

令和 5 年 5 月 10 日現在

機関番号：32644

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05366

研究課題名(和文)半導体励起アルカリレーザーの失活反応断面積測定およびシミュレーション

研究課題名(英文) Measurement of deactivation cross sections in diode-pumped alkali lasers and cross-check of them by a numerical simulation

研究代表者

遠藤 雅守 (Endo, Masamori)

東海大学・理学部・教授

研究者番号：60317758

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：半導体励起アルカリレーザー(Diode Pumped Alkali Laser=DPAL)の最も基本的な反応である、アルカリ原子とバッファガスの衝突緩和反応および失活反応の反応断面積を計測した。CsとCH<sub>4</sub>、C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>の3種類のバッファガスにおいて混合反応断面積、失活反応断面積計6個の結果を得た。続いて、3種のバッファガスを使いレーザー発振実験を行い、計測で得られた反応断面積を用いたシミュレーション結果と比較した。両者は良く一致し、計測結果の正しさを裏付けた。また、DPALのバッファガス分圧とレーザー出力の関係を表す解析解を導出し、実験結果と比較したところ良い一致を見た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

Csとバッファガスの反応速度定数は、今まで驚くほど測定結果の報告が少なかった。本研究により、Cs DPALの理論的研究に必要な6個の測定結果が出そろったことは意義深い。特に、CsとC<sub>3</sub>H<sub>8</sub>の間の失活反応断面積は今回初めて得られたものである。また、DPALのレート方程式に、特定の条件下では解析解が存在し、解析解が実験結果をよく表せることを初めて示したのは特筆すべき成果である。得られた反応断面積は、今後他のDPAL研究で広く用いられるものである。また、DPALの解析解は、反応断面積を計測する簡便な方法として応用可能である。

研究成果の概要(英文)：We have measured the reaction cross sections of the most fundamental reactions of the diode-pumped alkali laser (DPAL), i.e., the collisional relaxation reaction and the quenching reaction between Cs and three types of buffer gases, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, and C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>. As a result, six reaction cross sections for three buffer gases were obtained. Laser oscillation experiments were then performed with the three buffer gases, and the results were compared with the simulation results using the measured reaction cross sections. The results were in good agreement, confirming the accuracy of the measurement results. An analytical solution for the relationship between DPAL buffer gas partial pressure and laser power was derived and compared with the experimental results. The analytical solution represented the experimental results well.

研究分野：レーザー発振器，光共振器，レーザー加工

キーワード：アルカリレーザー DPAL セシウム 反応レート レート方程式 Cs ガスレーザー レーザー誘起蛍光法

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

半導体励起アルカリレーザー(Diode Pumped Alkali Laser=DPAL)は、 $100^{\circ}\text{C} \sim 200^{\circ}\text{C}$  に加熱したカリウム(K), ルビジウム(Rb), セシウム(Cs)などのアルカリ金属の蒸気を媒質とする連続発振のレーザーである。図1に、Cs-DPALのエネルギー準位と主要な反応を示す。アルカリ原子のP軌道はスピン軌道相互作用によりエネルギーが接近した( $^2P_{1/2}$ )と( $^2P_{3/2}$ )準位に分裂している。これらの準位から基底準位への発光遷移は、歴史的経緯から「D<sub>1</sub>遷移」、「D<sub>2</sub>遷移」と呼ばれている。ナトリウムランプのオレンジ色の光は、ナトリウムのD線に特有の色で、K, Rb, Csではこれらの遷移は近赤外領域にある。

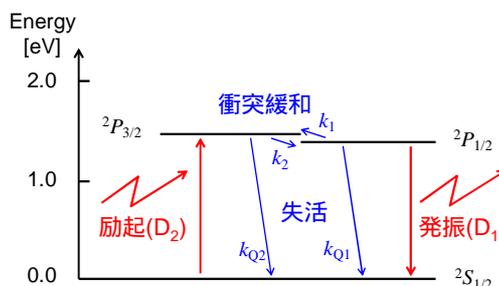


図1: Cs-DPALのエネルギー準位図と主要な反応

DPALの発振原理は、D<sub>2</sub>線にチューニングした狭帯域の半導体レーザー(LD)でアルカリ原子を( $^2P_{3/2}$ )準位に光励起し、衝突緩和反応により原子を( $^2P_{1/2}$ )準位に送り、( $^2P_{1/2}$ )と基底準位( $^2S_{1/2}$ )間の逆転分布でレーザー発振するというものである。すなわちDPALは「光励起連続発振三準位ガスレーザー」という、きわめて特異なレーザーと位置付けられる。

