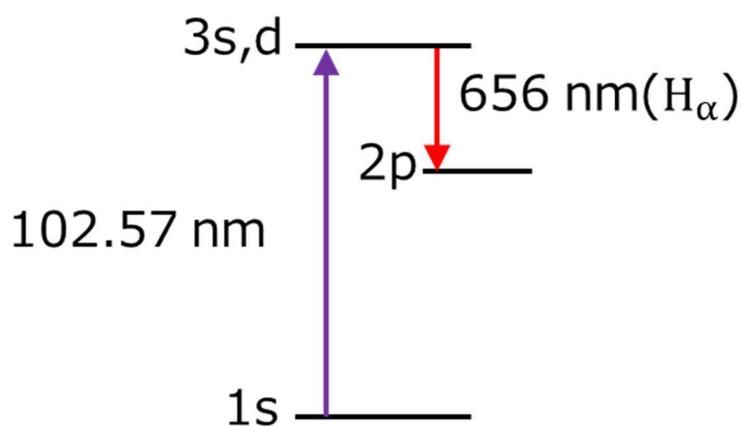


図 1- 4. レーザー誘起蛍光法の模式図(水素原子)

表 1- 1. レーザー誘起蛍光法における励起波長と蛍光波長

	レーザー誘起蛍光法 励起波長 [nm]	蛍光波長 [nm]
Kr	102.07	826.3
重水素	102.54	656.47
水素	102.57	656.3
窒素	103.33	742-746
Xe	112.72	462.43
酸素	112.80	844.64

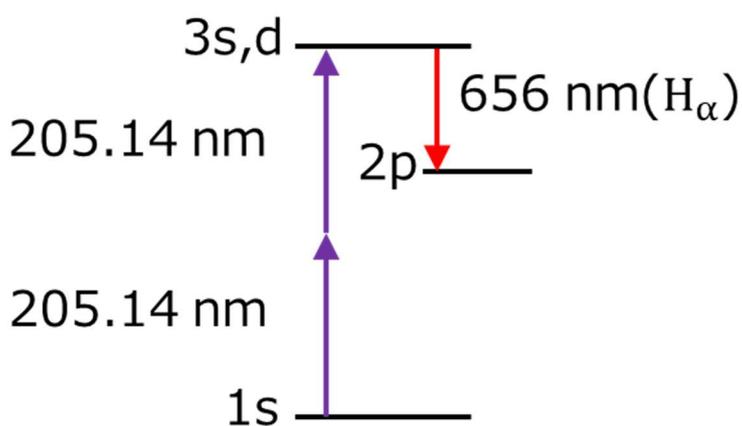


図 1- 5. 2 光子レーザー誘起蛍光法の模式図(水素原子)

表 1- 2. 2 光子レーザー誘起蛍光法における励起波長と蛍光波長

	二光子レーザー誘起蛍光法	
	励起波長 [nm]	蛍光波長 [nm]
Kr	204.13	826.3
重水素	205.08	656.47
水素	205.14	656.3
窒素	206.65	742-746
Xe	225.44	462.43
酸素	225.59	844.64

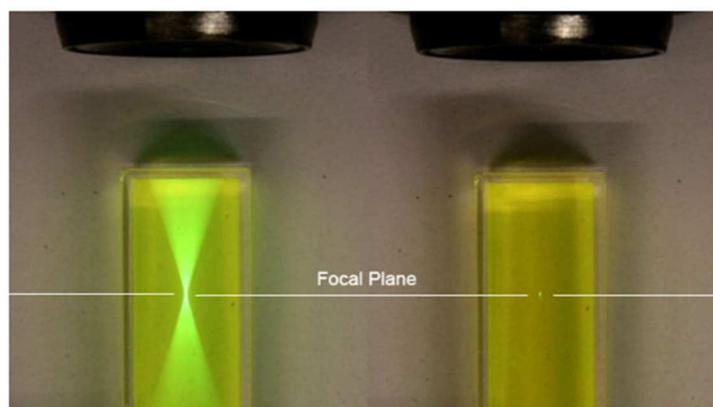


図 1- 6. 1 光子励起顕微鏡と 2 光子励起顕微鏡の空間分解能の違い [22]

## 1.2 深紫外領域における研究状況

### 1.2.1 レーザー誘起蛍光法用深紫外光源の研究状況

その中でも軽元素原子である水素原子などの TALIF を目的とした深紫外光源開発は複数の手法によって、報告がされている。ここでは、光源の出力及び、安定性、装置サイズといった観点からいくつかの手法を比較する。

初めて水素原子の TALIF が報告された際には、波長 193 nm で発振する ArF エキシマレーザーを励起光として重水素の誘導ラマン散乱によって周波数シフトがされた波長 205 nm 光源が用いられた [21]。この手法は、エキシマレーザーが比較的高出力光を得ることが容易であり、繰り返し周波数化も最大~6 kHz 程度までは可能であるため他の研究グループにおいても発生の報告は存在する [23]が、一方、ArF レーザーは毒性の高いフッ素ガスを用いているために、それに付随するガス設備およびガスチャンバーが大型化するため、光源

の大型化は避けられない。

その後、波長 205 nm 帯の発生の主流は色素レーザーによる波長変換となった。色素レーザーはローダミン等の蛍光色素を励起することによって発振する手法であり、色素の分子構造によってブロードな蛍光スペクトルを得ることが可能であり、共振器の内部に回折格子などの分散素子を用いることで波長可変性と狭帯域を両立した光源として利用することが可能である [24]。Niemiらは、波長 660-675 nm で発振する色素レーザーの 2 倍波と、固体レーザーである Nd:YAG レーザーの 2 倍波である 532 nm の和周波発生によって、波長 205nm 帯の発生を報告している [25]。その後、いくつかの研究グループから波長 615 nm で発振する色素レーザーの 3 倍波発生によって波長 205 nm の発生が報告されており、これが現在の TALIF 用光源の主流となっている [26,27]。また同様の方式を用いた色素レーザーは市販されており、TALIF 等に幅広く用いられている [28]。この手法は前述のエキシマレーザーを用いた方式に対しては比較的コンパクトな光源によって発生が可能である一方、励起媒質である色素の取り扱いに対する課題がいくつか存在する。まず、この色素は発がん性等の毒性を持つことが知られており、取り扱いに注意を払う必要がある。また、大きな課題として発振に伴い、色素自体の劣化が発生、定期的な色素の交換が必要である。この色素の劣化はレーザーのショット数に伴って進行していくためレーザーの高繰り返しも困難であるため、これまでに報告されている色素レーザーの繰り返し周波数は最大でも 100 Hz に留まっている。前述の通り、TALIF においては、時間分解能は、レーザーの繰り返し周波数によって決定されるため、色素レーザーを用いている場合は、100 Hz を超える時間分解能を持つ TALIF 計測は困難であると言える。

### 1.2.2 高繰り返し周波数深紫外光源の研究状況

前述の通り、これまで TALIF 用深紫外光源は、色素レーザーからの波長変換が用いられており、その繰り返し周波数は、最大で 100 Hz に律速されてきた。本節においては、深紫外領域における高繰り返し光源の研究開発状況についてまとめる。この高繰り返し光源については、TALIF 用光源としてではなく、深紫外領域の短波長性および高い光子エネルギーを活かして、半導体リソグラフィ工程用やレーザー精密加工用として研究開発が進められてきた。Kohno らは、Yb ファイバーレーザーからの光を Nd:YVO 結晶によって増幅し、2 回の波長変換によって 200 kHz という高繰り返し周波数で、46.5 W の波長 266 nm 発生を報告した [29]。Xuan らは、Yb ファイバーレーザーおよび Er ファイバーレーザーを種光として、全部で 4 回の波長変換によって繰り返し周波数が 6 kHz の出力が 300 mW の波長 193 nm 光源を報告している [30]。この光源は種光に半導体レーザーを用いており、繰り返し周波数も原理的には可変が可能、加えてファイバーレーザーによる高い長期安定性、コンパクトさを備えている。また、Arakawa らは、同様の方式で波長 193 nm を発生、ArF エキシマガスを増幅媒質として増幅することで、繰り返し周波数 6 kHz、平均出力 120 W(パルスエネルギー 20 mJ)と、高繰り返し、高出力を両立した光源を実現している。近年、

Turcicova らは、ファイバーレーザーのモードロックレーザーを種光として Yb:YAG 結晶を Thin-disk レーザー増幅媒質として用いた増幅光を全 3 回の波長変換によって繰り返し周波数 77kHz の波長 205 nm 光を発生させている [31]。こちらは Thin-disk という数 100  $\mu\text{m}$  まで薄く研磨した増幅媒質を用いることによって、高い廃熱効率を得ることが可能であり、高繰り返し周波数かつ高平均パワーを達成することが可能な手法である。

上記のように様々な手法を用いて高繰り返し深紫外光の発生が報告されているが、後述するパルス幅の問題等から、実際に深紫外高繰り返し光源が TALIF に用いられた報告は未だにない。

### 1.2.3 深紫外領域における光アイソレータおよびファラデー回転子の研究状況

前節までの説明の通り、深紫外光源は近年も盛んに研究開発が実施されてきているが、光学素子の 1 種であるファラデー回転子および光アイソレータの研究の報告は多くない。ファラデー効果と呼ばれる磁気光学効果を用いているファラデー回転子を開発するためには、その磁気光学特性の強さを表す指標であるヴェルデ定数を評価することが重要である。Nishioka らは、エキシマレーザーの 1 種である KrF レーザー(波長 248 nm)において、増幅段間の結合防止のために光アイソレータ内部のファラデー回転子として合成石英が有望であることを報告している [32,33]。また、Dexter らは、リン酸塩の一種である KDP およびその同形体が深紫外領域において有望であると報告している [34]。また近年、Molina らは、フッ化物結晶のもつ高いバンドギャップを持つ  $\text{PrF}_3$  および  $\text{CeF}_3$  のヴェルデ定数を報告、紫外領域において小口径ではあるが光アイソレータの実現を報告している [35]。また Vasyliiev らは、同様にフッ化物結晶である、 $\text{LiREF}_4$  (RE= Tb, Dy, Ho, Er, Yb) という希土類フッ化物結晶のヴェルデ定数を報告、希土類起因の吸収線が多数存在するものの高いヴェルデ定数を示すことから有望な材料であると報告した [36]。表 1-3 にこれまで報告されてきたファラデー回転子用候補材料のヴェルデ定数の値を示す。第 4 章で詳しく説明するが、どの候補材料も深紫外領域において当該波長で 30 rad/Tm を超える高いヴェルデ定数を示しているが、波長 205nm 帯におけるヴェルデ定数は報告されておらず、その波長域において実際にファラデー回転子および光アイソレータを構築するためには、実際にヴェルデ定数の評価を行い、設計をする必要がある。

表 1-3 これまでに報告されてきた深紫外領域におけるファラデー回転子の候補材料

Material	Verdet constant	Absorption Edge	Ref.
SiO <sub>2</sub>	33.5 rad/Tm@248nm	140nm	[32]
CeF <sub>3</sub>	414rad/Tm@400nm	306 nm	[35]
PrF <sub>3</sub>	3143rad/Tm@220nm	210 nm	
LiDyF <sub>4</sub>	2885 rad/Tm@193nm	193nm	[36]
LiHoF <sub>4</sub>	973.5 rad/Tm@193nm	164nm	
LiErF <sub>4</sub>	516 rad/Tm@193nm	163nm	
LiYbF <sub>4</sub>	146.4 rad/Tm@193nm	158nm	
KDP	67.6rad/Tm@193nm	170 nm	[34]
DKDP	74.5rad/Tm@193nm	170 nm	
ADP	70.2 rad/Tm@193 nm	180 nm	

### 1.3 核融合分野におけるレーザー誘起蛍光法による中性粒子計測

#### 1.3.1 これまでに報告されてきたレーザー誘起蛍光法による中性粒子計測

前述の通り、TALIF を用いることによって中性粒子の計測が可能となり、これまでにいくつかの研究機関において核融合装置内における TALIF による中性粒子計測が行われてきた。Magee および Galante らは前述の色素レーザーによる波長変換によって深紫外光を発生、トカマク方式の核融合装置である米国サンディエゴにある DIII-D において、水素の中性粒子密度の空間分布や経時変化および温度を計測、これまで考えられてきた水素の中性粒子密度の温度がこれまで考えられてきた 2.0 eV に対して、0.1 eV 程度であったことを報告した [26,37]。図 1-7 に実際に異なる磁場強度における水素の中性粒子密度分布の計測結果を示す。また、同様の構成の光源を用いることによって Elliott らは、米国ワシントン大学にある HIT-SI3 装置における重水素粒子の密度および温度の計測結果を報告、放電後の中性粒子密度の計測結果が、これまで理論的に予測されていた  $10^{17} \text{ m}^{-3}$  の約 100 分の 1 程度であり、中性粒子密度の直接観測の重要性を示した。日本国内においては、Kajiwara らが、京都大学にある Heliotron E における水素の中性粒子密度を ArF エキシマレーザーの SRS によって波長シフトさせた波長 205 nm で計測を行った [23]。上記のように様々な研究機関において実際に TALIF によって中性粒子の計測が行われており、その中から新しい現象やこれまでのシミュレーションにおいて考えられてきた結果と異なる新しい結果から、新しい物理が理解されてきた。

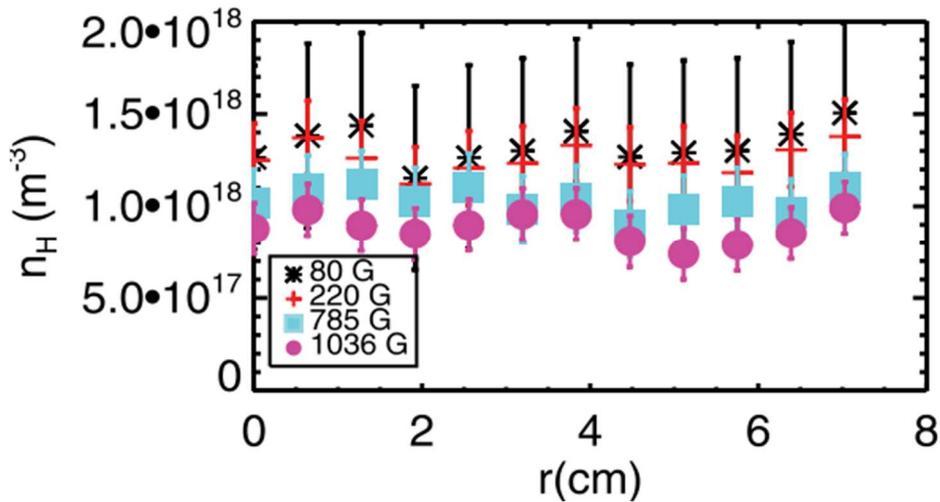


図 1-7.磁場強度による水素の中性粒子密度分布の計測結果 [37]

### 1.3.2 レーザー誘起蛍光法による中性粒子密度の計測

本節においては、TALIF による中性粒子の密度の導出法について示す。密度情報は TALIF の際に得られる蛍光信号(以降 TALIF 信号)の強度から導出することができるが、そのためには TALIF 信号強度と密度の校正が必要である。その校正方法はこれまでに 2 つの方法が報告されており、それぞれを以下に述べる。

#### ① 既知のガス圧・ガス種から校正

同じ光学系で既知のガス圧の別粒子で計測を行い、その粒子と対象粒子の断面積の比から対象粒子の密度を導出する方法である。一例として、対象粒子が水素原子で、校正用にクリプトンを用いた導出方法を説明する。なお、この手法においてクリプトンを用いる理由は、水素の TALIF 励起波長である波長 205.14 nm に対して、Kr の TALIF 励起波長が波長 204.13 nm と近いためである。水素の中性粒子密度  $n_H$  は以下のように示される。

$$n_H = \int n_H(v) dv = n_{Kr} \left( \frac{S_H}{S_{Kr}} \right) \left( \frac{\sigma_{Kr}}{\sigma_H} \right) \quad (1.1)$$

ここで、 $\nu$  は光の周波数に対応する。まず、既知のガス圧  $n_{Kr}$  の、Kr ガスにおいて TALIF 信号強度  $S_{Kr}$  を計測する。次に同様の構成で対象粒子である水素の TALIF 信号強度  $S_H$  を計測する。それぞれの対象粒子の二光子吸収に対する反応断面積が既知であるため、そこから  $n_H$  を導出することができる。例えば、Kr と H の断面積の比は、

$$\frac{\sigma^{(2)}(\text{Kr})}{\sigma^{(2)}(\text{H})} = 0.62 \quad (1.2)$$

と報告されており [27]、この値を用いることで、水素の中性粒子密度を導出されている [25]。

#### ② フローチューブによる校正

図 1-8 にフローチューブの概念図を示す [27]。フローチューブ内には、ヘリウムで希釈された少量の水素分子が石英管内を流れている。石英管内途中のマイクロ波共振器におい

てマイクロ波放電を起こし、水素が乖離することによってフローチューブ内で水素原子が生成される。チューブの長さや、輸送時間によって励起された水素原子が下流側のレーザー光路に到達しないようにデザインされている。フローチューブ内に存在する水素原子の量は、NO<sub>2</sub>を用いた滴定によって決定される。この決定された水素原子の量と、実際に深紫外レーザーによって得られた TALIF 信号強度から、密度の構成を行う方法である。

このように 2 つの校正方法が提案、実証されておりこの校正方法によって TALIF 信号強度から各種中性粒子の絶対密度が導出されている。

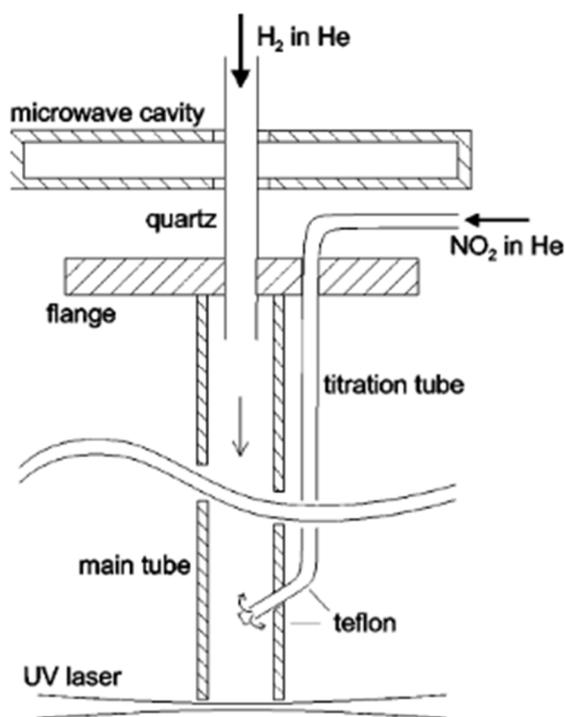


図 1-8 フローチューブのスキーム図 [27]

### 1.3.3 レーザー誘起蛍光法による中性粒子温度の計測

中性粒子の温度の計測には、励起光源の波長を掃引させながら、TALIF 信号を得ることによって求めることが可能である。波長と温度の関係性はドップラー効果によって決定される。つまり共振周波数から離れた波長の吸収は、原子が移動する中でのドップラーシフトによって起こり、一例として水素の中性粒子の温度は、

$$T = \frac{\Delta\lambda^2 m_H c^2}{2\lambda_0^2 \ln(2)} \quad (1.3)$$

で表される。ここで $m_H$ は水素の質量であり、 $\lambda_0$ は中心波長である。その温度の導出方法は、まず、励起レーザーの波長をスキャンしながら TALIF 信号強度を取得する。得られた信号強度の分布から、TALIF 信号の $\lambda_0$ および線幅 $\Delta\lambda$ を導出する。図 1-9 に過去に報告された重

水素の中性粒子における TALIF 信号強度の波長依存性を示す [38]。この横軸は、波長変換前の色素レーザーの波長であり、TALIF の励起には波長変換後の、つまり波長が 3 分の 1 である深紫外光が用いられている。TALIF 信号強度は励起波長に対してある程度の広がりが見られており、この広がりには温度情報が含まれている。なお、緑線で示しているスペクトルがレーザー光源の線幅であり、後程詳細に説明するが、TALIF 信号強度に対して十分狭い線幅を持つ光源を用いることによって、TALIF による温度計測を可能としている。この信号強度のスペクトル広がりから導出することで、式(1.3)より絶対温度 $T$ を導出することが可能である。

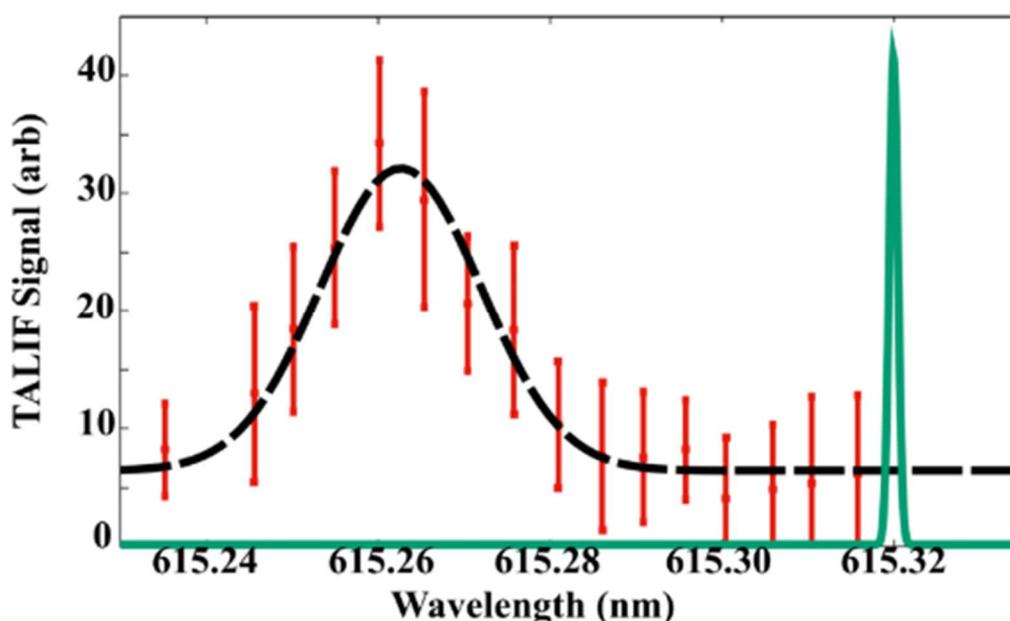


図 1-9.重水素中性粒子における TALIF 信号強度の波長依存性 [38]

#### 1.4 本研究の目的と本論文の構成

本研究の目的は、レーザー誘起蛍光法、特に TALIF 法の高性能化に向けた深紫外レーザー基盤技術研究である。その中でも、深紫外領域における光源および、光学素子に着目し研究を行った。光源としては、これまでの TALIF 計測の時間分解能の向上を目指して、色素レーザーの波長変換に代わる、新しい構成による高繰り返し深紫外光源に関する研究を実施する。特に複数の中性粒子の励起波長が存在する波長 205 nm 帯をターゲットとして光源の構成の検討および、実証をする。また光学素子においては、これまで深紫外領域において報告が少なかったファラデー回転子および光アイソレータの研究を実施する。この 2 つの要素技術を組み合わせることによってこれまででない TALIF 法の構成が可能になる。以下に本論文の構成をまとめる

第 2 章では、高繰り返し深紫外光源の発生方法の検討について述べる。これまで報告されてきた深紫外光源の報告をまとめ、解決すべき課題を整理、大まかな構成および、要求

される光源の性能に関する検討について述べる。その後、要求される光源の仕様を満たすことができる種光の発生部分について説明を実施する。次に種光を増幅するための増幅方式について説明する。増幅方式および増幅媒質についてそれぞれ検討を実施した。最後の増幅光を波長変換することによって深紫外光を発生させるが、その発生には非線形光学結晶を用いる。その非線形光学結晶の選定及び、発生スキームの検討結果について述べる。

第 3 章では、実際に構築した深紫外光源の結果について述べる。深紫外光源は、大まかに種光発生部分、増幅器部分、全 3 段の波長変換部分から構築される。それぞれの要素から得られた結果を述べ、深紫外領域である波長 205 nm 帯で波長可変、高繰り返し光源の実現結果を示していく。

第 4 章では、深紫外用ファラデー回転子および光アイソレータの原理について述べる。ファラデー回転子は、磁気光学効果の 1 種であるファラデー効果に基づいており、その原理を述べる。また、そのファラデー効果の強さを表す指標であるヴェルデ定数は、材料および波長に依存する値であり、そのモデルについて説明をする。またそのモデルは、磁性によって変化するため、それぞれ常磁性体および反磁性体におけるモデルをそれぞれ述べる。最後にファラデー回転子を用いた光アイソレータの構成について述べる。

第 5 章では実際にファラデー回転子用候補材料の評価結果を述べる。まずは、ファラデー回転子に要求される性能について説明、その観点から候補材料の選定結果について述べる。次にヴェルデ定数を計測するための光学系の構築結果を示す。この光学系を用いることによって波長 190~300 nm という深紫外領域において一括でヴェルデ定数の計測が可能となった。次に選定した候補材料 3 種類についてヴェルデ定数の波長依存性の計測結果を示す。得られた結果より、深紫外領域においてファラデー回転子の実現が可能であることが示された。また、候補材料を用いることによってこれまで実現がされていなかった真空紫外領域におけるファラデー回転子の実現が可能となり、ここから分光学などへの貢献も期待される。

第 6 章では、以上の結果をまとめ、今後の課題および本研究の結論を述べる。

## 第 2 章 高繰り返し深紫外光源の発生方法の検討

### 2.1 はじめに

本章では、前章にて述べたレーザー誘起蛍光法の高度化に向けた深紫外光源の検討結果について述べる。2.2 節では TALIF 用深紫外光源として要求される光源としての性能を明らかにした後に、その性能を達成できる光学系について検討を行う。特に前章にて説明した通り、これまでの TALIF 用光源はレーザーの繰り返し周波数によって律速される時間分解能に課題があったが、その繰り返し周波数の高繰り返し化を目指した検討および結果について示す。2.3 節では、高繰り返し深紫外光源の種光発生部分に関する検討結果を示す。2.4 節では、高繰り返しな種光を増幅する方式について説明、そのなかでも高効率な増幅結果が見込まれる再生増幅器に関する説明をする。2.5 節では、増幅光を深紫外光に変換する、非線形光学結晶による波長変換技術に関して説明する。また、波長変換においては、適切な非線形光学結晶を選定することが重要であり、全 3 回の波長変換において、それぞれ適切な非線形光学結晶の検討結果について示す。

### 2.2 高繰り返し深紫外光源の発生方法のスキーム検討

まずは深紫外領域、特に水素や窒素の TALIF の励起波長に相当する波長 205 nm 周辺における TALIF 用深紫外光源に要求される性能に関して整理する。

波長に関する性能においては、前述のとおり波長 205 nm 帯の光が必要である。レーザー媒質からの直接発振によってこの波長域を発生することは、これまでに報告されているレーザー媒質においては不可能であり、何らかの方法によって波長変換によって波長 205 nm の深紫外光を得る必要がある。第 1 章で示した通り、候補となる波長変換技術については、①誘導ラマン散乱による波長変換、②希ガスからの 2 光子共鳴 4 光波混合による波長変換、③非線形光学結晶による波長変換などが挙げられる。

それぞれの原理および課題について説明する。

#### ① 誘導ラマン散乱による波長変換

前述の通り、初めて水素原子などの TALIF 計測に用いられてきた深紫外光源は、ArF エキシマレーザーを重水素ガス中に集光し、誘導ラマン散乱 (Stimulated Raman Scattering: SRS) によって波長変換したものである。SRS は、光学フォノンによる光散乱現象であり、媒質にラマン閾値を超える強い励起光が入射されると、ストークス光と呼ばれる。低い周波数、つまり長波長の成分が成長して励起光の大部分がストークス光に変換される現象である。図 2-1 に SRS の発生原理図を示す。ストークス光は、振動基底状態から励起光によって中間状態に遷移、振動励起状態に戻る際に発生する光であり、その光周波数  $\omega_s$  は、励起光の光周波数  $\omega_p$  に対して

$$\omega_s = \omega_p - \Omega \quad (2.1)$$

と物質によって決定されるストークスシフト量 $\Omega$ だけ低周波な光が発生するというものである。つまり対象の波長に対してより短波長の光を用いて、そこから SRS によってストークスシフト量だけ長波長の光を発生させるという手法である。そのため波長 205 nm 光を SRS によって得る場合は、励起光にその波長より短波長の光を用いる必要がある。図 2-2 に実際に Heliotron E の TALIF 計測のために波長 205 nm が発生された時の光学系を示す。この時は、入射光として波長 193 nm のエキシマレーザーが用いられており、重水素による SRS の結果、波長 205 nm において繰り返し周波数が 80 Hz、パルスエネルギー 10 mJ が得られている [23]。しかしながら、前述の通り、深紫外領域で直接発振可能なレーザー媒質は、エキシマレーザーのようなガスレーザーのみであり、毒物であるフッ素ガス装置の取り扱いや装置の大型化を避けることが非常に困難という課題を持っている。

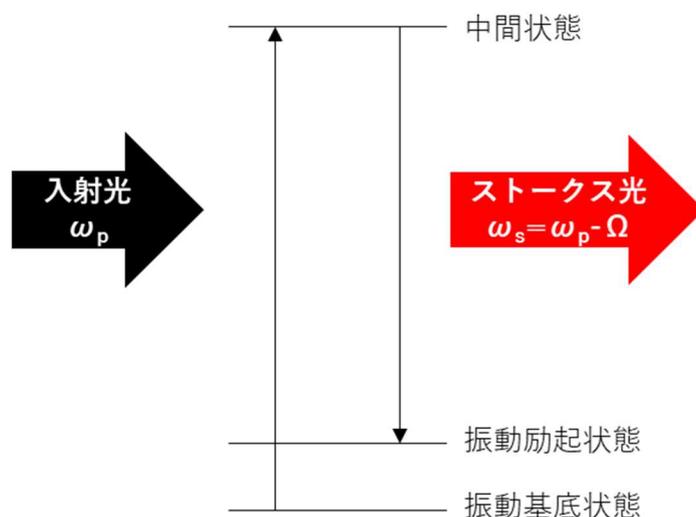


図 2- 1. 誘導ラマン散乱の発生原理図

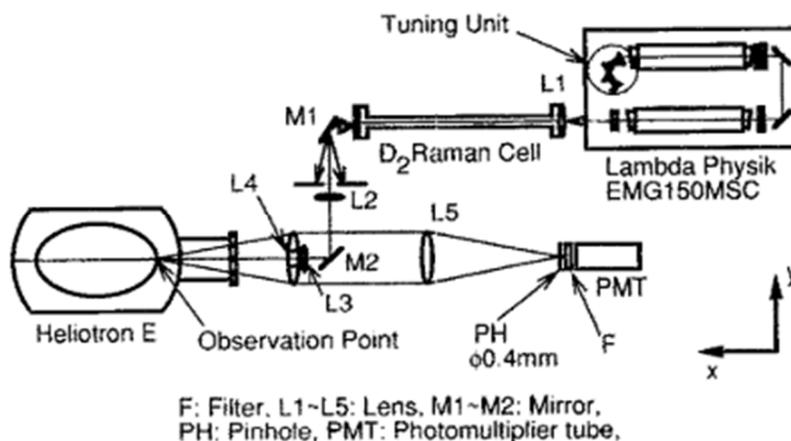


図 2- 2. SRS による波長 205 nm 発生光学系 [23]

② 希ガスからの2光子共鳴4光波混合による波長変換

次に、希ガスを用いた2光子共鳴4光波混合による深紫外光発生について説明する。波長121.56 nm という真空紫外光源が超低速ミュオンの発生に用いられている [20]。その光学系を図2-3に示す。Kr ガスの2光子共鳴波長用光源として用いられる波長212.6 nm の光を Nd:YAG セラミックを増幅媒質とした全固体レーザーの第5高調波から得る。その光を基本波1として使い、基本波2として光パラメトリック発生を用いて845 nm 光を発生する。その2種類の基本波を Kr の入っているガスセルに入射、4光波混合の結果、121.6 nm という深紫外光を得るというものである。この4光波混合過程をエネルギー準位図にして示したものが、図2-4である。この方法は、波長変換に希ガスを用いるため、後述する非線形光学結晶による波長変換より短波長な真空紫外領域においても発生可能という特徴を持っているが、全3回の波長変換によって得る基本波1に加えて、光パラメトリック発生によって基本波2を用意する必要があり、また、Kr ガスセルはガスと光の相互作用長を長く取って、高効率な変換効率を得るために100 cm と非常に長いものを用いており、装置全体の大型化を避けることが困難である。

