レーザーオリジナル

高出力 CO₂ レーザー烈光Ⅷ号の開発

—大口径焦電膜カロリメーター—

福丸文雄^{*,***}・沢井清信^{*}・藤田尚徳^{*}・的場幹史^{*}
・中村謙一^{**}・中井貞雄^{*}・山中千代衛^{*}

(1983年1月24日 受理)

Development of High-Power CO₂ Laser LEKKO Ⅷ

—Large Aperture Pyroelectric-film Calorimeter—

Fumio FUKUMARU^{*,***}, Kiyonobu SAWAI^{*}, Hisanori FUJITA^{*},
Masafumi MATOBA^{*}, Ken-ichi NAKAMURA^{**}, Sadao NAKAI^{*}
and Chiyo YAMANAKA^{*}

(Received January 24, 1983)

Energy monitor in high power CO₂ laser system is required high performance, for instance, wide dynamic range and high sensitivity. Moreover, it must have large aperture size for detecting large laser beam. Pyroelectric poly-vinylidene-fluoride(PVDF) calorimeter has sufficient properties to satisfy the needs as mentioned above. We have developed 350 mm² pyro-film(PVDF) calorimeter of which laser absorption layer was 50 μm thick Nextel paint. Its dynamic range was 3 x 10⁵ and high sensitivity was acquired.

1. はじめに

温度の変化に対して結晶中の分極の大きさが変わり、表面に電荷が現われる焦電効果は、古くから知られてきたが、この焦電効果をもつ焦電素子は赤外レーザー光観測にも広く用いられている。レーザー波形観測用としては、応答時間数百ピコ秒以下の高速応答ディテクターも実用化されている¹⁾。焦電素子は温度変化の大きさに比例して電流を生じさせるため、連続モー

ドレーザー光のパワー検出にはチョッパ機構が必要となるが、パルスモードレーザー光に対してはそのまま高感度のエネルギーモニター（もしくはパワーモニター）となる。

従来、大ビーム径の高出力パルス CO₂ レーザー用エネルギーモニターとしては、酸化アルミニウム被膜をもつアルミ板やセラミック板を受光板とし、その受光板の温度上昇を多数の熱電対で測定することにより、入射エネルギーを検出する型のものが多く用いられてきた²⁾。しかし

* 大阪大学レーザー核融合研究センター（〒565 大阪府吹田市山田丘2-6）
Institute of Laser Engineering, Osaka University (2-6 Yamada-Oka Suita, Osaka 565)
** 呉羽化学(株) 錦研究所（〒974 福島県いわき市錦町落合16）
Kureha Chemical Industry Co. Ltd. (16 Ochiai, Nishiki-cho, Iwaki 974)
*** 現在日新電機(株)（〒615 京都市右京区梅津高畝町47）
Nissin Electric Co. Ltd. (47 Umezur-Takase-cho, Ukyo-ku, Kyoto 615)

ながら、感度の低さにより、入射レーザーパルスのエネルギー SN 比測定（たとえば、主パルスとプリパルスとの SN 比測定）が充分に行えなかった。

パルスレーザー用エネルギーモニターに要求される条件としては、次の2つが挙げられる。

i) 入射レーザー光パルス幅の変化（ここでは1 ns～100 nsを取り扱う）に対して出力感度が変化しないこと。

ii) 入射レーザー光ビーム径の変化に対して出力感度が変化しないこと。

さらに、高性能エネルギーモニターとしては

iii) 高感度であること。

iv) ダイナミックレンジが広いこと。

が望まれる。

筆者らは、大ビーム径パルス CO₂レーザーシステム烈光Ⅷ号^{3),4)}（8 ビーム、10kJ）のエネルギーモニター用として、上記 i) ～iv) の要求を満たし、かつ大口径をもつ焦電型カロリメーターの開発を行った。

2. カロリメーターの構造

焦電体としては、呉羽化学（株）製ポリフッ化ビニル（PVDF）パイロフィルムを使用した^{5),6)}。PVDFは他の焦電体と比較して、大口径化が容

易であり、また焦電検出器としての性能指数 $p/(C_v \cdot \epsilon)^{1/2}$ の値も大きい（ $1.3 \times 10^{-10} \text{Coul} \cdot \text{cm}/\text{J}$ ）。 p は焦電係数、 C_v は体積比熱を表わす。

Table I に各種焦電材料の特性を示した⁸⁾。

Fig. 1 Schematic structure of large aperture pyro-film calorimeter for high power CO₂ laser.

