



レーザー干渉カロリメーター

炭酸ガスレーザー用光学材料の微小吸収係数の高感度測定

伊藤 雅英*・田代 英夫・斎藤 弘義・金 弼鉉・難波 進

理化学研究所 〒351-01 埼玉県和光市広沢 2-1

(1985年5月30日受理)

Laser Interferometric Calorimeter for Measuring Low Absorption Coefficients of High-Power CO₂ Laser Optical Materials

Masahide ITOH,* Hideo TASHIRO, Hiroyoshi SAITO,
Pil-Hyon KIM and Susumu NAMBA

The Institute of Physical and Chemical Research,
2-1, Hirosawa, Wako 351-01

We have developed a new system for measuring low optical absorption coefficients of optical materials used in high power CO₂ lasers. This system consists of a vacuum chamber, controller and data analysing system. In the chamber, a Twyman-Green type interferometer is set to measure a small change in optical path length of the materials due to the absorption of CO₂ laser irradiation. The chamber has seven windows for laser light and three gas valves. A micro-computer is used to control the interferometer and the environmental condition such as humidity. The surface and the bulk absorption coefficients are measured separately on KRS-5 samples. The bulk absorption is found to be different in each sample, which reflects the difference in the impurity density and/or inhomogeneity of the crystals. We have investigated the surface absorption in relation to the surrounding humidity, and successfully estimated the intrinsic absorption from the absorption due to water on the surface.

1. はじめに

レーザー光化学反応の発展とともに高出力で高繰返し
のレーザー装置の開発が必要となってきた。このような
レーザーシステムの信頼性はそれに用いられる光学素子
の耐久性で決まる。レーザー光を照射された光学素子
は、その吸収係数に応じて吸収された光により熱を発生
する。この熱によるひずみが光学素子の損傷の一因とな
っている¹⁾。

われわれは、レーザー干渉カロリメーター法²⁾を用い、
発熱に伴う光学素子の光路長変化を干渉計で高精度に測

定することにより、微小な吸収係数の高精度な測定を行
なった。これまで多く行なわれてきた熱電対カロリメ
ター法³⁾はレーザー光の吸収による試料の温度上昇を試
料表面に接着した熱電対で測定しその微小な電圧変化
($\sim nV$) から吸収量を求めるものであり、簡便な方法
ではあるが熱電対の取付けによる温度誤差が生じやす
く、また測定点を増やすこともむずかしい。それに対し
てレーザー干渉カロリメーター法では微小な光路長変化
を干渉縞の位相変化として読み取るため、容易に高い
S/Nを得ることができ、試料内部の温度分布を直接二次
元的に測定することが可能である。また光学素子の表面
と内部の吸収を容易に精度よく分離測定することができ
る。光学素子は多くの場合表面から損傷が始まるので⁴⁾、
表面吸収を内部(バルク)の試料固有の吸収から分離測
定することは大きな意味がある。本論では、高出力レー

* 現在：東京大学生産技術研究所 〒106 東京都港区六本
木 7-22-1
Present address: Institute of Industrial Science,
University of Tokyo, 7-22-1, Roppongi, Minato-ku,
Tokyo 106

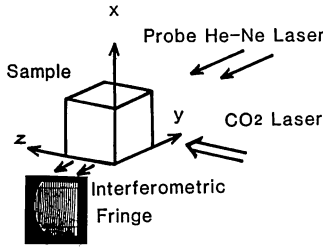


Fig. 1 Coordinate system. The CO₂ laser beam passes through a sample along the z-direction which is illuminated normally by the collimated He-Ne laser beam along the y-direction. Change in optical path length is measured by the interferometric fringe shift proportional to a temperature rise caused by the absorption of the CO₂ laser beam.

