小型ダイオード励起 Cr3+:LiSAF DFC チップによる 高出力 800-950nm 波長可変レーザー

核融合科学研究所　フュージョンエネルギー産学連携研究室
特任助教　Cassouret　Florent
（2023 年度 一奨励研究助成（若手研究者枠）　AF-2023234-C2）

キーワード：室温接合，熱拡散改善，可視レーザー

１．研究の目的と背景

$LiSrAlF_6$（以下 LiSAF）は、三方晶系 P(3¯1c)空間群に属するコルキライト型結晶材料である [1]。Cr^{3+} イオンを添加した Cr:LiSAF は、660–1110 nm にわたる広帯域近赤外発光を示すことから [2]、従来広く用いられている Ti3+添加サファイア(Ti:Sa)に代わる連続波(CW)波長可変レーザーおよびフェムト秒レーザー材料として注目されている。

Cr:LiSAF の最大の利点は、650–675 nm 付近に発振波長を有する高出力赤色レーザーダイオード（100 W 超）との吸収帯一致にある [1]。これにより、Ti:Sa に比べてより簡便かつ高効率なダイオード直接励起が可能となる。

Cr:LiSAF レーザー発振は 1989 年に Payne らによって初めて達成され、780–920 nm の波長可変範囲および 825 nm において最大 36%の効率が報告された [3]。その後、共振器設計および結晶品質の改善により、波長可変範囲は 770–1110 nm まで拡大され [4]、発振効率も 53%に向上した [5]。

近年では散乱損失 0.2%/cm 以下の高品質 Cr:LiSAF 結晶成長も実現されており [6]、レーザーしきい値 0.65 mW という低しきい値動作も報告されている [7]。しかしながら、CW 出力は依然として 3 W 程度に制限されており、その際の効率も約 10%に留まっている [8]。これは、LD アレイ励起を伴うマルチパススラブ構造による放熱能力の不足に起因する。

Demirbas らは、4 本のマルチモード LD を用いた両面励起構成により、50%効率で最大 2.4 W の出力を報告している [4]。しかし、高出力化を阻害する主因は、LiSAF がガラス様の低熱伝導特性を有する点にある。室温における熱伝導率は a 軸方向で 1 W/mK、c 軸方向で 1.68 W/mK と報告されており [9]、サファイアと比較して 10 倍以上低い [10]。

さらに、熱衝撃係数もサファイア(44 W/cm)に対して著しく小さく、LiSAF では a 軸方向で 0.84 W/cm、c 軸方向で 1.6 W/cm 程度である [11]。その結果、ロッド形状では温度勾配が a 軸方向で約 60℃、c 軸方向で約 180℃を超えると熱亀裂が発生する [11]。つまり、高出力励起により容易に熱が蓄積する。加えて、高温環境下では発光準位の熱消光が顕著となり、蛍光寿命は室温における約 70 μs から 400 K では約 8 μs にまで低下する [12]。

したがって、Cr:LiSAF を高出力レーザー媒質として利用するためには、高出力ダイオード励起時の熱制御が極めて重要である。Demirbas らは、Cr:LiSAF および類似結晶構造の Cr:LiCAF の使用にあたって低濃度・長尺結晶および大面積冷却構造により熱負荷を低減する手法を提案している [11,13]。また、薄ディスク構造も有効であり、実際に本材料系における最高出力は薄ディスク構造により達成されている [8]。

近年、Taira らにより Distributed Face Cooling(DFC)構造が提案された [14]。これは、薄いレーザー媒質を高熱伝導透明基板に接合し、両面から効率的に放熱する構造である。複数の媒質層とヒートシンク層を交互に積層することで、薄ディスク並みの放熱性能を維持しながら、有効利得長を増加できる。

本研究では、室温接合技術(interlayer surface activated bonding; il-SAB)を用いた Cr:LiSAF の熱拡散改善を目的とした。まず、8 種類の吸収ピークに対する量子収率測定を実施し、量子欠損およびエネルギー変換効率の観点から最適励起波長を検討した。次に、22–100℃におけるバルク Cr:LiSAF の熱物性を精密測定し、DFC レーザーチップ設計用熱シミュレーション精度の向上を図った。さらに、Cr:LiSAF と透明サファイアの室温接合について詳細に検討し、接合界面形成メカニズムを解析した。最後に、DFC チップを設計・作製し、初期レーザー発振試験を実施した。

