透光性YAGセラミックスの近赤外熱光学特性

梅津 佳祐¹, 古瀬 裕章¹, 安原 亮², 曾根 宏靖¹, 川村 みどり¹, 平賀 啓二郎¹¹北見工業大学(〒090-8507 北海道北見市公園町165)²核融合科学研究所(〒509-5292 岐阜県土岐市下石町322-6)

Thermo-optic Characteristics of Transparent Ceramic YAG in the Near Infrared Region

Keisuke UMETSU¹, Hiroaki FURUSE¹, Ryo YASUHARA², Hiroyasu SONE¹, Midori KAWAMURA¹,
and Keiji HIRAGA¹¹Kitami Institute of Technology, 165 Koen-cho, Kitami, Hokkaido 090-8507²National Institute for Fusion Science, 322-6 Oroshi-cho, Toki, Gifu 509-5292

(Received January 31, 2017)

Abstract: The thermo-optic coefficient dn/dT at a wavelength of 1064 nm was measured in a transparent ceramic yttrium aluminum garnet (YAG) between room temperature and 430 K. The values of dn/dT at 300 K and 400 K were 7.43×10^{-6} 1/K and 10.0×10^{-6} 1/K, respectively. In addition, the dn/dT at 632.8 nm and thermal expansion coefficient were also measured at the same temperature range.

Key Words: Laser material, Thermal effect, Optical property

1. はじめに

$Y_3Al_5O_{12}$ (YAG)は高い機械的、熱的、光学的性質を有しており、高出力レーザー材料の代表的な母材として幅広く用いられている。近年YAG単結晶と同等の光学品質を有し、かつ10 cm角以上の大口径化が可能な高品質透光性YAGセラミックスが開発され、これによる次世代高出力レーザーの開発が盛んに行われている¹⁻³⁾。

高出力MOPA (Master Oscillator Power Amplifier) レーザー開発における重要課題の一つは、媒質内で生じる熱収差や熱複屈折等の低減である。これらの熱問題は主に媒質内の温度勾配に起因するため、適した材料形状の選択と冷却機構の導入が重要であり、設計段階での詳細な熱解析が高出力レーザー開発では必須である。

熱解析において、熱伝導率 K 、熱膨張係数 α 、熱光学係数 dn/dT は特に重要な物性値である。透光性YAGセラミックスの場合、室温におけるこれらの値は報告されており、それぞれ $K = 10.1$ W/mK⁴⁾、 $\alpha = 7.00 \times 10^{-6}$ 1/K⁵⁾、 $dn/dT(632.8 \text{ nm}) = 8.41 \times 10^{-6}$ 1/K⁶⁾である。一方、強励起により著しい温度上昇が懸念される産業用高出力レーザーや、低温冷却型Yb:YAGレーザー等、多様な高出力YAGレーザーに対して詳細な熱解析を行うためには上述の熱物性値の温度依存性を考慮する必要がある。

YAGセラミックスにおける熱伝導率は5 Kから473 Kの広く温度範囲で測定されている^{4,8-10)}。また我々はHe-Neレーザー(632.8 nm)によるフィゾー干渉を利用し、YAGセラミックスの熱膨張率、熱光学係数を50-600 Kの温度

領域に対して調査した^{6,11)}。そして、これらの物性値は温度に対して増加し、温度特性が単結晶と同等であることを示した。

一方、YbやNdを活性元素とする高出力レーザーは波長1 μm 帯で動作するため、632.8 nmの熱光学係数を用いた場合、光線追跡においてずれが生じる可能性がある。波長1 μm 帯におけるYAGの熱光学係数は、単結晶において低温域では調査されているが¹²⁾、室温以上では報告が少ない。

したがって本研究では主に産業用高出力YAGレーザーの設計を念頭に、透光性YAGセラミックスの波長1064 nmにおける熱光学係数を室温から430 Kの温度領域で調査した。また熱膨張係数および熱光学係数(632.8 nm)の測定も行い、熱レンズ効果について検討した。

