

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。 2007. 6. 6

[技術情報室]

ハライド系銅蒸気レーザの高効率化の研究(3)

1988年12月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001



ハライド系銅蒸気レーザの高効率化の研究 (3)

大内 和美, 矢戸 弓雄, 笹尾 信之
藤井 寛一*

要 旨

1. 目 的

ウラン濃縮、光化学、医療関係から現在注目されている銅蒸気レーザの高効率化を目的とする。

2. 方 法

ハライド系銅 (CuCl 、 CuBr 、 CuI 等) は、金属に比べ低い融点を持つため低温度でレーザ発振が可能になり、またこのためレーザ放電管の断熱構造が簡単になる利点を持つ。このハライド系銅を放電管内に一様に置き、放電自身の熱により蒸気化させ、レーザ発振させた。

3. 内 容

- 1) 塩化第一銅を用いた場合のレーザ出力特性
- 2) 臭化第一銅を用いた場合のレーザ出力特性
- 3) 高繰り返しパルス放電を用いた場合のレーザ出力特性
- 4) レーザビーム強度の強度分布
- 5) 光パルス波形の温度変化

4. 結 果

- 1) 塩化第一銅よりも臭化第一銅の方が高出力を得た。
- 2) 最大レーザ出力は、14KV、35KHz、40 Torrの下で13.6Wを得た。
- 3) レーザビームの強度分布は、40KHzのFでボーンエフェクトの影響からガウシャ
ン分布となった。
F ← 繰り返し回数を表す

* 茨城大学工学部教授

目 次

1. はじめに	1
2. 発振原理及びエンハンシング作用	2
2. 1 発振原理	2
2. 2 エンハンシング作用	2
3. 実験回路及び測定装置	6
3. 1 実験回路	6
3. 2 測定装置	8
4. 実験結果及び考察	10
4. 1 塩化第一銅を用いた場合のレーザ出力特性	10
4. 2 臭化第一銅を用いた場合のレーザ出力特性	20
4. 3 高繰返しパルス放電を用いた場合のレーザ出力特性	28
4. 3. 1 レーザビーム強度分布	32
4. 3. 2 光パルス波形の温度変化	35
5. まとめ	44
6. 謝辞	45
7. 参考文献	46

1. はじめに

金属蒸気レーザーは、同位体分離や光化学反応レーザーとして注目を集めているばかりでなく光ファイバーを用いて光パワー伝送が可能なこともあり広い応用範囲が考えられている。

銅蒸気レーザーは、量子効率63%であるにもかかわらず、レーザー下準位が準安定準位であるために高効率化がむずかしく、現在の所エネルギー変換効率は1~2%程度でしかない。そこでプラズマ中の電子-原子過程を理解し効率向上の方法を見出すことを目的として融点が金属銅に比べて低いハライド系銅化合物(CuCl, CuBr)を用いた銅蒸気レーザーの発振試験を実施したので報告する。

2. 発振原理及びエンハンシング作用

2. 1 発振原理

図2. 1に銅原子のエネルギー準位図を示した。放電の加熱により気化した塩化第一銅分子及び臭化第一銅は、高繰り返し放電により解離され ($\text{CuCl} \rightarrow \text{Cu} + \text{Cl}$, $\text{CuBr} \rightarrow \text{Cu} + \text{Br}$) 銅原子単体になり次のパルス放電で励起される。

エネルギー遷移は、次の様に行われる。規定準位 $^2\text{S}_{1/2}$ から 30784 cm^{-1} (3.82 eV) の $^2\text{P}_{3/2}$ と 30535 cm^{-1} (3.79 eV) の $^2\text{P}_{1/2}$ の2つの上準位に励起され、それぞれの寿命 9.60 ns , 10.34 ns の後 $^2\text{P}_{1/2}$ から 11202 cm^{-1} (1.30 eV) の $^2\text{D}_{5/2}$ へ、また、 $^2\text{P}_{3/2}$ から 13245 cm^{-1} (1.62 eV) の $^2\text{D}_{3/2}$ のレーザ下準位へ遷移するとき 510.6 nm (緑色光), と 578.2 nm (黄色光) の2本のレーザ光を発する。レーザ上準位の寿命が短いためにパルス発信のみが可能となりまた、立ち上がりの早い電圧パルスが必要である。

レーザ下準位の $^2\text{D}_{5/2}$, $^2\text{D}_{3/2}$ 状態と基底状態 $^2\text{S}_{1/2}$ との光学的遷移は禁止されているので $^2\text{D}_{5/2}$, $^2\text{D}_{3/2}$ 状態は準安定準位であり衝突によってのみ緩和される。

レーザ発信は、レーザ上準位の $^2\text{P}_{3/2}$, $^2\text{P}_{1/2}$ の状態の原子数をレーザ下準位 $^2\text{D}_{5/2}$, $^2\text{D}_{3/2}$ 状態の原子数よりも多くして反転分布を形成することが必要である。

2. 2 エンハンシング作用

図2. 2に銅原子のエネルギー準位とエンハンシング剤としての銀のエネルギー準位を示した。銀は、 30242 cm^{-1} と 30472 cm^{-1} に共鳴準位を持つ。この共鳴準位は、ほかの準位に比べ銀の原子密度が高い。この原子密度の高いことを利用して銅原子のレーザ上準位へ衝突よりエネルギー移行させる。このようなエネルギー移行の方法をエンハンシングと呼ぶ。

銀原子の 30242 cm^{-1} , 30472 cm^{-1} と銅原子の黄色光のレーザ上準位レベル 30535 cm^{-1} とのエネルギー差は、各々 293 cm^{-1} , 63 cm^{-1} である。温度を考慮すると銀原子の2つの準位とも銅原子へのエネルギー移行が可能になると考える。

図2-3に銅原子の衝突断面積の電子エネルギー依存性について示した。最大の衝突断面積は、電子エネルギーが 10 eV 付近である。

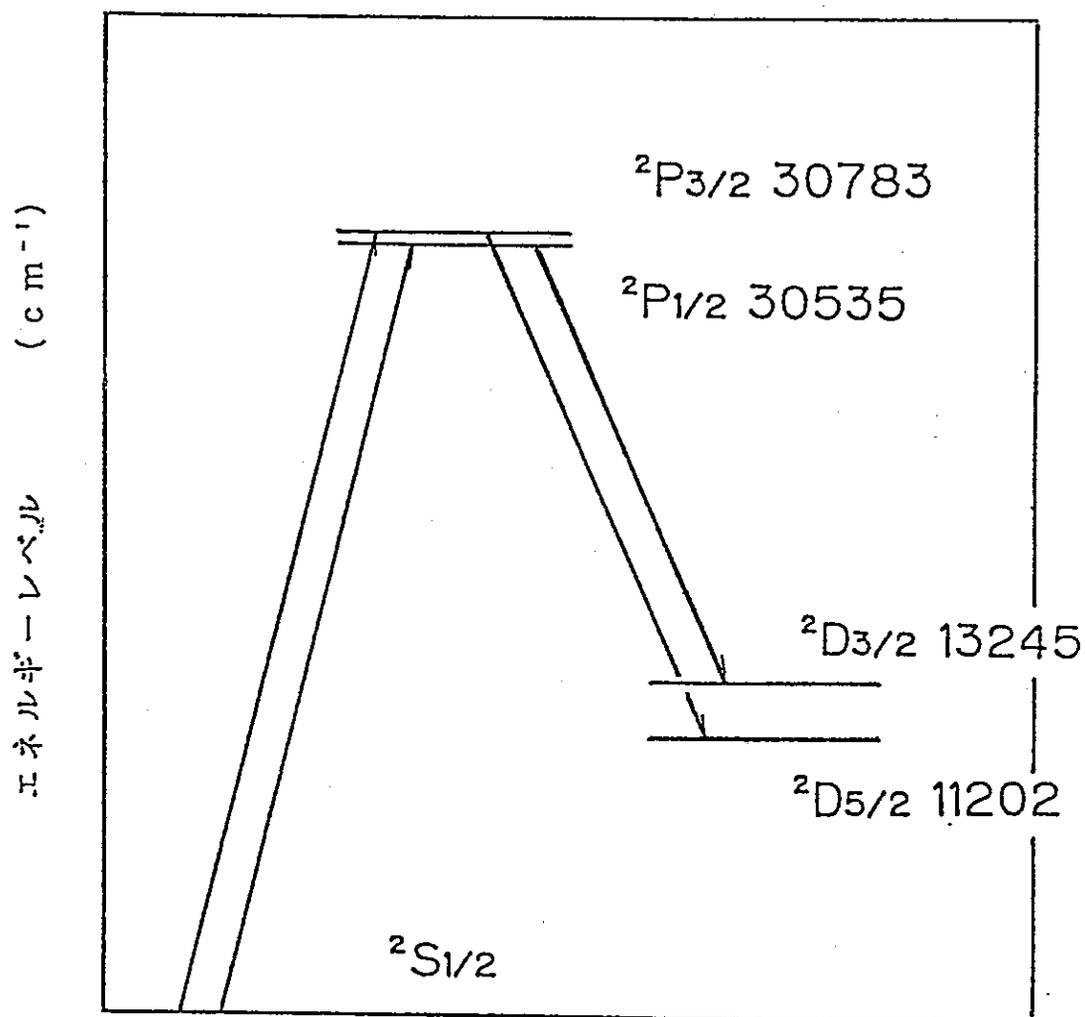


図 2 . 1 銅原子のエネルギー準位

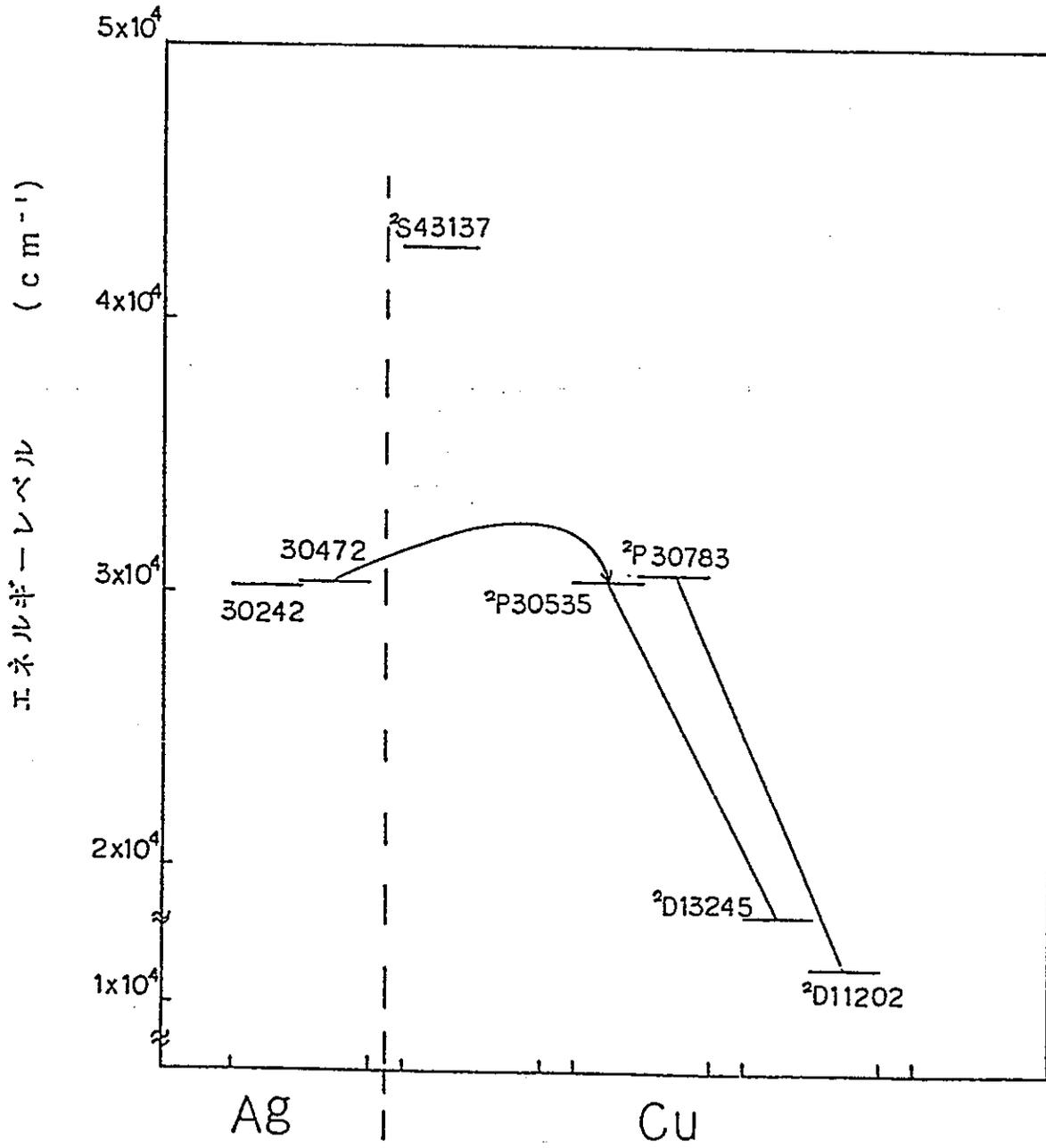


図 2 - 2 銅及び銀のエネルギー準位

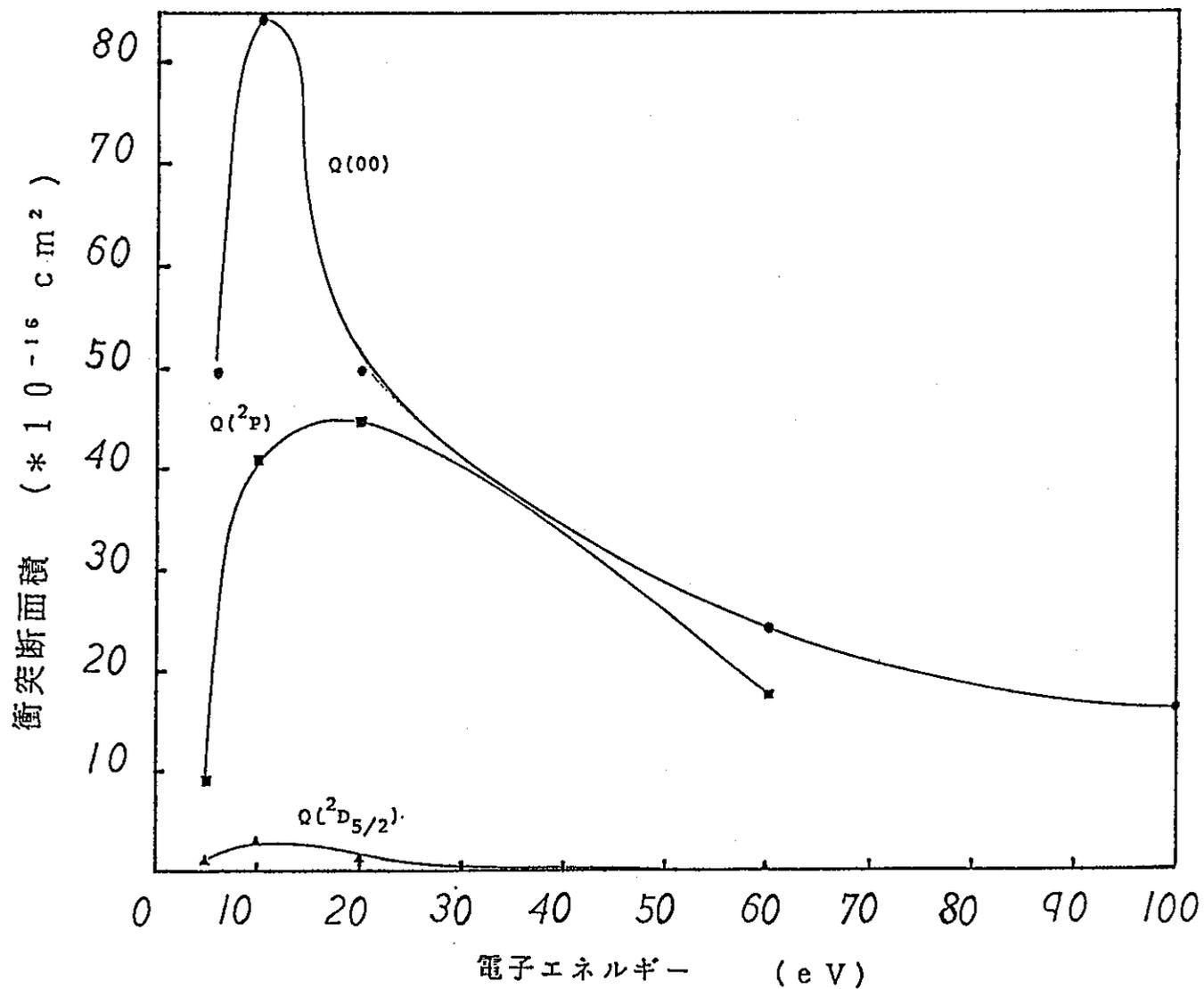


図 2-3 銅原子の衝突断面積の電子エネルギー依存性

3. 実験回路及び測定装置

3. 1 実験回路

図3. 1に実験回路の概略図を示した。電源は、D. C. 12 kV, 0. 8 Aの主電源を用い、LC共振回路を用いた電圧増幅器により最大24 kVの電圧を得ることが出来る。

回路の基本動作は、サイラトロン（最大繰り返し周波数10 kHz）をオンすることにより1次側コンデンサC1（3. 4 nF）に充電された電荷は、2次側コンデンサC2（2. 0 nF）に移行する。この時のC2の充電電圧は、

$$V_2 = \frac{\sqrt{C_1}}{\sqrt{C_2}} V_1 \quad [\text{V}] \quad \dots\dots\dots (3. 1)$$

