J. Plasma Fusion Res. Vol.94, No.10 (2018) 482-484

小特集

誘電体光学材料の損傷

Damage in Dielectric Optical Materials

1．はじめに

1. Introduction

栗村　直，加藤　進[1)]
KURIMURA Sunao and KATO Susumu[1)]
物質・材料研究機構，[1)]産業技術総合研究所

（原稿受付：2018年 9 月 3 日）

2018年ノーベル物理学賞は，Mourou 博士と Stickland 博士が受賞された.「高強度超短パルス光の発生手法 (method of generating high-intensity, ultra-short optical pulses)」が受賞対象である．この手法はチャープパルス増幅法とよばれ，「一度レーザーパルスを引き延ばしたのち増幅して再度圧縮する」光増幅法である．レーザー強度の増大に伴う増幅結晶の損傷を回避することが可能であり，現在の高強度超短パルス発生に欠かせない技術となっている．さらなる高強度を指向する際に，本特集の「誘電体光学材料の損傷」は最大の課題の一つであり，その解の探索が極めて価値が高いことは，今回の受賞理由からもわかる．

プラズマ・核融合学会誌の読者にとってなじみ深いレーザーは，慣性閉じ込め核融合用ドライバーの一つである激光 XII 号[1]などの高出力パルスレーザー，LFEX ペタワットレーザー[2]や J-KAREN レーザー[3]などの超高強度極短パルスレーザーやプラズマ計測用レーザー[4]などであろう．学会誌でも最近10年間に，レーザー技術に関する講座や小特集が何度か組まれており，プラズマ核融合研究とレーザー開発は切り離せない関係にある[5-7]．特に，大型パルスレーザーは，レーザー核融合，X 線レーザー，粒子加速，高エネルギー密度科学などの研究には不可欠であり，その他の利用についても講座や小特集が組まれている[8, 9]．トムソン散乱計測用の繰り返し 100 Hz，平均出力 766 W の Nd:YAG レーザー[10, 11]，EUV リソグラフィー光源用の 20 kW 級ナノ秒炭酸ガスレーザー[12]などプラズマ・核融合に密接に関連した高平均出力パルスレーザーも開発されている．

一方，連続波 (CW) レーザーはプラズマ・核融合分野ではなじみが薄いが，産業界では，通信，加工，ディスプレイなどの幅広い用途で利用され，高平均出力の CW レーザーが求められている．通信用には赤外単一モード半導体レーザー[13]，レーザー加工用では 10 kW 級の赤外ファイバーレーザー[14]，レーザープロジェクター用には数 W 級の半導体レーザー[15]などが実用化されている．パルスレーザーにおいても，スループットを増すために高繰り返し動作が求められており，高平均出力レーザーの需要は急速に増えている．一方，高繰り返しパルスレーザーや CW レーザーの高平均出力化や高エネルギー密度化に伴い，誘電体多層膜や非線形光学結晶などの光学材料の損傷やブレイクダウンが問題となっている．そのために，光損傷に対する耐性が強い光学材料が求められている．

典型的なレーザー装置の概念図を**図 1** に示し，本小特集で注目する光学部品とその構成材料，特に光学材料として使用される透明誘電体と高出力時の課題について記述す

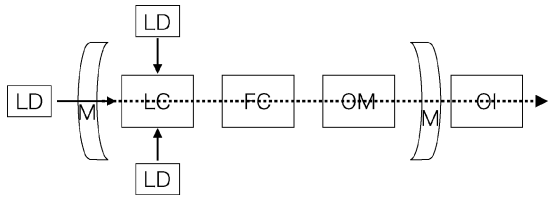


図 1　典型的なレーザー装置の概念図．LD: laser diode, LC: laser crystal, OM: optical modulator, FC: frequency converter, OI: optical isolator, M: mirror.

National Institute for Material Science, Tsukuba, IBARAKI 305-0047, Japan
corresponding author's e-mail: KURIMURA.Sunao@nims.go.jp

† 本小特集の本文中，いくつかの用語（† をつけたもの）について，p.510 に用語解説を設けました．必要に応じて参照ください．

©2018 The Japan Society of Plasma Science and Nuclear Fusion Research

る．多くの酸化物は可視光に対して透明であるが，紫外光は吸収する．このため，紫外光ではCaF_2などのフッ化物やα-SiO_2（水晶）が用いられる．他方，Si，InPなどは可視光に対しては不透明であるが，光通信などで使われる1.3−1.5 μm帯の光に対しては透明である．このため，取り扱う波長を決めないと透明誘電体を厳密に定義することは難しいが，ここでは可視光に対して吸収や散乱がほとんどない誘電体とする．「ほとんど」という言葉がくせ者で，実際，使用する波長域での吸収係数は小さいがゼロではなく，10^{-6} cm^{-1}から大きいものでは10^{-2} cm^{-1}のものが使われている．

具体的には，レーザー結晶（laser crystal）には$Y_3Al_5O_{12}$（YAG），YVO_4，$YLiF_4$（YLF），Al_2O_3など，ファイバーレーザー母材としてシリカガラス，フッ化物ガラス，光変調素子（optical modulator，**ポッケルス効果**†）には$LiNbO_3$（LN），KD_2PO_4（KDP）など，周波数変換（Frequency converter，非線形光学効果）には$LiNbO_3$（LN），$LiTaO_3$（LT），$KTiOPO_4$（KTP），$KNbO_3$（KN），β-BaB_2，O_4（BBO），LiB_3O_5（LBO），$CsLiB_6O_{10}$（CLBO），α-SiO_2（水晶）などが使われ，光アイソレータ（optical isolator，光磁気効果）には$Y_3Fe_5O_{12}$（YIG），$Tb_3Ga_5O_{12}$（TGG），Tb_3Sc_2 Al_3O_{12}（TSAG）などの透明材料が用いられている．鏡，グレーティングおよびその表面のコーティングなどの光学薄膜にはAlF_3，MgF_2，YF_3，SiO_2，LaF_2，GdF_3，Al_2O_3，Y_2O_3，HfO_2，Ta_2O_5，TiO_2，ZnS，Si，Geなどが使われている．誘電率，バンドギャップエネルギーなどの特性や損傷しきい値はその透明誘電体を利用する上での重要なパラメータであり，非線形光学結晶についてはNikogosyanによってまとめられている[16]．本小特集では，透明誘電体の中でも主に酸化物について取り扱う．

一般に自由電子を多く含む固体（金属，半導体など）では，高密度キャリアの励起による吸収が大きく，二光子吸収を含む非線形吸収も大きいため，損傷閾値は低く測定される．すなわち高いピークパワーをもつパルスレーザー光では，二光子吸収の確率が上昇し損傷要因となる．ここで損傷をさけるには，バンドギャップが入射光の二倍以上のエネルギーをもつ材料を光学材料として選定する．波長1064 nmに対するYAG，Mg:LN，波長532 nmに対するLBOなどが典型例である．

レーザーによる光学材料の損傷の研究は，1960年にレーザーが発明された当初から，レーザーによるガスや誘電体の絶縁破壊の実験として行われている[17,18]．SPIEが主催する国際会議"Laser-Induced Damage in Optical Materials"は本年50周年を迎えた．透明誘電体損傷の原因としては，表面や内部の構造不均一，格子欠陥や不純物を含む広い意味での格子乱れ，多光子吸収などが考えられてきている．表面のクラック，溝，ポアなどの構造不均一によって表面電場は最大100倍程度大きくなる可能性があり，70年代の成膜，結晶成長，研磨の品質に難があった時代には，損傷しきい値が低く測定されてきた．これに対し1981年に「レーザー分光学の発展への貢献」でノーベル物理学賞を受賞したBloembergenは『構造不均一を10 nm以下に押さえ込めれば損傷しきい値への影響はなくなる』と指摘した[19,20]．加工プロセスの大幅な改善とともにnmスケールの加工精度が実現できるようになり，上記表面の構造不均一は取り除かれて，損傷しきい値を決める要因は以下の材料に起因するものに絞られた．

レーザーの第二高調波発生デバイスの損傷例を**図2**に示す．左列はレーザー光の入射面，右列はレーザー光の出射面の顕微鏡写真である．上段は反射光での観察像，下段は透過光での観察像である．入射面側から赤外レーザー光が入射し，出射面側から変換後の緑色光が出射する．バルク内部に比べて，材料表面およびコーティングの損傷しきい値が低いため，一般に表面で先に損傷が発生する．この第二高調波発生デバイスでは，変換後の出射光の光子エネルギーが高いため，出射側のコーティングで損傷が発生している．発生した損傷領域，すなわちプラズマ状態は，レーザー光を吸収しながら入射側へのびていく．透過光で内部を観察すれば損傷の構造が観察できる．

原子密度が10^{22} cm^{-3}と高い固体と原子密度が10^{19} cm^{-3}の低いガスプラズマを考えると，その1次元方向の原子数は10倍異なる．固体物理側からみると固体の状態は原子が密に詰まった状態であり，密度が大きく低下したプラズマ状態への移行は材料の終焉である．プラズマが発生した時点でレーザー実験はパラメータ選定の失敗と評価される．照射方法や照射パラメータを変えて回避方法をさぐるものの，その原因を突き止めることはレーザー研究者にとっては心痛を伴う．何故プラズマが発生したかは，レーザーパラメータが数多くあることもあり，文献などから統一的パラメータで議論することが難しい．他方，プラズマ物理では多くの場合プラズマありきから始まりその進展が議論される．火炎核がどのように広がっていくのかは議論されるが，特に固体からのプラズマ発生の初期過程が議論されることは少ない．通常レーザー実験では，波長に対して透明なバンドギャップの大きい誘電体を用いるため，誘電体からのプラズマ発生は固体の損傷を探る上で重要な現象であるが，あまり顧みられていない．

本小特集では，加工用レーザーがkW出力に入った時代に，高繰り返しレーザーやCWレーザーなどの高平均出力レーザーによる光学材料のブレイクダウン（絶縁破壊）の

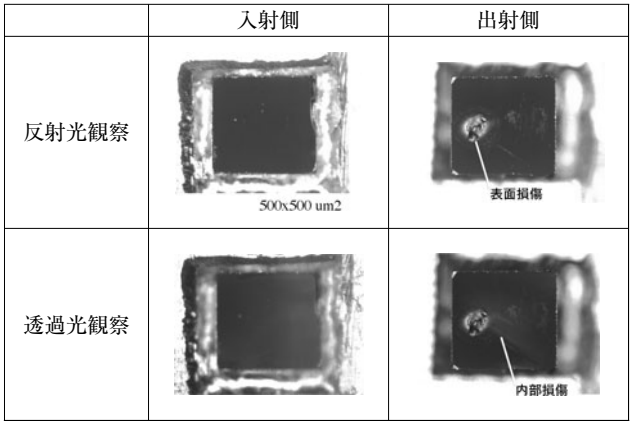


図2　第二高調波発生デバイスの損傷．

初期過程からプラズマ生成・維持機構まで取り上げ，プラズマ物理学が積極的に対象としてこなかった透明誘電体のプラズマ発生現象を，誘電体光学材料の損傷に見いだす端緒としたい．

第 2 章では，パルスレーザーによるガスのブレイクダウンから誘電体におけるブレイクダウンまでの研究の現状と高平均出力レーザーで重要となるインキュベーションについて解説する．十分理解されていたと思われるガスのブレイクダウンにおいてすら，まだ未解明な点が存在し，完全には理解されていなかったことがわかる．

第 3 章では，タネ電子の原因や損傷しきい値近傍の現象を決定づける透明誘電体の特性，特に電子格子相互作用と欠陥生成について，理解が一番進んでいるアルカリハライドに加え，透明誘電体光学材料として重要な酸化物の石英，ニオブ酸リチウムおよびアナターゼ酸化チタンについて解説される．

第 4 章では，石英ガラスに対する損傷のレーザー波長，パルス幅，材料温度依存性について，現状の理解について紹介する．単一パルスと繰り返しパルスの違いについても議論されており，多くの貴重なデータが網羅されている．

第 5 章では，透明誘電体内部におけるプラズマ発生の例として，ファイバフューズ現象を取り上げる．光ファイバは，レーザー光の発振と伝播の両方で利用されている主にシリカガラスからなる重要な誘電体であり，今後の高平均出力レーザーでは必須の誘電体材料である．白色の発光を伴うファイバフューズ現象は誘電体の損傷がプラズマ発生につながり，固体内部に閉じ込められ，その密度はほとんど変化しない特徴を持つ．その発生および維持条件について解説する．

第 6 章では，小特集のまとめと今後の課題などについて記述する．

参 考 文 献

［1］激光 XII 号によるレーザー核融合研究の現状と展望；核融合研究68　別冊（1992）．

［2］中田芳樹 他：オプトロニクス **31**, 130 (2012).

［3］桐山博光，神門正城：プラズマ・核融合学会誌 **90**, 449 (2014).

［4］プラズマ・核融合学会編：プラズマ診断の基礎と応用（コロナ社，2006）．

［5］講座 最新レーザーとプラズマ研究；プラズマ・核融合学会誌 **83**, No.6-8 (2007).

［6］講座 非線形光学結晶とそのプラズマ研究への応用；プラズマ・核融合学会誌 **85**, No.5-7 (2009).

［7］小特集 高強度・高出力レーザーの物理的・技術的展開と，プラズマ・核融合研究開発；プラズマ・核融合学会誌 **90**, 435 (2014).

［8］講座レーザー生成プラズマの新しい温度，密度領域における物性とシミュレーション；プラズマ・核融合学会誌 **89**, No.6-8 (2013).

［9］小特集 超短パルスレーザーによるナノアブレーション研究の最前線；プラズマ・核融合学会誌 **94**, 242 (2018).

［10］T. Hatae *et al.,* Rev. Sci. Instrum. **83**, 10E344 (2012).

［11］波多江仰紀 他：プラズマ・核融合学会誌 **88**, 555 (2012).

［12］遠藤 彰，溝口 計：プラズマ・核融合学会誌 **90**, 456 (2014).

