

紫外励起オゾン回折格子による高強度レーザー光の制御

道根百合奈

主任指導教員：米田仁紀 指導教員：白川晃

1. 序論

核融合、粒子加速、実験室天文学、高温高压化の極限状態化の物質の研究など、高強度レーザーを利用した研究はレーザーのピーク強度の増大とともに発展してきた。現在、世界各国で大型レーザー施設が稼働・建設中で、たとえば米国立点火施設（NIF）ではそのレーザーエネルギーはすでにメガジュールに達し[1]、欧州ではエクサワットのレーザーを目指すプロジェクト（ELI）も進行中である。これらのレーザーの集光強度の増大はチャープパルス増幅の発明、光学素子の大型化・高精度化や波面・位相補正技術などの進展により達成されてきた。しかし、これらレーザーシステムのさらなる高強度・大出力化のためにシステム中の光学素子が解決すべき課題は多く、次世代の高強度レーザー実現には大きな問題を抱えている。

現状の高強度レーザーシステムで使用されているミラー、回折格子などの固体光学素子（損傷閾値:数 J/cm^2 ）はその高いレーザー強度に対応すべく、大型化し断面積あたりの光強度を小さくすることで損傷を回避する手法がとられている。なぜならば広帯域での高い反射率、回折効率等を達成するための母材の石英基板・コーティング材質の損傷閾値は媒質由来のもののため桁違いに大きくすることができず、素子自体を大型化するしか方法がないためである。レーザー高出力化のためにさらにパルス幅を短縮すると媒質の損傷閾値がさらに低下するため、ますます素子は大型化していく。しかしこの素子の大型化も基板の熱膨張という製造上の課題を抱えており、現在すでに単体の光学素子の大型化による高強度光制御は不可能な領域に到達した。なので、現在は例えば複数の大型回折格子の組み合わせ・高強度ビームの分割と加算[2]などによって高強度光を得ている。しかしこの組み合わせ技術やビーム結合時の位相補正技術には解決すべき課題が多い。また真空チャンバー内部の汚染物質やデ

ブリがこれらの大型素子表面に付着し損傷する問題は常にあり、例えばNIFでは頻繁に交換できない大型光学素子の損傷個所をレーザーでリペアする技術までもが研究されている[3]。

このように素子の大型化に付随する問題は多く、次世代のエクサワット出力を目指す高強度レーザー開発のためには性能が高く損傷閾値の高い光学素子の開発が急務となっている。

高強度レーザーに対する耐力を上げて高強度光を制御するために、従来の固体媒質ではなくプラズマを利用した過渡的光学素子の開発が行われてきた。これは高強度レーザーの媒質への照射によって生成する自由電子の屈折率変調を利用した光学素子であり、例えばプラズマ回折格子[4]は高い損傷閾値をもつものの、生成効率、回折効率、存在寿命が欠点のため、高強度レーザー制御用素子としては実用化されていない。プラズマを利用した回折格子は高強度レーザー制御素子としては原理的に課題が多いため、現状では固体回折格子の基板材質、膜処理、露光方法などを変え、さまざまな設計を検討しながら次世代エクサワットレーザー実現を目指している。

しかし、もし桁違いに大きな破壊しきい値をもつ回折格子が開発できれば、上述したような問題は一扫される。例えば $1\text{kJ}/\text{cm}^2$ の破壊しきい値をもつ光学素子でレーザーシステムを構築すれば、 kJ レーザーでさえ 1cm^2 で制御可能になる。そこで、本研究では高強度レーザーシステムで使用可能な高耐力、高回折効率の回折光学素子の開発を行った。ここでは回折効率 90% 以上で損傷閾値は $1\text{kJ}/\text{cm}^2$ 、かつ生成エネルギー効率に優れている素子の開発を目標とした。

