



# 13. CPA用レーザー結晶の高品質・大型化に向けての開発 Development of high quality large laser crystals for a CPA laser system

杉山 僚、福山裕康、桂山政道\*、安斎 裕\*、永井士郎

日本原子力研究所 関西研究所 光量子科学研究センター  
619-0215 京都府相楽郡木津町梅美台8-1

\*三井金属 総合研究所  
362-0021 埼玉県上尾市原市1333-2

**Akira SUGIYAMA, Hiroyasu FUKUYAMA, Masamichi  
KATSURAYAMA\*,  
Yutaka ANZAI\*, and Shiro NAGAI**

Advanced Photon Research Center, Kansai Research Establishment,  
Japan Atomic Energy Research Institute  
8-1 Umemidai Kizu-cho, Souraku-gun, Kyoto 619-0215, Japan

\*Corporate R&D Center, Mitsui Mining & Smelting Co., Ltd,  
1333-2 Haraichi, Ageo-shi, Saitama 362-002, Japan

Uniform doped concentration along growth direction of Nd<sup>3+</sup>:YAG crystal with 110mm length was successfully grown by the Czochralski furnace with a double crucible. The fluctuation of doped concentration was less than 4 %, nearly 1/4 of the Nd<sup>3+</sup>:YAG crystal grown by a conventional method. We also demonstrated direct bonding without the use of adhesive materials on Ti:sapphire laser crystals with a bonding surface dimension of 12mm x 6mm. The bonding surfaces were treated with chemical processes to clean up and to create a hydrophilic layer for hydrogen bonding in an atmospheric furnace. Successive heat treatment in a vacuum furnace transformed the hydrogen bonding into the direct bonding. From the observation by a transmission electron microscope (Hitachi: HF-2000), atomic level bonding was succeeded in the bonding surface. The performance of the bonded crystal was also tested by laser oscillation with a second harmonics of Q-switched Nd<sup>3+</sup>:YAG at a 20Hz repetition rate. In comparison with a normal laser crystal, there were no difference in output power or spatial profile in an input condition of 30mJ. The optical damaged threshold on the bonding surface was estimated over 660MW/cm<sup>2</sup>.

**Keywords: Laser Crystals, Nd<sup>3+</sup>:YAG, Ti:sapphire, Double Crucible,  
Crystal Growth, Czochralski Furnace, Direct Bonding, CPA Laser**

## 1. はじめに

極短パルス・ペタワット級超高ピーク出力レーザーには、長さが25cmのNd<sup>3+</sup>:YAGや直径が8cmのTi:sapphire光学結晶が必要不可欠である。これらのサイズは従来になく大型のものであり、また光学的にも優れた品質であることが要求されるが、このような結晶を現存技術で作ることは不可能である。高融点酸化物であるこれらの結晶は、粘性が高くかつ融液中でのドーブ濃度と結晶中でのドーブ濃度の比を示す偏析係数がNd<sup>3+</sup>:YAGでは0.17、またTisapphireでは0.1程度と小さいために光学活性イオンのNd<sup>3+</sup>やTl<sup>+</sup>が結晶中に取り込まれに

く、結晶成長につれてドーブ濃度の不均一性が現れる。実効の分配係数を $k_{eff}$ 、融液中の初期のドーブ濃度を $C_0$ とすると固化率 $g$ での結晶中のドーブ濃度 $C_g$ は、