ザ一用光学素子である KRS-5 試料を用い、同一ロットで切りだし部位の異なる試料の表面および内部吸収係数を分離測定し、吸収係数と表面状態、とくに湿度との関連を測定した。

2. 測定原理

直方体の試料に、出力 P (J/s)、スポットサイズ w (cm) の炭酸ガスレーザーを照射した場合、試料内部での吸収量は線形性を仮定し、吸収係数を β (cm⁻¹) とすると、単位長さあたり $P\beta \exp(-\beta z)$ となる。レーザービームと試料の相互関係を **Fig. 1** に示す。表面での吸収は吸収係数を α とすると、一面あたり $P\alpha$ で表わされる。試料のレーザー光の通過した試料部分で発生した熱は下記の熱伝導方程式に従って拡散する。

$$\frac{dT}{dt} = \kappa \nabla^2 T + F \quad (1)$$

ここで κ (cm²/s) は熱拡散率、 t (s) は時間、 T (K) は試料の初期温度分布からの上昇分である。入射レーザー光をスポットサイズ w (cm) のガウシアンビームとすると、(1)式の熱源の項 F は、

$$F = \frac{P}{\rho c \pi w} \left\{ \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w^2}\right) \times \{ (1-\alpha)\beta e^{-\beta z} + \alpha[\delta(z) + (1-\alpha)e^{-\beta L_z} \delta(z-L_z)] \} \right\} \quad (2)$$

となる。ここで ρ (g/cm³) は比重、 c (J/g·K) は比熱を表わす。また、 L_z (cm) は炭酸ガスレーザーの通過する試料の厚さであり、 δ はデルタ関数である。(2)式の指数関数部分はガウシアンビームの断面強度分布であり、続く括弧内の第一項目は内部吸収によるもので、第二項目は表面吸収による寄与である。また、表面吸収の項のうち、第一項は入射面による吸収であり、第二項は試料透

過後の出射面での吸収である。境界条件は、

$$\frac{\partial T}{\partial n} + hT = 0 \quad (3)$$

と表わされる。 $\partial/\partial n$ は試料表面で面に垂直な方向の温度勾配であり、 h (cm⁻¹) は熱放射係数とよばれる。これらの方程式を解くことにより、試料内各点の温度上昇の時間変化を求めることができる⁵⁾。

本方法では試料の温度上昇を光路長変化として干渉計で測定するため、**Fig. 1** の配置では測定される光路長変化 U は試料内各点の温度上昇を y 方向に試料の長さ L_y まで積分した値に比例する。

$$U = \gamma \int_0^{L_y} T(x, y, x, t) dy \quad (4)$$

ここで γ (λ/K) は温度上昇1度あたりの光路長変化で熱光学定数 (thermo-optic coefficient) とよばれる。そもそも光路長変化 Φ は屈折率 n と試料の厚さ L の積であるから、 γ は

$$\gamma = \frac{d\Phi}{dT} = L \frac{\partial n}{\partial T} + (n-1) \frac{\partial L}{\partial T} \quad (5)$$

と表わされる。ただし(5)式は無応力温度場の場合であり、実際には熱応力によるひずみと、屈折率変化も考慮する必要がある。この場合 q を光弾性係数、 ν をポアソン比、 Y をヤング率として、

$$\gamma = \left[\frac{\partial n}{\partial T} + (n-1)(\nu+1)a + \left(\frac{n^3 a Y}{4} \right) q \right] L \quad (6)$$

となる⁶⁾。ここで、 a は(5)式の $\partial L/\partial T$ であり、線膨張率となっている。

吸収係数 α および βL_z が1に比べて十分小さいときは、光路長変化 U は表面吸収からの寄与 U_s と内部吸収からの寄与 U_b の和として表わすことができる。それぞれの寄与は吸収係数の一次の項までで表わすとして、

$$U = U_s + U_b = \alpha u_s + \beta L_z u_b \quad (7)$$

となる。 u_s および u_b は吸収係数に依存しない項であるから、あらかじめ試料の物理定数がかかっていれば、 u_s および u_b を時間をパラメーターにして計算しておくことにより、光路長変化 U の時間的な変化の干渉計による測定値から、(7)式に従って最小二乗法により表面吸収 α および内部吸収係数 β を求めることができる。

3. 測定装置

測定系を **Fig. 2** および **Fig. 3** に示す。アラインメント用ヘリウムネオンレーザーでガイドされた炭酸ガスレーザー光は、KRS-5 レンズで集光され試料に照射さ