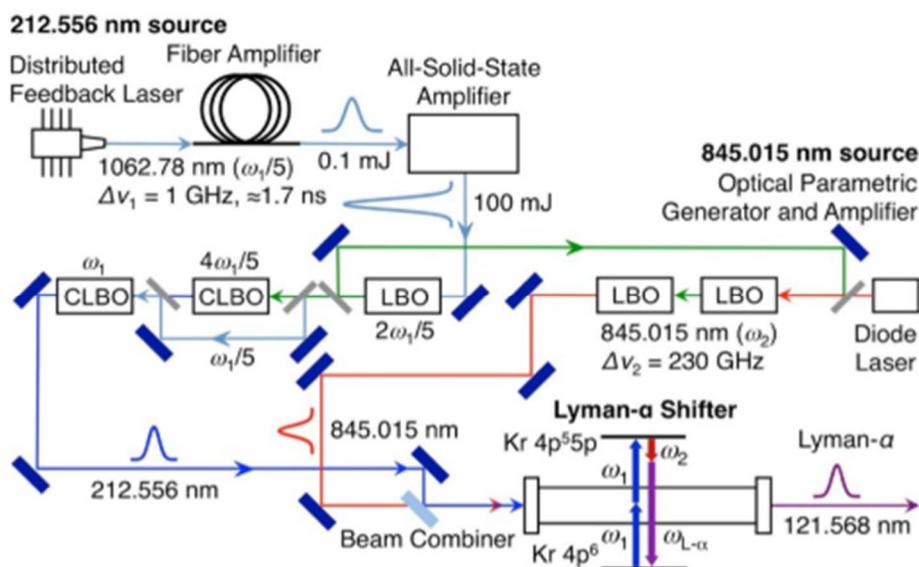


図2-3. 2光子共鳴4光波混合による波長121.6 nm 発生光学系 [20]

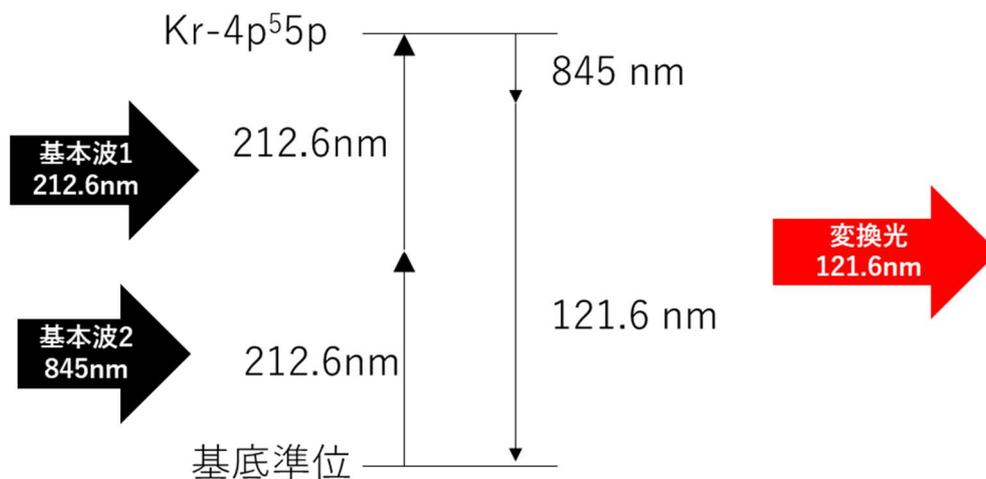


図 2- 4. 2 光子共鳴 4 光波混合による真空紫外光発生 の原理図

### ③ 非線形光学結晶による波長変換

最後に非線形光学結晶による波長変換による深紫外光発生について説明する。この手法は、第 1 章で説明した色素レーザーの 3 倍波発生などで用いられてきた技術である。なお、本論文での非線形光学結晶による波長変換に関しては、2 次の非線形光学効果を用いた現象のことを指す。詳細は第 2.5 節にて説明するが、非線形光学結晶に高強度な光を入射することによって入射した光に対して異なる波長をもつ光が発生するものである。この手法は、適切な非線形光学結晶を選定することによって様々な波長域において波長変換を行うことが可能である。

以上の 3 手法が、主な深紫外光発生方法であるが、本研究においては③の非線形光学結晶を用いた波長変換を採用することとした。その理由は、

- ・目標の波長である波長 205 nm においては、適切な非線形光学結晶を選定すれば後述の位相整合条件を満たすことができ、高効率な波長変換を見込むことができる
  - ・後述するが今回採用した非線形光学結晶の 1 種は潮解性があり、結晶の保護のために窒素パージが必要であるが、他の 2 手法に比べて、装置全体のコンパクト化が見込まれる
  - ・非線形光学結晶湿度を避けるためにガスパージをする必要があるものの、エキシマレーザーのフッ素ガスや、2 光子共鳴 4 光波混合のために長いガスセルを用意する必要が無く、波長変換部分の取り扱いが容易である
- などの利点が存在するためである。

次に波長変換によって深紫外光を発生させるための基本波に関する検討を行った。非線形光学結晶による波長変換は、基本波の整数分の 1 の波長をもつ光の発生が可能であるため、波長 205 nm 帯を発生させるためには、その整数倍の波長をもつ、410 nm、615 nm、820 nm、1025 nm、…が候補となる。色素レーザーによる波長変換においては、この中の 615 nm の光を用いて、全部で 2 回の波長変換によって 205 nm 帯を得ている。615 nm を

用いば、2回の波長変換によって深紫外光を得られる一方、色素レーザー以外でこの波長域で波長可変光源を得ることは難しく前述の通り、色素レーザーの高繰り返し化は困難である。他の候補としては、波長 820 nm であり、こちらは Ti:Sapphire レーザーによって発生が可能である。Ti:Sapphire レーザーはサファイア結晶( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )に  $\text{Ti}^{3+}$ を添加した結晶を媒質として用いたものである [39]。その特徴は、波長 800 nm を中心に波長 650 ~ 1100 nm にわたる非常に幅広い蛍光スペクトルである。その広い蛍光スペクトルを用いてモード同期によるフェムト秒程度のパルス幅の超短パルスが多く用いられているが [40]、波長可変光源としても用いられており、波長変換による深紫外領域の発生も報告されている [41]。波長 1025 nm は、Yb を添加したファイバーレーザーから得ることが可能な波長領域である [42]。ファイバーレーザーは導波路構造によって光を伝搬させることが可能であり、アライメントフリー、可搬性、長期安定性といった優れた特性を持っており、研究用に留まらず、産業界でも幅広く使用されている [43,44]。また  $\text{Yb}^{3+}$ が添加された固体レーザーも報告されており、発振器としてだけでなく、増幅器としても活用されている [45]。Yb ファイバーレーザーは、Ti:Sapphire レーザーと比較して、光源としての長期安定性や、可搬性といった計測における取り扱いの容易さといった点が非常に優れているため、本研究においては、波長 1025 nm を用いて、全 3 回の波長変換によって 5 倍波である波長 205 nm 帯を発生させることとした。また、ファイバーという構造は熱を長手方向に分散することが可能であるため、冷却効率が極めて高く、高繰り返し化にも非常に有利な特性を持っている。

次に、波長の他に必要である性能として線幅およびパルス幅に関する検討を以下に述べる。時間領域の電場の振幅  $E(t)$  と周波数領域の電場の振幅  $E(\omega)$  はフーリエ変換の関係であり、スペクトル間の位相がすべて揃っていると仮定すると、広帯域なスペクトルを持つ光は短いパルス幅を持ち、逆に狭帯域なスペクトル光を得るためには長いパルス幅が必要である。スペクトル幅  $\Delta\nu$  と、パルス幅  $\Delta t$  の関係は、

$$\Delta t \times \Delta\nu \geq k \quad (2.2)$$

となる。ここで、式(2.2)の両辺が等しくなる最もパルス幅が短くなる際の条件、つまりスペクトル間の位相がそろっている状態がフーリエ変換限界パルス幅と呼ばれる。  $k$  は、スペクトルの分布形状によって決定される係数であり、ガウス分布の場合は 0.441、 $\text{sech}^2$  分布においては 0.315 である。図 2-5 にフーリエ変換限界パルスを仮定した場合の、パルス幅と線幅の関係を示したものである。例えば、前章で説明した 77 kHz で動作する波長 206 nm 光源について説明する [31]。この光源の種光は、ピコ秒のファイバー発振器を CPA(Chirped pulse amplification) [46]によって増幅することで高出力なピコ秒パルスを発生、その光を全 3 回の波長変換によって波長 206 nm 発生している [47]。この時のパルス幅は、 $\Delta t = 1.5$  ps と報告されており、スペクトル形状がガウス波形で、フーリエ変換限界パルスを仮定すると、 $\Delta\lambda = 1.03$  nm と求められる。このような光源を TALIF に使用することを考えると、以下のような計測上の問題点が存在する。例えば、前述のとおり中性粒

子の温度を導出するためには光源を波長掃引しながら TALIF 信号を得る必要がある。例えば、図 1- 9 に示したように温度の計測の際には、約 0.08 nm の領域を波長掃引しており、パルス幅 1.5 ps のパルス幅では、このような波長掃引をすることが困難である。加えて TALIF 励起波長は、Kr が波長 204.13 nm、重水素が波長 205.08 nm、水素が波長 205.14 nm、窒素が 206.65 nm と比較的近い領域に多数存在している。パルス幅 1.5 ps の場合は、このような複数の粒子を一括で励起してしまうため、粒子の選択的励起が困難になってしまう。なお、近年フェムト秒パルスの持つ広帯域なスペクトルを逆に利用して、一括で複数の粒子種を一括で励起、蛍光を観察する fs(femto-second)-TALIF が提案、密度の空間分布計測が行われているが、一部の計測結果がモデルや他の計測結果と乖離しているという課題が存在しており、また温度計測は原理的に困難である [48]。

上記 2 つの観点より、TALIF 計測によって中性粒子の密度および温度の計測を行うための光源においては、線幅が狭帯域な、つまり長いパルス幅が望ましい。例えば、パルス幅を  $\Delta t=5$  ns と仮定すると、 $\Delta \lambda=0.0003$  nm(0.3 pm)となり、上記 2 つの温度計測時の波長掃引および選択的な粒子の励起が可能となる。そのため、本研究で開発を行う光源のパルス幅は 5 ns 程度を目指すこととした。

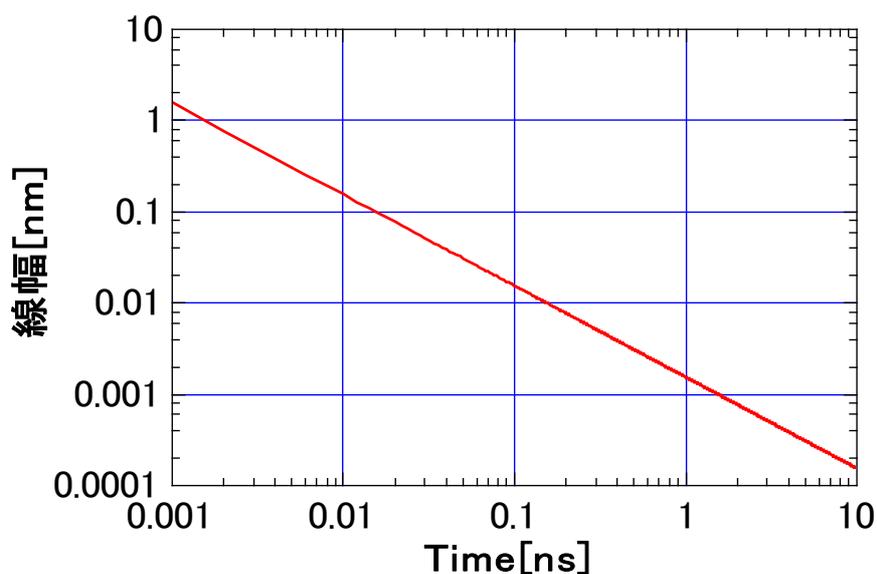


図 2- 5. パルス幅と線幅の関係(フーリエ変換限界パルス)

### 2.3 高繰り返し種光の発生

高繰り返し周波数を持つ種光の発生方法としては、連続波で動作する半導体光レーザーを半導体光増幅器によってパルス形状に切り出し、Yb ファイバーレーザーによって増幅する方式を採用した。半導体光レーザーは、広い利得帯域を持っており、共振器を構築、内部に回折格子のような波長選択素子を挿入することによって狭帯域化および波長可変性を

得ることが可能である。連続波長可変はこれまで Littman 型外部共振器レーザーによって達成されてきたが [49]、低反射コートを用いたゲインチップにおいてもファブリペロー共鳴が無視できず、安定したモードホップフリーな波長可変は困難であった。しかしながら、近年曲がり導波路構造を有するゲインチップを用いて、かつ転置 Littman 配置と呼ばれる共振器配置を用いることによって波長可変幅の広い半導体光レーザーが実現・実用化がされている [50,51]。このような安定性の高い波長可変光源を種光として、パルス化、ファイバーレーザーによる増幅をすることによって高安定かつ、波長可変に加えてレーザーの周波数が可変可能な種光部分を構築可能である。

## 2.4 増幅方式の検討

### 2.4.1 レーザー増幅

2.3節において、ファイバーレーザーを用いて種光を増幅すると述べたが、ファイバーレーザーの場合、パルスエネルギーの高出力化は、ファイバー内部の非線形現象によって制限がされている。本研究においてはナノ秒かつ、線幅が狭帯域なパルスを増幅するために、誘導ブリルアン散乱(Stimulated Brillouin Scattering; SBS)によってファイバーレーザーの出力は制限される [52]。SBS は、ナノ秒などの比較的長パルスで狭線幅な光源において、ファイバー中に強い光が入射すると、その光によって音響フォノンが励起され、ファイバー中に屈折率の周期変調によって回折格子が生じる。その回折格子によって入射光は反射してしまう。この SBS の存在によってファイバーレーザーにおける最大出力パワーを制限している。この SBS の閾値を高めるために、温度勾配や歪み勾配によって SBS スペクトルを変化させること [53,54]や、大面積なファイバーを用いる [55]といったアプローチが試みられているが、いずれにせよ狭帯域のナノ秒パルスのファイバーレーザーによる増幅においてはこの SBS が大きな律速となっている。そこで、高パルスエネルギーを得るために、固体媒質によるレーザー増幅を採用した。以下にレーザー増幅の原理を述べる。図 2-6 に 3 準位系のレーザー媒質におけるエネルギー準位図の模式図を示す。基底状態のレーザー媒質に、励起波長で動作する励起レーザーを入射すると、電子は上準位に励起される。本研究における固体結晶を用いたレーザー増幅においては、この上準位に励起するために半導体レーザーによる光励起を用いているが、ガスレーザーであるエキシマレーザーにおいては、放電励起や電子線励起といった励起方法が、半導体レーザーにおいては pn 接合による電流注入による励起方法が用いられている。このような励起方法によって上準位に励起された電子は下準位に遷移する。この準位から基底準位にさらに遷移する際に、光子としてエネルギーを放出する。この際に種光を入射していると、誘導放出が起こり種光の同じ特性を受け継いだ光子の数が増える、つまり種光が増幅される。この誘導放出の原理を用いて、ファイバーレーザーから得られたパルスを固体媒質に入射、増幅を行うことで高パルスエネルギー化を目指す。

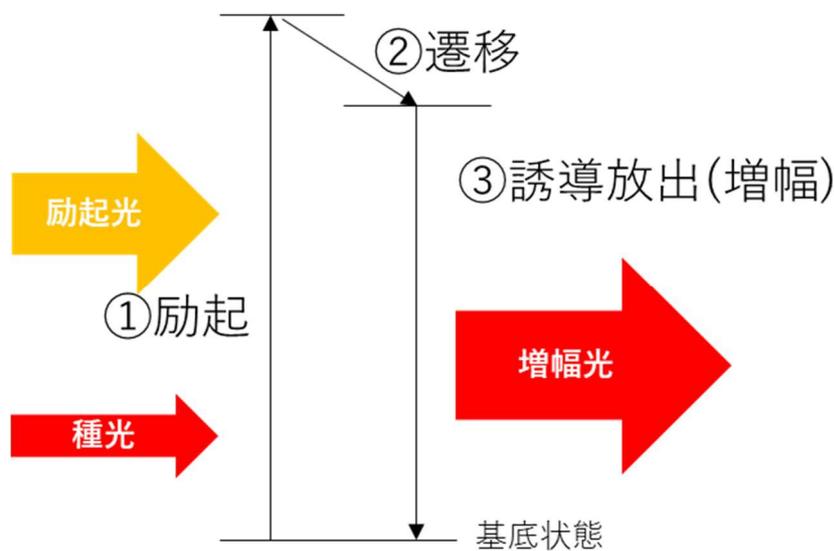


図 2- 6. レーザー増幅の模式図

## 2.4.2 再生増幅器

2.4.1 節において述べたレーザー増幅の原理を用いて増幅が行われるが、1 回レーザー媒質を通過させて得られる増幅効率には限界がある。そのため、増幅効率を上げるためには、種光をレーザー媒質に何度も通過させることによって、増幅過程の回数を多数回にする必要がある。この増幅過程を増やす方法として一つの結晶にミラーなどの光学素子によって幾何的に複数回種光を通過させるマルチパス増幅方式 [56]と、共振器の内部に光スイッチなどで種光を閉じ込め増幅を行う再生増幅方式などがある [57]。図 2-7 に 3 パスマルチパス増幅器の模式図を、図 2- 8 に再生増幅器の模式図を示す。再生増幅器はレーザー媒質を共振器の内部に配置、光スイッチによって種光を共振器内に閉じ込め、共振器内で多数回増幅を行う。再び光スイッチによって増幅された光を取り出すことによって 1 つのレーザー媒質で多数回のレーザー増幅を達成することが可能であり、弱い種光からでも高効率な増幅可能な手法として知られている。マルチパス増幅方式は、種光が結晶を通過させる回数を増やす場合は、ミラー等の光学素子の個数が増えてしまい、装置の大型化つながる。本研究においては、この再生増幅方式を用いることによってコンパクトな高効率増幅方式を目指した。



図 2-7. マルチパス増幅器の模式図(3 パス)

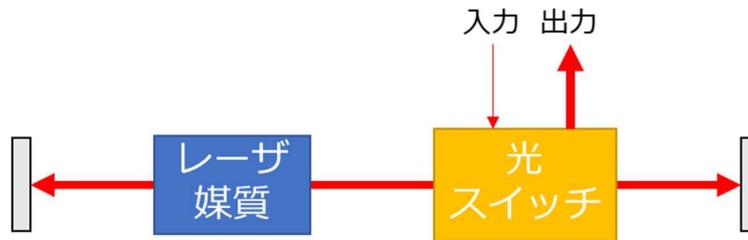


図 2-8. 再生増幅器の模式図

### 2.4.3 レーザー媒質の検討

ここまでに説明してきたレーザー増幅に関しては、対象の波長において誘導放出が起こる適切なレーザー媒質を選定する必要がある。本研究で波長変換前の光として波長 205 nm の 5 倍の波長である波長 1025 nm 帯を用いるが、この波長領域においては Yb 系の結晶を用いることが可能である [45]。Yb 固体レーザーは、1991 年に Lacovara らが Yb<sup>3+</sup> の <sup>2</sup>F<sub>5/2</sub>-<sup>2</sup>F<sub>7/2</sub> である波長 1030 nm において室温発振が可能であることが示されて以来、高効率、高出力用レーザー媒質として研究がおこなわれている [58]。Yb 系レーザー媒質は、様々なホスト材料に Yb イオンを添加することによって達成されてきた。表 2-1 に代表的な Yb 系レーザー媒質とその光学的特性を示す。本研究においては、その中で中心波長 1025nm において発振が可能な Yb:KGW(Yb<sup>3+</sup>:KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>)結晶を用いることとした。Yb:KGW 結晶は、蛍光スペクトルが 25 nm と広く [59]、波長 1026-1044 nm でレーザー発振が報告されている [60]。またその広い蛍光スペクトル幅から、波長可変なフェムト秒モード同期レーザー [61] や、フェムト秒パルスのチャープパルス増幅器としても用いられている [62,63]。この Yb:KGW 結晶を波長 1025nm における再生増幅器内のレーザー媒質として用いた。

表 2-1. 代表的な Yb 系固体材料とその光学的特性

材料	波長 [nm]	蛍光断面積 [10 <sup>-19</sup> cm <sup>2</sup> ]	蛍光寿命 [ms]	吸収波長 [nm]
Yb:YAG	1030	0.23	0.96	940
Yb:YLF	1020	0.08	2.16	962
Yb:CaF <sub>2</sub>	1035	0.02	2.20	980
Yb:KGW	1025	0.30	0.24	980

## 2.5 波長変換方式の検討

### 2.5.1 非線形結晶を用いた波長変換

前述の通り、波長 1025 nm の増幅光を全部で 3 回の波長変換によって波長 205 nm 帯の深紫外光を得るが、以下では非線形光学結晶を用いた波長変換について述べる。非線形光学効果は、強い光が結晶を通過する際に、結晶内での電荷の振動が強い光、つまり強い電場によって非線形振動を起こし、結果として入射した光と異なる振動数の光が放出されるという現象である。ここで、結晶内の巨視的な分極 $P$ は、

$$P = \chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \dots \quad (2.3)$$

と示される。ここで、 $E$ は光の電界強度、 $\chi$ は巨視的な感受率であり、 $\chi^{(1)}$ は屈折率に相当する。また $\chi^{(2)}$ は 2 次の非線形感受率である。式(2.3)の右辺の第 2 項の $\chi^{(2)}$ を用いた現象が 2 次の非線形光学効果である。 $\chi^{(2)}$ は中心対称性を欠く物質のみに現れる項であり、結晶の一部などに限られている。上式において第 2 高調波の分極電解成分 $P^{(2\omega)}$ と光の電界強度 $E$ は、

$$P^{(2\omega)} = d^{(2\omega)}E^{(\omega)}E^{(\omega)} \quad (2.4)$$

と表すことができる。ここで、 $d$ は非線形光学定数と呼ばれ、この大きさが十分な値を持つかどうかで非線形光学結晶として用いることが可能であるかを決めている。なお、 $d$ は光の入射方向や偏光に依存する  $3 \times 3$  のテンソル量であるが、この依存性を考慮して計算した、実行非線形光学定数 $d_{\text{eff}}$ が実際の波長変換において効率を決めている。なお、2.2 節で説明した縮退 4 光波混合は、 $\chi^{(3)}$ を用いた 3 次の非線形光学効果を用いている。2 次の非線形光学効果の 1 例として、和周波発生があり、これは非線形光学結晶に 2 種類の基本波 $\omega_1$ と $\omega_2$ を入射した際に、その和周波である $\omega_1 + \omega_2$ の光が得られるものであり、その模式図を図 2-9 に示す。基本波の波長を $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ 、和周波光の波長を $\lambda_3$ とすると、下のような関係が成り立つ

$$\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} = \frac{1}{\lambda_3} \quad (2.5)$$

この中でも、2 種類の基本波の周波数が同じ場合の和周波発生を 2 倍波発生と呼び、基本波に対して半分の波長の光が得ることができる。2 倍波発生の模式図を図 2-10 に示す。本研究においては、この和周波発生と 2 倍波発生の 2 種類の波長変換を組み合わせることによって基本波 1025 nm から 5 分の 1 の波長 205 nm 光を得る。1 段目の波長変換として、2 倍波発生によって波長 1025 nm からその半分の波長である波長 513 nm を発生させる。2 段目の波長変換は、この 513 nm をさらに 2 倍波発生、つまり基本波に対しては、4 倍波である波長 256 nm を発生させる。3 段目の波長変換として 4 倍波と基本波の和周波発生によって基本波に対して 5 倍波発生である波長 205 nm 光を得ることが可能である。

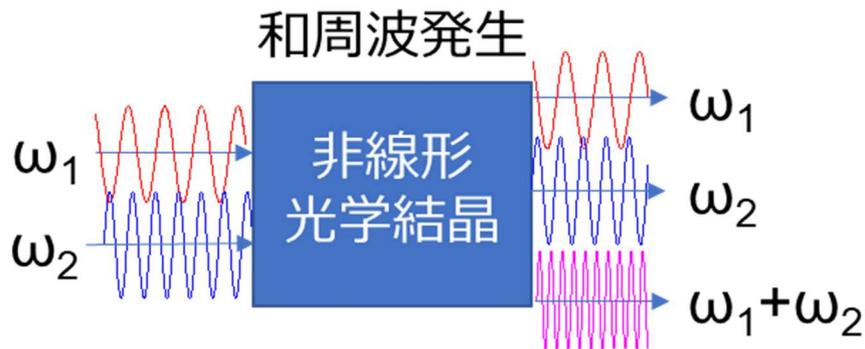


図 2- 9. 和周波発生の様式図



図 2- 10. 2 倍波発生の様式図

### 2.5.2 位相整合

ここで、高効率に波長変換を行うために位相整合について説明する。今回は、1 軸性の複屈折を持つ光学結晶について考える。ここで 1 例として 2 倍波発生における条件を述べていく。図 2- 11 に角周波数 $\omega$ における屈折率面を示す。ここで、常光線(Ordinary ray)に対する屈折率を $n_o$ 、異常光線(Extraordinary ray)に対応する屈折率を $n(\theta)$ とする。なお、 $z$  軸と波数ベクトル $k$ のなす角が $\theta$ であり、 $\theta=90$ 度において $n(90\text{deg.}) = n_e$ となる。

この 2 つの光学軸に対する屈折率の差は下式のように定式化される。

$$\Delta n = n_o - n_e \tag{2.6}$$

上式のような複屈折 $\Delta n$ を持つような結晶を用いた場合、角周波数 $\omega$ とその 2 倍波である $2\omega$ において、 $n_o^\omega = n^{2\omega}(\theta_{pm})$ となる角度が存在する。この角度 $\theta_{pm}$ を位相整合角と呼び、この角度に常光偏光で基本波 $\omega$ を入射すると、前述の非線形効果によって発生した異常光成分の 2 倍波成分 $2\omega$ は、基本波と同じ屈折率を感じ、同じ速度で結晶を伝搬していく。この結果、 $2\omega$ 成分は、結晶中ですべて位相速度がそろうため、足し合わせられながら伝搬を続けていくため高効率な波長変換を実現することが可能である。同様に和周波発生においても位相整合条件を導き出すことが可能である。前述の通り、2 つの基本波 $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ とその和周

波成分 $\lambda_3$ の各波長における屈折率を $n_1$ 、 $n_2$ 、 $n_3$ と置くと、光の運動量保存則より、

$$\frac{n_3}{\lambda_3} = \frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} \quad (2.7)$$

という関係が得られる。この関係性が和周波発生における位相整合を表した式である。上記関係を満たすことのできる結晶角 $\theta$ を導くことによって和周波発生においても位相整合を満たすことが可能となる。この位相整合角は、上式と、それぞれの非線形光学結晶の屈折率分散から導出することが可能である。

上記2つの例は、結晶の角度を調整することによって位相整合条件を満たす角度位相整合(クリティカル位相整合)であるが、他の位相整合法として温度位相整合(ノンクリティカル位相整合)と呼ばれる位相整合法が存在する。角度位相整合においては、結晶の角度を調整することによって各波長における位相速度を等しくしたが、この温度位相整合は、結晶の温度を調整することによって位相速度の不整合を最小化する方法である。結晶および基本波および波長変換後の波長の条件によっては、角度位相整合だけでなく、この温度位相整合を用いることが可能である。この温度位相整合は、角度位相整合に対してビームの不整合に対して比較的敏感ではないため、ノンクリティカル位相整合と呼ばれている。例えば波長 1025 nm から 1253 nm の光の 2 倍波発生においては、LBO( $\text{LiB}_3\text{O}_5$ )結晶を用いることで温度調整による位相整合条件を満たすことが可能であり、現在広く使用されている [64]。他の位相整合方法として、周期的に非線形光学結晶の分極方向を 180 度反転させることで疑似的に位相整合をとる方法として疑似位相整合 [65]が知られている。深紫外領域においては、水晶の疑似位相整合による波長 193 nm の発生が報告されており新しい深紫外領域の発生法として期待されているが、現時点においては製作に要求される高い精度などから角度位相整合に比べて低い変換効率に留まっている [66]。本研究で目指す近赤外領域から深紫外領域への波長変換を考える場合、角度位相整合および温度位相整合を組み合わせることで高い変換効率を達成することが可能である。また非線形光学結晶そのものの屈折率の異方性およびその波長依存性といった光学特性よりそれぞれの条件における位相整合条件は決定される。

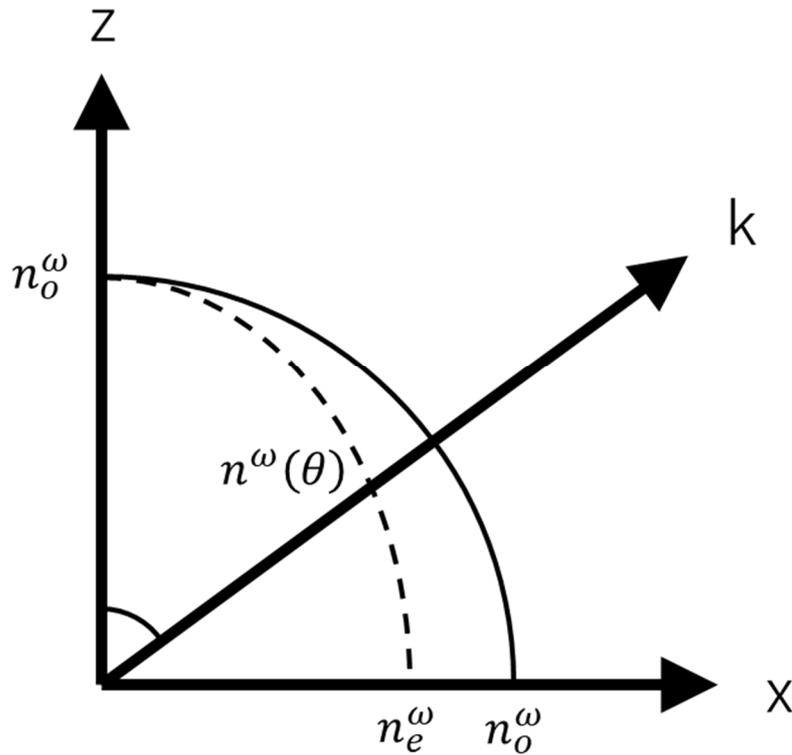


図 2- 11. 負の 1 軸性結晶における屈折率局面(xz 断面)

## 2.5.2 深紫外光発生用非線形結晶の検討

非線形光学結晶による波長変換において重要なことは、当該波長において透明かつ、2 次の非線形感受率 $d_{\text{eff}}$ が十分に大きい材料を選定することである。上記の観点より、全 3 段の波長変換に用いる非線形光学結晶を選定した。1 段目の 2 倍波発生結晶には、LBO を選定した [67]。LBO 結晶は高い損傷閾値を持ち、温度位相整合によって波長 1025 nm からの 2 倍波発生が可能である。2 段目の 4 倍波発生及び、3 段目の 5 倍波発生においては、CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub>(CLBO)を選定した。CLBO 結晶は、Mori らによって開発された結晶であり [68]、正方晶に属する 1 軸性の結晶であり、透過域は波長 180 nm~2750 nm 程度である。複屈折が他の非線形光学結晶に比べて大きいことから、和周波発生においては波長 185 nm の発生も報告されている [69]。他にこの深紫外領域における非線形光学結晶として、BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(BBO)が知られており、過去に報告されている色素レーザーの波長変換においては、この BBO が用いられている。波長 513 nm の 2 倍波発生(基本波に対して 4 倍波発生)および、4 倍波である波長 256 nm と基本波である波長 1025 nm の和周波発生において BBO と CLBO の特性を表 2- 2 に示す。BBO と CLBO の比較をすると、波長変換の効率を決定づける非線形光学定数は、同等程度である一方、ウォークオフ角が CLBO に対して BBO は大きい。このウォークオフの概念を図 2- 12 に示す。ウォークオフとは、大きな複屈折によって、基本波と波長変換光が結晶中を伝搬するにつれて、ビームが分離していく

