

本資料は 2001. 6. 6 日付けで登録区分、  
変更する。

[技術情報室]

# 同位体分離用短波長レーザーの基礎的研究

- 共同研究報告書 -

1995年3月

茨城大学  
動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

Copyright © 2001 by Japan Nuclear Cycle Development Institute  
All rights reserved.

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



## 同位体分離用短波長レーザーの基礎的研究

藤井寛一\*、北谷文人\*\*、高橋武士\*\*

### 要旨

レーザーを用いて、種々の元素の同位体分離を行うためには、同位体分離用にカスタマイズされたレーザーを開発することが必要である。

現在のレーザーを用いた同位体分離に用いられるレーザーは、CO<sub>2</sub>レーザーおよび、YAGレーザーまたはエキシマレーザー励起の色素レーザーである。これらのレーザーでは、光子当たりのエネルギーが低いために効率のよい同位体分離を行うことがしづらい。

これは、レーザーを用いた同位体分離においては、最終段階では、目的同位体に解離、イオン化、運動量変化などの物理化学的変化を生じさせることによって目的同位体を分離回収する技術であるために、これらような変化を容易に生じさせるためには、エネルギーの大きな光子の利用が必須となる。これから、高効率で高出力の短波長レーザーの開発は、レーザーを用いた同位体分離にとって非常に重要な項目となる。また、高効率に光子を用いるためには、発生したレーザー光の質が重要となる。ビームの質（スペクトル幅、横モード、広がり角など）が悪ければ、レーザー光は、効率よく利用することができない。

このために、種々の同位体分離に必要な波長を高効率で発生できる可能性のある短波長レーザーとして、金属蒸気を用いた短波長レーザーの開発と発生したレーザービームの高品質化について茨城大学と動燃で共同に研究を行った結果について報告する。

金属蒸気レーザーとしては、高繰り返し率の可視光を、単純な構造のレーザー管で発生できる金属ハロゲン化物を用いたレーザーの高効率化について基礎的な研究を行った。また、レーザー光の高品位化については、回折の影響をのぞき伝播可能な、非回折光の発生について考察を行った。

---

\* 茨城大学

\*\* 動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 先端技術開発室

# 目次

- 1.序
- 2.低温型銅蒸気レーザー
  - 2.1 はじめに
  - 2.2 銅蒸気レーザー
  - 2.3 発振過程
- 3.エネルギー移乗効果
  - 3.1 はじめに
  - 3.2 非弾性衝突
  - 3.3 エネルギー移乗効果
- 4.準安定状態における再励起
  - 4.1 はじめに
  - 4.2 セシウムの新しい可能性
  - 4.3 3準位サイクリックレーザーにおける再励起
- 5.実験および考察
  - 5.1 はじめに
  - 5.2 レーザ装置
  - 5.3 実験方法
  - 5.4 実験結果および考察
- 6.結論および今後の課題
- 7.レーザー光の高品質化
  - 7.1はじめに
  - 7.2非回折ビーム
  - 7.3非回折ビームの原理
  - 7.4近似的な非回折ビームの発生

## 第1章序

レーザーを用いて、種々の元素の同位体分離を行うためには、同位体分離用にカスタマイズされたレーザーを開発することが必要である。

現在のレーザーを用いた同位体分離に用いられるレーザーは、CO<sub>2</sub>レーザーおよび、YAGレーザーまたはエキシマレーザー励起の色素レーザーである。これらのレーザーでは、光子当たりのエネルギーが低いために効率のよい同位体分離を行うことがしづらい。

これは、レーザーを用いた同位体分離においては、最終段階では、目的同位体に解離、イオン化、運動量変化などの物理化学的変化を生じさせることによって目的同位体を分離回収する技術であるために、これらような変化を容易に生じさせるためには、エネルギーの大きな光子の利用が必須となる。これから、高効率で高出力の短波長レーザーの開発は、レーザーを用いた同位体分離にとって非常に重要な項目となる。また、高効率に光子を用いるためには、発生したレーザー光の質が重要となる。ビームの質（スペクトル幅、横モード、広がり角など）が悪ければ、レーザー光は、効率よく利用することができない。

このために、種々の同位体分離に必要な波長を高効率で発生できる可能性のある短波長レーザーとして、金属蒸気を用いた短波長レーザーの開発と発生したレーザービームの高品質化について茨城大学と動燃で共同に研究を行った結果について報告する。

第2章 低温型銅蒸気レーザー

2.1はじめに

銅蒸気レーザーは、レーザーの分類では、気体レーザーに属する金属蒸気レーザーの一種となる<sup>(1)</sup>。銅蒸気レーザーは、3つのエネルギー準位を用いる、3準位サイクリックレーザー<sup>(2)</sup>である。レーザー上準位における粒子の寿命は、衝突断面積が大きく共鳴準位で遷移確率の大きいことから、数ns～数10ns程度であり、レーザー下準位は準安定準位であるため寿命は数100μs程度となる。このように下準位の寿命は、上準位のそれより10倍も長く、レーザーの発振に必要な反転分布が短時間に崩れるため、銅蒸気レーザーは、自己終端型となる。このため、3準位サイクリックレーザーは、本質的にパルスレーザーとなる。W.T.Walterらは、このような3準位サイクリックレーザーにおいて、高効率となる準位構造について考察している<sup>(3)</sup>。その準位構造の条件を以下に示す。

- (1) レーザー上準位は、基底準位から効率よく励起させるため、基底準位との間で光学的遷移が可能で、共鳴準位でなくてはならない。
- (2) レーザー下準位は基底準位との間で光学的遷移が禁止されている準安定準位でなくてはならない。
- (3) レーザー上準位と基底準位との間の自然放射において共鳴捕獲が十分に起こり、レーザー上準位とレーザー下準位間のレーザー遷移に対する遷移確率は1に近い値でなくてはならない。したがって、レーザー上準位は、光学的に基底準位と下準位とだけ結びついている方がよい。
- (4) レーザーの遷移確率 (A係数) は、反転分布成立のため励起レートより小さくなければならず、緩和レートより大きくなければならない。このため、A係数の実質的な値は、 $10^4 < A < 10^7 (s^{-1})$  程度でなくてはならない。
- (5) レーザー下準位には、
  - a) レーザー遷移は、低いエネルギー間の遷移を用いる方が効率は高くなる。
  - b) 非常に低いエネルギー準位は、熱励起により満たされているので、下準位のエネルギーは、基底準位より6000～1800( $cm^{-1}$ )程度上にあることが望ましい。

図2-1に、3準位サイクリックレーザーに関する典型的な準位構成を示す。表2-1に、3準位サイクリックレーザーのエネルギー準位構成を示す代表的な原子を示す。

表2-1

原子	発振波長 (nm)	原子	発振波長 (nm)
Ca	555	Au	312,628
Sr	431,416	Cd	713
Ba	1130,1500	Hg	1118
Mn	534,554,1290,1400	Tl	535
Cu	511,578	Pb	364,406,723

## 2.2 銅蒸気レーザー

銅蒸気レーザーは、銅の中性原子の波長510.6nmの緑色線と、578.2nmの黄色線のスペクトル線で発振するパルスレーザーである。銅蒸気レーザーの最初の発振は、1966年、W. T. Walterら<sup>(2)</sup>によって実現された。銅蒸気レーザーは、その利得が緑色線の波長510.6nmで58dB/m、黄色線の波長578.2nmで42dB/m<sup>(3)</sup>と大きく、多くのレーザーの中でも大出力<sup>(4)</sup>、高効率、高速繰り返し、高ピークパワー、短波パルス幅という特徴を持つ。

### 2.2.1 銅蒸気レーザーの分類

銅蒸気レーザーは、そのレーザー構成によっていくつかに分類することかできる。

#### (a) レーザ媒質

銅蒸気レーザーは、レーザー媒質に、金属銅を用いるものと、CuBr等のハロゲン化銅を用いるもの<sup>(5)</sup>の二種類に分類される。このレーザー媒質の違いは、融点の違いとなり、レーザー駆動に必要な蒸気圧を得るための温度、すなわち動作温度の違いとなる。表2.2に、銅およびハロゲン化銅の融点を示す。これから、銅の融点は非常に高く、レーザー駆動に必要な蒸気圧を得るには、1500℃前後まで加熱しなければならない。一方、ハロゲン化銅は金属銅に比べ融点が高いため、500℃程度の温度でレーザー発振に十分な蒸気圧が得られる。このことから、金属銅を用いたものを高温型銅蒸気レーザーとよび、ハロゲン化銅を用いたものを低温型（ハライド系）銅蒸気レーザーとよぶ。金属銅を用いる高温型銅蒸気レーザーは、低温型銅蒸気レーザーに比べて大出力・高効率である。しかし、高温型銅蒸気レーザーは、駆動温度が高いため、レーザー管は、アルミナ（Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:耐熱1900℃）等のセラミックス材質に限られてくるほか、加熱・保温および断熱などの装置も複雑になり<sup>(6)</sup>、取り扱いも難しくなってしまう。一方、低温型銅蒸気レーザーは、駆動温度が低温であるため、レーザー管は、通常の石英ガラスで十分である。また、加熱・断熱などの点で装置も簡単となる。

表2-2 銅およびハロゲン化銅の融点

物質名	Cu	CuCl	CuBr	CuI
融点(℃)	1083	422	504	604

#### (b) 加熱方式

レーザー発振に必要な蒸気圧を得るための加熱方法には、レーザー管を外から、ヒータなどで加熱する外部加熱方式と、高速繰り返し放電によるジュール熱で加熱する自己放電加熱方式がある。外部加熱方式は、パルス放電とは別の電気エネルギーを用いて加熱するので、放電電力に加熱電力を加えたものが入力電力となる。そのため、放電電力が入力電力となる自己加熱方式に比べ、全体的な効率は劣っている。しかし、外部加熱方式はヒータの電流制御によって温度の制御が容易<sup>(8)</sup>であるのに対し、自己放電加熱方式では温度調整は、難しい。

(c) 放電方式

レーザを励起するための放電の形式には、横放電方式と縦放電方式がある。横放電方式は放電電流の方向と光軸の方向が直行している構造のものであり、縦放電方式とは放電電流の方向と光軸の方向とが平行になっている構造のものである。横放電方式はその構造上、電極間距離が短くなるため、駆動ガス圧を高くすることができ大電流放電が可能となる<sup>9)</sup>。そのため、単位体積あたりの放電電力が大きくなり、縦放電方式に比べ、1パルス当たりのレーザ出力エネルギー密度は、1~3倍程度となる。さらに、放電回路のインダクタンスを小さくできるため電流の立ち上がりが速くなり効率増加の可能性もある。その反面、電流導入部の構造が複雑となることや、電極の放電面積が大きくなるため空間的に一様な放電を行うことが難しくなること、さらには放電加熱のみでは不十分となり、ヒータ等の外部加熱装置を用いる必要があるなどの短所がある。

(d) 励起・解離方法

ハロゲン化銅をレーザ媒質として用いる場合、化合物の解離および励起は、放電によって行われる。これらを行うための、放電方法は、ダブルパルス方式と高速繰り返し方式に分けられる。

ダブルパルス方式は、対をなす2つのパルスに解離と励起という役割をそれぞれ明確に区別させたもので、このパルスを数kHzで駆動させる。この方式は、1パルス当たりのレーザ出力を大きくできる反面、低速繰り返し駆動であるために平均レーザ出力を大きくすることか困難となってしまう。したがって、低温型銅蒸気レーザの駆動メカニズムの解明において用いられることが多い。

高速繰り返し方式は、数kHz~数10kHzの連続放電の1パルスに解離・励起の2つの役割を持たせたものである。この方式では、1パルス当たりのレーザ出力は小さくなってしまいが、その高速繰り返し性により平均レーザ出力は大きくなる。

図2-2に、これら2つのハロゲン化銅を用いる場合の解離・励起方式を示す。銅蒸気レーザの分類を、表2-3に示す。

表2-3 銅蒸気レーザの分類

媒質	加熱方法	放電形式	励起・解離方法
銅	外部加熱	縦放電	ダブルパルス
ハロゲン化銅	自己放電加熱	横放電	高速繰り返し



### 2.3 発振過程

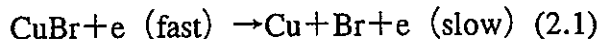
銅蒸気レーザーのエネルギー準位図を図2-3に示す。図から分かるように、銅蒸気レーザーは、 ${}^2P^{\circ}_{3/2}:30784\text{cm}^{-1}$ ,  ${}^2P^{\circ}_{1/2}:30585\text{cm}^{-1}$ を上準位とし、 ${}^2D^{\circ}_{5/2}:11203\text{cm}^{-1}$ ,  ${}^2D^{\circ}_{3/2}:11245\text{cm}^{-1}$ を下準位として動作する、3準位レーザーである。これから、波長510.6nmの緑色光および578.2nmの黄色光という2つの可視光を発振する。このエネルギー準位構成は、2.1で述べたW. T. Walterの条件を満たしており、理想的な金属蒸気レーザーのエネルギー準位構成を示している。次に、銅蒸気レーザーの発振の過程を順をおってのべる。

#### (1) レーザ媒質の蒸気化

銅蒸気レーザーにおいてレーザー発振を得るには、まず放電におけるジュール熱またはヒータ等によって加熱し銅を蒸気化する必要がある。銅の融点は非常に高く1083.4°Cであるが、ハロゲン化銅の場合その融点は、銅の場合と比べ低く、400~600°C程度である。レーザー発振に必要な銅蒸気圧のしきい値は、そのレーザーシステムの形式により異なるが、0.1~1Torr程度であるため、金属銅を用いた高温型銅蒸気レーザーでは1500°C程度に放電管温度を保たねばならないが、ハロゲン化銅を用いた低温型銅蒸気レーザーでは500~700°C程度で十分である。図2-4に、臭化銅の蒸気圧特性曲線を示す。

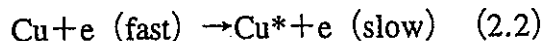
#### (2) 励起

低温型銅蒸気レーザーの場合、レーザー媒質であるハロゲン化銅を解離し、銅原子の基底状態密度を十分に高くしておく必要がある。解離は、放電プラズマにおける高速電子との衝突によって生じ、臭化銅CuBrの場合を例とすると、その解離過程は、



と表せる。

基底準位からレーザー上準位への励起は、放電プラズマにおける高速電子との電子衝突励起によってなされる。この励起過程は、次式のように表され、高速電子のエネルギーが銅原子の励起エネルギーに変換されることを示している。



式(2.2)の両辺で、エネルギーは、保存されており第一非弾性衝突に相当する。上準位の電子衝突断面積は、 $45 \times 10^{-16} \text{cm}^2$ で、下準位の電子衝突断面積 $2.9 \times 10^{-16} \text{cm}^2$ に比べ非常に大きいので、基底準位からの励起は、上準位の方へ選択的、効率的になされる。上準位は、第一共鳴準位であり、その寿命は数ns~10nsと非常に短く、レーザー発振に必要な反転分布を生じさせることは非常に難しい。しかし、レーザー管の温度が上昇し、基底状態にある銅原子の密度が十分に大きくなると、上準位からの自然放出光を、基底状態の銅原子が、放電管から出る前に吸収し、励起状態になる放射の封じ込めがおこる。この放射の封じ込めが生ずると、実質的な上準位の自然放出による寿命が長くなる。この現象を共鳴捕獲という。共鳴捕獲の度合いは共鳴捕獲因子Fによって表され、共鳴捕獲現象が生じているときの自然放出に対するアインシュタインの追移確率をAtとおけば、共鳴捕獲因子Fを用いて、

$$\text{At} = \text{FA} \quad (2.3)$$

で示される。ここに、 $A$ は共鳴捕獲現象を無視できるときの自然放出に対するインシュタインの遷移確率である。この共鳴捕獲因子 $F$ は、円筒状容器の場合、次式によって求められる。

$$F=1.6/KR[\pi \ln(KR)]^{1/2} \quad (2.4)$$

ここで、 $R$ はレーザ管の円筒状活性領域の半径、 $K$ は励起状態から緩和する粒子の放射に対する周囲粒子による吸収係数で次式で与えられる

$$K=[1/8\pi] [\ln 2/\pi]^{1/2} [\lambda/\Delta\nu][\lambda^2 A/\Delta\nu_D][g_u/g_l]N_0 \quad (2.5)$$

で与えられる。ここで、 $\lambda$ は共鳴線の波長、 $g_u, g_l$ はそれぞれ、レーザ上位、下準位における統計学的重率、 $N_0$ は基底状態の粒子密度である。 $\Delta\nu_D$ はドップラー線幅で、次式で与えられる。

$$\Delta\nu_D=\nu_0[2kT \ln 2/M c^2]^{1/2} \quad (2.6)$$

ここで、 $k$ はボルツマン定数、 $M$ は粒子の質量、 $T$ は絶対温度、 $c$ は光速度である<sup>9)</sup>。このような共鳴捕獲が生じるには基底状態の原子密度 $N_0$ が十分であることが必要であり、その密度 $N_0$ の条件は放電管半径を $R$ とすると、

$$N_0 R > 10^{13} \text{ cm}^2 \quad (2.7)$$

と表すことができる。

#### (c) レーザ遷移

この様に、共鳴捕獲によりレーザ上準位の寿命が延び、レーザ上位・下準位間での反転分布が生じると、レーザ発振が起こる。しかし、レーザ上準位の寿命が延びたとはいえ、レーザ下準位の寿命の方が $10^3$ 倍程度長いので、反転分布はすぐに崩れ、レーザ発進は停止する。これが、銅蒸気レーザがパルス発振をする所以であり、そのパルス幅は $10 \sim 100 \text{ ns}$ 程度と短い。したがって、励起には立ち上がりの速い放電電流が必要となる。

#### (d) 緩和

下準位は、基底準位と同じパリティを持つ放射遷移の禁止された準安定準位であり、寿命は $100 \mu\text{s}$ 程度と長く、レーザ駆動における繰り返し周波数の上限を決定する大きな要因となっている。ここで、この準位からの緩和の方法としては、

1. レーザ管壁との衝突
2. 低速電子との衝突
3. 異種原子との衝突
4. バッファガス原子との衝突

などの第二種非弾性衝突を用いた方法が考えられる。下準位の緩和方法としては、小口径のレーザ管を用いた場合は管壁との衝突が、大口径のレーザ管を用いた場合には管壁との距離が遠くなることから低速電子との衝突が有効であると考えられる。以上の発振過程をまとめる意味で、レーザ媒質に $\text{CuBr}$ を用いた場合の低温型銅蒸気

レーザの動作過程を、図2-5に示す。図2-5において、通常のレーザ駆動は、実線で示される過程をたどる。しかし、放電の繰り返し周波数が増加すると、解離および再結合の過程がなくなり、図の破線で示されるような駆動過程の短縮が生じる。これは、リサイクルと呼ばれる過程であり、放電による解離エネルギーが省かれることとなるので、効率の向上につながる。

参考文献

- (1) 前田三男：「量子エレクトロニクス」昭晃社 (1991) pp106-109
- (2) W. T. Walter et al: " Efficient Pulsed Cas Discharge Laser"  
IEEE.J.Quantum Electoron Vol.QE-4, No.9, (1966) pp474-479
- (3) 斎藤弘他：「セシウム添加によるCVLのレーザ下準位励起寿命時間の短縮」  
レーザ研究Vol. 20, No. 10, (1992) pp777-785
- (4) 斎藤健弥他：「再処理およびウラン濃縮技術開発」東芝レビュー  
Vol. 47, No. 11 (1992) pp848-851
- (5) L.A.Weaver et al.:"Superradiant Emission at 5106, 5700, and 5782 Pulsed Copper Iodine  
Disdhage" IEEE.J.Quantum Electoron Vol.QE-10,No.5, (1974) p140
- (6) 矢島連夫他：「新版レーザハンドブック」朝倉書店 (1989) p156
- (7) 理化学事典 岩波 (1989)
- (8) O.R.IIurazov et al. : "Externally heated CuBr Laser"  
Optics Communications Vol.78, No.1 (1990) p63
- (9) J. J. Kim : "Metal vapuor lasers: a review of recent progress"  
Optical and Quantum Electronics Vol.23 (1991) p469 - 476
- (10) 斎藤弘：「岩手大学斎藤研究室・茨城大学藤井研究室大学院合同ゼミナール資料」

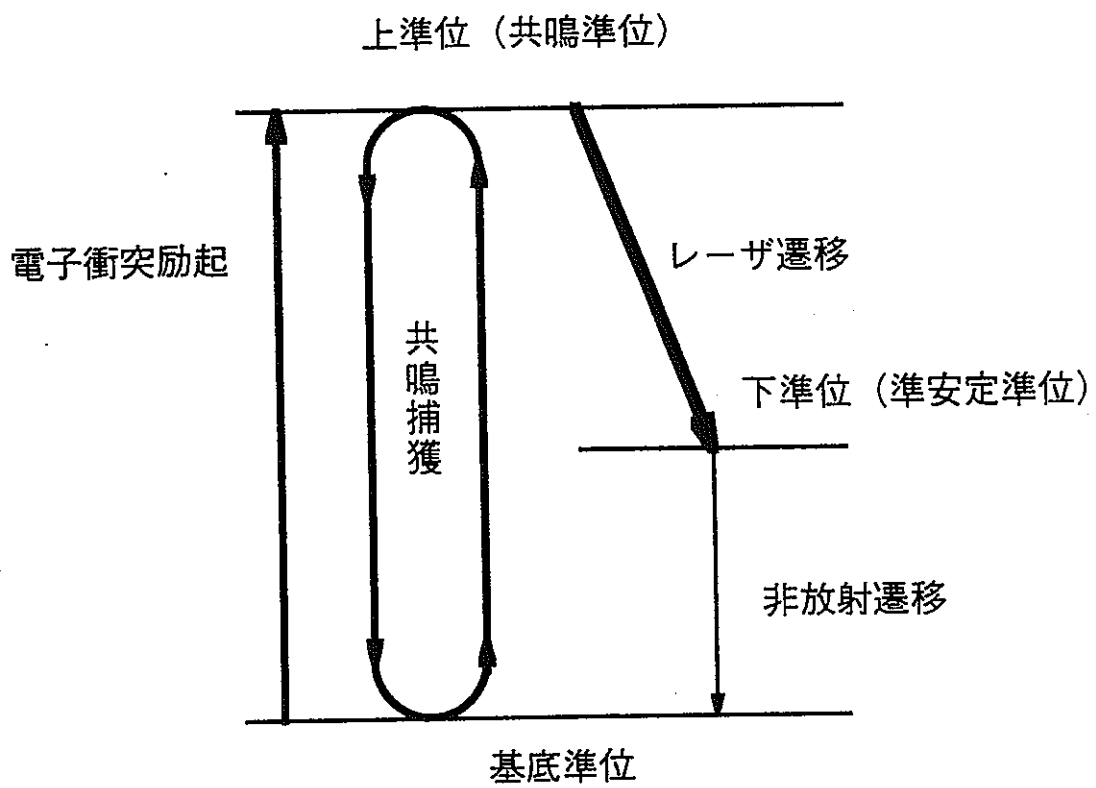
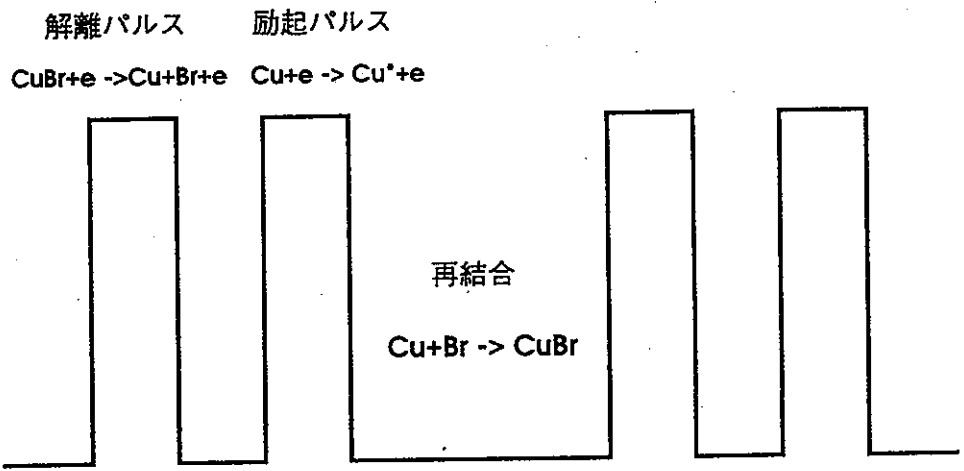
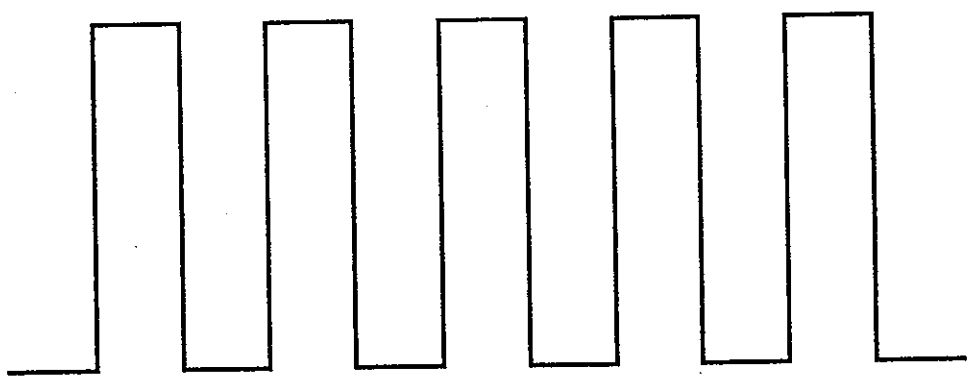


