

2021年8月11日

# DFC-PowerChipに向けた 高度焼結プロセスの開発

理化学研究所 レーザー駆動電子加速技術開発G  
佐藤 庸一

# Outline

---

- Subjectives
- Independent elements in material parameters
- Orientation control of microdomains with the isometric-symmetry
- Bi-axial orientation control of YAG
- Research direction
- Equipment installing
- Development of vacuum furnace
- Planning devices
- Temperature dependent spectroscopy
- Conclusion (management of research stages)

# 研究の内容

## ⑤ YAGセラミックスの配向制御

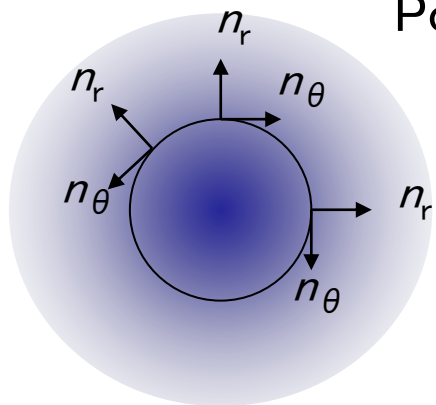
YAGセラミックスの外場による配向制御を可能とするための焼結プロセスの高度化検討を実施

## ⑫ 熱特性評価

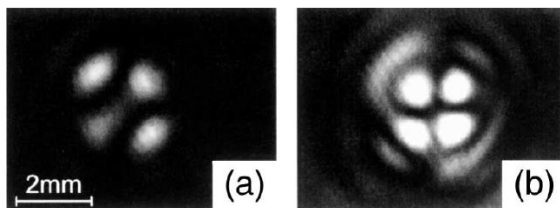
チップ全体の熱伝導率などの評価とDFCにおける排熱特性評価を行い、システム全体の熱設計パラメータを整備

# Why orientation controlled YAG ceramics ?

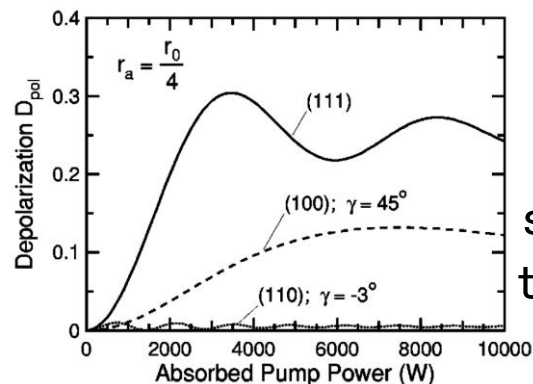
## Thermal depolarization



Power diffracted by thermally induced birefringence



Opt. Lett. 27, 234 (2002).

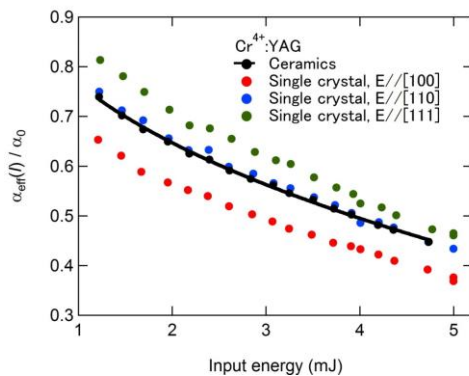
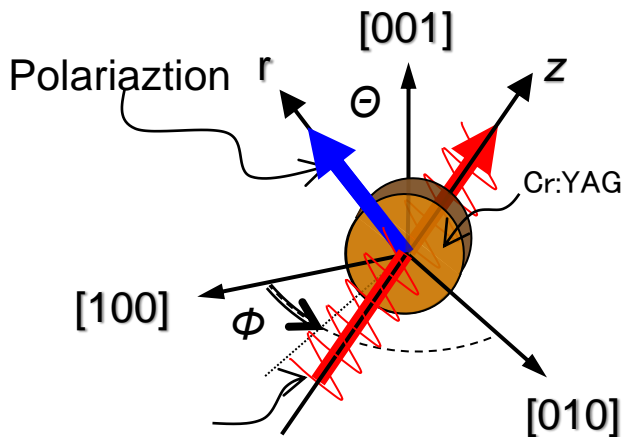


Thermal birefringence can be suppressed by the orientation control

Fig. 5. Dependence of the depolarization on the absorbed pump power for the (111), (100), and (110) planes when  $r_a = r_0/4$ .

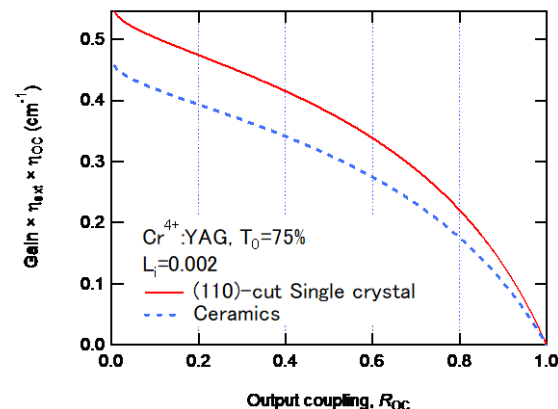
Appl. Phys. Lett. 80, 3048 (2002).

## Q-switching response



Saturable absorption depends on the crystal orientation

LIC2019, LICp-9 (2019).



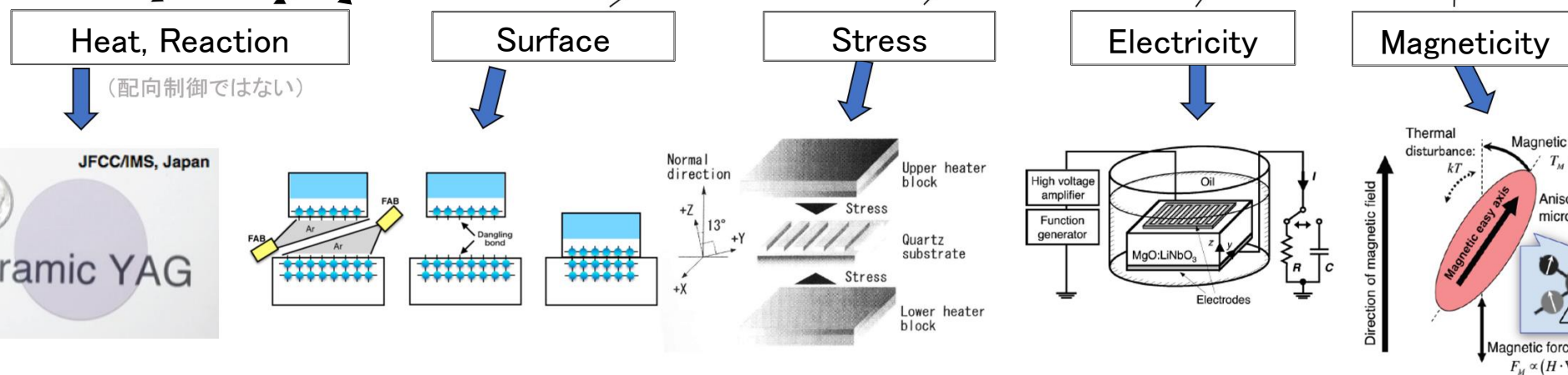
Random orientation causes 20% of power reduction

# Microdomain control

Torque for orientation control: 
$$T = -\frac{\partial G}{\partial \theta}$$

$G$  can be modulated by external field

$$dG = -SdT + \sum_i \mu_i dN_i - \sum_i V_i \gamma_{GB} d\left(\frac{1}{r_i}\right) - V \sum_{i,j} \varepsilon_{ij} d\sigma_{ij} - \mathbf{P} \cdot d\mathbf{E} - \mathbf{M} \cdot d\mathbf{B}$$



I. Shoji et al., Appl. Phys. Lett. 77, 939 (2000).

L. Zheng et al., Opt. Mat. Express 7, 3214 (2017).

M. Harada et al., J. Materi. Res. 19, 969 (2004).

H. Ishizuki et al., Appl. Phys. Lett. 82, 4062 (2003).

J. Akiyama et al., Opt. Lett. 35, 3598 (2010).

# Independent parameters in materials

$$\Delta G = -S \Delta T + \sum_i \mu_i \Delta N_i - V \sum_{ijkl} \varepsilon_{ij} \Delta \sigma_{kl} - \sum_{ij} D_i \cdot \Delta E_j - \sum_{ij} B_i \cdot \Delta H_j + \dots$$

Scalar quantity

(Heat capacity  $C_p = \frac{\partial S}{\partial T} = -\frac{\partial^2 G}{\partial T^2}$  )

1<sup>st</sup> order tensor quantity

(Pyroelectric constant  $p_i = -\frac{\partial D_i}{\partial T} = -\frac{\partial^2 G}{\partial T \partial E_i}$  )

2<sup>nd</sup> order tensor quantity

(Magnetic susceptibility  $\mu_{ij} = -\frac{\partial^2 G}{\partial H_j \partial H_i}$  , Dielectric constant, Thermal expansion, Thermal conductivity, etc.)

3<sup>rd</sup> order tensor quantity

(Piezoelectric constant  $d_{ijk} = -\frac{\partial^2 G}{\partial \sigma_{ij} \partial E_i}$  , Piezomagnetic constant, SHG tensor, Pockels effect, etc.)

4<sup>th</sup> order tensor quantity

(Elastic compliance  $S_{ijk} = -\frac{\partial^2 G}{\partial \sigma_{ij} \partial \sigma_{kl}}$  , Opt-elastic effect, etc. )

Axes	System	Inversion	Symmetry	1 <sup>st</sup> order	2 <sup>nd</sup> order		3 <sup>rd</sup> order		4 <sup>th</sup> order		
				Pyroelectricity	Susceptibility / Expansion	Optical gyration / Magnet-dielectric	Piezoelectricity / SHG	Piezomagnetcity	Elastic constant / Photoelasticity		
Isotropic		○		0	1	0	0	0	2		
Isometric	Cubic	○	T <sub>h</sub> O <sub>h</sub>								
		×	O T <sub>d</sub> T	0 1 1		1 0 1	0 1 1	0 1 1	3		
Uni-axial	Hexagonal	○	D <sub>6h</sub> C <sub>6h</sub>	0		2	0	0		1 4	5
		×	D <sub>3h</sub> D <sub>6</sub> C <sub>3h</sub> C <sub>6v</sub> C <sub>6</sub>	2	0 2 0 0 2		1 1 2 3 4	1 1 4 1 4			
	Tetragonal	○	D <sub>4h</sub> C <sub>4h</sub>	0	2		0	0	1 4	6 7	
		×	D <sub>4</sub> D <sub>2d</sub> C <sub>4v</sub> C <sub>4</sub> S <sub>4</sub>	2			2 1 0 2	1 2 2 4	1 1 1 4	6 6 6 7	
	Trigonal	○	D <sub>3d</sub> S <sub>6</sub>	0	2		0	0	2 6	6 7	
		×	D <sub>3</sub> C <sub>3v</sub> C <sub>3</sub>	2			2 0 2	2 4 6	2 2 6	6 6 7	
Bi-axial	Orthorhombic	○	D <sub>2h</sub>	0	3	0	0	3	9		
		×	D <sub>2h</sub> C <sub>2v</sub>	3		3 2	3 5				
	Monoclinic	○	C <sub>2h</sub>	0	5	0	0	8	13		
		×	C <sub>2</sub> C <sub>s</sub>	3		5 4	8 10				
Triclinic	○ ×	C <sub>i</sub> C <sub>1</sub>	0 3	9	0 9	0 18	18	21			

Axes	System	Inversion	Symmetry	1 <sup>st</sup> order	2 <sup>nd</sup> order	3 <sup>rd</sup> order	4 <sup>th</sup> order						
				Pyroelectricity	Susceptibility / Expansion	Optical gyration / Magnet-dielectric	Piezoelectricity / SHG	Piezomagnetivity	Elastic constant / Photoelasticity				
Isotropic		○		0	0	0	0	0	2				
Isometric	Cubic	○	$T_h, O_h$	0	1	0	0	0	3				
		○	$O$	0	1	1	0	0					
		×	$T_d$	1	0	0	1	1					
		×	$T$	1	1	1	1	1					
Uni-axial	Hexagonal	○	$D_{6h}, C_{6h}$	0	2	0	0	1	5				
		×	$D_{3h}, D_6, C_{3h}, C_{6v}, C_6$	2		0	1	1					
	Tetragonal	○	$D_{4h}, C_{4h}$	0		0	0	1		4	6		
		×	$D_4, D_{2d}, C_{4v}, C_2, S_4$	2		2	1	2		1			
	Trigonal	○	$D_{3d}, S_6$	0		0	0	0		2	6	7	
		×	$D_3, C_{3v}, C_3$	2		2	0	2		2			
	Bi-axial	Orthorhombic	○	$D_{2h}$		0	3	0		0	0	9	
			×	$D_{2h}, C_{2v}$		3		3		3	3		
Monoclinic		○	$C_{2h}$	0	5	0		0	0	8			
		×	$C_2, C_s$	3		5		8	8				
Triclinic		○	$C_i$	0		9		0	0		0		18
		×	$C_1$	3				9	9		18		

No need to controlling the orientation of grains

Uni-axial orientation control required

Bi-axial orientation control required



Axes	System	Inversion	Symmetry	1 <sup>st</sup> order	2 <sup>nd</sup> order	3 <sup>rd</sup> order	4 <sup>th</sup> order						
				Pyroelectricity	Susceptibility / Expansion	Optical gyration / Magnet-dielectric	Piezoelectricity / SHG	Piezomagnetivity	Elastic constant / Photoelasticity				
Isotropic		○		0	0	0	0	0	2				
Isometric	Cubic	○	$T_h, O_h$	0	1	0	0	0	3 Our target				
		○	$O$	0	1	1	0	0					
		×	$T_d$	1	0	0	1	1					
		×	$T$	1	1	1	1	1					
Uni-axial	Hexagonal	○	$D_{6h}, C_{6h}$	0	2	0	0	1	5				
		×	$D_{3h}, D_6, C_{3h}, C_{6v}, C_6$	2		0	1	1					
	Tetragonal	○	$D_{4h}, C_{4h}$	0		0	0	1		4	6		
		×	$D_4, D_{2d}, C_{4v}, C_2, S_4$	2		2	1	2		1	6		
	Trigonal	○	$D_{3d}, S_6$	0		0	0	0		2	6		
		×	$D_3, C_{3v}, C_3$	2		2	0	2		2	6		
	Bi-axial	Orthorhombic	○	$D_{2h}$		0	3	0		0	3	9	
			×	$D_{2h}, C_{2v}$		3		3		3	3		
Monoclinic		○	$C_{2h}$	0	5	0		0	8	13			
		×	$C_2, C_s$	3		5		8	8				
Triclinic		○	$C_i$	0		9		0	0		18		21
		×	$C_1$	3				9	18		18		