［13］高木啓史 他：古河電工時報 **111**, p.1-5 (2003)

［14］W. Shi *et al.,* Appl. Opt. **28**, 6554 (2014).

［15］畑中秀和：光技術情報誌ライトエッジ No.41（2014年12月発行）．

［16］D.N. Nikogosyan, *Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey* (Springer Science+Business Media, Inc., 2005).

［17］R.G. Concetto, Appl. Phys. Lett. **5**, 137 (1964).

［18］J.H. Cullom and R.W. Waynant, Appl. Opt. **3**, 989 (1964).

［19］N. Bloembergen, Appl. Opt. **12**, 661 (1973).

［20］N. Bloembergen, IEEE J. Quantum Electron. **10**, 375 (1974).

J. Plasma Fusion Res. Vol.94, No.10 (2018) 485-495

小特集 誘電体光学材料の損傷

2．レーザーブレイクダウンの基礎

2. Introduction to Laser Breakdown

遠藤琢磨
ENDO Takuma
広島大学 大学院工学研究科 機械システム工学専攻

（原稿受付：2018年8月14日）

誘電体光学材料損傷メカニズムの理解を念頭に，レーザーブレイクダウンの基礎的な事柄を紹介する．気体誘電体のレーザーブレイクダウンについて知られていることを簡単に述べ，その後，固体誘電体の場合はどのように考え方を変えねばならないかを記述する．特に，気体の場合には通常考えない真性欠陥の形成，インキュベーション効果，および屈折率効果を中心に，知られていることを紹介し，最後にブレイクダウンと固体損傷の関係に触れる．

Keywords:
laser, breakdown, dielectric, solid, defect, incubation, refraction, damage

2.1 はじめに

本章では，誘電体光学材料損傷メカニズムの理解を目的として，レーザーブレイクダウンの基礎的事項を紹介する．以下，最初に気体誘電体におけるレーザーブレイクダウンの基礎的な事柄を記す．次に，固体誘電体のレーザーブレイクダウンが気体の場合とどのように違うのかを記述する．その後，ブレイクダウンしきい値のパラメータ依存性等について簡単に紹介し，最後にレーザーブレイクダウンと固体損傷の関係に触れる．

2.2 気体におけるレーザーブレイクダウン

ガス状誘電体におけるレーザーブレイクダウンの過程は，概ね，次のように考えられている[1]．

①レーザーの多光子吸収によって中性気体中に自由電子（タネ電子）が生成される．

②タネ電子と中性粒子の衝突に起因する逆制動放射によってタネ電子がレーザーを吸収し，個々のタネ電子がもつ運動エネルギーが増大する．

③中性粒子を電離できるだけの運動エネルギーをもったタネ電子が中性粒子に衝突すると，中性粒子が電離され，新たな自由電子が生まれる（自由電子が増える）．

④自由電子密度の雪崩的増大が始まり，ブレイクダウンに至る．

また，自由電子密度の雪崩的増大を阻害するプロセスとして，主に次の2つが考えられている．

①自由電子が中性粒子やイオンと非弾性衝突することにより，自由電子のエネルギーが奪われる（自由電子のエネルギーの損失）．

②物質拡散により自由電子が電場の強い領域から失われる（自由電子そのものの損失）．

ブレイクダウンを起こすためには，これらの損失に打ち勝って自由電子密度を雪崩的に増大させるだけの電場強度が必要である．すなわち，ブレイクダウンを起こすには，レーザーの電場強度があるしきい値を超えねばならない．これが気体におけるレーザーブレイクダウンの考え方の基本である．

上記のシナリオが成立するためのレーザーパルス幅（τ_L）に対する制約を述べると，次のようになる．自由電子密度（N_e）が雪崩的に増大するためには，τ_L がタネ電子の（運動量変化に対する）平均衝突時間（τ_c）よりも桁違いに長くなくてはならない．入射レーザーの波長（λ_L）を0.7 μm と仮定し，タネ電子の運動エネルギーを入射レーザーの光子エネルギーの半分と仮定すると，タネ電子の速さは 5.6×10^5 ms^{-1} と評価される．これより，文献[2]の散乱断面積データを使って τ_c を評価すると，常温常圧のほとんどの中性気体に対し，τ_c は1 ps のオーダーになる．以上より，上記のシナリオが成立するためには，オーダーとして $\tau_L \gg 1$ ps でなければならない．ガス中で測定された，入射レーザーフルエンス（単位面積あたりのエネルギー）のブレイクダウンしきい値（F_{Lth}）の τ_L 依存性は**図1**のようである[3]．パルス幅が $\tau_L > 1$ nsのときは，F_{Lth} を τ_L で除した入射レーザーパワー密度のしきい値（S_{Lth}）が一定になっており，ブレイクダウンのしきい値がレーザーの電場強度に支配されていることがわかる．また，Williams ら[4]は，波長0.53 μm のレーザーを使い，τ_L を30～140 ps の範囲で変化させ，空気中のレーザーブレイクダウン実験を行

Hiroshima University, Higashihiroshima, HIROSHIMA 739-8527, Japan
author's e-mail: takumaendo@hiroshima-u.ac.jp

©2018 The Japan Society of Plasma Science and Nuclear Fusion Research

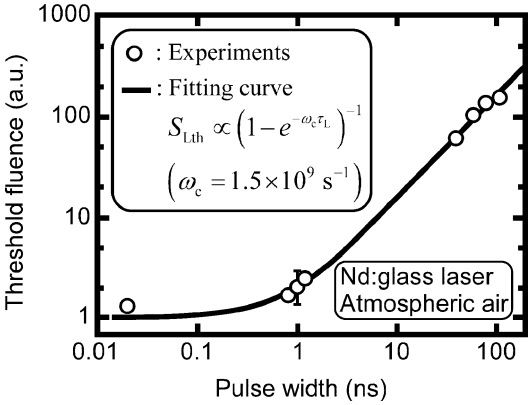


図１　レーザーフルエンスのブレイクダウンしきい値のパルス幅依存性（ガスの場合）[3].

い，F_{Lth} が一定であるという結果を得ている．

図２は，実験で測定された，入射レーザー電場強度のブレイクダウンしきい値（E_{Lth}）のガス初期圧力（p_1）依存性である[1]．初期圧力が低いときは，自由電子と分子の衝突頻度が低く，自由電子の拡散係数が大きいので，自由電子そのものが物質拡散によってレーザー焦点領域から失われること（前記の阻害プロセス②）がブレイクダウンしきい値に支配的な影響を及ぼす．自由電子の拡散については少し注意が必要である．荒っぽい言い方だが，電離気体中における荷電分離はデバイ長程度のスケールよりも小さな領域でしか起こらないから，N_{e}が変化するスケール長がデバイ長に比べて小さいときは自由電子の拡散は自由拡散となり，逆に大きいときは自由電子の拡散は両極性拡散となる[5]．いま考えているのはブレイクダウンが起こり始める状況なので，N_{e} は非常に小さいと考えて良く，デバイ長はかなり大きいと考えて良い．例えば，電子温度 2 eV，自由電子密度 $10^{10}\ \mathrm{cm}^{-3}$ のときでもデバイ長は約 100 μm であり，この条件でも通常のレーザー集光直径（d_{FS}）に比べてまだかなり大きい．したがって，ガス中でレーザーブレイクダウンが起こるための条件を考える場合は，自由電子の拡散は自由拡散と見なして概ね問題ない．自由電子の拡散係数：$D_{\mathrm{e}} = \bar{c}_{\mathrm{e}}^2/(3\nu_{\mathrm{c}})$（$\bar{c}_{\mathrm{e}}$ は自由電子の熱運動の平均速さ，ν_{c} は自由電子の運動量変化に対する衝突周波数）を使う

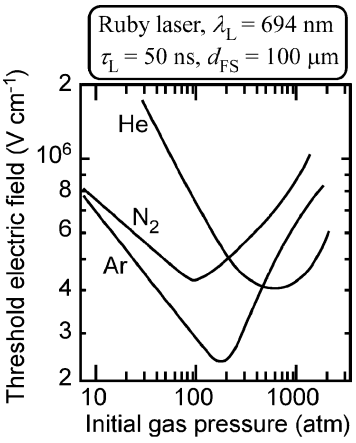


図２　レーザー電場強度のブレイクダウンしきい値のガス初期圧力依存性[1].

と，自由電子の特性的な拡散距離（Λ）は $\Lambda = \sqrt{D_{\mathrm{e}}t}$ と書ける．自由電子が拡散によってレーザー焦点領域から失われることを考える場合は，その特性時間（τ_{D}）は $\Lambda = d_{\mathrm{FS}}$ と置くことによって $\tau_{\mathrm{D}} = d_{\mathrm{FS}}^2/D_{\mathrm{e}}$ と得られる．したがって，自由電子が拡散によってレーザー焦点領域から失われる特性速度（$\nu_{\mathrm{D}} = \tau_{\mathrm{D}}^{-1}$）は $\nu_{\mathrm{D}} = \bar{c}_{\mathrm{e}}^2/(3\nu_{\mathrm{c}}d_{\mathrm{FS}}^2)$ と書ける．そして，p_1 が低いときのブレイクダウンしきい値に関する比例則は，電離速度（ν_{i}）を使うと，関係式：$\nu_{\mathrm{D}} = \nu_{\mathrm{i}}$ によって評価できる．ここで，ν_{i} は次のように評価できる．レーザー電場を $E_0 e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t}$（$\omega_{\mathrm{L}}$ はレーザーの角周波数）とし，自由電子の速度を $v_{\mathrm{e}} e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t}$ とすると，自由電子に対する運動方程式は $m_{\mathrm{e}}\dfrac{\mathrm{d}v_{\mathrm{e}}e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t}}{\mathrm{d}t} = -eE_0e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t} - m_{\mathrm{e}}v_{\mathrm{e}}e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t}\nu_{\mathrm{c}}$ と書けるから（m_{e}，e は，各々，電子の質量と電気素量），$v_{\mathrm{e}} = -\dfrac{eE_0}{m_{\mathrm{e}}}\dfrac{\nu_{\mathrm{c}}+i\omega_{\mathrm{L}}}{\nu_{\mathrm{c}}^2+\omega_{\mathrm{L}}^2}$ と書ける．これより，レーザー電場が１つの自由電子に対して行う仕事の実効仕事率は，ε を自由電子の運動エネルギーとして，次のように書ける．

$$\left(\frac{\mathrm{d}\varepsilon}{\mathrm{d}t}\right)_E = \frac{1}{2}\mathrm{Re}(-eE_0v_{\mathrm{e}}) = \frac{e^2E_0^2\nu_{\mathrm{c}}}{2m_{\mathrm{e}}(\nu_{\mathrm{c}}^2+\omega_{\mathrm{L}}^2)} \tag{1}$$

初期圧力が低いときは，ν_{c} は p_1 に比例するから $\nu_{\mathrm{c}}^2 \ll \omega_{\mathrm{L}}^2$ と近似し，さらに非弾性衝突によるエネルギー損失も十分小さいと考えて，電離エネルギー（U_{i}）を使い，ν_{i} を次のように単純化して書く．

$$\nu_{\mathrm{i}} = \frac{1}{U_{\mathrm{i}}}\left(\frac{\mathrm{d}\varepsilon}{\mathrm{d}t}\right)_E = \frac{e^2E_0^2\nu_{\mathrm{c}}}{2m_{\mathrm{e}}\omega_{\mathrm{L}}^2U_{\mathrm{i}}} \tag{2}$$

したがって，関係式 $\nu_{\mathrm{D}} = \nu_{\mathrm{i}}$ より，次の比例則を得る．

$$S_{\mathrm{Lth}} \propto E_{\mathrm{Lth}}^2 \propto \frac{\bar{c}_{\mathrm{e}}^2U_{\mathrm{i}}\omega_{\mathrm{L}}^2}{d_{\mathrm{FS}}^2\nu_{\mathrm{c}}^2} \propto \frac{\omega_{\mathrm{L}}^2}{d_{\mathrm{FS}}^2p_1^2} \tag{3}$$

一方，p_1 が高いときは，自由電子と分子の衝突頻度が高くて自由電子の拡散係数が小さいので，自由電子の運動エネルギーが分子との非弾性衝突によって失われること（前記の阻害プロセス①）がブレイクダウンしきい値に支配的な影響を及ぼす．初期圧力が高いときは，$\nu_{\mathrm{c}}^2 \gg \omega_{\mathrm{L}}^2$ と近似し，

$$\left(\frac{\mathrm{d}\varepsilon}{\mathrm{d}t}\right)_E = \frac{e^2E_0^2}{2m_{\mathrm{e}}\nu_{\mathrm{c}}} \tag{4}$$

と書く．そして，１つの自由電子の運動エネルギーが分子との非弾性衝突によって失われる速度を，$\nu_{\mathrm{iec}}U_{\mathrm{iec}}$（$\nu_{\mathrm{iec}}$ は１つの自由電子が分子と非弾性衝突を起こす周波数：$\nu_{\mathrm{iec}} \propto p_1$，$U_{\mathrm{iec}}$は１つの自由電子が分子との１回の非弾性衝突で失うエネルギー：U_{iec} は定数と仮定）と単純化して考え，p_1 が高いときのしきい値に関する比例則を関係式 $(\mathrm{d}\varepsilon/\mathrm{d}t)_E = \nu_{\mathrm{iec}}U_{\mathrm{iec}}$ によって評価し，次の比例則を得る．

$$S_{\mathrm{Lth}} \propto E_{\mathrm{Lth}}^2 \propto \nu_{\mathrm{c}}\nu_{\mathrm{iec}}U_{\mathrm{iec}} \propto p_1^2 \tag{5}$$