現象である。このウォークオフが大きくなると、非線形光学結晶内部でのビームの重なる長さが短くなってしまい、結果として変換効率および波長変換光のビーム品質の劣化を招いてしまう。BBO に対して CLBO は小さいウォークオフ角を示しており、このことから高い波長変換効率が見込まれる。また、BBO の吸収端が波長 190 nm に対して、CLBO は波長 180 nm であることから、高出力動作下において、発生した深紫外光が結晶内を伝搬する際に自らが吸収してしまう自己吸収の影響が CLBO の方が軽微である。このような観点から従来使用されてきた BBO の代わりに CLBO を用いた。しかし、CLBO は BBO に比べて大気中の水分を格子中に取り込む潮解性を有しており、その対策のために不純物を少なくした結晶セル内部で CLBO を長時間加熱することによって結晶中の水不純物を低減することでレーザー損傷耐性が向上することが報告されている [70,71]。図 2- 13 にここまでに検討を行った波長 205 nm 帯の発生のための模式図を示す。波長 1025 nm の光をファイバーレーザーより発生、Yb:KGW を用いた再生増幅器によって増幅、全部で 3 回の波長変換によって所望の波長 205 nm 帯の深紫外光を得るというものである。

表 2- 2. 代表的な Yb 系固体材料とその光学的特性

波長 [nm]	結晶	位相整合角 [deg.]	実行非線形光学定数 $d_{\text{eff}}$ [pm/V]	ウォークオフ角 [deg.]
513 + 513 → 256	CLBO	66.1	0.83	1.7
	BBO	50.3	1.69	4.9
256+1025 → 205	CLBO	75.6	1.02	1.2
	BBO	54.7	1.87	5.5

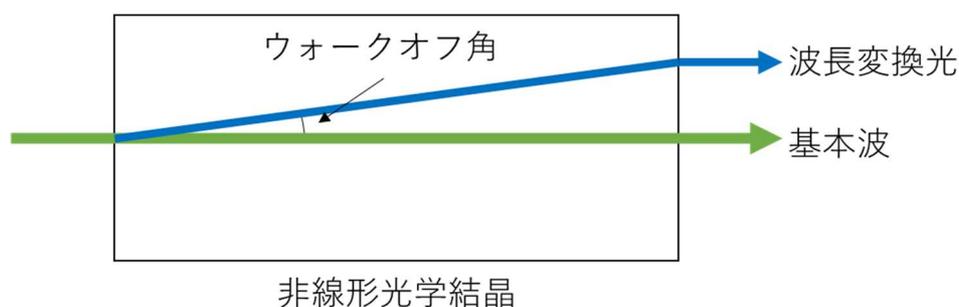


図 2- 12. ウォークオフの概念

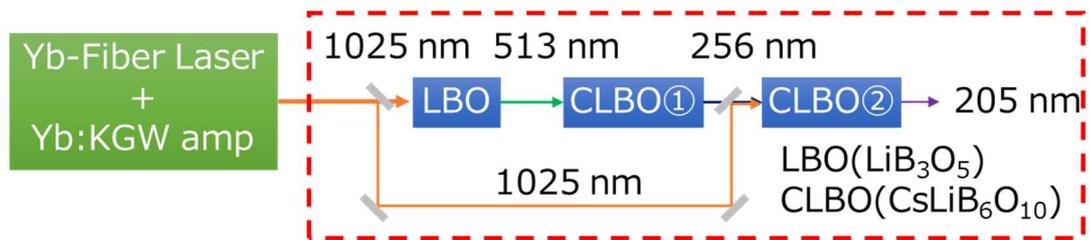


図 2- 13. 波長 205nm 帯光源の模式図

## 第 3 章 高繰り返し深紫外光源の開発

### 3.1 はじめに

本章では、前章にて述べたレーザー誘起蛍光法の高度化に向けた深紫外光源の開発結果について述べる。3.2 節では種光として用いた、半導体光レーザーおよびファイバーレーザーの性能を示す。3.3 節では、ファイバーレーザーからの出射光を Yb:KGW 結晶を用いた再生増幅器による増幅結果を示す。3.4 節では、増幅された波長 1025 nm 光の全 3 段の波長変換による深紫外光の発生結果を示す。

### 3.2 高繰り返し種光の評価結果

今回、開発を行った光源の種光として、半導体光レーザーおよびファイバーレーザーを用いた。半導体光レーザーとして、スペクトラ・クエスト・ラボ社製の” $\lambda$ -lock\_1025”を用いた。この光源は、転置 Littman 配置の共振器構成となっており、共振器内部の回折格子の角度を回転させることによって中心波長を変更することが可能である。図 3- 1 に回折格子に取り付けられたマイクロメータと中心波長の依存性を示す。マイクロメータを動かすことによって共振器内部の回折格子の角度が変更され、中心波長 1015~1035 nm まで変更することが可能である。CW 出力は全波長領域において 5 mW が得られている。この半導体レーザーからの連続波を半導体光増幅器によって切り出し、パルス化する。この半導体光増幅器は、スペクトラ・クエスト・ラボ社製の”RI1025-10ns”を用いた。動作周波数は、シングルショット~100 kHz で動作し、パルス幅は 1~10 ns まで可変である。本研究においては、繰り返し周波数は 1 kHz で動作を行った。得られたパルス光をファイバー増幅器によって増幅を行う。ファイバー増幅器は、スペクトラ・クエスト・ラボ社製の”FA1025-100-20”を用いた。増幅可能な帯域は、半導体レーザーと同様に波長 1015~1035 nm で、得られる出力は、1 kHz 動作において 1 mW 程度である。図 3- 2 にファイバーレーザーから出射されたパルス波形を示す。パルス幅は、半値全幅で 6 ns 程度であり、この光を種光として、増幅および波長変換を行った。

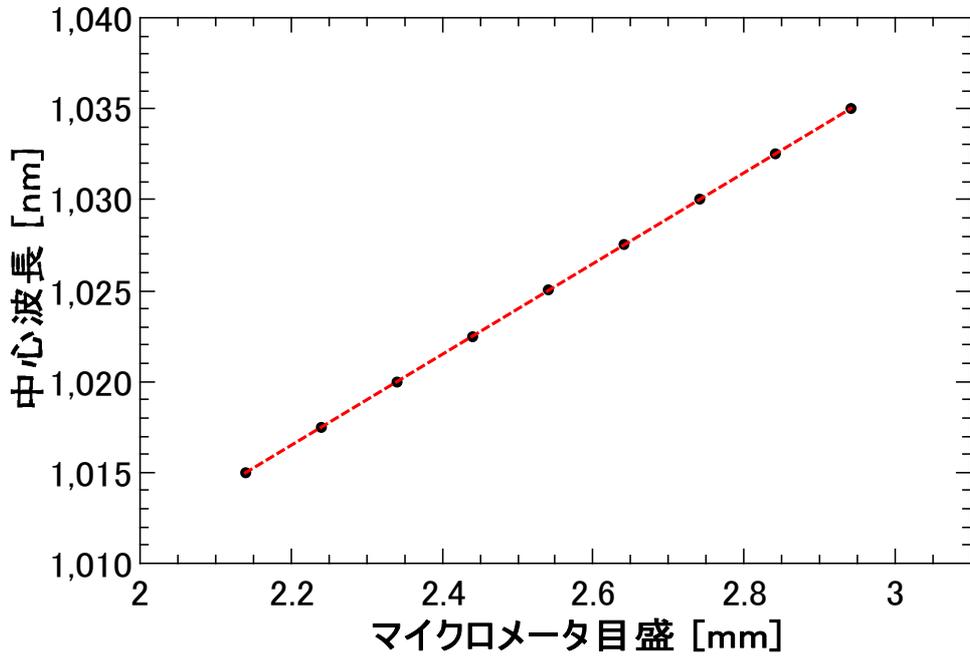


図 3- 1. 半導体レーザーの中心波長

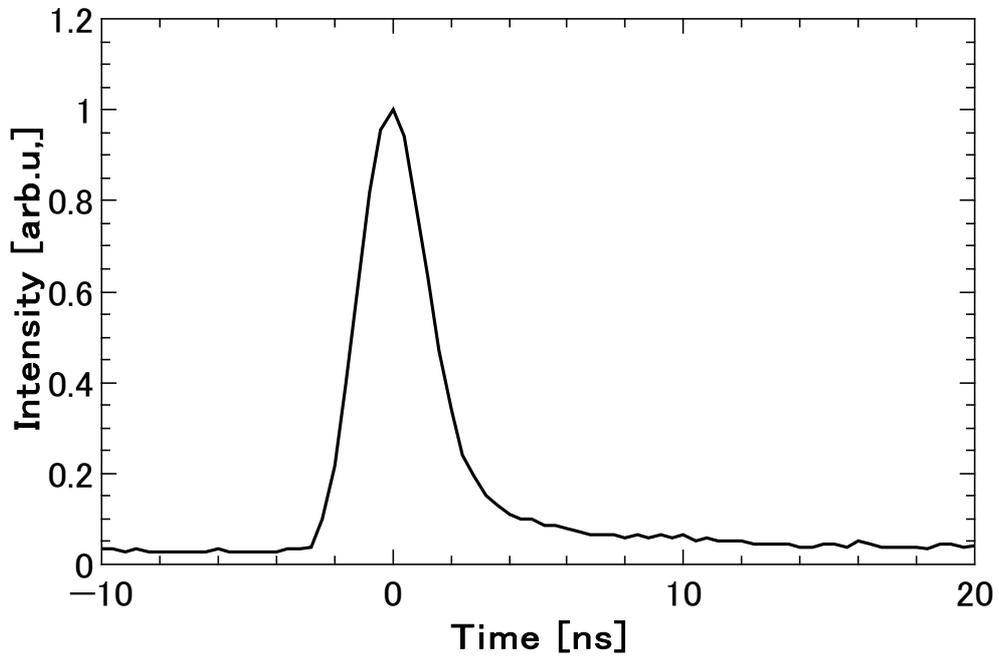


図 3- 2. ファイバー増幅器からの出射パルス波形

### 3.3 Yb:KGW を用いた再生増幅

#### 3.3.1 再生増幅器構築に向けた共振器の構築

再生増幅器は前述の通り、共振器を構築し、その内部に光スイッチを挿入することによって共振器内に光を閉じ込めることによって多数回の増幅を行う。まずは、最もシンプルな線形共振器構成において Yb:KGW 結晶の発振特性の確認を行った。本研究においては、5%ドープの Yb:KGW 結晶を用いた。レーザー結晶の励起のために、Yb:KGW の吸収線に合わせて波長 981 nm の半導体レーザーを用いた。図 3-3 に励起用半導体レーザーのスペクトルを、図 3-4 に出力特性を示す。電流 6 A において最大出力 26 W が得られている。共振器長が 65 mm、反射率 98% の出射鏡を用いた際の CW 出力特性を図 3-5 に示す。励起パワーが 21 W において出力 2.7 W が得られた。この共振器をもとに共振器長を伸ばしていくことで再生増幅器に用いる共振器を構築していった。

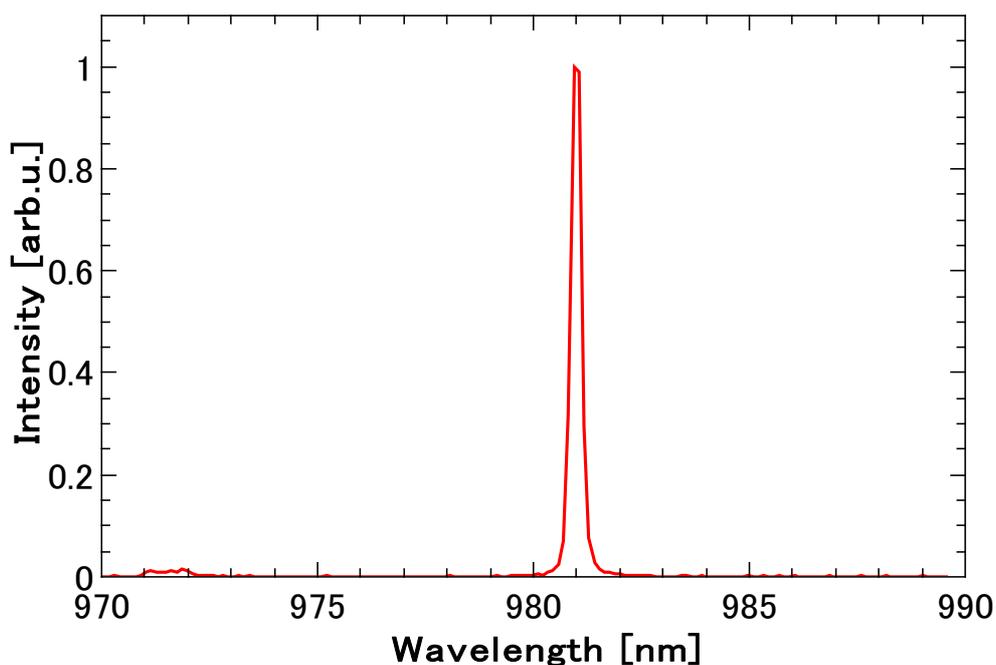


図 3-3. Yb:KGW 結晶の励起用半導体レーザーのスペクトル

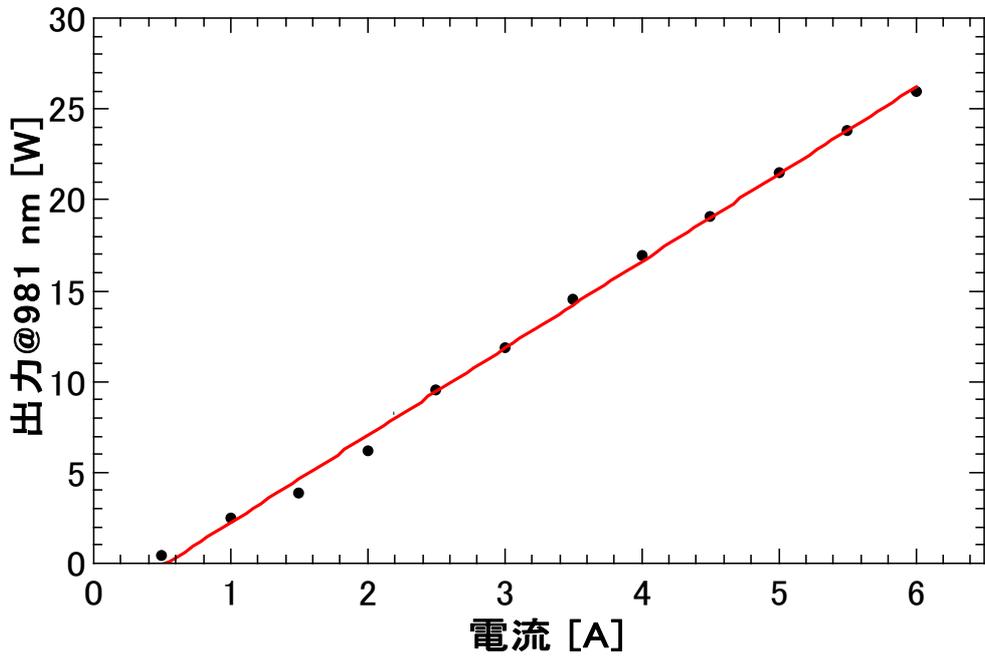


図 3- 4. 半導体レーザーの出力特性

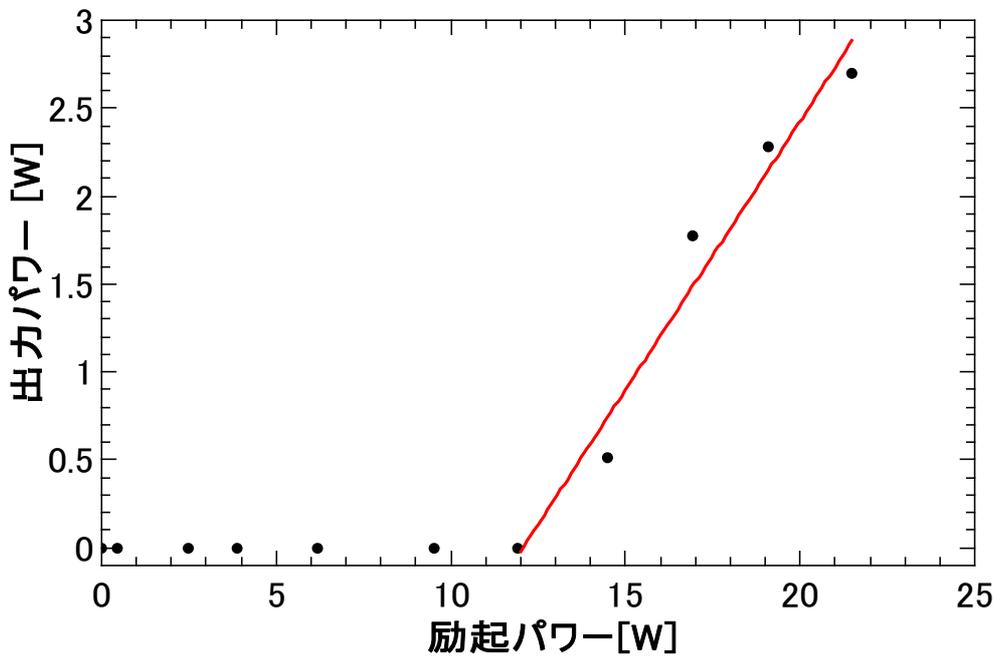


図 3- 5. 線形共振器における CW 出力特性

### 3.3.2 再生増幅器による種光の増幅結果

3.2 節で示した種光を構築した再生増幅器に入射することで増幅を行った。図 3-6 に実際に構築した再生増幅器の模式図を示す。共振器長は約 1200 mm であり、設計した共振器内のモード計算結果を図 3-7 に示す。緑の領域が Yb:KGW 結晶(厚み 5 mm)の位置であり、結晶内におけるビーム半径は 50  $\mu\text{m}$  と設計した。また、Yb:KGW を励起するための励起レーザーは、レンズによって Yb:KGW 上でビーム径が 200  $\mu\text{m}$  となるように設計を行った。計算された励起レーザーの伝搬の様子を図 3-8 に示し、実際に結晶の位置上におけるビームプロファイルを図 3-9 に示す。このような励起レーザーおよび設計の共振器において、実際に種光を入力して再生増幅を行った。なお、再生増幅器内に光を取り込むための光スイッチとしてはポッケルスセルを用いた。ポッケルスセルは光と電気の相互作用である電気光学効果の 1 種であるポッケルス効果を用いた光学素子である。ポッケルス効果とは、結晶に電圧を印加した際にその結晶の複屈折の大きさが印加電圧に比例して変化する現象であり、この複屈折の大きさを 1/2 波長や 1/4 波長に制御することによって偏光の制御を高速に行うことが可能である。このポッケルスセルの電圧の ON-OFF を制御することによって、入射光を共振器内に閉じ込め、Yb:KGW 結晶に入射光を多数回通過、増幅させた後に、再度ポッケルスセルの電圧を制御することによって増幅光を共振器の外へ取り出す。実際に計測された共振器内部のパルス波形と得られた出力パルスを図 3-10 に示す。時間が進むことによって、増幅回数が増えていき共振器の中で種光が増幅されている様子が示されており、青線のようにポッケルスセルによって増幅光を切り出した。またポッケルスセルの動作時間を変えることで、共振器の内部に種光を閉じ込める時間を変更することが可能であり、その出力依存性を図 3-11 に示す。1 kHz の繰り替え周波数においてパルス幅が 8.8 ns で 100 mW を超える出力を得た。また、各中心波長における、増幅後のスペクトルを図 3-12 に示す。波長 1030~1037.5 nm において増幅を得ることができた。図 3-13 に実際に増幅光のスペクトル幅を計測した結果を示す。スペクトル幅は、走査型ファブリペロー干渉計(Thorlabs 社製、SA30-95、1.5 GHz FSR)で計測を行った。スペクトル幅は周波数領域で、半値全幅で  $\Delta\nu=40.5$  MHz、波長領域に変換すると  $\Delta\lambda=0.14$  pm と評価された。これはパルス幅が 8.8 ns で時間波形からフーリエ変換限界から予測されるスペクトル幅、50.2 MHz(ガウス波形を仮定)、35.8 MHz( $\text{sech}^2$  を仮定)と同等程度の線幅が得られており、このことから狭線幅を維持したまま、再生増幅器において増幅が行えていることが示された。Yb:KGW 結晶の蛍光スペクトルは 25 nm と今回得られた波長可変幅に比べて広いが今回の再生増幅器においてスペクトル幅を制限する原因は共振器内に励起光を導入しているダイクロイックミラーの帯域幅である。このダイクロイックミラーをより広帯域なものに変更することによってより波長可変幅を広げることが可能である。中心波長の変更は種光の半導体レーザーの共振器内の回折格子を回転させることによって行っている。なお、波長 1030 nm の増幅スペクトルにおいて、波長 1040 nm 周辺にスペクトル成分が生

じているが、これは Yb:KGW 結晶の ASE 成分であり、共振器内部にエタロン等の狭帯域フィルタを設置することによって分離が可能である。

この基本波をさらに高出力化させるためには、再生増幅器の最適化および増幅器の段数を増やすことによって可能である。再生増幅器の最適化においては、本研究において構築した再生増幅器は、結晶上において共振器内のモード半径が  $50 \mu\text{m}$  に対して励起レーザーの集光時の半径が  $200 \mu\text{m}$  となっている。このモードマッチングをより高くすることによって励起光の吸収に対して、増幅の効率を高めることが可能である。また、励起レーザーのパワーを高めることによって再生増幅器からの出力を高めることが可能である一方、光学素子の損傷につながりやすくなるために、結晶をブリュースター角で使用することや、共振器の最適化によって各素子上におけるモード径を大きくするなどの対策が必要である。また励起光のパワーを上げていく場合、結晶の熱レンズ効果が無視できなくなり、共振器内のモード径の大きさが変わってしまうため、共振器の設計において熱レンズによって結晶上でのモード径が大きく変わらない共振器の設計を行う必要がある [63]。