典型的なCs-DPALの構造概念図を図2に示す。装置は加熱装置を備えた利得セル、励起用LD、光共振器だけの極めてシンプルなものである。加熱装置は、レーザー発振に必要な0.1Pa程度のCs蒸気を発生させる。利得セル内にはバッファガスとしてヘリウムと飽和炭化水素(メタン, エタン, プロパンのいずれか)が1気圧程度の圧力で満たされている。バッファガスの機能は2つあり、一つは、Csの吸収線幅を広げて、LDの広い帯域(0.1nm程度)に一致させること、もう一つは上準位の衝突緩和反応の衝突パートナーとなることである。

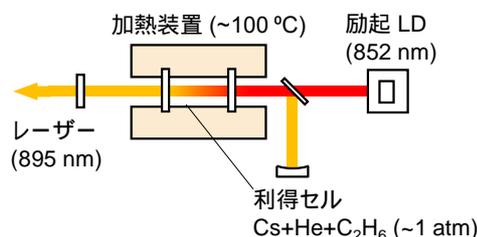


図2: DPALの概念図

DPALの特徴の一つは、極めて高いスケーラビリティである。極めて大きな誘導放出断面積、高いストークス効率(>95%)、LD励起などの特徴を併せ持つDPALは、かつて盛んに研究された化学レーザーに匹敵する、メガワット級の連続発振も原理的には可能である。実際に、アメリカのローレンス・リバモア国立研究所では、出力100kWの装置が存在すると言われているが、防衛用途の研究のため情報は非公開である。研究代表者は、大型レーザーを用いて地上から衛星軌道上のスペースデブリを除去する構想の光源としてDPALが有望であることを早くから指摘し、基礎的な研究を続けてきた。

DPALの物理を理解するため、またレーザー装置の設計、およびスケールアップの研究のため、初期の研究から活発にレーザー発振の数値シミュレーションが行われてきた。シミュレーションは、図1に示された諸反応をモデル化し、逆転分布密度を計算し、レーザー出力を予想するものである。計算に使用される化学反応の断面積の計測は、1960年代に行われて以来最近まで追試がなされておらず、特に、失活反応断面積については、「無視できるほど小さい」という予想のもとで、ゼロと近似されていた。

### 2. 研究の目的

ところが、研究代表者が製作したDPALは、Csと炭化水素の失活反応が存在すると仮定しないと説明できない実験結果を示した[1]。研究代表者が行ったシミュレーション計算は、失活反応のレートを有限とすることで実験結果との良い一致を見た。同様に、Yacoby等[2]により行われた実験とシミュレーションの比較でも、研究代表者と同様、失活反応を考慮しないと実験結果が説明できないという結果を得て

いる。

このような背景から、失活反応断面積の直接計測はここ数年で盛んになってきており、特に、2019年になって USAF Academy の研究グループから報告された計測値は、現代最高の測定技術によって得られた測定精度の高さから注目されている[3,4]。しかし、文献[3,4]の報告は Rb とメタン、Cs とメタンの反応のみで、この種の研究は未だ「手つかず」の状態と言っても過言ではない。そこで、本研究は、パルスレーザー励起蛍光緩和観測法によって、Cs とメタン、エタン、プロパンの混合反応断面積および失活反応断面積の直接計測を試みるものである。

### 3. 研究の方法

本研究は、Cs 原子と炭化水素の混合および失活反応断面積を明らかにする実験的研究である。実験は2つのパートに分けられる。一つは、パルスレーザー励起・蛍光緩和観測法による、反応断面積の計測である。もう一つのパートが、測定の結果得られた反応断面積をレーザー発振実験により確認することである。研究の結果得られるのは、表1の物理量である。ただし、ここで反応断面積  $\sigma$  [m<sup>2</sup>]と、図1の反応レート  $k$  [m<sup>3</sup>s<sup>-1</sup>]は、以下の式で結ばれている。

$$k = \sigma \left[ \frac{8k_B T}{\pi} \left( \frac{1}{m_{Cs}} + \frac{1}{m_{HC}} \right) \right]^{1/2} \quad (1)$$

ここで、 $k_B$  はボルツマン定数、 $T$  はガス温度、 $m$  は原子・分子の質量である。

表 1: 本研究の結果、得られるべき物理量

炭化水素	メタン(CH <sub>4</sub> )	エタン(C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> )	プロパン(C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> )
緩和反応断面積 $\sigma_M$			
失活反応断面積 $\sigma_Q$			