式(３)(５)の比例則は，**図２**の測定結果を，定性的にで

はあるが表している．また，p_1 が低いときの実験で，d_{FS} が小さくなると E_{Lth} が大きくなる実験結果が得られており[1]，式(3)の比例則と定性的に一致している．したがって，前記のシナリオは，実験結果に概ね支持されていると考えられる．しかし，良くわかっていないことも多い．例えば，前記の過程①のタネ電子生成のシナリオに依れば，波長が 10.6 μm の炭酸ガスレーザーの場合は簡単にブレイクダウンしないはずであるが，実際にはブレイクダウンが起こる．ガス中の塵を取り除くとブレイクダウンしにくくなるという話もあるし[6,7]，宇宙線の影響等で酸素分子の負イオン（O_2^-）が10^3 cm^{-3}のオーダーで大気中に常時存在しているという話もある[1]．酸素分子(O_2)の電子親和力は0.45 eV[8]なので，通常の中性分子に比べればO_2^-は桁違いに電離しやすい．結局，気体のレーザーブレイクダウンについては，その物理的プロセスは概ね理解されているが，定量的に結果を予測できるレベルには達していない，とまとめることができる．また，オーダーとして $\tau_L < 1$ ns の場合に関しては，研究例が少なく，あまりよく理解されているとは言えない[9]．

2.3 固体におけるレーザーブレイクダウン

固体誘電体に高強度レーザーが入射すると，レーザーの吸収によって価電子帯（valence band: VB）の電子が伝導帯（conduction band: CB）に励起され，CB 中の電子と VB 中の正孔が作られ，これらが電気伝導のキャリアとなる．この CB 中の電子（CB 電子）を電離気体における自由電子と同様であると考えれば通常のプラズマのように考えることができ，「CB電子の密度がある基準値を超えること」をブレイクダウンとみなすことができる．これが固体誘電体のレーザーブレイクダウンに関する基本的な考え方であるが，ブレイクダウンが起こることと固体誘電体が損傷を受けることとが混同されることが多いので，いくらか注意が必要である．そして，固体誘電体におけるレーザーブレイクダウンは，気体の場合とは少し違った考え方で理解せねばならない．以下，その代表的な理由を説明する．

2.3.1 フォノンとの衝突

前記の阻害プロセス①に対応する CB 電子のエネルギー損失機構は，フォノンとの非弾性衝突であると考えられている．CB電子は，レーザー電場による加速とフォノンによる弾性散乱を受け，レーザーを吸収して運動エネルギーを増大させていくが，フォノンと非弾性衝突を起こすとフォノンにエネルギーを与えて自らは運動エネルギーを失う．レーザー電場が弱く，このエネルギー損失機構に打ち勝てなければ，「CB 電子が衝突によって新たな CB 電子を次々に生み出していく」というアバランシェ機構が働かなくなり，CB 電子密度の雪崩的増大は起こらない．しかし，非弾性衝突による格子の加熱は起こるので，もし格子加熱速度が熱拡散速度を上回るなら，パルス幅が十分に長いと固体損傷に至る[10]．

図 3 に，CB 電子に関する運動量およびエネルギーの緩和速度を示す[11,12]．CB 電子とフォノンの相互作用を考えるときは，運動量の緩和速度とエネルギーの緩和速度を明確に区別し，それらの CB 電子エネルギー依存性を正しく扱うことが重要である[13]．**図 3** の緩和速度には，極性光学フォノン散乱，音響フォノン散乱，および衝突電離（CB電子が衝突することによるVBからCBへの電子励起；以下，本当の意味で電離ではないが，CBへの電子励起を電離と呼ぶことがある）の効果が含まれている．CB電子のエネルギーが2 eV 以下のときは，主として縦光学フォノンによる極性光学フォノン散乱が効いている．エネルギーが 2 eV を超えると，音響フォノン散乱が支配的になる．そしてエネルギーがバンドギャップエネルギー（9 eV）を超えると，衝突電離が可能になる．

Bloembergen のレビュー論文[14]によれば，次のように考えられている．CB 電子の運動量緩和時間は，10^{-15} s のオーダーか，それより短い．CB電子を散乱するのは主として音響フォノン（格子の変形ポテンシャル）である．エネルギーが 3－15 eV の CB 電子の（運動量変化に対する）平均自由行程は，ほとんどの固体誘電体中において原子間距離と同程度である．また，可視領域に近い光の変動電場の周期は$(1 \sim 3) \times 10^{-15}$ s［周波数は$(0.3 \sim 1) \times 10^{15}$ s^{-1}］なので，CB電子の運動量緩和時間は光の 1 周期程度か，それより短い．このことは，CB電子によるレーザー吸収の様子が通常のプラズマの場合とはかなり違っていることを意味している．

CB 電子によるレーザー吸収の特徴をもう少し考える．ほとんどの CB 電子のエネルギーはバンドギャップエネルギー以下で，平均的にはバンドギャップエネルギーの半分程度でしかなく[12]，紫外レーザーの場合には，CB 電子のかなりの割合について，そのエネルギーがレーザーの光子エネルギーと同程度か，それより小さくなってしまう．Arnold と Cartier[12]は，CB電子によるレーザー吸収を量子力学的に計算した．彼らは，レーザー吸収の古典的な扱いには「CB 電子の平均エネルギーが光子エネルギーの 5 倍よりも大きい」という条件を要求するのが適切だと述べている．

CB 電子の平均自由行程が非常に短いので，固体誘電体のレーザーブレイクダウンを考えるときは，前記の阻害プ

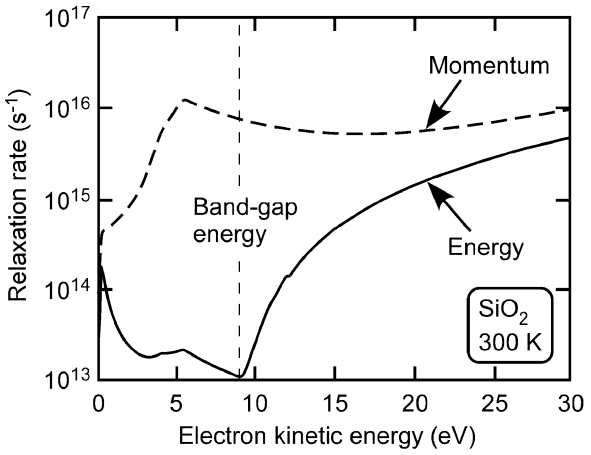


図 3　伝導帯電子に関する運動量およびエネルギーの緩和速度[11]．

ロセス②「物質拡散により自由電子が電場の強い領域から失われる（自由電子そのものの損失）」を無視することが多い．Epifanov[15]は，d_{FS}がどれくらい小さくなると拡散による電子消失がブレイクダウンに影響するのかを定量的に見積もった．見積もりの条件は

固体誘電体の温度と密度とバンドギャップエネルギー：300 K と 3.8 g cm^{-3} と 9 eV（サファイアを想定），レーザーの光子エネルギーとパルス幅と電場強度：1.17 eV と 3 ns と 1×10^7 Vcm^{-1}（YAG レーザーを想定），CB 電子の平均自由行程：10 nm（CB 電子の拡散係数：30 cm^{2}s^{-1}），

円柱対称を仮定，

レーザーのパワー密度の半径方向分布：$1/e$ になる直径が d_{FS} のガウス分布，

であり，このとき，$d_{FS} \ll 20$ μm になると拡散による電子消失がブレイクダウンに影響するという結果を得た．

2.3.2　固体の格子構造の存在

固体中では，高強度レーザーによって作られた CB 中の電子と VB 中の正孔が固体を形成している格子が作る場と相互作用するため，話が複雑になる．単純に考えれば，原子あるいはイオン同士の結合に寄与していた（VB中の）電子が CB に励起されて動き回るわけであるから，固体中の電荷分布に変化が生じ，キャリア周辺の原子あるいはイオンの安定位置が変化せざるを得ないわけである．キャリアは格子の局所的な変形を引き起こし，キャリアが運動するときにこの変形が作るポテンシャルを重い着物のように引きずって動くため，キャリアの有効質量が大きくなる（ポーラロン効果）．アルカリハライドやシリカ（SiO_2）のようなイオン結合やイオン性の強い共有結合でできている誘電体では，この効果が顕著である．そして，この局所的な格子歪がある程度以上に大きくなると，キャリアは自らが作り出した局所的な格子歪に束縛されて事実上動けなくなる．この現象は自己束縛と呼ばれている．

また，光励起で作られた電子と正孔の間にはクーロン引力が働く．この状態は，水素原子と同様に考えることができる．つまり，電子と陽子がペアを組んだ状態が水素原子であるように，電子と正孔がペアを組んだ状態を一つの粒子として取り扱うことができ，この状態を励起子（Exciton）という．励起子のエネルギー準位は，電子・正孔間の束縛エネルギーの分だけ CB 下端より低い．励起子のエネルギー準位は水素型原子の異なる状態（量子数）に対応して系列化しており，複数のエネルギー準位が密に並んでいて，そこに電子・正孔対の重心の運動エネルギーが加わり，エネルギー準位は幅を持ったバンド状になる．CB電子が格子との非弾性衝突によってエネルギーを失って励起子レベルに落ち込むこともあれば，VB 中の電子が光を吸収して励起子レベルに直接励起されることもある．励起子になると，電子と正孔が一緒に動くので，電気伝導性を示さない．励起子は，**格子振動**†と相互作用する．励起子と格子振動の相互作用が弱いときは，励起子は格子振動によって散乱される．しかし，励起子と格子振動の相互作用が強いときは，励起子が自己束縛されてしまう．つまり，励起子と格子振動の相互作用によって格子が大きく歪み，励起子の動きが抑え込まれ，励起子が特定の場所に局在するようになってしまう．自己束縛された励起子を自己束縛励起子（self-trapped exciton: STE）と云う．STE ができると，励起電子のエネルギーがその位置に局所化される．STE は，自由な励起子が自己束縛されてできることもあれば，先に自己束縛された正孔が電子を捕捉して（自由な励起子を経ずに）できることもある．後者については次のように説明される．CB 中の電子は自由に動き回るが，VB 中に生じた正孔についてはポーラロン効果が強く，短時間のうちに自らが作り出した格子歪に捕らえられて自己束縛されることが多い．そして，先にできた自己束縛正孔（self-trapped hole: STH）が CB 電子を捕獲すると STE になる．誘電体中のSTEに興味がもたれるのは「STEを通じて電子励起が欠陥形成のような原子の過程に変換される」からである．自己束縛は，原子のちょっとした変位がポテンシャルの井戸を深くし，そこにキャリアや励起子が局在することで起こる．熱的な揺らぎは，少なくとも一つの格子サイトに対し，自己束縛が始まるのに十分なくらいの瞬間的変形のエネルギーを供給することが可能である．

光学材料として重要なシリカガラス[16]を例にとって，もう少し詳しく説明する．シリカガラスは真空紫外から近赤外までの広い波長領域にわたって高い透過率を持つため，光学材料，特に紫外光透過材料として広く利用されてきた[17]．理想的なシリカガラスは，基本単位であるSiO_4四面体が頂点の酸素を共有することで三次元的な網目を形成したものであり，Si-O 結合のみで構成されている．理想的なシリカガラスに最も近いのは，蒸留精製したシラン化合物の気相酸化によって得られる高純度合成シリカガラスである．合成条件をうまく調節することで，理想状態に近いシリカガラスも作製されるようになっている[18]．理想的なシリカガラスはSi-O 結合のみで構成されており，シリカガラス中に生じる励起子は，Si-O 結合に影響を与えて自己束縛される．シリカガラスのエネルギー準位は，単純化

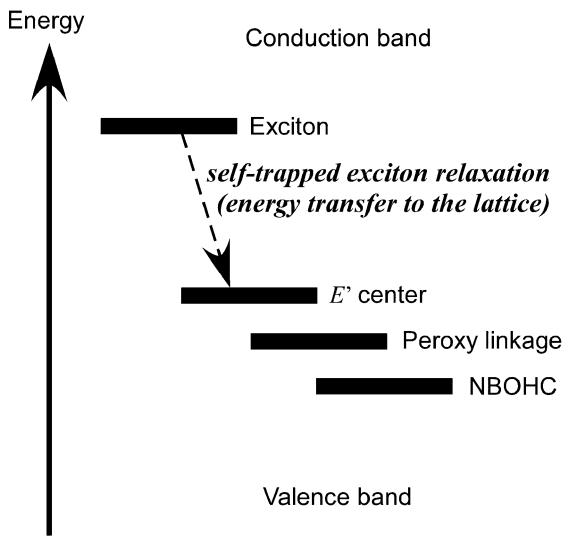


図 4　シリカガラスのエネルギー準位の模式図[19]．

すると，**図 4** のようになっている[19]．分光学的な測定に基づけば，励起子のエネルギーは緩和後の STE のエネルギーよりも 5 eV 程度大きく，励起子が自己束縛されてから非放射的に緩和する間に 5 eV 程度のエネルギーを格子に与えることがわかっている[20]．このエネルギーを使って SiO_4四面体構造が変形し，緩和した STE は**図 5** (a)のようになっているものと推定されている[21]．O(1)に正孔が束縛され，励起子のエネルギーが緩和過程で格子に与えられて Si(A)-O(1)-Si（B）結合の O(1)-Si（B）結合が壊され，O(1)はより安定な格子間位置に移動し，元々 O(1)があった空格子点の周辺には，負電荷に偏っていた O(1)の代わりに束縛された電子が分布している（電子は Si(B)の近くに局在するという計算結果もある[22]）．Si(B)は E' 中心（E' center）と呼ばれている点欠陥の形であり，O(1)は非架橋酸素ホール中心（nonbridging oxygen-hole center: NBOHC）と呼ばれている点欠陥の形である．STE が非放射的に緩和していく過程で（緩和で放出されるエネルギーを使って）E'中心と非架橋酸素ホール中心との距離が大きくなって準安定的な状態になると電子と正孔が再結合するまでの時間が長くなり，STE が長寿命の欠陥対として残ることもある．また，STE 中の電子と正孔が（主として放射によって）再結合するときに，生じた変位が元に戻らず，**図 5** (b)のような非常に寿命の長い点欠陥（色中心）になることもあると推定されている．O(1)が Si(A)と O(2)の間に入り込み，酸素過剰型欠陥（peroxy linkage）が形成されている．このような点欠陥は，本来の SiO_4 四面体構造とは異なっているのでバンド構造を乱し，VB 上端の少し上に位置する既に電子で占められているようなエネルギー準位や，バンドギャップ内に位置する電子励起可能な欠陥準位を新たに作り出す．やや正確さを欠くかもしれないが，次のようにイメージできる．理想的な安定状態の原子配列に対し，少しだけ異なる準安定状態の原子配列があり，それらが通常の温度レベルでは超えられないくらいのポテンシャル障壁で隔てられているとき，そのポテンシャル障壁を乗り越えられるだけのエネルギーが CB に光励起された電子の局所的で非放射的な緩和過程で供給されると，準安定状態に原子配列を変える格子サイトが現れ，そのまま長寿命化してしまうことで点欠陥が残される．

