

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 2 月 22 日現在

機関番号：13501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760272

研究課題名(和文)エキシマランプ型軸方向放電励起方式によるペンシル型真空紫外レーザー発振への挑戦

研究課題名(英文) Research of vacuum ultraviolet laser with capillary discharge tube pumped by longitudinal discharge like excimer lamp

研究代表者

宇野 和行 (UNO, Kazuyuki)

山梨大学・総合研究部・助教

研究者番号：20550768

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円、(間接経費) 960,000円

研究成果の概要(和文)：エキシマランプ型低ガス圧軸方向放電励起方式による真空紫外レーザー(主に、キセノンエキシマの波長172 nm)の研究において、複数の励起回路によるレーザー発振に寄与する一重項の発光特性が明らかとなった。利得測定では、一重項の発光に伴う増幅または吸収が観測されたが、本測定の問題点も明らかとなった。また、本方式による新しい紫外気体レーザーとして、拡がり角0.3 mradのN₂レーザーやパルスインダクティブ放電によるN₂レーザーの開発が行われた。

研究成果の概要(英文)：We studied about a vacuum ultraviolet laser pumped by low-pressure longitudinal discharge like an excimer lamp. In Xe^{2*} with the wavelength of 172 nm, the characteristics of the singlet emission was investigated using several excitation circuits. The singlet emission has high intensity at the low pressure of about 10 Torr. In a gain measurement, the amplification and/or the absorption were observed but our experimental set up has new problem. Moreover, as new gas lasers using this system, a longitudinally excited N₂ laser with the low beam divergence of 0.3 mrad (full angle) and the a longitudinally excited N₂ laser pumped by pulse inductive discharge were developed.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学，電子デバイス・電子機器

キーワード：光デバイス・光回路

1. 研究開始当初の背景

【東京大学】2011年の鉄系超伝導体における新しい高温超電導メカニズムの発見では、真空紫外レーザーを用いた超高分解能光電子分光装置がキー装置であった。さらに高仕事関数物質の測定・高分解能を可能にする為には、真空紫外(高エネルギー光子)レーザーの開発が重要である。

【宮崎大学・宇都宮大学】近年、高強度レーザーによる放電キャピラリープラズマによる真空紫外希ガスエキシマレーザーの研究を行い、良好な結果を得ている。

本研究との類似点：放電キャピラリープラズマ

本研究との相違点：方式・ガス圧・励起過程

【研究代表者】2002年より、低ガス圧軸方向放電励起気体レーザーの研究を行っている

(2008年まで大阪大学レーザーエネルギー学研究所にて、2009年より山梨大学にて)。近年、高効率真空紫外光源であるエキシマランプと軸方向放電励起気体レーザーを組み合わせた、新しい気体レーザー(N₂レーザー及びF原子レーザーの発振)の開発に成功した。真空紫外希ガスエキシマでは、低ガス圧において、レーザー上準位であり利得の存在を示す一重項の高強度発光を観測した。これにより、超小型真空紫外希ガスエキシマレーザーの開発が期待された。本研究では、波長126 nmのアルゴンエキシマ(Ar₂^{*})及び波長147 nmのクリプトンエキシマ(Kr₂^{*})、波長172 nmのキセノンエキシマ(Xe₂^{*})のレーザー発振を目指す。

2. 研究の目的

本研究では、新しいエキシマランプ型低ガス圧軸方向放電励起方式により、放電キャピラリープラズマをレーザー媒質としたペンシル型真空紫外レーザー(アルゴンエキシマでは波長126 nm、クリプトンエキシマでは波長147 nm、キセノンエキシマでは波長172 nm)の発振を目的として、その基礎パラメータを明らかにする。本研究では、発光波長・発光強度・蛍光寿命・利得のガス圧・放電体積・励起強度依存特性を測定する。これらの測定を基に、レーザー共振器を構成し、レーザー発振実験を行う。発振特性から、超高分解能光電子分光装置に必要なレーザーパルスを得る為の装置構成について検討する。

3. 研究の方法

(1) 発光特性の調査

当初、分光器による発光スペクトルの調査を予定していたが、感度不足もしくは低出力光により、測定が困難であったため、バンドパスフィルタ(中心波長171 nm, 半値幅20.8 nm)による調査が行われた。Fig. 1のウォールカップル回路とFig. 2のCカップル回路を用いて、Xe₂^{*}(172 nm)の発光特性が調査された。

