

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月3日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560316

研究課題名（和文）高出力レーザー光源に対応する新しい光アイソレーター用磁気光学単結晶の開発

研究課題名（英文）Novel magneto-optical single crystal for high-power laser machinery

研究代表者

島村 清史（SHIMAMURA KIYOSHI）

独立行政法人物質・材料研究機構・光・電子材料ユニット・グループリーダー

研究者番号：90271965

研究成果の概要（和文）：

レーザー加工機の利用が産業界で進む中、光アイソレーターの重要性が増している。現在 $Tb_3Ga_5O_{12}$ (TGG) 単結晶が使用されているが、問題が多く代替材料が必要とされている。我々は TGG 単結晶の欠点を克服する新材料開発を目指し、TSLAG 単結晶を設計、その大型単結晶化を行った。TSLAG 単結晶の物性を詳細に調べたところ、結晶育成が容易であり、透過率、ファラデー回転角、消光比といった光アイソレータ用ファラデー回転子として重要な特性が全て TGG 単結晶を上回ることを確認した。

研究成果の概要（英文）：

Novel magneto-optical single crystal, $Tb_3(Sc_{1-x}Lu_x)_2Al_3O_{12}$ (TSLAG), has been designed and large size TSLAG single crystal was developed for high-power laser machinery. TSLAG showed a higher visible transparency and a larger Faraday rotation than conventional material, $Tb_3Ga_5O_{12}$. TSLAG is therefore very promising material in particular for new magneto-optical isolator applications in the VIS-NIR wavelength.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2012年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学、結晶成長、光応用

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：結晶成長、光アイソレーター、磁気光学結晶

1. 研究開始当初の背景

近年、光ファイバーケーブルを用いた光通信や精密加工用レーザー加工機の普及に伴い、光源となる各種レーザーは今後ますます高出力化していくと言われ、光源の安定化と破壊防止への対応が必要とされている。光アイソレーターは光源の安定化と破壊防止を

に重要なデバイスであり、従来は鉄系磁性ガーネット薄膜単結晶が主として用いられてきたが、光源の高出力化に伴う薄膜単結晶の劣化、光を透過する波長域が狭いため使用できる波長領域が限定されるといった点などが問題となってきた。特にファイバーレーザーなどのレーザー加工機に使用

される波長 1 μ m 帯において、鉄系磁性ガーネット薄膜単結晶の透過性は十分でなく、光アイソレーターとして利用可能な波長域の拡大が必要とされてきている。

そのような背景の中、可視から近赤外まで適度な透過率とファラデー回転角を有する Tb₃Ga₅O₁₂ (TGG) 単結晶が波長 1 μ m 帯において使用されている。ところがファラデー回転角が不足している、あるいは酸化ガリウムの蒸発などにより結晶育成が困難、そのため品質が悪く非常に高価である、などの問題点も指摘されてきている。実際には、それ以外に適当な材料がないため、仕方なく使用されているという側面がある。

TGG の欠点を克服する材料の研究がなされ、Tb₃Al₅O₁₂ (TAG) が報告された。TAG はファラデー回転角も大きく、透過率も申し分ないが、インコングレント組成を有するためファイバーサイズの単結晶しか得られず、大型の結晶が育成できないという大きな問題を抱えてきていた。

2. 研究の目的

本研究はこのような問題を解決する、高出力レーザー加工機の光アイソレーターとして真に有用な材料を開発し、実用化の前段階となる試作品を製作することを目的とする。

3. 研究の方法

TAG をベースとし、陽イオン置換による新しい磁気光学単結晶を設計し単結晶化する。その後結晶の安定性と均質性、磁気光学特性、光学特性、熱伝導率、レーザー損傷耐性など一連の物性を評価する。更に 2 インチ大型単結晶の育成、評価を実施し、光アイソレーターの試作品を試作する。これにより実用化の前段階までの評価を実施する。

4. 研究成果

一般にガーネット型構造は {C₃}[A₂](D₃)O₁₂ の組成式で表され、{C} は 8 配位、[A] は 6 配位、(D) は 4 配位を表している。ガーネット型構造を模式的に表すと図 1 のようになる。

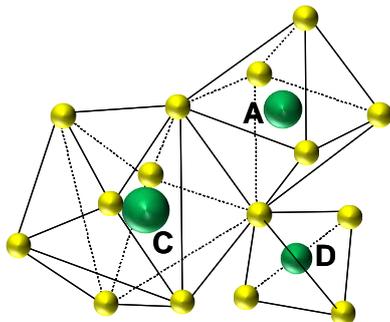


図 1 ガーネット型構造の模式図

TAG における各陽イオンのイオン半径を表 1 に示す。イオン半径には Shannon の有効イオン半径を用いている。表 1 より [A] サイトの Al のイオン半径が 0.535 Å なのに対し、{C} サイトの Tb のイオン半径は 1.04 Å と一気に 2 倍程度になってしまっていることがわかる。このイオン半径のアンバランスさにより TAG は安定にガーネット型構造を保つことができなくなっていると考えられる。

