

パラ水素ラマンレーザーの高効率化研究

光学部品の最適化、ビーム交差効果の影響の把握

1991年10月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。注)

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 (Tokai Works)

技術協力部 技術管理室

(Technology Management Section)

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technology Management Section Office, Tokai Work, Power Reactor and Nuclear
Fuel Development Corporation 4-33, Muramatu Ooaza, Tokai, Naka-gun, Ibaraki,
319-11, Japan 注)

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation)1991

パラ水素ラマンレーザーの高効率化研究

光学部品の最適化、ビーム交差効果の影響の把握

宮本泰明, 長谷川信
矢戸弓雄

要 旨

(目的)

- (1) 光学部品の最適化をはかり、ストークス光出力及びラマン変換効率を増大する。
- (2) ビーム交差効果の影響を実験的に把握する。

(方法)

ラマンセル入射窓材の違いによる入出力エネルギー特性を観測する。波形測定によりビーム交差効果のラマン変換効率に及ぼす影響を把握する。

(結果)

- (1) ラマンレーザーの入射窓材としてARコートZnSeを使用可能とし、その結果ストークス光出力1.3 J、変換効率約29%を得た。
- (2) ラマン変換に伴い、自己ビーム回折効果が発生することを見出した。
- (3) ラマン変換が完全に飽和する領域では、ストークス光の直前・直後の未変換ポンプ光のビーム交差効果がラマン変換効率に大きな影響を与えることを確認した。

(結論)

光学部品での損失を少なくすることによってラマン変換効率を増加できることを確認した。また、ビーム交差効果を有効活用可能な光路設計により、ラマン変換効率を増大できることを確認した。

目 次

1. 目 的	1
2. ラマンセル入射光学窓材の検討	3
3. 試験装置構成	5
4. 試験結果	6
4.1 光学窓材変更による高変換効率化試験	6
4.2 ビーム交差効果確認試験	6
4.2.1 ポンプ光テイル部分のビーム交差効果の確認	6
4.2.2 ラマン変換に伴う媒質の変動解析	7
4.2.3 パス回数変更試験によるビーム交差効果の確認	8
5. まとめ	10
参考文献	11

1. 目的

分子レーザー法ウラン濃縮技術を確立するためには、そのレーザーシステムを高効率化することが非常に重要な課題となる。レーザーシステムを高効率化する手段の1つにはパラ水素ラマンレーザーを高効率化することが挙げられる。パラ水素ラマンレーザーを高効率化する方法として、

- (1) ポンプ光強度を大きくし、ラマン利得を向上させる^{[1] [2]}。
- (2) パラ水素ラマンレーザーの光学部品における損失を低減する。
- (3) ラマンレーザーを低温化し、ラマン利得を向上させる^{[2] [3]}。(発振しきい値を低下させる。)
- (4) ビーム交差効果を有効に利用し、ポンプ光の未変換部分を減らす。
- (5) 半導体レーザーによるシード光効果を利用し、初期ストークス光パワーを増大させる^[4]。
- (6) ラマンセルの光学パラメータを最適化する^[3]。

等の方法が考えられる。

(1)のポンプ光強度を大きくする方法では利得の向上と共に大出力のストークス光を得ることが可能であるが、しかし、ラマンレーザーを構成する光学部品の損傷及びオプティカルブレイクダウンの発生等の問題がある。(2)の光学部品の損失を低減することは最も根本的な課題であり、パラ水素ラマンレーザーの開発項目全てに関与する問題である。(3)のラマンセルの低温化に関してはこれまでに報告している。(4)のビーム交差効果を有効に利用する方法は(6)の光学パラメータの最適化を含んだ課題である。これまでビーム交差効果がストークス光出力にとって良い方向に作用することは知られているが、ビーム交差効果の作用範囲等の詳細な検討は成されていない。また、積極的にビーム交差効果を利用し、ラマン変換効率を向上させることも検討されていない。(5)の半導体レーザーによるシード光効果の利用に関しては理化学研究所の内田氏らの研究^[4]によりラマンレーザーの発振しきい値を低下させるのに有効であることがわかっている。

そこで我々は特に上記(1)と(4)に注目して下記に示すことを目的として研究を行ったので報告する。

- (1) パラ水素ラマンレーザーの光学部品の最適化をはかり、ストークス光出力及びラマン変換効率を増大する。
- (2) ラマン変換におけるビーム交差効果の影響を実験的に把握する。

2. ラマンセル入射光学窓材の検討

炭酸ガスレーザーは発振波長が約 $9\ \mu\text{m}$ ～ $11\ \mu\text{m}$ の赤外域にあり、ガラス系の物質はその波長域の光を吸収してしまうために使用することができない。加工機用のcw炭酸ガスレーザーでは、通産省の大型プロジェクトによりその光学部品となるKClの開発、ZnSeのコーティング技術の開発等が行われ^{[5] [6]}、大出力のレーザー開発が可能になってきた。KClの性能やZnSeのコーティング技術の進歩はパルス動作のTEA炭酸ガスレーザーにも当然使用可能である。しかし、表1に示すようにKClやARコーティングを施したZnSeはパルスレーザー光に対する破壊しきい値が低く、我々が使用するレーザーのエネルギーフルエンス領域では使用することが難しい。特にパラ水素ラマンレーザーの入射窓として用いる場合、ラマンセルの構造からレーザー光を集光しながら入射するために窓上でのエネルギーフルエンスが大きくなるために耐光強度上問題である。そこで、我々は破壊しきい値の比較的大きいBaF₂をこれまで用いてきた。しかし、BaF₂は表からもわかるように炭酸ガスレーザー光に対する吸収係数が大きく、その結果、透過率が悪くなるという問題点があった。入射窓の透過率が悪い条件ではラマンセル内に入射する炭酸ガスレーザー光エネルギーも減少するため、高変換効率を得ることは難しいと言える。

レーザーシステムを高繰り返し化することを考えると、BaF₂の上記の欠点は致命的な問題となる。なぜなら、従来のように～数Hz程度の繰り返し数であれば吸収したエネルギーが熱になり温度が上昇した場合、次のパルスが入射するまでに初期温度に戻るが、数十～数千Hzの繰り返し数になるとBaF₂の温度が上昇し、熱破壊がおこる可能性がある。また、熱破壊が起こらなくても変形により熱レンズ効果が起こるのであろうことは明らかである。すなわち、高繰り返し動作に対してはBaF₂をラマンセル入射窓として使用することは難しいと考えられる。

ラマンセル入射窓をKClあるいはARコートZnSeにすることは単発発振における変換効率を高めるだけでなく、パラ水素ラマンレーザーの高繰り返し化を実現するためにも必要不可欠な条件となることがわかる。KClは潮解性が強く、レーザーを設置する部屋の空調状態が厳しくなるためにARコートZnSeを用いることを前提とし、図1に示すようにラマンセルの入射窓をセル本体から遠く離す構造を考案した。このような構造にすることによってアライメント操作等運転面で難しい問題は発生するが、ミラーの遠隔

操作化及び入射位置の固定等の措置をすることによって解決した。従来タイプのセルでは入射窓がセル本体から約1 mの位置にあり、入射光のエネルギーを5 J/パルスとすると窓上でのフルエンスは約4 J/cm²となり、ARコートZnSeの破壊しきい値を越える。しかし、入射窓をセル本体から2.5 mの位置に設置することによって窓上でのフルエンスは約1.6 J/cm²とすることが可能となる。

表1 炭酸ガスレーザー用光学窓材特性

	BaF ₂	KCl	ARコートZnSe
破壊しきい値 (J/cm ²) 単発	2062	6	2
吸収係数 (cm ⁻¹) at 10.6 μm	0.19	1.4 × 10 ⁻⁴	1.0 × 10 ⁻³
透過率 (%) at 10.6 μm, 10mmt	78	92	98
熱伝導率 (cal/cm sec°C)	2.8 × 10 ⁻³	1.56 × 10 ⁻²	4.3 × 10 ⁻²

