

立方晶系レーザー媒質の第一原理計算による熱膨張係数評価

Thermal Expansion Coefficient Evaluated by the First Principles Calculation

理研¹, 分子研² ○佐藤 庸一^{1,2}, 平等 拓範^{1,2}

RIKEN¹, Inst. Mol. Sci.², °Yoichi Sato^{1,2}, Takunori Taira^{1,2}

E-mail: yoichi.sato@spring8.or.jp

【緒言】レーザー発振器における発振出力の安定化には、レーザー媒質結晶における正確な熱パラメータに基づいた熱設計が必須となる。パラメータの中でも、特に熱膨張係数(α)は共振器における熱レンズ効果や熱複屈折効果、さらにはレーザー媒質の熱破壊に関わるために非常に重要である。代表的なレーザー結晶である $Y_3Al_5O_{12}$ (YAG)の α についても様々な実測値が報告されているが[1-6]、X線回折、押し棒式膨張計、光干渉法などの方法では試料状態によっては計測誤差が非常に大きくなるを完全に応力フリーの状態で計測することは困難である。今回我々は、応力フリーの状態におけるYAGをはじめとするレーザーセラミックス用結晶の α を第一原理計算により評価したので報告する。

【手法】YAG、LuAG、 Y_2O_3 、 Sc_2O_3 、 Lu_2O_3 についてPBEsol型の交換相関を適用したPAW法による第一原理計算を行った[7]。電子系の自己無撞着計算はQuantum Espresso Suite v6.5[8]、フォノン計算(直接法)はPhonopyをソルバーとして用い[9]、準調和近似により α を評価した。

【結果】YAGの α について計算結果と文献値の比較を図1に示す。両者の温度依存性の傾向はほぼ一致しており、また計算値と文献値に差異はあるものの計測毎のばらつきの範囲内であった。図2に各種レーザー媒質結晶 α の温度依存性を示す。ここで300 KにおけるYAG、LuAG、 Y_2O_3 、 Sc_2O_3 、 Lu_2O_3 の α はそれぞれ7.26、7.52、7.95、7.18、6.95 $\times 10^{-6}/K$ であった。

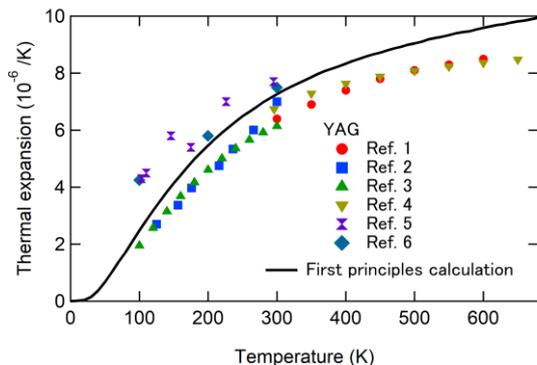


図1 YAGにおける α の計算値と実測値比較

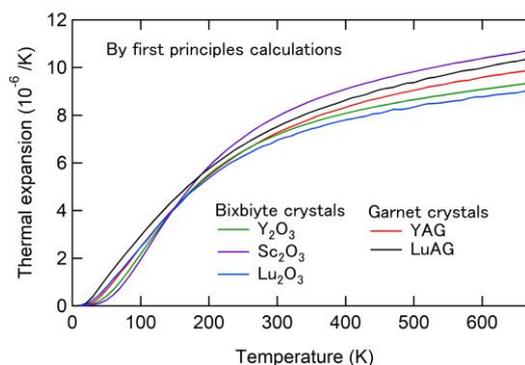


図2 各種レーザー媒質結晶 α の温度依存性

【考察】直接法を用いた第一原理計算による α の評価値と実測値との差は300 Kにおいて3%以下程度とされるが[10]、今回引用した文献値におけるばらつきは20%程度とそれ以上であった。これは実験における計測試料が完全に応力フリーになっていないことが原因であると我々は考えている。実際にはYAGへの1%程度のNd添加による α 変化は実測可能なレベルであり[5]、また試料サイズ変化自体が大きくなる大型の試料を用いた計測では α の実測値はより小さくなる傾向がある。詳細は当日報告する。

- [1] H. Furuse et al., Opt. Mat. Express **4**, 1794 (2014). [2] R. Wynne et al., Appl. Opt. **38**, 3282 (1999).
 [3] R. L. Aggarwal et al., J. Appl. Phys. **98**, 103514 (2005). [4] S. Geller et al., J. Appl. Cryst. **2**, 86 (1969).
 [5] W. J. Croft, Amer. Mineral. **50**, 1634 (1965).
 [6] W. Koechner, Solid State Laser Engineering 6th ed. p. 55, (Springer Science+Business Media Inc., New York, 2006).
 [7] A. Dal Corso, Comp. Mater. Sci. **95**, 337 (2014). [8] P. Giannozzi et al., J. Phys. Condens. Matter **29**, 465901 (2017).
 [9] A. Togo and I. Tanaka, Scr. Mater. **108**, 1 (2015). [10] A. Togo et al., Phys. Rev. B **81**, 174301 (2010).