図2-1 3準位サイクリックレーザー準位図



(a) ダブルパルス法      パルス間隔：10～1000  $\mu\text{s}$   
 繰り返し周波数：数kHz

ワンパルスないで解離および励起を行う。



(b) 高速繰り返し法      繰り返し周波数：数～数10kHz

図2-2 ハロンゲン化銅を用いる場合の解離励起方法

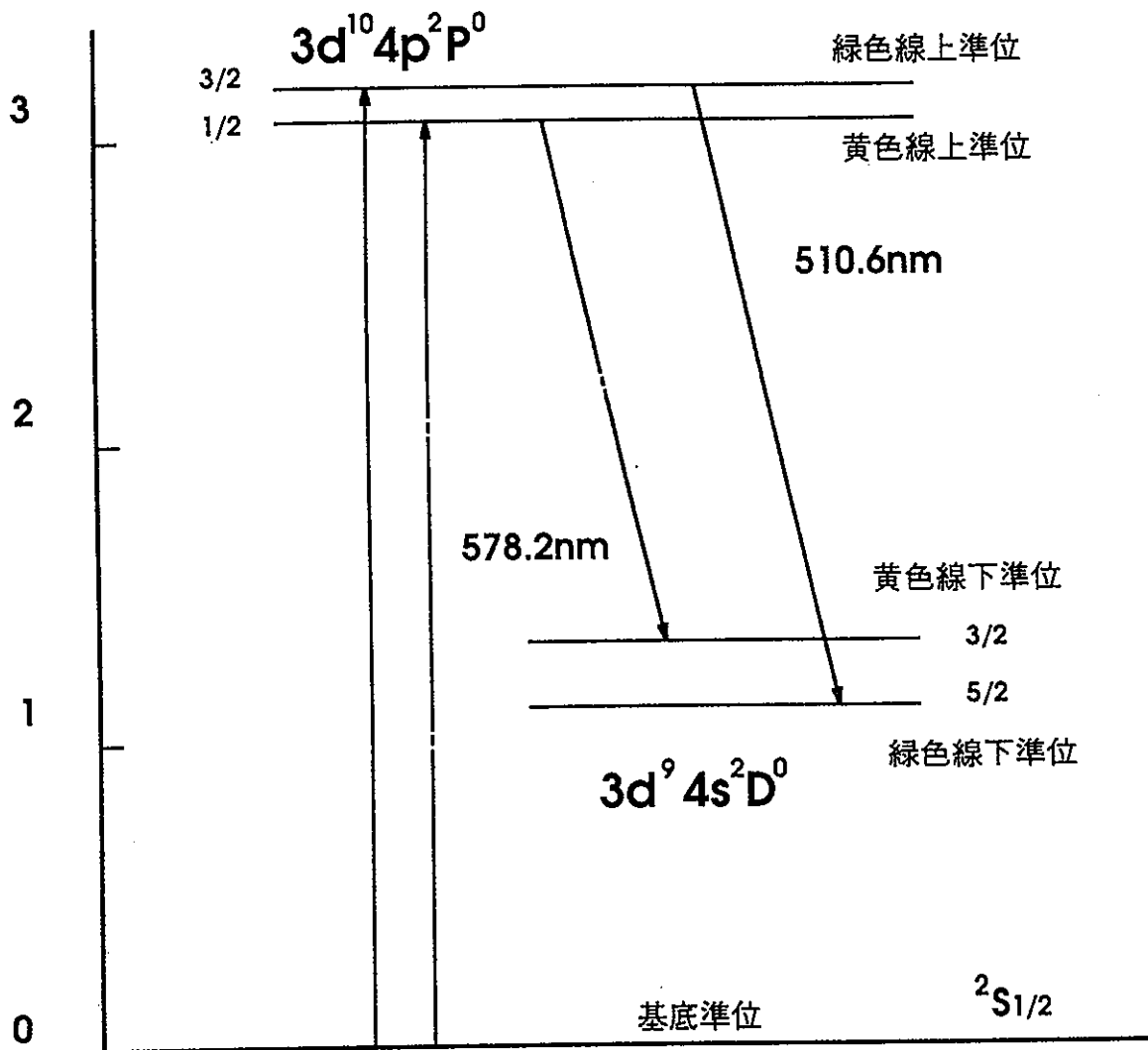


図2-3 銅蒸気レーザのエネルギー準位図

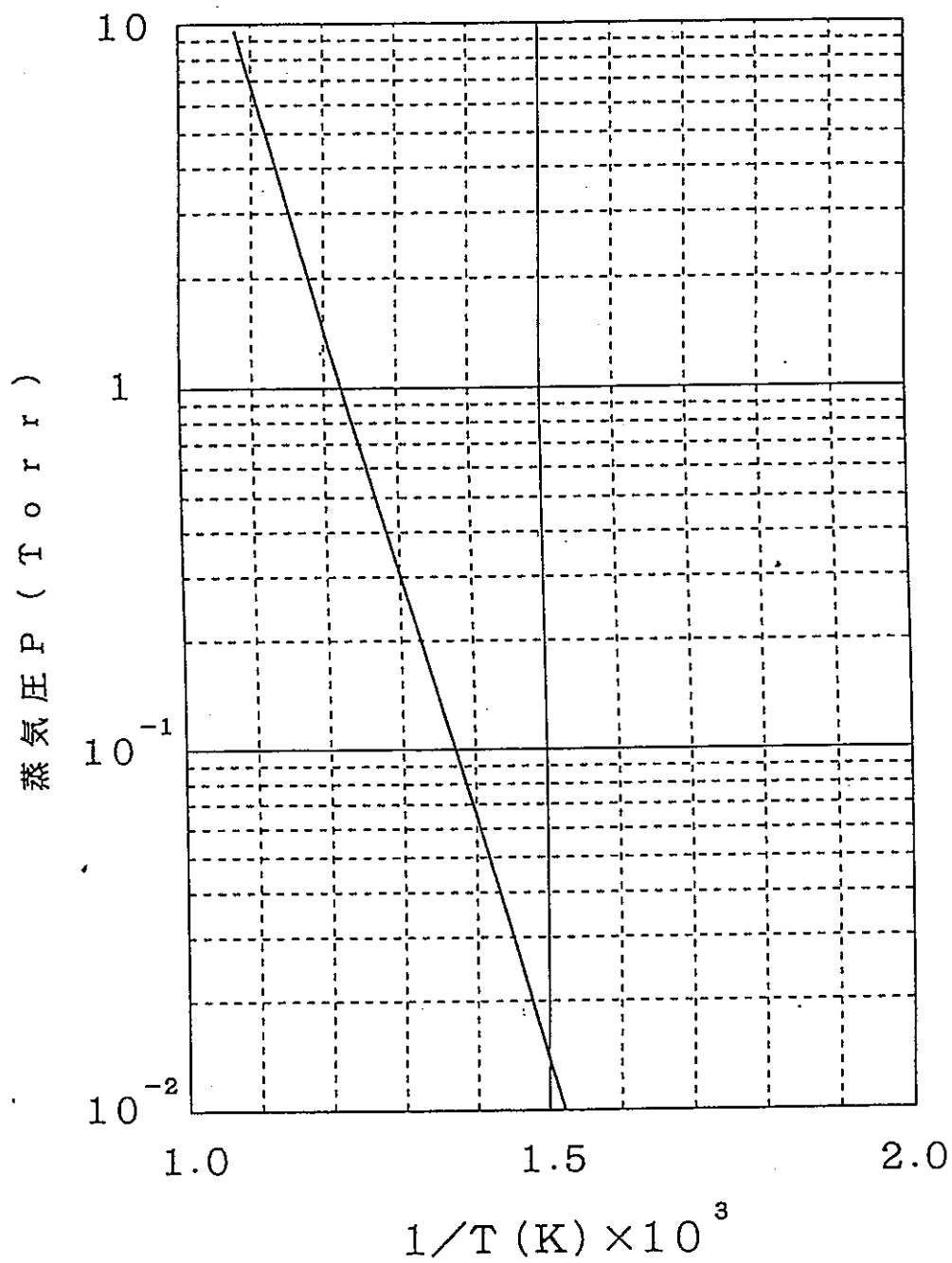


図 2 - 4 臭化銅の蒸気圧特性曲線<sup>(10)</sup>



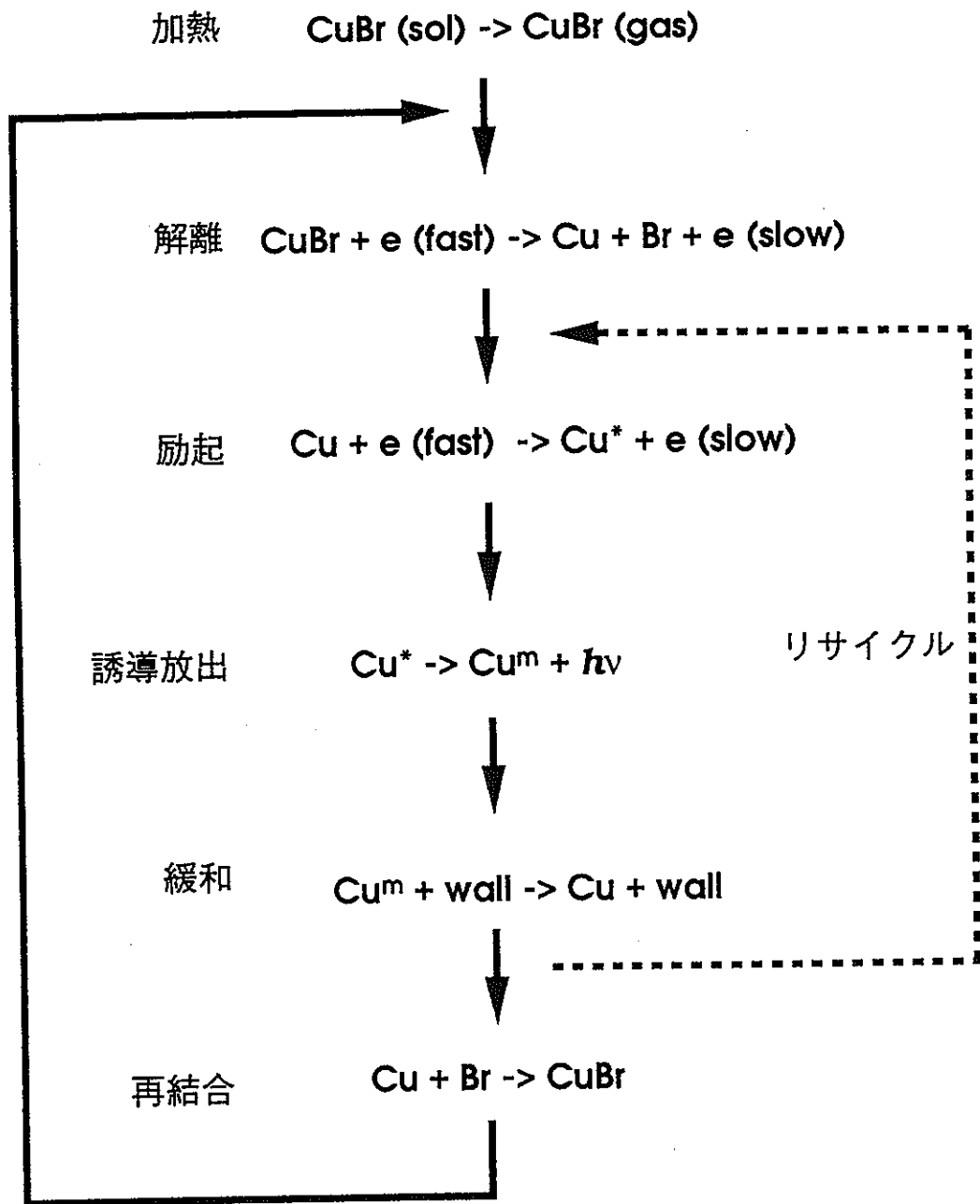


図 2-5 低温型銅蒸気レーザーの発振過程

### 第3章エネルギー移乗効果

#### 3.1 はじめに

銅蒸気レーザの大出力・高効率化には、強く持続時間の長い反転分布が必要となる。このような反転分布の形成は、エネルギー移乗の効果によってなされる。そこで、エネルギー移乗効果を説明する上で必要となる、非弾性衝突およびエネルギー移乗効果について次に述べる。

#### 3.2 非弾性衝突<sup>(1)</sup>

原子をはじめとする粒子は2つのエネルギーEは、次のように表される運動エネルギー $E_m$ とその粒子がもっている内部エネルギーの和によって与えられる。

$$E_m = m^2 v^2 / 2 \quad (3.1) \quad \text{粒子の質量: } m \quad \text{速度: } v$$

粒子の衝突においてエネルギーの変化が生じることとなるが、粒子間の衝突過程は、大まかに衝突気体の内部エネルギーが保持されるか否かによって、弾性衝突と非弾性衝突に分類できる。弾性衝突では、運動エネルギーの交換だけが生ずる。一方、非弾性衝突ではそのような制限はなく、内部エネルギーも変化する。さらに、非弾性衝突は、次に示すように、第一種非弾性衝突と第二種非弾性衝突に分類される。

- a) 第一種非弾性衝突 (Collision of the first kind)  
衝突する二粒子の、一方の運動エネルギーが、もう一方の粒子の内部エネルギーに転移する衝突。
- b) 第二種非弾性衝突 (Collision of the second kind)  
衝突する二粒子の、一方の内部エネルギーがもう一方の粒子の内部エネルギーとなる衝突をいう。

以上の関係を示すと図3-1および図3-2のようになる。また、第一種および第二種非弾性衝突に関して、次のような法則がある。

#### (A) 第一種非弾性衝突における法則

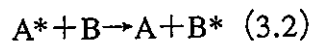
- (1) 電子が、原子と衝突する際の断面積は、基底状態と励起状態との間の遷移エネルギーに相当するしきい値を示す。
- (2) 電子エネルギーと励起準位の高さとの間には光励起の場合にみられるような、厳密な意味での共鳴的性質はない。
- (3) 光学的に基底状態と結合している準位に対する励起確率は高い。  
しかし、そのような準位では、共鳴的性質は弱い。
- (4) 同じ系列内で、励起準位が高なれば、その準位に対する励起断面積は、それに応じて速やかに減少する。

#### (B) 第二種非弾性衝突における法則

- (1) エネルギーを与える側の粒子の励起準位とエネルギーを受ける側の励起準位との差が少ないほど効率が高い。
- (2) 衝突の前後において二つの衝突粒子が保持する全スピンは不変である。ただし、エネルギー共鳴の効果の方が大きな影響力を持つのでスピン保存則が破られることがある。

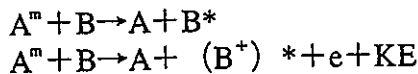
### 3.3 エネルギー移乗効果<sup>(2)(3)</sup>

エネルギー移乗 (energy transfer) は、第二種非弾性衝突によって原子間での内部エネルギーを交換することである。これにより、対象とする原子を選択的に効率よく励起または緩和させることができる。これは、各種レーザの発振機構において、多くの場合に用いられている。例としては、混合気体を用いた放電励起がある。気体レーザにおいて、単一気体放電では、レーザ発振が、得にくいという事実がある。この理由は気体レーザにおいてレーザ上準位への放電励起は放電プラズマ中の高速電子とレーザ媒質との間の第一種非弾性衝突を用いて行うわけであるが、3.2で述べた第一種非弾性衝突における法則<sup>(2)(3)</sup>より、レーザ下準位の励起がレーザ上準位への選択励起により起こりやすく、反転分布が起こりにくいからである。ここで、多量の添加気体Aとレーザ媒質気体Bの混合気体を用いると、電子が直接衝突するのは大多数をしめる原子Aとなり、原子Aは電離または励起される (第一種非弾性衝突)。この励起された原子Aは原子Bと第二種非弾性衝突を起こし、原子Bの特定準位が選択的に励起される。この過程は、次式のよう表せる。

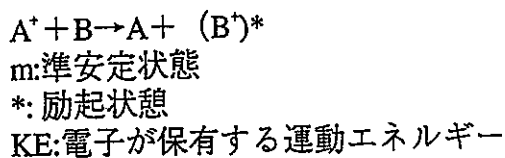


この場合、原子Aは原子Bのレーザ上準位に対し適当に選択されることとなる。この他にも、第二種非弾性衝突を用いた励起機構があり、その例を以下に示す。

#### 1. エネルギー転移機構



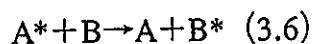
#### 2. 電荷転移機構



このエネルギー移乗効果を用いて、強く持続時間の長い反転分布の形成、すなわちレーザ上準位のエンハンスメントおよびレーザ下準位の緩和促進を成すことができる。この時、この二つの操作を行うにあたりレーザ媒質に対して添加する物質はその役割によって二つに分けられる。レーザ上準位のエンハンスメントを成す物質をエネルギードナー、レーザ下準位の緩和促進を成す物質をエネルギーアクセプタと呼ぶ。以下に、このエネルギードナーおよびエネルギーアクセプタについて説明を述べる。

#### 3.3.1 エネルギードナー

エネルギードナーは、レーザ媒質との第二種非弾性衝突によるエネルギー移乗によってレーザ上準位のエンハンスメントをなす物質である。エネルギードナーを原子A、レーザ媒質を原子Bとすると、このエンハンスメントの過程は式 (3.6) のように表せ、ドナー原子Aの励起準位のエネルギーが媒質Bのレーザ上準位への励起エネルギーに転換されることを意味する。



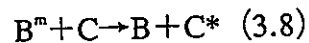
式 (3.6) において、左辺・右辺でのエネルギーは保存されており、したがって、原子と原子B間の励起準位のエネルギー差は小さい方がエネルギー移乗が効率的に生じる。さらに、レーザ上準位のエンハンスメントのためには、ドナー原子の励起準位密度が十分でなくてはならず、その準位の寿命も長くなければならない。なぜなら、ドナー原子Aの励起準位の寿命 $\tau_A$ がレーザ媒質原子Bのレーザ上準位の寿命 $\tau_B$ に比べて短いと、レーザ媒質原子Bからドナー原子Aへのエネルギー移乗が生じてしまうからである。よって、ドナー原子Aの励起準位の寿命 $\tau_A$ とレーザ媒質原子Bのレーザ上準位の寿命 $\tau_B$ の間には、

$$\tau_A \gg \tau_B \quad (3.7)$$

という条件がある。したがって、ドナー原子Aの励起準位は共鳴準位である方がよく、寿命の長い準安定準位ならばさらに良いことになる。

### 3.3.2 エネルギーアクセプタ

エネルギーアクセプタは、レーザ媒質との第二種非弾性衝突によるエネルギー移乗によってレーザ下準位の緩和促進を成す物質である。エネルギーアクセプタを原子C、レーザ媒質を原子Bとすると、この緩和促進の過程は式 (3.8) のように表せ、レーザ媒質原子Bのレーザ下準位のエネルギーがアクセプタ原子Cの励起エネルギーに転換されることを意味する。



式 (3.8) において左辺・右辺でのエネルギー差は、保存されている。したがって、レーザ媒質原子Bの準安定準位と原子Cの励起準位とのエネルギー差は小さい方がエネルギー移乗が効率的に生じる。さらに、レーザ下準位の緩和促進のためには、アクセプタ原子Cの基底準位密度が十分でなければならない。なぜなら、アクセプタ原子Cの基底準位密度が十分でないで媒質原子Bのエネルギー移乗による励起が生じにくいからである。一方、アクセプタ原子Cの励起準位密度は共鳴捕獲を生じるほど多くてはならず、その寿命は短くなければならない。これは、アクセプタ原子Cの励起準位の寿命 $\tau_C$ がレーザ媒質原子Bのレーザ下準位の寿命 $\tau_B$ に比べて長いとアクセプタ原子Cからレーザ媒質原子Bへのエネルギー移乗が生じてしまうからである。よって、アクセプタ原子Cの励起準位の寿命 $\tau_C$ とレーザ媒質原子Bのレーザ下準位の寿命 $\tau_B$ の間には、

$$\tau_B > \tau_C \quad (3.9)$$

という条件がある。したがって、アクセプタ原子Cの励起準位が共鳴準位である場合共鳴捕獲を生じないほどの適度な基底準位密度が必要となる。これらエネルギードナーおよびアクセプタのエネルギー的な準位関係を図3-3に示す。ここで、各エネルギー準位間でのエネルギー差 $\Delta W$ は、原子の持つ運動エネルギーによって補使されると考えられる。さらに、エネルギー移乗効果が起こる条件は、このエネルギー差 $\Delta W$ を用いて、