まで昇圧可能となる。V1は、C1の充電電圧、V2は、C2の充電電圧を示す。この回路を容量移行型回路と呼ぶ。2次側コンデンサC2と並列にレーザ放電管を接続して放電回路を形成する。この放電回路の持つインダクタンス成分を出来るだけ小さくし急峻な立ち上がりの電圧パルスが得られる様に工夫した。

レーザ放電管は、内径26 mmのパイレックスガラス管の両端にフランジを取付け、そのフランジに放電電極を接続したものである。放電長は、450 mm、放電体積は、180 mlである。電極は、ニッケル製の内径18 mmの円筒電極を使用した。

全反射ミラーは、反射率99%の誘電体多層膜をコーティングしたミラーを、出力ミラーは、反射率15%の石英板を使用し、共振器長870 mmとした。1. 5 gの塩化第一銅粉末及び臭化第一銅粉末を放電管全体に均等に分布する様に置き、放電によって加熱し気化させる。

放電管の保温には、グラスウール布を用いた。

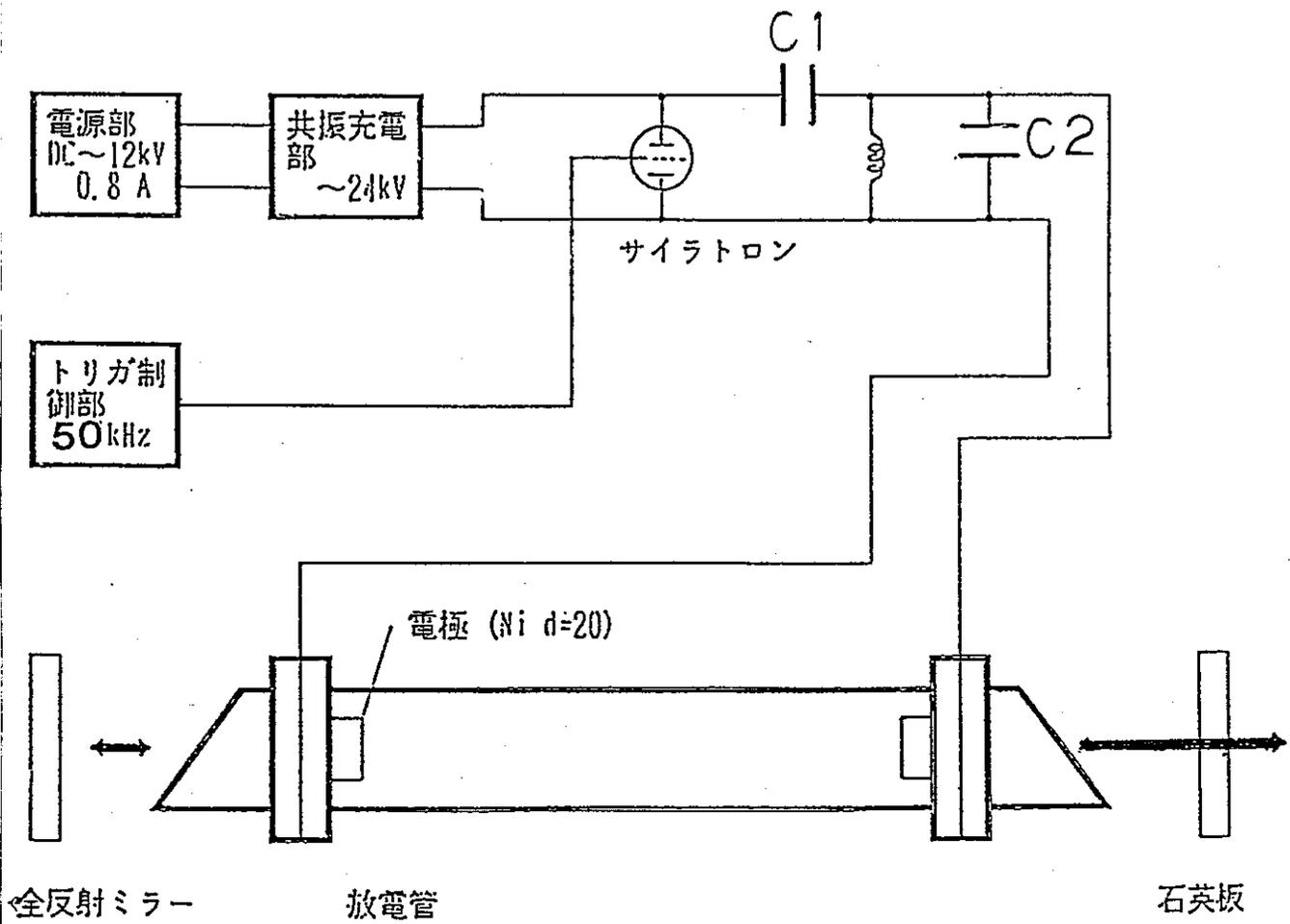


図 3 - 1 実験回路図

3. 2 測定装置

図3. 2に測定システムの概略図を示す。

1) 放電管壁温度測定

放電管壁温度測定は、光ファイバ温度計（アキュファイバ社製 MODEL 100）を放電管の中央部に固定して行った。

2) 平均光パワー測定

Al蒸着ミラー3枚を用いてレーザ光をシールドルーム内に導き、パワーメータ（SCIENTECH社製 MODEL 360001）を用いてレーザ光の平均パワーを測定した。

3) 光パルス測定

シールドルーム内のバイブラナー光電管（浜松フォトニクス社製 R1193U）の感面に光パルスを導き光電管からの信号をオシロスコープ（TECHTRONIX社製 MODEL 7104）に伝送し、波形観測を行った。このとき光電管に供給した電子加速電圧は、1000Vである。

4) 放電電圧測定

高電圧プローブ（TECHTRONIX社製 MODEL P5015）を用い両電極間の放電電圧を1/1000倍に分圧し、ストレージオシロスコープにより測定した。

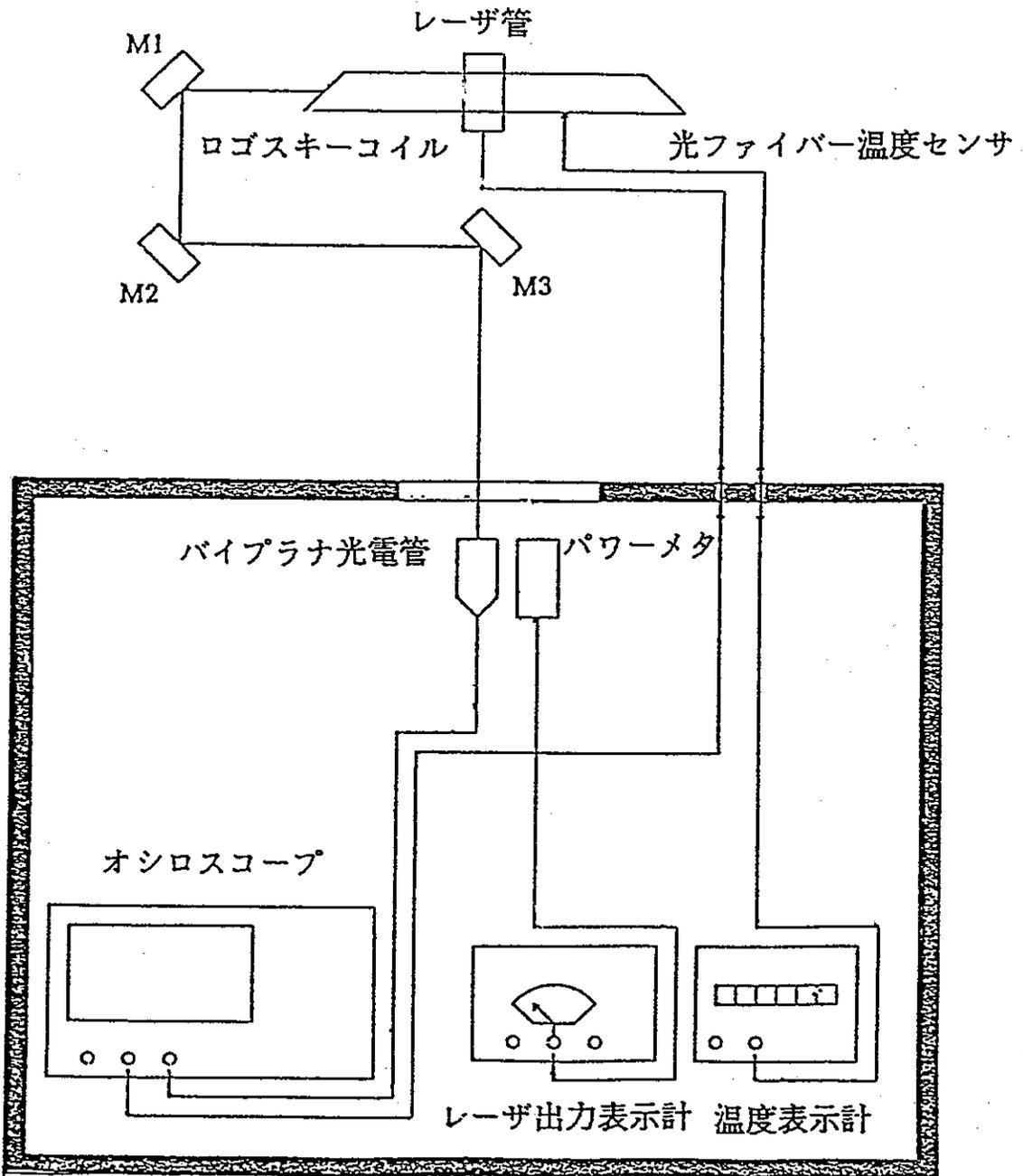


図3-2 測定系概略図

4. 結果

4. 1 塩化第一銅を用いた場合のレーザ出力特性

図4-1に、エンハンシング剤としての塩化銀を加えない場合と塩化第一銅に対して2%の塩化銀を加えた場合のレーザ出力の充電電圧依存性を示した。レーザ出力は、充電電圧の増加に対して単調に増加した。充電電圧11kVの時のレーザ出力を比較すると、塩化銀を2%加えた場合の方が加えない場合よりも80%程度増加した。このことから銀による銅原子へのエンハンシング効果が確かめられた。

図4-2に、レーザ出力の管壁温度依存性を示した。レーザ発振は、管壁温度340℃付近から発振を開始し400℃付近でレーザ出力がピークに達し、それ以降においては減少傾向を示した。また、管壁温度400℃以降においてレーザ出力が、ばらつきを示した。この原因としては、管壁温度の上昇により塩化第一銅の蒸気が出過ぎたために放電を不安定にしたものと考えられる。

図4-3に、レーザ出力の繰返し周波数依存性を示した。レーザ出力は、繰返し周波数の増加に伴い放物線を描いて増加した。この原因については、図4-4に示した様に、繰返し周波数の増加に伴い放電抵抗が低下して、1パルス当たりの放電電流が増加したものによると考えられる。また、それに加え塩化第一銅の解離が促進されたものと考えられる。

図4-5に、レーザ出力のバッファガス圧力依存性を示した。レーザ出力は、バッファガス圧力の増加に伴い単調に増加した。しかし、図4-6の放電電流のバッファガス圧力依存性からバッファガス圧力に伴い放電抵抗が増加し、放電電流の低下を示した。よって、図4-5のレーザ出力の増加は、バッファガス圧力の増加により電子エネルギーが低下して、電子と銅原子との衝突断面積が増加したものと考えられる。図4-7に、バッファガス圧力を2、3、4 Torrと変化させた場合のレーザ出力の充電電圧依存性を示した。

図4-8に、印加電圧、放電電流、光パルスの時間遅れを示した。光パルスは、放電電流の立上り後12nsで立上りを示した。図4-9に、光パルスの管壁温度による変化について示した。光パルスのピーク値は、管壁温度にあまり影響を受けなかった。しかし、光パルス幅は、管壁温度に大きく依存した。この原因としては、管壁温度の上昇により銅原子密度が増加してRadiation Trappingが促進されることにより、レーザ上準位の寿命が伸びて光パルス幅が広がったものと考えられる。

