

令和 6 年度 防衛装備庁
安全保障技術研究推進制度

研究成果報告書

ジャイアント・マイクロフォトニクスに よる高出力極限固体レーザ

令和 7 年 5 月

国立研究開発法人理化学研究所

本報告書は、防衛装備庁の安全保障技術研究推進制度による委託業務として、国立研究開発法人理化学研究所が令和2年度から令和6年度にかけて実施した「ジャイアント・マイクロフォトンクスによる高出力極限固体レーザ」の成果を取りまとめたものです。

1. 委託業務の目的

本研究では、固体レーザーの極限波長にあたる THz（テラヘルツ）波領域において、自由電子レーザーを超える高出力・高輝度の THz 波固体レーザーを目指す。5 年間の業務において、新しい透明セラミックス材料、その表面処理、接合に関する研究や製造プロセス開発を実施し、最終的にはパワースケラブルで実用的な極限高出力密度レーザーを開発するとともに、長波長極限への波長変換を行うことで、世界最高の高出力・高輝度 THz 波固体レーザーの創製を目指す。併せて、高出力高密度の小型パワーレーザーの新たな応用のための環境を整備することで先端高出力レーザーの社会実装を目指す。

本研究の具体的な目標は以下の通りである。

(1) パワースケラブル高出力密度レーザー

新構造によるサブナノ秒 5J 級超小型構成

(基本波レーザー利得媒質のパワー密度： $>0.25\text{GW}/\text{cm}^3$)

- 基本波 パルスエネルギー：5J 以上
- 基本波 パルス幅：約 500ps
- 基本波 ピーク出力：10GW 以上
- 基本波 レーザ媒質パワー密度：250MW/cm³ 以上
- 基本波 波長：1064nm
- 基本波 動作温度：室温

(2) 高出力・高輝度 THz 波固体レーザー

ブレッドボードサイズで出力 10mJ 以上(輝度温度： $>10^{20}\text{K}$)

- THz 波 パルスエネルギー：10mJ 以上
- THz 波 パルス幅：約 200ps
- THz 波 ピーク出力：50MW 以上
- THz 波 輝度： 10^{20}K 以上(狭スペクトル線幅)
- THz 波 波長：1.5mm

(電子加速の実証用として波長は概ね 0.75～3mm が有用と考えられ、代表的に 1.5mm での高出力化をめざす。)

- THz 波 動作温度：室温

(3) 先端高出力レーザーの社会実装

高出力密度の小型パワーレーザーの一部をフィールド試験できる環境を整備

- パルス幅ナノ秒以下、波長 266nm で 200mJ 以上の量子ビームプロセス実機の仮作検証
- プラットホーム整備を目標とした 1mJ パルス出力小型高輝度 THz 波レーザーの仮作検証
- レーザ耐性を評価するサブナノ秒 1064nm による LIDT (Laser Induced Damage Threshold：レーザー誘起損傷閾値)評価装置の仮作検証
- THz-DLA (Dielectric Laser Acceleration：誘電体を介したレーザー加速) 検証のためのブレッドボードサイズの 1GV/m 電子加速装置の仮作検証

2. 研究開始時に設定した研究目標の達成度

(1) パワースケラブル高出力密度レーザ

新構造によるサブナノ秒 5J 級超小型構成

(基本波レーザ利得媒質のパワー密度： $>0.25\text{GW}/\text{cm}^3$)

- 基本波 パルスエネルギー：5J 以上
- 基本波 パルス幅：約 500ps
- 基本波 ピーク出力：10GW 以上
- 基本波 レーザ媒質パワー密度： $250\text{MW}/\text{cm}^3$ 以上
- 基本波 波長：1064nm
- 基本波 動作温度：室温

達成度：達成（室温動作レーザ媒質パワー密度**世界記録**）

（パルスエネルギー 5.2J、パルス幅 619ps、ピーク出力 8.4GW、繰り返し 100Hz（バーストモード）、レーザ媒質パワー密度 $0.81\text{GW}/\text{cm}^3$ 、室温動作）

(2) 高出力・高輝度 THz 波固体レーザ

ブレッドボードサイズで出力 10mJ 以上(輝度温度： $>10^{20}\text{K}$)

- THz 波 パルスエネルギー：10mJ 以上
- THz 波 パルス幅：約 200ps
- THz 波 ピーク出力：50MW 以上
- THz 波 輝度： 10^{20}K 以上(狭スペクトル線幅)
- THz 波 波長：1.5mm

（電子加速の実証用として波長は概ね 0.75～3mm が有用と考えられ、代表的に 1.5mm での高出力化をめざす。）

- THz 波 動作温度：室温

達成度：本質的に達成（THz 波出力 10μJ、200ps だと 50kW を超え大出力とされる）

（THz 波出力約 1mJ（約 5MW）を多段化により 10mJ（50MW）スケーリング展望）

(3) 先端高出力レーザの社会実装

高出力密度の小型パワーレーザの一部をフィールド試験できる環境を整備

- パルス幅ナノ秒以下、波長 266nm で 200mJ 以上の量子ビームプロセス実機の仮作検証
- プラットホーム整備を目標とした 1mJ パルス出力小型高輝度 THz 波レーザの仮作検証
- レーザ耐性を評価するサブナノ秒 1064nm による LIDT (Laser Induced Damage Threshold：レーザ誘起損傷閾値)評価装置の仮作検証
- THz-DLA (Dielectric Laser Acceleration：誘電体を介したレーザ加速) 検証のためのブレッドボードサイズの 1GV/m 電子加速装置の仮作検証

達成度：おおむね達成（**世界最高性能→プラットホーム展開**）

（サブナノ秒 266nm, 235mJ：**世界最高クラス DUV 出力**（プレスリリース）、PLD 等展開）

（THz 波プラットホーム整備：世界最高精度の THz-cTDS システム構築）

（LIDT プラットホーム整備：世界初の計測法を確立し接合強靱化にフィードバック）

（THz-DLA 仮作検証：THz 波 RF ディフレクタに向けた装置を構築中）

3. 委託業務における研究の方法及び成果

3. 1 最終目標を実現するために克服又は解明すべき要素課題

(1) パワースケラブル高出力密度レーザの開発

- ・新しいレーザセラミックス材料の探索
パワースケラブル高出力密度レーザのために新しいセラミックス材料探索が必要である。
- ・表面処理・低温接合の確立
低歪みで強固な接合のための表面処理を含めた低温接合法及び装置の開発が必要である。
※本プロジェクトの計画時には「低温接合」という表現を使用していたが、室温以下の極低温下での接合技術が存在していることから、これと区別する必要がある。このため本報告のこれ以降では室温で動作する接合技術を取り扱うことから「常温接合」という表現で統一する。

・製造プロセスの確立

新たなレーザ材料開発のための量子ビームによる製造プロセス開発が必要である。

(2) 高出力・高輝度 THz 固体レーザの創製

- ・極性制御プロセスの確立
テラヘルツ波発生 QPM (Quasi-Phase Matching: 疑似位相整合) チップのための極性制御プロセスの開発が必要である。
- ・長波長極限の波長変換の確立
THz 波発生のための量子限界を超える高効率波長変換手法開発が必要である。

(3) 先端高出力レーザの社会実装

- ・パルス幅ナノ秒以下 266nm で 200mJ 以上の量子ビームプロセス実機の仮作検証
調整機構を極力排除したプロセス実機のための小型安定 UV レーザが必要である。
- ・プラットホーム整備を目標とした 1mJ パルス出力小型高輝度 THz 波レーザの仮作検証
オープンラボにおけるユーザ利用のために小型安定な THz 波レーザが必要である。
- ・レーザ耐性を評価するサブナノ秒 1064nm による LIDT 評価装置の仮作検証
サンプルにおける多点の損傷特性を自動計測できる LIDT 評価装置が必要である。
- ・THz-DLA 検証のためのブレードボードサイズの 1GV/m 電子加速検証装置の仮作検証
径 1mm、長さ 100mm 程度の誘電体管による 100MeV 程度の電子加速の実証が必要である。

3. 2 要素課題に対する実施項目及び体制

- ・これらの要素課題に取り組むために、理化学研究所では、①接合界面観察の高度化、②接合界面強靱化を検討、③次世代レーザセラミックスに適した表面処理法の開発、⑤YAG 材料の外場（熱勾配）による配向制御及び超高压など焼結プロセスの高度化を検討、⑥局所加熱・応力印加による極性制御法の開発、⑦新たな LIDT 測定手法とレーザ描画手法の開発、⑧DFC-PowerChip (Distributed Faced Cooling- PowerChip: 分布面冷却パワーチップ) を利用した UV レーザによる表面処理・素子育成系構築、⑩接合界面耐性評価、⑫排熱特性評価、⑬高品位の非線形材料開発、⑭QPM 特性の評価、⑮THz 波への極限波長変換素子の開発、⑯波長 1.5mm の極限波長に出力 10mJ までの変換、⑰LIDT 計測及びレーザ描画のためのレーザ書き込み装置の開発、⑱プロジェクトの総合的推進を実施した。
- ・物質・材料研究機構は、④異方性材料の磁場による配向制御及び超高压など焼結プロセスの高度化の検討を実施した。
- ・三菱電機は、⑪DFC-PowerChip による基本波出力 2J を基本にした FHG (Fourth Harmonics Generation: 第四高調波発生) 装置の開発を実施した。
- ・神島化学工業は、⑩常温接合や表面処理に適した高品位レーザ材料の開発を実施した。
- ・日本ファインセラミックス協会は、⑨次世代レーザセラミックス原料の評価を実施した。
- ・大学共同利用機関法人自然科学研究機構分子科学研究所は、⑨新規接合装置の開発を実施した。

・プロセス創製：

① 接合界面観察の高度化(担当：理化学研究所)

[研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果]

表面・界面観測を可能にする高次非線形ラマン分光計測法の開発・高度化のために、従来型のコヒーレントラマン分光の計測スキームである 2-パルス法から脱却し、3 パルス時間遅延型コヒーレントラマン計測スキームを新たに開発した。本スキームでは、周波数領域と時間領域の計測原理を融合させており、コヒーレントラマン分光法による表面・界面分光をこれまで実施困難にしてきた最大要因である、表面・界面以外からのバックグラウンド信号を 4 桁以上も低減することに成功した。開発した本計測方法論を実証するモデル系として、サブナノメートル厚さの自己組織化分子膜に対して本手法を適用することで、バックグラウンド信号の大幅低減により界面由来の信号の検出が可能となったこと、さらに、適切に強度調整したバルク由来の非共鳴バックグラウンド信号を局所オシレータとして用いたヘテロダイン干渉計測により、表面由来の振動信号の増感に成功し、その位相情報を活用することで $\text{Im}\chi^{(3)}$ スペクトルの高感度抽出解析が可能となった。本計測イノベーションにより、従来のラマン分光の計測方法論では不可能であった、厚さ約 0.5 nm の極薄表面層からの世界初となる三次非線形ラマンスペクトルの取得を達成し(図 3.1.1、図 3.1.2)、さらには、 SiO_2 基板表面に形成された同様の極薄分子層由来のスペクトル観測にも成功した。

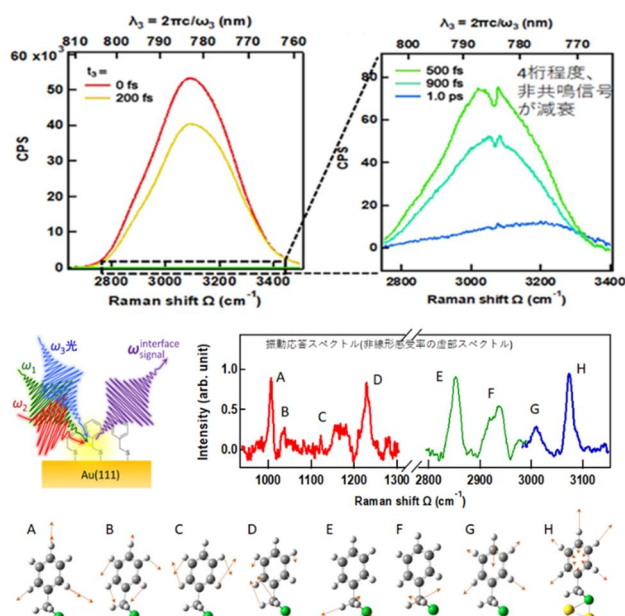


図 3.1.1 3-パルス法を用いた時間遅延非線形ラマン計測スキームによるサブナノメートル厚さのモデル界面分子系(ベンゼンメタンチオール自己組織化単分子膜)の計測例。時間遅延をほとんどかけていない場合のバックグラウンドスペクトル及び適切な遅延時間により強度低下させたバックグラウンド信号と界面分子系の振動応答信号のヘテロダイン干渉パターン。 $\text{Im}\chi^{(3)}$ スペクトル、及び各ピークの振動モードの帰属。

物質中に埋没した界面を観測する際には、物質中を光が透過する際に発生するバルク由来のバックグラウンド信号が更に顕著になる。そのため、表面極薄層観測の場合よりも更に 2 桁程度のバックグラウンド信号の低減を行うことが望ましい。そこで本研究では、バックグラウンド信号を更に低減するために、光学材料の屈折率に応じて光パルスの入射角 θ (面外方位角) を系統的に変化させた測定を実施した(図 3.2.2)。クォーツのブリュースター角(約 58°) 近傍では、バルク由来の非共鳴バックグラウンド信号が最小となり、ナノスケール界面からの振動共鳴ピークを高コントラストで検出できることが判明した。一方、ブリュースター角から大きく外れた角度では非共鳴信号が一桁以上増加し、界面由来信号が埋没する傾向が確認された。

また、面内方位角 ϕ に対する入射角依存性も系統的に評価した結果、非共鳴信号・界面共鳴信号の双方が ϕ の変化に対して敏感に応答し、最適な ϕ 設定により S/N 比を大幅に向上できることが明らかとなった(図 3.1.3)。これらの結果は、これまで十分に考慮されてこなかった入射角の制御が、三次非線形光学効果に基づく界面分光計測において本質的な意味を持つことを示している。

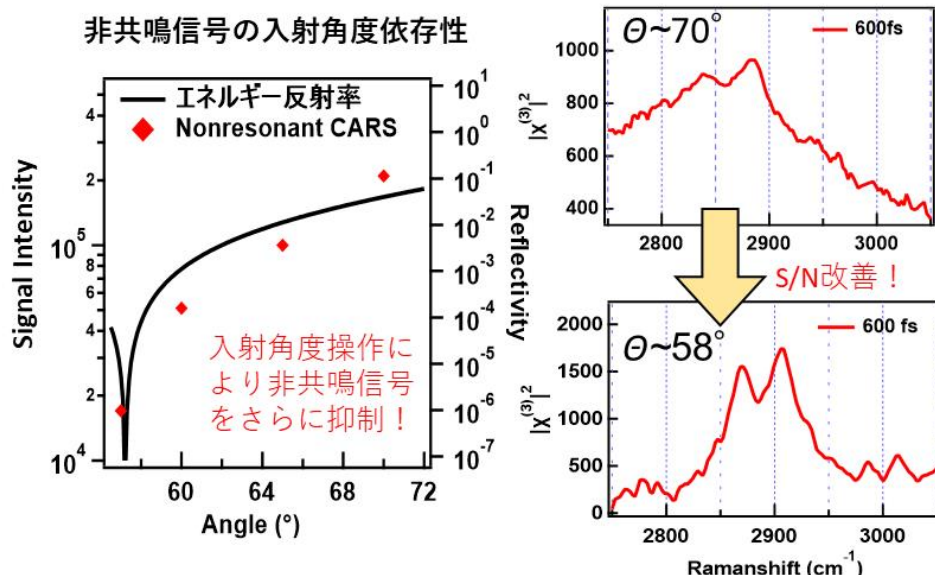


図 3.1.2 3-パルス法を用いた時間遅延非線形ラマン計測スキームによる、クォーツの裏面に形成させたモデル埋没界面分子系(ベンゼンメタンチオール自己組織化単分子膜)の計測成功例。ブリュースター角近傍において、非共鳴信号が更に低減されて界面由来の信号の更なる高感度計測が可能になった。

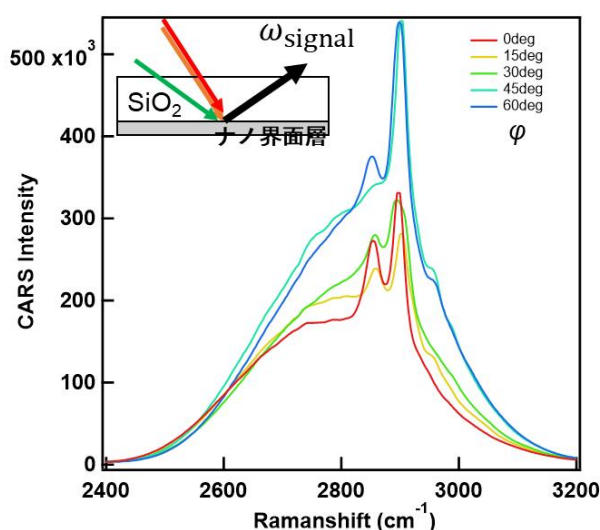


図 3.1.3 3-パルス法を用いた時間遅延非線形ラマン計測スキームによる、クォーツの裏面に形成させたモデル埋没界面分子系(ベンゼンメタンチオール自己組織化単分子膜)の計測成功例。ブリュースター角近傍の $\theta \sim 60^\circ$ において、面外方位角 ϕ を変化させた結果。

本プロジェクトで主要な研究対象となる量子ビーム照射による表面活性化接合法においては、アモルファス層の存在およびその結晶化挙動が高強度・高耐久接合の鍵を握る。そのため、異なる表面活性化処理プロセスにおいて生成される表面アモルファス層の微視的な構造差異を捉え、さらに結晶化過程(相転移)を追跡することが本質的に重要である。しかし、アモルファス物質は長距離秩序を有さないため、従来の計測方法論ではアモルファス物質の不均一なネットワーク構造を詳細に計測・解析することが困難であった。したがって、界面観測法の高度化のみならず、アモルファス物質の不均一構造を解析可能とする方法論の開発も我々の前に立ちはだかっていた。

そこで本研究では、アモルファス物質の不均一ネットワークに潜む中距離構造に着目し、ダイナミクスの違いによりその特徴量を抽出する三次非線形ラマン分光法の新たな可能性を追従した。具体的には、開発に成功した上記の3パルス遅延スキームを用い、プローブパルスの遅延時間をフェムト秒からピコ秒の時間スケールで系統的に変化させながら、各遅延時間においてコヒーレントラマンスペクトルを取得した(図 3.1.4)。モデル系として、大気中の合成石英試料に含まれる

多員環構造（中距離秩序）の定量解析を実施した。取得した一連の遅延時間におけるラマンスペクトルの形状変化を解析することで、ブロードなスペクトルに内在する緩和時間の異なる複数のピーク成分を抽出することに成功した。時間遅延の増加と共に、振動緩和時間が短い多員環構造由来の振動ピーク成分は先んじて減衰し、振動緩和時間が長い多員環構造由来のピーク成分のみが残存する様子を捉えた。測定した一連のコヒーレントラマンスペクトルについて、全てのピーク成分が消失するピコ秒オーダーの遅延時間からゼロ遅延時間まで逆順で遡りながら解析を行うことで、ゼロ遅延時間付近におけるブロードなラマンスペクトル内に共存する緩和時間の異なる複数の中距離構造成分(4,5,6,7,8 員環構成分布)を一意的にピーク分離・抽出することに成功した(図 3.1.4)。さらに、シリコン表面の酸化によって形成させた薄膜アモルファス SiO_2 膜に対しても本手法を適用することに成功した(図 3.1.4)。従来の光回折法や電子顕微鏡では困難とされてきた局所的な構造分布の可視化を、時間分解非線形ラマン分光により実現したことは、アモルファス構造解析手法におけるブレイクスルーであり、世界的にも先駆的な成果と位置付けられる。

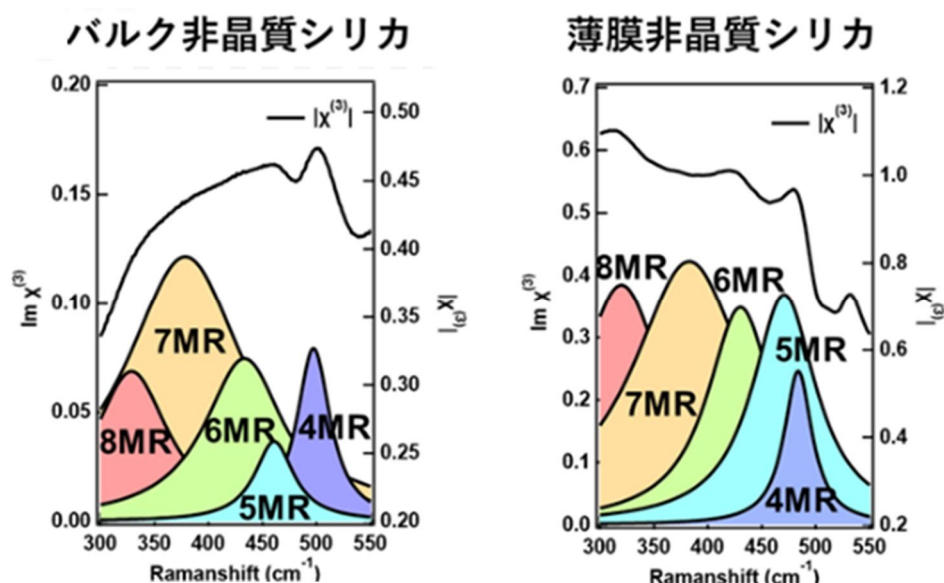


図 3.1.4 3-パルス法を用いた時間遅延非線形ラマン計測で明らかになった、バルク非晶質シリカとシリコン表面酸化による薄膜非晶質シリカの中距離員環構造の分布。この分布は、異なる遅延時間において得られた各スペクトルに対するグローバルフィットから一意的に導出されている

上記のように、我々は（1）従来困難であった界面信号を高感度観測・最大化させる新たな方法論の開発、及び（2）従来不可能であったアモルファス中の不均一中距離ネットワーク構造をスペクトル的に分離可能とする新しい計測・解析法の開発手法に成功してきた。これら2つのイノベーションを統合した世界最先端の分光計測アプローチにより、量子ビーム照射によって形成される表面アモルファス層の構造評価をすすめ、②以降の実施項目である接合プロセスの検討・フィードバックを実施した。

これまで、表面活性化接合には10分未満の量子ビーム照射が採用されており、それ以上の長時間の照射ではラフネスの増大に起因する接触面積の低減や、アモルファス層の厚さ増大による界面強度の低減などが、界面接合を不利にさせる要因と考えられてきた。本研究では、これまで計測が不可能であった表面活性化アモルファス層の微視的ネットワーク構造を観測し、量子ビーム照射時間の差異がアモルファス層の不均一ネットワーク構造にどのような影響を与えるのかを具体的に検証した。量子ビーム照射時間を10分、30分、90分と系統的に変化させた複数の表面活性化水晶において、アモルファス層の中距離構造を三次非線形分光により世界で初めて検出・解析することに成功した。その結果、形成されたアモルファス層における多員環ネットワーク構造(4・

5・6・7・8 員環) の分布に顕著な差異があることを明らかにした。具体的には、量子ビーム照射時間の増加に伴い、SiO₂ の安定な 6 員環ネットワーク構造から、構造歪がより大ききな 7・5 員環構造への転移や 8・4 員環構造への更なる転移が顕著に現れることが判明した。特に、10 分未満の照射時間においては、結晶構造により近い 6 員環を主成分とするアモルファス層が形成されていることから、結晶化を伴う接合過程において結晶核生成・結晶核成長が速度論的に有利に進行し、界面接合の形成がより容易に、強固に実現しているという新描像が浮かび上がった。一方、長時間照射によって形成される 8・7・5・4 員環構造の増加は、速度論的・構造論的に結晶化を伴う接合過程に不利に作用するだけでなく、化学的にもより不安定であるため、表面水酸基形成の促進を通じて、共有結合やイオン結合による直接的な界面接合を妨げ、レーザデバイス・酸化物材料間の高耐久接合に対して不利に作用することが示唆された。これらの知見は、現在採用されている「10 分未満の量子ビーム照射活性化プロセス」の妥当性を、構造論・速度論の両観点から学術的に支持するものであると共に、今後の接合プロセス設計における指針となり得る。

最後に、水酸基の存在と界面接合の強度の関係性には諸説あり、上記のような界面アモルファス層の原子・イオンが直接的に共有結合・イオン結合で強く接合するメカニズムに加え、水酸基の脱水縮合による共有結合形成メカニズムを上手く活用することで接合プロセスをより高度化できる可能性がある。今後は、高波数領域における O-H 伸縮振動バンドと低波数領域のアモルファスネットワーク振動バンドを同時に計測することで、界面水・水酸基を介した接合プロセスと接合強度の実像に迫る分光学的アプローチも重要となる。本研究の成功は、接合界面の研究にとどまらず、工学的に重要な界面技術や界面現象の背後に潜む本質的な構造因子と動的素過程を、理学的観点から解明する新たな研究指針を提示するものである。すなわち、本研究により、これまでブラックボックスとされてきた理学的知見を切り拓き、それに基づいて工学的界面技術・界面現象を体系的に高度化していくという界面研究の新潮流の原点を築くことができた。

次世代レーザセラムックス実現に向けた開発プロセス

 理化学研究所

高品位 DFC-PowerChip / QPM-PowerChip 開発チャート

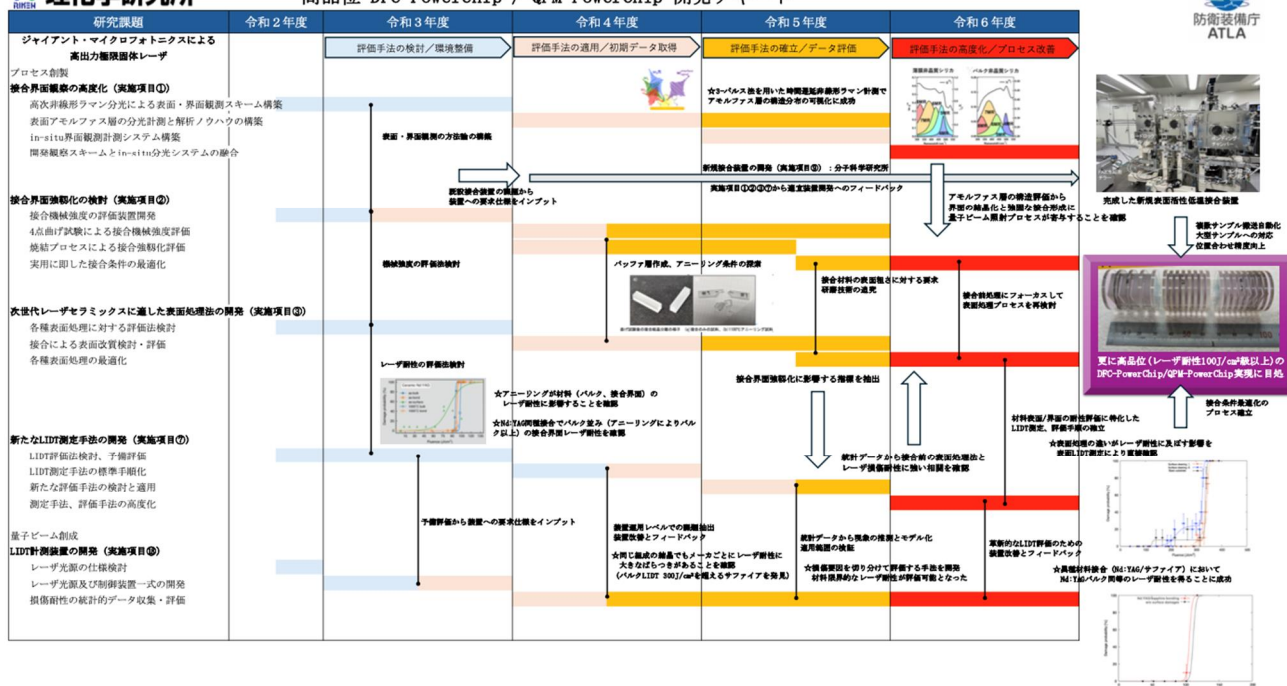


図 3.2.1 高品位 PowerChip の開発チャート

レーザ材料接合界面の機械的強度を評価するため、我々は脆い材料により適した 4 点曲げ試験による評価法（実施項目⑪参照）を採用した。光学材料による評価試験ではサファイア結晶を使用した。サファイアを選んだ理由は、DFC チップの素材でありながら YAG などのレーザ媒質と比較して大きな試料が 1 桁程度安価であったためである。複数の直径 1 インチ (25.4mm)、厚さ 18mm のサファイア結晶を準備し、それぞれの結晶を中間層援用表面活性接合 (il-SAB) により同じ条件で接合した。接合後の写真を図 3.2.2(a) に示す。接合した結晶は図 3.2.2(b) に示すように 4mm×4mm×36mm の試験用試料 16 個に切り出した後、異なる温度でアニーリングを施して曲げ試験用の試験片とした。それ以外の化学エッチング、接合あるいは切断などの加工は施していない。切り出し位置による接合強度の偏りが強靱化効果の評価に影響しないよう、アニーリング用の試料は切り出した中から無作為に選び出し、同じアニーリング条件で 4 個の試料を試験して平均値とばらつきで評価した。

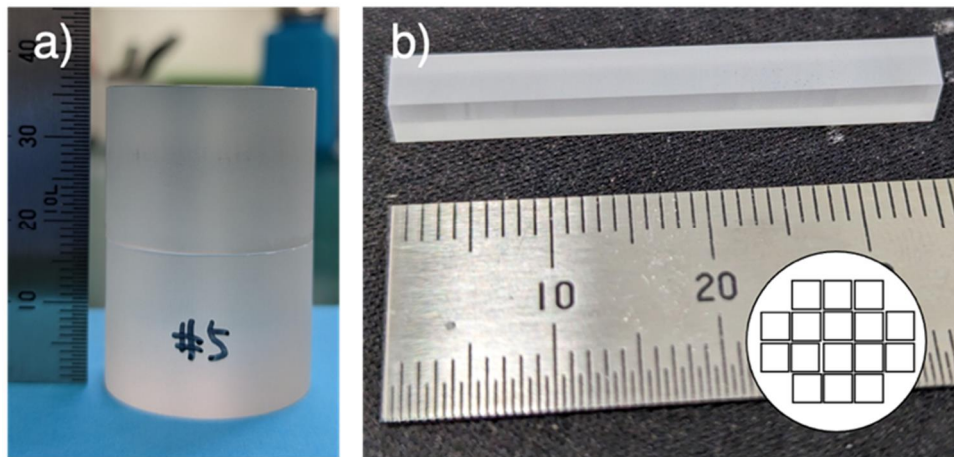


図 3.2.2 作成した試料の外観

(a) 接合した後のサファイア結晶および (b) 無作為に選ばれた接合試料
右下の図は切り出された試料の結晶における位置を示す

まずは常温接合しただけの試料と、接合後 1100℃ でアニーリング処理した試料に対し、それぞれ曲げ試験を行なった後の外観を図 3.2.3 に示す。接合しただけの試料は接合面で剥離しているが、1100℃ でアニールした試料は接合面で剥離と云うよりその周囲で全体的に破断しており、要する力も大きかった。次に、アニーリング温度条件ごとの曲げ強度特性を図 3.2.4 に示す。接合しただけの試料に対して 100℃ アニールの試料が優位に高い曲げ強度を示した。ただ、アニール処理温度を 500℃ とした場合は低下している。これに対しては試料数が 4 個と少なく、また、接合強度の面内分布均一性の影響も排除できないため、さらなる評価が必要と考えている。なお、1100℃ アニール処理で得られた数値 (202MPa) は YAG 結晶における報告値と同程度であり興味深い [1]。しかし 500℃ 以上でのアニーリングはコーティングに対して悪影響を及ぼすと予想されるため適用には注意が必要である。以上のように機械強度の面から il-SAB における接合界面強靱化に関する興味深いデータ、指針が得られた。

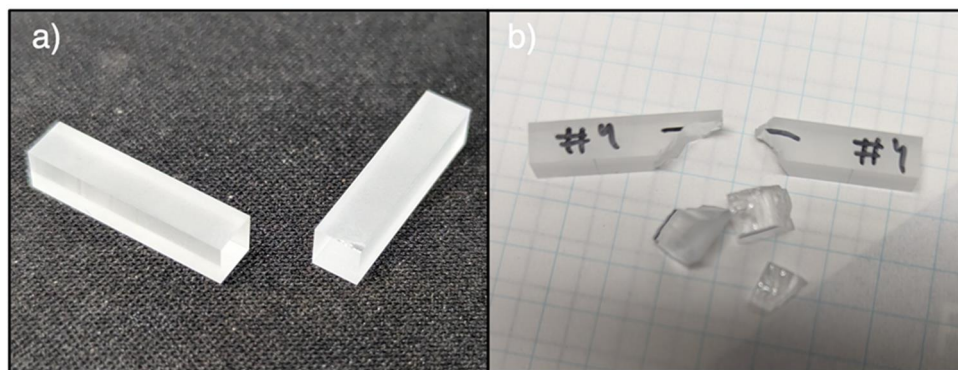


図 3.2.3 曲げ試験後の接合結晶分離の様子 (a) 接合のみの試料、(b) 1100℃ アニーリング試料

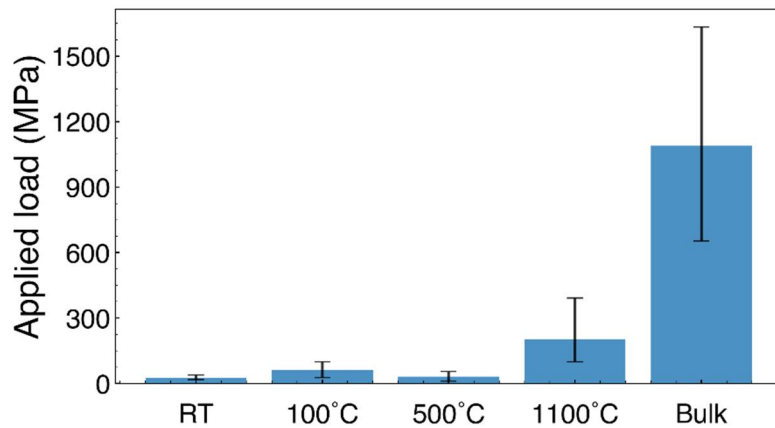


図3.2.4 il-SAB常温接合したサファイアの4点曲げ試験における破断に要する負荷
(エラーバーは計測の最大値および最小値を示す)

[1] R. Feldman, et al.: J. Phys. Chem. Solids 69(4), 839-846 (2008)

レーザ耐性測定からの強靱化検討

これまでの接合界面強靱化の探索では、接合界面の機械強度評価装置により力学的な強さを評価するため、形状一律のサンプルを準備して測定を行ってきた。一方、DFC-PowerChipあるいはQPM-PowerChipの機能面（エネルギー増幅性能、レーザ媒質除熱性能、位相整合条件）から要求されるレーザ媒質の形状や構成は多様であり、例えばDFC-PowerChip開発の中でも厚みのあるブロック型のもと薄板積層型が用いられている（図3.2.5）。更に異種材料接合による組合せまで考えると、網羅的に最適な接合条件を探索するには限界があった。

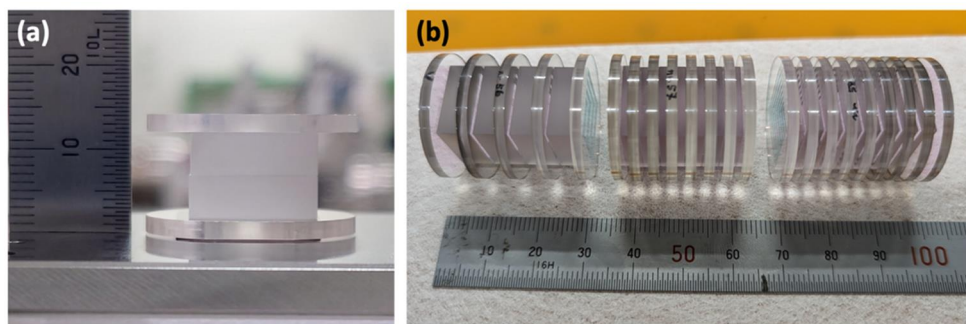


図 3.2.5 DFC-PowerChip 構成レーザ媒質外観

- (a)ブロック型 Nd:YAG（同種接合）両端にサファイアを常温接合した DFC チップ
(b) Nd:YAG を分割しサファイアを常温接合した DFC チップ

そこで本研究課題で開発した技術、得られた知見を最大限に活用し、以下のようなアプローチで接合条件の最適化を行なった。

- 1) 接合界面強靱化に影響する可能性のあるパラメータを抽出
 - ・本実施項目及び表面処理法開発（実施項目③）の知見を活用
- 2) レーザ耐性評価試験結果から損傷耐性と各パラメータの相関評価
 - ・実施項目⑱で開発したLIDT評価装置による蓄積データを活用
- 3) レーザ耐性と相関の高いパラメータで同種接合の最適条件探索
 - ・既にバルク同等の損傷耐性を得る条件が分かっているNd:YAGで追加試験

- ・ サファイアは材料探索で発見した高品位（300J/cm²以上）のもので予備試験（実用上同種接合の必要がないので最低限Nd:YAGの損傷耐性を上回れば良い）

4) 上記試験結果を反映して異種材料接合の最適条件探索

- ・ 実用上Nd:YAGを1mm厚、サファイアを2mm厚で接合（実施項目⑦⑧で開発した接合界面のレーザ耐性評価技術が必須）
- ・ Nd:YAGのバルク同等の接合界面レーザ損傷耐性を得ることを目標とする

先に接合装置について説明すると、最適接合条件探索に使用したil-SAB接合装置は分担研究機関である分子科学研究所に既設の2種類で、共に中性化したArビームを照射して表面活性化後に常温接合する。Nd:YAGの同種接合は先に導入された接合装置1でバルク同等の接合界面を得ることに成功したが、接合装置1では扱えるサンプルのサイズや接合荷重、バッファ層の作製などの機能面で制約があるため、最適条件探索は主に接合装置2にて行なった。尚、接合装置1及び2の運用上の課題を改善し、薄板積層PowerChipの作製をより効率的に行うための新規接合装置の開発（実施項目⑨）を分子科学研究所にて実施している。

最適化手順3)のNd:YAG（セラミックス）同種接合のレーザ耐性に対する追加試験結果を図3.2.6に示す。横軸をレーザパルス幅で補正した損傷閾値として、損傷が起こり始めた最小フルエンスとその直前のフルエンスをデータバーの幅で示した。閾値を精度良く求めるためには測定点を細かい刻みで取ることが望ましいが、ここでは各パラメータとレーザ耐性の相関を知ることが目的であるため簡易的な評価としている。接合装置1での測定結果（サンプル①～④）が先に述べたバルク同等のレーザ耐性を得た際の結果であり、この材料で達成できるLIDTの限界と考えられるが、接合条件を変えて同等の結果となるものは無かった。一方、表面研磨の違いがレーザ耐性に明らか影響を及ぼしていることが確認された。また、バッファ層作製のためアルミナを添加した場合についても比較したが、これについては耐性改善方向の効果は見られなかった。原理として接合界面に物質を追加することで結合を促進させるため、物質を除去する方向で耐性劣化要因を取り除くことには寄与しない。研磨による違いは単純な表面精度の問題だけでなく、研磨後の残留物質に関わる可能性も示唆された。まとめと指針としては以下ようになる。

- ・ Nd:YAG（セラミックス）の同種接合では評価系の構築前に経験的に探し当てた接合条件が最良であった
 - 他のレーザ材料の接合最適化の足掛かりとなる
- ・ サンプル①と⑤の比較から接合荷重、材料厚さ、接合装置自体違いのいずれかがレーザ耐性に大きく影響している
 - 材料厚さはPowerChip設計で決まるため実質的には指定値、異種材料接合条件の最適化においては接合荷重を同じにした上で接合装置1と2の違いを確認する
- ・ サンプル⑤～⑦の比較から表面研磨（業者）によって有意な差があった
 - 表面粗さ、PV値、研磨後の残留物質などを細かく管理できないため、レーザ耐性測定結果を元に業者を選定する（今回の結果ではA社）
- ・ バッファ層の作製（アルミナ添加）はレーザ耐性向上に効果が無かった
 - 物質を除去して耐性劣化要因を取り除く方向でサンプル①と⑤のレーザ耐性の違いが見出される可能性がある

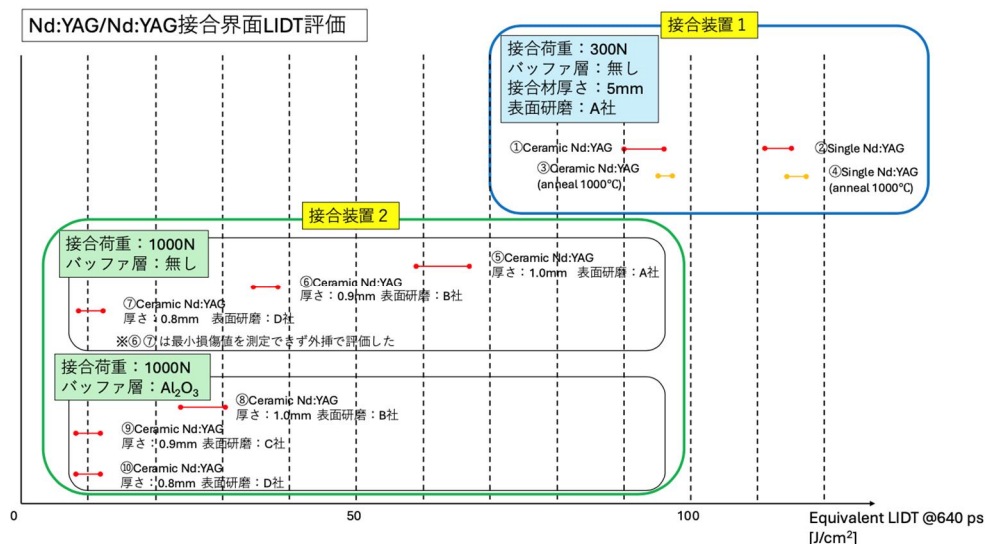


図3. 2. 6 Nd:YAG同種接合レーザ損傷耐性試験結果

次にサファイア同種接合の接合界面レーザ耐性を予備試験において評価した。サンプルとしてはレーザ耐性がバルクで $300\text{J}/\text{cm}^2$ 以上のサファイア結晶 ($10\times 10\times 5\text{mm}$) を用い、表面活性接合法により常温接合したものを使用した。図3. 2. 7に実施項目⑦で我々の開発した多段シグモイド関数による評価結果を示す。単純に損傷閾値を見ると $20\text{J}/\text{cm}^2$ 程度となるが、フルエンス増加に伴う損傷確率変化が一旦40%程度で落ち着くため、レーザ耐性の低下は部分的なものであることが分かる。150 J/cm^2 付近から再び損傷確率が上昇するが、100%損傷の値はバルク損傷閾値とほとんど変わらないため、この結果から我々はサファイアにおいてもバルク並みの接合界面が得られる可能性を見出した。

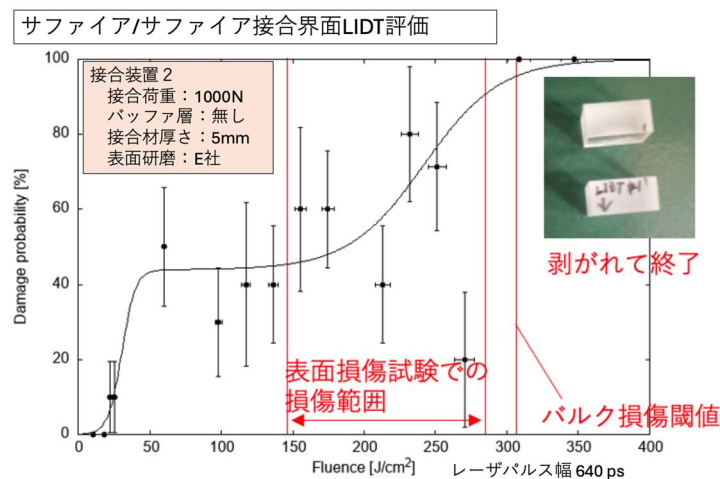


図3. 2. 7 サファイア同種接合レーザ損傷耐性の予備試験結果

Nd:YAGの同種接合結果と照らし合わせると、今回使用したサファイアは表面の反りが大きく、表面研磨の質を向上させれば1段目のレーザ損傷発生は抑えられる可能性が高い。2段目のレーザ損傷発生は同じサファイア結晶で表面のレーザ耐性を測定した結果と相関があることに着目した。材料表面のレーザ耐性の低下がオプティカルコンタクト後も変わらないのであれば、損傷要因が除去されずに残っていることに他ならず、逆にNd:YAGの同種接合でレーザ耐性の低下が無くなったことはオプティカルコンタクト以外の点で違いが見出せると考え、接合装置1及び2について接合前の表面処理段階でサンプルを取り出して表面のレーザ耐性を比較した。図3. 2. 8に示すように接合装置1で表面処理 (Surface cleaning I) を実施した場合には、未処理の場合と比較して材料の限界値に近いところまでレーザ耐性が向上していた。一方で、接合装置2で表面処理 (Surface cleaning II) を実施した場

合には、レーザ耐性の改善は限定的であり、逆に損傷確率が増大するケースも見られた。

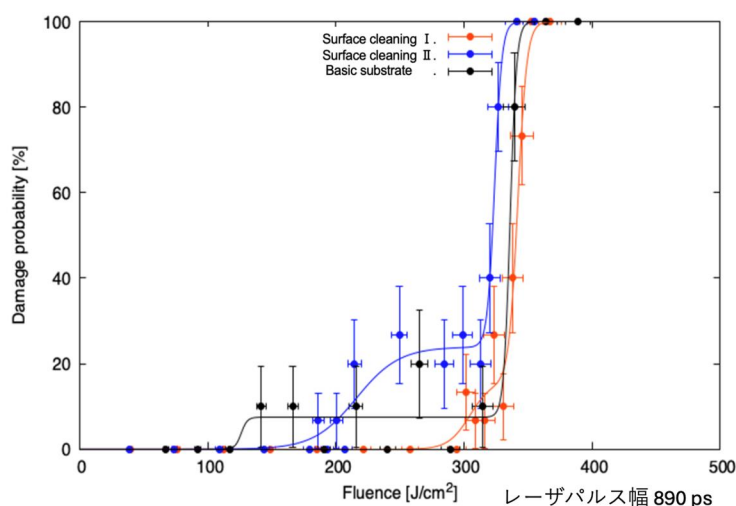


図3. 2. 8 各接合装置で表面処理後のサファイア基板表面のレーザ損傷耐性比較

Nd:YAG及びサファイアの同種接合結果から異種接合での接合条件最適化の予備検討ができたため、実際にNd:YAG（1mm厚）とサファイア（2mm厚）の異種材料接合を実施し、接合条件の妥当性確認を行った。接合装置での表面処理法以外の主要パラメータを全て同じ条件として、接合界面のレーザ耐性を測定した結果を図3. 2. 9に示す。接合装置2において接合荷重を300Nに下げただけでは期待するレーザ耐性にはならなかったが、接合装置1の表面処理法IによりNd:YAGバルク同等の100J/cm²級のレーザ耐性を得ることに成功した。これは本研究課題で我々が目標とした高出力密度レーザの1桁上のパワー（エネルギー）密度まで受容できることを意味する。

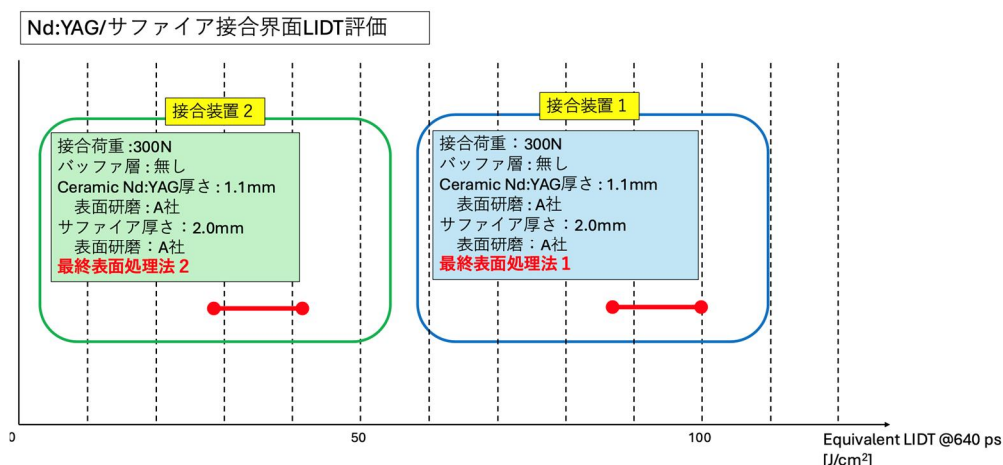


図3. 2. 9 Nd:YAG/サファイア異種接合レーザ損傷耐性試験結果

実施項目②のまとめ

- ・材料探索に始まる開発プロセスの中から接合強靱化にクリティカルに影響する管理指標を抽出した
- ・上記をもとに Nd:YAG とサファイアの異種材料常温接合で Nd:YAG バルク同等の 100J/cm² 級のレーザ耐性を得ることに成功した
- ・接合条件最適化における一連のプロセスが確立されたことが最大の成果

③ 次世代レーザセラミックスに適した表面処理法の開発(担当：理化学研究所)

[研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果]

各種表面処理に対する評価法の検討

レーザ材料に対する各種表面処理を最適化するために、まずはその評価方法を検討した。我々の目指すところとして接合によるレーザセラミックスの表面改質があるため、接合品質の評価は不可欠である。評価法を限定する必要はないが、時間とコストには限りがあるため、接合界面分析、機械強度試験（曲げ試験）、そしてレーザ耐性試験を適宜使い分けて評価することとした。図 3.3.1 に接合品質を評価する上での各評価法の長所短所と、開発の方針を示す。

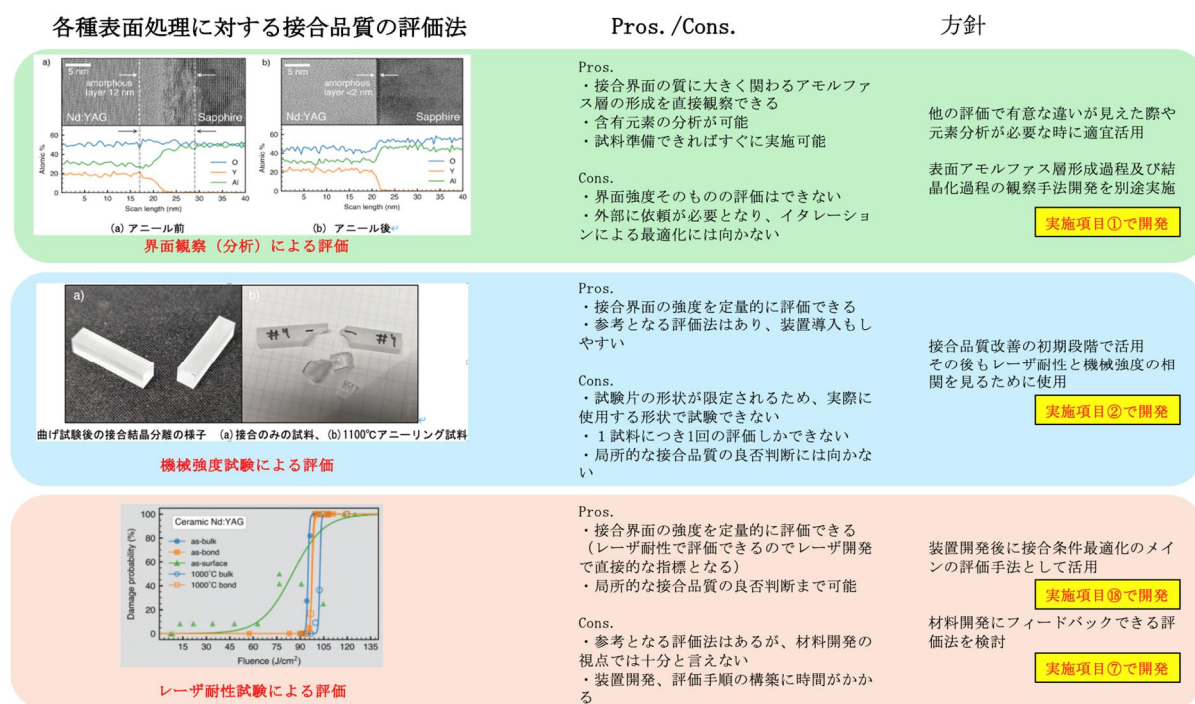


図 3.3.1 接合品質評価法

接合による表面改質検討・評価

レーザセラミックスの表面粗さ(Ra)に起因のレーザ損傷耐性の劣化改善を目指し、電界集中を緩和できる次世代レーザセラミックスに適した表面処理法について検討した。具体的には接合によるレーザセラミックスの表面改質を試みた。なお、接合にはRa <1nm（できれば0.5nm以下）で平坦度<100nmが望ましい。その見地も含め各種表面処理を最適化するために、別途実施項目⑦及び⑧で開発のLIDT測定装置を用いて評価、レーザセラミックスに適した表面処理法に反映させる事を以下の手順で実施した。

- 1) 接合による表面改質に影響する可能性のあるパラメータを抽出
 - ・本実施項目及び接合界面強靱化の検討（実施項目②）の知見を活用
- 2) レーザ耐性評価試験結果から損傷耐性と各パラメータの相関評価
 - ・実施項目⑧で開発したLIDT評価装置による蓄積データを活用
- 3) レーザ耐性と相関の高いパラメータで同種接合の最適条件探索
 - ・既にバルク同等の損傷耐性を得る条件が分かっているNd:YAGで追加試験
 - ・サファイアは材料探索で発見した高品位（300J/cm²以上）のもので予備試験（実用上同種接合の必要がないので最低限Nd:YAGの損傷耐性を上回れば良い）

- 4) 上記試験結果を反映して異種材料接合の最適条件探索
- ・実用上Nd:YAGを1mm厚、サファイアを2mm厚で接合
(実施項目⑦⑱で開発した接合界面のレーザ耐性評価技術が必須)
 - ・Nd:YAGのバルク同等の接合界面レーザ損傷耐性を得ることを目標とする

最適化のプロセスとその結果については接合界面強靱化の検討(実施項目②)でまとめて報告しているため、ここでは表面粗さ(Ra)に起因のレーザ損傷耐性の劣化改善について報告する。図3.3.2に一般的なサファイア、Nd:YAG単結晶、そしてNd:YAGセラミックスの表面状態を示す。サファイア、Nd:YAG単結晶は流通している物品でもRa < 0.2nm が容易に入手できる。しかし、Nd:YAGセラミックスは0.5nm程度と倍以上悪くなっている。この理由は、一般的に用いられる化学的機械研磨技術(CPM, mechano chemical polishing)は、セラミックスではそれぞれの粒方位がランダムであることに基づくバラバラのエッチングレートが面精度に反映されるからである。

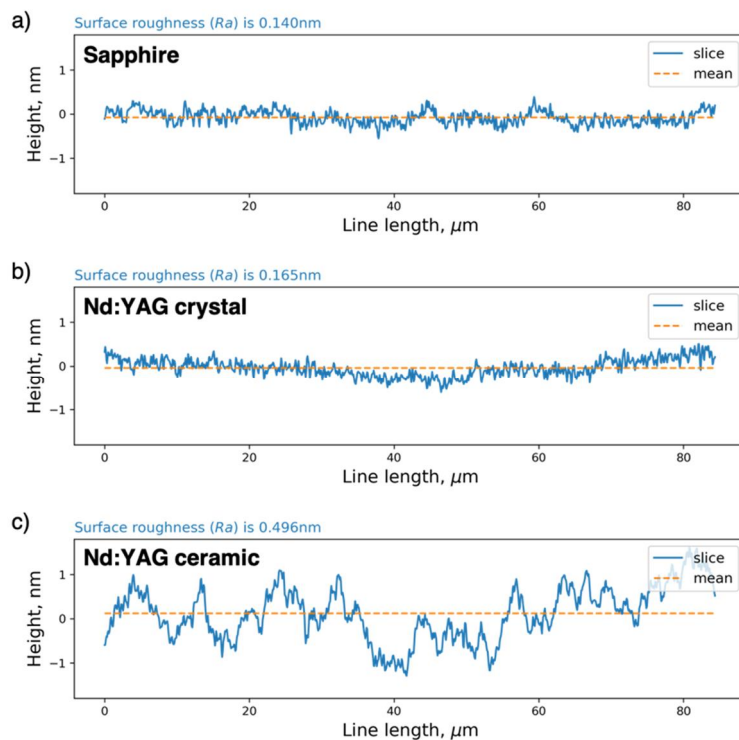


図3.3.2 表面特性の観察結果 (Zygo New View)
a) サファイア, b) Nd:YAG 単結晶, c) Nd:YAGセラミックス

そこで、幾つかの研磨業者にNd:YAGセラミックスの研磨を依頼した結果を図3.3.3に示す。業者#1では、表面粗さが1.4nmと大きく信頼性の高い接合は厳しいことが分かった。しかし、他の#2~#4の業者では0.4nm以下の値が得られ、信頼性の高い、比較的良好な接合が期待できる。表3.3.1にそれら測定結果をまとめた。業者#4は、表面粗さが良いだけでなく、PV値も低いためかなり良好な接合が可能である。さらに価格も低い。

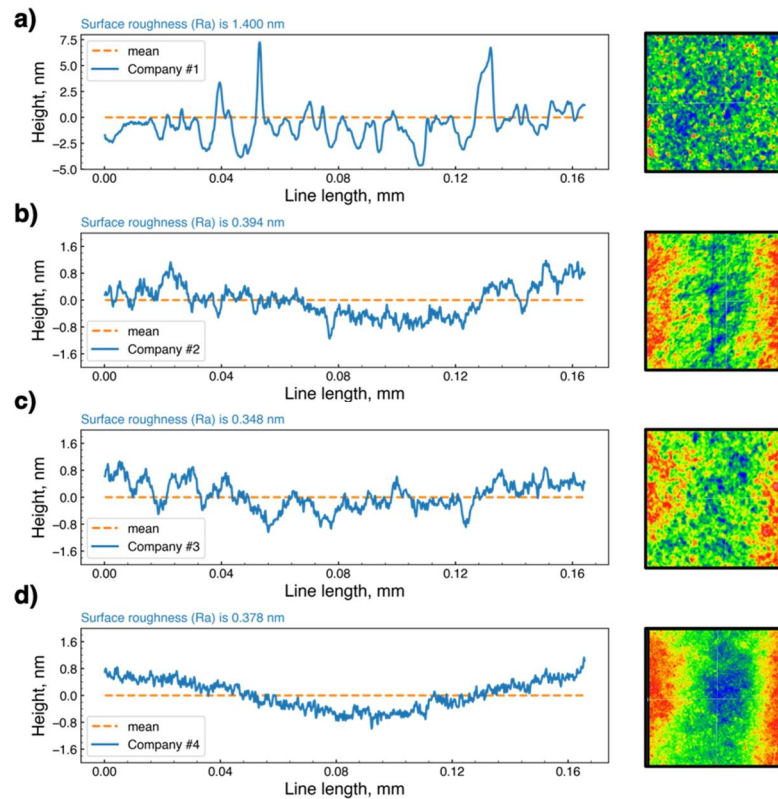


図3. 3. 3 Nd:YAGセラミックス研磨特性比較（表面粗さと2D表示）

表3. 3. 1 Nd:YAGセラミックス研磨特性（表面粗さとPV値）と価格の比較

Company	Surface roughness, Ra (nm)	Peak-Valley, PV (nm)	Polishing price per piece (¥)
Reference	0.50	~ 50	12,500
Company #1	1.40	~ 50	80,000
Company #2	0.39	~ 100	31,000
Company #3	0.35	~ 300	44,500
Company #4	0.38	~ 50	12,000

次に研磨業者の異なるこれらの試料を用いて、接合サンプルを作製し接合界面のLIDT（レーザー損傷閾値）測定を実施した。結果を図3. 3. 4に示す。サンプル⑤⑥⑦が同じNd:YAGセラミックスで研磨業者のみを変えた比較となるが、レーザー耐性の違いが明確に見られる結果となった。特筆すべきは、必ずしも研磨特性とレーザー耐性の関係は一致しなかったことである。実施項目②の中でも述べたように、研磨後のサファイア基板に対して更に我々独自の表面処理をすることで表面におけるレーザー耐性が向上することを見出した（図3. 2. 9）。そして、その結果が接合界面におけるレーザー耐性向上にも寄与したことを報告している。レーザーセラミックスに適した表面処理法として研磨特性を考える際には、表面粗さだけでなく残留元素などにも着目した研磨プロセスの検討が必要と考えられる。

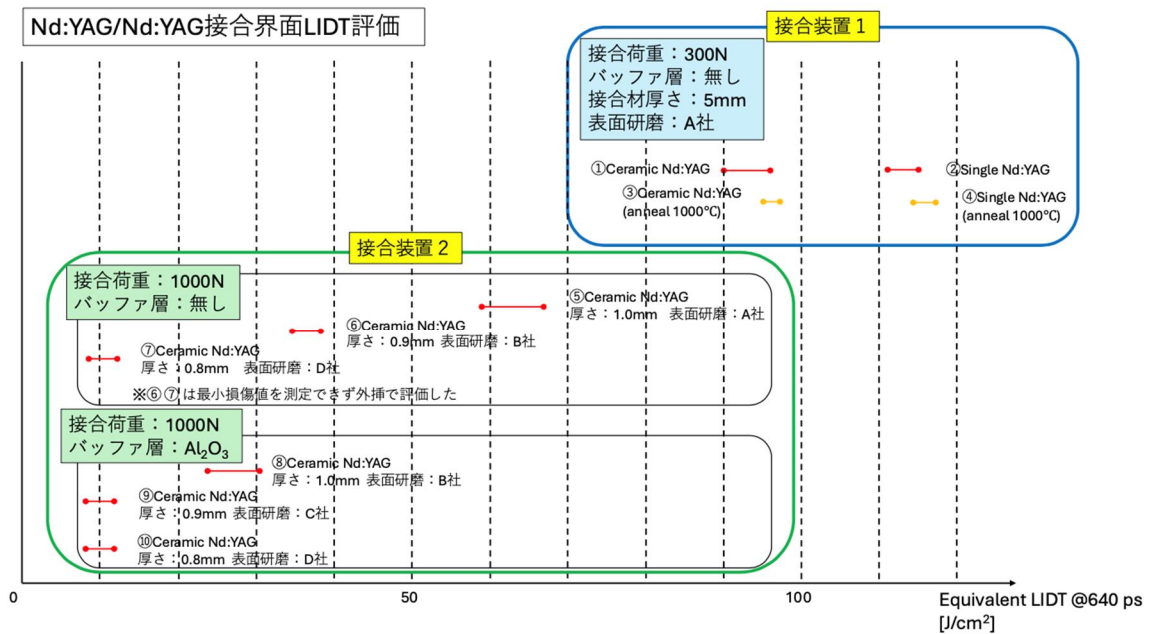


図3.3.4 Nd:YAG同種接合レーザ損傷耐性試験結果

実施項目③のまとめ

- ・各種表面処理方法について最適化のためのアプローチを明確にし、各実施項目での開発計画に反映した
- ・レーザ材料の接合条件として表面粗さは一定の水準以上（Ra で 1nm 以下）が必要であること、ただしレーザ耐性による評価から強靱化には更に研磨特製の別の要素も寄与することが確認された

④ 異方性材料の磁場による配向制御及び超高压など焼結プロセスの高度化の検討（担当：物質・材料研究機構）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

セラミックスでのレーザ発振は、レーザクオリティを達成した透光性を付与することが必要であり、従来は立方晶系のYAGなどで開発され、異方性セラミックスにおいてはアパタイト系セラミックスにおいてのみレーザ発振が報告されている。本課題では、エネルギー変換効率が高く、出力が安定していて、産業加工用、医療用など多岐にわたって活用されている YVO_4 に着目し、レーザ材料に資する透光性 YVO_4 セラミックスの作製を目指した。

＜ YVO_4 の原料粒子の作製＞

原料となるNd: YVO_4 の微粒子を水熱合成法を用いて作製した。図3.4.1にundoped YVO_4 と0.5at%Nd添加 YVO_4 の合成粒子のXRD結果を示す。不純物ピークはなく、単相であることが確認された。

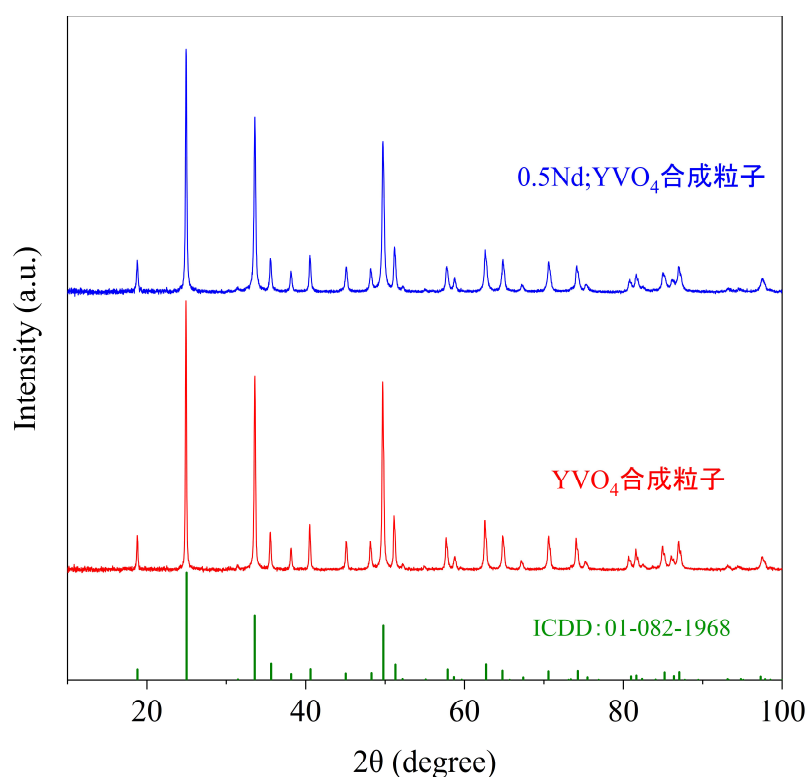


図3.4.1 水熱合成により作製した YVO_4 およびNd: YVO_4 の粉末XR

図3.4.2には、合成粒子の粒度分布とSEMによる外観観察の結果を示す。Ndドープの有無によらず平均粒径が約130nmとなった。Ndドープ無しの粒子では凝集している粒子が散見されたが、Ndドープ粒子では粒子間でのネック形成がなく、分布幅の狭い粒度分布となり、スラリー中での分散が可能な粒子であることを確認した。

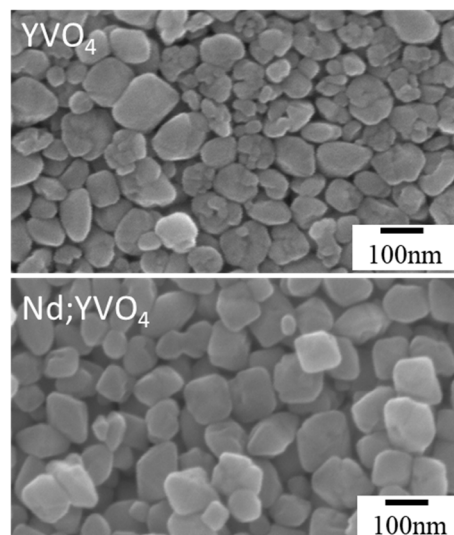
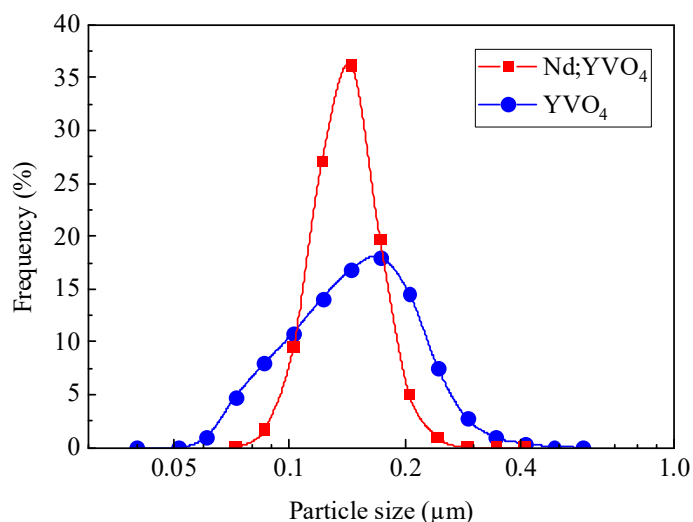