$$C_g = C_0 k_{eff} (1-g)^{k_{eff}-1} \quad \dots (1)$$

で表される<sup>[1]</sup>。この式から、長さが25cmのNd<sup>3+</sup>:YAG結晶では両端のドーブ濃度が約2倍になるだけでなく、結晶内部に欠陥が生じ、この部分はレーザー結晶として使用出来ない。またTi:sapphire結晶では、大型化につれて結晶中央部の光学的品質が低下する。Ti:sapphireレーザーはTi<sup>3+</sup>によって起こるが、結晶中にはこのレーザー光を吸収してしまうTi<sup>4+</sup>も存在する。そこで、これを3価に還元するために、水素雰囲気中で融点近傍の熱処理を行なうが、結晶が大型の場合には、この還元作用を中央部に与えることは不可能である。更に、大型化によって寄生光の発振という新たな問題が生じる。寄生光はドーブ濃度の不均一性によって、更に増大し、レーザー光を増幅させることができなくなる。そこで、これらの問題を解消し、CPA用レーザー結晶の高品質・大型化を行うために、我々は2つの異なる方法を用いた開発を進めている。

第一の方法は、2重構造のつぼを用いたチョクラルスキー法によるNd<sup>3+</sup>:YAG結晶の育成研究であり<sup>[2]</sup>、もう一つの方法は従来法で育成したTi:sapphire結晶のインゴットから良質な部分を切り出し、接着剤を使わないで接合して大型化する直接接合法である<sup>[3],[4]</sup>。それぞれの方法におけるこれまでの研究から、2重のつぼ法では初めて長さ110mmのNd<sup>3+</sup>:YAG結晶を育成し、また直接接合法ではTi:sapphire結晶の接合に成功し、接合部の評価並びにレーザー光学素子としての可能性について明かにしたので併せて報告する。

## 2. 実験

### 2.1 2重のつぼ法<sup>[5]~[7]</sup>

図1に装置の概念図及び写真を示す。この方法では、結晶育成中に生じる単るつぼ内のドーブ濃度の増加をキャンセルするように、母結晶の割合を高めた原料を、2重のつぼ内外筒の隙間へ投入させる。投入された原料を内筒下部に設けた穴を通して、結晶成長部に拡散させることにより、育成初期のつぼ内の融液面高さが一定に保たれるので、ドーブ濃度が均一になるだけでなく、融液原料の熱の対流モードも一定に保存する事が可能である。従って、対流モード変化に依存した結晶成長縞（ストリーション）の乱れを抑制し、結晶内部での光散乱による損失も減少させることができる。

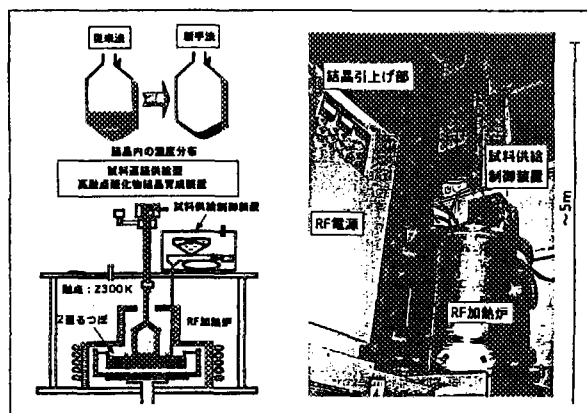


図1 高品質Nd<sup>3+</sup>:YAG結晶の2重のつぼ育成法

### 2.2 直接接合法

図2に示すこの方法は、4つのプロセスから構成される<sup>[8]</sup>。1の工程では、結晶表面の洗浄、エッチング及び接合表面へのOH基の付着を行う。このプロセスにおいて、エッチングの最

適化が重要なポイントであった。Ti:sapphire結晶の場合には、150℃のリン酸で30分の処理が最適値だった。この方法は化学薬品を使うので、接合する結晶の大きさや形状が異なる際にも容易に対応することが可能である。次の工程では、接合面に異物の混入を防ぐためにクラス10以下の清浄雰囲気下でコンタクトさせる。続く3の工程では、大気炉によって水素結合を接合面内に形成させ、最終段階の4において、真空炉内でこの水素結合から脱水縮合反応により水を取り除き酸素原子を架橋とした直接接合に変化させる。この4での加熱温度は、結晶の融点の半分程度です。3の段階で接合にずれなどの不具合が生じた際には接合強度が数kg/cm<sup>2</sup>程度なので容易にはがすことができ、再度1に戻ってやり直すことが可能である。