反応断面積計測実験の概念図を図3に示す。装置は混合ガス供給系、励起用パルスレーザー、ガスセル、光検出器、GHz オシロスコープよりなる。励起用パルスレーザーは光パラメトリック発振(OPO)により Cs の D<sub>2</sub> 線に一致したナノ秒のパルスを発生する。ガスセルには任意の分圧でメタン、エタン、プロパンのいずれかが注入される。セル内部には

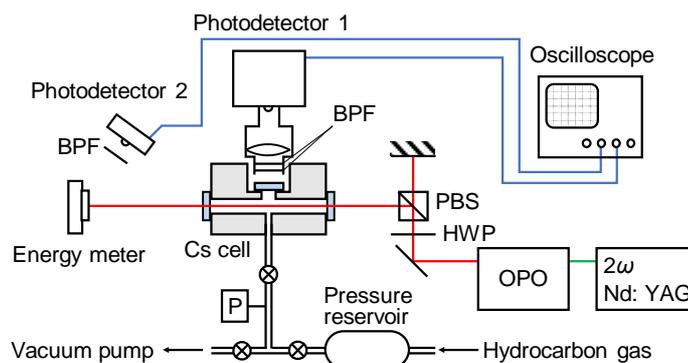


図 3: レーザー誘起蛍光法による反応断面積計測試験装置

Cs が少量封入されており、常温の飽和蒸気圧で Cs 蒸気が存在する。詳細な計算方法は文献[5]に譲るが、混合ガスをナノ秒レーザーで励起し、D<sub>1</sub> 線の蛍光の立ち上がりおよび立ち下りの時間経過を計測することにより、混合および失活反応速度定数を得て、(1)式から反応断面積を得る。

その後、研究代表者が所持する Cs-DPAL の実験装置でレーザー発振実験を行う。この際、メタン、エタン、プロパンの3種類のガスを用い、0 から 2atm の幅広い分圧で動作させ、レーザー出力の炭化水素圧力依存性のデータを得る。そして、同じ条件でシミュレーション計算を行い、レーザー出力を予想する。この際、反応断面積には、前述の測定で得られたデータを使用する。そして、同じ条件で行った実験と計算の結果が一致すれば、計測された反応断面積の信頼性が担保される。

#### 4. 研究成果

メタン, エタン, プロパンの3種類のガスの混合反応断面積  $\sigma_M$ , 失活反応断面積  $\sigma_Q$  の6種類の定数を計測した. 研究手法で特筆すべきは, 比較的安価に入手可能なナノ秒パルスレーザーを光源としながら, ナノ秒で減衰する蛍光の減衰定数を計測する手法を開発した点である. これは, 同種の他の研究にも活用しうる.

メタン, エタン, プロパンの  $\sigma_M$  は  $(13.9 \pm 1.6)$ ,  $(56.7 \pm 8.5)$ ,  $(79.1 \pm 9.3) \text{ \AA}^2$ ,  $\sigma_Q$  はそれぞれ  $(0.015 \pm 0.0025)$ ,  $(0.10 \pm 0.020)$ ,  $(0.25 \pm 0.053) \text{ \AA}^2$  であった(at 298K).

計測結果を先行研究と比較したものを図4に示す. 図中, Endo(2018)は前述の通り, 研究代表者がレーザー発振試験の結果とシミュレーションの結果を比較して得た推測値である[1]. Gearba 等の先行研究[3]ではメタンの  $\sigma_M, \sigma_Q$  が高い精度で知られており, 本研究の結果はそれらと誤差の範囲で一致した. エタンの  $\sigma_M, \sigma_Q$  はいくつかの値が知られているが, 互いの一致は良くない. 本研究の計測値がそれを補う形である. プロパンの  $\sigma_Q$  は本研究が初の報告となる.

続いて, メタン, エタン, プロパンの3種類のガスをバッファガスに用い, DPAL の実験装置を動作させた. 実験装置の概念図を図5に示す. このとき, バッファガスの分圧をゼロから 2atm まで変え, レーザー出力とバッファガス分圧の関係を得た. 次に, 研究代表者が開発した数値シミュレーションコードに, 計測された  $\sigma_M, \sigma_Q$  を代入, 実験装置と同じ条件におけるレーザー出力を計算させた. それらの比較を図6に示す. 赤いプロットが実験結果, 青い曲線がシミュレーションの結果である. 計算結果は3種類のバッファガスすべてにおいて, バッファガス分圧の全域において実験結果をよく再現した. したがって計画時に掲げた本研究の目的は完全に達成されたと言える.

加えて, 実験を行う過程で, バッファガス分圧とレーザー出力の関係が一次関数で表される領域があることを見出し, DPAL のレート方程式に解析解が存在することを見出した. 解は炭化水素の分圧とともにレーザー出力が単調に上昇する領域, 炭化水素圧力が最適値を超え, 分圧とともに一次関数に従い減少する領域で個別に定義される.

