

希土類添加セラミックレーザーの研究

電子物性工学専攻 村井 朋代

はじめに

現在、Nd:YAG 単結晶は一般的に最も広く用いられている固体レーザー材料のひとつであり、応用範囲も広い。しかし、Nd:YAG 単結晶は通常チョクラルスキー法で生成されるため、製造上での物理的な制限などから、添加物濃度の高いものや大きいサイズのものを作るのが難しく、また、時間とコストがかかるという問題がある。ところで、最近になりセラミックス製造技術の急激な進歩によって、レーザー発振も可能な位に透光性が高く、質の良い Nd:YAG セラミックスを作ることが可能になった。そこで、我々はこの Nd:YAG セラミックスが Nd:YAG 単結晶の欠点を補うことができるのではないかと考え、Nd:YAG セラミックレーザーの研究を行うことにした。我々の研究で用いたセラミックスは全て神島化学工業によって開発された新製造法によって作られたものである。

Nd:YAG の他にも良質な単結晶の育成が難しい、Nd:Y₂O₃ や Yb:Y₂O₃ などについてセラミックスを製作し、現在研究をすすめている。

透光性多結晶セラミックスの製造法

透光性多結晶セラミックスの製造法にはたくさんあるが、ここでは神島化学工業によって開発された新製造法について述べる。

まず液体で化学反応を起こし、攪拌、濾過、洗浄、乾燥をして YAG の前駆体を作る。次に YAG の前駆体に少し熱を加え、仮焼して YAG の微粉末を作る。この時の粒径は約 100nm である。それを更にボールミルでバラバラに粉砕し、成形した後に焼結する。できたセラミックスの粒径は 10 μ m、粒界は 1nm 以下で気孔率も 1ppm 以下という非常に高品質なものができる。この製造法の特徴は 2 つある。第 1 は液体の化学反応を用いて YAG の前駆体を作ることである。これは固体から始める場合に比べて、不純物が混入しにくいという利点がある。第 2 に成形時に

圧力を加えないということである。これにより、大きなサイズの試料を作る時も大きな機械がいらないといった利点がある。

Nd:YAG セラミックレーザー

・吸収・蛍光スペクトルの測定

まず、吸収スペクトルを測定した。測定に用いたのは安藤電気社製の光スペクトルアナライザー (ANDO AQ-6315A) と白色光源 (ANDO AQ-4303B) である。また、今回測定に用いた試料は、 $\phi 12 \times 2$ mm の 0.6%Nd:YAG セラミックス、 $\phi 12 \times 2$ mm の 1.0%Nd:YAG セラミックス、 $\phi 12 \times 2.5$ mm の 2.0%Nd:YAG セラミックス、 $9 \times 22 \times 0.86$ mm の 4.0%Nd:YAG セラミックスそして、比較実験のために、 $\phi 3 \times 2$ mm の 0.9%Nd:YAG 単結晶も測定した。

図 1 に 1.0%セラミックスと 0.9%単結晶の励起波長域の吸収スペクトルを示す。

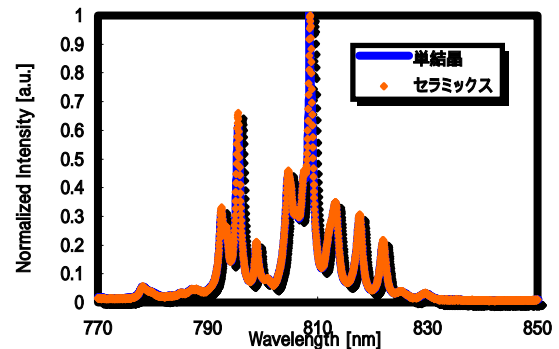


図 1 セラミックスと単結晶の吸収スペクトル

ここで、吸収係数 α は次式で与えられるものとする。

$$\alpha = -\frac{1}{t} \ln \frac{I_0}{I_{\text{back}}}$$

但し、 t は試料の厚さ、 I_0 は試料を透過して出てきた光強度、 I_{back} は試料を置かなかった時の光の強度 (バックグラウンド) を表す。図では、Nd の添加濃度が各々の試料で異なるので、同じ条件で比較す