カロリメーターの構造は Fig. 1 に示したように、厚さ 110 μm の PVDF 膜両側に電極として、ITO（Indium—Tin—Oxide）（受光面側）及び Ni を 0.1 μm 厚に蒸着した。出力は両電極間の負荷抵抗とバッファアンプ（入力インピーダンス 100 MΩ）を介し、電圧信号として検出

Table I Parameters of various pyroelectric materials. (*are data by Kureha Chemical Industry Co. Ltd.)

	PVDF *	TGS	PbTiO ₃	LiTaO ₃	PZT-4	LiNbO ₃
CURIE TEMPERATURE $T_c (^{\circ}\text{C})$		49	470	600	327	1210
PYROELECTRIC COEFFICIENT $P (10^{-9} \text{Coul}/\text{cm}^2 \text{DEG})$	4	40	60	23	37	4
DIELECTRIC CONSTANT ϵ_r	13	35	200	54	1200	30
VOLUME SPECIFIC HEAT $C_v (\text{J}/\text{cm}^3 \text{DEG})$	2.4	2.5	3.2	3.15	3.0	2.8
FIGURE OF MERIT $P/C_v \cdot \epsilon_r$	1.3	4.6	0.94	1.4	0.01	0.48
HEAT CONDUCTIVITY $K (\text{J}/\text{cm DEG SEC})$	1.3×10^{-3}	6.4×10^{-3}	32×10^{-3}			

した。また、カロリメーターの受光面口径としては、90mmφ及び350mmφの2種類を採用した。

3. 大口径カロリメーターの基本特性

焦電素子は温度変化 dT/dt の大きさに比例して

$$i(t) = p(T) \cdot A \cdot (dT/dt) \quad (1)$$

なる電流を流す。 $p(T)$ はパイロ定数 [Coul/cm²・°K], A は受光面面積 [cm²] である。

Fig. 2 Equi-circuit diagram of pyro-film calorimeter.

カロリメーターの等価回路は Fig. 2 のようになり、負荷抵抗を R 、静電容量を C で表わした。入射光のパルス幅 t に対して $t \ll RC$ の場合、出力電圧は

$$v = \frac{1}{C} \int i(t) dt$$

となり、(1)式により

$$v = \frac{\alpha p(T) E}{c_v d C} \quad (2)$$

と表わせる³⁾。ただし α は入射レーザー光吸収係数、 E は入射エネルギーであり、 d は焦電膜の厚さである。(2)式よりわかることは、 $t \ll RC$ を満たすことにより、入射光のパルス幅変化によるカロリメーターの出力感度 v/E の変動がなく、先に挙げた条件 (i) が満足される。また、入射ビーム径によっても感度は変動せず、条件 (ii) も達成できることがわかる。検証結果は以下の通りである。

測定対象となる入射レーザーは、波長 $10.6\mu\text{m}$ の CO₂ レーザーで、パルス幅が 1 ns と 100 ns の

場合について、カロリメーター出力感度のパルス幅依存性を測定した。ビーム径依存性については、入射ビーム面積を 3 cm² から 27 cm² まで変化させて感度を測定した。なお、入射レーザーエネルギーは熱電対型カロリメーター (SCIEN TECH Model No. 38-0402) で校正した。また、焦電膜カロリメーターの負荷抵抗値は 1 MΩ の条件で測定を行った。Fig. 3 は口径 90 mmφ カロリメーターにおける、入射光パルス幅及びビーム径を変化させた場合の出力感度特性を示した。Fig. 4 は口径 350 mmφ の焦電膜カロリ

Fig. 3 Voltage responsivity vs. incident beam diameter for ITO electrode calorimeter.

メーターに、1 ns 及び 100 ns パルス (ビーム面積はいずれも約 80 cm²) を入射させた場合の入出力特性である。Fig. 3, Fig. 4 より、口径 90 mmφ、350 mmφ のどちらにも、レーザー光パルス幅に対する出力感度の依存性はみられなかった。また、Fig. 3 のビーム径変化に対しての感度の変動も認められなかった。

出力電圧波形は Fig. 5 のようになり、立ち上がり時間が電気的時定数 CR ($CR = 6.7 \text{ ms}$) により決定されるだけで、電圧ピーク値 (出力

Fig. 4 Output voltage vs. incident laser energy.