図3. 4. 2 YVO₄およびNd:YVO₄水熱合成粒子の粒度分布とその外観

<磁場を用いた結晶配向制御焼結体の作製>

YVO₄はa軸=0.712nm、c軸=0.629nmの正方晶系の結晶構造(図3. 4. 3)であり、光学的に異方性があるため、レーザ発振を目指すためにはセラミックスにおいても結晶軸を揃える必要がある。そこで強磁場を用いた結晶配向制御手法により結晶配向YVO₄の作製を試みた。

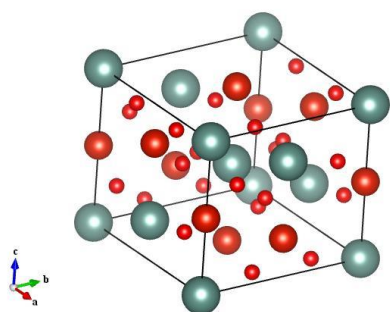


図3. 4. 3 YVO₄の結晶構造

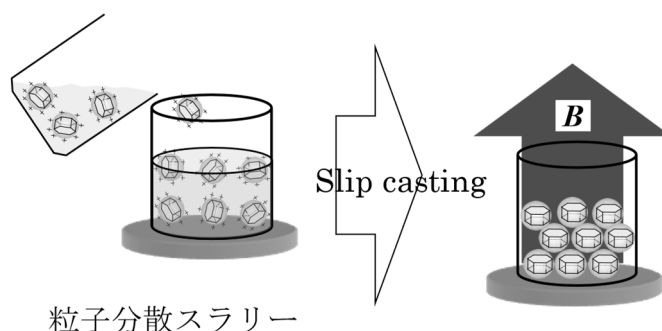


図3. 4. 4 磁場中スリップキャスト模式図

常磁性セラミックスや反磁性セラミックスであっても正方晶、六方晶などのようにその結晶構造に非対称性を持つならば結晶磁気異方性が発現し、磁場中ではその結晶磁気異方性に由来する磁気トルクを駆動力として結晶を回転させることで方位を揃えることが可能となる。しかしながら、常磁性体、反磁性体のように磁化率が僅少な物質では、超伝導マグネットを用いたとしても結晶磁気異方性が極めて小さいために粒子を回転させることは簡単ではない。そのため溶媒中にセラミックス粒子を分散させて、粒子が回転しやすい状況を作りだし、方位が揃った状態のまま固化することで結晶配向制御を行う必要がある。セラミックスの湿式プロセス(=コロイドプロセス)は磁場で回転させる手法として有効であり、合成したYVO₄粒子を粒子間相互作用を利用して溶媒中に分散し、スリップキャストを用いて強磁場中で固化させることで成形体組織の微構造制御を試みた。図3. 4. 4には磁場中コロイドプロセスを用いた成形過程を示す。微粒子が良く分散したスラリーを型を固定した多孔体モールドへ流し込み、溶媒が多孔体へ吸われて粒子が残る固化成形(スリップキャスト)が行われる。このスリップキャスト過程を磁場中で行うことにより結晶軸が揃った成形体を作製した。溶媒中の粉末の分散には、pHを適当な値に調整し粉末表面に大きな電荷を与え粉末同士の静電反発力を利用する方法、または、粉末表面に吸着させた高分子電解質の解離による静電反発と高分子そのものによる立体障害を利用する方法、が一般的によく知られている。本課題においては、ポリカルボン酸アンモニウム(A6114、東亜合成製)を分散剤として用いることで、分散性に優れたスラリーを調製した。そのときの表面電

荷（ゼータ電位）と粘度特性を図3.4.5と図3.4.6に示す。図3.4.5において、等電点がpH=5付近となるが、pHが9以上であれば絶対値で40mV以上となり分散に十分な表面電荷となっていることが確認できた。上記で得られた結果よりpH>9となるように調整したスラリーの粘度特性を示す。剪断速度に対して粘度が一定となるニュートン流体となる特性が示されており、粉末体積分率を増加させてもpH、分散材の最適化により、分散特性に優れたスラリーの作製が可能であることを確認した。

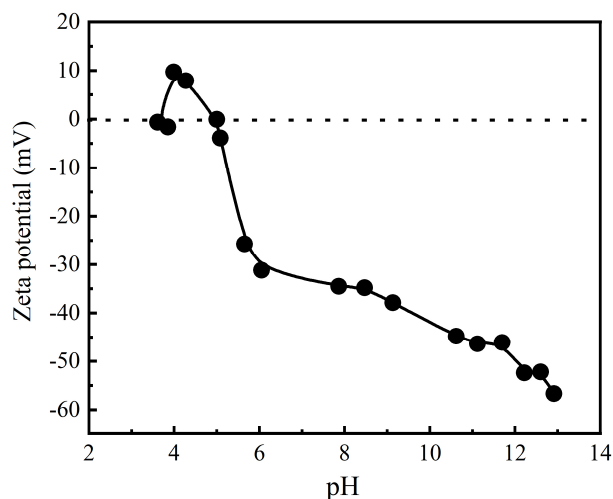


図3.4.5 YVO₄スラリーでのゼータ電位のpH依存性

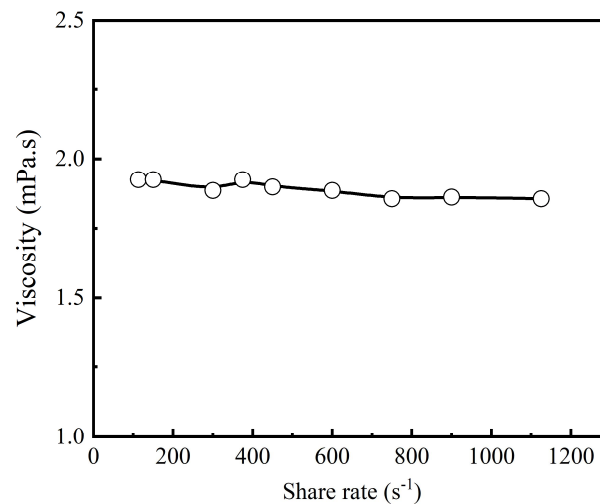
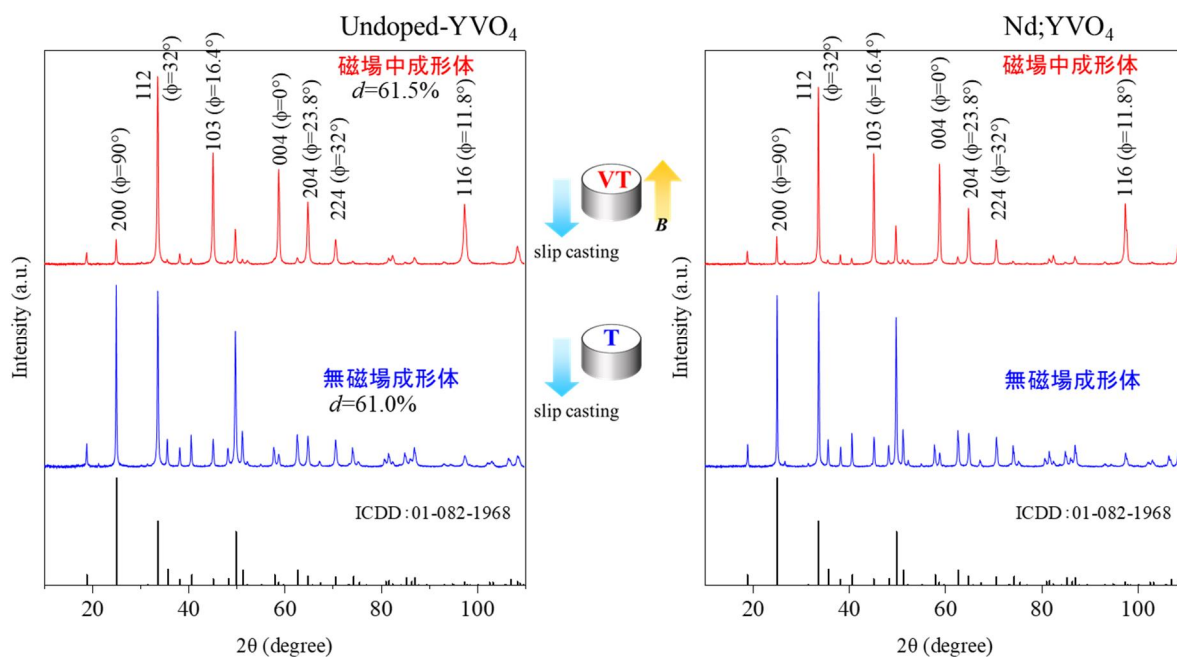


図3.4.6 YVO₄スラリーの粘度特性

上記の結果から、pH≈9でスラリーを調製し、磁場中または磁場外にてスリップキャストによる固化成形した。図3.4.7には、固化成形後（焼結前）の配向性についてXRDを用いて確認した結果を示す。面指数横の括弧内にはc面との面角度（ ϕ ）を示している。無磁場成形の場合には、Ndドーピングの有無に関わらず各回折ピークの強度比がICDDから計算した強度比とほぼ同じとなっているのに対し、磁場を印加しながら成形した場合には、その磁場印加方向と垂直面（VT）において、本来ファーストピークであるはずの（200）面の回折強度が弱く、（112）面、（103）面の回折強度が高くなっていることが分かる。（200）面は $\phi=90^\circ$ でありc面と垂直となる結晶面であり、（112）面、（103）面においても $\phi=32^\circ$ と 16.4° とc面と面角度が浅く平行に近い面となっている。さらにc面となる（004）面においても回折強度が強いことから、VT面においてYVO₄のc面が集積している配向を示していることが分かる。これはYVO₄粒子のc軸が磁場と平行になるように磁場中で回転しながら成形されたことを示している。

また、成形体密度に関しては、61%を超える相対密度を示し、高い成形体密度が得られ、成形性の高い粒子であることも分かった。



図

3. 4. 7 磁場中および磁場外での成形後のXRD結果

これらの成形体を1300℃大気中にて焼結することでバルク体を作製した。図3. 4. 8に焼結後のXRD測定結果を示す。Ndドーブ無しの試料においては、 $\phi=11.8^\circ$ となるc面との面角度が小さい(116)面の回折強度が強くなっており、焼結前よりも配向度が高くなっている。Ndドーブ試料においてはc面である(004)面の回折強度が極めて強く、配向度がさらに高くなっていることが分かる。成形体におけるXRD結果では認識が難しいが成形時での配向がNdドーブ試料の方が若干高く、焼結時における粒成長に伴う配向の促進によりその差が顕著になったものと推察される。図3. 4. 2に示すようにNdドーブ無し粒子では若干の凝集が認められること、およびNdの添加による磁化率の向上が成形時における粒子の回転を助長した原因であると考えられる。焼結体でのc軸配向制御が可能であることを明らかにした。しかし、相対密度は97～98%程度であり、SPSなどにより更なる緻密化を行うこととした。

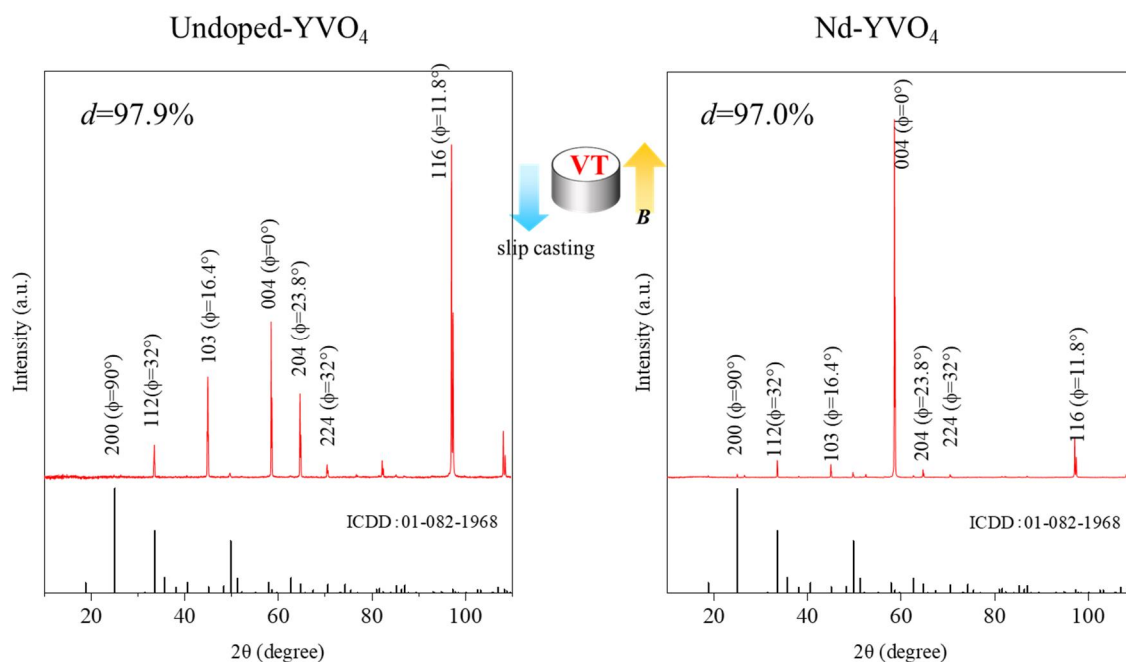


図3. 4. 8 磁場中成形後に大気中電気炉で焼結した試料のXRD結果

<透光性undoped YVO₄セラミックスの作製>

無加圧大気電気炉では透光性を付与するまで緻密化することが困難であったため、緻密性を向上させるプロセスを導入した。焼結性を向上させるためには、成形体での粒子のパッキング性が重要であり、本課題では上記のコロイドプロセスを用いることで成形後のパッキング構造は制御されている。成形体段階での緻密性を向上させるために350MPaでの冷間等方圧プレス (Cold Isostatic Pressing: CIP) を行い、その後に放電プラズマ焼結 (Spark Plasma Sintering: SPS) を用いて緻密化を行った。

SPSは、導電性ダイスに試料を充填し、直流パルス電流を直接に通電し、ダイスに発生するジュール熱で加熱する焼結方法である。100℃/minかそれ以上での昇温速度とすることが可能であり、プロセス時間が短く、微細粒のまま緻密化出来るなどの特徴がある。近年、このSPSを用いた透光性セラミックスの創製についての報告がされるようになってきており、担当者らもアルミナやスピネル、アパタイトなどでの透光性セラミックスの作製を報告している。

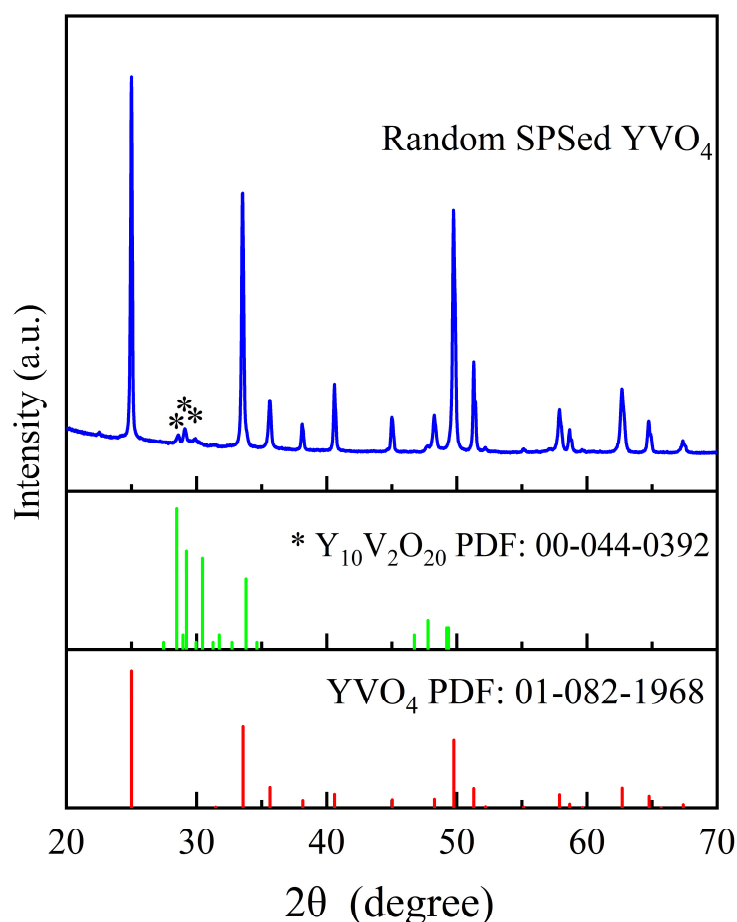


図3. 4. 9 SPS後ランダム焼結体XRD結果

図3. 4. 9にはYVO₄でのランダム体におけるSPSでの1300℃焼結後のXRDを示す。配向体試料の場合には配向面の回折強度が著しく強くなるために不純物相のピークを確認することが難しくなるので、ランダム試料を用いて不純物相の有無を確認した。2θ=30°付近でY-rich相となるY₁₀V₂O₂₀と考えられる不純物相が若干析出していることが確認された。V-Oの分解によるものと考えられた。1300℃以上のSPSではさらに不純物相の量が多くなったためにSPSの焼結温度は1300℃を上限とした。

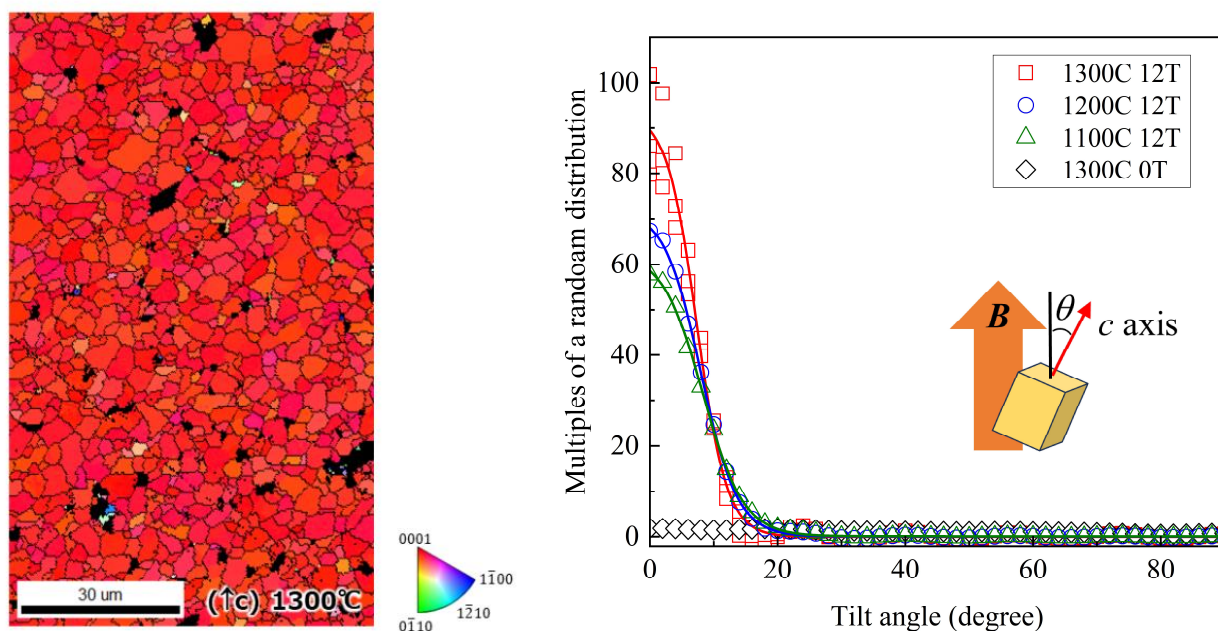


図3. 4. 10 磁場印加垂直面での焼結体EBSD結果

磁場中成形した試料をSPSにて緻密化した場合の配向性を定量するために、磁場印加垂直面における電子後方散乱回折（EBSD）測定を行った。図3. 4. 10に結晶方位マップとその結果から計算したc軸の傾き角分布を示す。結晶方位マップではほぼすべての結晶粒が赤く0001面となっており、磁場印加垂直面内にc面が集積していることが分かる。また、c軸の角度分布から1100℃-SPS試料で50%の組織粒がc軸の傾きが5度以内に入っており、1200℃-SPS試料で5度以内に53%、1300℃-SPS試料で5度以内に60%の結晶粒が存在しており、高い配向性を得られていることが明らかとなった。

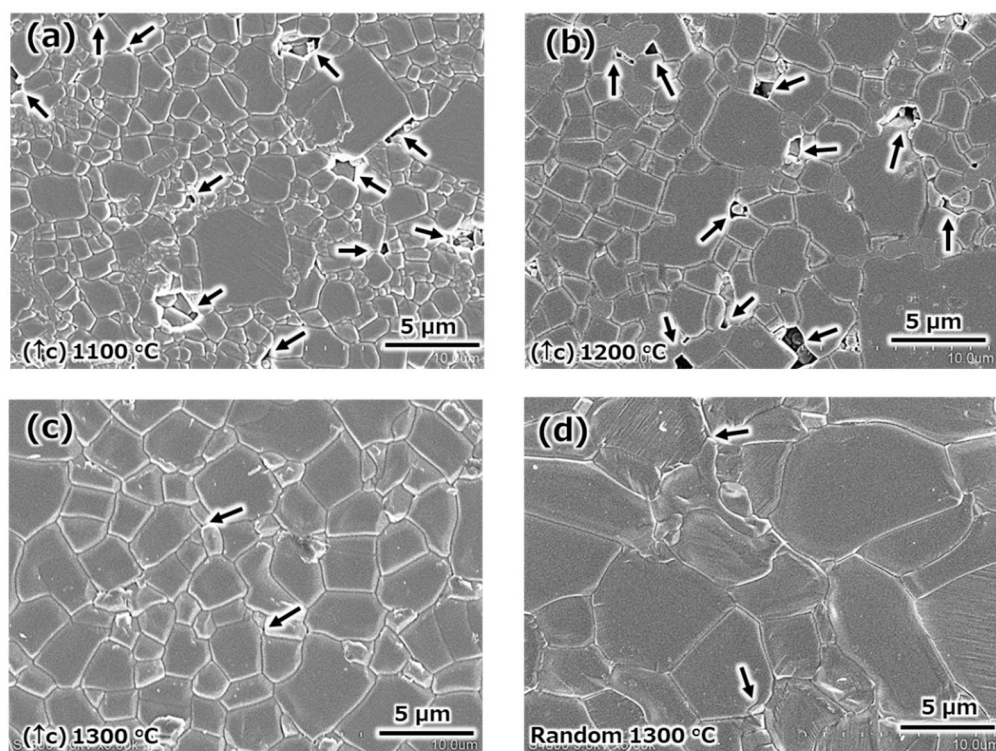


図3. 4. 11 各SPS温度で緻密化したc軸配向YVO₄の微構造 (a) 1100℃、(b) 1200℃、(c) 1300℃と、(d) 1300℃のSPSで緻密化したランダムYVO₄試料

図3. 4. 11にSEMによるSPS温度依存の微構造観察結果を示す。T = 1100 °Cの低温では、複数の粒界に多くの残留気孔が見られ、焼結温度の上昇とともにそれらの残留気孔が減少している。比較のために、1300 °Cで焼結したランダムYVO₄セラミックの微構造を図3. 4. 11(d) に示す。同じ焼結温度で焼結したc軸配向YVO₄と同様に、複数の粒界にいくつかの残留気孔が見られる。ただし、ランダム YVO₄セラミックは配向試料より粒成長が顕著であり、ランダム試料の平均粒径が3. 67 μmであるのに対し、配向試料では約2. 88μmであった(図3. 4. 11(c、d))。

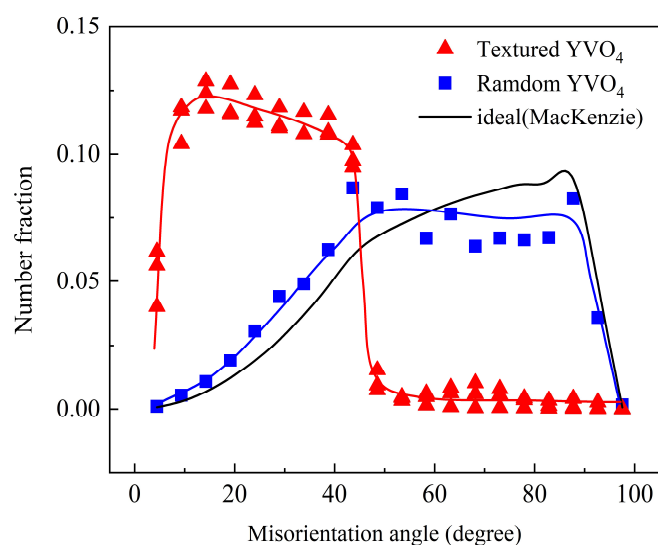


図3. 4. 12 ランダムおよび配向YVO₄の粒界方位差角分布

ランダム体における粒成長を考察するために、粒成長を律速する粒界エネルギーが隣接粒子間の方位差角の影響を受けるため結晶方位差角(図3. 4. 12)をEBSD測定結果より計算した。ランダム試料では、無配向状態で計算されるMacKenzie線とほぼ一致しており、方位差角が大きい粒界が多く分布していることが分かる。方位差角が大きい場合、粒界エネルギーが高くなり、結晶粒の粗大化が促進されることが考えられる。一方、配向YVO₄試料においては結晶粒が特定の方向に配向しているため、隣接する結晶粒間の粒界方位差が小さくなり50度以上の方位差となる粒界がなくなっており、粒界エネルギーが低下し、結果として粒成長が抑制されたと考えられる。

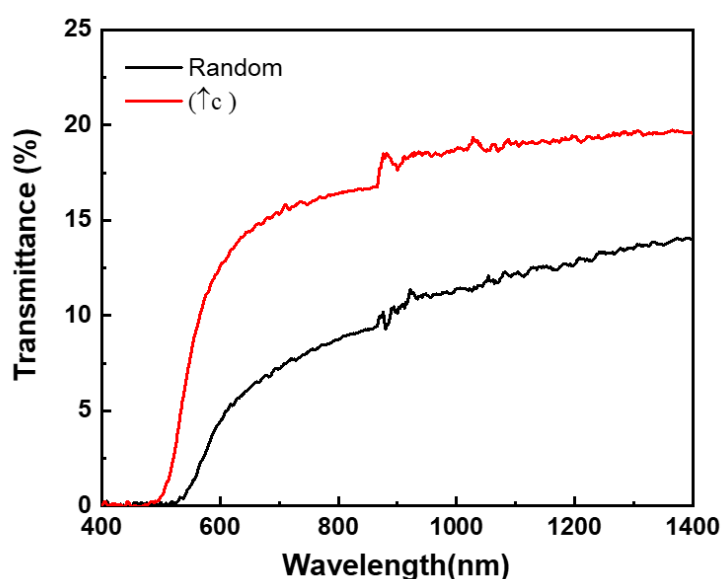


図3. 4. 13 1300°CのSPSで緻密化した無配向およびc軸配向YVO₄の透過率曲線

図3. 4. 13には1300℃のSPSで緻密化した無配向およびc軸配向YVO₄の透過率曲線を示す。ランダム試料に比べてc軸配向することにより大きく透過率が向上しており、YVO₄において結晶配向は透過率向上に有効であることが確認できた。

<NdドーパYVO₄における透光性セラミックスの作製>

本課題にて導入した超高压冷間等方圧プレスを用いて、Nd:YVO₄微粒子の成形時での冷間等方圧を350MPaから800MPaへと増加させ、さらに5回のサイクリックな加圧を行い、その効果を検証した。図3. 4. 14には、SPS中での試料の収縮速度の変化を示した。CIP圧力を350MPa、または800MPaで行った試料で両試料ともに850℃辺りから収縮が始まっているが、800MPaを用いた試料の方が若干だが収縮し始める温度が下がっている。これは、より高压での等方加圧により成形体でのパッキング性を向上させられたためだと考えられる。

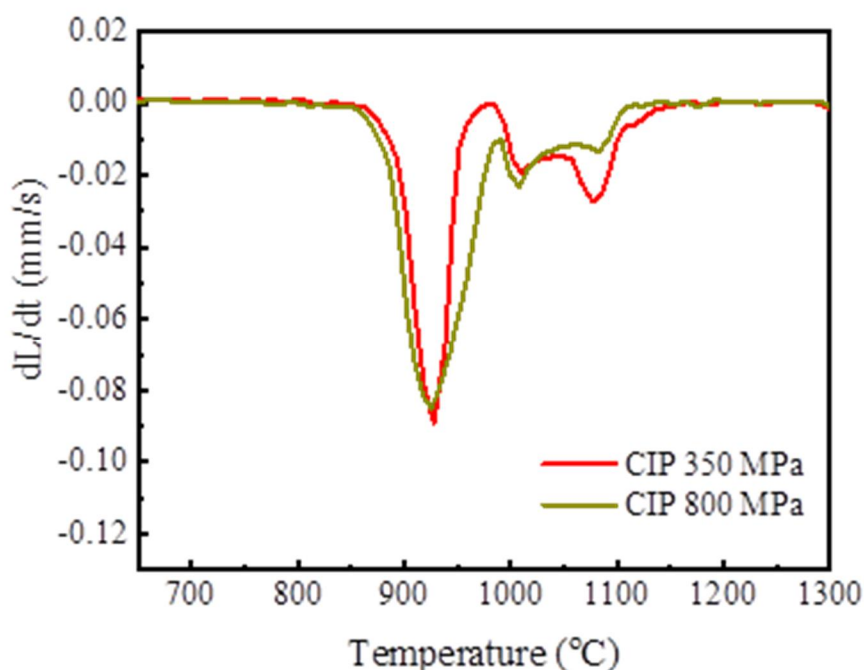


図3. 4. 14 CIP圧力によるSPS中収縮挙動比較

図3. 4. 15には、CIP圧力の違いによる透過率への効果を示した。CIP後のSPS条件とその後の熱処理条件は同じにしている。両試料共に1300℃でのSPS緻密化後であるが、CIP圧力を800MPaに増加しサイクリックとした場合に透過率が向上することを確認出来た。これは焼結前の成形体中でのパッキング性が向上したことに起因して、焼結段階での緻密性も向上したためだと考えられる。収縮開始温度の低温化は大きくはなかったが、透過率特性への影響は大きく、このことによりサイクリック高压CIPは透光性に効果的であることが明らかとなった。

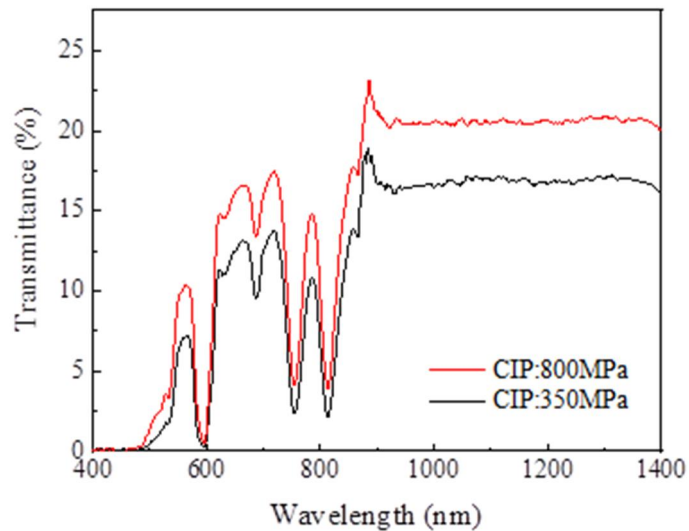


図3. 4. 15 CIP圧力の違いが1300℃-SPS試料の透光性へ及ぼす影響

図3. 4. 16にはNd:YVO₄微粒子をスリップキャストで成形し1300℃でのSPSでの緻密化後にさらに熱間等方圧プレス（HIP）を行った時のHIP温度の微構造組織への影響を示す。緻密化が進むことを期待してHIP温度を上昇させたが、粒成長により粒界が減少したことでポアが増加してしまった。SPSと同じ温度であるが1300℃-HIPにおいてポアが減少し、最も緻密となっていることが確認された。

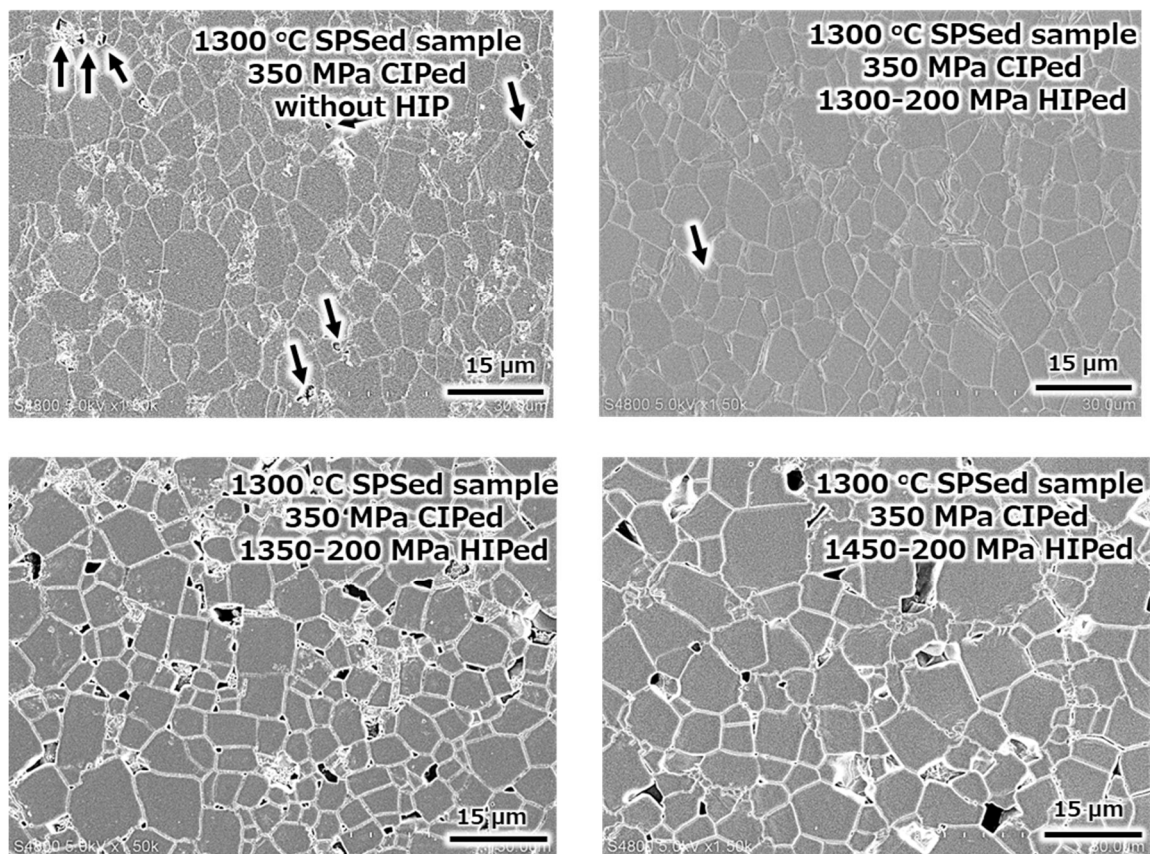


図3. 4. 16 HIP温度が微構造へ及ぼす影響

図3. 4. 17には、1300℃と1350℃でのHIP処理後の透過率を示す。SPSと同じ処理温度であるが1300℃で透光性が向上した。1350℃では微構造観察にて明らかになっていたように粒成長にともなうポアの生成で透過率は劣化している。

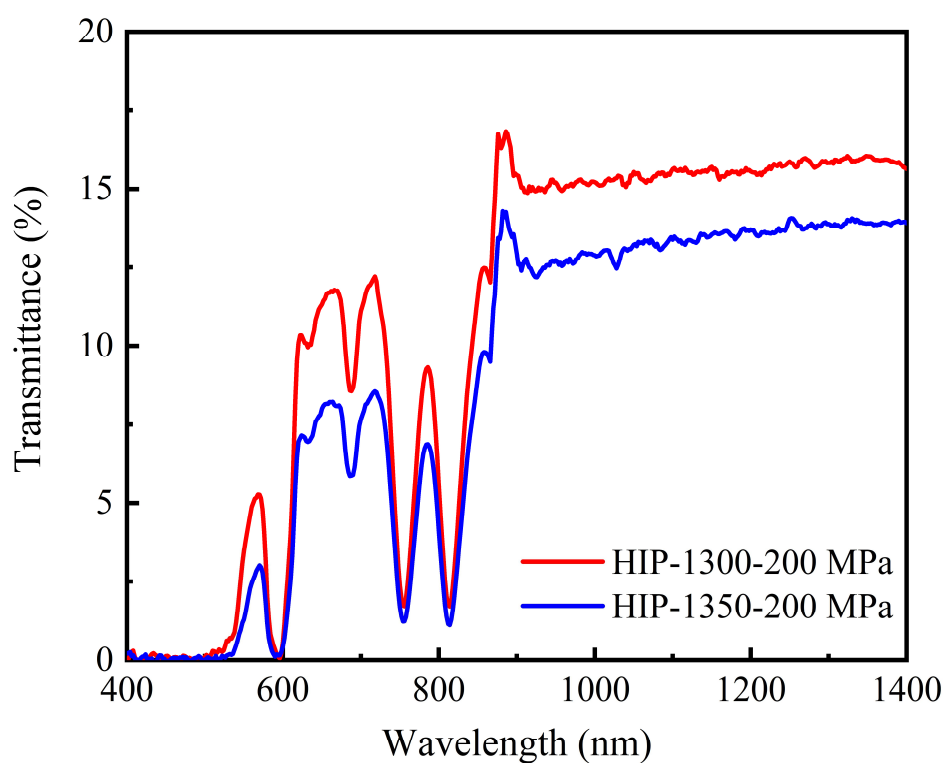
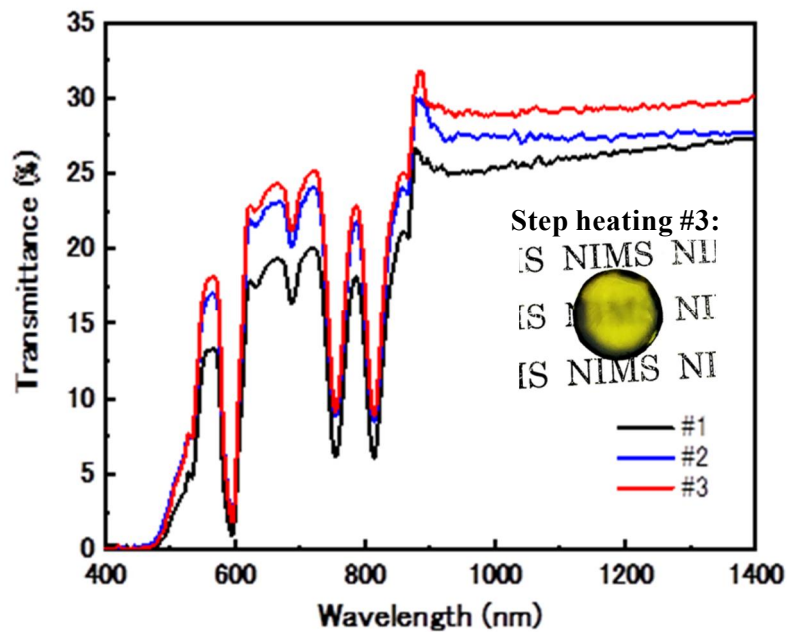


図3. 4. 17 1300℃-SPS後のHIP処理が透過率に及ぼす効果

また、SPSの昇温スケジュールを調整することで更なる透光性向上を試みた。放射温度計を使用するために600℃までは制御が出来ず、800℃までは100℃/minにて昇温し、その後を低速昇温とした。また、途中での昇温速度を速める、遅くするなどを行った。これらの昇温スケジュールで緻密化した試料の透過率を図3. 4. 18に示す。これらの中では#3のスケジュールでの透過率が一番高く、図中に示した外観の試料が得られた。



step heating #1:
 600-800 °C: 100 °C/min
 800-1000 °C: 5 °C/min
 1000-1100 °C: 100 °C/min
 (adding to target pressure)
 1100-1300 °C: 5 °C/min

step heating #2:
 600-800 °C: 100 °C/min
 800-1100 °C: 5 °C/min
 (adding to target pressure)
 1100-1300 °C: 5 °C/min

Step heating #3:
 600-800 °C: 100 °C/min
 800-1100 °C: 5 °C/min
 (adding to target pressure)
 1100-1200 °C: 5 °C/min
 1200-1300 °C: 100 °C/min

図3.4.18 様々な昇温スケジュールでのSPS緻密化後のNd:YVO4焼結体の透過率。図中写真は#3条件にて緻密化した試料の外観

配向制御した異方性バルクセラミックスの熱伝導の異方性なども確認し、さらに分光特性評価を行う事でレーザ発振の可能性が検証された。

⑤ YAG 材料の外場による配向制御及び焼結プロセスの高度化の検討（担当：理化学研究所）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

高出力固体レーザ装置、および高輝度固体レーザ装置の開発において、レーザセラミックスは、固体レーザ媒質としての第一候補であるということが既に全世界での共通認識となっている。しかしながら、レーザセラミックスにはなお3つの残された技術課題が存在する。その一つが異種材料との複合構造化、つまり接合技術である。本プロジェクト提案者により創出された表面活性化常温接合による複合レーザ媒質はこの問題に決定的な解決策を提供するものであり、本プロジェクト全体の基盤技術となっている。残る二つの課題は開発項目⑬で実施されてきたレーザ損傷の原因解明および損傷閾値の向上、そして開発項目④および⑤で実施されてきたレーザセラミックスの配向制御の実現である。

開発項目④で課題となっている異方性セラミックスの配向制御については、超伝導磁石の社会実装を契機とした材料電磁プロセッシングにおける非磁性体の結晶配向制御を援用することで可能となることが本プロジェクト提案者らにより明らかにされたが、**開発項目⑤の課題である立方晶系素材からなるレーザセラミックスの配向制御については、有用な配向制御手段はこれまでに世の中に存在していない。**そこで、開発項目⑤においては配向原理を新規に提案し、それが可能であることを証明し、実際に配向制御立方晶系レーザセラミックスを作成し、レーザ発振を実証することを目標とした。

立方晶セラミックスの結晶配向について、実際に試みた実験手法を図3.5.1に示す。これは単結晶テンプレートと密着した焼成途上のセラミックスを温度勾配環境下で移動させることにより、単結晶テンプレートの面方位に倣った方位を有する粒界を選択的に優先成長させ、さらにこの粒界に隣接する粒界においても近い方位の粒界を優先成長させることで配向を制御するというものである。但し、焼結により得られた有限の大きさの粒界の方位を動かすほどのトルクを生むことはできないため、焼成時には第2項で示される固相反応による粒成長を併用することが必要となる。なお、この手法はTGG（Templated Grain Growth）を配向駆動力としているが、配向原理についての詳細検討はAppendix-1に示す。

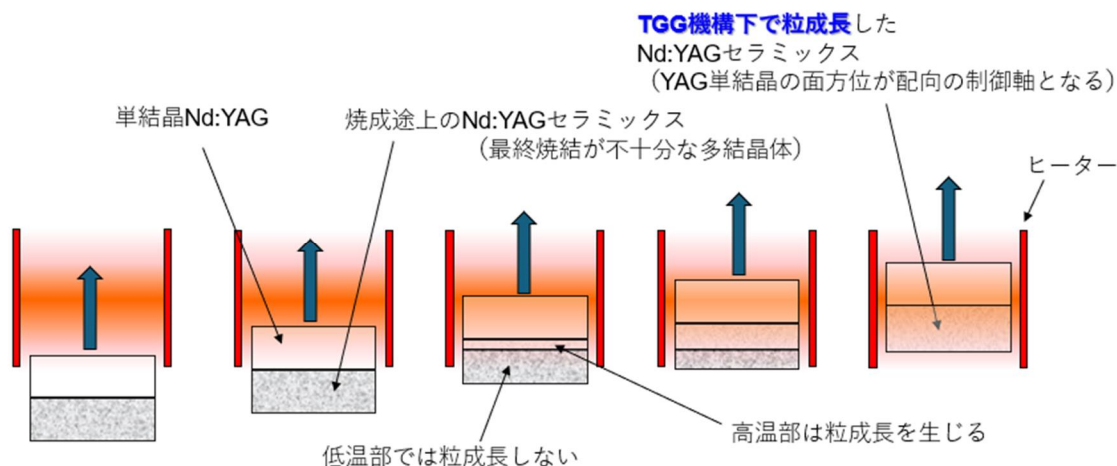


図3.5.1 立方晶系セラミックスの配向制御法の提案

令和2年度から令和6年度にかけての5年間の本プロジェクトにおいて、残念ながらレーザ発振の実現には至らなかったが、実際に立方晶系レーザセラミックスの配向制御が可能であることについて実験的に示すところまでは到達した。但し、制御の歩留まりが低いために式3.5.3に繰り込めるような配向制御原理を確立したという段階には至っていない。各年度における実施内容を簡単にまとめると、令和2年度においては卓上走査電子顕微鏡導入などセラミックス原料粉末の評価環境を整え、令和3年度においてはTGGによる立方晶セラミックスの結晶配向原理を検証するための高温雰囲気焼成炉を含めてセラミックス製造環境を整え、令和4年度においては配向駆動力が存在することを確認し、令

和5年度においては配向制御立方晶セラミックスの試作を実施し、最終年度においては配向制御立方晶セラミックスの透明化に向けた高品質化に取り組んだ。本開発項目の実際の工程表を図3.5.2に示す。

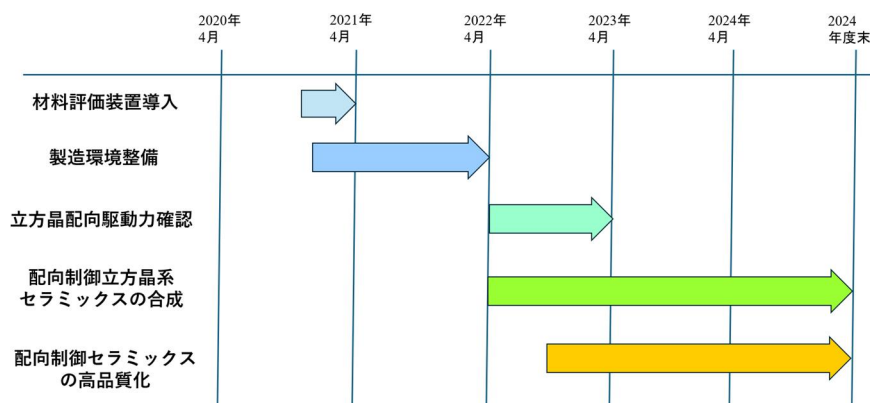


図3.5.2 配向制御YAGセラミックスの開発工程

まず令和3年度に開発した高温雰囲気焼成炉について詳細を示す。図3.5.1で示した立方晶系セラミックスの配向制御法を実現できるように、この装置においては試料の位置を制御することができる。具体的には真空炉の加熱プログラムとは別に独立したPCを用いてサーボモータ制御により試料台位置を上下方向に50 mm移動させることにより、図3.5.3で示された炉内の温度勾配内の任意の位置に固定、あるいは移動させることができる。

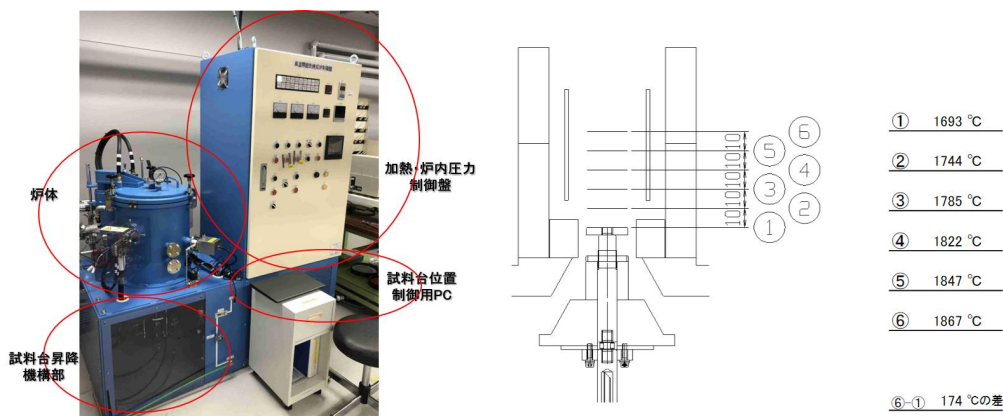


図3.5.3 高温雰囲気焼成炉および試料加熱温度の試料台位置依存性（炉内温度1900℃時）

上記の真空炉を用い、令和4年度にNd:YAGの焼成前の圧粉体と単結晶テンプレートをもとに、配向原理がうまく機能するかどうかの検証を実施した。Nd₂O₃、Y₂O₃、およびAl₂O₃粉末を1.0at.% Nd:YAGと同じ組成比で混合成形し、200MPaのCIP処理および脱脂焼成後にII-VI社製の(111)カットの1at.%Nd:YAG単結晶を乗せ、そのまま1700℃で12.5時間アルミナルツボ中に（YAG単結晶がルツボと触れるような位置関係で）設置して試料を真空焼成する（試料台の移動は行わない）。この際、成形体の焼成に伴う収縮により焼成後のセラミックスと単結晶の位置は少しずつずれてしまっている。真空焼成後は還元で試料は黒色化しているが、高温ボックス炉で温度1600℃において大気雰囲気環境で40時間アニール処理を行うことで本来の色味に戻すことができた。この試料においては、単結晶とセラミックスは強固に接合されているわけではなく、簡単に手で剥がすことができた。単結晶でセラミック焼成体と重なっていなかった部分については透明感が失われているが、

これは表面が焼成時の高還元雰囲気によりサーマルエッチングされた結果である。得られた試料の写真を図3.5.4に示す。このセラミック試料においては、図3.5.5で示される通り単結晶と接していた大部分の領域においてグレインサイズは10マイクロメートル以下にとどまっており、表面も粒界を反映した凹凸が確認された。

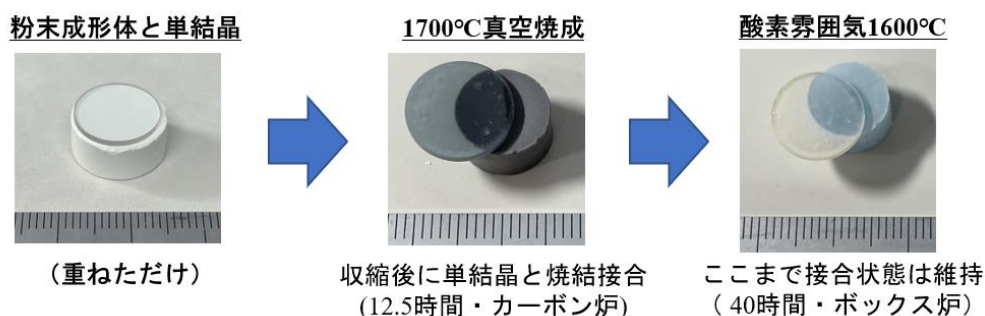


図3.5.4 Nd:YAGセラミックスの配向制御原理確認実験

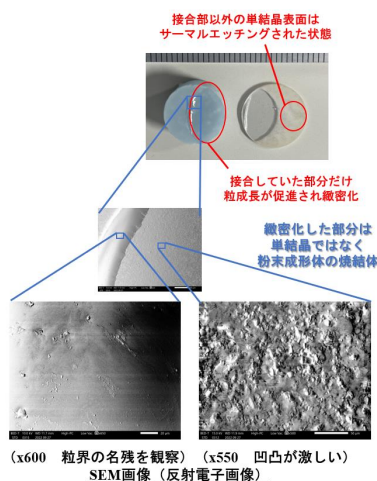


図3.5.5 Nd:YAGセラミックスの配向制御面のSEM写真

この試料につき、単結晶と接していなかった領域についてコンパウンドで目張りしたうえで（単結晶と接していた領域のみを）粉末X線計測を実施した。図3.5.6に示された $\theta-2\theta$ 法による粉末X回折計測結果から、未配向のYAGセラミックス試料に関しては最も強い(420)面の回折ピーク以外にも様々な面方位での回折ピークが検出されているのに対し、今回のYAGセラミックスにおける単結晶と接していた領域では[001]に垂直な面方位（(444)および(888)の回折ピーク）は強度を増しているのに対し、それ以外の回折ピークの強度は非常に低く抑えられていた。この結果は、単結晶テンプレートにより立方晶セラミックス（多結晶体）が配向制御されていることを示しており、すなわち立方晶系素材のセラミックスに対する結晶方位の配向制御駆動力が存在していることを実証するものである。

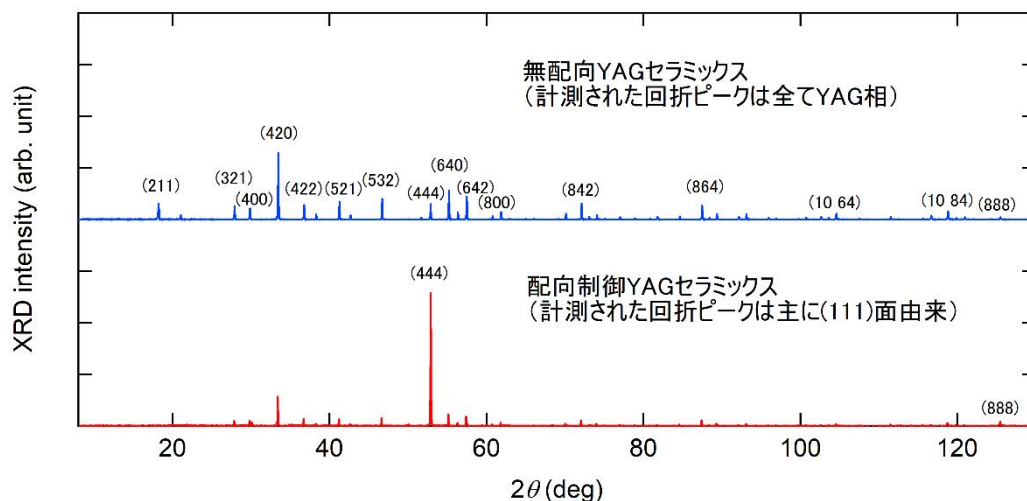


図3. 5. 6 Nd:YAGセラミックスの配向制御された領域のXRD回折強度

ここで問題となったのが、上記の高温雰囲気焼成炉が断熱材やヒーターにカーボンを用いていたため、炉内の還元性が非常に高くなってしまったことである。実際に、上記の実験で用いていたアルミナルツボはその成分をほぼ揮発させてしまう状態であり、深刻な炉内汚染を引き起こした。なお、アルミナるつぼを用いない場合、図3. 5. 7に示す通り、成形体は焼成時にアルミナ成分を揮発させ、焼成後の主成分はYAGではなく、YAP（イットリウムアルミニウムペロブスカイト）相が、さらに還元性が高い場合にはYAM（イットリウムアルミニウムムライト）相が形成された。なお、YAGの成長において還元雰囲気は大きく悪影響をもたらすことについては、本プロジェクト実施期間中である2022年に開催された応用物理学会秋季学術講演会においても信光社により報告がなされている（22a-A402-5）。

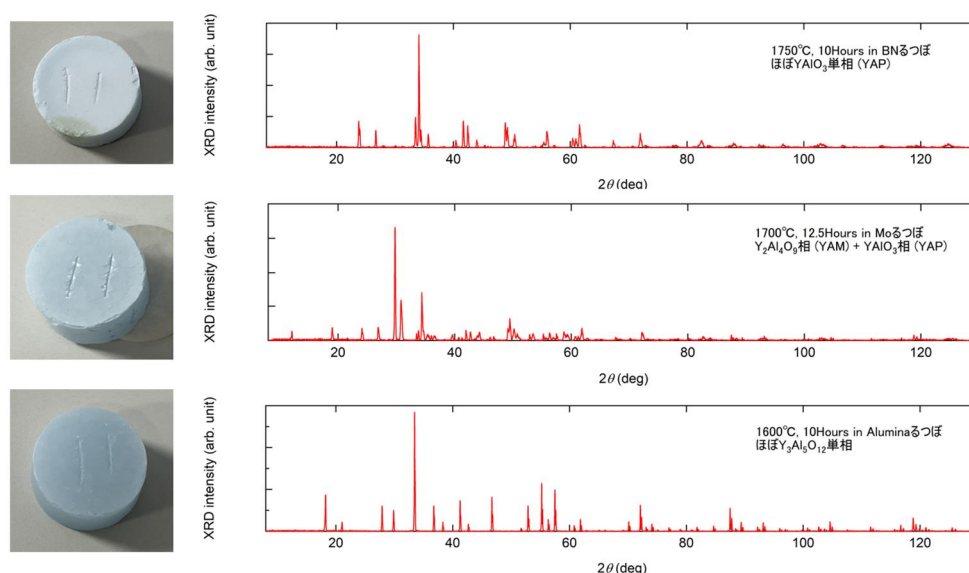


図3. 5. 7 Nd:YAG固相反応における還元雰囲気における異相形成状況

これを解決するために令和5年度において、試料をあらかじめメタル真空炉でガーネット化させたのち、試料自体を酸化物ルツボ中に封入し、この酸化物ルツボからの揮発物による炉内汚染を防止するため、試料を封入した酸化物ルツボをさらにBNルツボ内に封入したうえで焼成処理を実施するという図3. 5. 8で示されている手法を開発した。

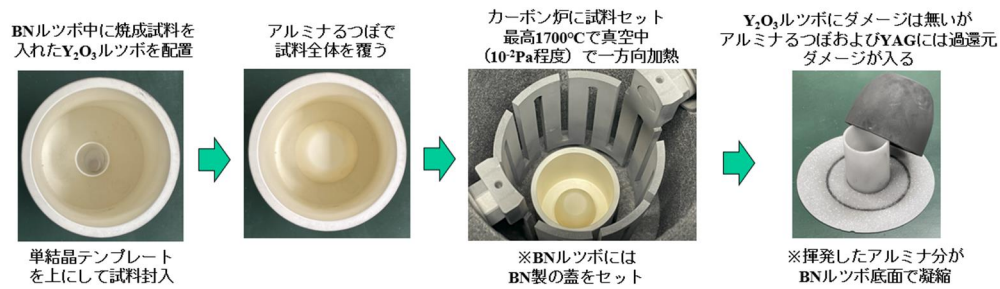


図3. 5. 8 カーボン製高温雰囲気焼成炉内での過還元雰囲気の抑制策

上記の手法において炉内汚染を低減することには成功したが、配向制御に焼成時の固相反応による粒成長駆動力を適用することはできず、なおかつBNルツボおよびアルミナルツボによる均熱効果により、試料を適切な温度勾配化に置くことは出来なくなってしまうという問題は回避できなかった。これにより、本プロジェクトの最終目的であるレーザ発振可能なNd:YAGセラミックスを得るには至らなかったが、以下で述べるとおり、厚さミリメートルオーダーではあるが、配向制御層を形成することには成功した。この試料作製における具体的なプロセスフローを図3. 5. 9に示す。

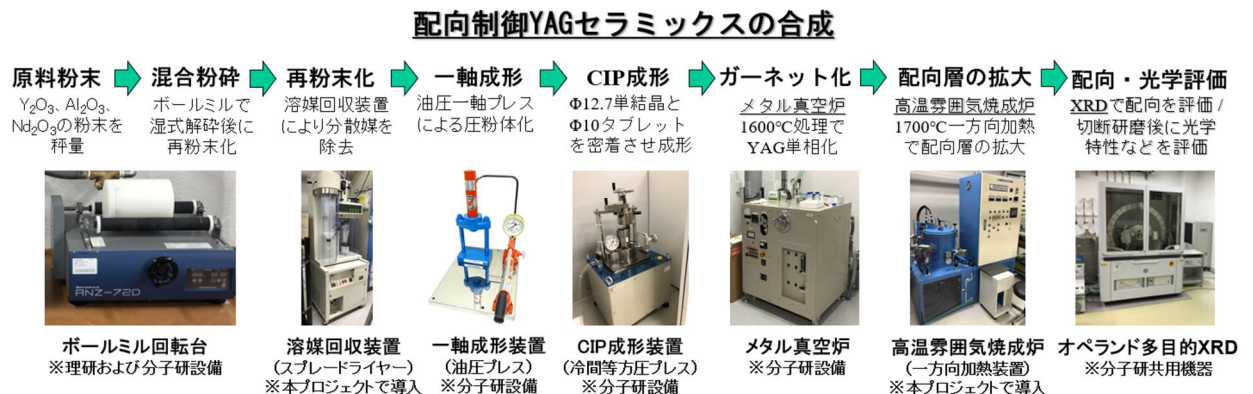


図3. 5. 9 配向制御YAGセラミックスの新規プロセスフロー

これにより得られた試料を図3. 5. 10に示す。CIPの困難さに伴う成形体中のクラックのためガーネット化された試料には多くのクラックが入っているが、セラミック試料のテンプレート結晶と密着した表面から0.5 mm程度において、明らかに他の部分とは異なった状態であることが目視で確認できる。このガーネット化された試料について一方向加熱を実施することにより配向試料が得られた、

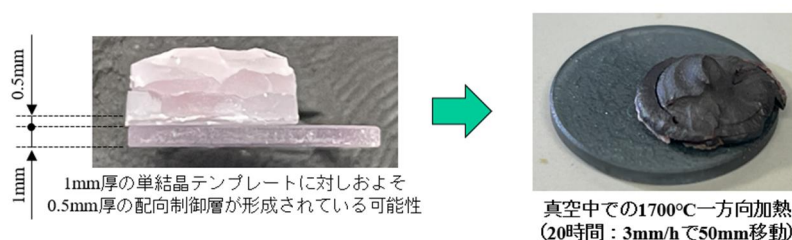


図3. 5. 10 一方向加熱による配向制御YAGセラミックスの合成

上記の配向制御試料について、テンプレート単結晶とは反対側の接していなかった面につき、粉末X線回折(XRD)で評価した結果を図3.5.11に示す。配向制御されていないYAGセラミックスにおいては、当然様々な回折ピークがスペクトル上に現れるが、配向制御されたYAGセラミックスにおいてはテンプレート結晶から0.5 mm離れた非接触面でも(444)面の回折ピークは非常に強く観察され、他の面からの回折ピークの強度は非常に低くなっている。この結果は、本プロジェクトによるYAGセラミックスがサブmm程度の厚さで配向制御されていることを示している。

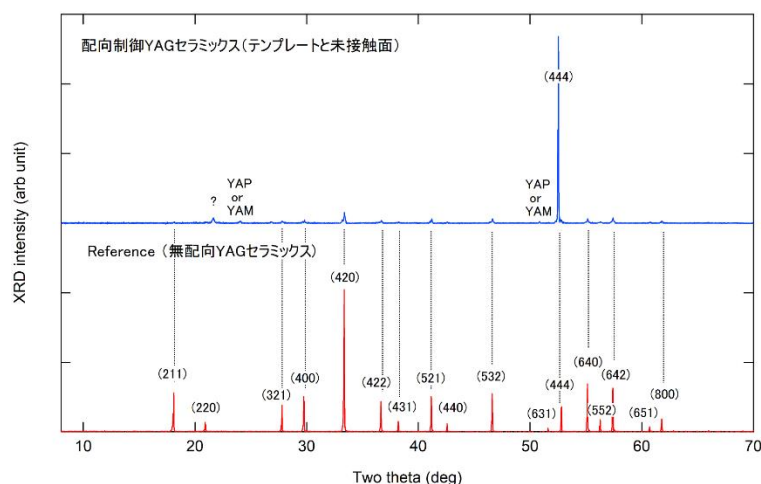


図3.5.11 配向制御YAGセラミックスと通常のYAGセラミックスにおけるXRDスペクトル比較

しかしながら、上記の試料においては到底レーザ発振を望めないため、透明セラミックスの合成プロセスに適用できる形に本プロジェクトで開発された立方晶系セラミックスの配向制御プロセスを修正する必要がある。令和6年度においては試料品質の改善ということで、不純物や異相の低減、CIP不良の防止策検討などについて検討を進めた。

まず、配向制御に関係なく試料合成において重要となる試料内に含まれる不純物や（還元雰囲気以外の不純物による）異相生成の低減については、詳細はAppendix-2において示すが、まずはSEM-EDS分析により不純物混入の原因が他のセラミックプロセスとの仕様器具の使いまわし、そして不純物を混入させやすい『ふるい』を用いていたことを明らかにして必要な対策を実施した。

次いで、単結晶テンプレートと粉末成形体の密着性を向上する手法について検討した。普通に粉末成形体を焼成することでガーネット化する際に、単結晶テンプレートと重ねあわせて焼成することで単結晶テンプレートとNd:YAGセラミックスを密着させるが、実際には図3.5.12(a)のようにごく一部だけ接合されている状況となることが多い。そこで、CIP成形されたタブレットを耐水研磨紙で手研磨することで面を平滑化した後で単結晶テンプレートと重ねあわせて焼成することを試みた（図3.5.12b）。この場合、巨視的には試料全体での接着が実現できているものの、微視的にはグレイン構造に起因した段差がなお存在している（図3.5.12c）。つまり、CIP成形後の表面状態を完全に平滑化することが必要となる。

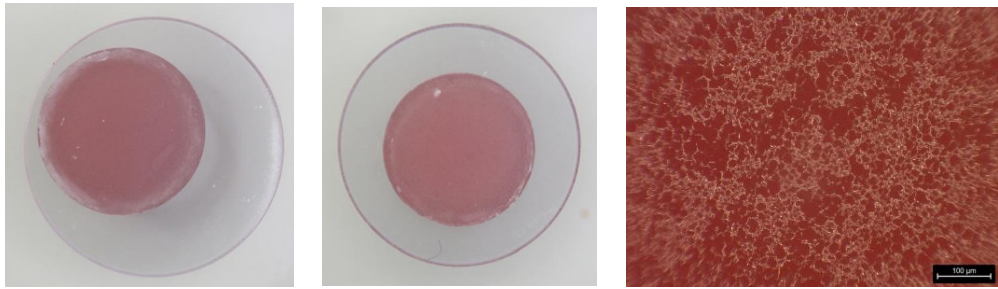


図3.5.12 単結晶テンプレートとセラミックスの密着具合
成形体の周辺部のみ密着 (a) 、試料全体で均等に密着 (b) 、均等密着表面の微細構造(c)

CIP成形後の表面状態を完全に平滑化するためには、単結晶テンプレートと粉末成形体を一体でCIP（冷間等方圧プレス：Cold Isostatic Press）成形することによる単結晶面の転写が確実な手法である。この一体成型における問題としては、CIPされた試料の非等方的な変形による単結晶テンプレートの破損、もしくは真空包装袋の破れによる試料の水浸、もしくはクラックである。この問題を解決する手段として、同じ形の粉末成形体を2つ用意し、それで単結晶テンプレートを挟み込む形で真空包装を実施する手法を見出した。ほぼ失敗なくCIP処理を実施できるようになった。

これらの品質向上策により、最終的には通常1700℃以上での真空焼成が必要とされているYAGセラミックスへの透光性付与に対し、今回適用できる最高温度である1600℃での真空焼成によりある程度の透光性を与えることに成功した。図3.5.13に1600℃で真空焼成された透光性YAGセラミックスの外観写真を示す。但し、この焼結体をもとにTGGによる配向制御を試みても、成功しなかった。理由としては焼結がある程度終了して、それ以上粒成長が進展しないセラミックスにおいては、TGGが機能しないためである。また、同様の理由により、神島化学製など既存のNd:YAGセラミックスを用いて単結晶と常温接合を行い、焼成処理しても配向制御には至らなかった。