るために縦軸を規格化している。これを見て分かるように、セラミックスと単結晶のあいだに違いは見られなかった。

次に蛍光スペクトルを測定した。測定に用いたのは、安藤電気社製の光スペクトルアナライザー (ANDO AQ-6315A) と発光させるための励起光源として波長 808nm の高輝度半導体レーザー (MITSUI MLD 100) を試料に当てて行った。測定に用いた試料は吸収スペクトルを測定する時に使ったものと同じものである。図 2 に実際に測定した 1.0%セラミックスと 0.9%単結晶の発振波長域の蛍光スペクトルを示した。Nd の添加濃度が各々の試料で異なるので、同じ条件で比較するため、縦軸は規格化してある。この図を見て分かるように、セラミックスと単結晶とがほぼ同じであるということがわかる。従って、添加された Nd イオンが粒界などに固まって混ざっていることは無く、全体に均一に混ざっているということが証明された。この測定より、1064nm 付近にピークを持つスペクトル線の中心波長は、0.6%が 1064.15nm、1.0%が 1064.18nm、

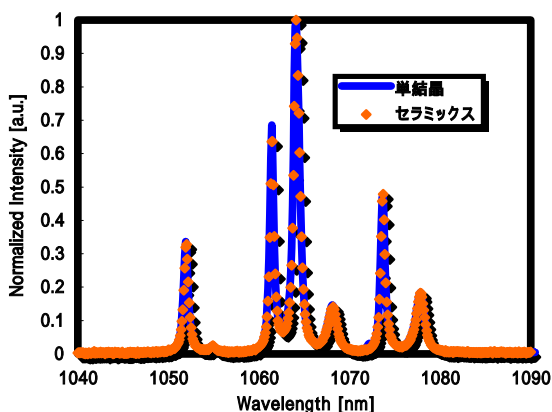


図 2 セラミックスと単結晶の蛍光スペクトル

2.0%が 1064.24nm、4.0%が 1064.30nm、またその時の半値全幅は各々、0.78nm、0.78nm、0.81nm、0.85nm であった。この結果より、4.0%は 0.6%の時に比べてピークの中心波長が 0.12nm 赤外方向にシフトしていることがわかる。これは、添加物濃度が大きくなるにつれて、濃度消光効果のために線幅が広がるためである。また、0.6%と 1.0%の試料の半値全幅が同じであったことから、添加物濃度が

1.0%以下では、濃度消光の影響が小さいことがわかる。これは、単結晶の時も同じであり、このことからセラミックスが単結晶とほぼ同じであるということができる。

・ 蛍光寿命の測定

測定で使ったのは浜松ホトニクス社製の quasi-CW 半導体レーザーで、測定した試料は 0.6%、1.0%、2.0%、4.0%の Nd:YAG セラミックスと比較実験のための 0.6%、0.9%の Nd:YAG 単結晶である。測定した各試料の蛍光寿命と Nd 添加濃度の関係は図 3-(a)のようになった。この図からわかるように、セラミックス、単結晶共に Nd 添加濃度が高くなるにつれて、蛍光寿命は短くなっていくという濃度消光が見られる、これは、Nd 添加濃度が上がるにつれて、結晶中に添加されている Nd イオン同士の間隔が狭くなり、Nd イオン同士が双極子相互作用をするようになるためである。即ち、Nd イオンの光

