

大出力レーザーガラス

High Power Laser Glass

泉谷 徹郎*

Teturo Izumitani

1. まえがき

石油に変わる次のエネルギー源として、太陽熱、地熱、原子力エネルギー等が挙げられているが、人類最終のエネルギー源は核融合によるエネルギーであると考えられる。核融合には“磁気閉じ込め”によるトカマク方式と、“慣性閉じ込め”によるレーザー方式がある。大出力用レーザーガラスは、レーザー核融合の研究開発に伴い、1970年頃から大出力レーザー材料として研究されるようになった。

現在レーザーガラスを用いた核融合用大出力レーザー装置としては、アメリカではLawrence Livermore研究所のNOVA装置(100 KJ, 1 ns)、Rochester大学のOmega-10 (4 KJ, 1 ns)、大阪大学の激光12号(30 KJ, 1 ns)、フランスのLimeil研究所のPhebus (50 KJ, 2.5 ns)イギリスのRutherford研究所の(1.2 KJ, 1 ns)、ソ連のLevedev研究所のオーロラ(50 KJ, 1 ns)がある。

レーザーガラスは1970年頃、 $\text{Li}_2\text{O}-\text{Ba}_2\text{O}-\text{SiO}_2$ 等のケイ酸塩レーザーガラスED-2がOwens-Illinoisによって開発されたが、1977年HOYAは誘導放出断面積が大きく、屈折率の非線形係数の小さい、リン酸塩レーザーガラスLHG-8を開発した。LHG-8は、また光路差の温度係数が0であるという特性を有している。このガラスは核融合大出力レーザー装置にロード或はディスクとして、リバモア研、阪大、リメール研、ロチェスター大、ラザフォード研究所等で使われている。

ガラスは均質で大型のガラスが容易に得られ、濃度消光も起こしにくいという特徴を有する。従って蓄積エネルギーの大きい、大出力レーザーとして最も適している。

2. 核融合用レーザーガラス

大出力用レーザーガラスとしては Nd^{3+} を含むガラスが用いられる。 Nd^{3+} は4準位レーザーでポンピングにより基底状態のイオンが励起されて ${}^4\text{F}_{3/2}$ と ${}^4\text{I}_{11/2}$ の間に反転分布が形成され、レーザー光が誘導放出される。

レーザーの発振開始条件は次式により与えられる。

$R_1 R_2 \exp[(g - \alpha) \cdot 2l] \geq 1$, $g = \sigma \Delta N$. ここで g は利得係数, α は損失係数, R_1, R_2 はミラーの反射率である。ここで重要なのは利得係数 g で, g は反転分布密度 ΔN と誘導放出断面積 σ の積として与えられる。反転分布密度分布 (蓄積エネルギー) ΔN は蛍光寿命 τ とポンピング効率に比例し, 濃度 N_0 に比例する。

$$\Delta N \propto N_0 p \tau$$

従ってレーザー材料としては誘導放出断面積が大きく、活性イオン濃度が高く、蛍光寿命が長く、ポンピング光の吸収効率が大きく、かつ発振光の吸収、散乱損失の少ないものが望ましい。

2.1 大出力レーザーガラスの重要特性

大出力レーザーガラスの組成を決定するに当たって重要な性質は、誘導放出断面積 σ 、蛍光寿命 τ 、蛍光スペクトルに半値幅 $\Delta \lambda$ 、屈折率の非線形係数 N_2 、光路差の温度係数 ds/dT 、耐熱衝撃性 $R = K(1 - \nu)S_T / \alpha E$ 等である。

(1) 量子効率 η

励起状態にあるイオンが、高エネルギー準位 ${}^4\text{F}_{3/2}$ から低エネルギー準位 ${}^4\text{I}_{11/2}$ に移る場合、輻射遷移と非輻射遷移によってなされる。

$$W = \tau^{-1} = A_R + W_{NR}$$

A_R は輻射遷移速度, W_{NR} は非輻射遷移速度で、量子効率 η は, $\eta = A_R / (A_R + W_{NR})$ で与えられる。

非輻射遷移は主として、多フォノン緩和によって起こるが、よいレーザー媒質では、非輻射遷移が0で、100%輻射遷移でエネルギー遷移が起こることが望ま

* HOYA(株) R&Dセンター(研究担当) 常務取締役

〒196 東京都昭島市武蔵野3-3-1

しい。即ち量子効率が1であることが望ましい。リン酸塩ガラスでは量子効率は略1に等しい。

(2) σ

輻射遷移効率 A_R は誘導放出係数 σ により決定される。

$$\sigma = \frac{\lambda^4}{8\pi ch^3} \frac{A_R}{\Delta\lambda}$$

σ は吸収スペクトルの測定から Judd-Ofert モデルを用いて計算される¹⁾。

$S_{JJ'} = \sum 2.4.6 \Omega_t I S' L' J' \Pi U^{(t)} \Pi SLJ > I^2$
 $S_{JJ'}$ は線強度、 $\langle \Pi U^{(t)} \Pi \rangle$ は単位テンソル演算子である。

$$\sigma = \frac{8\pi^3 \ell^2}{3 ch(2Jt)} \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \frac{(n^2+2)}{9n} S_{JJ'}$$