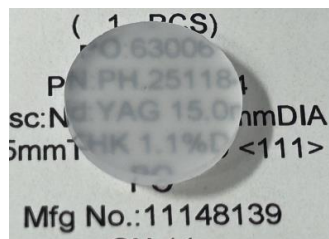


図3.5.13 1600℃で真空焼成された透光性YAGセラミックス

TGGによる配向制御の前段階まではなるべく粒成長を抑制する、という観点から、固相反応の下限温度についても調査した。従来ガーネット相は1600℃以上の焼成温度の時に安定と考えられていたが、実際にはこれは固相反応時の粉末活性に大きく依存する。我々が使用している原料粉末についてメタル真空炉での2時間焼成で確認したところ、図3.5.14に示される通り、1200℃焼成ではペロブスカイト相が主相であった。しかし、1350℃まで焼成温度を上げればペロブスカイト相がXRDでピークとして完全に確認できなくなり、ほぼガーネット相となることが判明した。従って、一方向焼成時に粒成長を促進するためには、ガーネット化の温度を従来の1600℃から1400℃程度まで下げることが望ましいと考えられる。但し、この焼成温度は融点より400℃以上低いため、焼結体と単結晶テンプレートとの接着が行われない。このため、配向制御を実施するためには焼成体を研磨の上で常温接合によりあらかじめ単結晶テンプレートと接合しておく必要がある。但し、ガーネット化されていない混合原料粉末からなる圧粉体からの温度勾配下での固相反応を併用、そしてルツボ併用では得られない局所的な温度勾配環境での一方向焼成が、立方晶セラミックスの配向制御としてはより望ましい。これを実現する

ためには還元性の強いカーボン炉による一方向加熱ではなく、1800℃での焼成が可能なメタル真空炉による一方向加熱環境が必要となる。

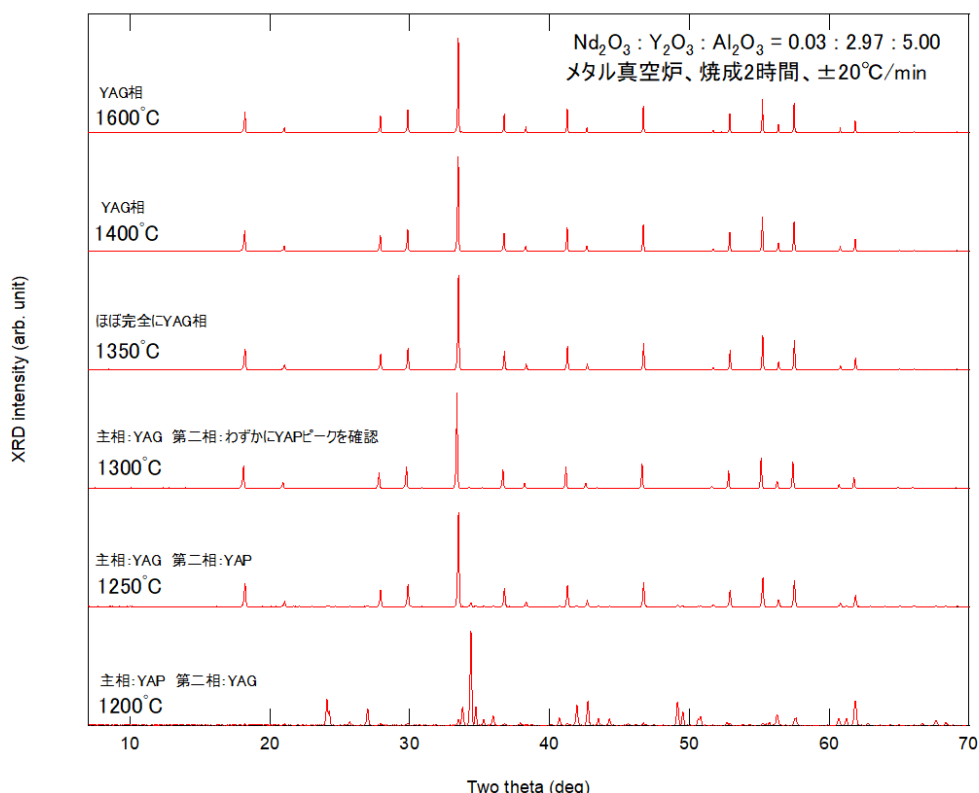


図3. 5. 14 YAG組成粉末の成形体を真空焼成した場合のXRDピーク温度依存性

最後に本実施項目の総括を図3. 5. 15に示す。まず立方晶系材料でできているセラミックスの配向制御が単結晶テンプレートの表面エネルギーを利用して可能であることを、実際にNd:YAGセラミックスを配向させることで実験的に示すことに成功した。但し、良好なレーザ特性を発現しうるバルク形状の配向制御Nd:YAGセラミックスを得るまでには至らなかった。これを可能とするための条件として

1. 配向制御のための焼成時に試料内に温度勾配を起こせるよう、ルツボなど均熱作用のあるものはできるだけ使用しない状況で一方向加熱する。
2. 真空そのものは還元雰囲気であるが、異相が出ないように、焼成時炉内の還元度は可能な限り低くしなければならない。
3. 固相反応による焼結駆動力を利用するため、粉末成形体と単結晶テンプレートをそのまま真空雰囲気中で一方向加熱することが望ましい。

が必要であることが明らかとなった。なお、本開発項目で明らかとなったYAGセラミックス合成において焼成雰囲気の還元性が高いとYAGの異相が出やすくなる点については、開発項目⑩に対してフィードバックを行った。

界面エネルギーによる
立方晶系セラミックスの
配向駆動力確認

◎ XRDにおける(444)回折ピーク強度の増大確認

界面エネルギーによる
立方晶系セラミックスの
配向駆動力の定式化

◎ 式3.5.3に基づく配向駆動力の存在は確認した
× 式3.5.3への配向原理の定式化がなされていない
× 小傾角粒界と高角界面における界面エネルギー差
に関する配向駆動力の違いについて未確認

配向制御Nd:YAG
レーザーセラミックスの
合成

○ 厚さ0.5mm程度の配向制御層は確認
× 透明化に至っていない
均熱化された温度勾配環境下でのみ合成実験実施
過還元雰囲気による異相生成
固相反応における過還元雰囲気による粒成長阻害

図3.5.15 本研究項目の総括

今後の展望としては、今回のプロジェクトで実施することができなかった、温度勾配下での固相反応を併用した立方晶セラミックスの配向制御である。理想的な状態でこれを実施する手段として、図3.5.16で示される実験配置による焼成にレーザーによる局所加熱の適用が考えられる。単結晶テンプレートに対して透明な高出力レーザーを、テンプレートと接触させた圧粉体に入射すれば、光は圧粉体を透過できないために、テンプレートと圧粉体の接触面、あるいは透明化した焼成体と未焼成領域との界面でのみ熱となり、テンプレートもしくは透明化した部分と接した領域のみを局所的に加熱することができる。これにより、今回達成できなかったレーザー発振可能な配向制御YAGセラミックスを実現することができると考えられる。

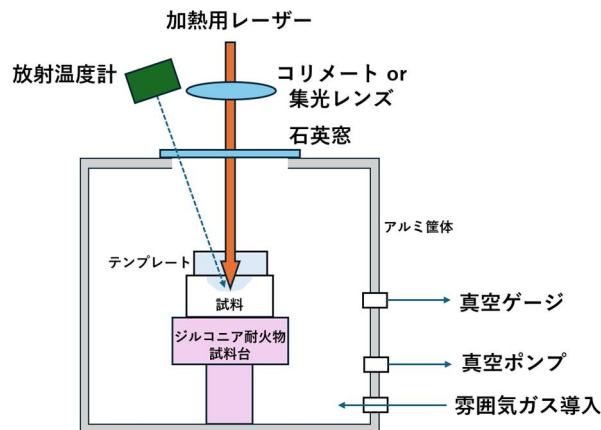


図3.5.16 レーザによる局所加熱を用いた配向制御立方晶系レーザーセラミックス合成装置

立方晶系セラミックスの配向原理について

まず、立方晶系セラミックスの配向制御を実施するための新原理を説明する。配向制御ということは配向制御対象のある領域（ドメイン）に配向トルクを加え、その角度を制御するということである。制御のためには外場からエネルギーを与えてドメインに自由エネルギー（通常の等圧環境ではギブスエネルギー G に相当する）を形成する必要がある。結晶主軸の傾きを θ 軸、主軸まわりの回転を ϕ で表せば、ギブスエネルギーが与えられたことによるドメインの配向は、

$$I \frac{d^2\theta}{dt^2} - I \left(\frac{d\phi}{dt} \right)^2 \sin\theta \cos\theta + R_D \frac{d\theta}{dt} = - \frac{\partial G}{\partial \theta} \quad (3.5.1)$$

$$I \sin\theta \frac{d^2\phi}{dt^2} + \frac{2I}{\cos\theta} \frac{d\phi}{dt} \frac{d\theta}{dt} + R_D \sin\theta \frac{d\phi}{dt} = - \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial G}{\partial \phi} \quad (3.5.2)$$

で与えられる。但し、 I はドメインの主軸周りの慣性モーメントであり、 R_D は回転に対する抵抗を表す。問題なのは G をどのように与えるかである。様々な外場により与えられる G の変化 dG は

$$dG = -SdT + \sum_i \mu_i dN_i - \sum_i V_i \gamma_{GB} d\left(\frac{1}{r_i}\right) - V \sum_{i,j} \varepsilon_{ij} d\sigma_{ij} - \mathbf{P} \cdot d\mathbf{E} - \mathbf{M} \cdot d\mathbf{B} \quad (3.5.3)$$

で表される。上式右辺の第一項から第六項まで、順にエントロピー項、化学ポテンシャル項、表面エネルギー項、応力応答項、電場応答項、磁場応答項となっている。ここで第3項の表面エネルギー項は本プロジェクトの基盤技術である常温接合の駆動力そのものであり、また第4項の応力応答項は開発項目⑥における水晶の分極反転形成に、第5項の電場応答項は開発項目⑬のPPMgLNの分極反転形成に、そして第6項の磁場応答項は開発項目④の異方性セラミックスの反転制御に、それぞれ用いられている。

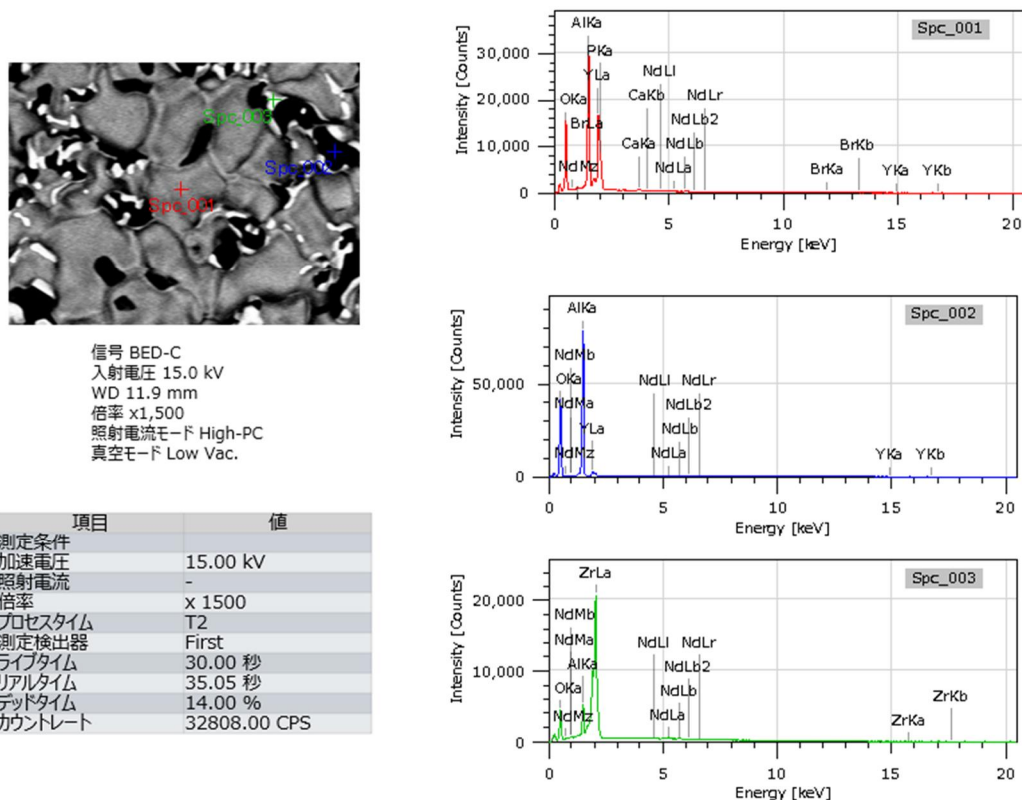
上式で示される各項で、立方晶系においても異方性を持っている項は第3項と第4項である。しかし、第4項で発現される異方性はゼロではないがそれほど大きいものではなく、実際にホットプレスで（異方性材料ならばあるが）立方晶セラミックスが配向制御されるという報告は過去には無かった。第3項で示される異方性を用いた立方晶セラミックスの制御としては、いわゆるTGG（Template Guided Growth）と呼ばれる手法がある。これは、セラミックスの異常粒成長を利用して、セラミックスをテンプレート結晶と同じ方位を有する単結晶化しようというものである（日本結晶成長学会編 結晶成長ハンドブック 共立出版株式会社（1995），p. 343）。しかし、項目⑤で対象としている立方晶はYAGであり、異常粒成長が起きにくい材料系として知られている。

ここで、式(3.5.3)における粒界エネルギー γ_{GB} は両側の結晶の方位に差があるほど大きくなるため（W. T. Read and W. Shockley, Phys. Rev. **78**(3) 275 (1950).）、第3項により生じるトルクは立方晶においてもセラミックスの配向駆動力となりうる。本プロジェクトにおいては、この配向駆動力を用いて、（単結晶化ではなく）TGGを用いてのセラミックスの配向制御が可能ではないかと考えた。

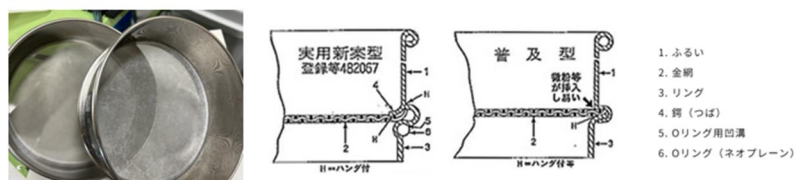
開発項目⑤付録-2

試料内不純物・異相生成の低減について

令和2年度に導入した卓上走査電子顕微鏡を用い、反射電子像における何点かをエネルギー分散分光（EDS）により不純物の同定を行った。下図に示される通り、YAGの組織中には不純物はCa、Lu、Gd、Zrなどの不純物イオンが多く含まれていた。これらのコンタミネーションは、まずZrについては原料粉末解砕時に用いていた解砕用ジルコニアボール由来であることは明らかであり、粉碎媒体をジルコニアボールからアルミナボールに変えることで不純物の低減を図った。また、他の元素は、本プロジェクト以外で開発を進めていたプロセスからの混入であると考えられる。



実際には、スラリーなどのふるい分けに使う『ふるい』がコンタミの発生源であり、それを汚染源が混入しにくい実用新案型ふるいをを用い、さらにプロセス間でふるいを共用しないことで不純物をほぼゼロにすることに成功した。



⑥ 局所加熱・応力印加による極性制御法の開発（担当：理化学研究所）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

応力印加を介した水晶の極性制御（STAMP法）によるQPM水晶の実現には、数百℃の高温下で数百MPの高荷重に耐えうる加重印加板（QPMパターンに応じた凹凸を有する板、STAMP）を作成する必要がある。初期検討では、そのための真空蒸着装置（図3.6.1）導入、および光リソを利用した加重印加板の構築手法を検討した。図3.6.2に、実際に作成した周期70ミクロンの加重印加板のZygoによる構造観察例を示す。凸部高さ～0.5ミクロン、凸部幅～20ミクロンの凹凸構造が高品質に形成出来ていることがわかる。



図3.6.1 真空蒸着装置

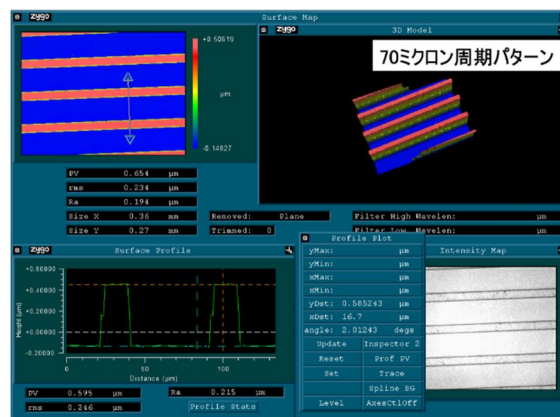


図3.6.2 試作した加重印加板パターン（周期70ミクロン）

実際の応力印加では、既存の手動式の加熱加圧装置を置き換え、プロセスの高精度化と再現性向上を可能とする、プログラム制御式の精密加熱加圧装置を導入した（図3.6.3）。この装置は、水晶の相転移温度～573℃に対し、最高温度400℃まで最大200kNの加圧処理が可能である。これと並行して、加重印加板の短周期化や高精度化を行い、SHG緑色光発生に適した周期41ミクロンで凹凸部比が1：1に近いものを作製した（図3.6.4）。



図3.6.3 精密加熱加圧装置

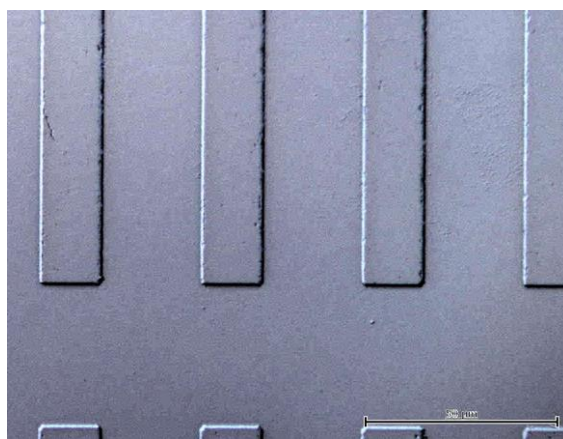


図3.6.4 加重印加板パターン（周期41ミクロン）

上記検討を元に、精密加熱加圧装置および加重印加板を利用して水晶板の極性反転を試み、加重印加板パターン周期41ミクロンに応じた反転構造を水晶板上に形成することに成功した（図3.6.5）。この写真は、反転部と非反転部のエッチングレート差から可視化できているものである。中央の凹凸は、パターン周期41ミクロンの構造が意図した通り形成できていることがわかる。しかしその一方で、パターンが潰れたベタ反転域やパターン未形成、あるいは不均一な領域も依然として存在しており、さらなる応力印加条件の最適化が必要であることも判明した。

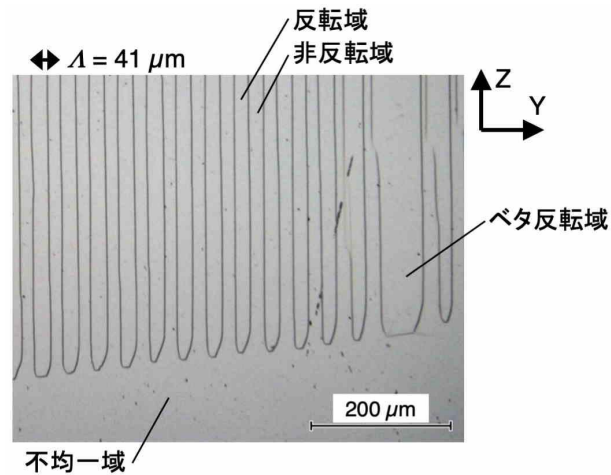


図3.6.5 試作した反転構造パターン（周期41ミクロン）

極性制御が不均一／不安定性となる原因の一つとして、極性反転を行う水晶自体の特性確認が不十分であると考え、項目⑬や⑭において水晶の特性比較を並行して実施している。しかし、材料特性と反転特性との関係に関しては、反転特性との関係性に関する検討がさらに必要である。

上記を踏まえ、本項目のさらなる改善では、紫外光発生に適した短周期QPM水晶を目的に、

- ・ 高次QPM構造の利用
（3次QPM周期で10μm程度）
- ・ 深さ方向で0.1mm程度の構造形成
（水晶の高耐久性から、小口径でも高エネルギーレーザパルス取扱可能）
- ・ Yカット基板の反転、結晶Z軸伝搬の利用
（反転形成の容易な方位の利用、ただし出力光の偏光特性に難点あり）

などによりSTAMP法の最適化を図りつつ、項目⑬および⑭で進めた材料およびQPM特性評価と合わせることで実用的なQPM水晶を実現できる。

以上のように項目⑥では、図3.6.6にまとめるように、STAMP法を利用したQPM水晶の検討を行った。さらなる改善が必要な状況であるが、今後の研究指針などは確率されており、水晶の特性を活かした短波長光（紫外光）発生用QPM素子実現の指針を得た。

項目⑥ 局所加熱・応力印加による極性制御法の開発

- ・ 加重印加板凸凹パターン短周期化により、周期41ミクロンの反転構造水晶を実現
- ・ 極性制御の均一性や安定性改善の問題点を確認
- ・ 今後の改善に向けた指針を得た

図3.6.6 項目⑥まとめ

⑦ 新たな LIDT 測定手法とレーザ描画手法の開発(担当：理化学研究所)

	令和2年度	令和3年度	令和4年度	令和5年度	令和6年度
新たなLIDT測定手法の開発					
材料探索の立場からのLIDT評価法検討					
接合レーザ材料LIDTの予備評価					
LIDT測定の標準手順化					
新たな評価手法の検討と適用					
測定手法、評価手法の高度化					
総括まとめ					

[研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果]

LIDT測定体系の構築

令和3年度にかけては、材料開発の立場からのレーザ誘起損傷閾値（Laser Induced Damage Threshold：LIDT）評価法の検討と接合レーザ材料のLIDT予備評価を実施し、その結果を本研究課題の実施項目⑱において開発するLIDT計測装置へ展開した。

LIDT評価では、これまでに開発したGain Aperture Microchip Laser（パルス幅590ps、最大出力エネルギー5mJ、ビーム品質 $M_x^2=2.6$ 、 $M_y^2=2.0$ ）において予備的な評価を行なった（図3.7.1）。実験ではレーザ出力を直径 $24\mu\text{m}$ に集光し、順次フルエンスを上げながら、アモルファスなど中間層を介した表面活性接合法（il-SAB）により常温接合したチップの表面、バルク内部、更に接合界面に照射し、損傷確率を評価することでLIDTを調べた（図3.7.2）。その結果、接合界面のLIDTは表面の値に比べ十分に高く、Nd:YAG結晶内部の値とほぼ同程度の $113\pm 2\text{J}/\text{cm}^2$ を得た。さらに、アニーリングすることで接合界面とバルクそのもののLIDTが改善しており、PowerChipを構成するレーザセラミックスや接合界面の強靱化が検証できた。

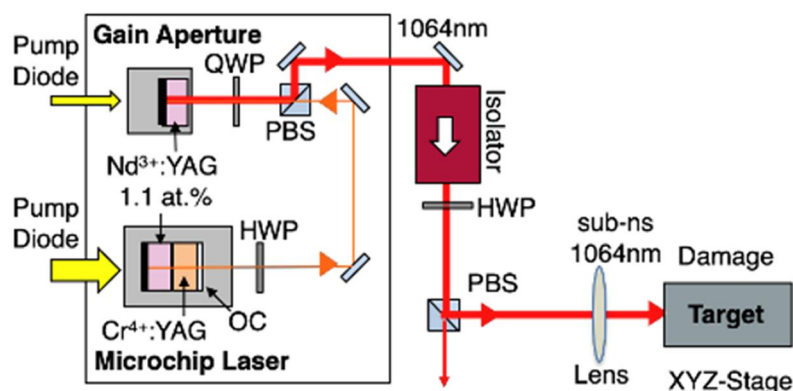


図3.7.1 LIDT評価の光源構成（GA-Micro Laser）

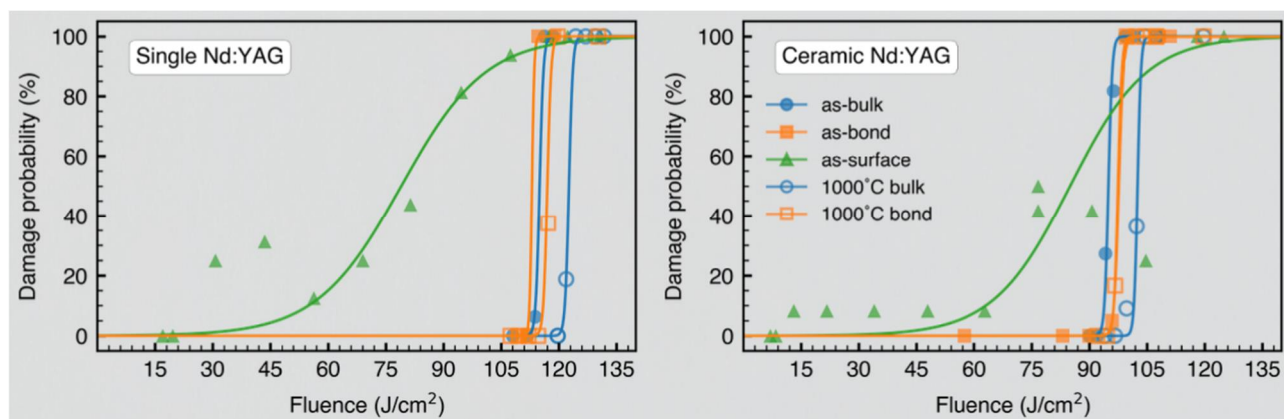
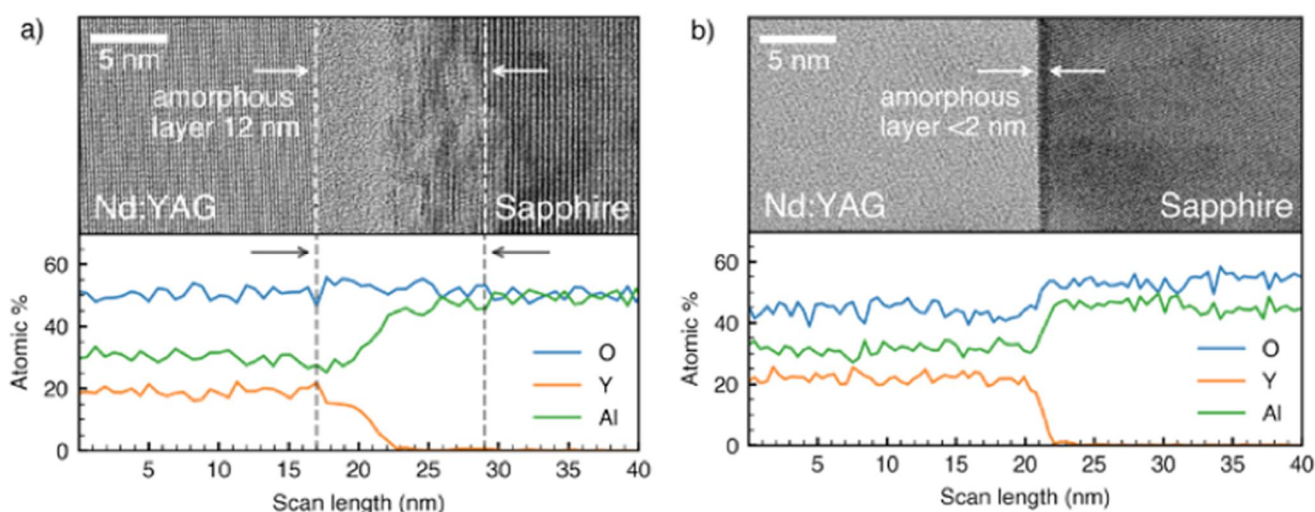


図3.7.2 il-SAB接合チップの表面、バルク内部、接合界面のLIDT

図3.7.3(a)に、Nd:YAGと Al_2O_3 をil-SABにて常温接合した場合のTEM像（上段）とEDX解析結果（下段）を示す。この場合、接合界面のアモルファス領域12nm程度に亘ってYはNd:YAG層から Al_2O_3 層に至るまでに連続的に増加し、一方、Alは連続的に減少していた。次に、この接合チップを1000°Cで24時間アニールしたところ、図3.7.3(b)に示すようにアモルファス領域は2nm以下に減少し、Yは急峻に減少、Alは急峻に増加した。なお、アニーリングにより接合界面の機械強度が改善されることは報告されているが、レーザー損傷に対する特性評価はなされておらず、今回の評価が初めての報告となった。



(a) アニール前

(b) アニール後

図3.7.3 Nd:YAG/Sapphire接合界面のTEM像とEDX解析結果

測定手順の標準化

令和4年度には、実施項目⑱で開発したLIDT計測装置（自動損傷評価システム）を用い、LIDT測定のための標準プロトコルを定め、測定手順の標準化を行なった。図3.7.4にLIDT測定の体系を示す。

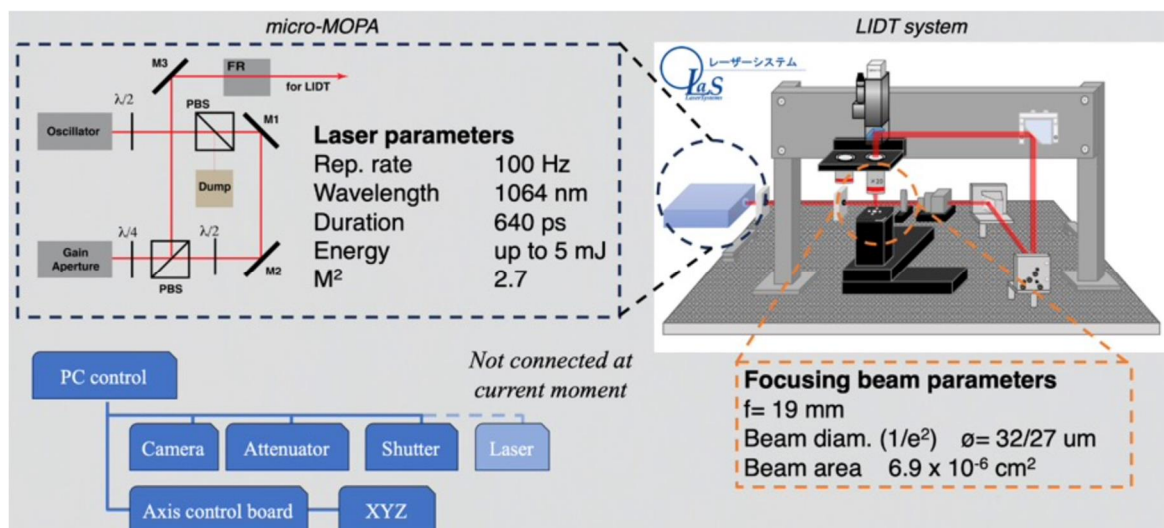


図3.7.4 LIDT測定体系（一例）

今回使用したレーザには令和3年度までと同様に1064nmで発振する受動Qスイッチ型GA-Micro Laserを採用している。繰り返し周波数は100Hzとなっており、パルス当たり5mJ以上のエネルギー出力を得られる。パルス幅は640ps、ビーム品質を示すパラメータ M^2 は2.7である。レーザは、小開口からのビーム広がりによる干渉縞の発生とそれによる減衰を抑制するために平行光化した後、LIDT計測システムへ導入している。レーザは焦点距離 f が19mmの両凸レンズを用いて最終的に $27\mu\text{m} \times 32\mu\text{m}$ の楕円スポットに集光される。スポット形状が楕円であるのは、元のビームがわずかに楕円形をしているからである。

測定プロトコルとしては1点あたり500ショットの手続きを採用し、レーザのオンオフを繰り返すとマイクロチップレーザの出力強度が不安定になるので、我々は計測の信頼性を向上させるため、機械的シャッターを導入した。レーザの繰り返し周波数が100Hzであることから、計測時に500ショットのパルスを試料に照射するため、シャッターの開放時間は5秒とした。電動ステージに取り付けられた試料は、入射するレーザビームに垂直な平面内で、照射位置を0.5mm刻みで動かす。つまり、ある地点で500ショットのレーザを照射した後新たな照射地点へ横移動するということである。このとき、レーザのフルエンスは一定に保たれている。レーザ照射の平面内で縦横の方向は任意であるが、便宜上一定フルエンスで特定の向きへ動かし続ける方向を横、それに垂直なフルエンスの変更を伴う方向を縦とする。試料のサイズやフルエンスに応じて、それぞれのフルエンスで5から15地点で500ショット照射を繰り返す。所定の点数で照射が完了すると損傷した点の数に応じて損傷確率が(自動的に)算出される。損傷は白色プラズマの発生、またはIRセンサーカード上の散乱光パターンにより判断される。その後フルエンスを変更し、新たな地点へ縦移動する。一連の計測の後、試料の損傷は微分干渉顕微鏡を用いて確認され、以下のシグモイド型関数(式3.7.1)で表される損傷確率分布曲線 $P(F)$ として図示される(図3.7.5)。

$$P(F) = 100 - \frac{100}{1 + (F/F_{50\%})^p} \quad (\text{式 3.7.1})$$

ここで、 F はある損傷確率 P を計測したときのフルエンス、 $F_{50\%}$ は損傷確率が50%となるときのフルエンス、そして p は損傷確率変化の急峻さを、それぞれ示すパラメータである。我々の計測におけるLIDT値とは、損傷が見られないフルエンスの最大値と、損傷が起り始めたフルエンスの中間値を表す。閾値を精度良く求めるためには、測定点数をできるだけ多くとることが望ましい。LIDT測定のプロセスフローは図3.7.6のようになり、試料のサイズや測定者の熟練度にもよるが、概ね試料1つの測定には30～60分の時間を要している。

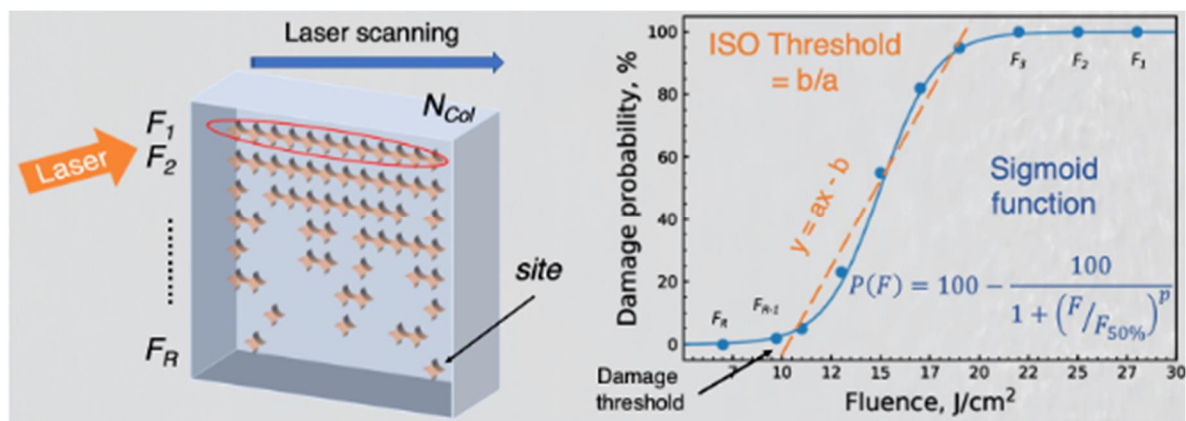


図 3.7.5 レーザ集光位置捜査による損傷フルエンス閾値の測定評価

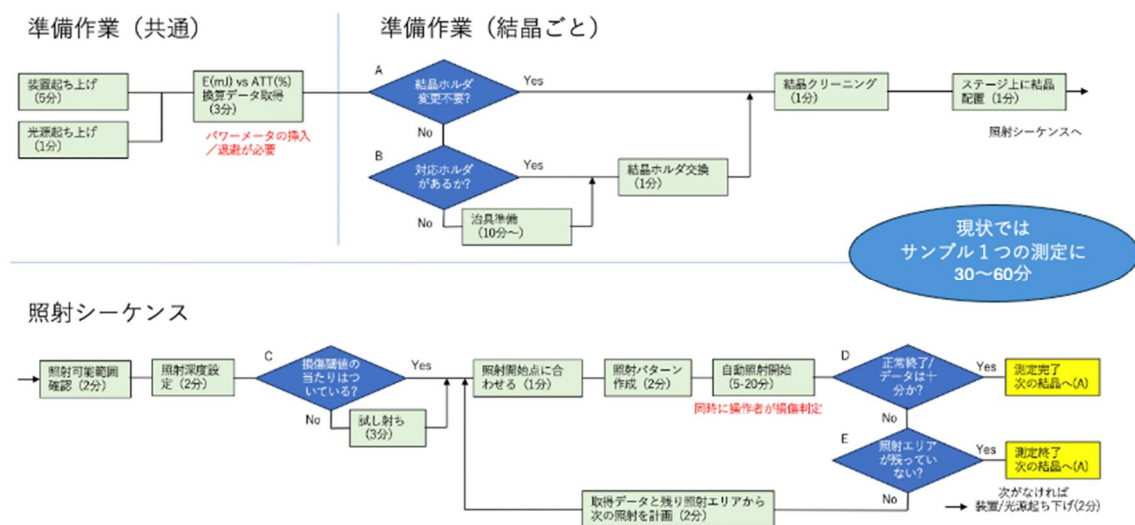


図 3.7.6 LIDT 測定のプロセスフロー

新たな評価手法の検討と適用

次世代レーザ材料の開発において、材料の表面粗さに起因するレーザ損傷耐性の劣化改善が課題の1つであり、表面処理法、表面改質方法について本研究課題の中でも検討を行っている。一方で従来の損傷閾値の評価では、レーザフルエンスに対して損傷確率を線形近似して損傷閾値を求めるため、被照射材料のレーザ耐性そのものの以外の損傷要因が混在した場合に正しい評価ができない場合がある。また、損傷閾値の評価はできても、現状からレーザ損傷耐性の劣化改善がどの程度まで見込まれるかは判別できていない。そのため、LIDT測定環境が構築できた令和5年度からは新たな損傷閾値評価方法を検討し、実際の測定データに適用して評価方法の有効性を確認した。

LIDTは前述の計測方法などで求めた損傷確率をレーザフルエンスの関数として線形近似した際に、確率0%となる値とするのが従来の方法である(図3.7.5参照)。しかしながら、実際に損傷確率のデータを取ると、材料の不均質に起因するレーザ損傷耐性の劣化があることから低フルエンス側での損傷頻度が高くなり、線形近似ではLIDTが低く見積られる(場合によってはマイナスの値になる)ことがある。一例として熔融シリカの損傷確率測定結果を図3.7.7に示す。材料表面に集光した場合の損傷確率について損傷が発生したデータ点は19.1 J/cm²であるが、最小二乗法による線形近似で表面LIDTを算出すると3.4 J/cm²となり、ほぼゼロに近い。線形近似で損傷確率が100%となるフルエンスは実測値やバルクの値を大きく超えており、従来方法での評価は適さない。

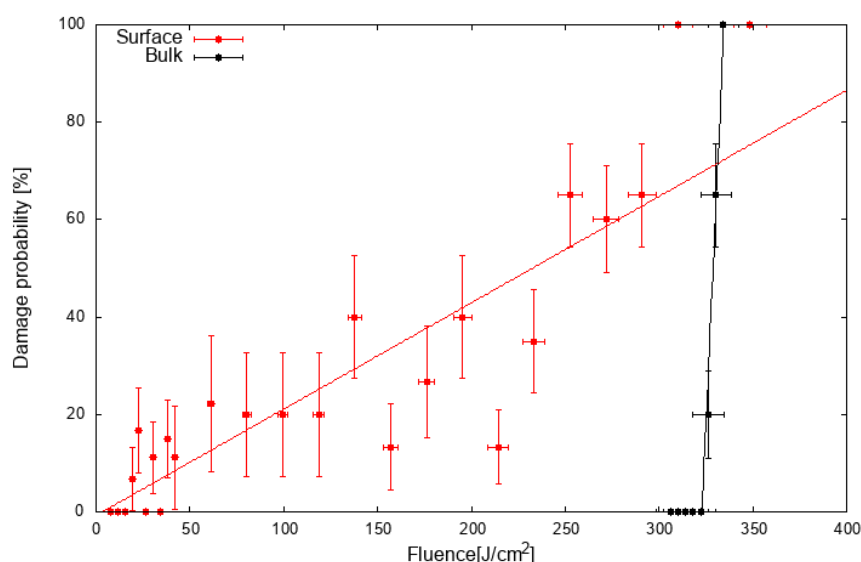


図 3.7.7 溶融シリカの損傷確率測定結果（線形近似）

また、材料開発・選定の面からは材料のポテンシャルとして損傷耐性がどの程度なのかも重要であるが、従来の方法では損傷耐性劣化がある場合の定量評価ができていなかった。そこで、以下のように損傷要因が顕在化するモデルを考え、損傷確率測定結果の評価方法を再検討した。

局所的なレーザ耐性劣化部が分布している材料にレーザ照射する場合のイメージを図3.7.8に示す。ISOではLIDT測定の際の集光ビーム径は $200\mu\text{m}$ 以上を要求しているが、我々は集光径 $30\mu\text{m}$ 程度のレーザを使用しているため、レーザ耐性劣化部を回避して照射される可能性が高くなる。もし他の劣化要因がなければそのスポット位置での損傷は材料本来の耐性による限界値まで生じない。そこでレーザ損傷が生じる確率密度関数を図3.7.9(a)のように表面粗さや欠陥等の耐性劣化要因による部分と材料本来の耐性による部分に分けられると仮定し、図3.7.9(b)のように損傷確率測定データを2つのシグモイド型関数を用いたフィッティングにより評価した。ここで標準型のシグモイド関数として以下を採用し、

$$f(x) = \frac{1}{1+\exp\{-a \times (x-b)\}} \quad (\text{式3.7.2})$$

ダブルシグモイド関数による評価を、

$$f(x) = p \times \frac{1}{1+\exp\{-a_1 \times (x-b_1)\}} + (1-p) \times \frac{1}{1+\exp\{-a_2 \times (x-b_2)\}} \quad (\text{式3.7.3})$$

で行った。ここで、 p は各損傷要因による損傷確率、 a_n と b_n は n 番目のシグモイド型関数における傾きと中点を与えるフィッティングパラメータである。シグモイド型関数を令和4年度までのフィッティング関数（式3.7.1）から見直した理由は、標準型のシグモイド関数（式3.7.2）の微分は $f'(x) = a \cdot f(x) \cdot (1-f(x))$ として解析的に得られるため、フィッティング結果から容易に図3.7.9(a)のような確率密度関数での表現が可能だからである。

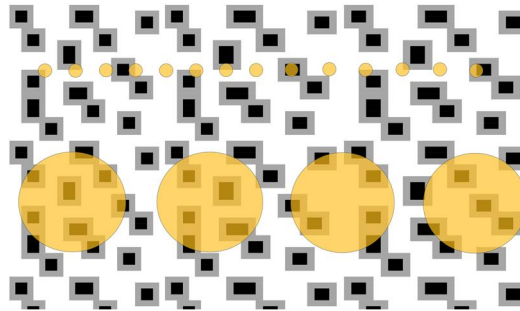


図3.7.8 レーザ耐性に対する局所的な不均質性がある材料への照射イメージ

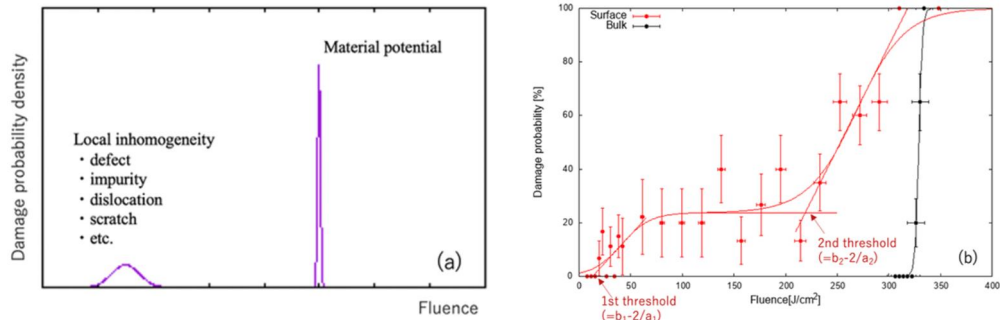


図 3.7.9 レーザ損傷要因を分けて評価した溶融シリカの損傷確率測定結果：
左図の確率密度関数を仮定しシグモイド型関数によるフィッティングを実施

レーザ損傷要因を切り分けて評価することで損傷閾値は 13 J/cm^2 、材料本来の耐性に基づく損傷閾値は 219 J/cm^2 となり、損傷確率 100%に至るまでのデータ点に対するフィッティング精度の向上も確認できた。このように材料が本来持つ耐性や耐性劣化度合いを定量的に比較評価できることは材料開発において非常に有用であり、本研究課題における根幹とも言える高耐性の DFC-PowerChip 開発に大きく貢献した。ここでは LIDT 評価手法適用例として 4 種のサファイア基板のバルク LIDT 比較測定、評価結果を図 3.7.10 及び表 3.7.1 に示す。D 社サファイア基板の LIDT が突出して高いことは言うまでもないが、A 社と B 社のサファイア基板についての相関があることなども見出せる。

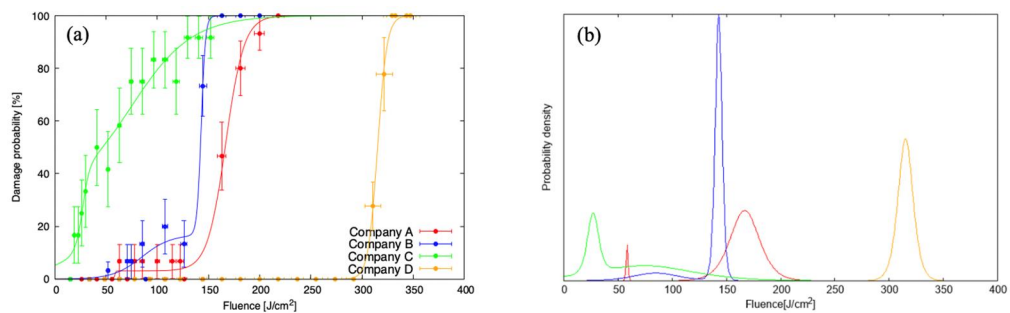


図 3.7.10 サファイア基板のバルク LIDT 比較

表 3.7.1 サファイア基板バルク LIDT 測定結果

Manufacturer	1st damage threshold [J/cm^2]	2nd damage threshold [J/cm^2]
Company A	57.3	148.9
Company B	56.8	138.8
Company C	15.1	20.2
Company D	-	306.0

測定・評価手法の高度化

令和6年度は、LIDT 測定・評価手法の高度化を進めた。本研究課題の成果もあり、レーザ耐性の高い材料でその限界（バルク）に迫る表面や接合界面 LIDT が得られるようになったことで、高フルエンス域での LIDT 比較が重要となったため、システム面ではレーザ安定性を常時確認するモニタリング機能や試料表面あるいは界面からの戻り光に対する光アイソレーションの強化を実施した。図 3.7.11 のグラフはサファイア基板の表面損傷確率を光アイソレーション強化前後で測定比較したものである。グラフ中のフルエンスの値は、光源出力が試料照射前確認時から変わらないことを前提にエネルギー減衰器（アッテネータ）の設定から換算した値であるが、戻り光の抑制が不十分であると光源の不安定化を招き、実際の試料照射中のフルエンスが低下する。我々の扱うレーザ材料が高品位になったことでこのような問題が生じることが改めて確認された。

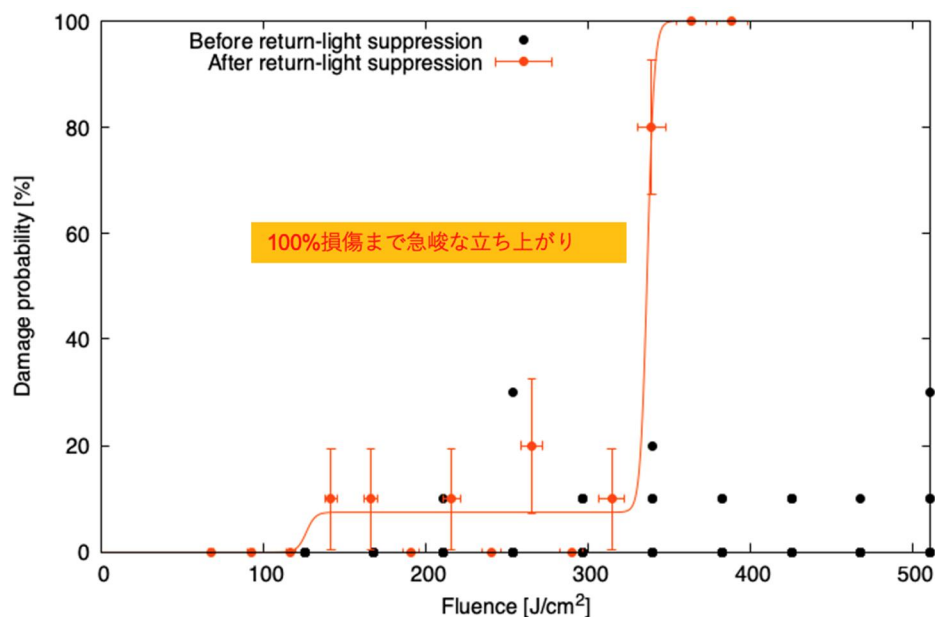


図 3.7.11 サファイア基板の表面損傷確率測定結果

また、実用に即した接合条件の最適化を進める上では、我々が DFC-PowerChip あるいは QPM-PowerChip として使用する厚さ 1mm 程度以下の基板で接合界面の LIDT を評価する必要がある。(1)ターゲット層以外での損傷を避けること、(2)ターゲット層の深さに正しく集光することが必要となるが、(1)については焦点距離の短い集光レンズを使用したことと、当初よりもビーム品質の良い光源 (M^2 が 1.5 程度) に調整し直したことで、レイリーレンジ（フルエンスが半分になる距離）を短くした。図 3.7.12 は実験に使用した集光系でのレイリーレンジを示しているが、Nd:YAG、サファイアでは 0.4mm 程度となる。これにより、接合界面に集光した際に表面及び裏面での不要な損傷を抑えることができ、更に我々の開発した LIDT 評価手法により損傷要因の分離評価も可能である。(2)については集光距離を短くしたことで精密な照射深さの調整が要求されるが、図 3.7.13 のように手順を定め、再現性を確認した上で実験データの取得を行った。

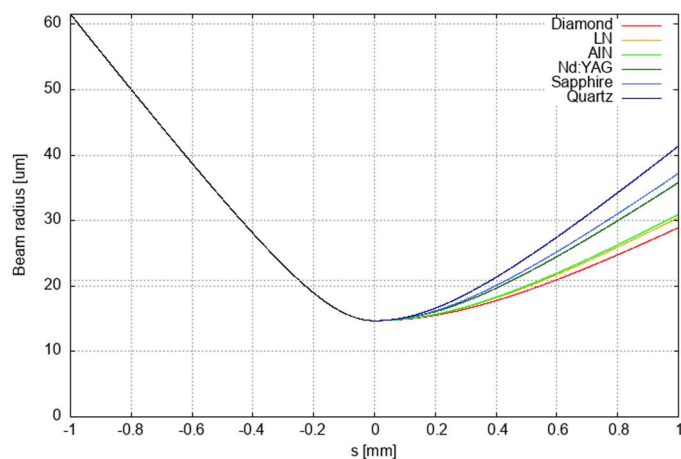


図 3.7.12 実験に使用した集光系から計算した各結晶内でのビーム径の変化
S=0 を結晶界面としている

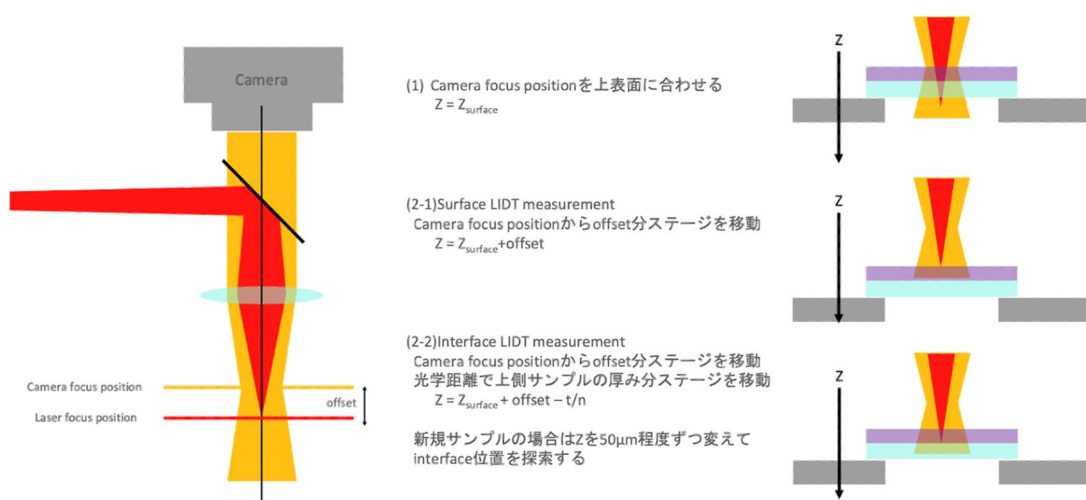


図 3.7.13 材料表面及び接合界面への集光位置調整手順

本実施項目での取り組みは、令和6年度において関連する実施項目の突出した成果として結実した。表面及び接合界面 LIDT の測定・評価の高度化は、表面処理法の違いによる基板表面 LIDT に有意な差の発見につながり、次世代レーザセラミックスに適した表面処理法の開発（実施項目③）に大きく寄与した。また、実用に即した接合条件を LIDT 評価結果に基づく表面処理のプロセス改善から見出したことで、接合界面強靱化の検討（実施項目②）においては、図 3.7.14 に示すように室温による Nd:YAG とサファイアの異種材料接合でレーザ耐性 $100\text{J}/\text{cm}^2$ クラスの接合界面を得ることに成功した。

LIDT measurement (Nd:YAG/Sapphire interface)

Laser specification
Operation mode : Pulse 896 ps
Wavelength: 1064nm

Material : Cer. Nd:YAG/Sapphire bonding

Cer. Nd:YAG

Size: 8 mm x 8 mm

Thickness: 1.0 mm

Sapphire

Size: ϕ 25.4 mm

Thickness: 2.0 mm

Irradiation direction

→ Sapphire/Nd:YAG →

Nd:YAG とサファイアの異種材料接合で
接合界面 LIDT $100\text{J}/\text{cm}^2$ 以上
(Nd:YAG セラミックス Bulk 相当)
を得ることに成功

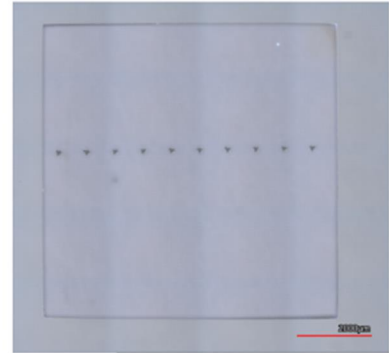
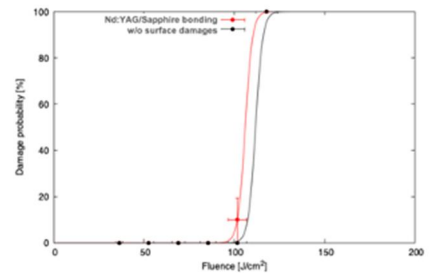


図 3.7.14 Nd:YAG/Sapphire の接合界面 LIDT 測定結果

まとめと今後の展望

目標 : DFC-PowerChip 及び QPM-PowerChip に求められる材料探索、プロセス開発を行うための LIDT 測定手法確立

成果 : 当初は LIDT 測定手法を中心に開発を進めてきたが、評価手法にも踏み込んだ開発を行ったことで、LIDT 測定による単なる材料評価（検査）に留まらず、損傷要因の推定やレーザ耐性改善に繋がる革新的な評価プロセスへと発展させることができた。結果として、レーザ耐性 $100\text{J}/\text{cm}^2$ クラスの DFC-PowerChip (Nd:YAG/サファイア接合) 及び QPM-PowerChip (接合水晶) 実現の目処が立った。

課題 : レーザによる損傷状態の評価は測定者のスキルに依存する面がある。蓄積したデータから損傷状態を分類し自動識別するなど、汎用化、自動化が社会実装を考えた場合の課題である。

⑧ DFC-PowerChip を利用した UV レーザによる表面処理・素子育成系構築（担当：理化学研究所）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

・ Introduction

パルスレーザー堆積法（pulsed laser deposition (PLD)）の利点の一つは、多成分系薄膜において組成比の制御が容易である点にある。この特性は、IrCe や MgB_2 のように蒸発温度の大きく異なる元素を含む材料の作製において特に有効であり、PLD は先端機能性材料の開発手法として有望視されている。さらに、PLD ではターゲット材料の化学組成を高い忠実度で薄膜に転写できるため、複雑化合物やセラミックス材料においても均一な薄膜成長が可能である。

PLD は高い堆積速度を有し、試作評価までの時間を短縮できるうえ、基板温度も比較的強く抑えられる。得られる薄膜の均一性や密着性も良好であり、光学・電子デバイス用の高機能膜形成に適している。加えて、プロセス自体が簡便かつ柔軟性に富み、多様な材料系への適用可能性を有している。

プロセスパラメータを自由に設定できる点も PLD の大きな特徴である。これにより、多層構造やヘテロ接合構造の作製が容易であり、使用するターゲット材料にも制限がない。複数ターゲットの切替えによる成膜も可能で、多様な材料ニーズに対応できる柔軟性を備えている。また、PLD では UV 領域のパルスレーザーを用いてプラズマを生成するため、環境負荷が少なく、操作性にも優れている。環境配慮型かつ制御性の高い製造プロセスとして、今後の薄膜製造分野における有力な手法と位置付けられる。

現在一般的な PLD システムでは、KrF エキシマレーザー（波長 248 nm）を用いており、パルスエネルギーは数百 mJ、パルス幅は約 25 ns、繰り返し周波数は約 10 Hz が主流である[1-5]。ただし、これらのレーザーは装置が大型で、有害ガスを用いるため、ガス漏れ防止のための厳密な制御・保守が必要となる。これに代わる手法として、非線形光学過程を用いて 266 nm の UV 光を発生させる固体レーザーシステムが開発されており、エキシマレーザーと同等の膜質が得られることが報告されている[6-7]。

本提案では、ATLA プロジェクトで開発した高出力固体レーザーを用い、最大 20 Hz の繰り返しでの PLD を実現することを目指す。従来の PLD 用レーザー（パルス幅約 20-25 ns）と比較して、本レーザーはサブナノ秒の短パルスの特徴としており、真空中でのプラズマ生成に必要なパルスエネルギーの低減が期待される（図 3.8.1）。さらに、短パルス化によってターゲット表面の熱的損傷が抑えられ、微粒子の発生が低減されるため、より平滑で高品質な薄膜が得られることが見込まれる。加えて、パルス立ち上がり・立ち下がりが短いため、多層構造の形成においてもシャープな界面制御が可能であり、機能性デバイスへの応用展開において大きな優位性を持つ。

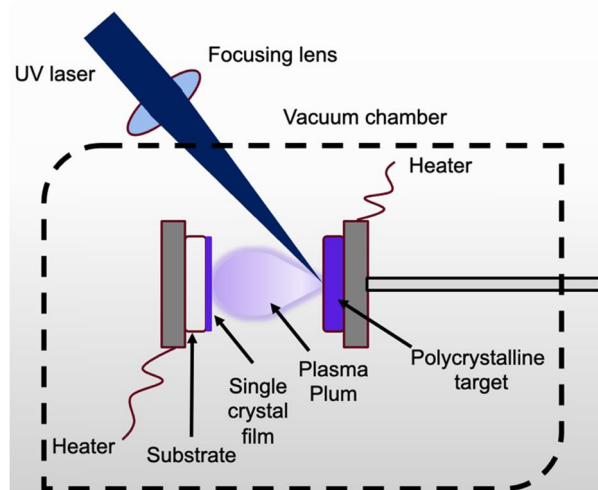


図 3.8.1 PLD の原理図。

- Preliminary experiments:

金属複合材料（電子源用カソード材および超伝導材料）を対象とした PLD（パルスレーザ堆積法）の予備的な実験を実施した。使用したレーザは、Nd:YAG レーザの第 4 高調波（266 nm）を用いた UV パルスレーザであり、パルスエネルギー 100 mJ、パルス幅 10 ns、繰り返し 25 Hz である。このレーザを用いて、粒子加速実験に利用する材料の薄膜成長を行った。

この種の金属複合材料は、融点の異なる（低温・高温）2 種の材料から構成される。蒸気圧の差が大きいため、CVD（化学気相成長法）ではエピタキシャル成長が困難であり、PLD の適用が有効とされる。

まず、IrCe 薄膜（最大直径 8 mm）を、UV レーザのパルスエネルギーを 10～100 mJ の範囲で変化させながら成膜した（図 3.8.2 参照）。得られた PLD カソードの電子放出密度は、バルクの IrCe カソードとほぼ同等であり、電子管における電子源材料としての応用が可能である。

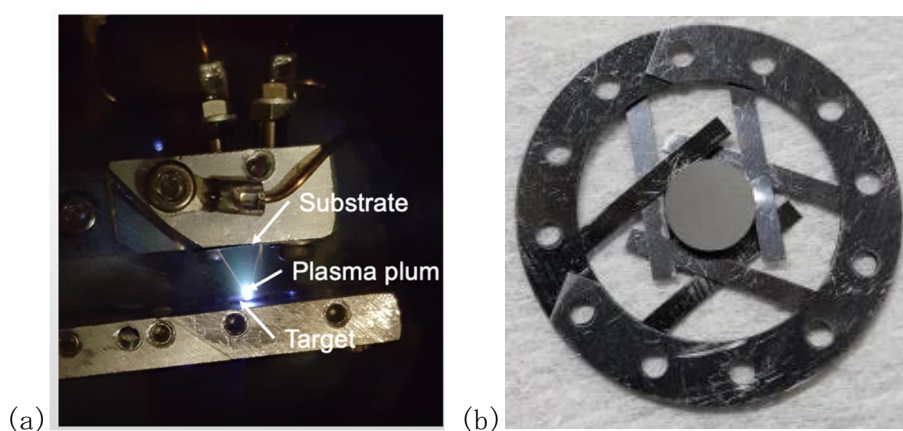


図 3.8.2 (a) IrCe カソードの PLD 成膜中のチャンバー内の様子、(b) PLD 後に得られた IrCe 薄膜。

次に、同じレーザを用いて、 MgB_2 超伝導薄膜の成膜を行った。これは粒子加速器における高温超伝導空洞部品へのコーティングを目的としたものである（図 3.8.3-a）。このような高温超伝導薄膜の目的は、高周波数領域での空洞損失を低減することにある。作製した薄膜においては、超伝導転移が観測されており、PLD 成膜による薄膜の高品質性を示す結果となった（図 3.8.3-b）。

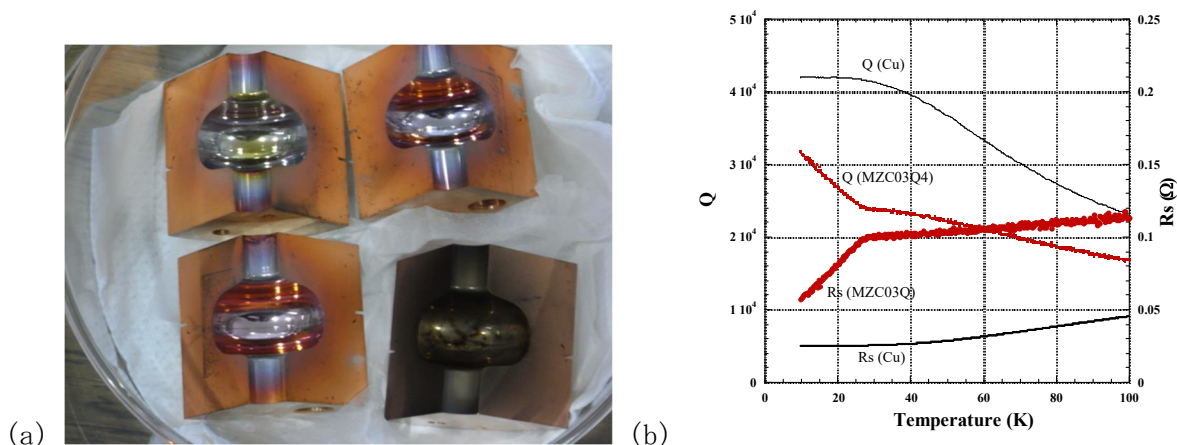


図 3.8.3 (a) MgB_2 超伝導薄膜でコーティングされた加速空洞部品、(b) 薄膜の低温における超伝導転移の観測（赤線）。

- New PLD system building in IMS:

項目⑰で開発した DFC-PowerChip 利用 Nd:YAG-FHG と組み合わせて使用するための新しい PLD チャンバーを構築した（図 3.8.4）。構築したチャンバー内では、最大で 1.0×10^{-6} Pa までの高真空が得られ、真空性能の高さが確認された。

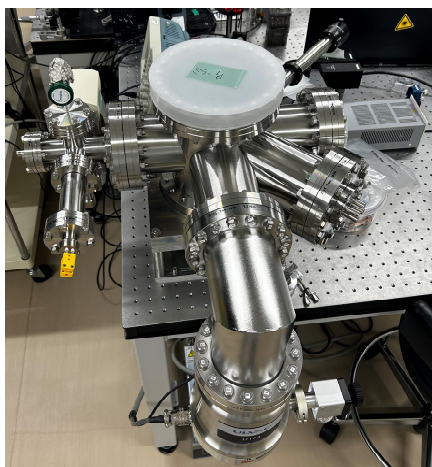


図 3.8.4 構築した PLD チャンバーの外観。

UV レーザについては、低エネルギー領域（約 0.5 mJ）でのビームパターン（図 3.8.5）およびパルス幅（324 ps）の測定により特性評価を行った。パルス幅は高速フォトダイオードを用いて測定された。

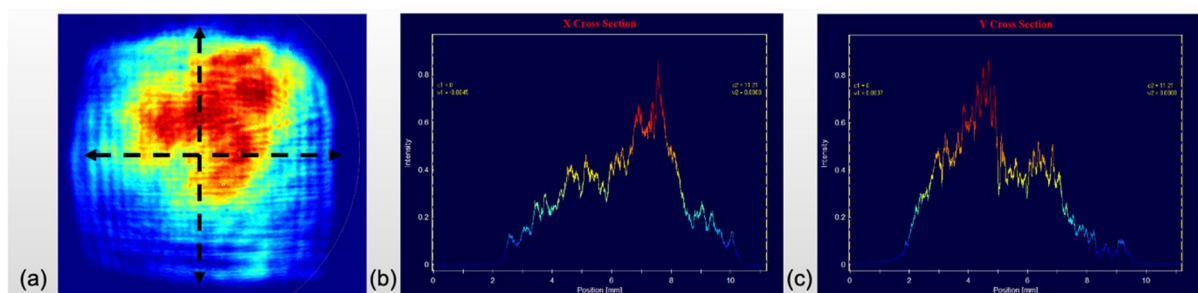


図 3.8.5 (a) 低エネルギー時の UV レーザビームプロファイル、(b, c) その水平および垂直方向の断面プロファイル。

以上、DFC-PowerChip をベースとした Nd:YAG レーザ励起による UV 光を利用した PLD の原理検証を行った。

項目⑧まとめ

パルスレーザ堆積法 (PLD) の特長を最大限に活かし、従来法では成膜が困難であった多成分材料 (IrCe、MgB₂ など) の高品質薄膜の作製のための基盤を構築した。特に、項目⑰で開発したサブナノ秒パルスの高出力固体レーザを PLD に適用することで、従来に比してターゲット損傷を抑えつつ、より高品質な成膜の可能性が示された。加えて、新たに構築した高真空 PLD チャンバーと DFC-PowerChip レーザの組み合わせ（図 3.8.6）により、今後さらなる高機能薄膜の開発が期待される。PLD は今後、先端材料開発の中核的な手法として、機能性デバイスや加速器応用をはじめとした広範な分野への展開が見込まれる。

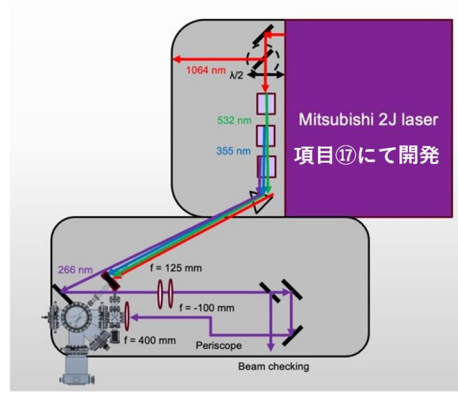


図 3.8.6 PLD 実験のための光学系構成。

- References:

- [1] Y. Zhao, M. Ionescu, J. Horvat, A. H. Li, S. X. Dou, “Si doping on MgB_2 thin films by pulsed laser deposition,” arXiv:cond-mat/0311055
- [2] K. Komori, K. Kawagishi, Y. Takano, H. Fuji, S. Arisawa, H. Kumakura, M. Fukutomi, K. Togano, “Approach for the fabrication of MgB_2 superconducting tape with large in-field transport critical current density,” Appl. Phys. Lett. 81, 1047-1049 (2002).
- [3] T. C. May-Smith, C. Grivas, D. P. Shepherd, R. W. Eason, M. J. F. Healy, “Thick film growth of high optical quality loss (0.1 dB cm^{-1}) $\text{Nd:Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ on $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ by pulsed laser deposition,” App. Surf. Sci. 223, 361-371 (2004)
- [4] S. Fukaya, K. Adachi, M. Obara, H. Kumagai, “The growth of $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ and $\text{Cr}^{4+}:\text{GGG}$ thin films by pulsed laser deposition,” Optics Com. 187, 373-377 (2001).
- [5] R. D. Vispute, H. Wu, J. Narayan, “High quality epitaxial aluminum nitride layers on sapphire by pulsed laser deposition,” App. Phys. Lett. 67, 1549-1551 (1995).
- [6] P. Badica, K. Togano, S. Awaji, K. Watanabe, “Growth of superconducting MgB_2 films by pulsed-laser deposition using a Nd-YAG laser,” Supercond. Sci. Technol. 19, 242-247 (2005).
- [7] T. Ozaki, S. Kikukawa, R. Tanaka, A. Yamamoto, A. Tsuruta, Y. Tsuchiya, “ MgB_2 thin films fabricated by pulsed laser deposition using Nd:YAG laser in situ two-step process,” Condens. Matter 7, 48 (2022).