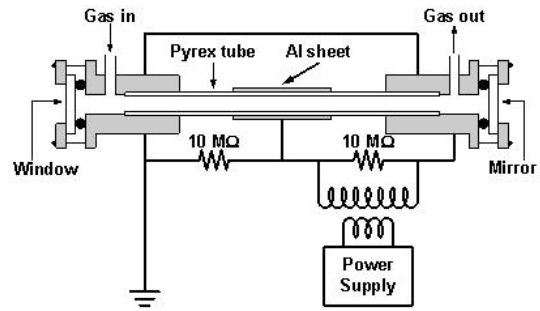


Fig. 1. ウォールカップル回路。

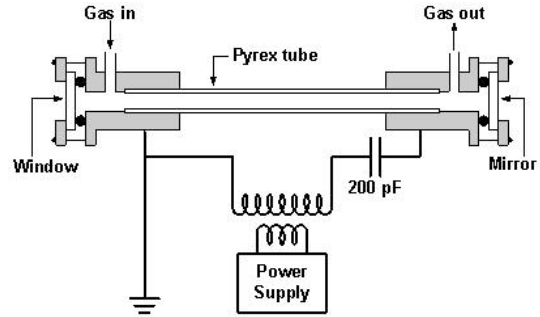


Fig. 2. Cカップル回路。

Fig. 1とFig. 2は、エキシマランプを同じく、キャパシタ(C)カップル回路であり、スパークギャップなどの高速大電流スイッチを用いない回路である。Fig. 1のウォールカップルダイレクトドライブ回路は、我々の先行研究で用いた方式である。しかし、充電容量がアルミ箔が巻かれた放電管中央部分で決定されるため、高い入力エネルギーの使用が難しい。Fig. 1における充電容量は、25.9 pFと見積もられた。そこで、入力エネルギーの増加のために、Fig. 2のCカップル回路を開発した。Fig. 2は、Fig. 1と同じ等価回路であり、充電容量(入力エネルギー)を任意に変更可能である。そこで、Fig. 2の回路を用いて、発光特性の調査が行われた。

放電管には、内径2.5 mm、外径7 mm、長さ20 cmのパイレックス管が用いられた。ウィンドウにはCaF₂ウィンドウ(透過率83.6% @ 172 nm)、ミラーにはCaF₂コートAlミラー(反射率80% @ 172 nm)が用いられた。励起回路は、-600 Vのパルス電源と高速トランス(EG&G, Tr-153, 一次容量0.22 μF)、200 pFの二次容量で構成された。

放射光は、窒素パージされた光路を進み、バンドパスフィルタ(Acton Research, P/N# 172-N-1D, 半値幅20.8 nm, 透過率17.4% @ 171.0 nm)を通過し、VUV光用光電子増倍管(Hamamatsu, R1645U-10)により検出された。放電電圧は、高電圧プローブ(Tektronix, P6015A)により測定された。

(2) 利得測定

Fig. 3とFig. 4の2つの装置構成によりXe₂^{*}の利得の時間分解波形の測定が実験された。どちらの装置構成も、2本の放電管を用い、1

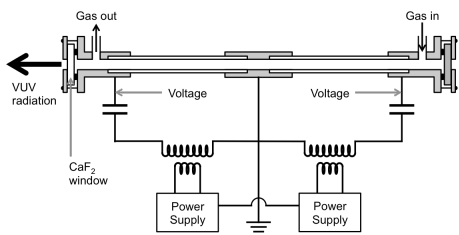


Fig. 3. 利得測定装置構成図 1.

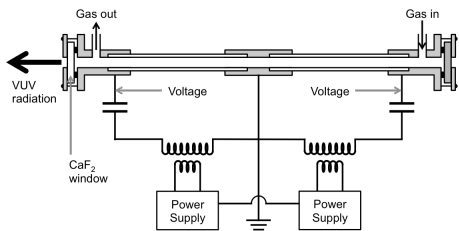


Fig. 4. 利得測定装置構成図 2.