2. オゾン回折格子の生成原理

2.1 オゾン回折格子の生成方法

この研究では、オゾンの紫外光吸収を利用して、オゾンと、オゾンに対して吸収断面積の大きな 250nm 付近の領域の紫外光を使った回折格子の開発を行った。この方法では、回折に必要な屈折率変調を紫外光照射によるオゾンの光学的性質の変化を利用して得る。図1に回折格子の生成方法を示す。ここでは大気圧放電を利用し大気中にオゾンを生成させ、このオゾン中に紫外光レーザー (KrF レーザー: 波長 248nm) を干渉させて入射しオゾン中に屈折率差を生成している。ここに被回折レーザー (図中の緑色、オゾンに対して吸収係数の低い波長を選択) を紫外光レーザーが照射された時間から数十ナノ秒程度遅らせて回折格子の条件に合わせて入射すると、オゾン中で回折が起こる。

この方法によって回折格子を作成するメリットは、オゾンを媒質とした過渡的回折格子のため、損傷を気にせず被回折光を入射させることができることにある。原理的には高強度な被回折レーザーがオゾンをプラズマ化させてしまうまで回折格子として使用することができる。またプラズマによる屈折率の変化を利用していないので媒質の温度が高くなり、長い時間回折格子を形成できる。

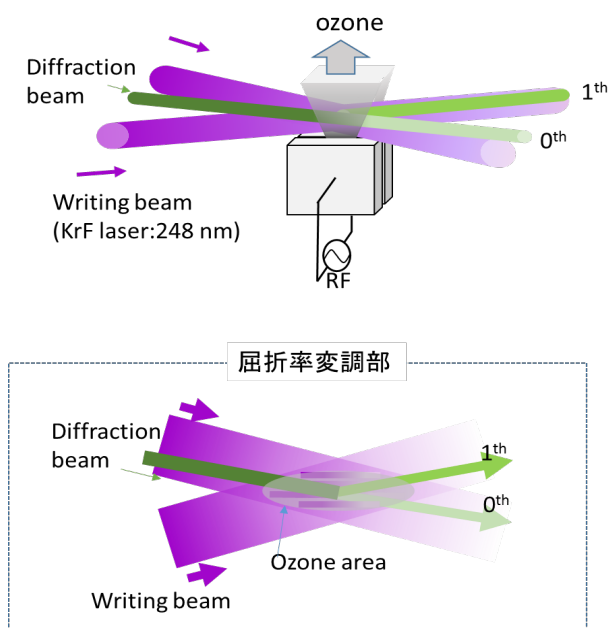


図1 オゾン回折格子の生成

2.2 屈折率変調量の測定

回折効率の高い回折格子の生成のためには屈折率変調量をいかにして制御するかが重要になってくる。そこで紫外光を照射されたオゾンが屈折率変調を起こす詳細な原理の理解と、屈折率変調量制御要因の調査のための実験を行った。

まず、オゾン中に紫外光レーザー (KrF レーザー: 248nm, 25Hz, 20ns) を照射したときの屈折率変調量の測定を行った。屈折率の測定には干渉計測を利用する。干渉計のレーザー (プローブ) にはオゾンに対して吸収の少ない波長を利用した。このプローブレーザーは紫外レーザーの照射タイミングからの時間遅延を任意に変更できるようになっている。写真1には紫外レーザーをオゾン中にレンズで集光し、円形で照射した場合の屈折率変調量測定結果を示す。

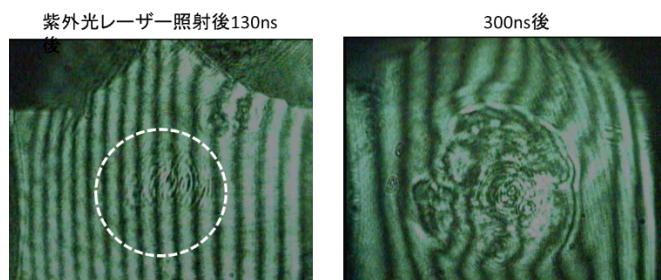


写真1 屈折率変調測定結果

紫外レーザーがオゾン中に照射されてからの時間が経過するに従って、紫外レーザーの照射領域の干渉縞の歪みが観測されたものの、想定されるほどの大きな屈折率変調が得られなかった。そのため、紫外レーザーの照射パターンを現在の円形ではなく、実際の回折格子を作成するときと同じ格子状の周期的照射条件 (間隔 150 μ m) にして干渉計測を行った結果が写真2、図2である。図2は屈折率変調量の時間依存性をプローブの干渉縞の移動量から計算した結果である。このとき、写真のように屈折率変化は紫外レーザーが照射された瞬間は全く観測できなかったが、時間の経過とともに変化が大きくなり、300ns 付近で最大屈折率変化となったあと、次第に減少し、600ns 後にはまた屈折率変調量は0に近い値をとった。この最大屈折率変化をとるとき、回折格子生成に必要な屈折率変調量としては十分な値であり、このことで回折ができていることがわかった。