⑨ 新規接合装置の開発（担当：大学共同利用機関法人 自然科学研究機構 分子科学研究所）

[研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果]

・新規常温接合装置の開発

本プロジェクトにおいて新規に開発された常温接合装置の外観図を図3.9.1に示す。この装置は、試料を大気曝露することなく、複数試料の接合を実施することができる。この装置はロードロックチャンバー（LLC）、トランスファーチャンバー（TC）、ボンディングチャンバー（BC）の3つの真空チャンバーから構成されている。

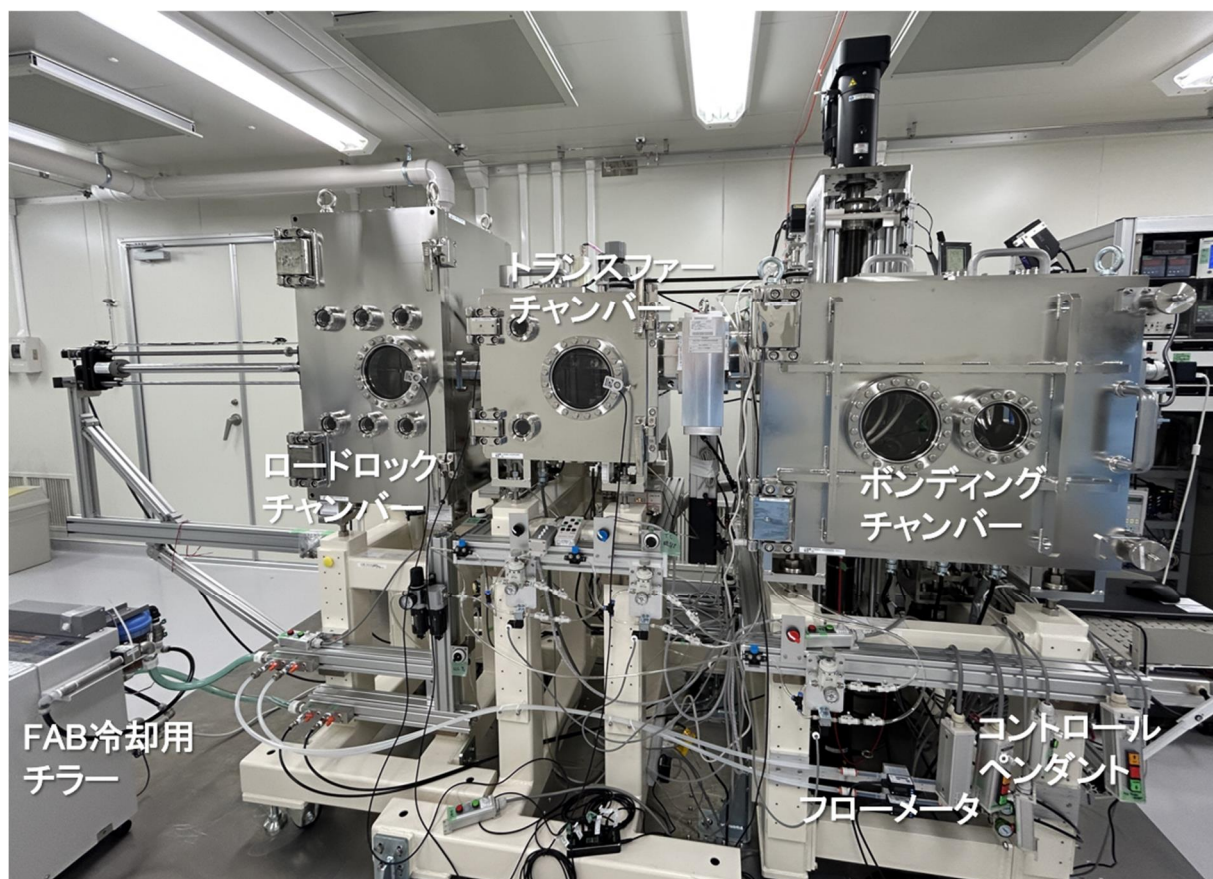


図3.9.1 本プロジェクトで開発した常温接合装置の外観図

LLCは処理室を大気中に開放しないでウェーハの取入れ、取出しを行うことを目的とした真空室であり、接合するためのサンプルを乗せたサンプルホルダを最大10枚まで収容できる。このサンプルホルダを収容するサンプルバンクの3D構成図を図3.9.2に示す。

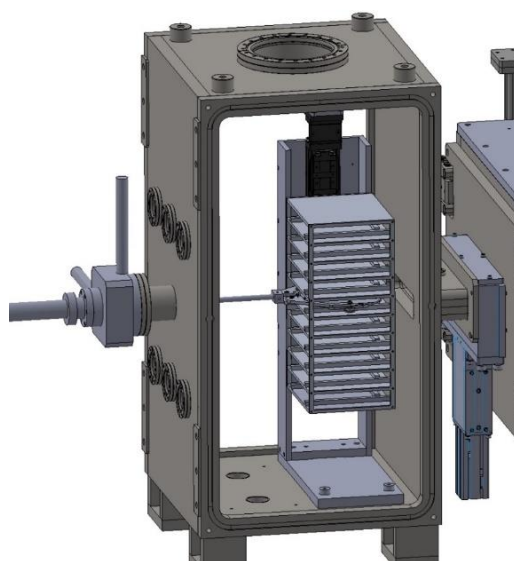


図 3.9.2 複数枚のサンプルホルダをラックにストックできるサンプルバンク

サンプルバンク内に収容されたサンプルホルダに関しては、意のサンプルホルダを選択してTCに搬送することができる。TCでサンプルホルダに乗っている試料をシャトルに載せ替え、試料の乗ったシャトルはVCに移送される。このシャトルのTCとVCの間での移送は常温接合装置内に設置されたレール上行われるが、このレールの設置状態を図3.9.3に示された常温接合装置内部の概観図に示す。

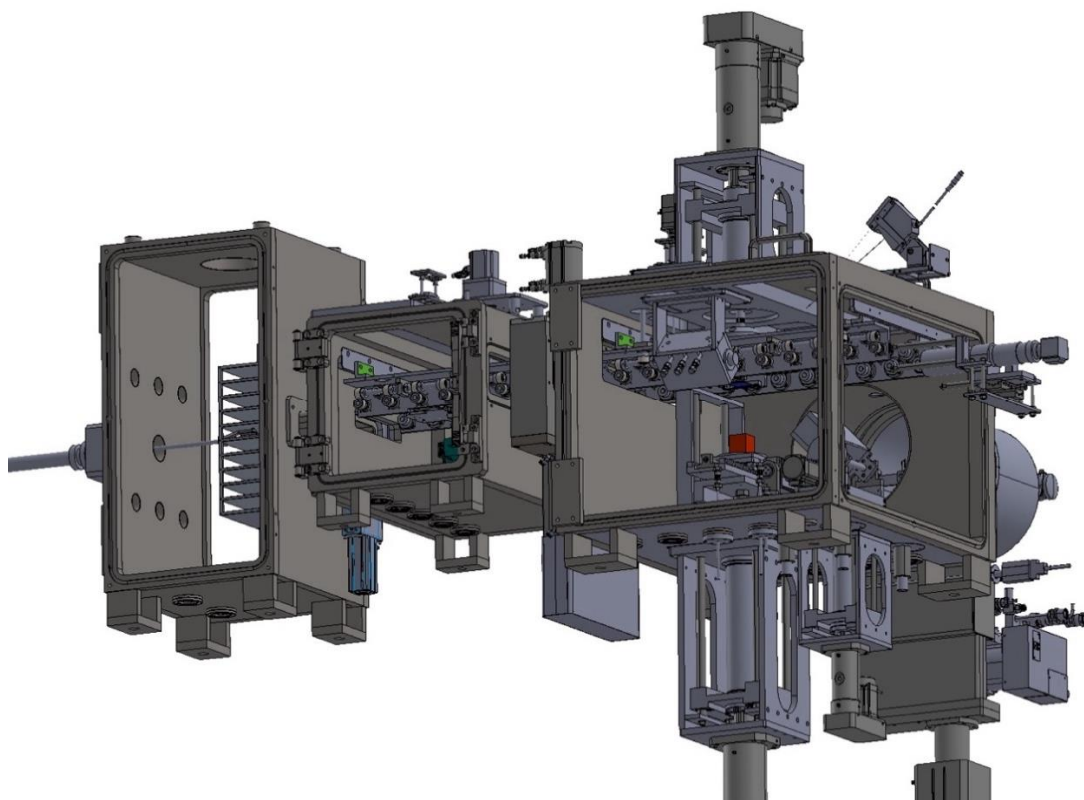


図 3.9.3 常温接合装置内部の概観図

試料の接合を行うための表面活性化はVC内で行われる。図3.9.4で示されるように2本のFAB (Fast Atom Beam: 高速(Ar)原子ビーム) を上下それぞれに設置された素子に照射できるようになっており、これにより試料の表面活性化を行う。

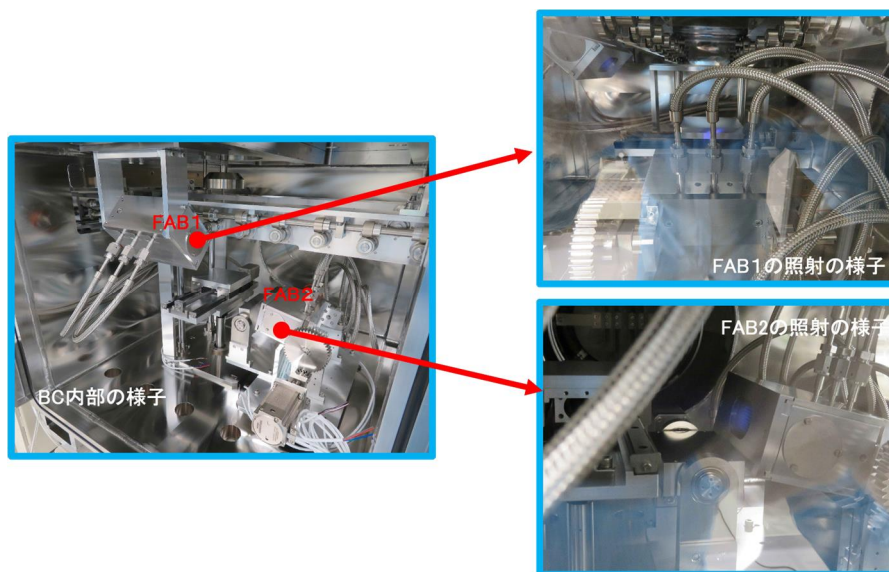


図3.9.4 FAB1及びFAB2照射時のBC内部の様子

令和6年度においては、装置の自動化と最適化を進めた。自動化に関しては、試料の位置決めについて、図3.9.5で示す通り長手方向位置をレーザにより、また水平方向位置については顕微鏡で検出することにより機能を実装した。また、図3.9.6で示されるように試料角度の微調機構についても実装した。

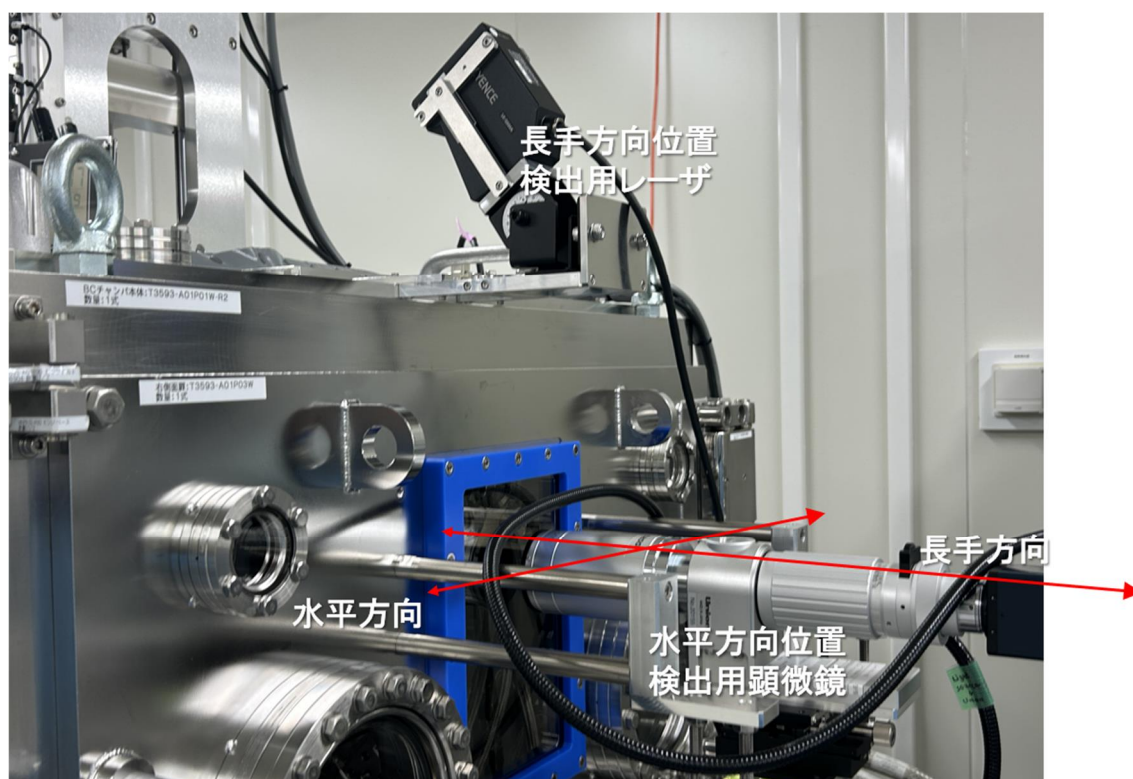


図3.9.5 自動位置決めのための位置センシング機構

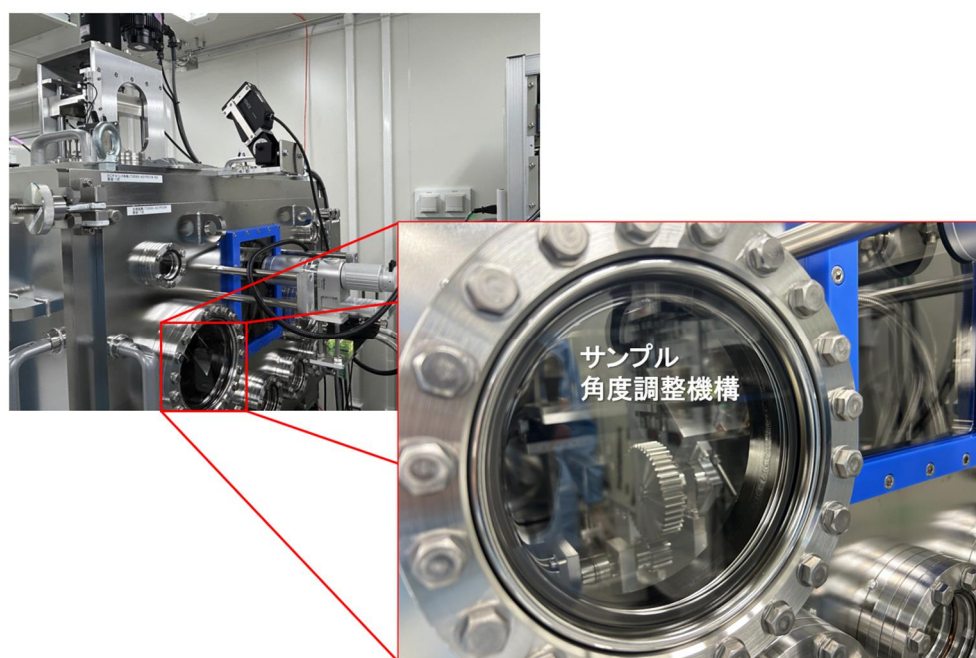


図3.9.6 サンプルの角度調整機構

装置の最適化としては、LLCに搭載するサンプルホルダの形状の構造最適化による搬送の安定性向上、TCにおけるシャトルの構造最適化、特に試料のピックアップおよび保持を行う部品の改良を進めた。また、シャトル搬送システムについてもレール形状に改良を加え、よりスムーズな試料搬送を実現した。最適化した部品の位置と形状をチャンバーの内部構造と合わせて図3.9.7に示す。

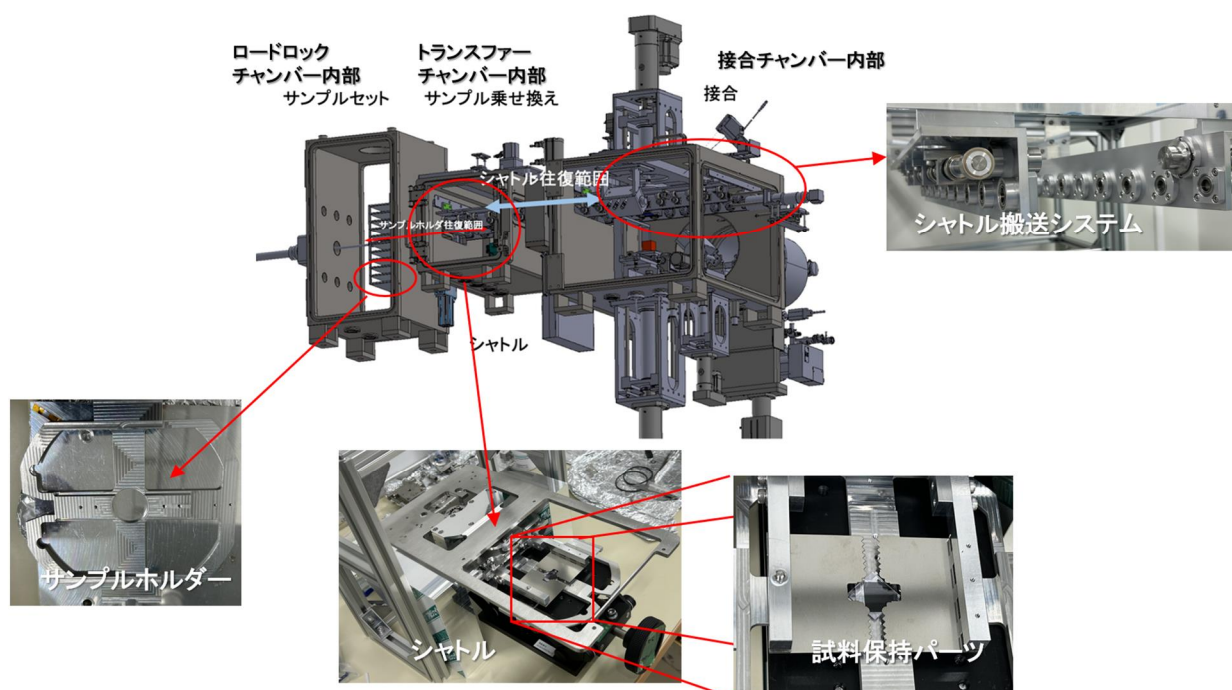


図3.9.7 常温接合装置構成部品の形状最適化

新規常温接合装置の機能確認試験

令和6年度においては、組み上げた常温接合装置の機能確認試験についても実施した。手順としては、FAB照射システムの駆動機構の動作確認、FABによるエッチングレート確認の順で実施された。

図3.9.8はBC内のFAB照射システムの駆動機構を示している。下側に設置されたサンプルへのFAB照射はサンプル固定台を接合位置から照射装置側へ水平移動して行われる。上側に設置されたサンプルへのFAB照射はサンプル支持台をプレス軸上で垂直移動して行われる。本接合装置では上下のサンプルに対してFABの照射条件を独立して変えられることも特徴である。これにより片側のサンプルが過剰あるいは過少な照射となることを避けられる。特に異種材料接合の際に効果的であり、接合条件の最適化に大きく寄与するものと考えている。

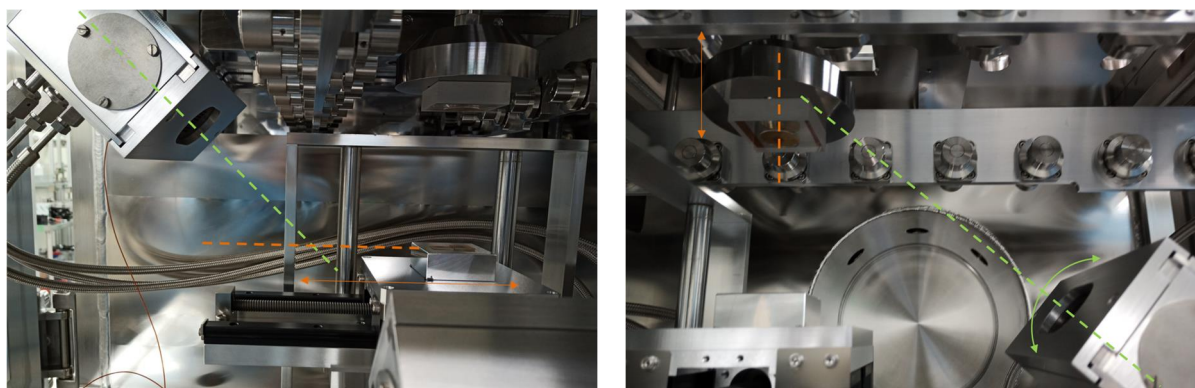


図3.9.8 FAB照射システムの駆動機構

FAB照射によるエッチングレートについては、図3.9.9で示される通り、サンプルにポリイミドテープをストライプ状に貼ってマスキングし、FAB設定は全て同じ条件で測定、FAB照射後にマスキングされていた面位置からの高さの差により評価した。Nd:YAGセラミックスを試料とした際の高さの差に関する測定結果の一例を図3.9.10に示す。上下サンプルまでの距離の違いを考慮しても上側のサンプルでのエッチングレートが低めの結果となったため、装置全体のアライメント完了後に再度照射位置に対する調整が必要となるが、FABによるサンプル表面のエッチングは問題なく機能することが確認された。各種光学材料についてのエッチングレートの評価結果を表3.9.1に示す。

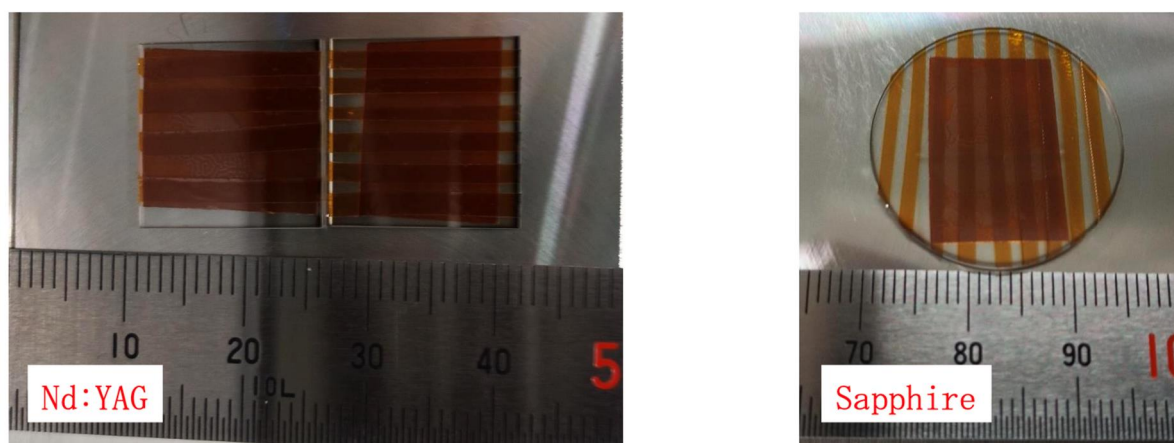


図3.9.9 エッチングレート確認用サンプル（裏面テープ固定）

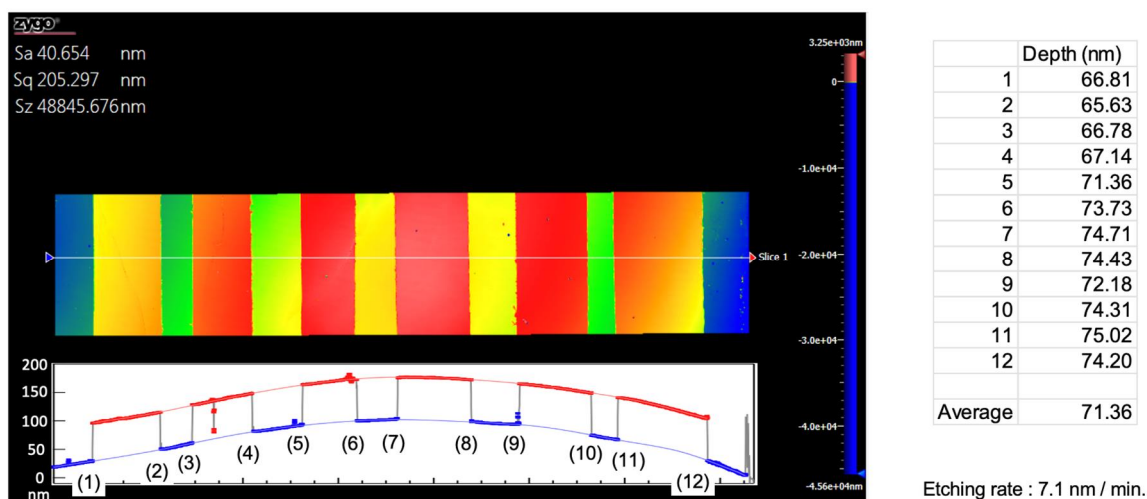


図3.9.10 Nd:YAGセラミックスのFAB照射によるエッチングレート測定結果

表3.9.1 各種光学材料のエッチングレート

Material	Top (nm/min)	Bottom (nm/min)
Ceramic Nd:YAG	2.0	7.1
Crystal Nd:YAG		6.1
Sapphire	1.3	5.4
Distance to target	210 – 220 mm	130 – 140 mm
Beam current	67 – 64 $\mu\text{A}/\text{mm}^2$	118 – 108 $\mu\text{A}/\text{mm}^2$

新規常温接合装置の接合性能確認試験

機能・動作確認が完了後に本接合装置での接合性能確認試験を行なった。接合サンプルとしてはφ25.4mm、2mm厚のサファイア基板を使用し、既設の常温接合装置で良好な接合を確認したFAB照射およびプレス条件にて接合を実施した。図3.9.11は接合開始前に2つのサファイア基板の面が接触する直前の状態であるが、基板面同士の平行度が出ていない様子が見てとれた。そのまま接合を実施したところ、図3.9.12で示される通り2度の試行でどちらも接合はできたものの干渉縞が観察される結果となった。今回の接合性能試験においては素子の接合に対するおける最適実施条件を見出すには至らなかったが、接合自体は可能であることが示された。

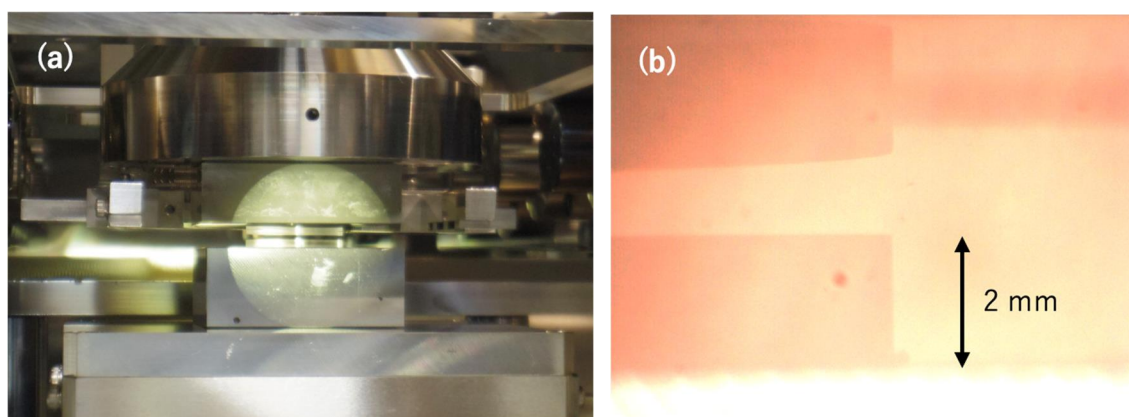


図3.9.11 接合開始前（基板面接触直前）の状態(a)と基板エッジ部分の拡大(b)

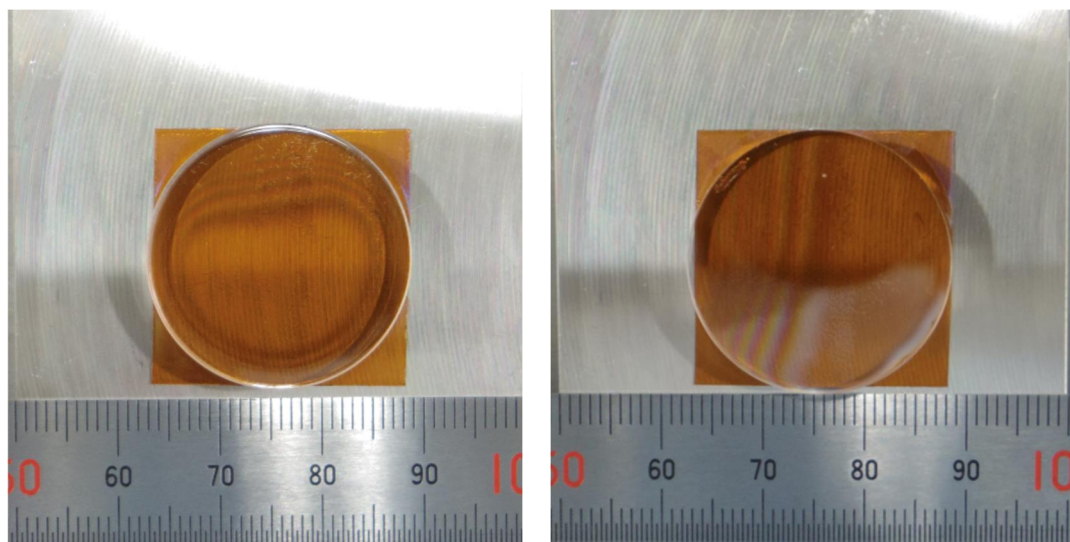


図3.9.12 接合後のサンプル

新規常温接合装置による接合素子のレーザ耐性評価

前述したとおり今回の接合試験においては条件の最適化が行われていないため、今回得られた接合試料の接合強度はそれほど高くないと考えられた。実際に接合サンプルの1つについて、レーザ耐性についての評価も実施したあとの試料の様子を図3.9.13に示す。ダメージ評価試験においては試験前に試料内の干渉縞の無かった領域において評価用レーザを集光入射したところ、レーザダメージによる接合の剥離が確認された。このため、レーザ損傷閾値についての定量的な評価には至らなかった。

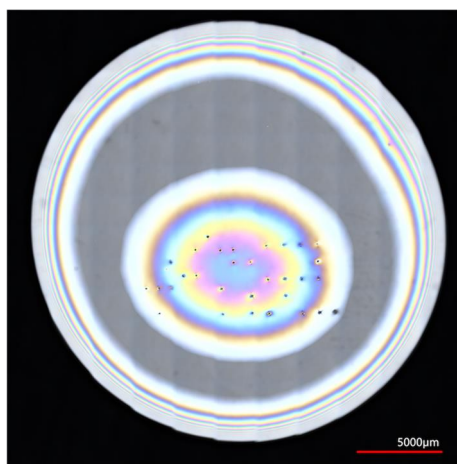


図3.9.13 レーザ耐性確認後のサンプル

本実施項目の総括

最後に本実施項目について総括する。今回の接合評価試験においては、接合処理の実施条件が最適化されていないために接合品質については不十分であったが、接合能力があることについては確認できた。本プロジェクトで開発した常温接合装置は既設の常温接合装置ではできなかった3インチサイズの大型基板でも接合することが可能であるため、このまま接合条件の最適化を行うことによりDFC構造材料の生産性向上、すなわち大型基板を接合後個々のチップに切断することによる大量生産が実現されるはずである。なお、各種レーザ材料に対する接合条件の最適化については理化学研究所が担当する接合界面強靱化の検討（実施項目②）の中でも進められ、装置に依存しない部分での材料物性に起因する適正条件を得ることができている。従って、現時点において本装置を用いて接合処理を行う際には今回の試験結果以上に良好な結果が得られるものと見込まれる。

・デバイス創製：

⑩ 常温接合や表面処理に適した高品位レーザ材料の開発（担当：神島化学工業）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

レーザ材料について常温接合や表面処理を行う場合、その過程で発生する材料の表面状態の変化を詳細に観察することが重要となるため、本研究制度を活用して走査型白色干渉顕微鏡(CSI)を購入し、原子間力顕微鏡 (AFM) での表面観察結果との比較を行った。この比較においては、接合プロセスにおいて要求される表面粗さ ($Ra \leq 1 \text{ nm}$) に研磨加工したセラミックスの表面を観察した。その結果、図 3. 10. 1に示したように、AFM (測長：5 μm) に比べて広範囲で測定したCSI (測長：550 μm) においても測定エリアの全域にわたって、同様の表面粗さプロファイルを確認できた。この結果から、両者は同等の高さ分解能で表面構造を観察することが可能であることを確認できただけでなく、CSIによる観察ではAFMに比べて広い面積を格段に短い時間スケールで観察可能となったことから、大面積接合における広視野観察にも活かせることを確認できた。

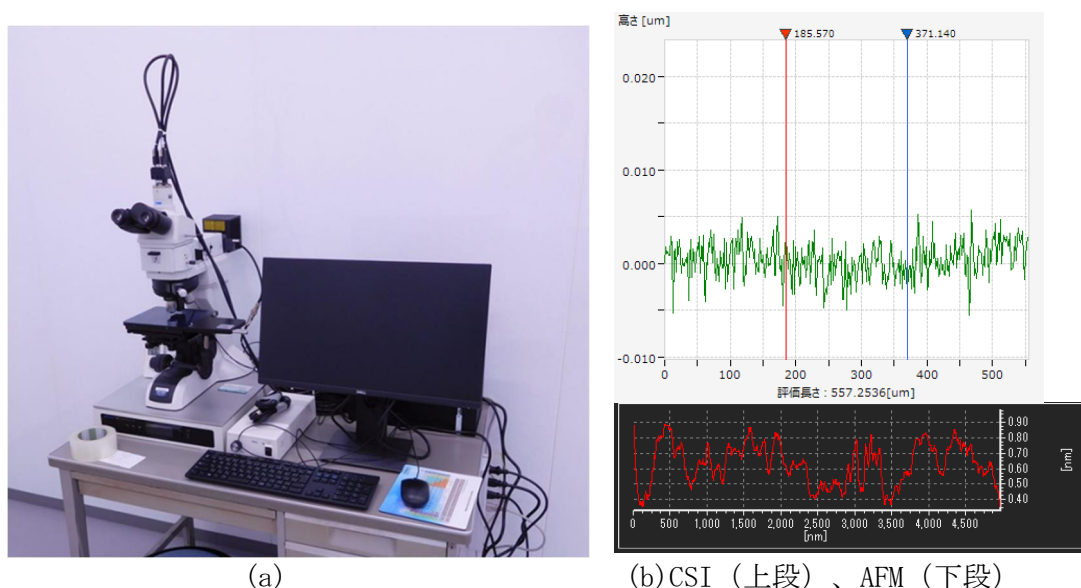


図3. 10. 1 走査型白色干渉顕微鏡 (CSI) と表面の観察結果

＜令和3年度＞

多結晶であるセラミックスには結晶粒の境界面である粒界が存在することから、高速原子ビーム (FAB) の照射、すなわち表面が外部エネルギーに曝される状況が発生する常温接合や表面処理を行う際には、粒界の存在による影響を確認する必要がある。そこで、鏡面研磨後（表面粗さ $Ra \leq 0.2 \text{ nm}$ ）のセラミックスについて、900℃での熱処理を複数回行うことで表面構造がどのように変化するかAFMで観察した結果、図3. 10. 2に示したように、熱処理を重ねることで粒界近傍を中心にセラミックスの表面が変形していくことが確認できた。

上述のような面粗さの変化は粒界をもつセラミックス特有のものであり、単結晶材料とは明確に異なる特徴といえる。レーザ媒質としての観点からすると、温度上昇に伴う表面構造の変化は、表面へのレーザ照射によって評価されるレーザ損傷閾値と関連性があるものと推測される。すなわち、表面粗さが変化しづらいセラミックスレーザ材料であれば、レーザ損傷閾値も高くなることが予想される。

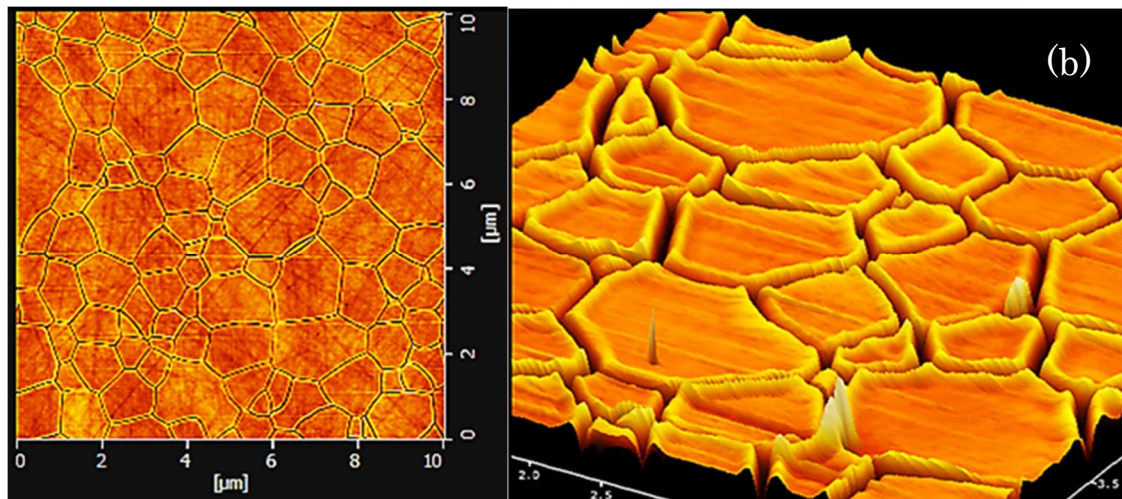
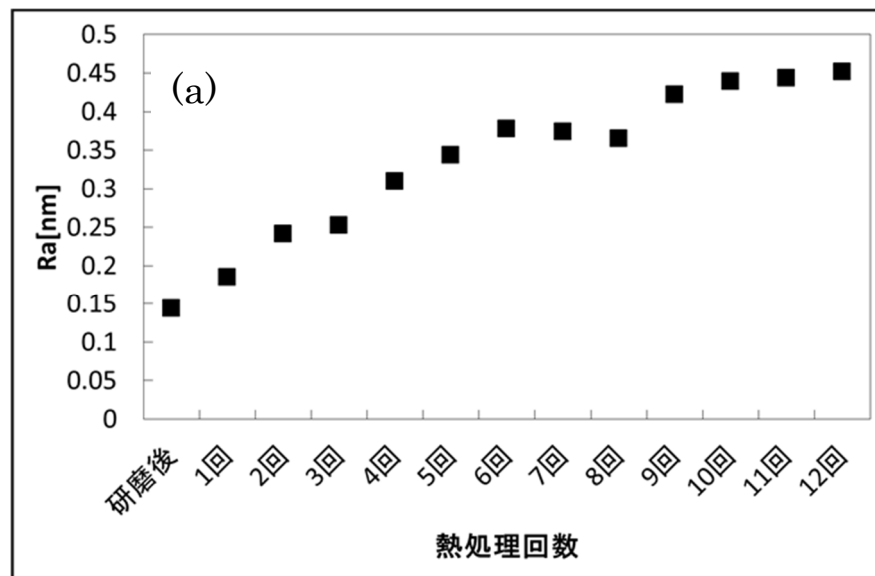


図3.10.2 (a) 熱処理に伴うセラミックス表面粗さの変化
(b) 熱処理に伴うセラミックス表面形状の変化

また、熱処理後のセラミックスレーザ材料であるNd:YAGについてその蛍光特性を評価したが、図3.10.3に示したように、Nd:YAGの励起波長（808 nm）と蛍光波長（1064 nm）が明瞭に測定できており、基本光学特性が損なわれていないことを再確認した。

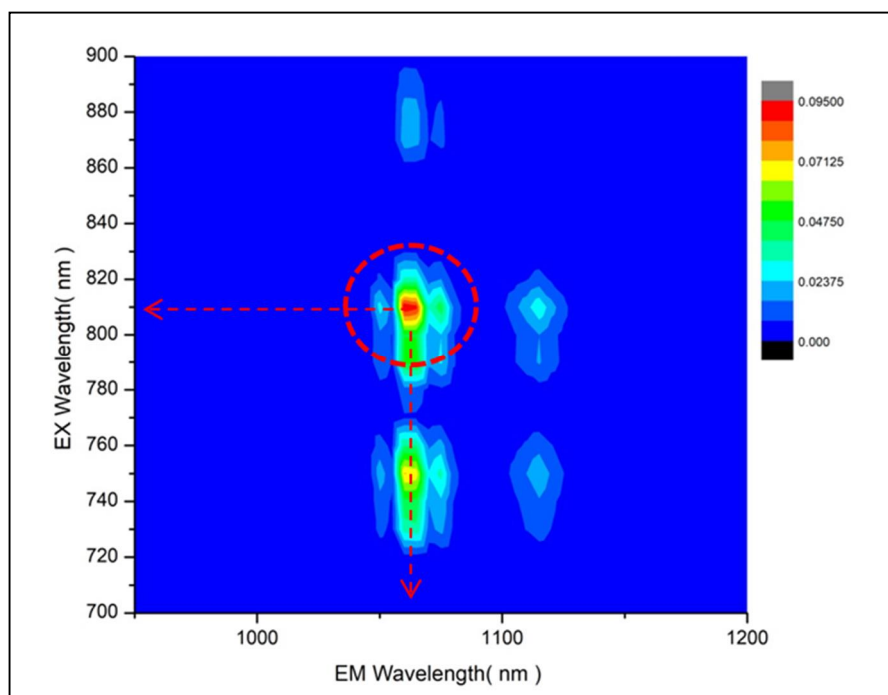


図 3.10.3 Nd:YAG セラミックスの励起-発光特性マップ

<令和4年度>

レーザ材料として使用する場合、セラミックスには各種の賦活剤（ドーパント）が添加される。これらのドーパントを添加することで母材特性が変化することが予想されたため、その影響について確認した。各種レーザセラミックスの熱的特性（熱膨張、熱伝導）について理化学研究所で導入した設備で評価を実施した結果、 -150°C から 700°C の範囲において、YAGセラミックスへ添加される元素の種類や濃度が大きく影響することはなかった。

一方で、 900°C での熱処理に伴う表面形状の変化についてAFM観察したところ、表3.10.1に示したように、添加元素の種類によって、表面形状の変化に違いが生じていることが明らかとなった。Nd:YAGセラミックスは寄生発振の抑制やQスイッチ動作を目的として、Cr:YAGやSm:YAGなどと組み合わせて使用されることがあるが、興味深いことにCr:YAGセラミックスにおいて表面粗さが変化しやすいことが判明した。焼結助剤として Si^{4+} が添加されているNd:YAGセラミックスとは異なり、 Cr^{4+} :YAGセラミックスにはCrの価数制御用に Ca^{2+} が添加されている。 Ca^{2+} は Y^{3+} のサイトに置換され、母材YAGに酸素欠陥が生じることが知られており、酸素含有雰囲気中での表面変形に影響を及ぼしているものと推測される。

表3.10.1 各種セラミックスの熱処理に伴う表面粗さRaの変化

	Ra[nm]	
	熱処理前	熱処理後
Nd:YAG	0.14	0.18
Cr:YAG	0.16	0.24
Sm:YAG	0.17	0.17

表面の安定性は、表面のレーザ損傷耐性にも直結する問題であり、粒界が存在し、焼結助剤の添加が必要なセラミックスではその制御が重要となる。ほかの分担研究機関の研究成果として、単結晶の損傷閾値がセラミックスよりも優れていることが判明しており、その結果も本検討における結果を支持するものとなっている。

<令和5年度>

前年度に確認された熱処理に伴う表面粗さの変化について、何が影響しているか調査するため、レーザ材料として使用されるNd:YAGやCr:YAGだけでなく、その他の材料についても種々の熱処理温度における表面状態の変化について確認するための追加試験を行った結果を図3. 10. 4に示す。熱処理に伴い粒界近傍が変形し、鏡面研磨後のセラミックス表面（ $Sa=0.2-0.4nm$ ）は熱処理温度が上昇するにつれ、面粗さが大きくなった。特に、AlサイトにCrが添加されている点、Crの価数制御目的でCaが添加されている点でほかの材料系と異なるCr:YAGでの表面粗さ変化が突出して大きくなった。

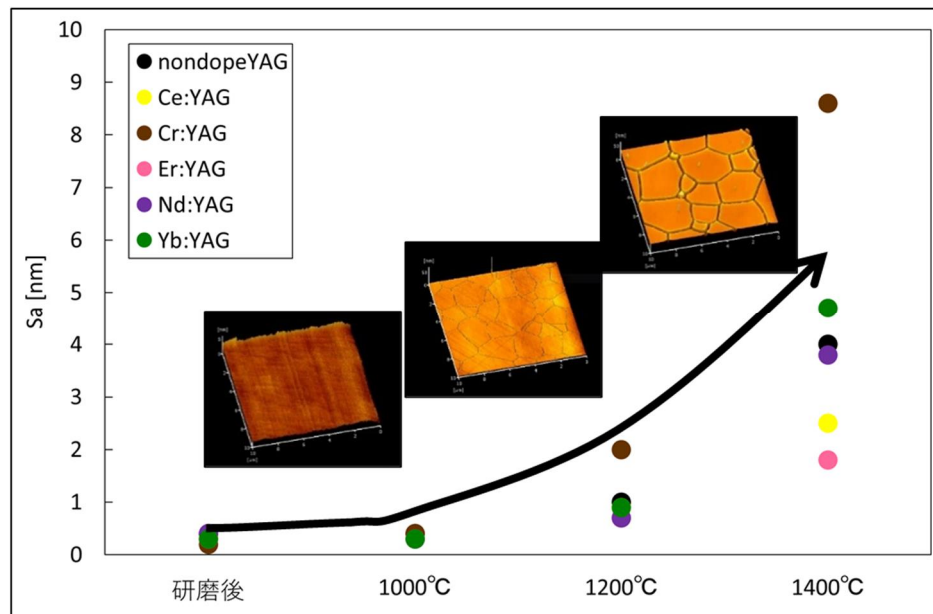


図3. 10. 4 種々のYAGセラミックスにおける表面粗さ変化の温度依存性

これらの表面粗さ測定結果は、接合後の熱処理を1000°C、1200°C、1400°Cで実施した試料について、接合界面の3点曲げ強度を測定した結果（図3. 10. 5）と相関があり、熱処理温度が高いものほど接合界面での拡散現象が促進され、接合強度が高くなることをよく説明できる結果となった。1200°Cよりも高い温度で熱処理した場合、バルク同等以上の接合界面強度が発現しているが、この結果は接合プロセスでは高潔かつ高活性な表面を露出させ、その表面どうしを接合しているため、接合界面はバルクに比べて欠陥が非常に少なくなっていることに起因するものと予想される。

	熱処理温度			比較用
	1000°C	1200°C	1400°C	バルク
曲げ強度 [MPa]	322	381	432	360
破断面				

図3. 10. 5 接合後の熱処理温度が接合界面強度に及ぼす影響

<令和6年度>

前年度までの研究でほかの材料系と異なる特徴がみられたCr:YAGの高温域での熱特性を評価す

ることを目的とし、150℃付近から1450℃にかけて熱膨張測定を実施した結果を、-150℃から700℃の範囲での測定結果ならびに比較用で測定したほかの材料とあわせて、図3.10.6に示す。

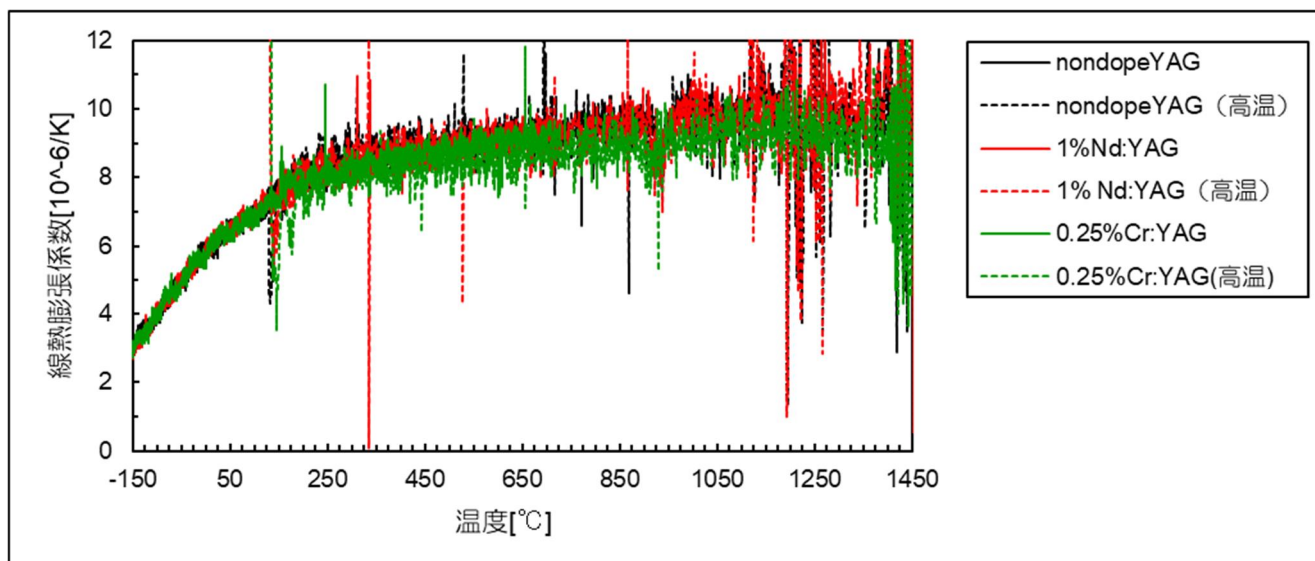


図3.10.6 各種ドーパントYAGの熱膨張特性

-150℃から700℃の範囲での測定結果と150℃から1450℃の範囲（高温）での測定結果を重ね合わせた結果、連続したグラフが得られ、測定温度範囲の異なる2つの装置を使って測定したデータについて十分な整合性が得られたことを確認できた。また、無添加YAG、Nd添加YAG、Cr添加YAGのいずれも類似の熱膨張特性を示しており、ドーパント種による熱処理時の表面粗さ変化量の差に関連付けられる結果とはならなかった。このことは、ドーパント種による影響が有意差としてあらわれるのは露出した高活性な表面のみであり、バルクの特性はおおむね同等であることを意味している。今回の結果から、特にCr:YAGについて表面処理やFAB照射を行う場合、ほかの材料系と異なる温和な条件でのエネルギー照射やエネルギー付与が重要であることが分かった。さらに加えて、含有成分の差が表面特性に影響していることから、組成によっては表面特性の任意制御による高耐性化ができる可能性がうかがえる結果であるものと考えている。いずれにしても、バルクの熱特性は他の材料とおおむね同等であったことから、接合プロセスやレーザ動作時における温度変化が接合界面のはく離やダメージの原因とはならない可能性が示唆された。

⑪ 接合界面耐性評価（担当：理化学研究所）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

これまで開発したマイクロチップレーザとImPACTで開発した利得アパーチャ（参照：Opt. Express 26(7), 8609（2018）, 特許第6261057号）を利用し、実施項目⑩で開発した高品位レーザ材料をサファイアに接合後に接合界面耐性評価としてレーザ耐性及び接合強度を評価する。

高出力レーザ媒質であるNd:YAGに対し、排熱性向上を目的として異種材料である透明ヒートシンク（サファイア）との常温接合による複合構造（DFCチップ）化は本プロジェクトにおける最重要基盤技術である。本研究項目においてはDFCチップのレーザ耐性及び接合強度を評価することになっていた。ここでレーザ損傷耐性の評価については、研究項目⑦で評価法を新規に開発し、この手法による評価結果をもとに研究項目②の接合強度強靱化サイクルを進めた。接合強度の計測手法としては、市販のオートグラフを用いた4点曲げ試験を採用した。まずはこの試験法について詳述する。

材料強度のパラメータの一つに引張り強度があるが、光学材料は脆いため接合素子の引張り耐性を実験的に評価するのは非常に困難である。レーザ材料接合界面の機械的強度を評価するため、我々は脆い材料により適した曲げ試験と呼ばれる手法を採用した。この試験では、試料は中央から等間隔に置かれた2本支持ピンに載せ、中央に加重用ピンを置く。これを3点曲げ試験と呼ぶ一方、ピン4本を使用する今回の場合を4点曲げ試験と呼ぶ(図3. 11. 1参照)。加重用に1本でなく2本使用する利点は、より正確に試料中央へ直接加重を加えられる点にある。接合界面を正確に中央へ設置することで加重を界面に印加できる。

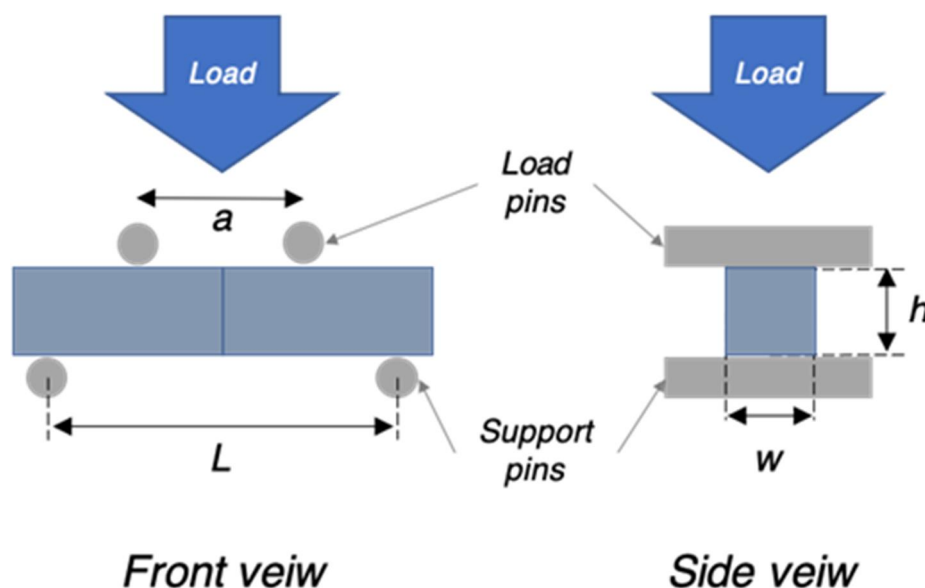


図3. 11. 1 4点曲げ試験の概要。試料は下側の支持ピンに乗せ、上側の加重ピンにより一定速度で増加する力を加えられる。

曲げ強度 σ_f は以下の式3. 11. 1で評価される。

$$\sigma_f = \frac{N \cdot L}{w \cdot h^2} \quad (3. 11. 1)$$

ここでN、L、h、wはそれぞれ、加えられた力の大きさ、支持ピンの間隔、接合試料の厚み、および試料の幅を示す。また σ_f は曲げ弾性と呼ばれ、機械的な曲げ力に対する耐性の評価値として使用される。曲げ弾性は応力-変位量曲線の傾きから求められ(図3. 11. 2(b)参照)、材料の曲げに対する特性を示す。曲げ弾性評価において脆く等方的な材料が示す小さな応力はヤング率に相当する。

計測システムは島津製作所製AGX-50kNVD万能試験機と自作の4点曲げ試験用治具からなる(図3.11.2(a))。試料には36mmの長さが必要であり、24mmの間隔で置かれた支持ピンに乗せられる。試料の上には8mmの間隔で加重用ピンが置かれる。加重用ピンの間隔は支持ピン間隔の1/3に設定されている。支持ピンは土台に固定され、加重用ピンは試験のため下降する余地がある。試験では一定の速度1mm/秒で加重を加えていく。試験機の加重部が試料ホルダーの上端に接触した後に試料は加重をうけ、接合チップが破損するまで一定速度で加重は増加する。図3.11.2(b)に典型的な試験結果の曲線を示す。試料が破断する直前の加重値を曲げ強度としている。

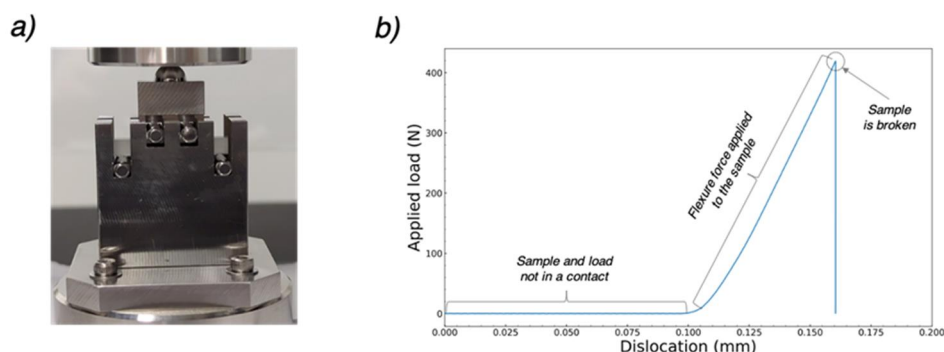
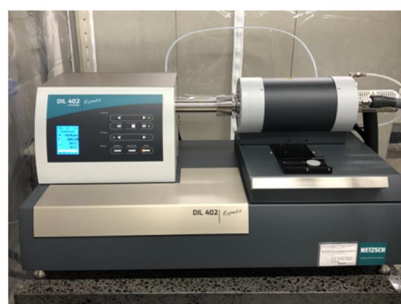


図3.11.2 (a) 計測用治具 (b) 変形量と加重 N の関係を示す典型的な加重-ひずみ曲線
試料は一定の速度で押され、破断すると加重を解放し計測が終了する

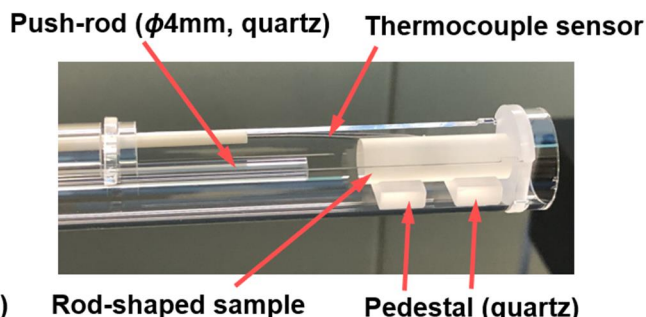
実際のDFCチップにおける接合強度を考える際には、許容される最低限の接合強度に関する情報が必要である。これは、レーザ駆動時のDFCチップ発熱による熱膨張による変形に伴う内部応力に依存する。異種材料により構成された複合構造内には熱膨張率の差が存在し、レーザ発振に伴う媒質温度変化による熱複屈折など様々な問題が懸念される。そこで、以下においては各種レーザ媒質および透明ヒートシンク素材の熱膨張を正確に計測し、熱設計に適用できるよう数値モデル化を実施した。また、実現された高出力レーザを用いた非共振波長変換により強力なTHz光の発生も本プロジェクトの目的の一つであるが、これに用いる可能性があるNd:YAGセラミックスも評価した。また、特に重要なレーザ媒質であるNd:YAGについては、温度による屈折率変化も評価した。

上記を実施するために令和3年度においては線膨張計測装置を導入し、令和4年度には本装置を用いてDFC-PowerChipの設計に重要なYAG単結晶の熱膨張率について、温度範囲110 K~990 Kにおける高精度評価(繰返し精度 10^{-8} /K)を実施し、そのうえでDFC用の各種結晶材料(Scientific Materials製Nd:YAG単結晶、そしてNd、Yb、Er、Sm、Crを添加および希土類無添加の神島化学工業製YAGセラミックス)の熱膨張率についても線膨張係数の絶対値および温度依存性を評価した。令和5年度においてはNd:YAG、令和6年度においては透明ヒートシンク材料(信光社製サファイア単結晶)の熱膨張率をそれぞれ計測した。最終的に、これらのTILA-PowerChipを構成する様々な単結晶・多結晶材料について、様々なレベルでの熱設計に有用となる熱膨張率の数値モデルを構築することができた。

令和3年度において導入された線膨張計測装置を図3.11.3に示す。本実験装置で使用する試料の形状は、装置製造元から支給される $\phi 6\text{mm} \times 20\text{mm}$ または $\phi 6\text{mm} \times 25\text{mm}$ の合成石英製の標準試料とおおよそ同じに揃える必要があり、本報告における一連の計測ではおおよそ $\phi 6\text{mm} \times 20\text{mm}$ サイズの試料を用いている。このサイズ(0.57 cm^3)において、YAG試料の重量は約2.6 g(重力換算で21mN)であり、したがって試料の運動に対して20mN程度の摩擦抵抗が存在する。このために、試料の膨張に応じて押し棒で長さ変化を検知するためには最低でも50 mN程度の応力押し棒で試料に印加する必要がある、今回の実験はすべて200mNでの応力印加により評価されている。



DIL402 Expedis Supreme (NETZSCH)



Rod-shaped sample

Pedestal (quartz)

図3.11.3 令和3年度に導入した線膨張計測装置 装置全景（左）および試料ホルダ（右）

さて、実際のNd:YAGに関する計測結果を図3.11.4に示す。ここで示されている通り、YAGにおいては単結晶とセラミックスにおいて有意な熱膨張率の差は確認されなかった。また、Ndの添加濃度依存性、そして添加希土類元素の有無や添加元素種（Yb、Er、Sm、Crなどについて評価）による差についても見出すことができなかった。

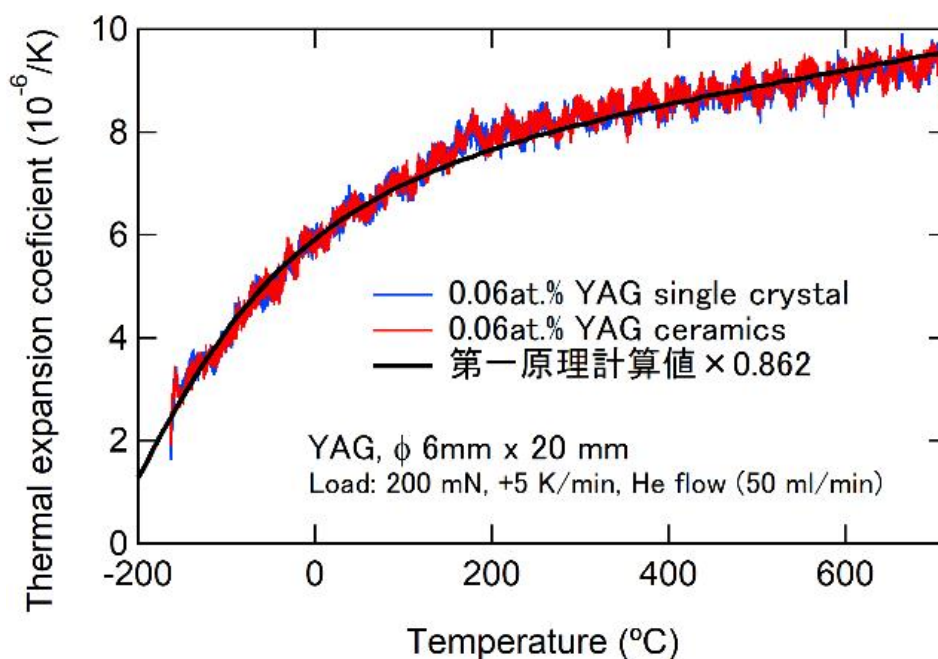


図3.11.4 YAG単結晶およびYAGセラミックスの線膨張係数計測結果比較

図3.11.4においては、第一原理計算により求めたYAGの熱膨張率についての比較も含まれている。第一原理計算で求められた熱膨張率は絶対値こそ14%ほど実験値と差があるが、物理的なモデルに基づいた温度依存性は実測値とほぼ一致していた。これを利用して、実験値と第一原理計算と比較することにより図3.11.5で示される広い温度領域における有効な熱膨張率を得ることに成功した。

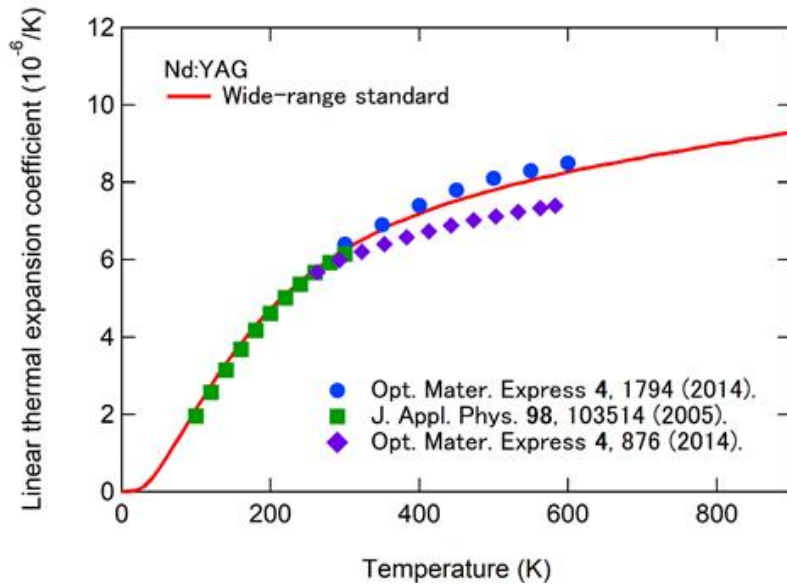


図3. 11. 5 Nd:YAGにおける0Kから1000Kに至る範囲で有効な熱膨張率

Nd:YAGと同様に、Nd:YSAGセラミックスおよび単結晶サファイアについて熱膨張率を計測した結果をそれぞれ図3. 11. 6および図3. 11. 7に示す。これらの熱膨張率は温度のべき乗展開をもちいて

$$\frac{1}{L} \frac{dL}{dT} = a_0 + a_1 T + a_2 T^2 + a_3 T^3 + a_4 T^4 \quad (3.11.2)$$