本をオシレータ、もう 1 本をアンプとして利用した。2 本の放電管は、時間差がつけられて放電させられる。時間差に依存するオシレータの放射光強度の測定により、時間に依存する利得の測定が可能である。

Fig. 3 の装置構成では、オシレータの出力減衰を防ぐために、2 本の放電管をウィンドウレスで接続し、測定系から遠い放電管をオシレータとして、近い放電管をアンプとして、実験が行われた。2 本の放電管には、内径 2.5 mm、外径 7 mm、長さ 20 cm のガラス管が用いられた。2 本の放電管の接続にはアルミパイプが用いられ、それぞれのグランド電極として共有した。ウィンドウには CaF_2 ウィンドウ (透過率 83.6% @ 172 nm)、ミラーには CaF_2 コート Al ミラー (反射率 80% @ 172 nm) が用いられた。2 つの回路のトランス (NISSAN MOTOR, 22433-12P11) と一次容量 $0.11 \mu\text{F}$ 、充電容量 200 pF は同じものが用いられた。

Fig. 3 の装置構成では、オシレータとアンプをウィンドウレスで接続しているため、片方の放電がもう片方の放電に影響を及ぼしている可能性がある。そこで、オシレータとアンプの放電空間をウィンドウにより切り離れた Fig. 4 の装置構成においても実験が行われた。オシレータには、内径 5 mm、外径 7 mm、長さ 15 cm のパイレックス管が用いられた。ミラーには CaF_2 コート Al ミラー (反射率 80% @ 172 nm)、ウィンドウにはアンプと共有した MgF_2 ウィンドウ (透過率 78.3% @ 172 nm) が用いられた。アンプには、内径 2.5 mm、外径 7 mm、長さ 20 cm のパイレックス管が用いられた。ウィンドウには、オシレータと共有した MgF_2 ウィンドウと出力側の CaF_2 ウィンドウ (透過率 83.6% @ 172 nm) が用いられた。オシレータとアンプの 2 つの励起回路は、Fig. 3 と同じものが用いられた。

Fig. 3 と Fig. 4 の測定系は、上述の (1) と同じものが使用された。

(3) 新しい気体レーザーの開発

上述 (1) の研究において、 Xe_2^* の発光強度向上のために、いくつかの新しい励起回路が開発された。その中でも 2 つ特筆すべき励起回路が開発され、波長 337 nm の N_2 レーザーとして発振が観測された。

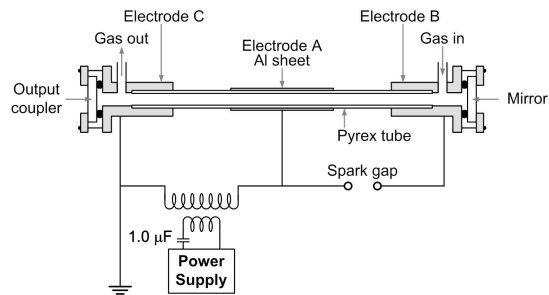


Fig. 5. ウォールカップル・ダイレクトドライブ回路.

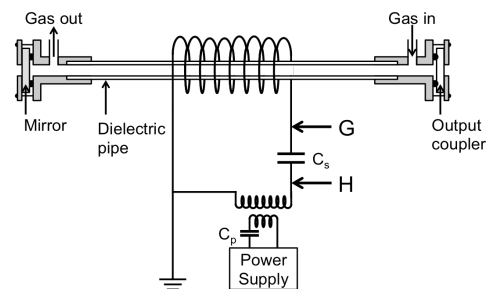


Fig. 6. パルスインダクティブ励起回路.

Fig. 5 は、ウォールカップル・ダイレクトドライブ回路である。ウォールカップル・ダイレクトドライブ回路は、Fig. 1 のエキシマランプと同じ励起回路をベースにしている。ウォールカップル・ダイレクトドライブ回路では、固体レーザーや半導体レーザーのようなビームが広がらない N_2 レーザーが生成された。放電管には、内径 2.5 mm、外径 7 mm、長さ 30 cm のパイレックス管が用いられた。放電管の両端に電極兼ミラーホルダが取り付けられた。共振器は、誘電体多層膜出力カップラ (反射率 30% @ 337 nm) と Al ミラー (反射率 92% @ 337 nm) で構成された。励起回路は、 -600 V のパルス電源と高速トランス (EG&G, Tr-153, 一次容量 $1 \mu\text{F}$)、スパークギャップ、放電管の中央に巻かれた長さ 10 cm のアルミシートによる 25.9 pF のウォールカップル容量で構成された。