２．実験方法

2・1　量子収率測定

Cr:LiSAF のダイオード励起には、InGaN/GaN レーザーダイオードによる約 430 nm、AlGaInP/GaAs レーザーダイオードによる約 630 nm、および InGaAsP/GaAs レーザーダイオードによる約 660 nm など、いくつかの波長が考えられる。高出力 InGaN/GaN レーザーダイオードの最近の進歩は目覚ましいものだが、430 nm での励起では、850 nm 付近の発振時に大きな量子欠陥が生じる。改良が進む高出力 AlGaInP/GaAs レーザーダイオードは、活性層とクラッド層の間のギャップが浅いため、InGaAsP/GaAs レーザーダイオードよりも複雑な多量子障壁層を必要とする [15]。いずれにせよ、励起波長は、Cr:LiSAF の量子効率の波長依存性および市販のレーザーダイオードの入手可能性に基づいて決定されるべきである。

開口部 10×10 mm、厚さ 1 mm の 3at.% Cr:LiSAF 単結晶の量子収率を、絶対光ルミネッセンス量子収率分光計（Quantaurus-QY C11347-11、浜松ホトニクス）を用いて評価した。この装置の波長分解能は 2 nm、励起光源の線幅は 10 nm であった。蛍光あり/なしの励起光スペクトルは、10 回の測定の平均値として得られた。

C11347-11 の蛍光測定可能波長は 950 nm までであったため、670 nm から 1200 nm までの蛍光スペクトルは、分光分解能 1 nm の蛍光分光光度計（SPEX Fluorolog3-21、堀場製作所）を用いて測定した。分光分解能 1 nm の分光光度計（U-3500、日立）を用いた試料の透過率スペクトル測定結果から、励起波長を決定した。

Cr:LiSAF の濃度消光を検証するため、直径 4 mm、厚さ 1 mm の 2 つの 1.5 原子%Cr:LiSAF 単結晶について、630 nm の励起波長における量子収率を測定した。本研究におけるすべての測定は、室温(296 K)で行われた。

2・2　熱物性測定

Cr:LiSAF の定圧比熱(Cp)を、差分走査熱量測定法(DSC)を用いて-20～220℃の範囲で測定した。測定には、直径 4.5 mm、厚さ約 1 mm の Cr:LiSAF 単結晶を用い、差分熱量計(DSC 204 F1、NETZCH)を用いて行った。比熱測定の基準物質として、非ドープ YAG 結晶を用いて測定の校正を行った。

DIN 51045 規格に従い、プッシュロッド法を用いて、a 軸および c 軸に沿って配向した直径 6 mm、長さそれぞれ 16.1 mm および 16.4 mm の 1.5 at.% Cr:LiSAF 結晶の線熱膨張を測定した。測定は、熱膨張計（DIL402 Expedis Supreme、NETZCH）を使用し、210 ml/min のヘリウムガス（純度 99.999 vol.%）を流しながら、加熱速度 5℃/min（15 点/℃）で、-100～320℃の範囲で行われた。測定に先立ち、NETZCH 社から提供された融着石英の標準試料を用いて、熱膨張計の校正を行った。測定中の試料の予期せぬ変位を防ぐため、結晶棒に 200 mN の荷重を加えた。膨張分解能は 0.1 nm、温度分解能は 0.001℃であった。

a 軸および c 軸に沿って配向させた Cr:LiSAF 試料の熱拡散率(D)を、NETZSCH 社製の Hyperflash LFA467 を用いて、ASTM E 1461-11 規格に準拠したレーザーフラッシュ法[16]により測定した。Cr:LiSAF では、69℃以上の温度でレーザー発光準位の強い熱クエンチングが発生するため[12]、測定範囲は 22～100℃の関心範囲に限定した。測定に先立ち、レーザーフラッシュの漏れ光による検出器の直接加熱を防ぐため、まずクイックコーター（SC-701 mkII Advance、サンユー電子）を用いて試料に金層をコーティングした。さらに、フラッシュエネルギーの適切な吸収と熱検出器による温度検出を確保するため、試料の両面にグラフェン層をコーティングした。最後に、上記の測定で得た比熱、熱膨張率、熱拡散率を用いて、以下の式により、両方の結晶方位における Cr:LiSAF の熱伝導率を算出することができる：