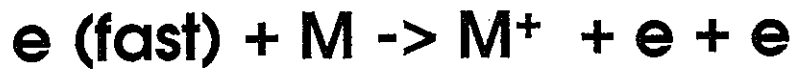
$$b/v \gg h/\Delta W \quad (3.10)$$

と表せることが知られている<sup>(4)</sup>。ここで、 $b$ は、両原子間の衝突径数、 $h$ は、プランク定数、 $v$ は相対速度である。

参考文献

- (1) B, N. Chapman: 「プラズマプロセッシングの基礎」 電気書院P21
- (2) 浅見義弘他: 「レーザ工学」 東京電機大学出版局P44
- (3) J. S. チャン他: 「電離気体の原子分子過程」 東京大学出版局P58
- (4) 霜田光一他: 「量子エレクトロニクス上巻」 P304裳華房 (1972)

電離



解離

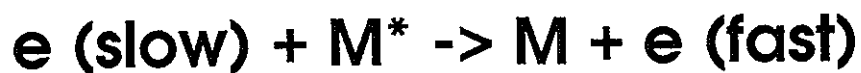


電離



図3-1 第1種非弾性衝突

超弾性衝突



電離



図3-2 第2種非弾性衝突

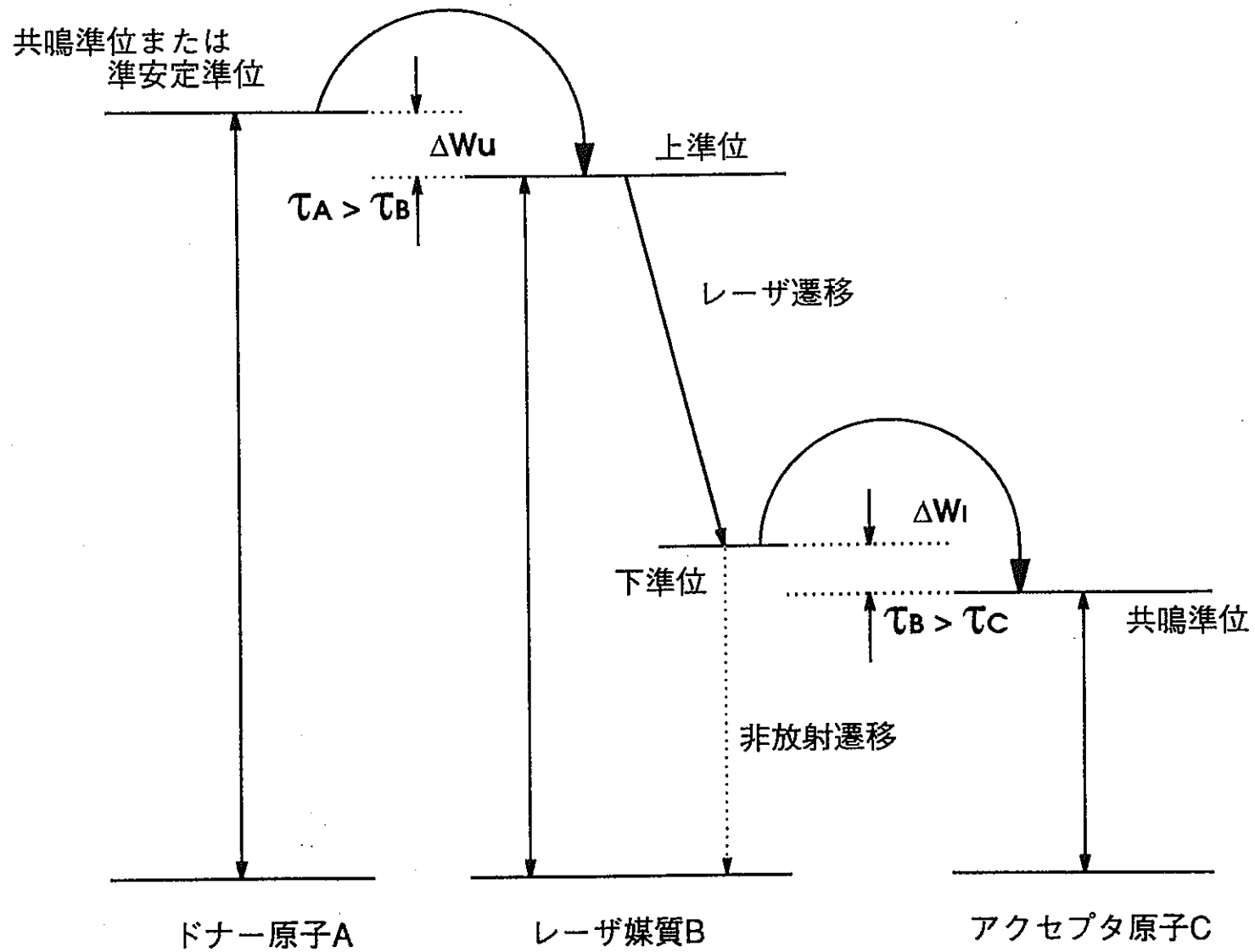


図3-3 エネルギー移乗に関する準位図

## 第4章準安定準位における再励起

### 4.1はじめに

銅蒸気レーザにおいてレーザ出力および効率の増加をもたらす要因として、

- (a) レーザ上準位のエンハンスメント
- (b) レーザ下準位の緩和促進

の2つがあげられる。特に、レーザ下準位の緩和促進は、銅蒸気レーザの駆動特性そのものを変える可能性を有している。銅蒸気レーザにおいて、その本質的なパルス発振特性は、レーザ下準位が、寿命の長い準安定準位で、レーザ発振に必要な反転分布が、短時間に崩れてしまう事による。したがって、レーザ下準位の緩和促進は、パルス幅の拡張および繰り返し周波数の増加を可能とし、準連続発振、最終的には連続発振へと至る大きな足がかりであるからである<sup>(1)</sup>。エネルギーアクセプタによるエネルギー移乗効果を用いたレーザ下準位の緩和促進はまさに、この成果を期待したものである。ここでは、これまで銅蒸気レーザにおいてエネルギーアクセプタとして考えられてきたセシウムによる準安定準位の再励起について述べる、さらに、この再励起の過程を3準位サイクリックレーザに一般化し、発展させてゆく。

### 4.2セシウムの新しい可能性

銅蒸気レーザにおいてセシウムは、エネルギーアクセプタとしてレーザ下準位にある銅原子を失活させる意図で用いられてきた<sup>(2)(3)</sup>。銅およびセシウムのエネルギー準位図を、図4-1に示す。図よりわかるように、セシウムはレーザ下準位 ( ${}^2D^{\circ}_{5/2}=11203\text{cm}^{-1}$ ,  ${}^2D^{\circ}_{3/2}=13245\text{cm}^{-1}$ ) と近い準位に共鳴準位 ( ${}^2P^{\circ}_{1/2}=11178\text{cm}^{-1}$ ,  ${}^2P^{\circ}_{3/2}=11723\text{cm}^{-1}$ ) を持っており、この準位からのエネルギー移乗によりレーザ下準位の緩和促進をなそうというものである。

上記のエネルギー移乗の過程において、レーザ下準位の銅原子の持つエネルギーは基底状態のセシウム原子に与えられ、セシウム原子の自然放出光としてレーザ管外に放射される。見方を変えると、レーザ下準位の緩和は、その状態の持つ内部エネルギーを他のエネルギー形態によって消費させていることにほかならず、エネルギーの損失である。

このために、レーザ下準位の持つエネルギーを、レーザ出力および効率向上のために用いるを考える。すなわちレーザ上準位のエンハンスメントに用いることを考える。

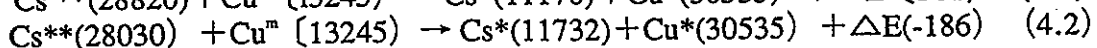
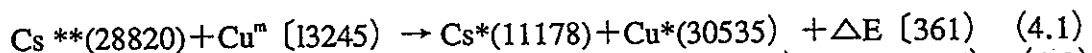
ここで、レーザ下準位の持つエネルギーをレーザ上準位のエンハンスメントのために用いることの利点は、直接基底準位から励起するよりも小さいエネルギーでレーザ下準位からレーザ上準位へと再励起されるにある。

そこで、添加原子としてセシウムを選び、銅蒸気レーザの黄色のラインにおいて、この再励起の過程を吟味した。黄色のライン ( $3d^{10}4p^2P^{\circ}_{1/2}=30535\text{cm}^{-1} \rightarrow 3d^94s^2D^{\circ}_{3/2}=13245\text{cm}^{-1}$ ) において、再励起に必要なエネルギーは、 $80535-13245=17290$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) となる。この再励起に必要なエネルギー $17290$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) に近い値を、エネルギー差として有するに準位をスペクトル表<sup>(4)</sup>より探すと、

$$22829 \text{ (cm}^{-1}\text{)} \rightarrow 11178 \text{ (cm}^{-1}\text{)}$$

$$22803 \text{ (cm}^{-1}\text{)} \rightarrow 11732 \text{ (cm}^{-1}\text{)}$$

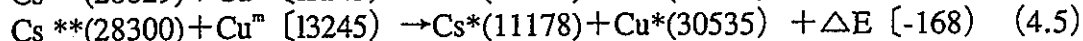
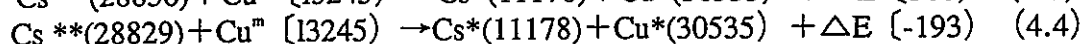
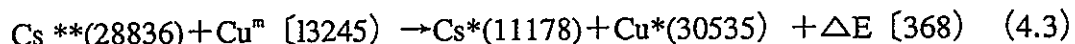
という2つの準位対が見い出される。これらの準位対のうち上位のものをCs\*\*、下位のものをCs\*とすると、レーザ上準位のエンハンスメントは、次に示されるような衝突の過程によってなされることとなる。





ここで、 $\text{Cu}^m$ および $\text{Cu}^*$ は、それぞれ黄色のラインのレーザ下準位、上準位を表している。さらに、これらのエネルギー差 $\Delta E$ はいずれの場合も原子の熱運動エネルギー $W_{th}$ のよって十分補償される範囲である。

ところで、(4.1)および(4.2)は、その準位間で光学的遷移の許されている準位対であった。しかし、この再励起は衝突の過程によって生じるので、光学的遷移という制約は受けない。このことを考案すると、新たに、



という3つの衝突再励起過程が見いだせる。ここで、これらのエネルギー差 $\Delta E$ は、いずれの場合も原子の熱運動エネルギー $W_{th}$ のよって十分補償される範囲である。図4-2に、(4.1)~(4.5)の再励起におけるエネルギー準位図を示す。

#### 4.3 3準位サイクリックレーザにおける再励起

前節においてセシウムを用いた銅蒸気レーザの再励起に関して述べた。しかし、このような再励起の過程は、セシウムと銅に限ったことではなく、対象とする3準位サイクリックレーザに対し添加原子を適当に選択すれば可能となる。その場合、再励起の過程は、レーザ媒質原子をA、添加原子をBとすれば、

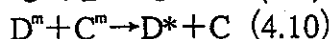
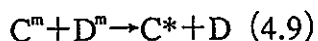


と表せる。図4-8に、この場合の再励起におけるエネルギー準位図を示す。ここで、この再励起の過程は衝突によって生じるので、添加原子Bの上位の励起準位 $B^{**}$ は準安定準位であっても構わない。そればかりか、寿命の長い準安定準位の方が、その状態にとどまる時間が長いため準安定準位にあるレーザ媒質原子 $A^m$ との衝突の可能性が高くなり、再励起が効率よく生ずると考えられる。岩手大学齋藤弘教授は、2種類の3準位サイクリックレーザ媒質において、レーザ下準位エネルギーによる相互の再励起の過程を提案されている<sup>6)</sup>図4-4に、この場合再励起におけるエネルギー準位図を示す。この場合、2種類のレーザ媒質をそれぞれCおよびDとすると、それらの各準位のエネルギーにおいて

$$\Delta E_C \doteq \Delta E_{D0} \quad (4.7)$$

$$\Delta E_D \doteq \Delta E_{C0} \quad (4.8)$$

という条件はあるものの、この条件を満たせば、次式



のような衝突過程によって、相互に再励起がなされることとなる。この場合、衝突においてエネルギーを与える原子の準位は、寿命の長い準安定準位であるため衝突の可能性は非常に高く、相互に効率よく再励起が生ずるものと考えられる。

参考文献

- (1) J. J. Kim "Metal vapour lasers: a review of recent progress"  
Optical and Quantum Electronics Vol.23 (1991) pp469-476
- (2) 斎藤弘他 「セシウム添加によるCVLのレーザ下準位励起寿命時間の短縮」  
レーザ研究Vol.20, No.10, (1992) pp777 - 785
- (3) Y. Masumura et al.: "Improvement of the lasing performance of the CuCl - He laser by adding Ag atoms as energy donors and Cs atoms as energy acceptors"  
Appl. Phys. Lett. Vol.64 (25), No.20 (1994)
- (4) C. E. Corliss et al.: "Experimental Transition Probabilities for Spectral Lines of Seventy Elements"  
National Bureau of Standards Monograph.53 (1962) p79
- (5) 斎藤弘 「岩手大学斎藤研究室・茨城大学藤井研究室大学院合同ゼミナール資料」

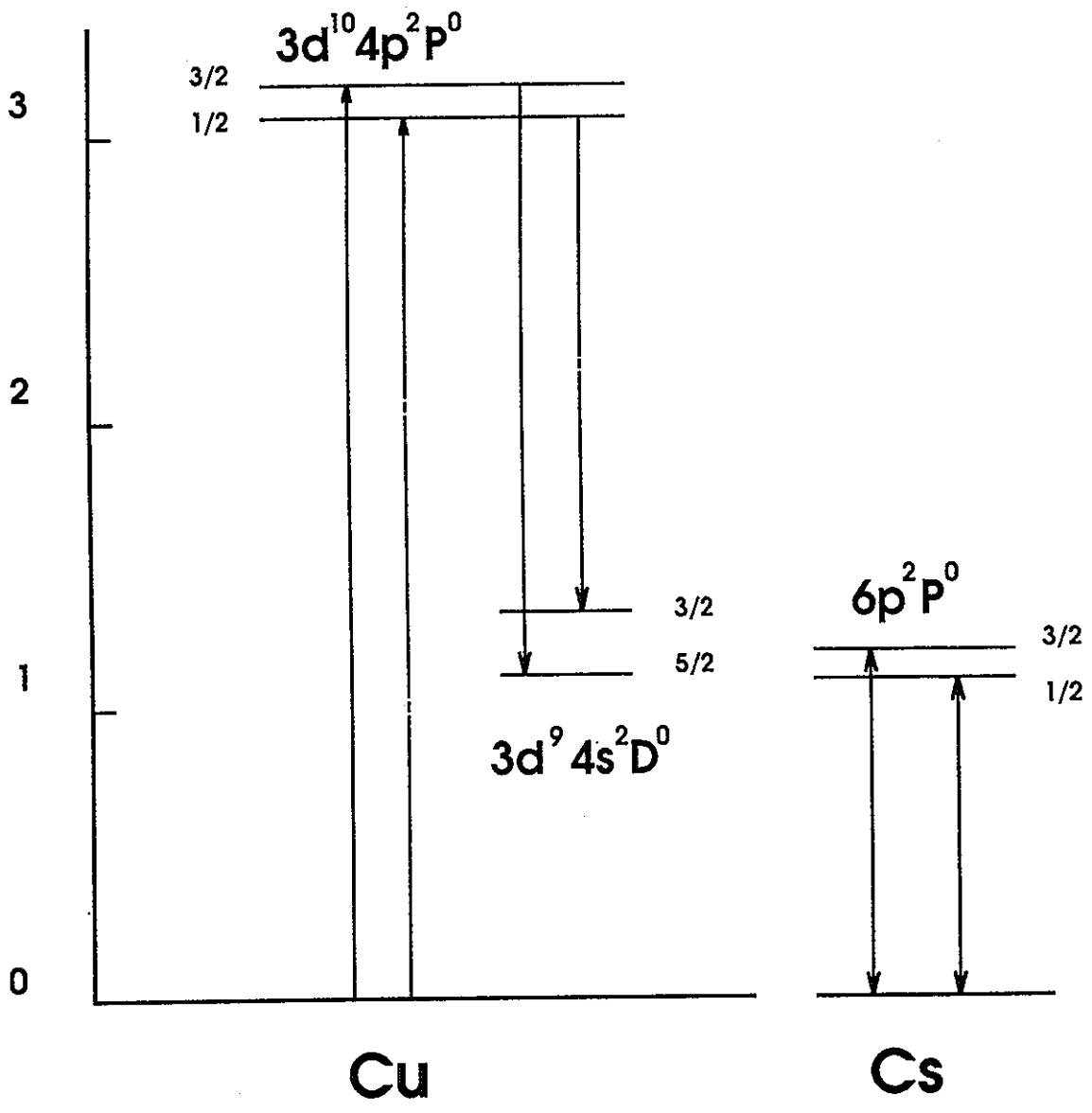


図4-1 銅およびセシウムエネルギー準位図

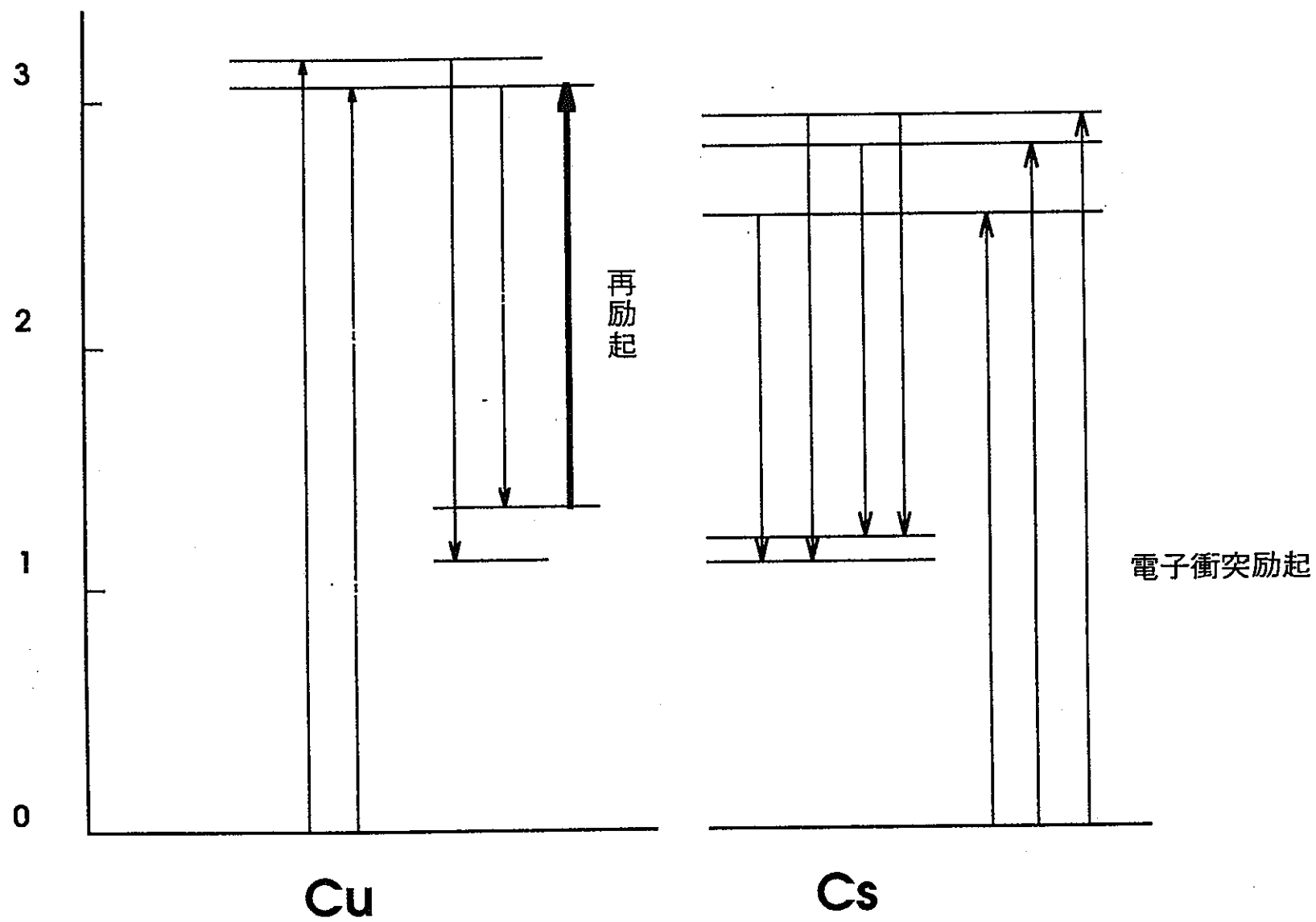


図4-2 セシウムによるレーザー下準位の再励起

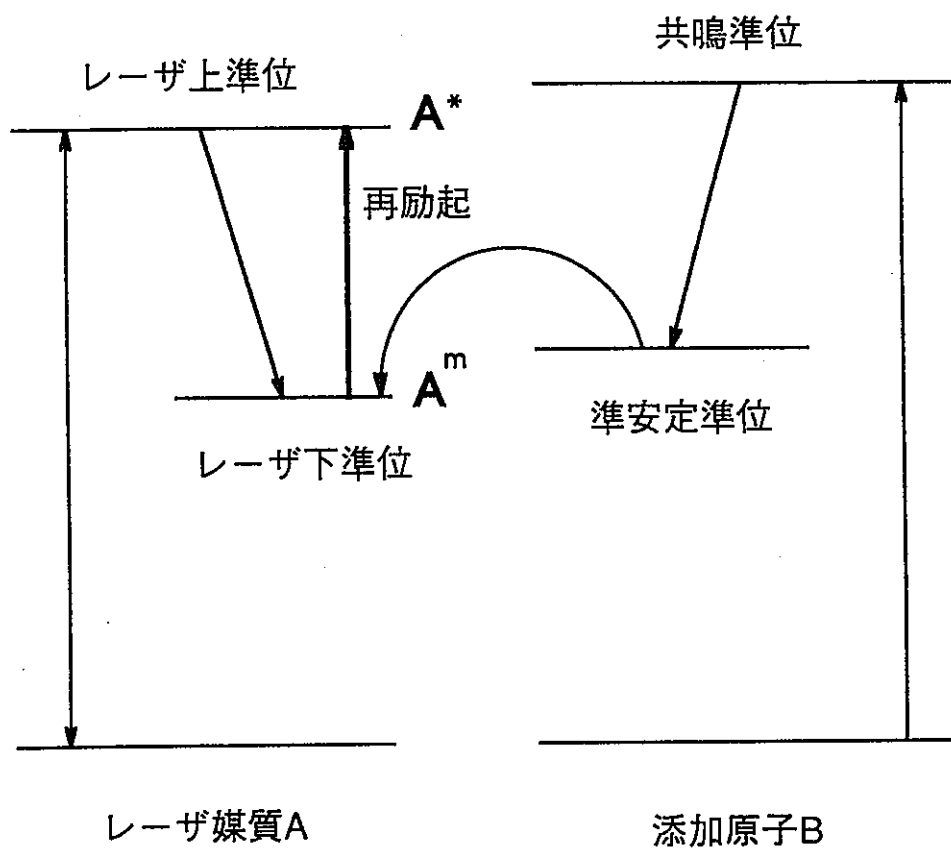


図4-3 レーザ下準位の再励起

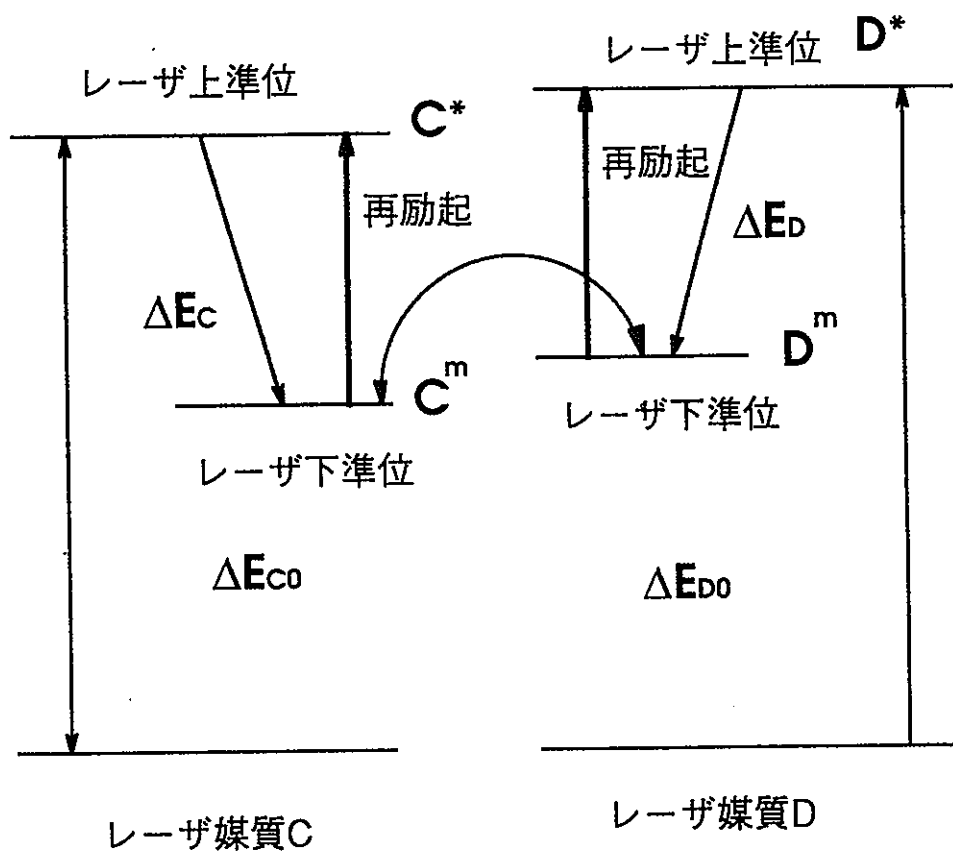


図4-4 レーザ下準位による相互再励起

## 第5章 実験および結果の考察

### 5.1 はじめに

本試験で、銅蒸気レーザに対するエネルギー移乗効果の作用を調べる。実験は、パイプナ光電管によるレーザ光の出力波形の解析という形で行う。出力波形へのエネルギー移乗効果の現れは、出力の増加、およびそのパルス幅の拡張という形で現れると考えられ、このレーザ出力波形の変化を解析する。