2. 実験方法

本研究ではフィゾー干渉を用いて熱膨張係数、熱光学係数の測定を行った。測定に用いた透光性YAGセラミックス(神島化学工業)の写真をFig. 1に示す。試料(A)は接合により一体化したコンポジットYAGセラミックスであり、両端面が光学研磨された3つのYAGセラミックスから構成されている。試料(B)は厚み約3 mmのYAGセラミックである。熱膨張係数および熱光学係数(632.8 nm)の測定には試料(A)を、また熱光学係数(1064 nm)の測定には試料(B)をそれぞれ用いた。

Fig. 1 Photograph of the undoped ceramic YAG. Sample (A) is the diffusion bonded ceramic YAG for measuring the thermal expansion coefficient. Sample (B) is for the measurement of the thermo-optic coefficient.

試料(A)の場合、レーザー光を拡大平行光とした後に照射することによってYAG中心部の両端面および接合部内面からの反射光がそれぞれ干渉する。試料を真空中に置いた場合、各干渉を形成する反射面間の光路長はそれぞれ nL_1 , L_2 と表すことができる。ここで $L_1 = 15.6$ mm, $L_2 = 22.4$ mmであり、 $n = 1.8293$ は波長632.8 nmにおけるYAGセラミックスの屈折率である。

試料に温度変調 ΔT を与えた場合、熱光学効果によって各干渉縞に光路長変化 $\Delta(2nL_1)$, $\Delta(2L_2)$ が生じ、温度に対する変化率 γ_1 , γ_2 は以下となる。

$$\gamma_1 = \frac{1}{nL_1} \frac{d(nL_1)}{dT} = \alpha + \frac{1}{n} \frac{dn}{dT} \quad (1)$$

$$\gamma_2 = \frac{1}{L_2} \frac{dL_2}{dT} = \alpha \quad (2)$$

真空部を伝搬する(2)式の場合は、屈折率の温度変化による影響を受けず、熱膨張係数 α が求まる。このように、試料(A)のような一体型試料を用いることで熱膨張係数および熱光学係数を同時に計測することが可能となる。

2.1 1 μ m帯の熱光学係数の測定

Fig. 2に近赤外熱光学係数の実験系を示す。1 μ m帯の熱光学係数を調べるために、波長1064 nmのDFB (Distributed Feedback) レーザーをプローブ光に使用した。コヒーレンス長の問題から、測定には試料(B) ($L_3 = 3.07$ mm)を用いた。真空チャンバー内の銅ホルダに試料を設置し、熱電対を試料に接着した。接着には銀ペーストを使用した。プローブ光を拡大・平行化した後に試料へ照射し、両端面の反射光を光検出器に導入し、データロガーを用いて干渉光強度と試料温度を測定した。光路長差 $\Delta(2nL_1)$ はヒーターを用いて試料に温度変調 ΔT を与えて測定した。本測定では昇温速度を4.5 K/minに設

Fig. 2 Experimental setup of the interferometer for Sample (B).

定した。測定温度範囲は293–433 Kであり、 $\Delta T = 10$ K間隔での変化率を見積もった。

2.2節で述べるように、熱光学係数(1064 nm)の算出には試料(A)で測定した熱膨張係数を用いた。なお、波長1064 nmにおける屈折率の値は $n = 1.816348^\dagger$ を使用した。

Fig. 3は温度範囲300–400 Kにおける干渉信号強度変化の測定例である。Fig. 3(b)に示すように、測定データを $\Delta T = 10$ K毎に区切り、それぞれ正弦曲線でフィッティングして $\Delta(2nL_1)/\Delta T$ を求めた。同様の測定を複数回繰り返し、各温度での平均値を算出した。また比較のため、He-Neレーザーを用いて試料(A), (B)両方に対して熱光学係数(632.8 nm)を調査した。

Fig. 3 Shift in the interference intensity (a) measured between 300 and 400 K and (b) an extract between 383 and 393 K.