No need to controlling the orientation of grains

Our target

Uni-axial orientation control required

Bi-axial orientation control required

# External force fields for cubic crystals

**Bi-axial orientation control is impossible !**

2<sup>nd</sup> order tensor quantity

Tensile stress:                      Orthogonal axes to [111] can be controlled

$$-(S_{11} - S_{12})\boldsymbol{\sigma} \cdot \Delta\boldsymbol{\sigma} \leq \Delta G \leq -(S_{11} + 2S_{12})\boldsymbol{\sigma} \cdot \Delta\boldsymbol{\sigma}$$

Share stress:                      Axes control impossible

1<sup>st</sup> order tensor quantity

Electric field (polar tensor)

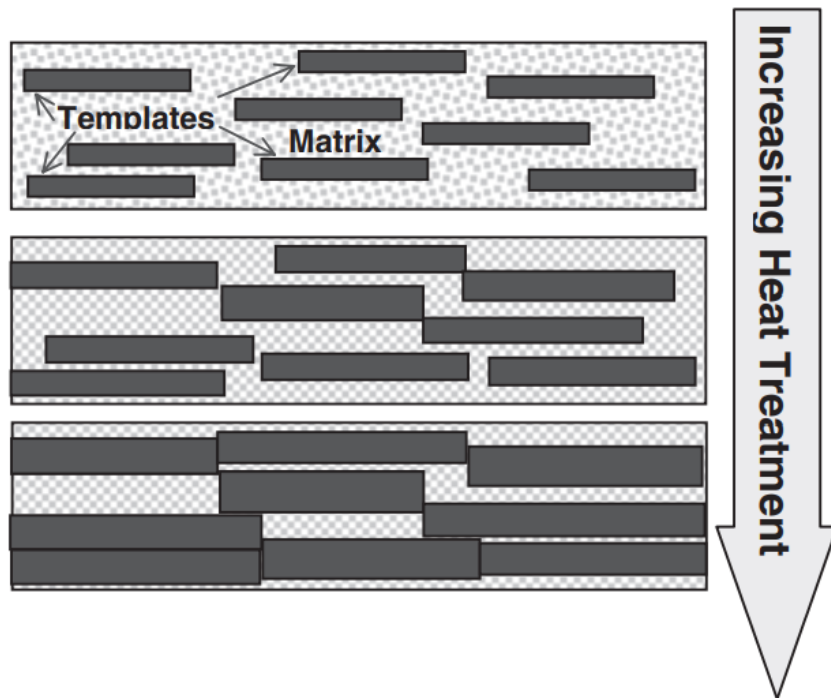
Magnetic field (axial tensor)

Higher order contribution can be anisotropic

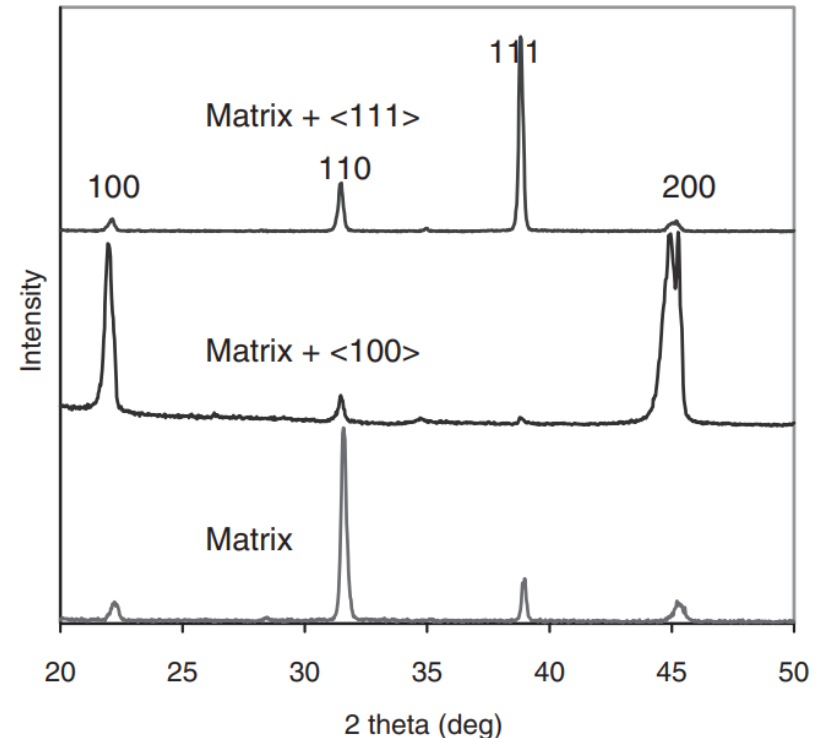
Between [100] and [111] : not orthogonal

# Templated guiding grain growth (TGG)

M. M. Seabaugh et al., J. Intelligent Mater. Systems Struc. 15, 209 (2004).



**Figure 1.** Schematic of the TGG Process.



**Figure 13.** XRD patterns for matrix and textured PMN-PT materials.

**Full-axes control can be applied to isometric crystals.**

# 研究方針概略

## ・ TGG駆動力を有するYAGセラミックスの開発

原料粉末の粒度・粒子形状・密度・分光特性の評価環境整備 (R2年度)

無水での粉体調製プロセスの確立 (R3年度)

高温真空焼成設備の導入 (R3年度)

サブミクロンの粒界構造を有するYAGセラミックスの合成 (R3年度)

## ・ YAGセラミックスのTGG駆動力確認

セラミックス/YAG単結晶接合界面における粒成長評価 (R3年度)

YAGセラミックス/ YAG単結晶接合試料の温度勾配下でのTGG粒成長 (R4年度～)

## ・ 配向制御YAGセラミックスの高品質化

HIP/SPS処理等によるTGG粒成長実施後のYAG接合試料の高品質化 (R4年度～)

配向制御YAGセラミックスの熱伝導率の評価環境整備 (R4年度)

配向制御YAGセラミックスの熱膨張係数の評価環境整備 (R5年度)

**配向制御YAGセラミックスによる熱効果低減実現・実機への展開 (R6年度)**

# Severe problem of TGG method

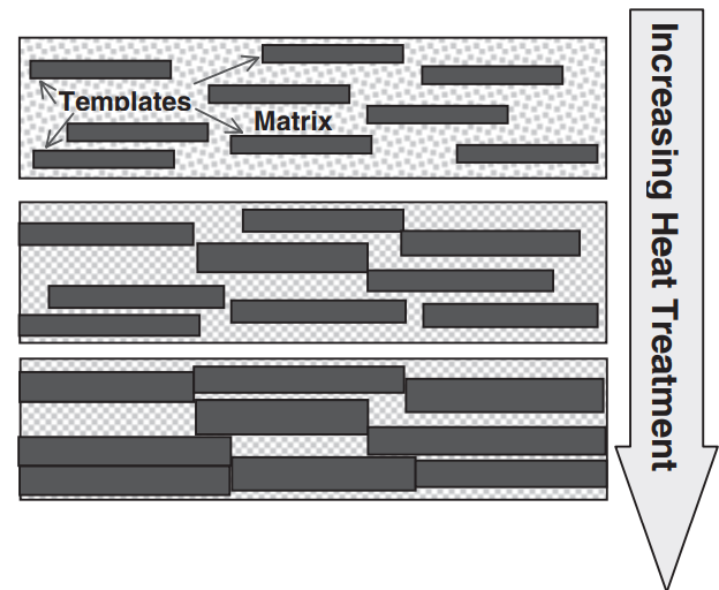
Driving force of orientation control is grain growth (Ostwald ripening).



During sintering, driving force quickly reduced as increasing grain size



**We have to suppress grain-growth at matrices apart from templates during sintering process.**



*Figure 1. Schematic of the TGG Process.*

# Another problem in grain growth of YAG

**Requiring vacuum furnace operatable above 1700 degC**

A. Ikesue (World Lab.)

Grain growth of the specimen occurs little up to 1400 °C, slightly at 1500 °C, and accelerated remarkably above 1600 °C.

(J. Ameri. Ceram. Soc. 78, 1033, (1995).)

H. Yagi (Konoshima Chem.)

1550 °Cの焼結では0.5 $\mu$ mまでしか結晶成長しない  
焼成末期段階は1600 °C~1750 °Cに相当する

(Ph.D Thesis, UEC 2006.)

# First research directions

1. Development of the vacuum sintering furnace
  - Vacuum furnace operatable above 1700 degC
  - Controllable of temperature distribution
2. Improvement of environment for ceramic processes
  - Characterization of powder properties
  - Preparation of powder treatments
  - Observation of raw-materials and sintered specimen
3. Evaluation of thermal and optical properies

# Ceramic process equipment

## セラミックプロセス関連設備@SPring-8

- ・2021年度: 溶媒回収装置(スペック検討中)
- ・2021年度: 高温雰囲気焼成炉(仕様及び業者決定)
- ・2020年度: 卓上型走査電子顕微鏡+ EDS(JCM-7000、日本電子)
- ・2020年度: 真密度計測器(Accupyc II 1345、マイクロメリティクス)
- ・2020年度: 粒度分布計測装置(LA-960V2、堀場製作所)
- ・2019年度: 脱脂炉、乾燥機、真空乾燥器(FO410、DY400、DP300、ヤマト科学)
- ・2018年度: デジタルマイクロスコープ(DVM6A、ライカ)(MIRAI研究費)
- ・2018年度: 冷間等方圧プレス機(CPA50-200、三庄インダストリー)(コンポン研共同研究費)
- ・2017年度: かさ密度計測器(Geopyc 1365、マイクロメリティクス)(コンポン研共同研究費)
- ・2008年度: 高温ボックス炉(KBF524N1、光洋サーモシステム)(コンポン研共同研究費)
- ・その他の装置(ダイサー、ワイヤソー、研磨機、ラップ盤)



# Equipment for optical and thermal properties

## 主要熱機械・光学評価関連設備@SPring-8

- ・2023年度(予定): 熱膨張係数評価装置
- ・2022年度(予定): 熱伝達係数評価装置
- ・2020年度: 液体窒素冷却光学クライオスタット(TLNOS-4LW, テラダ)
- ・2019年度: 材料探索用計算機(RADIC 2CPU、テガラ)
- ・2019年度: 高感度アレイ光検出器(iDUS DU-491A、アンドール)(MIRAI研究費)
- ・2011年度: 輝度計測用標準光源(PS-ST200、日本分光)(コンポン研共同研究費)
- ・2011年度: 積分球(Labsphere)(コンポン研共同研究費)
- ・2005年度: 近赤外光電子増倍管(R5509-42、浜松ホトニクス)
- ・2005年度: 1m変形ツェルニーターナ型分光器(CT-100、日本分光)
- ・2001年度: 波長可変OPO光源(MOPO-HF、スペクトラフィジックス): メーカーサポート終了

# 令和二年度導入設備

## ワイドレンジ光学プローバ(テラダ)

- TLNOS-4LW:(株)テラダ
- 光学計測クライオスタット(100 K~500 K)



公告開始:12/11  
入札締切:12/28  
開 札:01/08  
納 品:03/11

## 真密度計測器(島津製作所)

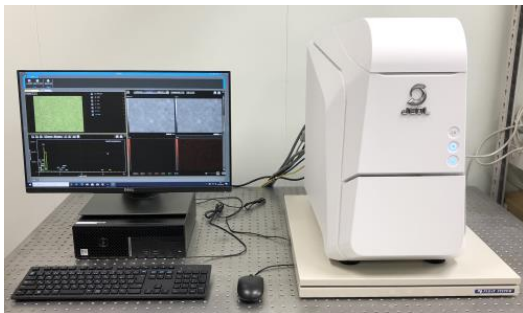
- AccuPycII 1345:遠藤科学(株)
- Heピクノメータ(10 cc)



公告開始:12/10  
入札締切:12/25  
開 札:01/07  
納 品:03/24

## 卓上型走査型電子顕微鏡(日本電子)

- JCM-7000:日本電子(株)
- EDS計測オプション搭載



公告開始:12/01  
入札締切:12/16  
開 札:12/23  
納 品:03/11

## 粒度分布計測装置(堀場製作所)

- LA-960V2:西進商事(株)
- 対応粒径10nm~3mm、画像処理機能



公告開始:12/11  
入札締切:12/28  
開 札:01/08  
納 品:03/24

# 令和二年度導入設備①

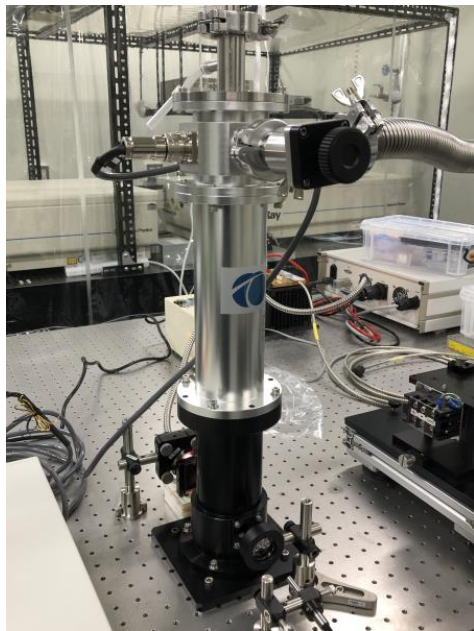
## 光学計測クライオスタット(100 K~500 K)