Fig. 6 は、パルスインダクティブ励起回路である。放電管には電極がなく、ガラス管の中央に巻かれたコイルにより、プラズマが生成される。本方式は、無電極のエキシマランプと同じ構造となっている。内径 2.5 mm、外径 7 mm、長さ 30 cm のパイレックス管の両端には、ミラーホルダが取り付けられた。共振器は、誘電体多層膜出力カップラ (反射率 30% @ 337 nm) と Al ミラー (反射率 92% @ 337 nm) で構成された。励起回路は、 -600 V のパルス電源とトランス (NISSAN MOTOR, 22433-12P11) と一次容量 $11.3 \mu\text{F}$ 、充電容量 700 pF 、パイレックス管の中央に巻かれた 150

巻きのコイルで構成された。

レーザー出力エネルギーはエネルギーメータ (Gentec, QE12LP-H-MB-D0), レーザーパルス波形はフォトダイオード (Hamamatsu, S5973), ビームプロファイルはビームプロファイラ (Coherent, LaserCam HR-UV), 放電電圧は高電圧プローブ (Tektronix, P6015A) により測定された。

4. 研究成果

(1) 発光特性の調査

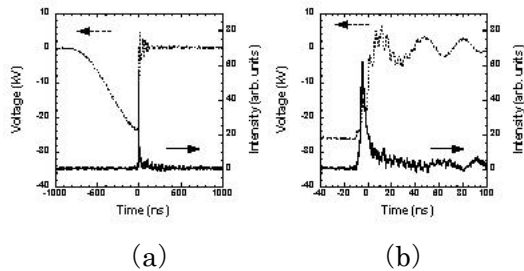


Fig. 7. Xe ガス圧 5 Torr における時間波形. 実線は発光波形, 破線は放電電圧波形である. (a) は放電電圧波形の全体図, (b) は発光パルスの拡大図.

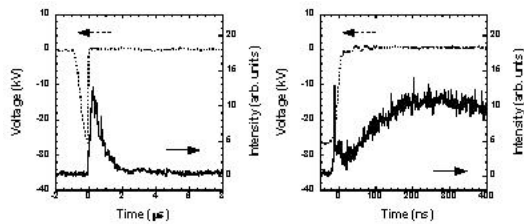


Fig. 8. Xe ガス圧 70 Torr における時間波形. 実線は発光波形, 破線は放電電圧波形である. (a) は発光パルスの全体図, (b) は発光パルスの立ち上がり時の拡大図.

Fig. 7 は, Xe ガス圧 5 Torr における放電電圧波形と発光パルス波形を示す. 放電電圧は, ゆっくりとした立ち上がり時間 561.9 ns で, 絶縁破壊電圧 -26.8 kV に達し, 放電を開始する. 放電の立下り時間 (放電の形成時間) は 8.5 ns であった. ウォールカップル回路とは異なり, 主放電で完全に電圧が降下しており, 後続電流による放電は生じていないと考えられる. ウォールカップル回路と同様に, 放電開始と同時に, 半値幅 4.3 ns の強い発光が生成された. この発光は, 放射寿命の短さから $\text{Xe}_2^* ({}^1\Sigma_u^+)$ によるものと考えられる. 発光パルスの半値幅が短く, レーザー発振を行っている可能性もあるが, 明確なレーザービームが観測できなかったことから, 本実験ではレーザー発振していないと結論付けた.

Fig. 8 は, Xe ガス圧 70 Torr における放電電圧波形と発光パルス波形を示す. 印加電圧は, ゆっくりとした立ち上がり時間 558.7 ns で, 絶縁破壊電圧 -26.3 kV に達し, 放電が開始された. 放電開始と同時に, 発光パルスが立ち上がった. 放電の直後に,

非常に弱い $\text{Xe}_2^* ({}^1\Sigma_u^+)$ による発光が観測された. その後, ゆっくりとした立ち上がり時間 243.3 ns と長い半値幅 508.3 ns, ゆっくりとした立下り時間 1.4 μs をもった. その放射寿命の長さから $\text{Xe}_2^* ({}^3\Sigma_u^+)$ と考えられる発光が観測された.

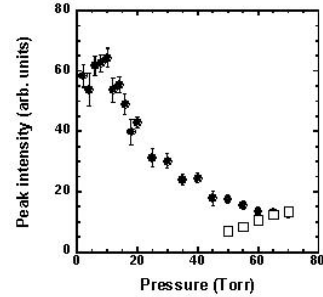


Fig. 9. ピーク強度のガス圧依存特性. 丸は一重項による発光, 四角は三重項による発光を示す.