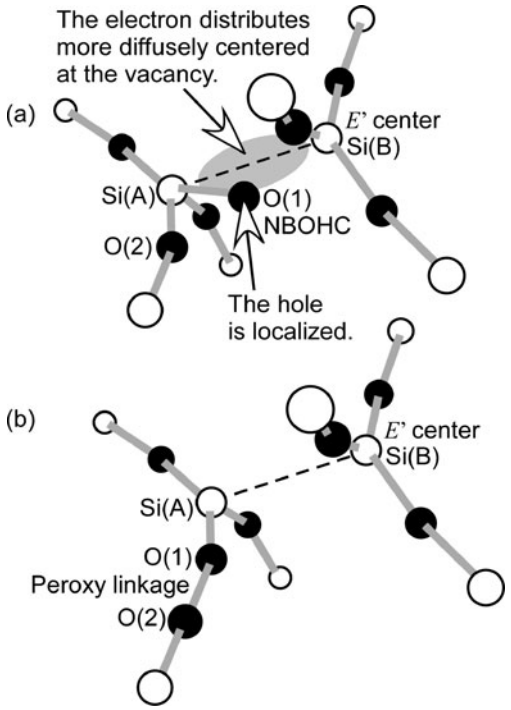


図 5　シリカガラスの(a)自己束縛励起子と(b)欠陥対の模式図[21]．

STE やそれに起因する（不純物等に依らない）欠陥（真性欠陥：intrinsic defect）は，レーザーブレイクダウンの開始条件に大きく影響する．つまり，電子拡散の代わりに，STE の形成が CB 電子の数を減らす役を担う．これを考慮した，CB 電子密度に関するレート方程式は，例えば次のように書ける[23]．

$$\begin{cases} \dfrac{dN_{CB}}{dt} = \dfrac{N_{VB}-N_{CB}}{N_{VB}}[w_{PE}(U_g)+N_{CB}w_{IE}(U_g)] \\ \qquad +\dfrac{N_{STE}}{N_A}[w_{PE}(U_{STE})+N_{CB}w_{IE}(U_{STE})]-\dfrac{N_{CB}}{\tau_{STE}} \\ \dfrac{dN_{STE}}{dt} = \dfrac{N_{CB}}{\tau_{STE}}-\dfrac{N_{STE}}{N_A}[w_{PE}(U_{STE})+N_{CB}w_{IE}(U_{STE})] \end{cases} \quad (6)$$

ここで，N_{CB} は CB 中の電子密度，N_{VB} は VB 中の電子密度，N_{STE} は STE の電子密度，N_A は原子密度，U_g は CB 下端と VB 上端のエネルギー差，U_{STE} は CB 下端と STE のエネルギー差，w_{PE} は光励起速度（単位の例は，$cm^{-3}\,s^{-1}$），w_{IE} は衝突励起速度（単位の例は，s^{-1}），τ_{STE} は CB 中の電子が STE に変わる時定数である．シリカガラスの場合は，$U_g = 9$ eV，$U_{STE} = 6$ eV，$\tau_{STE} = 150$ fs である[23]．Chimier ら[23]は，w_{PE} については，文献[24]の式(37)を使い，多光子吸収の仮定を使っていない．これは，次のような事情を考慮したものである．

気体のブレイクダウンでは，中性分子が電離するために必要なエネルギーはいわゆる電離エネルギーであり，その大きさは窒素で 15.6 eV，酸素で 12.1 eV である[25]．一方，固体誘電体では，VB 中の電子が CB に励起されて電気伝導のキャリアとなるために必要なエネルギーはいわゆるバンドギャップエネルギーであり，典型的な誘電体光学材料であるシリカ（SiO_2）ガラスで（正確な値については励起子に関連して議論の残るところではあるが）約 9 eV であり[26]，また良く研究されているアルカリハライド結晶については，KBr で 7.4 ± 0.6 eV，NaCl で 8.5 ± 0.5 eV，KI で 6.0 ± 0.3 eV である[27]．これらの例からわかるように，典型的な物質では，固体誘電体中に CB 電子を励起するのに必要なエネルギーは，気体中に自由電子を作り出すのに必要なエネルギーよりも小さい．高強度電場による電離は，ケルディッシュ[24]によって解析され，その様相はケルディッシュパラメータ：

$$\gamma = \sqrt{\frac{U_g}{2U_P}} = \frac{\omega_L}{e}\sqrt{\frac{m_e c n \varepsilon_0 U_g}{S_L}}$$
$$\left(U_P = \frac{e^2 E_{L0}^2}{4 m_e \omega_L^2},\ S_L = n\frac{1}{2}\varepsilon_0 c E_{L0}^2\right) \quad (7)$$

によって変化する．ここで，U_P はポンデロモーティブエネルギー，c は真空中の光速，ε_0 は真空の誘電率，n は屈折率，S_L，E_L0 は，各々，レーザーのパワー密度と電場の振幅である．**図6**は，Schaffer ら[28]による，w_{PE} と γ の計算例である．詳しい計算で求められた w_{PE} は，$\gamma < 1.5$ の領域ではトンネル励起速度に近く，$\gamma > 1.5$ の領域では多光子吸収の励起速度に近い．興味深いのは，固体誘電体中にCB電子を励起するのに必要なエネルギーは気体中に自由電子を作り出すのに必要なエネルギーよりも小さいのだが，屈折率（n）が1.5から2程度なため，γ は気体でも固体でも大きく変わらないことである．ただし，STE から CB への電子励起を扱うときには，励起に必要なエネルギー U_{STE} が U_g よりも小さくなるので，$\gamma < 1.5$ になる可能性があり，注意が必要である．また，**図6**を見るとわかるが，容易に高強度になる超短パルスレーザーの場合は，やはり $\gamma < 1.5$ になる可能性があり，注意が必要である．

Chimier ら[23]は，式（6）のレート方程式を使い，パルス幅が7～300 fsのレーザーに対し，ダメージに対するレーザーフルエンスしきい値とアブレーションに対するレーザーフルエンスしきい値を計算で再現した．ただし，計算に必要な各種定数の値が精度よくわかっているわけではなく，各種定数の値をうまく選べば実験結果を説明できる，というのが実際のところである．

2.3.3　インキュベーション効果

真性欠陥の形成は，同じ条件でレーザー照射を何度も繰り返すと，シングルショット実験の場合よりも低い（1パルスあたりの）レーザーフルエンスで固体誘電体のブレイクダウンが生じる，という**インキュベーション効果**†に関係しているものと考えられている[29]．この現象に対し，

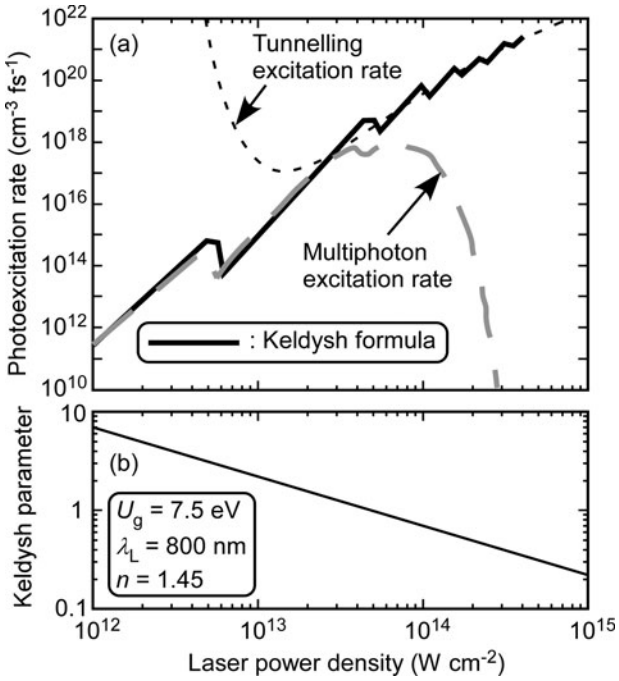


図6　光励起速度とケルディッシュパラメータの計算例[28]．Keldysh formula とは文献[24]の式(37)を，トンネル励起速度とは文献[24]の式(40)を，多光子吸収励起速度とは文献[24]の式(41)を指す．

Mero ら[30]は，次のようなレート方程式でデータを解析した．

$$
\begin{cases}
\dfrac{dN_{CB}}{dt} = aS_L N_{CB} + \sigma_{VB}\left(\dfrac{S_L}{\hbar\omega_L}\right)^{m_{VB}} N_{VB} - \dfrac{N_{CB}}{\tau_{VB}} \\
\quad + \left[\begin{array}{l} \sigma_1\left(\dfrac{S_L}{\hbar\omega_L}\right)^{m_1} N_1 - \dfrac{N_{CB}}{\tau_1}\left(1 - \dfrac{N_1}{N_{1,max}}\right) \\ + \sigma_2\left(\dfrac{S_L}{\hbar\omega_L}\right)^{m_2} N_2 - \dfrac{N_{CB}}{\tau_2}\left(1 - \dfrac{N_2}{N_{2,max}}\right) \end{array}\right] \\
\dfrac{dN_1}{dt} = -\sigma_1\left(\dfrac{S_L}{\hbar\omega_L}\right)^{m_1} N_1 + \dfrac{N_{CB}}{\tau_1}\left(1 - \dfrac{N_1}{N_{1,max}}\right) \\
\dfrac{dN_2}{dt} = -\sigma_2\left(\dfrac{S_L}{\hbar\omega_L}\right)^{m_2} N_2 + \dfrac{N_{CB}}{\tau_2}\left(1 - \dfrac{N_2}{N_{2,max}}\right)
\end{cases}
\tag{8}
$$

彼らは，**図7**のように，バンドギャップ内に浅いトラップ準位1と深いトラップ準位2を考え，CB とそれらのトラップ準位との間の遷移を考慮し，さらにCBからVBへの緩和も考慮した．上式において，a は VB から CB への衝突励起の定数，S_L はレーザーのパワー密度，$\hbar\omega_L$ はレーザーの光子エネルギー，σ_{VB}，m_{VB} は VB 電子によるレーザーの多光子吸収の断面積と光子数，τ_{VB} は CB から VB への緩和の時定数，N_1，$N_{1,max}$ はトラップ準位1の電子密度とその最大値，σ_1，m_1 はトラップ準位1の電子によるレーザーの多光子吸収の断面積と光子数（実際には $m_1 = 1$），τ_1 は CB 電子がトラップ準位1に捕獲される時定数，N_2，$N_{2,max}$ はトラップ準位2の電子密度とその最大値，σ_2，m_2 はトラップ準位2の電子によるレーザーの多光子吸収の断面積と光子数，τ_2 は CB 電子がトラップ準位2に捕獲される時定数，である．トラップ準位の電子数に調節可能な最大値を設定し，トラップ準位の飽和の効果をモデル化している．また，$N_{1,max} \ll N_{2,max} \approx O(N_{VB})$ と設定することで，トラップ準位2にパルスの連続照射による蓄積効果を与えている．彼らは衝突励起による CB 電子の雪崩的増大のタネ電子として多光子吸収で励起された CB 電子を想定している．そして，前のパルスの後にトラップ準位2に残っていた電子が次のパルスでの多光子吸収で CB 電子となることで，パル

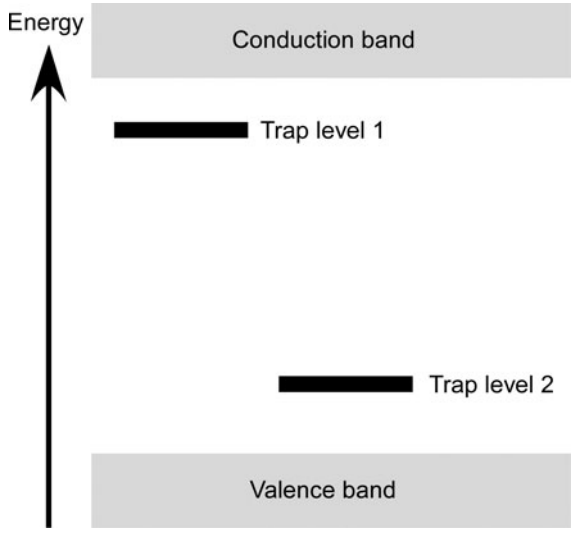


図7　インキュベーション効果を解析するためのモデル[30]．

ス照射を重ねる毎にタネ電子の数が増えていき，ブレイクダウンしやすくなるようにモデル化したのである．また，$N_{2,\max}$ をうまく調節することで，レーザーブレイクダウンのインキュベーション効果がパルス数の増大と共に飽和する効果もモデル化している．モデル計算の結果は，**図 8** に示すように，パラメータをうまく設定することで，実験結果をかなり良く説明できている．ただし，この場合も，予測するというよりも説明する，という意味でのモデル化と言える．

インキュベーション効果については，同じ場所にレーザー照射を重ねていくとレーザーの集光領域内に点欠陥が増え，点欠陥による膨張の応力が大きくなってレーザー集光領域にダメージが入ると考える研究者もいる[31]．