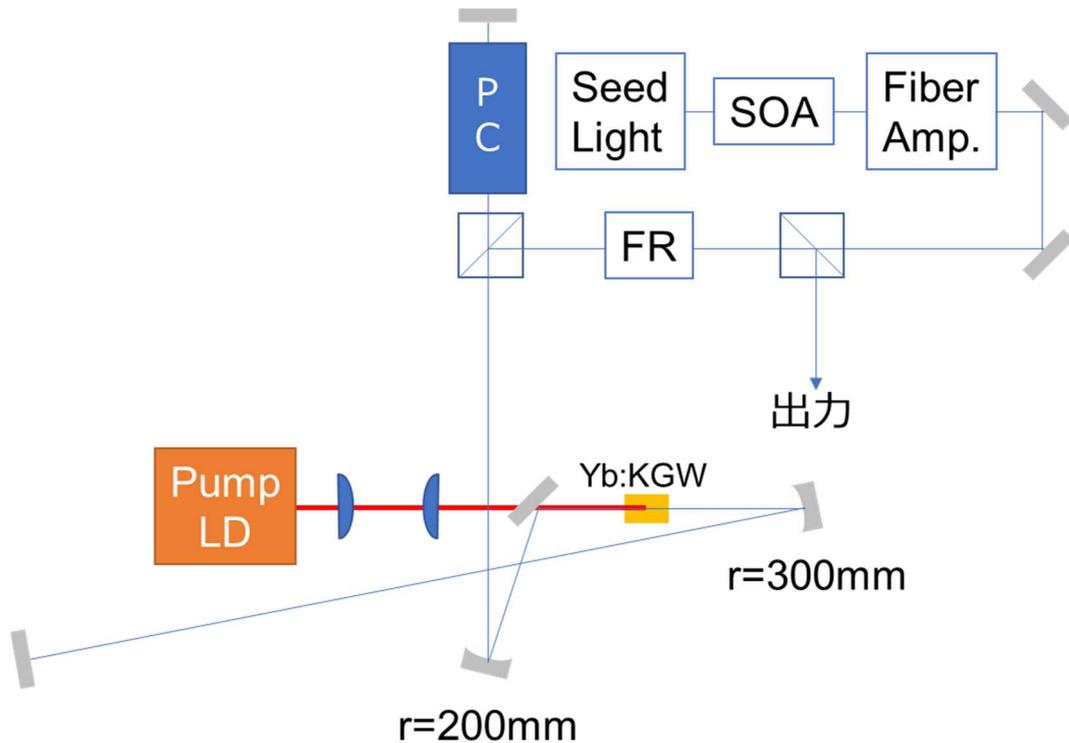


図 3- 6.再生増幅器の模式図

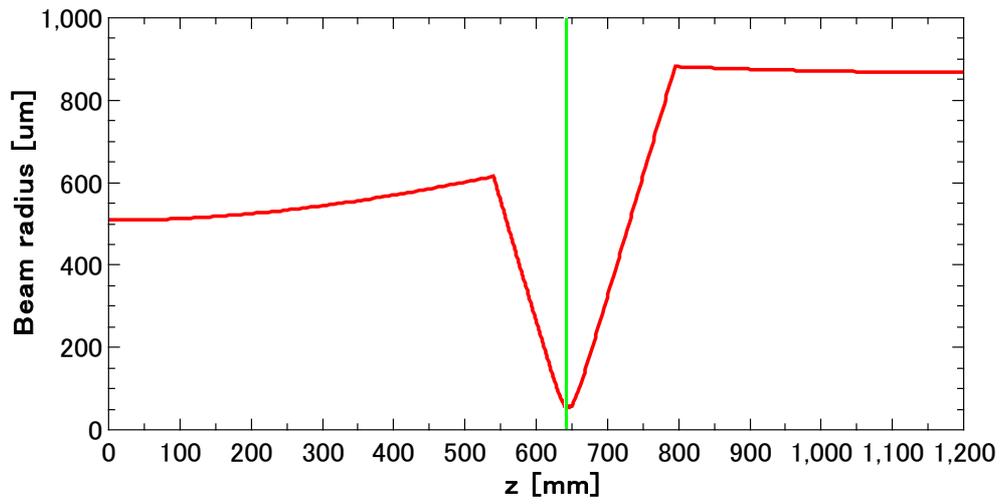


図 3-7. 設計した共振器内のモード径

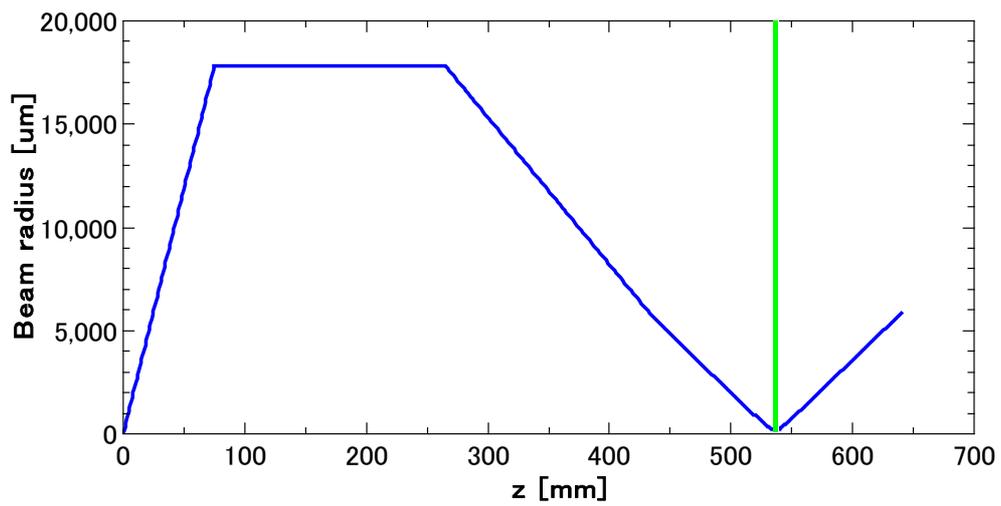


図 3-8. 励起レーザーの集光光学系

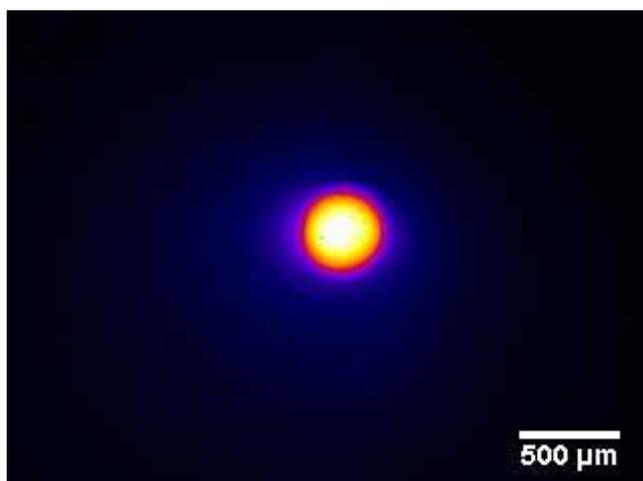


図 3- 9. 励起レーザーの Yb:KGW 上におけるビームプロファイル

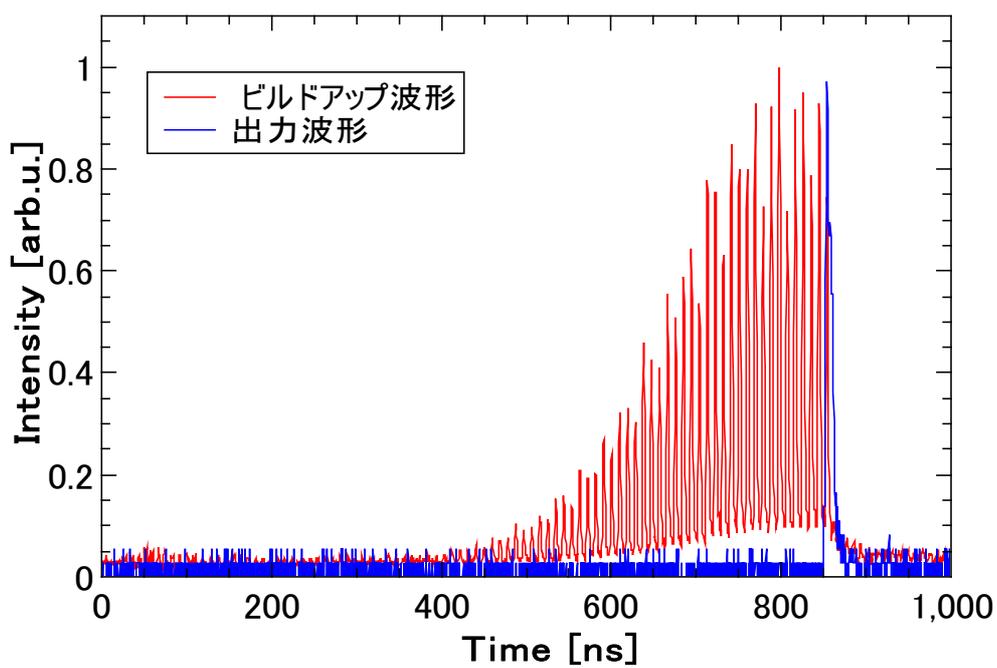


図 3- 10. 再生増幅器内部のパルス強度と出力パルス

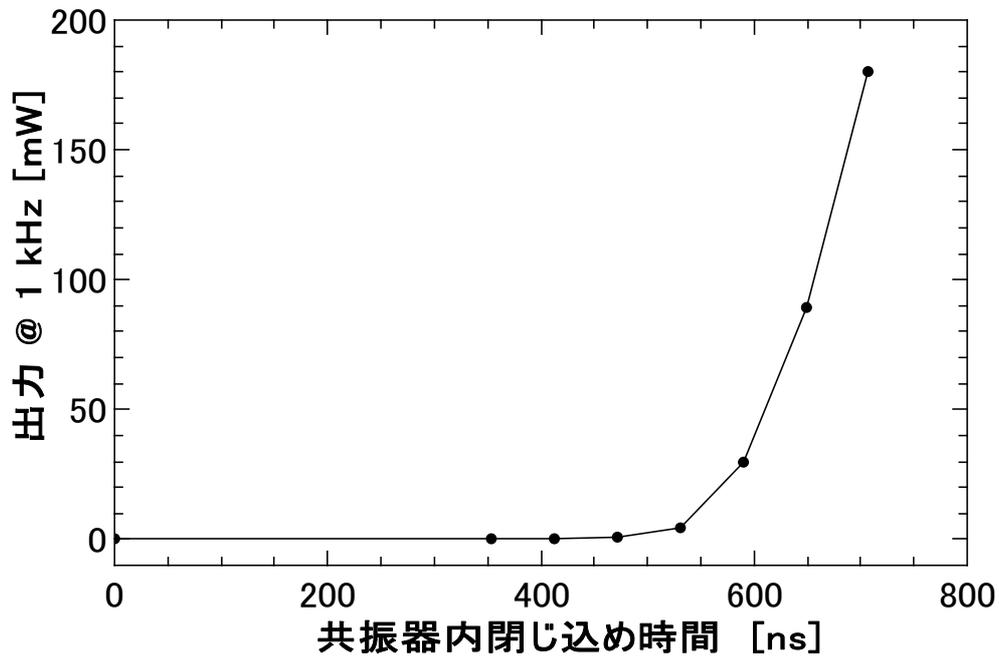


図 3- 11. 共振器の閉じ込め時間と出力の依存性

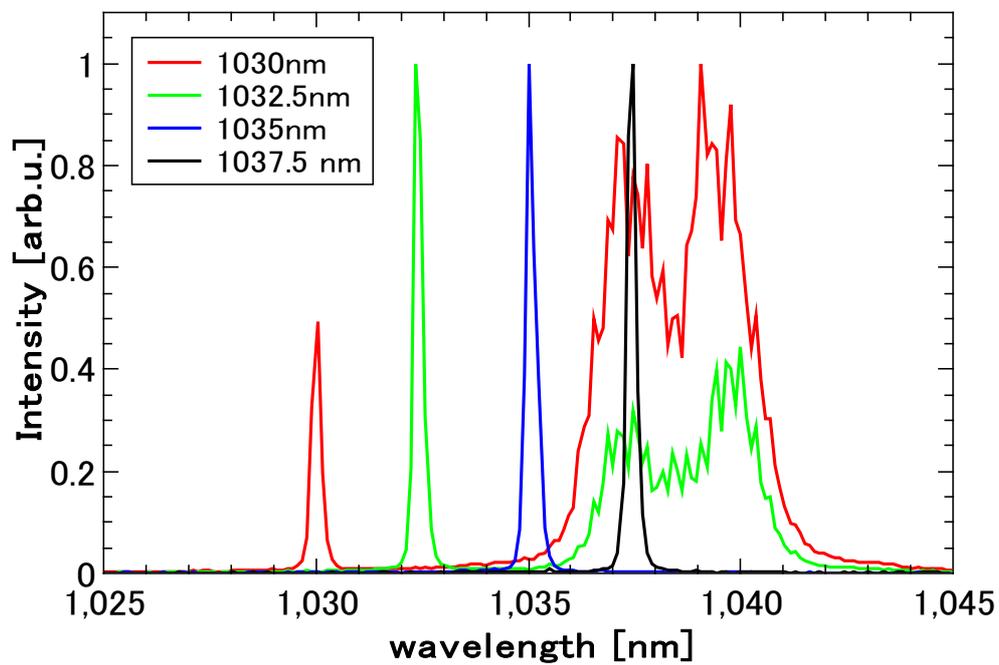


図 3- 12. 種光の各中心波長における増幅後のスペクトル

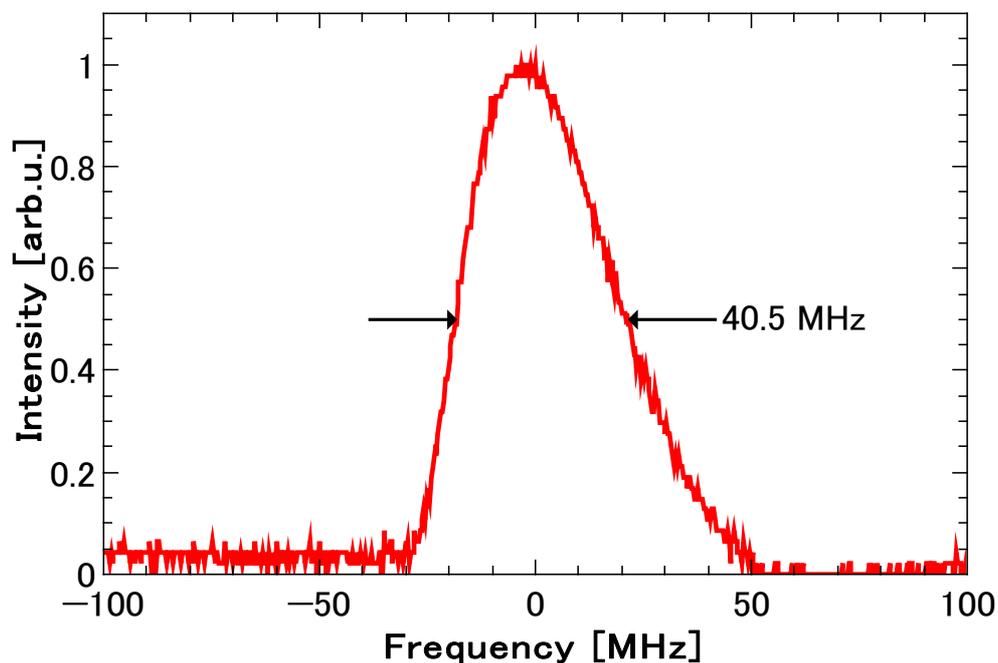


図 3-13. 増幅光のスペクトル幅計測結果

### 3.4 波長変換による深紫外光発生

#### 3.4.1 2倍波発生

再生増幅器から得られた増幅光を基本波として、LBO による 2 倍波発生を行った。2 倍波発生には、LBO 結晶(結晶長 20 mm)を用い、温度位相整合によって位相整合条件を満たしている。得られた出力は基本波の入力 50mW に対して、36mW で変換効率としては、70%を超える高効率を達成した。図 3-14 に基本波の入力に対する、2 倍波の出力及び変換効率を示す。赤印で示される変換効率は、入力に対して飽和しており、高い変換効率が得られていることが示された。得られた 2 倍波のスペクトルを図 3-15 に示す。

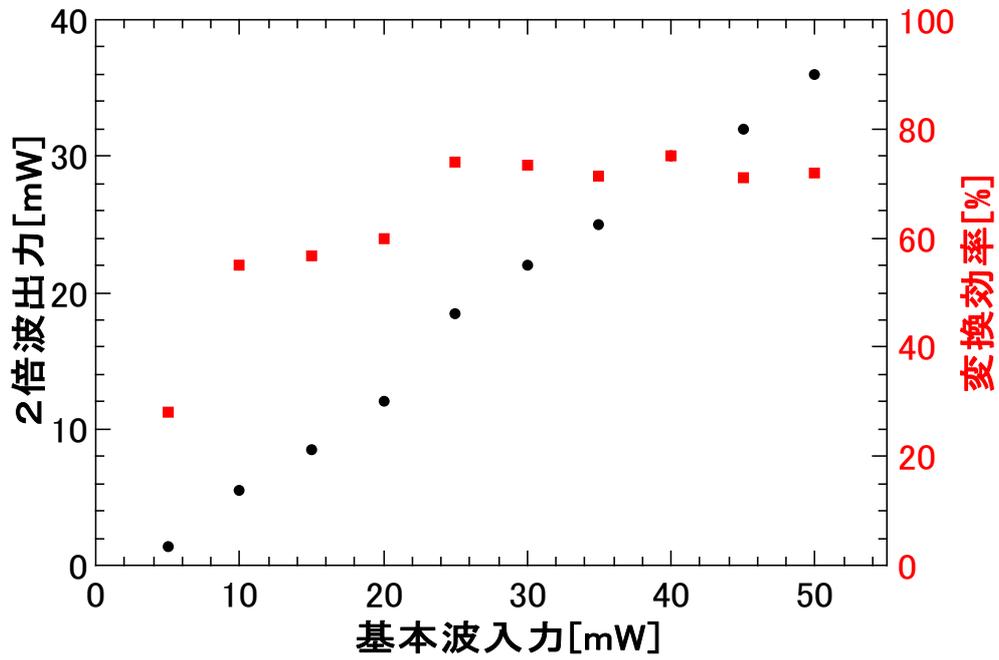


図 3- 14. 2 倍波発生 の出力 と変換効率

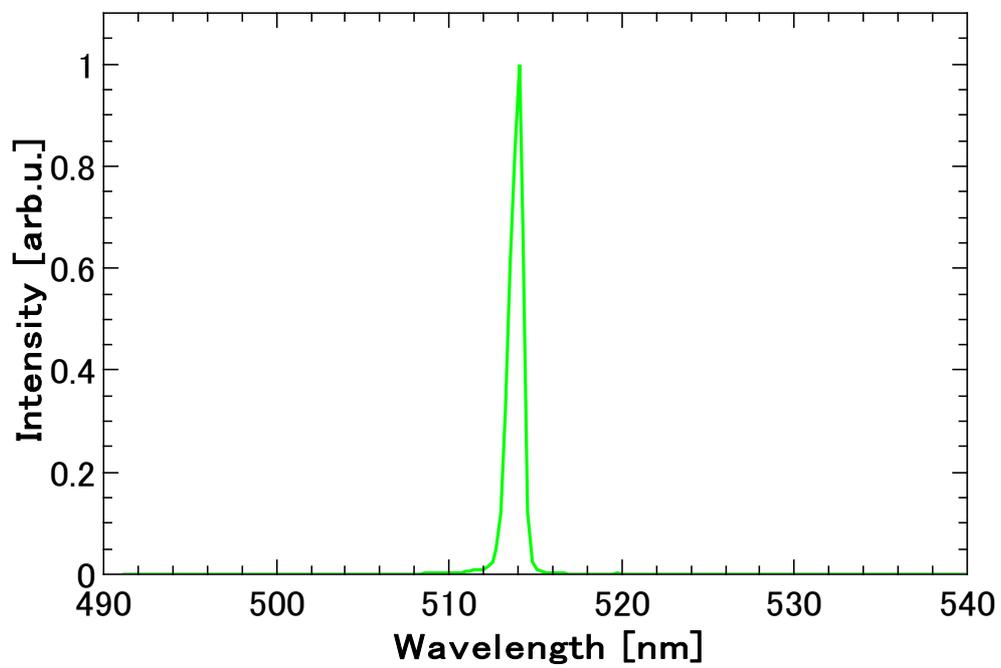


図 3- 15. 2 倍波 のスペクトル

### 3.4.2 4倍波発生

前節にて得られた2倍波を基本波として、CLBOによる2倍波発生、基本波にとっては4倍波発生を行った。4倍波発生には、CLBO結晶を用い、角度位相整合によって位相整合を得た。角度位相整合条件は、CLBOの屈折率分散[72]から計算を行い、図2-11において $\theta=62.5\text{ deg.}$ となるように切り出した結晶(結晶長20mm)を用いた。CLBO結晶は前述の通り強い潮解性を持つことから結晶の温度を $150^{\circ}\text{C}$ に制御したクリーンな結晶セルにArガスを流した状態で結晶の保護を行った。同様の結晶セルは5倍波発生のCLBO結晶にも用いている。得られた出力は2倍波の入力36mWに対して、17mWで変換効率としては、40%を超える高効率を達成した。高効率な波長変換効率を達成するために、4倍波発生および5倍波発生のCLBO結晶上で集光強度は $30\text{ MW/cm}^2$ 程度となるようにレンズによって集光した[73]。図3-16に2倍波の入力に対する、4倍波の出力及び変換効率を示す。赤印で示される変換効率は、入力に対して飽和しており、高い変換効率が得られていることが示された。得られた4倍波のスペクトルを図3-17に示す。

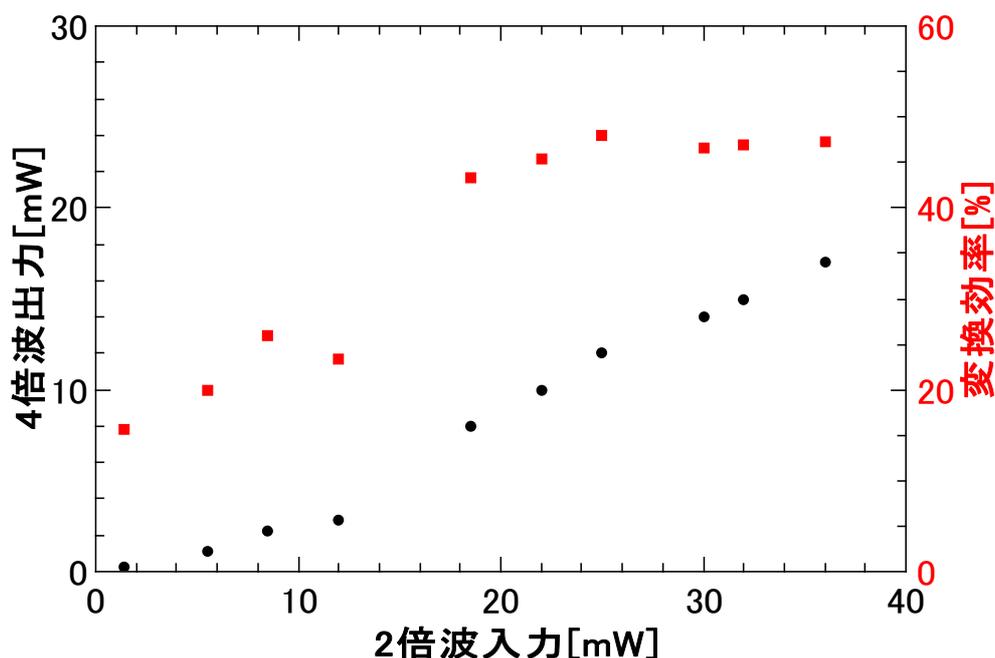


図 3-16. 4倍波発生の出力と変換効率

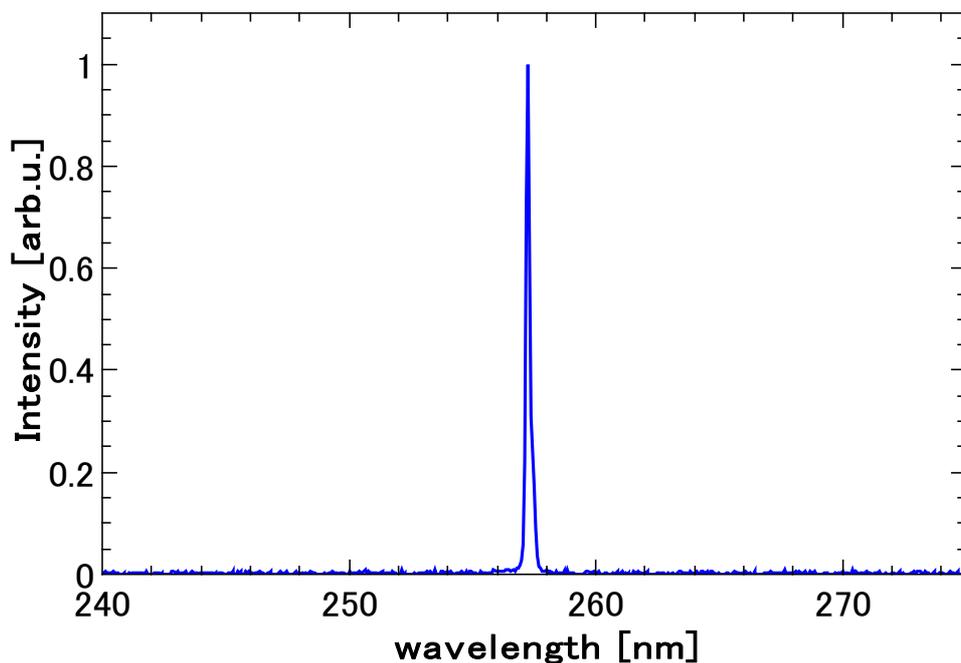


図 3- 17. 4 倍波のスペクトル

### 3.4.3 5 倍波発生

前節にて得られた 4 倍波および再生増幅器の出力から分岐された基本波によって、CLBO による和周波発生、基本波にとっては 5 倍波発生を行った。5 倍波発生には、CLBO 結晶を用い、角度位相整合によって位相整合を得た。角度位相整合条件は、CLBO の屈折率分散 [72] から計算を行い、図 2- 11 において  $\theta=74.4$  deg. となるように切り出しをした結晶(結晶長 20 mm)を用いた。得られた出力は 4 倍波の入力 15 mW および、基本波の入力 15 mW に対して、3mW を得た。図 3- 18 に得られた 5 倍波のスペクトルを示す。種光の中心波長を可変にすることによって、波長 206~207.5 nm の波長可変性を得た。5 倍波のパルス幅は 4.4 ns と評価され、そのパルス波形を図 3- 19 に示す。スペクトル幅に関しては、基本波のスペクトル幅である 40.5 MHz に対して非線形光学現象による波長変換からの  $n$  倍波の周波数領域でそのスペクトル幅が、 $\sqrt{n}$  倍となることが知られており [74]、5 倍波のスペクトル幅は、周波数領域で  $\Delta\nu=90.6$  MHz、波長領域で  $\Delta\lambda=0.01$  pm と見込まれる。

また、得られた出力において、焦点距離が 100 mm のレンズによって集光を仮定した際の集光強度の見積もりを図 3- 20 に示す。焦点付近においては、集光強度が  $3.5 \times 10^8$  W/cm<sup>2</sup> を超える集光強度が得られる見込みである。TALIF においては、焦点付近の集光強度が対象の粒子を上準位に励起するために重要なパラメータであり、過去に報告された水素原子における TALIF 計測においては  $1 \times 10^9$  W/cm<sup>2</sup> 程度までが計測に使用されている。この集光強度によって検出可能な粒子の最低密度が決定され、 $1 \times 10^9$  W/cm<sup>2</sup> においては  $1 \times 10^{15}$  m<sup>-3</sup> が計測できることが報告されている [38]。本研究において開発された深紫外光

源において見込まれる集光強度である  $3 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$  においては検出可能な中性粒子の最低密度は、 $3 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$  となる。より密度が低い粒子の TALIF を行うためには、3.3.2 節で説明した再生増幅器の高出力化、もしくは増幅器の段数を増やすことによって増幅光を高出力化することによって深紫外光の出力を上げることで可能となる。上記のように本研究において開発を行った深紫外光源によって繰り返し周波数が 1 kHz である高時間分解能を持つ TALIF に要求される集光強度を得られる見込みを得た。

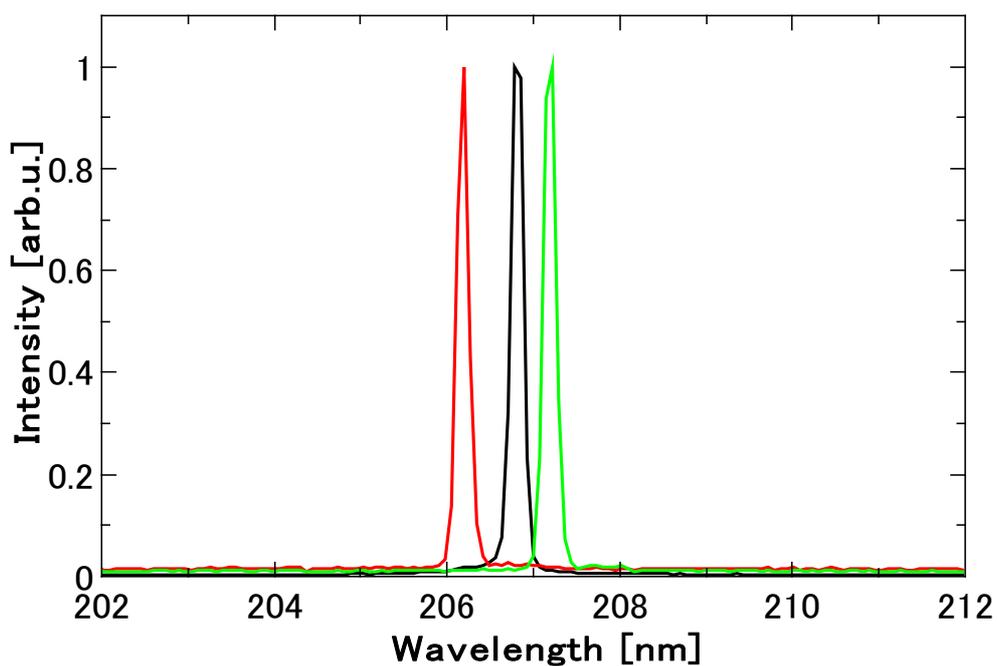


図 3- 18.5 倍波のスペクトル

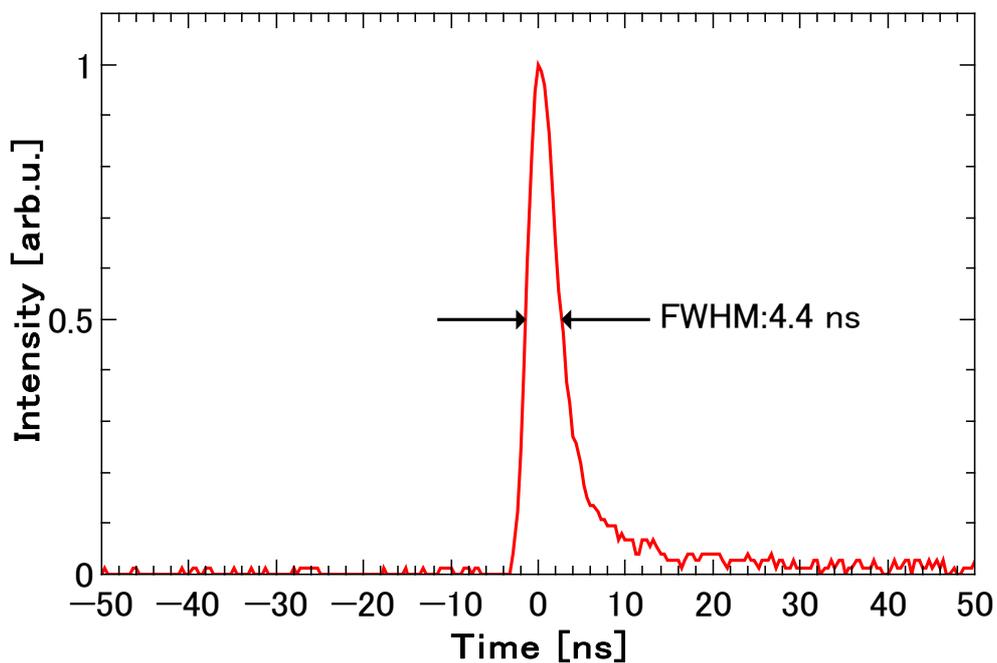


図 3- 19. 5 倍波のパルス波形

f=100mm lens

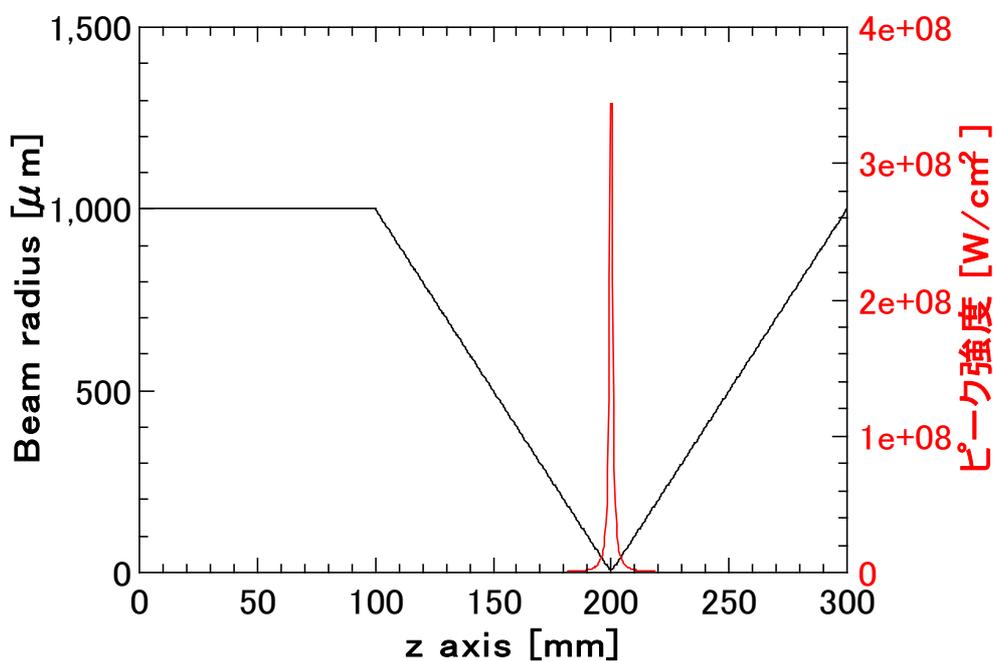


図 3- 20. 焦点距離 100mm によって集光した際に見込まれる集光強度

### 3.5 まとめ

高い時間分解能で TALIF 計測を行うためには、高繰り返し周波数で動作する深紫外光源が必要である。そのために、本研究では半導体レーザーを種光としてファイバー増幅および、Yb:KGW 再生増幅器によって繰り返し周波数が 1 kHz で 100 mW を超える出力が得られた。また、全 3 段の波長変換によって 3 mW の出力を得て、また波長 206~207.5 nm において波長可変を達成した。表 3-1 に本研究で得られた深紫外光源の性能と、過去に報告されている色素レーザーの波長変換による深紫外光源の比較を示す。深紫外光の出力は色素レーザーによる波長変換方式の方が大きいですが、本研究で実証したファイバーレーザーベースの波長変換方式は、高繰り返し性および狭線幅の 2 点で優れていることが実証された。得られた紫外光を集光することによって  $3 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$  を超える集光強度が得られる見込みであり、これは過去に報告されている色素レーザーの波長変換による TALIF 用光源における集光強度と同等程度である。以上の結果より、開発した深紫外光源は TALIF 計測に応用可能な性能であり、これまでの色素レーザーの波長変換においては達成が困難な高時間分解能 TALIF 計測が期待できる結果となった。

表 3-1. 過去に報告されている色素レーザーの波長変換による光源との性能比較

	色素レーザーによる 波長変換 [38]	本研究における ファイバーレーザーによる波長変換
基本波の波長	615 nm 帯	1025 nm 帯
繰り返し周波数	10 Hz	1 kHz
深紫外光波長	205 nm 帯	205 nm 帯
深紫外光出力	~1 mJ	~3 $\mu$ J
深紫外光線幅	0.29 pm	0.01 pm
集光強度	~ $1 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$	~ $3.5 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ ※f=100 mm で集光を仮定
計測可能な 中性粒子密度下限	$1 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$	$3 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$

## 第4章 光アイソレータおよびファラデー回転子の諸原理

### 4.1 はじめに

本章では、磁気光学効果の1種であるファラデー効果と、そのファラデー効果に基づく光アイソレータの諸原理について説明する。

4.2節ではファラデー効果の基礎原理および、ファラデー効果の強さを表す指標であるヴェルデ定数について説明する。ファラデー効果の起源は、誘電率テンソルの非対角成分が磁場によって生じることを示す。またヴェルデ定数は波長依存性を持っており、特にその描像は、材料の磁性によって大きく異なるため、反磁性体および常磁性体におけるそれぞれの波長依存性モデルを述べる。

4.3節では、そのファラデー効果に基づいて構成される光アイソレータについて説明する。

### 4.2 ファラデー効果

#### 4.2.1 ファラデー効果による偏光面の回転

磁気光学効果とは、磁界または、磁化の存在による光学活性効果のこと呼ぶ。その中の1種にファラデー効果があり、1845年にイギリスの Michael Faraday によって、磁界を印加した鉛ガラスを透過した光の偏光面が入射光に対して回転する現象が発見された [75]。この現象については、外部磁場によって誘電率テンソルに非対角成分が生じるためと理解されている。誘電率は、電束密度  $\mathbf{D}$  と電界  $\mathbf{E}$  の関係を与える量であり、その関係は、

$$\mathbf{D} = \tilde{\epsilon}\epsilon_0\mathbf{E} \quad (4.1)$$

となる。ここで、 $\epsilon_0$  は真空の誘電率であり、 $\tilde{\epsilon}$  は非誘電率テンソルと呼ばれ  $3 \times 3$  の行列で次式のように表すことができる。

$$\tilde{\epsilon} = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} & \epsilon_{zy} & \epsilon_{zz} \end{bmatrix} \quad (4.2)$$

$\tilde{\epsilon}$  の成分は複素数であるため、それぞれの要素は、

$$\epsilon_{ij} = \epsilon'_{ij} + i\epsilon''_{ij} \quad (4.3)$$

と表記できる。ここで、磁場を印加した場合の比誘電率テンソルについて考える。簡単のために、等方性の物質を考える。磁場を印加していない場合の、 $\tilde{\epsilon}$  は、

$$\tilde{\epsilon} = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{xx} \end{bmatrix} \quad (4.4)$$

と表すことができるが、図 4-1 のように、磁化  $\mathbf{M}$  を  $z$  軸にとると、 $z$  軸の一軸異方性が生じる。この場合は、 $z$  軸周りの任意の回転に対して不変であるため、

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{yx} &= -\epsilon_{xy} \end{aligned} \quad (4.5)$$

$$\varepsilon_{xz} = \varepsilon_{yz} = \varepsilon_{zx} = \varepsilon_{zy} = 0$$

という関係性が導かれる。したがって、磁場を  $z$  軸方向に印加する場合の  $\varepsilon$  は次のように示される。

$$\tilde{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & 0 \\ -\varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} \end{bmatrix} \quad (4.6)$$

この誘電率テンソル  $\tilde{\varepsilon}$  を持つ媒質中を光が伝搬するときのマクスウェル方程式は、

$$\begin{aligned} \text{rot } \mathbf{E} &= -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \\ \text{rot } \mathbf{H} &= \tilde{\varepsilon} \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \end{aligned} \quad (4.7)$$

と表すことができる。ここで、 $\mu_0$  は真空の透磁率、磁界ベクトルは  $\mathbf{H}$  である。式(4.7)の解として、波数ベクトル  $\mathbf{K}$  として次式を考える。

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t) \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) \\ \mathbf{H} &= \mathbf{H}_0 \exp(-i\omega t) \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) \end{aligned} \quad (4.8)$$

ここで、複素屈折率  $\hat{N} = n + i\kappa$  を用いる。 $n$  は屈折率、 $\kappa$  は消光係数である。波数ベクトルの大きさ  $K$  は、 $K = \omega \hat{N} / c = \omega n / c + i\omega \kappa / c$  であるため、上式は、

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{E}_0 \exp \left\{ -i\omega \left( t - \frac{\hat{N} \cdot \mathbf{r}}{c} \right) \right\} \\ \mathbf{H} &= \mathbf{H}_0 \exp \left\{ -i\omega \left( t - \frac{\hat{N} \cdot \mathbf{r}}{c} \right) \right\} \end{aligned} \quad (4.9)$$

と書き換えることができる。この式を(4.7)に代入すると、

$$\begin{aligned} \mathbf{K} \times \mathbf{E} &= \omega \mu_0 \mathbf{H} \\ \mathbf{K} \times \mathbf{H} &= \omega \tilde{\varepsilon} \varepsilon_0 \mathbf{E} \end{aligned} \quad (4.10)$$

となり、この式から  $\mathbf{H}$  を消去すると、

$$\hat{N}^2 \mathbf{E} - (\mathbf{E} \cdot \hat{N}) \hat{N} - \tilde{\varepsilon} \mathbf{E} = \mathbf{0} \quad (4.11)$$