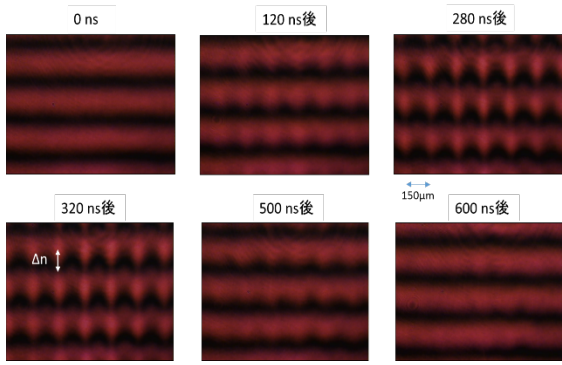


写真 2 干渉計測像

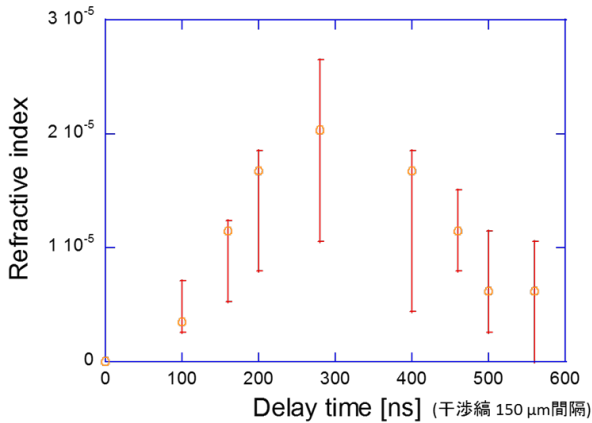
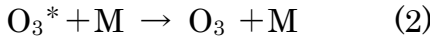
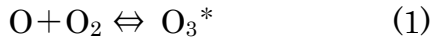


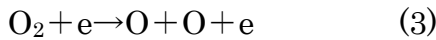
図 2 屈折率変調量の時間依存性

2. 3 オゾンの生成、光励起、再結合過程

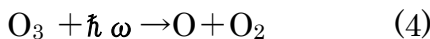
オゾンは以下の反応プロセスによって生成される [5]。



ここでは中間複合体 O_3^* を経由して安定状態のオゾン O_3 となる。このときオゾンの生成反応に使われる酸素原子 O は、放電により電子が酸素分子に衝突し、酸素原子に解離することで生成される。



しかし (1) (2) の反応により生成されたオゾンは、現在の実験条件のように、波長 300nm 以下の光を吸収し励起されたのち、ただちに光解離することが知られている [4][5]。(図 3)



この(4)の反応では酸素原子 O が生成されるので、(1)の反応がおこり、再び O_3 が生成される。そのため、全体としてのオゾンの量は減らない。

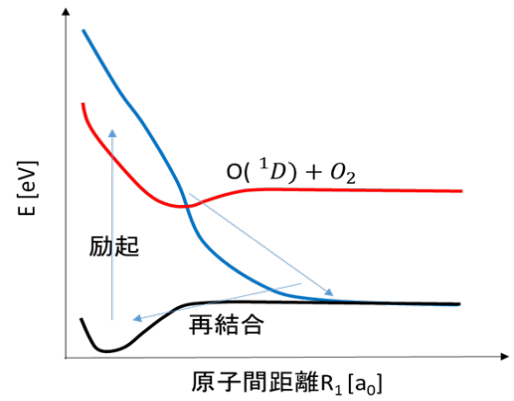


図 3 オゾンのポテンシャルエネルギー曲線 [6]