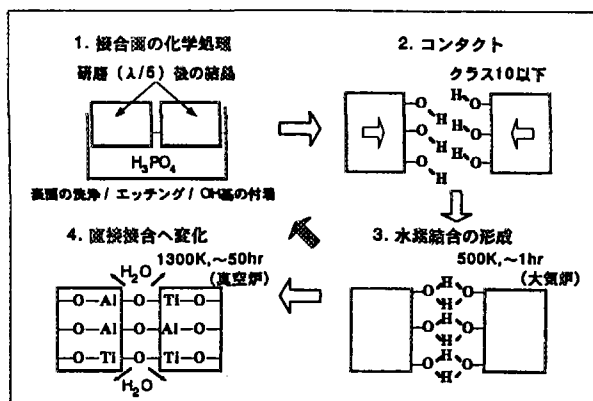


図2 Ti:sapphire結晶の直接接合法

### 3. 実験結果

#### 3.1 2重るつば法

図3に育成したNd<sup>3+</sup>:YAG結晶を示す。従来法の育成条件を2重るつばに適用して育成した結晶では、長さが5cm程度の結晶しか育成することができなかった。結晶の内部の直交偏光写真の観察から、成長角度が徐々に浅くなる傾向が判明した。これは、2重るつば内筒が熱の遮蔽板として作用した結果、内筒中央部の結晶成長部の温度勾配を緩めることが原因であると判断した。そこで、100℃/cmの温度勾配を得るためにるつば構造並びに炉構造を少しずつ変化させ、結晶回転速度15rpm, 育成速度0.5mm/hにて育成した結果、直径22mm、直胴部長さ110mmのNd<sup>3+</sup>:YAG結晶の育成に初めて成功した。更に長尺方向のドーブ濃度変化をプローブ光の吸収によって測定した結果、4%と従来法の15%の4分の1程度に小さくできることがわかり、2重るつば法によって、高品質のNd<sup>3+</sup>:YAG結晶を育成することが可能になった。

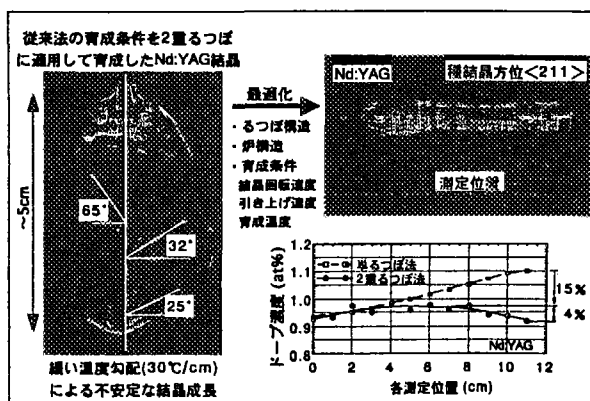


図3 2重るつば法で育成したNd<sup>3+</sup>:YAG結晶

#### 3.2 直接接合法

この方法において、水素結合が直接接合に変化するかが問題であった。これを調べるために、結晶を接合後、破壊試験を行った。図4は、サンプルABを接合した結晶を破壊した結果である。接合面の周辺部は、はがれており、水素結合のままであるが、中央部は相手の組織をはぎ取った形で破壊した。従って、接合部の引っ張り強度は結晶内部の強度と等しいことから、直接接合化したと推測された。更に、透過型電子顕微鏡を用いた観察から、白い点で