という固有値方程式を得る。ここで、図 4-1 のような配置、つまり磁場が  $z$  方向で、 $z$  軸に平行に伝搬する波の場合、式(4.9)は、

$$\mathbf{E} = E_0 \exp \left\{ -i\omega \left( t - \frac{\hat{N}_z z}{c} \right) \right\} \quad (4.12)$$

となる。その固有値方程式(4.11)は、

$$\begin{bmatrix} \hat{N}^2 - \varepsilon_{xx} & -\varepsilon_{xy} & 0 \\ \varepsilon_{xy} & \hat{N}^2 - \varepsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & -\varepsilon_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = 0 \quad (4.13)$$

と書くことができる。この方程式の固有値は、

$$\hat{N}_{\pm}^2 = \varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy} \quad (4.14)$$

を得ることができる。この固有値に対応する固有関数は、

$$\mathbf{E}_{\pm} = \frac{E_0}{\sqrt{2}} (\mathbf{i} \pm i\mathbf{j}) \exp \left\{ -i\omega \left( t - \frac{\hat{N}_{\pm} z}{c} \right) \right\} \quad (4.15)$$

である。ここで、 $\mathbf{i}, \mathbf{j}$  はそれぞれ  $x, y$  方向の単位ベクトルである。この  $E_+$  と  $E_-$  はそれぞれ右回り、左回りの円偏光である。以上のように磁場の印加によって比誘電率テンソルに非対角成分が生じることから、固有状態が円偏光に変化する。

ここで、 $\hat{N}_{\pm} = n_{\pm} + i\kappa_{\pm}$ であり、

$$\begin{aligned}\Delta n &= n_+ - n_- \\ \Delta \kappa &= \kappa_+ - \kappa_- \\ n &= \frac{n_+ + n_-}{2} \\ \kappa &= \frac{\kappa_+ + \kappa_-}{2}\end{aligned}\quad (4.16)$$

という置き換えをすると、

$$\hat{N}_{\pm} = (n + i\kappa) \pm \frac{1}{2}(\Delta n + i\Delta \kappa) \equiv \hat{N} \pm \frac{1}{2}\Delta \hat{N}\quad (4.17)$$

となり、 $\Delta \hat{N}$ に書き換えると

$$\Delta \hat{N} = \hat{N}_+ - \hat{N}_- = \Delta n + i\Delta \kappa\quad (4.18)$$

となる。ここから(4.17)を(4.14)に代入することで、

$$\begin{aligned}\varepsilon'_{xx} &= n^2 - \kappa^2 \\ \varepsilon''_{xx} &= 2n\kappa \\ \varepsilon'_{xy} &= n\Delta \kappa + \kappa\Delta n \\ \varepsilon''_{xy} &= \kappa\Delta \kappa - n\Delta n\end{aligned}\quad (4.19)$$

を得る。この式の最初の2つは、磁場の印加の有無によって変化せず、磁場の存在によって $\Delta n$ 、 $\Delta \kappa$ が生じ、

$$\begin{aligned}\Delta n &= \frac{\kappa\varepsilon'_{xy} - n\varepsilon''_{xy}}{n^2 + \kappa^2} \\ \Delta \kappa &= \frac{n\varepsilon'_{xy} + \kappa\varepsilon''_{xy}}{n^2 + \kappa^2}\end{aligned}\quad (4.20)$$

と書き換えることができる。この式を、再び $\Delta \hat{N}$ に書き直すと、

$$\Delta \hat{N} = \Delta n + i\Delta \kappa = \frac{i\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}}\quad (4.21)$$

と書くことができる。この式より、比誘電率テンソルの非対角成分によって、左右円偏光の屈折率に差が、つまり応答に差が出ることが示された。

次にこの $\Delta N$ の効果によって偏光が回転する様子を示す。図4-1における座標軸と同様にz軸方向に磁場を印加、x方向に偏光する光を考える。x軸の単位ベクトルを $\mathbf{i}$ 、y軸の単位ベクトルを $\mathbf{j}$ とすると入射光の単位ベクトルは、

$$\mathbf{E}_{in} = E_0 \exp(-i\omega t)\mathbf{i}\quad (4.22)$$

と表記できる。右回り円偏光単位ベクトル $\mathbf{r}$ と、左回り円偏光単位ベクトル $\mathbf{l}$ とすると、

$$\begin{aligned}\mathbf{r} &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{i} + i\mathbf{j}) \\ \mathbf{l} &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{i} - i\mathbf{j})\end{aligned}\quad (4.23)$$

と表され、(4.22)を書き換えると、

$$\mathbf{E}_{in} = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \exp(-i\omega t)(\mathbf{r} + \mathbf{l})\quad (4.24)$$

と表すことができる。つまり直線偏光は右回り円偏光と左回り円偏光の合成成分として理解することができる。物質中の複素屈折率は右回り円偏光において $\hat{N}_+$ 、左回り円偏光 $\hat{N}_-$ と

なる。物質表面を  $z = 0$  として物質中の  $z = \xi$  となる位置では、位相がそれぞれ、 $i\omega\widehat{N}_+ + \xi/c$  および  $i\omega\widehat{N}_- - \xi/c$  だけ進むので、

$$E_{out} = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \exp \left\{ -i\omega \left( t - \frac{\widehat{N}}{c} \xi \right) \right\} \left\{ \exp \left( i\omega \frac{\Delta\widehat{N}}{2c} \xi \right) \mathbf{r} + \exp \left( -i\omega \frac{\Delta\widehat{N}}{2c} \xi \right) \mathbf{l} \right\} \quad (4.25)$$

ここで、もとの  $xyz$  座標に変換、(4.18)を使用、加えて磁気二色性がない( $\Delta\kappa = 0$ )とすると、

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{out} &= E_0 \exp \left\{ -i\omega \left( t - \frac{\widehat{N}}{c} \xi \right) \right\} \\ &\times \left[ \cos \left( \frac{\omega\Delta n}{2c} \xi \right) \mathbf{i} - \sin \left( \frac{\omega\Delta n}{2c} \xi \right) \mathbf{j} \right] \end{aligned} \quad (4.26)$$

ここで、座標系を  $z$  軸周りに  $\theta = -\omega\Delta n\xi/2c$  だけ回転した、 $x'y'z'$ 座標系を導入、単位ベクトルを  $\mathbf{i}'$ 、 $\mathbf{j}'$ 、 $\mathbf{k}'$  で書き換えると、

$$\mathbf{E}_{out} = E_0 \exp \left\{ -i\omega \left( t - \frac{N}{c} \xi \right) \right\} \mathbf{i}' \quad (4.27)$$

と変換され、 $x'$ 軸方向の直線偏光であることが示された。

このことから、ファラデー回転角は、

$$\theta_F = -\frac{\omega\Delta n}{2c} \xi \quad (4.28)$$

となる。ここに式(4.21)を代入すると、

$$\theta_F = \frac{\omega\varepsilon_{xy}''}{2cn} \xi \quad (4.29)$$

と、ファラデー回転角と、比誘電率テンソルの非対角成分の関係性が導き出された。

つまりファラデー効果によって偏光が回転する原理としては、

- ・ 磁場の印可によって誘電率テンソルに非対角成分が生じる
- ・ 非対角成分によって右回り円偏光と左回り円偏光の感じる屈折率に差が生じる
- ・ 右回り円偏光と左回り円偏光の位相に差が生まれることで、それぞれの円偏光成分の和で表される直線偏光が回転する

と理解することができる。

このファラデー効果は後述する光アイソレータとして用いられているだけでなく、磁気や電流センサー [76,77]、チューナブルなバンドパスフィルター [78]等で活用されている。また、これまでの応用用途としてはファラデー効果によって偏光が回転する効果に着目して応用の研究がなされてきたが、近年ファラデー効果によって右回り/左回り円偏光の屈折率が変化することに着目、共振器長の制御に使用され機械的な共振が発生しない新しい変調器として「磁気光学変調器」が提案、実証されている [79]。

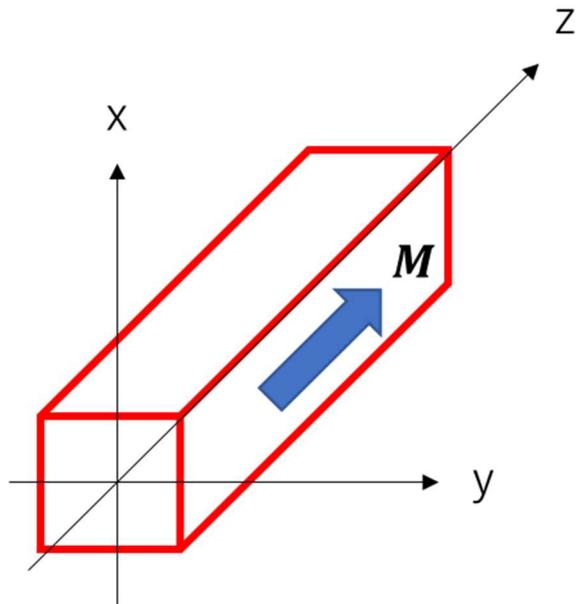


図 4-1. 磁場の方向と座標軸

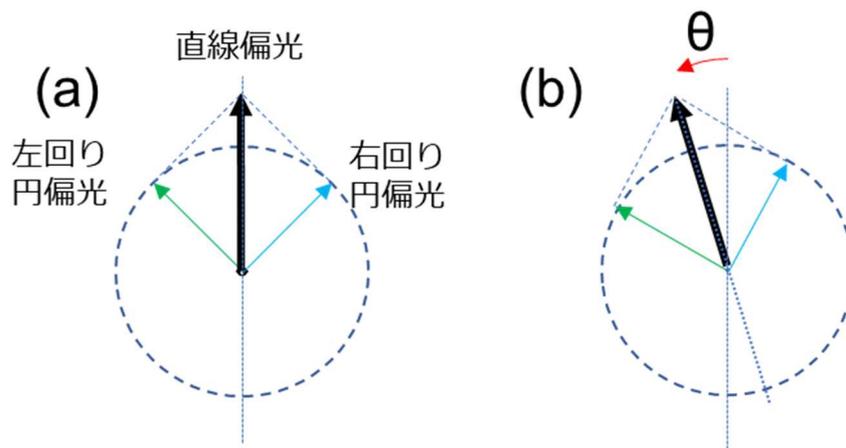


図 4-2. 右回り円偏光と左回り円偏光の位相のずれによって偏光が回転する様子

#### 4.2.2 ヴェルデ定数

前 4.2.1 節において、磁場を印加した際に比誘電率テンソルの非対角成分が生じ、右回りと左回りの円偏光の応答に差が生じて、結果として、偏光面が回転することが示された。ファラデー効果による偏光面の回転角度 $\theta_F$ は、磁場強度 $H$ および媒質長 $l$ に比例し、

$$\theta_F = VHL \quad (4.30)$$

と表すことができる。ここで、 $V$ はヴェルデ定数と呼ばれ、物質固有の比例定数であり、ファラデー効果の強さを表す指標である。ヴェルデ定数の特徴は以下のような特徴を持つ。

- ・波長、材料依存の物性値

・材料の磁性によって特性が異なる

・波長が短くなると、ヴェルデ定数は急峻に大きくなる(詳細は 4.2.3 で説明する)

ヴェルデ定数が大きい値を示す場合、薄い媒質長および弱い磁場でも効果的に偏光を回転させることが可能となるため、ファラデー回転子を構築する場合、重要な指標となる。

#### 4.2.3 ヴェルデ定数の波長依存性モデル

前節で説明したようにヴェルデ定数は波長依存性を持つ。前節で説明したように、ヴェルデ定数そのものは物質の磁性によって振る舞いが異なるため、①反磁性体および②常磁性体のヴェルデ定数の波長依存性のモデルについてそれぞれ説明をする。

##### ① 反磁性体(diamagnetic)の場合

反磁性体におけるヴェルデ定数の古典的なモデルは、Becquerel によって古典力学のモデルであるばね-質量モデルから導出された。このモデルにおいて、電子の運動方程式は、

$$m\ddot{\mathbf{r}} = -m\omega^2\mathbf{r} + e\mathbf{E} \quad (4.31)$$

と表すことができる。ここで、 $K = m\omega^2$ という置換をすると、

$$\begin{aligned} m\ddot{x} &= -eE \cos(\omega t) - Kx \\ m\ddot{y} &= -eE \sin(\omega t) - Ky \end{aligned} \quad (4.32)$$

であり、この式から、 $\omega = \pm\sqrt{\frac{K}{m}} = \pm\omega_0$ で共振することが分かる。この式は磁場がない状態

での運動方程式であり、前述の通り、ファラデー効果は磁場を印加することによって対称性が失われて起こっている。磁場を z 軸方向に  $B$  だけ印加されると磁場による力が加わり、

$$m\ddot{\mathbf{r}} = -m\omega^2\mathbf{r} + e\mathbf{E} + \frac{e}{c}(\dot{\mathbf{r}} \times \mathbf{B}) \quad (4.33)$$

ここで成分分解を行うと、

$$\begin{aligned} m\ddot{x} &= -eE \cos(\omega t) - Kx - \frac{e}{c}B\dot{y} \\ m\ddot{y} &= -eE \sin(\omega t) - Ky + \frac{e}{c}B\dot{x} \end{aligned} \quad (4.34)$$

と書き換えることができる。ここで、 $\omega_L = \frac{eB}{2m} = 2\pi\nu_L$ であり、 $\nu_L$ はラーモア周波数と呼ば

れる。また、右周り円偏光及び、左回り円偏光の屈折率は、

$$\begin{aligned} n_r(\nu) &= n(\nu_0 + \nu_L) \\ n_l(\nu) &= n(\nu_0 - \nu_L) \end{aligned} \quad (4.35)$$

と示すことができる。光の周波数 $\nu_0$ に対してラーモア周波数 $\nu_L$ が十分小さいため、

$$n(\nu_0 \pm \nu_L) = n(\nu_0) \pm \frac{dn}{d\nu}\nu_L \quad (4.36)$$

と近似することができる。ここで右回り、左回り円偏光の屈折率差は、

$$n_r - n_l = 2 \frac{dn}{d\nu}\nu_L = 2 \times \left( -\frac{\lambda^2}{c} \frac{dn}{d\lambda} \right) \times \frac{eB}{4\pi m} = -\frac{2\lambda^2}{c} \frac{dn}{d\lambda} \frac{eB}{4\pi m} \quad (4.37)$$

と求められ、ここからヴェルデ定数が、

$$V = -\frac{e\lambda}{2mc^2} \frac{dn}{d\lambda} \quad (4.38)$$

と導出される。ここで、 $e$ は電気素量、 $\lambda$ はレーザー光の波長、 $m$ は電子の質量である。この式は、後に磁気光学的異常係数(magneto-optic anomaly factor)である $\gamma$ が導入された

$$V_{dia} = -\gamma \frac{e\lambda}{2mc^2} \frac{dn}{d\lambda} \quad (4.39)$$

を用いることで多くの材料のヴェルデ定数の波長依存性が説明されることが示された [80]。なお、 $\gamma$ は物質の結合状態によって決定され、1に近いとイオン結合が支配的であり、共有結合の強いダイヤモンドにおいては0.28になると報告されている。屈折率の波長依存性 $dn/d\lambda$ が式中に存在することから、波長が短波長へ、つまり吸収端に近づくことでヴェルデ定数は大きくなる。

また、ヴェルデ定数の波長依存性は Van Vleck によって量子力学的に

$$V_{dia} = 4\pi N v^2 \sum_b \frac{C(a,b)}{(v^2 - v_{ab}^2)^2} \quad (4.40)$$

と導出された [81]。ここで、 $C(a,b)$ は基底準位と励起準位間の遷移モーメントの関数である。(4.40)は、複数の励起準位の寄与の和をとることで、ヴェルデ定数の波長依存性のふるまいを説明しているが、Hoffman らは、これを深紫外領域に存在する励起準位1つのみの寄与で説明する近似式を

$$V_{dia}(\lambda) = \frac{\pi(n^2 - 1)}{\lambda} \frac{1}{2n} \left[ A + \frac{B}{\lambda^2 - \lambda_0^2} \right] \quad (4.41)$$

と示した [82]。ここで、 $A$ 、 $B$ はフィッティングパラメータであり、 $\lambda_0$ は共鳴波長であり、この $\lambda_0$ の波長に近づくときヴェルデ定数は急激に大きくなる。

また反磁性体のヴェルデ定数の特徴として、温度にほとんど依存しないという点がある。式(4.41)においては温度項  $T$ が存在しないが、屈折率の温度依存性 $dn/dT$ が存在するために、無依存ではないがその影響がほとんど無視できるほど小さい。

## ② 常磁性体(paramagnetic)の場合

常磁性体のヴェルデ定数のモデルは、

$$V_{para} = \frac{4\pi^2 \beta N g J(J+1)}{3ch} \frac{1}{kT} \sum_{a,b} \frac{C_{ab}}{\lambda_{ab}^2 - \lambda^2} \quad (4.42)$$

と示される [83]。ここで、 $\beta$ はボーア磁子、 $h$ はプランク定数、 $N$ は常磁性体のイオンの個数、 $g$ はランダウの  $g$  因子、 $J$ は全角運動量子数、 $T$ は温度である。

ここで、反磁性体の場合と同様、一つの遷移波長 $\lambda_T$ がファラデー回転への寄与に支配的であると仮定すると、

$$V_{para} = \frac{A(n^2 + 2)^2}{T} \frac{N}{n} \frac{1}{\lambda_T^2 - \lambda^2} \quad (4.43)$$

と表記できる [83]。 $A$ はフィッティングパラメータである。(4.36)からわかるように常磁性体のヴェルデ定数は、温度に反比例するため材料の温度を下げることで大きくなる [84]。

可視光領域や近赤外領域では常磁性体および反磁性体においては上式の波長依存性モデルによって実際に計測されたヴェルデ定数の振る舞いが説明可能であることが示されている [85,86]。しかしながら深紫外領域においては上式を簡略化した

$$V = \frac{E}{\lambda^2 - \lambda_0^2} \quad (4.44)$$

という単純化された波長依存性モデルを用いた報告のみに留まっており、(4.36)式が短波長領域に拡張可能かは未だ実証されていない [35,87]。

### 4.3 ファラデー効果に基づく光アイソレータ

これまで説明してきたファラデー効果を用いた光学素子の1つにファラデー回転子および光アイソレータがある。ファラデー回転子以外にも、偏光を回転させる光学素子としては、 $\lambda/2$ 波長板などがあるが、他の光学素子との大きな違いは光にとって非相反性を持つという点である。非相反性とは、物質から受ける効果が光の伝搬方向によって異なる現象であり、ファラデー効果の場合、磁場の印加方向によって偏光の回転方向が決まるためにこの非相反性が生じる。ファラデー回転子による非相反性を図4-3に示す。図4-3の左図は、光の伝搬方向と磁場の印加方向が同じである順方向の場合であり、ファラデー効果によって偏光が伝搬方向に対して時計回りに $\theta_F$ だけ回転するとする。図4-3の右図は、光の伝搬方向と磁場の印加方向が逆である逆方向の場合であり、偏光は伝搬方向に対して反時計回りに $\theta_F$ だけ回転し、順方向と偏光の回転方向が逆である。結果的に順方向と逆方向の伝搬によって偏光が入射した偏光に対して $2\theta_F$ だけ回転する。 $\lambda/2$ 波長板などの他の偏光回転素子を用いる場合、順方向と逆方向で伝搬方向に対して偏光の回転する方向が等しいためにこのような効果は起こらない。

この非相反性を用いて、光の伝搬方向を1方向に制限するモジュールが光アイソレータである。光アイソレータは、本研究で着目したファラデー効果によるものだけでなく、複屈折材料を用いることによって任意の偏光でも光アイソレータとして機能する偏光無依存型の光アイソレータも存在する [88]が、以降の光アイソレータとは、全てファラデー効果による光アイソレータの事を指す。光アイソレータの模式図を図4-4に示す。光アイソレータは、ファラデー効果によって偏光を回転させるファラデー回転子と、特定の偏光のみを通過させる光学素子である偏光子から構成される。ここで、ファラデー回転子を用いた光アイソレータの動作について説明する。順方向に進行する光は、偏光子1をそのまま通過し、ファラデー回転子へ向かう。ここでファラデー回転子は偏光が $45^\circ$ 回転するような、磁場強度、結晶長が設計されている。ファラデー回転子によって偏光が $45^\circ$ 回転した後、偏光子2もそのまま通過、つまり順方向に伝搬する光は光アイソレータをそのまま透過していく。一方、逆方向に伝搬する光においては、偏光子2によって、透過軸以外の光は反射される。偏光子2を透過した光の成分は、ファラデー回転子によってさらに偏光が回転、ここでファラデー効果によって偏光は、順方向に伝搬した光に対して $90^\circ$ 直交する。ファラデー回転子を通過した光は、偏光子1の透過軸に対しても $90^\circ$ 直交しているた

めに、偏光子1によって反射する。結果的に逆方向に伝搬する光は、すべて偏光子1、2によって反射されるために、結果的に図4-4のような光アイソレータは光を1方向のみしか伝搬しない光学素子として機能する。

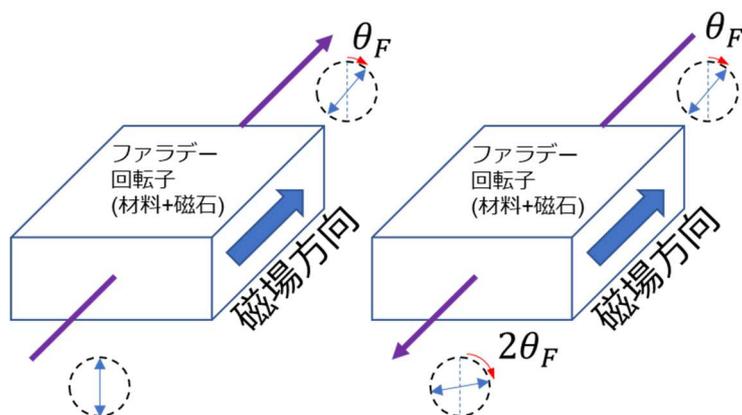


図4-3 ファラデー効果による非相反性

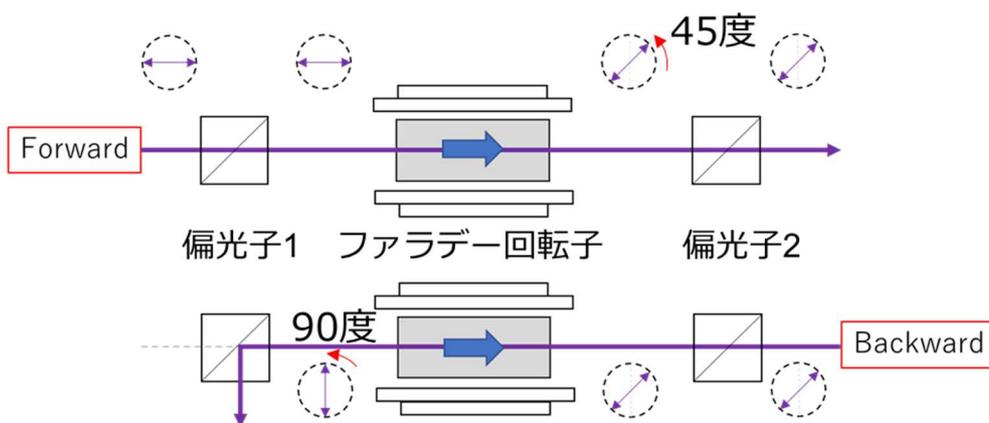


図4-4 光アイソレータの模式図

次に光アイソレータ内のファラデー回転子用の材料として要求されるヴェルデ定数の大きさについて検討を行う。まず、一例として $H=1\text{ T}$ を仮定する。この磁場強度はネオジム磁石によって達成可能な値である。その際のヴェルデ定数と $\theta_F=45^\circ$ を達成できる媒質長の関係性をxxに示す。 $l=30\text{ mm}$ を仮定する。前述の通り、光アイソレータに用いられるファラデー回転子におけるファラデー回転角 $\theta_F$ は $45^\circ$ となるように設計されており、その際に必要なヴェルデ定数は、(4.30)より $V=26.2\text{ rad/Tm}$ と計算される。そこで第5章で実際に深紫外用ファラデー回転子用材料の評価を実施していくが、その目標としては、波長 $205\text{ nm}$ 帯においてヴェルデ定数が $30\text{ rad/Tm}$ を超えるような材料を見出すこととした。以下には他の波長帯で報告されている代表的なファラデー回転子用材料について説明

をする。近赤外領域、特に波長  $1 \mu\text{m}$  帯で最もよく使用されている材料である、TGG(Terium Gallium Garnet)は、波長  $1064 \text{ nm}$  においてそのヴェルデ定数が  $V=26.2 \text{ rad/Tm}$  と報告されている [89]。また、より長波長領域である波長  $1.5 \mu\text{m}$  帯においては、YIG (Yttrium Iron Garnet)が  $V=304 \text{ rad/Tm}$  [90]、 $\text{Dy}_2\text{O}_3$ が  $28.9 \text{ rad/Tm}$  [91]と有望な材料であることが報告されている。  $30 \text{ rad/Tm}$  以下の材料においてもファラデー回転子を構築することは可能であるが、材料の媒質長が長くなってしまふ、もしくは磁場強度をより大きくするためには磁石自体を大きくする必要がある。ファラデー回転子用の磁石としては、磁石の配置やヨークの位置を工夫することで開口内が  $3\text{T}$  という理論限界に近い磁場強度も達成されている [92]が、本研究においてはネオジム磁石において達成が容易な磁場強度が  $1 \text{ T}$  において現実的な媒質長でファラデー回転子が構築可能な、  $V=30 \text{ rad/Tm}$  を超える材料を見出すことを目標とした。

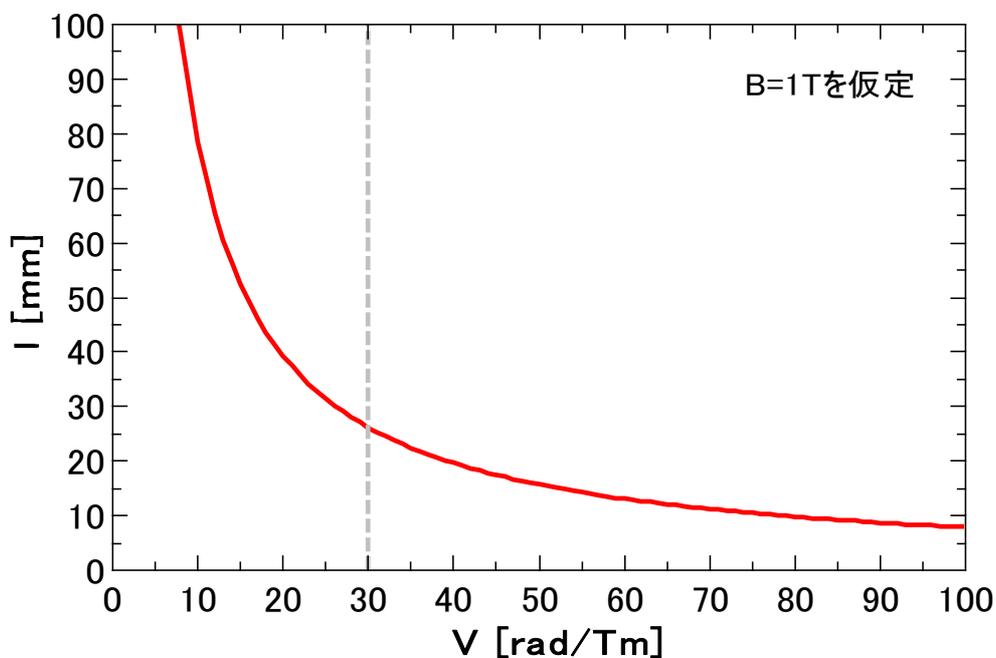


図 4- 5. ヴェルデ定数とファラデー回転子( $\theta_F=45\text{deg.}$ )の媒質量の関係

## 第 5 章 深紫外領域における光アイソレータの研究

### 5.1 はじめに

第 4 章においてファラデー効果に基づく光アイソレータに関する諸原理を説明した。深紫外領域において光アイソレータを実現するためには、ヴェルデ定数が使用波長において  $30 \text{ rad/Tm}$  を超える材料を見出すことが重要であることが示された。5.2 節では、ファラデー回転子に要求される性能について述べ、その性能を満たすことができるように選定した 3 種の候補材料について述べる。5.3 節では、ヴェルデ定数の評価用光学系を示す。深紫外領域の波長  $190\sim 300 \text{ nm}$  まで一括で計測、ヴェルデ定数の導出が可能な光学系について述べる。5.4 節では、実際に評価を行った候補材料について述べる。

### 5.2 候補材料の選定

#### 5.2.1 光アイソレータ用候補材料に要求される性能

光アイソレータ内のファラデー回転子の候補材料として要求される性能として、

- ・当該波長において透明な材料
- ・当該波長において十分なヴェルデ定数(本研究においては、 $30 \text{ rad/Tm}$  とする)

を両立している必要がある。

1 つ目の当該波長において透明な材料という点については、深紫外領域、特に本研究において着目した波長  $205\text{nm}$  周辺については、透明な材料自体が非常に少なく、主な候補材料として、合成石英やフッ化物が挙げられる。

2 つ目の十分なヴェルデ定数については、深紫外領域においては、これまでにその波長域におけるヴェルデ定数の報告自体が少なく、実際にヴェルデ定数の評価が必要となる。またヴェルデ定数は前述の通り、波長依存性を持つことが示されているが、深紫外領域において、可視光や近赤外領域において使用されている波長依存性モデルが拡張可能であるかは、明らかになっていない。そこで、本研究においては実際に深紫外領域においてヴェルデ定数の波長依存性を計測することによってその波長依存性のモデルに関する議論も行うこととした。

## 5.2.2 選定した候補材料

上記のような要求される性能から、本研究においては3つの材料を深紫外領域における光アイソレータ用候補材料として選定、評価を実施することとした。各材料の特徴をそれぞれ示す。

### ① 合成石英(SiO<sub>2</sub>)

合成石英は、主に四塩化ケイ素を原料として科学的に合成、製造される材料であり、不純物が非常に少ない、純度が高い。また、吸収端が波長 155 nm であり、深紫外領域においても高い透過率を示し、大口径化も容易であるため、当該波長における一般的な材料として、半導体露光用レンズ等にも使用されている材料である。合成石英のヴェルデ定数については、これまでもいくつか報告されており、可視光領域、および一部の深紫外領域におけるヴェルデ定数の報告がされている。Sivaramakrishnan は、可視光領域において複数の波長でヴェルデ定数を計測、報告した [93]。また、1984 年に Nishioka らは、波長 248 nm における合成石英のヴェルデ定数が 33.5 rad/Tm であると報告、エキシマレーザーの 1 種である KrF レーザー(波長 248 nm)におけるファラデー回転子の有望材料として報告した [32]。合成石英の磁性は、反磁性体であり、その波長依存性は、第 4 章で説明した通り、下式に従う。

$$V_{dia}(\lambda) = \frac{\pi(n^2 - 1)}{\lambda} \frac{1}{2n} \left[ A + \frac{B}{\lambda^2 - \lambda_0^2} \right] \quad (5.1)$$

カッコ内の第 2 項の分母には  $\lambda^2 - \lambda_0^2$  が含まれており、波長が短く、つまり  $\lambda_0$  に近づいていくとヴェルデ定数は大きくなる。ここで、 $\lambda_0$  とは、共鳴波長であり、材料の吸収端に関連付けられる値である。合成石英の吸収端は波長 155 nm であり、 $\lambda_0$  も吸収端の周辺になることが予測される。つまり、深紫外領域においては、合成石英のヴェルデ定数が急峻に大きくなると予想されるが、深紫外領域においても上式に基づくヴェルデ定数の波長依存性モデルが適用できるかどうかを実証した先行研究は存在しない。そこで本研究においては、深紫外領域で一般的な光学素子の 1 種でもある合成石英のヴェルデ定数を TALIF 用光源の波長 205 nm における評価だけに留まらず、深紫外領域全体で波長依存性を評価することによって、深紫外領域における反磁性体の波長依存性モデルの評価も実施することとした。