### 5.2 レーザ装置

以下に、今回の研究で用いた銅蒸気レーザ装置についての詳細を述べる。この銅蒸気レーザは、2.2.で述べた分類によると、ハロゲン化銅 (CuBr) , 自己放電加熱, 縦放電, 高速繰り返しの低温型銅蒸気レーザとなる。

#### 5.2.1 レーザ管

図5-1にレーザ管の概略図を示す。レーザ管は、大きくブリュースター部、フランジ、電極部、放電管および保温層という部分で構成されている。ブリュースター部には、反射損失軽減のため光軸に対しブリュースター角に傾けた窓が取り付けられている。ブリュースター角 $\theta_B$ と窓の材質の屈折率 $n$ との間に

$$\tan\theta_B = n \quad (5.1)$$

なる関係が成り立つ。窓の材質BK7が波長510~580nmの付近で $n=1.51$ なる屈折率<sup>(4)</sup>を持つから、ブリュースター角を $\theta_B=56.5\text{deg}$ とした。

電極部は、放電にさらされる部分を真鍮製とし、その先端に放電の平等・安定化を図るためにステンレスメッシュ製の内径9mmの円筒電極が取り付けられている。放電管は、外管・内管の2重構造となっている。

外管は、真空容器としての働きを持ち、真空状態におけるフランジとのストレスに耐え得るように外径50mm、肉厚5mmのパイレックス管とした。

内管は、実際に放電の生じる部分で、この銅蒸気レーザは、低温で駆動するので、通常の耐熱パイレックスガラス製である。寸法は、内径17mm、放電長200mm、放電体積45.4cm<sup>3</sup>である。

保温層は、放電管の外管と内管との間、厚さ10mm、長さ200mmにわたってガラスウールが内管をとりまく構造で設けてある。これによって、放電管を駆動温度500℃付近に保っている。

ブリュースター部、電極部、およびフランジはアルミニウム製であり、それぞれ放電外管とともにOリング挿入して取り付けられており、気密性が取られている。レーザ媒質である1gの臭化銅CuBrは、放電管内管に一様に封入されている。

パuffアガスの流入・流出口は、ブリュースター窓の汚染を防ぐ意味でブリュースター部にあり、陰極側から陽極側へフローさせている。

### 5.2.2 放電回路

図5-2に放電回路を示す。この回路は、電荷転移型放電回路と呼ばれるもので、直流電力源により充電コンデンサC<sub>1</sub>に充うされた電荷をダイレクトドライブパルサ(DDP)のスイッチング作用によってピーキングコンデンサC<sub>2</sub>に移行させ、その電圧によって放電管で放電を生じさせるものである。

この回路における各パラメータの値は、C<sub>1</sub>=1000pF、C<sub>2</sub>=500pF、R=100Ωである。

C<sub>1</sub>:C<sub>2</sub>=2:1より、コンデンサC<sub>2</sub>および電極間には充電電圧の2倍の電圧がかかることとなる。銅蒸気レーザの放電回路において一般に用いられている値である。しかし、その実際のパラメータの値は、放電管とのマッチングにより、最適値は各レーザシステムにより異なる。

この回路で用いているダイレクトドライブパルサを含めた電源部は、半導体素子によりスイッチング動作を行うことから、スイッチングにプラズマを用いたサイラトロンと比較して固体化電源と呼ばれる<sup>2)</sup>。銅蒸気レーザでは短時間に励起を行う必要があるため、電流の立ち上がり速度が速く、大電力のパルス源が必要となる。

このようなスイッチングの条件を満たすものとして、従来、プラズマを用いたガス放電スイッチであるサイラトロン<sup>4)</sup>が広く用いられてきたが、サイラトロンは、ジッタが大きく、封入ガスや電極の劣化による寿命があり、また、高価な素子である。このため、同位体分離などの実際の使用には、メンテナンス、コストなどの面が、問題となる。そこで、寿命が半永久的である半導体を用いた固体化電源の開発が急がた。そこで、SIサイリスタを用いた固体化電源が実現された。しかし、SIサイリスタは、中速の半導体デバイスである。また、実現された電源は、可飽和リアクトルを併用した磁気圧縮回路であった。このため、印加電圧の範囲が狭く、伝達効率か低いという問題点が残った。そこで、この問題を、解決するために、三菱電機(株)中央研究所において、パワーMOSFETを直並列に接続した大容量スイッチが開発された<sup>5)</sup>。このスイッチは、可飽和リアクトルとの併用ではなく、直接入力でスイッチングを行い、さらにパワーMOSFETは高速の半導体デバイスであることから、高速の繰り返し駆動が可能となった。本実験で用いた電源も、このパワーMOSFETを用いた高速半導体デバイスによる直並列ダイレクトドライブパルサ(DDP)である。この固体化電源の仕様を表5.1に示し、さらに図5-2の放電回路におけるC<sub>1</sub>への充電電圧波形を図5-3に示す。

表5-1 固体化電源の仕様

最大電圧	5.5kV
最大電流	150A
最大繰り返し	100kHz
最大入力電力	400W

### 5.2.3 共振器

共振器は、片短半径共振器の安定共振器である。全反射ミラーは、緑色光の波長510.6nmおよび黄色光の波長578.2nmにおいて99.9%の反射率を持つ、曲率半径R=3mの多層膜ミラーである。出力ミラーは、波長510.6nmにおいて反射率14%の石英板(R=∞)である。ミラー間の距離は、0.9mである。



### 5.2.4 真空・排気系装置

図5-4に、真空・排気系装置の概略図を示す。真空・排気系は、レーザ発振前に、レーザ管内の不純物を除去し、レーザ発振中は適した銅の蒸気圧への制御およびバッファガスをフローさせる役割を持つ。銅蒸気レーザは、利得が高いことから発振前の装置の真空到達度は、 $10^3$ Torr程度で十分である。このために、排気装置は、油拡散ポンプを用いずに、ロータリーポンプだけである。排気に際しては、レーザ発振中、バッファガスとともにハロゲン化銅が、ロータリーポンプへ流入しないようガラスウールによるトラップを設けてある。

## 5.3 実験方法

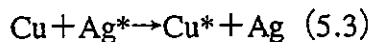
### 5.3.1 銀およびセシウムによるエネルギー移乗効果

エネルギー移乗により銅蒸気レーザの駆動特性へ期待される効果は、その反転分布の増強である。すなわち、強く持続時間の長い反転分布の形成には、

- (a) レーザ上準位のエンハンスメント
- (b) レーザ下準位の緩和促進

という2つの要因が考えられ、エネルギードナーによって(a)、エネルギーアクセプタによって(b)の作用を成そうというものである。

本実験では、エネルギードナーとして銀Ag、エネルギーアクセプタとしてセシウムCsを用いて実験を行った。図5-5に、エネルギー移乗に関する各原子のエネルギー準位図を示す。図5-5よりわかるように、銀原子は、銅蒸気レーザのレーザ上準位 ( $^2P^{\circ}_{3/2}=30784\text{cm}^{-1}$ ,  $^2P^{\circ}_{1/2}=30585\text{cm}^{-1}$ ) と非常に近い準位に共鳴準位 ( $^2P^{\circ}_{3/2}=30473\text{cm}^{-1}$ ) を持っている。レーザ上準位と銀の共鳴準位とのエネルギー差はそれぞれ $811\text{cm}^{-1}$ 、 $62\text{cm}^{-1}$ であり、原子の連動エネルギーの値より十分小さいため、これらの原子間での衝突によってエネルギー移乗が生じ、レーザ上準位のエンハンスメントが成されると考えられる。この衝突の過程は、次式のように表せる。



レーザ上準位のエンハンスメントのためには、銀原子が長く共鳴準位にとどまっている必要がある。3.8.1において述べたように、銀の共鳴準位の寿命が銅のそれに比べ短いと、銅から銀へとエネルギー移乗が生じてしまうため、銀の共鳴準位はレーザ上準位よりも長時間の強い共鳴捕獲を生ずる必要がある。そのため銀の基底準位密度は高い必要がある。図5-5よりわかるように、セシウム原子は、銅蒸気レーザのレーザ下位準位 ( $^2D^{\circ}_{5/2}=11203\text{cm}^{-1}$ ,  $^2D^{\circ}_{3/2}=1324\text{cm}^{-1}$ ) と非常に近い準位に共鳴準位 ( $^2P^{\circ}_{3/2}=11732\text{cm}^{-1}$ ,  $^2P^{\circ}_{1/2}=11178\text{cm}^{-1}$ ) を持っているため、これらの原子間での衝突によってエネルギー移乗が生じ、レーザ下準位の緩和促進が成されると考えられる。この衝突の過程は、次式のように表せる。



3.3.2において述べたように、セシウムの共鳴準位の寿命が共鳴捕獲により長くなるとセシウムから銅へのエネルギー移乗が生じてしまう可能性が高くなるため、レーザ下準位の緩和促進のためには、セシウム原子の基底準位密度は共鳴捕獲を起こさない程度に十分高くなければならない。本実験において、銀およびセシウムは臭化物の形で、それぞれ臭化銀および臭化セシウムとして添加した。

各物質の融点を、表5-2に示す。

表5-2 各物質の融点

物質	CuBr	AgBr	CsBr
融点(°C)	504	434	636

### 5.3.2 測定装置

実験は、バイプラナ光電管（浜松ホトニクスR1933U-03）によるレーザ出力波形の解析という形で行った。図5-6に、バイプラナ光電管の模式図を示す<sup>7)</sup>。バイプラナ光電管は、真空中において円板形の光電陰極（光電面）とメッシュ形の陽極とを対向させた形（bi-plane構造）している。入射された光は、メッシュ形の陽極を通過し、光電陰極に照射する。すると、入射光によって光電陰極の電子が励起され光電子放出が生る。放出された光電子はメッシュ形陽極に収集され、この時流れる電流が出力となる。光電子のもつエネルギー $E$ は、 $h\nu$ を受光する光子のエネルギー、 $W$ を光電陰極の仕事関数とすれば、

$$E = h\nu - W \quad (5.5)$$

で与えられるため、この式より受光する光の波長と使用すべき光電陰極の材料が決定される。また、正確な波形を得るためには空間電荷の影響を少なくする必要があり、高い印加電圧（1~2kV）を必要とする<sup>8)</sup>。図5-7に、バイプラナ光電管の分光感度特性を示す<sup>7)</sup>。図5-7より、緑（510.6nm）および黄色（578.2nm）のレーザ光に対する分光感度を、それぞれ40mA/W、25mA/Wとした。図5-8に、測定系を示す。

## 5.4 実験結果および考察

### 5.4.1 レーザ出力の充電電圧特性

本実験で用いた銅蒸気レーザは、5.2で述べたように自己放電加熱型である。このためにレーザ媒質の温度は、電源の充電電圧および放電繰り返しに依存する。これより、レーザ駆動特性は、充電電圧に大きく依存する。そこで、充電電圧をパラメータとし、各電圧におけるレーザ出力を測定した。図5-8に、各電圧における発振後1時間のレーザ出力の推移を示す。ここで、充電電圧以外の実験条件は、Ne流量300cc/min、繰り返し周波数30kHz、Ne圧力100Torrとした。

これより、充電電圧の増加に伴いレーザ出力は増加していることがわかる。しかし、充電電圧4.2kVの場合、実際の放電状態は非常に不安定であり、レーザ発振も絶えず変動した。これは、放電管温度の上昇にともない、レーザ媒質の蒸気圧が必要以上に高くなってしまったためと考えられる。さらに、充電電圧4.2kVの場合、発振は45分で停止してしまった。この短い発振寿命も、放電管温度上昇により、レーザ媒質の蒸気圧が高くなったため、Neバッファガスとともに流出するレーザ媒質蒸気が増加したためと考えられる。

充電電圧3.7kVおよび4.0kVの場合においては、安定した放電が得られ、レーザ発振も安定していた。これらの場合、レーザ出力は、発振開始からおよそ5分後にピークとなり、その後は緩やかな減少を示した。この単調な減少は、長時間の発振の後には放電管の内壁に銅の析出が見られることから、解離した銅が臭素と再結合する

ことなく管壁に析出してしまい銅の落気密度の減少を導いているためと考えられる。

この充電電圧特性より、安定した高いレーザ出力の得られた4.0kVを充電電圧の最連値とし、以降の実験においてはこの値を用いる。よって、以降の実験条件は、

充電電圧：4.0kV  
 繰り返し周波数：30kHz  
 Ne流量：300cc/min  
 Ne圧力：100Torr

とした。

図5-11に、ダイクロイックミラーで緑色光と黄色光に分離した後の黄色光のレーザ出力波形を示す。黄色のレーザ出力は、緑色光と黄色光との合計レーザ出力に比べ10分の1程度と小さく、その波頭部には歪みが生じている。緑色光と黄色光との間には発振に関して位相差が存在していることは知られており、さらにダイクロイックミラーの波長分確が完全でないことを考慮すると、図5-11の黄色のレーザ出力は、元来小さな黄色光のレーザ出力とダイクロイックミラーにより反射してしまった数パーセントの緑色光との和であると考えられる。しかし、黄色光が緑色光に比べ非常に小さいことは明らかであるため、今後のレーザ出力波形の解析は、緑色光と黄色光とに分離せず合計のレーザ出力として行う。

#### 5.4.2 レーザ出力波形の測定

レーザ発振後3分および7分後の、緑色光と黄色光との合計したレーザ出力波形を、図5-10に示す。パルス幅は、ともに30nsである。さらにその後もパルス幅には変化は見られなかった。図5-9の充電電圧特性より、今後レーザ出力波形の測定は、出力がピークとなる発振後およそ7分前後に行う。

#### 5.4.3 銀添加の場合のレーザ出力波形

臭化銀を臭化銅に対し重量比で10%および20%添加した場合の合計レーザ出力波形を、図5-12に示す。銀の添加により、いずれの場合も出力は添加していないものに比べそのピーク値でおよそ1.6倍となり出力の増加が成された。さらに、パルス幅には添加していないものに比べ若干の縮小が見られる。このパルス幅の縮小については、今後の課題としたい。

#### 5.4.4 セシウム添加の場合のレーザ出力波形

臭化セシウムを臭化銅に対し重量比で10%および20%添加した場合の合計レーザ出力波形を、図5-13に示す。セシウムの添加により、いずれの場合も、およそ10nsのパルス幅の拡張が観測された。しかし、出力に関しては、あまり変化が見られなかった。

以上の実験で、新規に製作した低温型銅蒸気レーザにおいて駆動特性を調べ、さらにエネルギー移乗の効果を調べるためエネルギードナー銀およびエネルギーアクセプタセシウムを添加することによる銅蒸気レーザのレーザ出力波形の解析を行った。

低温型銅蒸気レーザにおいて、放電におけるジュール熱がレーザ媒質の蒸気化を行うため、そのレーザ駆動特性は充電電圧に大きく依存していることかわかり、本実験でもちいた銅蒸気レーザにおいて充電電圧の最適値40kVを得た。

しかし、レーザ管に設けられた保温層に入れられるガラスウールの量により保温効果に変化する可能性もあり、本実験では保温層には終始手を加えなかった。

銀の添加時におけるレーザ出力波形のピーク値が、銀を添加していないものに比べおよそ60%増加したことより、エネルギー移乗効果によるレーザ上準位のエンハンスメントがなされたことがわかる。しかし、この場合のレーザ出力波形のパルス幅が、若干ながら短縮されていることが明らかとなったが、その理由については明らかとすることはできなかった。

セシウム添加時におけるレーザ出力波形のパルス幅が、添加していないものに比べ10ns拡張されたことより、エネルギー移乗効果によるレーザ下準位の緩和促進がなされたことがわかる。レーザ下準位の緩和促進により、レーザ出力波形におけるピーク値の拡張が期待されたが、それは確認できなかった。これは、セシウムの添加を臭化セシウムという形で行ったため、エネルギー移乗に関するセシウムの共鳴準位において共鳴捕獲が生じてしまったためと思われる。よって、金属セシウムの融点が28℃と非常に低いことから、金属セシウムを適度に加熱・蒸気化し基底状態でレーザ管に流入させたほうが、エネルギー移乗の効果は高まると思われる。

参考文献

- (1)シグマ光機 (株) 総合カタログ4
- (2)萩原:「銅蒸気レーザ用「固体化」電源の開発」東洋電機技報Vol. 76 (1990)
- (3)出口他:「固体化電源を用いた銅蒸気レーザ」レーザ研究Vol.17,No.10, (1989) p714
- (4)林泉:「プラズマ工学」朝倉書店 (1992) pl72
- (5)岩田他:「パルスレーザ用半導体方式ダイレクトドライブパルサの開発」電学論C Vol.111,No.2, (1992) pp67-74
- (6)理化学事典岩波 (1989)
- (7)浜松ホトニクス (株) バイプラナ光電管 R1193Uカタログ
- (8)矢島逮夫他:「新版レーザハンドブック」朝倉音店 (1989)