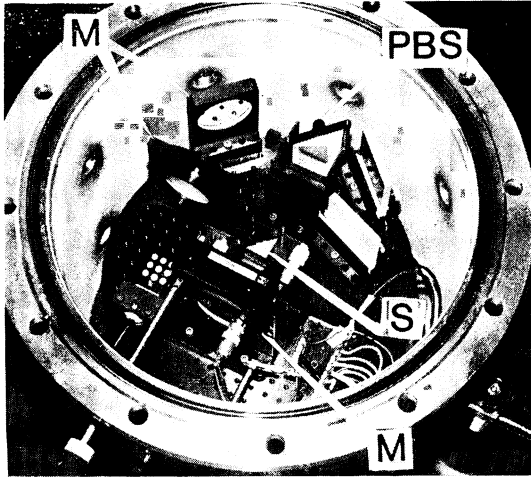


Fig. 2 Measurement system. The chamber of calorimeter is 30 cm both in diameter and in height, which contains a Twyman-Green type interferometer.

れる。試料は 20 mm×20 mm×20 mm の KRS-5 の立方体を用いた。炭酸ガスレーザーは自作のもので、TEM₀₀ モードで発振し、最高出力は約 10 W であった。干渉計は可視のヘリウムネオンレーザーを光源とするツイマン・グリーン型を用いた。系全体はマイクロコンピュータ (DEC 社製 LSI-11/02) で制御した。干渉計を含むチャンパーの部分 **Fig. 3** に示す。チャンパーは直径 300 mm、高さ 300 mm のステンレス製で上部は厚さ 15 mm のアクリルのふたがついている。チャンパーは 20 mmφ の光線入出力窓を 7 か所と 3 個の気体用バルブを持ち、内部は真空に保つことができる。真空のまま外部から干渉計の調整を行なうためのマニピレーターも持っている。チャンパー内の雰囲気の状態を制御するために、ヒーター (H)、熱電対 (TC 2)、および湿度測定器 (HD) が置かれている。あらかじめ平行光に調整された 50 mmφ のヘリウムネオンレーザービームはプリズムビームスプリッター (PBS) で二つに分けられる。試料 (S) 側の腕に入っている鏡 (M 1) は干渉計の光路のアラインメントを行なうため、あおりと回転をチャンパーの外部からドライバー (D 1, D 2) で行なうことができる。また光路微調整用に圧電素子 (PZT) も取り付けられている。試料の表面温度測定用の熱電対 (TC 1) はヒーターとともに用いて光路長の温度係数 γ を予備実験で求めるためのもので、吸収係数の測定に際してはとりはずしておく。

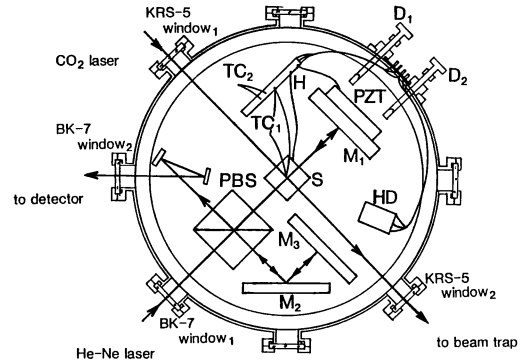


Fig. 3 Schematic of Twyman-Green type interferometer for measuring low optical absorption. PBS is the prism beamsplitter, S the sample, M the mirror. PZT is the piezo-electric transducer which is used as the correction of the optical path length of the interferometer. The chamber also has two thermocouples (TC 1, TC 2), a heater (H) and a detector of humidity (HD).