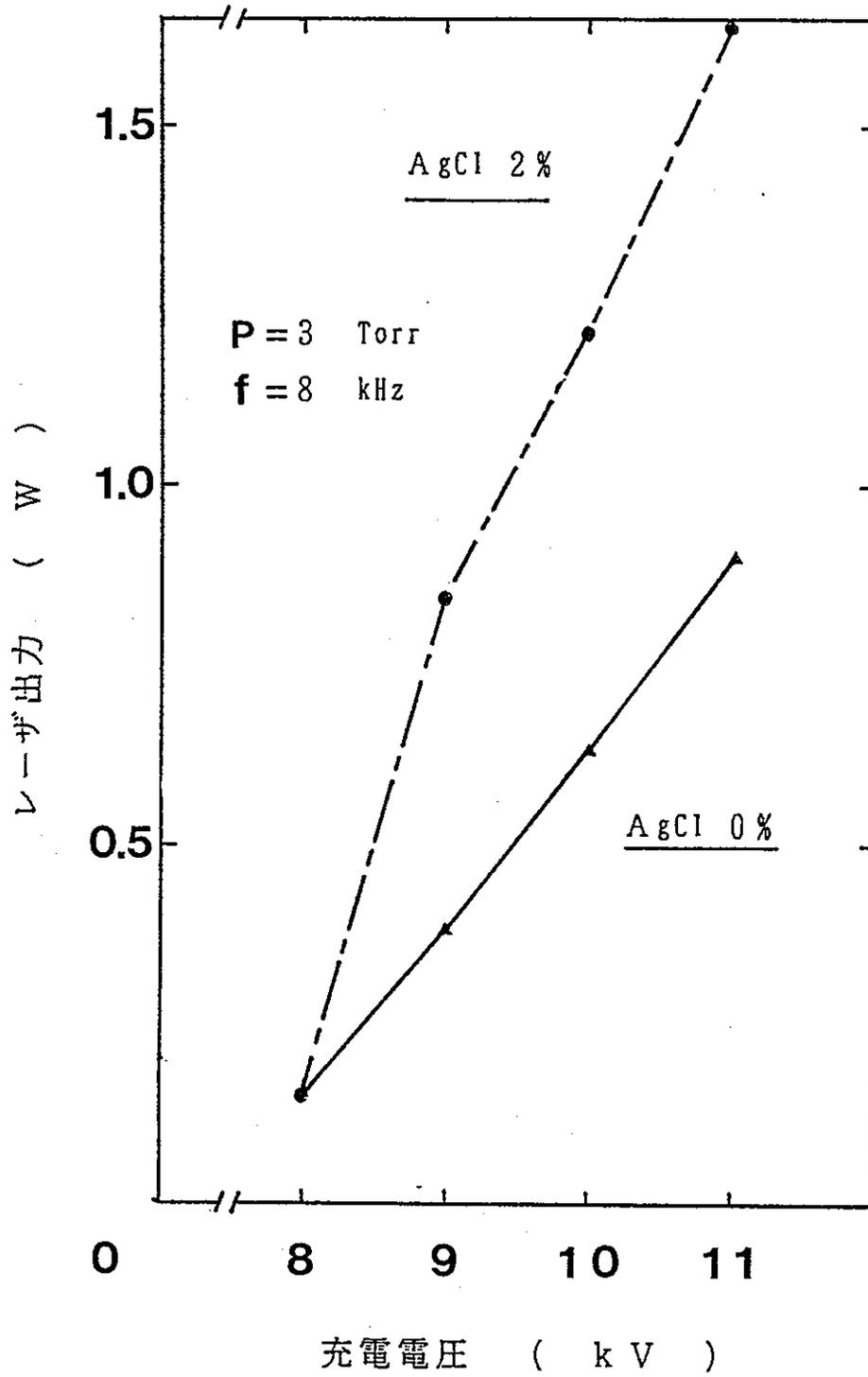


図 4-1 レーザ出力の充電電圧依存性

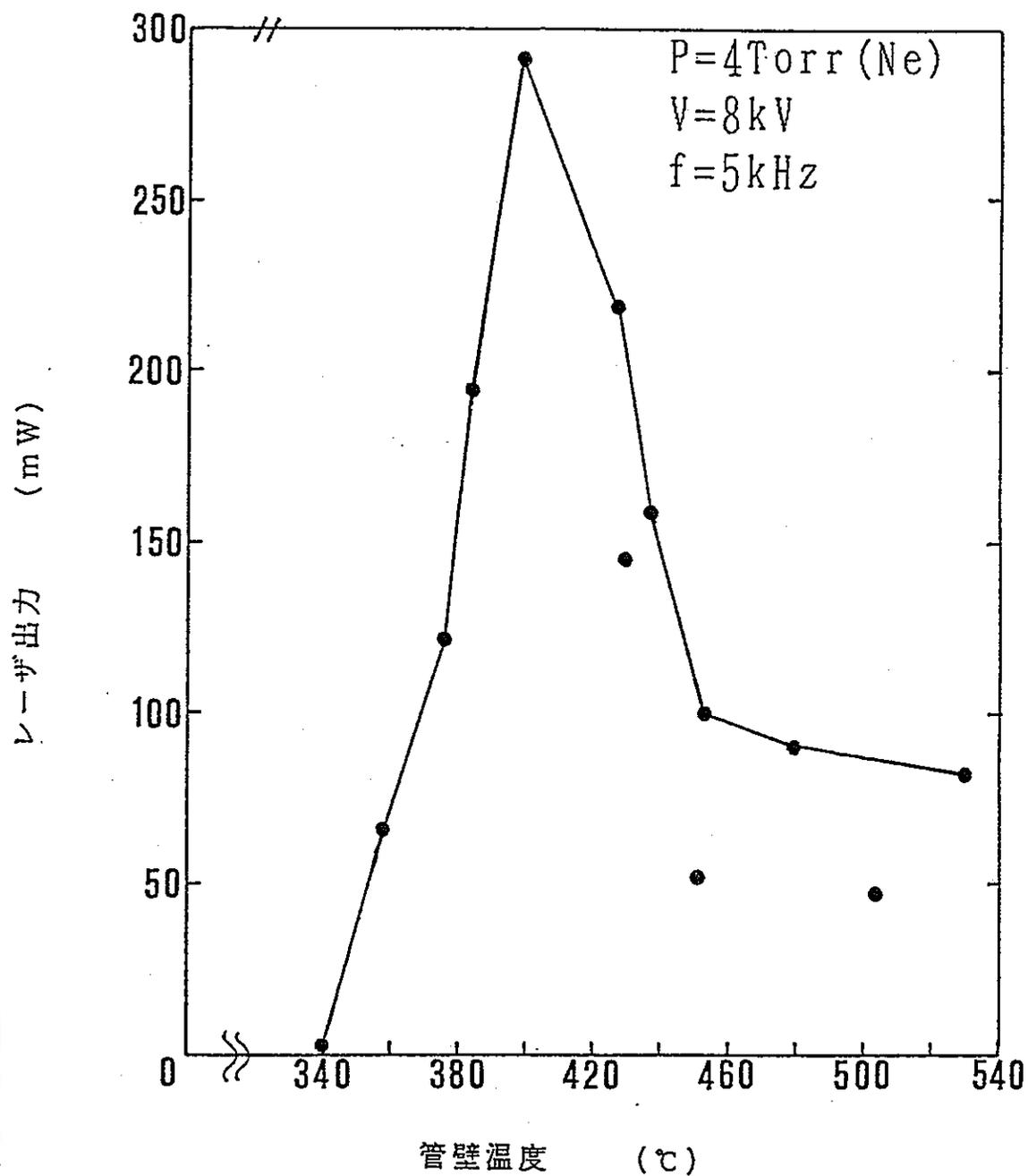


図4-2 レーザ出力の管壁温度依存性

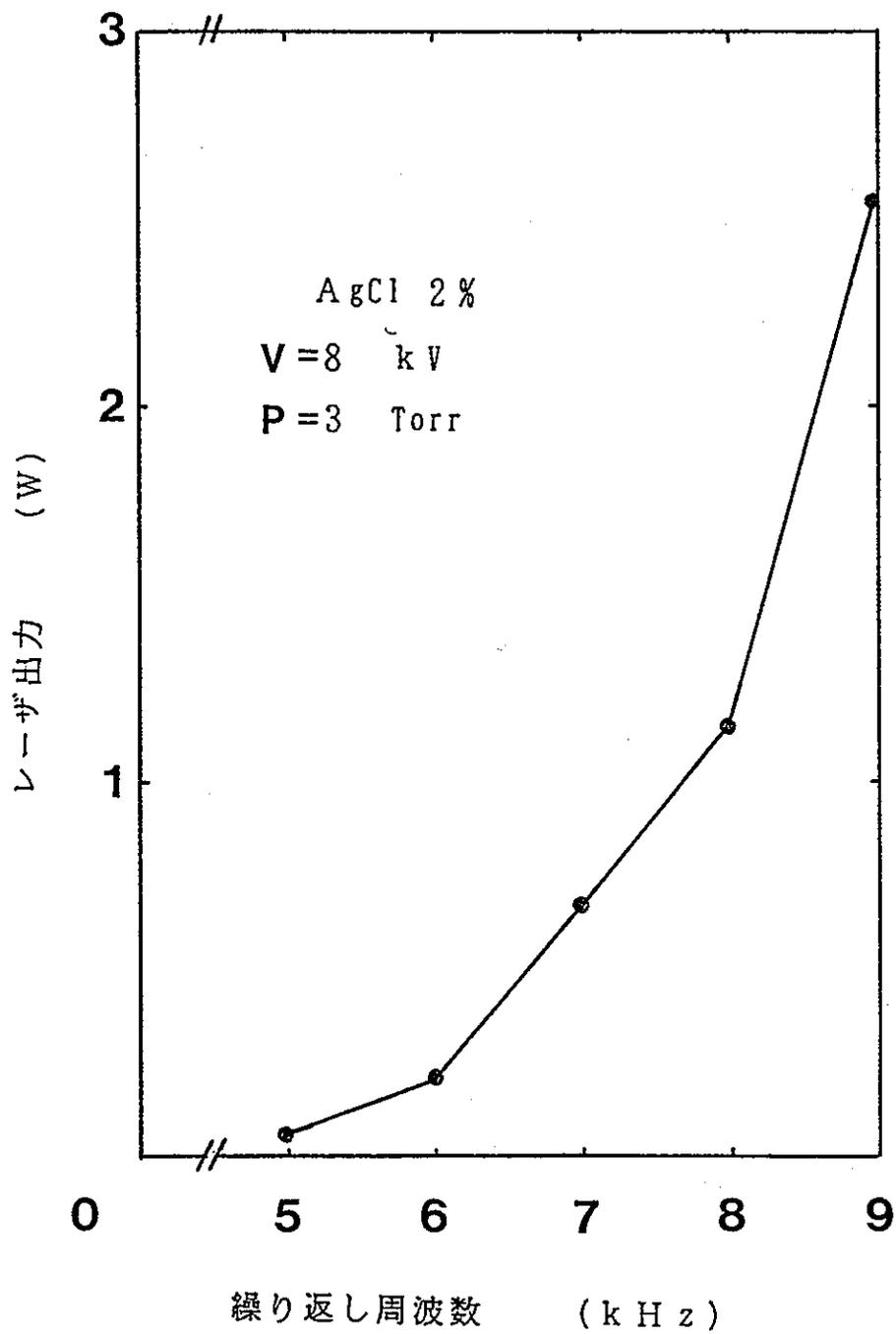


図 4 - 3 レーザ出力の繰り返し周波数依存性

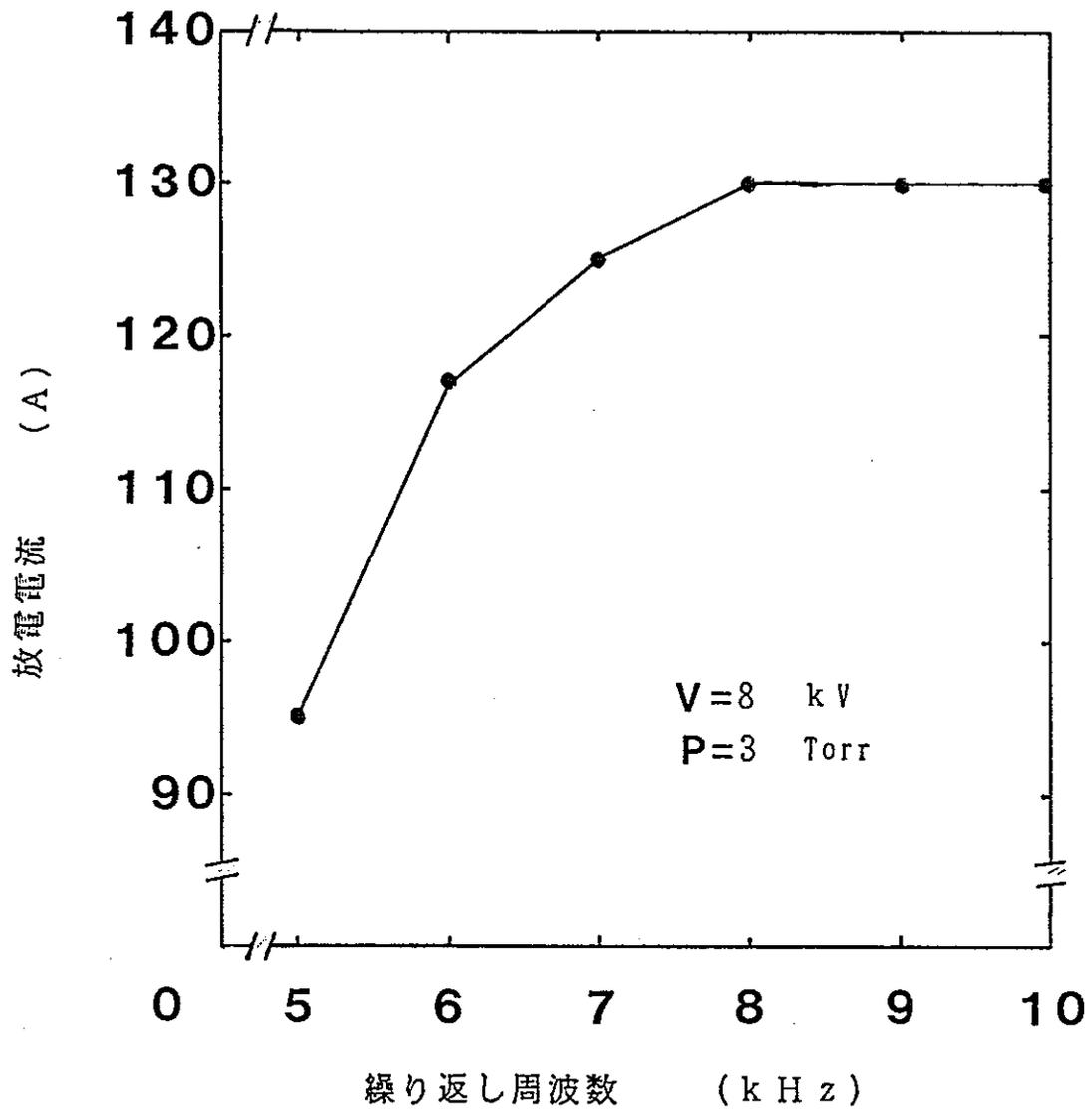


図4-4 放電電流の繰返し周波数依存性

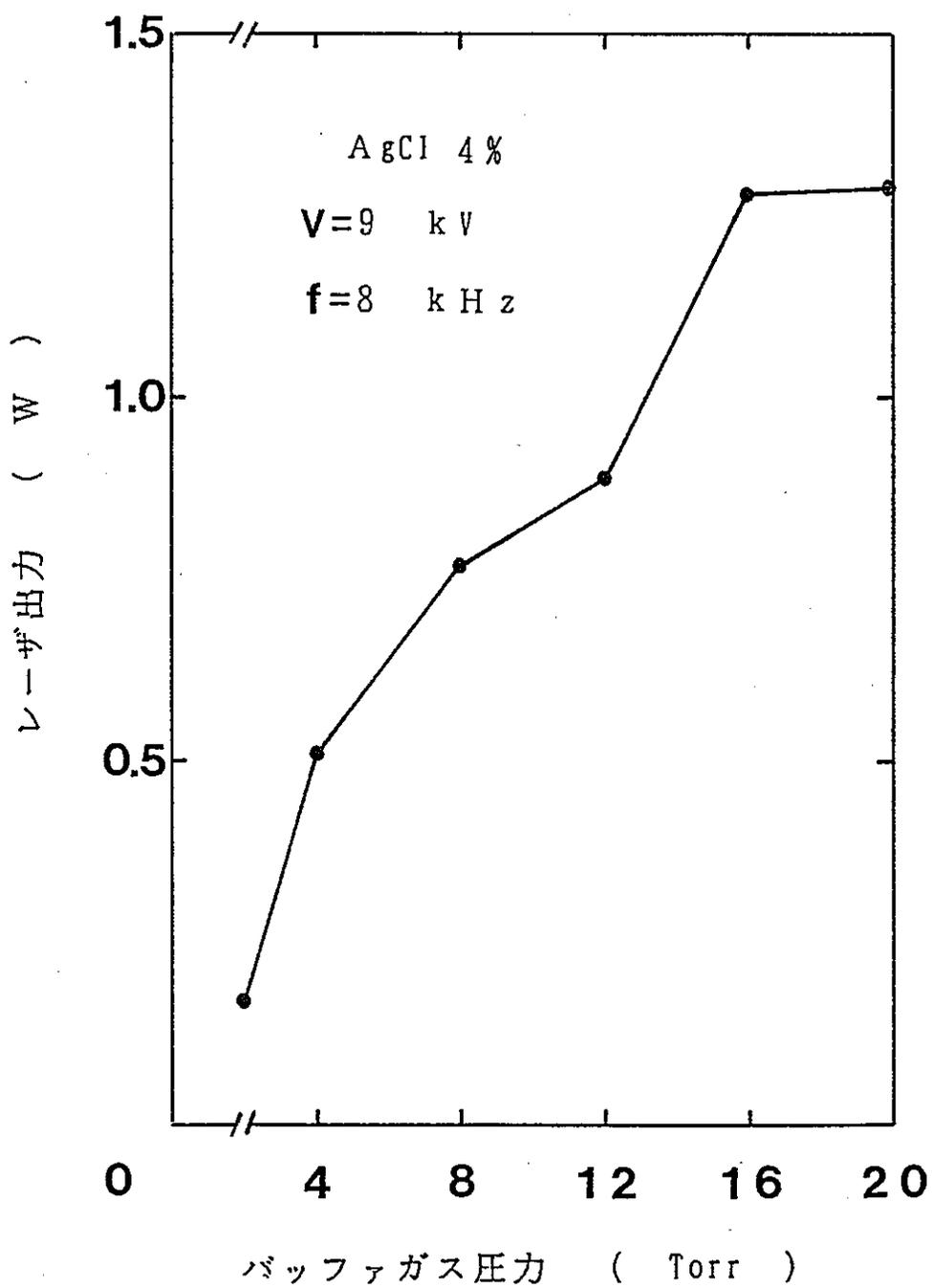


図4-5 レーザ出力のバッファガス圧力依存性

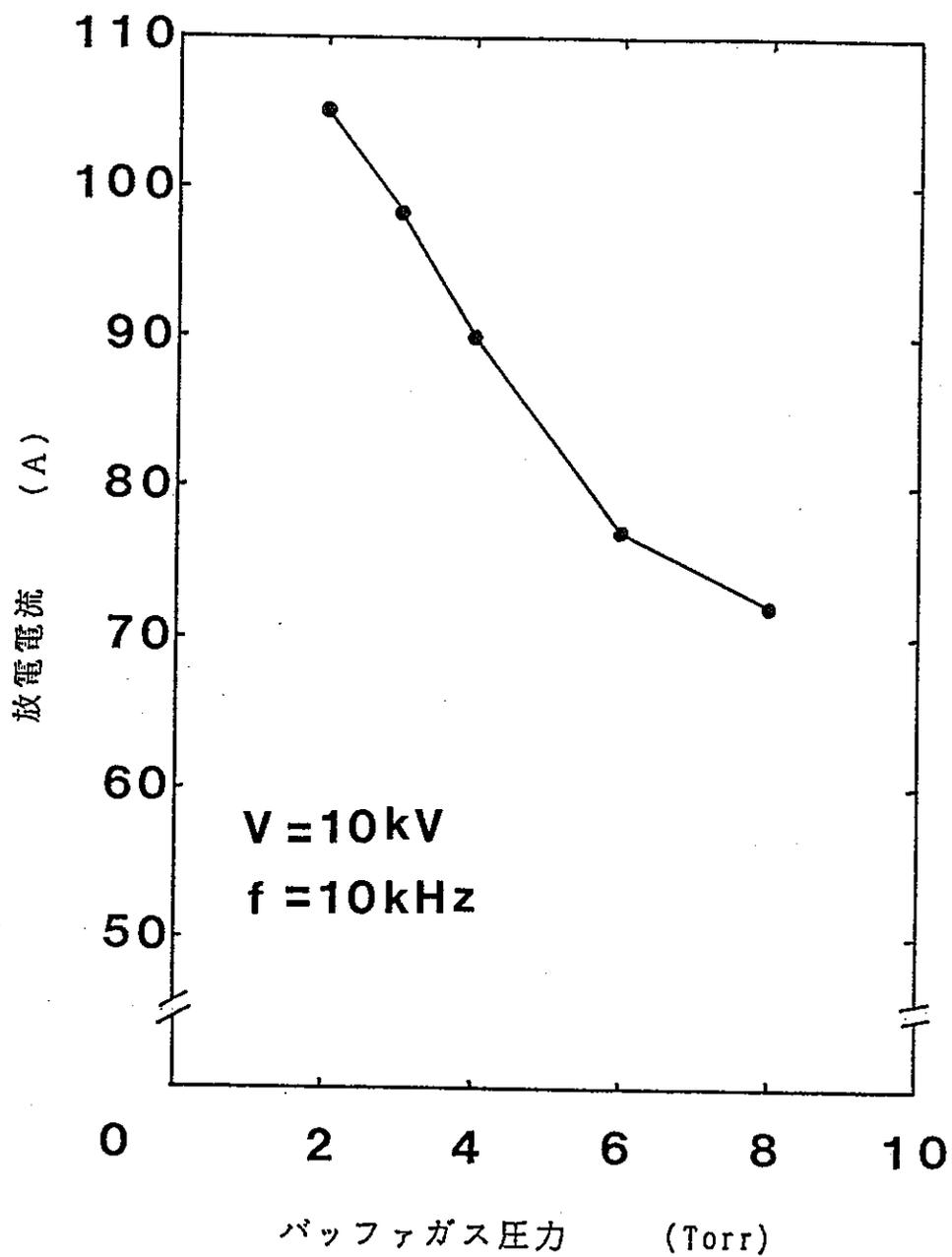


図4-6 放電電流のバッファガス圧力依存性

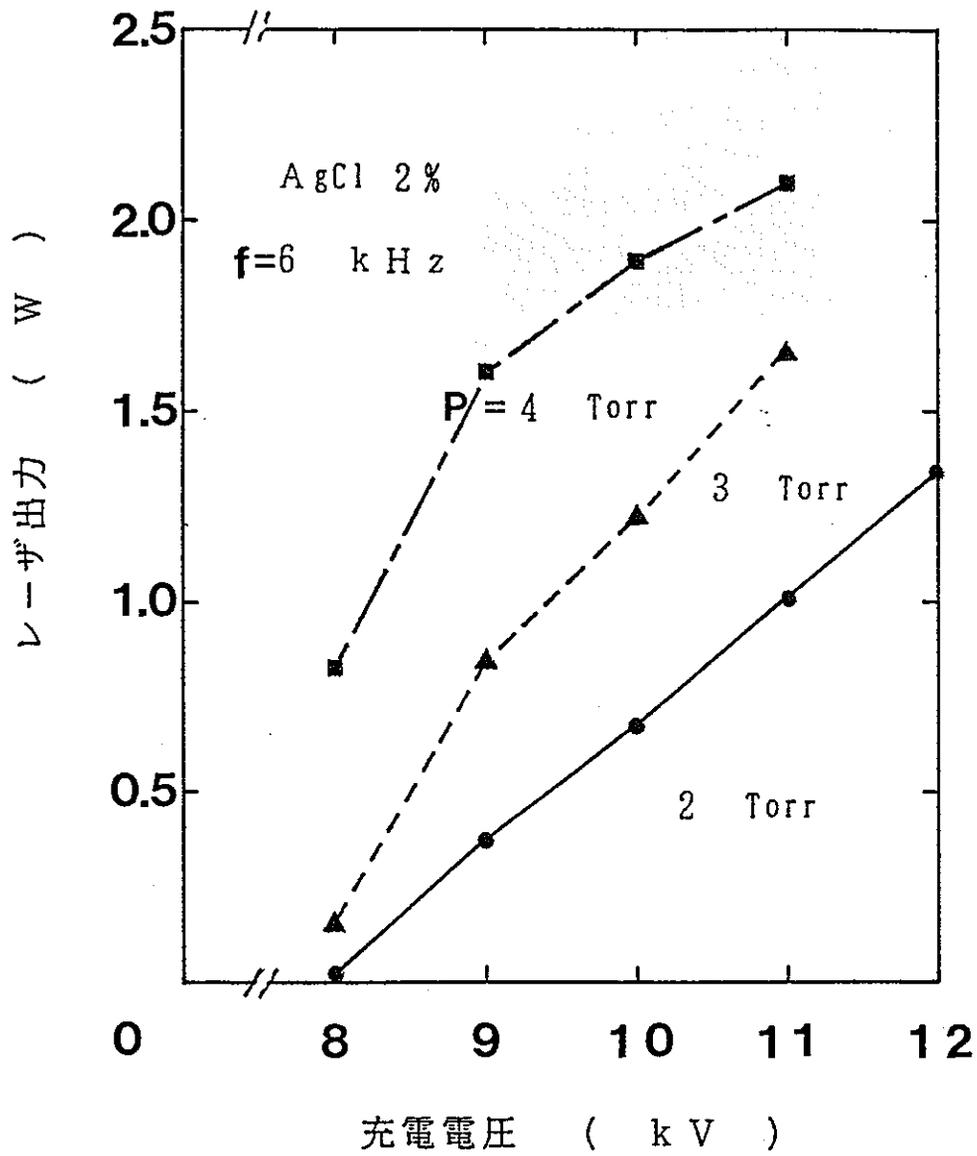


図4-7 レーザ出力の充電電圧依存性

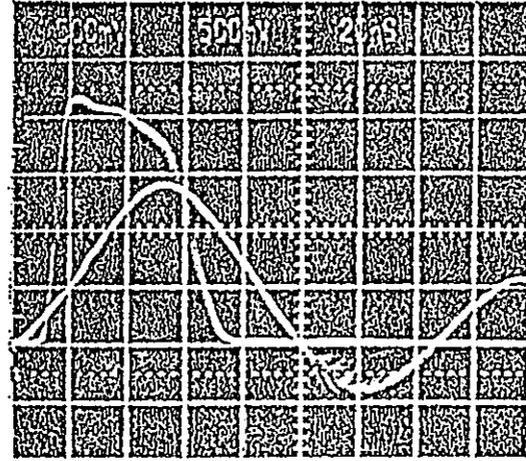
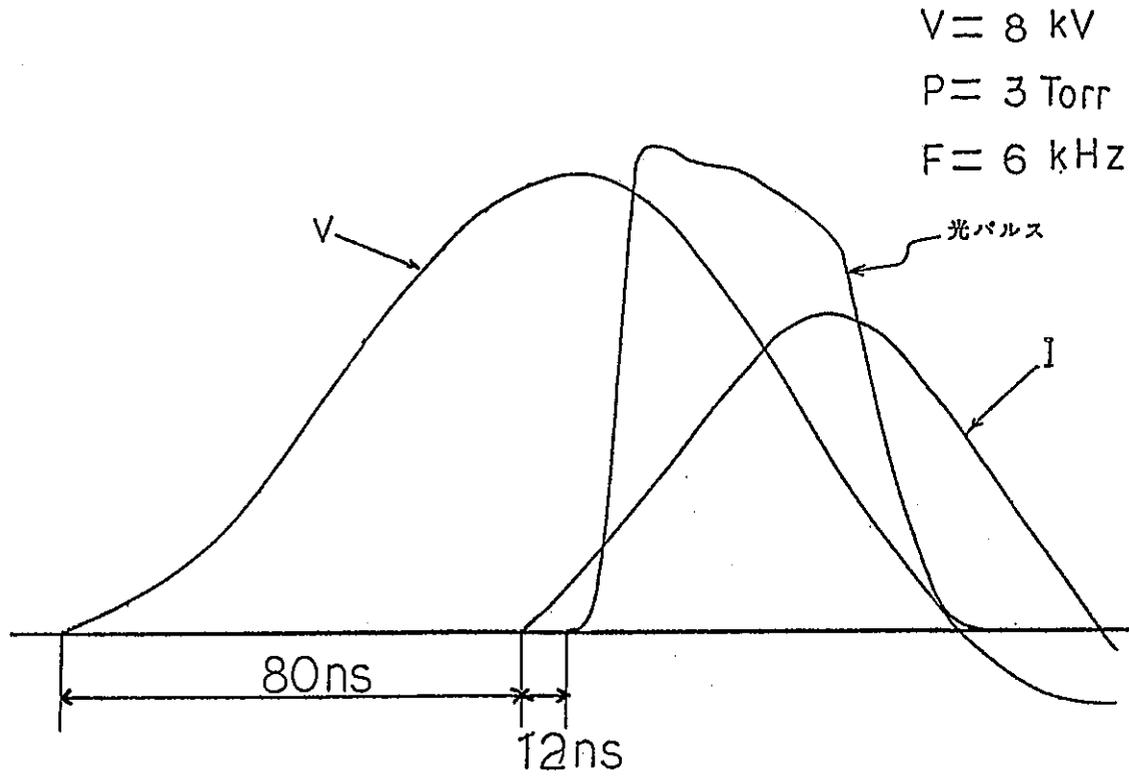


図 4-8 電圧，電流と光パルスの時間遅れ

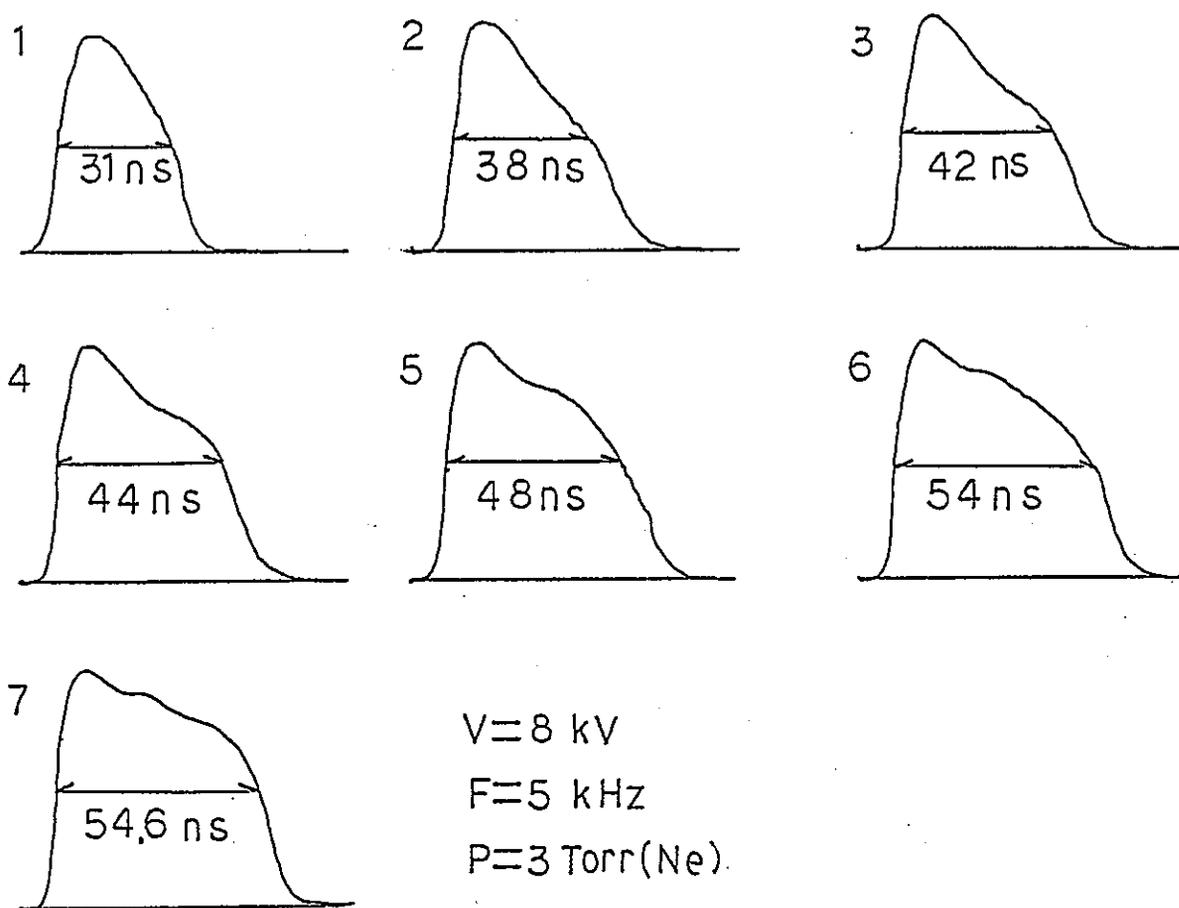


図4-9 光パルスの温度による変化

4. 2 臭化第一銅を用いた場合のレーザー出力特性

臭化第一銅は、塩化第一銅の融点430℃に比べ504℃と高いが結合エネルギーが低い利点を持つ。以下にレーザー出力特性を示した。