### ② LiY<sub>1-x</sub>Er<sub>x</sub>F<sub>4</sub> (Er:YLF)

LiY<sub>1-x</sub>Er<sub>x</sub>F<sub>4</sub>(以降 Er:YLF)は、フッ化物結晶である LiYF<sub>4</sub>(YLF)に Er イオンを部分ドーピングしている結晶である。YLF はレーザー媒質のホスト材料として知られており、特に Nd イオンが添加された Nd:YLF は、レーザー媒質として非常に一般的な Nd:YAG と比べて、永井蛍光寿命などの特徴を持っており、Q スイッチ発振等の高ピークパワー動作における優れた媒質として用いられている [94]。また Er:YLF は波長 551 nm や 2800 nm で発振するレーザー媒質として知られている [95-97]。YLF 結晶自体は、合成石英と同様に反磁性体

の特性を示すが、Er イオンは常磁性体を示す。Er イオンのような希土類イオンは、大きな磁気光学特性を示すことが報告されており、透過帯域の特性などから波長域によって添加材量を使い分けられている [83]。その中でも Vasylijev らは、様々な希土類添加のフッ化物結晶である、LiREF<sub>4</sub>(RE=Tb, Dy, Ho, Er and Yb)および、PrF<sub>3</sub>、CeF<sub>3</sub>の深紫外領域におけるヴェルデ定数を評価、報告している [87]。図 5-1 に各結晶の透過率スペクトルを、表 5-1 に深紫外領域におけるヴェルデ定数の評価結果を示す。各結晶において希土類による吸収線が多数存在している一方、吸収線がない領域においては、希土類イオンに起因する高いヴェルデ定数が報告されている。本研究においては、深紫外領域、特に波長 205nm において、透過率が高いことが重要であるため、Er イオンおよび Yb イオンが有望な候補となりうる。その中でも高いヴェルデ定数を見込むことができる Er イオンに着目、YLF 結晶に Er イオンを添加されている Er:YLF 結晶を候補材料として選んだ。Er イオンの常磁性体によるヴェルデ定数の波長依存性については、第 4 章で説明した通り、

$$V_{para} = \frac{A(n^2 + 2)^2}{T} \frac{N}{n} \frac{1}{\lambda_T^2 - \lambda^2} \quad (5.2)$$

に従う。 $N$ は、常磁性イオンの個数であり、今回の Er:YLF 結晶においては Er イオンのドーピング濃度である。吸収端に近い領域である深紫外領域において、これまで希土類添加量と磁気光学特性の関係性を評価した例はこれまでにない。また、常磁性体におけるヴェルデ定数の波長依存性モデルについても深紫外領域において拡張することができるかは報告されていない。本研究においては、ノンドープの YLF 結晶そのもの及び、部分添加されている Er:YLF 結晶におけるヴェルデ定数を評価することによって、深紫外領域におけるヴェルデ定数と、Er イオンのドーピング量の関係性を明らかにする。

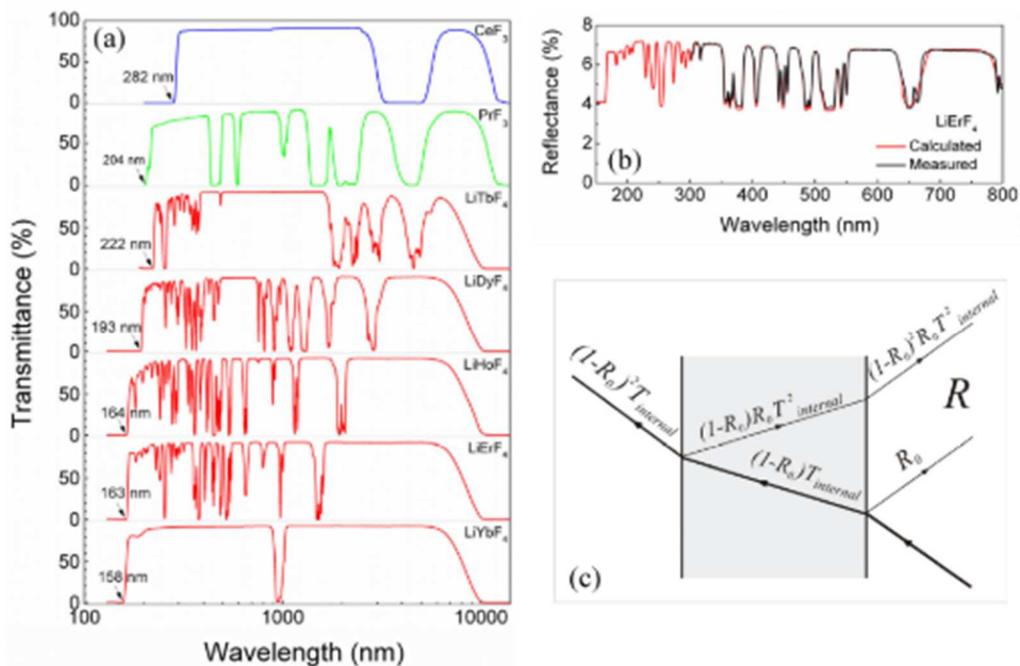


図 5- 1. LiREF<sub>4</sub>, PrF<sub>3</sub>, CeF<sub>3</sub> の透過スペクトル [87]

表 5- 1. LiREF<sub>4</sub>, PrF<sub>3</sub>, CeF<sub>3</sub> の深紫外領域におけるヴェルデ定数 [87]

Material	XeF, 351	XeCl, 308	KrF, 248	KrCl, 222	ArF, 193	Ref.
CeF <sub>3</sub>	653	1146	-	-	-	
PrF <sub>3</sub>	514	752	1657.7	2964	-	
LiTbF <sub>4</sub>	556	840	2101	4671	-	
LiDyF <sub>4</sub>	377	528	1002	1493	2885	
LiHoF <sub>4</sub>	250	331	536	692	973.5	
LiErF <sub>4</sub>	128	171	279	363	516	
LiYbF <sub>4</sub>	16	22.6	44	68.3	146.4	
ADA	27.3	38	70.8	103.5	180	[14,15]
DKDP	15.3	20.7	35.7	48.8	74.5	[14]
Quartz	14.7	20	33.6	45	67.6	[6]
Water	12.1	17	31.5	46	84.5	[4]

③ フッ化マグネシウム(MgF<sub>2</sub>)

フッ化マグネシウム結晶は、フッ化物結晶であり、1軸性の複屈折材料である。バンドギャップが 10.8 eV と非常に大きく、吸収端が波長 110 nm とこれまで候補材料としてきたものの中で最も短い材料である。また、近年育成条件の工夫などによってチョクラルスキー成長法を用いることで直径が 8 インチもの大型の結晶育成が報告されている [98]。フッ化マグネシウム結晶は、合成石英と比べて吸収端が短く、つまり同じ波長 205 nm 帯においては、式(5.1)の通り、吸収端に関連される値である $\lambda_0$ も同様に短くなるのが推測される。そのため、第 2 項の分母にある $\lambda^2 - \lambda_0^2$ が合成石英の場合と比べて大きく、つまりヴェルデ定数は小さくなる可能性がある。一方、吸収端が近い、つまりより短波長領域である真空紫外領域( $\lambda=190$  nm 以下)においては、高いヴェルデ定数が得られる可能性があ

る。フッ化マグネシウム結晶は、可視光領域におけるヴェルデ定数の評価結果は報告されているが [99]、深紫外領域におけるヴェルデ定数の報告は存在しない。そのため本研究において、深紫外領域におけるファラデー回転子の候補材料としてだけでなくより短波長領域である真空紫外領域においても使用できる可能性のある候補材料としてヴェルデ定数の評価を実施した。

### 5.3 ヴェルデ定数の評価光学系

図 5- 2 にヴェルデ定数の評価光学系の模式図を示す。今回、構築した評価光学系は、Polarization Stepping method と呼ばれる方法に基づく方式である [100]。光学系を構成する要素としては、白色光源および分光器、そしてその間に 2 つの偏光子およびヴェルデ定数を評価したい材料と磁石を配置する。種光としては、Energetiq Technology 社の EQ-99X LDLS (Laser Driven Light Source)を用いた。この光源は、レーザーによってプラズマを誘起することで、その発光から図 5- 3 のような波長 170~2500 nm という広域なスペクトル帯域を得ている。LDLS より出射された光は、偏光子 1(光学技研、WoG-193E)によって直線偏光成分のみが取り出される。まずは、評価対象であるサンプルに外部磁場を印加していない場合、つまりファラデー効果がない場合の計測を実施する。評価は、偏光子 2(光学技研、WoG-193E)をステッピングモーターによって回転させながら、分光器(Ocean Insight、Maya 2000 Pro)で各波長における光強度を取得する。分光器から得られる光強度 $I$ は、偏光子 2 の回転角度 $\theta$ にしたがって、次のような式で示すことができる。

$$I(\theta) = I_0 \cos^2(\theta + \theta') + I_{min} \quad (5.3)$$

ここで、 $I_0$ は最大透過時、つまり偏光子 1 と 2 の角度が同じ際の光強度、 $\theta'$ は偏光子 1 と 2 の初期位置における角度差、 $I_{min}$ は偏光子の消光比によって決定される、偏光子 1 と 2 が直交している際の光強度である。つぎにサンプルに外部磁場を印加している場合、つまりファラデー効果が誘起されている際は、(5.3)が、

$$I(\theta) = I_0 \cos^2(\theta + \theta' + \theta_F) + I_{min} \quad (5.4)$$

と変化する。 $\theta_F$ は、ファラデー効果によって誘起される偏光の回転角である。磁場の有無で計測を行うことで、その角度差がファラデー効果によって偏光が回転した量 $\theta_F$ に相当する。磁場の印加の有無による計測結果の変化の模式図を図 5- 4 に示す。この $\theta_F$ から、

$$\theta_F = VHL \quad (5.5)$$

を用いることによって各波長におけるヴェルデ定数 $V$ を導出することができる。本研究における白色光源及び分光器では、分光器の検出可能な帯域によって波長 190~300 nm において一括でヴェルデ定数を計測することが可能である。今回用いた磁石の光軸方向の磁場分布は、図 5- 5 に示され、サンプル長による平均の磁場強度 $H$ を計算することが可能となり、例えば $L=20$  mm においては $H = 1.06$  T と導出することができる。

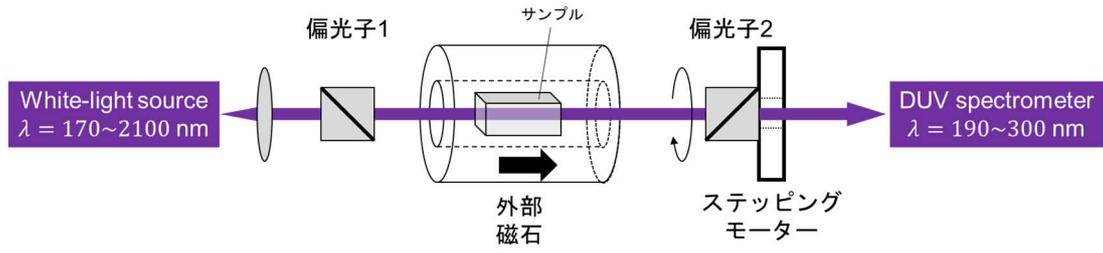


図 5- 2. ヴェルデ定数の評価光学系模式図

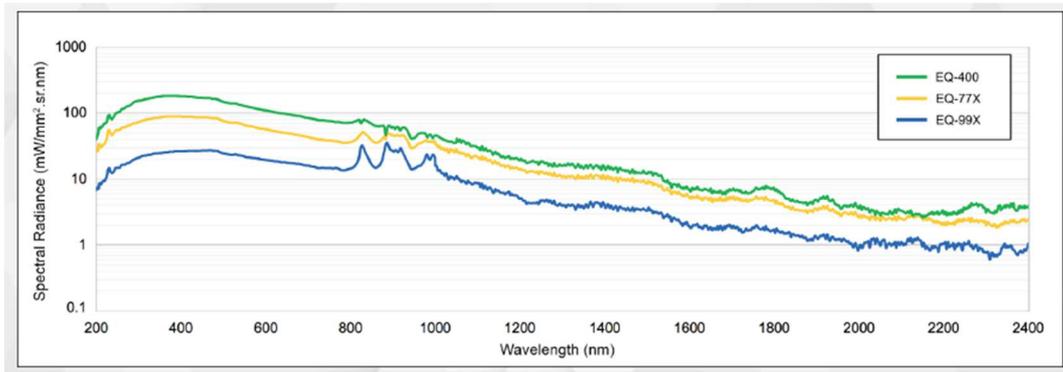


図 5- 3. EQ-99X LDLS の放射スペクトル [101]

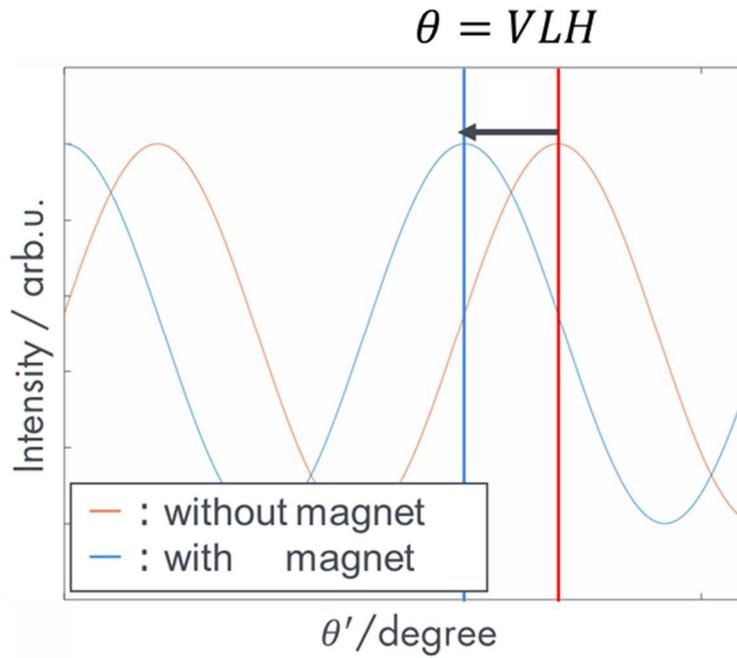


図 5- 4. 偏光子 2 の回転角と光強度の関係

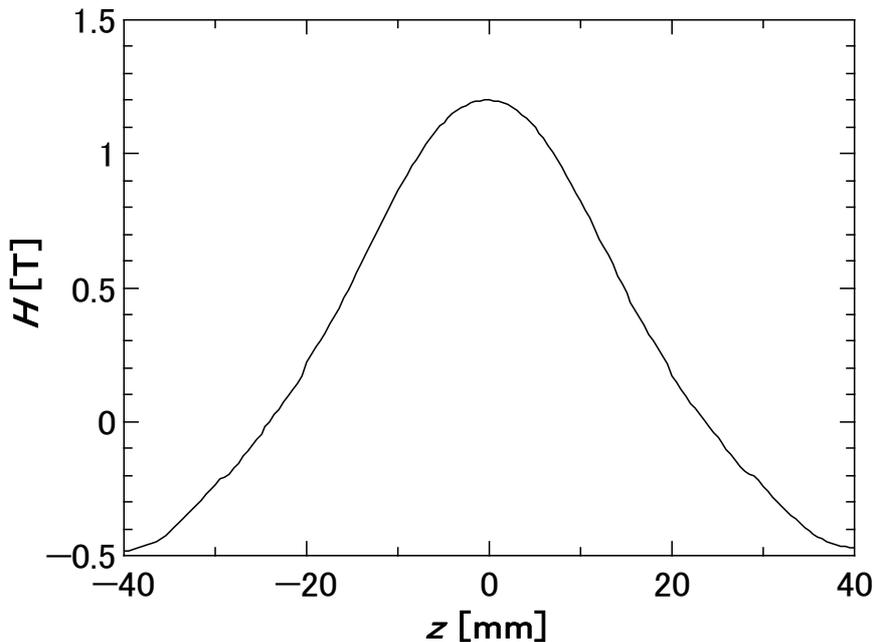


図 5- 5. 磁石の磁場強度分布

## 5.4 候補材料の評価結果および考察

### 5.4.1 合成石英

図 5- 6 に合成石英のヴェルデ定数の波長依存性の評価結果を示す。

前述のとおり合成石英は反磁性体であるため、そのヴェルデ定数の波長依存性は、

$$V_{\text{dia}}(\lambda) = -\frac{\pi(n^2 - 1)}{\lambda} \frac{B}{2n} \left[ A + \frac{B}{\lambda^2 - \lambda_0^2} \right] \quad (5.6)$$

である。フィッティングパラメータは、 $A = (2.04 \pm 0.02) \times 10^{-6}$  rad/T、 $B = (1.84 \pm 0.02) \times 10^{-19}$  (rad·m<sup>2</sup>)/T、 $\lambda_0 = 110.8 \pm 0.8$  nm となった。上式でフィッティングから得られた曲線および、過去に報告されている合成石英のヴェルデ定数を図 5- 6 に示す。得られた結果より今回の計測結果から導出されたフィッティング曲線は可視光領域におけるヴェルデ定数も説明できることが示された。また、各光源における光アイソレータの構築に必要なファラデー回転子の結晶長を導出することが可能になる。前述のとおり、ファラデー効果による偏光の回転量 $\theta_F$ は、

$$\theta_F = VHL \quad (5.7)$$

で表される。光アイソレータ内のファラデー回転子に要求される偏光の回転量は $\theta_F = 45^\circ$ であるため、磁場強度 $H$ を 1 T と仮定すると、その際に必要な結晶長 $L$ を導出することができる。表 5- 2 に代表的な深紫外光源の波長とその際のヴェルデ定数、そして光アイソレータ用のファラデー回転子を構築するための結晶長を示す。目標となる、波長 205 nm にお

いて 30 rad/Tm を超える高いヴェルデ定数を示しており、光アイソレータを構築する際に必要な結晶長は 13.9 mm と見積もられた。実際に深紫外領域における光アイソレータ用ファラデー回転子を構築可能であることが示された。また、これらの結果から磁性が常磁性体の材料において、ヴェルデ定数の波長依存性のモデルが深紫外領域にも拡張可能であることが実証された。

表 5-2. 代表的な深紫外光源におけるヴェルデ定数および  
光アイソレータに必要な結晶長(合成石英)

レーザー種	波長[nm]	ヴェルデ定数[rad/Tm]	結晶長[mm]
XeCl	308	-17.7	44.4
YAG SSL ( $4\omega$ )	266	-25.2	31.2
KrF	248	-30.4	25.8
YAG SSL ( $5\omega$ )	213	-49.7	15.8
TALIF 光源	205	-56.7	13.9
ArF	193	-70.6	11.1

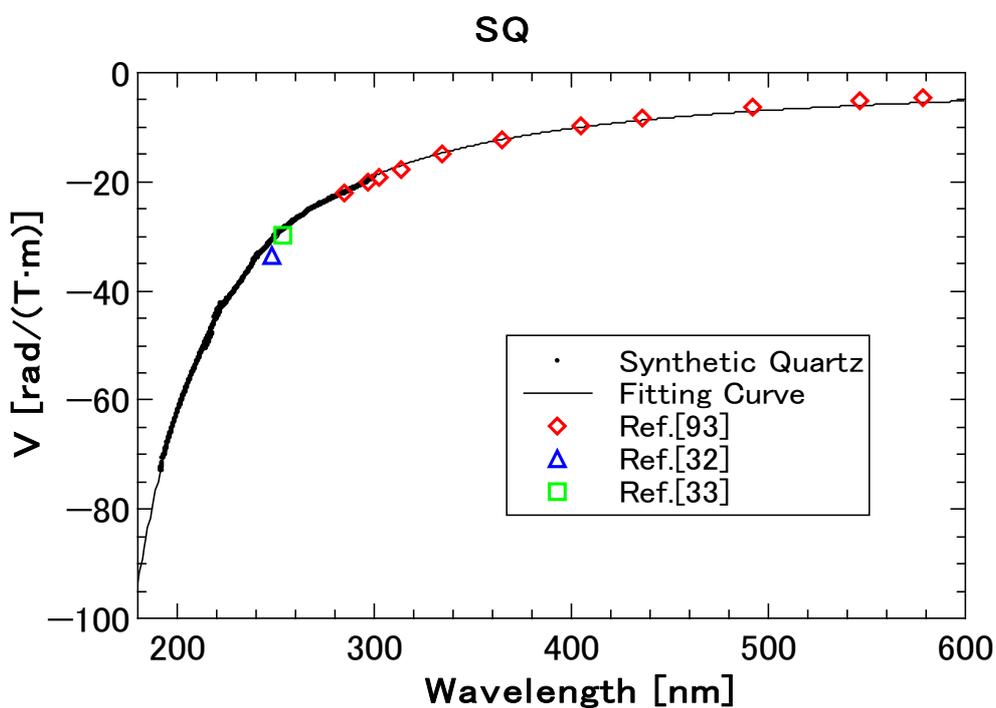


図 5-6. 合成石英のヴェルデ定数の波長依存性

また、ファラデー回転子を高出力動作しているレーザーにおいて適応する場合、吸収によって熱効果が生じる。主に、熱効果としては熱複屈折および熱レンズ効果が知られており、以下ではそれぞれの効果において検討を行う。なお、出力値としては波長 193 nm で発振する ArF エキシマレーザーにおいて繰り返し周波数が 6 kHz、パルスエネルギーが 20 mJ、平均出力が 120 W と報告されているため [14]、~100 W における熱効果の検討を行った。

#### ① 熱複屈折効果

熱複屈折効果は、光弾性(photo-elastic)効果による固有偏光の変化によって起こり [102]、その Depolarization ratio である  $\gamma_P$  は

$$\gamma_P = \left[ \frac{LkP_0Q}{\lambda\kappa} \right]^2 \frac{A_1}{\pi^2} \quad (5.8)$$

と示される。

ここで、 $L$ は結晶長、 $\kappa$ は結晶の熱伝導率であり、 $P_0$ はレーザーのパワー、 $k$ は吸収係数である。 $Q$ は熱-光学定数と呼ばれ、

$$Q = \left( \frac{1}{L} \frac{dL}{dT} \right) \frac{n_0^3}{4} \frac{1+\nu}{1-\nu} (p_{11} - p_{12}) \quad (5.9)$$

である。 $\nu$ はポアソン比であり、 $n_0$ は屈折率、 $p_{ij}$ は光弾性係数である。

また、 $A_1$ は、

$$A_1 = \int_0^\infty \left( \frac{1}{y} - \frac{\exp(-y)}{y} - 1 \right)^2 \exp(-y) dy \cong 0.137 \quad (5.10)$$

である。ここで、波長 205nm、 $L=20\text{mm}$ 、 $Q \cong 10^{-7} \text{ K}^{-1}$  と仮定した。ここで $Q$ は参考文献より導出した [103]。例えば、 $P_0$ を 100W と仮定した際には、 $\gamma_P$ は~0.001(30dB)と計算される。これは消光比が 20~30dB 程度と報告されている深紫外領域の偏光子 [104]を用いた光アイソレータにおいては熱複屈折が律速とならないため合成石英が高出力深紫外光源においても使用可能であることが示された。

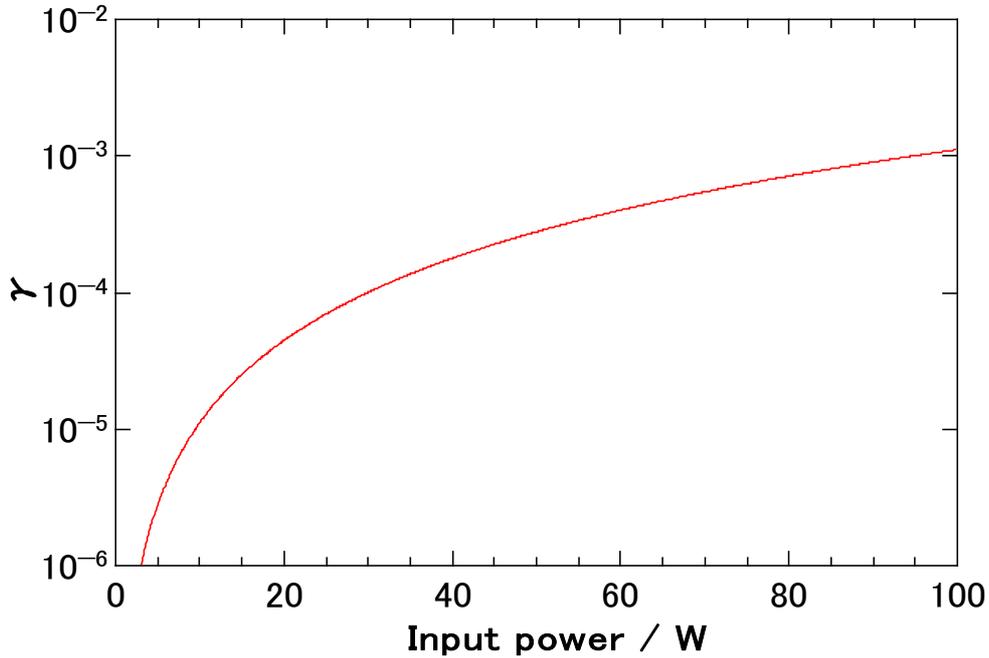


図 5-7. 熱複屈折効果の見積もり

② 熱レンズ効果

同様に熱効果の 1 種である熱レンズ効果に関して検討をする。熱レンズ効果による焦点距離は、以下の式のように見積もることができる [105]。

$$f = \frac{\kappa A}{P_a} \left( \frac{1}{2} \frac{dn}{dT} + \alpha C_{r,\phi} n_0^3 + \frac{\alpha r_0 (n_0 - 1)}{L} \right)^{-1} \quad (5.11)$$

ここで、 $A$  は結晶の断面積、 $P_a$  は結晶によって吸収されるパワー、 $\alpha$  は線膨張率、 $C_{r,\phi}$  は光弾性係数、 $r_0$  は結晶の半径である。レーザーの入力パワーが 100W 相当、つまり  $P_a$  は 1.3W 程度を仮定すると、 $f > 100\text{m}$  以上である。これは、十分無視できる程度の焦点距離であり、合成石英における熱レンズ効果は問題とならないことが示された。

熱複屈折および熱レンズの検討から、高出力なレーザーにおいても合成石英が様々な深紫外光源におけるファラデー回転子用材料として用いることが可能であることが示された。

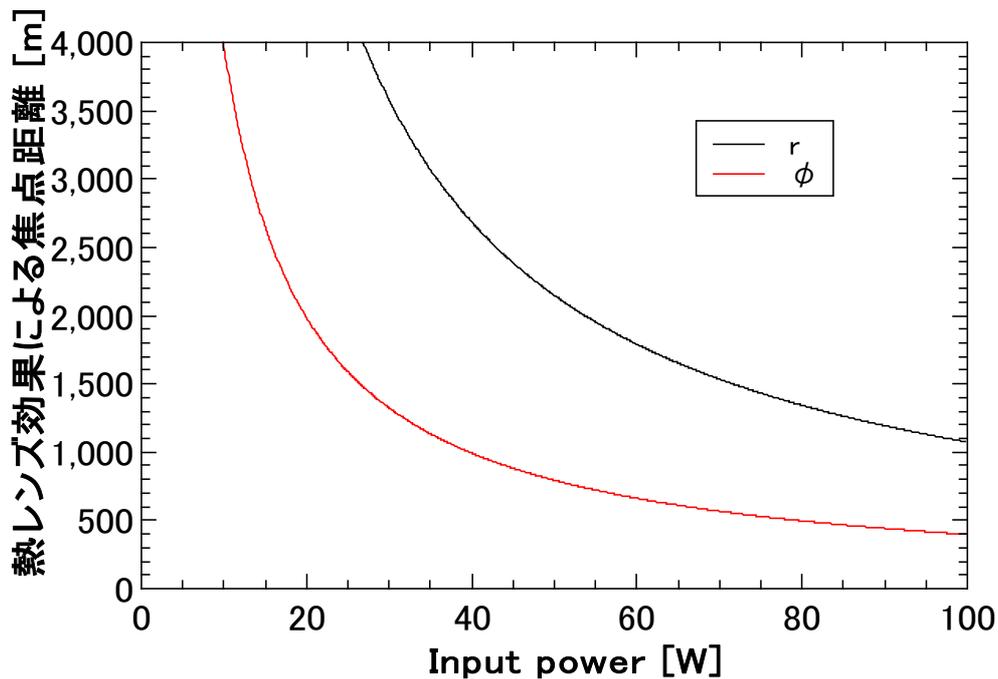


図 5- 8. 熱レンズ効果の見積もり

#### 5.4.2 $\text{LiY}_{1-x}\text{Er}_x\text{F}_4$

図 5- 9 にノンドープの YLF 結晶のヴェルデ定数の波長依存性を示す。また、図 5- 10 に 15%ドープの Er:YLF 結晶のヴェルデ定数の波長依存性を示す。YLF 結晶と、Er:YLF 結晶のヴェルデ定数は、逆符号を示しており、これは反磁性体と常磁性体によるファラデー効果による偏光の回転方向が逆であることを示している。まず、YLF 結晶は反磁性体であり、合成石英と同様に、その波長依存性は(5.6)に従う。それぞれのフィッティングパラメータは、 $A=(1.21 \pm 0.02) \times 10^{-6} \text{ rad/T}$ 、 $B=(1.55 \pm 0.06) \times 10^{-19} (\text{rad}\cdot\text{m}^2)/\text{T}$ 、 $\lambda_0=39.7 \pm 0.8 \text{ nm}$  となった。

一方、Er:YLF 結晶は、常磁性体の特性を示しており、(5.2)式に従う。得られたフィッティングパラメータは、 $C \cdot N = -(54.4 \pm 0.4) \times 10^{-18} (\text{rad}\cdot\text{m})/\text{T}$ 、 $\lambda_T = 100.3 \pm 1.4 \text{ nm}$  となった。図 5- 10 の緑線は、フィッティング結果を示しており、マクロ的には計測から得られたヴェルデ定数の振る舞いをよく説明している。赤線は、結晶の透過率を示しており、例えば波長 380 nm 周辺においては、Er イオンに起因する大きな吸収線が観測されている。この領域においてはヴェルデ定数が大きく変動している。これは、吸収に起因するヴェルデ定数の変動を示しているが、(5.2)式は、 $\lambda_T$  の一つの代表的な遷移波長のみ近似をしているため、局所的にはフィッティングカーブから大きく外れてしまっているが、吸収線がない、つまり実際にファラデー回転子を構築するような透明な領域においては、常磁性体の波長依存性モデルからヴェルデ定数の振る舞いをよく説明できている。このことから、Er:YLF

結晶のような常磁性体材料においても深紫外領域においてその波長依存性モデルが拡張できることが実証された。表 5- 3 に代表的な深紫外光源におけるヴェルデ定数の値を示している。YLF 結晶、15%ドープの Er:YLF 結晶の両材料とも符合は異符号であるものの、絶対値が 30 rad/Tm を超えるヴェルデ定数を示しており、両材料とも十分にファラデー回転子を構築することが可能であることが示された。

また、ノンドープの YLF 結晶、15%ドープの Er:YLF 結晶、そして Vasyliov らが報告した、100%ドープである LiErF<sub>4</sub> 結晶の深紫外領域におけるヴェルデ定数が明らかになったため、Er ドープ濃度と、ヴェルデ定数の関係を図 5- 11 に示す。このグラフから明らかになる点は、ノンドープの YLF 結晶は反磁性体であるため負のヴェルデ定数を示しており、そこから常磁性体の Er イオンの寄与が増大していくことによってヴェルデ定数が正の値になり、ヴェルデ定数の絶対値が大きくなっていく。また、その増大量は Er イオンの濃度に比例していることが分かる。Er イオンとヴェルデ定数の関係は、以下の式で表すことができる。

$$V_{LiY_{1.0-x}Er_xF_4}(x) = V_{LiYF_4} \times (1 - x) + V_{LiYErF_4} \times x \quad (5.12)$$