$$\kappa(T)=D(T)\times C_p(T)\times \rho(T) \quad (1)$$

ここで、κ(T)は温度 T における熱伝導率、D(T)は熱拡散率、Cp(T)は定圧比熱、ρ(T)は熱膨張係数を用いて計算された温度 T における密度である。

2・3　接合実験

最初の試験では、コーティングを施していない直径 5 mm、厚さ 1 mm の C カットサファイア結晶と、直径 5 mm、厚さ 0.5 mm の C カット Cr:LiSAF 結晶を用いて実施した。試料表面を丁寧に洗浄した後、高真空条件(4.6×10^{-5} Pa)下でイオンビームを用いた表面活性化を行った（図 1）。この活性化工程の後、化学組成の異なる 2 つの材料間の適切な結合を確保するために、表面に中間層を堆積させた。その後、試料を 100 N の力で圧着した。



図 1　接合チャンバー内で高速原子ビーム(FAB)照射を受けている Cr:LiSAF およびサファイアの写真。

これらの条件下で、Cr:LiSAF とサファイアの接合に成功した。層間堆積を行わず、Cr:LiSAF とサファイアの屈折率の不一致（それぞれ 1.39 および 1.68）を補正するために Cr:LiSAF に AR コーティングを施して同様の実験を行ったところ、こちらも接合に成功した。最後に、AR コーティングを施した厚さ 0.5 mm の Cr:LiSAF を、厚さ 1 mm のサファイア結晶 2 枚で挟んだサンプルについても、接合に成功した。

2・4　結合界面解析

接着した試料は、接着界面を分析するために半分に切断した。接着界面は透過型電子顕微鏡(TEM)(60 keV)を用いて観察し、観察可能な TEM 視野に沿って、エネルギー分散型 X 線(EDX)分析（分解能 0.1 nm）を用いて界面全体の元素組成を確認した。

3．実験成果

3・1　量子収率測定

Cr:LiSAF の吸収スペクトルには、661 nm、649 nm、631 nm、618 nm、605 nm、434 nm、および 284 nm に 8 つの吸収ピークが確認される。194 nm 付近にも吸収ピークが存在するが、これは C11347-11 の励起波長範囲外である。950 nm を超える波長域における C11347-11 によ

る測定蛍光スペクトルの補外には、c-カット Cr:LiSAF の蛍光スペクトルを用いた。量子収率測定中の吸収された励起光強度は、試料なしの状態で測定された励起光スペクトルと、試料からの蛍光を含む励起光スペクトルを比較することで推定された。すべての測定は、C11347-11 に装備された積分球を用いて、非偏光条件下で実施された。励起から蛍光への総エネルギー移動率は、励起と蛍光の積分強度の比として推定できる。同様に、量子収率（蛍光量子効率）は、強度と波長の積の比によって与えられる。原子量子効率は、エネルギー移動率と量子収率の比である。各励起波長における Cr:LiSAF の量子収率、原子量子効率、およびエネルギー効率を表 1 に示す。測定誤差は励起光吸収の有効桁数によって決定され、284 nm の励起波長を除き ±0.002 であった。284 nm の励起波長における測定誤差は ±0.01 であった。3at.% Cr:LiSAF の量子収率は、434 nm の励起を除き、約 99%と評価された。

434 nm の励起波長における量子収率は 94%であり、この低い効率は、おそらく σ 偏光の吸収率が高いことに起因している。Cr:LiSAF の最高量子収率は AlGaInP/GaAs レーザーダイオードに関連する 631 nm の励起波長で達成された。しかし、631 nm 励起ではストークスシフトが大きいため、総エネルギー変換効率の点では 661 nm 励起の方が優れていた。したがって、Cr:LiSAF の直接励起には InGaAsP/GaAs レーザーダイオードを使用すべきである。今後は、量子収率の温度依存性を確認する必要がある。630 nm の励起波長において、1.5 at.%の Cr:LiSAF の測定量子収率は 0.978 ±0.01 であり、3 at.%の Cr:LiSAF よりも劣っていた。これは、Cr:LiSAF において顕著な濃度消光は生じていないことを示している。