- 商品名: ワイドレンジ光学プローバ
- 型番: TLNOS-4LW
- メーカー: (株)テラダ

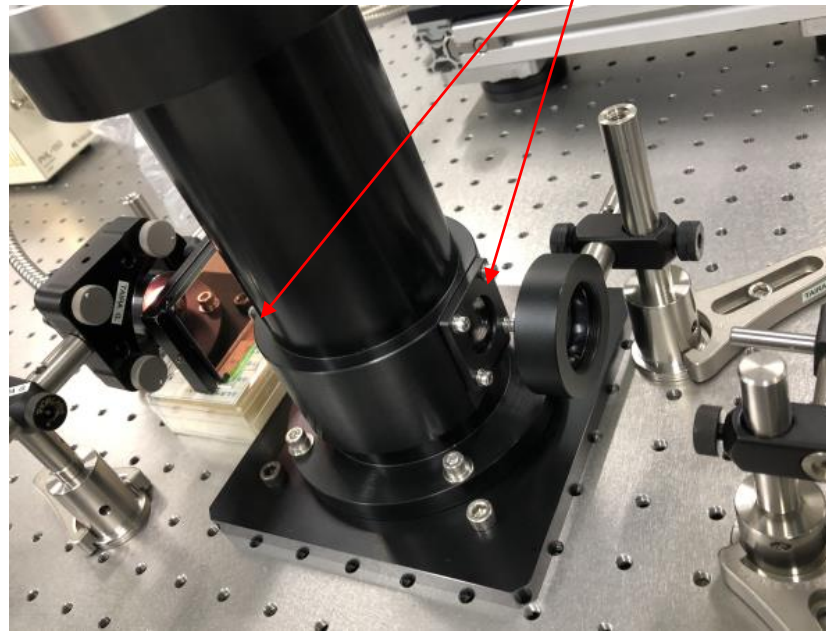
対向2面の光学窓  $\phi 20\text{mm}$ を装備

## 一般競争入札

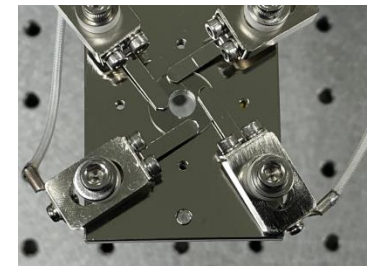
公告開始: 12/11 入札締切: 12/28  
開札: 01/08 納品: 03/11



装置本体

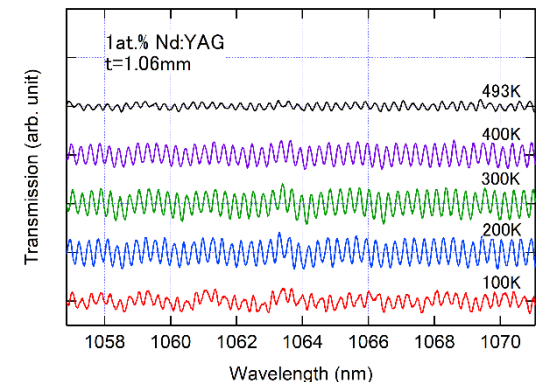


分光実験配置例  
(透過スペクトル計測実験)



試料ステージ

(Nd:YAGセラミックスをプローブで固定)



計測実験データ例  
(屈折率温度係数の評価)

必要とする計測データを取得できることを確認

# 令和二年度導入設備②

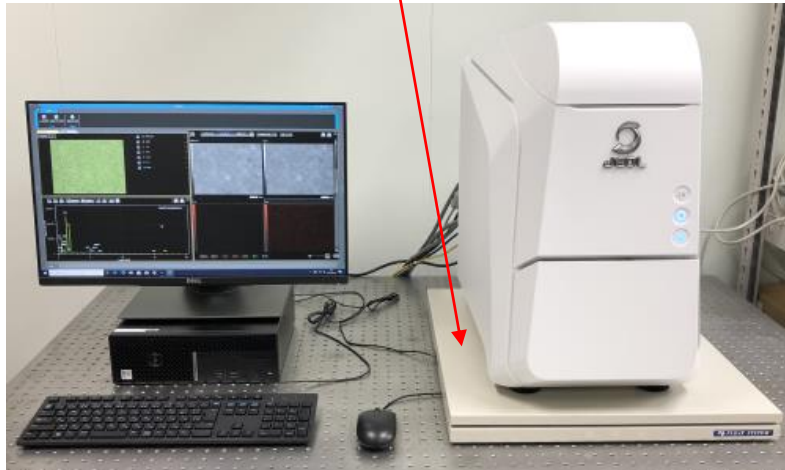
## 卓上型走査電子顕微鏡

- 商品名: 卓上走査電子顕微鏡 NeoScope™
  - 型番: JCM-7000
  - メーカー: 日本電子(株)

## 一般競争入札

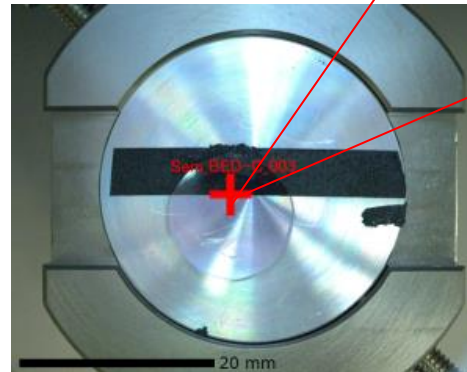
公告開始: 12/01 入札締切: 12/16  
開札: 12/23 納品: 03/11

光学定盤+専用除振台により倍率x10,000を実現



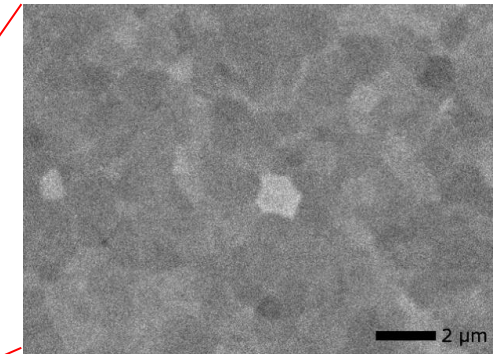
装置本体

サンプル写真から  
計測位置を指定可能

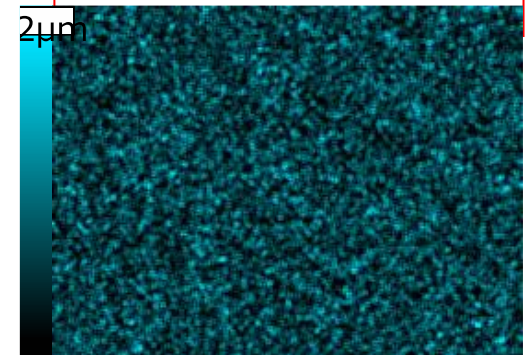


## 試料ステージ

(神島化学製4.0at.%Nd:YAG  
セラミックスをカーボンテープで固定)



反射電子像  
(研磨後表面の粒界構造評価)



EDSによるNdマッピング  
(粒界でのNdの偏析は確認されない)

必要とする計測データを取得できることを確認

# 令和二年度導入設備③

## 真密度計測器

- 商品名: 乾式自動密度計 ACCUPYC II
  - 型番: MIC-1345-10cc
  - メーカー: (株)島津製作所

## 一般競争入札

公告開始: 12/10 入札締切: 12/25  
開札: 01/07 納品: 03/24



装置本体

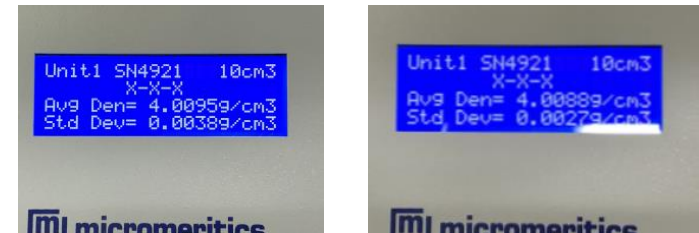


計測用セル及び  
校正用試料



サンプル室

## 住友化学製アルミナ粉末 (AKP-30)の密度計測結果



1回目:  $4.0095 \pm 0.0038 \text{ g/cm}^3$

1回目:  $4.0088 \pm 0.0027 \text{ g/cm}^3$

2回の計測結果は偏差内で一致。  
(サファイアは $3.97 \text{ g/cm}^3$ )

# 令和二年度導入設備④

## 粒度分布計測装置

- 商品名: レーザ回折/散乱式粒子径分布測定装置
  - 型番: Partica LA-960V2
  - メーカー: (株)堀場製作所

一般競争入札

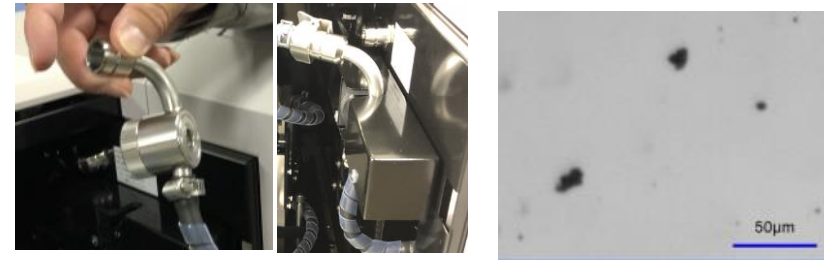
公告開始: 12/11 入札締切: 12/28  
開札: 01/08 納品: 03/24



装置本体

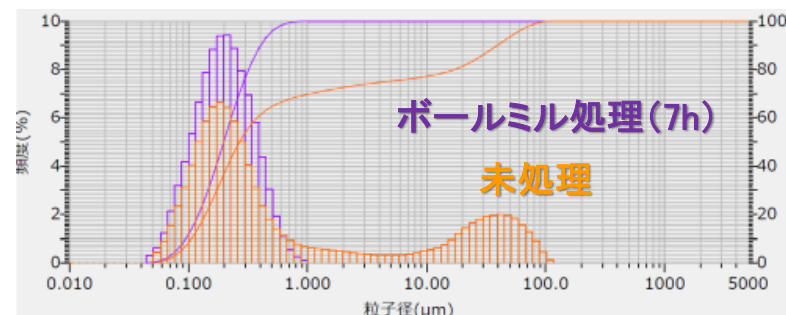


回折計測用  
フローセル



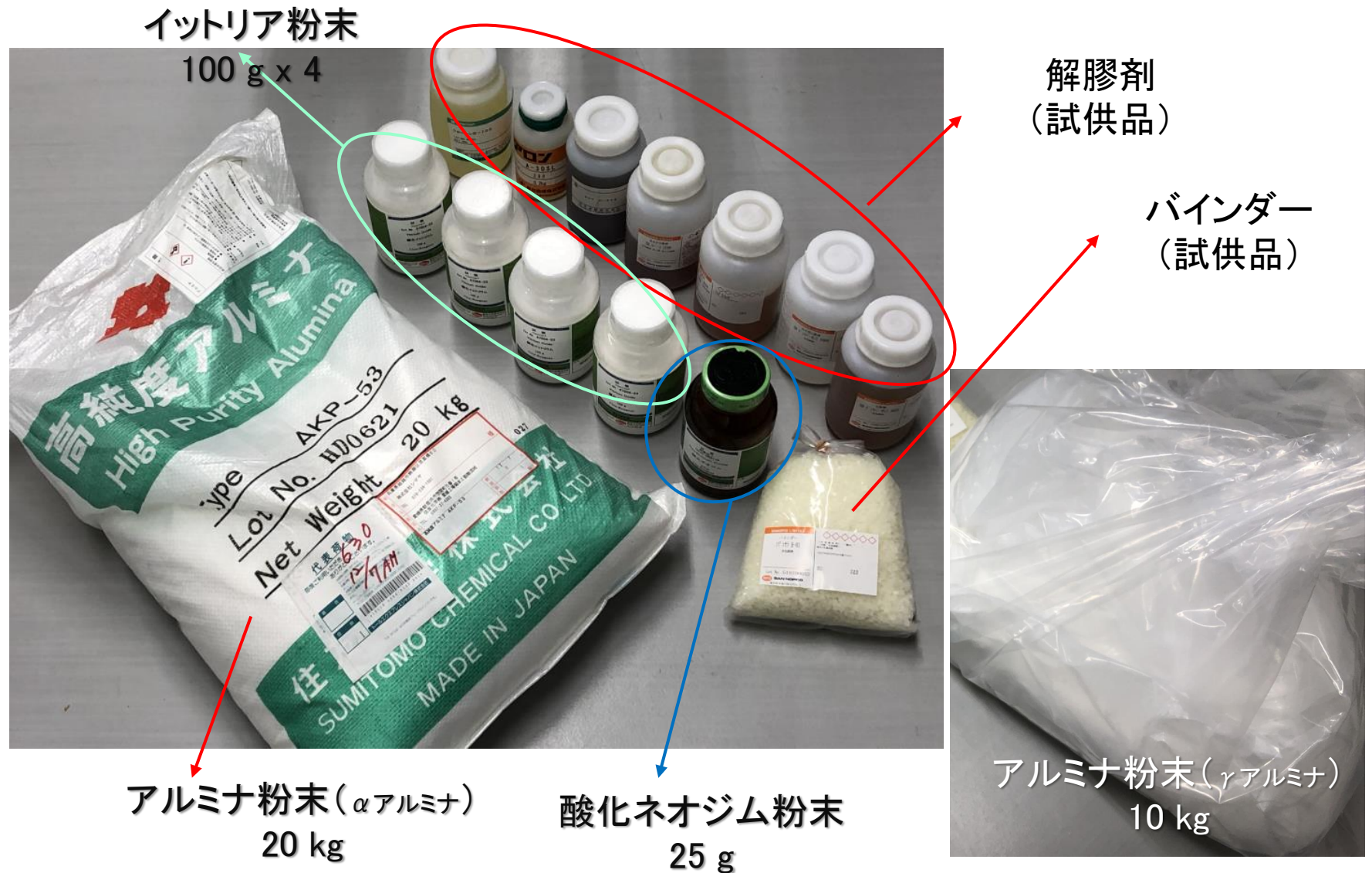
画像解析ユニットおよび計測画像例  
(粒度分布計測中に粒子画像を取得可能)

