

フィゾー干渉計を用いた屈折率の温度係数測定法の改良と評価

白川(晃) 研究室

鈴木 優哉

1. 序論

超短パルスレーザーは短いパルス幅のために尖頭出力が高く、非熱微細加工・高エネルギー分野による利用を念頭に研究が行われている。超短パルスを生成するためには、モード同期という手法を用いる必要があり、共振器内を十分最適化する必要がある。しかし、高出力固体レーザーにおいて励起により発生する熱に関する問題は共振器設計の際にボトルネックとなることがある。これは熱複屈折という現象により偏光によって異なる光路差を持ち、利得媒質自身が寄生的なレンズとなることに起因している。本研究では、高出力超短パルスレーザー用利得材料として開発された Yb:CaF₂-LaF₃ セラミックを用いて熱レンズフリー材料を作成する試みの前段階として、屈折率の温度係数測定法の改良と評価を試みた。

2. 熱レンズ効果

熱レンズ効果とは、媒質自身の温度分布のために媒質自身がレンズ状の媒質となる現象のことである。レーザーによって励起されている利得媒質の場合、一般に温度は二乗分布となる。このとき媒質断面での温度分布は、極座標系における角度による依存性がなく半径 r によって一意的に決まる場合以下の式によって立式される[1]。

$$T(r) = T(r_0) + \left(\frac{Q}{4K}\right)(r_0^2 - r^2) \quad (\text{式. 1})$$

光学的な屈折率変化は温度勾配と応力によって引き起こされるため、屈折率はロッド中心の屈折率を n_0 とすると

$$n(r) = n_0 + \Delta n(r)_T + \Delta n(r)_\varepsilon \quad (\text{式. 2})$$

である。温度勾配による屈折率の微小変化は

$$\Delta n(r)_T = [T(r) - T(r_0)] \left(\frac{dn}{dT}\right) \quad (\text{式. 3})$$

であり、式. 3 に式. 1 を用いると

$$\Delta n(r)_T = -\frac{Q}{4K} \left(\frac{dn}{dT}\right) r^2 \quad (\text{式. 4})$$

となる。この式から、 $\frac{dn}{dT} > 0$ のとき媒質は凸

レンズ状の屈折率分布となり、 $\frac{dn}{dT} < 0$ のとき媒質は凹レンズ状の屈折率分布となることがわかる。

式. 2 に温度勾配と応力による屈折率変化の寄与とを代入して整理すると

$$n(r) = n_0 \times \quad (\text{式. 5})$$

$$\left[1 - \frac{Q}{2K} \left(\frac{1}{2n_0} \frac{dn}{dT} + n_0^2 \alpha C_{r,\phi}\right) r^2\right]$$

となる。このときの屈折率分布による焦点距離 f は

$$f' \cong \frac{K}{Ql} \left(\frac{1}{2} \frac{dn}{dT} + n_0^3 \alpha C_{r,\phi}\right)^{-1} \quad (\text{式. 6})$$

となる[1]。この式は温度による屈折率変化と光弾性効果を含んだ熱レンズ効果による焦点距離を表している。屈折率の温度係数

が負であり、熱膨張係数が正であるようなフッ化物系の材料で組成を調整可能であれば、これらのパラメータを適切に調整でき熱レンズ効果を著しく低減できる可能性が高い。

3. Yb:CaF₂-LaF₃

本研究室では株式会社ニコンとの共同研究として、CaF₂セラミックに Yb イオンと La イオンを共添加したフッ化カルシウム-フッ化ランタン(Yb:CaF₂-LaF₃)セラミックの開発を行ってきた。Yb:CaF₂-LaF₃セラミックは Yb:CaF₂ 由来の幅広い蛍光スペクトル[2]を継承した透明セラミック材料である。フーリエの関係から幅広い蛍光スペクトルの材料は、短いパルス幅をもつ超短パルス光源の利得材料として適している。

図 1 に実際に使用した Yb:CaF₂-LaF₃ セラミックを示す。

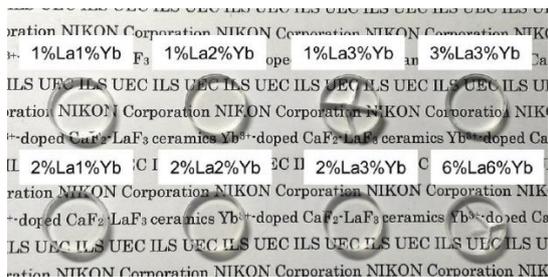


図 1 Yb:CaF₂-LaF₃セラミック試料の写真

図 1 に示すように様々な添加濃度で Yb:CaF₂-LaF₃セラミックを作成することが可能である。

Yb:CaF₂-LaF₃セラミックは熱間等方加圧法(Hot isostatic press, HIP 法)と呼ばれる製法に基づいて作製されている[3]。作製した Yb:CaF₂-LaF₃セラミックの走査型電子顕微鏡(SEM)画像を図 2 に示す。