3. 試験装置構成

図2に試験に用いたラマンレーザーシステムの構成を示す。レーザーシステムは炭酸ガスレーザー発振器と2台の増幅器からなるMOPAシステムと37パスの常温型ラマンレーザーから構成される。炭酸ガスレーザー発振器から発振したレーザー光は $\lambda/4$ 波長板により直線偏光から円偏光に変換され、2台の炭酸ガスレーザー増幅器によりラマン変換が十分に起こる程度まで増幅される。使用した炭酸ガスレーザー発振器はルモニクスTEA820、増幅器がルモニクス822HPである。このMOPAシステムから発生したレーザー光は37パスのパラ水素ラマンレーザーに入射されラマン変換を受け、分子レーザー法ウラン濃縮に必要な $16\mu\text{m}\sim 17\mu\text{m}$ のストークス光を発生する。

今回の試験ではラマンセルに入射するポンプレーザー光波形、エネルギー、及び、ラマン変換後のポンプレーザー光波形、ストークス光波形、ストークス光エネルギーを同時に測定する必要がある。入射側にKC1のビームスプリッタを配置し、その反射光のエネルギーをGENTEC ED-500により測定し、波形についてはラマンセル入射窓の反射光をフォトドラッグにより測定した。また、ストークス光のエネルギー測定にはLiFの反射光をGENTEC ED-500により測定し、波形についてはKC1プリズムにより未変換のポンプ光とストークス光を分離し、フォトドラッグにより測定した。波形データはディジタイジングオシロスコープHP54111Dに出力した。

4. 試験結果

4.1 光学窓材変更による高変換効率化試験

入射窓材がBaF₂の場合とARコートZnSeの場合におけるラマンレーザーの入出力エネルギー特性試験結果を図3に示す。入射窓材がBaF₂の場合、ポンプ光エネルギーが約4 J程度からストークス光が観測されているのがわかる。ポンプ光エネルギーが約5.7 Jのときにストークス光エネルギー約0.8 J、ラマン変換効率約14%となることが図からわかる。それに対して入射窓材がARコートZnSeの場合、ポンプ光エネルギー約3 J程度からストークス光が観測され始め、約4.8 Jのときにストークス光エネルギー約1.3 J、ラマン変換効率約29%となることがわかる。

この結果から明らかなようにラマンレーザーの光学部品における損失を低減することによってラマン変換効率を大幅に向上することが可能になる。今後はマルチパスミラーの反射率を向上することにより、さらに変換効率を高めることが可能であると考えられる。

4.2 ビーム交差効果確認試験

4.2.1 ポンプ光テイル部分のビーム交差効果の確認

ポンプ光エネルギー約3 Jの場合の入射ポンプ光波形（上段）とラマン変換後のポンプ光波形及びストークス光波形（下段）を図4に示す。このときのストークス光エネルギーは0.3 Jであった。この図の上段の入射ポンプ光波形からテイル部分はジャイアントパルスの立ち上がりから1.2 μsまでであることがわかる。また、下段のラマン変換後のポンプ光波形からジャイアントパルスはラマン変換によりフル・ディプリッションしていること、さらにこの波形のテイル部分が約600 ns以降は完全に消失していることが確認できる。発生したストークス光とポンプ光テイル部分のビーム交差は今回の試験で用いたラマンセルにおいては両パルス間隔が約400 ns以上の場合起こらないので、このような消失現象はビーム交差効果によるものと異なると考えられる。

ラマンセルに入射するポンプ光とラマン変換を受けた後のポンプ光波形を比較し、その透過比率を表した結果を図5に示す。入射ポンプ光がラマンセル内でミラーの反射損失等の定常減衰のみを受けて出射した場合（全くラマン散乱の影響を受けない状態。例えば、真空中を伝搬した場合等。）を透過率100%としている。また、横軸にはCO₂レーザー

一光のジャイアントパルスの立ち上がり部分を基準とした時間をとっている。この図から明らかなようにジャイアントパルスの立ち上がり部分はほとんどラマン変換の影響をうけていないこと、また、50 ns 近傍でジャイアントパルスのラマン変換が起こり、透過率が完全に0%になっていることが確認できる。その後、透過比率は100%近くまで復帰するが、徐々に減少し、ついには600 ns 付近で完全に0%になってしまうことがわかる。ここで、図中のくぼみであるが、これはストークス光との時間関係から判断してストークス光とのビーム交差によるラマン変換部分であると考えられる。

これらの減衰の原因が従来から言われているようにビーム交差効果のみによるものであれば、ビーム交差を受けない部分の透過率は100%であるはずである。しかし、この実験結果から判断すると、ストークス光とのビーム交差を受けていない部分もその位置が後ろになる程減衰率が大きくなること、また、ストークス光と交差することの無い400 ns 以降の部分も減衰していることから考えて、ビーム交差効果以外の現象によりポンプ光のテイル部分が消失していると考えなければならない。

4.2.2 ラマン変換に伴う媒質の変動解析

誘導ラマン散乱に伴い、ポンプ光とストークス光の波長差があるため、その差に応じたエネルギーが媒質中に放出されることが考えられる。その放出エネルギーにより媒質が受ける影響について数値計算を行った。

マルチパスセル内でのラマン変換特性を考えた場合、その大部分の変換は1~2回のパスの間に起こると考えることができる。さらに、そのパスの中での変換もコンフォーカルリージョンの中で起こると考えることができる。そこで、マルチパスセル内でのラマン変換の90%が1回のパスの間で、しかも、コンフォーカルリージョンの中で起こり、ラマン散乱に伴うエネルギー放出がこの領域内で全て、一瞬に行われると仮定し、汎用熱流体解析コード「PHOENICS」を用いて数値解析を行った。解析条件は、発生するストークス光エネルギーを1 J、ビーム直径を0.5 mm、コンフォーカルリージョンの長さを500 mmとした。また、初期条件として、媒質の初期温度を295 K、初期圧力を 2×10^5 Paとした。計算はレーザー光の半径方向に1次元で行った。

媒質の密度に関する時間変化の計算結果を図6に示す。縦軸に密度をとり、横軸に時間を取っている。計算を行った位置はレーザー光の中心から0.125 mm, 0.375 mm, 0.625 mm, 0.875 mmのところ、それぞれを1, 2, 3, 4と表示している。1

の部分はビーム通過部分である。

図から1の部分の密度は時間経過とともに小さくなり、200 ns以降上昇するが初期値に比べると常に小さい状態にある。2, 3, 4の部分はそれぞれ150 ns, 400 ns, 500 ns付近まで初期値よりも高密度であるが、それ以降は初期値以下になっていることがわかる。この結果から、ラマン散乱に伴いレーザー光通過部の媒質密度は急激に低下するために、レーザー光はDefocussingする。しかし、その周辺の媒質密度が逆に大きいためにそこでFocussingが起こり、バランスするためにラマン変換後500 nsまではビームは大きく拡散して行かず、ゆっくりとしたテイルの減衰となって現れていると考えられる。ところが、500 ns以降は周辺部の密度も低下してしまうためにビームの拡散を抑えるものがなくなり、テイルは完全に消失してしまうと考えることができる。

すなわち、ポンプ光テイル部分では、そのパルスが起こしたラマン変換に伴う媒質の変動により、ビーム交差効果によりラマン変換するはずのポンプ光が拡散してしまう「自己ビーム回折効果」があることを見出した。

4.2.3 パス回数変更試験によるビーム交差効果の確認

ラマンセルのパス回数を29パス, 31パス, 37パスとした場合の入出力エネルギー特性の試験結果を図7に示す。図からわかるように37パスの場合が出力, 変換効率ともに31パス, 29パスの場合よりも良くなっていることがわかる。この理由としては、パス回数が多くなればそれだけラマン利得が大きくなるのであるから当然のことである。しかし、ラマン変換が完全に飽和する領域, この結果の場合, ポンプ光エネルギーが4 J以上の領域では単純にパス回数の増加分による利得増だけではなく、ビーム交差効果が大きく関与していると考えられる。

ポンプ光エネルギー3.4 Jにおけるパス回数37パスと29パスのストークス光波形とラマン変換後のポンプ光波形を図8に示す。ストークス光出力エネルギーはそれぞれ0.4 J, 0.2 Jである。この図から明らかなようにパス回数が29パスから37パスになるとストークス光のパルス幅が広がりエネルギーも大きくなることがわかる。したがって、このエネルギー領域ではパス回数の増加分による利得増がストークス光出力に大きく関与していると考えられる。入射ポンプ光エネルギーが4.3 Jの場合, 図9に示すように、ストークス光出力は37パス, 29パスそれぞれ1.0 J, 0.8 Jと差があるが、ストークス光パルス幅はほとんど変わっていないことが確認できる。すなわち、このエネルギー領域で