吸収スペクトルから Ω_t 強度パラメーターを求めると σ が計算される。

この場合強度パラメーターが何によって決定されるかが問題であるが、Reisfeld²⁾ によると、 Nd^{3+} イオンの周りの配位子場の非対称性 A_{tp} と Nd^{3+} イオンと配位子の共有結合 Σ によって決定される。

$$\Omega_t \propto IA_{tp} \Sigma^2$$

泉谷等³⁾ はリン酸塩ガラスの場合、配位子場の非対称性が Ω_t 、従って σ を決定することを明かにした。

(3) $\Delta\lambda$

半値幅は Nd^{3+} の周りの配位子場の均質度を表すが、リン酸塩レーザーガラスの半値幅はケイ酸塩レーザーガラスよりも狭く、より均質であることを示す。また、より高い σ を与える。

(4) τ

蛍光寿命は本質的には輻射遷移確率（の逆数）によって決まるが、その他に濃度消光或は OH^- イオンの存在によって短くされる。

2.2 大出力レーザーガラスの開発

(1) 利得係数の高いレーザーガラスの組成開発に当たって、次の関係式を見いだしたことは有効であった。

$$g = \sigma \Delta N \propto \frac{A}{\Delta\lambda} \cdot \Delta N = \frac{1(\lambda)d\lambda}{\Delta\lambda_{eff}} = 1_P$$

即ち利得係数は蛍光強度のピーク値に比例することが分かったのである。レーザーガラスの組成を細かく検討するに当たって蛍光強度のピーク値を測ることによって、利得係数の高いガラス組成を決定することができたのである。このようにして網目形成酸化物としてはリン酸塩ガラスが最も高いゲイン係数を与えること、修飾酸化物としては、リン酸塩ガラスにおいてはケイ酸塩ガラスと異なり、イオン半径

の大きいガラスが高い σ を与えることを見いだすことができた³⁾。

(2) レーザーガラスの組成開発に当たって、もう一つの重要な要素は屈折率の非線形数の小さいことである。レーザービームの自己収束を避けるためには、屈折率の非線形係数が小さいことが重要であることが、1975年の日米セミナーで Rochester 大学の Lubin 教授から提案された。

$$n_2 = \frac{1.58(nd-1)(nd^2+2)^2}{Nd \nu [1.52 + (Nd^2+2)(Nd+1) \cdot \nu / 6Nd]^{1/2}}$$

で与えられる⁴⁾ ので、この式を利用してアッペ数の大きいリン酸塩ガラス、更にフッリン酸塩ガラスから小さい n_2 を持ったレーザーガラス LHG-8, LHG-10を開発することができた。

(3) ds/dT

レーザーガラスの組成を決定するに当たって、もう一つの要素は光路長の温度係数を0にすることであった。ポンピング光によってレーザー媒質の温度が上昇すると、熱レンズ効果を生じたり、複屈折を生ずる。光路長の温度変化は次式で表される。

$$ds/dT = (n-1)\alpha + dn/dT$$

dn/dT は媒質の分極率の温度係数を小さくし、熱膨張係数を大きくすることによって負にすることができる。n, α は正なので、 dn/dT と打ち消し合って、 ds/dT を0にすることができる。このようにして ds/dT が0であるリン酸塩ガラス LHG-10を開発することができた。表1に LSG-91H, LHG-5, LHG-8, LHG-10の性質を示す。

3. レーザー関連ガラス

3.1 寄性発振防止用クラッドガラス

核融合用大出力レーザー装置には大口徑のロッドまたはディスクが用いられるが、蓄積エネルギー ΔN を大きく保つためには、自然放出によるエネルギー損失、およびガラス端面での反射⁵⁾による寄性発振を防ぐことが必要である。このため寄性発振防止用クラディングが施される。これはディスクの周辺部にレーザーガラスと屈折率がほぼ等しく、かつ 1.05μ のレーザー光を吸収するようなガラスをクラディングすることにより反射を防止しようとするもので、レーザー光の反射率を0.1%程度にすることが要求される。このためのガラスとしては Cu^{2+} をドーブしたガラスが用いられる。