上昇時, 下降時の変化率はそれ

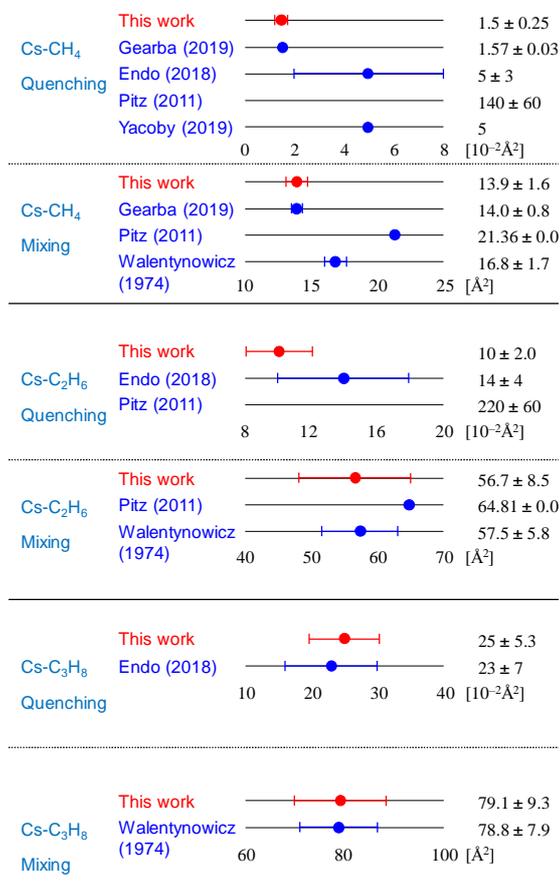


図4:  $\sigma_M, \sigma_Q$  を先行研究と比較

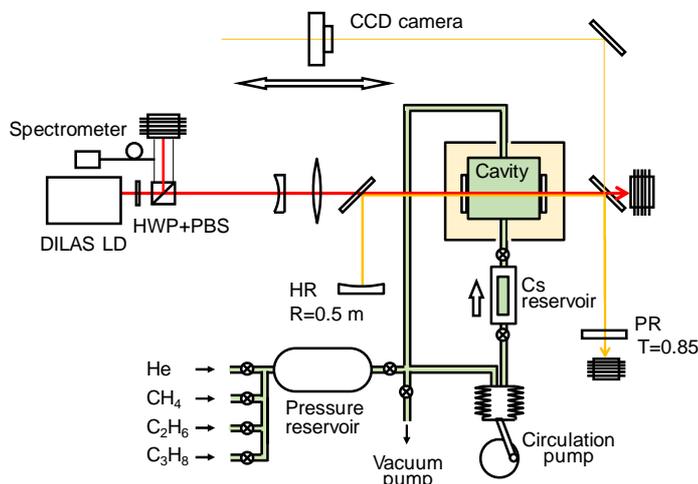


図5: レーザー発振実験の実験装置

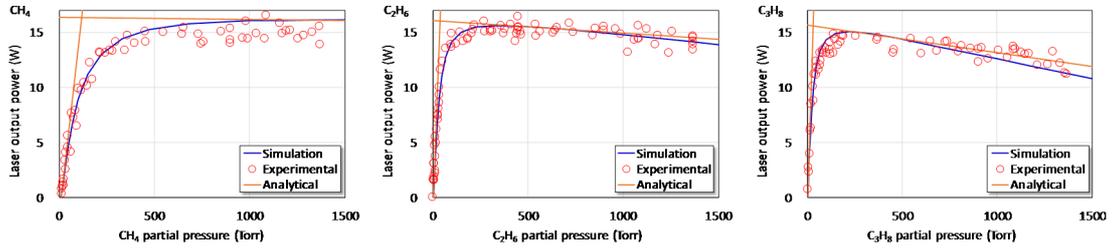


図 6: バッファガス圧力とレーザー出力の関係. 左からメタン, エタン, プロパン.