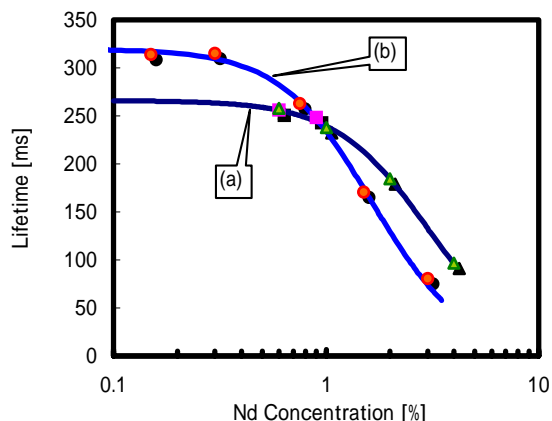


図 3 蛍光寿命 (a)Nd:YAG (b)Nd:Y₂O₃

学遷移は 4f → 4f 遷移であり、その周りに 5d などの外郭電子が存在するため、通常は結晶場の影響を受けなくて、気体原子のように本来の遷移確率を利用しやすくなっている。しかし、同種のイオン同士の間隔が短くなると、寿命が短くなるのである。次に、図 3 のデータに次式でフィッティングを行い、濃度がほとんど 0 %の時の蛍光寿命を求めた。

$$\tau = \frac{\tau_0}{1 + (C_{Nd}/C_0)^2}$$

但し、 τ は蛍光寿命、 τ_0 はほとんど添加物をお含まない、低濃度での蛍光寿命、 C_{Nd} は Nd の濃度、 C_0 は $\tau_0/2$ となる時の Nd 濃度を表している。このフィッティングにより、セラミックスのほうの τ_0 が $257.6\mu\text{s}$ 、単結晶の τ_0 が $256.3\mu\text{s}$ で両方の値ともに理論値と良く一致している。

・端面励起レーザー

今回用いた励起光源は、波長 808nm の浜松ホトニクス社製の高輝度半導体レーザー (Hamamatsu 2901 LD) で、最大出力パワーが 1.0W のものである。LD から出た光はコリメートレンズと集光レンズで試料の端面に集光される。この集光された端面での LD の最大出力パワーは 883mW であった。実験に用いた試料は厚さ 5.0mm の 1.0% Nd:YAG セラミックス、厚さ 2.5mm の 2.0% Nd:YAG セラミックスそして比較のための厚さ 5.0mm の 0.9% Nd:YAG 単結晶で、各試料の入射端面には 808nm に対しての AR (Anti-Reflection) コーティングと 1064nm に対する HR (High-Reflection) コーティングが施されている。また、もう一方の端面には、 1064nm に対する AR コーティングが施されておる。出力鏡は透過率が 3.0% で曲率半径は 250mm である。共振器は試料の LD 入射端面と出力鏡によって構成されている。共振器長は 20mm で 0.9% 単結晶は Litton-Airtron 社製のものを用いた。

図 4 に各々の試料における励起パワーに対する出力パワーのプロット結果を示す。最大励起パワーが 883mW の時の各々の最大出力パワーは 1.0% Nd:YAG セラミックスが 499mW 、 2.0% Nd:YAG セラミックスは 465mW 、 0.9% Nd:YAG 単結晶が 474mW であった。また、各々のスロープ効率は 1.0% Nd:YAG セラミックスが 58.5% 、 2.0% Nd:YAG セラミックスが 55.4% 、そして 0.9% Nd:YAG 単結晶が 55.2% であった。一見すると、セラミックスの方が単結晶よりも良い結果のように見えるが、そうではない。ここで、3つの試料を比較するために注意しなくてはならないのは、各々の試料の Nd 添加濃度が違うということである。そこで、これらを比較する際は、励起パワーではなく、実際

に試料が吸収したパワーを用いて考える。そうすると 1.0% Nd:YAG セラミックスと 0.9% Nd:YAG 単結晶はほぼ同じ結果であるということがわかる。即ち、これは 1064nm における散乱損失が、セラミックスと単結晶でほぼ同じであることを意味している。また、 2.0% セラミックスは 1.0% セラミックスと比べると若干効率は低くなっているが、これは、濃度消光による蛍光寿命の違いと、吸収係数の違いからくるものである。