ここで、紫外レーザーを周期的に照射した場合にのみ屈折率変調が生成する要因が、紫外レーザーのエネルギーを吸収し再結合を経て熱化したオゾンと、照射の方法にあると考え、紫外光の照射領域のオゾン密度と非照射領域のオゾン密度がそれぞれ紫外レーザーを格子状に照射した瞬間から時間発展をするともにどのように変化するか、計測を行った。オゾン密度は吸収計測によって測定した。これは物質の光の吸収を利用して密度を求める方法で、媒質の吸収係数と媒質長がわかっているとき、媒質中に光を入射した後の吸収された光強度と入射前の光強度を計測することで密度を計算により求めることができる。実際には図 4 のような測定系を組み測定した。プローブ光はオゾンに対してわずかに吸収する波長を使用する必要があったので、色素レーザーシステム(ローダミン)の増幅された直後の光を BBO 結晶に入射し、波長変換された 287nm の光をプローブ光として利用した。

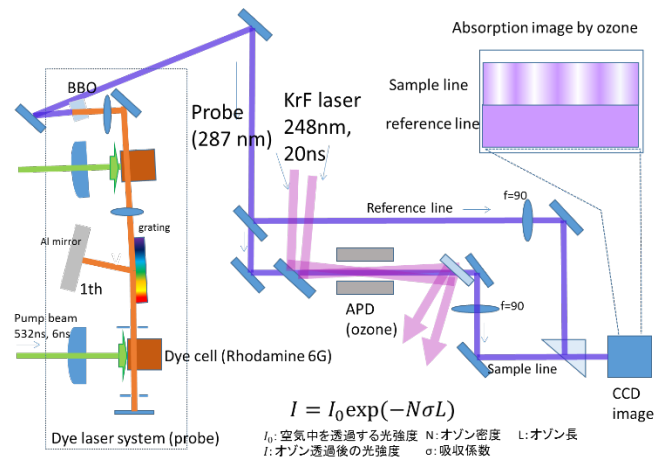


図 4 オゾン密度の測定

オゾン密度を測定した結果を図 5 に示す。周期的に紫外レーザーを照射しているとき (間隔 27μm) のオゾ

ン密度の変化は紫外レーザーが照射された瞬間は全く観測できなかったが、時間の経過とともに変化が大きくなり、55ns 付近で紫外レーザーの照射・非照射領域のオゾンの疎密が最大となったあと、次第に変化量は減少し、105ns 後にはまたオゾンの疎密がほぼ観測できなくなった。また、この周期は数 μ s 後まで繰り返していた。

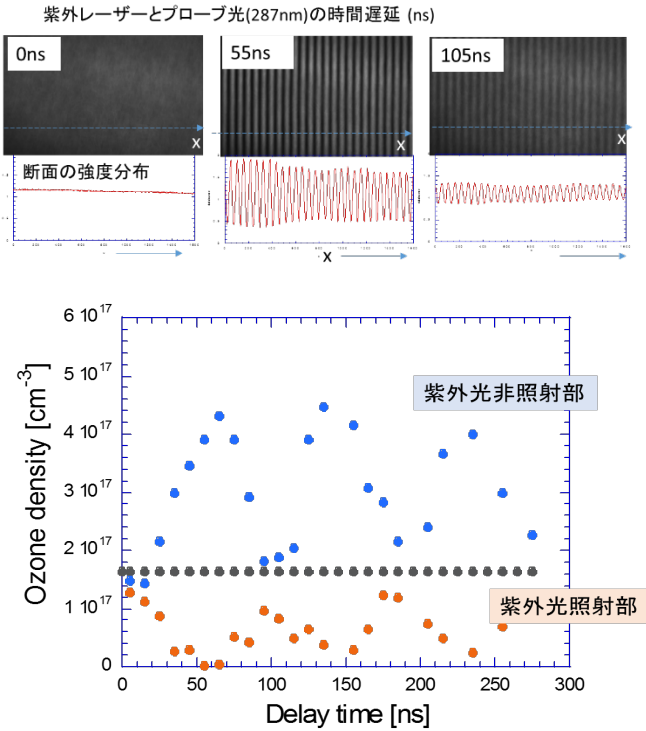


図5 オゾン密度の時間発展

ここで、最大オゾン密度変化量をとるときの回折格子の間隔を調べ、この結果から角周波数 $\omega = 2\pi / t = 2\pi / (\text{オゾン密度変化の周期}[\text{s}])$ 、波数 $k = 2\pi / \lambda = 2\pi / (\text{回折格子間隔}[\text{m}])$ として分散関係を求めると、図6のようになった。