で与えられた絶対温度T(K)に関する5次の多項式を用いることができる。ここで得られた多項式の係数についても表3. 11. 1に記載する。

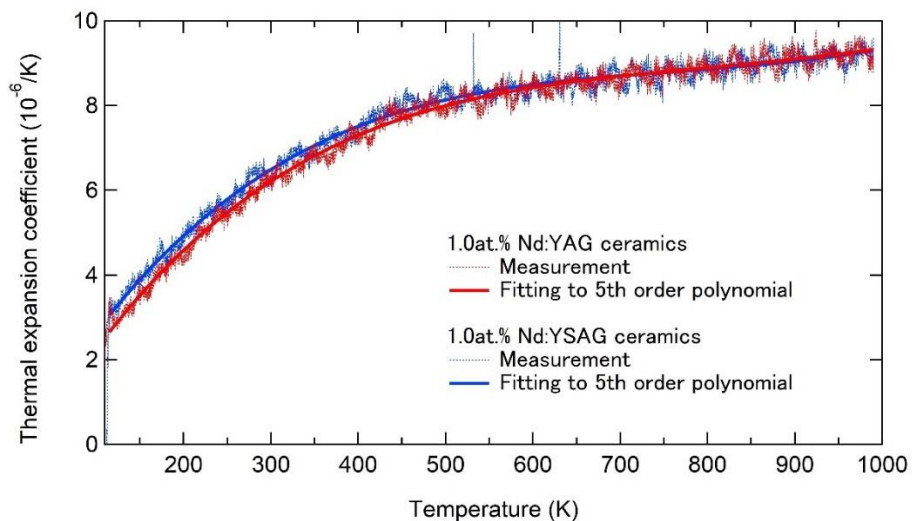


図3. 11. 6 Nd:YSAGおよびNd:YAGセラミックスの熱膨張率数

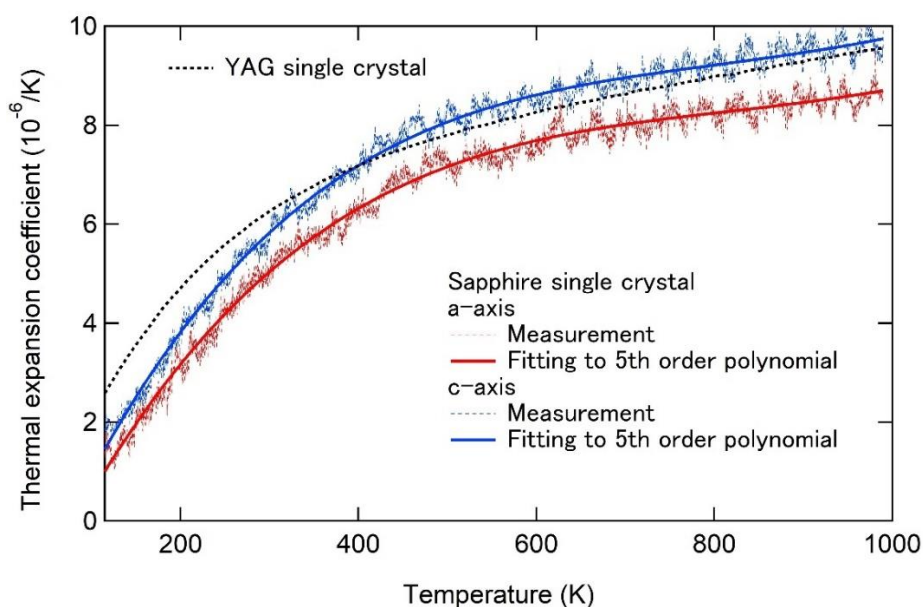


図3. 11. 7 サファイア単結晶の熱膨張率数

表3. 11. 1 Nd:YAGおよびNd:YAGセラミックスの熱膨張率数値モデルにおける係数

	a_0	a_1	a_2	a_3	a_4	Range
	$10^{-6} /K$	$10^{-8} /K^2$	$10^{-11} /K^3$	$10^{-14} /K^4$	$10^{-18} /K^5$	K
YAG	5.83	1.48	-2.90	2.65	-7.69	115 - 980
YSAG	6.13	1.42	-2.91	2.64	-6.57	115 - 980
Sapphire (a-axis)	-2.96	4.04	-5.48	3.20	-5.93	115 - 980
Sapphire (c-axis)	-2.95	4.51	-6.45	4.07	-8.69	115 - 980

最後に屈折率の温度変化に関するYAGの評価結果について示す。令和2年度において導入されたワイドレンジ光学プローバを用い、令和3年度から図3. 11. 8に示される実験配置で平行度の高い厚さ1mmのYAG単結晶について透過率計測を実施した。試料の平行度が高い場合、試料の透過率 T_r は試料表面間での反射 R により変調を受ける。この変調の位相を ϕ とすれば、 T_r は式(3. 11. 3)で表される。但し、 n 、 l 、 λ 、 T_0 はそれぞれ屈折率、長さ、光の波長、そして $R=0$ の場合の透過率である。

$$T_r = \frac{T_0}{1+R^2} \left[1 - \frac{2R}{1+R^2} \cos \phi \right]^{-1} = \frac{T_0}{1+R^2} \left[1 - \frac{2R}{1+R^2} \cos \frac{4\pi n l}{\lambda} \right]^{-1} \quad (3. 11. 3)$$

したがって、 ϕ の温度依存性をフィッティングにより評価すれば、式3. 11. 4により熱膨張率と屈折率

温度計数の和を求めることができる。

$$\frac{1}{\phi} \frac{d\phi}{dT} = \frac{1}{nl} \frac{d(nl)}{dT} = \frac{1}{n} \frac{dn}{dT} + \alpha. \quad (3.11.4)$$

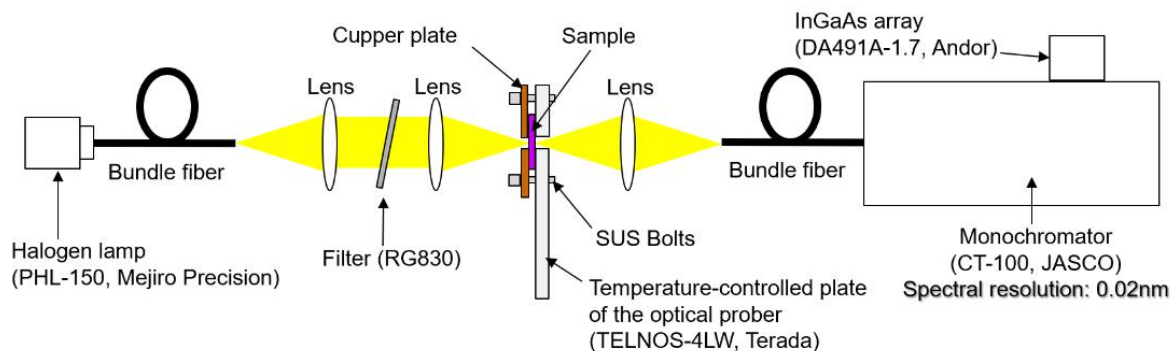


図3.11.8 屈折率温度計数の評価実験系

ここで厳密に屈折率温度係数を評価するためには、応力による屈折率変化の温度依存性の影響を考慮する必要がある。実際に試料を温調ホルダに固定する際に必要な締付トルクを必要最低限にとどめる必要があり、締付トルクを2.5 cm・Nに設定した計測を令和6年度において実施した。得られたYAG結晶透過率における干渉フリンジの温度依存性を図3.11.9、そして得られた屈折率温度計数を表3.11.2に示す。

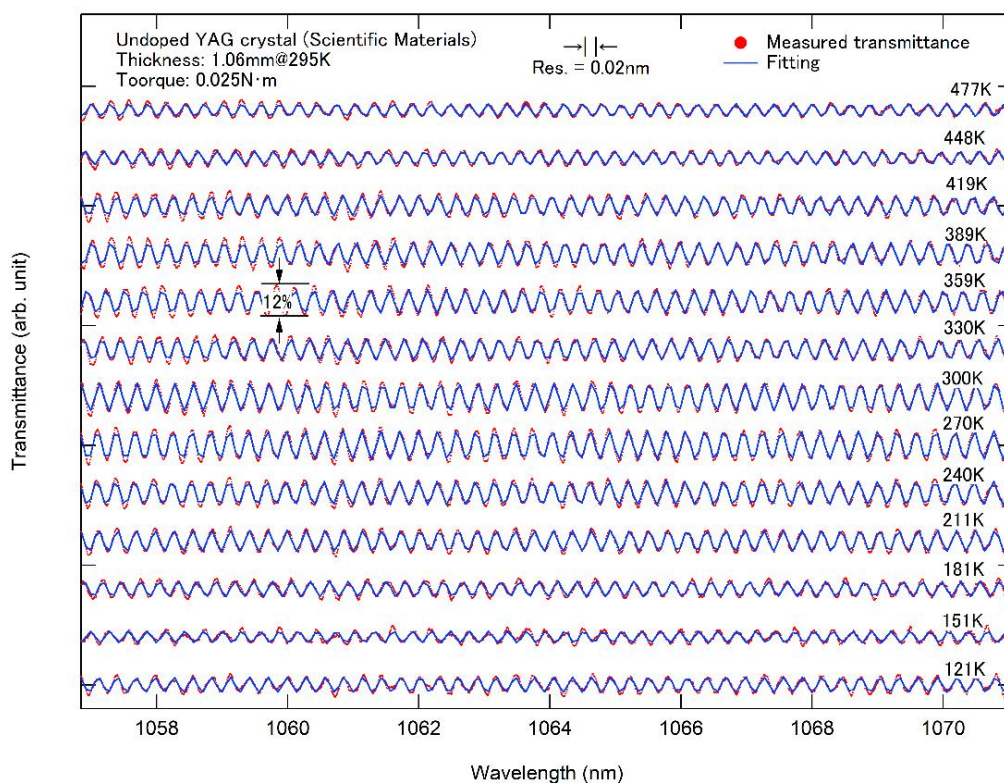


図3.11.9 YAG単結晶の透過率における干渉フリンジの温度依存性

表3. 11. 2 YAG単結晶の熱膨張率と屈折率温度計数

(K)	100 K	150	160	200	250	300	350	400	450	500
α ($10^{-6}/\text{K}$)	2.14	3.56	3.81	4.71	5.59	6.26	6.77	7.18	7.52	7.80
dn/dT ($10^{-6}/\text{K}$)	2.23	3.83	4.14	5.23	6.47	7.50	8.30	8.88	9.19	9.31

ここで得られたYAGの屈折率温度計数を、式(3. 11. 5)で示されるべき乗多項式でフィッティングを実施した際のパラメータを表3. 11. 3に示す。

$$\frac{dn(T)}{dT} = b_0 + b_1 T + b_2 T^2 + b_3 T^3, \quad (3. 11. 5)$$

表3. 11. 3 YAG単結晶の屈折率温度計数に関する数値モデルにおける係数

$10^{-6} / \text{K}$	$10^{-8} / \text{K}^2$	$10^{-11} / \text{K}^3$	$10^{-14} / \text{K}^4$	K	
b_0	b_1	b_2	b_3	Range	Accuracy
-1.38	3.90	-2.51	-2.02	100-500	< 1%

最後に本実施項目を総括する。接合強度に関する情報として、レーザ駆動時のDFCチップ発熱による熱膨張による変形に伴う内部応力見積もりに必要な、TILA-PowerChipを構成する様々な単結晶・多結晶材料について、様々なレベルでの熱設計に有用となる**熱膨張率および屈折率温度計数の数値モデルを構築し、そのパラメータを材料ごとに計測**した。特に熱膨張率評価結果に関する総括を図3. 11. 10に示す。ここで得られた計測結果は、DFC設計におけるCOMSOLを用いたコンピュータシミュレーションで使用されており、DFCの最適設計に反映されている。

YAG, YSAG, サファイア YAG

熱膨張率の評価および数値モデル構築 屈折率温度計数評価および数値モデル構築

- %オーダーの希土類添加による熱膨張率変化は計測誤差以下である
- YAGとYSAGの熱膨張係数は300℃以上の温度領域ではほぼ一致
- c軸方向のサファイアの熱膨張係数は室温以上の温度領域ではYAGとほぼ等しい
- サファイアの熱膨張係数に関する今回の計測結果は、c軸方向においてはNISTの標準データと一致したが、a軸方向はNIST標準よりも低く評価された

図3. 11. 10 本研究項目における熱膨張率評価の総括

なお、Nd:YAGとNd:YSAGの熱膨張率の差は室温で $2.5 \times 10^{-7} / \text{K}$ であるが、高温になるにつれ差は縮まり、300℃以上の温度領域では両者はほぼ一致していた。また、サファイアの熱膨張率に関する今回の計測結果は、c軸方向においてはNISTで用いられている標準データと一致したが、a軸方向はNIST標準よりも低く、より強い異方性を有していたことが明らかとなった。但し、**c軸方向のサファイアの熱膨張率は室温以上の温度領域ではYAGとほぼ等しい**ことも明らかとなり、サファイアのcカット面とYAGの接合による複合構造媒質においては、予想された熱膨張差による熱問題についてはほぼ考慮する必要が無いことが明らかとなった。

本実施項目で計測された物性値の一部は既に論文として公開されており、製品としてのNd:YAGレーザセラミックスのカタログにも反映される予定である。

⑫ 排熱特性評価（担当：理化学研究所）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

高出力レーザ媒質であるNd:YAGに対し、排熱性向上を目的として異種材料である透明ヒートシンク（サファイア）との常温接合による複合構造化は本プロジェクトにおける最重要基盤技術である。特に、レーザ出力上限を設計する際には、層間の熱抵抗を含めて系全体の実効的な熱伝導率がどのようになっているかを明らかにすることが必要となる。本研究項目においては実施項目⑩「常温接合や表面処理に適した高品位レーザ材料の開発」の実施のために必要な情報として、DFCチップの排熱特性に係わる実効熱伝導率を明らかにし、かつ実際のセラミックレーザ素子における分光特性に関する知見を合わせてまとめている。

そこで、本プロジェクトにおいては令和3年度において図3.12.1に示す熱伝達計測装置を導入し、令和4年度には本装置を用いてDFC-PowerChipの設計に重要なNd:YAGおよびサファイア単結晶の熱伝導率について、温度範囲160 K～773 Kにおける高精度評価（繰返し精度±1%）を実施し、温度依存性に関する数値モデルを構築した。令和5年度においてはNd:YSAGセラミックスおよびNd:YAGセラミックスの熱伝導率について評価し、さらに令和5年度後半から令和6年度においては常温接合により複合構造化されたレーザ媒質に関する実効的な熱伝導率および、接合界面における層間熱抵抗についての評価を行った。最終的に、これらのTILA-PowerChipを構成する様々な単結晶・多結晶材料および複合構造材料について、様々なレベルでの熱設計に有用となる熱伝導率の数値モデルを構築することができた。

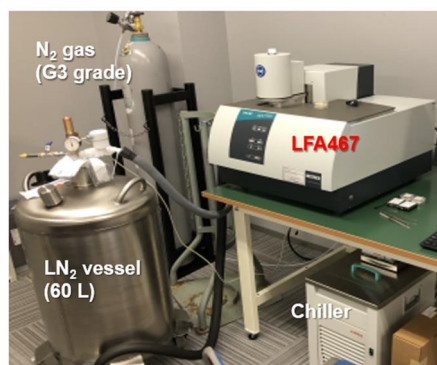


図3.12.1 熱伝達係数計測装置（LFA467 HyperFlash, NETZSCH GmbH）

熱伝導率は密度、比熱、および熱拡散率の積である。まず比熱について、セラミックスと単結晶の比熱に差が無いことはすでに確認されている（Y. Sato and T. Taira, Opt. Mater. Express **11**, 551 (2021).）。本項目では熱流束型示差走査熱量計（DSC8231、リガク：文科省マテリアル先端リサーチ事業での装置利用）を使用して図3.12.2に示す通りYAG、YSAG、およびYGAGセラミックスの比熱を評価した。

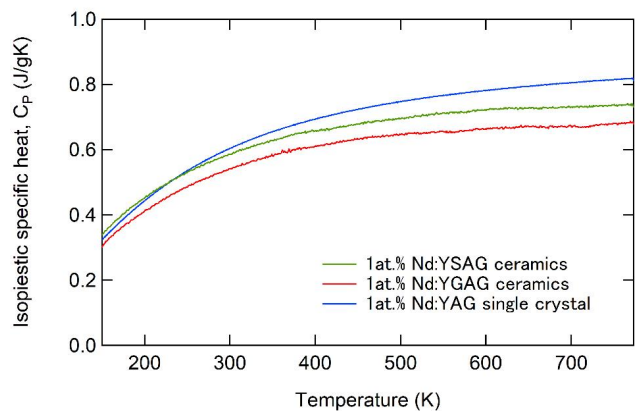


図3.12.2 YAG結晶、YSAGおよびYAGセラミックスの比熱（右）および計測装置（左）

次に、サファイアの熱伝導率について評価結果を示す。令和4年度において信光社製のサファイア単結晶について、そして令和6年度において京セラ製のサファイア単結晶について熱拡散率の評価を実施したが、熱拡散率については両者の差は無かった。サファイアの比熱としてNISTにより公開されたデータ (Int. J. Thermophys. 18 (5), 1269 (1997).) を使用して評価したサファイアの熱伝導率を図3.12.3に示す。

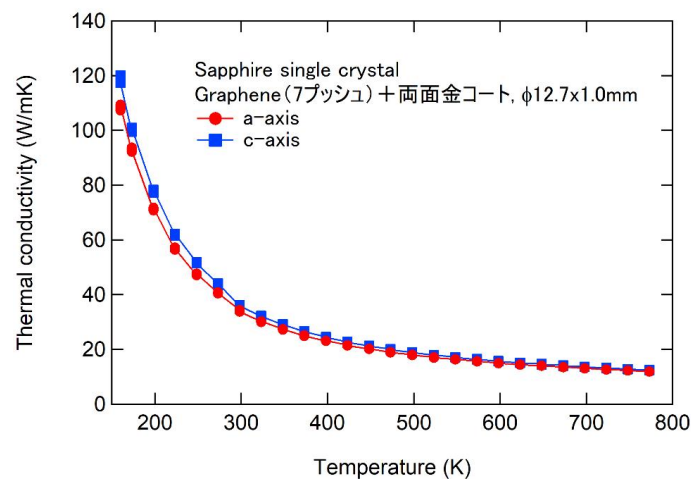


図3.12.3 サファイア単結晶における熱伝導率

さらに令和4年度において評価したYAG単結晶およびYAGセラミックスの熱伝導率、そして令和5年度において評価したYSAGセラミックス、およびYAGセラミックスの熱伝導率について評価結果を図3.12.4に示す。

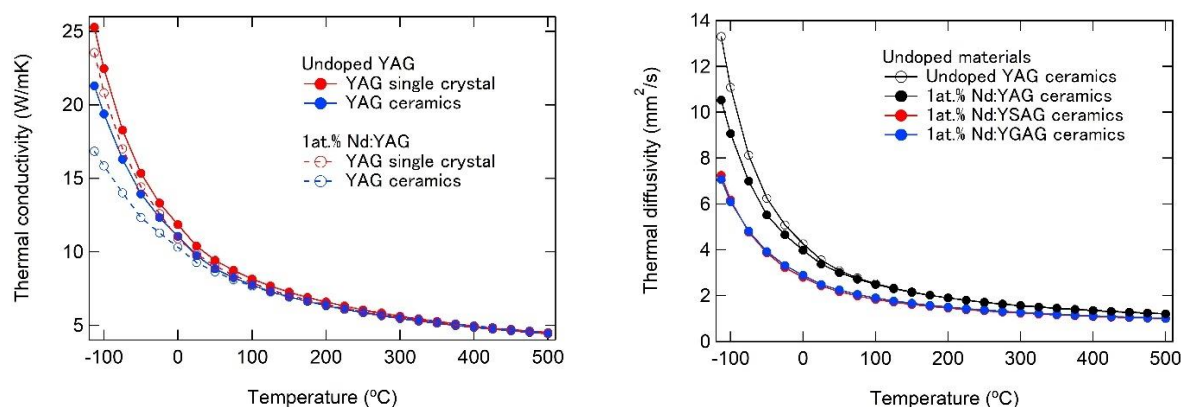


図3.12.4 YAG熱伝導率（左）およびYAG、YSAG、YGAGセラミックスの熱伝導率（右）

また令和5年度において、これらの諸材料の熱伝導率に関する数値モデルとして

$$\kappa(T) = \kappa_0 + \frac{\kappa_1}{T} + \kappa_2 \exp\left(-\frac{T}{T_0}\right) \quad (3.12.1)$$

を提案したが、このパラメータについても表3.12.1～3.12.4に示す。

表3.12.1 サファイア単結晶の熱伝導率数値モデルにおける係数

	κ_0	κ_1	κ_2	T_0	Range
	W/mK	10^3 W/mK ²	W/mK	K	K
c-cut	0.354	9.20	945	58.2	160-773
a-cut	0.761	8.41	766	60.4	160-773

表3.12.2 YAG、Nd:YAG単結晶の熱伝導率数値モデルにおける係数

	κ_0	κ_1	κ_2	T_0	Range
	W/mK	10^3 W/mK ²	W/mK	K	K
YAG	1.29	2.47	120	60.7	160-773
1at.%Nd:YAG	1.42	2.34	127	56.6	160-773

表3. 12. 3 YAG、Nd:YAGセラミックスの熱伝導率数値モデルにおける係数

	κ_0	κ_1	κ_2	T_0	Range
	W/mK	10^3 W/mK ²	W/mK	K	K
YAG	1. 75	2. 09	52. 4	76. 7	160-773
1at. %Nd:YAG	2. 07	1. 91	11. 4	119	160-773

表3. 12. 4 Nd:YSAGおよびNd:YGAGセラミックスの熱伝導率数値モデルにおける係数

	κ_0	κ_1	κ_2	T_0	Range
	W/mK	10^3 W/mK ²	W/mK	K	K
1at. %Nd:YSAG	1. 57	1. 37	15. 8	75. 0	160-773
1at. %Nd:YGAG	1. 46	1. 56	3. 28	101	160-773

実際に上記の光学材料を用いてDFC構造を作成した場合の実効熱伝導率についても評価を実施した。複数の層からなる層構造材料について、厚さ l_i を有する i 層目の素材の熱伝導率を κ_i 、隣接する i 層と j 層の間の熱抵抗率を R_{ij} とすれば、熱流に関するフーリエの法則により、接合面に対し垂直方向に流れる熱流に関する実効的熱伝導率 κ_{eff} を

$$\kappa_{eff} = \frac{\sum l_i}{\sum \frac{l_i}{\kappa_i} + \sum R_{ij}} \quad (3. 12. 2)$$

と評価することができる。ここで熱抵抗率 R_{ij} とは、隣接する i 層と j 層の間の単位面積当たりの熱流量と層間温度差の比である（通常の熱抵抗は R_{ij} と面積との積で表される）。令和5年度において我々のグループで実現された常温接合では R_{ij} は無視できる大きさでしかないことを示した。これによりYAGとサファイアを常温接合して得られるDFCレーザ媒質における実効的熱伝導率を見積もった結果を図3. 12. 5に示す。YAGとサファイアの厚さを1:1とした場合（下図マーカー●）、実効的熱伝導率はおおよそ15 W/mK程度となるが、YAGとサファイアの厚さを1:8（例えば厚さ0. 5mmのYAG結晶を2枚の厚さ2 mmのサファイアでサンドイッチした構造、下図マーカー◇）にした場合は27W/mKまで増大される。構造設計により30 W/mK以上の実効熱伝導率を得ることも可能である。

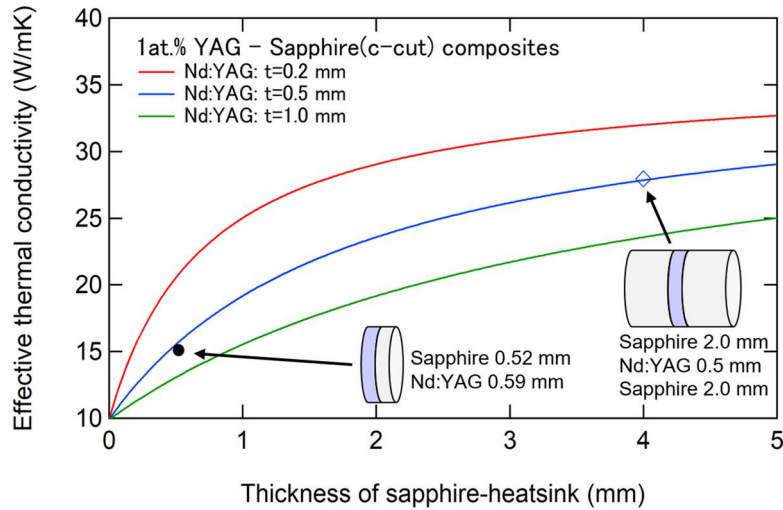


図3. 12. 5 YAGとサファイアを常温接合して得られたDFC媒質の実効的熱伝導率

令和6年度においては、常温接合ではなく、図3. 12. 6に示すようなインジウムを挟んでNd:YAGとサファイアを6kN（およそ47. 4 MPa）で圧着した状態、そして接合せずにただNd:YAGとサファイアを重ねた状態でのYAG-サファイア間の層間熱抵抗について評価を実施した。

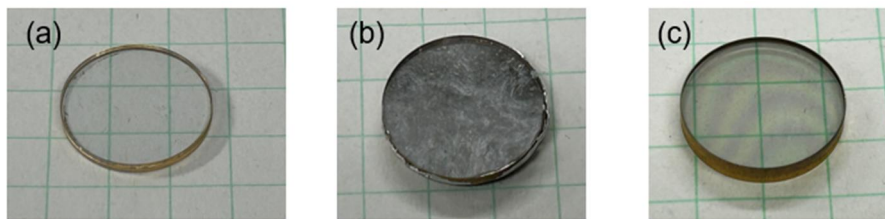


図3. 12. 6 様々なNd:YAGとサファイアの2層構造材料
(a) 常温接合 (b) インジウムを圧着 (c) 重ねただけの場合

(b)

接合層間での熱抵抗 R_{12} の評価法としては、第 i 層の密度 ρ_i 、比熱 C_{Pi} 、および厚さ l_i の積で与えられる ξ_i 、そして熱伝達係数計測装置（LFA467 HyperFlash, NETZSCH製）を用いて評価された実効的熱拡散率 D_{eff} から

$$R_{12} = \frac{\xi_1 + \xi_2}{6\xi_1\xi_2} \left[\frac{(l_1 + l_2)^2}{D_{eff}} - \frac{(l_1 + l_2)^2}{D_{ideal}} \right] \quad (3.12.3)$$

により行うことができる。但し、 D_{ideal} については、あらかじめ計測された各層の物性値から

$$D_{ideal} = \frac{(l_1 + l_2)^2 (\xi_1 + \xi_2)}{(\xi_1 + 3\xi_2) \frac{l_1^2}{D_1} + (3\xi_1 + \xi_2) \frac{l_2^2}{D_2}} \quad (3.12.4)$$

により評価される層間熱抵抗が0の場合の実効的熱拡散率である。

インジウムを挟んでNd:YAGとサファイアを6kN（およそ47. 4 MPa）で圧着した状態、そして接合せずにただNd:YAGとサファイアを重ねた状態でのYAG-サファイア間の層間熱抵抗の評価結果を図3. 12. 7

に示す。この図3. 12. 7にはYAG層およびサファイア層の熱抵抗も含まれているが、これらは温度が高くなるにつれ（層における熱伝導率が下がるため）高くなる。

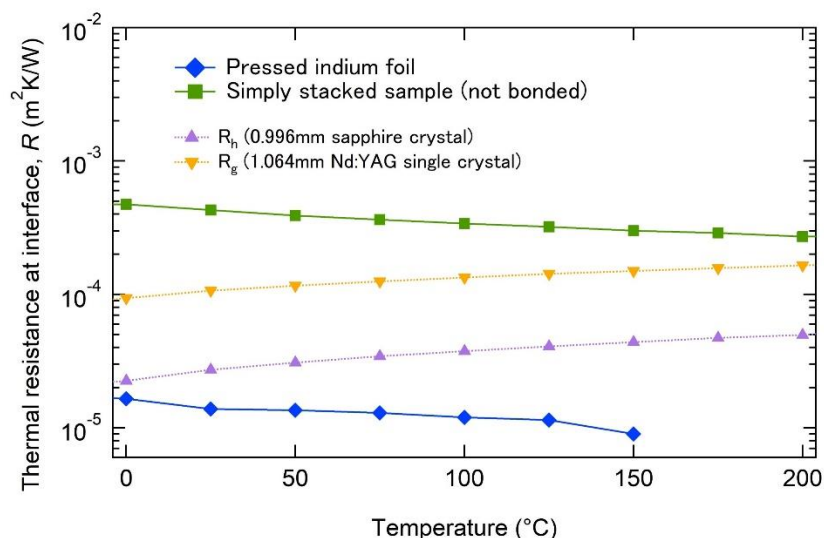


図3. 12. 7 YAG-サファイア2層構造における層間熱抵抗、およびYAG層・サファイア層の熱抵抗

今回計測した層間熱抵抗は、インジウムを挟んだ圧着、そしてただ重ねた状態のいずれの場合においても高温ほど小さくなっていった。ただ重ねた状態の層間熱抵抗は、厚さ10 μ mの空気層にほぼ等しい。インジウム圧着の場合、インジウム層の厚さは30 μ mほどであり、ここから予想される熱抵抗よりも40倍程度大きな熱抵抗が計測されているが、これは実際にはインジウムとYAG、インジウムとサファイアが密着されている領域が全体の16%ほどしかないことによると考えられる。高温になるほどインジウムが柔らかくなり、密着領域が大きくなっていると考えられる。

層間熱抵抗の評価結果をもとに、様々な接合状態における厚さの比が1:1のYAG-サファイア複合構造材料の実効熱伝導率を図3. 12. 8に示す。

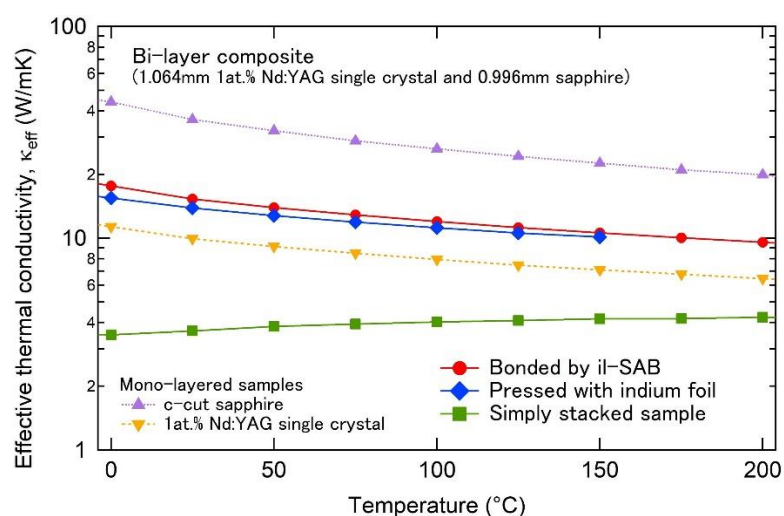


図3. 12. 8 YAG, サファイア、YAG-サファイア2層構造材料の実効熱伝導率

DFCチップの排熱効率に係わるNd:YAGセラミックスに関する分光学的な知見としては、蛍光量子効率、および利得が議論の対象となる。蛍光量子効率については、本プロジェクト申請者らにより

- 蛍光寿命はNd添加濃度には依存するが、セラミック媒質と単結晶とで差は無い (I. Shoji et al., Opt. Lett. **27**, 234 (2002).)。
- 蛍光量子効率¹⁾はNd間相互作用にのみ依存し、セラミック媒質特有の結晶欠陥 (粒界、空孔等) による量子効率低下は無視できる (V. Lupei et al., J. Opt. Soc. Am. B **19**, 360-368 (2002).)。

ことが報告されている。このことは、Nd添加濃度が同じであれば蛍光中心波長における遷移強度の波長による積分値はNd:YAG単結晶とセラミックスで差が無いことを意味している。

利得は発振波長における誘導放出断面積の特定波長におけるピーク値と励起イオン濃度の積である。全波長域での誘導放出強度の積分値は蛍光寿命の逆数に比例するため、上記で述べた通りセラミック媒質と単結晶とで差は無いが、結晶品質の低下により媒質の線幅が広くなれば当然ながら誘導放出断面積のピーク値は低下する。線幅はNd-格子相互作用 (ラマン効果) で決定する自然幅と結晶の不完全性に起因する不均一幅により決定されるが、自然幅は上記の理由で単結晶とセラミックスで差はほぼ無い。

レーザセラミックスにおける不均一幅は、粒界、空孔等に偏析するNdイオン数はセラミックグレイン内のNdイオン数と比較して非常に少ないため、通常の単結晶でも存在する結晶欠陥 (高温成長に伴い導入されるエントロピー欠陥) の多さで決定される。チョクラスキー法など通常の単結晶育成では融点以上の温度で行われる融液成長法が用いられるが、融点以下での焼成過程によるセラミックス合成においては、エントロピー欠陥の生成率は単結晶よりは原理的に低くなり得る。実際に、本プロジェクト申請者らによりすでに誘導放出断面積のピーク値についてはセラミック媒質が単結晶より高く、優れた特性を有することが報告されている (Y. Sato and T. Taira, Opt. Mater. Express **1**, 514 (2011).)。しかしながら、より低温での焼成プロセスにおいては、結晶の粒成長がより抑制されるため、熱流がより多くの結晶粒界を通過するようになり排熱特性という観点からはマイナス要因となりうる。実際に、図3. 12. 4で示される通りYAGセラミックスの熱伝導率はYAG単結晶よりも低くなっているのに対し、グレインサイズの非常に大きいNd:YAGセラミックスにおける熱伝導率は単結晶とほぼ同じとなる (Y. Sato et al., Opt. Mater. **31**, 720 (2009).)。このことは、レーザセラミックスにおける焼成温度の最適化については空孔低減という評価軸だけではなく、利得と熱伝導率というあらたな評価軸が存在することを意味している。

以上の結果および議論を踏まえ、本実施項目を総括する。令和3年度に導入した熱伝達係数計測装置を用い、サファイア単結晶、YAG単結晶、YAGセラミックス、さらに、DFC用の各種結晶材料として、THz光発生に有用と思われるNd:YSAGセラミックスおよびNd:YAGセラミックス、およびこれらからなる複合構造材料において (実効的な) **熱拡散率および熱伝導率の評価を実施して有用な数値モデル**を得た。常温接合試料における熱拡散率は、接合界面で熱抵抗が無いと仮定した場合の積層構造体での熱拡散率とほぼ一致した。このことは**常温接合界面における熱抵抗については計測誤差以下でありほぼ無視できる**ことが示すものである。この結果、DFCチップなどの常温接合による積層構造材料においては、フーリエの法則で実効熱伝導率を評価できることが保障された。実効熱伝導率の評価に必要な各材料の熱伝導率に関しても、各材料における数値モデルを整備した。これらについては図3. 12. 9においてまとめている。ここで得られた計測結果は、DFC設計におけるCOMSOLを用いたコンピュータシミュレーションで使用されており、DFCの最適設計に反映されている。

1at.% Nd添加材料（YAGセラミックス&単結晶、YSAG & YGAGセラミックス）

比熱、密度、熱拡散率、熱伝導率の評価および数値モデル構築

Undoped材料（YAG単結晶・セラミックス、サファイア）

熱拡散率、熱伝導率の評価および数値モデル構築

- 1at.% Nd:YSAGおよびYGAGの熱伝導率はほぼ等しく、1at.% Nd:YAGセラミックスの70%程度
- 100°C以上では単結晶とセラミックスで熱伝導率の差は無視できる
- 常温接合における接合界面の熱抵抗は媒質全体の熱抵抗と比較して無視できる
- （設計次第で）DFC構造によりYAGの熱伝導率を実効的に30W/mK以上にすることが可能

図3. 12. 9 DFCチップの排熱特性に関する総括

そのうえで、焼成温度の最適化における空孔低減という評価軸とは異なる利得と熱伝導率という新たな評価軸の存在を示すNd:YAGセラミックスにおける熱伝導率の温度依存性の単結晶との違いを明確にしたこと、加えて実際の焼結接合で重要となる熱膨張率に関する実施項目⑪でえられた知見も併せて、実施項目⑩「常温接合や表面処理に適した高品位レーザ材料の開発」へのフィードバックとした。本実施項目で計測された物性値の一部は既に論文として公開されており、製品としてのNd:YAGレーザセラミックスのカタログにも反映される予定である。

⑬ 高品位の非線形材料開発（担当：理化学研究所）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

（１３－１）MgLTの検討

LiNbO₃(LN)系材料（Mg添加LNなど、5mol%Mg添加が主流、MgLN）は強誘電体中で最大の非線形光学定数 d を持つ一方で、レーザ光に対する耐久性ではYAGなどのレーザ結晶やLBOなどボレート系非線形光学材料などに大きく劣り、加えて可視域での微小散乱が他の非線形材料に比較しても大きいという欠点がある。これを改善するためLN系と同系統であるLiTaO₃(LT)系材料に着目し、特に反転抗電界が低く光損傷耐性の高いMg添加LT（MgLT）について、従来のMgLNとの比較検討を行った。

MgLTはMgLNよりと同じく三方晶系結晶であり、その紫外域吸収端はMgLNより短波長側に存在し、かつ可視域で低散乱である。図3.13.1に緑色光に対するMgLNとMgLT（8mol%Mg添加）の散乱特性の比較写真を示す。MgLNでは結晶内透過光の散乱が明確に確認できるのに対し、同一観察条件下でのMgLTの低散乱性が確認できる。またMgLTは、MgLNに比較して高い熱伝導率を示すことも確認している。

これらの特性から、MgLTはMgLNに比較して低強度励起時の変換効率で劣る（低 d に起因）一方で、高強度励起時の耐久性に優れた特性を示す（低散乱や高熱伝導特性などから）と期待でき、従来のMgLNを用いたQPM素子を、MgLTによるQPM素子に比較的容易に置き換え可能と確認できた（MgLTのQPM特性は項目⑭にて実施）。

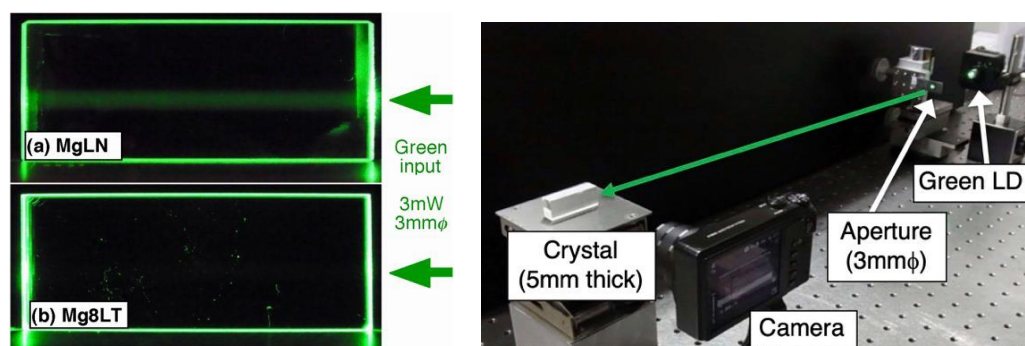


図3.13.1 (a)MgLNと(b)Mg8LTの緑色光散乱特性比較（右は評価配置）

（１３－２）水晶の特性比較

水晶は本研究で利用を検討する非線形光学用途以外の光学用途（波長板や光学窓など）や振動子用に広く利用されるため、工業的に高品質大型結晶が育成され、国内外の多くの結晶製造元から入手可能である。しかしその品質は用途や製造元により異なり、これが現在の項目⑥で検討しているスタンプ法での条件最適化（均一性や再現性など）を困難としている一因と考えた。加えてTHz波発生用非線形材料としての最適化も不十分な状況にある。その原因の一つとして、水晶は光学的には真空紫外（VUV）から中赤外域（MIR）まで高透過（150nm～3μm）であるため特徴に乏しく、区別が困難ことに原因があると考えた。

そこでここでは、日本国内および海外の複数の製造元（A～E社）から入手した水晶板（全てX板、1mm厚）について、真空紫外域および中赤外域の光学特性を測定し、特性評価/区別を試みた。その結果、中赤外域に存在する特徴的吸収の大きさが、紫外域透過特性と相関を示すことが確認できた。

（１３－２ a）水晶の真空紫外域透過特性

真空紫外分光光度計を用い、各社（A～E社）水晶板の紫外側透過特性を比較した結果を図3.13.2に示す。透過特性は特に波長180nm以下で大きく異なり、D>B>E>A>Cの順で高い透過特性が確認された。例えば水晶CやAは、波長180nmより短波長側で透過特性が急激に悪化する特性が確認され、真空紫外域光学用途や高強度真空紫外応用には不適な特性と言える。

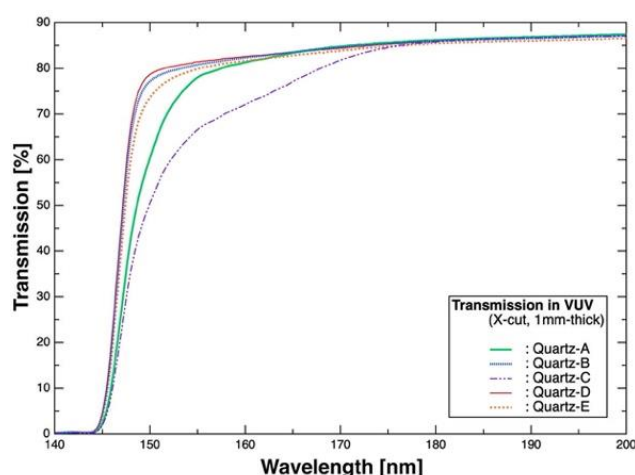


図3.13.2 真空紫外域透過特性比較

(1 3-2 b) 水晶の中赤外域透過特性

中赤外域では紫外側とは異なり、常光(n_o)と異常光(n_e)方向で明確に異なる透過吸収特性を示し、加えて常光に対して波長 $2.8\mu\text{m}$ 近傍で幾つかの特徴的な吸収特性を示す。図3.13.3に、水晶の典型的な中赤外域透過特性として、中赤外用FTIRを用いて測定したA社水晶板の常光と異常光方向それぞれの透過特性を示す。波長 $2.5\mu\text{m}$ 程度以上で顕著な赤外吸収が両偏光において確認できる他、波長 $4\mu\text{m}$ 以上では常光と異常光での違いも明確となる。加えて、波長 $2.8\mu\text{m}$ 近傍には微小ながら鋭い吸収が常光方向のみに観測されることがわかる。

図3.13.4には、各社水晶板の上記波長 $2.8\mu\text{m}$ 近傍での透過特性をまとめて示す。この結果から(a)各社水晶板の透過率絶対値の違い、(b)各社水晶板の波長 $2.8\mu\text{m}$ 近傍の特徴的吸収ピークの大きさの違いなどが確認でき、これにより各水晶板の区別が可能となる。ここでこの「波長 $2.8\mu\text{m}$ 近傍の特徴的吸収ピーク」は、波数 3585cm^{-1} (波長 $\sim 2789\text{nm}$)に位置することから α_{3585} と記される。これは結晶中のOH基に起因する吸収ピークであり、振動子用材料としての水晶の結晶品質を示す指標として使われるパラメータの一つである

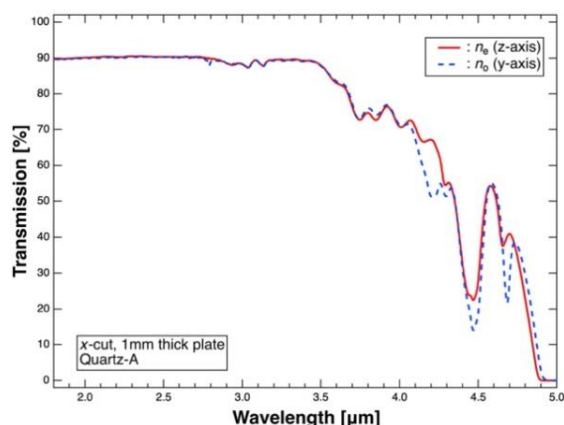


図3.13.3 中赤外域透過特性 (A社)

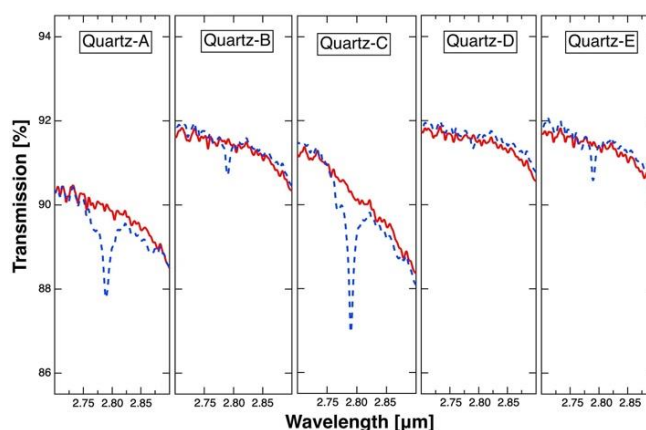


図3.13.4 中赤外域透過特性比較

(1 3-2 c) 水晶の真空紫外と中赤外の特性関係性

FTIR測定結果から確認された α_{3585} の値の大小関係は $D < B < E < A < C$ であり、紫外側透過特性と同一順(α_{3585} の小さいものほどVUVで高透過)であった。このことから、水晶の結晶品質確認/区別の指標の一つとして、この α_{3585} が利用できることが分かった。今後は、入手する水晶材料について、この α_{3585} とQPMスタンプ処理時の反転特性とを比較しつつ条件最適化を進める予定である。

(13-3) THz-TDS

波長変換用の非線形光学デバイスの設計・開発のためには、使用する非線形光学材料の正確な光学定数の把握が不可欠である。一般的に、THz波領域における光学定数の計測にはTHz時間領域分光法（THz-TDS）が用いられる。しかしながら、この手法は正確性および再現性の面で課題があり、文献値の信頼性にも疑問が残る。そこで本研究では、高精度な光学定数の評価を可能とする独自の計測体制の構築を目指した。以下にその実施内容と結果を報告する。

	令和2年度	令和3年度	令和4年度	令和5年度	令和6年度
高品位の非線形材料開発・THz分光					
測定、分析方法の検討	■				
測定法の改良・光学系の構築		■	■	■	
温度可変冷凍機導入			■		
測定・分析プログラムの作成			■	■	
誤差の厚み依存性の検討			■	■	■
THz光学材料・部品の測定		■	■	■	■
非線形光学材料の測定		■	■	■	■
総括まとめ					■

図3.13.5 項目⑬における各実施内容と進捗状況

THz-TDSでは、図3.13.6に示すように、THzパルスの時間波形を計測し、その解析を通じて試料の光学物性値（屈折率、吸収係数、誘電率、反射率など）を求める。計算の手順については後述の付録に記載する。

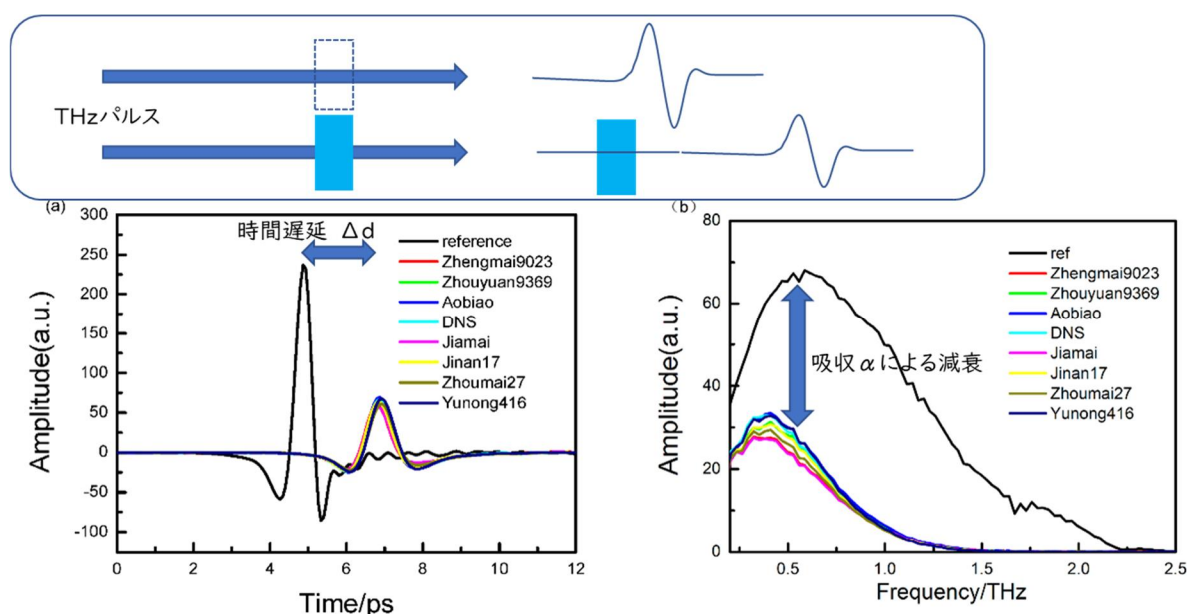


図3.13.6 THz-TDSで計測される時間波形と光学定数。サンプルを置くことで時間遅延および振幅の減少が生じる。この時間遅延と減衰量から、試料の光学特性を算出することができる。

加えて、精度向上を目指し、測定モデルの誤差要因についても検討を行った。透過スペクトルを $E(\omega)$ 、厚みを d 、屈折率を n とすると、吸収係数 α は次式で定義される：

$$\alpha(\omega) = -\frac{1}{d} \ln \left(E(\omega) \frac{(n(\omega) + 1)^2}{4n(\omega)} \right) \quad (13.3.1)$$

ここで誤差伝搬の理論に従うと $\Delta \alpha$ は下のよう書ける

$$\Delta \alpha(\omega) = \left| \frac{1}{d^2} \ln(E(\omega)) \right| \Delta d + \left| \frac{1}{dE(\omega)} \right| \Delta E(\omega) \quad (13.3.2)$$

ここで、式(13.3.2)を導出する際に式(13.3.1)のフレネル反射の項は、屈折率の誤差および影響が小さいことから定数とみなしている。

同様に相対誤差は、

$$\frac{\Delta \alpha(\omega)}{|\alpha(\omega)|} = \left| \frac{1}{d} \right| \Delta d + \left| \frac{1}{E(\omega) \ln(E(\omega))} \right| \Delta E(\omega) \quad (13.3.3)$$

と書ける。これらの式より、低い吸収係数を扱う際には、相対誤差の影響が非常に大きくなることがわかる。したがって水晶のような低吸収体においては、相対誤差の影響が大きくなる。その場合において、誤差を小さくするには、厚みを大きくすることに加えて、全体の透過率を下げる必要がある。

式(13.3.2)を用いて厚み15mmと1mmの水晶を測定した場合の $\Delta \alpha$ を計算した結果を図3.13.7に載せる。厚み1mmの試料に対しては、 $\Delta \alpha$ の値が、0.8THzで、およそ、 0.3 cm^{-1} なのに対して、15mmの試料の場合においては、 $\Delta \alpha = 0.02 \text{ cm}^{-1}$ であった。

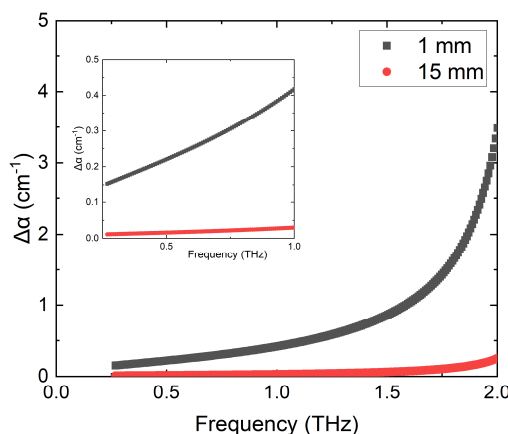


図3.13.7 誤算伝搬理論に基づいた $\Delta \alpha$ の値。上は厚み15 mm、下は厚み1 mmのサンプルの計算結果。

この結果は水晶の α の評価において重要な意味を示している。例えば、文献で見られる α の値は0.8THzで 0.3 cm^{-1} という報告である[Bréhat, F., Wyncke, B. Int J Infra red Milli Waves 18, 1663-1679 (1997)]。測定可能な限界を測定誤差の3倍で定義すると、文献値は最小値より低く、正確に評価できていない可能性があることを示唆している。一方で、厚み15mmの試料を用いた測定においては、検出限界は 0.06 cm^{-1} という値が導かれる。したがって、小さい吸収を評価するためには、厚いサンプルを測定すればいい、ということがここから言える。この結論は非常にシンプルであるが、THz-TDSを用いた分光測定においては大きな意味を持つ。THz-TDSでは、一般的に4個の放物面鏡を用いてTHz波を集光し、その鏡たちの中心（2番と3番の鏡の間）で、集光ビームのレイリー長さを利用して分光測定を行うが、レイリー長さには限界があり、そのために厚い

試料を測定することがむづかしく薄い試料の測定が主であった。このことがこれまでのTHz-TDSにおける問題点であったかもしれない。

この方法では集光部での非線形効果や測定サンプル内でのビーム蹴られなどの問題が発生する。そこで、本研究では発生したTHzビームを $\Phi 10\text{mm}$ 以下でコリメートし、より平行光に近い状態でサンプルに照射する構成であるコリメート光THz時間領域分光システム (THz-cTDS) を使用した。図3.13.8にTHz-cTDSシステムの原理図を示す。THz波発生源から3つ目の軸外し放物面鏡 (OAP, $\Phi 0.5$ インチ) を通してビームを平行光に整え、ビーム径を $\Phi 10\text{mm}$ 以下としている。図3.13.9にTHz-cTDSシステムの写真を示す。光学系を簡易的にパージした上でドライエアーを充填することで水蒸気によるTHz波吸収の影響を低減している。

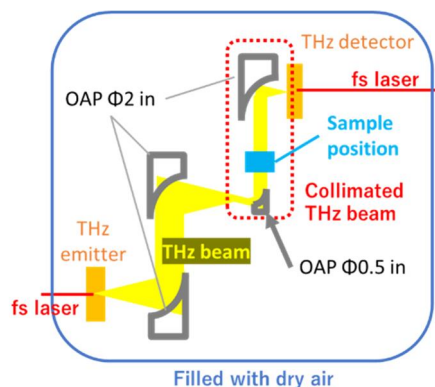


図3.13.8 コリメート光THz時間領域分光システム (THz-cTDS) の原理図

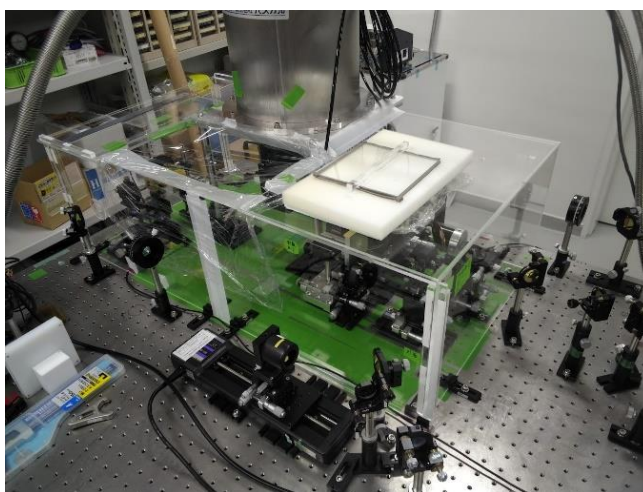


図3.13.9 測定に用いたTHz-cTDSシステム

このTHz-cTDSシステム (図3.13.9) を使用して水晶の計測を行った。水晶は非線形光学結晶であり、かつニオブ酸リチウム (LiNbO_3 (LN)) 等と比べて高強度な光を使うことが可能で、効率的な波長変換が期待される。水晶は光やTHz波に対して吸収が少ない素材であるが、その吸収特性には再評価の余地がある。THz-cTDSによる計測結果では、 0.6THz 以下のTHz帯における吸収係数が文献値 (0.3cm^{-1}) のよりも約3倍小さい (0.1cm^{-1}) ことが分かった (図3.13.10)。これは水晶の損傷閾値が高く、高効率な波長変換材料としての性能を示している。今後は水晶の光学定数を詳しく調査し、非線形光学波長変換材料としての利用も進める。

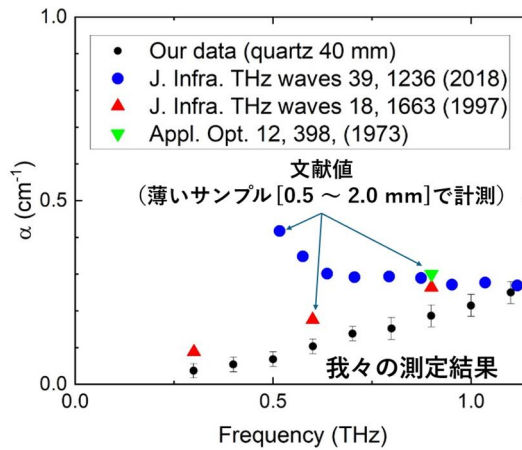


図3.13.10 THz帯における水晶の吸収係数の測定値と文献値。

これらの実施により、厚い試料を測定することで文献値よりも小さい物性値 ($< 0.1 \text{ cm}^{-1}$)、つまり真値に近い評価が可能であることが確認された。そこで、今後は水晶に加えて非線形光学結晶のTHz領域における評価も行う。加えて、素子設計に必要な条件の計測として、物性値のMgドーパ濃度依存性や温度依存性なども進めていく予定である。

光からTHz波への波長変換には様々な非線形光学材料が使用されており、LNとタンタル酸リチウム (LiTaO_3 (LT)) はその優れた非線形光学特性により、THz波発生に広く利用されている。これらの材料はハイパワーレーザと組み合わせることで、高強度かつ高効率なTHz波発生が可能である。

LNとLTには、Mgを添加することでフォトリフを抑えたり、分極反転の温度上限を高くするメリットがあるため、Mg添加LN (MgLN) やLT (MgLT) も利用されている。これらの材料には、大型化が可能なCongruent LN (CLN) やCongruent LT (CLT)、理想組成比のStoichiometric LN (SLN) やStoichiometric LT (SLT) など、さまざまな組成のものがあり、用途に応じて使い分けられている。最近のハイパワーレーザに対応するためには、さらに大きな結晶が必要とされている。

LTはQPMデバイスとしても期待されており、QPM構造を利用することで効率的な波長変換が可能となる。LTはLNに比べて非線形光学係数が大きく、利用価値が高い。QPM構造として利用するためには、材料の光学特性を詳しく知ることが必要だが、CLTのTHz帯における光学パラメータの報告はまだ不十分である。

THz領域での物質の光学特性評価には、測定ごとの値のばらつきや再現性、文献による計測値の違いが指摘されている。QPM構造の利用には材料の光学定数を精度良く理解することが不可欠であるため、THz-TDSの測定法を見直し、測定精度を確保した上でCLNとCLTのTHz帯における光学特性を計測した。

CLN, CLTはTHz-cTDSシステム (図3.13.9) を用いて測定した。これは細くコリメートされたビーム径を0.5インチ以下に抑えたTHzビームを用いて測定を行うことができる。図に示すように、このTHzビームを試料に通すことで、サンプル透過によるビームの散乱などの影響を抑えて計測を行った。THzビームの平行はナイフエッジ法で確認し、ガウシアン型の強度分布でFWHMは6 mmであった。試料の大きさは $15 \times 20 \text{ mm}$ 以上であるため、ビームは全て試料に当たっている。取得した時間領域波形から試料の複素光学定数を計算した。計算手順の詳細は以前の研究に記載されている方法と基本的に同じである。また、THz波路は窒素でパージし、空気中の水蒸気の影響を減少させた。この手法による計測は誤差精度 $\Delta n = 0.004$ であった。

CLTとCLNの測定結果を図3.13.11に示す。CLNの n_o と n_e はそれぞれ5付近と6.5~7.0付近に位置するのに対し、CLTでは n_e と n_o がそれぞれ6.3~6.5、6.4~6.7となっている。LNと比較すると、LTは複屈折 dn が小さいことがわかる。可視域でのLNとLTの屈折率は以下の

通りである： LN: $n_o = 2.3003$, $n_e = 2.214$ (Zelmon et al., 1997), LT: $n_o = 2.177$, $n_e = 2.1745$ (M. Nakamura et al., 2002)。可視光領域においても dn はLNとLTで差があるが、THz領域ではさらに広がっている。この傾向は、THz領域での屈折率に寄与するパラメータに差異があり、物性の状態を反映していることを示している。

吸収についての比較も図に示す。CLNとCLTの吸収を0.2～1.8THzの範囲で示した。LNとLTは共に数THzにおいて大きな吸収と異常分散を示しているが、今回観測している領域はその裾に当たる。観測された周波数域において、周波数とともに吸収が増大することが見られ、CLNの $\alpha_e < \text{CLN } \alpha_o < \text{CLT } \alpha_o < \text{CLT } \alpha_e$ という吸収係数の傾向が見られた。CLNに比べるとCLTは吸収が大きい。特に1THzでのCLNの a_e は 10 cm^{-1} 以下であるのに対し、CLTの a_e は 40 cm^{-1} を超える。表3.13.1に1THzにおけるCLT、CLNの物性値を示す。

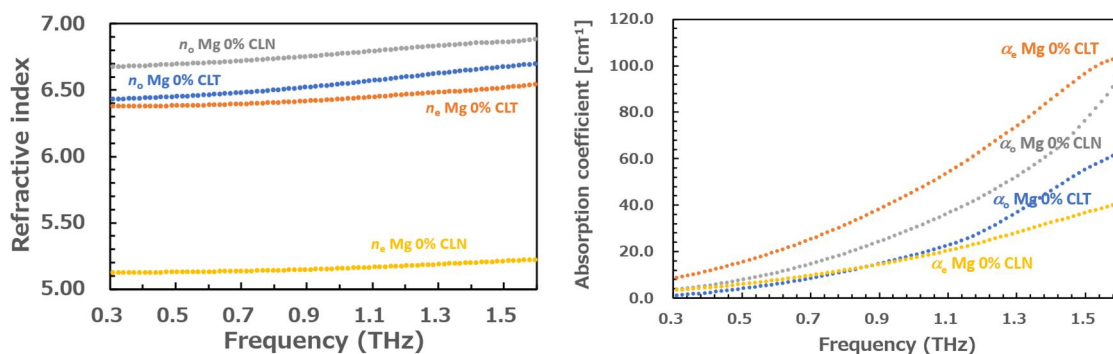


図 3.13.11 THz 帯における(左)CLT、CLN の屈折率、
右)CLT、CLN の吸収係数

表 3.13.1 1THz での物性値

		n	$a \text{ (cm}^{-1}\text{)}$
CLT	Ordinary	6.55	17.1
	Extraordinary	6.44	46.7
CLN	Ordinary	6.77	29.8
	Extraordinary	5.16	17.6

これらの測定を温度範囲を広げて行った結果を図3.13.12に示す。30Kから室温までの範囲において計測を行った。吸収係数は顕著に温度依存性がみられ、温度を下げることでより吸収が小さくなることが観測された。

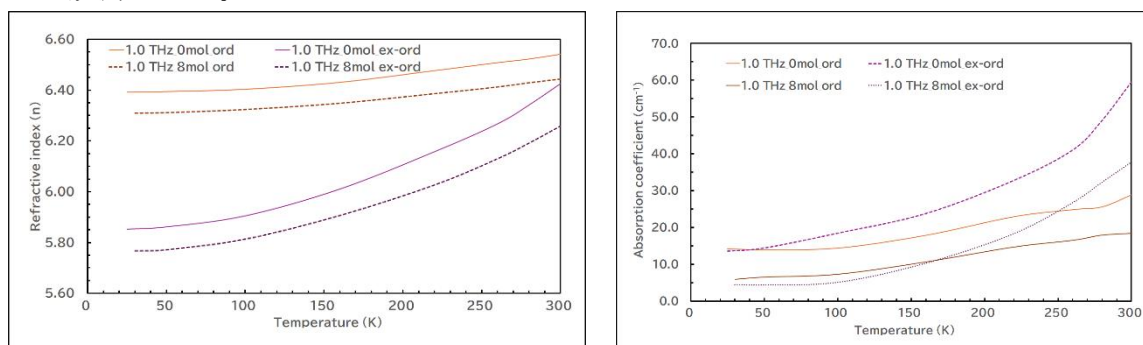


図3.13.12 CLTの光学定数の温度依存性 (左) 屈折率 (右) 吸収係数

これらの結果は、波長変換などのTHz波工学において取り扱いに注意が必要であることを示している。LN、LT材料は低温にすることで吸収を減少させることができるため、冷凍機の使用が解決策となる。これらの測定結果を利用して、THz波発生用の光学デバイスを設計する。

以上のように項目⑬では、図3. 13. 35にまとめるように、非線形光学材料として従来より利用されているMgLNに加え、これと同じ強誘電体で高耐久性が期待されるMgLT、および極高耐久性が期待されつつも非線形光学材料としての検討は不十分な水晶などについて、散乱や吸収特性などの評価を行った。これに加え、各材料のTHz波長域での屈折率や吸収係数、およびその温度依存性などを測定し、その結果、特にTHz波発生用の非線形光学材料として、MgLTは従来のMgLNを比較的容易に置き換え可能で耐久性向上が期待出来る点、水晶は将来の高強度励起用材料として期待できる一方でさらなる検討が必要であることなどを確認した。

項目⑬ 高品位の非線形材料開発

- ・ 将来の **MgLN** を簡易に置き換え可能で高耐久な **MgLT** の可能性を確認
- ・ さらに高耐久材料である水晶の波長変換利用可能性を確認
- ・ 水晶の紫外および赤外域透過特性の関係を確認
- ・ THz-TDS による各種材料の THz 波領域における特性評価系の構築

図3. 13. 35 項目⑬まとめ

開発項目⑬付録-1：

THz-TDSにおける光学パラメータの計算手順

屈折率の計算は以下の手順で行う。電磁波の振幅波形を $E(t)$ とすると、そのフーリエ変換スペクトルは次式で表される：

$$E(\omega) = r(\omega) \exp(i\theta(\omega)) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \exp(-i\omega t) dt \quad (13.3.4)$$

リファレンスとサンプルのフーリエ変換スペクトルをそれぞれ $E_{ref}(\omega)$ 、 $E_{sam}(\omega)$ としたとき、

$$\frac{E_{sam}(\omega)}{E_{ref}(\omega)} = \frac{r_{sam}(\omega) \exp(i\theta_{sam}(\omega))}{r_{ref}(\omega) \exp(i\theta_{ref}(\omega))} \equiv \rho(\omega) \exp[-i\phi(\omega)] \quad (13.3.5)$$

$$\text{なお、} \exp[-i\phi(\omega)] = \exp[-i(\theta_{sam}(\omega) - \theta_{ref}(\omega))]$$

ここで位相差 $\phi(\omega)$ は次式で表され、屈折率 $n(\omega)$ は次のように求められる：

$$n(\omega) = \frac{c\phi(\omega)}{\omega L} + 1 \quad (13.3.6)$$

一方、吸収係数 $\alpha(\omega)$ は以下のように導かれる。ランベルト-ベールの法則に基づき、

$$\frac{r_{sam}(\omega)}{r_{ref}(\omega)} = \exp(-\alpha(\omega)L) \quad (13.3.7)$$

より、

$$\alpha(\omega) = \frac{1}{L} \ln \frac{r_{ref}(\omega)}{r_{sam}(\omega)} \equiv -\frac{1}{L} \ln \rho(\omega) \quad (13.3.8)$$

さらに、 $\alpha(\omega)$ は複素屈折率の虚部 k と波長 λ の関係より、

$$\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda} \quad (13.3.9)$$

と書ける。実際の計算アルゴリズム上では、表面と裏面での反射を考慮して、

$$\frac{r_{ref}(\omega)}{(1-R)^2} \text{を } r_{ref}(\omega) \text{として計算している。ここで } R \text{は反射率： } R = \left(\frac{n_1+n_2}{n_1-n_2}\right)^2$$

