

# レーザーガラス

HOYA(株)

竹内 邦夫・虎溪 久良

## Laser Glasses

Kunio Takeuchi and Hisayoshi Toratani

HOYA Corporation

### 1. はじめに

世界で初めて固体レーザーの発振に成功したのは Maiman であり、1960 年のことであった。そして、翌年（1961 年）には Snitzer により、 $\text{Nd}^{3+}$  を活性イオンとしてドーブしたガラスレーザーが発明された。

ガラスは 6000 年の昔から受け継がれてきた不思議な材料であり、今日では多方面にわたって広く利用されている。ガラスの持つ特徴の中で最も利用されているのは透明性であり、窓ガラスや瓶などの容器ガラスがそれらの代表であるが、光を制御するための光学製品（レンズ、プリズム、ファイバーなど）も数多く作られてきた。

レーザーガラスは  $\text{Nd}^{3+}$  に代表される活性イオンをガラス中に溶かし込んだものであるが、結晶に比べて優れている点は均質で大きなサイズの材料が得られることにある。これは、高エネルギーを必要とするレーザー核融合装置などへの応用に適したものである。重水素、三重水素などを燃料とする核融合にはトカマク型やヘリカル型などの磁場閉じ込め方式と、レーザー

などを用いた慣性閉じ込め方式があり、後者は高出力のレーザー光を燃料ペレットに照射することにより超高密度のプラズマを生成し、ごく短時間のうちに核融合反応を起こしてエネルギーを取り出すものである。核融合は太陽や恒星のエネルギー源であって、いってみれば地上に人工太陽を建設するものともいえる。その燃料となる重水素や三重水素は海中にはほぼ無尽蔵に含まれており、しかも核分裂のように放射性廃棄物を出さないことからクリーンであり、核融合は究極のエネルギー源と期待されている。

### 2. 研究開発のスタート

レーザーガラスの研究は 1960 年代後半に始まったが、各国で具体的に大出力レーザー装置の開発が始まったのは 1970 年代に入ってからである。日本の光学ガラス（主としてカメラや双眼鏡用のレンズ）の品質が格段に向上したことの一つに、昔ながらのセラミックス（粘土）坩堝で溶解していたものを白金坩堝に変えたという歴史がある。ところが、白金坩堝で溶解したガラスにレーザー光を照射するとガラスの内部に泡のようなダメージが生じるということが、大阪大学が作ったレーザー装置で判明した。そこで、当社に対して、「ダメージが生じ

ないようなレーザーガラスを作って欲しい」という依頼があった。ダメージの原因は白金インクルージョンが主であり、それを防ぐにはセラミックの坩堝の使用を再検討すべきと考えられた。セラミック坩堝による溶解は現在でも、高温度・高粘性の光学ガラスや、白金坩堝を侵食する成分を含有しているガラスなどに対しては行なわれている方式であるが、坩堝からの不純物の溶け込みなどにより、泡、石、脈理などの不均質部分を生じることが避けられない。特大サイズの坩堝を作って、不純物の溶け込みがほとんどない中心部分より撰働して良品を得ることも検討されたが、レーザーガラスに要求される高均質性という観点からすれば、やはり困難といわざるを得ない。つまり、脈理がなくて、高品質なガラスを得るためには白金坩堝の使用が不可欠であると判断し、検討を重ねた。私達には白金を使つてのガラス溶解に経験と技術の蓄積があり、それらをベースに研究を進めた結果、溶解炉内の雰囲気適切な状態に制御してやれば、白金坩堝を使って溶解しても白金インクルージョンを生じさせない方法を見いだすことが出来た。

### 3. ガラス組成における進展

その当時、レーザーガラスではOwens-Illinois社のED-2という珪酸塩系のガラスが非常に高性能であり、私達はそれを追いかける形で、同じ珪酸塩系でLSG-91Hというガラスを開発した。

ここで、レーザーガラスとは一体どのようなものかという事について、少し説明をしたい。レーザー(LASER)とは「誘導放出による光の増幅」という英語名の頭文字をとったものである。レーザーガラスもただ、そこに置いておくだけでは光の発振も増幅も何も起こらない。よく、「ガラスから何故、光が出るのか」と言われるが、実際、ガラスから光がどんでん出てくるわけではない。通常のガラスレーザシステ

ムでは、ガラスロッドの周りにキセノンフラッシュランプを配置し、光照射することによりガラスにエネルギーを供給する。この時、前述したNd<sup>3+</sup>のような活性イオンがガラス中に存在すると、光を吸収して高いエネルギー準位に励起される。励起されたイオンは光や熱の形でエネルギーを放出してより低いエネルギー準位へと緩和するが、励起準位にあるイオン数がより低いエネルギー準位にあるイオン数よりも多ければ、いわゆる反転分布状態が形成され、光の増幅が可能になる。反転分布は励起準位の緩和が遅い、すなわち蛍光寿命が長いほど、容易に達成される。つまり、反転分布状態にあるレーザーガラスに二つの準位間のエネルギー差に等しいエネルギーを持つレーザー光を通過させると、誘導放出による光の増幅が起こるわけである。