アルミナ粉末AKP-30の粒度分布計測結果



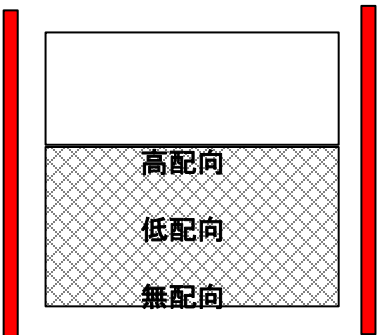
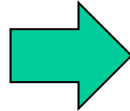
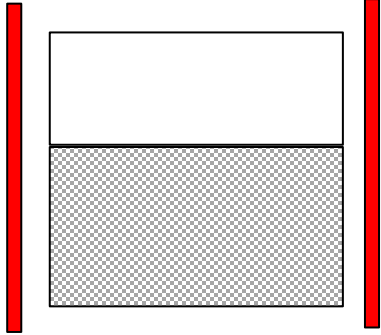
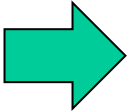
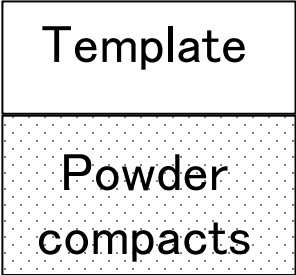
ボールミル  
処理により  
二次粒子の  
解砕を確認

# 令和二年度購入消耗品例

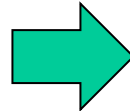
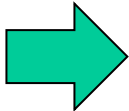
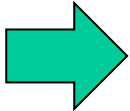
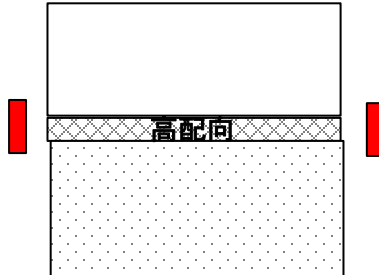
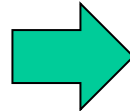
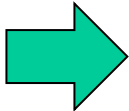
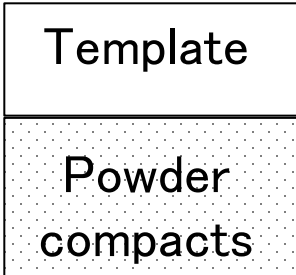


# Control of temperature distribution in furnace

Uncontrolled



Controlled





# Alignment by the unidirectional solidification

## 単結晶-セラミックスの常温接合技術をコアにした新しい配向制御法

同組成材料の接合なので熱膨張率差が非常に小さく、プロセス創生において温度制御が利用できる

単結晶Nd:YAG

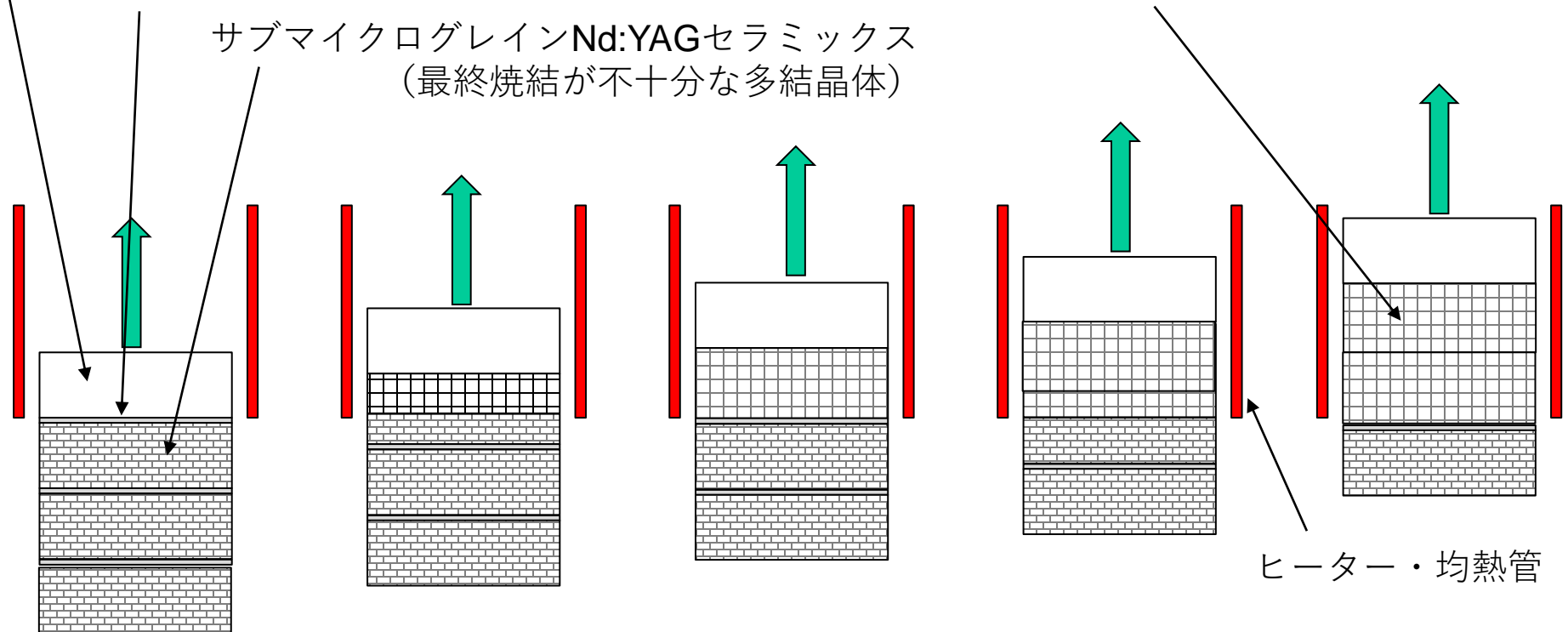
SiO<sub>2</sub>層 (焼結助剤)

サブマイクログレインNd:YAGセラミックス  
(最終焼結が不十分な多結晶体)

TGG機構下で粒成長した

Nd:YAGセラミックス

(YAG単結晶の面方位が配向の制御軸となる)



メルトからの一方向凝固に準じた機構で配向制御が可能？

# 高温雰囲気焼成炉の仕様検討

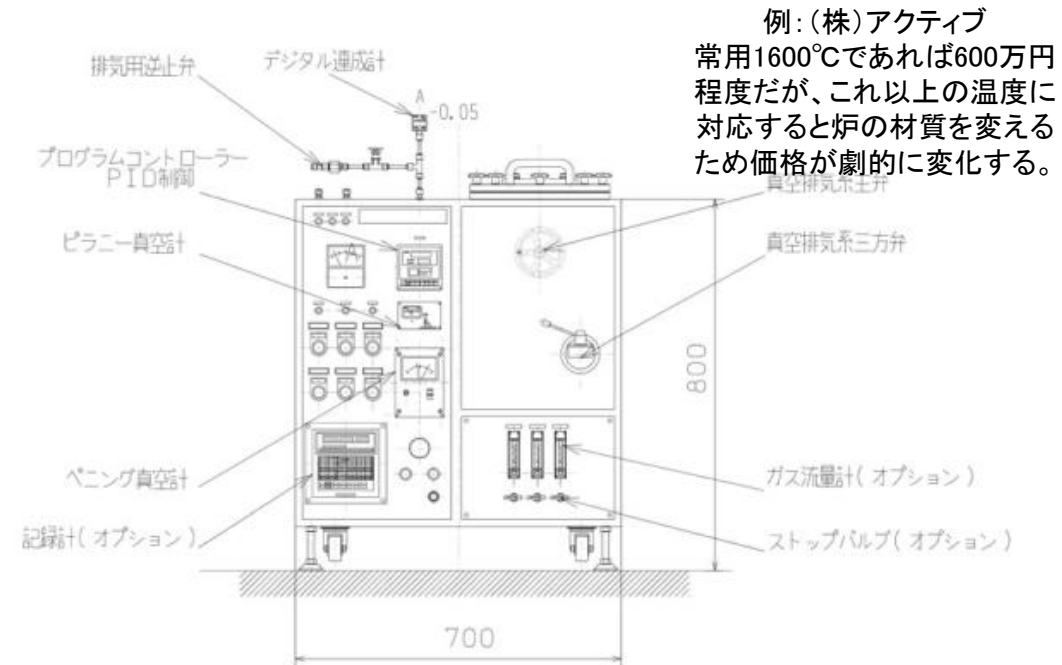
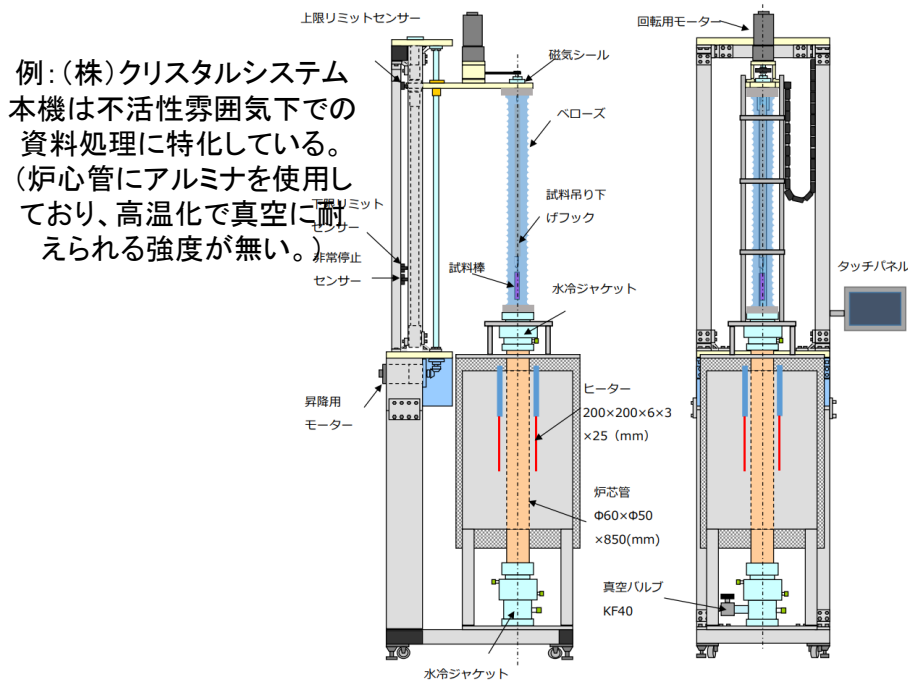
市販の真空一方向凝固炉(常用1800°C以上)は調達価格2500万円以上

## 格安ブリッジマン炉

- 常用1750°C(特注)で税込価格870万円
  - このカタログ品は真空焼成不可
  - 真空焼成可能な形への改造が必要

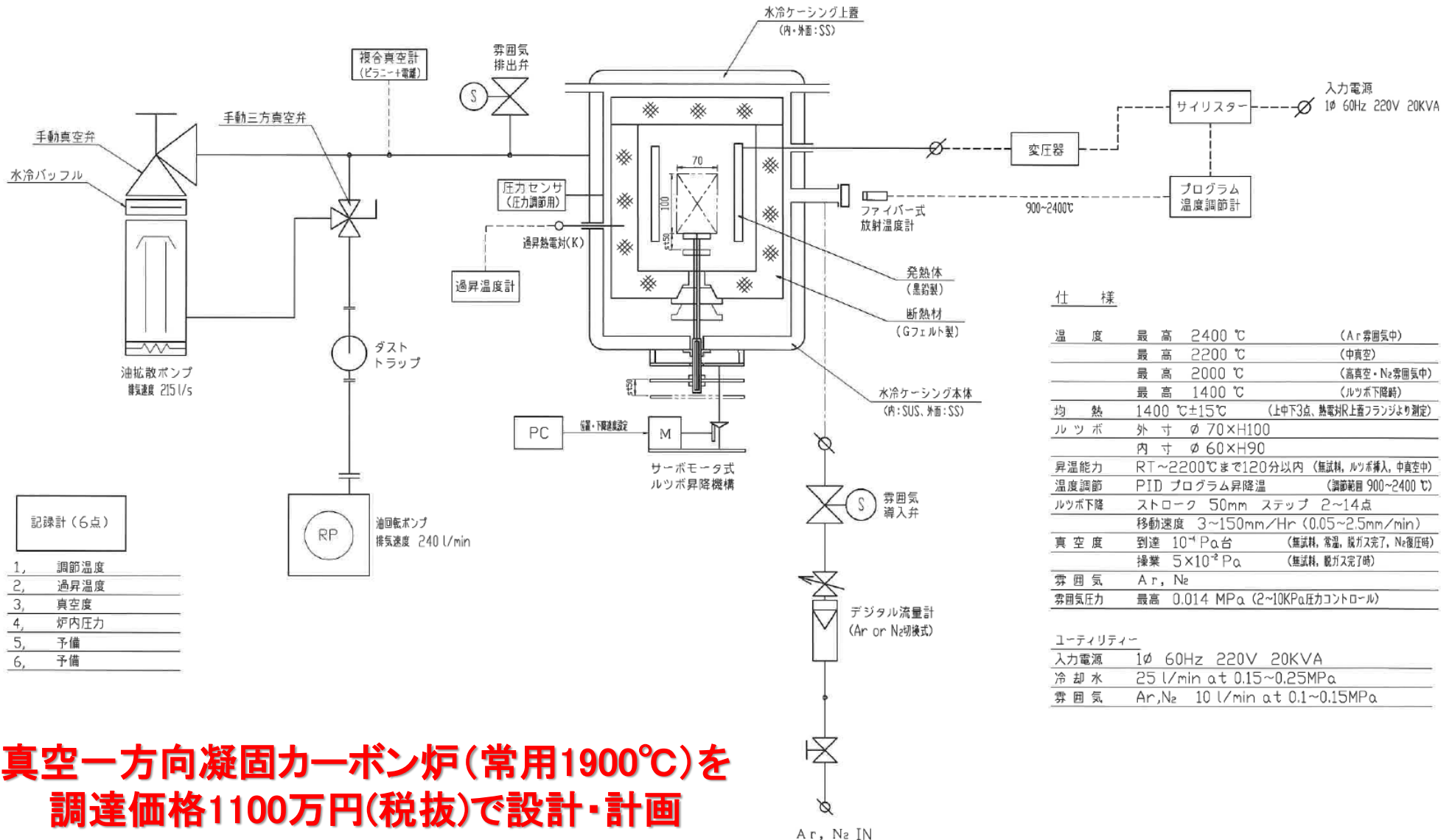
## 格安メタル真空炉

- 常用1800°C対応で税込価格1155万円
  - カatalog品は試料台固定
  - 試料台移動可能な形への特注が必要



**必要機能を税抜価格1100万円程度で実現できるよう、発注先を含め検討**

# 導入計画(7/14落札案件by倉田技研)



**真空一方向凝固カーボン炉(常用1900℃)を  
調達価格1100万円(税抜)で設計・計画**

# 溶媒回収装置の導入

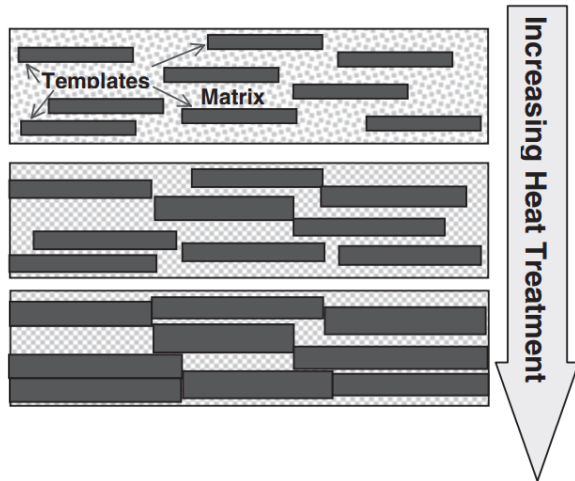


Figure 1. Schematic of the TGG Process.

