

Title	高強度レーザーのためのセラミックレーザー材料および非線形光学結晶に関する研究
Author(s)	藤岡, 加奈
Citation	大阪大学, 2011, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/476
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

【157】

氏名	藤 岡 加 奈		
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)		
学位記番号	第 24809 号		
学位授与年月日	平成23年3月25日		
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当		
学位論文名	高強度レーザーのためのセラミックレーザー材料および非線形光学結晶に関する研究		
論文審査委員	(主査)	准教授 藤田 尚徳	
	(副査)	教授 高井 重昌	教授 伊瀬 敏史
		教授 谷野 哲三	
		教授 舟木 剛	教授 白神 宏之
		准教授 吉村 政志	

論文内容の要旨

本論文は、高強度レーザーの開発において、高出力化、ビームの高品質化のためのレーザー媒質 Yb:YAG (Yb:Y₃Al₅O₁₂) セラミックの製作技術の開発と超短パルス高強度化のための広増幅帯域非線形光学結晶 pKD*P (部分重水素化 KDP : KH₂D₂(1-x)PO₄) 結晶の育成技術の開発のために行った研究をまとめたものである。

第1章では、高強度レーザー開発の現状とその関連技術であるセラミックレーザー材料および非線形

結晶の開発に関する現状と問題点について述べ、本研究の意義を明らかにした。

第2章では、YAGセラミックの透明化の原理を述べ、溶液法による材料粉体の製作条件、スラリー、焼結条件がセラミックの透光性に与える影響を明らかにし、得られた条件で理論透過率に達する透光性の高い Yb:YAG、Ce:YAG、無添加 YAG の焼結が可能であることを実証した。

第3章では、5-20 mol% の添加濃度の異なる Yb:YAG セラミックスを製作し、Yb イオンの偏析がないことや Yb イオンの価数制御に 1350℃、20 時間の熱アニールが有効であることを示した。また、Ar 高速原子ビーム照射によるドーピングの異なる Nd:YAG セラミックスの直接接合では、接合境界の Nd イオンの拡散距離が他の方法より短く 5 μm 以下であり、接合法として優れていることを示した。

第4章では、ゾルゲル法で製作したセラミック粉体が焼結後のバルクセラミックと同様の光学特性を示すことを実証し、粉体段階でのセラミックス評価が可能であることを示した。この手法を用いて太陽光励起レーザー媒質 Cr/Nd:YAG、Cr/Ce/Nd:YAG 等の新規 YAG セラミックス材料の特性評価の実例を示した。

第5章では、KDP 結晶育成溶液中の溶質クラスターを熱や音波で破壊するにより、120% におよぶ高過飽和度が達成できることを実証した。過飽和度 30%-40% で 52×52×31mm の KDP 結晶を平均成長速度 53 mm/day で育成した実例を示し、育成結晶の光学特性を評価した。育成母液の高純度化と育成後の熱アニールによって問題なく使用できる品質であることを示した。また、育成溶液の濃度、温度、導電率の関係をデータベース化し、コンピュータ制御によって過飽和度を 10% 一定に保持し、64×60×40mm の結晶を平均成長速度 17 mm/day で自動育成した実例を示した。

第6章では、任意の重水素化率を有する pKD*P を育成するため、育成溶液と育成結晶間の重水素の偏析、結晶内の重水素の偏析を広範囲の重水素化率で明らかにし、重水素化率の異なる pKD*P 結晶の溶解度を測定しデータベース化した。その結果、重水素化率 13.0% を目標として、重水素化率 13.3±0.7% の 90×92×111 mm の単結晶育成ができた例を示した。

第7章では、得られた結果をまとめ、本論文の総括を行った。高出力超短パルスレーザーに必要な光学材料として適切な材料特性を有し、大型化が可能なセラミック Yb:YAG レーザー材料の製作に必要な技術を確立した。また、超短パルス光パラメトリック増幅に必要な広帯域増幅特性を有し、大型化の可能な部分重水素化 KDP 結晶の高速自動育成技術を確立した。これらの成果は学術研究用レーザーばかりでなく、産業応用に可能なレーザーシステム開発に寄与できることを示した。

論文審査の結果の要旨

本論文は、申請者が行ったセラミックレーザー材料および非線形光学結晶の開発に関する研究成果をまとめたものである。大パルスエネルギーと高繰り返し動作を両立できる高強度レーザーは、次世代の半導体製造の基幹技術と目される EUV リソグラフィ、大型フラットパネルディスプレイのアニーリング、ほぼ無限のエネルギー源であるレーザー核融合等に用いられると期待されている。このような高強度レーザー用レーザー材料として、大型化が可能で適度な誘導放出断面積と高い熱耐力を有したレーザー材料が望まれている。従来より、Nd:YAG (ネオジウムをドープしたイットリウムアルミニウムガーネット、以下同様) や Yb:YAG 結晶は優秀なレーザー材料として多くの分野で使われて来た。しかし、結晶育成には高度な技術が必要で大型化は必ずしも容易ではない。本論文は、高強度レーザー実現のため大型化が容易なセラミックレーザー材料の開発に関して述べている。また、レーザー光の短パルス化に必須の光学材料である超広帯域非線形光学結晶の開発に関して述べている。