Fig. 5 Output voltage waveform of calorimeter which has ITO absorption surface without Nextel coating. (Sweep: 0.2ms/div)

感度)は負荷抵抗値を100 k Ω から10M Ω の間で変化させても変動はみられなかった。

測定可能な入射レーザー光単位面積当りエネルギーの大きさには上限が与えられる。上述のITO電極材を受光面とした場合、レーザー入射

エネルギーが5～6 mJ/cm²以上で電極面上に変色が認められ、50～60 mJ/cm²以上ではカロリメーターの出力感度が低下し、再現不可能となった。

受光面側電極材をNiとした場合の試験も行ったが、ダメージ閾値は230～280 mJ/cm²の値が得られたものの、出力感度がITO電極に比べて1桁以上も低いいため、高性能エネルギーモニターとしては不向きであることがわかった。

4. 受光面コートカロリメーター

受光電極面上に適当なコーティングを施すことは、入射光の吸収率も高く、かつダメージ閾値を上げることも可能なため、条件Ⅳ)として挙げた広ダイナミックレンジ化にとって有効な手段となる。

コーティング材としては10 μ m 光に対する吸収率が高いと考えられるネクステルを採用し、厚さ50 μ m 程度受光面電極上にコートした。

コーティング層とPVDF焦電膜の境界部(受光面電極部)における温度は、コーティング層の熱時定数を τ_{th} とにおいて、PVDF膜への熱拡散がない状態を仮定すれば、

$$T_c(t) = \frac{\alpha E}{c_{vc} d_c B} \{1 - \exp(-t/\tau_{th})\} \quad (3)$$

と表わすことができる。 α は吸収率、 E は入射レーザー光エネルギー、 B は入射レーザー光ビーム面積であり、 c_{vc} 、 d_c はそれぞれコート部の体積比熱、厚さを表わす。本カロリメーターのように、入射ビーム径 $D=25$ mm～300 mmに対してコート厚 $d_c=50$ μ mであり、 $D \gg d$ ($D/d \approx 10^3 \sim 10^4$) の場合、焦電膜受光面側の熱拡散は電極材で決定され、コート材中の径方向熱拡散を考慮する必要はないと思われる。従って、

$$\tau_{th} \approx d_c^2 / \kappa \quad (4)$$

とおける¹⁾。コーティング層は d_c に比較して無視できない大きさのネクステル粒子で構成されているため、熱伝導率を決定し難い。そのため、(4)式の熱拡散率 κ は後述の(8)式により得られる

τ_{th} —R 曲線が最も実測値にフィットする値を選んだところ、

$$\kappa \simeq 1.3 \times 10^{-3} \text{ [cm}^2/\text{sec]}$$

であった。これはプラスチック一般の熱拡散率 ($1 \sim 2 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{sec}$) と同程度の値である。

(3)式により、受光電極面への実質入射パワー $P(t)$ は

$$\begin{aligned} P(t) &= c_{vc} d_c D(dT_c/dt) \\ &= \frac{\alpha E}{\tau_{th}} \exp(-t/\tau_{th}) \end{aligned} \quad (5)$$

となり、PVDF 焦電膜内の温度変化を、モデル単純化のため、空間的に一様とすれば

$$\begin{aligned} \frac{dT}{dt} &= \frac{P(t)}{(c_{vc} d_c + c_{vp} d_p) A} \\ &= \frac{\alpha \cdot E}{H \cdot A \cdot \tau_{th}} \exp(-t/\tau_{th}) \end{aligned} \quad (6)$$

となる。ただし、 A はカロリーメーターの受光面面積、 c_{vp} 、 d_p は PVDF の体積比熱、膜厚であり、 $H = c_{vc} d_c + c_{vp} d_p$ である。

(1)、(6)式により、コーティングを行った場合の等価回路 Fig. 2 中の電流 $i(t)$ は次式のように表わせる。

$$\begin{aligned} i(t) &= p(T) \cdot A \cdot (dT/dt) \\ &= \frac{p(T) \alpha E}{H \cdot \tau_{th}} \exp(-t/\tau_{th}) \end{aligned} \quad (7)$$

従って Fig. 2 出力端には

$$\begin{aligned} v(t) &= \frac{p(T) \alpha E R}{H(\tau_{th} - CR)} \\ &\quad \left\{ \exp\left(-\frac{t}{\tau_{th}}\right) - \exp\left(-\frac{t}{CR}\right) \right\} \end{aligned} \quad (8)$$

なる電圧信号が検出される。

以上の考察により、出力感度の入射レーザーパルス幅に対する依存性は、コーティングなしの場合と同様、ないものと予想された。また、入射ビーム径変化による感度変動についても、径方向熱拡散が無視できるコート厚の範囲内においては (少なくとも $D/d > 10^3$ の範囲においては)、(4)式より、コート厚さ d_c の均一性によっ

Fig. 6 Output voltage vs. incident laser energy for Nextel coated calorimeter. (Load resistance $R = 1 \text{ M}\Omega$)

Fig. 7 Voltage responsivity vs. incident beam diameter for Nextel coated calorimeter.