[†] URL: <http://www.konoshima.co.jp/>

2.2 熱膨張係数の測定

300–600 Kにおける透光性YAGセラミックスの熱膨張係数についてはFuruseら¹¹⁾が報告している。同報告では、温度測定点が無酸素銅の試料ホルダであり、また室温付近での昇温速度が10 K/minと比較的速い。そのため試料ホルダとYAGとの間に温度差が生じている可能性がある。本研究では試料ホルダではなくYAGセラミックス試料の温度を熱電対で直接測定し、熱膨張係数の結果の違いを確認した。

本研究では試料(A)を用いて熱膨張係数の測定を行った。測定には2.1節の測定と同じ実験系を用いた。熱電対を試料および銅ホルダに設置し、上記文献11)の結果との比較を行った。昇温速度は4.8 K/minに設定した。プローブ光にはHe-Neレーザーを用いた。

3. 実験結果と考察

3.1 熱膨張係数の解析結果

Fig. 4の●および○はそれぞれ熱電対をYAG試料および銅ホルダに取り付けて計測した温度から熱膨張係数を解析した結果を示す。また実線は熱膨張係数のフィッティング曲線を示している。

Fig. 4より、YAG試料の測定温度から解析を行った結果は、銅ホルダの測定温度から解析した結果よりも約2.5%大きい値を示した。この理由は測定時にYAG試料と銅ホルダの間に温度差が生じており、銅ホルダの方が昇温速度が早いために熱膨張係数が小さく見積もられたためである。したがって、試料温度から得られた熱膨張係数(●)がより正確な値と考えられる。また銅ホルダから解析した熱膨張係数の結果は、昇温速度10 K/minで測定された文献11)の結果とほぼ同じ値を示した。

本研究で得られた熱膨張係数は室温において 6.4×10^{-6}

$\pm 2.17 \times 10^{-8}$ 1/Kであった。測定誤差は繰り返し測定した結果の標準偏差を表している。各温度における熱膨張係数の結果を文献11)と同様に以下の式でフィッティングした。

$$\alpha(T) = A \exp\left(-\frac{B}{T}\right) \quad (3)$$

式中の値は $A = 1.13 \times 10^{-5}$ 1/K, $B = 163.9$ Kである。

3.2 熱光学係数の解析結果

Fig. 5にYAGセラミックスの熱光学係数の測定結果を示す。□は試料(B)を波長1064 nmのレーザーを用いて測定した結果を示している。●, ○はそれぞれ試料(A), (B)をHe-Neレーザーを用いて測定した結果を示している。熱光学係数の算出には式(3)で示した熱膨張係数のフィッティング値を使用した。また参考のために、YAG単結晶における熱光学係数(1064 nm)の文献値¹²⁾を記した。

Fig. 5に示すように熱光学係数は温度とともに増加した。また波長1064 nmと632.8 nmでは1064 nmの方が小さい値を示した。300 Kにおける熱光学係数(1064 nm)は $7.43 \times 10^{-6} \pm 3.47 \times 10^{-7}$ 1/Kであった。Aggarawalら¹²⁾によって報告されたYAG単結晶における同波長の値は、 $7.8 \times 10^{-6} \pm 4.0 \times 10^{-7}$ 1/Kであり、我々の測定結果と誤差の範囲内で一致した。

Fig. 5中の実線は波長1064 nmの熱光学係数のフィッティング曲線であり、以下の式から算出した。

$$\frac{dn}{dT}(T) = N_0 + N_1 T + N_2 T^2 + N_3 T^3 \quad (4)$$

ここで、 $N_0 = -9.87 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, $N_1 = 7.77 \times 10^{-8} \text{ K}^{-2}$, $N_2 = -5.75 \times 10^{-11} \text{ K}^{-3}$, $N_3 = -3.05 \times 10^{-14} \text{ K}^{-4}$ である。

Fig. 4 Temperature dependence of the thermal expansion coefficient of YAG ceramics. The closed and open circles are the thermal expansion coefficient analyzed by using the sample and holder temperatures, respectively. The solid line shows a fitting curve from Eq. (3).

Fig. 5 Temperature dependence of the thermo-optic coefficient of YAG ceramics. The square shows the results for $\lambda = 1064$ nm, and the solid line shows a fitting curve. The open and solid circles represent the results at $\lambda = 632.8$ nm for sample (A) and (B), respectively.