レーザーの説明が少し長くなったが、話をガラスに戻すと、レーザーの高効率化のためには利得係数(誘導放出断面積と反転分布密度の積で表される)の大きいガラスが望まれる。1978年に米国のLawrence Livermore国立研究所(LLNL)が建設したレーザー核融合の実験装置(SHIVA)では珪酸塩系ガラスであるLSG91Hが採用された。その間の研究において私達は、利得係数が蛍光スペクトルのピーク強度に比例することを明らかにした。この蛍光強度は実験で作成する少量のガラスサンプルを用いて容易に測定が可能な特性であり、この発見が、その後の組成開発のスピードアップに大いに役立つこととなった。様々なガラスの蛍光強度と蛍光寿命を系統的に検討した結果、珪酸塩ガラスに比べ、磷酸塩ガラスが極めて高い性能を示すことを見いだした。

また、新たな課題として、屈折率の非線形係数の小さなレーザーガラスの開発があった。つまり、非線形係数が大きいと光強度の大きなレーザー光が通過した部分でガラスの屈折率が増大し、レンズ効果によりガラス内部でレーザー光が自己集束する結果、ガラスにダメージが発

生することが判明したためである。そこで、非線形係数を小さくする研究に着手し、屈折率と分散の値を用いた関係式をもとに組成の開発を進めた結果、利得係数も大きく、非線形係数の小さな磷酸塩レーザーガラス LHG5 が生まれた。

その後、光路長の温度変化がないレーザーガラスの開発が大阪大学、Rochester 大学などから要請された。これは、キセノンフラッシュランプ励起によりレーザーガラスに温度分布が発生し、屈折率の変化に伴って波面収差が生じることが問題となったためである。光路長の温度係数をゼロにするためには屈折率の温度係数を負の値にすることが要求される。屈折率の温度係数がガラスの構成成分の結合距離と分極率の温度変化によって決定されることを見だし、組成を最適化する研究を進めた結果、光路長の温度係数がゼロで、かつ利得係数もこれまでで最大となる磷酸塩レーザーガラス LHG8 を開発した。このガラスは米国 Rochester 大学の OMEGA 装置、大阪大学の激光 12 号装置、米国 Lawrence Livermore 国立研究所の NOVA 装置、フランス Limeil 研究所の PHEVAS 装置など、世界の主要施設には全て採用されてきた。

ガラス組成の研究はその後も続けられ、非線形係数の極めて小さい弗磷酸塩ガラスが開発されたが、レーザーによる破壊しきい値が十分高くないことが判明し、現時点ではその使用は断念されている。また、スラブレーザー用として耐熱衝撃性に優れたガラスや、より利得係数の高いガラスの開発も行なわれている。

#### 4. 水との戦い

珪酸塩系のレーザーガラスを作る場合、ガラス中の水分というのは問題にならないが、磷酸塩系のレーザーガラスの場合、蛍光寿命がガラス中の残留水分によって強く影響されることが明らかとなった。水といっても、 $H_2O$  のこと

ではない。ガラスは高温で溶解するのであるから、 $100^{\circ}C$  で蒸発する  $H_2O$  の形ではなく、OH 基というのが正しい。この OH 基は活性イオンである  $Nd^{3+}$  と相互作用し、その励起エネルギーを熱として緩和してしまうため、大きな問題となった。磷酸塩ガラスは OH 基を含有して構造が安定化するため、脱水を行なうのは非常に難しい。ガラス中の残留水分量は、ユーザーの仕様にもよるが、波長  $3\mu$  付近での吸収係数で  $2\text{ cm}^{-1}$  というのを我々は目指している。 $2\text{ cm}^{-1}$  といっても、実質的には OH 濃度として  $15\text{--}30\text{ ppm}$  に相当し、このレベルのものを他の全ての特性、例えば光学的均質度、インクルージョンなど、を全て満足した上で、磷酸塩ガラスにおいて達成するのはかなり難しい仕事である。

米国の Rochester 大学からレーザーガラスの注文があった時に、蛍光寿命の規格が非常に厳しく、それに合致するレベルのものは湿度の低い冬場しか製造できなかった。日本の冬というのは肌でも感じられるようにカラカラに乾いている。レーザーガラスは当時、季節商品といっても良い状態であった。もっとも、仕事なので他の季節に遊んでいたわけではなく、その間はいろいろな技術開発を行ったり、ラフメルト（バッチ原料からのカレット化）をやったりしていた。そして、時期が到来すると（酒造りの杜氏のようなものか）、準備していたカレットを仕込んで本溶解するといった、笑い話に近いことがあった。