放電管内径 16.5mm  
放電長 200mm  
電極内径 8mm

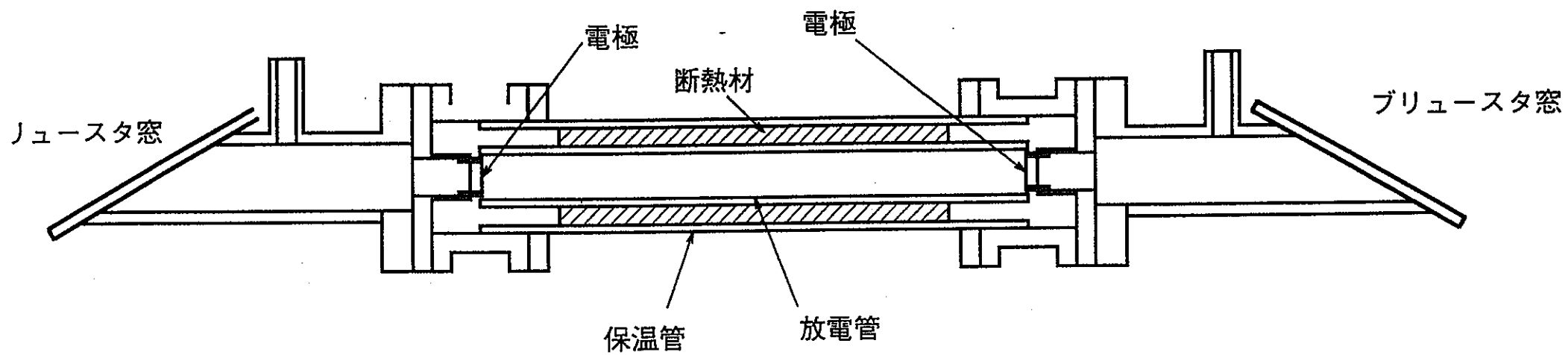


図5-1 レーザ管概要図

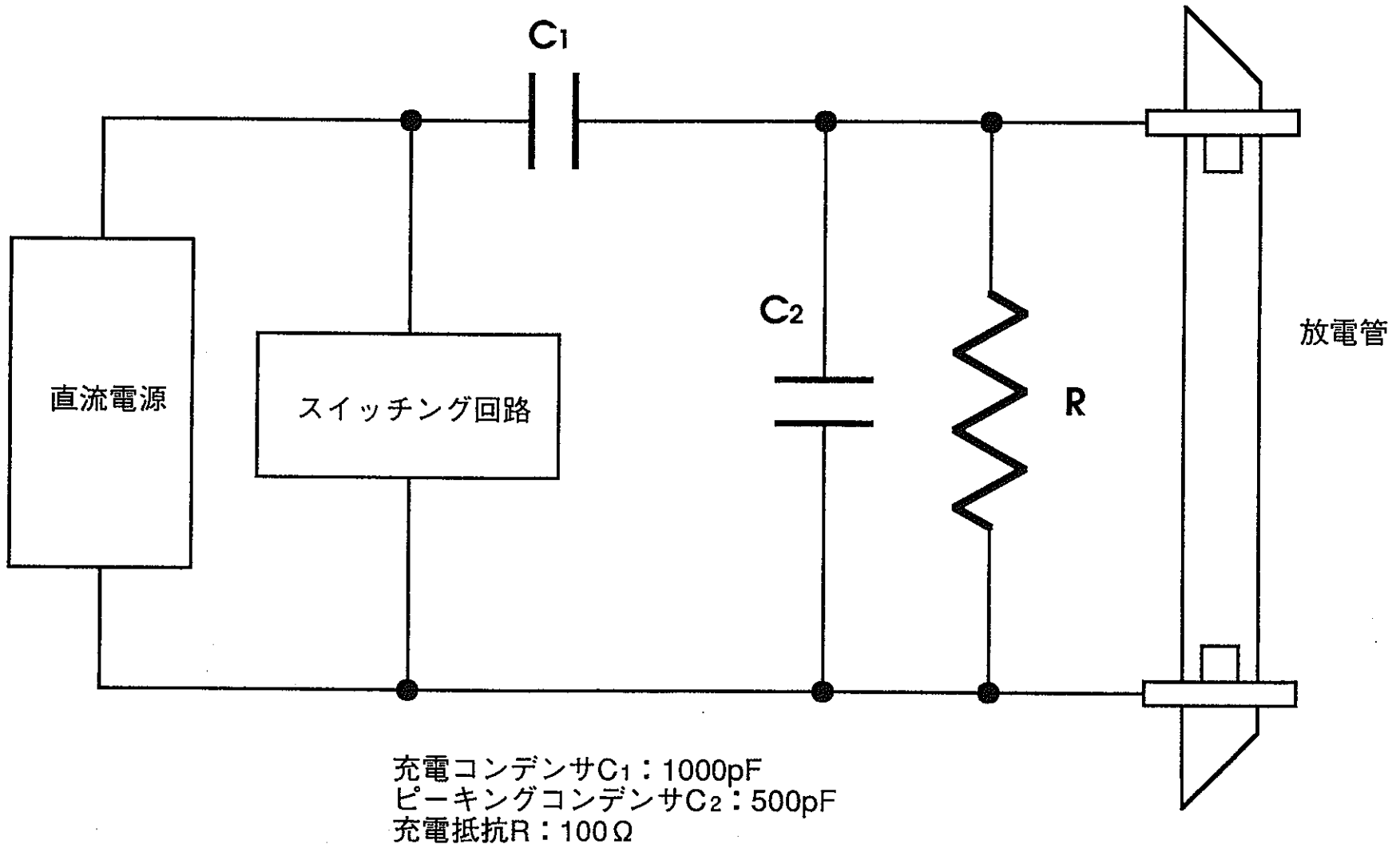


図5-2 放電回路

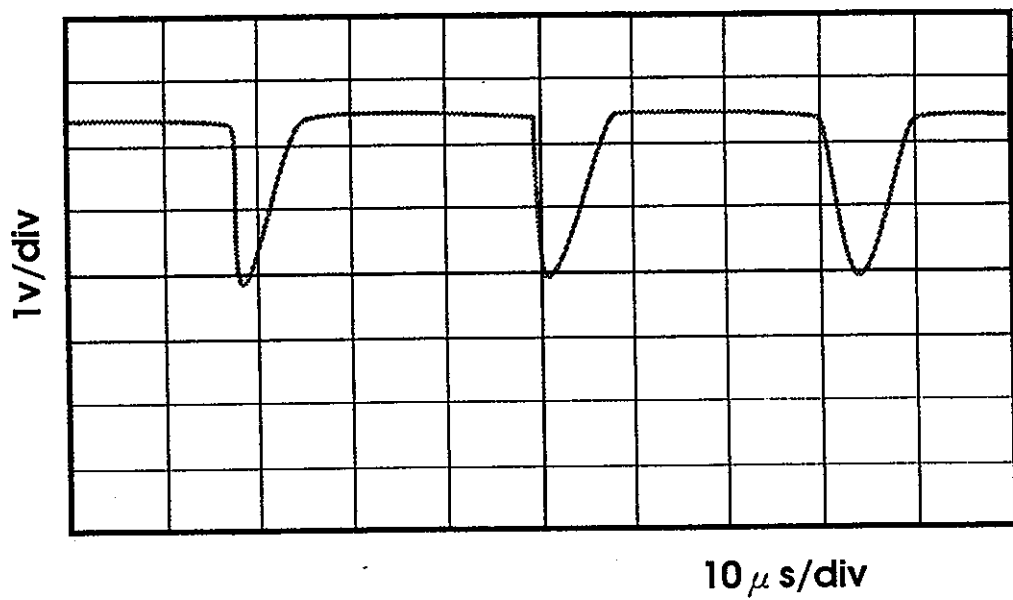


図5-3 充電電圧波形



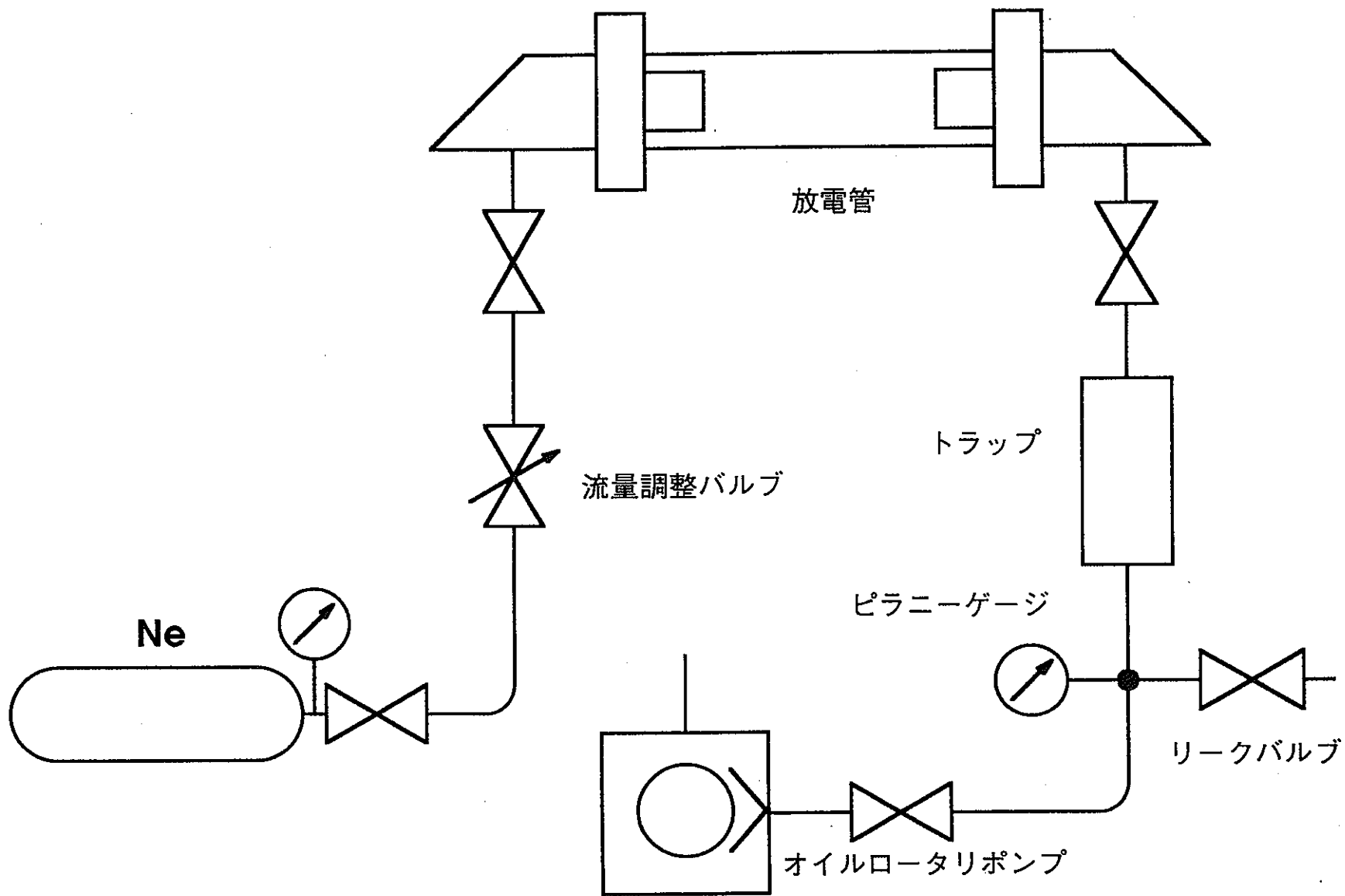


図5-4 真空・排気系

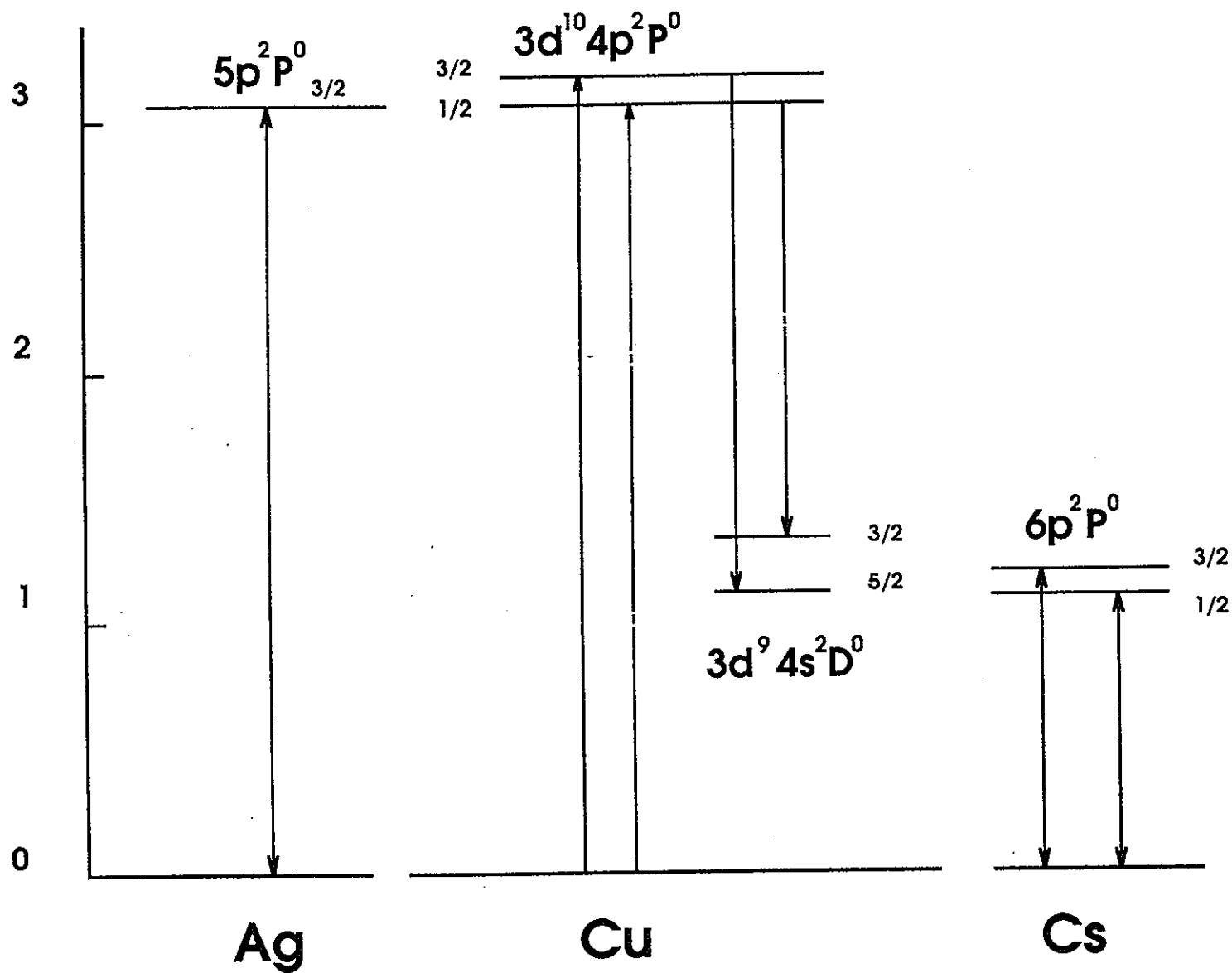


図5-5 エネルギー移乗に関する準位図

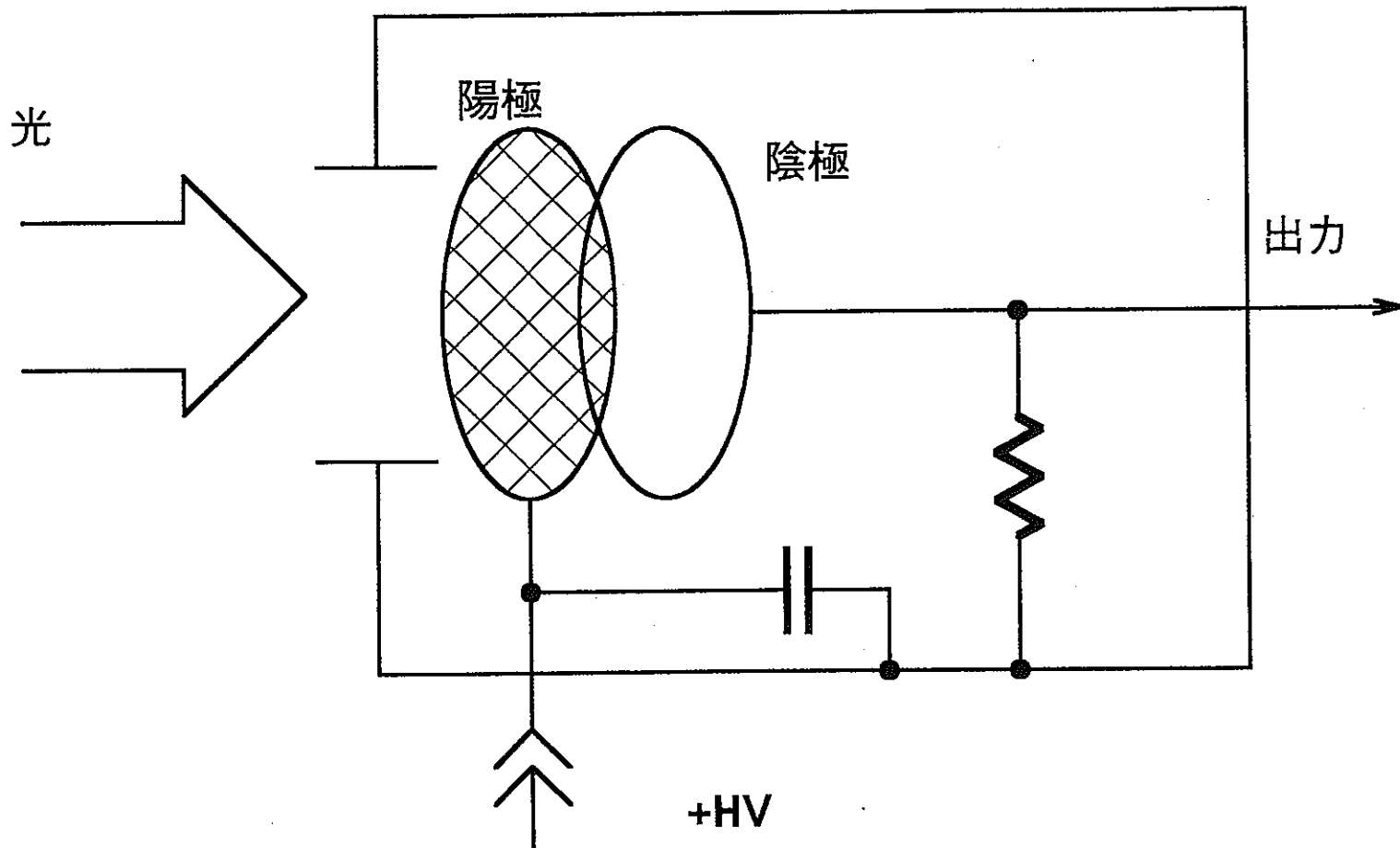


図5-6 バイプラナ光電管の模式図

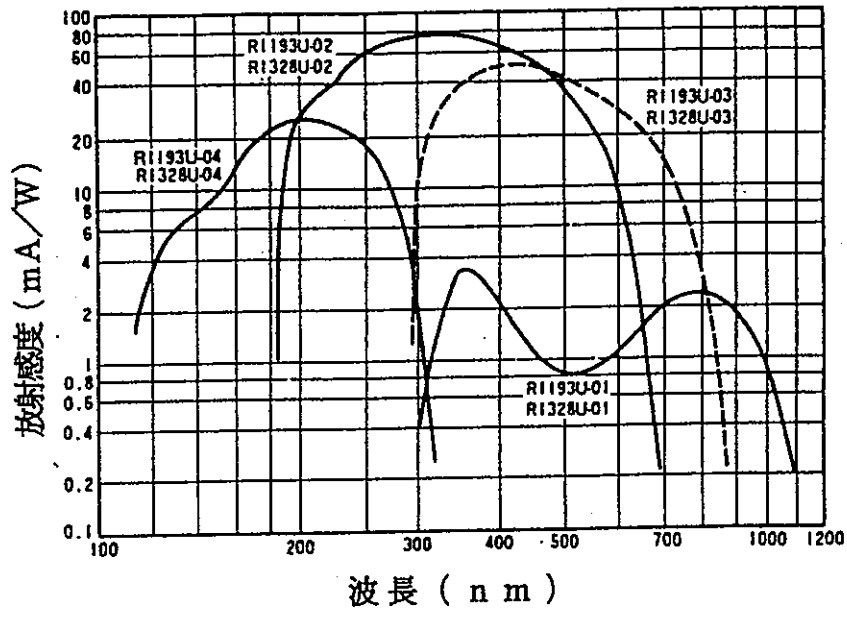


図5-7 バイプラナ光電管の分光感度特性

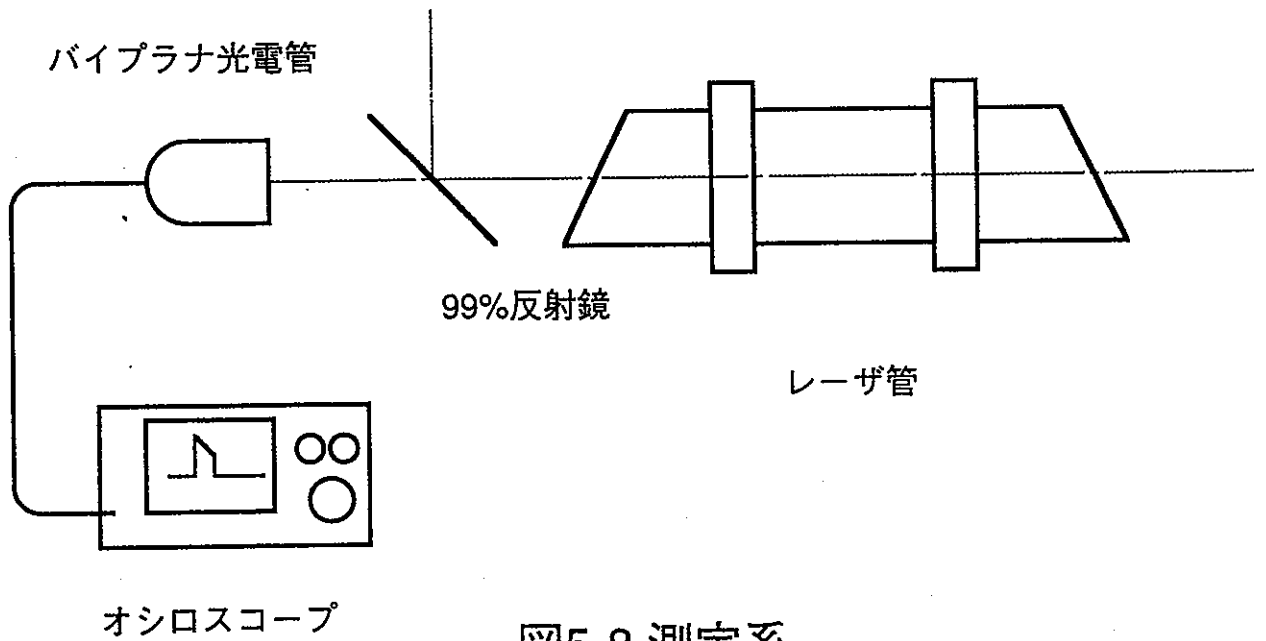


図5-8 測定系

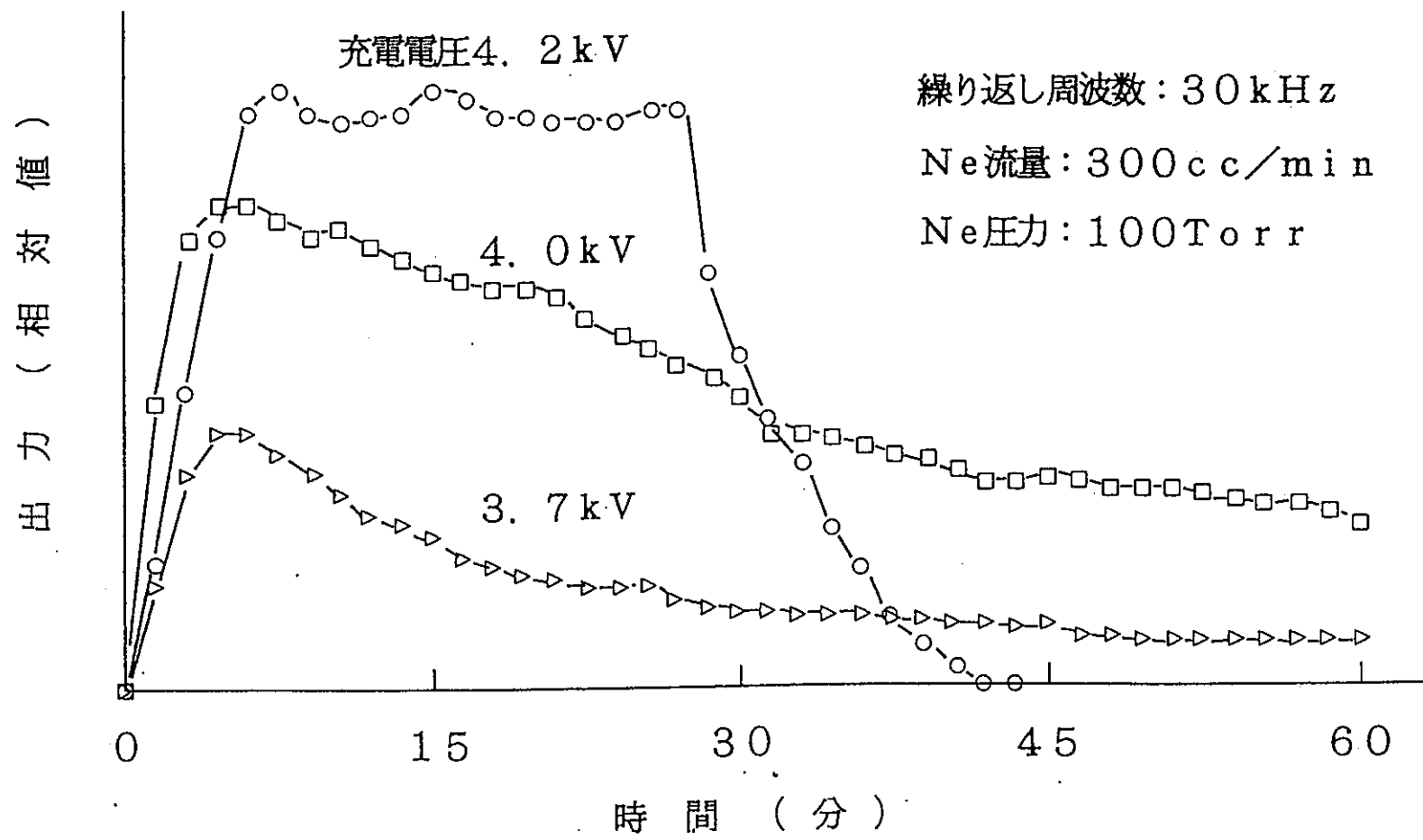
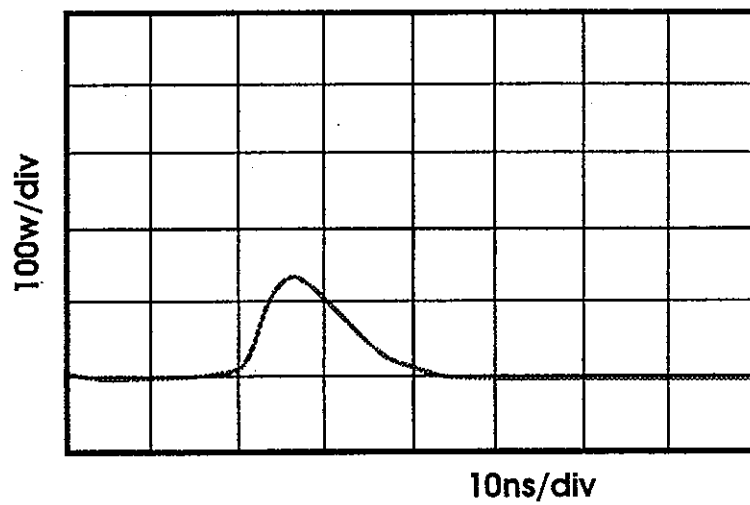
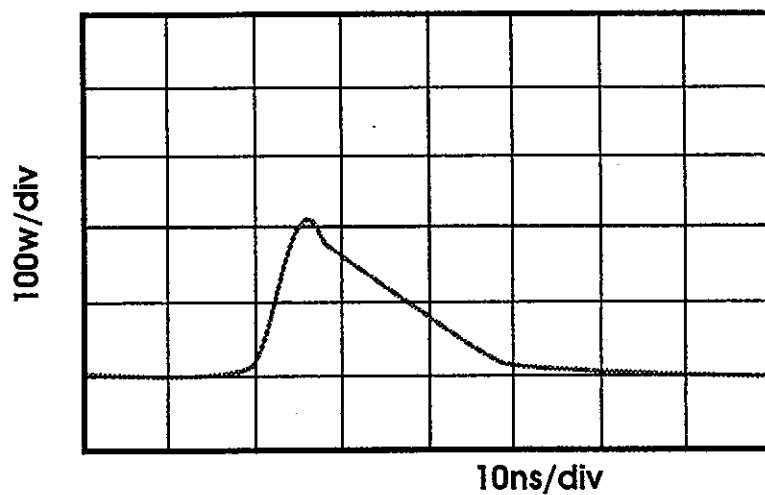


図5-9 発振後1時間におけるレーザー出力



(a)3min



(b)7min

図5-10 レーザ出力波形

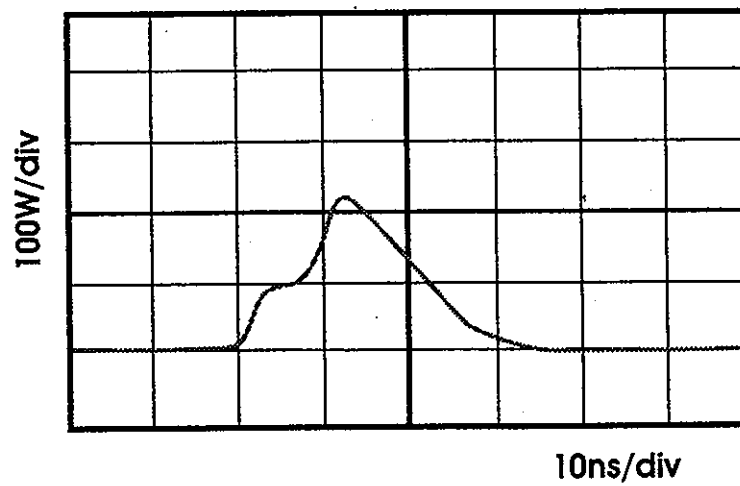
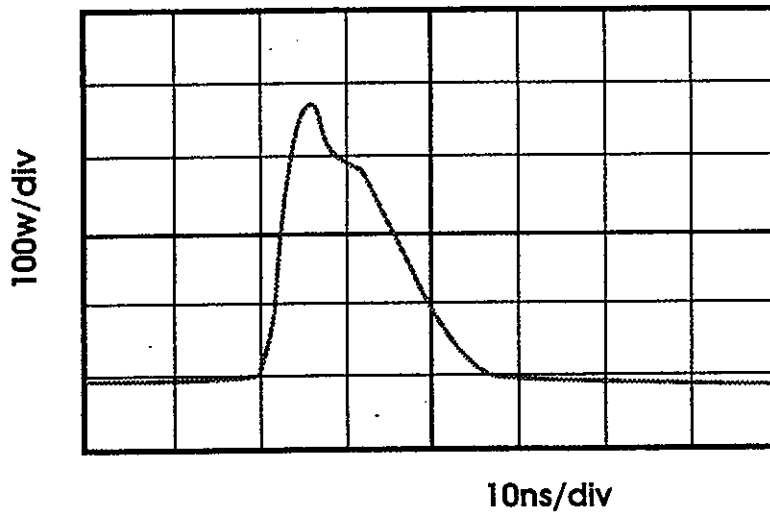
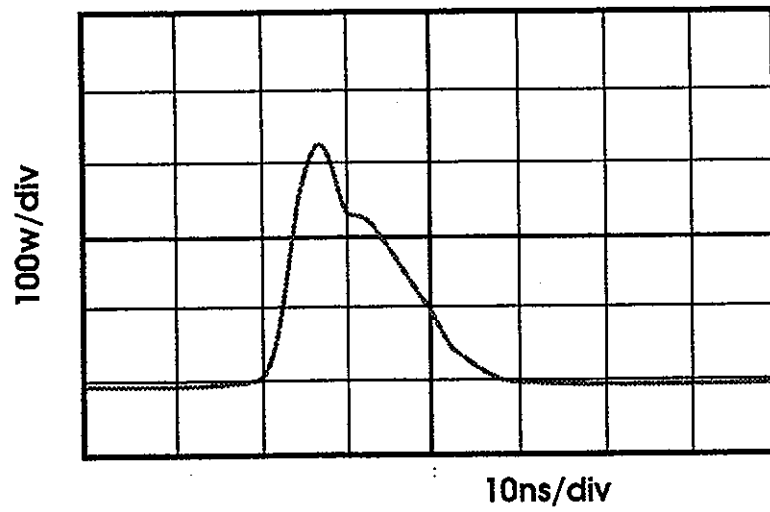


図5-11 黄色光のレーザー出力波形



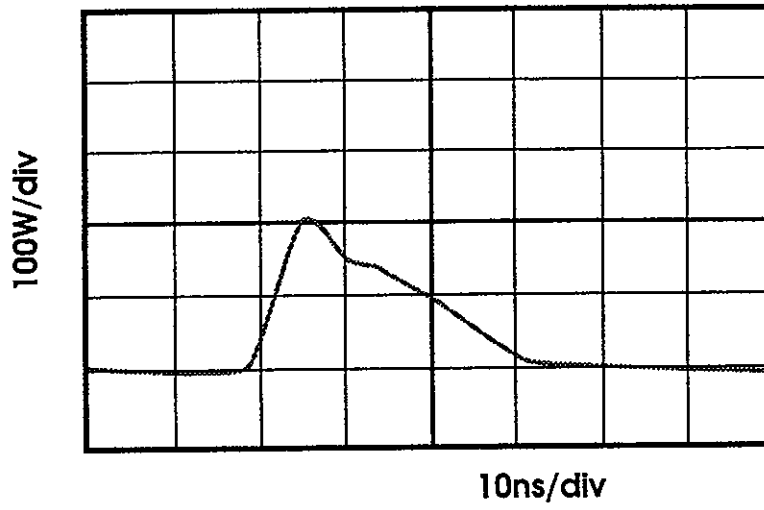
(a) 10% Ag



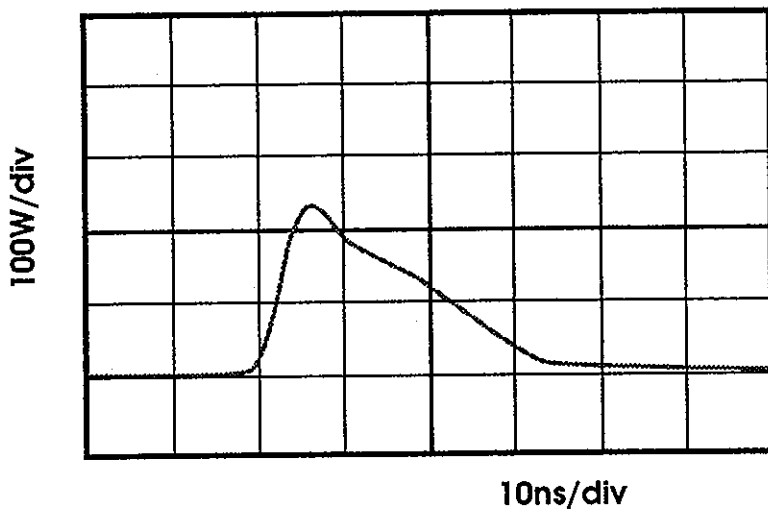
(b) 20% Ag

図5-12 銀添加時のレーザー出力





(a) 10% Cs



(b) 20% Cs

図5-13 セシウム添加時のレーザ出力

## 第6章結論および今後の課題

### 6.1 結論

本研究で得られた結果を以下にまとめる。

- (1) 新規に製作した、臭化銅をレーザ媒質として用いた自己放電加熱型の低温型銅蒸気レーザにおいて、充電電圧の最適値40k Vを得た。
- (2) エネルギードナー原子Agを添加することにより、レーザ出力波形のピーク値が添加していないものに比べ、およそ60%増加した。
- (3) エネルギーアクセプタ原子Csを添加することにより、レーザ出力波形のパルス幅が、添加していないものに比べ、約10ns拡張した。
- (4) 自己終端型レーザにおいて、異原子添加による第二種非弾性衝突を用いたレーザ下準位から上準位への再励起の過程が提案された。

### 6.2 今後の課題

本研究での問題点を以下にまとめる。

- (1) 銅蒸気レーザにおいて、そのレーザ駆動特性は放電管温度と密接に関係している。本実験ではガラスウールを用いた保温層によって、放電管の保温に努めたが、ガラスウールの量によりその保温効果は変化すると考えられるため、ガラスウール等を用いない真空層による保温層への改善が期待される。
- (2) レーザ光の出力測定において、緑色光と黄色光との分離が必要である。現在持ち合わせているダイクロイックミラーでのこれら2つのレーザ光の分離は完全でなく、レーザ出力の測定は不可能となっている。
- (3) セシウムの添加において、本実験では臭化セシウムの形で添加を行ったが、その融点の高さより長時間放電にさらされることとなり、共鳴捕獲を起こしてしまいエネルギー移乗の効率を低下させる可能性が非常に高い。よって、金属セシウムによる基底状態での流入が効果的と考えられる。

## 第7章 レーザ光の高品質化

### 7.1 はじめに

高効率に光子を用いるためには、発生したレーザー光の質が重要となる。ビームの質（スペクトル幅、横モード、広がり角など）が悪ければ、レーザー光は、効率よく利用することができない。そこで本研究では、レーザー光の高品質化のために、レーザー光の伝播によるビームの劣化をおさえる方法として、非回折ビームの発生について検討した。

### 7.2 非回折ビーム

真空中や均質媒質中を、光が伝搬する際には、光の進行に伴い、ビームの強度分布や径が、変化してゆく。これは、回折のために生じる現象で波動の持つ本質的な性質であるために、一般に、避け得ない現象である。光をもちいて化学反応制御や加工を行う際に、光の伝播に伴うビーム径および強度分布の変化は、効率の低下をまねいたり、現象の解析を複雑にすることが多い。このため、理想的には、伝播によって強度分布や径の変化がないようなビーム必要である。強度分布が変化しない伝搬パターンとしては、ガウスビームがあるが、これは、伝播に伴ってビーム径は、変化する。

ところが、強度分布およびビーム径も保存される伝搬パターンが、波動方程式の解として存在する事が、Durninらによって見いだされた。これを、非回折ビーム (nondiffracting beam) と呼ぶ。非回折ビームは、平面波の重ね合わせで表現でき、このパターンは、無数にある。もっとも、単純なパターンは、一つの強いスポットとそれを中心とする無数の同心円からなるものである。このビームパターンの径方向の強度分布は、0次のベッセル関数で表現できるため、このパターンをもつビームは、0次ベッセルビーム( $J_0$ ビーム)と呼ばれる。 $J_0$ ビームは、伝播によって強度分布および径が、変化しないというほかに、中央のスポット径が、波長程度まで小さくできるという特徴を持つ。

しかし、理想的な非回折ビームは、無限大のエネルギーを、運ぶために実現は不可能である。しかし、近似的な非回折ビームは、実現可能であり、有限の大きさに切り出された $J_0$ ビームで、一定の伝搬距離までは、十分、非回折ビームの性質を保っていることが、計算および実験によって確認されている。また、近似的な非回折ビームは、平面波の重ね合わせだけでなく、現実的な光であるガウスビームの重ね合わせとしても実現可能で、これは、ベッセル・ガウスビームと呼ばれる。ベッセル・ガウスビームは、特別な形をした共振器を用いて、レーザーから直接発生させることが可能である。そこで、この方法を用いて同位体分離用のレーザー光の高品質化のために、金属蒸気レーザーでの近似的非回折ビームの発生について検討する。

### 7.3 非回折ビームの原理

#### 7.3.1 完全非回折ビーム

いま、2つの波長の等しい無限に広がる平面波を考える。これらの波の $k$ ベクトル(波長を $\lambda$ とするととき大きさ $2\pi/\lambda$ で波の進行方向に平行な向きをもったベクトル)を $k_1, k_2$ とする。いま、 $k_1, k_2$ がなす角を二等分する方向を $L$ とする。 $L$ に垂直な方向にスクリーンをおけば、2つの波の干渉によって平行な明暗縞が観測される。このとき、2つの波は、無限に広がる平面波であるのでスクリーンを、 $L$ 方向に任意の距離移動させたとしても、明暗縞の位置、間隔、強度などは、不変である。これから、ある方向ベクトル $L$ と $k$ ベクトルが一定の角度 $\theta$ をなす無限の広がり