2.3.4 屈折率効果

常温常圧の気体の屈折率は，ほとんどの場合，近似的に 1 である．しかし，誘電体光学材料の屈折率は 1 よりも大きい．このため，固体誘電体と環境気体の境界面でフレネル反射が起こる．実は，気体中に置かれた透明な固体誘電体では，その固体誘電体を高強度レーザーが透過すると，出口面の方が入口面よりも損傷を受けやすい[32]．Boling ら[33]は，この現象をフレネル反射によって生じる干渉で説明した．屈折率 n の透明な固体誘電体が屈折率 1 の気体中に置かれていて，そこにレーザーが直入射する場合を考える．このとき，入口面の近傍では，入射光とその反射光との干渉で電場が弱まる．そして，入口面近傍における電場強度 E_{ent} は，入射しようとするレーザーの（$n \approx 1$ の媒質中における）電場強度 E_0 を使い，次のように書ける．

$$E_{\mathrm{ent}} = \frac{2}{1+n} E_0 \tag{9}$$

もし $n = 1.5$ なら，$E_{\mathrm{ent}} = 0.8E_0$ であり，$E_{\mathrm{ent}}^2 = 0.64E_0^2$ である．固体誘電体の中に入った入射光の透過成分は，出口面で再びフレネル反射を受ける．そして，出口面に入射する光と出口面で反射される光とが干渉し，出口面近傍における電場を強める．結果として，出口面近傍における電場強度 E_{exit} は，E_0 を使い，次のように書ける．

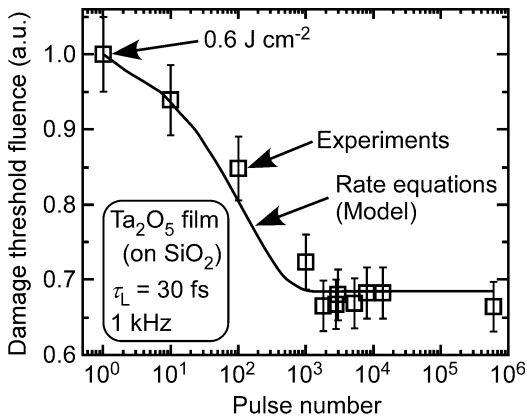


図 8　インキュベーション効果に対する実験結果とモデル計算の結果[30]．

$$E_{\mathrm{exit}} = \frac{4n}{(1+n)^2} E_0 \tag{10}$$

もし $n = 1.5$ なら，$E_{\mathrm{exit}} = 0.96E_0$ であり，$E_{\mathrm{ent}}^2 \approx 0.92E_0^2$ である．つまり，出口近傍におけるレーザーのパワー密度は，入口近傍におけるそれの 1.44 倍である．

Boling らの研究[33]は，単に出口面の方がブレイクダウンしやすいことを理論的に示しただけでなく，理論計算と実験結果の比較では「物質中におけるレーザーの電場強度」の正しい評価が必要であることも示している．固体誘電体の屈折率は，レーザーの電場が強いと光カー効果で変化し，CB 電子が励起されるとその効果でも変化し，CB 電子が自己束縛されて STE が生成されるとさらに変化する．レーザー照射開始から固体損傷が起きるまでに屈折率が時々刻々変化していくことを考えると，モデル計算による高精度の予測がいかに難しいかがわかる．

Bloembergen[34]は，固体誘電体の表面にキズがあると，そこでどれくらいレーザー電場が強くなるかを計算した．Bloembergen の研究[34]によれば，次のようである．細くて深い溝のようなクラックが屈折率 n の固体誘電体の表面にある場合，クラック先端における電場強度 E_{C} は，固体誘電体内部の一様な部分における電場強度 E_{Bulk} を使って，$E_{\mathrm{C}} = n^2 E_{\mathrm{Bulk}}$ と書ける．このことで，レーザーパワー密度のクラックにおけるブレイクダウンのしきい値は，キズがない場合に比べてファクター n^4 だけ低くなる．もし $n = 1.5$ なら，$n^4 \approx 5$ となる．また，0.01 μm 以下のクラック等については，電場が強められる領域がそれくらいにまで小さくなると，CB 電子が電場が強められた領域の外に物質拡散で出て行ってしまうので，ブレイクダウンの発生にはつながらなくなる，と述べている．

屈折率に関しては，もう一つ，レーザーの自己収束の問題がある．光カー効果でレーザーの電場強度の高い部分（通常はビーム中心部分）の屈折率が高くなると，光は屈折率の高い方に曲がるから，レーザービームが自己収束を起こす．Zverev と Pashkov[35]は，レーザーのパワー密度が低いときの集光直径を d_0 としたとき，パワー密度が高いときの実効的な集光直径 d が次式で評価できると提案した．

$$d = d_0 \sqrt{1 - \frac{P}{P_1}} \tag{11}$$

ここで，P はレーザーのパワーであり，$P_1 = \dfrac{\lambda_0 c}{32\pi^2 n_2}$[36] である．ただし，$\lambda_0$ は真空中のレーザー波長で，n_2 は非線形屈折率であり，電場強度を E としたときに屈折率 n が $n = n_0 + n_2 E^2$（n_0 は電場強度に依らない分）となる．この関係式によれば，自己収束によって，レーザーのパワー密度が $1/[1-(P/P_1)]$ 倍になる．また，この補正に対し，Soileau ら[37]は，$1/[1-(P/P_1)]$ の代わりに $1/[1-(P/P_2)]$（ガウス型ビームに対しては $P_2 = 3.77P_1$[36]）を使うべきであると提案している．

2.4　ブレイクダウンしきい値のパラメータ依存性

図 9 は，F_{Lth} の τ_{L} 依存性である[10]．**図 9** からわかるように，$\tau_{\mathrm{L}}>20$ ps のときは，概ね $F_{\mathrm{Lth}}\propto\tau_{\mathrm{L}}^{1/2}$ である．Stuart ら[10]は，ダメージの形態学的特徴の質的な違いおよび $F_{\mathrm{Lth}}\propto\tau_{\mathrm{L}}^{1/2}$ という比例則に従うか否かに注目し，$\tau_{\mathrm{L}}\leq 10$ ps では（しきい値付近の条件では）アブレーションによってレーザー照射領域の中のレーザーパワー密度が高い部分にのみダメージが入り，$\tau_{\mathrm{L}}>50$ psでは熱拡散に基づき比較的広い領域の溶融（と蒸発）によってダメージが入ると述べている．

上記の $F_{\mathrm{Lth}}\propto\tau_{\mathrm{L}}^{1/2}$ という比例則は，次のように説明できる[38]．パルス幅 τ_{L} のレーザーが固体誘電体に照射され，面積 A の薄い領域で吸収されるとする．この薄い領域は，固体誘電体の表面だと考えても良いし，内部でブレイクダウンが起こり面積 A の薄いプラズマ層がレーザーを吸収すると考えても良い．このとき，高温の薄い層ができるので，熱はその層に対して垂直な方向に（1 次元的に）拡散していくと仮定する．照射レーザーエネルギーを $\mathcal{E}_{\mathrm{L}}$，吸収率を η とすると，レーザー照射時間 τ_{L} の間の熱拡散距離は $\sqrt{\alpha\tau_{\mathrm{L}}}$（$\alpha$ は固体誘電体の熱拡散率）の程度であるから，エネルギー $\eta\mathcal{E}_{\mathrm{L}}$ が体積 $A\sqrt{\alpha\tau_{\mathrm{L}}}$ に与えられる．この加熱による温度上昇 ΔT は，固体誘電体の質量密度 ρ と比熱 c_p を使って，$\Delta T=\dfrac{1}{\rho c_p}\dfrac{\eta\mathcal{E}_{\mathrm{L}}}{A\sqrt{\alpha\tau_{\mathrm{L}}}}$ と書ける．固体誘電体が損傷を受ける温度上昇のしきい値を $(\Delta T)_{\mathrm{th}}$ とすると，F_{Lth} は $F_{\mathrm{Lth}}=\left(\dfrac{\mathcal{E}_{\mathrm{L}}}{A}\right)_{\mathrm{th}}=\dfrac{\rho c_p(\Delta T)_{\mathrm{th}}\sqrt{\alpha\tau_{\mathrm{L}}}}{\eta}\propto\tau_{\mathrm{L}}^{1/2}$ となる．

図10は，F_{Lth} の U_{g} 依存性である[39]．Mero ら[39]は，TiO_2，Ta_2O_5，HfO_2，Al_2O_3，SiO_2 の 5 種の酸化物の（厚さ 6.35 mm のシリカガラス上に付着させた）フィルム（屈折率と厚さの積が約 1200 nm）を，波長 800 nm のレーザーで，パルス幅を 25～1300 fs の範囲で変えて照射し，次の経験的な比例則を得た．

$$F_{\mathrm{th}}=(-0.16+0.074U_{\mathrm{g}})\tau_{\mathrm{L}}^{0.30} \tag{12}$$

（F_{th} in J cm^{-2}，U_{g} in eV，τ_{L} in fs）

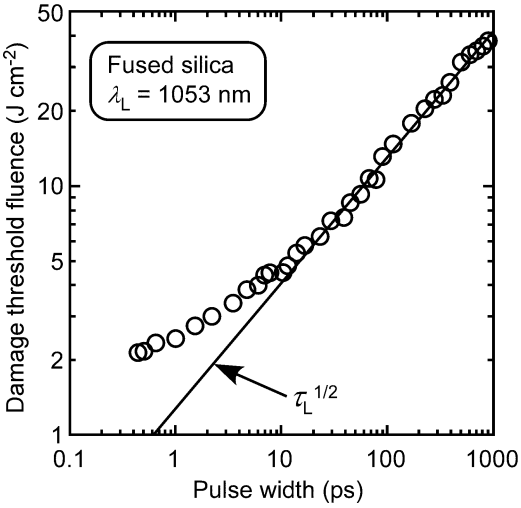


図 9　レーザーフルエンスのダメージしきい値のパルス幅依存性[10]．

2.5　その他のトピックス

2.5.1　実験結果のバラつき

実験結果を定量的に予測できるモデルの構築が難しい理由の一つは，ブレイクダウンあるいは損傷の実験的判断基準が研究者ごとに微妙に違っていることである[29,30,40]．また，固体誘電体が非本質的で外因的な（extrinsic）欠陥や不純物を無視できないレベルで含んでいると，レーザーの集光領域体積との関係で，実験結果が大きくばらつくことも知られている[14,31,37]．実際にデータ解析する際は，同じ条件の中でダメージしきい値が最も高かったデータのみを選ぶ研究者もいる[41]．また，アルカリハライド結晶を使ったレーザーダメージ実験の場合であるが，融点近くで熱処理すると，データのばらつきが減ってブレイクダウンしきい値が性能の良いケースに近づくことがある，という報告もある[42]．実験的には，τ_{L} が長いと F_{Lth} がばらつくが，いわゆるフェムト秒レーザーの場合にはあまりばらつかないことが知られている[10,38]．

2.5.2　ダメージ確率という観点

高強度レーザーを固体誘電体に照射すると誘電体が損傷を受けるという現象は，照射レーザーのフルエンスやパワー密度にしきい値が存在する決定論的な現象だとする見方がある一方，本質的に確率的な現象であって，レーザーのフルエンスやパワー密度を上げると「誘電体が損傷を受ける確率が上がるだけなのだ」とする見方もある．Bass と Barrett[43]は，レーザーを 1 回照射したときに誘電体が損傷を受ける確率を p_{S} として，$p_{\mathrm{S}}\propto\exp(-K/E_{\mathrm{L}})$ という関係を提案している．ここで，E_{L} はレーザーの電場強度であり，K は E_{L} 以外で決まる定数である．確率 p_{S} が 1 に近いときの K/E_{L} が大きな値のときは，$\dfrac{E_{\mathrm{L}}}{p_{\mathrm{S}}}\dfrac{\partial p_{\mathrm{S}}}{\partial E_{\mathrm{L}}}=\dfrac{K}{E_{\mathrm{L}}}$ だから，E_{L} が相対的に少し変化するだけで p_{S} が相対的に大き

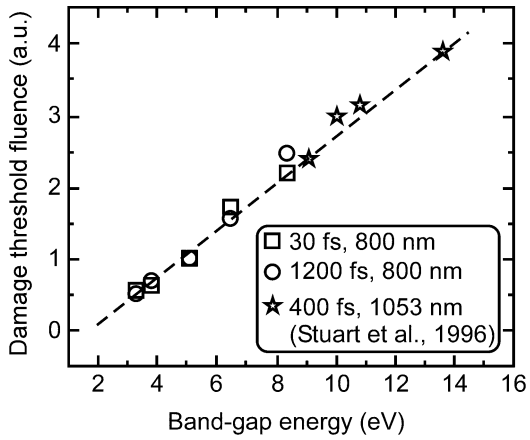


図10　レーザーフルエンスのダメージしきい値のバンドギャップエネルギー依存性（バンドギャップエネルギーが 5.1 eV の場合を 1 に規格化）[39]．400 fs のデータは，文献[10]からの引用で，サンプルは BaF_2，CaF_2，MgF_2，LiF であり，実験では各場所を同じ条件で600回（10 Hz）照射し，実験結果を 1.5 J cm^{-2} で除した値をプロットしている．

く変化し，あたかもしきい値を持つ決定論的な現象に見える．また，レーザー強度が低くても p_S が完全に 0 にはならない点も重要で，レーザー照射を多数回繰り返していると，レーザー強度が安全圏内のはずなのに誘電体が損傷を受けることがあり得ることになる．ちなみに，M 回目のレーザー照射で誘電体が損傷を受ける確率を p_M とすると，$p_M=(1-p_S)^{M-1}p_S$ と書ける[43]．実際，**図11**に示すように，Bass と Barrett[43]は確率的な解釈に基づいて実験結果をうまく説明している．特に，ブレイクダウンが起こるタイミングを時間分解測定し，**図12**に示すように，レーザーパルスの強度がピークとなる時刻を過ぎてからブレイクダウンが起こる場合もある，という結果を得ている．この実験結果を決定論的な見方で説明するのは難しい．