第1章は緒論であり、本研究の背景と研究目的を示し、研究の価値を位置づけている。各種レーザー材料を比較し冷却 Yb:YAG が、大パルスエネルギーと高繰り返し動作を両立できる材料として特に優れていることを示している。短パルス化によるさらなる高強度化においては、大型化が可能であり広い増幅帯域が得られる部分重水素化 KDP (2 水素リン酸カリウム) 結晶 (pKD*P と称す、以下同様) を用いた光パラメトリックチャープパルス増幅が有効であることを示している。

第2章では、透光性 YAG セラミックの特性・将来性について単結晶 YAG との比較を行い、その優位性を示してい

る。液相・スリップキャスト法における材料製作条件および焼結条件が、セラミック材の透光性に与える影響を詳細に調べている。結果として、材料製作条件および焼結条件を最適化することにより、グレイン境界の気孔をほぼ完全に消滅することができ、散乱・吸収のない理論透過率に達する透光性を得ている。

第3章では、希土類元素である Yb 添加 YAG セラミックについて、Yb イオンの偏析および価数制御に着目し調べている。液相・スリップキャスト法により 20 mol% の高濃度まで偏析なく Yb を添加しうること示している。焼結時に Yb³⁺イオンが生成されること、1350 °C、20 時間のアニールにより Yb³⁺イオンをレーザー動作に有用な Yb²⁺イオンへと透光性を損なうことなく戻せることを明らかにしている。Yb:YAG セラミックの励起スペクトルおよび蛍光スペクトルを測定し、Yb:YAG セラミックのレーザー性能が単結晶 Yb:YAG と同等であることを明らかにしている。

第4章では、ゾルゲル法で製作されたセラミック粉体の光学特性（励起スペクトル・蛍光スペクトル・蛍光寿命）について述べている。得られた光学特性は、焼結後のセラミックレーザー材料と同等であることを示し、新規レーザー材料の開発にセラミック粉体の光学特性測定が有効であることを提案している。例として、Cr/Nd:YAG および Ce/Cr/Nd:YAG に関してセラミック粉体を用いた光学特性評価による、レーザー特性の最適化を試みている。Cr の共添加により Nd の発光強度の著しい増加が観測され、この効果を理論的にも示すことに成功している。この成果は、広帯域励起光のフラッシュランプ励起レーザーや太陽光励起レーザーの出力増加・効率改善に多大な貢献をしている。

第5章では、非線形光学結晶（KDP・KD*P）の高速育成と自動化について述べている。高温度での過熱処理に加え超音波印加により 28 % にも及ぶ高過飽和度を安定に実現している。この高い過飽和度により、従来の方法に比べ 10 倍以上の結晶育成速度を得ている。超音波印加が、育成母液中のクラスター破壊に効果があることを明らかにしている。また、超音波印加による過熱処時間の短縮は、高温耐性の少ない溶媒に有用であることを示している。高速育成された結晶のレーザー損傷閾値は、構造的な不均一性により従来の閾値の約 1/4 程度である。しかし、448 K、53 時間の熱アニールにより、従来の閾値と同等まで改善されることを明らかにしている。核融合用レーザーに必要とされる 40 cm 級の KDP 結晶では従来技術では育成期間が 1 年にも及ぶが、本研究成果の高速育成と自動化による育成期間の短縮と省力化により、KDP 結晶の製造コストが大幅に低減するものと期待される。

第6章では、大エネルギー超短パルスレーザーで必要とされる部分重水素化 KDP (pKD*P) の結晶育成に関して述べている。pKD*P の利用においては重水素化率を制御することで、広帯域で位相整合がとれる。例えば、60 % 重水素化 pKD*P を用いた非同軸光パラメトリック増幅において、500 nm 程度の帯域幅が得られ、数 kJ、数 fs のエクサワット (10¹⁸ W) レーザーの実現が期待される。育成母液中の重水素化率と結晶中の重水素化率を詳細に調べ、重水素化率の両者間での相違について考察している。速度論的同位体効果と幾何学的同位体効果をモデル化し、実験結果との比較から幾何学的同位体効果が支配的であることを明らかにしている。さらに大きさ 10 cm、重水素化率 13 % の良好な結晶育成に成功しており、10 cm 級の任意の重水素化率の pKD*P の育成技術を確立している。

第7章は結論であり、得られた結果をまとめ、本論文の総括を行っている。

以上のように、透光性の極めて高い Yb:YAG セラミック製作手法を確立し、単結晶と同等の光学特性を得ている。これにより、高強度レーザー用レーザー媒質として有望な Yb:YAG の大型化の見通しを得ている。セラミック粉体を用いた光学特性評価によるレーザー特性の最適化は、太陽光励起レーザーにこの手法を応用し、高出力・高効率化に多大な寄与をした。この手法は、広く固体レーザー開発に応用できるものと考えられる。非線形光学結晶の高速育成と自動化については、KDP、KD*P のみならず数多くの水溶性結晶へ適用可能であり、広く産業界で応用できるものである。部分重水素化 KDP については、10 cm 級の任意の重水素化率の pKD*P の育成技術を確立しており、数 kJ、数 fs のエクサワット (10¹⁸ W) レーザーへの適用が期待される。これらの成果は、広く高強度レーザー開発の進展に寄与し、レーザー工学技術として汎用領域の技術確立に与える影響は多大なものであると史料される。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。