図4-10に、レーザー出力の充電電圧依存性を示した。レーザー出力は、充電電圧の増加に伴い単調に増加した。この結果は、図4-1に示した塩化第一銅の塩化銀の入っていない場合と比較して大きなレーザー出力となった。このことから銅分子の結合エネルギーの低い分子を使用したほうが、放電による電子との衝突により銅分子が容易に解離され必要な原子密度が十分に供給されたものと考えられる。

図4-12に、臭化銀を10%、0%と添加した場合のレーザー出力の充電電圧依存性について示した。レーザー出力は、充電電圧の増加に伴い単調に増加し、また臭化銀10%添加した場合の方が添加しない場合よりも30%程度増加した。

この時の最大レーザー出力は、7 Wを得た。充電電圧が9 kVのとき、レーザー出力は、臭化銀を添加した場合と添加しない場合とで出力の反転が生じた。この反転の理由としては、次の事が考えられる。充電電圧9 kVと入力エネルギーの低い状態で発振している事から十分に放電管が加熱せられず、銀の原子数密度が十分に得られないために銀原子において Radiation Trapping が成立せず銀原子から銅原子へのエネルギー移譲は行われず、逆に銅原子から銀原子へのエネルギー移譲が行われレーザー出力が低下したものと考えられる。以下にこの時のダイアグラムを示した。

- 1) 入力エネルギー低
- 2) 管壁温度低
- 3) 銀原子数密度低
- 4) 銀原子のRadiation Trappingが生じない
- 5) 銅原子から銀原子へのエネルギー移譲が起こる
- 6) レーザー出力が低下する