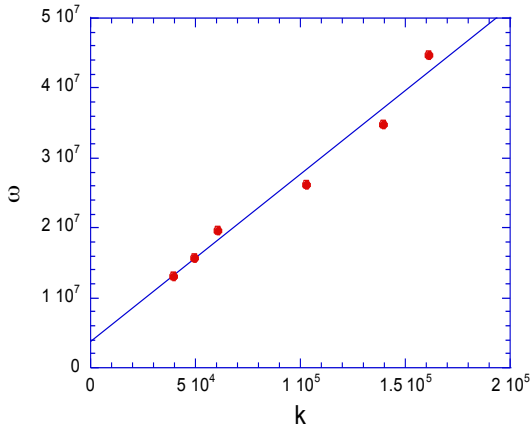


図6 分散曲線

図6からオゾン中の疎密波の分散はゼロであり、通常

音波とよく似た性質を示している。しかし通常音波が kHz 領域であるのに対してこのオゾン周波数は MHz 領域にあることから、音波とは違う新しい密度波が中性ガス内に励起されていることがわかった。

以上の実験結果から、紫外レーザーが照射されたオゾンは以下のような順番で疎密を形成するモデルが考えられる。

- ①：オゾン領域に紫外レーザーが照射されると、照射された領域のオゾンは酸素原子と酸素分子に光解離するが、再結合し、酸素+オゾンで形成されるガスが加熱される。その結果、照射領域の温度は高く (T_1)、レーザーが照射されていない領域の温度は相対的に低く (T_2) なる。またこのとき同時にそれぞれの領域で圧力差 (P_1, P_2) も生じる。このとき、照射・非照射領域のオゾン密度は一様に保たれている (ρ_0)。
 - ②：紫外レーザーを照射され温度が高くなった照射領域は膨張し、この照射領域の膨張の影響を受け非照射領域が圧縮される。このため時間経過とともに照射領域の温度は低下 (T_3) し、密度も下がる (ρ_3)。一方、非照射領域は温度が高く (T_4) なり、密度が上がる (ρ_4)。またこのとき、圧力は照射・非照射領域ともに同じになる方向に粒子の運動エネルギーが働く ($P_3 = (P_1 + P_2) / 2$)。
 - ③：密度差、温度差が最大を迎えた瞬間になっても、粒子は速度をもって動いているので慣性力が働き、やや照射領域の圧力が高くなり (P_4)、非照射領域の圧力が低くなる (P_3)。
- ③のプロセス終了後、②の状態になり、照射領域の膨張によって①へ戻る。そのため①→②→③→②→①→②→… のように周期的なオゾンの疎密が観測されるようになる。

3. オゾン回折格子の性能試験

3.1 レーザー耐力試験

ここでは高強度レーザーに対するオゾン回折格子の破壊閾値の測定を行った。このオゾン回折格子は紫外光により光励起、再結合後の熱化したオゾンの変化を利用したものであるため、高強度光によりオゾンの電離が起るとき回折格子として機能しなくなる。このため、実際に高強度光をオゾン中に入射したときの

オゾンの絶縁破壊閾値をオゾン回折格子の破壊閾値として、実験によりその値を決定した。オゾンの絶縁破壊閾値は以下のような実験構成で決定した。図7に実験装置構成概念図を示す。

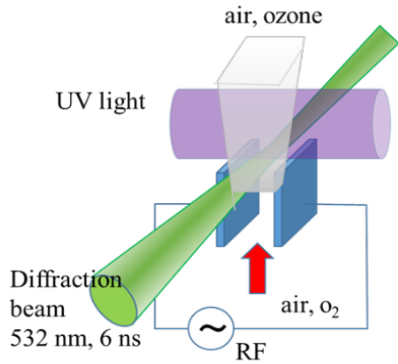


図7 実験装置構成

ここでは①空気 ②紫外光レーザーを照射しない状態のオゾン ③紫外光レーザーを照射した状態のオゾン の3つの状態でのガスの絶縁破壊強度を測定した。全条件、大気圧下で実験を行っている。高強度レーザーにはパルス幅6 ns、繰り返し20Hz、波長532 nmのレーザーを用い、①～③それぞれのガス中にレンズ($f = 300$)で集光させながら入射し、集光点がガス中となるようにし入射光強度の調整を行った。結果を図8に示す。