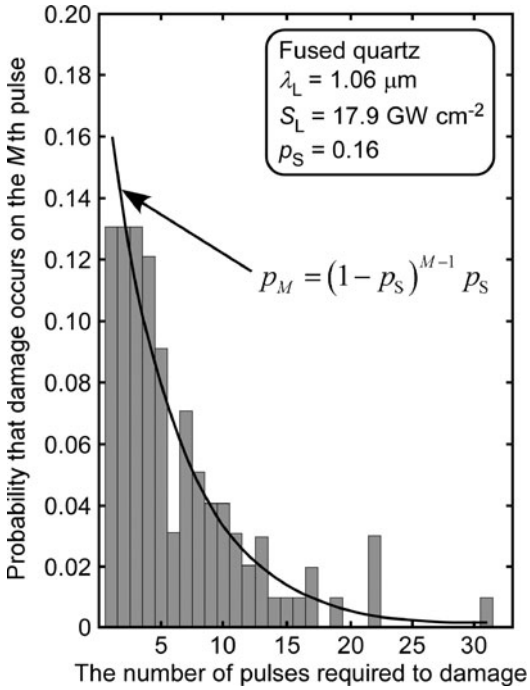


図11　M 回目のレーザー照射で石英が損傷を受ける確率[43]．

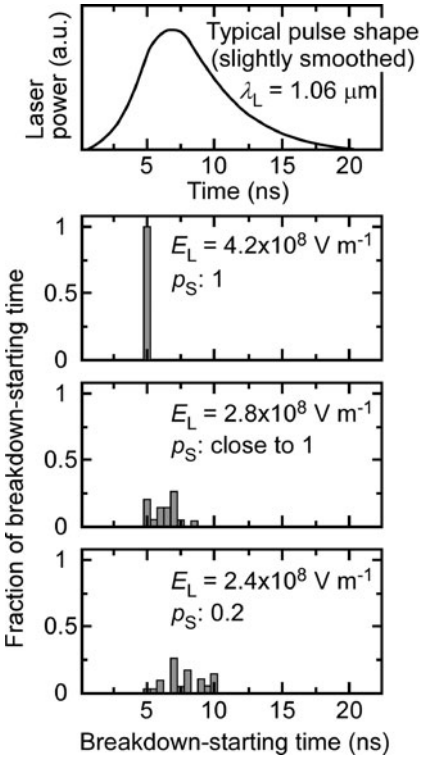


図12　板ガラスにおいて表面ブレイクダウンが始まる時刻の分布（K = 9.1 × 10^8 Vm^{-1}）[43]．

確率的な現象になる要因としては，次のような考え方が提案されている[43]．レーザーの電場は周期的に向きを逆転させている．また，CB 電子は，フォノンとの衝突によって時々刻々運動の向きを変えている．もし，レーザー電場の向きが逆転するときにちょうど運動方向も逆転して常に電子が電場によって進行方向に加速されるような“**ラッキーな衝突**”†を何度か続けて起こす CB 電子があれば，そのような CB 電子は非常に効率よくレーザー電場からエネルギーを受け取り，衝突によってVBからCBに電子を励起し，CB電子密度の雪崩的増大にきっかけを与え，ブレイクダウンに至ると考える．そして，そのような“ラッキーな衝突”が起こりやすい場合に p_S は高くなり，また，少ない回数の“ラッキーな衝突”でブレイクダウンに至る場合にも p_S が高くなるのだと考える．そう考えると，例えば，低周波数（長波長）レーザーの方がハーフサイクルの時間が長いので，少ない回数の“ラッキーな衝突”で VB から CB に電子を衝突励起できるエネルギーとなり，p_S が高くなる．実際，0.69 μm レーザーと 1.06 μm レーザーの実験結果を比較し，1.06 μm レーザーの方がブレイクダウンを起こしやすいという結果が示されている．

2.5.3　VB から CB に電子を衝突励起する為の最小エネルギー

CB 電子の衝突によってVB中の電子がCBに励起されるとき，衝突する CB 電子の（CB 下端を基準とした）エネルギーが最低限どれだけ必要かという値については，必ずしも同じようには扱われていないようである．Keldysh [24] によれば，実効的なバンドギャップエネルギー（$\tilde{U}_g$）は，第二種完全楕円積分 $E(k)=\int_0^{\pi/2}\sqrt{1-k^2\sin^2\theta}\,d\theta$ を使い，次のように定義されている．

$$\tilde{U}_g=\frac{2}{\pi}U_g\frac{\sqrt{1+\gamma'^2}}{\gamma'}E\left(\frac{1}{\sqrt{1+\gamma'^2}}\right)$$
$$\left(\gamma'=\frac{\gamma}{\sqrt{2}}=\frac{1}{\sqrt{2}}\sqrt{\frac{U_g}{2U_P}}=\frac{1}{\sqrt{2}}\frac{\omega_L}{e}\sqrt{\frac{m_e c n\varepsilon_0 U_g}{S_L}}\right) \tag{13}$$

第二種完全楕円積分 $E(k)$ は，$E(0)=\pi/2$，$E(1)=1$ で，1 と $\pi/2$ の間の値をとる．修正されたケルディッシュパラメータ（γ'）が $\gamma'^2\ll 1$ のとき（トンネル励起が起こるとき）は $\tilde{U}_g\approx\frac{1}{\gamma'}\frac{2}{\pi}U_g>U_g$ となり，$\gamma'^2\gg 1$ のとき（多光子吸収が起こるとき）は $\tilde{U}_g\approx U_g$ となる．超短パルスレーザーの場合は，レーザーのパワー密度（S_L）が高くなりがちなので，$\tilde{U}_g$ が U_g よりも大きくなる場合があり，注意が必要である．

また，文献[44,45]によれば，ウムクラップ過程の寄与を無視すると，放物形のバンドに対しては，エネルギーと運動量の両者を保存させるためには，CB 電子の衝突で VB から CB に電子を励起する為の最小エネルギーは，バンド

ギャップエネルギーの $\frac{1+2\mu}{1+\mu}$ 倍になる．ここで，$\mu=\frac{m_c^*}{m_v^*}$ であり，m_c^* はCB中の電子の実効質量であり，m_v^* はVB中の正孔の実効質量である．もし $\mu\approx 1$ ならば，CB電子の衝突でVBからCBに電子を励起する為の最小エネルギーはバンドギャップエネルギーの1.5倍になる．

2.5.4 アバランシェ機構とブレイクダウンしきい値

気体中のレーザーブレイクダウンは，$\tau_L>1$ nsの場合ではあるが，アバランシェ機構がブレイクダウンしきい値を支配しているというアバランシェモデルで理解されてきた．おそらく，その関係で，固体誘電体のレーザーブレイクダウンもアバランシェモデルで理解されてきた．しかし，いわゆるフェムト秒レーザーが出現して診断技術が格段に進歩し，STEの形成によるCB電子の損失などの新しい現象が明らかになってきて，固体誘電体のレーザーブレイクダウンをアバランシェモデルだけで理解しようとすることへの批判が生じてきている．短パルスレーザーを使った比較的最近の研究では，「CB電子の衝突によってVBからCBに電子が励起される効果」と「高強度レーザーによってVBからCBに電子が直接励起される効果」とで「どちらがブレイクダウンしきい値を支配しているか？」というような議論が多くなされている．計算に使用する定数や式が精度よく確定しないと，この問題に決着をつけるのは難しい[31]．例えば，Kaiserら[46]の研究は，計算精度を追求した研究の一例と言えるだろう．彼らは，現象論的パラメータの使用を避け，波長500 nm，パルス幅25～200 fsのレーザーを石英の結晶（α-SiO_2）に入射させたケースをシミュレーションし，F_{Lth} を求めた．計算された F_{Lth} は，実験結果に比べ，定性的な特徴は再現でき，値もオーダーは一致した．しかし，定量的には，もちろん実験結果に問題がないとは言えないが，まだ一致しているとは言えない状況である．そして，計算結果を基に，パルス幅が25 fsのときは「CB電子の衝突によってVBからCBに電子が励起される効果」は無視できるレベルで，200 fsのときは「CB電子の衝突によってVBからCBに電子が励起される効果」が「高強度レーザーによってVBからCBに電子が直接励起される効果」と同程度にまで大きくなった，と述べている．こうした結果は，CB電子の衝突でVBからCBに電子を励起する為の最小エネルギーの評価や，高強度レーザーによってVBからCBに電子が直接励起されるレートの計算式に直接影響され，今後の高精度化によっては結論が変わってくる可能性が残っている．

Jonesら[31]は，アルカリハライド(NaCl)結晶と532 nmレーザー（パルス幅については，強度が1/eになる半幅が約80 ps）を使い，F_{Lth} をわずかに下回るレーザーフルエンス（S_L は数百GW cm^{-2}）で固体へのレーザーエネルギー付与を測定し，$U_g\leq 4\hbar\omega_L$ の場合に対し，「CB電子の衝突によってVBからCBに電子が励起される効果」によるCB電子密度の雪崩的増大がダメージを引き起こすというアバランシェモデルを否定し，多光子吸収だけでダメージ形成に十分な数のCB電子が生まれると主張した．さらに，NaCl結晶と溶融石英（SiO_2）を使い，266 nmレーザーの多光子吸収でCB電子を励起し，その励起されたCB電子を1064 nmレーザーで加熱する実験も行った．その結果，$U_g\leq 7\hbar\omega_L$ なる条件に対し，ダメージしきい値付近のレーザーフルエンスにおけるアバランシェ機構の重要性を否定した．また，Quéréら[47]も，パルス幅60 fs，波長800 nmのレーザーを SiO_2，Al_2O_3，MgOに照射する実験を行い，アバランシェ機構の重要性を否定した．このような実験結果を精度良く解析し，さらに実験とは異なる条件（例えば，τ_L がオーダーで異なるような条件）の場合についても理解しようとするならば，計算に使うモデルと定数のさらなる高精度化が必要であろう．

2.5.5 通常は考慮されないVBからCBへの電子励起過程

通常は考慮されないが，理論的には，衝突アシスト多光子アバランシェ（collision-assisted multiphoton avalanche）や正孔アシスト多光子吸収（hole-assisted multiphoton absorption）などの過程も研究されている[19]．前者は，次のようである．VB電子がいくつかの光子を多光子吸収するのと同時にCB電子に衝突されることで，本来ならばエネルギー不足でVB電子をCBに励起できないCB電子もアバランシェ機構に寄与するというものである．また，後者は，次のようである．1つの正孔は，そのクーロン場により，近くに存在しているいくつかの原子の多光子吸収レートを指数関数的に高める．そのため，新しい正孔が生まれると，その正孔の影響で連鎖反応的に多光子吸収が増え，衝突なしにアバランシェが起き得る．

2.5.6 ブレイクダウンと固体損傷の関係

実は，レーザーブレイクダウンは固体誘電体が損傷を受けるための必要条件かと云うと，そうではないらしい[33]．もしかすると，十分条件ですらないかもしれない[32]．この問題は，ある意味答えようがなく，実験的には，「どこまで小さくて温度の低いプラズマを検知できるか(そもそも，ブレイクダウンをどう定義するか)」と「どこまで小さな損傷を検知できるか」で決まる話である．

モデル計算におけるブレイクダウンの判断は，CB電子密度に基準を設定し，CB電子密度がその値に達したか否かで行われることが多い．Epifanov[15]は，固体誘電体に損傷が残るほどの加熱が起こるために必要なCB電子密度を評価し，4×10^{18} cm^{-3} という結果を得ている．しかし，損傷しきい値に関してモデル計算と実験を定量的に比較するには，本来，格子の温度とCB電子の温度の計算が不可欠である[23]．ただ，冷たいイオンの電子駆動アブレーション（electron-driven ablation of cold ions）[48]と呼ばれている現象もある．これは，CB電子のエネルギーがイオンの結合エネルギーを超えると，イオンがCB電子に引かれるようにして固体表面から飛び出していく現象である．このような現象を考えると，CB電子密度が上がって，CB電子にレーザーのエネルギーが十分に供給されれば，格子を温めなくても固体表面が損傷を受けることになる．

様々なことを真面目に考えると，ブレイクダウンと固体損傷の関係は極めて複雑なものに見えてくる．例えば，レーザーのパルス幅が長いときに $F_{Lth}\propto\tau_L^{1/2}$ という比例則に従うという話があったが，もしこの比例則が際限なく長

いパルスでも成り立つなら，レーザーパワー密度に関しては $S_{\mathrm{Lth}} = F_{\mathrm{Lth}}\tau_{\mathrm{L}}^{-1} \propto \tau_{\mathrm{L}}^{-1/2}$ となるから，際限なく長いパルスでは S_{Lth} が際限なく低くなってしまう．しかし，あまりに低いレーザーパワー密度では，多光子吸収も起きないし，アバランシェも起きない．したがって，$F_{\mathrm{Lth}} \propto \tau_{\mathrm{L}}^{1/2}$ という比例則は，あまり長すぎるレーザーパルス幅では成り立たないはずである．つまり，$F_{\mathrm{Lth}} \propto \tau_{\mathrm{L}}^{1/2}$ という比例則は，レーザーエネルギーが固体誘電体に吸収されるメカニズムが存在することを前提にしているわけで，外因性の不純物や欠陥を持たない固体誘電体では，レーザーフルエンスに対するブレイクダウンしきい値がダメージしきい値よりも低いことが暗黙の了解になっている．あるいは，ブレイクダウン以外の加熱機構が表に現れる可能性もなくはない．Wood と Sharp[49]は，レーザーによって引き起こされる固体損傷をかなり包括的に議論している．内容が少し古いが，1980年代までの理解の仕方が記述されていて興味深く，ブレイクダウンとは異なる損傷機構も議論されているので，視野を広げるには良い文献であろう．また，光を吸収する不純物が引き起こす損傷については，Danileiko ら[50] によって議論されている．レーザーによって引き起こされる固体損傷に関する比較的新しいレビューとしては Manenkov によるもの[51]がある．