そこで TAG の [A] サイトの Al を Sc で置換した Tb₃Sc₂Al₃O₁₂ (TSAG) を設計した。表 1 に TSAG の各陽イオンのイオン半径を示す。Al を Sc で置換することにより TSAG のイオン半径バランスは TAG より改善されていることがわかる。

表 1 TAG の各陽イオンのイオン半径

結晶	サイト	元素	イオン半径(Å)
TAG	{C}	Tb	1.04
	[A]	Al	0.535
	(D)	Al	0.39
TSAG	{C}	Tb	1.04
	[A]	Sc	0.745
	(D)	Al	0.39
TSLAG	{C}	Tb	1.04
	[A]	Sc / Lu	0.745 / 0.861
	(D)	Al	0.39

図 2 に設計した TSAG の単結晶を Czochralski (CZ) 法で育成した結果を示す。バルクの単結晶を得ることはできたが、図 2 で示されるように、この結晶は容易にクラックを発生した。これは [A] サイトの Al を Sc で置換したことで大幅な安定化が得られたが、それが十分ではないために TSAG にはクラックが容易に発生したと考えられた。しかしながら材料設計の考え方は間違っていないと思われる。そのため更なる安定化のためには、より大きなイオン半径を持つ陽イオンの導入が適当と考えた。



図 2 育成した TSAG 単結晶

そこで TSAG の [A] サイトにおいて、Sc の一部を Sc よりも更に大きなイオン半径を持つ Lu で置換した {Tb₃}[Sc_{1-x}Lu_x](Al₃)O₁₂ (TSLAG) を設計した。表 1 に示すように、TSLAG のイオン半径バランスは TSAG よりも更に改善されていることが分かる。

図3に CZ法で育成した TSLAG 単結晶を示す。直径 1 インチのクラックが全くない安定なバルク単結晶が得られたことが分かる。



図 3 直径 1 インチの TSLAG 単結晶

図 4 に TSLAG 単結晶の透過率を TGG 単結晶と比較した結果を示す。TSLAG 単結晶は測定した全波長域において TGG 単結晶よりも高い透過率を示した。特筆すべきは TSLAG 単結晶の透過率の吸収端からの立ち上がりであり、可視域での透過率の高さである。TGG 単結晶よりも明らかに優れた透過性を示しており、TSLAG 単結晶は近赤外域だけでなく、可視域でも優れたファラデー回転子となりうることを示している。

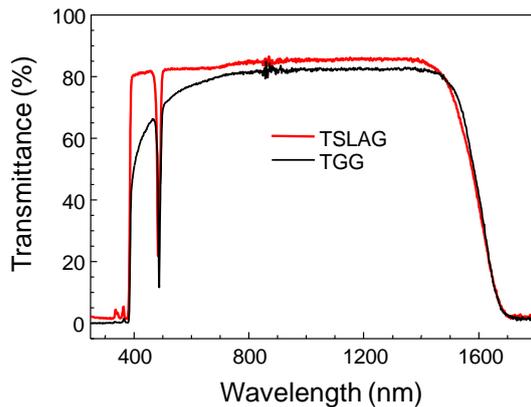


図 4 透過率の比較

ファラデー回転角を測定したところ、図 5 に示すように測定波長範囲においては TSLAG は TGG よりも約 20% 大きな回転角を持つことが明らかとなった。

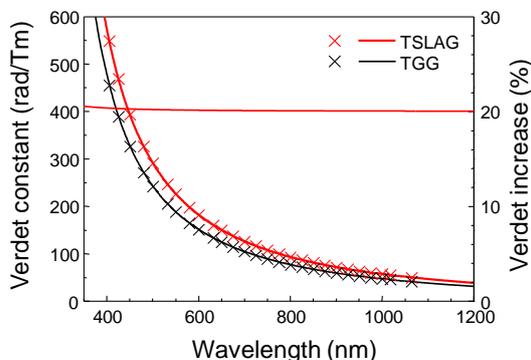


図 5 ベルデ定数の比較

次に、得られたデータより、性能指数を算出し両者を比較した結果を図 6 に示す。性能指数は V/a で表されるが、ここで V はベルデ定数を、 a は吸収係数を示す。つまり光吸収が少なくベルデ定数が高い材料がファラデー回転子として優れるということになる。吸収係数は透過率と屈折率から、ベルデ定数は $\beta = VHI$ で計算され、 β は偏向の回転角、 H は磁場の強さ、 I は結晶長である。図 6 で示されるように、TSLAG は TGG と比べ圧倒的に優れた材料ということがわかる。