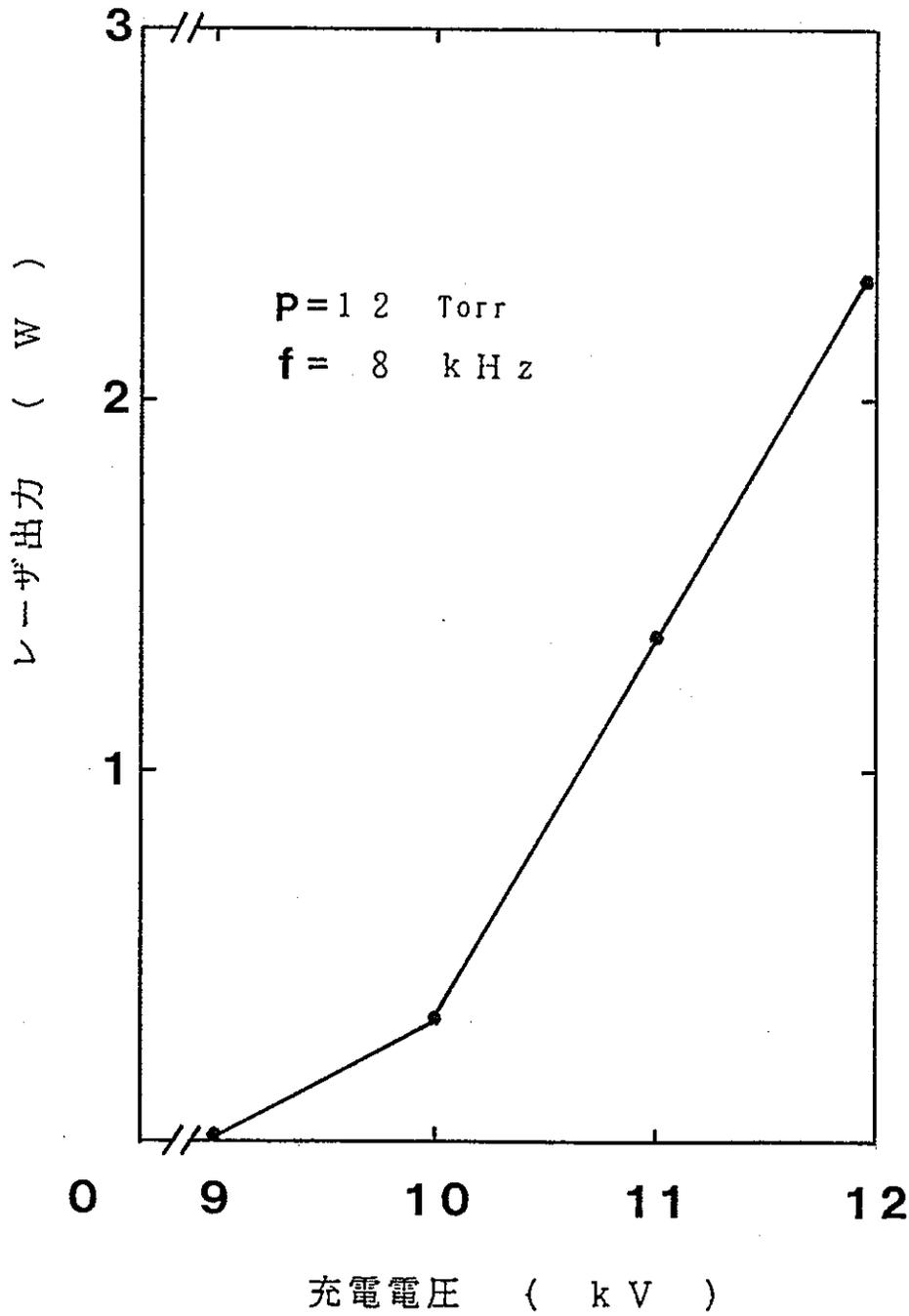


図4-10 レーザ出力の充電電圧依存性

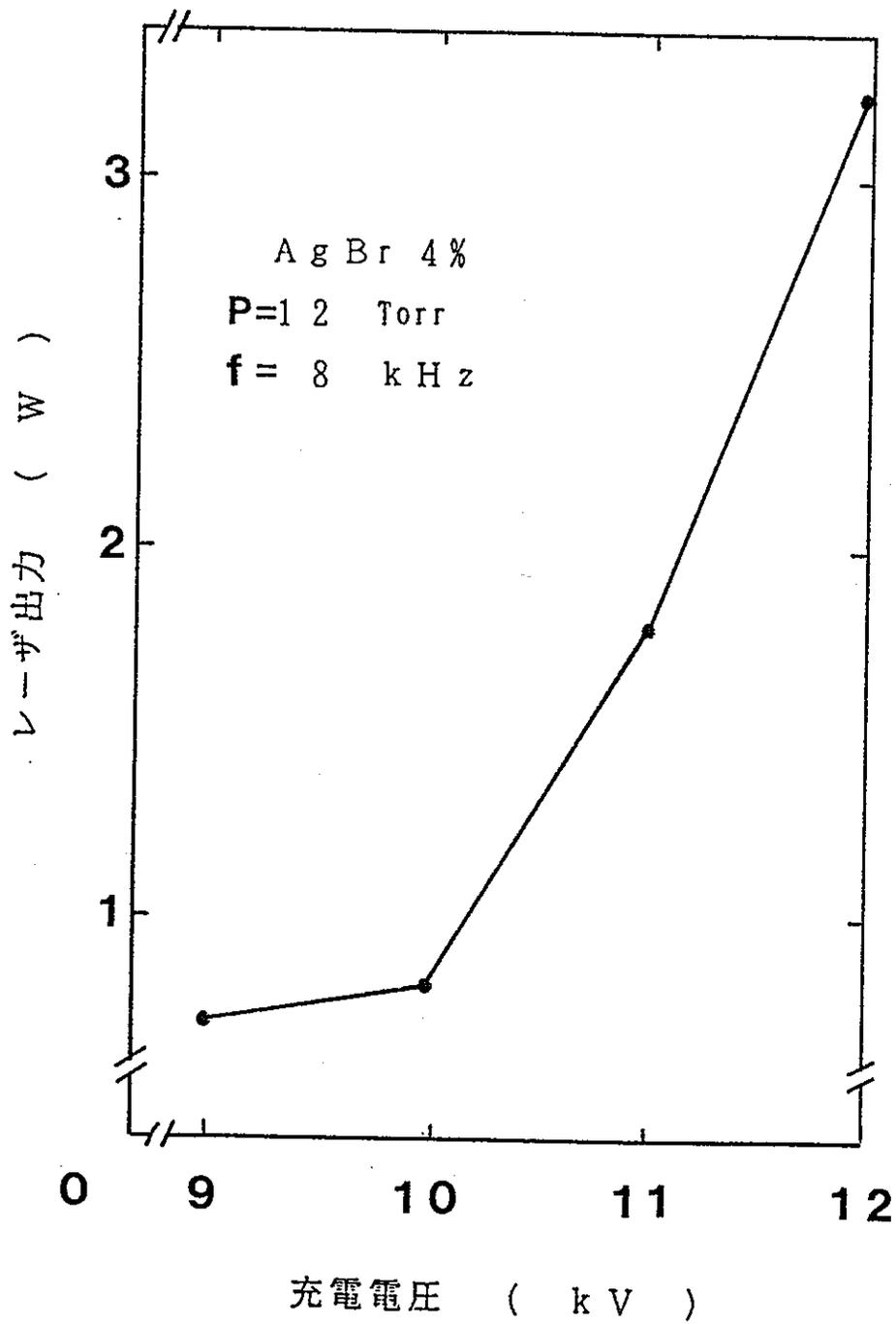


図4-11 レーザ出力の充電電圧依存性

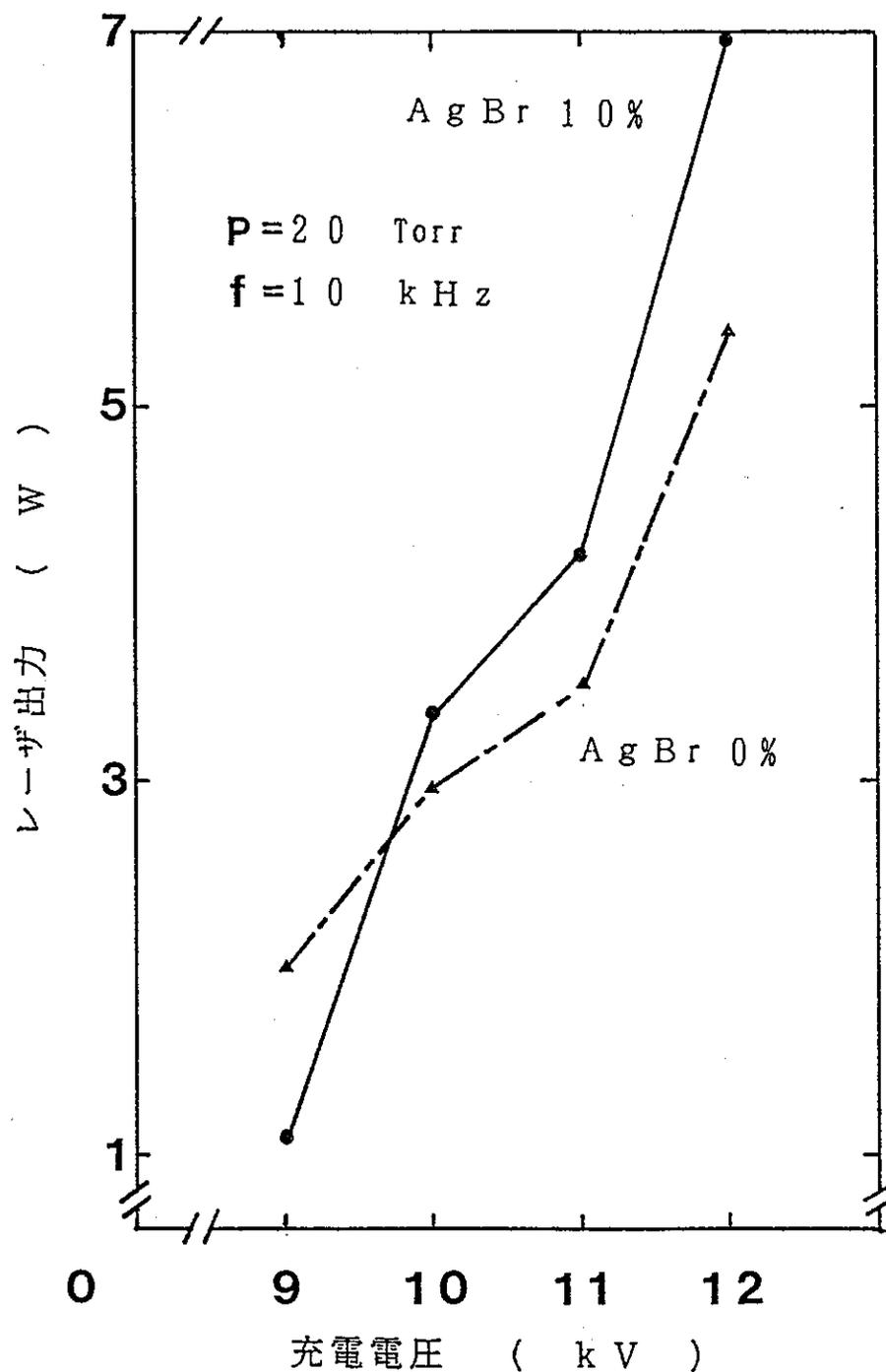


図4-12 レーザ出力の充電電圧依存性

図4-13に、レーザー出力の臭化銀の添加量依存性を示した。この結果より臭化銀の添加量は、10%程度が良いと思われる。

図4-14に、レーザー出力の繰返し周波数依存性を、図4-15に、レーザー出力のバッファガス圧力依存性を示した。レーザー出力は、繰返し周波数の増加に対してもバッファガス圧力の増加に対しても単調に増加した。よって大出力レーザーを実現するためには、繰返し周波数を増加させて銅分子の解離を促進させる事、及び電子エネルギーをコントロールする事により可能であると考えられる。

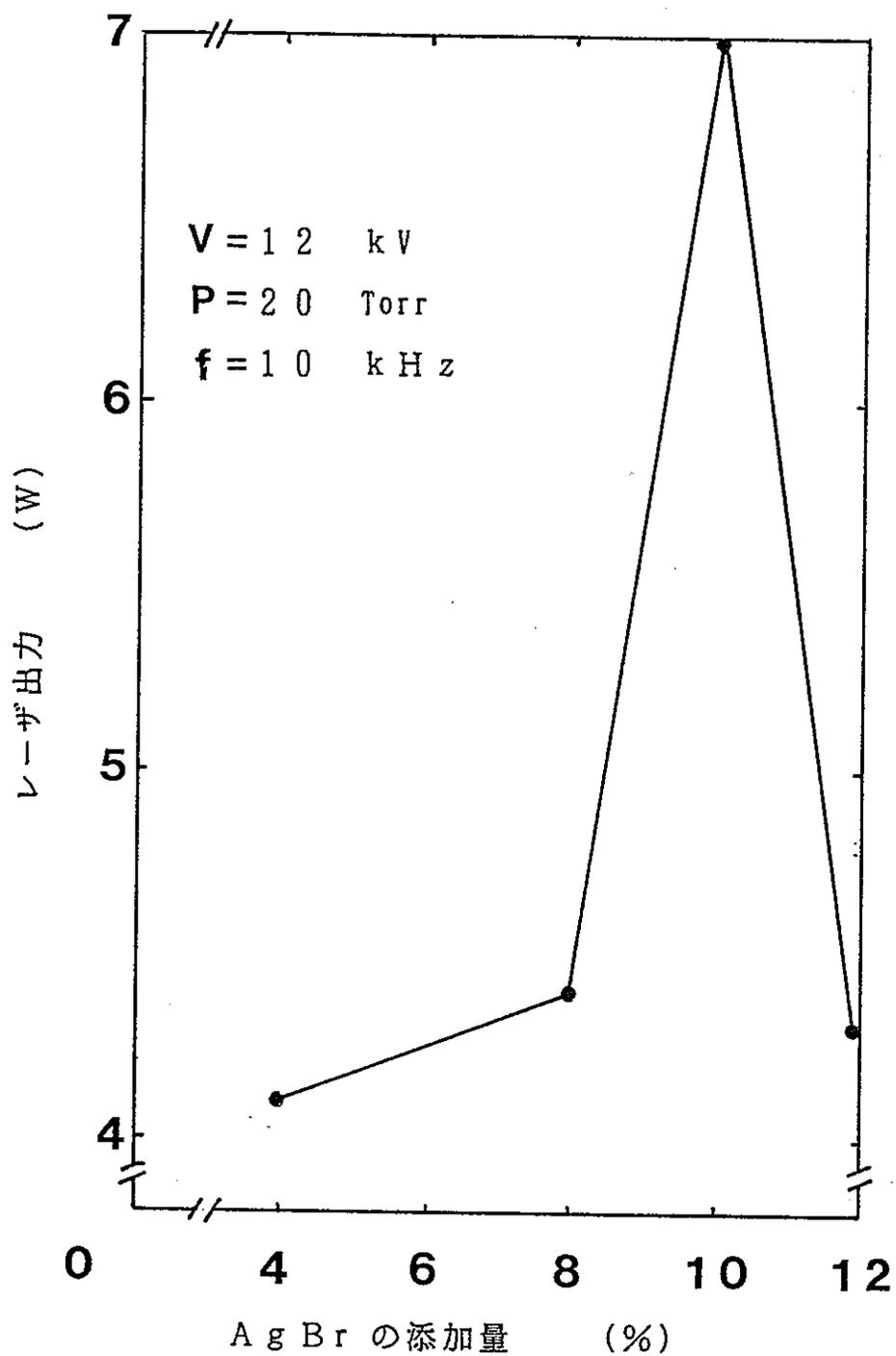


図 4-13 レーザ出力の AgBr の添加量依存性

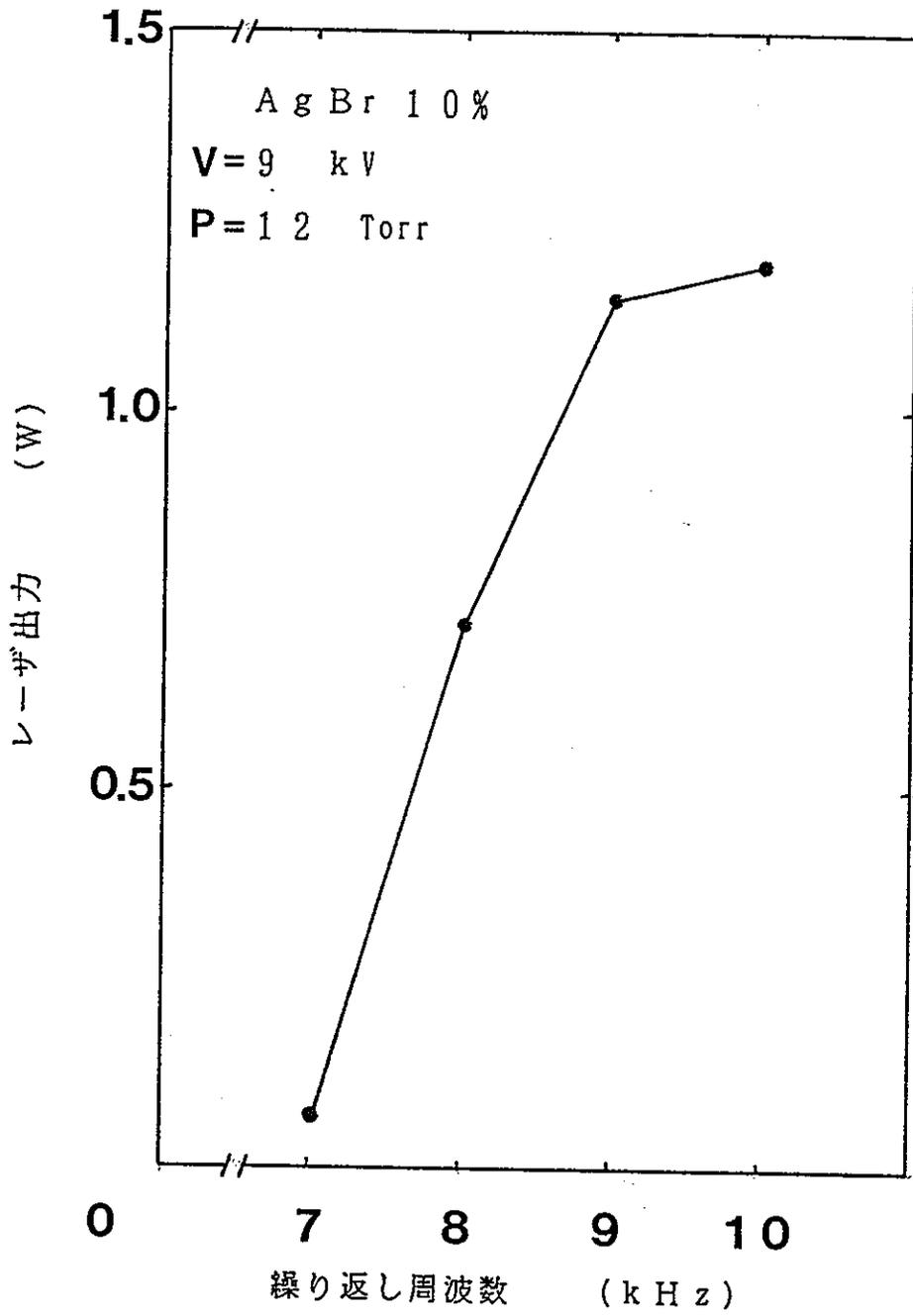


図4-14 レーザ出力の繰り返し周波数依存性

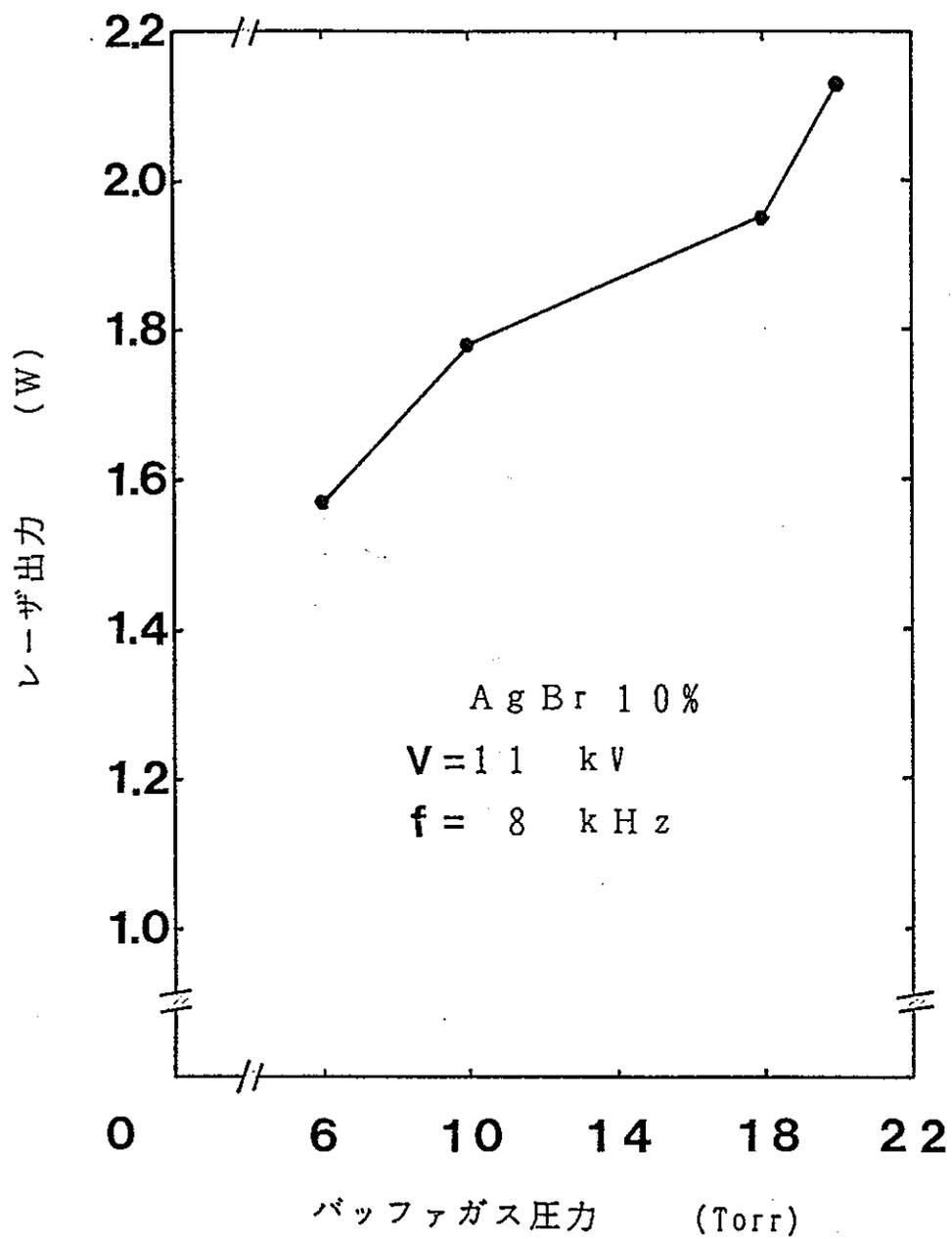


図4-15 レーザ出力のバッファガス圧力依存性

4. 3 高周波パルス放電を用いた場合のレーザ出力特性

図4-14、図4-15から大出力レーザの実現のためには、放電の繰返し周波数を増加させ銅分子の解離を促進する、また電子エネルギーをコントロールすることにより電子と銅原子との衝突断面積を大きくすることにより可能となる知見を得た。そこで、パルス電源を繰返し周波数50kHz用に改造し、放電回路は、1次側コンデンサ $C_1 = 1.12\text{nF}$ 2次側コンデンサ $C_2 = 0.7\text{nF}$ とした。ガス系は、バッファガス圧力を真空領域から760Torrまで自由にコントロールできるように改造した。

