# 光アイソレータ用単結晶

独立行政法人物質・材料研究機構 ガルシア・ビジョラ<sup>1</sup>・島 村 清 史<sup>2</sup>
環境・エネルギー研究所 畑 中 翼<sup>3</sup>・船 木 秋 晴<sup>3</sup>・直 江 邦 浩<sup>4</sup>

# Single Crystal for Optical Isolator

E. G. Víllora, K. Shimamura, T. Hatanaka, A. Funaki, and K. Naoe

現在,レーザー加工機に使用される波長1µm帯において,光アイソレータ用ファラデー回転子には Tb<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (TGG)単結晶が使用されている.しかし,ファラデー回転角不足,結晶育成が比較的困難, さらに非常に高価などの問題点も指摘されており,それらの問題を解決すべく,Tb<sub>3</sub> (Sc,Lu)<sub>2</sub>Al<sub>3</sub>O<sub>12</sub> (TSLAG) 単結晶に注目し結晶の育成・評価を行った.本論文では,TSLAG は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と同等 以上であることが確認された.

Currently,  $Tb_3Ga_5O_{12}$  (TGG) single crystal is used as Faraday rotator in the laser machinery the wavelength of which is <1100 nm. However, TGG has problems of not enough Faraday rotation angle, difficult crystal growth, very high price, and so on.

In order to overcome these problems, we focused on Tb<sub>3</sub>(Sc,Lu)<sub>2</sub>Al<sub>3</sub>O<sub>12</sub> (TSLAG) single crystal and developed and characterized TSLAG crystals. In this paper, we report that TSLAG can be grown easily and has higher transparency, bigger Faraday rotation angle, and extinction ratio, which are very important properties for Faraday rotator.

## 1. まえがき

近年,光ファイバ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いわれており, 光源の安定化と破壊防止への対応が必要とされている. 光アイソレータは光源の安定化と破壊防止をになう重要 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 なってきていた.特にファイバレーザーなどのレーザー 加工機に使用される波長1µm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 Tb<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (TGG)単結 晶が波長1 μm帯において使用されているが<sup>1),2)</sup>,ファ ラデー回転角不足,酸化ガリウムの蒸発などにより結晶 育成が比較的困難<sup>3)</sup>,非常に高価などの問題点も指摘さ れており,代替品がないために仕方なく使用している側 面がある.

また、Tb<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (TAG) はファラデー回転角も大きく、 透過率も申し分ないが<sup>4)</sup>、インコングルエント組成のた め<sup>5)</sup>、大型の結晶を得ることが困難という大きな問題を 抱えている. そこでこれらの問題を解決すべく、本研究 では高特性である TAG を出発材料としてカチオンのイオ ン 半 径 に 注 目 し て 組 成 を 変 え、Tb<sub>3</sub>Sc<sub>2x</sub>Lu<sub>x</sub>Al<sub>3</sub>O<sub>12</sub> (TSLAG) 単結晶の育成・評価を行った.

#### 2. ガーネット構造におけるカチオンのイオン半径

一般的にガーネット構造は {C<sub>3</sub>} [A<sub>2</sub>] (D<sub>3</sub>) O<sub>12</sub> 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. また、ガーネット構造を模式的に表 すと図1のようになる.

TAG の各カチオンのイオン半径を表1に示す. ここ で、イオン半径は Shannon の有効イオン半径のことを 指している<sup>6)</sup>.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

<sup>1</sup> 光材料センター 光周波数変換グループ主任研究員(理学博士)

<sup>2</sup> 光材料センター 光周波数変換グループグループリーダー (理学博士)

<sup>3</sup> 先進技術研究室

<sup>4</sup> 先進技術研究室室長

略語・専門用語リスト		
略語・専門用語	正式表記	説明
ファラデー回転		ある偏光面を持った光が磁場中の物体を通過する際に,偏 光面が回転すること
消光比		結晶のひずみを評価するパラメータのひとつ.値が大きい ほどひずみが小さく,光アイソレータ用結晶として優れて いる.
インコングルエント組成		ある組成の融液から温度を下げていくと異なる組成の固体 が晶出してしまう組成のこと
カチオン		プラスの電荷を帯びたイオンのこと
CZ 法	チョクラルスキー法	融液からの単結晶育成方法のひとつ. 引上げ法とも呼ばれ, 大型結晶を育成することができる.



図1 ガーネット構造の模式図 Fig. 1. Schematic of garnet structure.

表1	TAG の各カチオンのイオン半径
Table	e 1. Ionic radii of cations of TAG.