Fig. 6 は口径 350 mm ϕ 、PVDF 膜厚 110 μm 、ネクステルコート厚さ $60 \pm 5 \mu\text{m}$ のカロリーメーターに、100 ns 及び 1 ns のレーザーパルスを入射させた場合の入出力特性であり入射光パルス幅変化による感度の差はみられなかった。また、同一カロリーメーターにおいて、入射レーザービーム径を 20 mm ϕ から 270 mm ϕ まで変化したときの出力感度特性を Fig. 7 に示した。この結果より、コート厚を均一にすれば、任意

の入射ビーム径においてカロリメーターの使用が可能であることが確認された。

Fig. 8 Response time vs. load resistance. ○ represent measured points for 90mmφ calorimeter (coating thickness is $50 \pm 5 \mu\text{m}$), and ● for 350mmφ calorimeter (coating thickness is $60 \pm 5 \mu\text{m}$). Response time is defined by 10–90% risetime. Solid lines are calculated by equation (8).

Fig. 9 Voltage responsivity vs. load resistance. ○ represent measured values for 90mmφ calorimeter (coating thickness is $50 \pm 5 \mu\text{m}$), and ● for 350mmφ calorimeter (coating thickness is $60 \pm 5 \mu\text{m}$). Solid lines are calculated values by eq.(8).

コーティングがない場合と、コーティングカロリメーターの違いは、(2)式と(8)式とを比較すればわかるように、負荷抵抗 R の値によって出力感度が変化する領域が現われることである。Fig. 8, Fig. 9 に口径 350 mmφ 及び 90mmφ のネクステルコートカロリメーターの立ち上がり応答時間、出力感度の負荷抵抗特性を示した。ただし PVDF 焦電膜厚は $110 \mu\text{m}$ であり、コート厚は 350 φ カロリメーターが $60 \pm 5 \mu\text{m}$ で、90 φ が $50 \pm 5 \mu\text{m}$ であった。図中の実線は(8)式により計算された数値を示す Fig. 8 中の破線は等価回路の CR 時定数を表わし、負荷抵抗 R が小さくなっていくと、カロリメーター出力電圧波形の立ち上がり時間 τ が回路定数のみで決定されていることを示している*。 R が $10 \text{ M}\Omega$ 以上の値をとる場合には $\tau_{th} > CR$ となり、立ち上がりは τ_{th} で決定され、電気的時定数は立ち下がり時間を決めている。

Fig. 10. Output voltage waveform with load resistance $R=100 \text{ M}\Omega$. (90mmφ Nextel coated calorimeter) (Sweep: 20ms/div).

口径 90 φ ネクステルコートカロリメーター ($C = 6.7 \text{ nF}$) の出力電圧波形を、負荷抵抗値 $100 \text{ M}\Omega$ の場合について Fig. 10 に示した。 $R = 100 \text{ M}\Omega$ では $\tau_{th} \approx 20 \text{ ms}$ が信号の応答時間とほぼ一致している。

以上の結果より、コーティングカロリメーターの特性として以下の項目が挙げられると考

* Fig. 8 の τ は 10%–90% の立ち上がり時間で定義したため、CR 時定数 (破線の値) が、実測値及び計算値 (実線) より若干下回っている。

えられる。

- 1) エネルギーモニターとして高感度を達成させる場合の負荷抵抗 R は、コート層の熱時定数 τ_{th} に対して、 $CR > \tau_{th}$ なる値にとることが望ましい。
- 2) コート層を薄くすることにより τ_{th} の値が小さくなり、結果的に負荷抵抗特性はフラットになる。(コーティングなしの状態に近づいていく)

ネクステルコーティングを施す重要な意義は、受光面のダメージ閾値を上げることにある。

Fig. 11 にネクステルコートカロリメーターの、入射レーザー光 (パルス幅 100 ns) の単位面積当りエネルギーの増大にともなう出力感度の変化の様子を示した。入射エネルギーが 300 mJ/cm² までの領域においては、出力感度の変化はみられなかった。感度の低下は 300 ~ 400 mJ/cm² 以上で現われ始めた。この値は 3. で述べた ITO 受光面のダメージ閾値 50 ~ 60 mJ/cm² に比べて約 6 倍大きい値であった。

Fig. 11 Voltage responsivity vs. incident laser energy per unit area for Nextel coated calorimeter. Laser pulsewidth is 100 ns and coating thickness is 50 μ m.