3.2 ファラデー回転ガラス

レーザー核融合装置においては、増幅されたレーザ

表1 HOYA レーザーガラスの特性

	LSG-91H	LHG-5	LHG-7	LHG-8	LHG-10
レーザー特性					
Nd ₂ O ₃ (wt%)	3.1	3.3	3.4	3.0	2.4
Nd ³⁺ イオン濃度(10 ²⁰ ions/cm ³)	3.0	3.2	3.1	3.1	3.1
誘導放出断面積σ _p (10 ⁻²⁰ cm ²)	2.7	4.1	3.8	4.2	2.7
蛍光寿命(μses)	300	290	305	315	384
利得係数(cm ⁻¹ /J/cm ²)	0.144	0.217	0.202	0.223	0.143
半値幅(290°K)(Å)Δλ	274	220	222	218	265
中心波長(nm)λ _p	1062	1054	1054	1054	1051
減衰係数(1054nm)(m ⁻¹)	0.1(1062nm)	0.123	0.131	0.1	0.15
スロープ効率(%)(10φ×160ℓmm R=80%)	1.15	1.83	1.82	1.83	
発振閾値(J)(10φ×160ℓmm R=80%)	52	40	35	32	
相対性能指数σ/n ₂	1.00	1.87	2.12	2.17	
レーザー損傷閾値					
内部損傷(30nsecパルス)(J/cm ²)	400	400	400		
表面損傷(30nsecパルス)(J/cm ²)	25	50	80		
光学的特性					
非線形屈折率n ₂ (×10 ⁻¹³ esu) 計算値	1.58	1.28	1.05	1.13	0.61
屈折率 n(1054nm)	1.54980(1062nm)	1.53078	1.50415	1.52005	1.46078(1051nm)
n(632.8nm)	1.55901	1.53909	1.51159	1.52793	1.46602
n _d	1.56115	1.54096	1.51316	1.52962	1.46715
n _F	1.56804	1.54686	1.51843	1.53515	1.47084
n _c	1.55812	1.53834	1.51083	1.52718	1.46551
アッベ数 ν _d	56.56	63.49	67.56	66.49	87.68
ブリュースタ角	57°10'	56°50'	56°22'	56°40'	55°36'
屈折率の温度係数(10 ⁻⁶ /°C)(20~40°C)	+1.6	0.0	-2.9	-53	-7.7
線膨張係数(10 ⁻⁶ /°C)(20~40°C)	9.0	8.6	10.2	11.2	14.5
光路長の温度係数(10 ⁻⁶ /°C)(20~40°C)	+6.6	+4.6	+2.3	+0.6	-1.0
熱的特性					
屈伏点T _s (°C)	505	486	543	520	470
転移点T _g (°C)	465	455	510	485	445
線膨張係数(100~300°C)(10 ⁻⁷ /°C)	105	98	112	127	153
熱伝導率(25°C)(kcal/m·h·°C)	0.89	0.66	0.62	0.50	0.64
比熱(cal/g°C)	0.15(50°C)	0.17(20°C)	0.17(25°C)	0.18(25°C)	
	0.17(122°C)	0.18(60°C)	0.18(50°C)	0.19(50°C)	
	0.19(246°C)	0.20(240°C)	0.22(250°C)	0.24(250°C)	
化学的特性					
耐水性(wt. loss%)(H ₂ O100°C 1 hr)	0.039	0.08	0.13	0.13	0.034
耐酸性(wt. loss%)(HNO ₃ pH 2.2 100°C 1 hr)	0.039	0.16	0.38	0.47	0.337
その他特性					
密度(g/cm ³)	281	268	2.60	2.83	3.64
ヤング率(kgf/mm ²)	8890	6910	5640	5110	7250
剛性率(kg f/mm ²)	3590	2790	2780	2030	2790
ポアソン比	0.237	0.237	0.238	0.258	0.300
ヌーブ硬さ(100g)(kgf/mm ²)	590	497	367	321	361
光弾性定数(nm/cm/kgf/cm ²)	2.16	2.26	2.17	1.93	

一光がターゲットに照射されるが、一部の光はターゲットで反射され逆行してレーザーガラスディスクやその他の光学材料を破壊する恐れがある。これを防ぐには順方向のみに光を通過し、逆方向の光を阻止する光アイソレーターが必要となる。ファラデー回転ガラスがアイソレーターとして用いられる。

この場合、ファラデー回転ガラスのベルデ常数が高く、n₂が低いことが望ましい。常磁性イオンを含むガラスのベルデ定数は次式で与えられる。

$$Q = VHI, V = \frac{4\pi^2 \mu_B \nu^2}{3ch kT} \frac{Np^2}{g} \sum_n \frac{Cn}{\nu^2 - \nu_n^2}$$

ここでμ_Bはボーア磁子数、Nは常磁性イオンの数、

pは有効磁子数, gはランデ因子, Cnは遷移確率, ν_n は固有振動数である。pが大きく, 分散の大きいイオンをガラス中に導入することによって大きなベルデ定数のガラスが得られる。HOYAのFR-5はpの高いTb³⁺が含有されている。