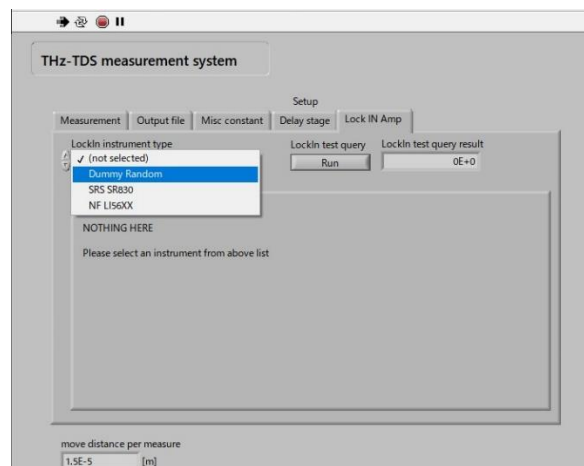
これらの式を用いて屈折率 n 、消衰係数 k 、吸収係数 α が求まり、さらに誘電率の実部 $\epsilon = n^2 - k^2$ 、および虚部 $\epsilon' = 2nk$ も算出可能である。

LabVIEWを用いた計算プログラムの改良：

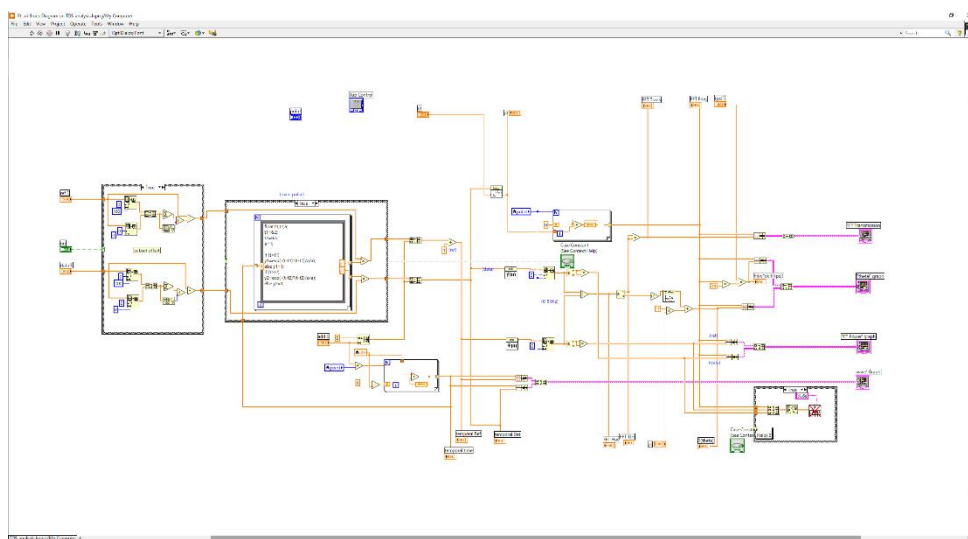
本研究では、これらの計算・解析を効率的に行うために、測定プログラムの改良を実施した。プログラムの動作フローは、ディレイステージのコントロールを行いながらロックインアンプからの信号を計測することでTHzパルスを同時に行う事である。このフローにおいて、数値桁数の向上、繰り返し測定の設定、測定時間の短縮などを改善した。プログラムおよびそのインターフェース図付3-13-1、図付3-13-2に示す。あわせて以下の項目の追加も行った。

- 窓関数を選択、調整できるようにする
- 他のパラメータも計算できるように（計算結果表示の仕方もアレンジ）
- 単位を変えた値も一括で計算するように
（例：周波数 $\leftrightarrow$ 波長 $\leftrightarrow$ 波数など）
- MATLABを不要に
- Refとデータが複数ある場合にたすき掛けにして計算結果を表示
- 数値の桁数の確認

このように、解析プログラムの改良を行うことで、解析スピードの向上、および、得られる情報の質と量を向上した。



図付3-13-1 THz時間領域分光測定プログラムのインターフェース



図付3-13-2 パラメータ計算のためのLabVIEWプログラムの一例

⑭ QPM 特性の評価（担当：理化学研究所）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

THz波発生用QPM-LN（PPLN）の設計

差周波発生（DFG）を利用したTHz波発生に利用するQPM-LN（PPLN）の設計には、正確な屈折率データか、波長分散を既述するセルマイヤー方程式が必要である。また、 LiNbO_3 (LN) 結晶には室温THz波帯域において無視できない吸収が存在することから、結晶冷却を含んだ利用が求められ、素子設計もこれを前提とする必要がある。その一方でJ級パルスエネルギーレーザによる高強度励起条件下では、レーザ光照射による結晶加熱の影響も無視できない。このため、ある程度の誤差を許容した上で、これを補償可能なシステム設計をする必要がある。

図3. 14. 1に、波長 $1.064\mu\text{m}$ 付近での2光波のDFGによるTHz波発生に必要なQPM周期の計算結果を示す。計算は、報告されているLN結晶のセルマイヤー方程式を元に、結晶温度50K、100K、200K、300Kの各条件下で行っている。例えば周波数0.3THzのDFGを実現するためには、周期 $\Lambda \sim 400\mu\text{m}$ 近傍のQPM構造が必要になるが、結晶温度変化によるQPM周期誤差も数十 μm 程度生じると予測される。高効率波長変換の実現には、これら種々の誤差を補償するため、（1）PPLN結晶の温度、（2）PPLN結晶へのレーザ光入射角度、（3）入力2光波の波長、などを調整可能要素として位相整合条件の最適化ならびに高効率動作の実現を図ることが好ましいと解る。

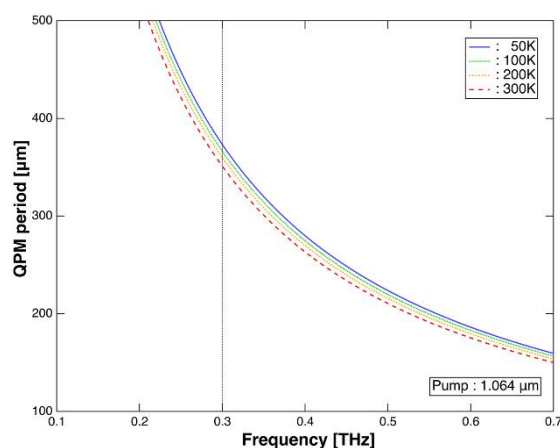


図3. 14. 1 THz波発生用QPM周期($1.064\mu\text{m}$ 励起)

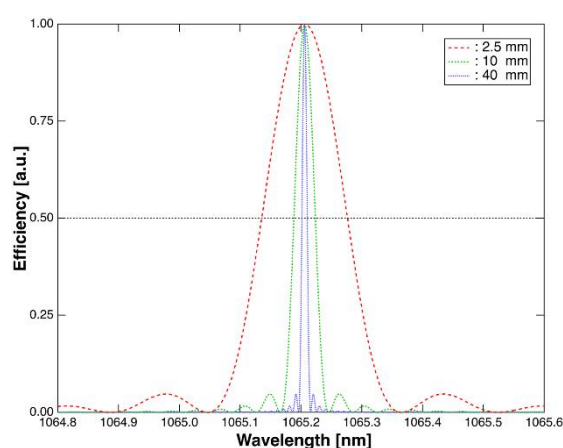


図3. 14. 2 DFGによるTHz波発生特性

高効率波長変換の実現において重要なパラメータの一つが、PPLN素子長である。一般に非線形光学波長変換においては、素子長の増大は変換効率向上に繋がる一方でスペクトル受容幅の減少や動作の不安定化に繋がり、QPM-LN素子においてもこの傾向は同一である。また特にTHz波発生用途においては、入力2光波と発生THz波間の波長差が大きいため、基本的にPPLN素子のスペクトル受容幅は狭くなる。図3. 14. 2に、周波数0.3THzのDFGにおいて入力1波長を固定したときの他方の波長に対する変換効率の相対的依存性を、幾つかの素子長の場合で計算した結果を示す。素子長2.5mmの場合は141pm程度の受容幅が期待出来るが、10mm、40mmと素子長を伸ばすに従って受容幅は35pm、9pmと減少する。素子長を2倍にするとDFG効率は一般に4倍となる一方でスペクトル受容幅は1/2倍に縮小する。このため適切な素子長選択や励起光波長の精密な制御と安定動作が必要となる。

$1\mu\text{m}$ 帯2光波のDFGでは、極低温冷却条件下においてQPM周期 $\Lambda \sim 400$ ミクロン近傍が適していることが過去の検討からも判明しているが、高強度励起による結晶内部温度上昇での屈折率変化と吸収の増大などが影響することから、実際の光学系を利用した詳細な Λ の評価が必要となる。実験的評価は、項目⑮や⑯などで実施した。

以上のように項目⑭では、図3. 14. 3にまとめるように、従来よりTHz波光発生用のQPM素子材料として利用されているMgLNについて、THz波光発生時のQPM波長変換特性を計算した。特にQPM素子長については、変換効率のみならず、THz波発生の安定動作の観点からも重要なパラメータであることを確認した。これらの結果を、項目⑮における実際の素子開発や、項目⑯

におけるTHz波発生実験に展開した。

項目⑭ QPM 特性の評価

- ・ THz 波発生用 QPM-LN(PPLN)素子の QPM 周期特性を計算
- ・ MgLN を利用した THz 波発生時のスペクトル受容幅と変換効率の関係を確認
- ・ 結果を項目⑮の素子開発や項目⑯の THz 波発生実験に繋げた

図3. 14. 3 項目⑭まとめ

⑮ THz 波への極限波長変換素子の開発（担当：理化学研究所）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

QPM-LN素子を利用した2光波の差周波発生（DFG）によるTHz波発生を検討している。この手法では原材料であるLN結晶のレーザ損傷耐性やTHz波域での吸収に起因する位相整合条件ずれに注意する必要がある。一般にLN結晶のレーザ損傷耐性は $1\text{J}/\text{cm}^2$ 程度と考えられているが、詳細な値は利用する光源の波長やパルス幅、およびそのビーム品質などに大きく依存する。過剰な強度のレーザ光をQPM-LN素子に入射すると、たとえLN結晶透明域波長であっても結晶が損傷し、最悪の場合は素子が図3. 15. 1のように破壊される。

このため、ジュール級エネルギーを有するパルス励起光を取扱可能な大口径QPM-LN素子を利用したTHz波発生を検討した。図3. 15. 2に、10mm厚のQPM-LN素子写真を示す。QPM構造形成は、高温加熱下での30kV以上の高電圧印加処理により実現しており、THz波発生に適した周期 $\Lambda \sim 400$ ミクロン近傍のQPM構造を有している。QPM構造周期 Λ やその素子長に関する検討は、項目⑭で実施している。

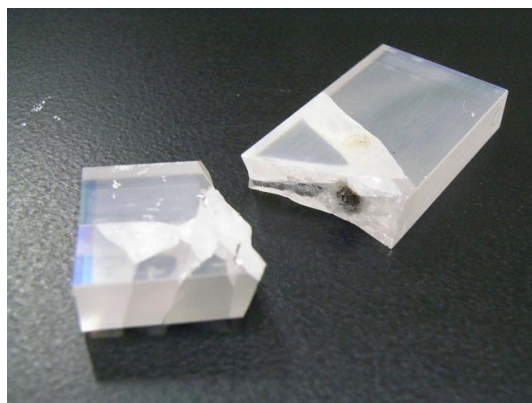


図3. 15. 1 損傷されたQPM-LN素子

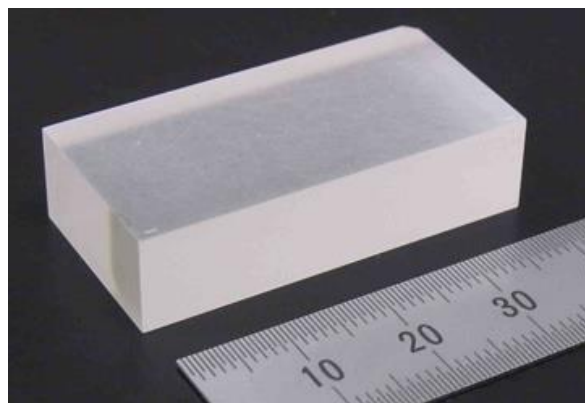


図3. 15. 2 大口径QPM-LN素子（10mm厚）

J級のパルス光源を主励起光源とし、QPM-LN素子を利用したDFGを介したTHz波発生を行う場合には、そのQPM周期を最適化して高効率波長変換を図る一方で室温でのTHz波長域における吸収を抑制するため極低温動作を前提とする。THz波長域吸収係数が未確定であるため最適な素子長は実際の実験環境（極低温冷却下）での実測が必要となる。そこで図3. 15. 3に示すように、長さの異なる実験用QPM-LN小素子（13mm、20mm、27mm）を準備し、これらの素子を利用したTHz波発生実験での発生効率を比較することで素子長最適化評価などを実施した。その途中過程では、図3. 15. 4に示すような過剰な励起光入射によりQPM-LN小素子に損傷が生じる場合もあったが、この評価実験によりQPM-LN小素子の損傷発生条件などを確認することができた。これらの実験結果をまとめ、項目⑯で実施する最終的な高出力THz波発生に展開した。

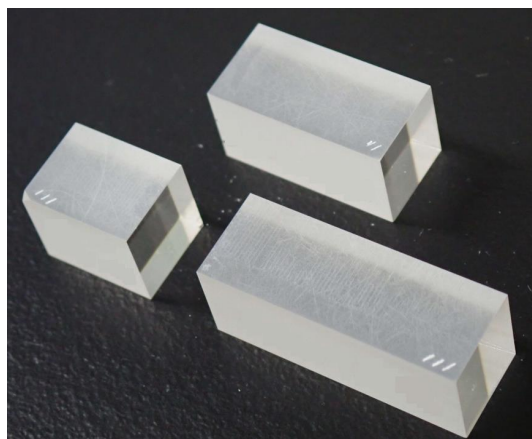


図3. 15. 3 QPM-LN小素子（13mm、20mm、27mm長）

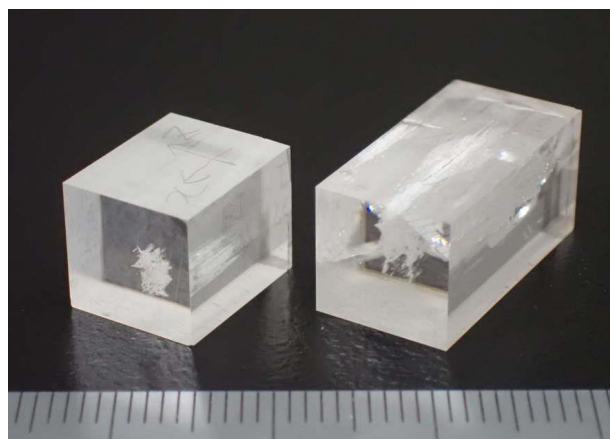


図3. 15. 4 損傷したQPM-LN小素子

以上のように項目⑮では、図3. 15. 5にまとめるように、THz波発生に向けた大口径QPM-LN素子を準

備し、素子長の最適化検討や損傷発生条件の確認などを実施することで、最終的に項目⑩での高出力 THz波発生に繋げた。

- 項目⑩ THz 波への極限波長変換素子の開発
- ・ THz 波発生用の大口径 QPM-LN(PPLN)素子を実現
 - ・ QOM-LN 素子長検討による THz 波発生効率最適化
 - ・ 素子損傷発生条件などを確認し、項目⑩に繋げた

図3.15.5 項目⑩まとめ

・量子ビーム創成：

⑩ 波長 1.5mm の極限波長に出力 10mJ までの変換（担当：理化学研究所）

[研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果]

5J、100Hz、500ps、1064nm の LD 励起レーザーの構築

5J 級サブナノ秒パルスを 100 Hz で発生させるためには、コンパクトなレーザーシステムにおいて、小さなボリュームで高利得を得ると同時に、レーザービームからの高ピークパワーおよびポンプレーザからの高平均パワーに耐える必要がある。特にこのようなシステムでは、寄生発振によるエネルギー損失、熱誘起複屈折に起因する偏光損失、直接的な熱損傷、さらには熱レンズ効果によるレーザー損傷などに対して脆弱である。

これらの課題に対応するために、Nd:YAG-サファイア DFC パワーチップを基盤とした多段増幅システムを設計・構築した。

ゲイン媒質

透明サファイア製ヒートシンクを Nd:YAG ゲインチップに多重接合することで、接触面から全面にわたって熱を効率的に排出できる複合型増幅媒体を形成することができる（図 3.16.1）。これにより、温度上昇および空間的な温度勾配を大幅に低減することが可能となり、上述の熱に起因する悪影響を抑制できる。

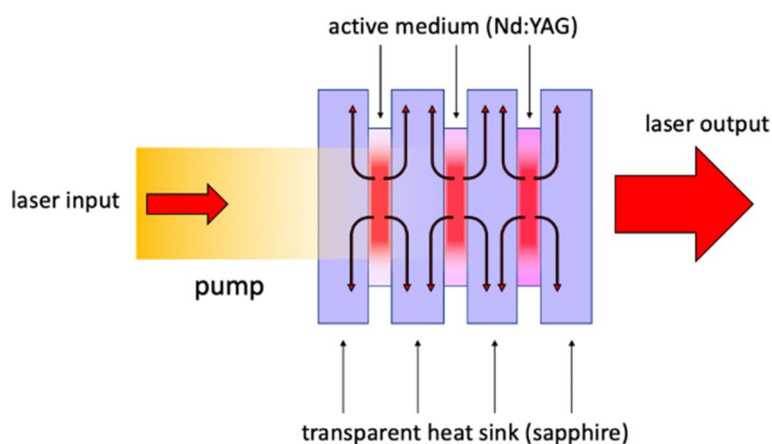


図 3.16.1 DFC パワーチップの原理図。ポンプビームとレーザービームはコリニアに伝搬し、ゲイン媒体チップとヒートシンクの接触面を通じて熱が放散される。

また、同じ長さのバルク媒体と比較すると、複数の小型チップを組み合わせる構成とすることでドーパント濃度の勾配設計を容易に行うことができる。こうした濃度分布により、利得分布を制御し、寄生発振の抑制に活用することができる。

さらに、ゲイン媒体中の熱負荷を最小限に抑えるため、本研究では Nd:YAG を 885 nm の LD で励起する構成を採用した。この波長では、標準的な 808 nm 励起に比べて吸収係数は 1 桁程度小さいが、放出準位への直接励起が可能となるため、量子欠損が減少し、熱負荷を約 30%削減できる。

実験に先立ち、DFC 構造の温度分布に対する効果を有限要素法による数値シミュレーションで評価した。図 3.16.2 に、同一の励起条件下における Nd:YAG ロッドと Nd:YAG-サファイア DFC 構造の縦方向および径方向の温度分布を示す。

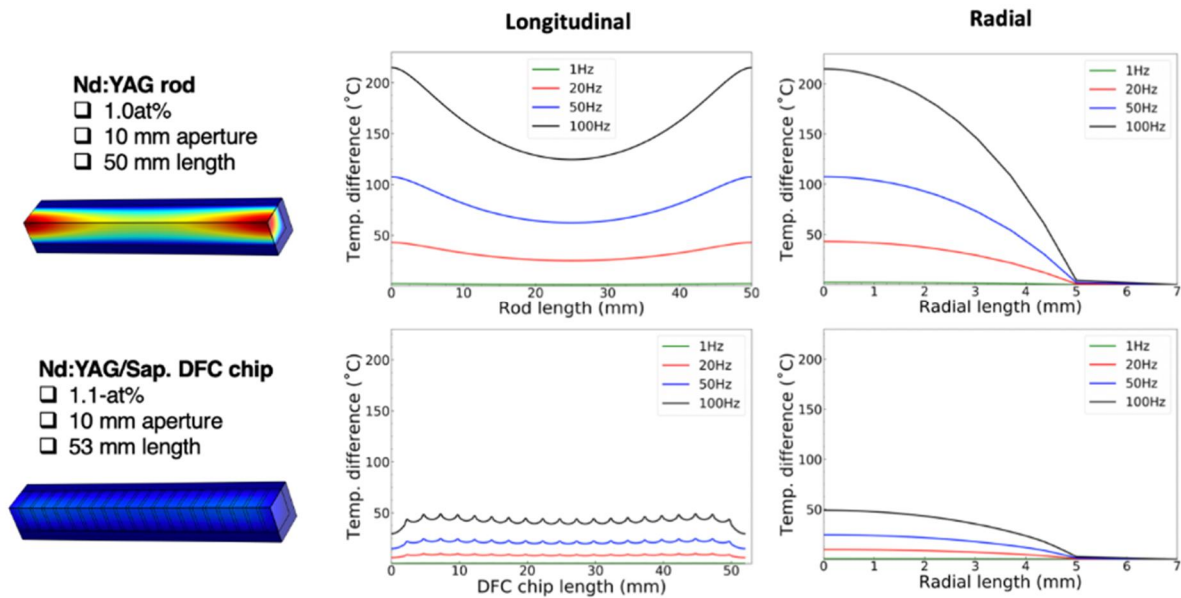


図 3.16.2 同一励起条件における Nd:YAG ロッドと Nd:YAG-サファイア DFC パワーチップの温度分布（シミュレーション結果）。

期待通り、DFC 構造では最大温度上昇がロッド構造に比べて大幅に低く（100 Hz 動作で 75%以上の低減）、加えて温度勾配も緩やかであることから、温度分布の均質化効果が確認された。

実験では、チップの枚数、ドーピング濃度、厚さなどを変化させた複数のゲイン媒体構成を作製・使用した。実際に使用した構成の詳細については、報告書内で必要に応じて示す。なお、上述の DFC チップ構成に加えて、単純な端面キャップ構造の厚板試料も使用した。図 3.16.3 に、実際に使用した DFC 媒体および端面キャップ媒体の写真を示す。

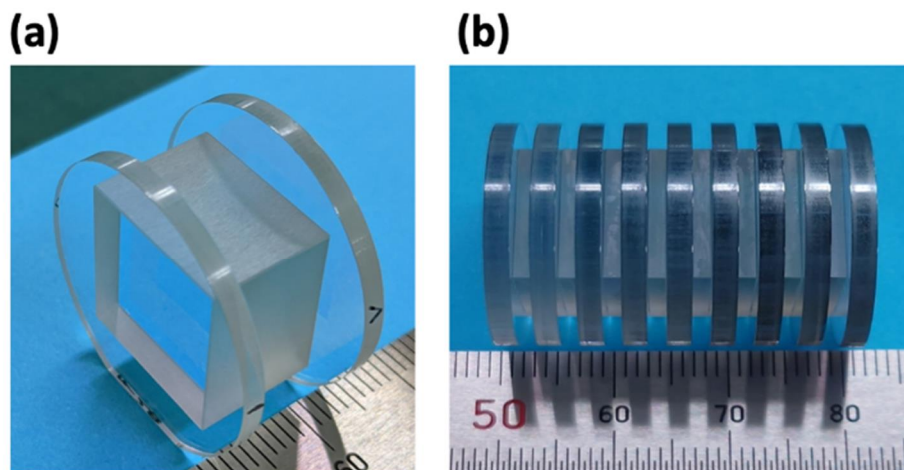


図 3.16.3 (a) 端面キャップ型ゲイン媒体、(b) DFC 型ゲイン媒体。

レーザシステム

本システムには、マスターオシレータ・パワーアンプ（MOPA）構成を採用している。システム全体は大きく 2 つの部分に分けられる。1 つ目はマスターオシレータおよびプリアンプからなるフロントエンド部、2 つ目は三段のパワーアンプから構成される増幅チェーンである（図 3.16.4 参照）。

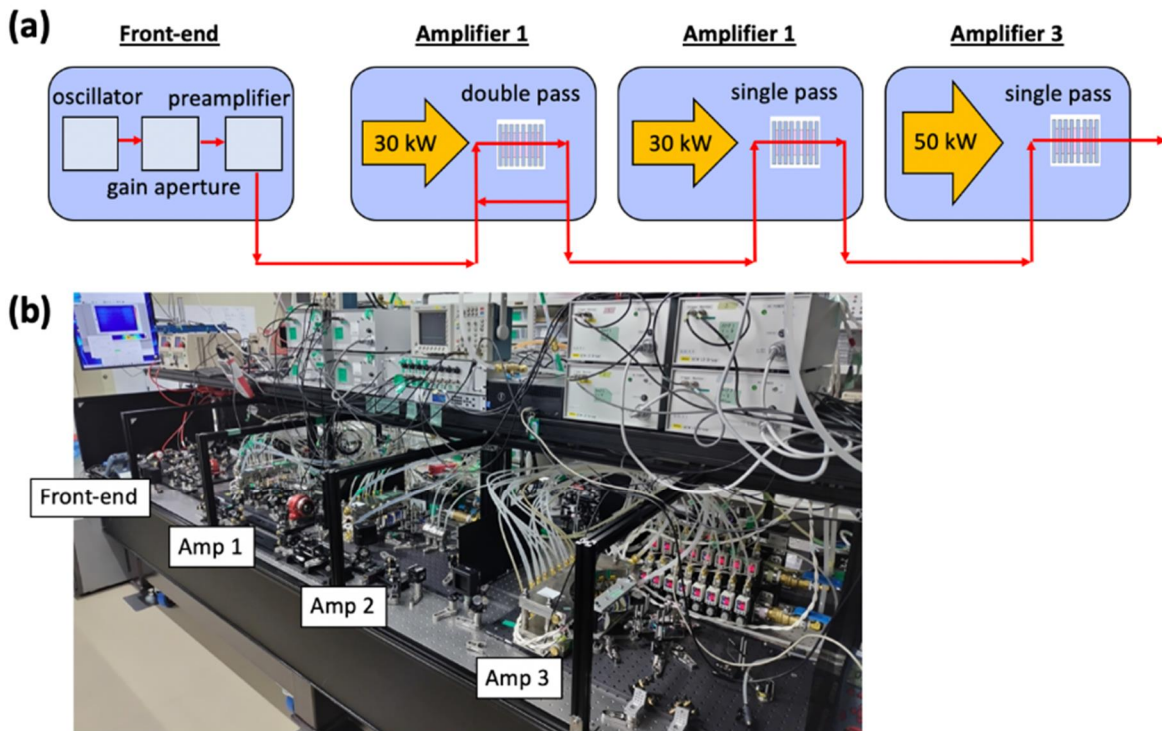


図 3.16.4 (a) シード光を供給するフロントエンド部および 3 段のパワーアンプ部から構成されるレーザシステムの全体構成。(b) 完成したシステムの外観写真。

フロントエンド部では、パッシブ Q スイッチ方式のマイクロチップレーザを用いており、サブナノ秒パルス (~ 3 mJ) を発振する。このビームは、ゲインアパーチャ技術を用いて空間プロファイルを整えながら、エネルギーを約 8 mJ まで増加させる。さらに、横方向励起型のロッド増幅器によるダブルパス増幅により、最終的にエネルギーは約 100 mJ まで増幅され、これが増幅チェーンに供給されるシード光となる。

増幅チェーンは、同様の設計による LD 励起型増幅器を直列に 3 段配置した構成である。各段では、DFC 構造（あるいは端面キャップ型）のゲイン媒体を使用し、高出力 885 nm LD モジュールによって片側から励起される。LD ビームはシリンダリカルレンズにより整形され、ゲイン媒体の角形開口を効率よく照射するように設計されている。最初の 2 段のパワーアンプでは、総ポンプ出力は約 30 kW、第 3 段では 50 kW までスケールアップされている。シード光は、第 1 アンプではダブルパス構成で増幅され、第 2・第 3 アンプではシングルパス増幅で所定の出力エネルギーに到達することが期待される。

実験結果

低繰り返し動作およびエネルギースケールアップ

まず初めに、第 1 段アンプの性能評価を、2 Hz 繰り返し動作において端面キャップ型ゲイン媒体を用いて実施した。具体的には、1.1at.% Nd:YAG（長さ 10 mm）と、両端に 2 mm 厚のサファイアを接合したモジュールを 5 個直列に組み合わせた構成を使用した（図 3.16.3(a) 参照）。この構成により、高濃度ドーパントを有する媒体における寄生発振 (Parasitic Oscillation, PO) の影響の大きさを評価することができた。

実際、ポンプ吸収効率 5 モジュールで 90% 以上と高く、また利得計算上では 100 mJ のシード光がダブルパス構成で 2 J まで増幅されると予測されたにもかかわらず、実測されたエネルギーは 1 J にとどまった。その後のスモールシグナルゲイン測定により、蓄積エネルギーがある閾値を超えると利得クリッピングが発生し、これが PO の典型的な兆候であることが判明した。この結果を基に PO の閾値を測定し、利得計算に反映させてアンプの実挙動をシミュレートした。

新たな計算結果に基づき、ドーパント濃度を段階的に変化させる構成（最初の 2 モジュールを 0.5at.%, 残りを 1.1at.%）を採用することで、PO の多くを抑制できることが示された。この構成を実験的に検証した結果、出力エネルギーは 1.6 J まで増加し、理論計算とも良好に一致した（図 3.16.5 参照）。

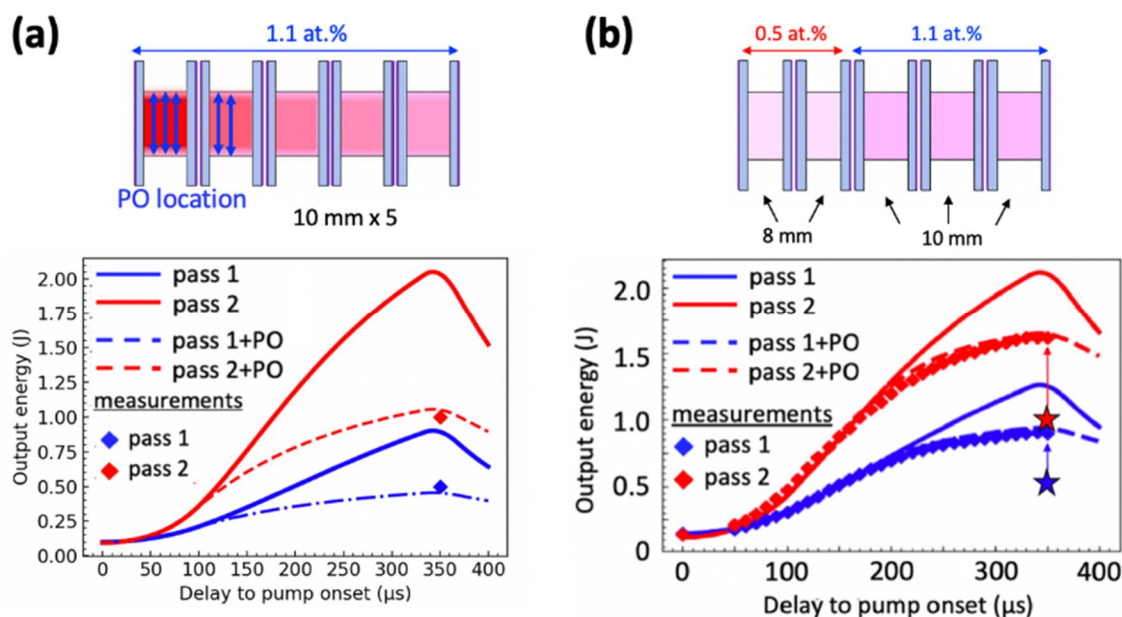


図 3.16.5 (a) 均一ドーパ媒体、(b) 段階的ドーパ媒体における、シードパルス到達とポンプ開始の遅延時間に対するシングルパス・ダブルパス出力エネルギーの実測値と計算値 (PO の有無も考慮)。

次に、最初のモジュールのドーパント濃度をさらに 0.4at.%まで低下させた構成により、出力エネルギーは 1.7 J まで向上した。この構成は第 2 段アンプにも適用され、第 1 段をダブルパス、第 2 段をシングルパスで動作させた結果、2 Hz 動作時に合計 2.8 J の出力エネルギーが得られた。また、10 Hz 動作でも 2.7 J の出力エネルギーが得られ、100 ショットにわたる優れた安定性が確認された（図 3.16.6）。

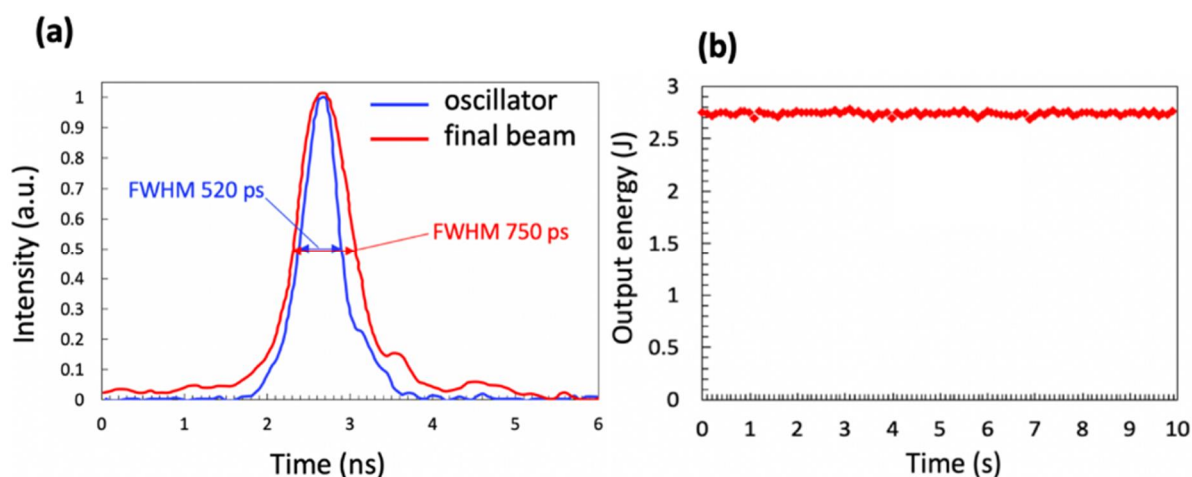


図 3.16.6 (a) 初期ビームおよび最終出力ビームのパルス幅測定結果。(b) 10 Hz 動作における出力エネルギーの 100 ショット安定性。

シードパルス幅が 520 ps であったのに対し、増幅初期段階での利得飽和により、最終的なパルス幅は 750 ps まで拡大した。この結果、最終ビームのピークパワーは 3.7 GW に達した。

繰り返し周波数の増加に関する検討

続く一連の実験では、第 1 段アンプのゲイン媒体を、従来と同等のゲイン長およびドーパント濃度プロファイルを有する DFC (Distributed Face Cooling) 型構成に置き換えた。なお、この時点では第 2 段には DFC 型媒体が未導入であったため、従来の端面キャップ型モジュールを継続使用した。各段におけるゲイン媒体の構成は図 3. 16. 7 に示す。

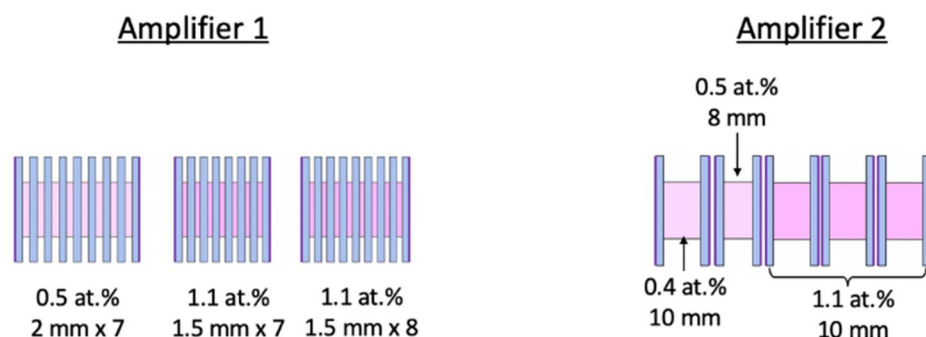


図 3. 16. 7 繰り返し周波数依存性実験に使用した第 1 段 (DFC) および第 2 段 (端面キャップ) のゲインモジュールの詳細。

2 Hz 動作では、第 1 段の DFC 型モジュールは従来の端面キャップ型と同等の出力エネルギー (1.6 J) を発生し、第 2 段を含めた合計出力エネルギーも 2.8 J で、従来と同一の性能を示した。

その後、繰り返し周波数を段階的に増加させ、各条件下での最大出力エネルギーを記録した。25 Hz を超える条件では、第 2 段には DFC が未実装のため第 1 段アンプのみを動作させた。結果を表 3. 16. 1 に示す。

Repetition rate	Amplifier 1 (double-pass) DFC-type	Amplifier 2 (single-pass) Block-type
2Hz	1.6J	2.8J
10Hz	1.6J	2.7J
25Hz	1.5J	2.3J
33Hz	1.3J	
50Hz	1.0J	

表 3. 16. 1 : ポンプ繰り返し周波数に応じた各段での最大出力エネルギー。

第 1・第 2 段を使用した構成では、2 Hz 動作で 2.8 J、25 Hz では 2.3 J のパルスエネルギーが得られた。このエネルギーの減少は、第 2 段の端面キャップ型媒体の熱的性能の低さによる影響が大きい。そのため、高繰り返し動作時には DFC 型を備えた第 1 段アンプのみを使用した。この構成では、50 Hz 動作において 1.0 J のパルスが得られた。しかし、この性能は長時間維持できず、ゲイン媒体に深刻な損傷が発生し (図 3. 16. 8)、ポンプ用ダイオードレーザにも影響を及ぼした。主な原因は、DFC 媒体内での強い熱レンズ効果によるものと考えられる。

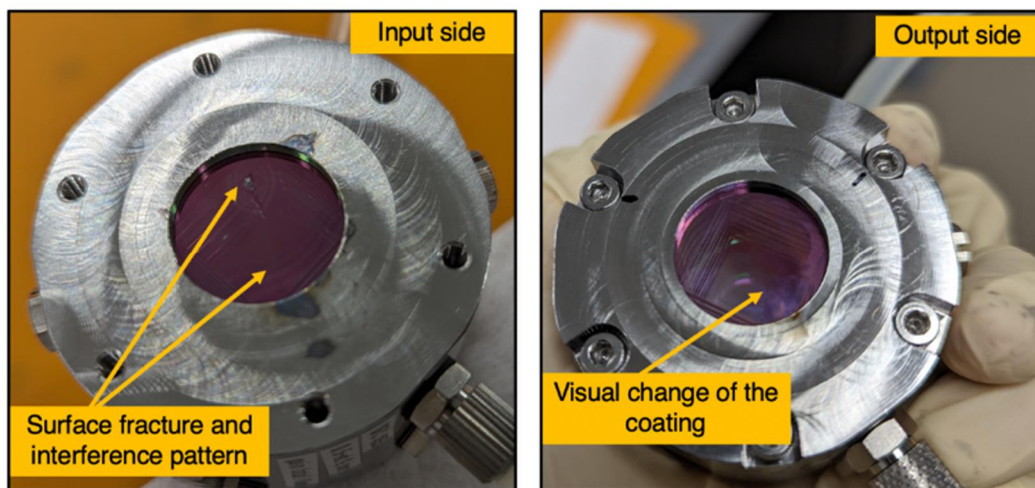


図 3.16.8 50 Hz 動作後に観測された第 1 段 DFC モジュールの損傷。

この現象を検証するため、図 3.16.3 に示すような専用サンプル（1.1 at.%ドープ、長さ 10 mm の端面キャップ型、および 1.1 at.%ドープ、長さ 8×1.5 mm の DFC 型）を用いた熱効果測定を実施した。熱レンズ効果および熱による偏光解消度は、1030 nm 連続波の Yb:YAG レーザによるプローブビームを用いて測定した。この波長はシステムの増幅帯域外であるため、増幅に関係する効果との干渉を避けることができる。プローブビームはシードビームと同じ光路を通して第 1 段アンプに入射し、繰り返し周波数に対する焦点収束度と偏光状態の変化を測定した。結果を図 3.16.9 に示す。

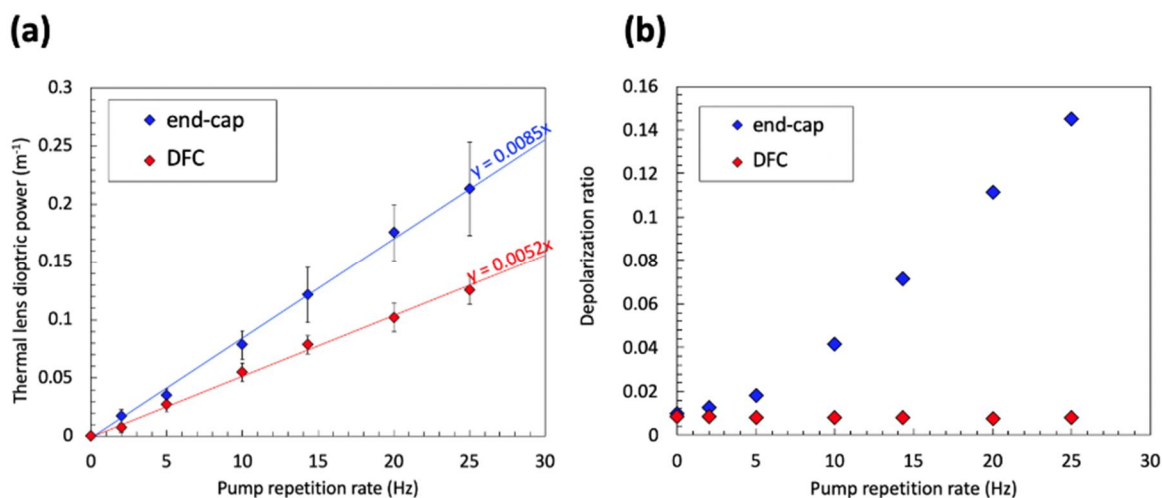


図 3.16.9 (a) 熱レンズ強度、(b) 偏光解消度。10 J 励起時、端面キャップ型と DFC 型のそれぞれで測定した繰り返し周波数依存性。

ポンプエネルギー 10 J、繰り返し周波数 2～25 Hz の条件下で、端面キャップ型では偏光解消度が増加（25 Hz で最大 15%）したのに対し、DFC 型ではノイズレベル以下に抑えられていた。また、熱レンズ効果も繰り返し周波数に比例して増加するが、DFC 型では端面キャップ型に比べて 40% 程度小さい増加率であった。

ガウスビーム分布と単純なスケーリング則に基づけば、偏光解消度は温度差 ΔT の 2 乗に比例するとされる。シミュレーションでは、DFC 型の温度上昇が端面キャップ型の 1/3 程度であるため、偏光解消度は 1 桁程度低減されることが説明される。一方、熱レンズ強度は ΔT に一次比例するため、DFC 構成での熱レンズの抑制効果は数十%程度にとどまる。

測定結果をもとにした熱レンズ焦点距離の外挿結果（図 3.16.10）によれば、50 Hz 動作時のシ

シングルパスでは約 4 m、ダブルパスでは約 2 m の焦点距離となり、これが先述の損傷の主因となった。さらに、100 Hz 動作時には、シングルパスで 2 m、ダブルパスでは 1 m 未満の焦点距離となることが予測される。

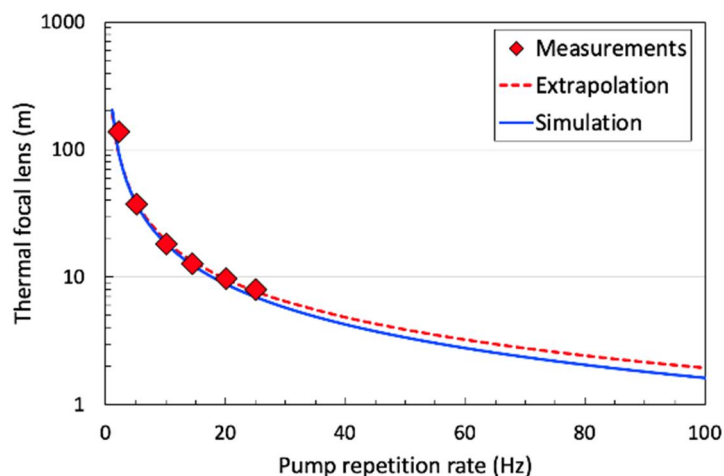


図 3.16.10 1.1 at.%ドープ DFC チップ (8×1.5 mm Nd:YAG) でのポンプ繰り返し周波数に対する熱レンズ焦点距離。ダイヤは実測値、破線は線形フィットからの外挿、実線は温度分布シミュレーションからの計算値。

したがって、50 Hz を超える繰り返し周波数では、熱レンズ効果がシステム動作上の主要な課題となる。このため、これらの繰り返し条件下では、DFC の設計を見直し、熱レンズ効果のさらなる緩和が求められる。

この緩和は、利得媒質チップの厚みを、透明ヒートシンクの厚みに対して相対的に薄くすることで実現可能である。加熱される材料の厚みを減らすことで、熱の除去効率が向上するためである。図 3.16.11 (a) には、総吸収長が同一 (10 mm) である複数の利得媒質について、100 Hz 動作時における最大縦方向温度分布を示す。ここでは、利得チップの厚みを減少させた場合 (すなわち利得媒質をより多くのチップに分割した場合) を比較している。

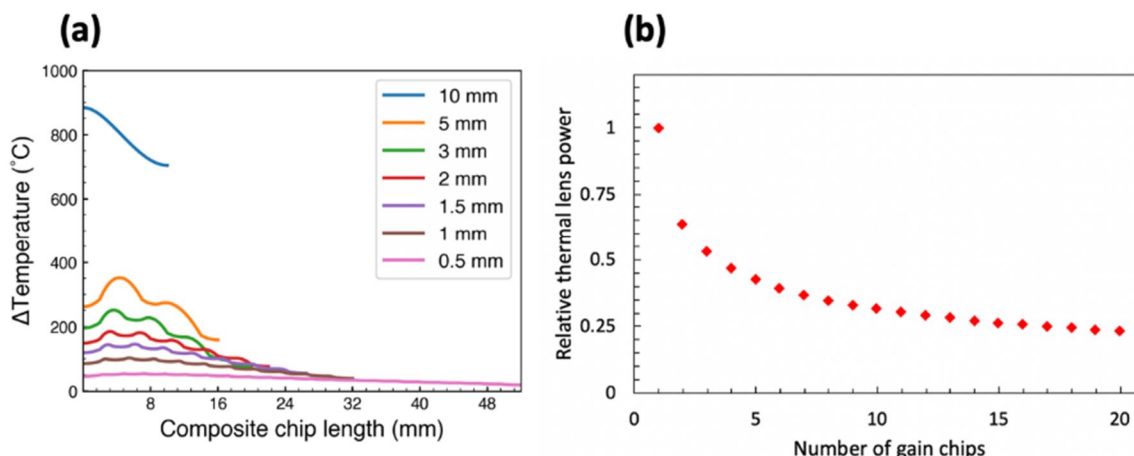


図 3.16.11 (a) 全利得長 10 mm の媒質において、100 Hz でポンピングした際の利得チップ厚みに応じた縦方向温度分布のシミュレーション結果。(b) 総利得長を 10 mm に固定した条件下で、利得チップ数を増加させた場合の相対的な熱レンズ効果の変化。

利得チップの厚みを薄くすることで、最大温度上昇を大幅に抑制できる。たとえば、10 mm 厚の単一チップと 0.5 mm 厚の複数チップを比較した場合、温度上昇は 10 分の 1 に低減される。また、温度分布が均一化されることで、熱的影響の原因となる温度勾配も抑制される。図 3.16.11 (b)

には、利得チップ数を変化させたときの相対的な熱レンズパワーを、10 mm 単一チップを基準として示している。これにより、チップ数を増やすことで熱レンズ効果が急激に低下することが明らかとなった。

Burst mode operation

このシミュレーション結果に基づき、高繰り返し動作に対応した新たな DFC チップの設計が可能となる。0.5 mm 厚の利得チップを用いた場合、100 Hz 動作時に誘起される熱レンズの焦点距離は 2 m を超え、適切な望遠光学系により補償が可能である。まず第一段階として、上記のような事故の再発を防止するため、レーザシステムの設計および動作モードを見直した（図 3.16.12 参照）。

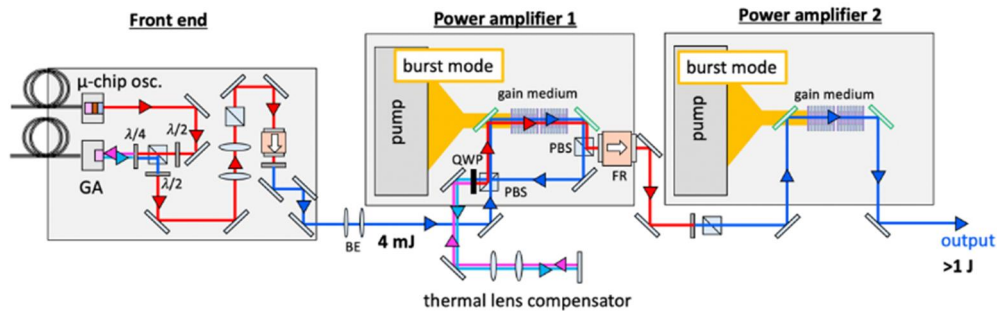


図 3.16.12 バーストモード動作における実験で使用したレーザシステム構成。

まず、第1段増幅器に対して熱レンズ補償光学系を導入した。これは、第1パスと第2パスの間に設置されており、可変式の二重通過望遠光学系で構成されている。第1パスで生じた熱レンズ効果を、第2パスでの熱レンズ効果によって相殺するように設計されており、その概略を図 3.16.13 に示す。

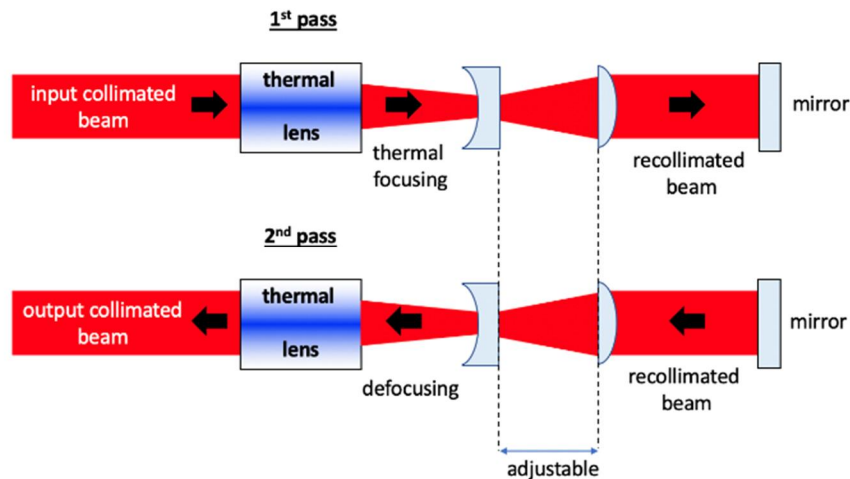


図 3.16.13 熱レンズ補償用に設計された可変式望遠光学系。

次に、ポンプビームの発振制御を行うパルスジェネレーターを改良し、バーストモード動作を可能とした。このモードでは、所定の繰り返し周波数でポンプを一定時間 Δt_{ON} の間照射し、その後 Δt_{OFF} の間停止するサイクルを繰り返す。この方式により、加熱は Δt_{ON} の間に限定され、 Δt_{OFF} の間に熱緩和が生じる。これにより、高い繰り返し周波数での動作が可能となりつつ、熱負荷および熱レンズ効果を安全なレベルに維持できる。QCW モードとの比較におけるバーストモードの効果を図 3.16.14 に示す。

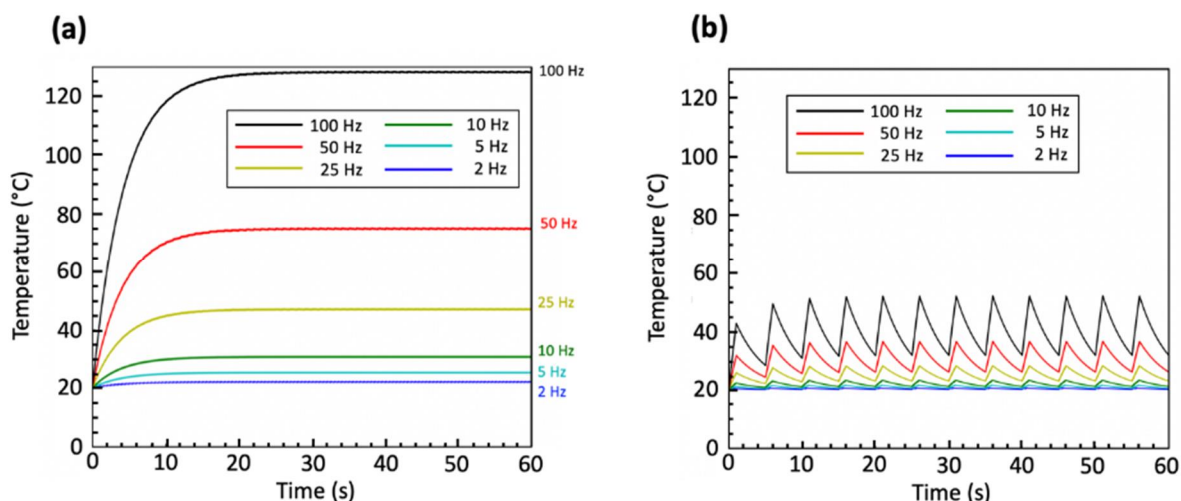


図 3.16.14 QCW ポンピング (a) およびバーストモードポンピング (b) における、さまざまな繰り返し周波数条件下での利得媒質内の温度変化のシミュレーション結果。

$\Delta t_{\text{ON}} = 1 \text{ s}$ 、 $\Delta t_{\text{OFF}} = 4 \text{ s}$ の条件においては、バーストモードで誘起される温度上昇の最大値は、同一繰り返し周波数の QCW ポンピング時の 35% に抑えられる。これにより、熱レンズの焦点距離も同様に低減され、50 Hz では 10 m 超、100 Hz では 5 m 超の焦点距離が得られ、前述の補償系で十分に対応可能である。

先行実験では、25 Hz を超える動作時には第 1 段増幅器のみが DFC を装備していたため、そのみを使用していた。新たな実験では、図 3.16.15 に示すように、両方の増幅器に DFC 増幅モジュールを搭載している。

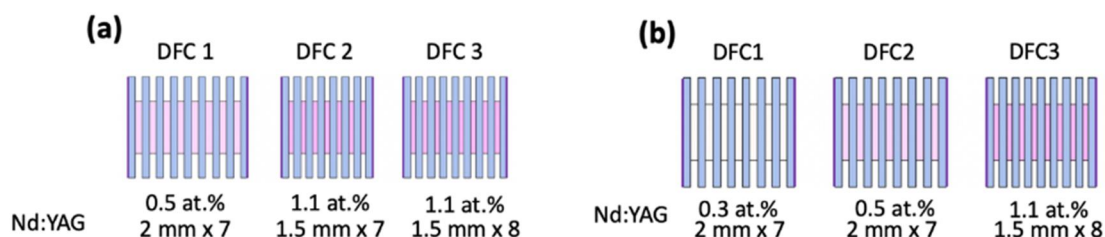


図 3.16.15 ステージ 1 (a) およびステージ 2 (b) で使用された DFC 増幅モジュール構成。すべてのサファイア板は厚さ 2 mm。

また、レーザシステムのフロントエンド部も改良された。従来は、主増幅器での良好なエネルギー抽出効率を確保するため、シードビームを 100 mJ まで事前増幅していた。この際、二重通過型のロッド型サイドポンプ増幅器を用いていたが、高繰り返し動作ではビーム品質の劣化や強い熱レンズ効果を引き起こしやすい。シードビームの集光やプロファイルの劣化は増幅過程で損傷を引き起こす原因となるため、このプリアンプヘッドは除去された。新たなフロントエンド構成は図 3.16.12 に示す。

このため、第 1 増幅ステージに入力されるシードビームのエネルギーは 4 mJ まで低下している。この結果、抽出効率および最大出力エネルギーは低下するが、将来的にはシードビームのプロファイル劣化を回避しつつ抽出効率を向上させるため、DFC 構造のエンドポンプ型プリアンプを新たに設計・導入する必要がある。

バーストモードでの実験に先立ち、新たに導入した DFC モジュールとシードビーム低エネルギー条件下における増幅性能を評価するため、まず 2 Hz QCW モードでシステムを動作させた。この構成では、最大出力エネルギーは 2.3 J であり、シードエネルギーが 94% 減少しているにもかかわらず、従来の 2.8 J と比較して出力はわずか 15% の減少にとどまった。

さらに安全性を考慮し、高繰り返し動作に向けてポンプパルス幅を 200 μs に短縮した。この場

合、2 Hz 動作時の出力エネルギーは 1.6 J となる。図 3.16.16 には、2 Hz および 50 Hz のバーストモード動作における、シードパルス到達とポンプ開始の時間差に対する出力エネルギーの測定結果を示す。

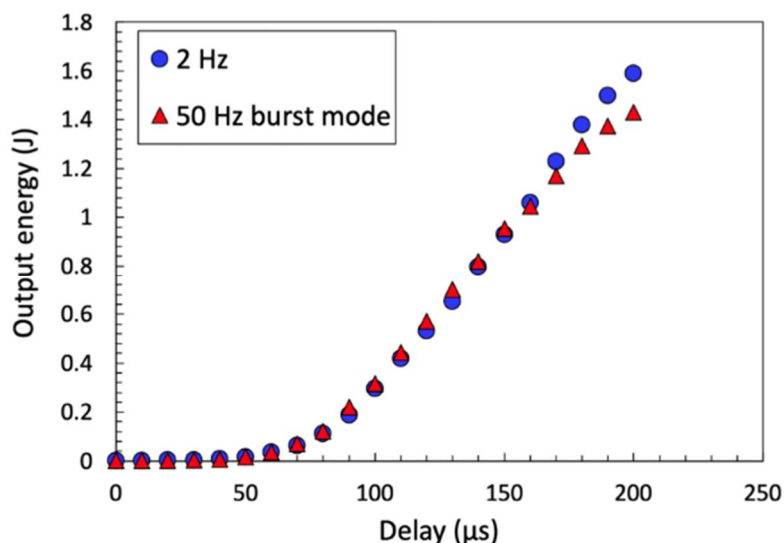


図 3.16.16 シードパルス到達からポンプパルス開始までの遅延時間に対する最大出力エネルギーの測定結果。○印は 2 Hz QCW ポンピングでの測定値、△印は 50 Hz バーストモードでの測定値を示す。

50 Hz バーストモードでの出力エネルギーは、2 Hz 動作時の測定結果に非常に近い値を示しており、高エネルギー側でわずかな変曲が見られる。2 Hz QCW 動作でのポンプパルス幅 200 μs における平均ポンプ出力は 14 W であるのに対し、50 Hz バーストモードでは 1 バースト内での平均ポンプ出力は 350 W (複数バーストサイクルにわたる平均は 70 W) となり、これは 2 Hz の場合の 25 倍に相当する。両者で出力エネルギーがほぼ同等であることから、現在の DFC モジュールがこのレベルの発熱を効果的に制御できていることが示されている。

ただし、バーストモード動作はあくまで暫定的な解決策であり、その限界についても考察する必要がある。図 3.16.14 (b) に示すように、バースト中は温度が過渡状態にあるため、出力エネルギーは Δt_{ON} の間に変動する点に留意する必要がある。図 3.16.17 (a) には、1 分間 (12 バーストサイクル) 連続動作中の出力エネルギーの時間変化を示す。

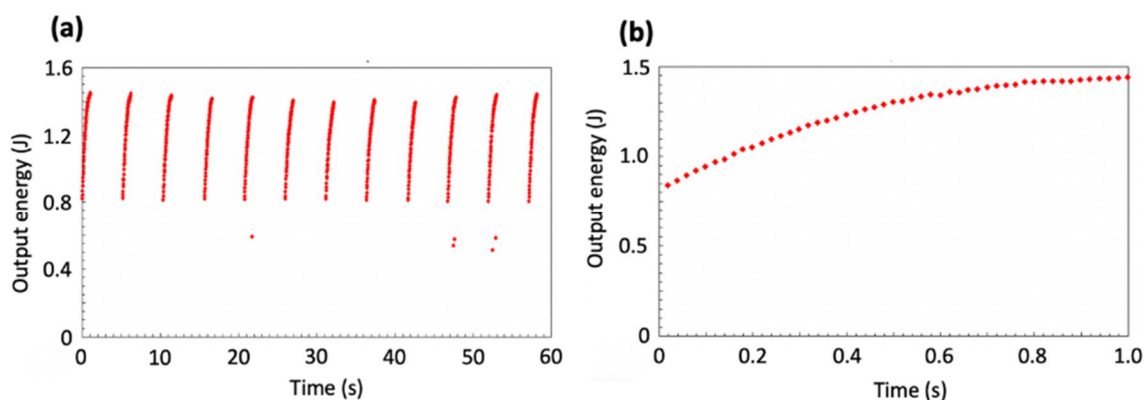


図 3.16.17 50 Hz 動作時における出力エネルギーの測定結果：1 分間の運転中 (a) および単一バースト中 (b)。

1 バーストあたりの平均出力エネルギーは 1.25 J であり、バースト間でも安定している。1 バースト中の平均出力は 62 W、全サイクルにわたる平均出力は 12.5 W である。

観測されるエネルギー変動には複数の要因が関与している。利得媒質内の温度が過渡状態にあるため、温度変化により発光・吸収断面積が変化し、また熱レンズの変動に伴うビーム径の変化

も生じる。ただし、DFC 構造により利得媒質の熱負荷が緩和されているため、これらの効果がエネルギー変動に与える影響は限定的である。

主たる原因は、ポンプレーザーダイオード (LD) の発熱によるものである。ポンプモジュールの温度上昇により、ポンピングスペクトルの中心波長がシフトする。LD の冷却温度は、バースト終端時に発光波長が Nd:YAG の 885 nm 吸収ピークに一致するように設定されている。そのため、バースト開始時には中心波長が吸収ピークよりも短く、吸収効率および出力エネルギーが低下する。

バーストモード動作で十分な用途においては、この問題は VBG (ボリューム・ブラッグ・グレーティング) 固定型の LD モジュールを用いることで、波長安定化により解決可能である。一方、将来的な QCW (準連続) 動作では、温度はすみやかに定常状態に達するため、出力エネルギーも安定する。

その後、より長いポンプパルス幅 (300 μ s) を用いて、繰り返し周波数 100 Hz でのバーストモード動作が試験された。バースト時間は再び 1 秒、冷却時間は 4 秒であった。この条件下で、最大出力エネルギーは 1.8 J に達した。図 3. 16. 18 に示すように、バーストモード動作は 1 分間にわたり安定して行われ、バースト中のエネルギーは前述の理由により変動した。

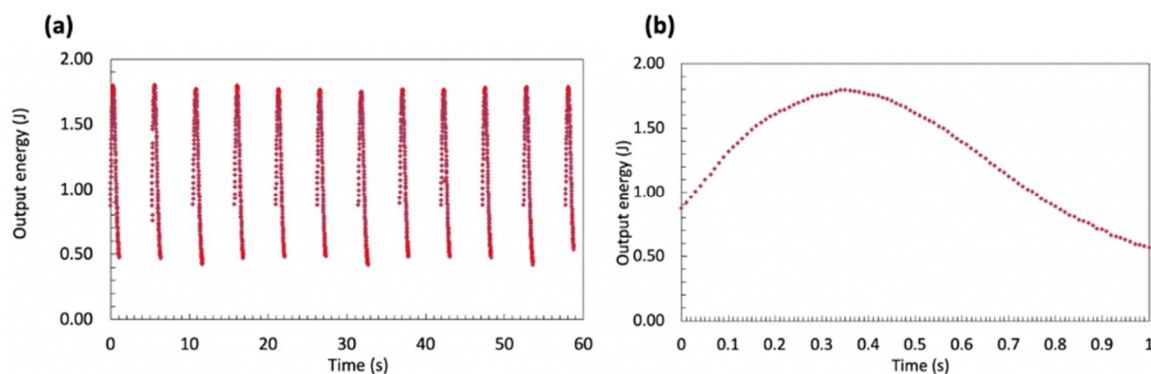


図 3. 16. 18 100 Hz で 1 分間動作させた際の出力エネルギー測定結果 (a) および単一バースト中の出力エネルギー (b)。

本システムの出力エネルギーをさらに増加させるために、既存の第 1・第 2 増幅ステージ (各 10 個の LD モジュール) と比較して、ポンプパワーを 50% 増加 (LD モジュール数 16 個) させた第 3 増幅ステージを新たに設計・導入した。そのセットアップを図 3. 16. 19 に示す。

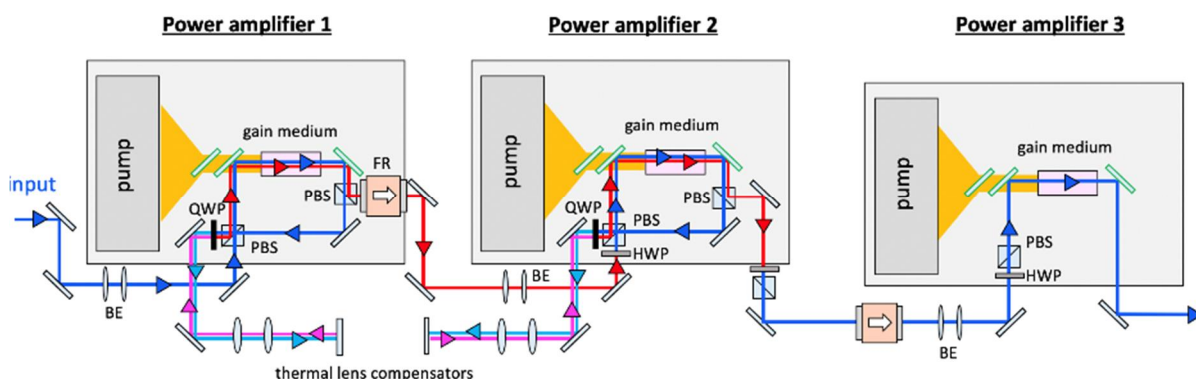


図 3. 16. 19 3 段階の増幅ステージを備えたレーザシステムの増幅部構成。

本ステージでは熱負荷の大幅な増加が予想されるため、熱管理性能の強化を目的として、新たな DFC モジュールを設計した。この DFC 利得媒質の設計を図 3. 16. 20 (a) に示す。

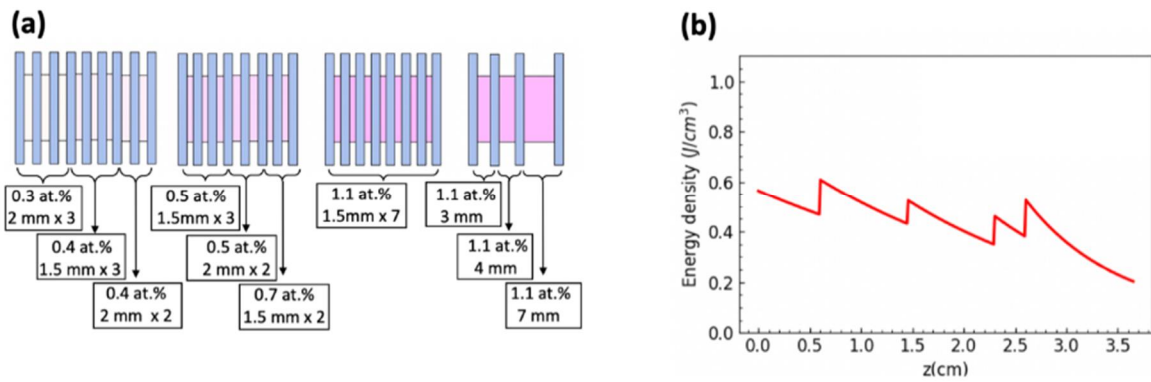


図 3.16.20 (a) 第3ステージ用に設計された DFC 利得モジュール。(b) 対応するエネルギー堆積分布の計算結果。

ドーピング濃度の勾配をより緻密に設計することで、図 3.16.20 (b) に示すように、利得モジュール内のエネルギー堆積分布を均一化でき、これによりモジュール内部の熱負荷勾配を低減することが可能となる。

現在の第2ステージまでの出力が 2.3 J であること、および本ステージ用に設計した DFC モジュールの利得特性を考慮すると、第3増幅器通過後の出力エネルギーは 5 J を超えると予測される。