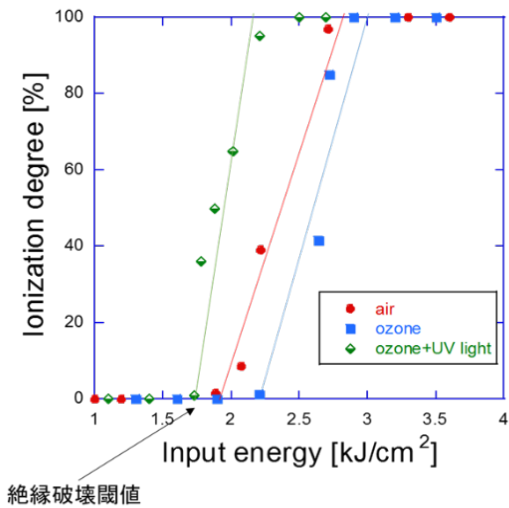


図8 オゾン回折格子の絶縁破壊強度

図8では①空気(赤線) ②紫外光レーザーを照射しない状態のオゾン(青線) ③紫外光レーザーを照射した状態のオゾン(緑線)で示した。ここで媒質の破壊閾値を絶縁破壊確率が急速に立ち上がる強度とする。各状態、同じ入射光強度で同じ破壊閾値とはなら

ならず、③のオゾン回折格子の作成状況下で最も低い値をとった。しかしその値はおよそ 1.7kJ/cm^2 であり、目標としては十分な破壊閾値であるといえる。

3.1 回折効率試験

実際に開発した回折格子を実用化するには、従来の回折格子に匹敵する回折効率も必要である。そこで、オゾン回折格子の回折効率の向上のための実験を行った。オゾン回折格子の作成には大きく分けて①オゾン生成部 ②紫外レーザーの干渉計部 ③被回折レーザーの入射光学系部 の3つのパートに分けられる。ここでは、回折効率の改善のためにどの部分が回折効率に大きく影響しているか、各パートの条件を変え実験しながら改善を行った。①については酸素ガスの冷却とオゾン流路・排気方法の高度化、②については注入同期によるレーザー立ち上がり時間の短縮化、さらに紫外レーザーは空気中の伝搬距離が長くなるほどに空間プロファイルが悪化するの、紫外レーザーの出射直後の最もプロファイルがきれいな像がオゾン生成部で利用できるように2枚のレンズで像転送光学系を組んだ。③では被回折光の空間フィルタによるプロファイルの改善とともにビームが完全平行光化するように調整を行った。さらに、回折効率が最大となるように全ての条件(回折格子の間隔、被回折レーザーの入射角、書き込み紫外光レーザーと回折レーザーの時間タイミング、オゾン媒質の長さ)を調整しながら最適値を探した。その結果を図9に示す。

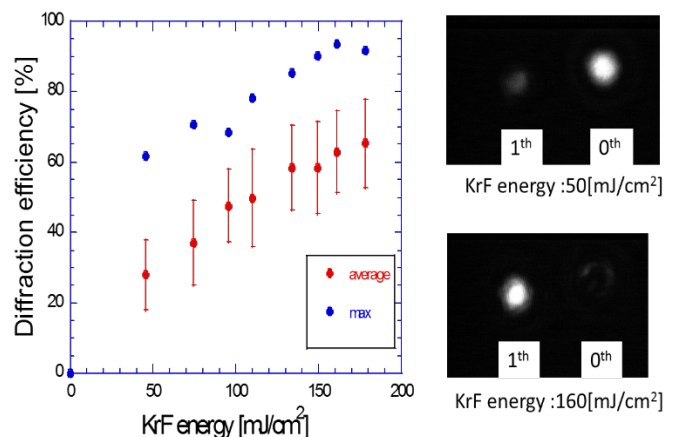


図9 回折効率の紫外レーザー強度依存性

回折効率が最大となる時間タイミングで紫外レーザー強度を変化させたときの回折効率の結果が図9である。紫外レーザー強度 160 mJ/cm^2 のとき回折効率

95%を達成することができた。写真にはこのときの0次光と1次光を CCD カメラで測定した結果を示している。95%の回折効率を達成したとき、回折しなかった0次光のパターンをみると外周部だけが回折していないようだった。これは被回折レーザーの波面の歪み部分だけ0次光として残っているものだと考えられる。またこのとき2次光、-1次光の測定も行い、CCD カメラで観測限界以下であることを確認した。

