

相分離した Yb 添加 Y-Al-O 透明薄膜における結晶相間エネルギー移動

An Energy Transfer Between Crystals in Phase-Separated Yb-doped Y-Al-O thin film

1 神戸大院工, 2 兵庫工技センター, [○](DC)中山雄太, ¹原田幸弘, ²石原嗣生, ¹喜多隆1 Kobe Univ., 2 HPIT, [○](DC)¹Yuta Nakayama, ¹Yukihiro Harada, ²Tsuguo Ishihara, and ¹Takashi Kita

E-mail: 179t250t@stu.kobe-u.ac.jp

【はじめに】マルチフォノン吸収を介した anti-Stokes 発光(Photoluminescence: PL)は、固体レーザー冷却器や自己冷却レーザー(Radiation Balanced Laser: RBL)の要となる [1,2]。これまで我々は Yb 添加 yttrium aluminum garnet [(Yb:Y)AG]や Yb 添加 yttrium aluminum perovskite [(Yb:Y)AP]などの結晶粉末やセラミックスにおける高温での anti-Stokes PL 増強と、(Yb:Y)AP の優れた RBL 利得を明らかにしてきた [3–6]。一方、結晶粉末やセラミックスでは強い表面散乱によってレーザー冷却パワーが低下してしまうため、可視域で良好な透明性を示す Yb 添加 Y-Al-O 薄膜をスパッタ法によって作製してきた [7]。Yb 添加 Y-Al-O 薄膜中には(Yb:Y)AG 相と Yb 添加 yttrium aluminum monoclinic[(Yb:Y)AM]相が存在し、その冷却効率スペクトル形状が単相(Yb:Y)AG とは異なることから 2 つの結晶相間でのエネルギー輸送過程が示唆された [7]。しかし、単相(Yb:Y)AM の光学特性は(Yb:Y)AG や(Yb:Y)AP に比べて報告例が極めて少なく、(Yb:Y)AM の発光励起特性を考慮した議論ができていない課題があった。本研究では、Yb 添加 Y-Al-O 薄膜と(Yb:Y)AG 及び(Yb:Y)AM セラミックスの anti-Stokes PL 励起(PL excitation: PLE)イメージから Yb 添加 Y-Al-O 薄膜における anti-Stokes PL 過程を解明することを目的とした。

【実験方法】(Yb:Y)AG 及び(Yb:Y)AM セラミックスは固相反応法で作製した。Y₂O₃、Al₂O₃、Yb₂O₃ の粉末原料を化学量論比に基づいて Yb 添加濃度が 6mol% となるように調製・混合し、油圧プレス機によって 200 MPa で成形した。その後、1700°C で 10 時間焼成し、厚さ~100 µm まで研磨した。厚み 1 µm の Yb 添加 Y-Al-O 薄膜は、(Yb_{0.06}Y_{0.94})AlO₃ ターゲットを用いて RF マグネトロンスパッタ法で c 面サファイア基板上に堆積し、1000°C で焼成した。半値全幅 1.2 nm の連続波発振波長可変レーザーを用いて anti-Stokes PLE イメージを室温で測定した。