一方、試料(A), (B)を用いて測定した熱光学係数(632.8 nm)の温度特性はほぼ同等であった。このことより、光路長の異なる試料でも再現性が確かめられた。

Table 1 に透光性YAGセラミックスの熱膨張係数、熱光学係数の値をまとめた。各波長の300 Kの熱光学係数に注目すると波長1064 nmでは632.8 nmより0.87倍小さくなっている。さらに632.8, 1064 nmにおける熱光学係数をそれぞれ300 Kと400 Kで比較すると、632.8 nm光では1.26倍に増加するのに対して、1064 nm光では1.35倍に増加した。したがって熱光学係数は今回の測定温度領域では1064 nmの方が小さくなることが分かったが、一方で温度に対する変化率が大きいために、熱収差等の問題がより顕著に表れると考えられる。これは高出力レーザー設計に重要な知見といえる。

3.3 熱レンズ効果の見積もり

今回測定した熱光学係数の温度特性を用いて、厚み2 cmの透光性YAGセラミックスにビーム径 $\phi 5$ cmの高出力レーザーを導入した際にどの程度の熱レンズ効果が生じるかを見積もった。YAGセラミックスの温度が300 K, 400 Kの場合についてそれぞれ計算を行い、結果を比較した。

熱レンズ焦点距離 f の計算には、以下の式を用いた¹³⁾。

$$\frac{1}{f} = \frac{La_0P_m}{2\pi r_h^2 K} (P - 1/5(1-\xi)Q) \quad (5)$$

ここで L は媒質長、 a_0 は吸収係数、 P_m はレーザーパワー、 r_h はビーム半径、 K は熱伝導率、 ξ は異方性パラメータである。(5)式では発熱に寄与するレーザー光の空間強度分布が正規分布であり、媒質の吸収係数が十分に小さく、厚さ方向の発熱分布が一様であると仮定されている。また P 、 Q は以下の式で与えられる熱光学パラメータである¹⁴⁾。

$$Q = \alpha \frac{n^3}{4} \frac{1+\nu}{1-\nu} (P_{11} - P_{12}) \quad (6)$$

$$P = \frac{dn}{dT} - \alpha \frac{n^3}{4} \frac{1+\nu}{1-\nu} (P_{11} + P_{12}) \quad (7)$$

ここで ν はポアソン比、 P_{ij} は光弾性テンソルである。計算では以下の値を使用した： $L = 2.0$ cm, $a_0 = 3.0 \times$

10^{-3} cm^{-1} , $r_h = 2.5$ cm, $K(300 \text{ K}) = 12.6 \text{ W/mK}$, $K(400 \text{ K}) = 10.6 \text{ W/mK}$ ⁶⁾, $\xi = 3.2$ ¹⁵⁾, $n = 1.816348$, $\nu = 0.23$ ⁹⁾, $p_{11} = -0.029$, $p_{12} = 0.0091$ ¹⁶⁾。 α と dn/dT にはTable 1 の値を用い、入力パワー P_{in} を1-10 kWに変化させた場合の熱レンズ焦点距離を計算した。

Fig. 6 に熱レンズ焦点距離と入力パワーの関係を示す。図中の実線と破線はそれぞれ温度300 Kと400 Kの結果を示している。どちらの結果も入力パワーが大きくなるにしたがって焦点距離は短くなり、熱レンズ効果が強くなることが分かる。また400 Kの結果の方が熱レンズ焦点距離が短く、入力パワー1 kWでは約1.6倍の差が生じた。

今回の熱レンズ効果の見積もりでは無添加YAGセラミックスを想定しているために吸収係数が小さく、入力パワー10 kW導入した場合においても熱レンズ焦点距離は100 m程度である。一方、YbやNd等の活性元素を添加した典型的なレーザー材料では吸収係数が約3桁程度増加するため、発熱量に応じて強い熱レンズ効果が生じると考えられる。今後、YbやNd等の活性元素添加YAGセラミックスにおける詳細な熱解析を行うためには、熱伝導率、熱膨張係数および熱光学係数の添加濃度依存性についても明らかにする必要がある。

Fig. 6 Calculations of the thermal lens focal length as a function of input laser power. The solid and dashed lines show the results for 300 K and 400 K, respectively.