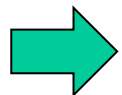
TGG growth requires intense driving force of grain-growth



**Solid-state reaction method should be preferable to calcination.**

『(希土類)酸化物は空気中の水分、炭酸ガスと反応して水酸化物、炭酸塩になるなど変質による物的損害、トラブルが発生』

(新金属協会 希土類製品の製造および使用上の注意事項／ガイドライン p.3 (2016年6月))

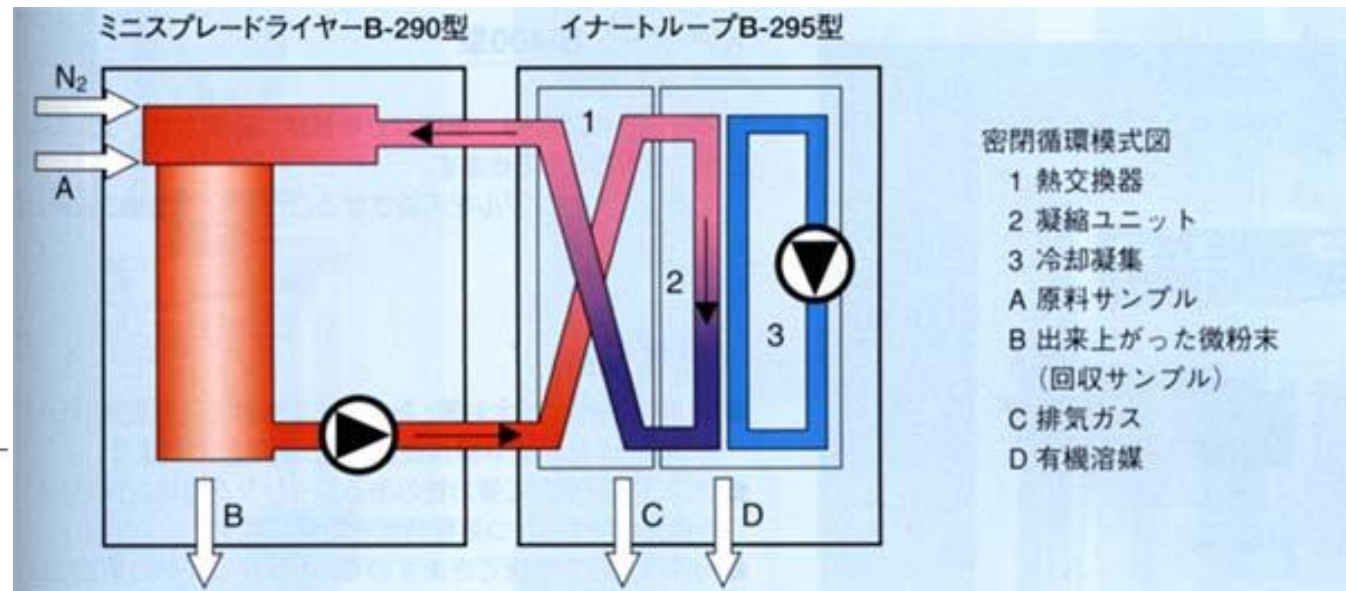
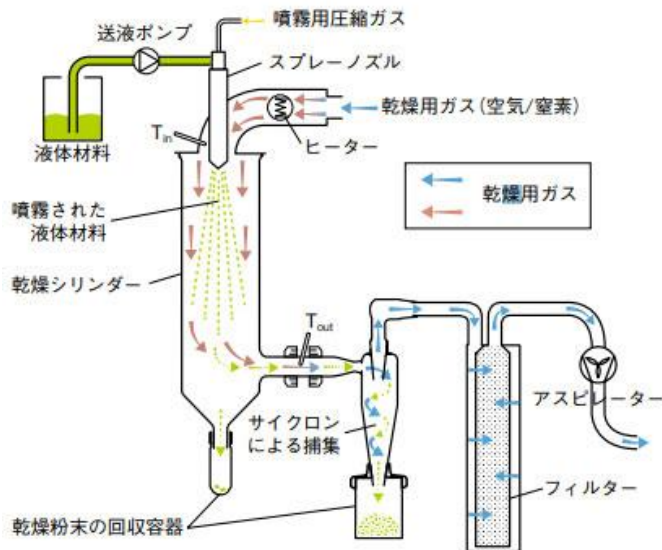


**Powder treatment (mixing, pulverization, etc.) should be done in a non-aqueous dispersion.**

# 溶媒回収装置導入の必要性

Removing non-aqueous dispersion media can causes explosion without care for the concentration of organic solvents in the atmosphere.

## ■スプレードライの仕組みと装置の構造



制御粒径、処理量などまだ詳細は検討中

# Thermal problems in high power lasers

Excessive heat generation in high power lasers brings the temperature distribution in gain media.

$$\kappa \Delta T + \eta_h \alpha_P I_P = 0$$

Thermal conductivity  $\kappa$   $\Delta T$  Thermal load  $\eta_h$   $\alpha_P$   $I_P$  Absorption coefficient  $\alpha_P$   $I_P$  Pump intensity  $I_P$

Temperature distribution  $\Delta T$  causes:

**Optical path change**

$$\Delta(nl) = n_0 l \left( \alpha + \frac{1}{n_0} \frac{dn}{dT} \right) \Delta T$$

Thermal expansion  $\alpha$   $\frac{1}{n_0} \frac{dn}{dT}$   $\Delta T$  Temperature coefficient of refractive index  $\frac{dn}{dT}$

Refractive index  $n_0$  Media length  $l$

**Thermal lensing**

$$f = \frac{\kappa}{I_P} \left[ \frac{1}{2} \frac{dn}{dT} + \alpha C n_0^3 + \frac{\alpha r_0^2 (n_0 - 1)}{l} \right]^{-1}$$

Thermal expansion  $\alpha$   $C n_0^3$  Photo-elastic function  $\alpha r_0^2 (n_0 - 1)$   $l$  Rod length  $l$

Focal length  $f$  Thermal conductivity  $\kappa$   $I_P$  Temperature coefficient of refractive index  $\frac{dn}{dT}$  Photo-elastic function  $C$  Rod radius  $r_0$

**Stress birefringence**

$$\frac{I_{out}(r, \phi)}{I_{in}} = 1 - \sin^2 2\phi \sin^2 \left( \pi r^2 I_P \frac{\alpha C' n_0^3}{\lambda \kappa} \right)$$

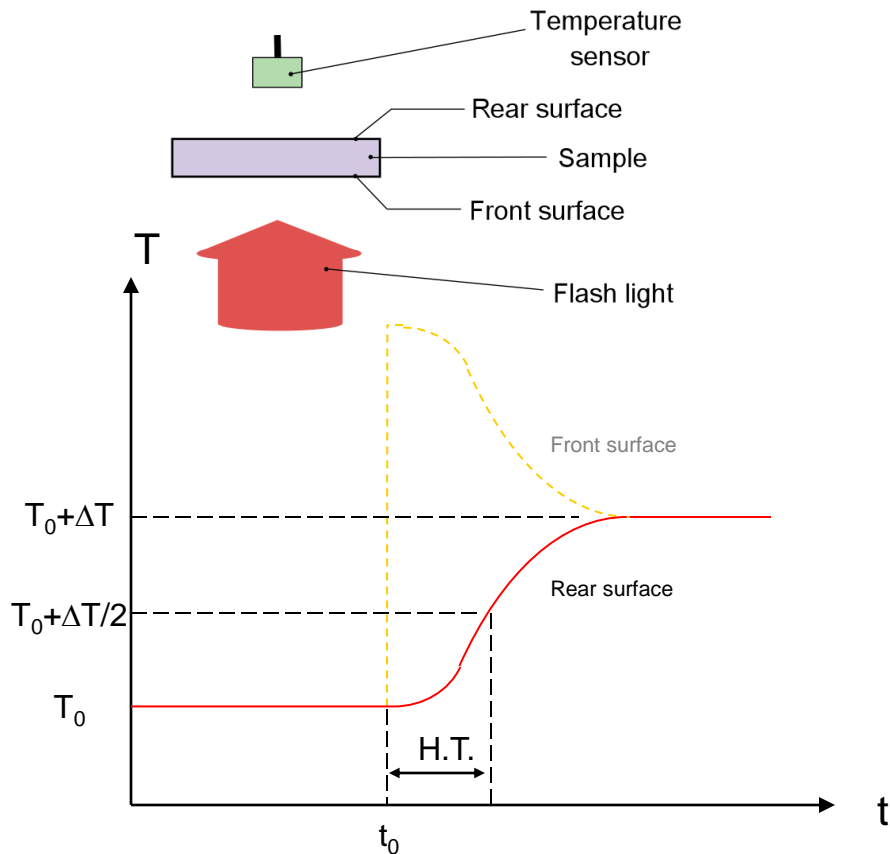
Thermal expansion  $\alpha C' n_0^3$  Photo-elastic function  $\alpha C' n_0^3$   $\lambda \kappa$  Wavelength  $\lambda$   $\kappa$

Transmitted intensity  $I_{out}(r, \phi)$  Incident intensity  $I_{in}$  Thermal conductivity  $\kappa$  Photo-elastic function  $C'$  Rod radius  $r$  Pump intensity  $I_P$

# Flash method –Principle–

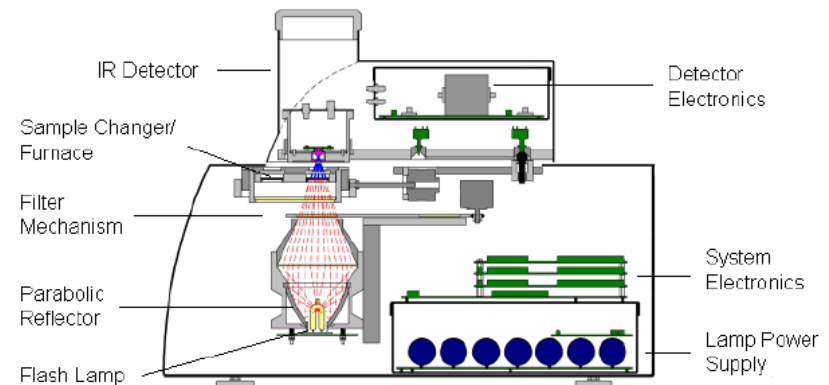
W. J. Parker, et al., J. Appl. Phys. **32**, 1679 (1961).

Accuracy of method  $\sim \pm 5\%$  (from SI-trace)



**Evaluation of the velocity of temperature rising due to the heat loaded by flash light gives thermal diffusivity.**

In Parker's model thermal diffusivity can be calculated from only H.T.(half time) and sample thickness.