はパス回数の増加分によるラマン利得増によりストークス光出力が増大しているのではないことが考えられる。入射ポンプ光エネルギーに対するストークス光パルス幅、及び未変換のポンプ光パルス幅の関係を図10に示す。未変換のポンプ光パルス幅は入射ポンプ光エネルギーの増加とともに減少していることが確認できる。しかし、ストークス光のパルス幅は未変換のポンプ光パルス幅が減少しているにもかかわらず入射ポンプ光エネルギー約4 J以上の領域ではほとんど増加していないことがわかる。この結果から、ラマンセル内における利得が十分に大きい場合、進行波的なラマン変換とともにビーム交差効果によるラマン変換が起これ、ストークス光のパルス幅が変わらない状態でエネルギーが増加する、いわゆる、パルス圧縮が起これると考えられる。

図9に示した入射ポンプ光エネルギー4.3 Jにおける37パスと29パスの未変換のポンプ光波形を比較したものを図11に示す。この図は29パスにおける未変換のポンプ光波形を100%とした場合の37パスにおける未変換のポンプ光波形の減衰率を表している。29パスの場合に比べて37パスの場合はパルスの立ち上がり部分から約30 ns及び115 nsの部分が大きく減少していることが確認できる。この位置は発生したストークス光とビーム交差する位置と完全に一致しており、ビーム交差効果によりラマン変換し、ポンプ光が減衰していると言える。

このように入射ポンプ光のエネルギーが大きく完全に進行波的なラマン変換が飽和する領域ではストークス光の直前・直後のビーム交差を有効に活用することにより、ラマン変換効率を良くすることが可能となると考えることができる。

5. まとめ

今回の報告内容を以下にまとめる。

- (1) ラマンレーザーの入射窓材として透過率の良いARコートZnSeを使用可能とした。
- (2) ストークス光出力1.3 J, 変換効率約29%を得た。
- (3) ポンプ光のテイル部分がジャイアントパルスのラマン変換に伴うエネルギー放出により媒質密度が変動するために減衰・消失する, 自己ビーム回折効果が発生することを見出した。
- (4) ラマン変換が完全に飽和する領域では, ストークス光の直前・直後の未変換ポンプ光のビーム交差効果によるラマン変換が変換効率に大きな影響を与えることを確認した。

参考文献

- [1] K. Midorikawa, H. Tashiro, K. Nagasaka, K. Toyoda and S. Namba, Appl. Phys. Lett. 47, 1033(1985)
- [2] K. Midorikawa, H. Tashiro, Y. Aoki, K. Ohashi, K. Nagasaka, K. Toyoda and S. Namba, J. Appl. Phys. 47, 1504(1985)
- [3] 宮本 泰明, 長谷川 信, 田代 英夫, 社内報告書「89BN-3173E-0010X」
- [4] M. Uchida, K. Nagasaka and H. Tashiro, Opt. Lett. 14, 1350(1989)
- [5] 宮田 威男, 小野 拓弘, 岩淵 俊, レーザー研究 13, 138(1984)
- [6] 宮田 威男, 精密機械 49, 1334(1983)