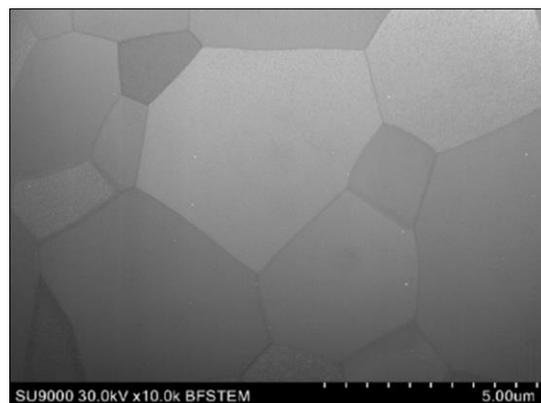


図 2. Yb:CaF₂-LaF₃セラミック SEM 画像

画像のように grain 同士の境界(grain boundary)が非常に薄く、欠陥の少ない良質なセラミックが形成されていることがわかる。セラミック中の grain の粒径はおよそ数 μm から数十 μm である。

このとき CaF₂-LaF₃ は共晶系を形成している[4]。2 価の Yb イオンの形成を抑制するために Yb 添加時の電荷補償の必要性から LaF₃ は添加されている。CaF₂, LaF₃ の成分比を調整することで物性値を変えることが出来ると示唆されている。

4. 屈折率の温度係数測定

屈折率の温度係数の測定は、干渉計を用いる方法がある[5]。本研究ではフィゾー干渉計を用いた。図 3 に実験の構成図を示す。試料は LD を用いて、結晶自体の吸収を利用して加熱を行うことで結晶の光軸方向の温度分布を小さくすることが可能である。

屈折率 n 、長さ L の試料を光が通過する場合、試料表面と試料裏面で反射した光の光路差 δ は次のように表される。

$$\delta = 2nL \quad (\text{式. 7})$$

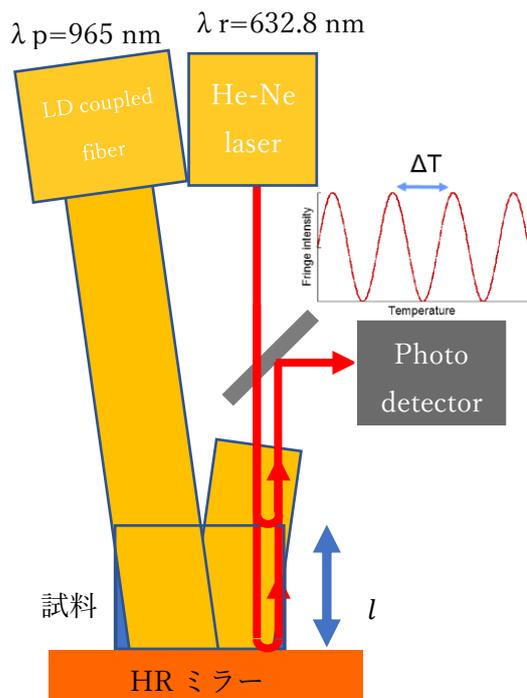


図 3 屈折率の温度係数の測定系

試料の屈折率と長さが温度変化することによって、式.7 で表される光路差も温度によって変化する。光弾性効果を無視すると関係式は式.7 より

$$\frac{d\delta}{dT} = 2L \frac{dn}{dT} + 2n \frac{dL}{dT} \quad (\text{式. 8})$$

両辺を L で割ると、式.8 より

$$\frac{1}{L} \frac{d\delta}{dT} = 2 \left(\frac{dn}{dT} + n\alpha \right) \quad (\text{式. 9})$$

となる。但し、 α を熱膨張係数とし、

$$\alpha = \frac{1}{L} \frac{dL}{dT} \quad (\text{式.10})$$

とする。試料の温度を ΔT 変化させたときに干渉縞の明暗が一周したとすると、参照光の波長を λ とすれば、試料の光路差は $\Delta\delta = \lambda$ である。これより式.9 より

$$\frac{dn}{dT} = \frac{1}{2L} \frac{\lambda}{\Delta T} - n\alpha \quad (\text{式.11})$$

となる。式.11 より試料に温度差を加えた

ときに干渉縞のフリンジを測定することで、屈折率の温度係数を求めることができる。

測定によって得られた干渉縞の明暗の変化を図 4 に示す。干渉縞の明暗の変化は光検出器によって測定し、試料の温度はサーミスタを用いて測定を行った。このとき加熱方法は中心波長 965nm の LD で試料上方斜め 30 度から直径 10mm で励起しており、参照光である He-Ne レーザーは試料の端、サーミスタ近傍に照射した。試料を加熱しある温度から LD の電源を切り空気による冷却により測定を行った。試料は 3%La, 2%Yb で、試料の厚みは 5.65mm であった。