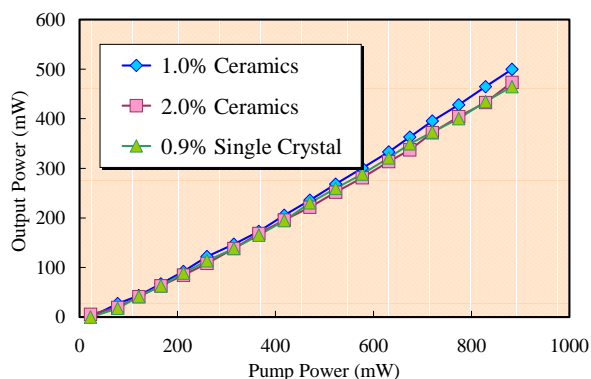


図 4 励起パワーに対する出力パワー特性

・高励起・高出力レーザー

次に、高励起装置を用いて高出力レーザー発振実験を行った。励起システムには、我々の研究室で開発された仮想点光源 (Virtual Point Source: VPS) 励起システムを用いた。この実験装置図を図 5 に示す。波長 807nm で最大出力パワー 10W の LD から出た光が、シリンドリカルレンズを通して球面ミラーで反射されて透明窓から入射し、ホルダー内側の金コーティングされた面を、多重反射するといったものが 32 セットあり、試料を入れるホルダーの周りを囲むように円状に配置されている。

一番最近行った実験結果を図 6 に示す。試料には大きさ $\phi 4 \times 105\text{mm}$ の 0.6% Nd:YAG セラミックスを用い、共振器長 540mm 、出力鏡の透過率 20% 、曲率半径 500mm の共振器を構成して行った。その結果、励起パワー 290.8W の時に最大出力パワー 88W 、光 - 光変換効率 30.3% を得た。また、同じ共振器構成で比較のため、大きさ $\phi 4 \times 104\text{mm}$ の 0.6% Nd:YAG 単結晶の実験も合わせて行った。その結果、

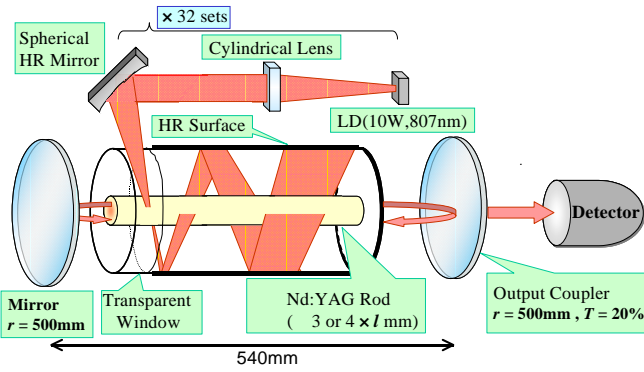


図 5 高励起・高出力レーザー発振実験の実験装置図

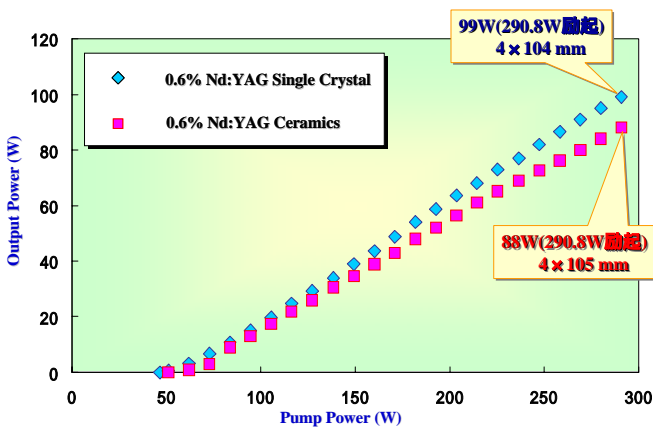


図 6 一番最近に行われた実験での励起パワーに対する出力特性

励起パワー290.8W の時、最大出力パワー99W、光 - 光変換効率 34.1%を得た。この結果より単純に最大出力パワーだけを、セラミックスと単結晶で比較した場合、わずかに 10%程しか変わらないことがわかる。この 10%の違いについては、内部損失からくるものであると思われるが、詳しくは現在も議論しているところである。