2.6 おわりに

固体誘電体のレーザーブレイクダウンに関し，これまでに知られていることの基礎的な部分を記述した．ブレイクダウンと固体損傷の関係はそれほど単純ではないが，多くの場合には，ブレイクダウンが起きることと固体誘電体が損傷を受けることとが同一視されている．この観点は，超短パルスレーザーによる加工技術の基礎研究としては良いと思われるが，光学材料の高耐力化・長寿命化のための基礎研究としてはあまり良いとは言えない．特に，固体誘電体のレーザー損傷において「CB 電子の衝突によって VB から CB に電子が励起される効果」による CB 電子密度の雪崩的増大が重要か，という問題に関しては，レーザーのパルス幅がナノ秒より短い場合に対しては否定的な見方が定着しつつあるが，ナノ秒以上のパルス幅を持つレーザーの場合については，あまり詳しい研究がなされていないようである．今後明らかになっていくことを期待する．

参 考 文 献

[1] Yu.P. Raizer, *Laser-Induced Discharge Phenomena* (Consultants Bureau, New York, 1977).
[2] R.B. Brode, Rev. Mod. Phys. **5**, 257 (1933).
[3] C.C. Wang and L.I. Davis, Jr., Phys. Rev. Lett. **26**, 822 (1971).
[4] W.E. Williams *et al.,* Appl. Phys. Lett. **43**, 352 (1983).
[5] A.V. Phelps, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. **95**, 407 (1990).
[6] D.E. Lencioni, Appl. Phys. Lett. **23**, 12 (1973).
[7] E. Yablonovitch, Phys. Rev. A **10**, 1888 (1974).
[8] M. Šulka *et al.,* Int. J. Quantum Chem. **108**, 2159 (2008).
[9] H.H. Lim and T. Taira, Opt. Express **25**, 6302 (2017).
[10] B.C. Stuart *et al.,* Phys. Rev. B **53**, 1749 (1996).
[11] D. Arnold *et al.,* Phys. Rev. B **45**, 1477 (1992).
[12] D. Arnold and E. Cartier, Phys. Rev. B **46**, 15102 (1992).
[13] M. Sparks *et al.,* Phys. Rev. B **24**, 3519 (1981).
[14] N. Bloembergen, IEEE J. Quantum Electron. QE-**10**, 375 (1974).
[15] A.S. Epifanov, Sov. Phys. JETP **40**, 897 (1975).
[16] D.L. Griscom, J. Ceram. Soc. Jpn. **99**, 923 (1991).
[17] 粟津浩一：分光研究 **41**, 81 (1992).
[18] 梶原浩一：NEW GLASS **25**, 12 (2010).
[19] S.S. Mao *et al.,* Appl. Phys. A **79**, 1695 (2004).
[20] N. Itoh, J. Non-Cryst. Solids **179**, 194 (1994).
[21] A. Shluger and E. Stefanovich, Phys. Rev. B **42**, 9664 (1990).
[22] S. Ismail-Beigi and S.G. Louie, Phys. Rev. Lett. **95**, 156401 (2005).
[23] B. Chimier *et al.,* Phys. Rev. B **84**, 094104 (2011).
[24] L.V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965).
[25] https://webbook.nist.gov/chemistry/ (NIST Chemistry WebBook).
[26] E. Vella *et al.,* Phys. Rev. B **83**, 174201 (2011).
[27] R.T. Poole *et al.,* Phys. Rev. B **11**, 5179 (1975).
[28] C.B. Schaffer *et al.,* Meas. Sci. Technol. **12**, 1784 (2001).
[29] A. Rosenfeld *et al.,* Appl. Phys. A **69**, S373 (1999).
[30] M. Mero *et al.,* Opt. Eng. **44**, 051107 (2005).
[31] S.C. Jones *et al.,* Opt. Eng. **28**, 1039 (1989).
[32] C.R. Giuliano, Appl. Phys. Lett. **5**, 137 (1964).
[33] N.L. Boling *et al.,* Appl. Opt. **12**, 650 (1973).
[34] N. Bloembergen, Appl. Opt. **12**, 661 (1973).
[35] G.M. Zverev and V.A. Pashkov, Sov. Phys. JETP **30**, 616 (1970).
[36] J.H. Marburger, Prog. Quant. Electr. **4**, 35 (1975).
[37] M.J. Soileau *et al.,* Opt. Eng. **28**, 1133 (1989).
[38] M. Lenzner and W. Rudolph, *Strong Field Laser Physics* (Springer, New York, 2008, edited by T. Brabec) pp. 243-257.
[39] M. Mero *et al.,* Phys. Rev. B **71**, 115109 (2005).
[40] M. Li *et al.,* Phys. Rev. Lett. **82**, 2394 (1999).
[41] A.A. Manenkov, Nat'l. Bureau of Standards Special Publ. 509, 455, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C. (1977).
[42] B.G. Gorshkov *et al.,* Sov. Phys. JETP **45**, 612 (1977).
[43] M. Bass and H.H. Barrett, Appl. Opt. **12**, 690 (1973).
[44] B.K. Ridley, *Quantum Processes in Semiconductors,* Fifth Ed. (Oxford University Press, Oxford, 2013) Sec. 6.10.
[45] A.R. Beattie and P.T. Landsberg, Proc. R. Soc. A **249**, 16 (1959).
[46] A. Kaiser *et al.,* Phys. Rev. B **61**, 11437 (2000).
[47] F. Quéré *et al.,* Europhys. Lett. **56**, 138 (2001).
[48] B. Chimier *et al.,* Phys. Rev. B **75**, 195124 (2007).
[49] G.L. Wood and E.J. Sharp, Technical Report ADA240124, DEFENSE TECHNICAL INFORMATION CENTER (1991) http://www.dtic.mil/dtic/tr/fulltext/u2/a240124.pdf
[50] Yu.K. Danileiko *et al.,* Sov. Phys. JETP **36**, 541 (1973).
[51] A.A. Manenkov, Opt. Eng. **53**, 101901 (2014).

J. Plasma Fusion Res. Vol.94, No.10 (2018) 496-500

小特集 誘電体光学材料の損傷

3．誘電体における点欠陥の生成

3. Generation of Point Defects in Dielectric Materials

伊東千尋
ITOH Chihiro
和歌山大学システム工学部システム工学科

（原稿受付：2018年8月14日）

レーザー誘起損傷は複雑な現象であり，複数の素過程が現象の発現に寄与している．近年のハイパワーレーザーやフェムト秒レーザーの出現により，レーザー誘起損傷は現実的かつ切実な問題となってきた．ここでは，その発生に関与する素過程のうち，レーザー誘起損傷の発端となるバンド間励起によって生じるキャリアの自己束縛と欠陥生成の関係を中心に概説する．点欠陥生成のメカニズムが解明されているアルカリハライドにおける励起子の自己束縛と欠陥生成の関係について述べ，自己束縛励起子の存在が実証されている石英結晶における自己束縛励起子とアモルファス SiO_2 でのその欠陥対との関連について述べる．さらに，ニオブ酸アルカリや酸化チタン結晶におけるスモールポーラロンについても述べる．

Keywords:
defect formation, self trapping, small polaron, SiO_2, alkali halides

3.1 はじめに

近年のレーザー技術の飛躍的な進展により，高出力レーザーやフェムト秒（fs）パルスレーザーが開発研究や加工作業において広く用いられている．レーザー光の照射により生じる光学材料の損傷は古くから研究対象とされてきたが，上記のような高性能レーザーの出現により，レーザー機器を取り扱う現場ではレーザー誘起損傷の発生はより現実的かつ切実な問題となっている．ファイバフューズ現象[1]などに代表されるレーザー光による光学材料の損傷は非線形な現象であり，その環境条件依存性は複雑である．これらの現象を現象論的に取り扱い，その発生条件を明らかにすることはレーザー取扱の現場において重要であるが，その発端ともいうべき素過程に目を向けて，現象を見直すことは意義深い．本章では，レーザー損傷の素過程ともいうべき電子励起による点欠陥の形成について概説する．

3.2 脱電子励起過程における点欠陥の役割

パルス幅の長いレーザーによって欠陥のない誘電体に誘起される損傷の多くは，伝導電子の励起・脱励起によって生じた熱が格子に伝達されることで生じるとされている．レーザー光学系に用いられる透明誘電体は一般に 4 eV 以上のバンドギャップを持つため，通常，可視域の発振波長を持つレーザー光は光学材料に吸収されることはない．しかしながら，高強度レーザーあるいは fs レーザーの場合，多光子吸収によるバンド間励起が生じ，これによって形成された真性キャリアの励起・脱励起により，レーザー誘起損傷が誘起される．

励起によって形成される電子－正孔対は，直接あるいは励起子の形成を経て再結合して消滅，あるいは捕獲中心に捕獲されて電子励起エネルギーを散逸させる．本章ではこれを脱電子励起過程と呼ぶこととする．当然のことながら，光生成された電子あるいは正孔（ここではまとめて，キャリアと呼ぶ）の寿命よりもレーザーパルス幅が十分短い場合，レーザー光によりキャリアが励起される確率が増大する．欠陥の無い酸化物では，専ら再結合（あるいは再結合中心の形成）がキャリア寿命を決めることになる．時間分解二光束干渉の実験結果によると，酸化アルミニウムや酸化マグネシウムなどでは，バンド間励起により形成されたキャリアは 50 ps 以上もバンド内に留まる[2]．一方，石英（SiO_2）ではおよそ 150 fs 程度の寿命を持つ[3]．石英の短いキャリア寿命は，励起子の自己束縛と関係づけられている．

物質中の不純物や欠陥が多く存在する場合には，キャリア寿命はこれらによる捕獲のため短くなるが，その一方で捕獲されたキャリアが熱的，電子的に励起され，再びバンドキャリアとなる確率が存在する．したがって，外因的な不純物や欠陥を極力低減させることが，レーザー誘起損傷を抑制する方法であると考えられる．ところが，欠陥や不純物の無い物質であっても，バンド間励起により形成されたキャリアの脱励起の過程で，欠陥（過渡的な格子位置からの原子変位を伴うものも含む）が形成されることがあり，その結果生じた欠陥が，バンドキャリアの捕獲・放出の役割を担うことになる．つまり，レーザー照射により生

Wakayama University, WAKAYAMA 640-8510, Japan
author's e-mail: citoh@sys.wakayama-u.ac.jp

©2018 The Japan Society of Plasma Science and Nuclear Fusion Research

じるバンド間励起に伴って形成される欠陥がある程度蓄積されると，キャリアの脱励起過程が大きく変化してしまう．このようなバンド間励起によって形成される欠陥が関与するレーザー誘起損傷は，ある条件を超えた時点で非線形に発生することとなる．

3.3　電子格子相互作用とバンド間励起による欠陥生成

外因的な不純物や欠陥が存在しない場合であっても，バンド間励起によって形成される励起種による電子格子相互作用により，準安定な局在電子状態が形成され，これを中間状態として様々なレーザー誘起現象が生じる．ここでは，その発端となる励起種の引き起こす電子格子相互作用について述べる．

シリコンやゲルマニウム，あるいはガリウム砒素などの半導体では，物質中に形成された電子や正孔（キャリア）は，凍りついた（あるいは剛体と取り扱える）結晶格子の中を動くと考えてよく，格子振動はキャリアの運動状態を摂動として変化させるに過ぎない．しかしながら，イオン性の高い物質ではその状況は異なる．キャリアの生成は結晶中の電荷分布を大きく変化させるため，格子を構成するイオンの配置の変化（格子歪）が発生する．この電子格子相互作用は，キャリアの有効質量を増大させ，移動度を低下させる．この状態がポーラロンである．ポーラロンの概念は，1933年に Landau によって提唱された[4]．静電的な長距離型の電子格子相互作用（Fröhlich 型）が働く場合，強結合の極限においてもポーラロンの有効質量は有限にとどまる[5]（ラージポーラロン）が，変形ポテンシャルによる短距離型の電子格子相互作用がキャリアに働くと有効質量が無限大となり，キャリアは局在状態を形成する[5]．（スモールポーラロン）これはキャリアが自らの周囲に発生させた格子歪が局所的かつ大きくなるため，格子の並進対称性が破れることにより発生すると理解して良い．この現象をキャリアの自己束縛と呼ぶ．

この自己束縛は，キャリアだけでなく電子と正孔がクーロン引力によって束縛された準粒子である励起子にも発生する．光により形成された励起子が結晶中を遍歴する**自由励起子**†（free exciton: FS）となるか，局在した自己束縛励起子（self-trapped exciton: STE）となるかは，単純なエネルギー論で議論することができる．遍歴する励起子のバンド幅を $2B$（B は**強結合近似における飛び移り積分**†）とすると，遍歴によりエネルギーは B だけ安定化する．一方，自己束縛励起子は一次の電子格子相互作用により，格子緩和エネルギー（E_{LR}）だけ安定化する．$B > E_{\mathrm{LR}}$ の場合，自由励起子が安定となり，自己束縛励起子は準安定となる．一方，$E_{\mathrm{LR}} > B$ の場合には自己束縛励起子が安定となり，自由励起子は準安定となる．これを断熱ポテンシャル用いて表したのが，**図 1** である．自由励起子と自己束縛励起子のポテンシャル面の間にはポテンシャル障壁があり，熱的な交換が観測されている物質がある[6]．

Landau がキャリアの自己束縛を提唱したのは，**アルカリハライド結晶**†における**色中心**（F 中心，H 中心，Vk 中心；**図 2** (a)）† を説明するためであった．アルカリハライドでは，励起子が自己束縛し，これに付随して空格子点-格子間原子対（F-H 対）が生成される．

アルカリハライドの色中心形成では，励起子の自己束縛が重要な役割を果たしている．アルカリハライドにその禁制帯のエネルギー以上の光量子エネルギーを持つ紫外線や電離放射線を照射すると，バンド間励起が生じる．一般にバンド間励起の直後に生成された電子と正孔，あるいはこれらがクーロン相互作用により結びついた励起子は，生成直後は**ブロッホ状態**†にあるから，結晶全体に広がっていると考えて良いだろう．このため，結晶全体に励起子のエネルギーが分配され，一原子あたりに与えられるエネル