表 1　296K における Cr:LiSAF の量子収率、原子量子効率、およびエネルギー効率。

Pump wavelength (nm)	661	649	631	618	605	434	284
Quantum yield	0.969	0.988	0.995	0.988	0.985	0.943	0.996
Atomic quantum efficiency	0.783	0.759	0.742	0.731	0.716	0.513	0.333
Energy transfer ratio	0.745	0.756	0.741	0.723	0.705	0.483	0.334
Pump absorption	11.2%	11.1%	11.6%	10.8%	10.4%	10.7%	2.1%

3・2　バルク結晶の熱物性

室温(RT)における Cr:LiSAF の比熱の測定値は 0.774 J/g/K であり、熱レンズ分光法から算出された既報値(0.842 J/g/K)[17]よりもわずかに小さいことがわかった。

図 2 に、2 つの結晶方位における Cr:LiSAF の熱膨張係数αを-100～320℃の範囲で示す。室温において、a 軸と c 軸では符号が逆の熱膨張が観測され、それぞれ 21×10^{-6}/K および -9×10^{-6}/K であった。これらの値は、a 軸（c 軸）について以前に報告された 19×10^{-6}/K（-10×10^{-6}/K）および 22×10^{-6}/℃（-10×10^{-6}/K）に近いものである[17,18]。

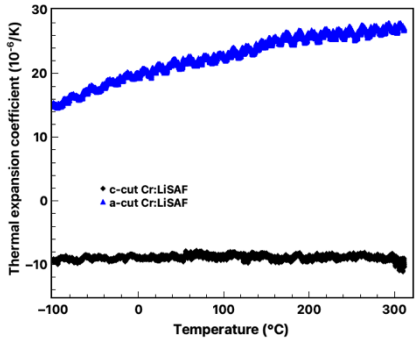


図 2　-100℃から 320℃の範囲における、a 面カットおよび c 面カットの Cr:LiSrAlF6 結晶の熱膨張率の測定。

熱拡散率の結果（各温度で実施した 7 回の測定の平均値）は、2 つの配向間にわずかな異方性を示した。25℃における a カット試料の値は 0.86 mm2/s、c カット試料の値は 0.95 mm2/s であった。c-カット試料で得られた値は、文献で報告されている値(1 mm2/s)に近いが、熱レンズ分光法によって間接的に測定された a-カット結晶の報告値（0.6 mm2/s）と比較すると、我々の直接測定ではより小さな異方性が確認された[18]。

次に、式 1 を用いて Cr:LiSAF の熱伝導率を計算し、その結果を図 3 に示す。文献で報告されている 25℃における Cr:LiSAF の熱伝導率（a カットで 1.8(1.0)W/mK、c カットで 3.0(1.68)W/mK[18,19]）と比較すると、c カットと a カットの試料間では 1.1 という、より小さい異方性が認められる。

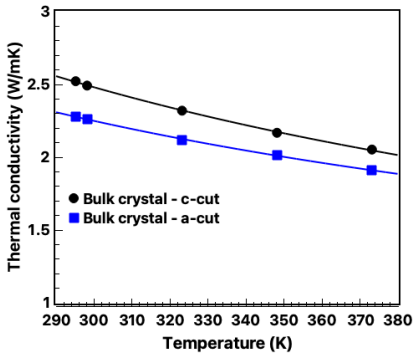


図 3　c カットおよび a カット試料について、22～100℃の範囲で測定された 1.5 at.%Cr 含有 LiSrAlF6 結晶の熱伝導率。

3・3　複合材料の熱物性

接合された Cr:LiSAF/サファイア複合材料についても熱拡散率の測定を行った。この材料は、単体結晶（室温で 0.96 mm²/s）と比較して、約 3 倍高い熱拡散率（室温で 2.69 mm²/s）を示した。複合材料の測定誤差は、単結晶（約 1%）と比較してわずかに高かった（約 3%）。複合材料の