Fig. 9 は, Xe_2^* の一重項と三重項の発光のガス圧に依存するピーク強度特性を示す. 一重項の発光強度は低ガス圧 10 Torr にピークをもち, 三重項の発光はガス圧とともに発光強度が増加した. 三重項では, 従来の希ガスエキシマレーザーやランプで考えられてきた, 高ガス圧で希ガスエキシマの生成に大きく寄与する三体衝突反応が支配的であると考えられる. 一方, 一重項では, 低ガス圧に発光強度のピークを持つので, 従来の三体衝突反応では, 説明できない. 低ガス圧による平均自由行程の長さを利用した管壁との三体衝突, もしくは直接励起により, 一重項が生成されたと考えられる.

本成果は, 軸方向放電励起方式において, ウォールカップル回路以外にも希ガスエキシマの一重項の生成が可能であることを示す. 従って, 放電に要求される特性が励起回路により調整可能である.

(2) 利得測定

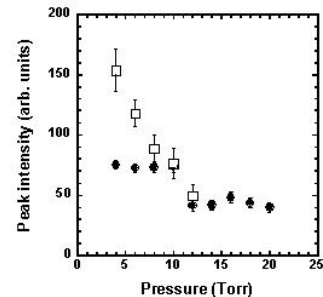


Fig. 10. Fig. 3 の装置におけるオシレータとアンプの単独動作のピーク発光強度特性. 丸がオシレータ, 四角がアンプを示す.

Fig. 10 は, Fig. 3 の装置におけるオシレータとアンプをそれぞれ単独で動作させたときの一重項の発光のピーク強度特性を示す.

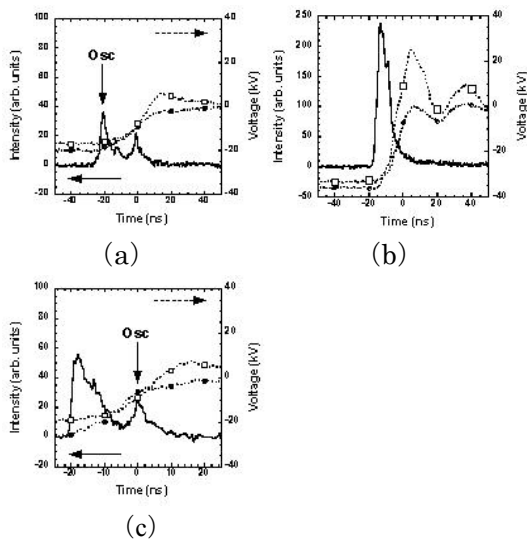


Fig. 11. 時間波形
 実線が発光パルス波形, 丸付き破線がオシレータの放電電圧波形, 四角付き破線がアンプの放電電圧波形を示す. (a) はオシレータが先に放電したとき, (b) はオシレータとアンプがほぼ同時に放電したとき, (c) はアンプが先に放電したときを示す.

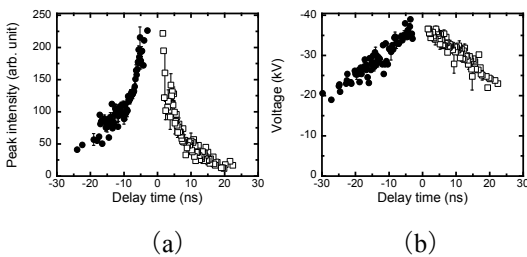


Fig. 12. オシレータの遅れ時間特性.
 丸はオシレータが先に放電した状態, 四角はアンプが先に放電した状態を示す. (a) はオシレータによる一重項の発光ピーク強度, (b) はオシレータの放電開始電圧を示す.

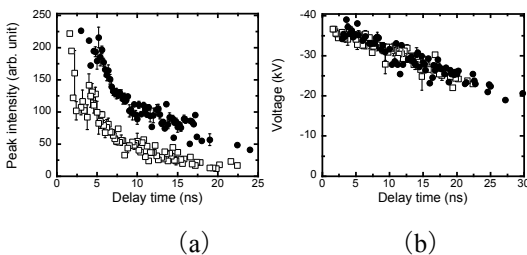


Fig. 13. オシレータの遅れ時間特性.
 丸はオシレータが先に放電した状態, 四角はアンプが先に放電した状態を示す. (a) はオシレータによる一重項の発光ピーク強度, (b) はオシレータの放電開始電圧を示す.