さらに、このときの回折効率の入射偏光依存性を測定した。ここでは入射被回折レーザーをグラブナーレーザーに入射し直線偏光状態をつくり、 $\lambda/2$ 板にてS偏光からP偏光まで回折格子に入射する偏光を変化させた。入射偏光状態をS偏光からP偏光まで10°ずつ変化させたときの回折効率を測定した結果を図10に示す。S偏光のときの $\lambda/2$ 板の回転角を0°とすると、45°回転させたときにP偏光となる。図10で示されるように、偏光による回折効率の変化は観測されなかった。

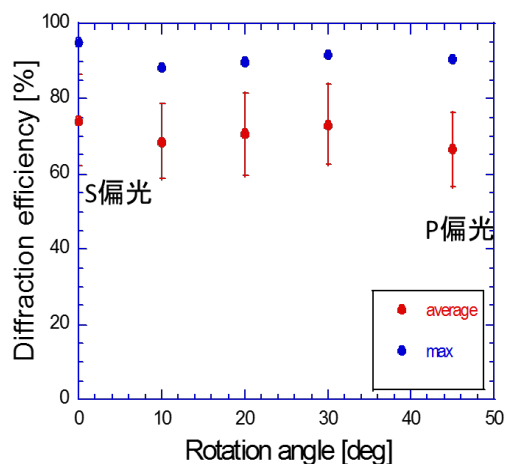


図10 偏光依存性

4. まとめ

本研究では、オゾンと紫外光レーザーを利用した新しい回折格子の開発を行った。オゾンに紫外光レーザーを周期的に照射したときの屈折率変調生成原理の解明実験を行い、干渉計測、吸収計測によって回折格子に必要な屈折率変調はオゾンの疎密によって形成されていることがわかった。この粗密を形成するためには周期的な紫外光照射パターンが鍵となっており、これによって紫外レーザー照射領域の温度が上昇、膨張し、それによってもって非照射領域の圧縮が可能になっていることがわかった。また、この気体の温度・圧

力・密度の変化は通常の音波と同じでないこともわかってきている。また、このオゾン回折格子が kJ/cm^2 の損傷閾値をもち、かつ制御光強度の4桁下のエネルギーで回折格子を作成できることを実証した。さらに、95%という高い回折効率を達成した。最後に従来の回折格子[7]と開発したオゾン回折格子の性能比較結果を以下に示す。

表1：まとめ

	固体回折格子	プラズマ回折格子	電子・光励起オゾン回折格子
回折格子生成に必要なレーザー強度 $[\text{W}/\text{cm}^2]$	-	10^{16}	10^6
破壊しきい値 $[\text{J}/\text{cm}^2]$	1~10	100	1700(40 μm ϕ)
回折格子の寿命	-	10 ps	10ns~
回折効率	85~90%	10~50%	95% (偏光依存性無し)

以上の表のように、耐力・回折効率ともに優れた回折格子の開発に成功した。

参考文献

- [1] G. H. Miller, et al., Nucl. Fusion 44, S228 (2004).
- [2] Sandro Klingebiel, J. Opt. Soc. Am. B/ Vol. 24, No. 8, (2007)
- [3] M. L. Spaeth, Fusion Science and Technology, Vol. 69, No. 1. (January/February 2016)
- [4] S. Suntsov, APPLIED PHYSICS LETTERS 94, 251104 (2009)
- [5] 島崎達夫, 成層圏オゾン 東京大学出版会 (1989)
- [6] David Picconi, et al., THE JOURNAL OF CHEMICAL PHYSICS 141, 074311 (2014)
- [7] Liping Shi, et al., Phys. Rev. Lett. 107, 095004 (2011)