場合、単結晶（0.2）に比べてアスペクト比（0.3）が大きいため、熱流束は軸方向だけでなく半径方向にも伝播する。その結果、熱拡散率測定の再現性が低下した。

複合材料の c 軸に沿った等方性熱伝導の場合、有効熱拡散率 D_{eff} は次の式を用いて計算できる [20]：

$$D_{eff}(T) = \frac{(l_1 + l_2)^2 \times (\xi_1(T) + \xi_2(T))}{(\xi_1(T) + 3\xi_2(T))\frac{l_1^2}{D_1(T)} + (3\xi_1(T) + \xi_2(T))\frac{l_2^2}{D_2(T)} + 6\xi_1(T) \times \xi_2(T) \times R'_{SL}(T)}$$

ここで、l_i は複合材料中の材料 i の厚さ（i = 1 はサファイア、2 は LiSAF）を表し、$\xi_i(T) = \rho_i(T)*C_{p,i}(T)*l_i$、$D_i(T)$ はその温度 T における熱拡散率、$R'_{SL}(T)$はサファイアと Cr:LiSAF の界面の熱抵抗である。本報告において、熱抵抗が有効熱拡散率に及ぼす影響は、レーザーフラッシュ法による測定誤差 3%と同程度の範囲で約 3.7%である。この場合、接合界面の熱抵抗は無視できる。

複合材料の場合、有効熱伝導率は熱拡散率、比熱、および体積質量の積とは等しくない [20]。この場合、熱流束に関するフーリエの法則から計算する必要がある。

$$\kappa_{eff}(T) = \frac{l_{Sapphire} + l_{LiSAF}}{\frac{l_{Sapphire}}{D_{Sapphire}(T)} + \frac{l_{LiSAF}}{D_{LiSAF}(T)} + xR'_{SL}(T)}$$

ここで、x は接合界面の数を表す。以前に片面接合した試料について、室温で 6.6 W/mK の熱伝導率が得られ、これはバルク Cr:LISAF(2.5 W/mK)の 2 倍以上であった。以前と同様の厚さを持つレーザー増利媒質（サンドイッチ構造材料）について両面接合を検討したところ、22℃における有効熱伝導率は 10.02 W/mK に達し、図 4 に示すように、これは本研究の重要な成果の一つ（10 W/mK）となった。

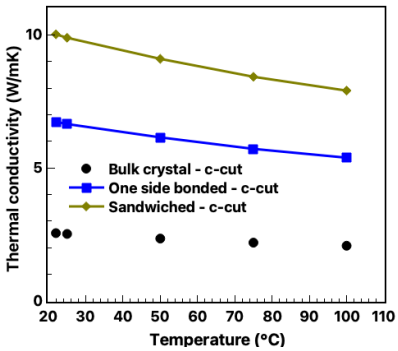


図 4　c-カットのバルク Cr:LiSAF と比較した、Cr:LiSAF/サファイア複合試料（片面接着・積層材）の実効熱伝導率。

3・4　接合界面解析

Al 中間層で接合された試料については、その結果は主に、Cr:LiSAF とサファイアの間の接合界面を通じた酸素およびフッ化物（フッ素）の拡散を示している。接合界面を形成するアモルファス層の厚さは、約 40 nm と推定される。また、接合界面は Cr:LiSAF 側により広く広がっているように見え、これは（サファイア中のフッ化物の拡散長と比較して）Cr:LiSAF 中の酸素の拡散深度がより長く、Cr:LiSAF のイオンビームに対する感度が高いことを示唆している。今後の実験では、サファイア上で得られたエッチング速度に合わせて Cr:LiSAF のイオンビーム照射時間を調整することで、アモルファス層の厚さを減らし、結合界面の強度を向上させられると見込んでいる（図 5）。

AR コーティングを施した試料の接合界面を分析したところ、Cr:LiSAF と、サファイア側の SiO2 製コーティング外層との間に、約 11 nm の薄いアモルファス層があることがわかった（図 6）。また、EDX 分析により、コーティングメーカーの仕様と比較して、最外層の SiO2 層の厚さが 44 nm から 34 nm に減少していることが明らかになり、光損失を最小限に抑えるためには、接合プロセス前にコーティングの厚さを最適化すべきであることが示唆された。