4. 最近の核融合用レーザーガラスの進歩

最近におけるレーザーガラスの開発は二つの方向にわたってなされている。一つは性質の抜本的な改良であり, 他は新レーザーガラスの開発である。

(1) OH-free レーザーガラス

OH基の伸縮振動数, 約3,000cm⁻¹は網目の振動エネルギー, 1,200cm⁻¹に比べて, 多フォノン緩和速度が大きく, またNd³⁺の発行波長とOH基の倍音とはほぼ重なっている。重なりに基づくイオン-フォノンによるエネルギー伝達による非輻射遷移を防ぐため, OH基を除くことは蛍光寿命を長くするために最も重要である。雰囲気コントロールすることによって, 蛍光寿命の長いものが得られている。

(2) 低損失レーザーガラス

レーザー発振の閾値をガラス中の損失を減らすことによって下げることができる。1.06μにおける吸収を減らすには, 原料中のFe²⁺, Cu²⁺の量を100ppb, 50ppbに減らし, OH量を減らすことによって, 1~3x10⁻⁴/cmのlossに押さえることが可能である。

(3) 白金異物を含まないレーザーガラス

レーザー損傷閾値の高いレーザーガラスをつくるために, 白金異物を含まないレーザーガラスが開発された。これは熔融ガラス中に溶けたptをイオン化することにより達成された。

(4) 耐熱衝撃性の大きいレーザーガラス

高出力, 高繰り返しレーザーガラスを開発するためには次式で示される耐熱衝撃性の大きいことが必要である。

$$R = S \cdot \frac{K(1-\mu)}{E \cdot d}$$

HOYAではαの小さいケイリン酸塩ガラスHAP-3を開発した(表2)。

5. むすび

新固体レーザー結晶として, Nd:YAG, Cr, Nd; GSGG, Ti³⁺; サファイア・チューナブルレーザー或は2.9μを発振するEr³⁺レーザー等が開発されている。

また, 新レーザーデバイスとして, ジグザグ型スラブレザー, movingスラブレザー, compositeレーザー, レーザーファイババンドル等, 高出力高繰り返しレーザー装置の開発が進んでいる。更にLaser Diodeの応用は固体レーザーの効率を一層高めるであろう。

これに対応してニューレーザーガラスの開発の可能性も考えられる。既に1.5μのErレーザーガラスが, リン酸塩ガラスを母体とし, Yb³⁺を増感剤として開発されている。Cr³⁺を増感剤としたNdレーザーガラス, Yb³⁺を増感剤, Ho³⁺, Tm³⁺を脱活剤とした2.9μ帯のErレーザーガラス或はAlexandrite型のチューナブルレーザーガラス等の可能性も考えられる。

更に建設が予定されているメガジュール大出力装置のガラスとしてはフッ化物レーザーガラスが使われるのであろうか, 又はフッリン酸ガラスが使われるのであろうか?

ガラスの組成は自由に変えられ, 均質で大きなブロックがつくられ易い。ガラスの将来に期待したい。

文献

- 1) W. F. Krupke; IEEE J. Quantum Electron. QE-10, 450(1974)
- 2) R. Reisfeld; Radiative and Non-radiative transitions of rare-earth ions in glasses, in Structure and Bonding 22(Springer-Verlog, New York, 1975)
- 3) T. Izumitani and H. Toratani; J. Non-cryst. Sol., 47 (1) 87(1982)
- 4) N. L. Boling, A. J. Glass and A. Owyong; IEEE J. Quantum Electron. QE-14, 601(1978)

表2 高出力レーザーHAP-3

		HAP-3	LHG 5	LHG 8
破壊靱性	K _{1c}	478 × 10 ⁻³ MN/m ^{1.5}	390	290
ヤング率	E	7.19 × 10 ¹⁰ N/m ²	6.83	4.96
ポアソン比	μ	0.225	0.243	0.266
熱膨張係数	α	83 × 10 ⁻⁷ /°C	98	127
熱伝導度	κ	3.25 KJ/m. h. deg	2.64	2.05
耐熱衝撃性	R'	2.02 KJ/m ² /h	1.16	0.69
	R'/R' _{LHG8}	2.93	1.68	1
	R'/R' _{LHG5}	1.74	1	0.59
誘導放出係数	σ	3.59 × 10 ⁻²⁰ cm ²	4.1	4.2
蛍光寿命	τ _{1/e}	292 μs (2 mol%)	290 (3.3wt%)	315 (3.0wt%)
化学耐久性	D _w	0.09 wt loss%	0.08	0.13
	D ₀	1.60 × 10 ⁻³ mg/cm ² . h	0.83	
	n _d	1.52993	1.54096	
	ν _d	67.25	63.49	
	n _c	1.52755	1.53834	1.52718
	n _v	1.53543	1.54686	1.53515
	n _g	1.53956		
	n _z	1.1151	1.23	1.13