ところで、VPS 励起システムは装置の構造上の問題から、共振器長をこれ以上短くすることができないため、熱レンズ効果により共振器条件が不安定領域に入っているということや、最大励起パワーが 290W ということから最大出力パワーは上記のようになっているが、外部機関のもっと高励起できる装置を用いて行われた実験では、東芝の装置で最大出力パワー1.46kW を得ており、これにより、Nd:YAG セラミックスが高出力レーザー媒質としても十分に役割を果たせることが示された。

・マイクロチップレーザー

一般的にマイクロチップレーザーは、共振器長が非常に短いことから、縦モード間隔が大変広く、単一縦モード発振が得られやすい。媒質が短いので、吸収係数の大きめの媒質が適している。通常マイクロチップレーザー媒質としてよく用いられるのは Nd:YVO₄ である。比較的 low 濃度で高い吸収係数をもつという点や誘導放出断面積が大きいという点で、YAG よりも優れているといえるが、逆に熱的機械特性が悪く、熱伝導率も低いという欠点がある。また、利得スペクトルの線幅は Nd:YAG の方が Nd:YVO₄ よりも狭く、Nd:YAG の方がより単一縦モード発振が得られやすい。このようなことから、高濃度 Nd を添加した高品質な YAG を用いたほうが良いことがわかる。そこで、YAG セラミックスの利点のひとつである、添加物濃度が高く、品質の良いものが比較的容易に作れるということを利用して今回の実験を行った。

励起光源として用いたのは、波長 808nm の高輝

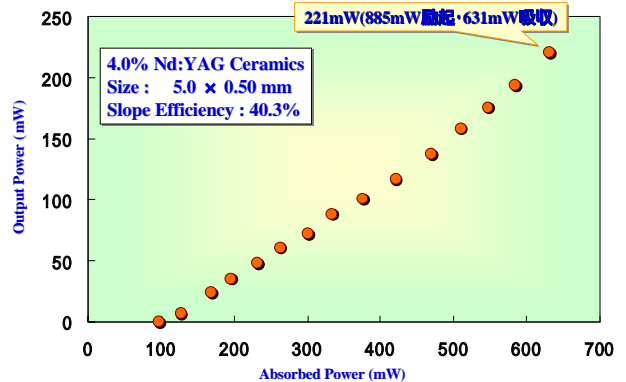


図 7 吸収パワーに対する出力特性

度半導体レーザー (MITSUI MLD 100 LD) で、最大出力パワーは 1.0W である。LD から出た光はコリメートレンズと集光レンズで試料の端面に集光される。この集光された端面での LD の最大出力パワーは 885mW であった。今回用いた試料は 4.0% Nd:YAG セラミックスで厚さが 500 μ m のものである。試料の入射端面には、808nm に対しての AR コーティングと 1064nm に対する HR コーティングが、また反対側の端面には、1064nm に対する HR コー

ティングが施されており、この試料の両端面のコーティングによって共振器が組まれている。そのため、共振器長も媒質長と同じ 500 μm である。また、出力鏡の透過率は 5.0% である。図 7 に吸収パワーに対する出力パワーのグラフを示す。閾値は吸収パワーが 100mW の時であった。また、最大出力パワーはマルチモードで 221mW、シングルモードで 172mW、スロープ効率は 40.3% という、大変高効率な結果を得た。この結果は我々が知る限り、今までに報告された高濃度 Nd を添加した YAG セラミックスを用いた、マイクロチップレーザーの結果の中で最も良い。しかし、この時は温度制御を行ってなかったことや共振器長が最適でなかったために、発振の中心波長が利得スペクトルの中心波長と一致

しておらず、励起パワーを上げていくと発振波長はどんどん赤外方向にシフトしていき、途中(172mW より高出力のところ)でマルチモード発振になってしまった。

そこで、次に温度制御をして単一縦モード発振実験を行った。その時の出力光をシングルモードファイバーでスペクトラムアナライザー (ANDO AQ-6315A) に取り込むことにより得たスペクトル図を、図 8 に示す。この図より、温度制御をしていない時マルチモードだったものを、温度制御をすることにより発振スペクトルを利得スペクトルの中心である 1064.3nm 付近に一致させ、シングルモードにすることができた様子が確認できた。