第3段アンプの動作

予備実験として、仮設の DFC モジュールを用いた 3 段増幅動作を試験した。ポンプパルス幅を最大の 300 μs 、繰り返し周波数を 5 Hz に制限した条件下で、総出力エネルギーは 4.2 J と測定された。(その後、5.2 J 達成、パルス幅 619 ps : 図 3.16.22)

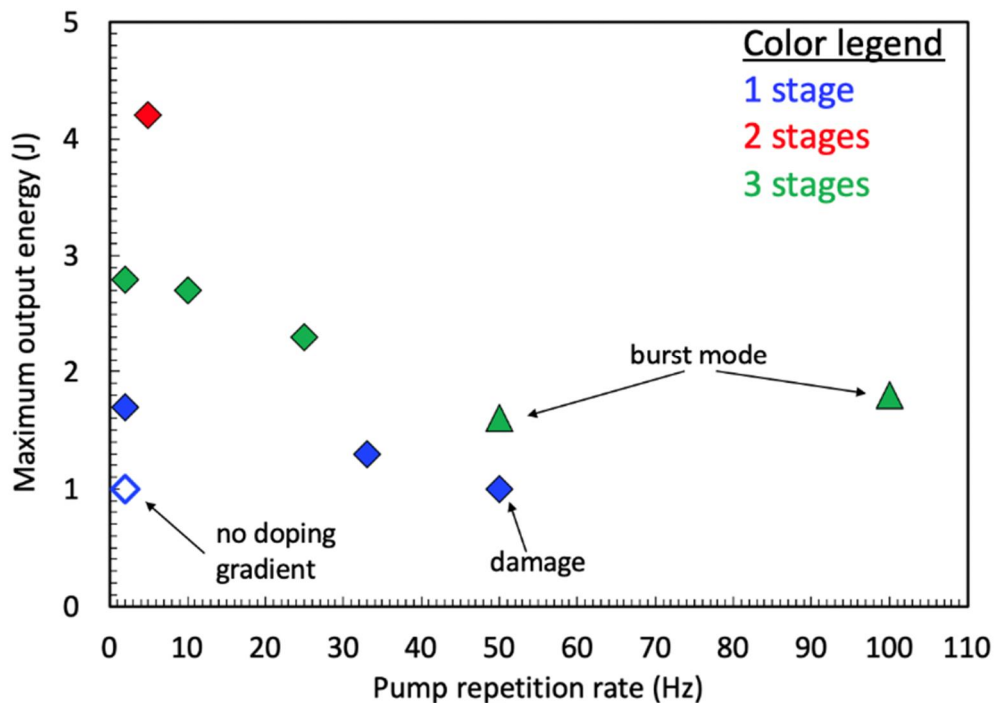


図 3.16.21 プロジェクト全体を通じて得られた出力エネルギーおよび繰り返し周波数に関する成果の総括



図 3. 16. 22 最新のデータ (5. 2J, 619ps)

以上、J 級の出力を可能とするレーザー系の構築およびその基本動作の検証を終えた。これにより、次段階として、構築したレーザーシステムを用いた中赤外からテラヘルツ (THz) 波への波長変換技術の実証・最適化へと研究を展開した。

本項目では、マイクロチップレーザを起点として、THz波までの波長変換を行う。図3. 16. 23に研究の各項目と進捗状況を記載する。

	令和2年度	令和3年度	令和4年度	令和5年度	令和6年度
項目⑮・⑯ THz波発生実験					
THz波発生検出の予備実験					
THz波長変換向けQPMの開発にむけて					
励起光源の最適化とTHz波長変換の効率化					
光学系の準備検討					
VBGの検討・設計					
光学系構築					
二波長発振					
THz波発生					
総括まとめ					

図3. 16. 23 項目⑮および⑯における研究進捗状況

THz波検出の最適化のために、測定システムの校正を行った。フェムト秒パルスを励起光、非線形光学結晶LiNbO₃をTHz波発生デバイス、そしてフラクシ社製のパイロディテクターをTHz検出器とした発生・検出の光学系を構築した。図3. 16. 24に測定系を示す。軸外し放物面鏡で取り廻したTHz波が検出

器へと伝搬され、電気信号としてTHz波強度を検出する。図3. 16. 24のシステムでTHz波を検出した際のおシロスコープの波形を図3. 16. 25に示す。約10Vでの信号を観測しており、これは μW オーダーのTHz波出力に相当する。検出器動作の最適化も行い、10Hzで強度校正可能な測定が行えることを確認した。

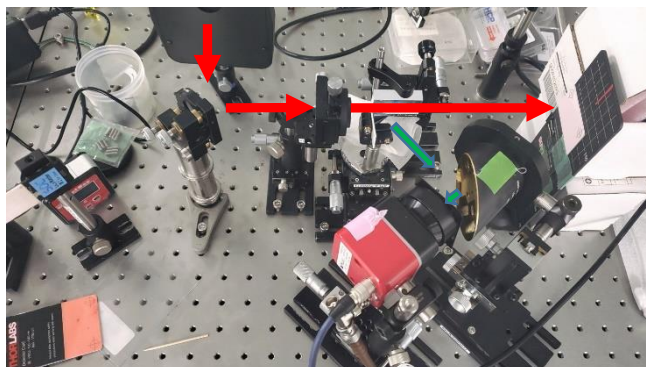


図3. 16. 24 THz波発生実験システム

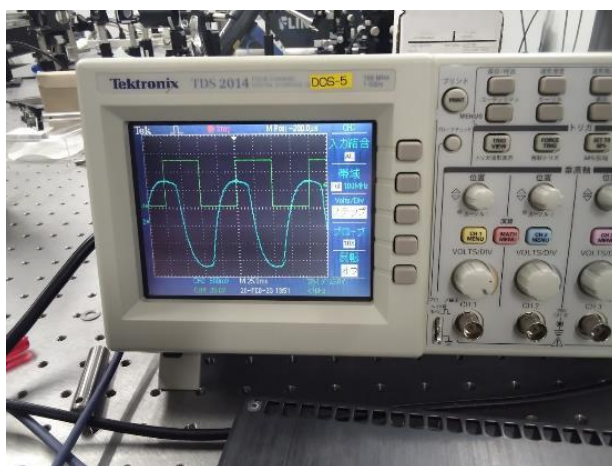


図3. 16. 25 THz波強度のおシロスコープ計測結果

- ・THz波長変換向けQPMの開発にむけて

QPM開発のために重ね合わせの効果を確認した。QPM構造は非線形光学結晶を周期的に反転分極させた構造をしており、バルク結晶から周期的に構造を作成することや、接合で重ね合わせすることで作成する。これは、分極が反転する面における光の反射を防ぐためであるが、一方でTHz波は波長が長いため、1THzで0.3mm、この制約を受けないと予想される。そこで、これを確認するために厚さ0.2 mmのLNを複数枚かさねてTHz波の透過率を調べた。その結果、接合などを行わずに、貼り合わせだけで密着させたLNでも、界面による反射を抑えられてTHzが透過することが確認できた。これは、THz波用のQPMは物理的な貼り合わせで作成できることを示している。

- ・励起光源の最適化とTHz波長変換の高効率化

THz波の発生は差周波発生法（DFG）を利用して行う。本項目の目的は、波長1.5mm（200GHz）のサブTHz波をレーザ駆動で発生させることである。サブTHz波をDFGで取り出すためには、近い波長の2波長を作成する必要がある、そのために狭線幅の2波長を作成するのが困難である。また、mJ以上のTHz波を生成するために励起光強度はJを上回る必要がある、光学素子や非線形光学結晶の損傷を防ぐ必要がある。

これらの課題を解決する方法として、PPLNとVBGを用いた波長変換法がある。PPLNの縮退モードでYAGレーザの光を2000 nm帯に波長変換し、VBGを利用して狭線幅の光を取り出すことで、THz波を発生させるための2波長光をシンプルな構成で作成できる。この方法を用いて、1 μm レーザをベースとしたシンプルなOPOシステムにより2波長の励起光を作成することを検討した。

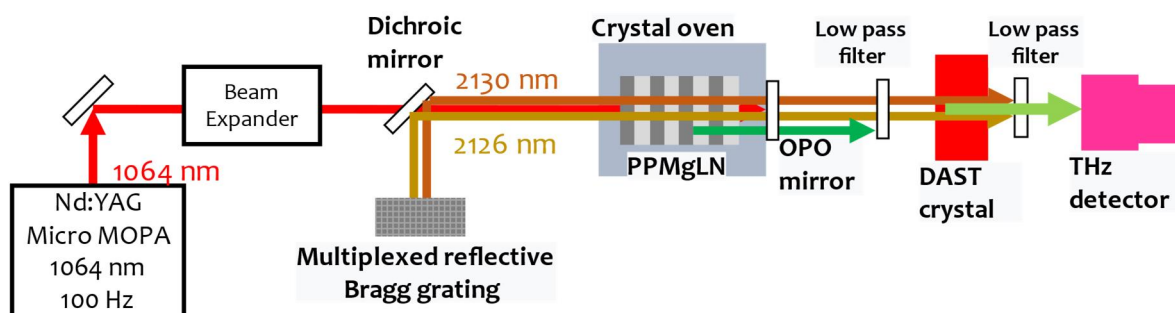


図3. 16. 26 多重反射ブラッググレーティングを用いた縮退光パラメトリックシステム

図3. 16. 26に示される実験セットアップは、PPMgLNと体積ブラッググレーティング（VBG）を利用した縮退光パラメトリックシステムによるものである。ポンプ光源には、波長1064nmのNd:YAGレーザmicro MOPA（繰り返し周波数10Hz、パルス幅800ps）を使用し、2128nmでの縮退OPOを実現している。セットアップは、反射率40%の共振器ミラー、2波長用VBG、PPMgLN、温度コントローラーからなる小型OPOを含む。PPMgLNは長さ38mm、開口部5mm×5mm、QPM周期32.1μmであり、結晶温度はオープンで調整可能。OPO後のミラーは1064nmで高反射率、2000nm帯で40%の反射率を持ち、2000nm帯の光のみをローパスフィルターで通過させる。その後、光の強度と周波数をスペクトラムアナライザーやパワーメーターで測定する。VBGは回折効率99%以上で、2126nmと2130nmの2つの波長を取り出し、PPMgLNを用いたスペクトル幅1nm以下の縮退に近い2波長の増幅が可能である。OPOの効率を向上させるため、OPOミラーはPPMgLNにできるだけ近く配置し、PPMgLNからダイクロイックミラーやVBGまでの距離を最小限にした。このセットアップにより、2つの波長を利用してTHz波の差周波発生を行った。THz波長変換素子にはDAST結晶（図3. 16. 27）を使用し、THz検出には焦電型検出器（PHLUXi社製 PYD-2）を用いた。



図 3. 16. 27 DAST 結晶

PPMgLN の最適温度を調べた結果、80 度で中心波長 2100nm の縮退条件の光に変換できることが分かった。PPMgLN の動作確認後、VBG と PPMgLN、ダイクロイックミラーからなる OPO を構築した（図 3. 16. 26）。この VBG の動作確認は、前章で発生した広帯域光を用いて透過する光によって確認した。VBG への光入射はダイクロイックミラー（HR for 2000 nm, HT for 1000 nm）を用いて、2000nm 帯だけの光が入るようにしている。PPMgLN の後ろには OPO 用のミラー（R40% for 2000 nm, HR for 1000 nm）とローパスフィルターを設置している。OPO で共振を行うためには、共振器長を短くしなければならない。これまでの報告では、パルス幅 10 ns の励起光を用いていたため、共振器長はオプティクスに比べて長かったが、今回の実験では、励起光のパルス幅が 800 ps であるため、共振器長は短くなる。したがって各光学部品間の距離をできるかぎり縮めて構築した。OPO ミラーを PPMgLN のすぐ後ろに設置し、VBG も可能な限り近づけたて共振器長を調整したところ、30 cm 以下の共振器長で細い 2 波長光のみの発振がみられた（図 3. 16. 28（左））。この時発生した 2 つの光は、波長 2126nm, 2130 nm、線幅 0.5nm 以下、波長差 $\Delta 4$ nm、であった。

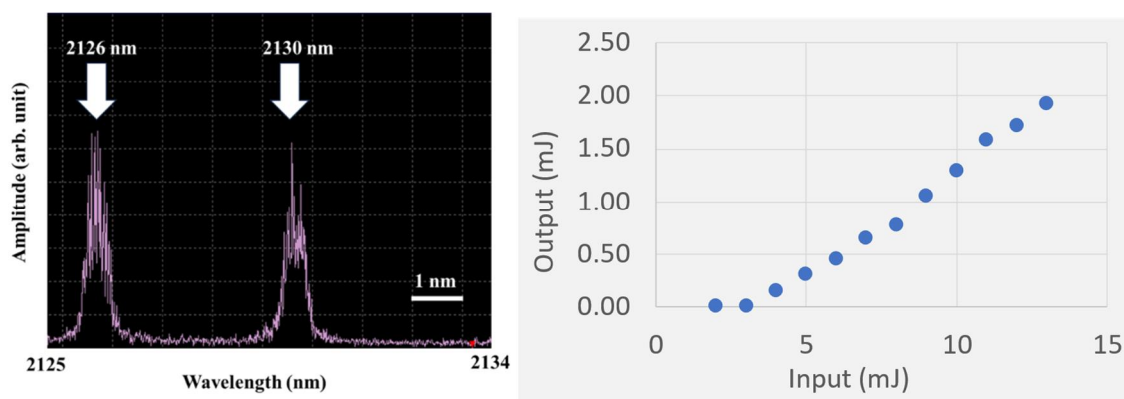


図 3.16.28 (左)スペアナで観測された 2 波長光、(右)2 波長光の入出力特性

2 波長光の発振がみられている状態で、励起光強度の調整を行って、波長変換後の光強度を計測した。結果を図 3.16.28 (右)に示す。0 mJ から 14 mJ まで励起光強度を変えたところ、3 mJ から 2 波長発振が見られ、それ以上の光強度では、2 波長の出力は線形に伸びた。その際の 2 波長光強度は 2.0 mJ まで伸びた。励起光 13 mJ 以上はオブティクスに損傷が見られたため、観測を行っていない。13 mJ 励起の際に見られた波長変換の変換効率は 15%であった。

その 2126 nm、2130 nm の 2 波長光を用いた THz 波発生実験を行った。2126 nm、2130 nm の 2 波長からは差周波で 286 GHz の THz 波が発生できる。ここで波長変換デバイスとして、有機結晶 DAST を用いて、波長変換を行った。差周波発生における波長変換は位相整合条件を考慮する必要があるが、有機結晶を用いたコリニア発生であれば、光の入射と THz 波の出射を同軸に行うことで波長変換が行える。2 波長の光を DAST に入射し、コリニア発生で THz 波を取り出した。DAST 結晶の *a* 軸を偏光方向にあわせ、結晶の後ろに励起光をカットするための塩化ビニルをセットした。検出にはフラクシ社製のパイ炉型検出器を用いた。励起光強度が 2 mJ 以上の場合において、検出器で THz 波の出力が観測された。励起光強度に応じて THz 波出力が向上し、THz 波波長変換が可能な 2 波長であることが確認できた。

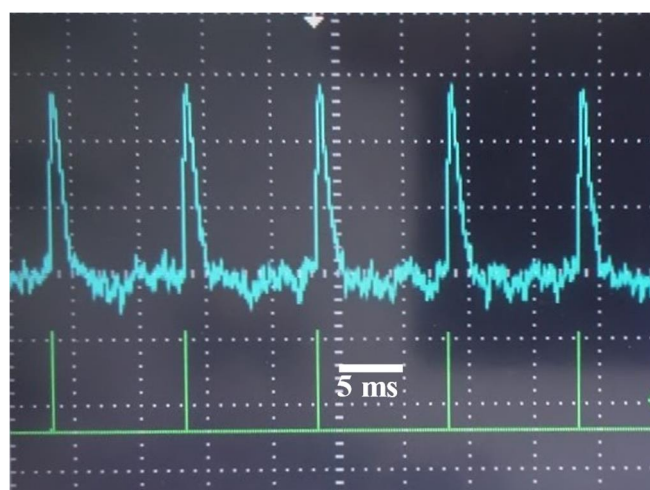


図 3.16.29 オシロスコープで観測された THz 波の信号

このようにコンパクトなシステムで THz 波への波長変換が可能な 2 波長を発生できることが分かった。THz 波利用が増大している中、励起光強度の増大にはさまざまな制約、レーザ装置の大型化、励起光強度上昇に伴う損傷閾値：デバイス、波長変換部、といった問題があるが、2000 nm という比較的ダメージを抑えやすい波長への変換が、VBG を使う事でコンパクト：OPO ミラー、PPMgLN、VBG、ダイクロイックミラーだけで構成できることが実証できた。コンパクトなシステムであるためにパワースケーリングにも適応可能であり、項目⑩において利用する。

項目 15 において、マイクロチップレーザをベースとして中赤外 2 波長光の作成、およびそこから THz 波発生が可能であることを検証した。本項目では、この波長変換技術に基づいて、発生する THz 波強度の高強度化を図った。具体的には、2 波長発生において、増幅部の導入を行い励起光強度の高強度化を図る。その後、その励起光を用いて THz 波発生を行う。図 3. 16. 30 に実験系の図を示す。

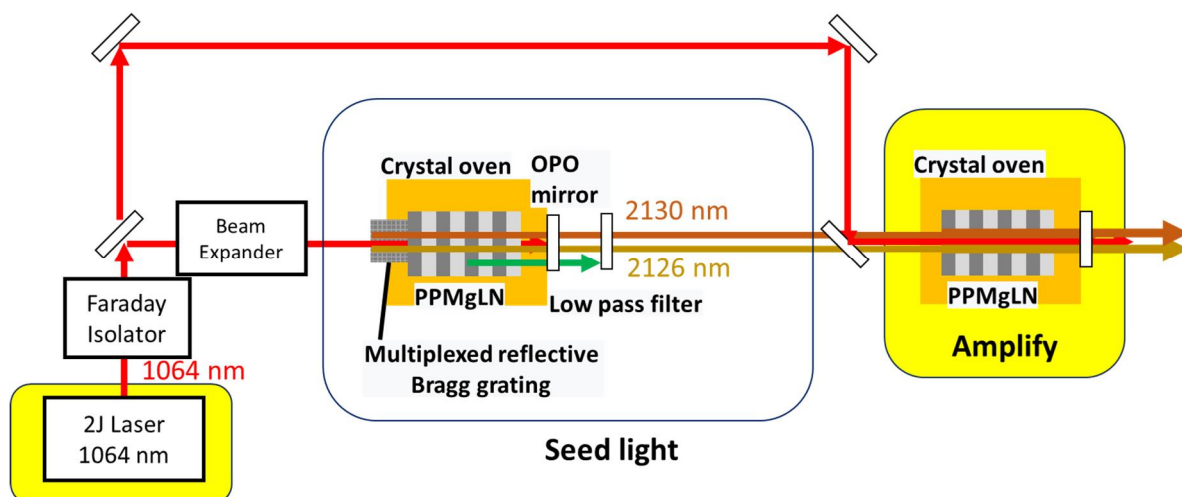


図 3. 16. 30 OPO から発生した中赤外 2 波長を OPA で増幅する実験系

このシステムは項目⑮で説明した 2 波長作成光学系を基盤としており、励起レーザの変更と 2 波長光増幅部（OPA）の導入を行っている。励起用レーザは、項目⑰で作成した 2 J 発生可能なレーザを用いている。この 2 J レーザからの出力を 2 波長作成のための OPO と増幅（OPA）とに分割する。一方 OPA では、OPO に用いた PPLN と同じ周期のものを使用している。

なお、この際、OPO における VBG の設置場所を変更している。共振器長を短くすることで OPO に必要な出力を下げ、OPA に出力の大半を回すためである。反射型 VBG を用いているため、OPO 用の PPLN に直接接触させることでも動作可能であるここで、共振器長は以下の式で計算できる、ここで、Marshall らの論文[L. R. Marshall and A. Kaz, J. Opt. Soc. Am. B, 10, 1730, (1993)]から、共振器長 L はポンプ強度 I_{th} に対して以下のように書ける

$$L = \frac{c\tau}{25} \left[\sqrt{\left\{ I_{th} \cdot \frac{\kappa g_s l^2 (1+\gamma)^2}{1.8} \right\}} - \left(2\alpha l + \ln \frac{1}{\sqrt{R}} + \ln(2) \right) \right] \quad (3. 15. 1)$$

ここで、 c は光速、 τ はパルス幅、 κ は結合係数、 g_s はモード結合係数、 l は結晶の長さ、 γ は、OPO 共振器における後方ポンプ振幅と前方ポンプ振幅の比、 α は吸収係数、 R は出力ミラーの反射率である。この式をポンプ強度 5mJ に対して計算すると、 $L = 0.131$ m という値が得られた(図 3. 16. 31)。ここで本実験では OPO ミラーを PPLN の直後に配置することで VBG から OPO ミラーまでの距離は 10 cm 未満となっている。この条件で、5mJ の励起光を入射することで、2 つの波長の狭帯域光のみがローパスフィルターの後ろで観測された(図 3. 16. 32)。このとき発生した 2 つの光の波長はそれぞれ 2126 nm と 2130 nm であり、線幅は 0.5 nm 以下、波長差は $\Delta 4$ nm であった。この 2 波長発振の出力は 30 分以上安定していることを確認した。

なお、この実験結果は PPLN と VBG を密着させた状態の OPO で 2 波長発生が可能なことを示しており、この 2 波長光を用いた THz 波発生が可能なことも確認している。したがって全長 10 cm 以下の大きさで THz 波発生が可能なデバイスが開発可能なことを示しており、今後の THz 波発生デバイスにおいて新しい展望を指示している。

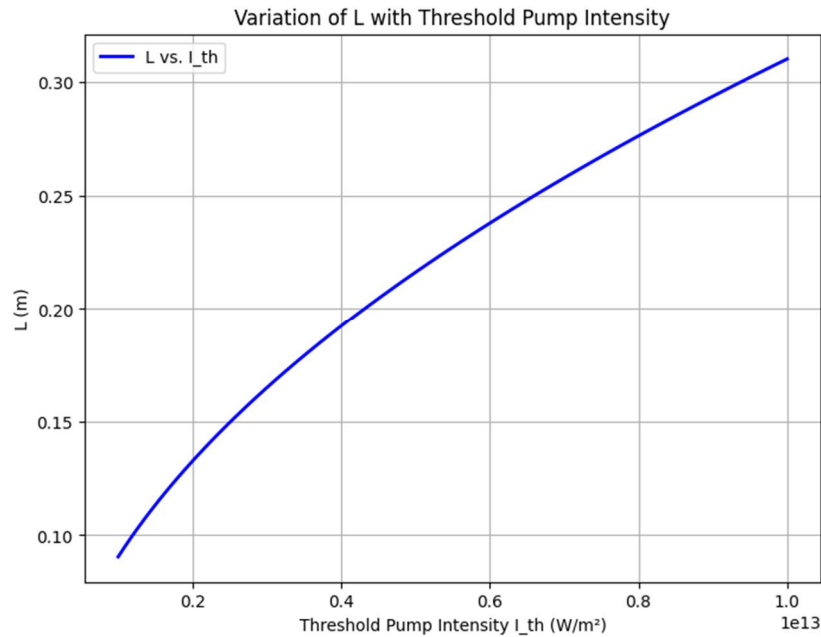


図 3. 16. 31 レーザ強度に対する共振器長の推定値。

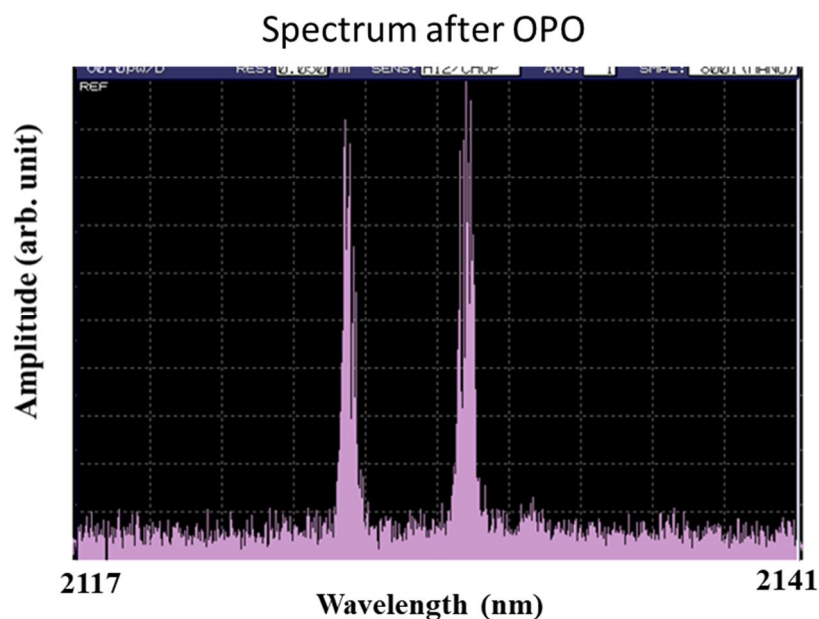


図 3. 16. 32 共振器長を短くとした OP0 からの 2 波長出力のスペクトル。

この 2 波長光を 1064nm の光と合流させ、増幅用 PPLN において光の増幅を行った。この時の入力 OP0 からの 2 波長は約 5mJ、増幅用の 1064nm 光は 10mJ から約 1.5J まで可変である。1064nm 光の光路長を調整しながら増幅を行ったところ、OPA 後にも 2 波長の発生増幅が観測された。図 3. 16. 33 に OPA 後のスペクトルを示す。波長、 $\Delta\lambda$ 、線幅ともに OP0 直後とほぼ同じスペクトルが観測されている。この際、1064nm 光の強度を大きくすることで、2 波長光の増幅を観測したところ、120mJ までの入力に対して 2126, 2130nm の 2 波長が 30mJ まで増幅することが観測された（図 3. 16. 34）。なお、変換効率の点からみると、40mJ の 1064nm 光の入力に対して、25mJ の 2 波長光発振がみられており、その際の変換効率は 50% 超であり、これは妥当な結果であるが、一方、100mJ 超の入力に対して約 30mJ の 2 波長光発生が観測されている。この場合変換効率は約 30% 程度であるが、これは実験条件などにおいて、未調整の項目があり、この結果

となっている。この後で、さらなる高強度化を行う予定であったが、結晶の損傷などがあり、これ以降の実験は現在予定確認中である。

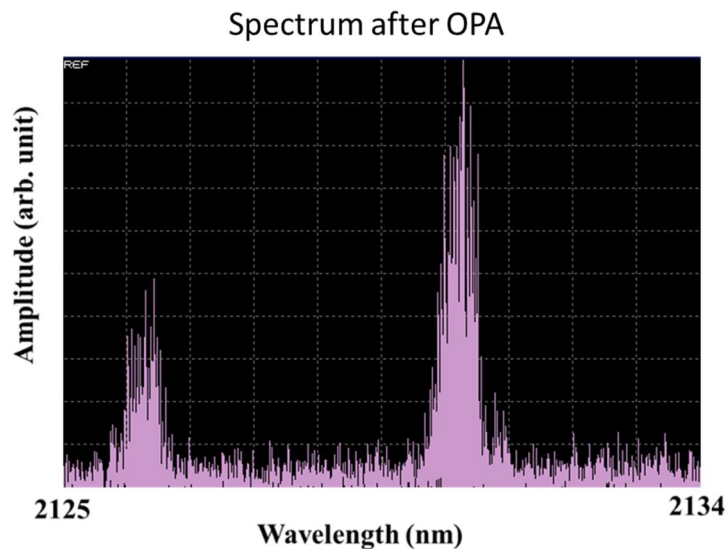


図 3. 16. 33 OPA 後の 2 波長光のスペクトル

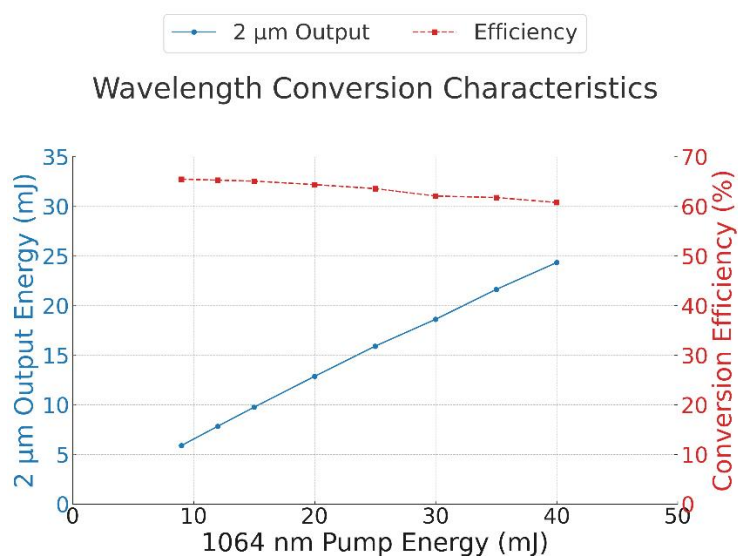
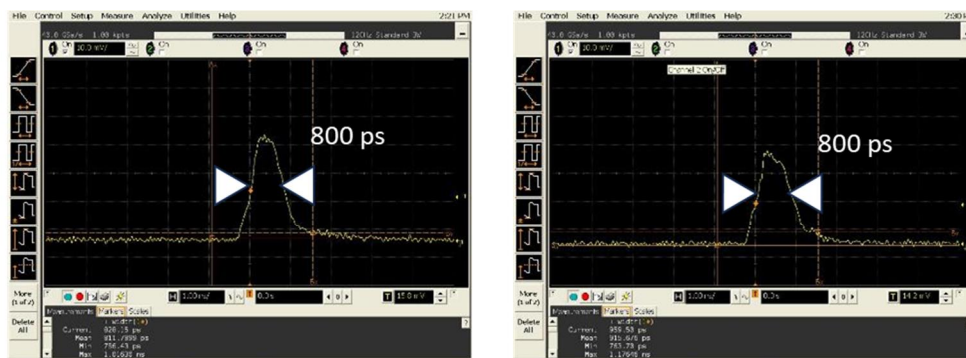


図 3. 16. 34 2 波長光の増幅の入出力特性

2 波長光の増幅について OP0 直後と OPA 直後のパルス幅を測定した結果、図 3. 16. 35 の結果が得られた。どちらも 800ps 程度のパルス幅となっており、励起レーザ光のパルス幅約 800ps と変わらない結果であった。これは、本プロジェクトで目指している短パルス励起光の作成がおこなえていることを示している。非線形光学結晶を用いた赤外光から THz 波への波長変換を行う際に、パルス幅が長いと光のエネルギーがストークス光への波長変換に流れてしまい、波長変換の効率が下がってしまう。これを避けるために約 1ns 以下のパルス幅の光が必要となるが、本実験結果はこの項目が達成できていることを示している。



Pulse duration after OPO: ~800ps Pulse duration after OPA: ~800ps

図 3.16.35 OPO、OPA 直後の 2 波長光のパルス幅

THz 波への波長変換は現在進行中であるが、ここまでの成果で、 $>30\text{mJ}$ の出力かつ、 $<0.5\text{nm}$ の線幅、 $<1\text{ns}$ のパルス幅が達成できている。中赤外光の発生についてはいくつか報告があるが、このように THz 波への波長変換に適した短パルス、狭線幅かつ数十 mJ の出力はほかに報告例のない成果である。

今後の展望として、 1mJ 、 10mJ の THz 波発生を行うための道筋を明らかにする。必要となる励起光強度を考えるために、赤外光、中赤外光から THz 波への波長変換の変換効率を考える。波長変換そのものも検討すべき課題であるが、変換効率の値については、方法によらずその上限は概ね 0.1% である。したがって、 1mJ の THz 波発生には 1J の励起光（中赤外光）が必要となる。さらに 1064nm 光から中赤外光への変換効率は約 50% であるため、 2J の 1064nm 光が必要となる。現状では 1064nm 光の 100mJ 励起による 2 波長発振は確認している（図 3.16.36）。

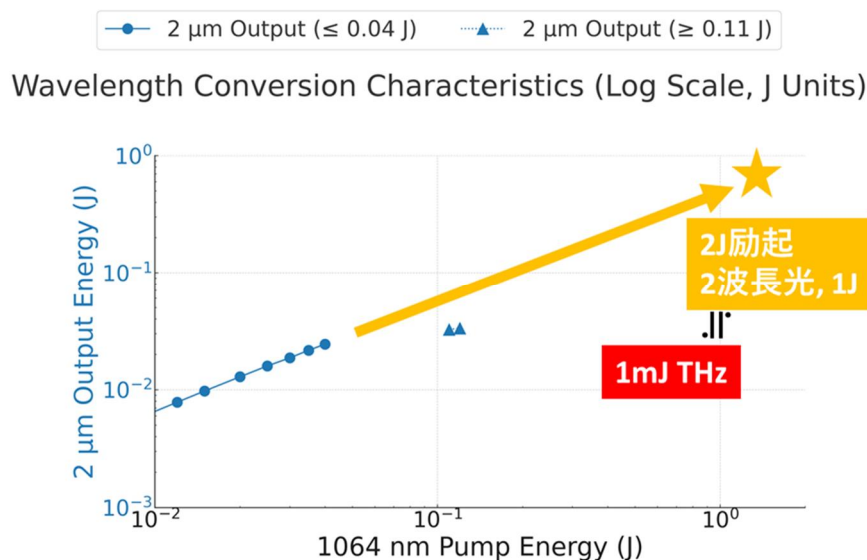


図 3.16.36 1mJ THz 波発生までの道筋

したがって今後の達成のためには、 2J 励起に耐えうる中赤外への波長変換システム、および THz 発生可能なデバイス部分の開発が必要となる。今回の課題遂行にあたって、中赤外発生デバイスおよび THz 波発生デバイスを直列に並べた場合、先に中赤外発生デバイスの方が損傷することは確認しており、課題遂行のためには中赤外発生がキーポイントとなる。

ここで 2J に耐えうる 1064nm から中赤外光への波長変換デバイスは、レーザ損傷閾値が $1\text{J}/\text{cm}^2$ であるため、 $20\text{mm} \times 10\text{mm}$ の入射面を持つ大きさであれば充分であることも確認している。

項目⑩まとめ

これらの実験により、 $<0.5\text{ nm}$ の狭線幅、 $<1\text{ ns}$ の短パルス、最大 30 mJ 以上の出力を有する中赤外2波長光の安定生成が実証された。これらはTHz波への高効率波長変換に必要な特性を全て満たしており、さらに非線形光学結晶を用いたTHz波の差周波発生を通じて、THz波生成の基本動作も確認された。

現時点では、THz波の出力は数 $10\text{ }\mu\text{J}$ レベルと推定されるが、これは励起光強度に制約があるためである。波長変換系の損傷や熱的限界を回避しつつ、DFC-PowerChip励起によるレーザ光からのTHz波発生の高エネルギー化のための技術的基盤が整った段階にある。

⑰ DFC-PowerChip による基本波出力 2J を基本にした FHG 装置の開発（担当：三菱電機）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

DFC-PowerChipを用いた基本波出力2Jレーザを基本としたFHG発生については当初分子科学研究所（以下分子研）における技術開発の後に技術移管を行い、それを装置化する予定であったが、コロナウイルス感染拡大によるサプライチェーンの混乱により工程が遅れることとなった。この工程の遅れを取り戻すべく、早期の技術移管のため分子研における実証に参加した。この実証において基本波出力2Jを達成し、技術移管を行った(図3. 17. 1)。

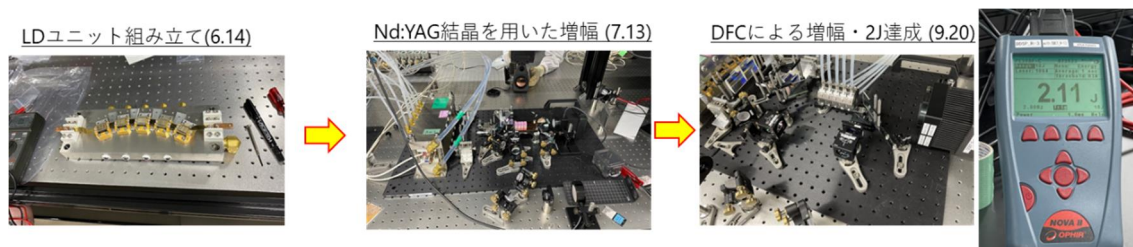


図3. 17. 1 分子研におけるベンチトップ実証・および技術移管

分子研におけるベンチトップ実証で使用された設計を受け取り、装置化に向けた小型化、高安定化開発を行った。例としては図3. 17. 2に示すようにベンチトップ実証においては増幅部の励起ユニットが15.6kgとかなりの重量があったところ、設計変更により5.6kgへの軽量化に成功した。こうした社内設計を用いて当社社内における試作を行い、分子研での実証と同等程度の出力が得られることを確認した。

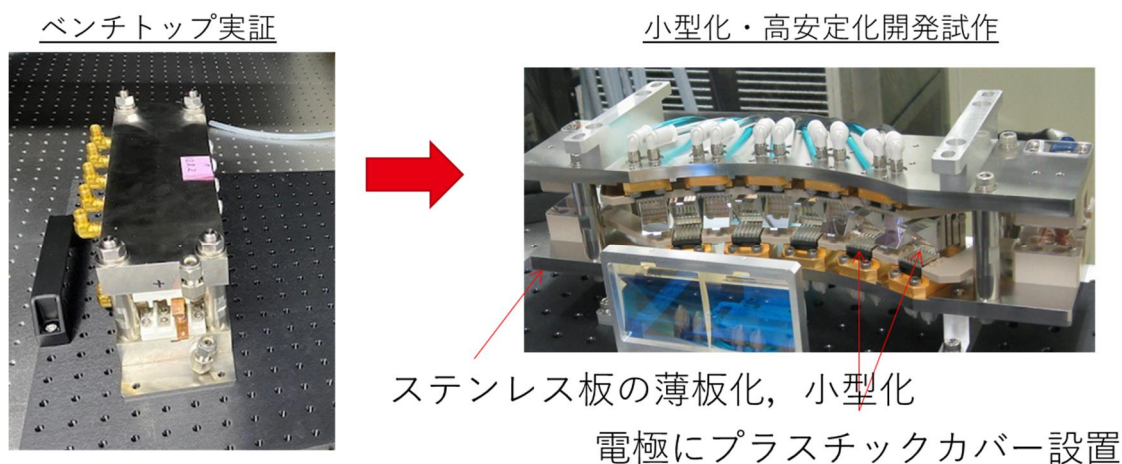
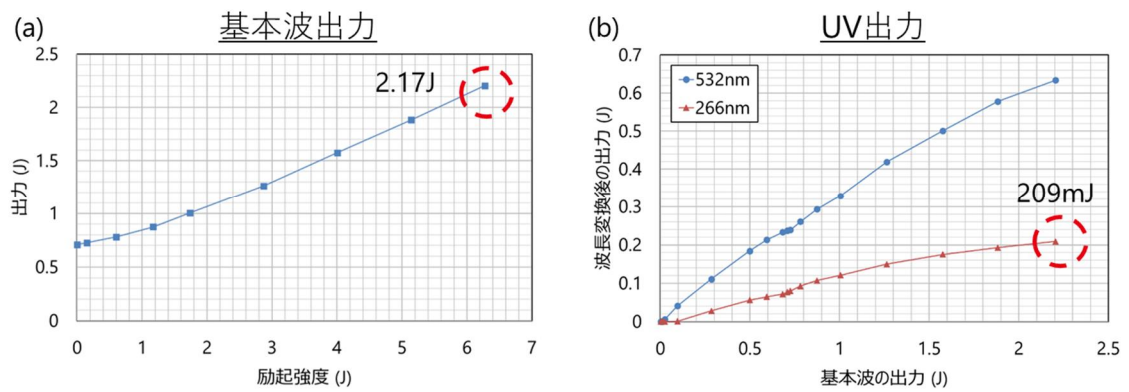


図3. 17. 2 小型化・高安定化設計の例

こうした装置化に向けた設計を進め、所内評価機を制作した。所内評価機では図3. 17. 3に示すとおり、基本波で分子研での実証と同等の2.17Jが、UV波長266nmにおいては209mJの出力が得られた。目標となるUV波長で200mJを超える出力を達成することができた。



以上のように本レーザ装置は目標であるUV波長266nmにおいて200mJを超える出力達成したが、図3. 17. 4の評価結果は繰り返し周波数2Hzのときのもので、繰り返し周波数を挙げていくとUV出力が低下するという現象が見られた。繰り返し周波数は本レーザ装置の応用である「表面処理・素子育成」のプロセス時間に直結することから、高繰り返し化を阻害する要因について調査を行った。結果として、図3. 17. 6のサーマルイメージャによる計測結果に示す通り、波長変換後の266nmにおける二光子吸収が原因で非線形結晶の温度が上昇し、結晶の温度分布が一様でなくなることが原因であると判明した。結晶内の温度分布が図3. 17. 6(a)はほぼ一様なのに対し、図3. 17. 6(b)は中心部の温度が上昇して一様ではなくなっていることがわかる。

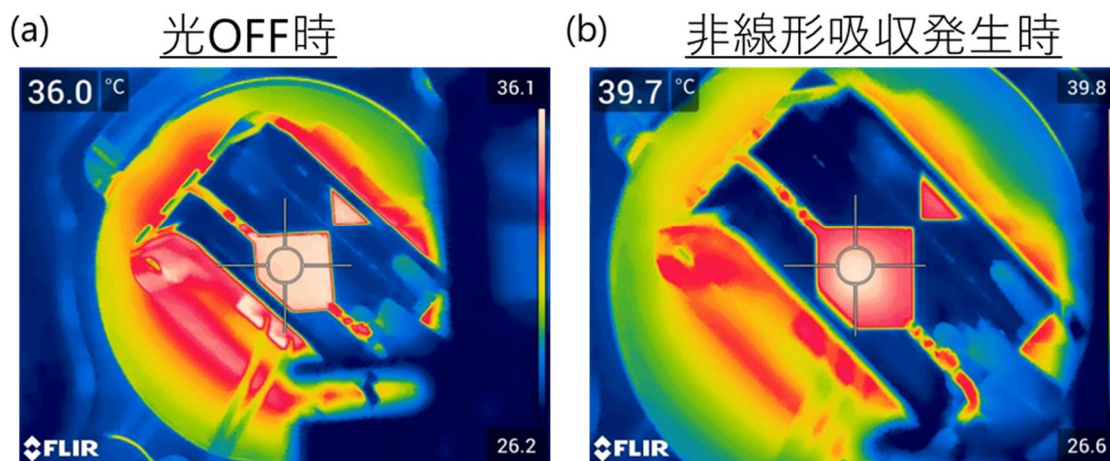


図3. 17. 6 非線形結晶の温度分布 (a): 波長266nmが発生していない状態
(b): 波長266nmが約40mJ発生している状態

そこで従来266nm発生に用いていたKD*P結晶に替えて、二光子吸収係数が比較的少ないとされるLBO結晶を用いた評価を実施した。従来はLBO結晶を用いて基本波1064nmを二倍波の532nmに一旦変換し、さらにKD*P結晶を用いて532nmの二倍波にあたる266nmを発生させていた。しかし、LBO結晶は532nmから直接266nmを発生させることができないため、一旦1064nmと532nmの和周波発生により355nmを発生させ、1064nmと355nmの和周波発生により266nmを発生させる必要がある。LBO結晶を用いた波長変換の評価系を図3. 17. 7に示す。図3. 17. 7に示す通り、LBO結晶を3個使用する。繰り返し20Hzにおける波長変換後の出力を図3. 17. 8に示す。波長266nmにおいて最大147mJの出力が得られた。

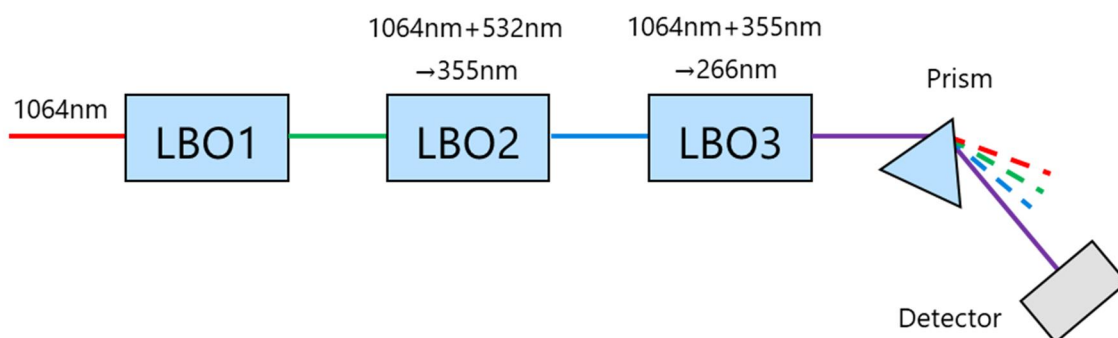


図3. 17. 7 LBO結晶を用いた波長変換の評価系の概念図

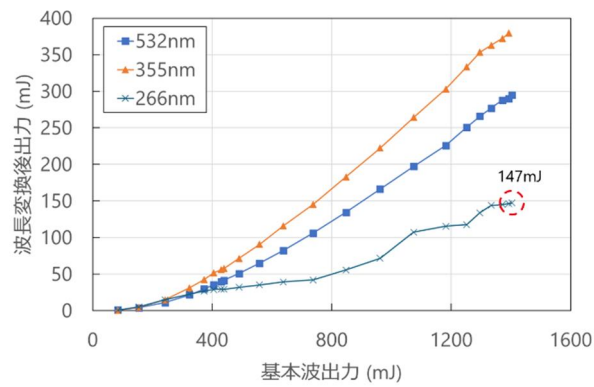


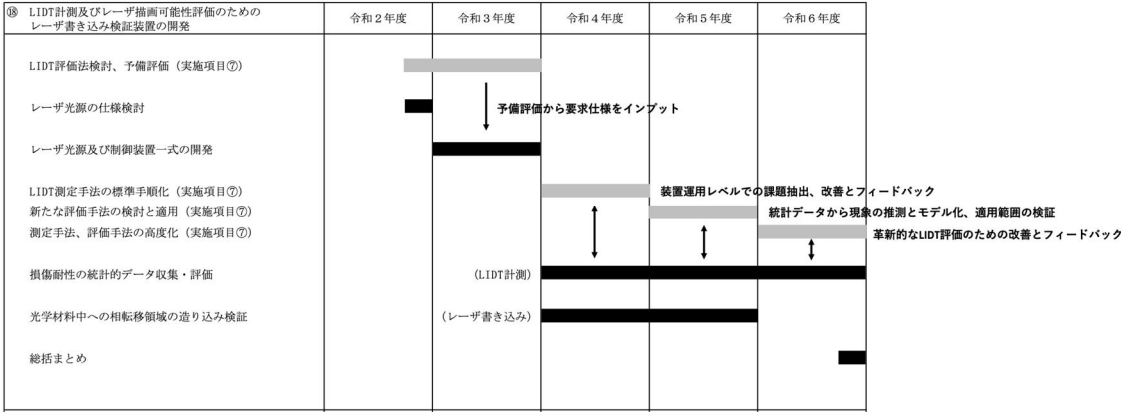
図3. 17. 8 LBO結晶を用いた波長変換出力

以上から、本要素課題においてはDFC-PowerChipによる基本波出力2Jレーザを基本としたFHG装置を開発し、目標となるUV波長266nmにおいて200mJを達成した。本装置は分子研に移設し、開発課題⑧「DFC-PowerChipを利用したUVレーザによる表面処理・素子育成系構築」に使用される。出力としては繰り返し2Hzにて最大235mJ、繰り返し20Hzにて最大147mJを達成した。これは世界最高クラスのDUV出力であり、プレスリリースを行った。

⑱ LIDT 計測及びレーザ描画可能性評価のためのレーザ書き込み検証装置の開発（担当：理化学研究所）

[研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果]

レーザによる損傷現象を把握し、材料開発及び新たな視点からのLIDTの検討を実施すること、またその検討成果を反映したレーザ描画可能性評価を実施することを目的として、レーザ耐性評価装置及びレーザ書き込み検証装置の開発を進めた。本実施項目は、「新たなLIDT測定手法とレーザ描画手法の開発（実施項目⑦）」と密接に関係するため、実施項目⑦を含めた開発スケジュールを以下に示す。



レーザ光源及び制御装置一式の開発

図3. 18. 1にLIDT計測及びレーザ描画可能性評価装置の基本構成と制御概念を、図3. 18. 2には導入したLIDT計測装置、図3. 18. 3にはレーザ描画装置の外観を示す。なお、別途準備したレーザ発振器が接続されて使用され、装置はレーザをサンプル表面まで導くミラーやレンズ、観察用のカメラや所定の速度で動作可能な自動ステージを備える。また、エネルギー制御用にアッテネータを、レーザ照射ON/OFFの制御用に高速シャッターを備え、装置内のこれら機器とレーザ発振器が制御用PCによって制御され、プログラム従いながら所定の条件でレーザ照射、観察が行われる。本装置はレーザ照射用の光学系とサンプル観察用の光学系の2つを備え、それらを切り替えながら試験と観察が自動的に行われる。

LIDT計測装置では、サファイア、Nd:YAGなどの結晶内部や、それらの接合界面、コーティングなどのLIDTを評価するため、ターゲット（損傷を評価したい部分）でのエネルギー密度、照射数、照射位置などを様々に変更しながらレーザ照射する。試験時には、X-Yステージがプログラムに従い動き、指定された箇所レーザが照射され、X-Yステージに連動してZステージとアッテネーターが動くことで、レーザのエネルギーとスポット径が制御され、ターゲットでのエネルギー密度が試験位置に応じて変更される。さらに、高速シャッターによって、1箇所照射するレーザの照射時間、すなわち照射パルス数が制御される。試験前後には照射用の光学系から観察用の光学系に切り替わり、オートフォーカス機能でフォーカスを合わせながらカメラで照射位置の確認や照射痕の撮影が行われ、得られた画像を元に、試験者が損傷の有無や程度を判断する。本装置により、LIDT計測値の自動取得や計測データの蓄積が可能となった。

レーザ描画装置では、サファイア、Nd:YAGなどの結晶の表面や内部に導波路などを形成（レーザ描画）するため、プログラムに従いエネルギー密度と位置を変えながらターゲットに対しレーザを照射する。試験中は、X-Y-Zステージがプログラムに従い動き、それらが連動して動くことで3次元的に導波路のマッピングが行われる。また、高速シャッターによってレーザ照射のON/OFFが瞬時に切り替えられ、指定箇所外への照射が防止される。さらに、ステージとアッテネーターが連動して動くことで、エネルギー密度を一定に保ちながら、あるいは、位置によって変えながらレーザが照射される。試験前後には照射用の光学系から観察用の光学系に切り替わり、オートフォーカス機能でフォーカスを合わせながらカメラで照射位置の確認や照射後のサンプルの撮影が行われ、照射後の試験片は試験者によって別途評価が行われる。本装置により、導波路を形成した結晶の作成が可能となった。

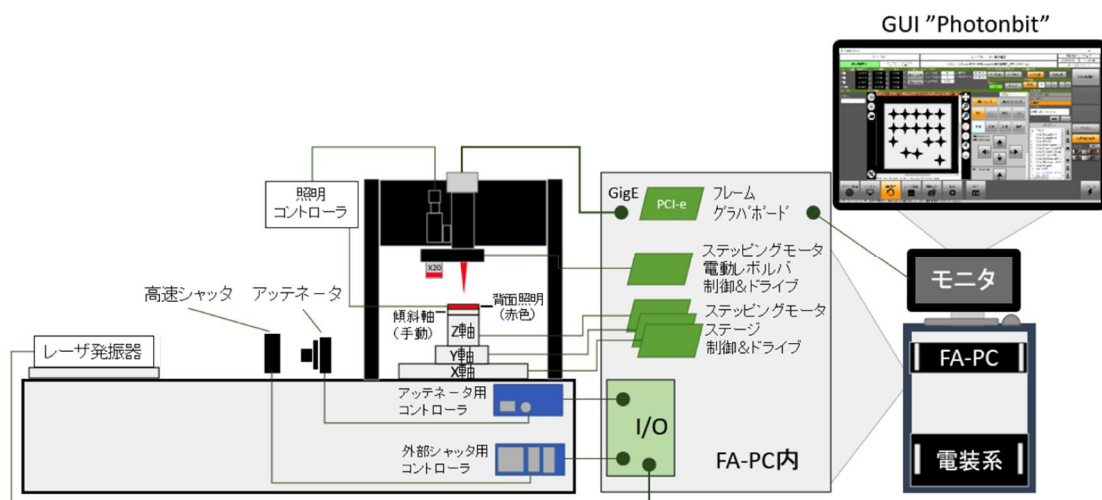


図3. 18. 1 LIDT計測及びレーザー描画可能性評価装置の構成と制御概念

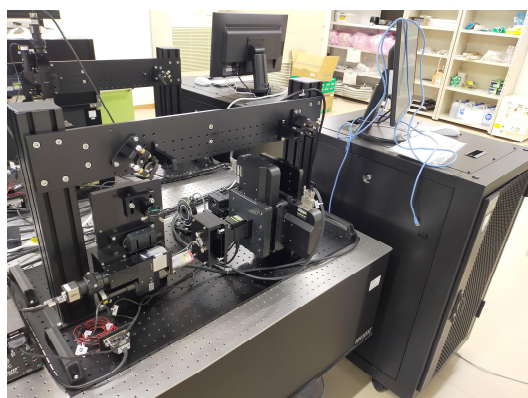


図3. 18. 2 導入したLIDT計測装置

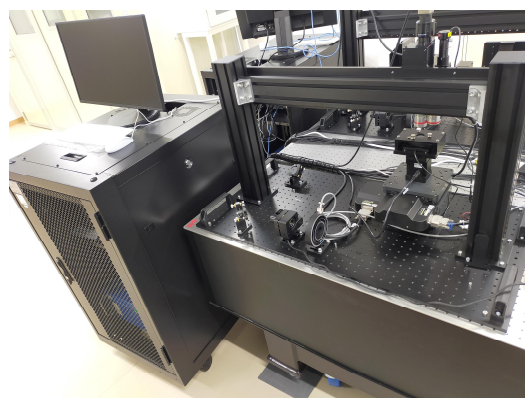


図3. 18. 3 導入したレーザー描画装置

損傷耐性の統計的データ収集・評価（LIDT計測装置）

〔異なるレーザー仕様でのLIDT測定データの扱い〕

特に LIDT 計測装置において損傷耐性の統計的データ収集とその評価をする上では、異なる仕様のレーザーを用いても等価的に測定値を比較できることが重要であるため、パルス幅、集光径の異なるレーザーによる比較評価を行った。サンプルとしてはこれまでの評価で損傷耐性に大きな違いの見られたサファイア結晶 2 種（A 社製及び B 社製）の同一バッチ品を用い、それぞれに対して Sample1、2 としてパルス幅 640ps、集光径 $27\mu\text{m}\times 32\mu\text{m}$ レーザでのバルク測定データを、Sample3 としてパルス幅 890ps、集光径 $21\mu\text{m}\times 23\mu\text{m}$ レーザで測定したデータを比較した。結果を図 3. 18. 4 に示す。尚、損傷閾値の評価には実施項目⑦において開発した多重シグモイド関数による LIDT 評価法を用いている。短パルスレーザーによる損傷閾値はパルス幅の平方根に反比例することが知られているため、パルス幅 890ps で測定したデータに対して $\sqrt{640/890}$ のフルエンス補正をした結果を破線で示している。損傷確率 100%まで上昇し始めるフルエンスをその材料のレーザー耐性限界の損傷閾値と考えると、Sample3 のフルエンス補正後の損傷閾値は Sample1、2 の個体差の範囲で一致し、パルス幅補正による評価に差し支えないことが確認できた。興味深いのは、A 社結晶では結晶の不均質に起因してこれまで見られていたレーザー耐性の劣化がなくなり、B 社結晶では逆に確率は低いながらもレーザー耐性の劣化が認められたことである。ビーム条件の違いに対する特性、感度が損傷要因によって大きく異なるのであれば、今回のようにビーム条件を切り替えて評価することは損傷要因の特定の一助となる可能性がある。

以上のような結果から LIDT 評価データは、損傷閾値に多段構造が見られる場合は従来の損傷閾値（1st LIDT）と材料の限界的な損傷閾値（Intrinsic LIDT）の両方を蓄積し、レーザーパルス幅で補正した等価的な LIDT で比較するものとした。

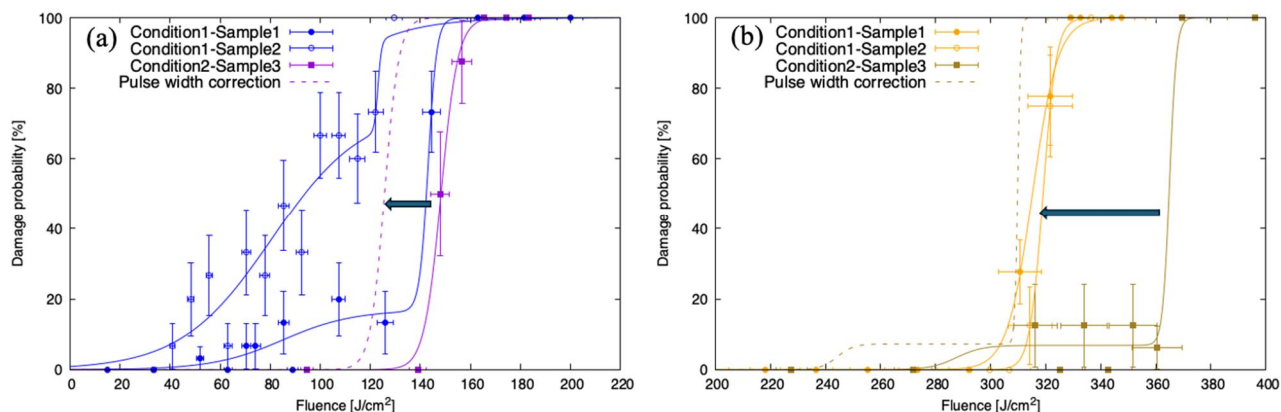


図 3.18.4 異なるビーム条件におけるサファイア結晶のバルク損傷確率測定結果
(a) A社サファイア結晶 (b) B社サファイア結晶

	ビーム集光径 ($\phi x/y$)	パルス幅
Beam condition 1	32/27 μm	640 ps
Beam condition 2	21/23 μm	890 ps

[データベースの作成]

LIDT 計測装置開発の目的の1つは、評価データを材料開発へフィードバックし高品位レーザ材料の作製に繋げることにある。そこで収集した損傷閾値の評価データは、プロセス毎の管理指標を定め、損傷閾値と各指標の相関有無などを容易に評価できるようにデータベース化した。一例として、図 3.18.5 に接合界面の LIDT 測定、評価結果のデータベース構成を示す。

Crystal 1 specification Code	Crystal 2 specification Code	Bonding condition Code	Annealing condition Degree-Minutes	LIDT meas. Condition CW/Pulse Polarization wavelength(nm) pulse duration(ps)	LIDT result 1st (J/cm2) intrinsic(J/cm2) correction
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/QTZ(II)	-	Pulse 1064 1000	***
QTZ-46	QTZ-46	QTZ/QTZ(II)	-	Pulse 1064 1000	***
QTZ-48	QTZ-48	QTZ/QTZ(II)	-	Pulse 1064 1000	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/QTZ(II)	-	Pulse 1064 640	***
QTZ-46	QTZ-46	QTZ/QTZ(II)	-	Pulse 1064 640	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/QTZ(N)	-	Pulse 1064 640	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/QTZ(N)	-	Pulse 1064 640	***
QTZ-46	QTZ-46	QTZ/QTZ(N)	-	Pulse 1064 640	***
QTZ-46	QTZ-46	QTZ/QTZ(N)	-	Pulse 1064 640	***
QTZ-48	QTZ-48	QTZ/QTZ(N)	-	Pulse 1064 640	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/QTZ(N)	-	Pulse 1064 640	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/Al2O3/QTZ(N)	200-360	Pulse 1064 640	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/Al2O3/QTZ(N)	-	Pulse 1064 640	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/Al2O3/QTZ(N)	200-360	Pulse 1064 640	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/Al2O3/QTZ(N)	400-360	Pulse 1064 890	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/Si/QTZ(N)	-	Pulse 1064 890	***
QTZ-44	QTZ-44	QTZ/Si/QTZ(N)	200-60	Pulse 1064 890	***
QTZ061	QTZ061	QTZ/QTZ(N)	-	Pulse x-pol 1064 900	***
QTZ061 re-polish	QTZ061 re-polish	QTZ/QTZ(N)	200-60	Pulse x-pol 1064 900	***
QTZ061	QTZ061	QTZ/QTZ(VI)	-	Pulse x-pol 1064 900	***
QTZ061	QTZ061	QTZ/QTZ(VI)	200-60	Pulse x-pol 1064 900	***
QTZ061 re-polish	QTZ061 re-polish	QTZ/QTZ(N)	-	Pulse z-pol 1064 900	***
QTZ061 re-polish	QTZ061 re-polish	QTZ/QTZ(N)	-	Pulse x-pol 1064 900	***

主要プロセスとLIDT測定・評価結果の一覧表示

Code	Material	Orientation	Shape	Dimension	Cross section	Note 1-1	roughness	HV	coating	Note 1-2
QTZ-44	Quartz	Y-cut, z-pol	Square	10 9 5	90	Company A	***	***	no	
QTZ-46	Quartz	Y-cut, z-pol	Square	10 10 5	100	Company B normal grade	***	***	no	
QTZ-48	Quartz	Y-cut, z-pol	Square	10 10 5	100	Company B high grade	***	***	no	
QTZ061	Quartz	Y-cut	Circular	20 20 1	314.2	Company C	***	***	no	
QTZ061 re-polish	Quartz	Y-cut	Circular	20 20 1	314.2	Company C	***	***	no	
QTZ065	Quartz	Y-cut	Circular	20 20 1	314.2	Company C	***	***	no	

材料コードに紐づく管理指標の一覧表示

図 3.18.5 接合界面の LIDT 評価結果のデータベース例

本研究課題においては、蓄積したデータから材料のレーザ耐性限界値を見極め、接合界面のレーザ耐性向上に優位に働く管理指標を見出すことに成功し、その結果としてDFC-PowerChip及びQPM-PowerChipに用いる接合材料の界面強靱化（実施項目②）の成果につながった。

光学材料中への相転移領域の書き込みの検証（レーザ書き込み検証装置）

100ピコ秒のパルス幅を有するNd:YVO₄/SESOCマイクロチップレーザおよび増幅器を用いて尖頭値約50kWでガラス内部に集光し、焦点部位でレーザ誘導プラズマ発生による媒体内部の変形を確認することでレーザ書き込みの可能性を検証した。これに加えて、変形した焦点部分の周りで相転移の可能性も

確認した。サファイアおよびNd:YAG結晶表面および内部にVBG(volume Bragg grating)や光導波路を形成するためには、連続した線状のレーザ描画が可能でなければならないが、図3. 18. 6に示すように連続変形の形成は上手く行かなかった。主な原因は、繰り返し率の不安定による尖頭値変動に依るもので、それはレーザパルスのタイミングジッタに起因すると考える。

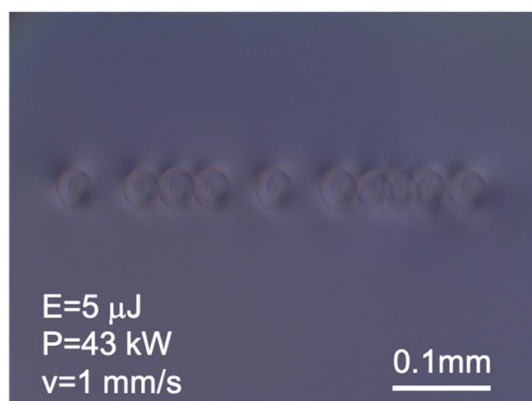


図3. 18. 6 マイクロMOPA照射による屈折率変化のレーザ書き込みを一部確認

図3. 18. 7は、レーザパルス間のタイミングジッタを測定したところ標準偏差で300nsと大きな値だった。タイミングジッタは、反転分布が閾値を超えたら自動的に吸収体が透明になる受動Qスイッチの本質的な問題でもある。すなわち勝手に透明になるのでそのタイミングは外部から決める事ができない。電気光学効果や光音響効果によるQスイッチでは、外部から高電圧パルスやRF電力を素子に加える必要があり大型で大変になるが、外部信号で制御できる。そのため受動Qスイッチのタイミングを制御することは、そもそも動作原理に矛盾する事象である。しかし、受動Qスイッチは使いやすいだけでなく共振器の短いマイクロチップにできるため、従来のQスイッチレーザでは望めなかったサブナノ秒、ピコ秒の短パルスが作れる。この領域は、モードロックではもっと短いパルスになるため、発生が困難な領域だった。そのため、受動Qスイッチでタイミング制御ができると、その影響は大きい。他機器との同期使用する様々な用途や特に計測分野で切望されてきた。

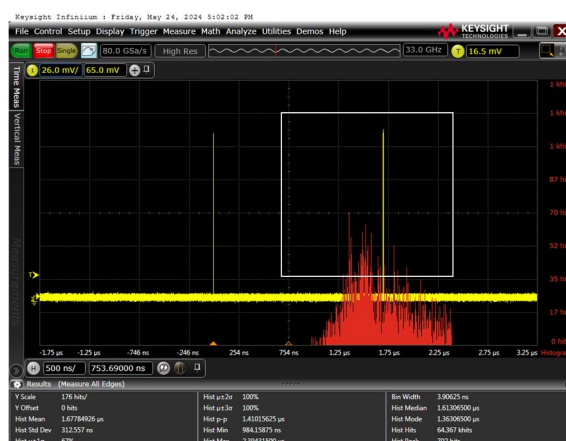


図3. 18. 7 マイクロチップレーザのパルス間のタイミングジッタ測定

タイミングジッタを大幅に抑制する方法として自己注入同期について検討した。この方法は、シードレーザを追加することなく、自分が発生したレーザパルスの一部を一定の時間遅延後にレーザ共振器に戻し、自発放射ノイズではなくレーザパルスによって受動Qスイッチングのタイミングを制御する手法である(図3. 18. 8)。Nd:YVO₄/SES0マイクロチップレーザの繰り返し周波数は、励起率、すなわち励起LDの光出力で制御できる。すなわち、共振器内部のレーザ光を増加させると、その分、誘導放出が起きるため共振器の利得が損失を越えるタイミングが早くなり、繰り返し周波数が高くなる。まずレーザ出力パルスを50:50のビームスプリッタで分割し、一方のパルスに時間遅延を与える。例えば1MHzの繰り返し周波数の場合には1μsの遅延が必要だが、これは屈折率が1.5で長さ100mの光ファイバ

を往復する時間である。そして再びビームスプリッタを介して自分のパルスが戻り共振器に注入される。これにより繰り返し周波数が変化するので励起光電力を微調整して安定化させる。

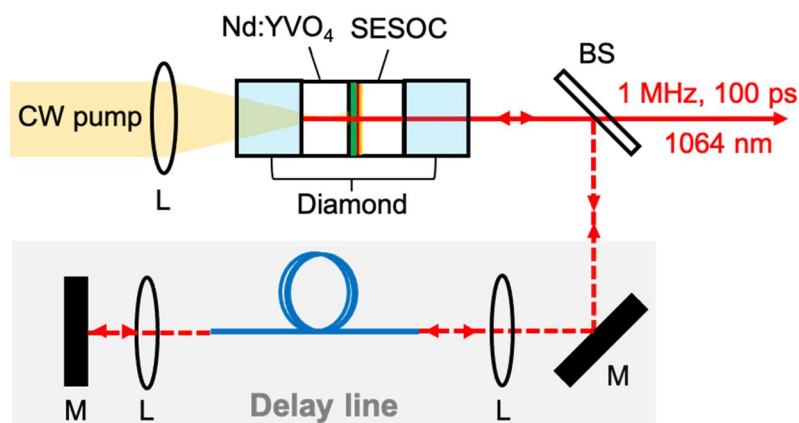


図3. 18. 8 受動Qスイッチマイクロチップレーザの自己注入同期実験図

図3. 18. 9に、励起光電力の変化によるレーザパルス間のタイミングジッタを自己注入同期した場合としない場合で比較した。自己注入同期がない場合（ ~ 300 ns）に比べて10, 000倍以上短い30ps以内でタイミングジッタを安定化させることに成功した。30ps以内のタイミングジッタは、励起光電力の変動などによって発生する可能性があり、100psのパルス幅より小さい場合、同期問題では自由であり得る。

