



**4.5 LD 励起高繰り返し超短パルスレーザーの研究開発**  
**Development of high repetition rate ultra-short pulse**  
**solid state lasers pumped by laser diodes**

植田憲一、盧健仁、高市和則

電気通信大学 レーザー新世代研究センター

Ken-ichi UEDA, Jjianren Lu, Kazunori TAKAICHI

Institute for Laser Science, University of Electro-Communications

八木秀喜、柳谷高公

神島化学工業株式会社

Hideki YAGI, Takakimi YANAGITANI

Konoshima Chemical Co., Ltd.

アレキサンダー・カミンスキー

ロシア科学アカデミー 結晶学研究所

Alexander Kaminskii

Institute of Crystallography, Russian Academy of Science

河仲準二

日本原子力研究所 光量子科学研究センター

Junji KAWANAKA

Japan Atomic Energy Research Institute

A novel technique for ceramic lasers has been developed recently. Self-energy-driven sintering of nano- and micro particles created the fully transparent Nd:YAG ceramics. The ceramic YAG demonstrated high efficiency operation (optical-to-optical conversion of 60% in end pumping) and solid-phase crystals growth and the possible scaling were investigated principally. Typical performance of ceramic YAG laser has been reviewed. The present status and future prospect of the ceramic lasers technologies were discussed.

**Keywords :Ceramic lasers, Ceramic YAG, Self-energy-driven sintering, nano particles**

## 1. はじめに

チョコラルスキー法に代表される固体レーザー結晶の育成技術は、固相、液相界面における再結晶効果を利用して高速結晶成長をさせる純水人工技術であるが、同時に、高温育成のために自然界とは異なる環境で結晶が成長し、場合によっては多様な相変化が同時に発生し、単結晶成長が不可能になる。大型結晶をセラミック技術によって作成することはレーザー開発当初からの夢であり盛んに研究が行われたが単結晶に匹敵する品質を得ることはできなかった。[1,2] その後、1995年にLD励起によるNd:YAGレーザーの発振が報告された。[3] 試料は機械的に微粉化した結晶材料を冷間静水圧プレス(CPI)法でペレット化し焼結したものであった。その後、散乱係数の低減などの努力[4]が続けられたが、プレス法には拡大則上の困難があり、ガラスのよ

うに結晶を育成するという夢を実現するには全く新規なセラミック技術が必要であった。我々は独自に、炭酸塩水溶液による化学反応生成超微粒子をセラミック材料とする従来と全く異なった現代的セラミック技術の開発に成功した。[5]

## 2. 完全合成セラミック製法

新しい化学合成セラミック製法はナノ微粒子を化学的に生成することから始まる。Y, Al, Nd を含む溶液に炭酸塩水溶液を滴下することで 2-30 nm に流刑が揃ったナノ粒子として YAG の前駆体が生成される。これらを 1200℃ で仮焼し平均粒径が 2-300nm の YAG 微結晶ができる。これを多孔質セラミック製の鋳型に従来の鋳込み法で流し込み、脱水、乾燥を経た後、鋳型から取り出し、真空焼結炉で 1800℃ の真空焼結を行う。その間、固体粒子は固相の結晶成長をして多結晶体である透明セラミックスを作り出す。出来上がったセラミック YAG のグレインサイズは 20~30 μm だが、境界層は原子 1~2 個の範囲であり、ガラス層や気泡は観測されない。ここで見られる焼結過程は、固相における同時多発種による結晶成長という点では、地球内部で結晶が成長している過程と同一で、これまでの結晶成長法に比べてより自然に近い方法である。

## 3. セラミック YAG の物理的性質

セラミック YAG は結晶サイズが 2~30 nm の単結晶が集まった多結晶でグレイン境界層の厚みは原子 1~2 個であることから、完全な多結晶体であるセラミックと単結晶は、分光学的性質や熱的性質が同一になることは当然の帰結である。実際、①吸収スペクトル[4]、②蛍光スペクトル[4]、③ラマン散乱スペクトル[8]、④誘導ラマンスペクトル[9]、⑤濃度消光曲線[4]、⑥屈折率、⑦熱伝導係数[10]において全く差がないことが確認された。機械的性質の測定は、ロシア科学アカデミーの専門家の協力により測定した。セラミック YAG の硬度は単結晶と同等または 10%程度強く、脆性破壊強度は 3 倍も大きい。[11] グレインの結晶軸がランダムで同じ方向にクラックが走らないことや内部歪みを分散させる効果が脆性破壊強度を上げていることが分かる。高密度励起を必要とするレーザー用結晶の重要な特性は熱衝撃パラメータが大きいことである。セラミック YAG のそれは約 2400W/m 程度と単結晶の 790W/m より遙かに大きい。Yb 添加など高密度励起が必要な今後の新しいレーザー材料に不可欠な特性である。

半導体レーザーによる端面励起によりレーザー発振特性を調べた。Nd 濃度が 1%, 2% の場合のセラミックレーザー発振特性を図 1 に示している。いずれも光-光変換効率率はほぼ 60%に達しており、量子効率 76%の理論限界に近いことが分かる。[6] さらに注目すべきは、Nd 濃度を 2%の YAG を実現したことである。通常 1.3%程度が最大濃度とされている。セラミック製法では、9%を超える濃度も作成できるが濃度消光が激しいため 4%程度が限界である。4%の Nd:YAG では 40%以上のスロ