利得測定では, この結果から 4 Torr のガス圧で実験が行われた.

Fig. 11 は, Fig. 3 の装置による利得測定における発光は計である. Fig. 12 は, オシレータによる一重項の発光ピーク強度と放電開始電圧の遅れ時間特性を示す. Fig. 13 は, Fig.

12 のグラフを時間 0 ns で折り返し, それぞれの特性を比較したグラフである. Fig. 12 (a) の遅れ時間に依存するオシレータ光の発光強度特性は, これまでに利得の時間波形が報告されている N_2 レーザーや F_2 レーザーと類似した特徴をもった. しかし, 本装置では, Fig. 12 (b) に示される放電開始電圧も遅れ時間に依存したため, 電圧変動による発光強度の依存特性の観測も考えられる. しかし, 電圧変動は, Fig. 13 (b) に示されるようにオシレータがアンプよりも先に放電しても後で放電しても, 遅れ時間に対して同じ値になった. しかし, 発光強度は, Fig. 13 (a) に示されるように, オシレータが先に放電したほうが高くなった. 従って, 本実験において, 誘導放出による増幅, またはかつ吸収が生じたと考えられる.

以上の結果により, 片方の放電がもう片方の放電へ影響を与えていることが考えられた. Fig. 3 の装置ではオシレータとアンプの放電空間がつながっているため, Fig. 4 の装置においてオシレータとアンプをウィンドウで分けた装置構成により実験が行われた. しかし, 上述と類似した結果が得られた.

本研究では, エキシマランプと同じ放電回路によるレーザー発振を目指したために, 励起回路中にスパークギャップなどの高速大電流スイッチを用いなかった. しかし, 本実験 (Fig. 3, Fig. 12 参照) では, 立ち上がりの遅い電圧の印加により, 放電開始電圧が一定とならずに, 利得係数の算出までは達成できなかった. 今後の研究では, この問題点が改善可能な高速放電を用いた実験が行われる予定である.

(3) 新しい気体レーザー

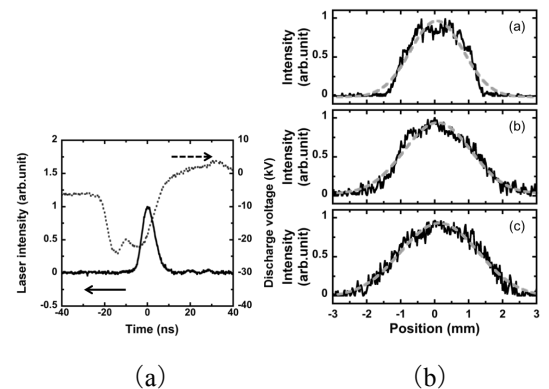


Fig. 14. Fig. 5 の装置による N_2 ガス圧 3 Torr における N_2 レーザーの時間波形とビームプロファイル.

(a) は時間波形, 実線がレーザーパルス波形, 破線が放電電圧である. (b) はビームプロファイル, 測定位置が出力鏡から, (a) は 35 cm, (b) は 135 cm, (c) は 250 cm の位置におけるものである.

Fig. 14 は, Fig. 5 のウォールカップル・ダイレクトドライブ回路による N_2 ガス圧 3 Torr

における N_2 レーザーのレーザーパルス波形と放電電圧波形、ビームプロファイルを示す。放電開始電圧は -25.0 kV、放電形成時間は 23.3 nsであった。レーザーパルス幅は 7.2 nsであり、出力エネルギーは 2.6 μ Jであった。レーザービームは円形のガウシアンビームであり、拡がり角は全角 0.29 mradであった。

紫外気体レーザーでは、利得が非常に高いため、ASE（自然放射光）によるスーパーラジエーションが起こり、非常に大きなビーム拡がり角をもつ。しかし、本成果は、従来の紫外気体レーザーより1桁小さな拡がり角をもち、固体レーザーや半導体レーザーのようにビームが広がらない紫外気体レーザーを実現した。