持つ平面波の重ね合わせは、平面波の数やそれらの振幅の比に関わらず、干渉により生じる明暗縞は、L方向の移動に関して不変となる。よって、重ね合わせによってできる波を、L方向に伝搬する1つの波と考えれば、この波の進行方向に垂直な向きの強度分布は、不変であるから、この波は、あたかも回折の影響を受けずに伝搬する波動のように振る舞う。ここで、図1のようにz軸に対してkベクトルが、角度θをなす無限に広がった平面波の重ね合わせを考える。この辺面波の電場の空間依存性は、

$\exp[i(\alpha \cdot x \cos \phi + y \sin \phi) + i\beta z]$  :  $\alpha = k \sin \theta$ ,  $\beta = \cos \theta$  で表される。

よって、kおよびθが等しくφが異なる任意の数の波の重ね合わせによる電磁波の電場E(簡単のためにスカラー表示をして)は、

$$E(x, y, z) = E_0 \exp(i\beta z) \int_0^{2\pi} A(\phi) \exp[i\alpha(x \cos \phi + y \sin \phi)] d\phi$$

と表される。A(φ)は、各々の波動に対する重み関数である。重ね合わせの電場は、A(φ)の取り方によって種々の値をとる。もっとも簡単な場合として、A(φ)=1とする。このとき、

$$E(x, y, z) \propto \exp(i\beta z) J_0(\alpha r) \text{ となる。}$$

J<sub>0</sub>は、第1種0次のベッセル関数である。rは、z軸からの距離である。このとき、光強度はEの2乗に比例するから、強度分布は、J<sub>0</sub>(αr)<sup>2</sup>に比例する。rに対する強度分布を図2に示す。中央のスポットの直径を半値全幅で定義すると0.76 λ / sin θとなるのθを大きくとればスポットサイズは、波長程度まで小さくとれる。θ=30degとすれば1.5λとなり、θ=5degでも8.7λとなる。このとき、スポットおよび各リングに含まれるエネルギーは、中央スポットのエネルギーを1とすると、1番目のリングは、1.26で、外に行くに従って1.28に近づいてゆく。このとき、強度の全平面の積分値は、発散してしまうので完全なJ<sub>0</sub>ビームを作り出すのは、原理的に不可能である。

### 7.3.2 近似的な非回折ビーム

#### (a) 有限サイズのベッセルビーム

完全非回折ビームは、エネルギーが無限に広がっていることが、本質であるので、これを作り出すことは、原理的に不可能である。しかし、完全なJ<sub>0</sub>ビームの中心だけを取り出した場合を考えると、伝搬距離が短ければ、近似的に非回折ビームとしての性質が保つと考えられる。これは、J<sub>0</sub>ビームについて、有限アパーチャーを挿入した場合の、電界分布について、フレネルの回折積分を実施する事によって確認できる。

いま、波長500nmで、中央スポットサイズDが200mmのJ<sub>0</sub>ビームをビーム半径2mmの円形に切り出した場合を考える。このときのアパーチャーをおいた面での強度分布と、そこから、1m伝播した点での強度分布を図3に示す。これから、1mの自由空間伝播において、ビームのピーク強度は、1/3程度になるが、スポットサイズは、ほとんど変化していないことがわかる。また、ビームのピーク強度の変化を伝播距離に対してプロットしたものを図4に示す。これから、ビーム強度は、初期値を中心に振動し、伝播距離z=0.8m付近を越えると急激に減少する事がわかる。これから、このビームが、非回折ビームとしての性質を持つ伝播距離は、ほぼ1mである。比較として、波長500nm、半値全幅が200mmの

ガウスビームでは、1mの伝播でビーム径は、約17倍、ピーク強度は、約1/20になってしまう。  
 有限サイズのベッセルビームの最大伝播距離zMaxは、基になった平面波が重ね合わさる範囲から説明できる。波長500nm、中心スポットサイズD200mmの場合を考える。このとき、各々の平面波のkベクトルの進行方向に対してなす角θは、θ=0.76λDより1.9x10<sup>-3</sup>radである。幾何光学的に考えた場合、図5より、平面波が互いに重なり合う伝播距離は、zmax=(D/2)/θであるから、D=2x10<sup>3</sup>m、θ=1.9x10<sup>-3</sup>rad でzmaxは、ほぼ1mとなる。これから、最大伝播距離は、アパーチャ径Dに比例するので、大口径のビームから発生させた、J<sub>0</sub>ビームあれば、長距離の非回折伝播が可能である。

(b) ベッセル・ガウスビーム

実際の近似非回折ビームを発生させる際に用いる波としては、有限径の平面波よりガウスビームを考える方が、現実的である。特に、レーザから発生する光は、ガウスビームであることが多いので、レーザ光を用いことを考えれば、ガウスビームによる近似非回折ビームの発生は、興味深い。有限径の平面波の代わりにガウスビームを重ね合わせてできる波について解析してみる。z=0で平らな波面を持ち、ビームウエストがw<sub>0</sub>で、進行方向が、zに対してθの角度を持つ無数のガウスビームを、同じ重みで重ね合わせる。このとき、z=0での電場は、J<sub>0</sub>(αr)exp[-(r/w<sub>0</sub>)<sup>2</sup>]になる。ガウスビームが運ぶ全エネルギーは、有限であるから、このビームの強度分布は、一般には、保存しない。しかし、有限サイズのベッセルビームからの類推から、ビーム中央部が、有限範囲で重なり合う場合では、非回折ビームの性質を持つことが予想される。ビーム中央が重なり合う条件として、ガウスビームのビームスポットが、重なり合う条件を考える。ガウスビームの広がり角gは、ビームウエストのサイズw<sub>0</sub>、伝播する光の波長λとすると、g=λ/πw<sub>0</sub>で表される。よって、θ>gのとき、有限範囲でビームスポットが重なり合うので、ビームスポットの重なり合う範囲のZ<w<sub>0</sub>/θで、非回折ビームの性質を持つことが予想される。このように、ガウスビームを重ね合わせて、近似的に非回折ビームの性質をもたせたビームを、ベッセル・ガウスビームとよぶ。次に、ベッセル・ガウスビームの電場をフレネル積分を実行することによって求める。

$$V(r, 0) = A J_0(\beta r) \text{Exp}[-(r/w_0)^2]$$

$$V(r, z) = (-ik/z) \text{Exp}[i(kz + kr^2/(2z))] \int_0^\infty V(\rho, 0) \text{Exp}[ik\rho^2/(2z)] J_0(k\rho$$

$$k = 2\pi/\lambda$$

$$V(r, z) = (Aw_0/w(z)) \text{Exp}\{i[(k - \beta^2/2k)z - \Phi(z)]\}$$

$$J_0[\beta r/(1+iz/L)] \text{Exp}\{[-1/w^2(z) + ik/2R(z)](r^2 + \beta^2 z^2/k)\}$$

実際の光強度は、電場の2乗に比例するから、上式から位置zでの光強度の半径方向の強度分布を計算し、その結果を図6に示す。これより、ガウスビームの重ね合わせによって近似的な非回折光が発生することが可能なことがわかる。