それ以下の式に従う[6].

$$\frac{dI_1}{dn_{\text{HC}}} = \frac{k_2}{4} \left[ nl(2-X) - \frac{(1-R)(2+3X)}{\sigma_{10}(1+R)} \right] \frac{hc}{\lambda_1} \quad (2)$$

$$\frac{dI_1}{dn_{\text{HC}}} = -(1+X) \frac{nl\sigma_{10}(1+R) + (1-R)}{(1+R)(2+X)\sigma_{10}} \frac{hc}{\lambda_{\text{AV}}} k_{\text{QAV}} \quad (3)$$

ここで  $I_1$  はレーザー光強度,  $n_{\text{HC}}$  は炭化水素数密度,  $k_2$  は図 1 の衝突反応速度定数,  $k_{\text{QAV}}$  は失活反応速度定数の平均値,  $X$  は詳細つり合い定数 ( $2e^{-\Delta E/k_B T}$ ),  $n$  は全 Cs 数密度,  $l$  は媒質長,  $\lambda_1$  は  $D_1$  遷移波長,  $\lambda_{\text{AV}}$  は  $k_{\text{QAV}}$  と同じ手法で平均化した  $D_1, D_2$  遷移波長の平均値,  $\sigma_{10}$  は  $D_1$  遷移の誘導放出断面積,  $R$  は共振器ミラーの反射率,  $h$  はプランク定数,  $c$  は真空の光速である.

図 6 のオレンジの直線が, 測定された反応断面積を用いて計算した解析解である. 図のように, 解析解はやはり実験結果とよく一致した. この結果は, 測定された反応断面積の正しさを補強するのみでなく, シミュレーション結果との相互比較により, シミュレーションの正しさをも裏付けたものと言える.

ここで, 解析解の立ち上がりの傾きは  $\sigma_M$  のみ, 立下りの傾きは  $\sigma_Q$  のみに支配されるため, 本研究と同様に炭化水素圧力を広範囲に変えてレーザー発振実験を行い, 直線の傾きを計測するだけで  $\sigma_M, \sigma_Q$  を知ることができる. この手法にはレーザー誘起蛍光法もシミュレーションも不要なため, DPAL のバッファガスの  $\sigma_M, \sigma_Q$  を定量的に知る新たな方法として有望である. 本研究の結果は, 現在ホットな話題であるカリウム DPAL に炭化水素ガスを混合する手法について, 解析解から反応断面積を得る方法に道を開いた.

#### < 引用文献 >

- [1] M. Endo *et al.*, “Diode-pumped cesium vapor laser operated with various hydrocarbon gases and compared with numerical simulation,” *Opt. Engineering* 57(12), 126104 (2018).
- [2] E. Yacoby *et al.*, “Analysis of continuous wave diode pumped cesium laser with gas circulation: experimental and theoretical studies,” *Opt. Express* 26(14), 17814 (2018).
- [3] M. A. Gearba *et al.*, “Measurements of cesium mixing and quenching cross sections in methane gas: understanding sources of heating in cesium vapor lasers,” *Opt. Express* 27(7), 9676-9683 (2019).
- [4] M. A. Gearba *et al.*, “Collisional excitation transfer and quenching in Rb( $5P$ )-methane mixtures,” *Phys. Rev. A* 99, 022706 (2019).
- [5] M. Endo *et al.*, “Collisional mixing and quenching cross sections of Cs  $6^2P$  levels with methane, ethane, and propane,” *Opt. Express* 29(26), 42887 (2021).
- [6] M. Endo *et al.*, “Analytical model of a diode-pumped cesium laser for investigation of upper-state mixing and quenching reactions,” *Opt. Express* 31(10), 15423 (2023).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Masamori Endo, Hiroki Nagaoka, Fumio Wani	4. 巻 12347
2. 論文標題 DPAL activities in Japan: update	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Proceedings of SPIE	6. 最初と最後の頁 1234702
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1117/12.2653852	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Masamori Endo, Hiroki Nagaoka, and Fumio Wani	4. 巻 31
2. 論文標題 Analytical model of a diode-pumped cesium laser for investigation of upper-state mixing and quenching reactions	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 15423-15437
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.487548	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Endo Masamori, Nagaoka Hiroki, Wani Fumio	4. 巻 29
2. 論文標題 Collisional mixing and quenching cross sections of Cs 62P levels with methane, ethane, and propane	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 42887 ~ 42887
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.446192	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Endo Masamori, Nagaoka Hiroki, Wani Fumio	4. 巻 54
2. 論文標題 Diode pumped alkali laser (DPAL) - current status and prospects	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optical and Quantum Electronics	6. 最初と最後の頁 343-363
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s11082-022-03765-x	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Masamori Endo, Hiroki Nagaoka, Fumio Wani
2. 発表標題 DPAL activities in Japan: update
3. 学会等名 XXIII International Symposium on High Power Laser Systems and Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masamori Endo, Hiroki Nagaoka and Fumio Wani
2. 発表標題 Diode pumped alkali laser (DPAL) - current status and prospects
3. 学会等名 PHOTONICA2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 レーザー共振器及びレーザー共振器の制御方法	発明者 長岡宏樹, 永井亨, 遠藤雅守	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-174948	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------