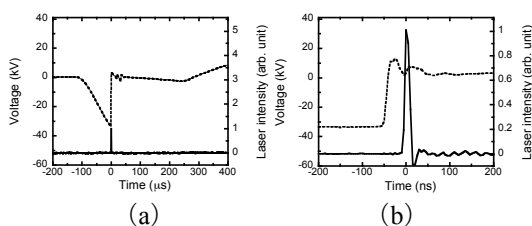


Fig. 15. Fig. 6の装置による N_2 ガス圧8 Torrにおけるレーザーパルス波形とコンデンサへの印加電圧波形。

実線はレーザーパルス波形、破線は印加電圧波形を示す。(a)は印加電圧波形の全体図、(b)はレーザーパルスの拡大図である。

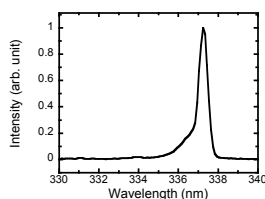


Fig. 16. Fig. 6の装置による N_2 ガス圧8 Torrにおけるスペクトル波形。

Fig. 15は、Fig. 6の装置による N_2 ガス圧8 Torrにおけるレーザーパルス波形とコンデンサへの印加電圧波形である。コンデンサへは立ち上がり時間 79 μ s、最大電圧 -33 kVの電圧が印加された。コンデンサに蓄えられた電圧は、コイルを通して、グラウンドにおちた。レーザー管には、電気的な接続がなかった。しかし、コイルに流れる電流により磁場が生じ、レーザー管内にプラズマが生じた。そのプラズマにより、 N_2 ガスが励起され、レーザー発振した。レーザーパルス幅は 12 nsであり、出力エネルギーは 10 μ Jであった。Fig. 16は、Fig. 15と同じ条件におけるスペクトル波形である。中心波長は 337.2 nmであり半値幅は 0.55 nmであった。

本成果は、電気的な放電だけでなく磁場によるプラズマでもレーザーが発振することを示す。また、Fig. 6の装置は、高速大電流のスイッチを用いておらず、誘導結合プラズマ型のエキシマランプと完全に同じ構成である。従って、これまでの我々の研究成果で

ある誘電体バリア放電型エキシマランプによる紫外気体レーザーの実現と本成果である誘導結合プラズマ型エキシマランプによる紫外気体レーザーの実現により、紫外気体レーザーはエキシマランプと同じ方式でレーザー発振ができるということが言える。これにより、エキシマランプを同じ性能（低ガス圧、高繰り返し、長いガス寿命）を有するエキシマレーザーの開発が期待できると考えられる。

今後は、高価なXeガスが枯渇し実施できなかった波長 172 nmの Xe_2^* レーザーの発振実験と高速放電回路を用いた利得測定を行い、ペンシル型真空紫外レーザーの開発を行う予定である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

- ① Kazuyuki Uno, Tetsuya Akitsu, Takahisa Jitsuno, “Longitudinally excited N_2 laser with low beam divergence”, Review of Scientific Instruments, 85 (2014) 096108. 査読有, DOI: 10.1063/1.4894263

[学会発表] (計3件)

- ① 貢文竜, 下嶋俊介, 宇野和行, 秋津哲也, 實野孝久, 「高ビーム品質・軸方向放電励起 N_2 レーザー」, 第60回応用物理学会春季学術講演会, 28p-PA4-8, 神奈川工科大学, 2013年3月28日.
- ② Wenlong Gong, Kazuyuki Uno, Shunsuke Shitajima, Tetsuya Akitsu, Takahisa Jitsuno, “Longitudinally excited N_2 laser with high beam quality for cell sectioning”, The 2nd Advanced Lasers and Photon Sources, ALPS'13, ALPSp6-24, April 23-25, 2013, Pacifico Yokohama, Kanagawa, Japan.
- ③ Wenlong Gong, Kazuyuki Uno, Shunsuke Shitajima, Tetsuya Akitsu, Takahisa Jitsuno, “Longitudinally excited N_2 laser with high beam quality”, The 6th International Congress on Laser Advanced Materials Processing, LAMP2013, Fr3-0L-3, July 23-26, 2013, Toki Messe, Niigata, Japan.

[その他]

ホームページ等

<http://www.ccn.yamanashi.ac.jp/~kuno/top>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宇野 和行 (UNO, Kazuyuki)

山梨大学・大学院総合研究部・助教

研究者番号: 20550768