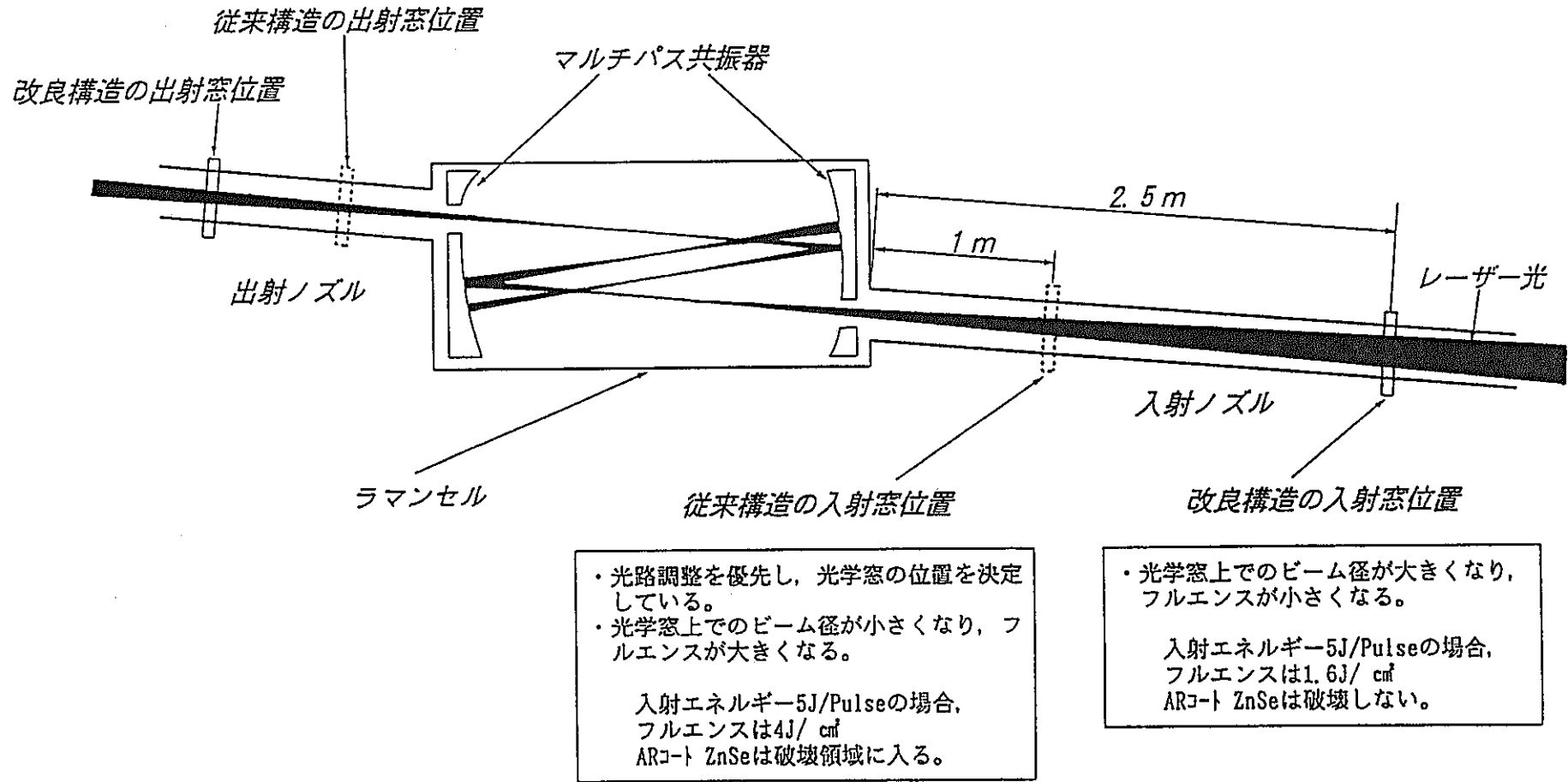


図1 ラマンレーザーの入射位置の概念図

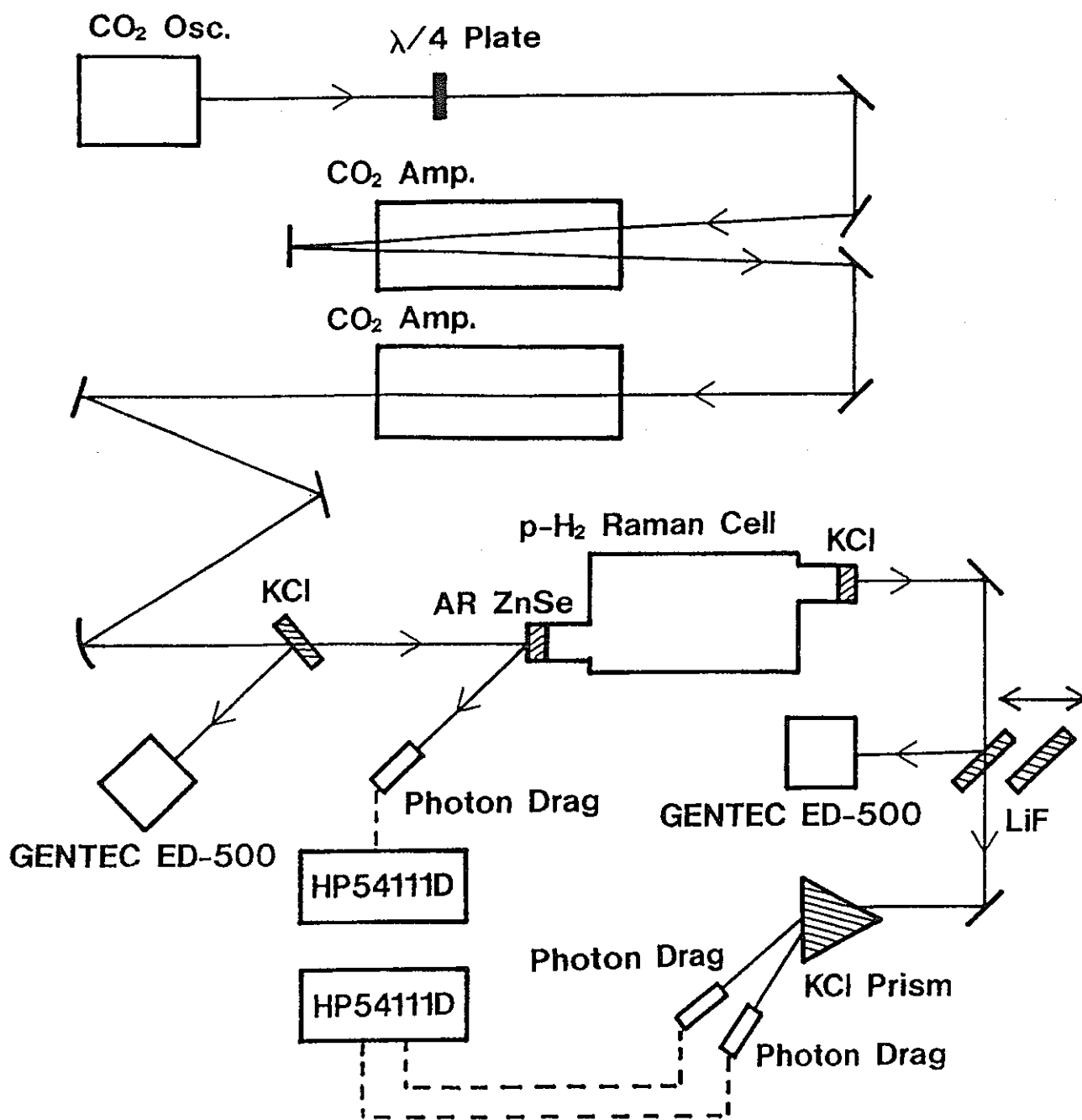