示される結晶内部の原子が接合部においても良好に繋がっており、原子レベルの接合を確認

した<sup>9)</sup>。また、この方法で接合した結晶の光学特性を調べてみた結果を図5に示す。接合した結晶に右側からプローブ光のHe-Neレーザー光を入射させた。未接合の場合には、出射面及び接合面からの反射による2つの明るいスポットが観察されるが、接合結晶では接合面からの反射光を観察できなかった。更に、この接合結晶と通常の結晶を用いたレーザー発振の比較試験を行った結果、同一の励起条件でそれぞれの結晶から得られたレーザー出力に差は見られなかった。またレーザービームの空間形状が均一であることから、光学的に問題となる歪みは、接合によって生じなかった。接合面の光破壊しきい値は、高出力用レーザー素子として十分使用出来る強度であり、直接接合法が新たなレーザー素子を創製するための一つの方法として活用できることを実証した。

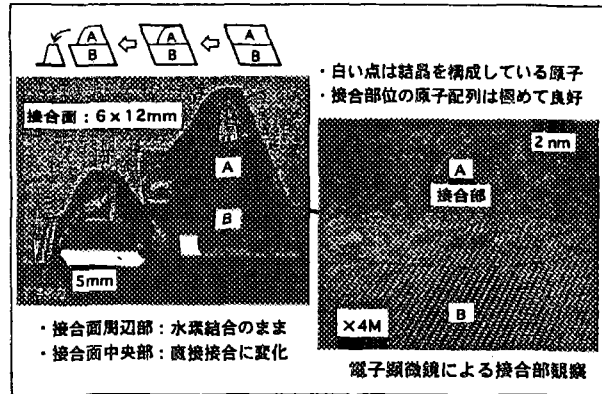


図4 接合結晶を破壊した結果

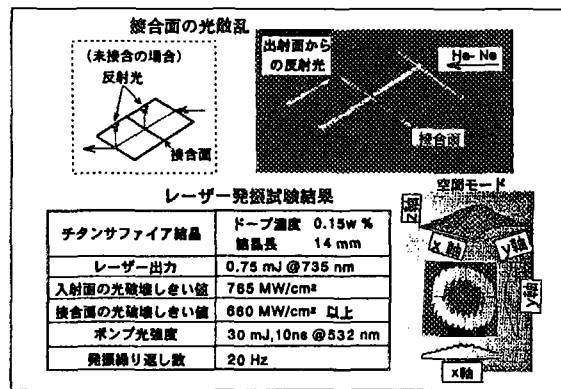


図5 接合したTi:sapphire結晶の光学特性

#### 4. 結論

2重るつぼ法により、直径22mm、直胴部長さ110mmのドーブ濃度が均一なNd<sup>3+</sup>:YAG結晶の育成に初めて成功した。また直接接合法によるTi:sapphire結晶の接合では、原子レベルの接合に成功し、高出力用レーザー素子として利用できることを実証した。今後は、ペタワット級CPAレーザー用結晶を目標に更に開発を進める。

#### 参考文献

- [1] 干川圭吾著、"バルク結晶成長技術"、培風館、p292 (1994)
- [2] 杉山、安斎、桂山、山崎、山岸、貴家、有澤、宅間、JAERI-Tech, 97-049 (1997)
- [3] A. Sugiyama, H. Fukuyama, T. Sasuga, T. Arisawa and H. Takuma, Appl. Opt. 37, 2407 (1998)
- [4] 杉山、"たゆまざる探究の軌跡"、日本原子力研究所、p27 (1999)
- [5] 桂山、土井、安斎、杉山、貴家、有澤、宅間、第45回応物学会講演会、30p-YN-7 (1998)
- [6] 桂山、安斎、杉山、貴家、有澤、宅間、第43回人工結晶討論会、1-A-1 (1998)
- [7] 桂山、安斎、杉山、永井、有澤、第44回人工結晶討論会、1-B-7 (1999)
- [8] 杉山、福山、貴家、有澤、特願平9-186662 (1997)
- [9] A. Nishimura, A. Ohzu, A. Sugiyama, et al., JAERI-Conf. 98-004, 136-138 (1998)