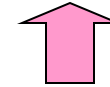
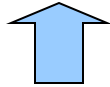


Outline chart of measurement equipment.  
(LFA447 nanoflash, NETSZCH GmbH)

# Analysis of flash method

## Quasi-one-dimensional flash method

Y. Sato and T. Taira, Opt. Express vol.14.



### Problem of thermal dissipation

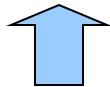
#### Non-adiabatic model

R. Cowan, J. Appl. Phys. **34**, 926 (1963).

#### Three-dimensional model

J. A. Cape and G. W. Lehman, J. Appl. Phys. **34**, 1909 (1963).

J. Blumm and J. Opfermann, High Temp. – High Press. **34**, 515 (2002).



### Problem of transparency

#### Radiation Model

H. Mehling, et al., Int. J. Thermophysics, **19**, 941-949 (1998).



## Adiabatic model (Parker model)

W. J. Parker, et al., J. Appl. Phys. **32**, 1679 (1961).

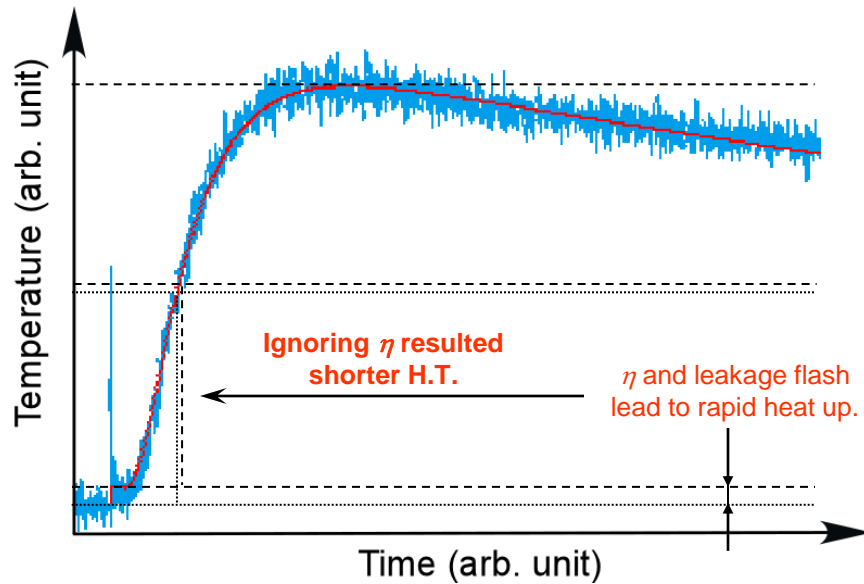


# Radiation model

## Thermal diffusivity equation

$$\frac{\partial T}{\partial t} - \frac{\kappa}{\rho C_p} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = 0$$

(Only considered in one-dimension)



## Boundary condition

Cowan model

$$\left. \frac{\partial T(x,t)}{\partial x} \right|_{x=0} = hT(0,t) + \eta h [T(0,t) - T(d,t)]$$

Radiation model

$$-\left. \frac{\partial T(x,t)}{\partial x} \right|_{x=d} = hT(d,t) + \eta h [T(0,t) - T(d,t)]$$

Parker model

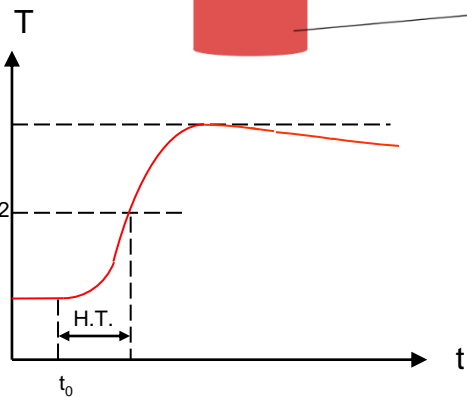
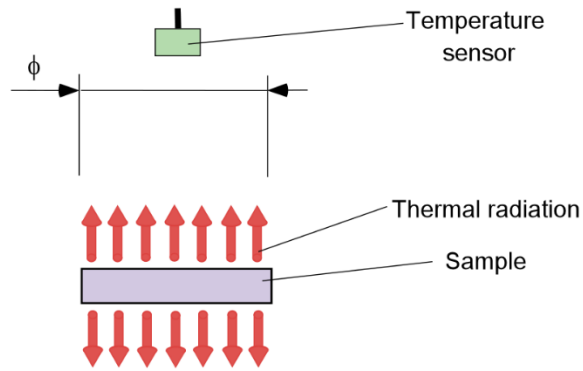
Heat dissipation.  
( $h$ : defined by emissivity)

Radiative heat transport  
between the front and  
the rear surfaces.

How we produce the one-dimensional thermal conduction ? : **Using apertures**

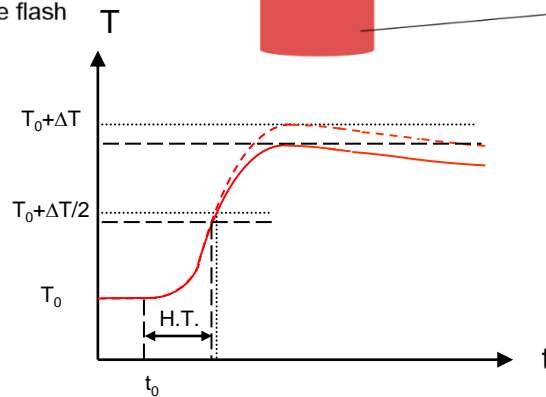
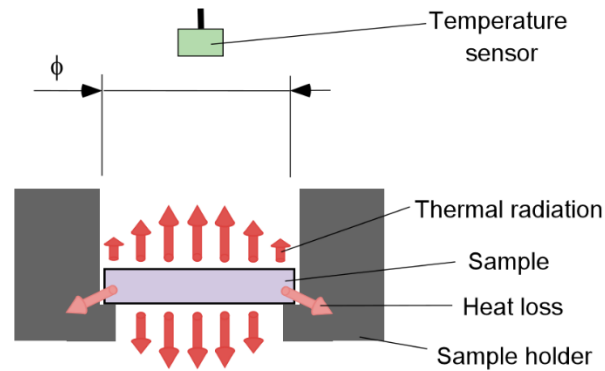
# Aperture effect

## Ideal case



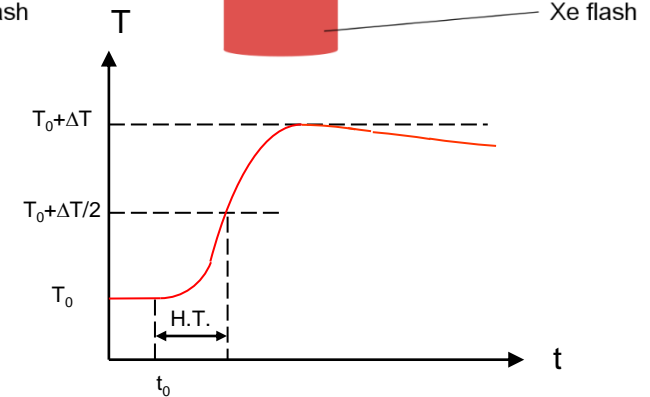
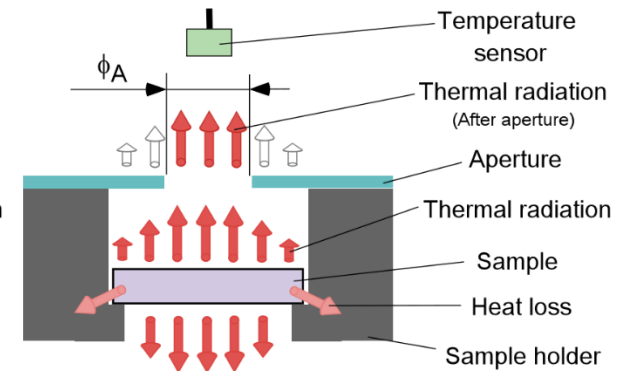
Cowan model can applicable.

## Anisotropic dissipation



H.T. become shorter.  
(require Cape-Lehman model)

## Inserting aperture



Influence of holder is removed.  
(3D seems to 1D)  
**Quasi-1D method !**

# Required equipment for $\kappa$

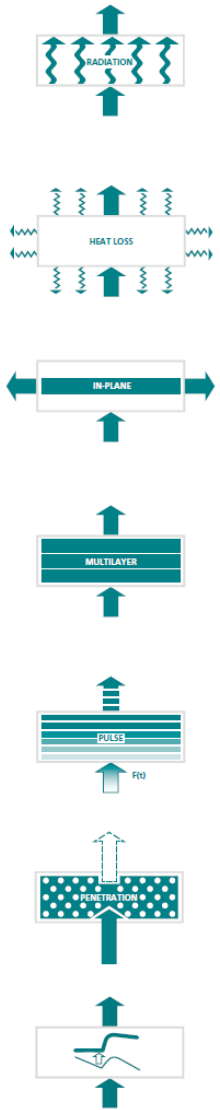
卓上型キセノンフラッシュアナライザー LFA 467 HyperFlash (ネッチ): R4年度調達予定  
(分子研既有的のLFA447は2022年6月に保守サービス終了)



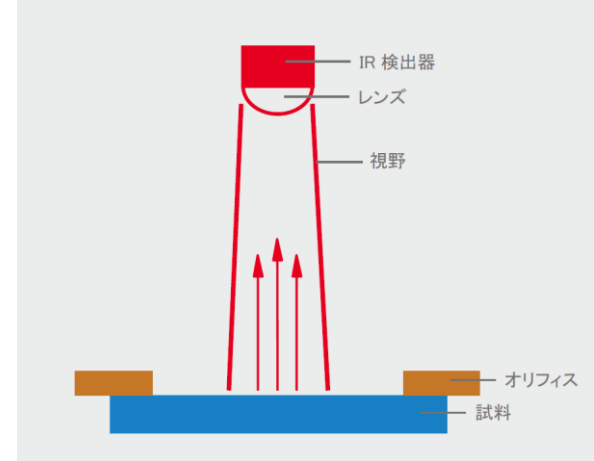
サンプル直径:  $\Phi 6 \sim 25.4 \text{ mm}$   
パルス熱量: 最大10 J  
励起パルス幅: 0.02 ~ 1.2 ms 可変  
測定時間: 1 ms ~ 120 s  
サンプリング: 最大 2 MHz

熱伝導率: 0.1 ~ 2000 W/mK  
熱拡散率: 0.01 ~ 1000 mm<sup>2</sup>/s  
雰囲気: 真空、不活性気体、空気  
温度範囲: -100° C ~ 500° C

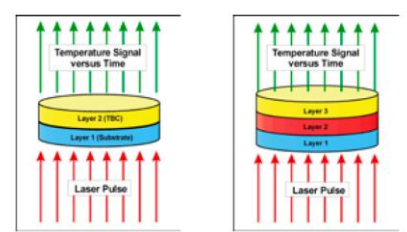
# LFA467の新機能



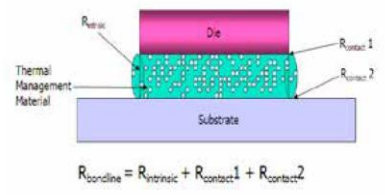
- ・断熱モデル
- ・Cowanモデル
- ・改良Cape-Lehmannモデル(3次元の熱損失を考慮)
- ・2層/3層モデル(熱損失を考慮)
- ・インプレーン計測
- ・輻射補正(透明または半透明試料)
- ・熱損失補正
- ・厳密な有限パルス幅補正
- ・ベースライン補正
- ・マルチショット平均
- ・温度依存性曲線の近似(多項式、スプラインなど)



ズームオプティクス



多層モデルによる接合試料の熱性能評価



MCT化による検出器の感度向上

- ・ズームオプティクス計測が可能 (アパーチャが不要)
- ・低温(>-100°C)計測が可能 (より小さい黒体輻射で温度計測)

# Reported experimental $\alpha$ of YAG

Linear thermal expansion coefficient  $\alpha$  is very important to analyze various thermal effects. Therefore, many researchers reported  $\alpha$  of YAG.

## Reported linear thermal expansion coefficient of YAG ( unit: $10^{-6} /K$ )

Method	100 K	200 K	300 K	Reference
-	4.25	5.8	7.5	W. Koechner
Powder X-Ray	4.3	5.9	7.4	P. H. Klein and W. J. Croft
Powder X-Ray	4.3	6.2	7.7	W. J. Croft
Powder X-Ray	-	-	6.7	S. Geller et al.
Interferometry	(2.2)	4.43	7.0	R. Wynne et al.
Interferometry	1.95	4.61	6.14	R. L. Aggarwal et al.
Interferometry	-	-	6.4	H. Furuse et al.
Push-rod	-	-	6.06	Y. Sato and T. Taira

**X-ray diffraction**

- **Larger** results

**Interferometry**

**Push-rod**

- **Smaller** results

**Results depend on methods. Which method should we use ?**

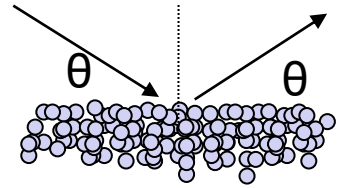
# Experimental conditions for $\alpha$ -evaluation

For high temperature

Advantage under large expansion

## X-ray powder diffraction

- Temperature dependent lattice constant
- Larger error under low temperature due to small expansion  
(Not enough significant figures for small expansion)
- Stress may be induced during pulverization of materials

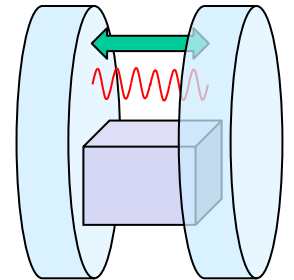


For low temperature

Advantage under small expansion

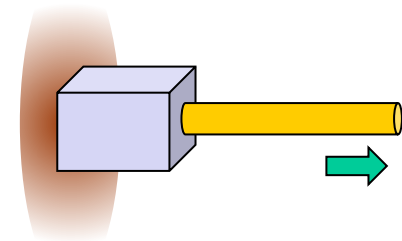
## Interferometry

- Long rod-shape mirror-attached specimen
- Difficult to hold samples without external stress
- Release of the strain can be obstructed by the sample shape.