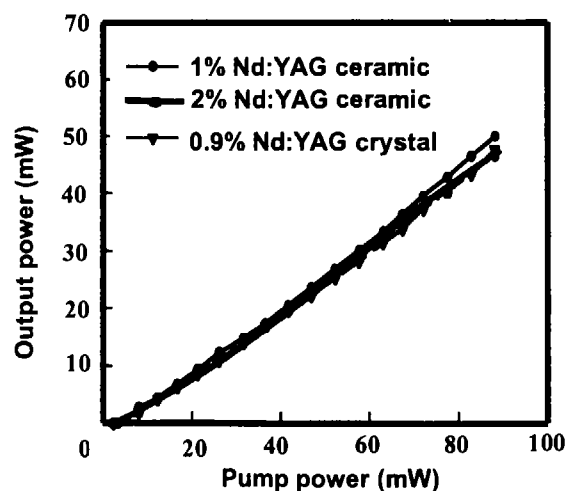


図1 励起エネルギーに対する出力エネルギー

ープ効率を達成した。このような高濃度 Nd:YAG は、狭帯域でありながら高吸収係数を実現するので空間ホールバーニングを利用した単一周波数レーザーに好適である。単一周波数発振マイクロチップレーザーはセラミックレーザーの1つの特徴である。

セラミックレーザーの最大の特徴はレーザー材料の拡大可能性である。

大型のレーザー材料を安価に供給可能なセラミックレーザーでは、側面

励起による高出力実験が重要である。図2に出力特性を示す。比較のため、Airtron, II-VI 社製の単結晶 YAG、4mmφ, 10cm を用いた。最大出力 103W を発生する。セラミック YAG はそれを上回る 110W の出力を得た。側面から光学的均質性を測定してみると、単結晶 YAG では必ず結晶成長に起因するファセット構造が観測され必ずしも均一ではないことがわかる。理想的な単結晶というものは、ナノ結晶の中にしかないというのが現実で、セラミック YAG の方が光学的均質性が優れていても当然の結果であると言える。セラミック YAG の産業応用を考える場合、キロワット級のレーザーが可能かどうかは、実際的な目安として重要であるが、これをも実現している。[7]

#### 4. まとめ

次世代の高出力・高平均出力レーザー材料である Nd:YAG セラミック材料を用いてレーザー動作を行った。その結果、単結晶とほぼ同じ、もしくはそれ以上の出力特性が得られた。また、セラミックの熱特性においても単結晶とほぼ同じ結果が得られている。中でも特に、熱ショックパラメータは単結晶の約 3 倍程度高く、高強度励起を必要とするレーザー用結晶に極めて適していることがわかった。さらに、レーザー動作を行った結果、単結晶以上の出力を得ることができた。本手法によるセラミック材料は単結晶以上の光学特性や熱特性を有し、もはや真の単結晶材料と呼べるまでになった。セラミック技術の最大の特徴であるサイズの拡大可能性に基づくレーザーの高出力化のみならず、高平均出力化の観点からも大いに期待できる。

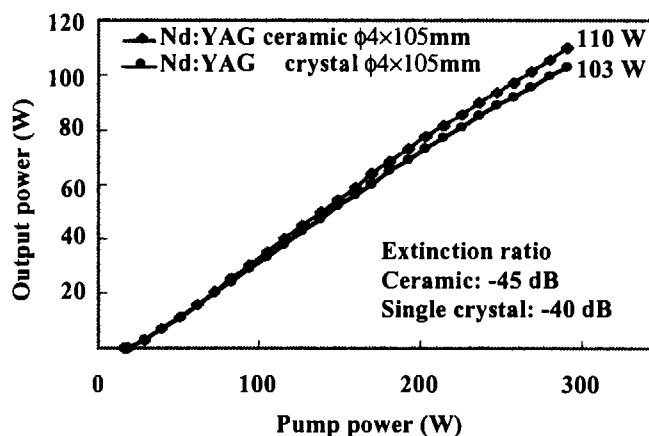


図2 高出力動作における励起エネルギーに対する出力エネルギー

#### References

- [1] E. Carnall, Jr., S. E. Hatch, W. F. Parson: Materials Science Research, etc. W. Wruth Kriegel and H. PalmourIII (Plenum, NewYork, 1966) vol. 3.
- [2] Cj. Greskavich, J. Chernoch, J. Appl. Phys., **44**, 4599 (1973).
- [3] A. Ikesue, T. Kinoshita, K. Kamata, K. Yoshida, J. Am. Ceram. Soc., **78**, 1033 (1995).
- [4] 池末明生、平等拓範、吉田國雄、レーザー研究、**27**, 593 (1999).
- [5] J. Lu, M. Prabhu, J. Song, C. Li, J. Xu, K. Ueda, A. Kaminskii, H. Yagi, T. Yanagitani, Appl. Phys. B, **71**, 469 (2000).

- [6] J. Lu, M. Prabhu, J. Xu, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, A. Kaminskii, *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 3707 (2000).
- [7] J. Lu, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, Y. Akiyama, *J. Alloy and Compounds*, **341**, 220 (2002).
- [8] A. A. Kaminskii, H. JH. Eichler, K. Ueda, S. N. Bagaev, G. M. A. Gad, J. Lu, T. Murai, H. Yagi and T. Yanagitani, *JETP Letters*, **71**, 499 (2000).
- [9] A. Kaminskii, H. Eichler, K. Ueda, S. Bagayev, G. Gad, J. Lu, T. Murai, H. Yagi, T. Yanagitani, *Phys. Stat. Sol. (a)*, **181**, R19 (2000).
- [10] 上松知宏、村井朋代、高市和則、三澤啓一、櫛健仁、八木秀喜、柳谷高公、植田憲一、信学技報、IQE2001-20, 23 (2001).
- [11] A. Kaminskii, M. Akchurin, V. Alshits, K. Ueda, et. al., New results on investigation of physical properties of monocrystalline laser ceramic on the base of  $Y_3Al_5O_{12}$ , *Crystallography Reports*, vol. **48**, 562-566, 2003. English version vol. **48**, 511-519, 2003.