図2 試験装置構成

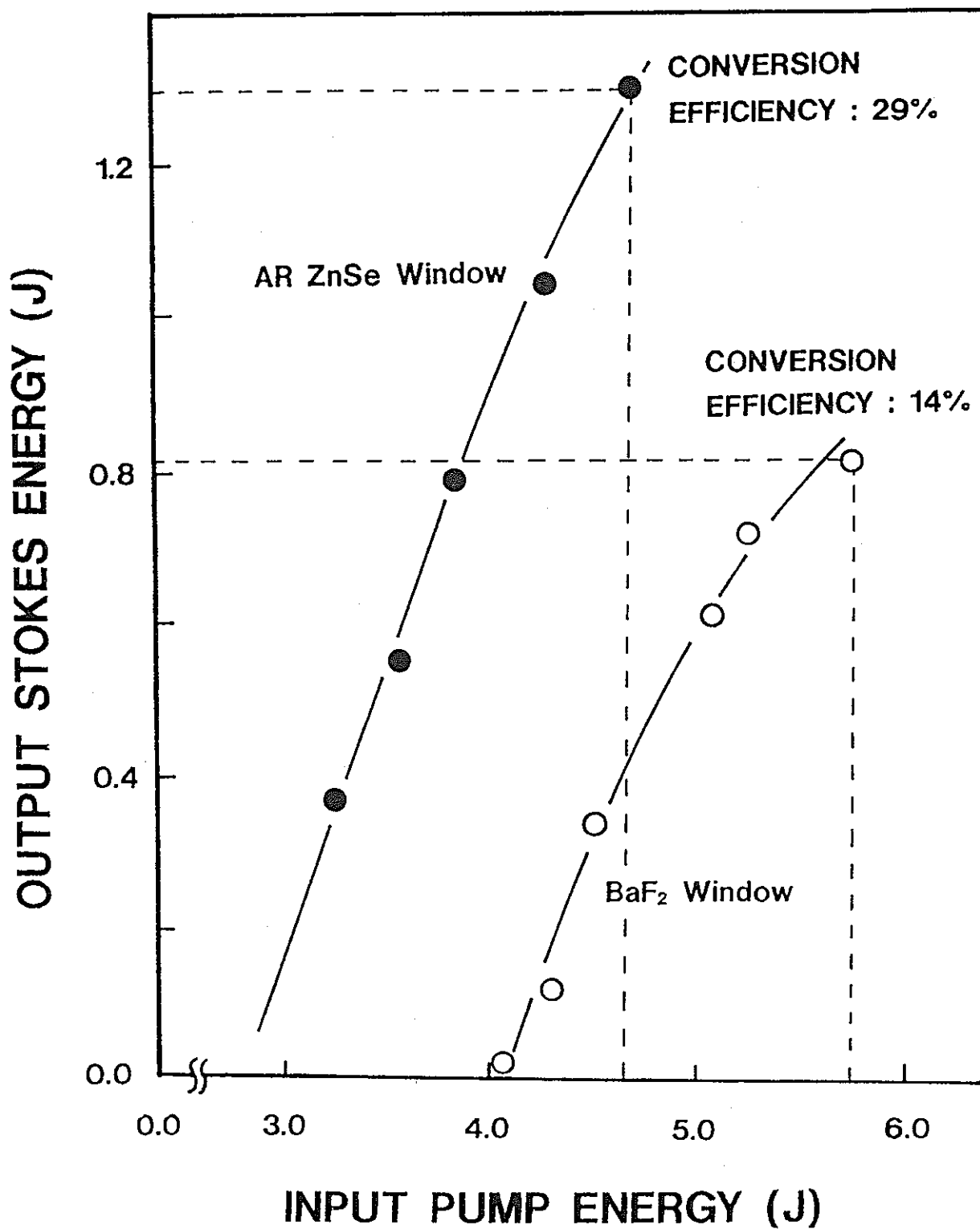
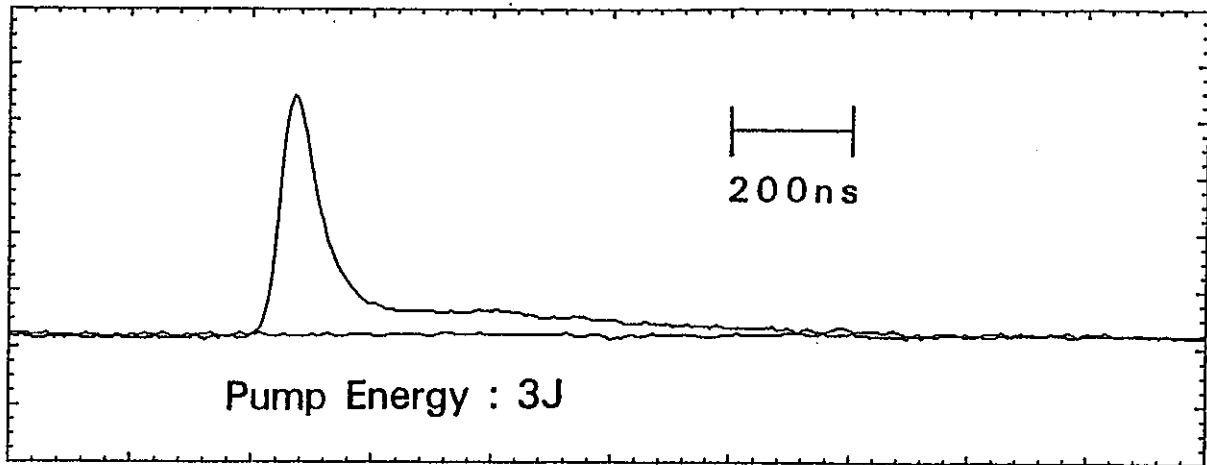