$\{Tb_3\}$ [Al <sub>2</sub> ] (Al <sub>3</sub> ) O <sub>12</sub> (TAG)	元素	イオン半径(Å)
(D) サイト (4 配位)	Al	0.39
[A] サイト(6 配位)	Al	0.535
{C}サイト (8配位)	Tb	1.04

**表2** TSLAG の各カチオンのイオン半径 Table 2. Ionic radii of cations of TSLAG.

$\left\{ Tb_{3}\right\} \left[Sc_{2*x}Lu_{x}\right]\left(Al_{3}\right) \ O_{12} \ \left(TSLAG\right)$	元素	イオン半径(Å)
(D) サイト (4 配位)	Al	0.39
[A] サイト(6 配位)	Sc	0.745
[A] サイト(6 配位)	Lu	0.861
{C} サイト (8 配位)	Tb	1.04

とがわかる. このイオン半径のアンバランスさにより TAG は安定したガーネット構造を保つことができなく なっていると考えられる.

そこで本研究では、TAGの[A] サイトの Al を Sc と Lu で置換した Tb<sub>3</sub>Sc<sub>2x</sub>Lu<sub>x</sub>Al<sub>3</sub>O<sub>12</sub> (TSLAG) を考案した. 表 2 に TSLAG の各カチオンのイオン半径を示す. これ



図 2 TSLAG 単結晶 (x = 0.05)Fig. 2. TSLAG single crystal (x = 0.05).

らより, TSLAG 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.

#### 3. 実験方法

Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の粉末試料(全て純度 は 99.99%)を原料として Tb<sub>3</sub>Sc<sub>2x</sub>Lu<sub>x</sub>Al<sub>3</sub>O<sub>12</sub>(0.05  $\leq$  x  $\leq$  0.2)の組成となるよう秤量した後, Ir るつぼに入れ てチョクラルスキー(CZ)法により単結晶を育成した. 育成は大気圧 N<sub>2</sub>雰囲気中において,引上げ速度を 1.0 mm/h,種結晶の回転速度を 10 rpm として行った.種 結晶には <111>方向に切り出した Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>(YAG)単 結晶を用いた.

得られた結晶の評価として分光透過率測定,ファラ デー回転角測定を行った(㈱光学技研殿による測定). また,粉末X線回折による相同定を行った.

### 4. 結 果

育成した TSLAG(x = 0.05)の外観写真を図2に示す. 直径約1インチのクラックフリーの単結晶を育成するこ とに成功した.

また,得られた各 TSLAG 単結晶の粉末 X 線回折の 結果を図 3 に示す. どの組成の TSLAG もガーネット相









単相であることが確認された.

図4に各TSLAGの分光透過率測定結果を示す.ここで,測定はノンコーティングで行った.

測定波長全域で TGG より高い透過率を持つことが分かり,可視域全域(400~800 nm)で特に高い透過率 を示した.つまり,TGG では透過率が低いために不可 能だった短波長領域でも,TSLAG を使用することで光 アイソレータを提供することが可能である.

また、ファラデー回転角の測定結果を図5に示す.こ こで、測定面は(111)面で、測定用サンプル長は20 mmとした.図5より、波長によってはTGGの1.3倍 を超える大きなファラデー回転角を持つことがわかっ た.このことは同じファラデー回転を起こすために必要 な磁界がTGGより小さくて済むため磁石を小さくでき、 光アイソレータの小型化が可能であることを意味してい る.特にレーザー加工機に組み込まれているインライン 型光アイソレータにおいては、サイズが大きいと他部品 のレイアウトやサイズに影響するため小型化が望まれて おり、ファラデー回転角が大きいことは大きな利点とな る.



図4 各 TSLAG の分光透過率測定結果 Fig. 4. Transmittance spectrum of TSLAG and TGG.

#### 5. む す び

本報告のように直径約1インチの TSLAG 単結晶を育 成した.分光透過率は測定波長全域で TGG 以上と良好 で,特に400~800 nm の可視域全域において高い透過 率を示した.また,同一磁場におけるファラデー回転角 は最大で TGG の 1.3 倍程度と大きいことが確認された. 今後は更なる高品質化,大型化を目指していく予定で ある.

#### 参考文献

- Khazanov, et al. : "Faraday isolators for high average power : State of the art", Proceedings of the Lasers and Electro-Optics, 2008 and 2008 Conference on Quantum Electronics and Laser Science CLEO/QELS, San Jose, CA, May 4-9, 2008
- M. Y. A. Raja, et al.: "Room-temperature inverse Faraday effect in terbium gallium garnet", Appl. Phys. Lett., 67, 2123-2125, 1995
- R. C. Linares : "Growth of garnet laser crystals", Solid State Commun., 2, 229-231, 1964
- Rubinstein, et al. : "Magneto-Optical Properties of Rare Earth (III) Aluminum Garnets", J. Appl. Phys., 35, pp.3069-3070, 1964
- S. Ganschow, et al.: "On the Crystallization of Terbium Aluminium Garnet", Cryst. Res. Technol., 34, 615-619, 1999
- R. D. Shannon : "Revised effective ionic radii and systematic studies of interatomic distances in halides and chalcogenides", Acta Cryst., A32, 751-767, 1976