Nd:Y₂O₃ セラミックレーザー

・ 光学的特性の測定

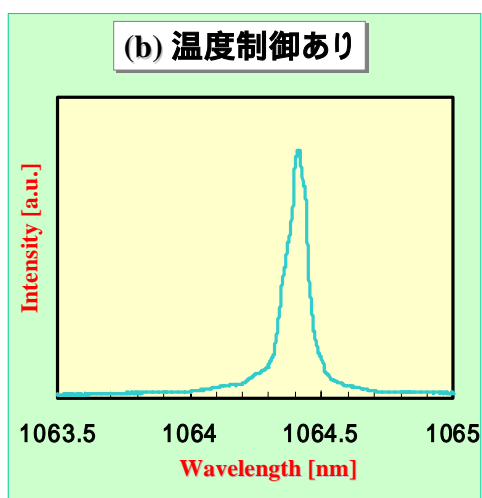
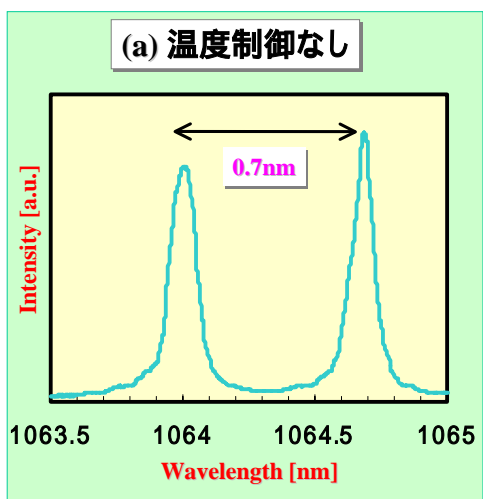


図 8 発振スペクトル (a) 温度制御なし
(b) 温度制御あり

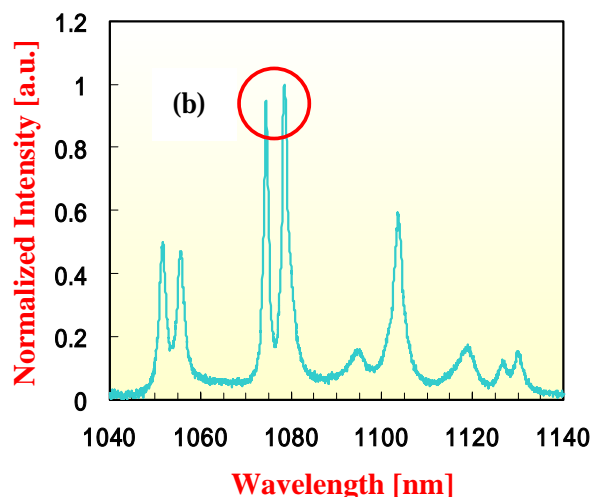
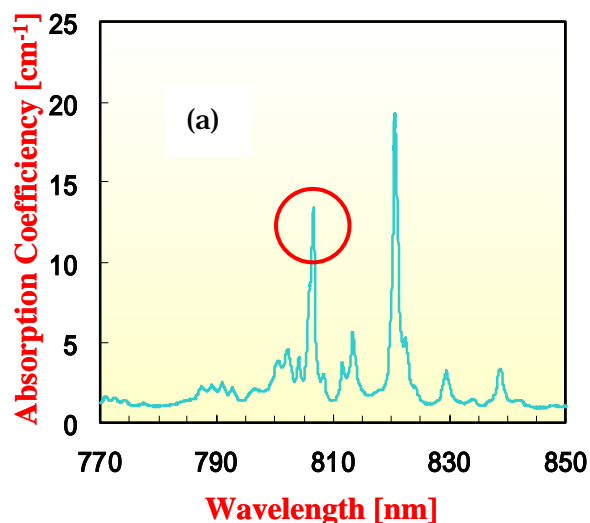


図 9 (a)吸収スペクトル (b)蛍光スペクトル

今回測定した 1.5%Nd:Y₂O₃ セラミックスの吸収・蛍光スペクトルを図 9 に示す。今回レーザー発振で用いる吸収波長は 806.6nm で発振波長は 1074.6nm と 1078.6nm である。