1981年に米国の Lawrence Livermore 国立研究所（LLNL）から多量の大型レーザーディスクの受注があったが、米国の国策のために全量を日本国内で生産することが出来ず、受注量の 50%以上はアメリカで溶かすことが条件であった。当時、当社では事業部によっては海外に多数の工場を展開し、稼働させていたが、いわゆるガラス溶解工場は皆無であった。LLNL はサンフランシスコの東（車で 1 時間程度の距離である）に位置しており、当社の海

外法人の一つがシリコンバレーの一角、スタンフォード大学の近くの Menlo Park 市に営業拠点をもっていった地理的条件を生かし、新たに工場を設置することにした。しかし、Menlo Park 市の付近は閑静な住宅街であるため、工場は工業団地の一角がある Fremont 市に建設された。カリフォルニアは温暖で、湿気も少なく、レーザーガラスの溶解には最適であろうと考えたわけであるが、実際は昼夜の温度差もあり、ガラスを溶解してみると期待された性能が出ないことが分かった（おまけにその年は何十年ぶりの記録的に雨の多い冬であった—カリフォルニアでは冬が雨期である）。つまり、ガラスを溶解する環境としては、相対湿度が問題になるのではなく、絶対湿度が影響するということである。空気中に含まれる絶対水分量は温度に依存するため、温暖なカリフォルニアは磷酸塩レーザーガラスの溶解に必ずしも適当ではないということである。そこで、溶解炉全体を密閉状態にし、雰囲気制御することも検討したが、いろいろと問題点があり、採用しなかった。OH 基は原料がガラス化する際、原料中や空気中から取り込まれるので、単に溶解温度を上げた程度では除去できず、いろいろと検討を重ねた結果、ハライド化合物を強制的にガラスメルト中に導入し、化学反応によって脱水する方法を見いだした。現在、化学処理による脱水方法としてはいくつか開発されており、これらをうまく併用することによって、一年を通じて高品質のレーザーガラスを安定的に作れるようになった。

## 5. ミクロの世界

前述したように、レーザーガラス中に白金インクルージョンが存在するとレーザー光の照射によりガラス内部にダメージが発生することは 1970 年代において既に明らかになっていたが、私達は、その問題は解決した、と思っていた。しかし、1980 年代に入り、LLNL がそれまで

で最大級の大出力レーザー装置 NOVA を建設し、運転を始めたところ、ダメージの問題が再燃した。これは、従来のエネルギーに比べはるかに高いエネルギーをもつレーザー光を照射したことにより生じたものである。LLNL は予定していた出力を大幅に下げた状態での運転を余儀なくされ、総力をあげて原因を調査検討したところ、肉眼では見えないレベルの白金インクルージョンの存在が判明した。

我々は LLNL と共同で問題解決のための研究を始め、原因の理論的分析、および、その対策について検討した。これらの研究を通じて、白金インクルージョンによるダメージ発生メカニズムと、ガラスの種類（組成系）、溶解条件、溶解炉の構造が白金インクルージョンの発生にどのように影響するかについて、データと理論的裏付けを得ることができた。

一方では、目に見えないものをガラス中でどうやって見つけるかという評価装置の開発が並行して進められ、LLNL によって、集光した高出力のレーザー光を大型のガラスディスクの全面にわたってスキャンして照射し、ダメージの発生の有無を検出する Damage Tester と呼ばれる装置が完成した。レーザー光のビーム径は小さいものの、実際の核融合用レーザー装置と同等のエネルギー密度をもつものであり、この装置によって照射されたガラスは事後の検査を経て、品質を保証できるものとなった。

これらの開発を経て、新たな溶解炉を建設し、大型ガラスの生産に入った。得られたガラスは全数が Damage Tester にかけて評価されたが、これは言ってみれば破壊検査であり、数十 kg の重さの製品中にわずか一個のダメージが存在しても不良となることもあり、生産担当者としては泣くに泣けないことも度々あった。今日では、溶解装置や溶解条件の整備、改良によってかなり安定してモノを作れるようになってきたが、それでも、成形直後の目視検査で泡やインクルージョンの欠陥がないといっても、目では見えないものを相手にしているの

で、気の抜けない毎日である。

## 6. 終わりに

レーザーガラスの開発に着手して、20 十余年余が経ったわけであるが、日本を始め、世界の主要国では次世代のエネルギー源の一つとして核融合の研究に取り組んでおり、現在および来るべき 21 世紀に向けて多くの計画が予定されている。

軽薄短小、ダウンサイジングなどの世の中のトレンドに対して、レーザーガラスの世界はガ

ラスのサイズや重さにおいて、逆行してどんどん大型化し、しかも求められる品質は厳しくなっていており、私たちとしても開発の終りがどこなのか予測できない。

しかし、無限の可能性を秘めた「ガラス」の中で、このようなガラスもあるということで、その一端を御紹介できたことは幸いと思う。本文を書くに当り、この仕事に携わってきた当社の諸先輩方や、お世話になった方、またユーザーの方々に感謝の意を表明させていただきたい。