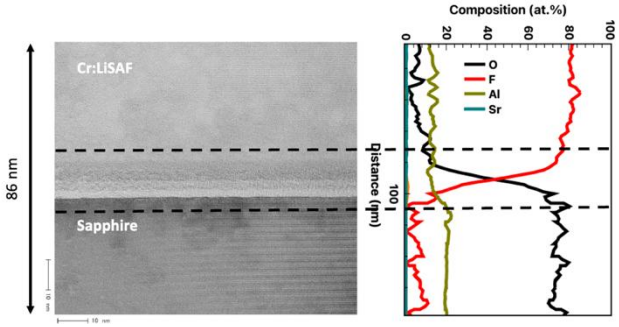


図 5　Al 中間層を用いて接合した試料について、Cr:LiSAF/サファイア接合界面の TEM 観察（左）および界面組成の EDX 分析結果（右）。

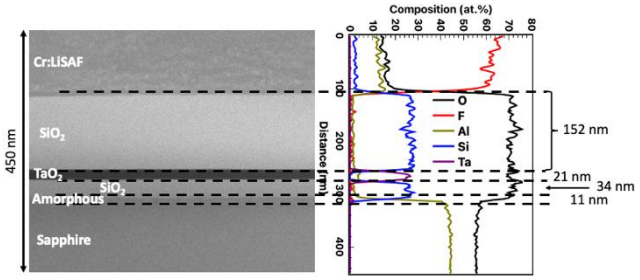


図 6　反射防止コーティングを施した試料について、Cr:LiSAF/サファイアの接合界面の TEM 観察（左）およびそれに対応する界面組成の EDX 分析（右）。

3・5　DFC チップ設計およびレーザー試験

レーザー動作用の DFC チップを適切に設計するため、上記で測定された Cr:LiSAF の熱特性の温度依存性、および [10] に記載されたサファイアの温度依存特性を COMSOL Multiphysics ソフトウェアに組み込んだ。有限要素法を用いて、CW 励起下での温度分布と熱伝達を計算した（図 7-a）。励起光は 20 W の出力とし、レーザー媒質

内では直径 1.5 mm のトップハット状の分布を持つものと仮定した。対象の DFC チップは、厚さ 0.5 – 2 mm、直径 5 mm の 1.5 at.% ドープ Cr:LiSAF プレート 9 枚を、厚さ 1 mm のサファイアプレートで挟んだ構造とした(図 7-b)。総利得長は 10.5 mm、チップ長は 20.5 mm であった。チップは、10℃の銅製ホルダー内で側面冷却されるものと仮定した。チップとホルダー間の接触を確保するため、厚さ 100 μm のインジウム層を設定した。熱分率は 0.35 と仮定した。シミュレーションにおいては、接合界面での光学的損失はゼロと仮定した。設計およびシミュレーション手法の詳細については、文献 21 を参照のこと。

結果によると、前述の励起条件下において、4 番目の Cr:LiSAF プレートでは最高温度が 75℃に達した。これはプレート厚さの増加に伴う、単一プレート内でのエネルギー吸収の絶対量増加に対応している。その他のプレートでは、最高温度は 62℃未満にとどまっている。また、同じ励起条件下で、長さ 10.5 mm のバルク Cr:LiSAF 結晶についても、同様の温度分布シミュレーションを実施した。この場合、結晶の入力面では 370℃を超える最高温度に達し、これは DFC チップ内部の最高温度の 5 倍に相当し、レーザー利得媒体における接合の熱緩和効果が顕著であることが示された。

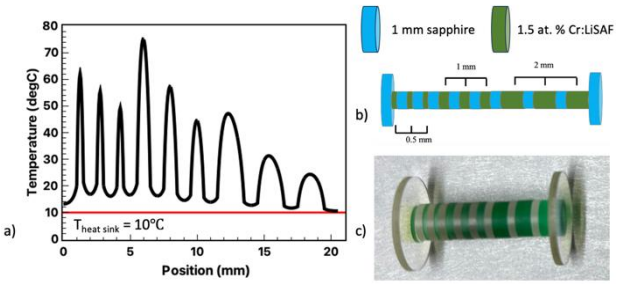


図 7　(a)ビーム径 1.5 mm、波長 675 nm、20 W の CW 励起下における、設計された Cr:LiSAF DFC チップの温度分布。(b)熱シミュレーションに使用した DFC の詳細構造、および(c)接合されたチップの写真。