## Push-rod

- Controlled external stress by the push-rod.
  - Only 1-direction



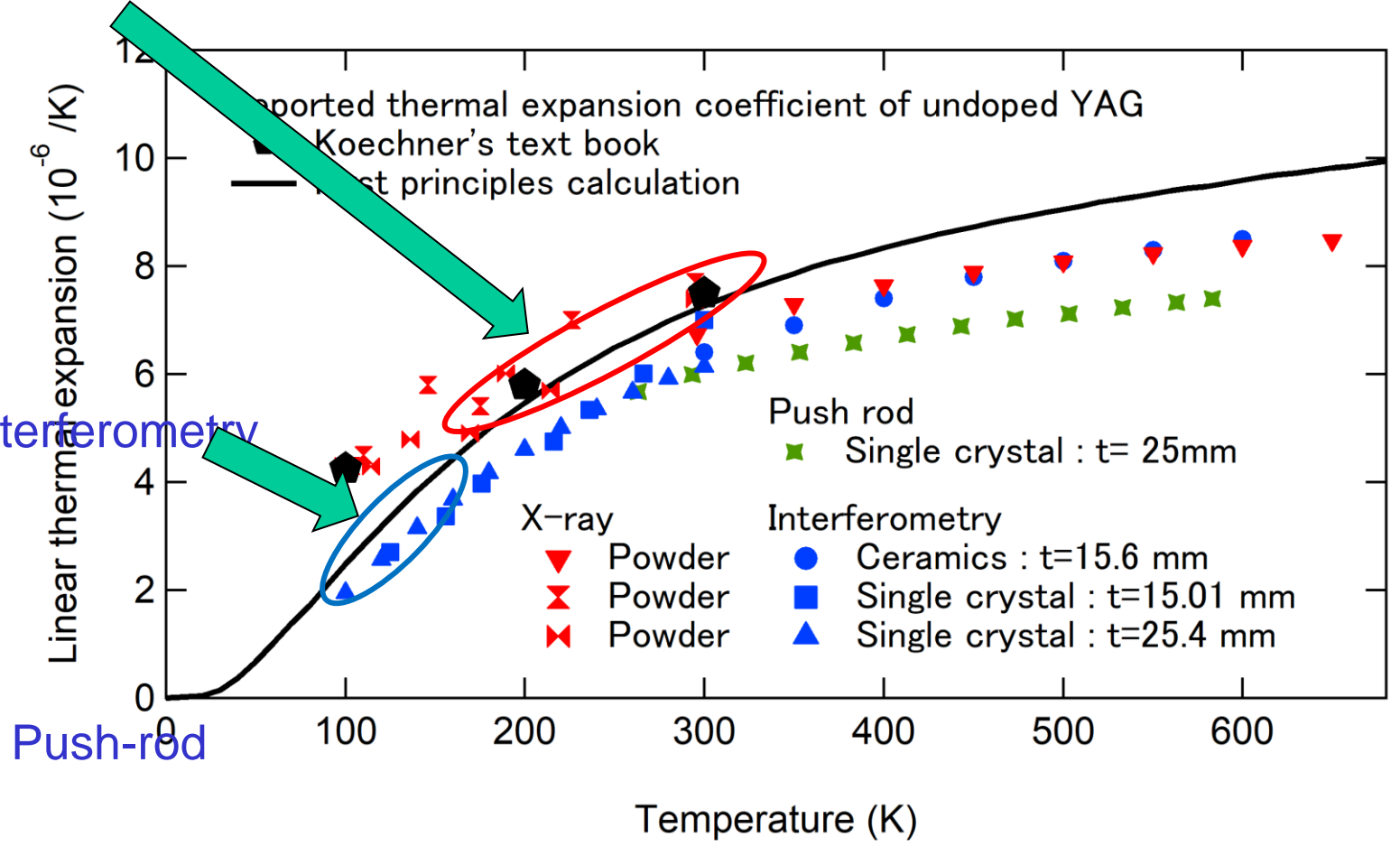
# Calculation vs experiments

For high temperature  
Advantage under large expansion

For low temperature  
Advantage under small expansion

X-ray powder diffraction

Results of calculations are overlapping to experiments under appropriate measurement conditions.



# Required equipment for $\alpha$

DIL 801 押し棒式水平膨張計(TAインストルメント): R5年度調達予定

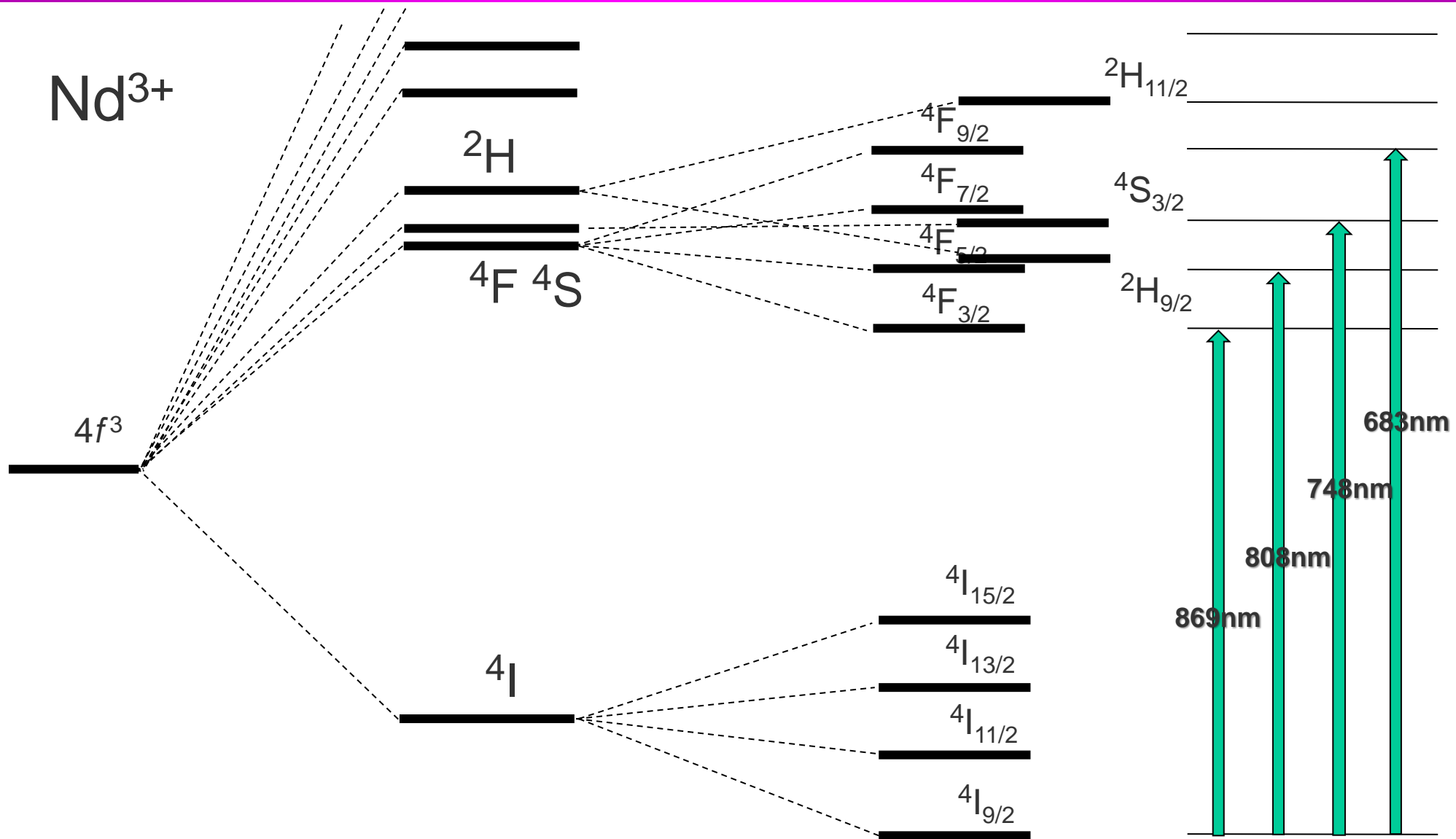


サンプル長 0~50 mm  
サンプル直径: 最大 14 ~ 20 mm  
ホルダーの材料: 石英ガラス  
長さの変化: 4 mm  
長さ分解能: 10 nm  
温度分解能: 0.05°C

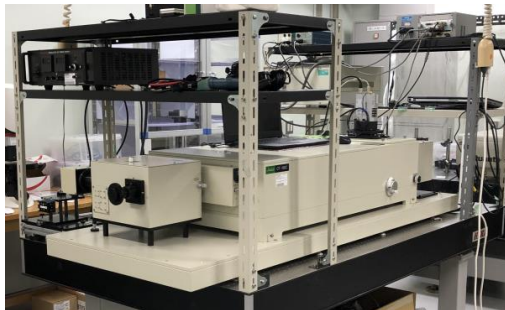
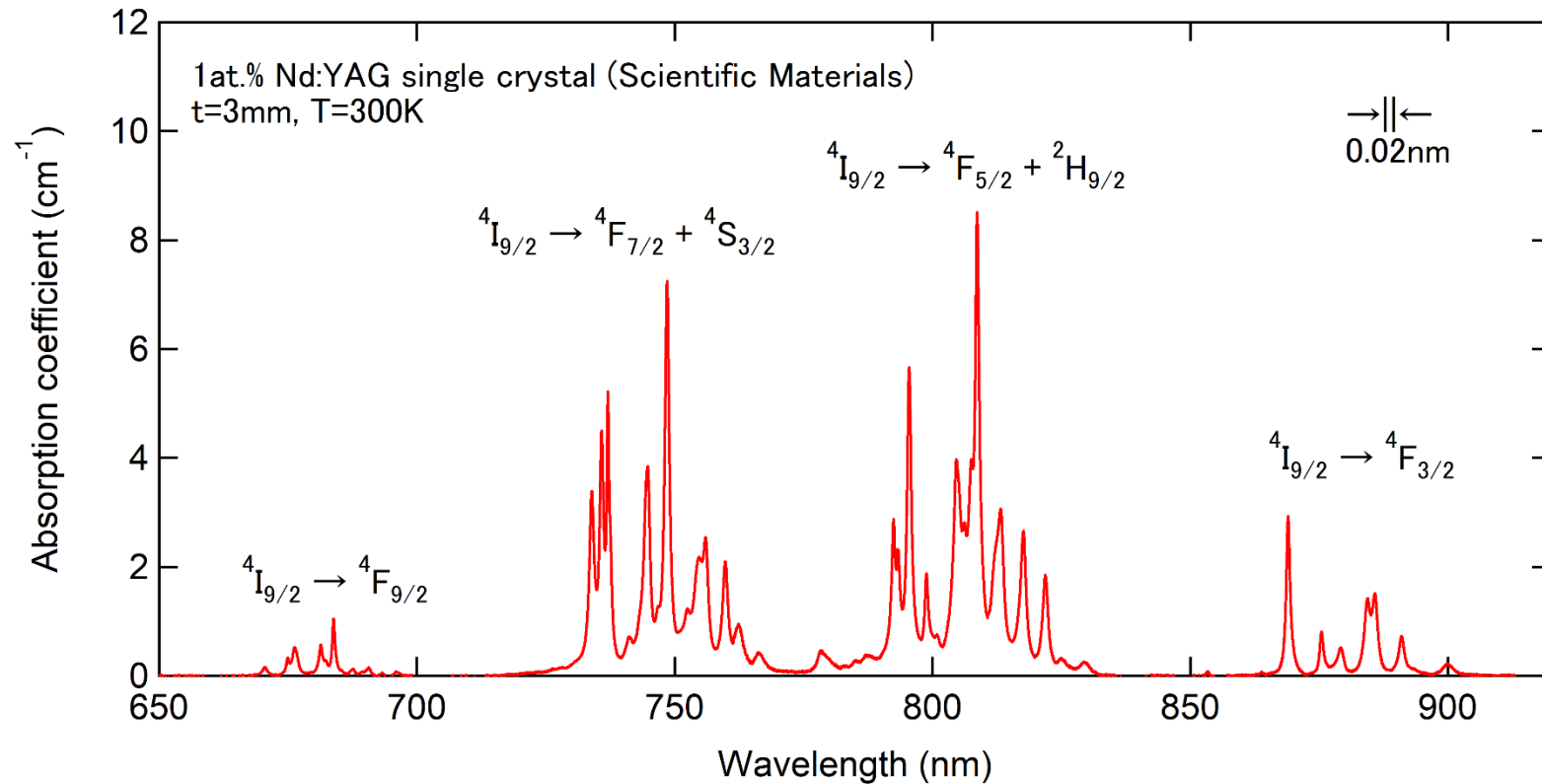
$\alpha$ 正確度:  $0.03 \times 10^{-6}/K$   
雰囲気: 真空、不活性気体、空気  
温度範囲:  $-160^{\circ}C \sim 650^{\circ}C$   
接触力: 0.02 ~ 1 N、調整可能  
リファレンス材料 サファイア (5mm $\Phi$  × 50mm)



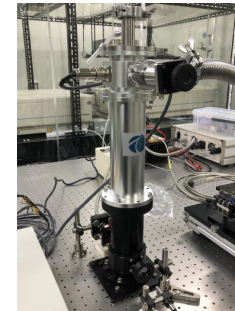
# Russell–Saunders coupling scheme of Nd<sup>3+</sup>



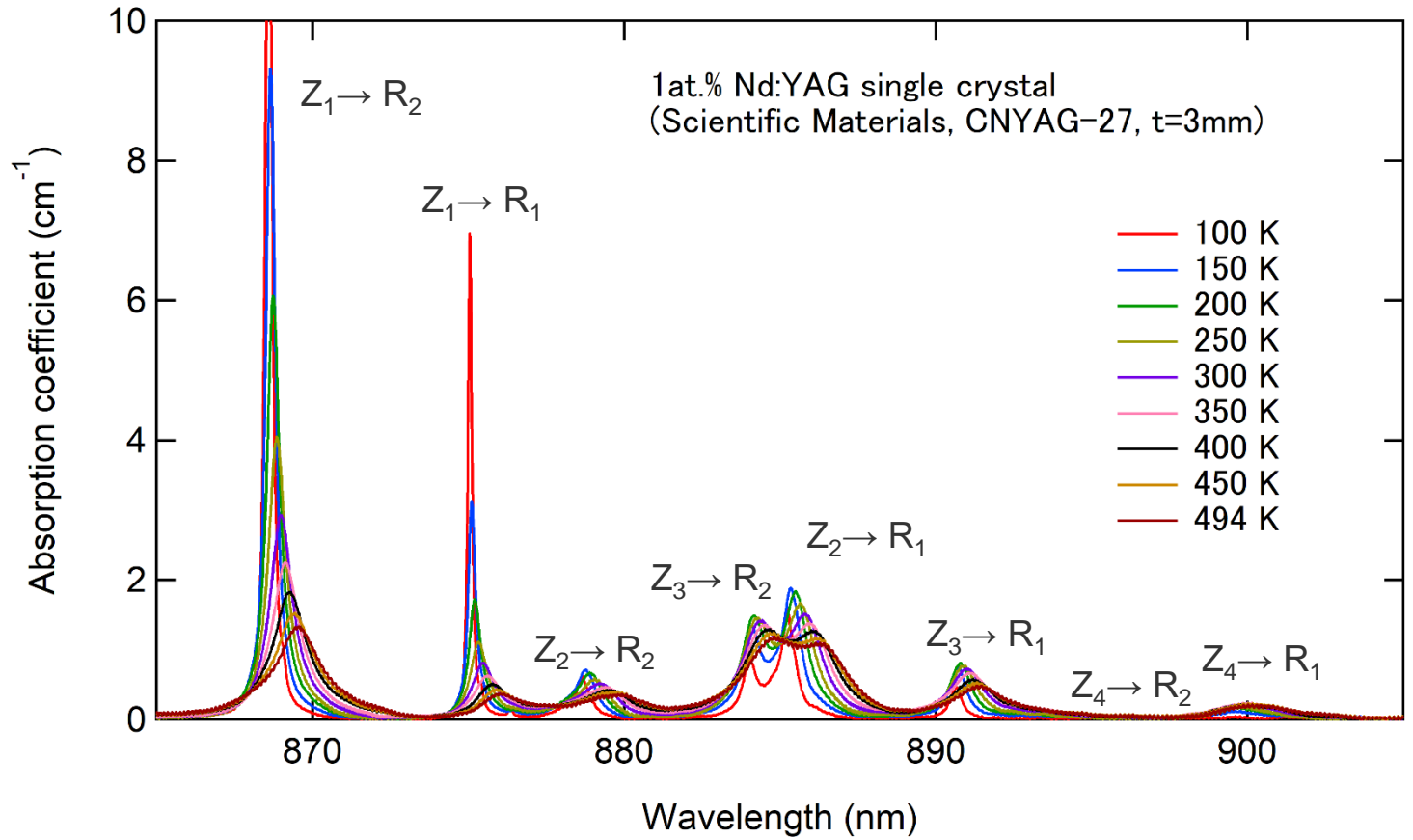
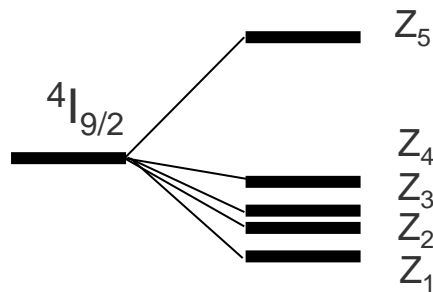
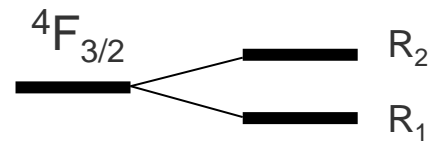
# Absorption coefficient of Nd:YAG @ RT

