

多結晶セラミックレーザー媒質の開発

八木 秀喜

・はじめに

1960年のT.H.Maimanによるルビーレーザーの発明を起源とする固体レーザーは、高出力、高効率化を目指した研究開発が精力的に行われた結果、現在では溶接、切断、計測、医療など各種産業で広く用いられている。固体レーザー媒質は、低散乱損失、光学的均一性などが要求されるため、従来熔融法による単結晶及び光学ガラスが用いられている。しかしながら、一般に引き上げ法により作製される単結晶材料では、大型結晶の作製が困難、内部にファセットと呼ばれる光学的不均一層を有する、添加活剤の濃度が異なる、と言った欠点を有している。一方光学ガラスはその大型化は容易であるが、機械・熱的性質が結晶と比較して劣っている。

そのため両者の特徴を生かした材料として、透光性セラミックスによるレーザー結晶が注目されるようになり、その開発が過去40年以上の長期に渡り試みられてきた。その結果、多結晶セラミックスによるレーザー発振は既に幾つか報告が行われているが、セラミックス内部の散乱により十分なレーザー特性が得られず、現在までに実用化されたものは皆無である。そこで熱的・機械的特性に優れたレーザー結晶として最も一般的なイットリウムアルミニウムガーネット($Y_3Al_5O_{12}$:YAG)結晶を多結晶セラミックスにより作製し、その物理・光学的性質及びレーザー特性の評価を行った。

・多結晶 YAG セラミックの作製とその物理的性質

多結晶 YAG セラミックの作製は、まず湿式合成法により約 $0.2\ \mu\text{m}$ の YAG 原料粉末を作製し、次にこの原料粉末を用いて鋳込み成形法により高密度成形体を作製し、最後に真空中約 1700°C の温度で焼成することで行った。作製された多結晶 YAG セラミックは平均粒径約 $2\ \mu\text{m}$ の微細な結晶の集合体であり、その粒界幅は 1nm 以下である。

多結晶 YAG セラミックの機械的性質は単結晶 YAG と比較して優れており、セラミックの硬度は単結晶と比較して約 10% 高く、破壊靱性値は単結晶の約 2 倍であった。YAG セラミックの熱伝導率は、室温では約 $11\text{W/m}\cdot\text{K}$ と単結晶のそれと同等であるが、 100K 以下の低温では粒界でのフォノン散乱の影響により単結晶の $1/10$ 程度と低い値であった。

・ YAG セラミックスの光学特性

YAG セラミックスの光学特性の評価を行った結果、屈折率は単結晶よりも僅かに低く、散乱量はほぼ同等であった。

Nd:YAG セラミックスの吸収、発光、蛍光寿命を測定した結果、Nd:YAG 単結晶のそれと同等であった。セラミックでは通常単結晶では作製困難な Nd の高濃度化が可能である。高濃度 Nd 添加 YAG セラミックの蛍光寿命は、Nd 添加濃度が 1at.% 以上では濃度消光が顕著に現れ、8at.% 添加では 15 μ s まで低下した。

またセラミックスには、単結晶に見られるファセットなどの歪層が無く、その透過波面は良好であった。

・ YAG セラミックスのレーザー発振特性

Nd:YAG セラミックスのレーザー特性を確認するため、長さ 10cm 以上のロッドを作製し、LD 励起及び Xe フラッシュランプ励起により高出力レーザー発振試験を行った。LD 励起では 110W のレーザー出力がスロープ効率 41.2% で得られた。またランプ励起では最大平均出力 386W が得られた。これらのレーザー特性は Nd:YAG 単結晶を用いた場合と同等若しくはそれ以上のものであり、実用的なサイズのセラミックロッドに於いて単結晶と遜色ないレーザー特性が得られることを初めて実証した。

同様に長さ 10cm の Er:YAG セラミックロッドによるランプ励起によるレーザー発振試験（発振波長 2.9 μ m）では、平均出力 22W（励起入力 1KW, 10Hz, 1ms）と単結晶同等のレーザー特性が得られることを確認した。

また Yb:YAG を用いたマイクロチップレーザーでは、室温下スロープ効率約 79% の高効率発振特性を確認した。

・ Cr 添加 YAG セラミックスの作製及びその特性

過飽和吸収体用 Cr⁴⁺:YAG セラミックを作製し、そのアニール処理条件が光学特性に及ぼす影響を調べた。その結果 YAG セラミックに添加された Cr イオンは、通常 3 価として存在し、CaO を添加し大気雰囲気中高温アニール処理を行った場合のみその一部が 4 価として存在することが明らかになった。また Cr⁴⁺:YAG を用いた Q スイッチレーザー発振試験を行いその特性を明確にした。

また Cr³⁺ を共添加した Cr:Nd:YAG セラミックロッドを作製し、その光学特性を明確にするとともに Xe フラッシュランプ励起によるレーザー発振試験を行った。0.1at.%Cr³⁺:1at.%Nd³⁺:YAG セラミックロッド（10×80mm）では、シングルショットで最大 10.4J のレーザー出力（効率 4.9%）を達成した。一方 Cr 無添加 Nd:YAG ロッドでは、最大出力 4.9J（効率 2.3%）であり、Cr 共添加 Nd:YAG の有効性を明ら

かにした。

・接合セラミックスとその応用

固体レーザーの出力、ビーム品質などのレーザー特性は、熱レンズ効果や熱複屈折効果など励起光によりレーザー媒質内に形成される熱分布の影響により制限される。レーザー媒質内の熱分布均一化によるレーザー特性改善のため、レーザー媒質に活性イオンが添加されていない結晶を接合したコンポジット結晶が提案されている。そこで焼結拡散接合によりコンポジット YAG セラミックスを作製し、その接合界面の評価を行った。その結果、焼結拡散接合による接合セラミックスは、既存の低温拡散接合によるものと比較してその接合強度は高く、接合による光学特性の劣化はない事が明らかになった。また焼結接合時のイオン拡散についても検討を行い、Nd:YAG と YAG の接合セラミックスでは、Nd³⁺イオンの YAG への拡散距離は 17.7 μm であり、単結晶の拡散接合品と比較して約 5 倍の拡散距離をとることが明らかになった。

また寄生発振抑制用吸収体として Sm³⁺:YAG セラミックスを作製し、その有効性を確認した。

・希土類酸化物セラミックス

YAG 以外のレーザー用セラミックスとして、既存の単結晶技術では大型の良質な結晶を作製することが困難な透光性希土類酸化物(R₂O₃:R=Y,Sc,Lu)多結晶セラミックスを作製し、そのレーザー発振のデモンストレーションを行った。

希土類酸化物は、YAG と比較して熱的特性に優れているだけでなく、格子定数が小さく結晶場の影響が出易いため、活性イオンの吸収・発光スペクトルがブロードに成り易いと言った特徴を有している。そのため Yb³⁺添加希土類酸化物は、超短パルス発生用ホスト材料としての可能性を秘めている。Yb³⁺添加 Y₂O₃ 及び Lu₂O₃ セラミックス試料で、185fs, 333fs がそれぞれ達成されており、今後の更なる発展及びその実用化が期待される。

以上より、従来不可能とされていた多結晶セラミックスによるレーザー媒質を開発し、実用的サイズに於いても十分なレーザー特性が実現可能であることを実証した。