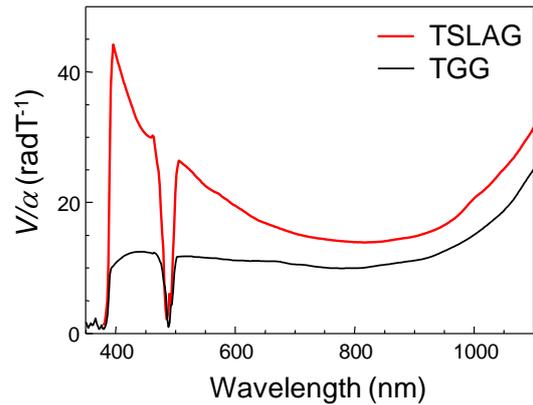


図 6 性能指数の比較

レーザー加工機の光源は高出力化が進んでいるのでファラデー回転子もそれに耐える必要がある。そこで高出力レーザーに対する耐久性試験を行った。TSLAG と TGG、それぞれの結晶に波長 1080nm、ビーム径 100 μ m の CW ファイバーレーザー光を 3 分間照射し、両結晶の温度をサーモビューアで計測した。試験結果を図 7 に示す。両結晶とも、レーザー出力の増加に伴い温度の上昇を示したが、TGG が常に高い温度を示した。そして TGG に 300W の出力を照射した瞬間、図 7 中の写真に示すように、TGG は砕け散った。それに対し TSLAG には巨視的欠陥の一つも入らなかった。この結果より、TSLAG は TGG よりも極めて優れたレーザー耐性を有することがわかった。

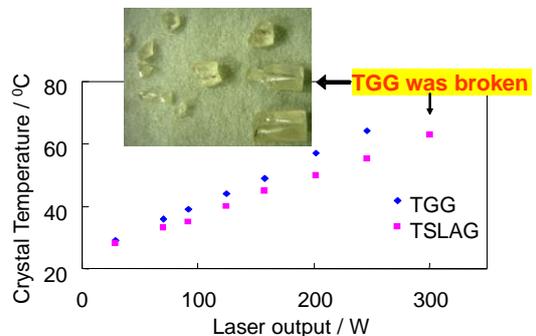


図 7 レーザー耐久性試験の結果

次に、消光比を測定することで両結晶の光学的品質を評価した。その結果、TGG は概ね 35dB であったが、TSLAG は概ね 43 から 44dB、最大で 46dB という優れた特性を示した。市販の TGG は概ね 35dB であり、高品質品と呼ばれるものでも 40dB であるが、これは非常に高価であり、かつ入手も困難な材料である。それに比べ TSLAG は概ね 43 から 44dB であり、いかに品質が高いかということがわかる。図 8 には TSLAG 単結晶を用いて製作した波長 1080nm 用の光アイソレーターデバイスの試作品を示す。

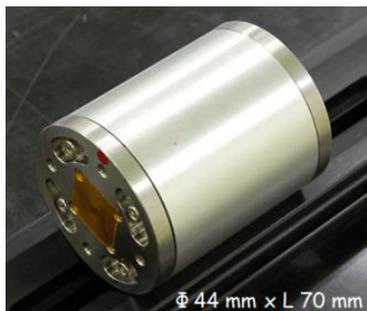


図 8 TSLAG 単結晶を用いて試作した波長 1080nm 用の光アイソレーター

これまでの研究で TSLAG がレーザー加工機の光アイソレーター用材料として、従来の TGG の欠点をおよそ全て克服する優れた材料であることが分かった。そこで実用化材料であることを実証するため、更なる大型単結晶の育成を試みた。

結晶成長条件の最適化を行った結果、図 9 に示すような、直径 2 インチの高品質・大型単結晶の育成に成功した。



図 9 2 インチ大型・高品質 TSLAG 単結晶

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

- ① 島村清史, E.G. Villora, 畑中翼, 船木秋晴, 直江邦浩, 光アイソレータ用ガーネット型単結晶の開発、未来材料、査読有、12 (2012) 22-27