COMSOL シミュレーションによって設計した DFC チップは、その後、AR コーティングを施した Cr:LiSAF 結晶とサファイアを用いて接合に成功した（図 7-c)。このチップ内のシングルパス吸収率は、675 nm において 94.6% と測定された。ピーク発光波長である 850 nm における光損失については、ビーム径 2.3 mm の 2 W Ti:Sapphire レーザーをプローブビームとして用いて調査を行った。DFC チップの 18 箇所の接合界面を通過した後の損失は、約 2.4% と測定された。AR コーティングの設計改善、特に FAB 照射前の外層厚さの最適化により、これらの損失をさらに低減できると期待される。前述の条件下で、675 nm、出力 20 W のファイバー結合型 LD モジュールを用いて予備的なレーザー試験を実施した。しかし、主にファイバー結合型モジュールのポンプビーム品質が低かったこと（M^2 値は約 80 と測定された）により、大口径ポンプビーム構成ではレーザー閾値が非常に高くなり、レーザー発振は確認されなかった。そこで、同じ励起条件下で長さ 10 mm のブリュースターカット Cr:LiSAF バルク結晶を用いた実験を行ったところ、約 10 W の励起出力で結晶に熱による亀裂が生じたのに対し、DFC チップには損傷は見られなかった。現在、より小さな励起ビーム径で最高温度を低減し、DFC チップの全長を短縮するため、チップ設計のさらなる最適化（複数のドーピング濃度、異なるアスペクト比など）を検討している。Cr:LiSAF のドーピング濃度を高めることで結晶厚さを増加させることなく、あるいは利得媒質をより高い熱伝導率を有するヒートシンク（例えば SiC やダイヤモンド）に接合することでヒートシンクプレートの厚さを低減し、DFC チップの短尺化を実現できるため、ビーム品質が低く中程度から強い集光条件で励起する場合には、より短い DFC チップの方が適していると考えられる。ポンプビームは急速に発散するためである。後者の方法については、これら新規材料に対する接合技術のさらなる開発が必要であり、今後の研究課題として検討する価値がある。

4．結論

本研究ではまず、22～100℃の範囲における Cr^{3+} ドープ LiSAF 結晶の熱的特性の温度依存性を詳細に検討した。また、284～661 nm のすべてのピーク励起波長において、この材料が高い量子収率（>94%）を示すことを初めて報告した。さらに、Al 中間層を用いた SAB 法および AR コーティングを施した Cr:LiSAF 試料を用いて、Cr:LiSAF とサファイアの常温接合に成功した。TEM および EDX による接合界面の解析から、LiSAF はサファイアに比べて表面活性化の影響を受けやすく、その結果、40 nm という比較的厚い接合中間層が形成されることが明らかになった。AR コーティングを施した試料に対する同様の分析では、界面厚は 11 nm と薄くなったが、コーティングの厚さが変化した。また、複合材料の熱特性を直接測定することで、接合による熱伝導率の向上効果を実証し、両面冷却された Cr:LiSAF 結晶において最大 10.2 W/mK の熱伝導率を示した。最後に、測定した熱特性の温度依存性を利用して有限要素法による熱シミュレーションを行い、Cr:LiSAF/サファイア DFC チップを設計した。19 枚のプレートからなるチップの高品質な接合を実現し、850 nm における光損失は 2.4%であった。接合プロセス前の AR コーティングを最適化することで、接合チップのさらなる損失低減が期待される。

この研究成果は、第 9 回 3D 集積化のための低温接合に関する国際ワークショップ(LTB-3D 2026) [22]において最優秀発表賞を受賞し、論文が『Optics Express』誌 [23]に投稿された。

結論として、本研究を通じて得られた結果は、ダイオード励起型 Cr:LiSAF またはコルキライト材料の出力スケ

ーリングにおいて有望であるが、励起システムのビーム品質に関する現在の制限を克服するためには、結晶表面品質および接合パラメータのさらなる改善が必要である。

謝　辞

著者は、研究室に受け入れてくださった平等教授、熱拡散率および量子収率の測定にご協力いただいた National Institute for Fusion Science(NIFS) の佐藤博士、Cr:LiSAF 結晶成長にご協力いただいた Leibniz Institute for Crystal Growth（IKZ、ドイツ）の田中教授、接合実験において協力いただいた小林氏、ならびに有意義な議論をしてくださった平等教授および大森教授の研究グループの皆様に、心より感謝申し上げます。