【結果と考察】 Figure 1(a)に Yb 添加 Y-Al-O 薄膜の anti-Stokes PLE イメージを示す。横軸は発光波長、縦軸は励起波長、カラーは励起光子数で規格化した PL 強度を表している。ここで、968 nm の anti-Stokes PL ピークは(Yb:Y)AG、974 nm の anti-Stokes PL ピークは(Yb:Y)AM 内の Yb³⁺ の *f-f* 内殻遷移による発光である。Figure 1(b)と 1(c)はそれぞれ、Yb 添加 Y-Al-O 薄膜(○)と(Yb:Y)AG(★)および(Yb:Y)AM(◆)セラミックスにおける anti-Stokes PL スペクトルの積分強度と、anti-Stokes PL ピークの積分強度の励起波長依存性である。各スペクトルは最大値で規格化した。また、anti-Stokes PL ピークの積分強度は、(Yb:Y)AG の 968 nm と(Yb:Y)AM の 974 nm の PL スペクトルを Lorentz 関数でフィッティングして抽出した。Figure 1(b)より、Yb 添加 Y-Al-O 薄膜の anti-Stokes PL スペクトル(○)の積分強度は(Yb:Y)AG および(Yb:Y)AM セラミックスのスペクトルの線形和(■、係数は最小二乗法で求めた)は大凡の傾向は一致する。また、anti-Stokes PL ピークの積分強度の励起波長依存性(Fig. 1(c))でも Yb 添加 Y-Al-O 薄膜における積分強度の広がり観測された。特に(Yb:Y)AM の anti-Stokes PL ピークにおいて励起波長 1027–1035 nm にかけて広がり観測され、その広がった領域は(Yb:Y)AG の吸収ピーク波長(~1030 nm)と一致する。同様にこれらの結果は、Yb 添加 Y-Al-O 薄膜では(Yb:Y)AG が光吸収アンテナとして働き、結晶相間エネルギー移動を介して(Yb:Y)AM 相から anti-Stokes PL が放射されることを示唆している。

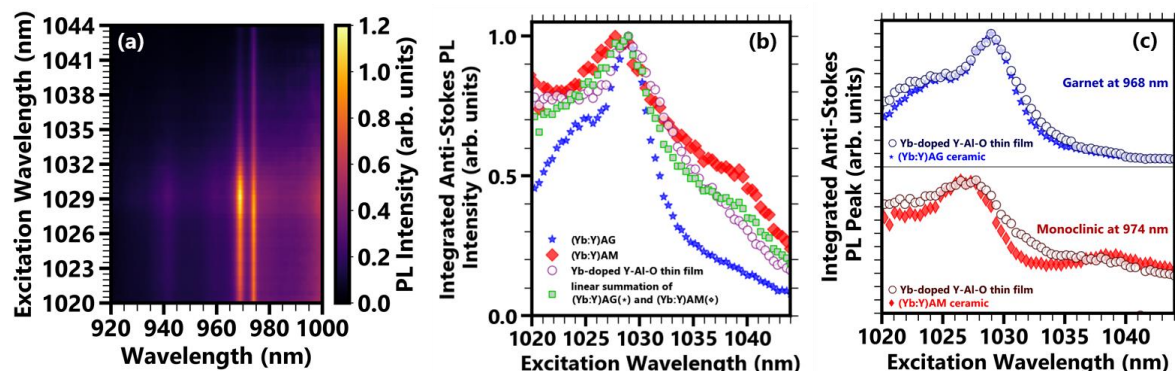


Figure 1 (a) PLE image of Yb-doped YAG + YAM thin film at room temperature. A horizontal axis, vertical axis, and color bar indicate the luminescence wavelength, the excitation wavelength, and the PL intensity normalized by the illuminated photon number, respectively. (b,c) Excitation wavelength dependence of the integrated anti-Stokes PL and the integrated anti-Stokes PL “peak” intensities in Yb-doped YAG+YAM (circle), (Yb:Y)AG ceramics (star), (Yb:Y)AM ceramics (diamond). In (b), the linear summation of integrated anti-Stokes PL intensity spectra of (Yb:Y)AG and (Yb:Y)AM is shown (square).

[1]M. P. Hehlen *et al.*, Light Sci. Appl. 7, 1 (2018). [2]Z. Yang *et al.*, Opt. Express 27, 1392 (2019). [3]Y. Nakayama *et al.*, J. Soc. Mater. Sci. Japan 68, 762 (2019). [4]Y. Nakayama, Y. Harada, and T. Kita, Opt. Express 27, 34961 (2019). [5]Y. Nakayama, Y. Harada, and T. Kita, Proc. SPIE 11298, 112980B (2020). [6]Y. Nakayama, Y. Harada, and T. Kita, Appl. Phys. Lett. 117, 041104 (2020). [7]Y. Nakayama *et al.*, J. Soc. Mater. Sci. Japan 69, 727 (2020).