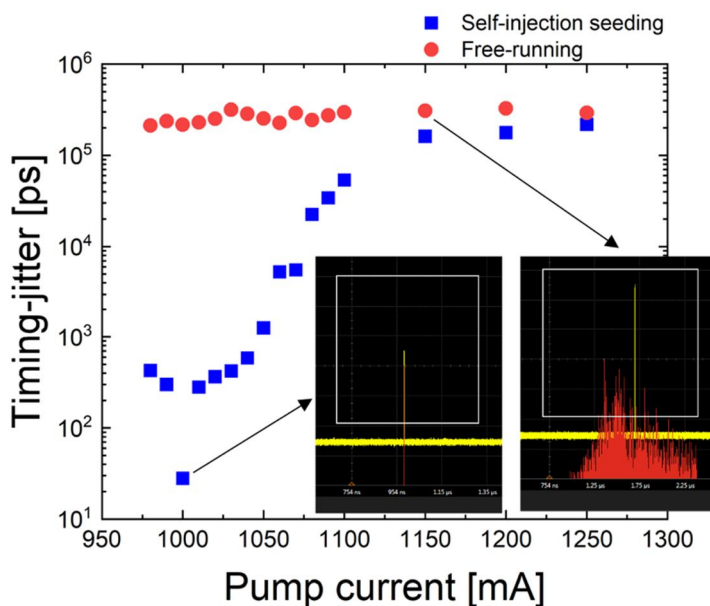


図3. 18. 9 シーディングの有無によるタイミングジッタ測定と比較

まとめと今後の展望

目標：レーザによる損傷現象を把握し、材料開発及び新たな視点からの LIDT の検討を実施するための評価装置を開発する。

(1) レーザ耐性評価装置

レーザ耐性評価装置としては、サブナノ秒 1064nm 光源を用い、レーザ集光強度を変化させ光学材料や接合界面に照射することで得られる損傷耐性を統計的にデータ収集・評価する

(2) レーザ書き込み検証装置

レーザ書き込み検証装置としては、サブナノ秒 1064nm あるいは等価な光源を用い、レーザ集光強度を変化させ光学材料に自動照射することで対象となる光学材料中に目的とする相変異領域を作り込む

成果：レーザ耐性評価装置としては、サブナノ秒 1064nm で発振する受動 Q スイッチ型 GA-Microchip Laser とその照射システムをそれぞれ開発し、組み合わせることで LIDT 評価可能なレーザ耐性評価装置を完成させた。蓄積した LIDT 評価のデータベースからレーザ耐性向上に優位に働く指標を見出すことに成功し、DFC-PowerChip 及び QPM-PowerChip に用いる接合材料の界面強靱化の成果につながった。

課題：レーザ損傷評価において、これまでは材料の改質も含めて損傷が有るか無いかでしか判断していないが、損傷現象を真に把握するためには、損傷の仕方の違いにも着目した評価が必要になると思われる。実施項目⑦で試行した損傷フルエンスの違いによる要因切り分けもそのためのアプローチの 1 つであるが、損傷時の発光や振動を同時に観測することなども含め、統計的な分析に最適なデータ形態について今後も検討したい。

⑬ 次世代レーザセラミックス原料の評価（担当：日本ファインセラミックス協会）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

1) 透明セラミックスに関するデータベース（DB）構築

透明セラミックスの物性 DB の初版を完成させるために、優先的に評価を進める素材の選定基準を設け、素材入手と物性測定を行った。

① 物性 DB 掲載のための評価用サンプルの選定基準と選定

耐レーザ損傷（LIDT）特性へは素材の物性として熱伝導率と抗折強度が相関すると推定し、両物性による素材の選定基準を設定した。表 3. 19. 1 に示す。

熱伝導率と抗折強度の少なくとも片方が暫定目標値以上である素材を優先的に評価する。

表3. 19. 1 耐レーザ損傷（LIDT特性）を考慮した素材の選定基準

物性項目	基準	暫定目標値
熱伝導率	高熱伝導率であること。	単結晶サファイア（アルミナ）※以上（ $\geq 42\text{W/mK}$ ）
抗折強度	高強度であること。	単結晶サファイア（アルミナ）※以上（ $\geq 690\text{MPa}$ ）

※京セラ社製単結晶サファイア

各セラミックス成型品の熱伝導率と曲げ強度のデータを入手し、両物性についてプロットした（図 3. 19. 1）。

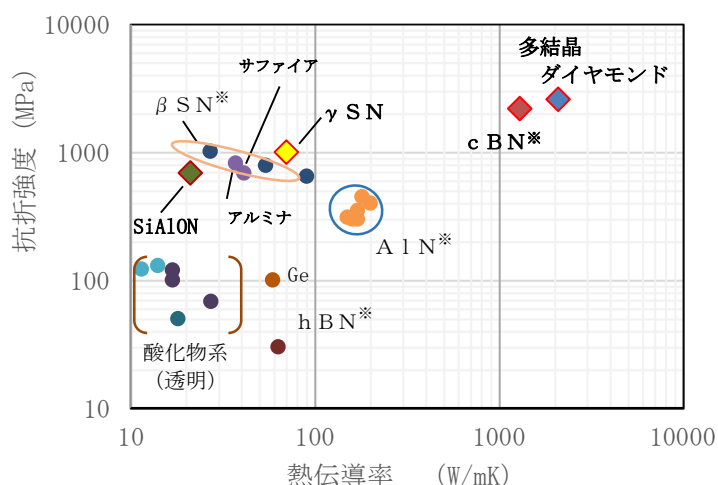


図3. 19. 1 各種セラミックス素材の物性（熱伝導率と抗折強度）のマッピング

② 物性データベース初版

市販されている素材を入手し物性測定を行った。また、新規透明セラミックスの研究を実施する研究機関との交流から、今後の評価素材に関する情報を入手した。それに基づいて物性 DB 初版を作成した。

・物性測定した素材：

市販されている素材の物性測定結果。表 3. 19. 2 に示す。

・新規透明セラミックス材料：

研究機関からの情報を記載した。表 3. 19. 3 に示す。

※ 元表を添付できないため、表 3. 19. 2 および表 3. 19. 3 は表中の一部を示す。

表 3. 19. 2 各種セラミックス素材の物性データベース／物性測定した素材

物質名	トレーザビリティ			化学式	熱特性 (25℃)				公表値	
	供給者	品種・グレード	呈色 (目視)		熱伝達係数 mm ² /s	比熱 J/g・K	比重 g/cm ³	熱伝導率 W/mK	熱伝導率 W/mK	抗折強度 MPa
ダイヤモンド	住友電工	バインダレスPCD	半透明・褐色	C	196	0.513	3.52	353.9	—	—
窒化アルミウム	西村陶業	ALN-170	不透明・灰色	AlN	83.162	0.72	3.3	197.6	170	350
	西村陶業	ALN-HYO (無助剤)	不透明・灰色	AlN	34.415	0.72	3.3	81.8	80	—
アルミナ	西村陶業	N-9000NS	半透明・白色	Al ₂ O ₃	10.682	0.78	3.99	33.2	37	822
	西村陶業	N-999S	不透明・白色	Al ₂ O ₃	10.823	0.78	3.97	33.5	33.4	500
窒化ホウ素	デンカ	N1	不透明・白色	BN	86.091	0.78	1.8	120.9	63	30
	デンカ	NB1000	不透明・白色	BN	82.327	0.78	1.6	102.7	60	28

表 3. 19. 3 各種セラミックス素材の物性データベース／研究開発素材

物質名	トレーザビリティ			化学式	熱特性 (25℃)				公表値	
	供給者	品種・グレード	呈色 (目視)		熱伝達係数 mm ² /s	比熱 J/g・K	比重 g/cm ³	熱伝導率 W/mK	熱伝導率 W/mK	抗折強度 MPa
ダイヤモンド	住友電工	単結晶ダイヤモンド	透明・無色	C	試作試験を必要とするため、今後も各機関と協力して推進し、試験片が出来次第、測定を進める。 事業期間を超えても評価できる体制を作る。				>2000	—
窒化ホウ素	住友電工	立方晶窒化ホウ素	不透明・黒色	BN					—	—
窒化ケイ素	デンカ	窒化ケイ素焼結体	不透明・灰色	β-SiN					100	≧600
	愛媛大学	(試作)	半透明・黄色	γ-SiN					—	—
窒化ガリウム	未定*	窒化ガリウム	透明・無色	GaN					130	—
酸化ガリウム	未定*	酸化ガリウム	透明・無色	Ga ₂ O ₃					10~30	—
サイアロン	横浜国大	透明サイアロン焼結体	透明・無色	SiAlON					—	—
チタン酸ストロンチウム	フジ化学	SrTiO ₃	透明・無色	SrTiO ₃					10	—
セレン化亜鉛	住友電工	ZnSe	透明・無色	ZnSe					—	—

2) DB 補完資料「主要原料メーカー一覧」

研究機関への情報提供として、DB構築に並行して代表的な透明セラミックスとそれに用いられる原料粉および供給メーカーの一覧表を作成した。

表 3. 19. 4 に示す。

※元表を添付できないため、表 3. 19. 4 は表中の一部を示す。

表 3. 19. 4 主要原料メーカー一覧 (粉体と成型体) (一部の例)

原料粉体			原料					セラミックス成形品 (供給者)
			Al2O3	Al (OH)3	Y2O3	希土酸塩化合物	MgO	
各種透明セラミックス	酸化物	Alumina (Al2O3)	◎					京セラ 西村陶業 西村陶業
		Zirconia (ZrO2)						タデホ化学工業 クアーズテック 岩谷化学工業
		Magnesia (MgO)					◎	神島化学 JX金属 クアーズテック コヒレント (単結晶)
		Y2O3			◎			神島化学工業 クアーズテック
	トガ物複合材料 セラミックス 酸化物・窒化物	YAG	◎		◎	○		神島化学工業 クアーズテック
		TGG(Tb3Ga5O12)			◎	◎		神島化学工業 アストロン
		窒化アルミニウム(AlN)						京セラ 西村陶業 MARUWA
	その他	サファイア						京セラ クアーズテック
		ダイヤモンド						住友電工 横浜国大 長岡技術大
		窒化アルミニウム						
セラミックス原料 (供給者)			住友化学 大昭和化学 日本軽金属 SOS Bakowski	Alteo 住友化学 日本軽金属 Nabaltec Höganäs	信越化学工業 日本イットリウム ソルベイ bizmaterial Höganäs	信越化学工業 ソルベイ 日本イットリウム 昭和化学 宇部興産	タデホ化学 神島化学 宇部興産	

JFCA会員企業

JFCA会員企業

⑳ プロジェクトの総合的推進（担当：理化学研究所）

〔研究開始から終了までの全期間を通じた研究の方法及び成果〕

プロジェクト全体の連携を密としつつ円滑に運営していくため、プロジェクト全体の進捗状況を確認する6機関連絡会を年に4回、また外部有識者を招聘した推進委員会を年3回実施した。さらに、本委託業務の実施により得られた成果について、国内外の学会等において積極的に発表し、本研究の更なる進展に努めた。なお、研究成果の発表にあたっては、委託契約書の定めに従い事前に発表内容等を通知した。

＜令和3年度の実績＞

ハイブリッドまたはWebにて、令和3年度の4/23理研・播磨、9/9Web および2/8JFCA・東京に外部有識者の参加を得て推進委員会を、さらに5/27NIMS、7/2三菱電機、12/21神島化学にて5機関連絡会を開催し、進捗を確認した。また、11/16、2/4にはサイトビジットにて防衛装備庁との意見交換を行った。一方、8/1より理化学研究所が分子科学研究所から借用したスペース（理化学研究所分子研スペース）を使いプロジェクトの総合的推進を補完できる環境を整備した。また、10/28には日本光学会において本プロジェクトに関連したシンポジウム「オプトセラミックスの可能性」を開催し、これまでの成果を周知するとともに情報交換した。

＜令和4年度の実績＞

7/14より分子科学研究所が再委託契約を締結して6機関体制となり、プロジェクトの総合的推進を強力に進める環境が整った。今年度はCOVID-19も落ち着いたことでATLA関連の会合もWeb+現地のハイブリッド形式での開催が可能となった。外部有識者を招聘したR4年度の推進委員会は5/26の理研・東京と10/6の分子研の2回開催し、外部有識者への進捗報告と意見交換を行った。さらに理研と再委託先による6機関連絡会は、5/31に理研・東京、7/27NIMS、9/30理研・播磨、1/12-1/13三菱電機・鎌倉プリンスホテルで開催して各機関の進捗の確認を行なった。特に9/30の6機関連絡会は中間評価に合わせた臨時会議として開催、特に1/12-1/13の6機関連絡会では議論を深めるために泊まり込みの合宿形式で集中討論を行なった。また、1/27にはサイトビジットにて防衛装備庁との意見交換を行った。一方、4/20-22にパシフィコ横浜で開催された国際会議OPIC2022の専門会議であるTILA-LIC2022においてATLAプロジェクトの特別セッションを開催し、これまでの成果を広く周知するとともに有益な情報交換ができた。

ハイブリッドまたはWebにて、令和4年度の5/26、および10/6に外部有識者の参加を得て推進委員会を、さらに5/26に5機関連絡会、7月から分子科学研究所が加わり6機関連絡会として7/27、9/30、1/12-13に開催し、進捗を確認した。また、1/27にはサイトビジットにて防衛装備庁との意見交換を行った。4/20-22にパシフィコ横浜で開催された国際会議OPIC2022の専門会議であるTILA-LIC2022において防衛装備庁安全保障技術推進制度プロジェクト(ATLA project)「ジャイアント・マイクロフォトンクスによる高出力極限固体レーザー」の特設セッションを開催し、これまでの成果を広く周知するとともに有益な情報交換ができた。

＜令和5年度の実績＞

プロジェクト全体の進捗状況を確認する6機関連絡会を年に4回(5/26JFCA・東京、7/25分子研・岡崎市、10/19神島化学・丸亀市、2/19-20NIMS・つくば市)、また外部有識者を招聘した推進委員会を年3回(7/27理研・東京、11/24分子研・岡崎市、3/14理研・東京)実施した。

また、4/19-4/21にはOPIC2023 TILA-LIC2023(OPTICS & PHOTONICS International Congress 2023 The 9th Tiny Integrated Laser and Laser Ignition Conference 2023)において本プロジェクトに特化した3セッションを開催し、これまでの成果を周知するとともに情報交換した(表3.20.1)。

＜令和6年度の実績＞

プロジェクト全体の進捗状況を確認する6機関連絡会を年に4回(7/5理研・播磨、10/16分子研・岡崎市、12/2分子研・岡崎市、2/26分子研・岡崎市)、また外部有識者を招聘した推進委員会を

年3回（9/2理研・東京、12/17Web、3/27分子研・岡崎市）実施した。また、4/24-26にパシフィコ横浜で開催された国際会議OPIC2024の専門会議であるTILA-LIC2024において防衛装備庁安全保障技術推進制度プロジェクト(ATLA project)「ジャイアント・マイクロフォトニクスによる高出力極限固体レーザ」の特設セッションを開催し、これまでの成果を広く周知するとともに有益な情報交換ができた（表3.20.2）。さらにOPTICAがOptics Express にてTILA-LIC のFeature Issue (Tiny Integrated Lasers and Their Application to Industrial Laser Technologies (TILA-LIC2024)) にATLA関連19件を掲載した。

表 3. 20. 1 OPIC2023 9thTILA-LIC2023における本事業に係るセッション



The 9th Tiny Integrated Laser and Laser Ignition Conference 2023

Co-located with Optics & Photonics International Congress 2023

<https://opicon.jp/conferences/tila-lic/>

April 19 (Wed.) - 21 (Fri.) 2023, Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan

THURSDAY, 20 April 2023

9:00 - 10:30	Title:	LIC5 - Laser Materials & ATLA Project - 1	
	Chair:	Nicolaie Pavel, INFLPR, Magurele, Romania	
	9:00 - 9:30	Jan Hostaša (Invited), Guido Toci, Laura Esposito, Barbara Patrizi, Matteo Vannini, Angela Pirri, Francesco Picelli, Andreana Piancastelli, Valentina Biasini	I000039: 2D-structured ceramic laser gain media, laser waveguides
	9:30 - 9:45	Lihong Liu, Tohru S. Suzuki, Koji Morita	C000377: Fabrication of translucent YVO ₄ ceramic by spark-plasma-sintering (SPS) processing
	9:45 - 10:00	Kohei Aminaka, Junichi Tatami, Motoyuki Iijima, Takuma Takahashi, Masahiro Yokouchi, Tsukahara Yahagi	C000624: Development of transparent rare earth doped α-SiAlON ceramics
	10:00 - 10:30	Xavier Mateos (Invited), Pavel Loiko, Weidong Chen, Magdalena Aguiló, Uwe Griebner, Carolina Romero, Javier R. Vázquez de Aldana, Francesc Díaz, Valentin Petrov	I000041: Structured Materials for Micro Lasers at 2 microns
		Oana-Valeria Grigore, Alexandru Craciun, Nicolaie Pavel ¹⁾	C000603: Thermal Analysis of a Passively Q-switched Nd:YAG/Cr ⁴⁺ :YAG Laser with Multiple-Beam Output

FRIDAY, 21 April 2023

10:45 - 12:30	Title:	LIC9 - Laser Ceramics & ATLA Project - 2	
	Chair:	Yoichi Sato, Rikken, Hyogo, Japan	
	10:45 - 11:15	Takunori Taira (Invited)	I000182: Tiny Integrated Lasers towards Giant Micro-photonics
	11:15 - 11:30	Hwan Hong Lim, Takunori Taira	C000127: >80 MW peak power Nd:YAG microchip laser for ignition
	11:30 - 11:45	Vincent Yahia, Arvydas Kausas, Takunori Taira	C000086: Modular gain medium for mitigation of parasitic oscillations in high-energy solid-state laser amplifier
	11:45 - 12:00	Akihiro Tsuji, Arvydas Kausas, Vincent Yahia, Takunori Taira	C000281: Direct-Bonded Materials for High Beam Quality and Energy Gain-Aperture Amplifier System
	12:00 - 12:30	Hiroaki Furuse (Invited) Koji Morita, Byung-Nam Kim, Tohru S. Suzuki	I000197: Non-cubic fluorapatite laser ceramics by controlling crystal grains

14:00 - 15:45	Title:	LIC10 - ATLA Project - 3	
	Chair:	Rakesh Bhandari, OptoQuest Company, Japan	
	14:00 - 14:30	Toshiki Sugimoto (Invited)	I000186: Development of nonlinear optical spectroscopy to break through the detection limit of nanoscale interfaces
	14:30 - 14:45	Hideki Ishizuki, Takunori Taira	C000192: Study on crystal quartz for QPM device
	14:45 - 15:00	Yoichi Sato, Takunori Taira	C000027: Comprehensive evaluation of YAG thermal parameters in a wide temperature range from cryogenic to high
	15:00 - 15:15	Arvydas Kausas, Takunori Taira	C000461: Automated LIDT system development for composite-structure power-laser
	15:15 - 15:45	Koji Morita (invited), Lihong Liu, Tohru S. Suzuki, Byung-Nam Kim	I000196: Fabrication of Infrared transparent ceramics through spark-plasma-sintering (SPS) method

表 3.20.2 OPIC20243 10thTILA-LIC2024における本事業に係るセッション

The 10th Tiny Integrated Laser and Laser Ignition Conference 2024

Co-located with Optics & Photonics International Congress 2024

<https://tila-lic.opicon.jp/>

April 24 (Wed.) – 26 (Fri.), 2024, Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan
(In-person meeting only)

WEDNESDAY, 24 April 2024		
9:30 – 10:30	SESSION TILA-LIC-1	Opening & ATLA Project - 1
	Chair:	Takaoaki TAJIMA, RIKEN Spring-8 Center, Hyogo, Japan
	9:30 – 9:35	TILA-LIC-01: Keynote by President Takaoaki TAJIMA, Introduction of ATLA Project "DFC chip Tiny Integrated Laser"
	9:35 – 9:45	TILA-LIC-02: Mitsubishi TOSHIDA, Yb-disk and DFC laser for intense THz generation
	9:45 – 10:00	TILA-LIC-03: Kai Takayuki, Dual wavelength generation using degenerated optical parametric system with multiplexed reflective VBG
10:00 – 10:30		TILA-LIC-04: Hiroaki TAKAGAMI, Commercial products associated to Micro Solid State Photonics and Tiny Integrated Lasers
COFFEE BREAK		
11:00 – 12:00	SESSION TILA-LIC-2	TILA-LIC 2024 PLENARY SESSION
	Chair:	Takaoaki TAJIMA, RIKEN Spring-8 Center, Hyogo, Japan
11:00 – 11:55		TILA-LIC-05: Dieter HOFFMANN, TIB
LUNCH		
13:00 – 14:15	SESSION TILA-LIC-3	Laser Ignition
	Chair:	Jun HAYASHI, Kyoto University, Japan
	13:00 – 13:30	TILA-LIC-06 (invited): Gerhard KROPP, Recent Applications of the Miniatured HPM Laser Ignition System
	13:30 – 14:00	TILA-LIC-07 (invited): Laurent ZIMMER, Laser Induced Ignition and Plasma Spectroscopy using 10 kHz Nd:YAG Lasers on Spray Facilities
	14:00 – 14:15	TILA-LIC-08: Nicolas FAUDEL, Pulse-burst mode laser ignition of H ₂ /air mixtures by a single-beam passively Q-switched Nd:YAG/Co:YAG laser
COFFEE BREAK		
14:15 – 16:00	SESSION TILA-LIC-4	Laser Sources - 1
	Chair:	Nicolas FAUDEL, IMUPH, Magagnoli, Romania
	14:15 – 15:00	TILA-LIC-09 (invited): Qiang LI, Large core diameter crystal waveguide – a new device for high-brightness solid-state lasers
	15:00 – 15:15	TILA-LIC-10: Baptiste BRUNETEAU, High-brightness 480 nm laser for cold-atom-based quantum-computer
	15:15 – 15:30	TILA-LIC-09: Rakesh BHANDARI, Output pulse control of OR pumped Nd:YVO ₄ /Cr:YAG microchip laser
15:30 – 16:00		TILA-LIC-04 (invited): Fabian RÖTTERMUND, Ultrafast 3-micron waveguide laser and its noise and timing jitter characteristics
OPIC 2023 PLENARY SESSION		
END OF FIRST DAY		

FRIDAY, 26 April 2024		
9:30 – 10:30	SESSION TILA-LIC-5	Bonding Technology & ATLA Project - 2
	Chair:	Hirotaki ISHIZUKA, RIKEN Spring-8 Center, Hyogo, Japan
	9:30 – 9:35	TILA-LIC-08 (invited): Takahiro SUGA, Surface Activated Bonding for 3D and Heterogeneous Integration at Room Temperature
	9:35 – 9:45	TILA-LIC-02: Arvidas KAUSAS, DFC PowerChip optical properties for i-class amplifier systems
	9:45 – 10:00	TILA-LIC-09: Toshiaki SUGIMOTO, Fluorescence and electronic-resonance-free coherent Raman spectroscopy sensitive to ultra-thin interfacial layers
10:00 – 10:15		TILA-LIC-04: Naoki SATO, Effective thermal conductivity of DFC gain media
10:15 – 10:30		TILA-LIC-05: Florent CASSOUET, Temperature distribution simulations in Cr:LiSAF DFC chip for high-power broadband tiny integrated laser in 800-950 nm range
COFFEE BREAK		
11:00 – 12:00	SESSION TILA-LIC-6	Laser Systems & ATLA Project - 3
	Chair:	Rakesh BHANDARI, Optosystem Co. Ltd., Sakuma, Japan
	11:00 – 11:30	TILA-LIC-03 (invited): Mariela Stefanica DE VIDO, Demonstration of stable, long-term operation of a nanosecond diode-pumped solid-state laser at 18.1 LDB m
	11:30 – 11:45	TILA-LIC-02: Yip-Feng WU / Zhiqiang ZHANG, Coherent stacking 128 ultrashort pulses to femto of ns from fiber amplifiers
	11:45 – 12:00	TILA-LIC-09: Hsuan-Hong UH, 0.3 PW/(cm ²) brightness-unstable resonator microchip laser for multi-point ignition
LUNCH		
13:00 – 14:15	SESSION TILA-LIC-7	Laser Applications
	Chair:	Nicolas FAUDEL, IMUPH, Magagnoli, Romania
	13:00 – 14:00	TILA-LIC-21 (invited): Jian WANG, "TILA" application in severe environments as a powerful tool for in-situ remote analysis of fuel status in decommissioning of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station
	14:00 – 14:15	TILA-LIC-22: Tamihiro SAMO, Femtosecond Laser Shock Processing: Fundamentals and Applications
	14:15 – 14:30	TILA-LIC-23: Fujisaki SANDO, Laser peening application of TILA for service life extension of metallic components
14:30 – 14:45		TILA-LIC-24: Fumi YAMAYAMA, Gold nanoparticle synthesis using a microchip laser system through pulsed laser ablation in aqueous and organic solution
14:45 – 15:00		TILA-LIC-25: Kazuhiro NOMURA, Development of Dynamic Laser Ultrasonic System Mounted on Robot Arm Using Microchip Laser
COFFEE BREAK		
15:00 – 16:30	SESSION TILA-LIC-8	Laser Systems & ATLA Project - 4
	Chair:	Javier MATEOS, University Rovira i Virgili, Tarragona, Spain
	15:00 – 15:30	TILA-LIC-21 (invited): Jinwei ZHANG, High-power mode-locked th-disk laser oscillator
	15:30 – 15:45	TILA-LIC-27: Hirotaki ISHIZUKA, Two wavelength oscillation based on microchip laser architecture
	15:45 – 16:00	TILA-LIC-28: Kazuhiko HIROSAWA, 200 mJ Compact Deep-UV Laser System Using DFC-Power Chip and Microchip Laser
TILA-LIC-CL: CLOSING REMARKS & Award Ceremony by President, Takaoaki TAJIMA, RIKEN Spring-8 Center, Hyogo, Japan		
END OF THE CONFERENCE		

THURSDAY, 25 April 2024		
8:30 – 10:15	SESSION TILA-LIC-9	PLENARY SESSION & TUTORIAL
	Chair:	Takaoaki TAJIMA, RIKEN Spring-8 Center, Hyogo, Japan
	8:30 – 9:30	TILA-LIC-31: TILA-LIC 2024 PLENARY SESSION: Franz KÄRTNER, TIB
9:30 – 10:15		TILA-LIC-32: TILA-LIC 2024 TUTORIAL TALK: Thomas KANE, The Nonlinear Ring Oscillator at Forty
COFFEE BREAK		
10:15 – 12:00	SESSION TILA-LIC-10	Laser Materials & Systems
	Chair:	Mariela Stefanica DE VIDO, Science and Technology Facilities Council, Swindon, UK
	10:15 – 11:15	TILA-LIC-03 (invited): Javier MATEOS, Materials for waveguide lasers in the visible
	11:15 – 11:30	TILA-LIC-30: Xiaohong WU, Room-temperature direct bonding of Yb:Er:phosphate glass and Co-doped crystal
	11:30 – 12:00	TILA-LIC-03 (invited): Anna GMD-GUDZIK, Development of high-power ultrafast laser sources at 2.1 μm wavelength
LUNCH		
13:30 – 15:00	SESSION TILA-LIC-11	POSTER session & ATLA Project - 2
	Chair:	Hall A (Pacifico Yokohama Exhibition Hall)
	TILA-LIC-31: Vincent YAHARA, Multi-scale pulsed delivery by a gradually doped tiny integrated solid-state laser operated at room temperature	
	TILA-LIC-32: Hirotaki ISHIZUKA, Characterization of crystal quartz for QPM-MED device	
	TILA-LIC-33: Gabriela CRISTOFORI, Buried-depressed-cladding waveguides inscribed in Nd:YAG ceramics by picosecond laser beam writing	
15:00 – 15:30		TILA-LIC-34: Naoki SATO, Thermal expansion coefficient of YAG ceramics adapted with various kinds of dopant ions
15:30 – 15:45		TILA-LIC-35: Akito OZAKI, Study of laser induced damage evaluation for crystals
COFFEE BREAK		
15:45 – 17:00	SESSION TILA-LIC-12	Laser Sources - 2
	Chair:	Gerhard KROPP, Silicon Austria Labs (SAL), Vienna, Austria
	15:45 – 16:00	TILA-LIC-07 (invited): Young UK JEONG, Development and prospects of compact terahertz-free electron lasers
	16:00 – 16:15	TILA-LIC-40: Tibor BEREZNO, Fiber-coupled high-energy, low-cost Nd:YAG laser for ablation ignition applications
	16:15 – 16:30	TILA-LIC-07: Dmitry TABAKOV, Fiber-beam delivery system for ns-high-energy pulses
	16:30 – 17:00	TILA-LIC-04 (invited): Ju-Hyeon LEE, Modeling of an Er-doped ZBLAN fiber laser including ion clustering

4. 委託業務全体の成果

4. 1 計画時に想定していなかった成果（副次的成果）や、目標を超える成果

<理研、分子研>

DFC-PowerChipによる「パワースケラブル高出力密度レーザ」と欧州のプロジェクトELI-DiPOLEの比較を表4. 1. 1に示す。ELI-DiPOLEでは105Jが得られているがフルーエンスでは1.05J/cm²であり、パルス幅が10nsのためピーク光強度で0.105GW/cm²となる。これが、DFC-PowerChipでは、出力は1.8J、バースト100Hz、5.2J、5Hzと絶対値ではELI-DiPOLEより桁で低いが、5J、100Hzの目標を達成したことからフルーエンスでも2.31J/cm²と上回り、さらにパルスがサブナノ秒であるためピーク光強度は3.73GW/cm²と、室温動作ながら30倍以上高い値を得ることができた。世界最高強度のジュール級出力のレーザとなるもので、しかも室温動作が可能である。また、パワー密度も最大で0.81GW/cm³と目標であった0.25GW/cm³を上回り達成した。

ところで、固体レーザーに関する国際会議ASSL2024において、フランスで核融合関係の研究を推進しているCEA CESTAのDr. S. Montantの講演（AW5A.2）では、発表のイントロダクションでDFCチップの写真を引用し、今後は単に育成しただけのレーザ材料（結晶やガラスなど）をそのまま使うのではなく構造を作り込むことで本来の材料性能を超えたレーザを目指すべきであると説明した（図4.1.1）。1990年代に登場したセラミックレーザは、固体レーザの世界を変えた。そして、DFC-PowerChipはセラミックレーザの限界を超え、ジュール級ギガワットレーザに超小型化の可能性をもたらしパワーレーザーのパラダイムシフトを起こしつつある。

ところで、レーザ描画で進めてきた光源開発、ワンチップによるPowerChipレーザの出力向上が著しい。2005年に2MW程度が得られ、その後もセラミックレーザの進歩に合わせ尖頭出力が向上してきたもののビーム品質の劣化などでしばらく伸び悩んだ。それが不安定共振器の採用と常温接合の成功により再び出力が向上し、プロジェクト遂行中に80MWが、そして100MWを超えるまでになった（図 4.1.2）。光関連の重要な国際会議IC025では、大出力レーザのセッションでポストドライン論文として採択され、参加されていたProf. Gerard Mourou（2018年ノーベル物理学賞）にも驚いていただいた。当然ながら、チップ単体のレーザとしては世界最高出力である。実は2008年にチップ型レーザでも大気中でブレイクダウンを起こせ、エンジン点火に優位性を発揮するとして話題になった（Nature photonics, 2(9), 515）が、出力が低く、レンズからわずか数mmでのところでしか使えなかった。それが上記過程で出力が劇的に向上したことから、現在では10cm程度離しても安定にブレイクダウンが起こせるにまでなった（図 4.1.3）。一方、2年ほど前にJAXAの研究員が研究室を訪問し、このレーザを宇宙に持って行きたいとの話をいただいた。ただ、研究所での販売はできないことから、2023年11月にハイティラ（HyTILA）を起業した。DFC PowerChipによるスタートアップであり、2024年2月8日には自然科学研究機構認定を受けた（図 4.1.4）。

それとは変わるが、本プロジェクトでも重要なQPM研究に関連し（QPM PowerChip）、共同研究を行ってきた独マックスプランク研究所所長のProf. Ferenc Krauszが2023年のノーベル物理学賞を受賞された。直接の成果ではないが、本プロジェクトで目指すPowerChipの可能性を示すものである。

表 4. 1. 1 ELI-DiPOLEと比較したDFC PowerChipレーザの特性（フルーエンスに着目）

	Energy	Rep. f _{rep} (Hz)	Aperture (cm ²)	Fluence			Density D _p (GW/cm ³)	Temp (K)
				E (J/cm ²)	I _A (W/cm ²)	I _p (GW/cm ²)		
ELI-DiPOLE	105	10	10 x 10	1.05	10.5	0.105	0.026	150K
This work	1.8	100 (burst)	1.5 x 1.5	0.8	80	1.29	0.47	RT
	5.2	5		2.31	11.6	3.73	0.81	

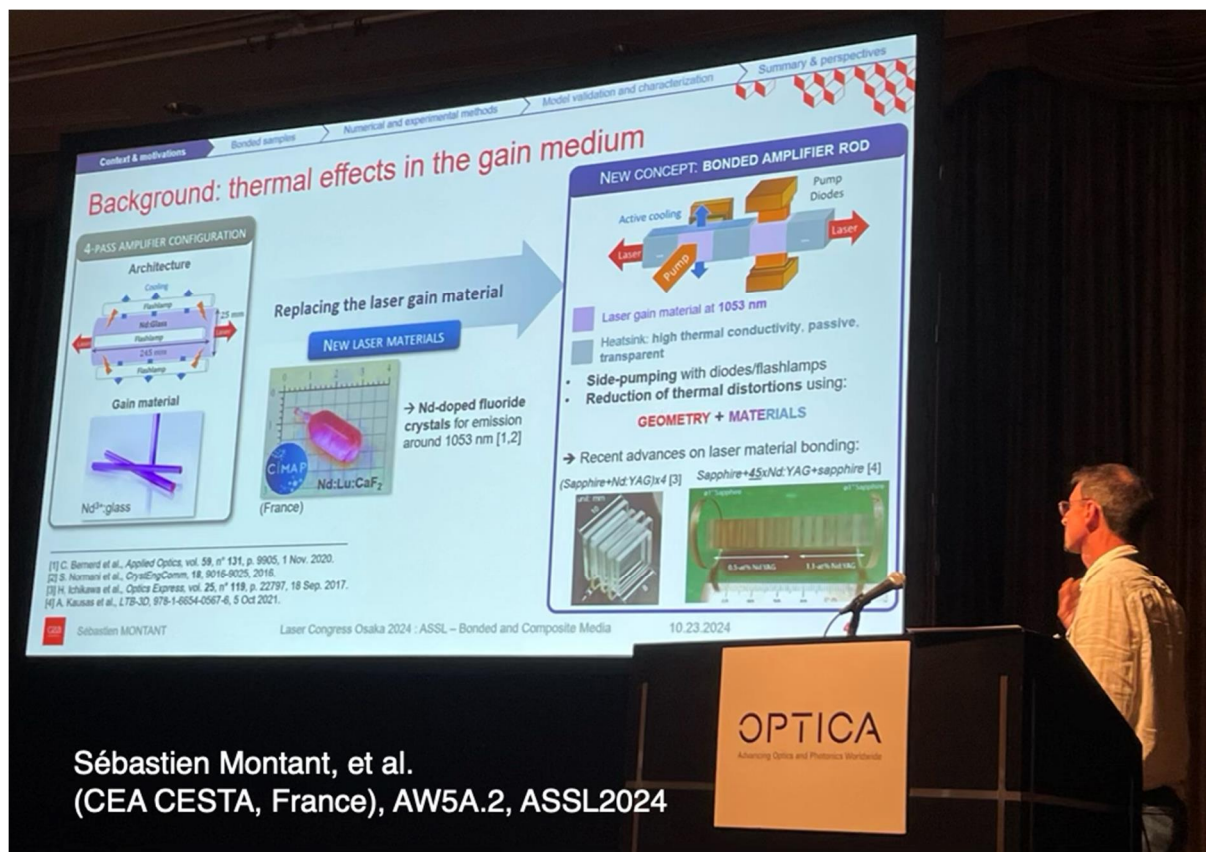


図 4.1.1 海外でのレーザ核融合研究者の国際会議ASSL2024におけるシーン
(イントロダクションにおいてDFC-PowerChipのような構造が今後の方向性として説明された)

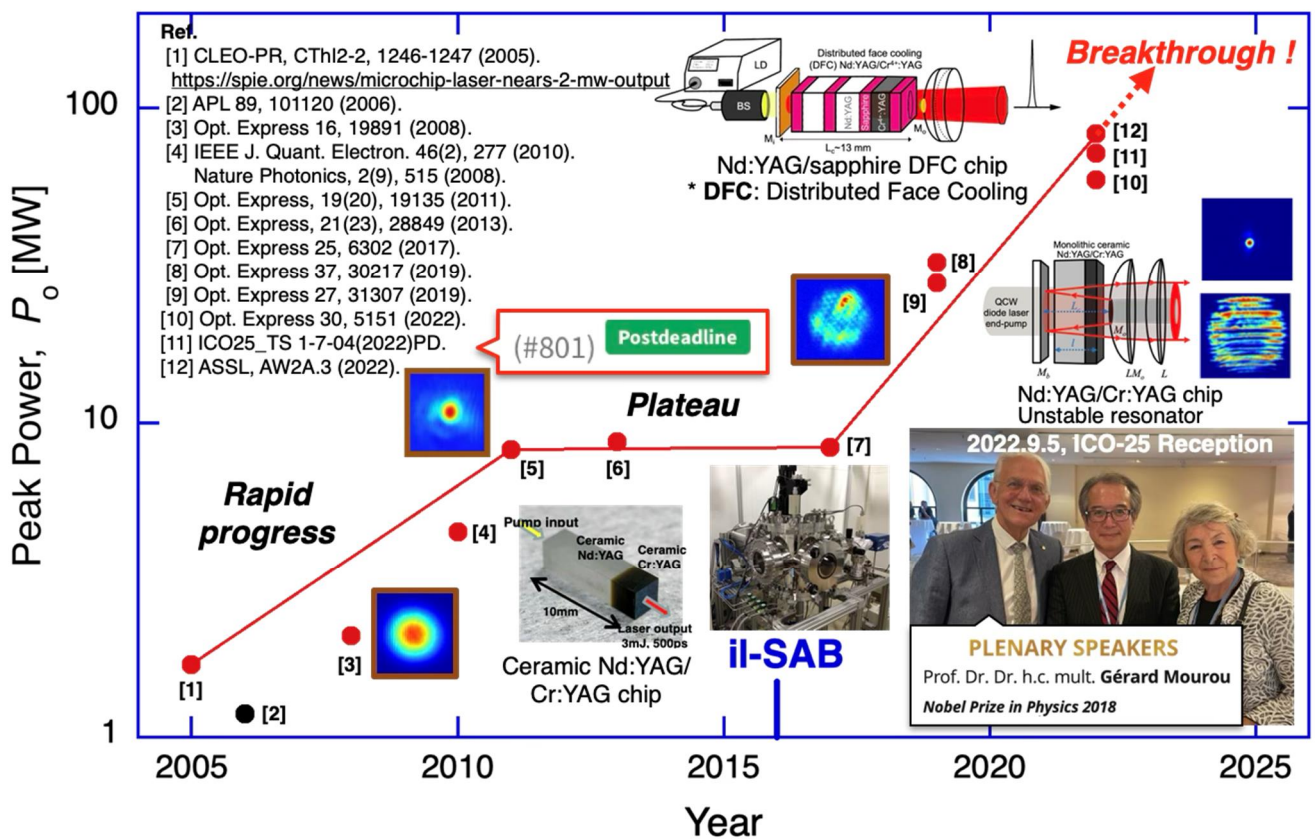
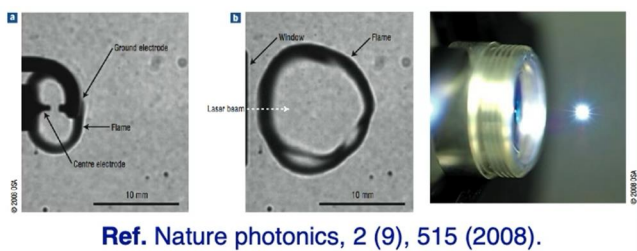


図 4.1.2 メガワットを超えるチップレーザからの尖頭出力の推移
(DFC PowerChipによるブレークスルーが予感される．写真はProf. G. Mourou)



Ref. Nature photonics, 2 (9), 515 (2008).



TILA : > 40MW (E=22 mJ, $\tau < 500$ ps), 100 Hz

図 4.1.3 PowerChipによるブレイクダウンの外観
(2008年のNature Photonicsに掲載当時と比べ10倍以上長い距離でも安定なブレイクダウン)



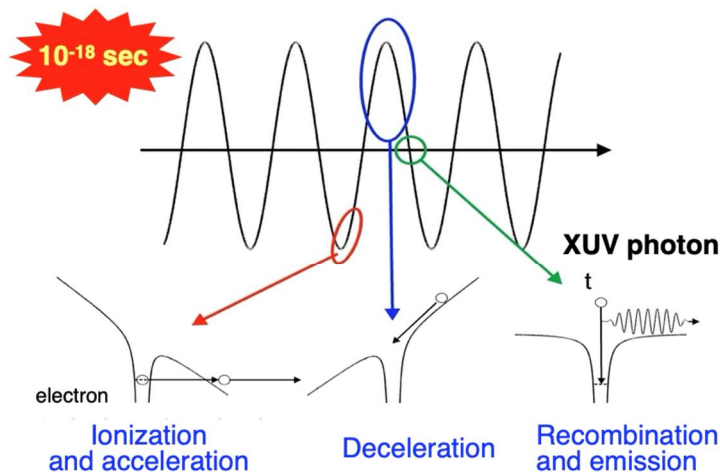
図 4.1.4 DFC PowerChipによるスタートアップHyTILAがNINS認定された



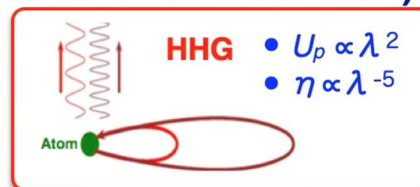
<https://www.nobelprize.org/prizes/physics/2023/krausz/facts/>

The Nobel Prize in Physics 2023: “for experimental methods that generate attosecond pulses of light for the study of electron dynamics in matter”

● **keV HHG in isotropic media (High Optical Harmonic Generation)**



Ref. P.B. Corkum PRL 71, 1994 (1993).



Ref. F. Krausz, T. Taira et al., Opt. Express, 17(1), 62 (2009).

Ref. F. Krausz, T. Taira et al., Opt. Lett., 37(23), 4973 (2012).

図 4.1.5 THz波発生用LA-PPMgLNをアト秒発生に展開したProf. F. Krauszがノーベル物理学賞 (QPM PowerChipに関する共著論文 2 件)

<MELCO 報告>

計画時には分子研における技術開発の後に技術移管を行い、それを装置化する予定であったが、コロナウイルス感染拡大によるサプライチェーンの混乱により工程が遅れることとなった。この工程の遅れを取り戻すべく、早期の技術移管のため分子研における実証に参加した。これにより、予定通り令和5年度にレーザ装置の分子研移設を達成することができた。

また、266nmへの波長変換については二光子吸収により高繰り返し化が難しくなるということが分かった。二光子吸収による温度分布の不均一化が高繰り返し化の妨げとなっていることから、将来的にはDFCのようにサファイアを非線形結晶に接合することで改善する可能性があることも判明し、今後実証していく予定である。

<神島化学 報告>

接合プロセスにおいて、材料ごとに適切な表面処理条件や熱処理温度が存在することは経験的に把握していたが、今回あらためて種々の材料で表面構造や熱特性を測定したことにより、それらの差異を可視化することができた点が、副次的成果として挙げられる。

<JFCA 報告>

①透光性セラミックスの研究進展

透光性セラミックスのレーザ耐性評価サンプル入手に向け、論文や市場動向調査資料を整理した。国内の研究機関の研究情報を確認し、各機関との交流が進展した。今後、レーザ耐性などの測定で相互協力が期待される。

②耐レーザ損傷閾値 (LIDT) 測定法の国際標準化

LIDT測定方法について、既存の標準 (ISO-21254) では、透明セラミックスの表面と内部からあの情報が混在して測定されているため、本来の素材 (主に内部の結晶性など) の実力を評価できていないと考えられた。今回開発したLIDT測定法は表面と名愛撫の情報を分離できるため、この

LIDT測定法を国際標準とすることで、透明セラミックスの開発へ寄与できる。
今後、LIDT測定法に関する国際標準（ISO）の規格開発を進める。

4. 2 研究課題の発展性（間接的成果を含む）

<理研・分子研 報告>

プロセス創製、デバイス創製、量子ビーム創成、を通じDFC-PowerChipによる「パワースケラブル高出力密度レーザ」の検証を行った。室温動作のジュール級レーザにおいて、繰り返し100Hz（バースト）を実現したのだが、サブナノ秒パルス幅ということもありピーク出力は8.4GWとなる。従来のジュール級レーザは、パルス幅が10ns程度なので換算するなら80J級レーザを室温で、レーザ媒質パワー密度0.81GW/cm³と超小型に構成できることが証明された。これは、レーザ媒質を含めた実績ある優れた各種材料の長所を集める形でアーティフィシアルなレーザ素子を形成できるからである（図4.2.1）。現在でもレーザ加速、レーザ核融合、アト秒発生、重力波検出などで先端科学を牽引するとともにレーザ加工、レーザ計測、レーザ医療など我々の生活、産業でも重要な固体レーザであるが、1970年頃にはその発展が伸び悩んだ。それを「固体レーザのルネッサンス」としたのが「半導体レーザ（LD）励起」との提案であり、特に重力波検出を可能とするとともに、ファイバレーザなどレーザ加工との大きな産業を生み出した。ただ、LD励起において、端面励起は小型化、高効率化、高ビーム品質化に優れるもののパワースケーリングが困難とされ、高出力化には側面励起が良いとされ、ロッド型のレーザ構成に落ち着いた。ただ、ロッド型レーザは、固体レーザの基本構成であるものの量子欠損に基づく発熱問題のため、ファイバー型、ディスク型と展開された（図 4.2.2）。しかし、ファイバーであれば端面破壊、ディスクであれば低い利得、のため限界があった。そして、レーザセラミックスの登場に合わせマルチディスク型が提案され、高出力レーザに革新が起きた。しかし、マルチディスクレーザは互いのディスクを離間させ、ディスク表面をHeガス冷却する構造が求められ、非常に大型で取り扱いが不便な装置になってしまう。そのためマルチディスクレーザを建設できるのは高度な研究施設に限定される。DFC-PowerChipは、複雑な構成であるマルチディスクを簡単なワンチップ構成とできる。ただこのためにはレーザセラミックスの課題である低温での接合、すなわち常温接合（セラミックスにおける接合には高温処理が求められる）が求められる。本研究課題を遂行により、成功したばかり

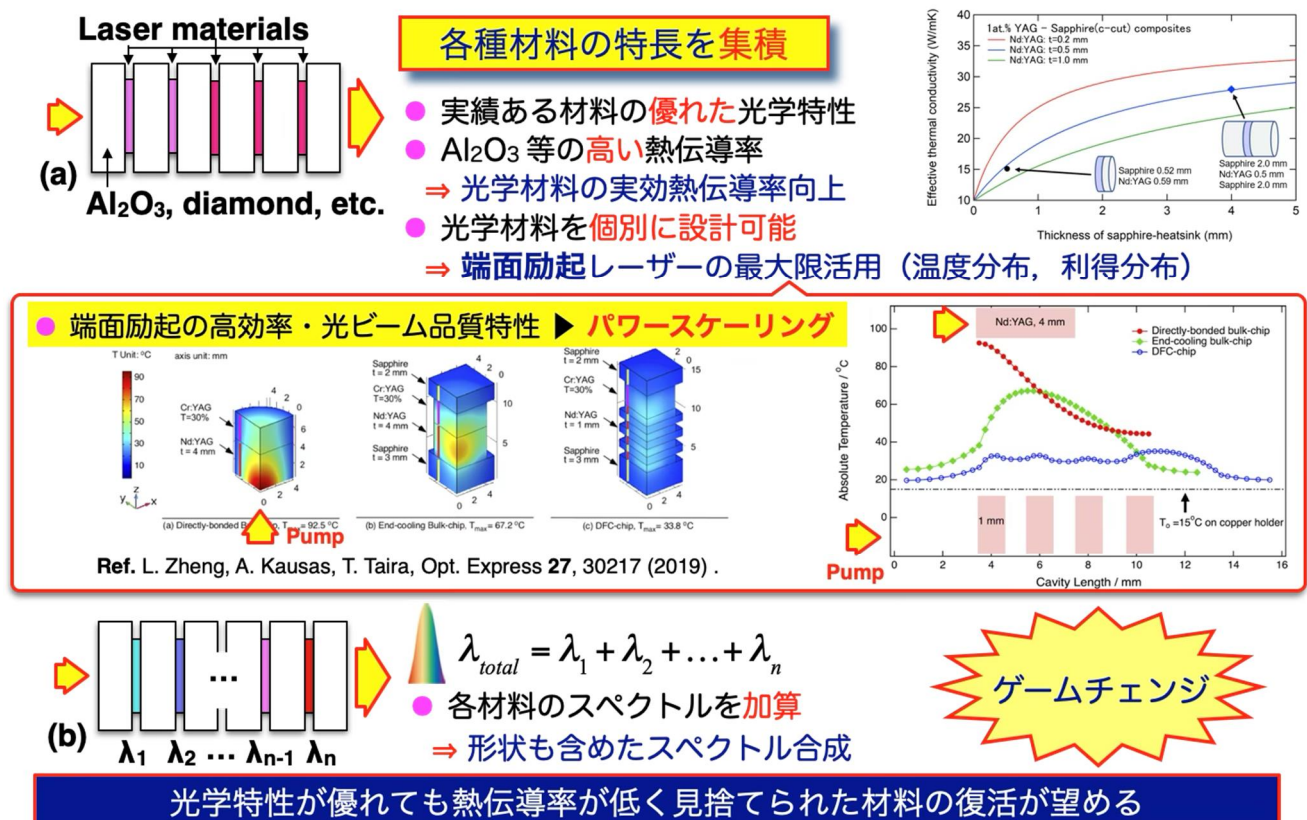
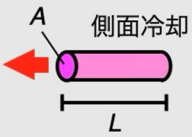
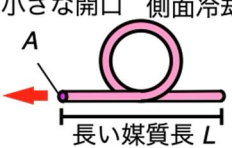
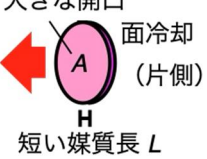
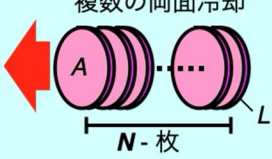


図 4.2.1 DFC-PowerChipによるアーティフィシアルなレーザ素子

形状 パラメータ	ロッド	ファイバー	ディスク	マルチディスク ▶ DFC
				
最大抽出パワー	$P_{ex} = \frac{8\pi R_T L}{\chi}$	$P_{ex} = \frac{8\pi R_T L}{\chi}$	$P_{ex} = \frac{12R_T}{\chi} \left(\frac{A}{L} \right)$	$P_{ex} = 2N \cdot \frac{12R_T}{\chi} \left(\frac{A}{L} \right)$
スケーリング	×	○	○	◎
利得 $g = \Delta n \sigma L$	○	○ 長い L	×	◎ N 倍の L, 高い Δn
最大エネルギー $E_{max} = A \times LIDT$	○	×	○	◎ 寄生発振からの開放

熱衝撃パラメーター

$$R_T = \frac{\kappa(1-\nu)\sigma_{max}}{\alpha E} \propto \frac{\kappa \sigma_{max}}{\alpha}$$

A: area of gain medium, L: gain medium length, χ : heating parameter, N: number of chips or disks, Δn : population inversion density, σ : emission cross-section, ν : Poisson ratio, E: Young's modules, α : expansion ratio, σ_{max} : maximum tensile strength, κ : Thermal conductivity,

図 4.2.2 高出力レーザ構成の比較

の常温接合を極めることを目指し、ある程度の目処を得ることに成功した。この意義として、実は端面励起のパワースケーリングを阻んでいた熱問題、これは励起端面で強い吸収が起きるために生ずる発熱と利得の端面集中、局在化が、熱問題、寄生発振を深刻化したためである。DFC-PowerChipでは、接合するレーザ媒質チップ濃度および厚みを自由に設計できることから、熱分布、利得分布そのものを設計できる。これにより、高効率化、光ビーム品質化と合わせパワースケーリングが単純なチップ構成で可能となる。ただ、サファイアはYAGに比べ熱伝導率が高いとはいえ高々3倍程度である。一方、ダイヤモンドなど2桁程度高い材料もあるが、強いレーザを照射するなら直ちに燃えてしまう。高いレーザ耐性と熱伝導率の両方を兼ね備える、新たな媒質の探索は不可欠であるが、サファイアを接合するだけでも固体レーザ性能は大きく改善される。

これまで、使える対象が限ら、不便で集中的な場所でしか利用できなかったモノが、いつでも、だれでも、どこでも使えるようになれば、想像もしなかった利用法が出てきて世界が変わる、とクリステンセンは唱えており、これを破壊的イノベーションと定義した（図 4.2.4）。本研究課題で開発のDFC-PowerChipは、レーザの基本となる特性を高め複雑に並ぶ各種素子を一体化するものであり、理化学研究所では、kmサイズのX線自由電子レーザSACLAをトレーラサイズにまで小型化できる、または、kmサイズであればその性能を飛躍的に向上できるレーザ駆動電子加速に向けたプロジェクトを推進している（JST未来社会創造研究など）。一方、分子研では、レーザ衝撃波を用いた高度加工（レーザピーニング）（経産省）、セキリュティに重要な超小型テラヘルツ波光源開発（防衛装備庁）、冷却原子による量子コンピュータの制御レーザ（ムーンショット）、地球規模の社会問題解決のための衛星ライダー（JAXA）、レーザ誘起ブレイクダウン分光（LIBS）による燃料デブリ、福島廃炉加速事業（エネ庁）、さらに核融合プラズマ温度の解析（核融合科学研究所）、そしてTILAコンソーシアム会員との産学協同研究など、パワーレーザの小型集積化により様々な展開が始まっている。さらに、TILAを主題としたハイティラ（HyTILA）、レーザピーニングに展開するLACubedなどのスタートアップもできてきた。パワーレーザの小型集積化は、基礎研究から社会実装、そして新産業創出にまで展開が進みつつある。

小型集積化による社会変革は、エレクトロニクス分野で見られた（図 4.2.5）。真空管からトランジスタ、集積回路とその素子が進化する中で装置がワンチップ化され世の中が大きく変わっ

た（挿入図のCPU，TRONチップ開発に平等は1980年代関わった）。それより遅れて光エレクトロニクス分野の発展が始まり、最初のレーザである放電管励起が真空管に、LD励起がトランジスタに対比される。LD励起固体レーザ（DPSSL）により、レーザ性能は飛躍的に向上し、アインシュタインからの宿題であった重力波の存在を実証した。そして、小型集積化の流れが始まった。光子は質量を持たない素粒子であり、情報の担い手でもある。また、ボーズ粒子であることから集めることができ核融合も引き起こす強力なエネルギーでもある。

「ジャイアント・マイクロフォトンによる高出力極限固体レーザ」を目指した本研究課題は、本質的に解決しないといけない新たな課題を明らかにするとともに、現在得られつつある成果、DFC-PowerChipレーザだけでも図4.2.4に示す展開がすでに始まっている。そして、残された課題解決を進める中、さらなる学理の深化と社会実装が進むものと期待される（図 4.2.5）。



図 4.2.3 小型集積レーザ（Tiny Integrated Laser, TILA）コンソーシアムの概念と会員

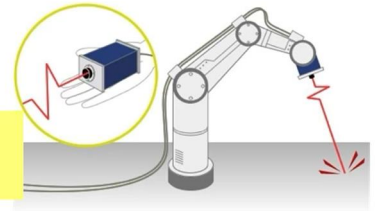
破壊的イノベーション

- ▶ 特性のせいで潜在的顧客数が制限されているとき
- ▶ 不便で集中的な場所で消費を行わざる得ないとき

- モジュール化
- バリューチェーン進化

Power Laser: Downsize by Micro Solid-State Photonics

Ref. C. クリステンセン (翔泳社, 2001, 2004).



Shock wave
Peening

Security

防衛装備庁
Acquisition Technology & Logistics Agency

Quantum computer

ここから、新・未来へ
MOONSHOT

Space/satellite
Space LiDAR

Decommissioning
LIBS probe

Fusion science

Artificial Laser Element ⇒ Social Contribution

Tiny Integrated Laser **New Horizon**

Laser Accelerator ⇒ Advanced Science

RIKEN

SACLA (XFEL)
~700m (8GeV)

SPring-8 Synchrotron

防衛装備庁
Acquisition Technology & Logistics Agency

JST MIRAI 未来社会創造事業

Trailer size XFEL
Next G. of SACLA, SPring-8

Tiny Integrated Laser (TILA) Consortium

Potential of Chip

Energy Quality Converter
GW, TW ▶ PW

~kW → } 1cm³ → 0.1J, 1J, 10J, ..

Limit 100at.% Yb:YAG ▶
Stored Energy = 2.68kJ/cm³

Intelligence (Quantum)

図 4.2.4 TILAで展開中の関連プロジェクトと基本概念

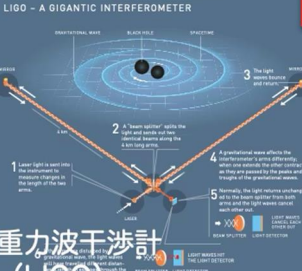
	ガス素子	固体素子	集積素子	変革
エレクトロニクス	真空管	トランジスタ	集積回路, 大規模集積回路 (IC, LSI)	情報革命
			1985年頃 TRON system Architecture The Realtime Operating system Nucleus  特許第2618723号採用	知の集約 ▼ 電子回路
光エレクトロニクス	放電管励起固体レーザー	LD励起固体レーザー (DPSSL)	小型集積レーザー (TILA) ジャイアント・マイクロフォトニクス	光革命
	最初のレーザー (メイマン) 	 重力波干渉計 (LIGO)	パワーレーザーの 小型・集積化 ⇒ インテリジェント化 物質の極限操作	知の集約 ▼ パワーレーザー

図 4.2.5 小型集積レーザーの目指す領域

＜MELCO 報告＞

今回の開発では極限固体レーザーの開発により、高出力・高輝度のテラヘルツ波を発生させ、最終的にはレーザー加速による加速器の小型化を目指している。加速器は現状理化学用途と粒子線によるがん治療に応用が限られているが、将来的には自由電子レーザー技術による露光装置用光源としての可能性や核融合炉の中性粒子ビーム入射装置など、用途が拡大する可能性を秘めている。

また要素技術であるマイクロチップレーザー技術やDFC技術はレーザー装置の小型化に寄与し、将来のレーザー加工装置の小型化や高度化に資する技術と考えられる。

＜神島化学 報告＞

今回、材料ごとに表面の熱耐性に差があることが判明し、材料の表面特性を把握することで、適切な表面処理条件やFAB照射条件に差異があるかどうか事前に予測することができる可能性があるといえる成果が得られた。これまで試行錯誤や経験に頼っていた、材料ごとに最適化すべき表面処理やFAB照射条件について、事前にある程度予測できるめどがついたことは、今後の技術発展につながる成果であるものと考えている。

＜JFCA 報告＞

● 透明セラミックスに関する研究推進

JFCAオプトセラミックス研究会との連携で、透明セラミックスに関する関心を高め、国内のアカデミアや企業の研究機関の状況を把握した。データベースの共有化により現在研究が進められている課題の取り組みに寄与する。

4. 3 研究成果の発表・発信に関する活動

＜JFCA 報告＞

セラミックスジャパン展（JFCA 共催、2023. 10. 4-6、来場者数 43,663 人）展示 JFCA ブース内へ本研究の概要ポスターと DFC チップを展示。来場者は DFC の排熱構造と多結晶 YAG/サファイアの接合に関心を示した。

5. プロジェクトの総合的推進

5. 1 研究実施体制とマネジメント

研究期間中の実施体制とマネジメントの取り組みについては図5.2.1に示す。

5. 2 経費の効率的執行

研究期間中の経費の執行状況については図5.2.1に示す。

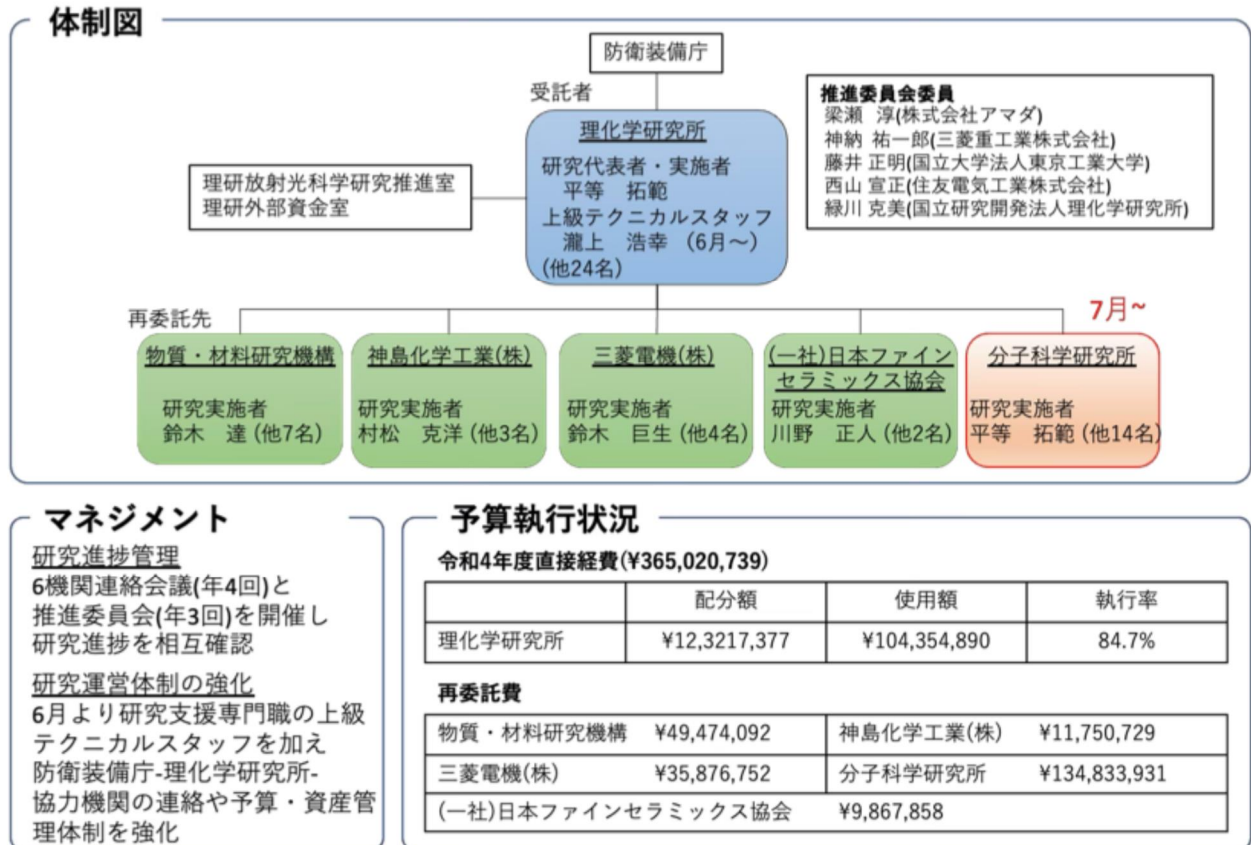


図5.2.1 研究期間中の実施体制とマネジメントの取り組み、及び予算実行状況について

6. まとめ、今後の予定

4.1項および4.2項参照

7. 研究発表、知的財産権等の状況

(1) 研究発表等の状況

種別	件数
雑誌論文	13件
学会発表	113件
展示	2件
図書	0件
プレス	2件
その他	1件

(2) 知的財産権等の状況

発 明 の 名 称	発明者	出 願 登 録 区 分	出 願 番 号 (出 願 日)	出 願 区 分	出 願 国	登 録 番 号 (登 録 日)
レーザ部品、レーザ装置およびレーザシステム	平等 拓範（自然科学研究機構分子科学研究所） 林 桓弘（自然科学研究機構分子科学研究所）	出 願	特願2024-199207	国内	日本	-
レーザー素子および装置	平等 拓範（理化学研究所） 長内 昭宏（理化学研究所） 尾高 英穂（理化学研究所）	出 願 準 備 中	-	国内	日本	-

（３）その他特記事項

年 月 日	開催名称	実施場所	備考
令和3年4月23日	2021年度第1回推進委員会	理研放射光科学研究センター（兵庫県佐用町）	
令和3年5月27日	2021年度第1回5機関連絡会	物質・材料研究開発機構（茨城県つくば市）	
令和3年7月2日	2021年度第2回5機関連絡会	三菱電機（神奈川県鎌倉市）	
令和3年9月9日	2021年度第2回推進委員会	Web会議	
令和3年10月28日	日本光学会	国立オリンピック記念青少年総合センター（東京都渋谷区）	ATLA関連シンポジウム「オプトセラミックスの可能性」
令和3年12月21日	2021年度第2回5機関連絡会	神島化学（香川県丸亀市）	
令和4年2月8日	2021年度第3回5機関連絡会	JFCA（東京都港区）	
令和4年4月20日-22日	TILA-LIC2022	パシフィコ横浜	
令和4年5月26日	2022年度第1回推進委員会	理研東京連絡事務所（東京都中央区）	
令和4年5月31日	2022年度第1回5機関連絡会	理研東京連絡事務所（東京都中央区）	
令和4年7月27日	2022年度第2回6機関連絡会	物質・材料研究開発機構（茨城県つくば市）	
令和4年9月30日	2022年度第3回6機関連絡会	理研放射光科学研究センター（兵庫県佐用町）	
令和4年10月6日	2022年度第2回推進委員会	分子科学研究所（愛知県岡崎市）	
令和5年1月12日-13日	2022年度第4回6機関連絡会	三菱電機（鎌倉プリンスホテル：神奈川県鎌倉市）	ポスターセッション併設
令和5年4月19日-21日	TILA-LIC2023	パシフィコ横浜	ATLAセッション開催
令和5年5月26日	2023年度第1回6機関連絡会	JFCA（東京都港区）	

令和5年5月25日	2023年度第2回6機関連絡会	分子科学研究所（愛知県岡崎市）	
令和5年7月27日	2023年度第1回推進委員会	理研東京連絡事務所（東京都中央区）	
令和5年10月19日	2023年度第3回6機関連絡会	神島化学（香川県丸亀市）	
令和5年11月24日	2023年度第2回推進委員会	分子科学研究所（愛知県岡崎市）	
令和6年2月19日-20日	2023年度第4回6機関連絡会	物質・材料研究開発機構（茨城県つくば市）	ポスターセッション併設
令和6年3月14日	2023年度第3回推進委員会	理研東京連絡事務所（東京都中央区）	
令和6年4月24日-26日	TIILA-LIC2024	パシフィコ横浜	ATLAセッション開催
令和6年7月5日	2024年度第1回6機関連絡会	理研放射光科学研究センター（兵庫県佐用町）	
令和6年9月2日	2024年度第1回推進委員会	理研東京連絡事務所（東京都中央区）	
令和6年10月16日	2024年度第2回6機関連絡会	分子科学研究所（愛知県岡崎市）	
令和6年12月2日	2024年度第3回6機関連絡会	分子科学研究所（愛知県岡崎市）	
令和6年12月17日	2024年度第2回推進委員会	Web会議	
令和7年2月26日	2024年度第4回6機関連絡会	分子科学研究所（愛知県岡崎市）	
令和7年3月27日	2024年度第2回推進委員会	分子科学研究所（愛知県岡崎市）	