また、蛍光寿命の測定結果を図 3-(b)に示す。これにより、低濃度寿命は 320 μ s と求まり、Nd:YAG よりやや長いことがわかった。

・端面励起レーザー

Nd:Y₂O₃セラミックレーザーの発振を世界で初めて実現した。

今回励起光源として用いたのは、波長 807nm の高輝度半導体レーザー(MITSUI MLD 100 LD)で、

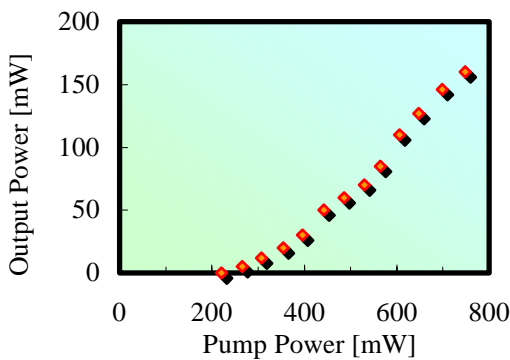


図 10 励起パワーに対する出力特性

最大出力パワーは 1.0W である。LD から出た光はコリメートレンズと集光レンズで集光される。用いた試料は 1.5%Nd:Y₂O₃ セラミックスで、厚さが 2.7mm のものである。試料の両端面は、無コーティングである。出力鏡の透過率は 3.0%、曲率半径は 250mm のものを使った。また、共振器長は 20mm である。この時の励起パワーに対する出力パワーの関係を示したのが図 10 である。励起パワー 748mW の時、最大出力パワー 160mW を得た。また、スロープ効率は 32%であった。また、前に述べたように、2 波長で発振している。従って、出力パワーはこの 2 波長の合計ということになる。

まとめ

Nd:YAG セラミックスについて光学的特性を測定し、Nd:YAG 単結晶とほぼ同じであるという結果を得た。端面励起レーザー発振実験では、単結晶と変

わらない高効率な結果を得たことから、1064nm における散乱損失が単結晶とほぼ同じであるということがわかった。また、VPS 励起システムを用いた高出力レーザー発振実験では 0.6%Nd:YAG セラミックスを用いて最大出力パワー 88W を得た。これは同じ装置で実験した単結晶の最大出力パワーに比べてもわずか 10%程しか違わない。更に、4.0%と高濃度 Nd を添加した YAG セラミックスを用いてマイクロチップレーザー発振実験を行い、最大出力パワー 221mW(マルチモード)を得た。また、試料を温度制御して、発振スペクトルの中心波長が利得スペクトルの中心波長と一致するようにした。最近では、誘導放出断面積が 1064nm 帯の約 5 分の 1 しかない波長 1319nm におけるレーザー発振実験を行い、非常に高出力及び高効率な結果を得た。このことから、セラミックスが高品質なことがわかる。

また、Nd:Y₂O₃ セラミックスについても端面励起レーザー発振実験を行い、最大出力パワー 160mW を得た。これは、Y₂O₃ セラミックスの損失がレーザー発振の可能な位に少ないことを表す。

今後の課題

Nd:YAG セラミックスについて今後早急に行う必要のある実験は、熱膨張係数の測定とサーマルショックパラメーターの測定、そして散乱係数の測定である。熱膨張係数はサーマルショックパラメーターにも関係する値で、今後高出力レーザーとして用いる時には、最も必要とされる。また、散乱係数は以前にも当研究室で実験されたが、単結晶に対しての相対的測定しか行っていない。従って、絶対値を測定して散乱がどの程度なのかということを確認する必要がある。

また、Nd:Y₂O₃ セラミックスについては、まだまだ実験を始めたばかりでやるべきことは多くあるが、特に熱伝導率の測定を早急に必要がある。その他、レーザー発振についても、更なる高出力、高効率化を目指して検討をしていきたい。

その他にも Yb:Y₂O₃ セラミックスなどについて、物性の測定やレーザー発振の準備をすすめていきたい。