図4-16に、レーザ出力の充電電圧依存性を示した。レーザ出力は、充電電圧の増加に伴い単調に増加した。この時の最大レーザ出力は、13.6Wを得た。

図4-17に、レーザ出力のバッファガス圧力依存性を示した。この結果より放電管長さ450mm、充電電圧1.2kV、繰返し周波数35kHzの時バッファガス圧力40Torrの下でレーザ出力が最大になったことから電子と銅原子との衝突断面積が最大になったものと考えられる。

図4-18に、レーザ出力の繰返し周波数依存性を示した。レーザ出力は、繰返し周波数の増加に伴い単調に増加した。これによりハライド系銅蒸気レーザを用いて、金属銅蒸気レーザの繰返し周波数5kHzに対して8倍の高繰返し発振を得ることが出来た。

ハライド系銅蒸気レーザの高繰返し発振が得られた理由については、以下のことが考えられる。レーザ下準位の 2D は、準安定準位であり270 μs の長い寿命を持つ。よって金属銅蒸気レーザの繰返し周波数が5kHz以上になると前回の発振で生じた準安定準位原子が存在した状態で次の励起を行うので1パルス当たりのレーザ出力は、低下することになる。しかし、ハライド系銅蒸気レーザでは、前回の発振で生じた準安定準位原子がハライドと短い時間で再結合を行い準安定準位の脱励起が促進されるので高繰返し発振が可能になったものとする。この過程を図で表わすと以下の様になる。

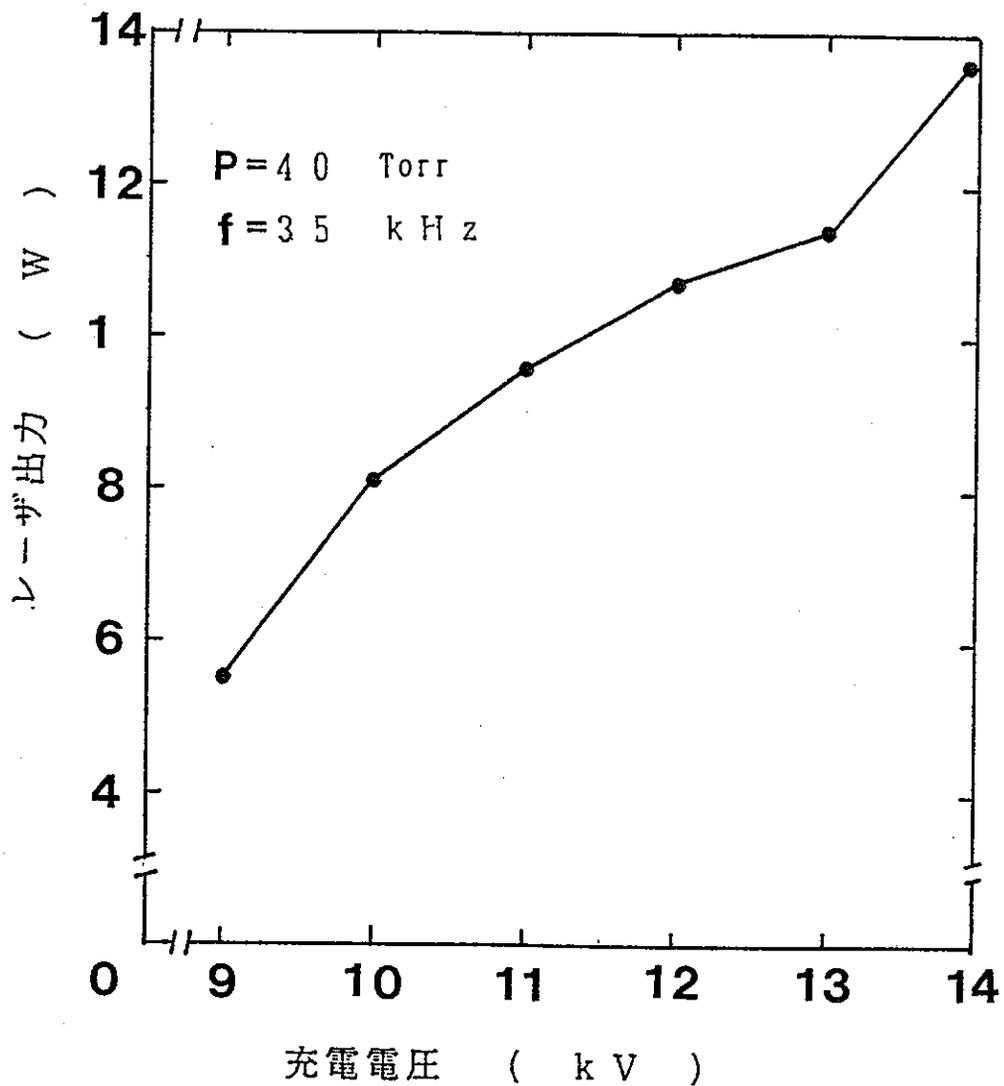


図4-16 レーザ出力の充電電圧依存性

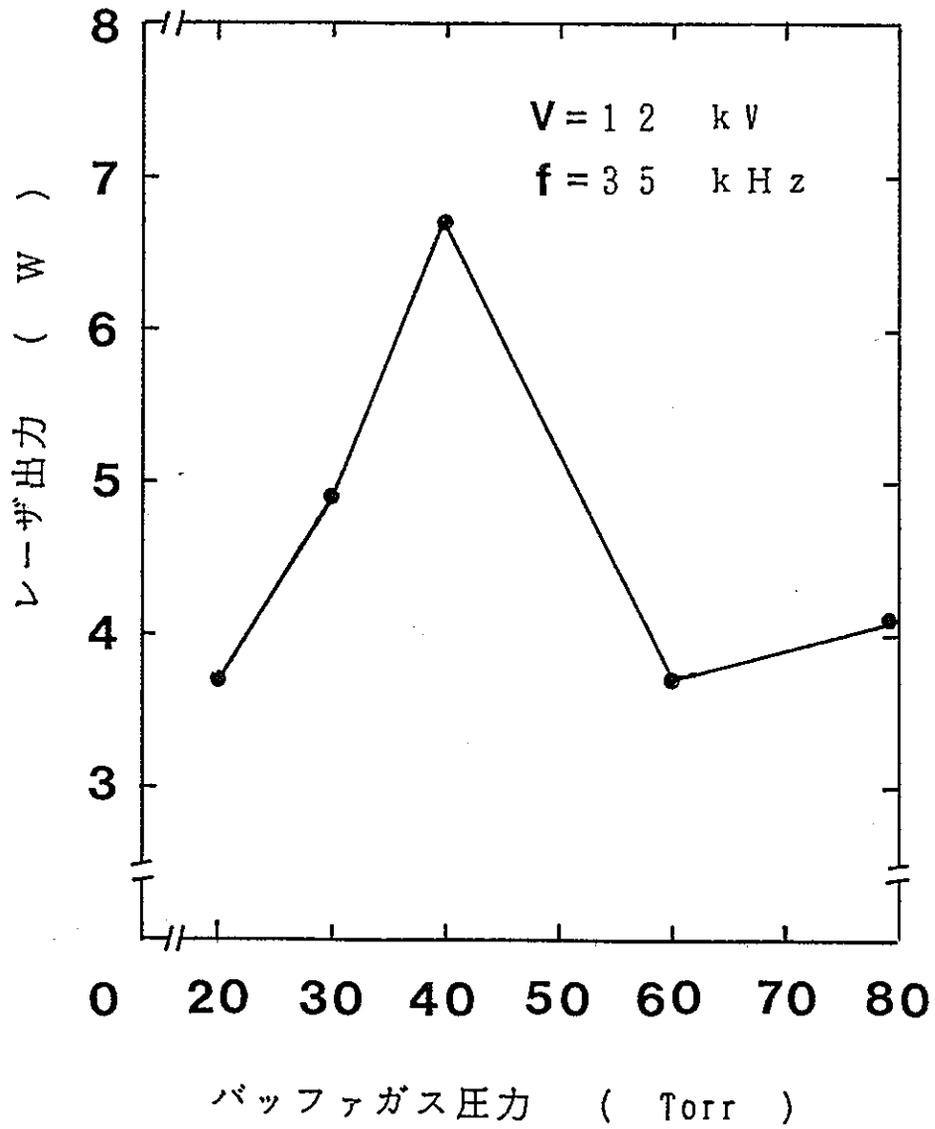


図 4-17 レーザ出力のバッファガス圧力依存性

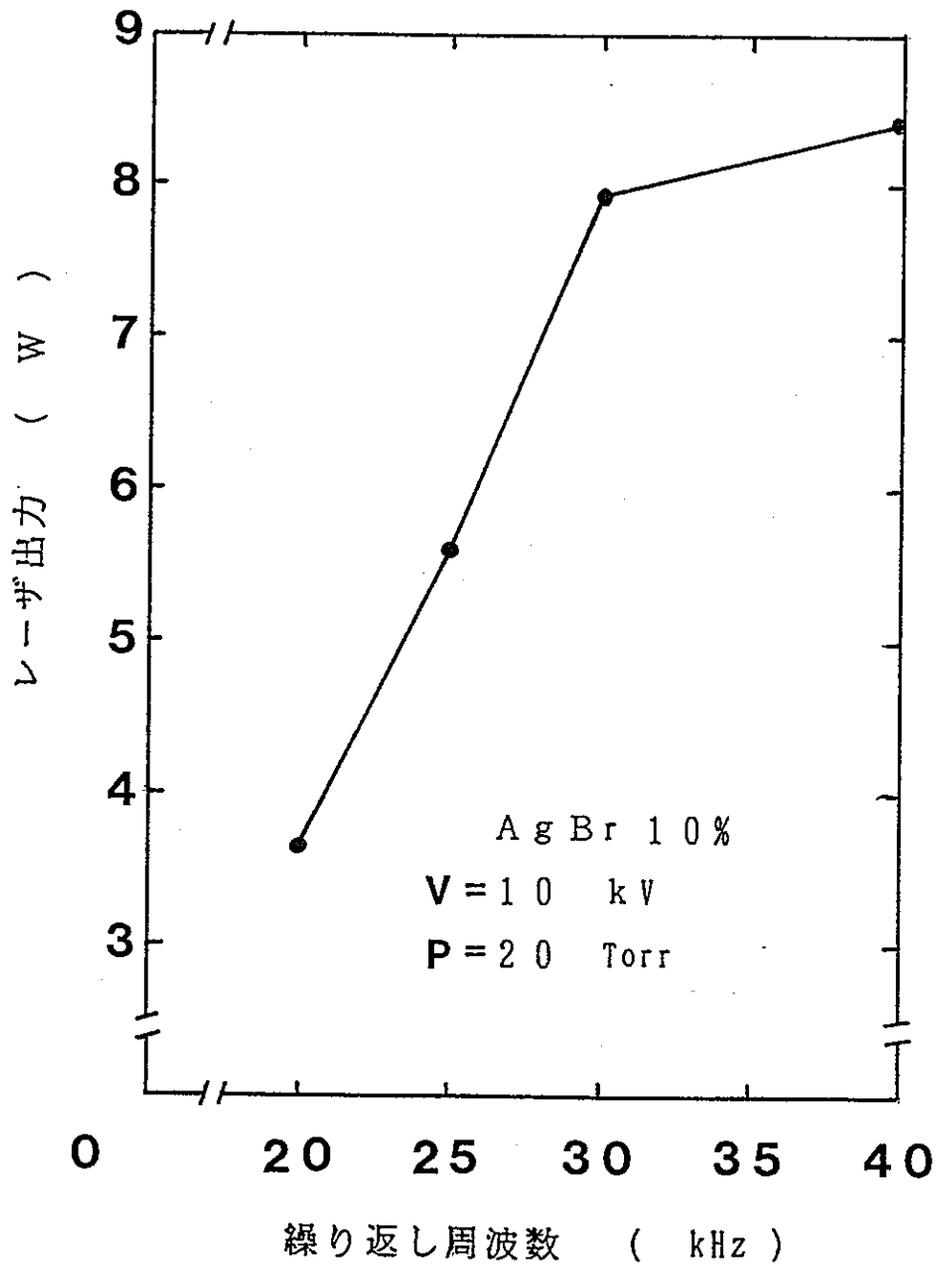


図 4-18 レーザ出力の繰返し周波数依存性

- 1) $e + \text{CuBr} \rightarrow \text{Cu} + \text{Br} + e$ CuBrの解離過程
- 2) $e + \text{Cu} \rightarrow \text{Cu}^* + e$ Cuの励起過程
- 3) $\text{Cu}^* \rightarrow \text{Cu}^m + h\nu$ Cu*の光放出過程
- 4) $\text{Cu}^m + \text{Br} \rightarrow \text{CuBr}^*$ Cu^mのBrとの再結合による脱励起過程

Cu* : 銅原子の励起状態

Cu^m : 銅原子の準安定準位状態

4. 3. 1 レーザビームの強度分布

図4-19に、ビーム強度分布測定の大略図を示した。出力ミラーから1m間隔に2枚の絞り (*1mm) を配しレーザビームの中心から円周方向へ絞りを移動させた時のビーム強度を4枚のミラーを介してパイプラインによって測定した。

図4-20に、中心を1として規格化したビーム強度の径方向依存性を示した。繰返し周波数を20、30、40kHzと変化させた時のビーム強度分布を示した。繰返し周波数20kHz時のビーム強度分布は、金属銅蒸気レーザの場合と同じ様に円周部の強度が強く中心部の強度が弱い分布となった。繰返し周波数を30、40kHzと増加させた場合ビーム強度分布は、20kHzの場合とは反対に中心部の強度が強く円周部の強度が弱いガウシアン分布となり、レーザビーム直径も小さくなった。この理由としたは、ボーンエフェクトが考えられる。Maxwell-Ampereの法則から導かれる放電管内部の実行的電界E³⁾は、

$$E = E_1 \left(1 + i \omega \sigma^* \mu r^2 / 4 \right) \quad \text{-----} \quad (4.1)$$

$$\sigma^* = \sigma + i \omega \epsilon \quad \text{-----} \quad (4.2)$$

E₁ (V/m) : 印加電界 μ (H/m) : 透磁率 ε (F/m) : 誘電率
 σ (S/m) : 導電率 ω (Hz) : 角周波数 r (m) : 中心からの距離