ここで、 $x$  は Er イオンの濃度であり、 $V_{LiYF_4}$  は YLF 結晶のヴェルデ定数、 $V_{LiYErF_4}$  は LiYErF<sub>4</sub> のヴェルデ定数である。つまり Er が部分ドープされている Er:YLF 結晶は、YLF 結晶起因の反磁性体項と、Er イオン起因の常磁性体項の混合状態となっており、この振る舞いは、吸収端が近い領域である深紫外光領域においても説明ができることが明らかになった。Er イオンの吸収線が存在しない領域において高いヴェルデ定数を得るためには Er イオンの濃度を高くすることが重要である。またノンドープの YLF 結晶に関しては、吸収端が波長 120 nm であるという点が大きな特徴である。これは、深紫外光より短波長領域である真空紫外領域においてファラデー回転子が構築可能であることを示唆している。例えば、エキシマレーザーの 1 種である F<sub>2</sub> レーザーは波長 157 nm であり、これまで報告されてきたファラデー回転子の候補材料で透明な材料は存在しない。しかしながら、YLF 結晶においては得られたフィッティング曲線から予測されるヴェルデ定数は、-63.7 rad/Tm であり、大きなヴェルデ定数を示している。つまり YLF 結晶を用いることによって、真空紫外領域におけるファラデー回転子に代表される磁気光学デバイスの実現可能であることが示された。この真空紫外領域は、その短波長性および高い光子エネルギーから分光用途への適応が盛んである。YLF 結晶のような磁気光学デバイスの実現によって、その応用が進んでいくことが期待される。

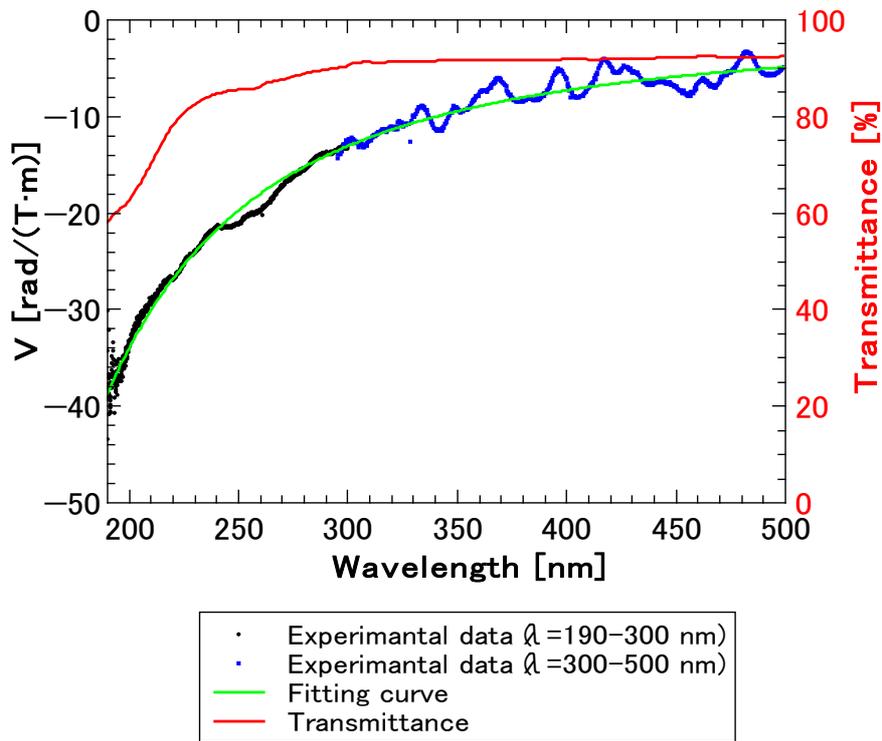


図 5- 9. YLF のヴェルデ定数の波長依存性評価結果

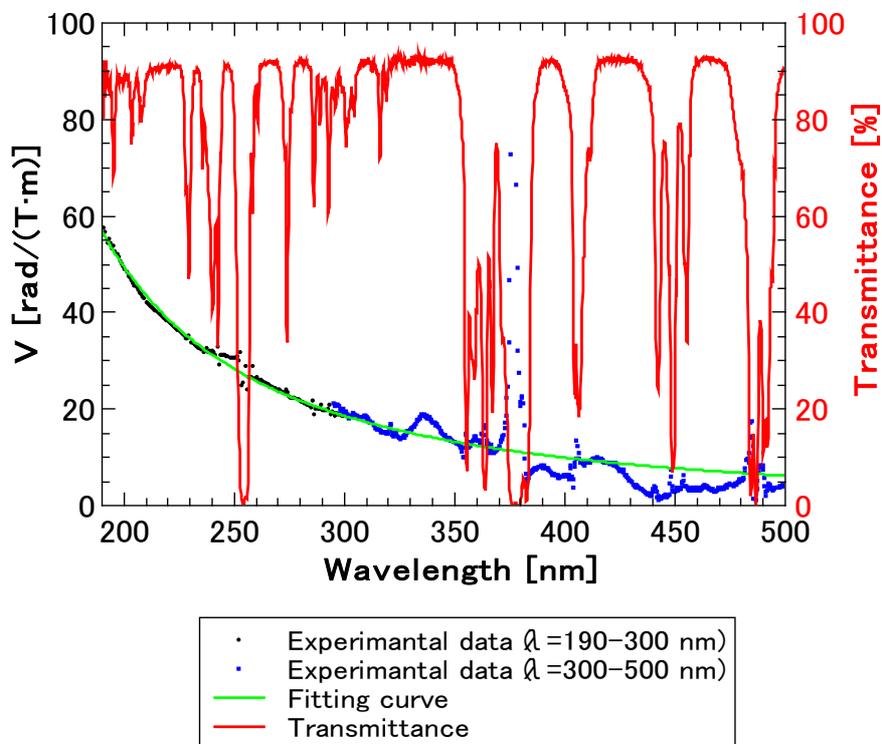


図 5- 10. Er:YLF(15%ドーブ)のヴェルデ定数の波長依存性評価結果

表 5- 3. 代表的な深紫外光源におけるヴェルデ定数 (YLF、Er:YLF)

レーザー種	波長[nm]	ヴェルデ定数[rad/Tm]	
		LiYF <sub>4</sub>	LiY <sub>0.85</sub> Er <sub>0.15</sub> F <sub>4</sub>
XeCl	308	-12.9	18.4
YAG SSL (4 $\omega$ )	266	-17.1	24.5
KrF	248	-21.3	30.7
YAG SSL (5 $\omega$ )	213	-29.0	42.0
TALIF 光源	205	-31.9	46.3
ArF	193	-36.6	54.5
F <sub>2</sub>	157	-63.7	×

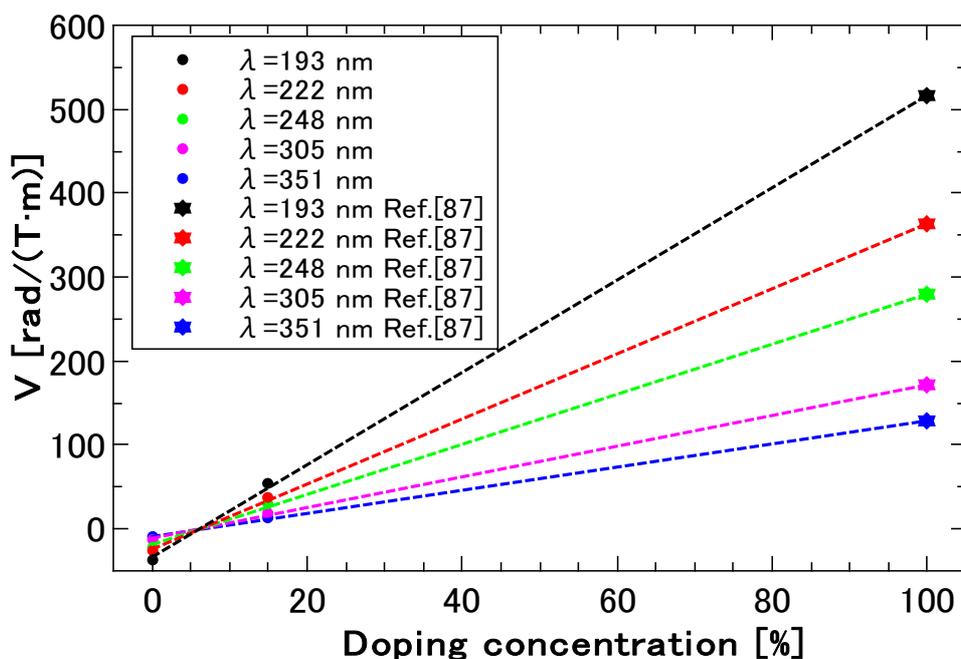


図 5- 11. LiY<sub>1-x</sub>Er<sub>x</sub>F<sub>4</sub> のヴェルデ定数のドーピング濃度依存性

#### 5.4.3 フッ化マグネシウム

合成石英の結果より、深紫外光領域においても常磁性体のヴェルデ定数の波長依存性がこれまでの理論式が拡張可能であることが示された。また、YLF 結晶の結果より、真空紫外領域における磁気光学デバイスの可能性が拓けた。上記 2 つの候補材料に加えて、より短波長領域に吸収端を持ち、また深紫外領域において非常に一般的な光学材料として知られているフッ化マグネシウム結晶を候補材料としてヴェルデ定数の評価を実施した。実際に深紫外領域におけるヴェルデ定数を計測した結果を、図 5- 12 に示す。フッ化マグネシ

ウム結晶も合成石英と同様に反磁性体である。実際に得られた結果から式(5.6)によってフィッティングをした結果が図 5- 12 の黒点線であり、可視光領域で報告されているヴェルデ定数とも良い一致を示す結果となった。式(5.6)のフィッティング結果は、 $A=(1.29 \pm 0.03) \times 10^{-6} \text{ rad/T}$ 、 $B=(1.72 \pm 0.03) \times 10^{-19} \text{ (rad}\cdot\text{m}^2)/\text{T}$ 、 $\lambda_0=66.7 \pm 0.5 \text{ nm}$  となった。前述の通り、 $\text{MgF}_2$  結晶は吸収端が YLF 結晶の波長 120 nm より短い波長 110 nm であるため、真空紫外領域において磁気光学デバイスの実現が可能となる。また、 $\text{MgF}_2$  結晶の方が、YLF 結晶より同一波長におけるヴェルデ定数が大きいいため、同一波長、同一磁場強度においてファラデー回転子に必要な結晶長を短くすることが可能となるため、真空紫外領域において有望な材料であると言える。

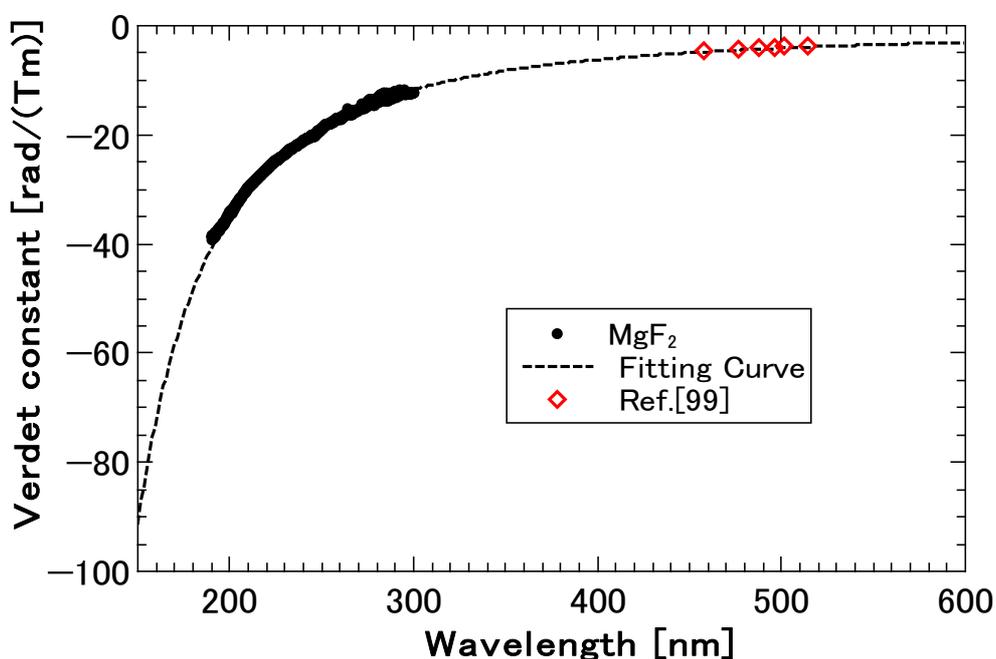


図 5- 12. フッ化マグネシウムのヴェルデ定数の波長依存性評価結果

表 5- 4 代表的な深紫外光源におけるヴェルデ定数(フッ化マグネシウム)

レーザ種	波長[nm]	ヴェルデ定数[rad/Tm]	結晶長[mm]
XeCl	308	-11.0 (予測値)	71.4
YAG SSL (4 $\omega$ )	266	-15.7	50.0
KrF	248	-18.8	41.8
YAG SSL (5 $\omega$ )	213	-28.8	27.3
TALIF 光源	205	-32.2	24.4
ArF	193	-38.7	20.3
F2	157	-77.0(予測値)	10.2
Kr	145	-104(予測値)	7.6
Ar	125	-193(予測値)	4.1

## 5.5 まとめ

深紫外領域において、ファラデー回転子および光アイソレータは、短波長による透明な媒質が少ないことから、これまでほとんど報告がなかったが、TALIF 計測の高度化のために複数の候補材料を選定、そのヴェルデ定数の評価を行った。図 5- 13 に今回評価を行った候補材料のヴェルデ定数の波長依存性を、表 5- 5 に候補材料の特性をまとめたものを示す。

1 つめの候補材料として選定した合成石英は、今回評価した材料の中で波長 205nm において最も高いヴェルデ定数を示しており、深紫外領域において幅広い透過帯域を持つ。また、合成石英のヴェルデ定数の波長依存性と、理論式の比較より、吸収端が非常に近い深紫外領域においても反磁性体の波長依存性モデルによってその振る舞いを説明できることが示された。

2 つ目の候補材料として選定した、Er:YLF 結晶は高い熱伝導率を持つため熱的特性が良好であることが期待される。ノンドープの YLF 結晶と 15%ドープの Er:YLF 結晶の評価に加えて、過去に報告されている結果との比較から部分ドープの Er:YLF 結晶においては、反磁性体である YLF 結晶による寄与項と、常磁性体である Er イオンによる寄与項が混在しており、その割合によってそのヴェルデ定数が説明可能であることを初めて示した。また、Er:YLF 結晶は常磁性体であり、深紫外領域においても常磁性体の波長依存性モデルによってその振る舞いが説明できることが示された。

3 つ目の候補材料として選定した、MgF<sub>2</sub> 結晶は吸収端が候補材料の中で最も短い波長 110nm である。また、深紫外領域においても十分なヴェルデ定数を示しており、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回転子および光アイソレータが実現可能であることを示している。この結果は、本研究において開発した波長 205nm 光源への適応だけに留まらず、分光などの応用が盛んな真空紫外領域における光学系の改善へと応用

が期待される。

今回評価を行った 3 種類の候補材料は、すべて波長 205nm 用ファラデー回転子として 30 rad/Tm を超えるヴェルデ定数を示しており、深紫外領域においても光アイソレータが実現可能であることが示された。

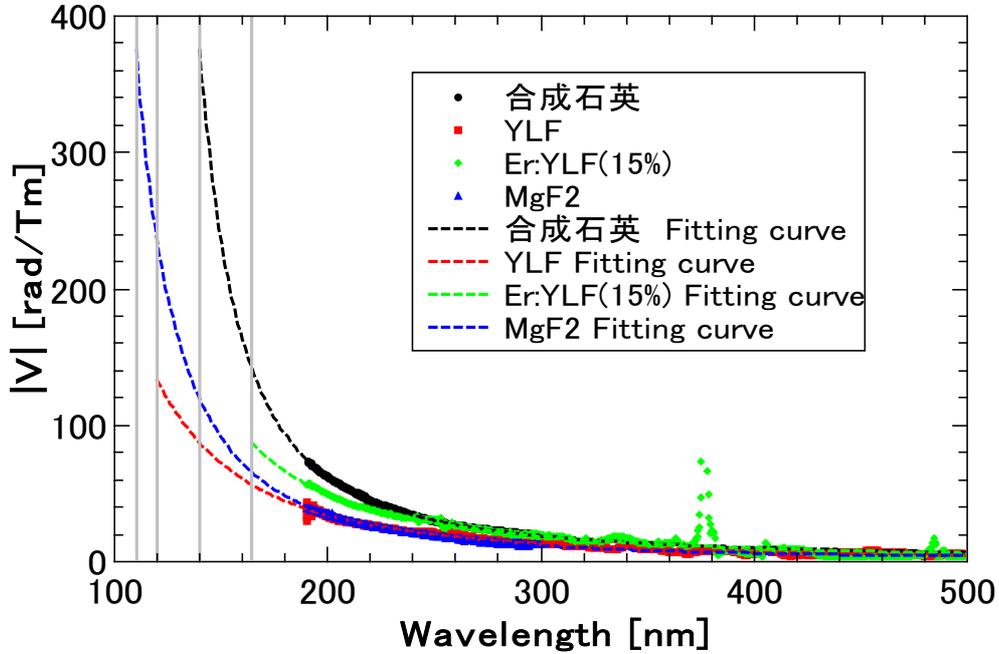


図 5- 13. 候補材料のヴェルデ定数の波長依存性

表 5- 5. 候補材料の評価結果のまとめ

	吸収端 [nm]	ヴェルデ定数 @波長 205 nm [rad/Tm]	磁性	熱膨張率 [K <sup>-1</sup> ]	熱伝導率 [W/mK]
合成石英	155	56.7	反磁性	$0.52 \times 10^{-6}$	1.38
YLF	120	31.9	反磁性	$8 \times 10^{-6}$	5
Er:YLF (15%)	169	45.0	常磁性 + 反磁性	$8 \times 10^{-6}$	5
MgF2	110	32.2	反磁性	$13.7 \times 10^{-6}$	0.3

## 第6章 総括

### 6.1 本論文におけるまとめ

本研究では、中性粒子の計測法である TALIF の高度化を目指して、深紫外領域において光源および光学素子の両面から開発を行った。以下に内容をまとめる。

第1章では、核融合科学における中性粒子の計測の重要性について述べた。いくつかの計測法の中で、密度や温度をシミュレーションとの組み合わせなしで導出可能な TALIF 法に着目、これまでのレーザー光の発生方法をまとめ、従来の方法では、高時間分解能計測のためにレーザー光源を高繰り返し化することが困難であることを述べた。最後に、これまでの光源の問題点を解決し、TALIF 計測の高度化を実現するという本研究の目的を述べた。

第2章では、高繰り返し光源の実現のためのレーザーの原理について説明した。高繰り返し周波数化を達成するためには、従来の色素レーザーによる波長変換では困難であり、その解決のために、半導体レーザを種光として、ファイバーレーザーおよび固体増幅器によって高出力な種光を発生、波長変換によって深紫外光を発生させることで解決が可能であることを示した。固体増幅器は、高効率な増幅を達成するために再生増幅器が適していることを示した。また、深紫外光を発生するために波長変換段の検討を行い、LBO と CLBO の2種類の非線形光学結晶を用いて全3回の波長変換によって波長 1025 nm から深紫外領域である波長 205 nm が発生可能であることを示した。

第3章では、高繰り返し深紫外光発生のための光学系を説明および、発生実験の結果を示した。再生増幅器を用いることによって、ファイバー増幅器からの光を高効率に増幅、繰り返し周波数 1 kHz において 100 mW を超える増幅光を得た。得られた増幅光を全3回の波長変換によって深紫外光を波長 206~207.5 nm 可変で出力 3 mW を得た。また、レンズを用いて得られた深紫外光を集光した際の集光強度の見積もりから、TALIF 計測に十分な集光強度が得られることを示した。

第4章では、磁気光学効果の1種であるファラデー効果の原理について説明した。ファラデー効果は磁場を媒質に印加することによって誘電率テンソルの非対角成分が生じ、その非対角成分によって偏光が回転、その偏光の回転方向は磁場の向きによって決定され、光にとっては非相反性を持つため、この現象を用いることによって光アイソレータが実現されることを示した。また、このファラデー効果の強さを表す指標としてヴェルデ定数があり、その波長依存性に関するモデルについて説明した。

第5章では、深紫外領域におけるファラデー回転子用の材料の選定及び評価を行った。候補材料には、深紫外領域で透明な、合成石英、Er:YLF 結晶および MgF<sub>2</sub> 結晶を選定したヴェルデ定数の評価のための計測系を構築、深紫外領域である波長 190-300 nm において一括でヴェルデ定数の計測が可能であることが示された。3つの候補材料は、すべて十分

にファラデー回転子を構築可能なヴェルデ定数を示しており、有望な材料であることが示された。合成石英および Er:YLF 結晶の評価から、深紫外領域においてこれまで可視光領域などで用いられてきたヴェルデ定数の波長依存性モデルが拡張できることが示された。また候補材料の 1 種である  $MgF_2$  は真空紫外領域である波長 110 nm より高い透過率を示しており、これは深紫外領域だけに留まらず真空紫外領域においてもファラデー回転子が構築可能であることを示唆している。この結果は、分光などへの適応がされている真空紫外領域における計測においてもファラデー回転子による高度化が期待される成果である。

## 6.2 本研究の今後の課題と展望

本節では、本研究において開発された要素に関する課題および展望を述べる。

図 6-1 に TALIF 計測において一般的に使用される共焦点光学系を示す。この共焦点光学系を用いることによって、他の領域からの蛍光を抑制することができ、また励起と蛍光観察のポートを 1 つとすることが可能である。TALIF 用光源である深紫外光は、中心部に穴が開いたステアリングミラーを通り、レンズによって、計測対象の領域へ集光される。集光された光は、二光子励起によって対象領域を励起され、その蛍光が放出される。放出された光の一部は、励起光を集光された際のレンズによってコリメートがされ、ステアリングミラーによって反射、PMT などによって検出される。これが従来の TALIF 計測において使用されてきた光学系である。この対象領域を励起する光のパス数を増やすことができれば対象領域を効率的に励起することが可能であるが、ミラーなどで光を折り返してしまうと、励起光の 1 部がレーザーへ戻ってしまい、レーザーの損傷や、不安定化につながる。しかしながら本研究において実現可能になった光アイソレータを用いれば、戻り光による問題を解決することが可能となり、図 6-2 のような multi-pass TALIF 計測が可能となる。ファラデー回転子と光アイソレータをそれぞれ用いることによって 4 パス TALIF 計測も実現可能であり、この multi-pass TALIF 計測によって要求される深紫外光源の低パルスエネルギー化や高 S/N 比などの性能改善も期待される。表 6-1 に過去に報告されている色素レーザーによる波長変換による深紫外光源と、本研究で開発した深紫外光源およびファラデー回転子/光アイソレータを用いる multi-pass TALIF 計測による展望を示す。TALIF 計測において複数回対象領域を励起することによって実効的な集光強度を高めることが可能となり、弱いパルスエネルギーにおいても計測可能な中性粒子密度の下限を下げることも可能となる。特に本研究において実現された深紫外光源においてもレンズの焦点距離が 100 mm を仮定した際に計測可能な中性粒子密度の下限が過去に報告されている色素レーザーにおける下限と同等程度が得られる見込みである。このように本研究において実現した 2 つの技術を用いることによって TALIF の高度化が期待される。

また、本研究における深紫外光源は、レーザー媒質や波長変換に用いる非線形光学結晶を変更することで、様々な波長において対応することが可能である。表 1-2 に示した粒子において、Kr(励起波長 204.13 nm)、重水素(励起波長 205.08 nm)、水素(励起波長 205.14

nm)、窒素(励起波長 206.65 nm)においては、本研究で提案したファイバーレーザー+Yb:KGW 結晶の再生増幅器+波長変換によって発生可能である。また、Xe(励起波長 225.44 nm)、酸素(励起波長 225.59 nm)においては、例えば以下のような構成が考えられる。波長 1030 nm で発振するレーザー(例えば Yb:YAG 結晶)から 2 倍波発生および 4 倍波発生を行い、258 nm を発生する。また、波長 1030 nm を励起光として OPA(Optical Parametric Amplifier)によって波長 1783 nm 光を発生、増幅を行う。OPA において波長 1800 nm 帯の増幅はフェムト秒領域ではあるが報告されており [106]、この報告と同様に増幅媒質として BBO 結晶を用いることによって達成可能である。波長 258 nm と波長 1783 nm の和周波発生によって波長 225 nm 帯の発生が可能であり、この波長変換過程は本研究でも用いた CLBO によって角度位相整合を満たすことが可能である。このように波長変換技術を用いることによって、様々な深紫外光の発生が可能となり、TALIF 計測可能な粒子種を増やすことが可能である。

また、本研究において評価を行った深紫外領域におけるファラデー回転子用材料を用いた際の展望を以下に示す。近年、深紫外領域は、その高いバンドギャップから物質の結合を直接切断することが可能であり、レーザー加工などへの応用が期待されている [107-109]。レーザー加工においても加工対象からの戻り光によって、光学素子やレーザーそのものの損傷が生じるため、加工対象によっては加工物とレーザー光源の間に光アイソレータを設置する必要がある。本研究において開発を行った材料を用いた光アイソレータによって深紫外領域においても光アイソレータの適応が可能となる。加えて、光アイソレータに留まらず、ファラデー回転子は、深紫外・真空紫外領域における偏光回転素子としても有効である。真空紫外-深紫外領域においても偏光を回転させることが可能な $\lambda/2$  波長板は、水素原子の Lyman- $\alpha$  線である波長 121.6 nm において実現されている [110]。この波長板は国際共同観測ロケット実験 CLASP(Chromospheric Lyman-Alpha SpectroPolarimeter)に使用するために開発されているが、使用可能な波長は波長 121.6 nm に限られる。この波長板は、MgF<sub>2</sub> 結晶を薄く加工することによって位相差を $\lambda/2$  にしており、他の真空紫外領域においても原理上製造可能であるが、使用可能な波長は設計波長のみに限られる。複数の波長において使用可能な $\lambda/2$  波長板も実現されているが、その波長域は波長 160 nm~に限られる [111]。本研究において実現された YLF 結晶(吸収端：波長 120 nm)、MgF<sub>2</sub> 結晶(吸収端：波長 120 nm)においては真空紫外領域において任意の波長において偏光を回転させることが可能である。このように真空紫外領域において自由に偏光を回転することが可能な光学素子が実現したことで、真空紫外領域における計測の自由度を上げることが可能であると期待される。

本研究において研究を行った深紫外領域は前述の通り、半導体製造やレーザー精密加工、物性研究への応用 [112]が精力的に研究されており、TALIF 計測の高度化だけでなく、他の用途への応用が期待される。

表 6- 1. 過去に報告されている色素レーザーの波長変換による光源と  
本研究で開発した光源の比較

	色素レーザーによる 波長変換 [38]	ファイバーレーザー による波長変換 (本研究)	ファイバーレーザー による波長変換 + ファラデー回転子 (Multi-pass TALIF)
基本波 波長	615 nm 帯	1025 nm 帯	1025 nm 帯
繰り返し 周波数	10 Hz	1 kHz	1 kHz
深紫外光 波長	205 nm 帯	205 nm 帯	205 nm 帯
深紫外光 出力	~1 mJ	~3 $\mu$ J	~3 $\mu$ J
深紫外光 線幅	0.29 pm	0.01 pm	0.01 pm
集光強度	~1 $\times 10^9$ W/cm <sup>2</sup>	~3.5 $\times 10^8$ W/cm <sup>2</sup> ※f=100 mm で集光を仮定	~3.5 $\times 10^8$ W/cm <sup>2</sup> ※f=100 mm で集光を仮定
計測可能な 中性粒子 密度下限	1 $\times 10^{15}$ m <sup>-3</sup>	3 $\times 10^{15}$ m <sup>-3</sup>	1 パス : 3 $\times 10^{15}$ m <sup>-3</sup> 2 パス : 1.5 $\times 10^{15}$ m <sup>-3</sup> 4 パス : 0.8 $\times 10^{15}$ m <sup>-3</sup>

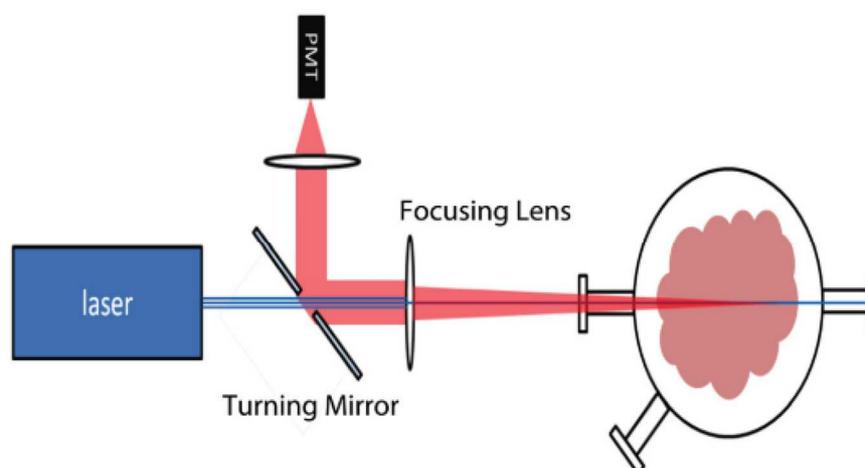
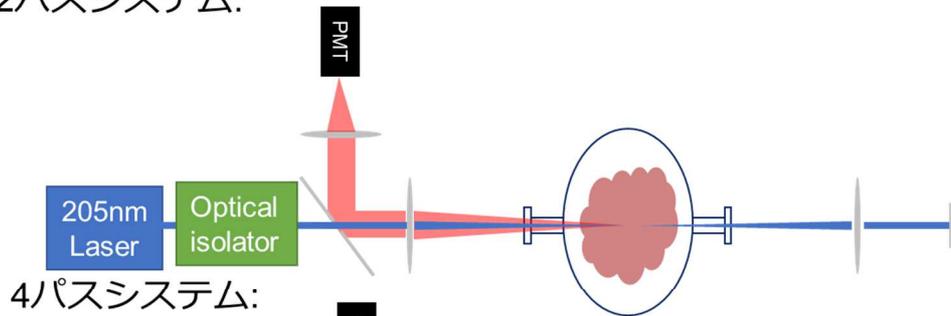


図 6- 1. 共焦点光学系 [37]

2パスシステム:



4パスシステム:

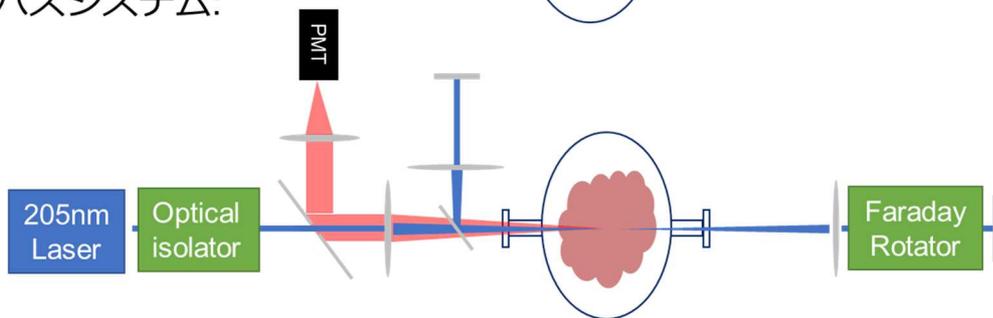


図 6- 2. multi-pass TALIF 計測の模式図

## 謝辞

本研究を進めるにあたり、ご指導と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、後藤基史准教授、鈴木千尋助教に心より感謝いたします。3年間もの間、核融合科学研究所という恵まれた環境下において自由に研究を行わせていただき、非常に多くのご助言及び激励を頂き深く感謝いたします。

総合研究大学院大学物理化学研究科核融合科学専攻の村上泉教授、本島巖准教授、京都大学 時田茂樹教授、宇都宮大学 東口武史教授には、本論文の審査を引き受けていただき、有益なご助言をいただくとともに多くのご指導を賜りました。ここに感謝の意を表します。

また核融合科学研究所の皆様には、発表会などを通してたくさんのコメント、アドバイスを頂きまして深く感謝いたします。様々な分野からのアドバイスのおかげでより一層自分の研究への理解が深まりました。

業務面でご配慮いただき、また温かい励ましとアドバイスをいただきましたギガフォトン株式会社執行役員 研究開発本部 研究部長 柿崎弘司博士、次世代光源研究課長 三浦泰祐博士に厚く感謝の意を表します。また、各所で設計等のご協力をしていただきました淵向篤氏をはじめとした研究部次世代光源研究課の皆様には感謝申し上げます。また、ギガフォトン株式会社の皆様には、各所で激励を頂き、大きな励みとなりました。ここでお礼を申し上げます。

総合研究大学院大学で同じ学生として共に過ごした河瀬広樹博士(現豊田工業大学)、Li Enhao 氏、Yang Haotian 氏、熊井光氏には、公私ともに大変お世話になりました。

最後にこれまでの学生生活に多大な援助をしていただいた家族、親族に深く感謝いたします。

## 参考文献

1. A. Iiyoshi, A. Komori, A. Ejiri, M. Emoto, H. Funaba, M. Goto, K. Ida, H. Idei, S. Inagaki, S. Kado, O. Kaneko, K. Kawahata, T. Kobuchi, S. Kubo, R. Kumazawa, and et al, "Overview of the large helical device project," Nucl. Fusion **39**, 1245–1256 (1999).
2. Y. Takeiri, O. Kaneko, K. Tsumori, Y. Oka, K. Ikeda, M. Osakabe, K. Nagaoka, E. Asano, T. Kondo, M. Sato, and M. Shibuya, "High-power and long-pulse injection with negative-ion-based neutral beam injectors in the Large Helical Device," Nucl. Fusion **46**, (2006).
3. D. Eldon, E. Kolemen, J. L. Barton, A. R. Briesemeister, D. A. Humphreys, A. W. Leonard, R. Maingi, M. A. Makowski, A. G. McLean, A. L. Moser, and P. C. Stangeby, "Controlling marginally detached divertor plasmas," Nucl. Fusion **57**, 1–18 (2017).
4. N. Ohno, D. Nishijima, S. Takamura, Y. Uesugi, M. Motoyama, N. Hattori, H. Arakawa, N. Ezumi, S. Krasheninnikov, A. Pigarov, and U. Wenzel, "Static and dynamic behaviour of plasma detachment in the divertor simulator experiment NAGDIS-II," Nucl. Fusion **41**, 1055–1065 (2001).
5. L. Tonks and I. Langmuir, "Oscillations in Ionized Gases," Phys. Rev. **33**, 195–210 (1929).
6. M. Abdel-Rahman, V. Schulz-Von Der Gathen, T. Gans, K. Niemi, and H. F. Döbele, "Determination of the degree of dissociation in an inductively coupled hydrogen plasma using optical emission spectroscopy and laser diagnostics," Plasma Sources Sci. Technol. **15**, 620–626 (2006).
7. H. S. McLean, A. Ahmed, D. Buchenauer, D. Den Hartog, C. W. Domier, D. N. Hill, C. Holcomb, E. B. Hooper, E. C. Morse, M. Nagata, Y. Roh, B. Stallard, R. D. Wood, S. Woodruff, G. Wurden, and Z. Wang, "Plasma diagnostics for the sustained spheromak physics experiment," Rev. Sci. Instrum. **72**, 556–561 (2001).
8. M. Podestà, W. W. Heidbrink, R. E. Bell, and R. Feder, "The NSTX fast-ion D-alpha diagnostic," Rev. Sci. Instrum. **79**, 0–5 (2008).
9. A. M. Keesee and E. E. Scime, "Neutral argon density profile determination by comparison of spectroscopic measurements and a collisional-radiative model (invited)," Rev. Sci. Instrum. **77**, (2006).
10. K. Hanada, T. Shikama, K. Fujii, A. Kuzmin, N. Yoneda, M. Hasuo, M. Goto, and M. Kobayashi, "表面分析と分光計測によって明らかになった水素原子分子の炉内分布と輸送," J. Plasma Fusion Res. **98**, 30–32 (2022).
11. K. Fujii, S. Atsumi, S. Watanabe, T. Shikama, M. Goto, S. Morita, and M. Hasuo, "Development of a high dynamic range spectroscopic system for observation of neutral hydrogen atom density distribution in Large Helical Device core plasma," Rev. Sci.