## 7.4 近似的非回折ビームの発生

### 7.4.1 環状スリットとレンズによる変換

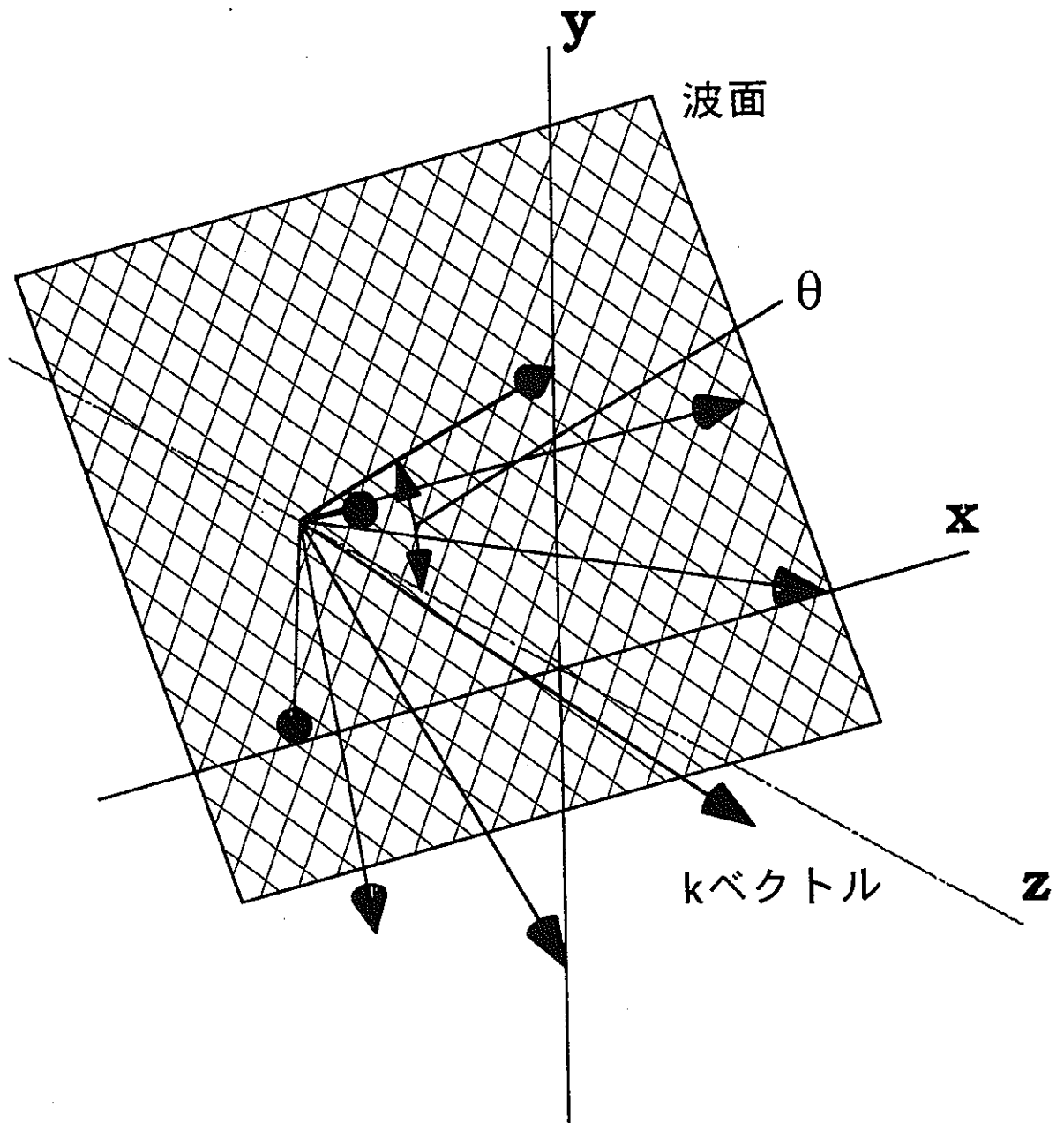
有限サイズのベッセルビームを発生させる光学系は、Durninらによって考案された。これは、図7のような環状スリットと凸レンズからなる単純な光学系である。環状スリットは、凸レンズの焦点面に置かれている。これより、スリットの各点から同位相で出た光は、レンズを通った後、光軸と一定角 $\theta = d/2f$ をなして進む。よって、レンズ直後では、半径Rの有限サイズのベッセルビームが形成される。この方法は、単純な光学系で、近似的非回折光が実現できるが、細いスリットを用いるために、結合効率が悪く、非回折光への総合的な変換効率が悪くなる。

### 7.4.2 レーザ発振器からの直接発生

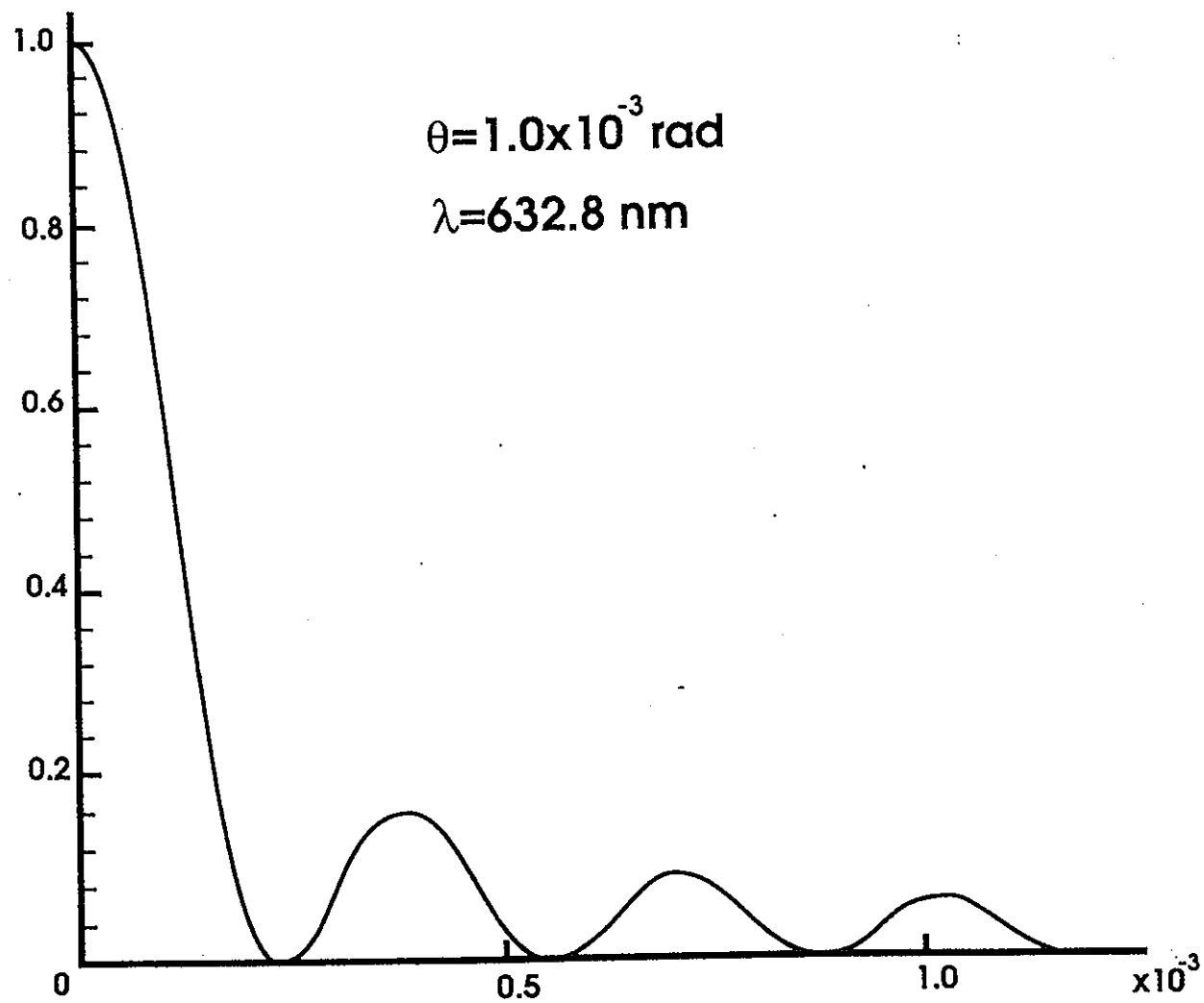
近似的非回折ビームのレーザ発振器から直接発生試験が、Ueharaらによって行われた。これは、前記の環状スリットの代わりに環状鏡を共振器の全反射鏡に用いたものである。試験装置を図8に示す。試験では、アルゴンイオンレーザの放電管を用いて $f=120\text{mm}$ の凸レンズを反射率50%の出力鏡の間に配置をした。全反射鏡は、中心に1.3mmの孔をもつ平面鏡である。そして、この前面に、可変絞りを置いて全反射鏡の有効外径を調整する。この光学系の配置によって発生するレーザ光は、低次のベッセル・ガウスビームの特徴をもっている。このレーザから得られたビームの径方向の強度分布を図9に示す。これらから、このビームは、0次のベッセル・ガウスビームであることがわかる。図8からわかるようにUeharaらがもちいた光学系では、全長が、用いるレンズの焦点距離の2倍になってしまう。このために、Onaeらは、レーザ装置としてCO<sub>2</sub>レーザを用いて、レンズの代わりに等価の凹面鏡を用いる光学系で、ベッセル・ガウスビームの発生を行った。この光学系を図10に示す。レーザ発振では、出力を上げると、発生する光に高次のモードが混じるので、直接レーザ管から近似的非回折光を発生させる場合、発生できるビーム強度には、限界がある。前記の例では、Arイオンレーザでは、数mW、CO<sub>2</sub>レーザでは、1.5Wの低次モードの出力が得られている。

### 7.4.3 金属蒸気レーザのビーム改質

金属蒸気レーザのビームパターンは、高周波放電の表皮効果によってドーナツ状になりやすい。特に、大口径、高繰り返しのレーザで、その傾向が、大きくなる。このために、金属蒸気レーザから発生する光を利用する際には、ビーム形状の改善が必要となる。ビーム形状の改善法としては、一般にゲイン形状を必要とする形状に成形することによって行う。金属蒸気レーザの場合、表皮効果を押さえるような条件で放電を行うようにする。しかし、ビーム径や出力の繰り返し数を変えずにこれを行うことは、困難である。このため、ゲイン形状がリング状であることを積極的に利用し先に述べたような、環状鏡を利用した共振器による近似的非回折ビームの発生が考えられる。



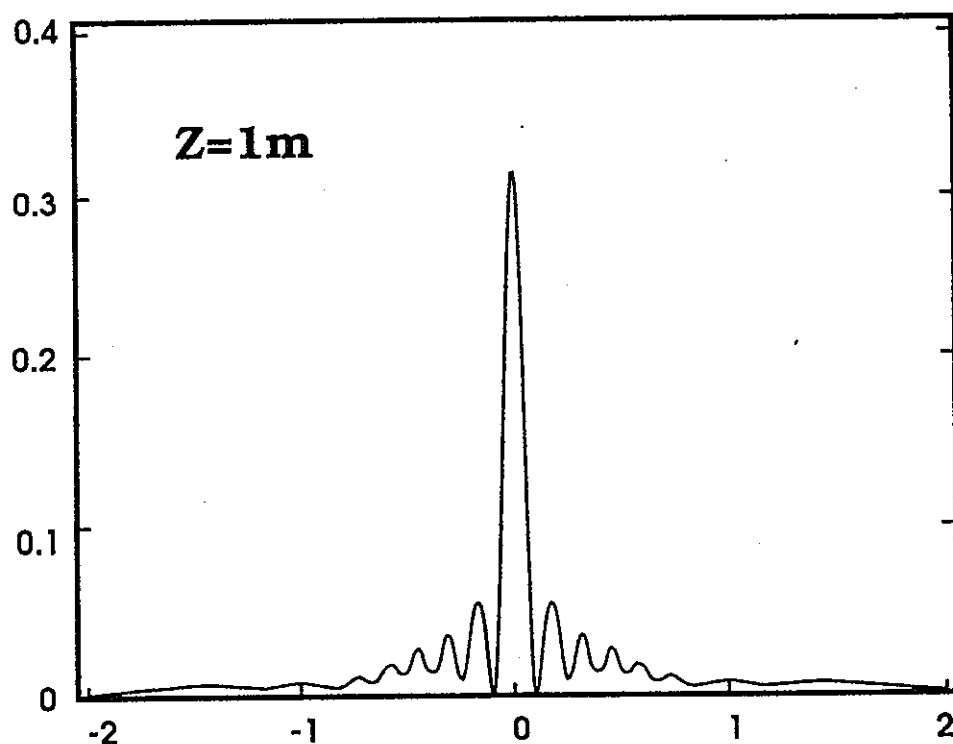
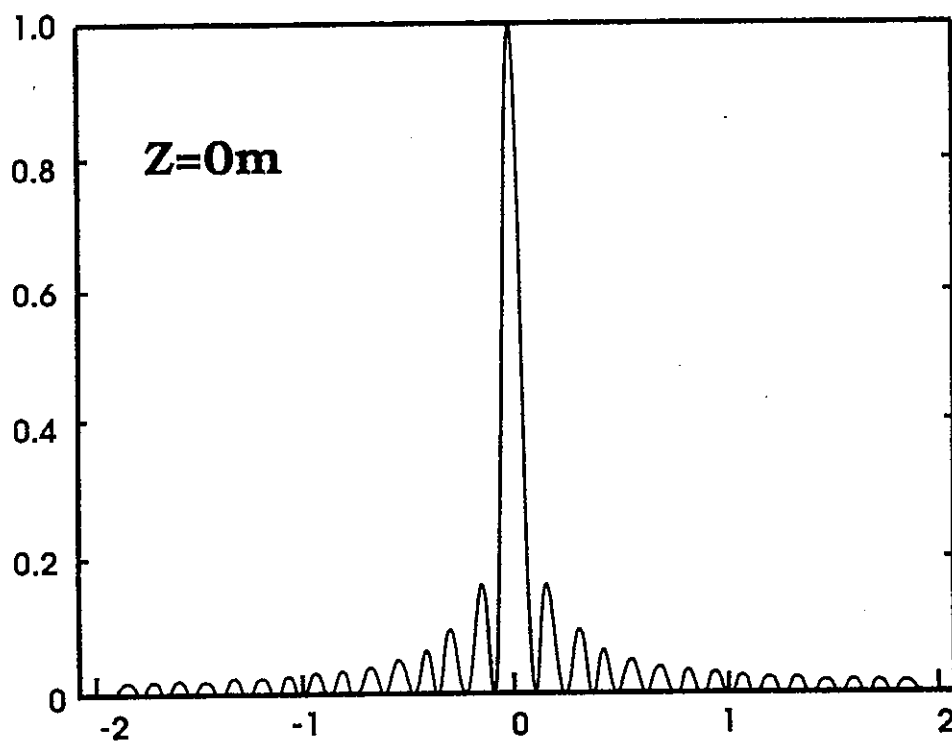
**Fig. 1**



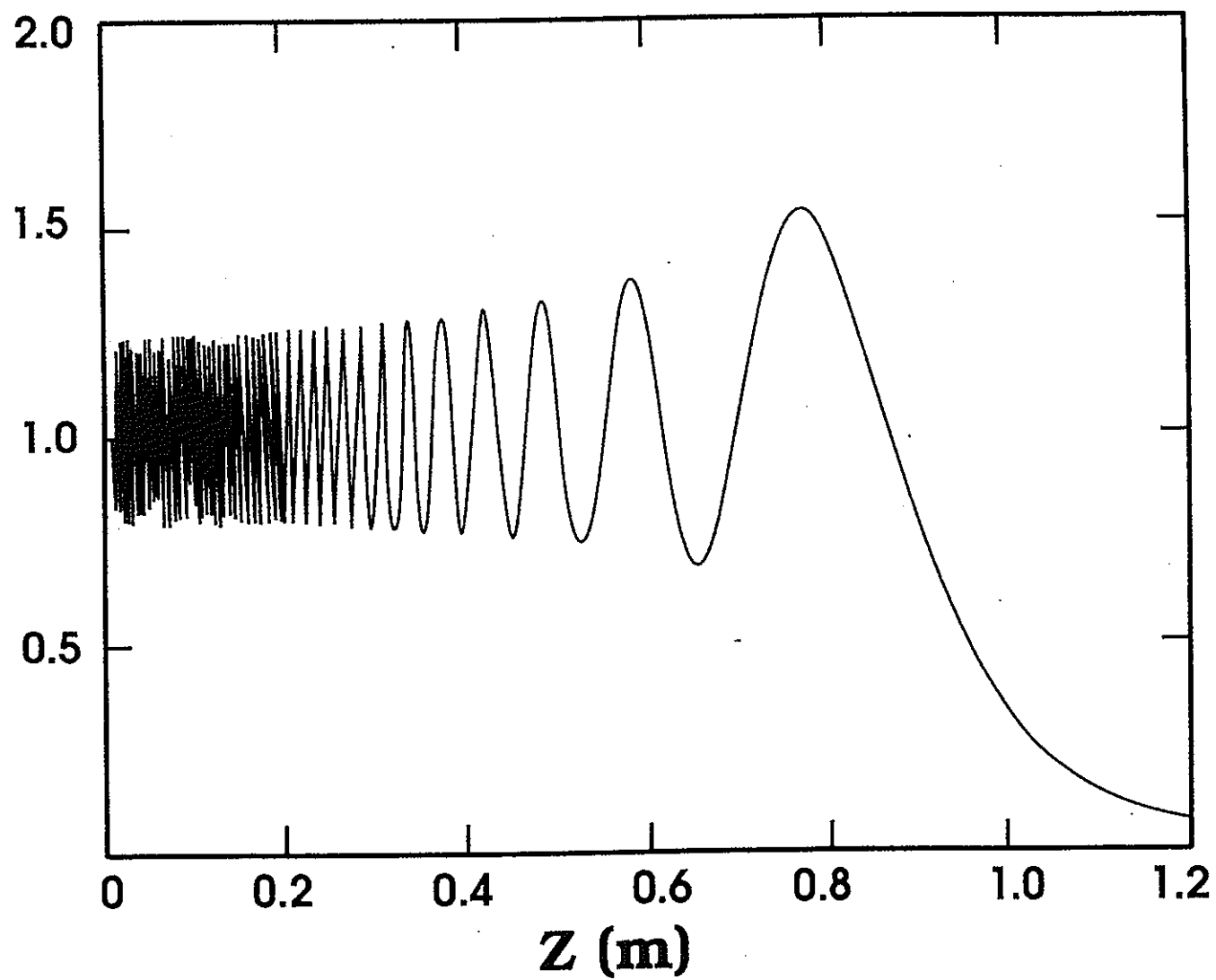
**Fig.2** ベッセルビームの半径方向の強度依存性



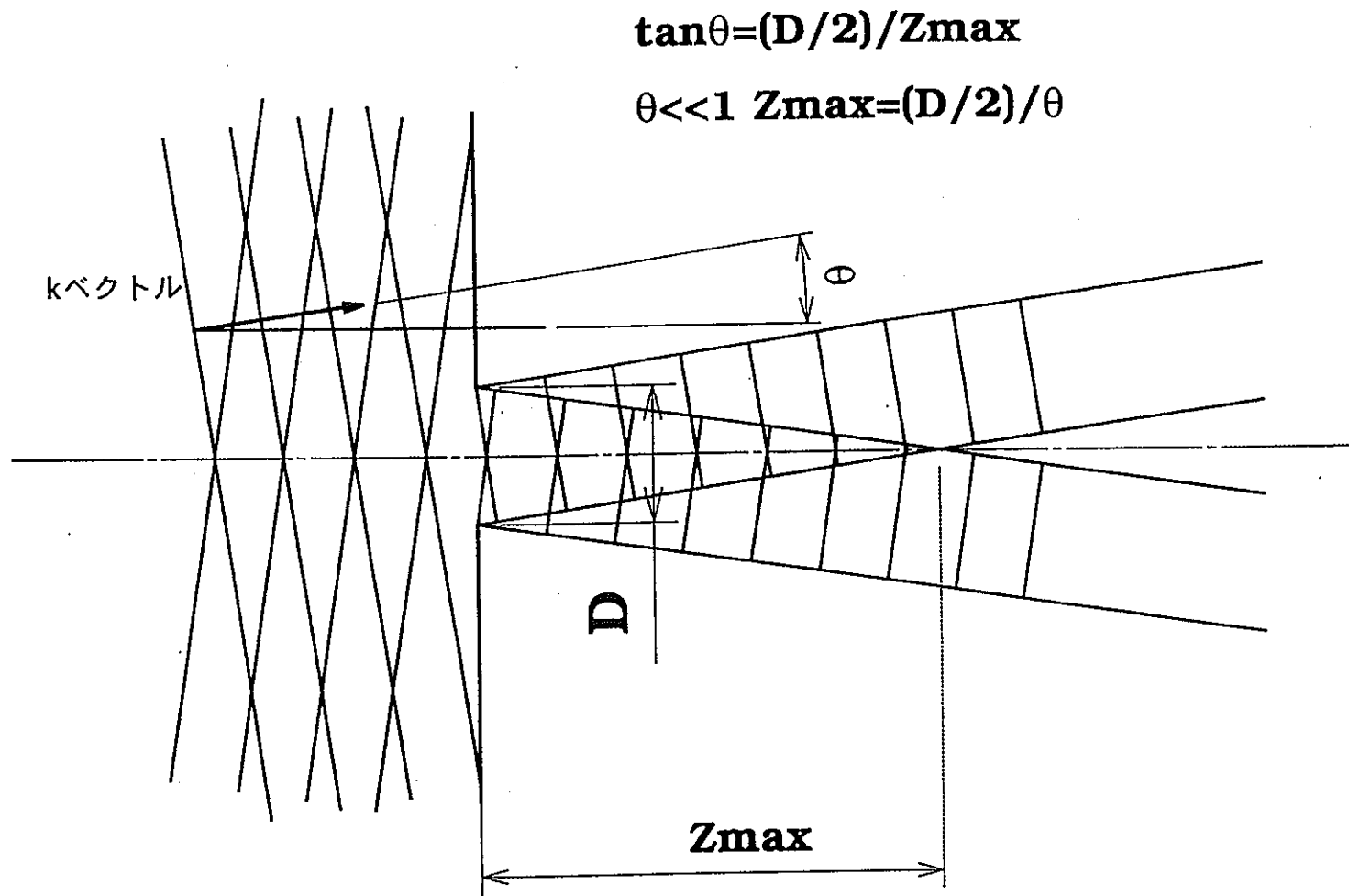
$\lambda=500\text{nm}$   $D=200\mu\text{m}$   $R=2\text{mm}$