で表される。今回のハライド系銅蒸気レーザの高繰返し周波数放電の場合導電

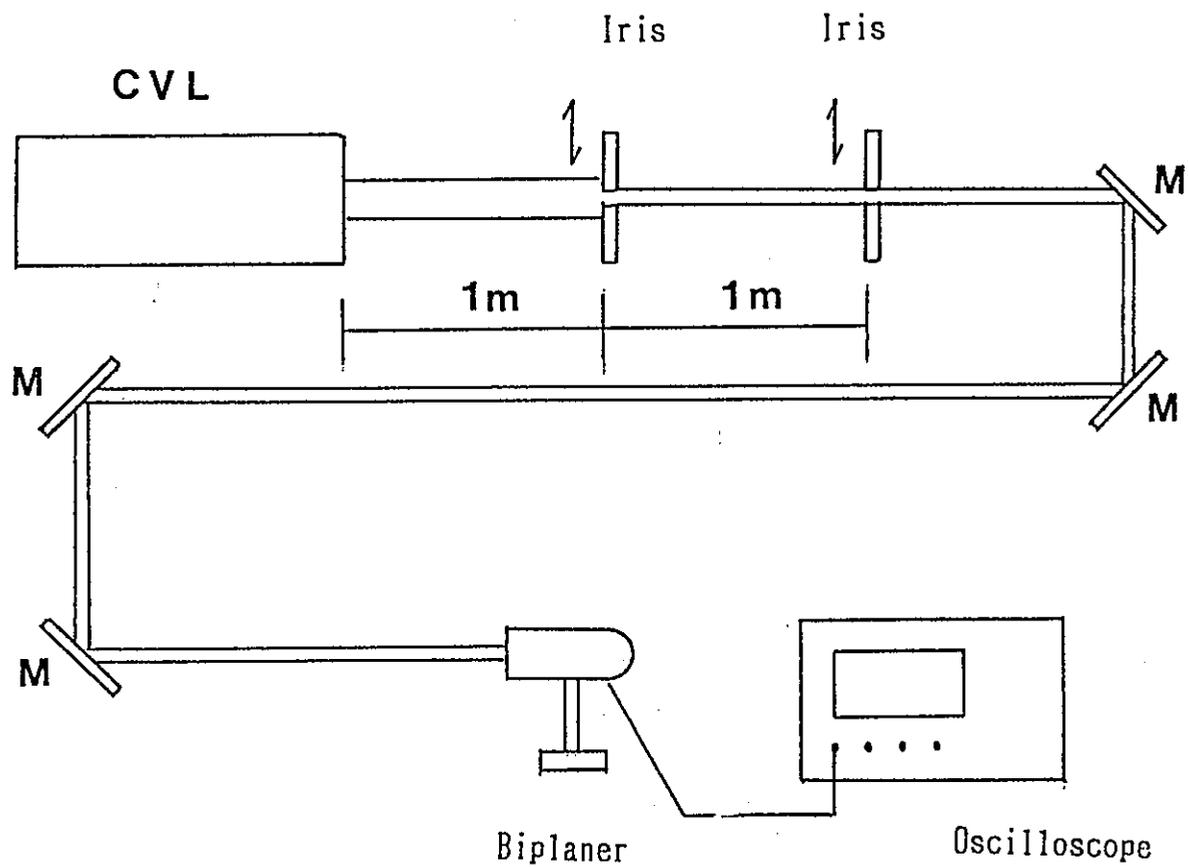


図 4-19 ビーム強度分布測定概略図

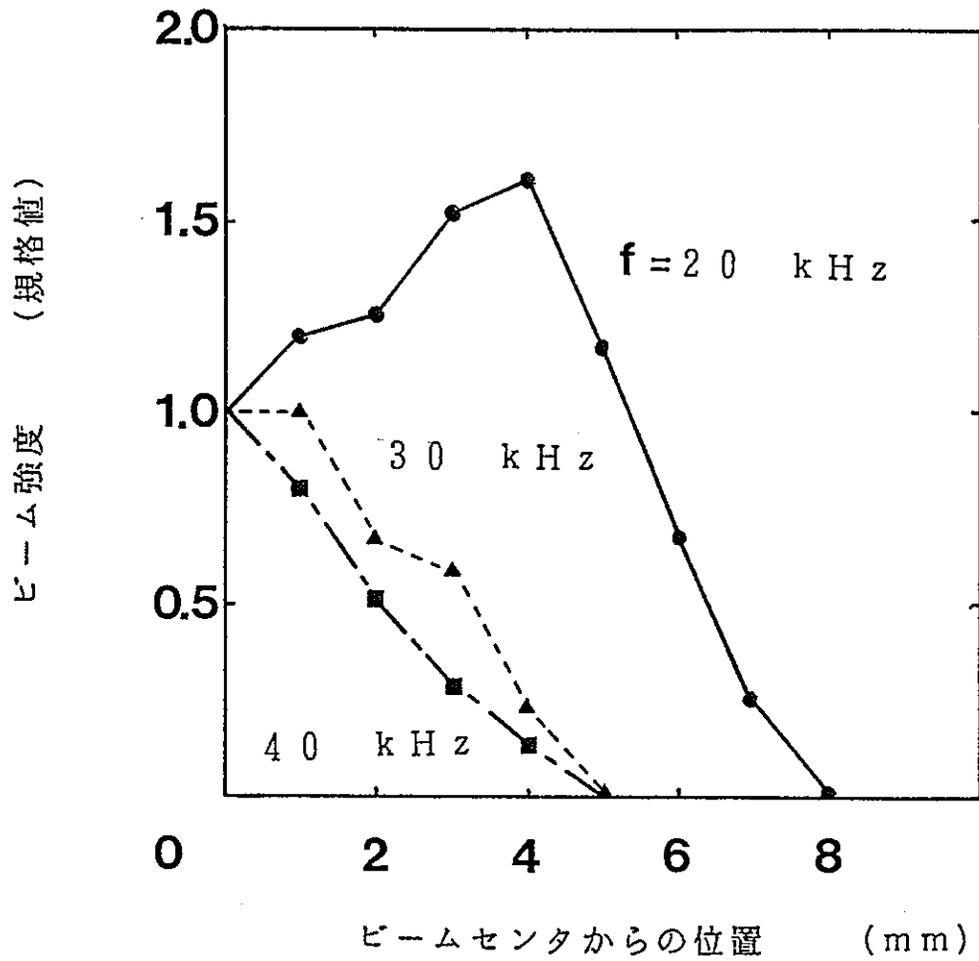


図 4-20 レーザビームの強度分布

率 σ が小さく、また角周波数 ω が大きくなる。このとき、次の式

$$\sigma \ll i \omega \epsilon \quad \text{-----} \quad (4.3)$$

が成立すれば、式 (4.3) を式 (4.1) に代入して

$$E = E_1 (1 - \omega^2 \epsilon \mu r^2 / 4) \quad \text{-----} \quad (4.5)$$

を得る。よって中心から離れるほど電界は、弱まりボーンエフェクトが表れることになる。

4.3.2 光パルス波形の温度変化

図4-21に、光パルス測定の大略図を示した。レーザービームを4枚のミラーを介してプリズムへ導き緑色光、黄色光に分けてから各々の光をパイプラナにより測定を行った。

図4-22に、緑色光の光パルス波形を示した。管壁温度の上昇と共に光強度及び光パルス幅が増加し、管壁温度520℃を境に減少傾向を示した。また、光パルス波形に最高5つのピークが表れた。このピークの間隔は、共振器を光が往復する時間5.8nsにほぼ等しい。

図4-23に、黄色光の光パルス波形を示した。管壁温度の上昇と共に光強度及び光パルス幅が増加し、管壁温度520℃付近を境に減少傾向を示した。

図4-24に光パルスの最大値の管壁温度依存性を示した。緑色光、黄色光の光パルス最大値は、管壁温度の上昇と共に増加し、管壁温度530℃付近を境に減少傾向を示した。緑色光と黄色光との光パルスの最大値の比は、約2:1であり各々の共鳴準位の遷移確立にほぼ等しい値となった。

図4-25に、光パルス幅の管壁温度依存性を示した。緑色光、黄色光の光パルス幅は、管壁温度の上昇と共に広がり、管壁温度500℃付近を境に狭まる傾向を示した。

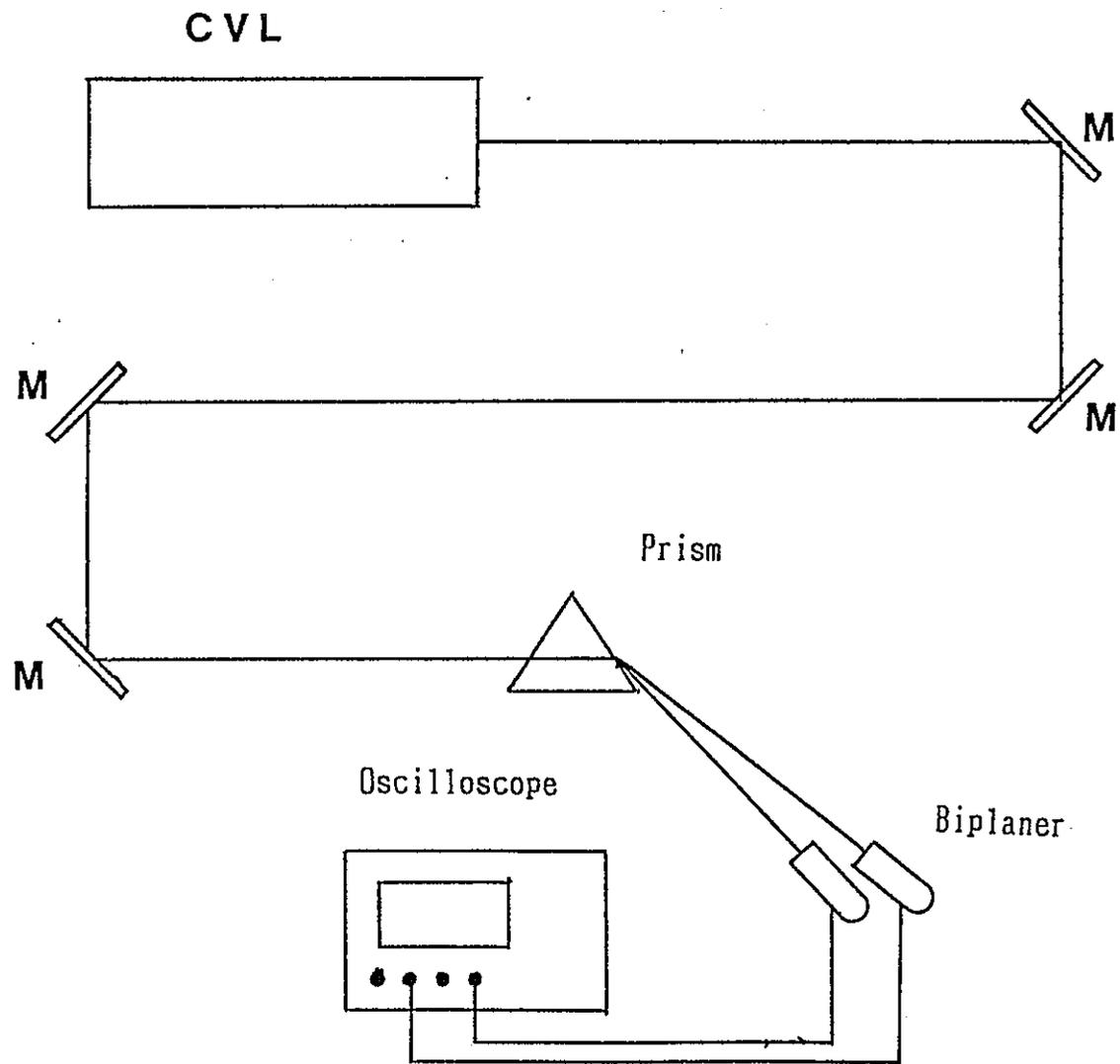


図4-21 光パルス波形測定系概略図

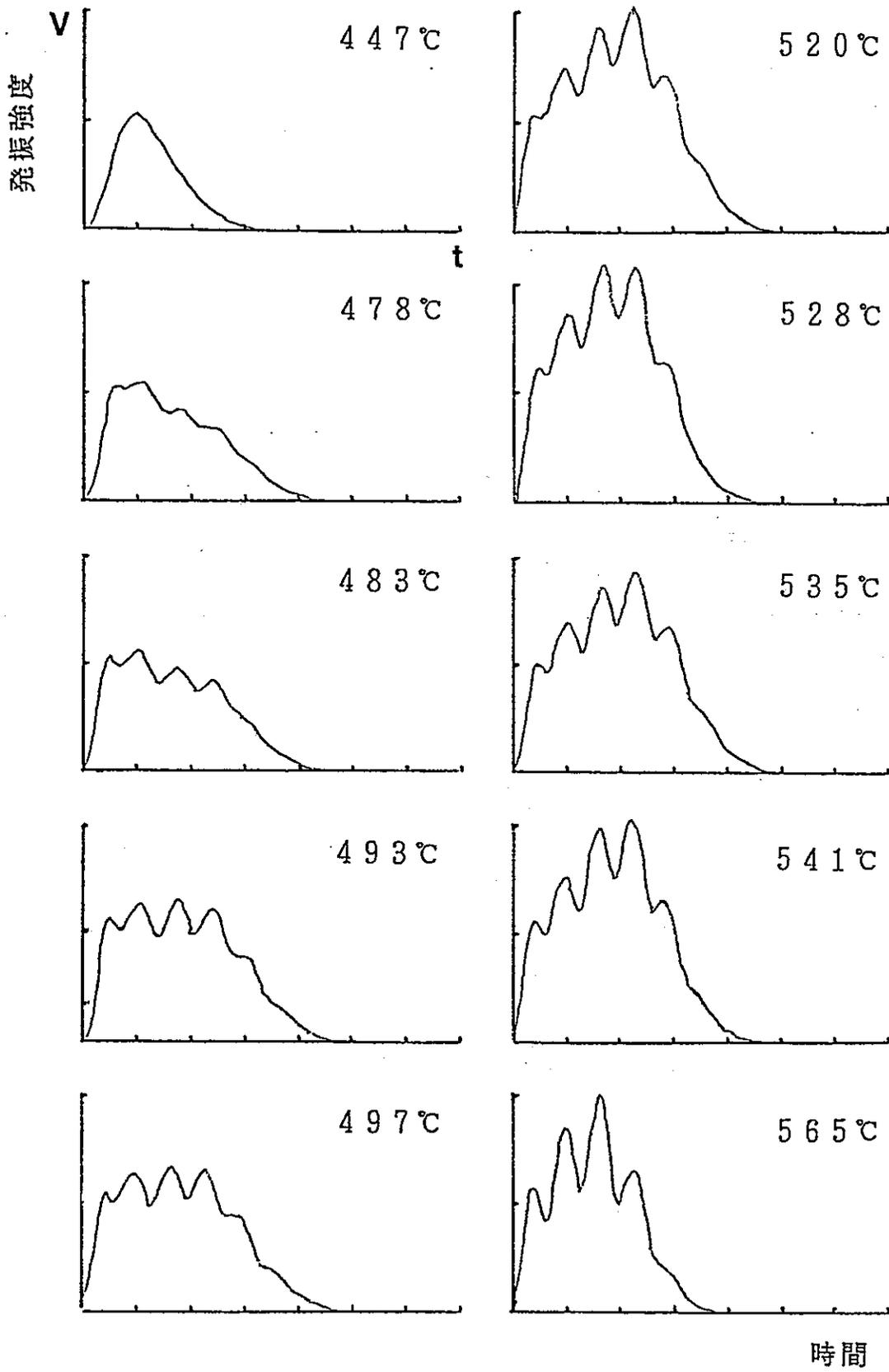


図 4-22 発振波形の温度変化 (緑色光)

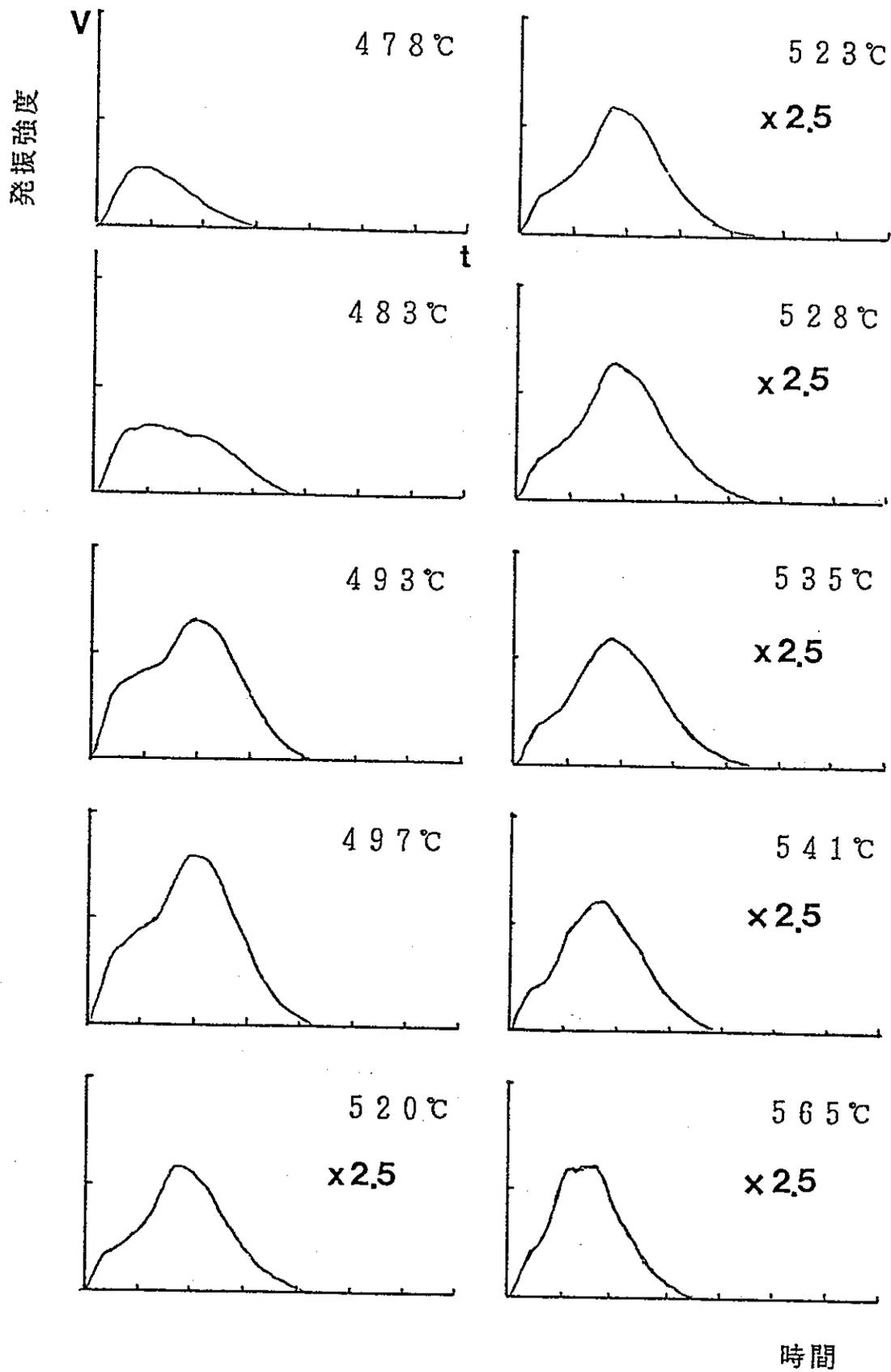


図4-23 発振波形の温度変化 (黄色光)