- Instrum. **85**, (2014).
12. J. L. Kinsey, "Laser-Induced Fluorescence," *Annu. Rev. Phys. Chem.* **28**, 349–372 (1977).
  13. R. VanDervort, D. Elliott, D. McCarren, J. McKee, M. Soderholm, S. Sears, and E. Scime, "Optimization of confocal laser induced fluorescence in a plasma," *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 11E408 (2014).
  14. T. Asayama, Y. Sasaki, T. Nagashima, A. Kurosu, H. Tsushima, T. Kumazaki, K. Kakizaki, T. Matsunaga, and H. Mizoguchi, "Power up: 120 Watt injection-locked ArF excimer laser required for both multi-patterning and 450 mm wafer lithography," *Opt. Microlithogr. XXVI (SPIE, 2013)* 86831G.
  15. 溝口 計, "半導体露光用エキシマレーザー・EUV 光源の過去, 現状そして将来," *応用物理* **79**, 541–545 (2010).
  16. Y. UEHARA, E. FUJIWARA, K. TSUCHIDA, W. SASAKI, Y. KATO, M. YAMANAKA, S. MIYAKE, S. SAITO, and J. FUJITA, "High Power Argon Excimer Laser at 126nm Pumped by Electron Beam," *Rev. Laser Eng.* **11**, 682–686 (1983).
  17. Y. Uehara, W. Sasaki, S. Saito, E. Fujiwara, Y. Kato, M. Yamanaka, K. Tsuchida, and J. Fujita, "High-power argon excimer laser at 126 nm pumped by an electron beam," *Opt. Lett.* **9**, 539–541 (1984).
  18. T. Nakazato, I. Ito, Y. Kobayashi, X. Wang, C. Chen, and S. Watanabe, "149.8 nm, the shortest wavelength generated by phase matching in nonlinear crystals," *Nonlinear Freq. Gener. Convers. Mater. Devices XVI* **10088**, 1008804 (2017).
  19. P. Trabs, F. Noack, A. S. Aleksandrovsky, A. I. Zaitsev, and V. Petrov, "Generation of coherent radiation in the vacuum ultraviolet using randomly quasi-phase-matched strontium tetraborate," *Opt. Lett.* **41**, 618 (2016).
  20. N. Saito, Y. Oishi, K. Miyazaki, K. Okamura, J. Nakamura, O. A. Louchev, M. Iwasaki, and S. Wada, "High-efficiency generation of pulsed Lyman-  $\alpha$  radiation by resonant laser wave mixing in low pressure Kr-Ar mixture," **24**, 7566–7574 (2016).
  21. J. Bokor, R. R. Freeman, J. C. White, and R. H. Storz, "Two-photon excitation of the n=3 level in H and D atoms," *Phys. Rev. A* **24**, 612–614 (1981).
  22. W. R. Zipfel, R. M. Williams, and W. W. Webb, "Nonlinear magic: Multiphoton microscopy in the biosciences," *Nat. Biotechnol.* **21**, 1369–1377 (2003).
  23. T. Kajiwara, T. Shinkawa, K. Uchino, M. Masuda, K. Muraoka, T. Okada, M. Maeda, S. Sudo, and T. Obiki, "Application of two - photon - excited laser - induced fluorescence to atomic hydrogen measurements in the edge region of high - temperature plasmas," *Rev. Sci. Instrum.* **62**, 2345–2349 (1991).
  24. F. J. Duarte and L. W. Hillman, *Dye Laser Principles, with Applications* (1990).
  25. K. Niemi, V. Schulz-von Der Gathen, and H. F. Döbele, "Absolute calibration of atomic

- density measurements by laser-induced fluorescence spectroscopy with two-photon excitation," *J. Phys. D. Appl. Phys.* **34**, 2330–2335 (2001).
26. R. M. Magee, M. E. Galante, D. McCarren, E. E. Scime, R. L. Boivin, N. H. Brooks, R. J. Groebner, D. N. Hill, and G. D. Porter, "A two photon absorption laser induced fluorescence diagnostic for fusion plasmas," *Rev. Sci. Instrum.* **83**, (2012).
  27. M. G. H. Boogaarts, S. Mazouffre, G. J. Brinkman, H. W. P. Van Der Heijden, P. Vankan, J. A. M. Van Der Mullen, D. C. Schram, and H. F. Döbele, "Quantitative two-photon laser-induced fluorescence measurements of atomic hydrogen densities, temperatures, and velocities in an expanding thermal plasma," *Rev. Sci. Instrum.* **73**, 73 (2002).
  28. <https://www.sirah.com/lasers/he/narrow-bandwidth> .
  29. K. Kohno, Y. Orii, H. Sawada, D. Okuyama, K. Shibuya, S. Shimizu, M. Yoshimura, Y. Mori, J. Nishimae, and G. Okada, "High-power DUV picosecond pulse laser with a gain-switched-LD-seeded MOPA and large CLBO crystal," *Opt. Lett.* **45**, 2351 (2020).
  30. H. Xuan, Z. Zhao, H. Igarashi, S. Ito, K. Kakizaki, and Y. Kobayashi, "300-mW narrow-linewidth deep-ultraviolet light generation at 193 nm by frequency mixing between Yb-hybrid and Er-fiber lasers," *Opt. Express* **23**, 10564 (2015).
  31. H. Turcicova, O. Novak, L. Roskot, M. Smrz, J. Muzik, M. Chyla, A. Endo, and T. Mocek, "New observations on DUV radiation at 257 nm and 206 nm produced by a picosecond diode pumped thin-disk laser," *Opt. Express* **27**, 24286 (2019).
  32. H. Nishioka, H. Hisano, T. Kaminaga, K. Ueda, and H. Takuma, "Development of the UV Faraday Rotator," *Rev. Laser Eng.* **12**, 660–662 (1984).
  33. "Shin-Etsu Quartz Products Co., Ltd., Shinjuku San-ei Bldg., 1-22-2, Nishi-Shinjuku, Shinjuku-ku, Tokyo 160-0023, Japan (data sheet, [https://www.sqp.co.jp/e/catalog/images/QuartzGlass\\_for\\_Optics\\_e.pdf](https://www.sqp.co.jp/e/catalog/images/QuartzGlass_for_Optics_e.pdf))," .
  34. J. L. Dexter, J. Landry, D. G. Cooper, and J. Reintjes, "Ultraviolet optical isolators utilizing KDP-isomorphs," *Opt. Commun.* **80**, 115–118 (1990).
  35. P. Molina, V. Vasyliiev, E. G. Vállora, and K. Shimamura, "CeF<sub>3</sub> and PrF<sub>3</sub> as UV-Visible Faraday rotators," *Opt. Express* **19**, 11786 (2011).
  36. V. Vasyliiev, E. G. Villora, M. Nakamura, Y. Sugahara, and K. Shimamura, "UV-visible faraday rotators based on rare-earth fluoride single crystals: LiREF<sub>4</sub> (RE=Tb, Dy, Ho, Er and Yb), PrF<sub>3</sub> and CeF<sub>3</sub>," *Key Eng. Mater.* **582**, 194–197 (2014).
  37. M. E. Galante, R. M. Magee, and E. E. Scime, "Two photon absorption laser induced fluorescence measurements of neutral density in a helicon plasma," *Phys. Plasmas* **21**, (2014).
  38. D. Elliott, D. Sutherland, U. Siddiqui, E. Scime, C. Everson, K. Morgan, A. Hossack, B.

- Nelson, and T. Jarboe, "Two-photon LIF on the HIT-SI3 experiment: Absolute density and temperature measurements of deuterium neutrals," *Rev. Sci. Instrum.* **87**, (2016).
39. P. Moulton, "Ti-doped sapphire: tunable solid-state laser," *Opt. News* **8**, 9 (1982).
40. I. D. Jung, F. X. Kärtner, N. Matuschek, D. H. Sutter, F. Morier-Genoud, G. Zhang, U. Keller, V. Scheuer, M. Tilsch, and T. Tschudi, "Self-starting 65-fs pulses from a Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* **22**, 1009 (1997).
41. H. Zhang, G. Wang, L. Guo, A. Geng, Y. Bo, D. Cui, Z. Xu, R. Li, Y. Zhu, X. Wang, and C. Chen, "175 to 210 nm widely tunable deep-ultraviolet light generation based on KBBF crystal," *Appl. Phys. B Lasers Opt.* **93**, 323–326 (2008).
42. H. M. Pask, R. J. Carman, D. C. Hanna, A. C. Tropper, C. J. Mackechnie, P. R. Barber, and J. M. Dawes, "Ytterbium-doped silica fiber lasers: versatile sources for the 1-1.2  $\mu$  m region," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **1**, 2–13 (1995).
43. 白川 晃 and 植田 憲一, "高出力Yb添加ファイバーレーザー研究の最前線と展望," *光学* **38**, 25–32 (2009).
44. K. Ueda, "The Prospects of High Power Fiber Lasers for Laser Science , 1-5-1 Chofugaoka , Chofu , Tokyo Double clad fiber lasers open the new world of high power lasers for industrial applications with high beam quality power delivering . The physics in the absorpt," 79–83 (2000).
45. 平等 拓範, "Yb系固体レーザー," *光学* **28**, 435–442 (1999).
46. D. Strickland and G. Mourou, "Compression of amplified chirped optical pulses," *Opt. Commun.* **55**, 447–449 (1985).
47. M. Smrž, M. Vyvléř, and P. Sikocinski, "applied sciences Advances in High-Power , Ultrashort Pulse DPSSL Technologies at HiLASE," (n.d.).
48. J. B. Schmidt, S. Roy, W. D. Kulatilaka, I. Shkurenkov, I. V. Adamovich, W. R. Lempert, and J. R. Gord, "Femtosecond, two-photon-absorption, laser-induced-fluorescence (fs-TALIF) imaging of atomic hydrogen and oxygen in non-equilibrium plasmas," *J. Phys. D. Appl. Phys.* **50**, (2017).
49. M. G. Littman and H. J. Metcalf, "Spectrally narrow pulsed dye laser without beam expander," *Appl. Opt.* **17**, 2224 (1978).
50. K. Muro, T. Endo, A. Terayama, Y. Wakabayashi, K. Kitahara, Y. Shimada, and D. Fukuoka, "ASE-Free Continuously Tunable Diode Laser with a Novel Configuration," in *Conference on Lasers and Electro-Optics 2012* (OSA, 2012), p. CTu3N.3.
51. D. Fukuoka and K. Muro, "Acknowledgement of Laser Industry Award 2020 – Development of ASE-Free, Widely Mode-Hop-Free Tunable Diode Laser –," *Rev. Laser Eng.* **48**, 376–380 (2020).
52. M. Melo and J. M. Sousa, "Power scaling through narrowband ASE seeding in pulsed

- MOPA fiber systems," in S. Ramachandran, ed. (2014), p. 89612L.
53. J. M. Fini, "Bend-resistant design of conventional and microstructure fibers with very large mode area," *Opt. Express* **14**, 69 (2006).
  54. V. I. Kovalev and R. G. Harrison, "Suppression of stimulated Brillouin scattering in high-power single-frequency fiber amplifiers," *Opt. Lett.* **31**, 161 (2006).
  55. M.-J. Li, X. Chen, J. Wang, S. Gray, A. Liu, J. A. Demeritt, A. B. Ruffin, A. M. Crowley, D. T. Walton, and L. A. Zenteno, "Al/Ge co-doped large mode area fiber with high SBS threshold," *Opt. Express* **15**, 8290 (2007).
  56. P. Georges, F. Estable, F. Salin, J. P. Poizat, P. Grangier, and A. Brun, "High-efficiency multipass Ti:sapphire amplifiers for a continuous-wave single-mode laser," *Opt. Lett.* **16**, 144 (1991).
  57. J. E. Murray and W. H. Lowdermilk, "ND : YAG regenerative amplifier," *J. Appl. Phys.* **51**, 3548–3556 (1980).
  58. P. Lacovara, H. K. Choi, C. A. Wang, R. L. Aggarwal, and T. Y. Fan, "Room-temperature diode-pumped Yb:YAG laser," *Opt. Lett.* **16**, 1089 (1991).
  59. M. Zhou, D. Xiang, M. Zhe, X. Feng, and Y. Ming, "Polarized fluorescence spectra analysis of Yb<sup>3+</sup>:KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>," *Opt. Commun.* **282**, 4109–4113 (2009).
  60. A. . Lagatsky, N. . Kuleshov, and V. . Mikhailov, "Diode-pumped CW lasing of Yb:KYW and Yb:KGW," *Opt. Commun.* **165**, 71–75 (1999).
  61. F. Brunner, G. J. Spühler, J. A. Der Au, L. Krainer, and R. Paschotta, "Diode-pumped femtosecond Yb : KGd ( WO 4 ) 2 laser with 1 . 1-W average power," **25**, 1119–1121 (2000).
  62. H. Liu, J. Nees, G. Mourou, S. Biswal, G. J. Spühler, U. Keller, and N. V. Kuleshov, "Yb:KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> chirped-pulse regenerative amplifiers," *Opt. Commun.* **203**, 315–321 (2002).
  63. H. He, J. Yu, W. Zhu, X. Guo, C. Zhou, and S. Ruan, "A Yb:KGW dual-crystal regenerative amplifier," *High Power Laser Sci. Eng.* **8**, 1–7 (2020).
  64. T. Ukachi, R. J. Lane, W. R. Bosenberg, and C. L. Tang, "Measurements of noncritically phase - matched second - harmonic generation in a LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> crystal," *Appl. Phys. Lett.* **57**, 980–982 (1990).
  65. M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, "Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances," *IEEE J. Quantum Electron.* **28**, 2631–2654 (1992).
  66. S. Kurimura, M. Harada, K. Muramatsu, M. Ueda, M. Adachi, T. Yamada, and T. Ueno, "Quartz revisits nonlinear optics: twinned crystal for quasi-phase matching [Invited]," *Opt. Mater. Express* **1**, 1367 (2011).

67. S. Lin, Z. Sun, B. Wu, and C. Chen, "The nonlinear optical characteristics of a LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> crystal," *J. Appl. Phys.* **67**, 634–638 (1990).
68. Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki, and S. Nakai, "New nonlinear optical crystal: Cesium lithium borate," *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1818–1820 (1995).
69. N. Umemura and K. Kato, "Ultraviolet generation tunable to 0185  $\mu\text{m}$  in CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub>," *Appl. Opt.* **36**, 6794 (1997).
70. M. Nishioka, A. Kanoh, M. Yoshimura, Y. Mori, T. Sasaki, T. Katsura, T. Kojima, and J. Nishimae, "Improvement in UV Optical Properties of CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> by Reducing Water Molecules in the Crystal," *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, L699 (2005).
71. T. Kawamura, M. Yoshimura, Y. Honda, M. Nishioka, Y. Shimizu, Y. Kitaoka, Y. Mori, and T. Sasaki, "Effect of water impurity in CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> crystals on bulk laser-induced damage threshold and transmittance in the ultraviolet region," *Appl. Opt.* **48**, 1658 (2009).
72. N. Umemura, K. Yoshida, T. Kamimura, Y. Mori, T. Sasaki, and K. Kato, "New data on the phase-matching properties of CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub>," in *Advanced Solid State Lasers* (OSA, 2001), p. PD15.
73. K. Takachiho, M. Yoshimura, Y. Takahashi, M. Imade, T. Sasaki, and Y. Mori, "Ultraviolet laser-induced degradation of CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> and  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>," *Opt. Mater. Express* **4**, 559 (2014).
74. D. B. Elliott, "Two Photon Absorption Laser Induced Fluorescence for Fusion Class Plasmas," (2016).
75. M. Faraday, "I. Experimental researches in electricity.—Nineteenth series," *Philos. Trans. R. Soc. London* **136**, 1–20 (1846).
76. L. Sun, S. Jiang, and J. R. Marciante, "All-fiber optical magnetic field sensor based on Faraday rotation," *Opt. InfoBase Conf. Pap.* **18**, 5407–5412 (2010).
77. N. C. Pistoni and M. Martinelli, "Vibration-insensitive fiber-optic current sensor," *Opt. Lett.* **18**, 314 (1993).
78. E. Munin, "Analysis of a tunable bandpass filter based on Faraday rotators," *IEEE Trans. Magn.* **32**, 316–319 (1996).
79. T. Nakamura, S. Tani, I. Ito, and Y. Kobayashi, "Magneto-optic modulator for high bandwidth cavity length stabilization," *Opt. Express* **25**, 4994 (2017).
80. C. G. Darwin and W. H. Watson, "The constants of the magnetic dispersion of light," *Proc. R. Soc. London. Ser. A, Contain. Pap. a Math. Phys. Character* **114**, 474–490 (1927).
81. J. H. Van Vleck, *Theory of Electric and Magnetic Susceptibilities* (Oxford Univ. Press, 1932).

82. H. J. Hoffmann, W. W. Joehs, and G. Przybilla, "The Verdet constant of optical glasses," in *Basic Properties of Optical Materials* (1985), pp. 266–269.
83. M. J. Weber, "Faraday Rotator Materials For Laser Systems," in *Proc. SPIE*, L. G. DeShazer, ed. (1987), Vol. 681, p. 75.
84. R. Yasuhara, S. Tokita, J. Kawanaka, T. Kawashima, H. Kan, H. Yagi, H. Nozawa, T. Yanagitani, Y. Fujimoto, H. Yoshida, and M. Nakatsuka, "Cryogenic temperature characteristics of Verdet constant on terbium gallium garnet ceramics," *Opt. Express* **15**, 11255 (2007).
85. O. Slezák, R. Yasuhara, D. Vojna, H. Furuse, A. Lucianetti, and T. Mocek, "Temperature-wavelength dependence of Verdet constant of Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramics," *Opt. Mater. Express* **9**, 2971 (2019).
86. D. Vojna, R. Yasuhara, O. Slezák, J. Mužík, A. Lucianetti, and T. Mocek, "Verdet constant dispersion of CeF<sub>3</sub> in the visible and near-infrared spectral range," *Opt. Eng.* **56**, 067105 (2017).
87. V. Vasyliiev, E. G. Villora, M. Nakamura, Y. Sugahara, and K. Shimamura, "UV-visible Faraday rotators based on rare-earth fluoride single crystals: LiREF<sub>4</sub> (RE = Tb, Dy, Ho, Er and Yb), PrF<sub>3</sub> and CeF<sub>3</sub>," *Opt. Express* **20**, 14460 (2012).
88. K. Nakajima, Y. Numajiri, and Y. Nomi, "New design of a polarization-independent optical isolator with high performance," *IEEE Trans. Magn.* **27**, 5399–5401 (1991).
89. O. Slezák, R. Yasuhara, A. Lucianetti, and T. Mocek, "Temperature-wavelength dependence of terbium gallium garnet ceramics Verdet constant," *Opt. Mater. Express* **6**, 3683 (2016).
90. A. Ikesue and Y. L. Aung, "Development of optical grade polycrystalline YIG ceramics for faraday rotator," *J. Am. Ceram. Soc.* **101**, 5120–5126 (2018).
91. O. Slezák, R. Yasuhara, D. Vojna, H. Furuse, A. Lucianetti, and T. Mocek, "Temperature-wavelength dependence of Verdet constant of Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramics," *Opt. Mater. Express* **9**, 2971 (2019).
92. E. A. Mironov, A. V. Voitovich, and O. V. Palashov, "Permanent-magnet Faraday isolator with the field intensity of more than 3 tesla," *Laser Phys. Lett.* **17**, 015001 (2020).
93. V. Sivaramakrishnan, "Dispersion of faraday rotation in fused quartz," *Proc. Indian Acad. Sci.* **44**, 206–215 (1956).
94. H. Zbinden and J. E. Balmer, "Q-switched Nd:YLF laser end pumped by a diode-laser bar," *Opt. Lett.* **15**, 1014 (1990).
95. R. Brede, T. Danger, E. Heumann, G. Huber, and B. Chai, "Room-temperature green laser emission of Er:LiYF<sub>4</sub>," *Appl. Phys. Lett.* **63**, 729–730 (1993).
96. F. Heine, E. Heumann, T. Danger, T. Schweizer, G. Huber, and B. Chai, "Green

- upconversion continuous wave Er<sup>3+</sup>:LiYF<sub>4</sub> laser at room temperature," *Appl. Phys. Lett.* **65**, 383–384 (1994).
97. G. J. Kintz, R. Allen, and L. Esterowitz, "Cw and pulsed 2.8  $\mu$  m laser emission from diode-pumped Er<sup>3+</sup>:LiYF<sub>4</sub> at room temperature," *Appl. Phys. Lett.* **50**, 1553–1555 (1987).
  98. M. Cadatal-Raduban, T. Shimizu, N. Sarukura, K. Takahashi, and T. Fukuda, "Crystal growth of ultra-large MgF<sub>2</sub> and LiCaAlF<sub>6</sub> single crystals by a double-crucible Czochralski technique," *J. Cryst. Growth* **571**, 126260 (2021).
  99. E. Munin, C. B. Pedroso, and A. B. Villaverde, "Magneto-optical constants of fluoride optical crystals and other AB<sub>2</sub> and A<sub>2</sub>B type compounds," *J. Chem. Soc. Faraday Trans.* **92**, 2753 (1996).
  100. J. L. Flores and J. A. Ferrari, "Verdet constant dispersion measurement using polarization-stepping techniques," *Appl. Opt.* **47**, 4396–4399 (2008).
  101. <https://www.energetiq.com/ldls-laser-driven-light-source-products-energetiq>.
  102. E. A. Khazanov, O. V. Kulagin, S. Yoshida, D. B. Tanner, and D. H. Reitze, "Investigation of self-induced depolarization of laser radiation in terbium gallium garnet," *IEEE J. Quantum Electron.* **35**, 1116–1122 (1999).
  103. J. B. Pfeiffer and K. H. Wagner, "Measuring photoelastic constants with Schaefer-Bergmann diffraction," *Phys. Procedia* **70**, 766–769 (2015).
  104. N. Gutiérrez-Luna, G. Capobianco, A. M. Malvezzi, C. Honrado-Benítez, L. R. Marcos, J. I. Larruquert, A. Giglia, N. Mahne, S. Nannarone, and S. Fineschi, "Multilayer beamsplitter polarizers for key UV-FUV spectral lines of solar polarimetry," *Opt. Express* **30**, 29735 (2022).
  105. W. Koechner, *Solid-State Laser Engineering* (2013).
  106. F. Légaré, B. E. Schmidt, A. D. Shiner, P. Lassonde, D. M. Villeneuve, J. C. Kieffer, and P. B. Corkum, "Sub-millijoule CEP stable 1.6 cycle laser pulses at 1.8  $\mu$  m," *Opt. InfoBase Conf. Pap.* **19**, 6858–6864 (2011).
  107. Y. Kawasuji, J. Fujimoto, M. Kobayashi, A. Suwa, A. Mizutani, M. Arakawa, T. Onose, and H. Mizoguchi, "Deep ultraviolet excimer laser processing for the micro via hole on semiconductor package," *J. Laser Appl.* **32**, 022076 (2020).
  108. J.-P. Desbiens and P. Masson, "ArF excimer laser micromachining of Pyrex, SiC and PZT for rapid prototyping of MEMS components," *Sensors Actuators A Phys.* **136**, 554–563 (2007).
  109. J. Ihlemann and K. Rubahn, "Excimer laser micro machining: Fabrication and applications of dielectric masks," *Appl. Surf. Sci.* **154**, 587–592 (2000).
  110. R. Ishikawa, R. Kano, T. Bando, Y. Suematsu, S. Ishikawa, M. Kubo, N. Narukage, H.

- Hara, S. Tsuneta, H. Watanabe, K. Ichimoto, K. Aoki, and K. Miyagawa, "Birefringence of magnesium fluoride in the vacuum ultraviolet and application to a half-waveplate," *Appl. Opt.* **52**, 8205 (2013).
111. <https://www.kogakugiken.co.jp/products/retardation03.html> .
112. K. Yaji, A. Harasawa, K. Kuroda, S. Toyohisa, M. Nakayama, Y. Ishida, A. Fukushima, S. Watanabe, C. Chen, F. Komori, and S. Shin, "High-resolution three-dimensional spin- and angle-resolved photoelectron spectrometer using vacuum ultraviolet laser light," *Rev. Sci. Instrum.* **87**, 053111 (2016).

## 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. ①Yuki Tamaru, Hengjun Chen, Atsushi Fuchimukai, Hiyori Uehara, Taisuke Miura, and Ryo Yasuhara, ②「Wavelength dependence of the Verdet constant in synthetic quartz glass for deep-ultraviolet light sources」, ③「Optics Materials Express」, ④(2021年02月17日), ⑤Vol. 11, No. 3, pp. 814-820.
2. ①Yuki Tamaru, Hengjun Chen, Atsushi Fuchimukai, Hiyori Uehara, Taisuke Miura, and Ryo Yasuhara, ②「Effect of erbium concentration on the Verdet constant dispersion of  $\text{LiY}_{1.0-x}\text{Er}_x\text{F}_4$  single crystal」, ③「Optical Materials Express」, ④(2022年03月10日), ⑤Vol. 12, No.4, pp. 1427-1432.
3. ①Yuki Tamaru, Atsushi Fuchimukai, Hiyori Uehara, Taisuke Miura, and Ryo Yasuhara, ②「Verdet constant dispersion of magnesium fluoride for deep-ultraviolet and vacuum-ultraviolet Faraday rotators」, ③「Optics Express」, ④(2021年02月17日), ⑤Vol. 11, No. 3, pp. 814-820.

### 本論文に関する国際会議発表(4件)

1. (ポスター): Y. Tamaru, H. Chen, A. Fuchimukai, H. Uehara, T. Miura, and R. Yasuhara, "Verdet Constant Dispersion Measurement of Synthetic Quartz in DUV Region," Advanced Solid State Lasers (ASSL2020), Online, 06 October 2020, JTh6A.19.
2. (ポスター): Y. Tamaru, H. Chen, A. Fuchimukai, H. Uehara, T. Miura, R. Yasuhara, "Magneto-optic properties of synthetic quartz for DUV optical isolator," The 10th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2021), Online, 20 April 2021, ALPS-Poster-14
3. (口頭発表): Y. Tamaru, H. Kumai, A. Fuchimukai, H. Uehara, T. Miura, R. Yasuhara, "Comparison of materials for deep-ultraviolet optical isolator," Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics(CLEO-PR 2022), Hokkaido, 04 August 2022, CthA1E-0
4. (ポスター): Yuki Tamaru, Hikaru Kumai, Atsushi Fuchimukai, Hiyori Uehara, Taisuke Miura, Ryo Yasuhara, "Verdet constant dispersion of  $\text{MgF}_2$  in deep-ultraviolet region," Advanced Solid State Lasers, Barcelona, 12 December 2022, JM4A.13

### 本論文に関する国内会議発表(3件)

1. (口頭発表): 田丸 裕基、Chen Hengjun、淵向 篤、上原 日和、三浦 泰祐、安原 亮、「深紫外光アイソレータ用合成石英のヴェルデ定数の波長依存計測」、第 81 回応用物理学会秋季学術講演会、オンライン開催、2020 年 9 月 8 日、8a-Z19-1
2. (口頭発表): 田丸 裕基、熊井 光、淵向 篤、上原 日和、三浦 泰祐、安原 亮、「 $\text{LiY}_{1.0-x}\text{Er}_x\text{F}_4$  結晶におけるヴェルデ定数の Er 添加濃度依存性の評価」、レーザー学会学術講演会 第 4 2 回年次大会、オンライン開催、2022 年 1 月 14 日、B10-14p-II-05
3. (口頭発表): 田丸 裕基、淵向 篤、上原 日和、三浦 泰祐、安原 亮、「真空紫外磁気光学デバイスを目指したフッ化マグネシウムにおけるヴェルデ定数の波長依存性評価」、レーザー学会学術講演会第 4 3 回年次大会、名古屋、2023 年 1 月 19 日、B07-19a-VI-05

### 受賞(2件)

1. The Best Student Award in Advanced Lasers and Photon Sources 2021 (ALPS2021)
2. レーザー学会学術講演会第 4 3 回年次大会優秀論文発表賞