また、Fig. 11 にみられた出力感度低下は、コート層表面でのプラズマ形成による入射レーザー光の遮断によって現われた現象であり、電極材を受光面とした場合のダメージ閾値と、この場合の感度低下閾値とは性質が異なるものであると考えられる。事実、コーティングカロリメーターにおいて、一旦閾値を越えるエネルギーを入射した後、入射エネルギーを下げると感度は復帰した。

5. ダイナミックレンジ

ITO 電極をそのまま受光面にした焦電膜カロリメーターに比べ、50 μ m 厚さにネクステルコーティングを施した場合には、出力感度は約 2 倍になる。また、感度の低下が現われ始める入射エネルギーレベル閾値 (ダメージ閾値) はコーティングカロリメーターの方がほぼ 6 倍大きな値が得られた。また感度の方も ITO 受光面カロリメーターに比べて約 1.6 倍大きい。このことは、受光面コートカロリメーターのダイナミックレンジが約 10 倍広いことを意味し、より高性能であると言える。Table II に、従来の烈光Ⅱ号 (2 ビーム, 400 J) システム最終段エネルギーモニター用熱電対型カロリメーター (口径 300 mm ϕ , 熱電対数 100 個, 吸収体セラミック (Al₂O₃)) と、今回開発を行った 350 ϕ 焦電膜カロリメーターとの性能比較を示した。ネクステルコートカロリメーターにおいては、従来型のものよりダイナミックレンジが 1 桁以上広いという結果が得られた。ただし、焦電膜カロリメーターにおいては、ノイズレベル 1 mV よりダイナミックレンジの値を計算した。熱電対型においては、応答速度が遅く設置雰囲気の影響を受けるため、ダイナミックレンジは経験的な値である。

Table II Properties of 350 mm ϕ pyro-film calorimeter (PVDF 110 μ m²) compared with 300 mm ϕ thermocouple type calorimeter.

	Voltage Responsivity	Damage Threshold [mJ / cm ²]	Dynamic Range
350° Pyro (ITO)	0.6	50 ~ 60	3 $\times$ 10 ⁴
350° Pyro (Nextel Coated)	1	400	3 $\times$ 10 ⁵
300° Thermocouple Type	0.03	2000	10 ⁴

6. まとめ

高出力 CO₂ レーザーシステム 烈光Ⅷ号 (最終段ビーム径 300 mm ϕ) のエネルギーモニター用として、大口径 (350 mm ϕ) 焦電膜カロリメーター

の開発を行い、以下の性能が得られた。

- (1) 入射レーザーパルス幅が変化した場合のカロリメーター出力感度の変動はみられなかった。
- (2) 入射レーザービーム径が変化した場合でも、受光面材料厚さが均一であれば出力感度の変動はみられなかった。
- (3) 従来の熱電対型カロリメーターに比較して約30倍の感度が達成できた。
- (4) ダイナミックレンジはネクステルコートカロリメーターにおいて、従来型に比べ1桁以上大きい値が得られた。

以上の結果により、レーザーエネルギー測定可能範囲、測定精度ともに大幅な向上を達成す

ることができた。また、焦電膜カロリメーターの高感度性により、大ビームの空間強度分布測定用としての発展も期待できる。

参考文献

- 1) C. B. Roundy and R. L. Byer, Appl. Phys. Lett. **21** (1972) 512.
- 2) 中塚, 久保, レーザー研究 **4** (1976) 26
- 3) 的場他, 電学論C, **102**, (1982) 93.
- 4) C. Yamanaka, et al., IEEE J. Quantum Electron., **QE-17** (1981) 1678.
- 5) J. G. Bergman, Jr., J. H. McFee, and G. R. Grane, Appl. Phys. Lett. **18** (1971) 203.
- 6) R. J. Phelan, Jr., et al., Appl. Phys. Lett. **19** (1971) 337.
- 7) 山香, 応用物理 **43** (1974) 153.
- 8) 山香, 応用物理 **50** (1981) 1181.