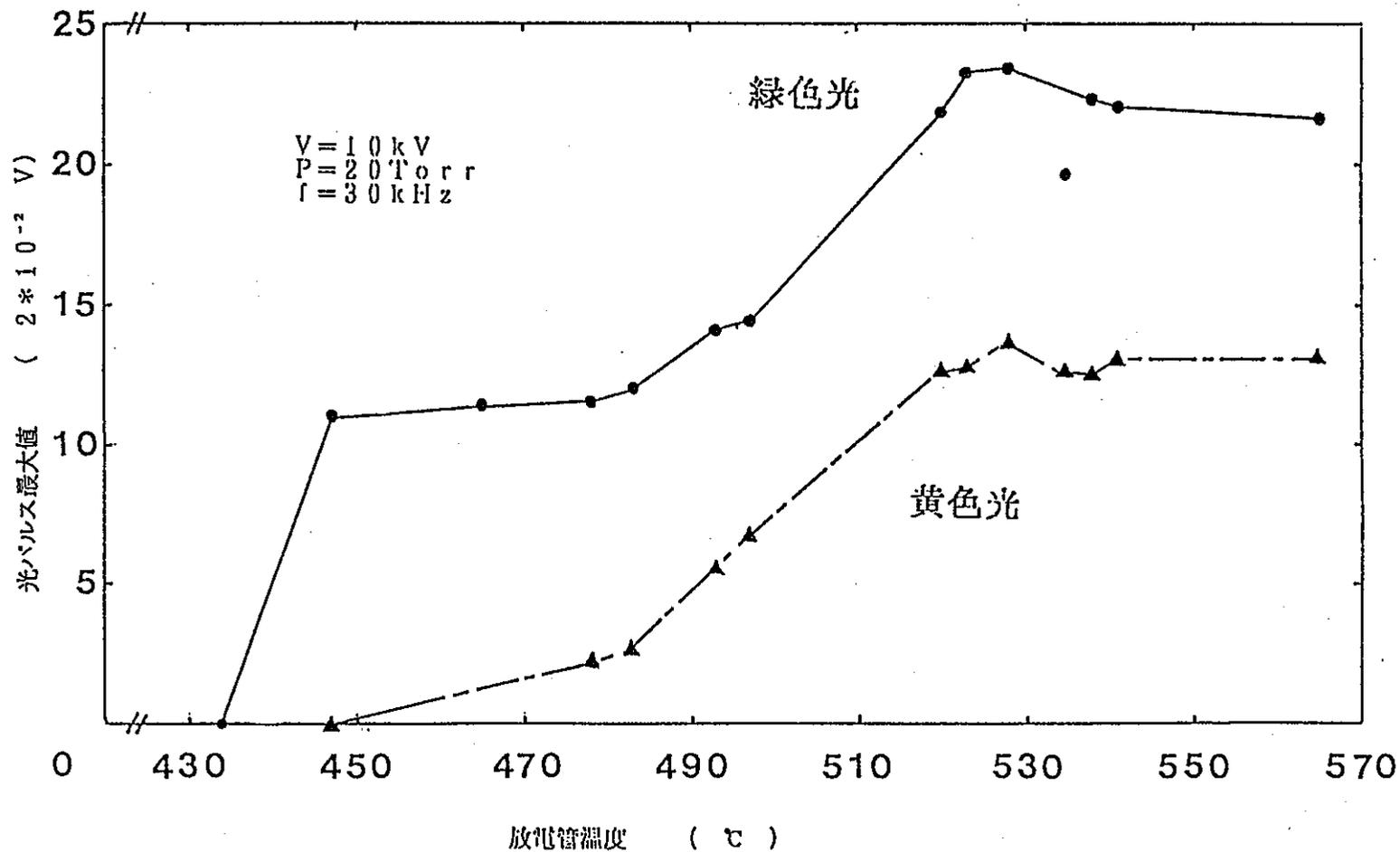


図4-24 光パルスピーク値の放電管温度依存性

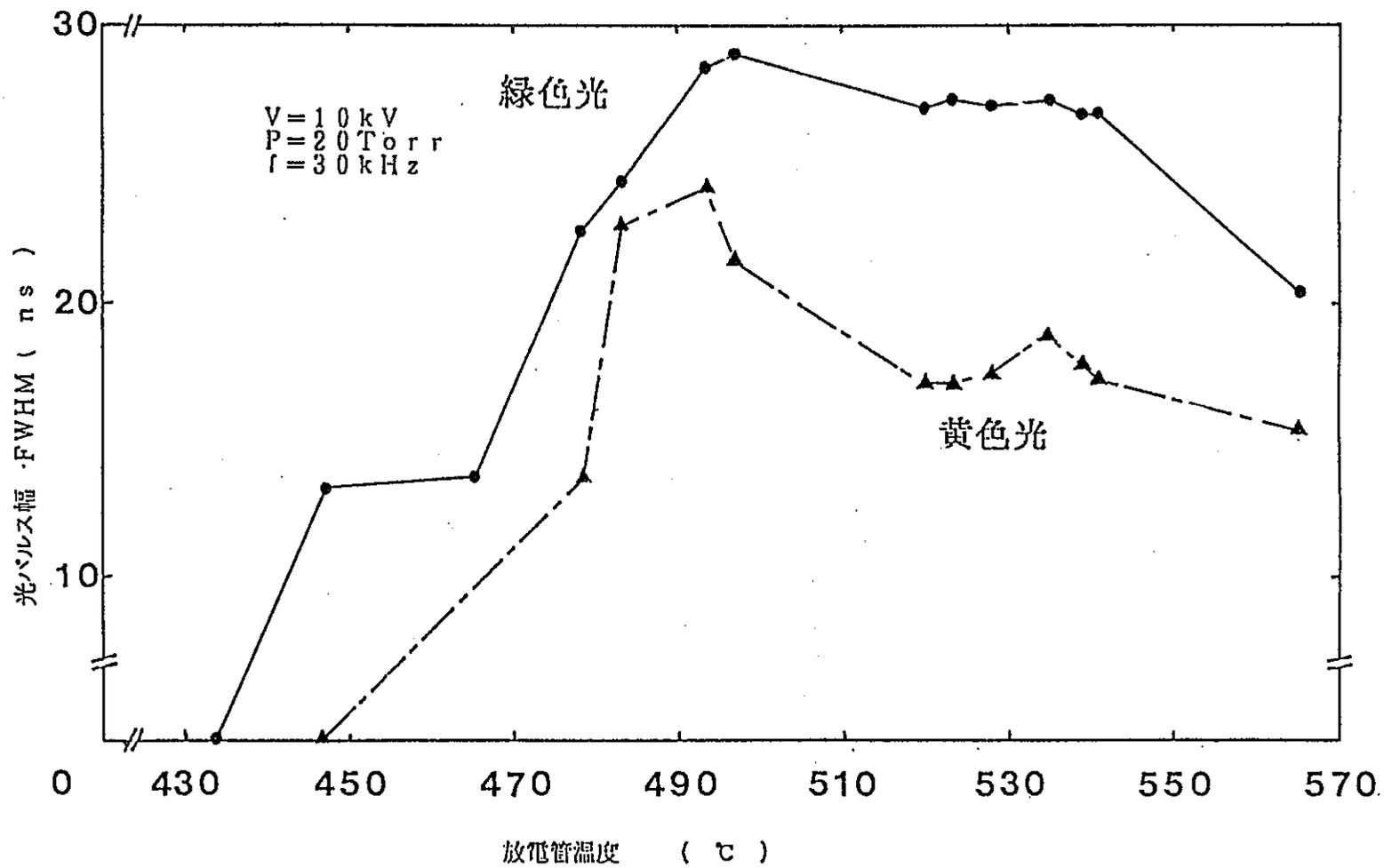


図 4-25 光パルス幅の管壁温度依存性

4-26に、緑色光と黄色光の光パルス波形を示した。黄色光の光パルスは、緑色光の光パルスより遅れて立ち上がった。この原因としては、遷移確率から来るレーザ反転分布成立の遅れによるものであると考える。図4-27に、緑色光と黄色光との光パルスの立上り遅れ時間の管壁温度依存性について示した。立上り遅れ時間は、管壁温度の上昇と共に減少する傾向を示した。

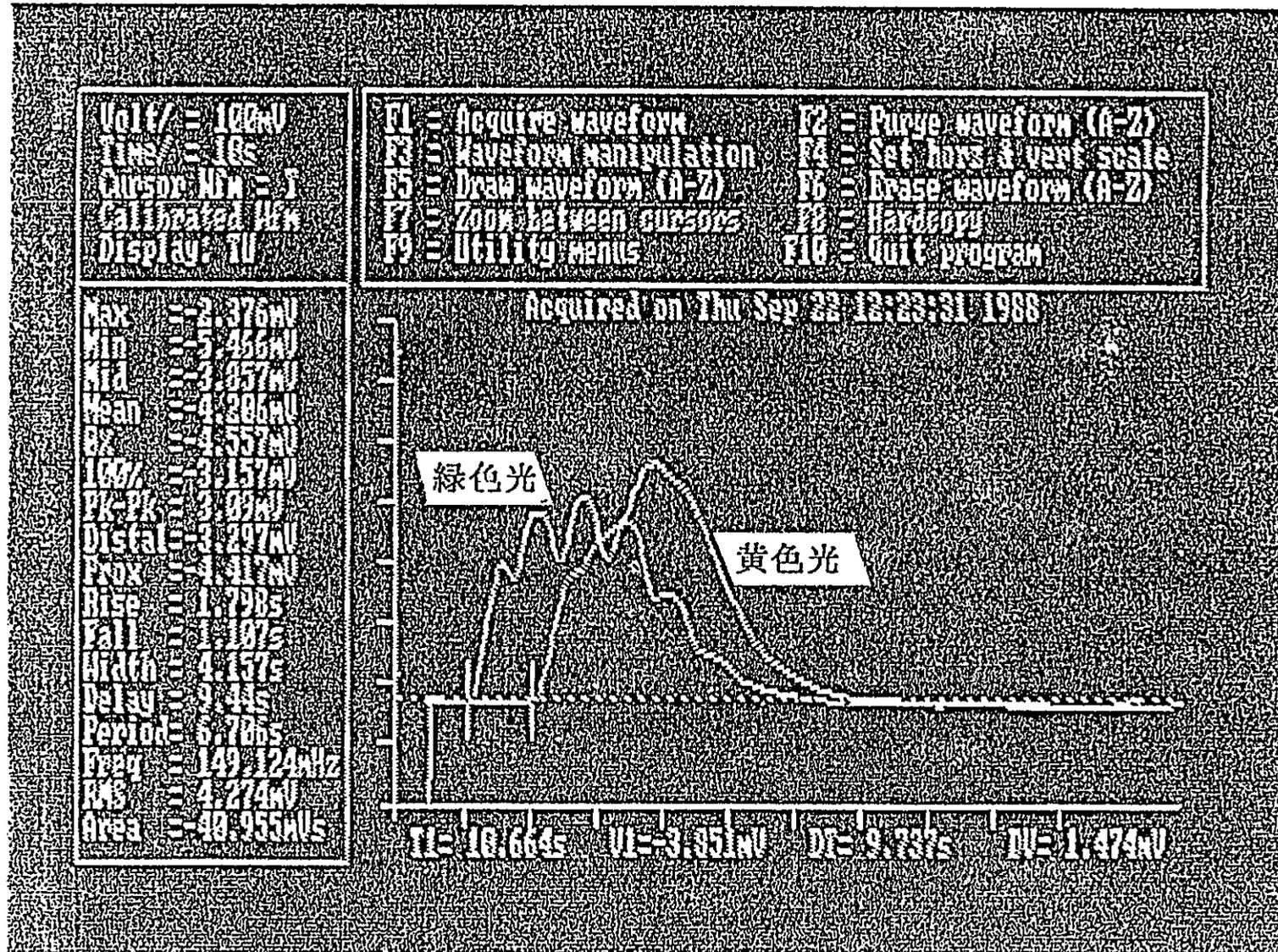


図 4 - 2 6 緑色光パルスと黄色光パルスの時間遅れ

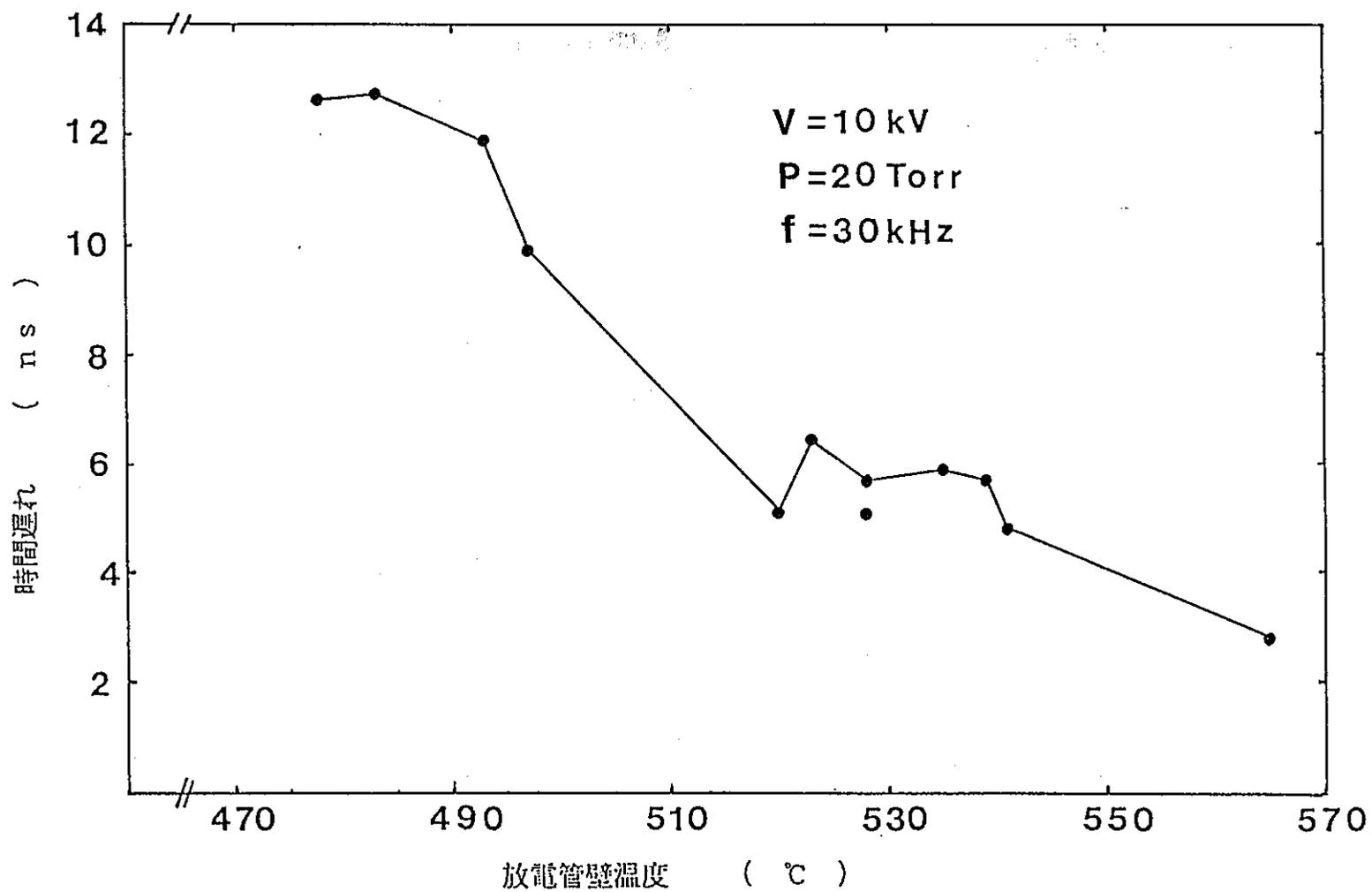


図4-27 黄色光の時間遅れの放電管温度依存性

5. まとめ

- 1) 塩化第一銅よりも解離エネルギーの低い臭化第一銅の方が高いレーザ出力を得ることができた。
- 2) 銀のRadiation Trappingにより銅原子へエネルギー移行され、エンハンシング効果が確認できた。
- 3) 臭化第一銅の場合の臭化銀の添加量は、10%程度が最適であった。
- 4) 大出力レーザを実現するためには、高繰返し放電、バッファガス圧力の最適化、管壁温度約500℃に保つ、等の条件が必要とされる。
- 5) ハライド系銅蒸気レーザにおいて、金属銅蒸気レーザの8倍の繰返し周波数40 kHzを実現できた。
- 6) 最大レーザ出力は、充電電圧14 kV, 繰返し周波数35 kHz、バッファガス圧力40 Torr、臭化銀10%の下で13.6 Wを得た。
- 7) 繰返し周波数40 kHzの下でのレーザビームの強度分布は、ボンエフェクトの影響によりガウシャン分布となった。
- 8) 緑色光と黄色光との光強度の比は、共鳴準位の遷移確率の比とほぼ等しい2:1の比率であった。

6. 謝辞

懇切丁寧に相談にのって下さった岩手大学工学部の齋藤 弘助教授、
実験準備及び報告書作成を手伝って下さった三菱重工広島製作所の
高路 常夫氏に深く感謝します。

7. 参考文献

- 1) S. Trajmer: "Electron-impact cross section for Cu atoms" J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., Vol. 10, No. 16, (1977)
- 2) Weaver, L. A., Liu, C. S., and Sucof, E. W.: J. Quantum Electron., Vol. QE-10 140 (1974)
- 3) Y. Osawa "電磁気学" 朝倉書店 1974年