- ② E.G. Villora, P. Molina, M. Nakamura, K. Shimamura, T. Hatanaka, A. Funaki, K. Naoe, Faraday rotator properties of $\{Tb_3\}[Sc_{1.95}Lu_{0.05}](Al_3)O_{12}$, a highly transparent Terbium-garnet for visible-infrared optical isolators, Appl. Phys. Lett., 査読有, 99 (2011) 011111
- ③ 島村清史, E.G. Villora, 一ノ瀬昇, 新しい光応用単結晶材料の開発を目指して、レーザー研究、査読有、39 (2011) 293-299
- ④ E.G. Villora, 島村清史, 畑中翼, 船木秋晴, 直江邦浩, 光アイソレータ用ガーネット単結晶、フジクラ技報、査読無、120 (2011) 39-41
- ⑤ K. Shimamura, T. Kito, E. Castel, A. Latynina, P. Molina, E.G. Villora, P. Mythili, P. Veber, J.P. Chaminade, A. Funaki, T. Hatanaka, K. Naoe, Growth of $\{Tb_3\}[Sc_{2-x}Lu_x](Al_3)O_{12}$ single crystals for visible-infrared optical isolators, Cryst. Growth & Design, 査読有, 10 (2010) 3466-3470.
- ⑥ 畑中翼, 船木秋晴, 直江邦浩, 鬼頭孝幸, E.G. Villora, 島村清史, 光アイソレーター用磁性ガーネット単結晶の育成と評価、日本電子材料技術協会会報、査読有、41 (2010) 30-32
- ⑦ 島村清史, E.G. Villora, 一ノ瀬昇, 新しい光応用単結晶材料の開発に関する研究、FC Report、査読有、28 (2010) 97-102

[学会発表] (計 27 件)

- ① K. Shimamura, Novel single crystals for optical applications, Materials Science & Technology 2012 Conference and Exhibition, October 16-20, 2012, Pittsburgh, USA.
- ② K. Shimamura, E.G. Villora, Growth and optical characteristics of novel single crystals, 12th International Balkan Workshop on Applied Physics, July 06-08, 2011, Constanta, Romania.
- ③ E.G. Villora, P. Molina, V. Vasyliiev, T. Hatanaka, A. Funaki, M. Nakamura, K. Shimamura, UV-visible-infrared Faraday isolators based on single crystal fluorides and oxides, European Materials Research Society 2011 Fall Meeting, September 22-23, 2011, Warsaw, Poland.
- ④ K. Shimamura, E.G. Villora, N. Ichinose, Nobel material and application based on garnet-type single crystals, Materials Science & Technology 2011 Conference and Exhibition, October 16-20, 2011, Columbus, USA.
- ⑤ K. Shimamura, E.G. Villora, A. Funaki,

T. Hatanaka, N. Ichinose, Growth of $Tb_3(Sc_{1-x}Lu_x)_2Al_3O_{12}$ single crystals for visible-infrared optical isolators, Materials Science & Technology 2010 Conference and Exhibition, October 17-21, 2010, Houston, USA.

- ⑥ K. Shimamura, E.G. Villora, N. Ichinose, Growth and optical-based characteristics of novel single crystals, CRISTEC 2010, October 4-6, 2010, Autrans, France.

[産業財産権]

○出願状況(計13件(含海外移行))

- ① 名称:ファラデー回転子用ガーネット型単結晶及びそれを用いた光アイソレータ
発明者:畑中翼、船木秋晴、島村清史、E.G. Villora
権利者:物材機構、(株)フジクラ
種類:特許
番号:特願 2012-511664
出願年月日:2011年4月19日
国内外の別:国内
- ② 名称:光アイソレータ用単結晶及びその製造方法
発明者:真田和夫、島村清史、E.G. Villora
権利者:物材機構、(株)フジクラ
種類:特許
番号:特願 2011-537270
出願年月日:2010年10月20日
国内外の別:国内
- ③ 名称:ファラデー回転子用ガーネット型単結晶及びそれを用いた光アイソレータ
発明者:船木秋晴、畑中翼、島村清史、E.G. Villora、L. Anastasiya
権利者:物材機構、(株)フジクラ
種類:特許
番号:特願 2010-175851

出願年月日:2010年8月5日
国内外の別:国内

○取得状況(計1件)

- ① 名称:ファラデー回転子用ガーネット型単結晶及びそれを用いた光アイソレータ
発明者:船木秋晴、畑中翼、島村清史、E.G. Villora
権利者:物材機構、(株)フジクラ
種類:特許
番号:4943566
取得年月日:2012年3月9日
国内外の別:国内

[その他]

ホームページ等

<http://www.nims.go.jp/group/oscg/research/isolator.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

島村 清史 (SHIMAMURA KIYOSHI)
独立行政法人物質・材料研究機構・光・電子材料ユニット・グループリーダー
研究者番号:90271965

(2) 研究分担者

ガルシア ビジョラ (GARCÍA VÍLLORA)
独立行政法人物質・材料研究機構・光・電子材料ユニット・主任研究員
研究者番号:70566760

(3) 研究協力者

直江 邦浩 (NAOE KUNIHIRO)
(株)フジクラ・環境エネルギー研究所・部長