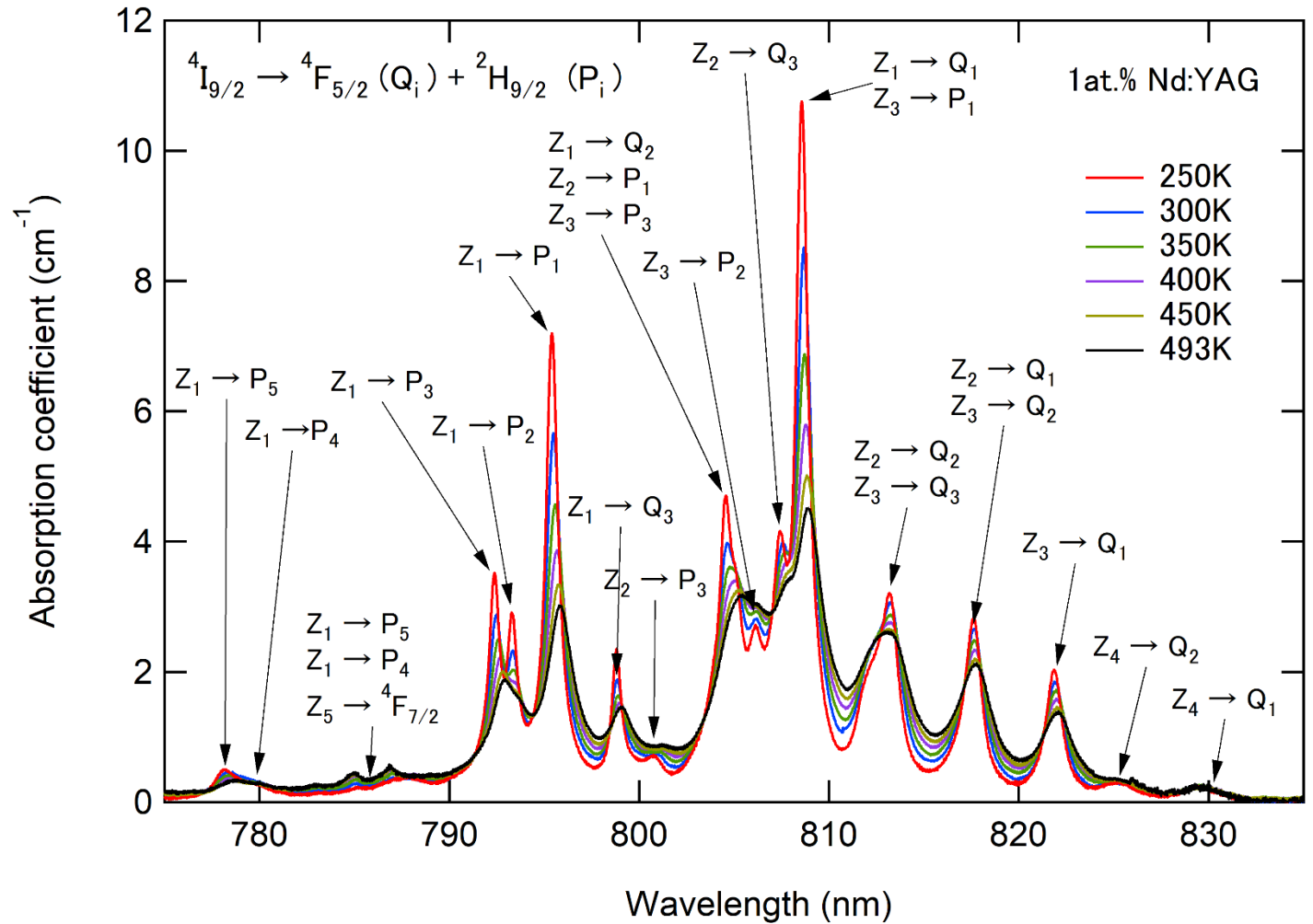
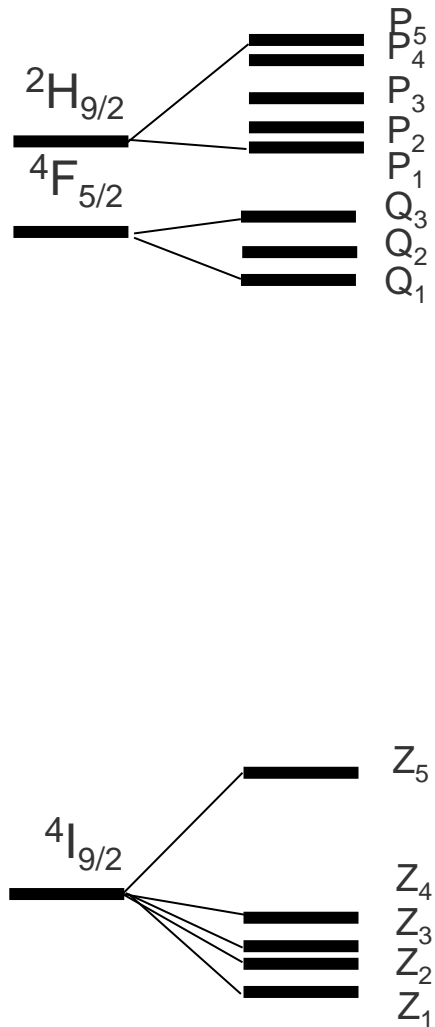


1m monochromator/ 20um slit  
(CT-100, 日本分光)  
Sensor: InGaAs Array  
(iDUS DU-491A, Andor)

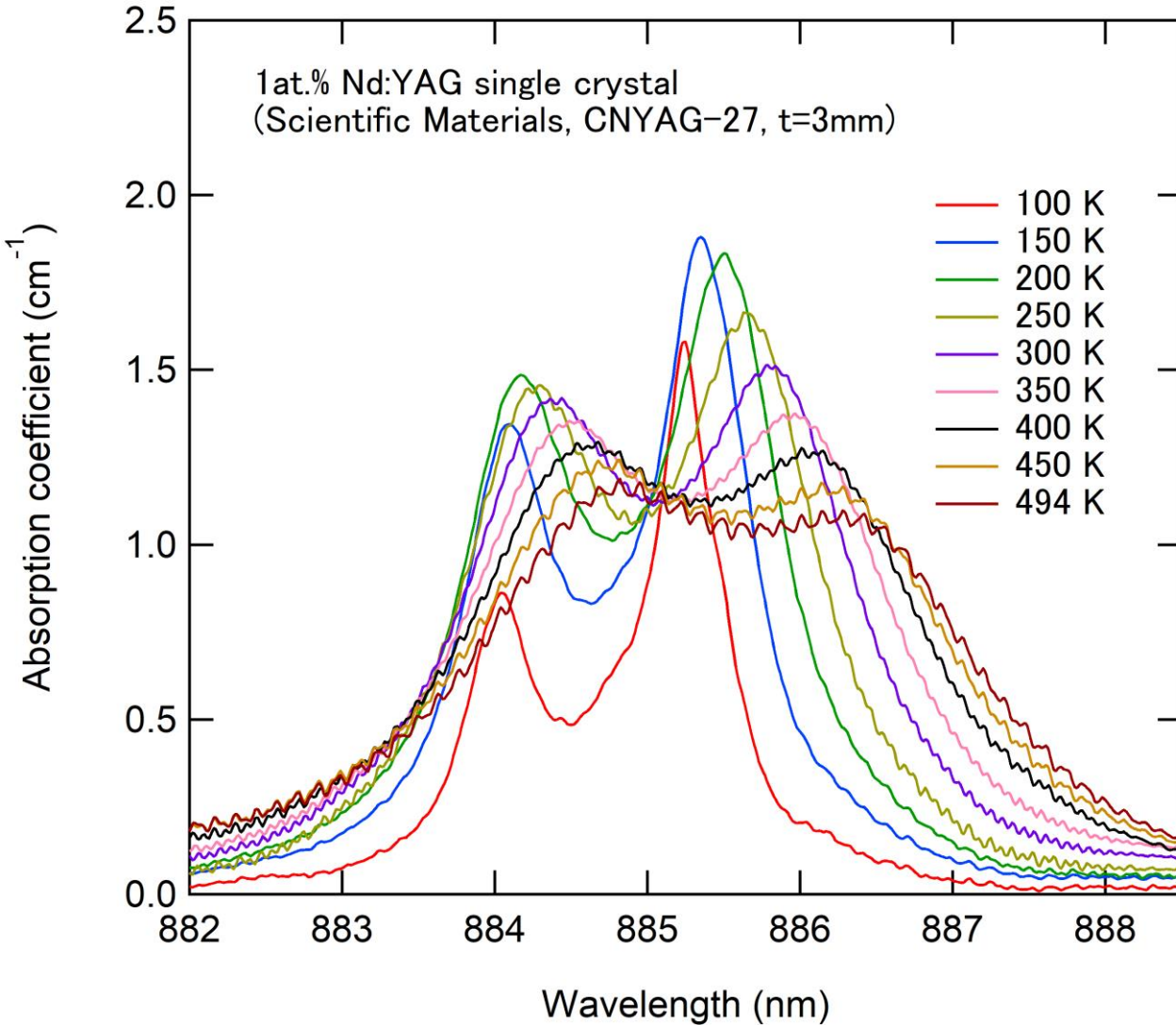


Optical cryostat  
Range: 100 K~500 K  
(TLNOS-4LW, テラダ)

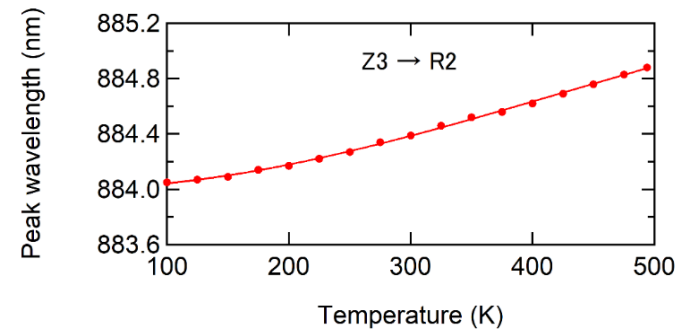
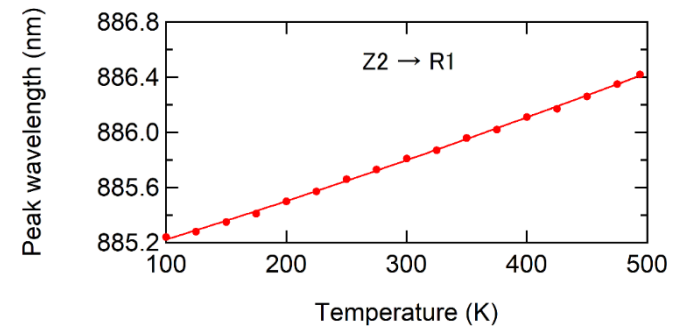




# Around 885 nm



884 + 885 nm  
Effective peak shift = 0 nm/K  
(100 - 500K)



# ステージ管理

令和2年度: **原料粉末の特性評価(数値目標無し)** ← **目標達成**

- 原料粉末の一次粒子自体が空孔を含むか否かを真密度計測器で確認(粉体の真密度を計測)
- 原料粉末粒度分布の粉碎混合処理時間依存性を粒度分布計測装置で確認(解砕後に粒度分布変化を確認)
- 100K~500Kにおいて粉碎処理前後で蛍光スペクトルに変化が出るかどうかの確認(焼成前は無変化)

令和3年度: **粒径1 $\mu$ m以下の真球形状Nd:YAG粉末を合成**

- 溶媒回収装置でエタノール分散スラリーから粒径1 $\mu$ m以下の真球充填球を形成
  - 高温雰囲気焼成による上記造粒粉末の単一ドメイン化

令和4年度: **平均グレインサイズ1 $\mu$ m程度以下のNd:YAGセラミックスの合成**

- YAGサブミクロンパウダーおよびYAGナノパウダーの混合粉末によるセラミックス合成  
(粒成長の抑制)
  - 熱伝導率のグレインサイズ依存性を評価

令和5年度: **配向制御Nd:YAGセラミックスの開発(数値目標:ゼロでない配向度)**

- YAGセラミックス+接合+ゾーン加熱によるTGG粒成長の促進
  - 熱膨張係数のグレインサイズ依存性を評価

令和6年度: **熱複屈折補正効果、Qスイッチ速度(飽和効果)の実証、実機適用**