4. 実 験

炭酸ガスレーザー光を照射された試料の温度上昇による光路長変化は He-Ne レーザーの干渉縞の動きとして計算機に取り込まれ、その位相変化から光路長 (屈折率) 変化が求められる。光路長変化 (U) の時間変化がわかれば、あらかじめ解析的に計算された表面吸収からの寄与 (U_s) および内部吸収からの寄与 (U_b) を用い、(7)式に従って最小二乗的に表面吸収 (α) と内部吸収係数 (β) を求めることができる (**Fig. 4**)。本方法では吸収率の入射パワーに対する線形性を仮定しているため、まず入射炭酸ガスレーザー光強度と全吸収量 (吸収係数と入射レ

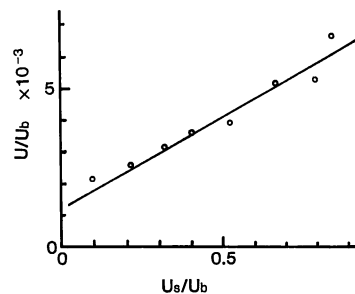


Fig. 4 Least square fitting of the phase shift to obtain the surface and the bulk absorption coefficients. Phase shift U is written as the linear combination of the surface and the bulk component u_s and u_b respectively ($U = \alpha u_s + \beta L u_b$).

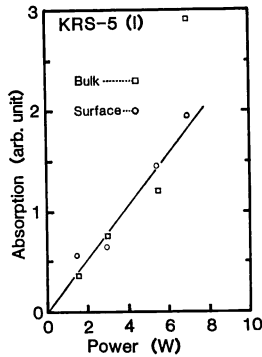


Fig. 5 Dependence of absorption on the input CO₂ laser power. In this experiment, absorption coefficients are measured at a power of 3 W.

レーザー光出力の積)との関係を調べた(**Fig. 5**)。炭酸ガスレーザーの出力の安定度(約10%)を考慮すると、表面吸収および内部吸収はともに入射レーザー光出力に比例している、この範囲のレーザー光強度では非線形な吸収はあらわれていないことがわかる。以降の実験はレーザー光出力が最も安定している3 W付近で行なった。KRS-5は臭化タリウム(TaBr)と沃化タリウム(TaI)の混晶である。光路長の温度係数(γ)は、ヒーターによって加熱された試料の準静的な温度場における試料の表面温度と光路長変化から求めた値に応力による補正をしたものを用いた。また(3)の熱放射率 h は試料の温度降下の速度から計算することができる²⁾。

KRS-5は引上げ法で作成されるため、その上部と下部では不純物の濃度あるいは組成の変化に起因する吸収の変化等生じることが予想される。ここでは異なる部位から抜きだしたKRS-5試料について測定を行なった。測定結果を**Table 1**に示す。表面吸収は試料によってかなりばらついているが、内部吸収は**Fig. 6**からわかるようにロット内の長さ方向の位置 x に対して指数関数的に増加していると見ることができる。この原因としては不純物の拡散、または混晶を形成する2成分の拡

Table 1 Results of absorption coefficient measurements for three different KRS-5 samples.

Sample number	Surface absorption	Bulk absorption coefficient
	$\alpha \times 10^3$	$\beta \times 10^3 (\text{cm}^{-1})$
I	7.10	2.01
II	15.6	3.84
III	11.1	8.65

散係数の違いによる不均一等が考えられる。

最も固有内部吸収の小さい試料を選び、その吸収係数と雰囲気湿度との関係を調べた。湿度の制御は、チャンバーを真空に引き数時間ガス抜きをした後、乾燥空気と加湿空気を適当な割合で混合させて行なった。結果を**Table 2**および**Fig. 7**に示す。内部吸収は湿度によって変化しないが、表面吸収は相対湿度の上昇とともに顕著な増加がみられる。表面吸収は加湿空気封入後、数十分経過してから変化する。このことは、水蒸気の表面への吸着が吸収係数の変化の要因であることを示しているとともに、測定値の湿度依存は炭酸ガスレーザー光の空気中の水分による吸収は直接影響していないことも表わしている。また表面温度の上昇は 10^{-2} K程度であるため、表面付近での相対湿度の変化は無視できると考えられる。表面の固有吸収を α_{int} とし、吸着した水分による吸収を α_{ext} とすると、全吸収は、

$$\alpha_{\text{tot}} = \alpha_{\text{int}} + \alpha_{\text{ext}} \quad (8)$$

となる。外挿法によって固有吸収レベルを求めると、 $\alpha_{\text{int}} = 3.2 \times 10^{-3}$ となる。固有吸収レベル α_{int} は、試料表面の傷、研磨加工等に伴う加工変質層、永久的な物質の吸着等に原因があると思われる。