図3 窓材変更による入出力エネルギー特性

Initial Pump Pulse Form



Depleted Pump and Stokes Pulse Form

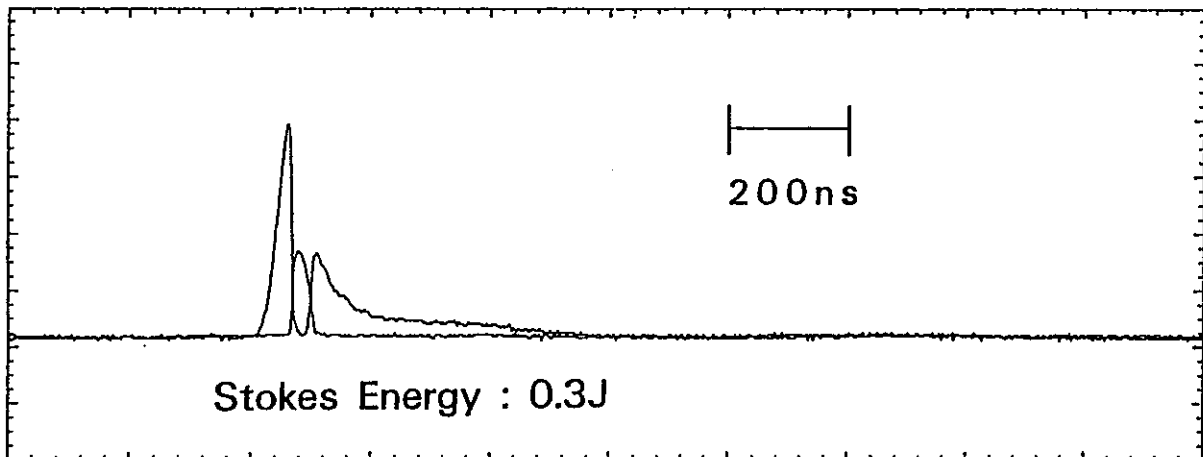


図4 入射ポンプ光波形（上段）及び未変換ポンプ光波形、ストークス光波形（下段）

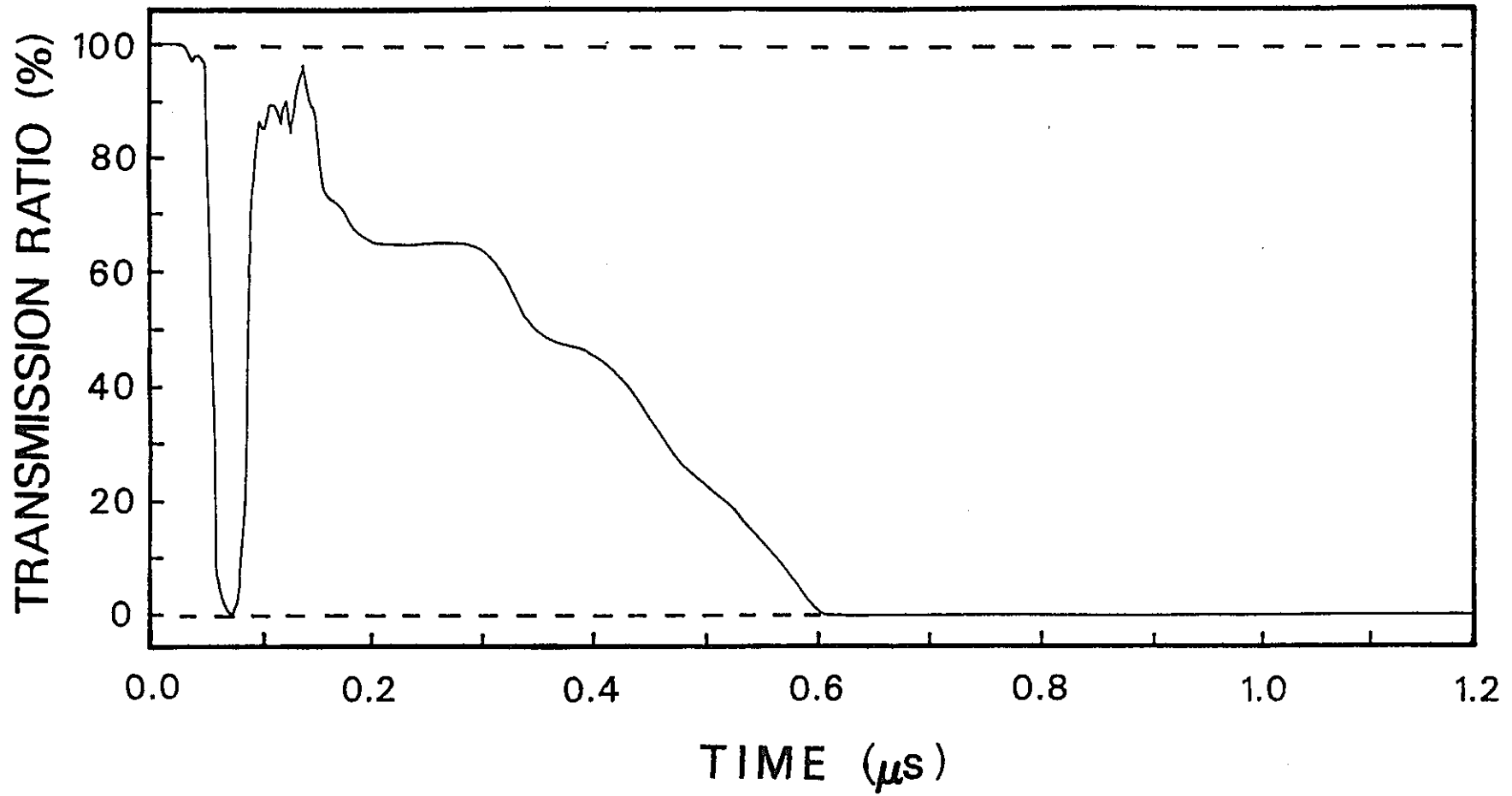


図5 ラマン変換に伴うポンプ光ラマンセル透過率