参考文献

1) K. I. Schaffers, D. A. Keszler," Acta Cryst. **C47**, 18-20 (1991).
2) U. Demirbas, S. Eggert, A. Leitenstorfer, J. Opt. Soc. Am. B 29(8), 1894-1903 (2012).
3) S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith, W. L. Kway, H. W. Newkirk, J. Appl. Phys. 66, 1051-1056 (1989).
4) U. Demirbas, L. Baali, "Opt. Lett. 40(20), 4615-4618 (2015).
5) U. Demirbas, D. Li, J. R. Birge, A. Sennaroglu, G. S. Petrich, L. A. Kolodziejski, F. X. Kartner, J. G. Fujimoto, Opt. Exp. 17(16), 14374-14388 (2009).
6) D. Klimm, G. Lacayo, P. Reiche, J. Cryst. Growth 210, 683-693 (2000).
7) V. Kubecek, R. Quintero-Torres, J.-C. Diels, Proceedings of SPIE 5137, Advanced lasers and systems, 43-47 (2003).
8) A. Dergachev, J. H. Flint, Y. Isyanova, B. Pati, E. V. Slobodtchikov, K. F. Wall, P. F. Moulton, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 13(3), 647-660 (2007).
9) M. Richardson, M. J. Soileau, P. Beaud, R. De Salvo, S. Garnov, D. J. Hagan, S. Klimentov, K. Richardson, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, E. Van Stryland, B. H. T. Chai, Proceeding of SPIE 1848, Laser-induced Damage in Optical Materials, 392-402 (1992).
10) Y. Sato, T. Taira, T. Takemasa, Opt. Exp. 33(25), 53501-53514 (2025).
11) U. Demirbas, Prog. Quantum Electron. 68, 100227 (2019).
12) S. Okuyuku, J. Thesinga, H. Tanaka, Y. Ozturk, F. X. Kartner, M. Pergament, U. Demirbas, Opt. Mat. Exp. 13(5), 1211-1227 (2023).
13) Z. Erturk, M. Kilinc, S. Okuyucu, Y. Ozturk, U. Demirbas, App. Opt. 63(4), 1144-1152 (2024).
14) T. Taira, The review of laser Engineering 50, 382 (2022).
15) K. Iga, H. Uenohara and F. Koyama, Electron. Lett. 22(19), 1008 (1986).
16) Y. Sato, T. Taira, Opt. Exp. 14(22), 10528-10536 (2006).
17) S. A. Payne, L. K. Smith, R. J. Beach, B. H. T. Chai, J. H. Tassano, L. D. DeLoach, W. L. Kway, R. W. Solarz, W. F. Krupke, App. Opt. 33(24), 5526-5536 (1994).
18) A. Steimacher, O. A. Sakai, A. C. Bento, M. L. Baesso, A. N. Medina, S. M. Lima, T. Catunda, Opt. Lett. 33(15), 1720-1722 (2008).
19) M. Richardson, M. J. Soileau, P. Beaud, R. De Salvo, S. Garnov, D. J. Hagan, S. Klimentov, K. Richardson, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, E. Van Stryland, B. H. T. Chai, Proceeding of SPIE 1848, Laser-induced Damage in Optical Materials, 392-402 (1992).
20) S. S. Nagisetty, P. Severova, T. Miura, M. Smrz, H. Kon, M. Uomoto, T. Shimatsu, M. Kawasaki, T. Higashiguchi, A. Endo, Laser Phys. Lett. 14(1), 015001 (2017).
21) F. Cassouret, T. Taira, Proceedings of SPIE 12864, Solid State Lasers XXXIII: Technology and Devices, 128640N-1 (2024).
22) https://imsi.jp/ltb3d//ltb3d-2026/awards.html
23) F. Cassouret, Y. Sato, H. Tanaka, T. Taira, paper submitted to Opt. Exp. in June 2026.