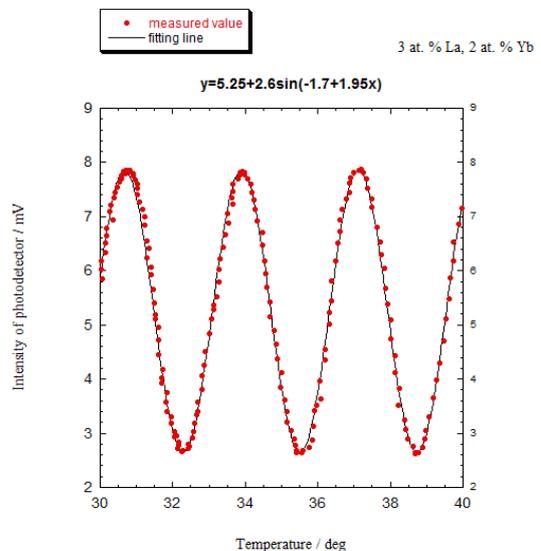


図 4 干渉縞の明暗の変化(3L2Y 試料)

干渉縞の明暗が 1 周するときの ΔT の値は 3.22°C であった。したがって式.11 より、試料の屈折率の温度係数は以下のように算出できた。

$$\frac{dn}{dT} = -5.92 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1} \quad (\text{式.12})$$

尚、このとき He-Ne レーザーの波長 λ は 632.8nm, 屈折率 n は 1.43、熱膨張係数 α は $16.3 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ を用いた。

5. 励起加熱時の定常状態の温度分布

屈折率の温度係数測定における過渡的な試料中の光軸方向の温度分布変化は屈折率の温度係数測定の精度に影響し、評価する必要がある。そのため過渡的な試料の温度分布を熱伝導方程式より求めるために、前段階として定常状態の温度分布を求めた。図5に境界条件となる試料表面の温度分布を測定するための系を示す。

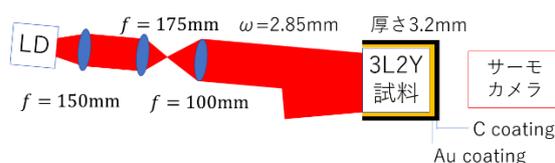


図5 測定した試料表面の温度分布

今回試料表面の30nmのAuコーティングはイオンスパッタリング法を用いて行った。その後温度測定のためにファインケミカルジャパン社製のブラックガードスプレーFC-153を均一に照射しCコーティングを施した。コーティング後の3.2mm試料の温度分布を図6に示す。

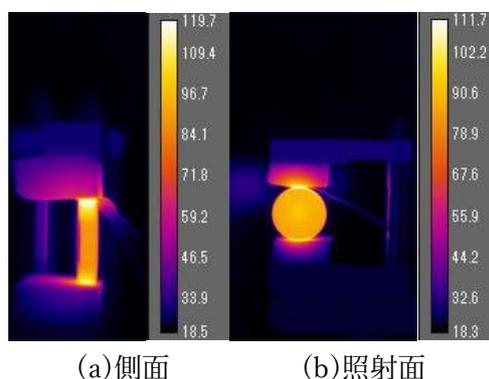


図6 コーティング後の試料の温度分布

その後、それぞれ一次的に温度分布を取り、これらを境界条件として二次元の定常次元熱伝導方程式で自己発熱の寄与を

含めてシミュレーションすると、図7のようになる。

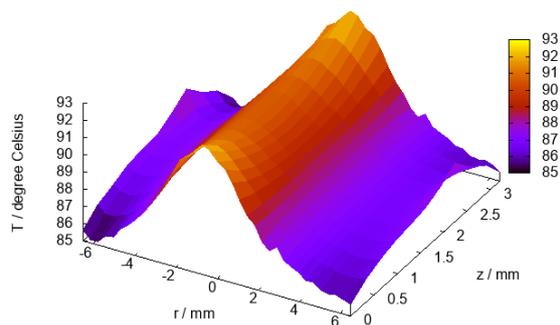


図7 試料の温度分布

尚、 $\eta_s = 0.88$ 、試料半径 $R=6.5$ mm、吸収係数 $\alpha = 0.6 \text{ cm}^{-1}$ 、熱伝導率 $K = 4.0 \text{ W/m K}$ 、ビーム半径 $\omega=2.85$ mm、 $l=3.2$ mm、

$E_0 = 0.395 \text{ W}^{\frac{1}{2}}\text{mm}^{-1}$ の状態を求めた。今

後、過渡的な状況について試料の温度分布の変化を求め、屈折率の温度係数の値の妥当性について吟味する必要がある。

参考文献

- [1] W. Koechner, (2006). *Solid-State Laser Engineering*. Springer.
- [2] V. Petit j, *et al.* Appl. Phys. B **78**, 681 (2004)
- [3] H. Ishizawa, U.S. patent 20,140,239,228 (August 28, 2014).
- [4] M. Švantner, *et al.* Cryst. Res. Technol. **14**, 365 (1979).
- [5] V. Cardinali, *et al.* Optical Materials **34**, 990 (2012)