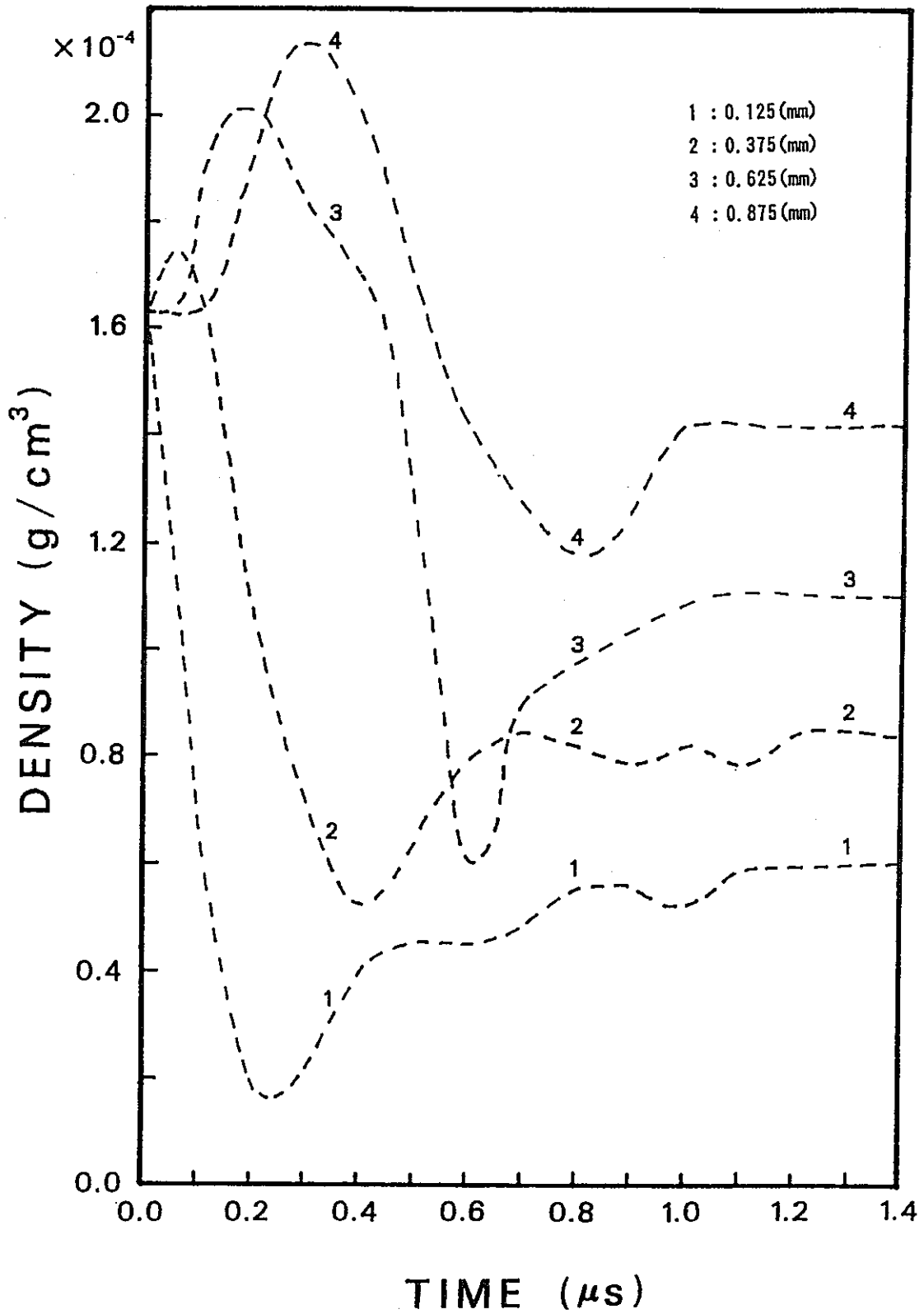


図6 ラマン変換に伴う媒質密度変動解析結果

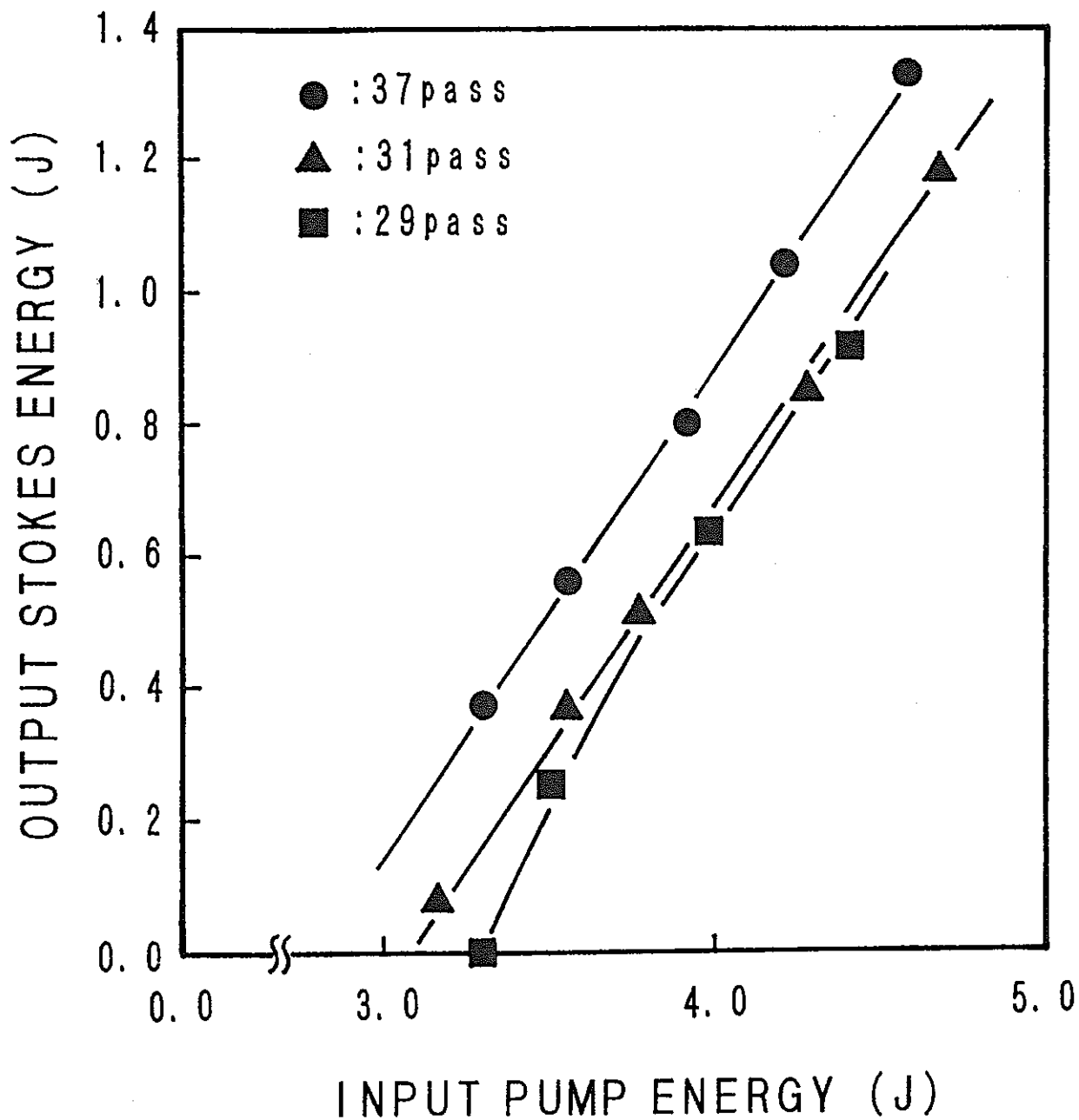


図 7(a) パス回数変化に対するストークス光出力エネルギー特性

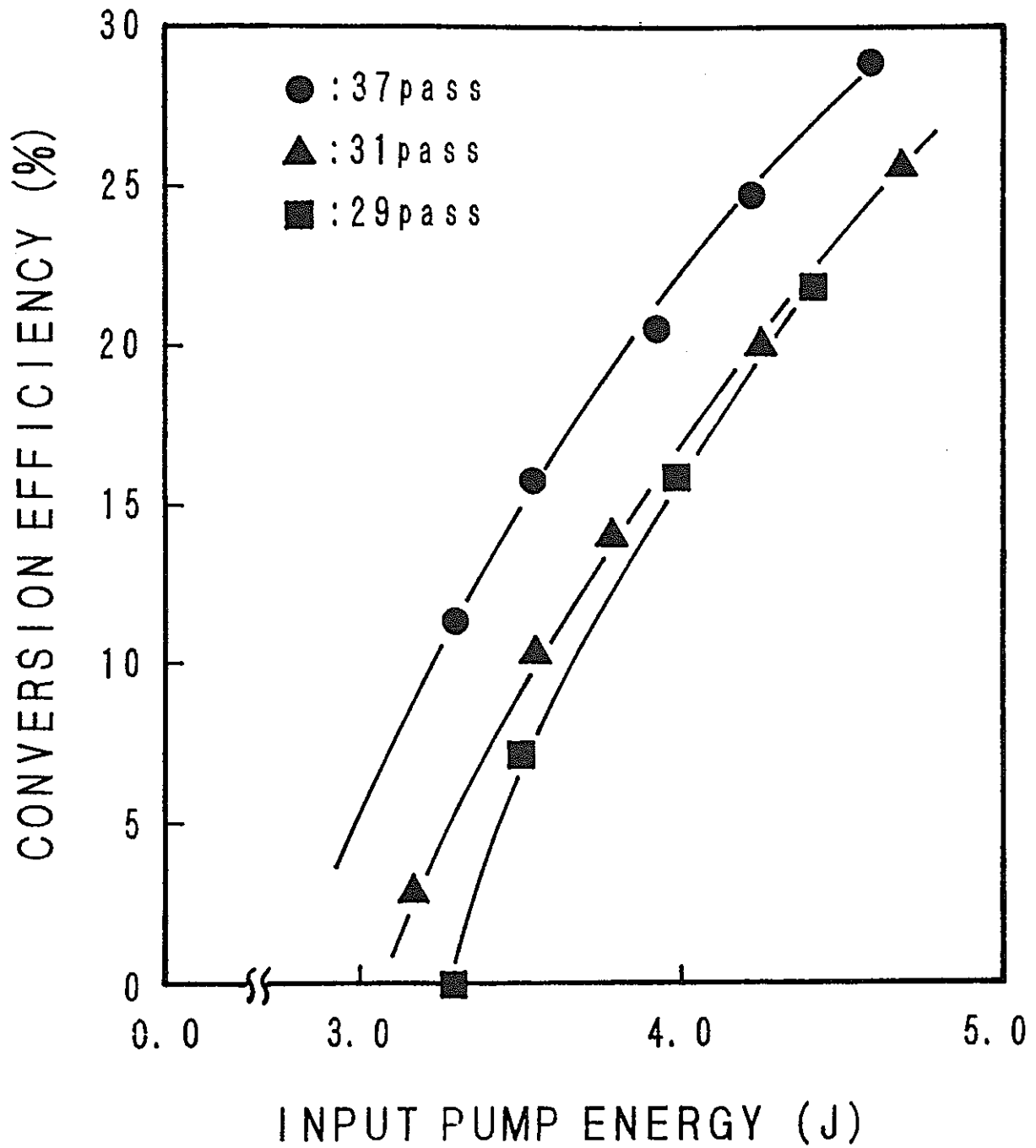
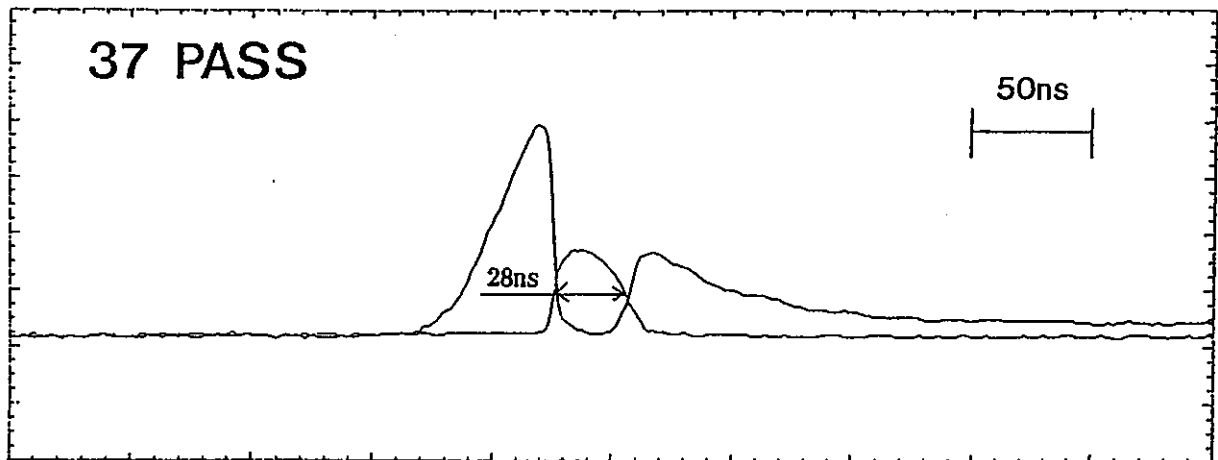
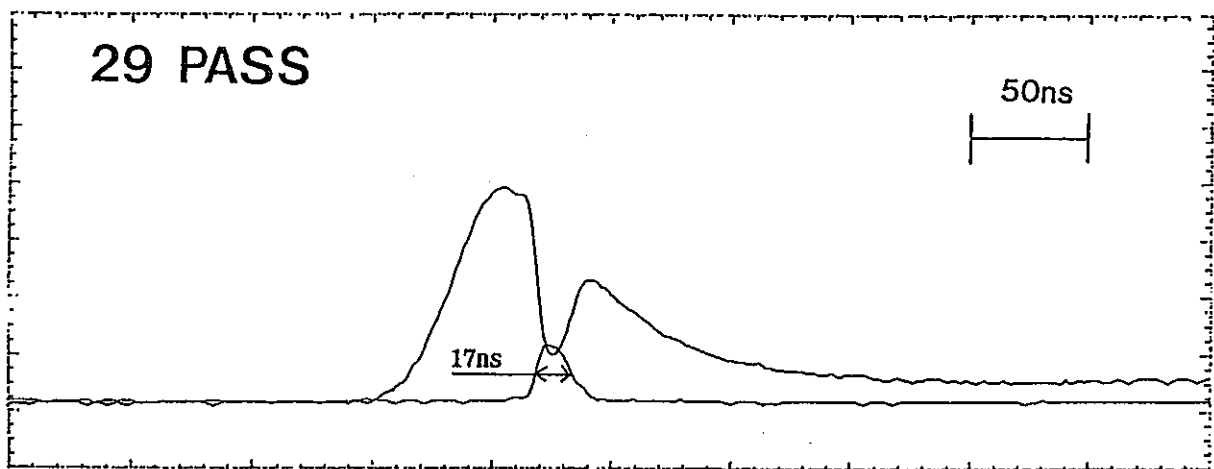