**Fig.3** 有限ベッセルビームの強度変化

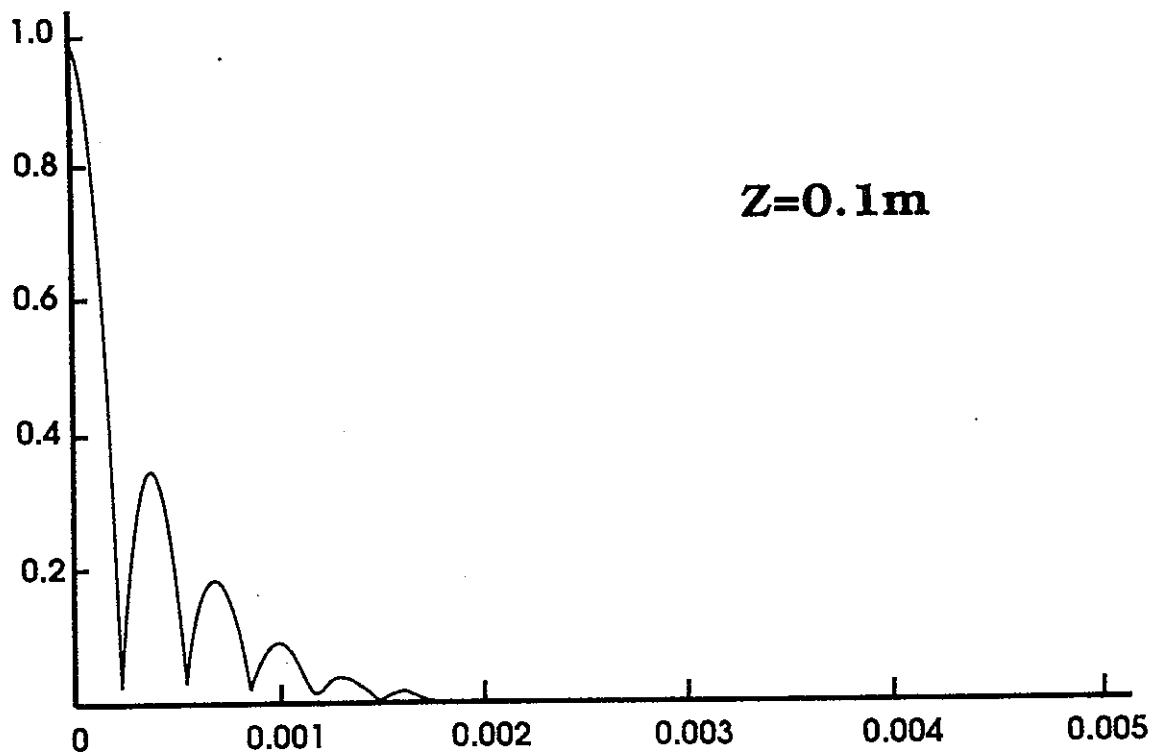
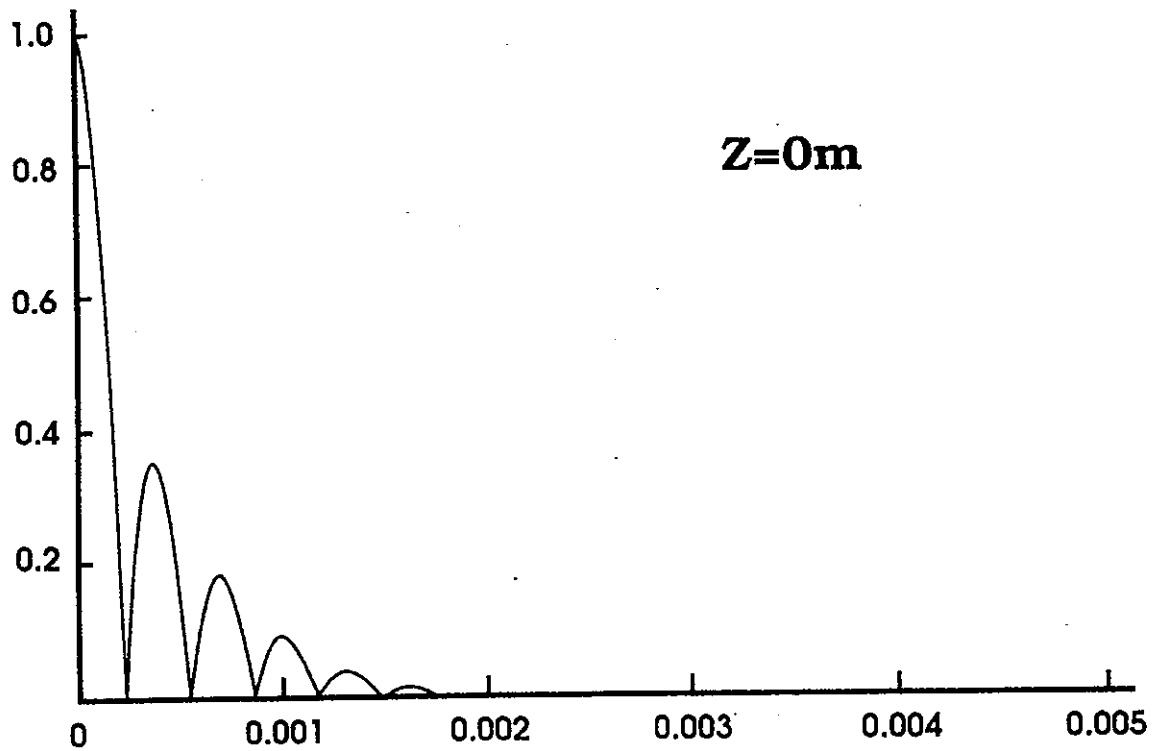


**Fig.4** 有限ベッセルビームの伝播距離に対する中心強度の変化

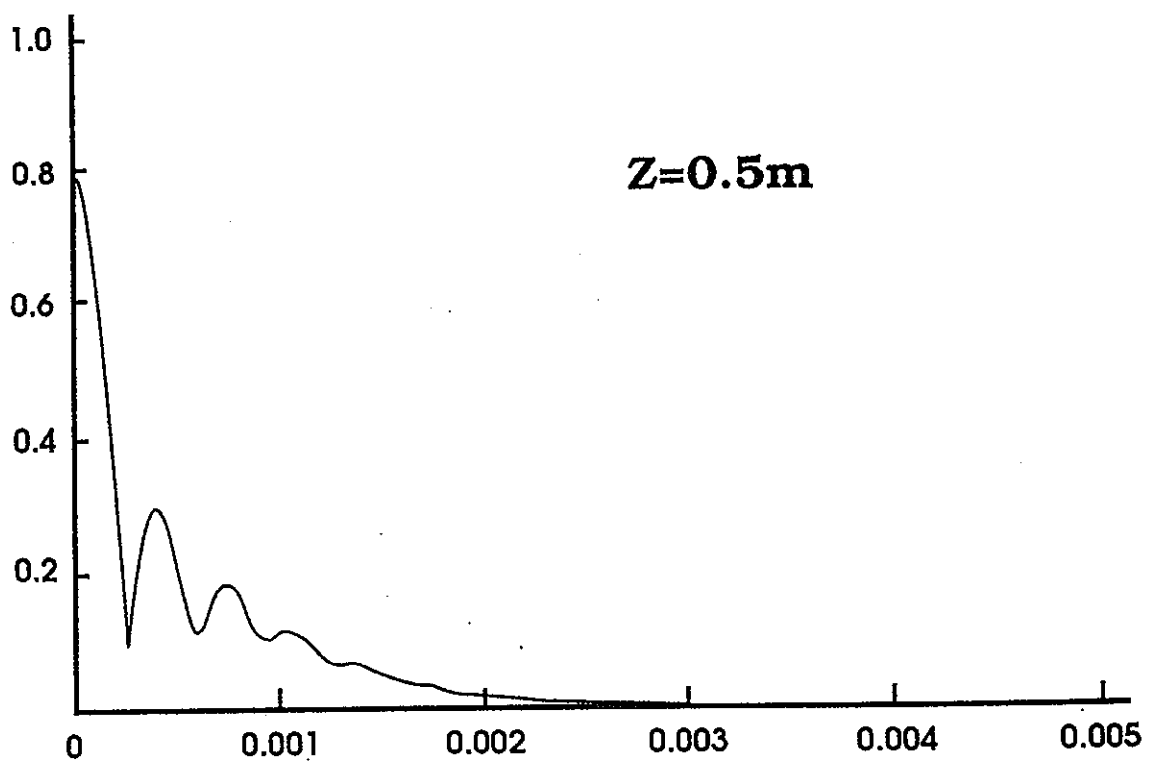
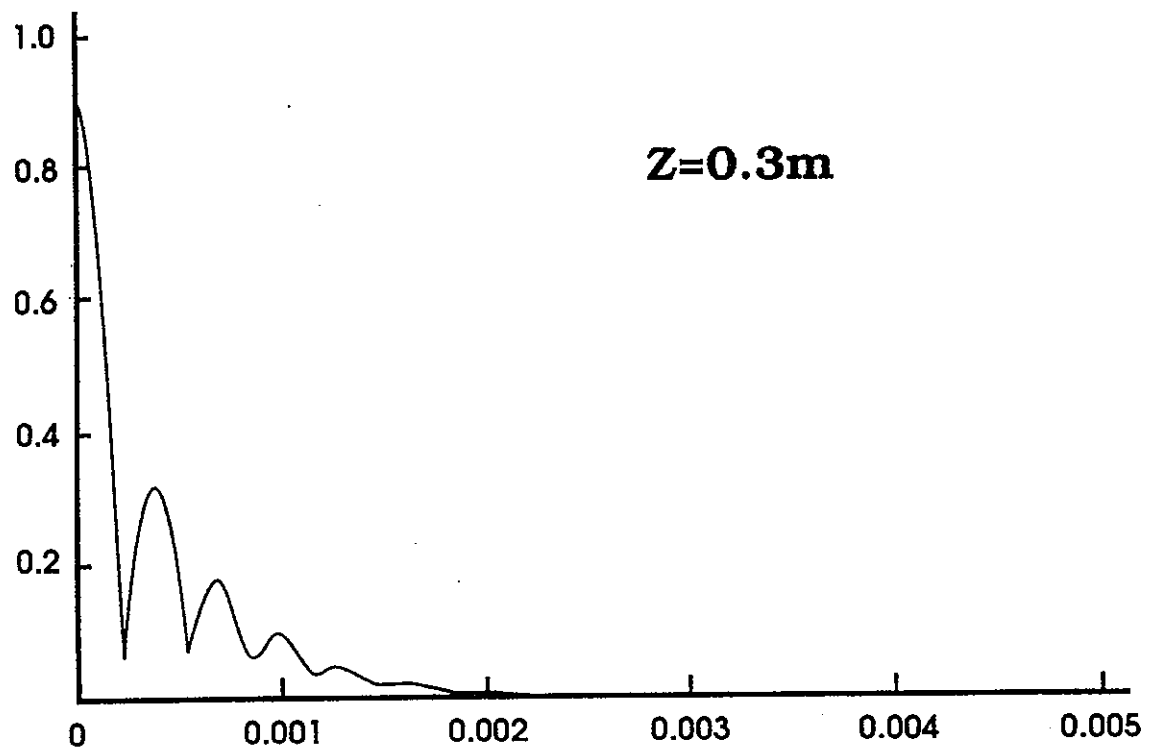


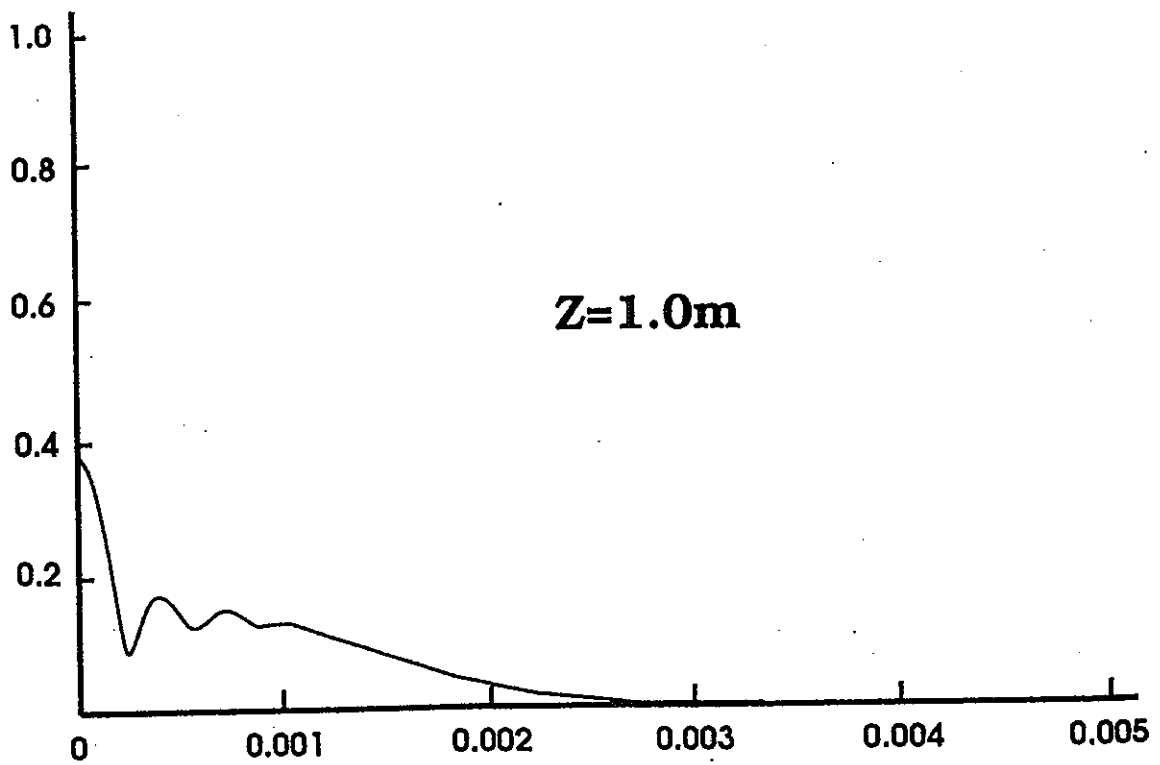
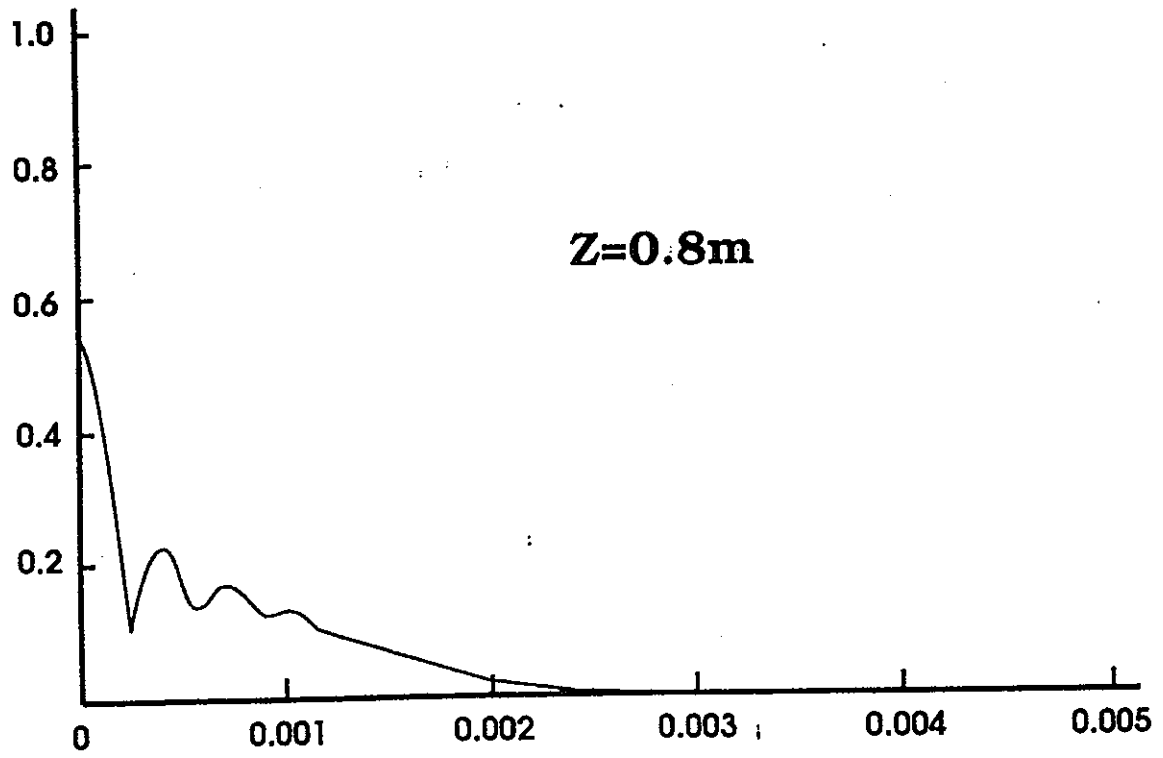
**Fig.5 非回折光の伝播範囲**

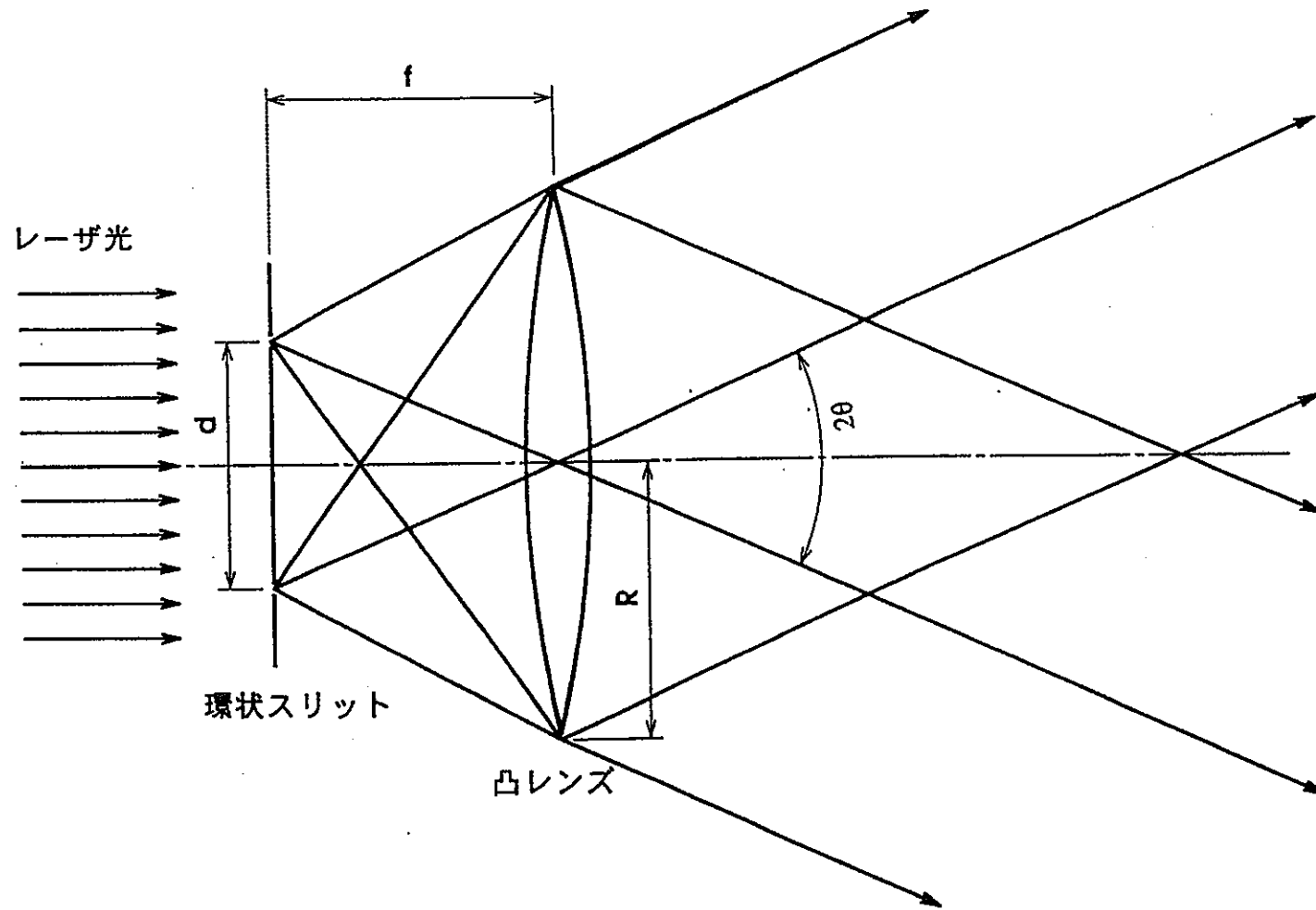
$\lambda=632.8\text{nm}, \theta=10^{-3}\text{rad}, D=1\text{mm}$



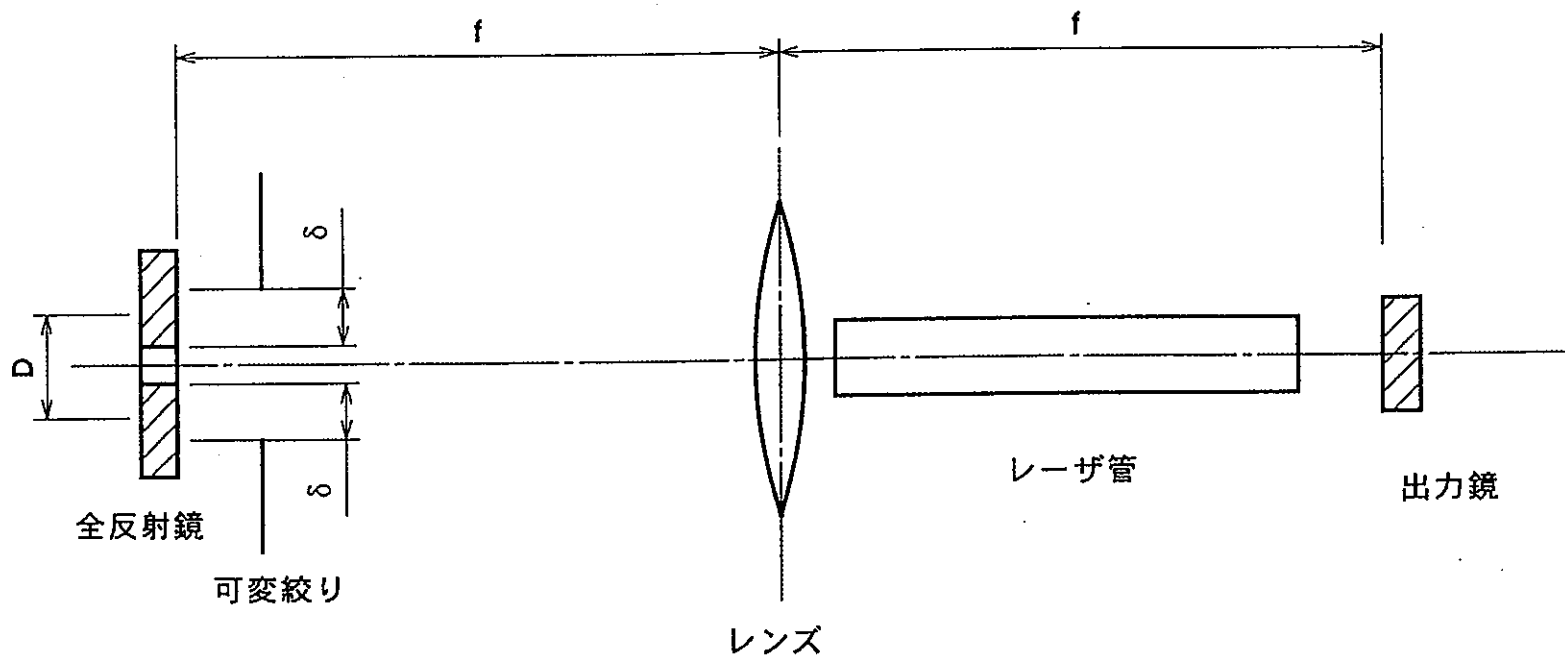
**Fig.6** ベッセル・ガウスビームの  
伝播距離による強度変化







**Fig.7** 環状スリットによるベッセルビームへの変換



**Fig.8** ベッセル・ガウスビームのレーザ管からの直接発生