5. ま と め

レーザー干渉カロリメトリー法は微小な光吸収による発熱を試料の光路長変化として干渉計で測定するものである。従来の方法と比較して本カロリメトリー法は、干渉縞の位相変化を測定するので、高いS/Nを比較的容易に得ることができるという利点がある。また、測定点を増しても測定誤差の要因にならないため、干渉縞の

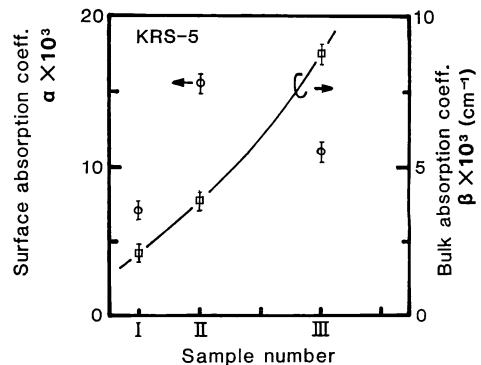


Fig. 6 Absorption coefficients of KRS-5 samples from different sites of a lot. The bulk absorption coefficient increases with the position of the KRS-5 lot. (see **Table 1**)

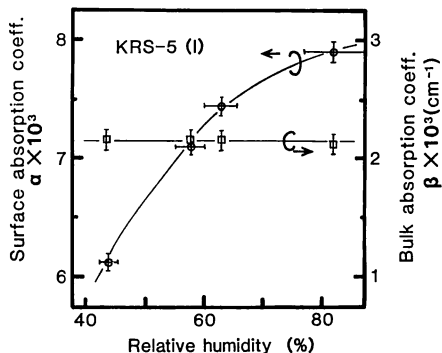
Table 2 Absorption coefficients of KRS-5 under different relative humidities.

Relative humidity	Surface absorption	Bulk absorption coefficient
	$\alpha \times 10^3$	$\beta \times 10^3 (\text{cm}^{-1})$
44%	6.11	2.03
58%	7.10	2.01
63%	7.44	2.07
82%	7.89	2.02

分布を2次的に測定することにより試料内の温度分布を直接測定することができる。さらにレーザー用光学材料の破壊の大きな原因と考えられている、表面吸収を内部吸収から分離測定することができる。

ここでは、チャンパー内に納めた微小吸収測定用干渉計を試作し、上記の特徴を持つレーザー干渉カロリメトリ法を検証した。実験的には、炭酸ガスレーザー用光学材料である KRS-5 試料の表面および内部吸収係数の分離測定が可能であることを示した。さらに、内部吸収の異なると思われる試料を測定し、試料作成上生じる内部吸収の分布を確認した。また内部吸収の最小の試料について、固有表面吸収と吸着水分による表面吸収を分離して測定できることも明らかにした。

本方法を用いることにより、非接触で非破壊的に光学

**Fig. 7** Absorption coefficient of the KRS-5 sample. Surface absorption increases with the increase of relative humidity. (see **Table. 2**)

材料の表面および内部吸収を求めることができる。

文 献

- 1) たとえば, H. E. Bennett, A. H. Guenther, D. Milam and B. E. Newnam, eds.: "Laser induced damage in optical materials: 1982," NBS Spec. Publ, **669** (U. S. Government Printing Office, Washington, D. C., 1984).
- 2) M. Itoh and I. Ogura: J. Appl. Phys., **53** (1982) 5140.
- 3) H. B. Rosenstock: J. Appl. Phys., **50** (1979) 102.
- 4) F. Rainer and W. H. Loder milk: Opt. Eng., **22** (1983) 431.
- 5) 伊藤雅英, 小倉磐夫: 応用物理, **51** (1982) 705.
- 6) C. A. Klein: NBS Spec. Publ., **620** (1980) 117.