図 7 (b) パス回数変化に対する変換効率特性



INPUT PUMP ENERGY : 3.4J

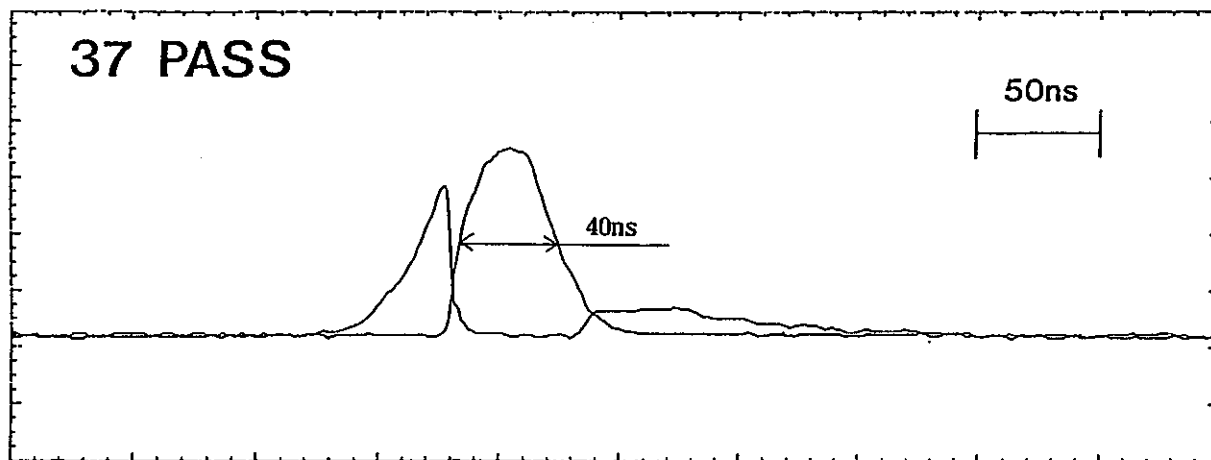
STOKES ENERGY : 0.4J



INPUT PUMP ENERGY : 3.4J

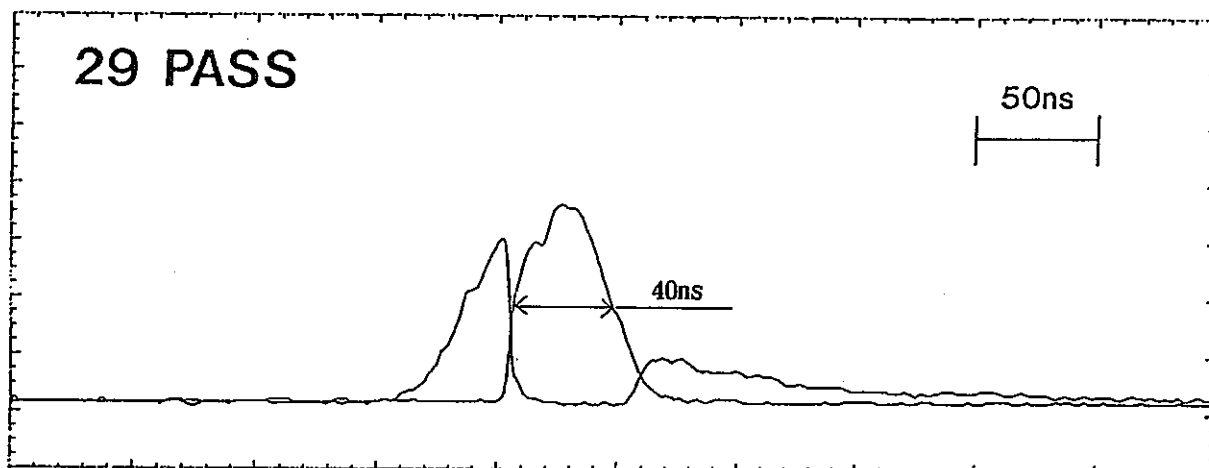
STOKES ENERGY : 0.2J

図8 入射ポンプ光波形（上段）及び未変換ポンプ光波形、ストークス光波形（下段）



INPUT PUMP ENERGY : 4.3J

STOKES ENERGY : 1.0J



INPUT PUMP ENERGY : 4.3J

STOKES ENERGY : 0.8J

図9 入射ポンプ光波形（上段）及び未変換ポンプ光波形、ストークス光波形（下段）

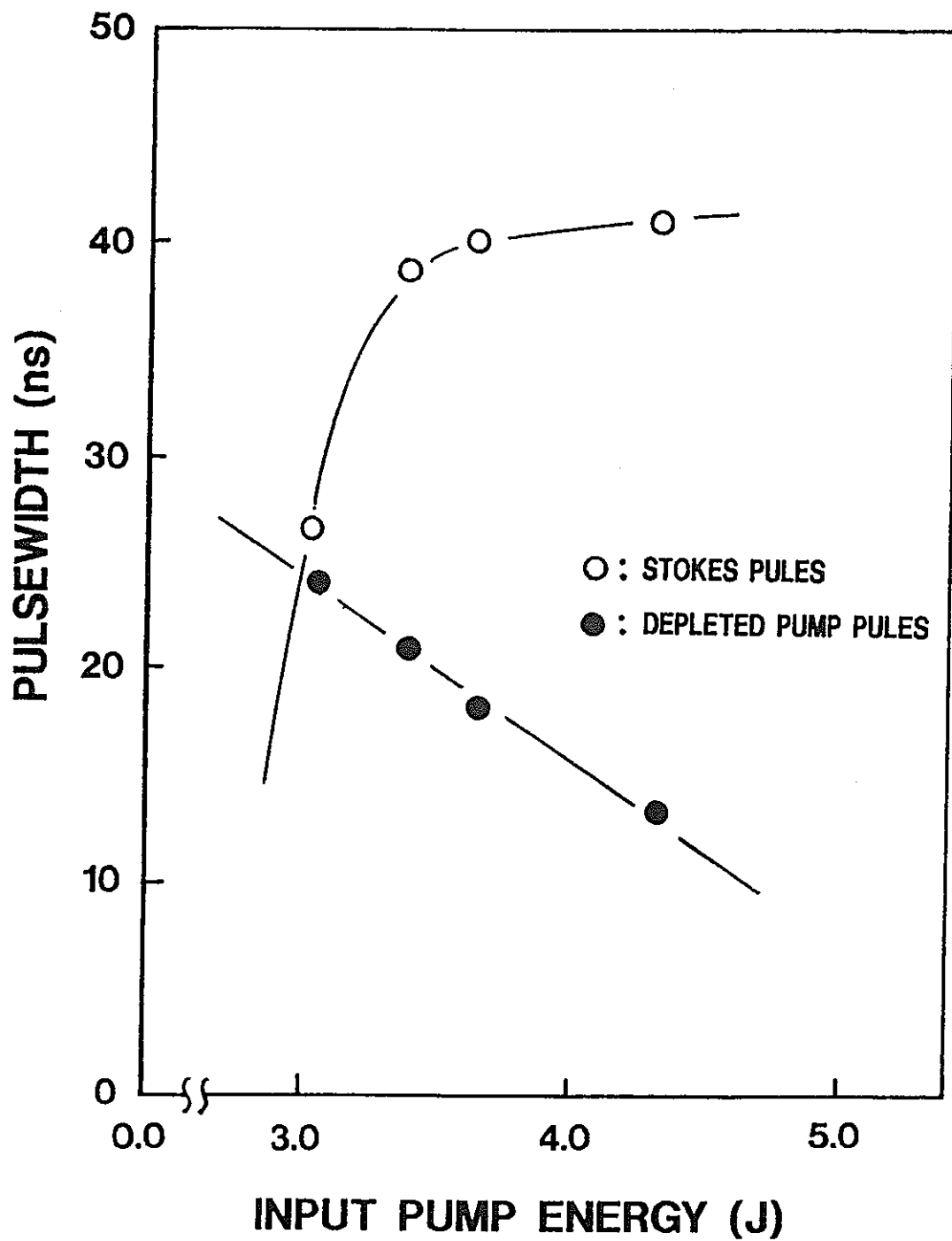


図10 入射光エネルギーに対する未変換ポンプ光及びストークス光パルス幅

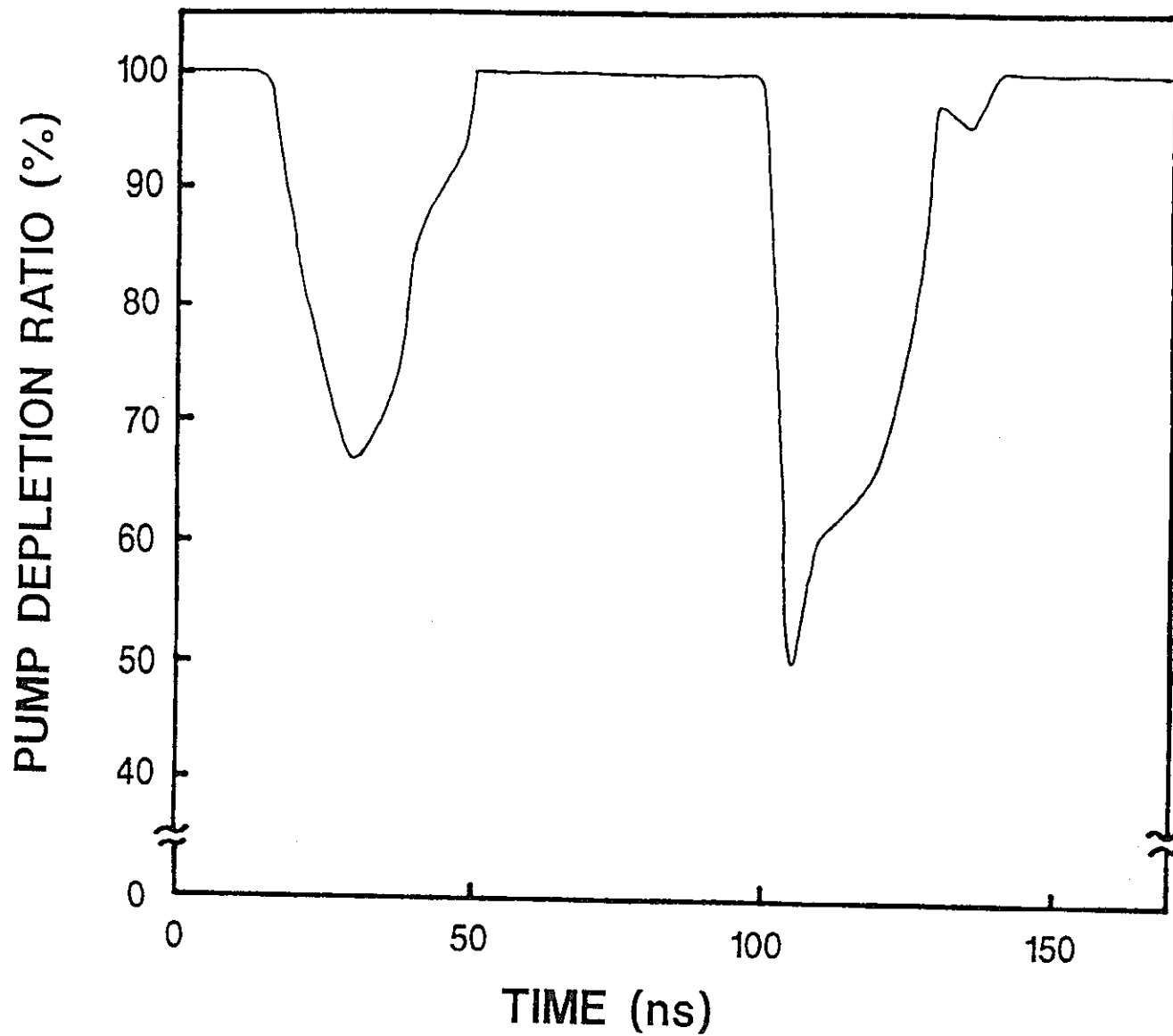


図11 29パス未変換ポンプ光に対する37パス未変換ポンプ光の減衰位置及び減衰率