Table 1 Fitted values of α and dn/dT of transparent YAG ceramics.

T (K)	$dn/dT (\times 10^{-6}) (1/K)$	$dn/dT (\times 10^{-6}) (1/K)$ $\lambda = 632.8 \text{ nm}$	$dn/dT (\times 10^{-6}) (1/K)$ $\lambda = 1064 \text{ nm}$
300	6.56	8.52	7.43
320	6.78	9.21	8.10
340	6.99	9.74	8.69
360	7.18	10.1	9.21
380	7.35	10.5	9.66
400	7.51	10.7	10.0

4. まとめ

我々は高出力レーザー設計に役立てるため、透光性YAGセラミックスの熱光学係数の測定を行った。波長1064 nmに対する熱光学係数を室温-430 Kの温度範囲で求め、その温度特性を初めて明らかにした。可視域と比較し、近赤外域の方が熱光学係数が小さくなったが、温度に対する増加率は大きくなることを明らかにした。

今後はYbやNd等の活性元素の添加濃度依存性や1550 nm等の光源を用いて研究を行い、温度・波長依存性をより詳細に明らかにすることが必要である。

5. 謝 辞

本研究の一部は自然科学研究機構核融合科学研究所の一般共同研究(NIFS15KBAH010)のもとに実施された。

6. 参考文献

- 1) S. Banerjee, P. D. Mason, K. Ertel, P. J. Phillips, M. D. Vido, O. Chekhlov, M. Divoky, J. Pilar, J. Smith, T. Butcher, A. Lintern, S. Tomlinson, W. Shaikh, C. Hooker, A. Lucianetti, C. H. Gomez, T. Mocek, C. Edwards, and J. L. Collier: Opt. Lett. **41** (2016) 2089.
- 2) G. Novo, D. Albach, B. Vincent, M. Arzakantsyan, and J. C. Chanteloup: Opt. Express **21** (2013) 855.
- 3) M. Divoky, S. Tokita, S. Hwang, T. Kawashima, H. Kan, A. Lucianetti, T. Mocek, and J. Kawanaka: Opt. Lett. **40** (2015) 855.
- 4) Y. Sato and T. Taira: Opt. Express **14** (2006) 10528.
- 5) R. Wynne, J. L. Daneu, and T. Y. Fan: Appl. Opt. **38** (1999) 3282.
- 6) R. Yasuhara, H. Furuse, A. Iwamoto, J. Kawanaka, and T. Yanagitani: Opt. Express **20** (2012) 29531.
- 7) T. Y. Fan, D. J. Ripin, R. L. Aggarwal, J. R. Ochoa, B. Chann, M. Tillemann, and J. Spitzberg: IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **13** (2007) 448.
- 8) D. C. Brown: IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **11** (2005) 587.
- 9) H. Yagi, T. Yanagitani, T. Numazawa, and K. Ueda: Ceram. Int. **33** (2007) 711.
- 10) Y. Sato, J. Akiyama, and T. Taira: Opt. Mater. **31** (2009) 720.
- 11) H. Furuse, R. Yasuhara, and K. Hiraga: Opt. Mater. Express **4** (2014) 1794.
- 12) R. L. Aggarwal, D. J. Ripin, J. R. Ochoa, and T. Y. Fan: J. Appl. Phys. **98** (2005) 103514.
- 13) I. L. Snetkov, D. E. Silin, O. V. Palashov, E. A. Khazanov, H. Yagi, T. Yanagitani, H. Yoneda, A. Shirakawa, K. Ueda, and A. A. Kaminskii: Opt. Express **21** (2013) 21254.
- 14) E. A. Khazanov, O. V. Kulagin, S. Yoshida, D. B. Tanner, and D. H. Reitze: IEEE J. Quantum Electron. **35** (1999) 1116.
- 15) H. Furuse, R. Yasuhara, and K. Hiraga: Opt. Mater. Express. **5** (2015) 1266.
- 16) W. Koechner: *Solid-State Laser Engineering* ed. W. T. Rhodes (Springer, 2006) p. 441.