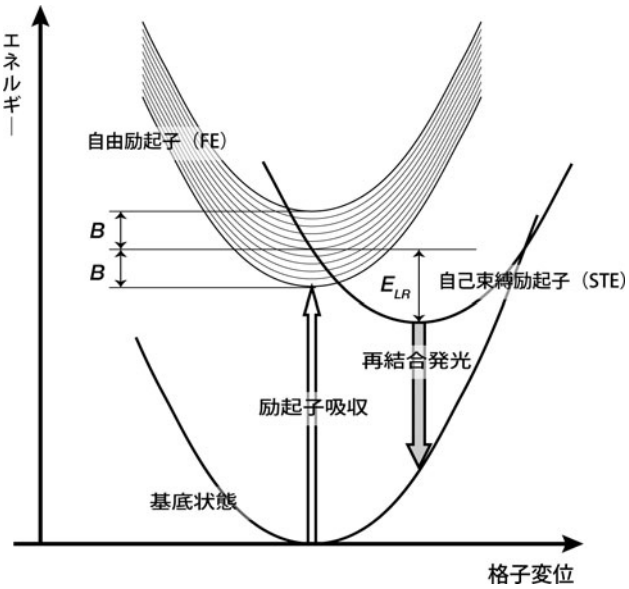


図 1　自由励起子と自己束縛励起子の断熱ポテンシャル．

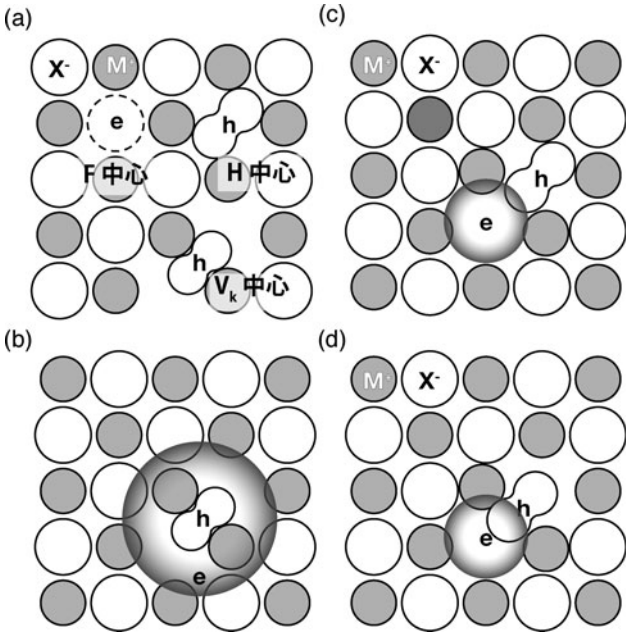


図 2　アルカリハライド結晶における点欠陥と自己束縛励起子：(a) F 中心，H 中心，Vk 中心，(b) 自己束縛励起子 type I，(c) 自己束縛励起子 type II，(d) 自己束縛励起子 type III．

ギーは非常に少ない．しかしながら，この励起子が強い電子格子相互作用のもとで局在すると，そのエネルギーは局所的に数個の原子に分配され，原子の移動が生じることになる．

アルカリハライドにおける自己束縛励起子は，F 中心（ハロゲン空格子点に電子が捉えられたもの）と Vk 中心（ハロゲン分子陰イオン；自己捕獲正孔）からなる格子欠陥のアイソマーである．当初，自己束縛励起子はVk中心に電子が捕獲された構造をとると考えられていたが，その後の詳細な研究により**図 2** に示すように，Vk 中心の格子点からのずれの程度の異なる 3 種類の構造があることがわかってきた[7]．Vk 中心が最も変位しているものは，過渡的な F-H 対と理解することもできる構造をとる．

多くの場合，自己捕獲励起子は再結合発光を発して消滅するため，自己束縛励起子は過渡的な原子移動を与えるに過ぎない．しかしながら，再安定であるスピン三重項自己束縛励起子の熱励起[8]あるいは光励起[9,10]により F-H 対が形成され，バンド間励起により生じる F-H 対の形成は自己束縛励起子の形成過程で生じることが明らかにされた．バンド間励起後，欠陥がどのように生成されるかについては，谷村による fs レーザーを用いた詳細な過渡光吸収測定および Shluger によるその理論的解釈により，全貌が明らかにされているので，参照していただきたい[11]．もちろん，安定した欠陥が形成されるためには，自己束縛励起子の形成だけでなく，周囲の格子振動の状態が大きく影響する．Song は，自己束縛励起子から F-H 対への熱変換には，反応座標の格子変位と周囲の格子振動の**確率共鳴（stochastic resonance）**†が重要であると指摘している[12]．

このように，自己束縛励起子は点欠陥生成の中間状態として働く．これは，不純物や外因的な格子欠陥が存在しない高純度の物質にも，欠陥生成過程が内在していることを示している．

3.4　酸化物における電子格子相互作用と欠陥生成

3.4.1　石英における励起子の自己束縛

強い電子格子相互作用による励起子あるいはキャリアの自己束縛は，アルカリハライド結晶でのみ生じる特異な現象ではなく，光学材料として用いられる酸化物を含む多くの誘電体や有機固体でも生じる普遍的現象である．

石英（SiO_2）は，酸化物の中で自己束縛励起子についての研究が進んでいる物質の一つである．石英では，バンド間励起により所謂"blue luminescence"（青色発光）と呼ばれる強い発光が生じることが知られていた．谷村らは，電子線パルス照射によって生じる過渡的体積変化と 5.2 eV にピークを持つ過渡的な光吸収が青色発光と同じ減衰時定数を持っている事を実験的に明らかにした[13]．この結果は，青色発光の始状態が大きな格子歪みを伴っていることを示している．続いて，伊東らは青色発光の励起スペクトルを測定し，青色発光が基礎吸収端以上の光励起によって生じる事を明らかにした[14]．その後，Hayes らは光検出磁気共鳴分光測定を行い，この状態がスピン三重項状態であることを示した[15]．このようにして，石英の自己束縛励起子の存在は実証されたが，その原子的構造については明確にされていなかった．これは，酸素の核スピンを持つ同位体の天然存在比が極めて少ないために，電子核磁気二重共鳴分光（ENDOR）により局在電子スピン周囲の核配置の情報を得ることが困難である事に起因している．石英における自己束縛励起子の構造について，理論的な研究が進められた[16-19]．その結果，**図 3** に示す模式図のように，シリコン - 酸素の結合が切れて，酸素アニオンが格子位置から大きくずれた構造を取ることが示された．正孔は酸素原子の軌道に局在しており，電子は主としてシリコンの軌道に局在している．この原子配置は，SiO_2 における酸素空孔（E'中心）と同様である．一方，正孔の局在形態には幾つかの説があるが，アルカリハライドの自己束縛励起子のようにアニオンの二量体は形成されないと考えられている．

アモルファス石英においても同様の発光と過渡光吸収を示す自己束縛励起子が形成されるが，アモルファス故の構造の乱れにより，周囲の状態の違いによって自己束縛励起子の原子構造にも乱れが生じる．実際，アモルファス石英における自己束縛励起子の再結合発光は時間のべき乗に反比例する減衰を示す[20]．石英における自己束縛励起子の再結合発光を半導体におけるドナー - アクセプター再結合発光のように局在した電荷間の再結合発光と考えると，その再結合確率は局在電荷間の距離が大きくなると指数関数的に減少する．さらに，アモルファス石英では結合に共有結合性が混じるため，電子や正孔の存在する軌道の波動関

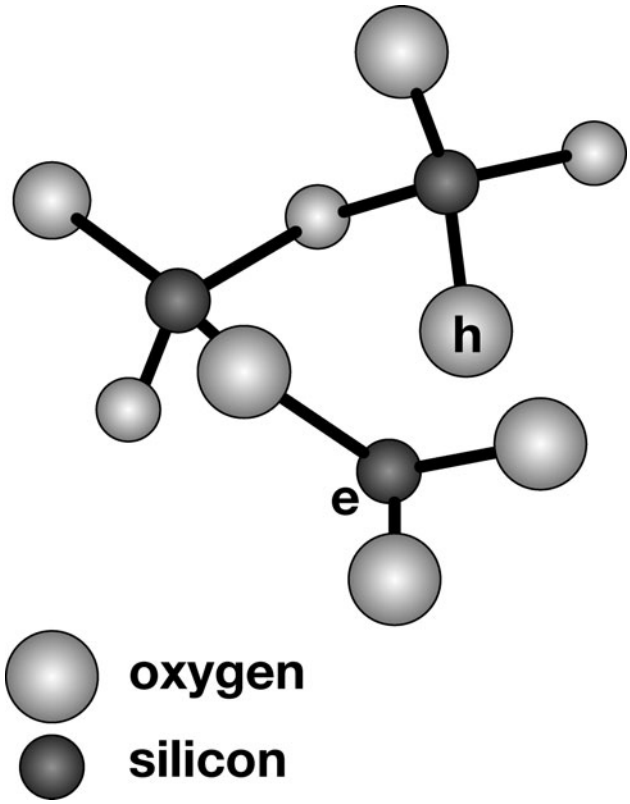


図 3　石英結晶における自己束縛励起子の原子配置模式図（参考文献[18]を元に作図）．

数は等方的ではない．このため，わずかな構造の乱れにより，再結合発光の減衰時定数は大きく変化する．このことから類推されるように，アモルファス由来の乱れにより，構造が大きく歪んだ自己束縛励起子は，発光再結合確率が非常に小さくなり，準安定な格子欠陥となってしまう．アモルファス SiO_2 へのパルス電子線照射によって誘起される光吸収も非指数関数的な減衰を示し，導入された光吸収帯の一部は長寿命を持つ．高温で等方的な圧力をかけて密度を高めたアモルファス SiO_2 では，この長寿命成分が大きく増大することから，この成分は乱れ故に形成された欠陥であると考えられる．伊東らは低温でアモルファス石英にパルス電子線を照射したのち，安定に残存する光吸収帯をパルスレーザーで励起する実験を行った[21]．この結果，自己束縛励起子と同じ再結合発光が観測されることを示し，アモルファス石英において電子励起後安定に存在する欠陥が，自己束縛励起子と同一の組成を持つアイソマーであることを示した．この結果は，外因的な乱れにより自己束縛励起子の再結合が抑制され，欠陥対となることを示している．

SiO_2 結晶では励起子は自己束縛するが，電子や正孔が自己束縛した状態は実験的に見出されていない．これより，結晶ではキャリア単独では自己束縛しないと考えられている．一方，アモルファス SiO_2 では，自己束縛正孔が見出されている．Griscom によると二種類の自己束縛正孔が存在し，一つは一つの Si-O 結合に正孔が局在したもの（STH1）であり，もう一つは Si-O-Si の結合に拡がったもの（STH2）である[22]．SiO_2 結晶では自己束縛正孔は存在しないことから，これらの自己束縛正孔の形成にはアモルファス故の構造の乱れが寄与している．笹島らは，光吸収と電子スピン共鳴の実験結果を対比し，STH1，STH2 がそれぞれ，2.60 eV，2.16 eV の吸収帯を示すことを明らかにしている[23]．このように，構造的な乱れを有する系では，その乱れによりキャリアの局在性が変化し，スモールポーラロンとして安定化する．

3.4.2 ニオブ酸リチウム結晶およびアナターゼ型酸化チタン結晶におけるスモールポーラロン

他の酸化物結晶ではキャリアが自己束縛し，スモールポーラロンを形成する例が報告されている．非線形光学材料として用いられるニオブ酸リチウム（$LiNbO_3$）やニオブ酸カリウム（$KNbO_3$）結晶に，パルス電子線あるいはパルス光を照射すると，電子が自己束縛して形成されたスモールポーラロンによる過渡的な赤外吸収が生じることが報告されている[24,25]．この電子ポーラロンは温度にもよるが，数百 ns 程度の長い寿命を持つ．$LiNbO_3$ などのニオブ酸アルカリにおける電子ポーラロンは，Nb の 4d 軌道に電子が入った状態を取る．空間的な広がりが狭いd軌道故に，電子の移動度は低くなり，結果的にポーラロンが容易に形成される．これと同時に，正孔も束縛ポーラロンを形成すると考えられている．$LiNbO_3$におけるレーザー光照射によって生じる**光誘起屈折率変化（photorefractive effect）**†は複雑な現象であり，その発現には様々な因子が寄与しているが，$LiNbO_3$ への不純物添加により光誘起屈折率変化が抑制され，定比組成に近づくほど効果が大きくなることが実験的に示されている[26]．これは，光誘起屈折率変化の発現にスモールポーラロンが大きく寄与することを示唆する．

酸化チタンにおいてもスモールポーラロンが形成される．代表的な光触媒であるアナターゼ型酸化チタン（a-TiO_2）では，紫外線照射により数時間に渡る永続的光伝導（persistent photoconductivity）が発生し，拡張指数関数型減衰（stretched exponential decay）を示す[27]．拡張指数関数型減衰の物理学的根拠は明らかではないが，キャリアが局在状態から遍歴状態（バンドキャリア）への熱励起と遍歴状態での拡散を含む複雑な電子正孔再結合過程を反映していると考えられている．一方で，a-TiO_2 を光励起をすると，大きくストークスシフトした再結合発光が観測される[28]．興味深いことに，ルチル型 TiO_2 結晶では低温で自由励起子発光が観測され，永続光伝導は観測されない．

a-TiO_2 では，基礎吸収端の Urbach 裾の温度依存性解析から電子格子相互作用が強く励起子の自己束縛が示唆されることから[29]，バンド間励起によって生じる発光は自己束縛励起子の再結合発光であると考えられている[30]．ところが，自己束縛励起子の再結合発光の減衰は単純ではなく，時間のべき乗に従って減衰するドナーアクセプター再結合に似た成分と早い時間域で指数関数的に減衰する成分が存在する[31]．バンド間励起により永続光伝導が高い効率で生じることを踏まえると，バンド間励起によって形成される電子，正孔はいずれもスモールポーラロンを形成し，結晶中をホッピングにより移動すると考えられる．a-TiO_2では高い誘電率故に電子ポーラロン，正孔ポーラロンの電荷は誘電遮蔽され，互いがある程度の距離近づいた時に電子ポーラロンと正孔ポーラロンは自己束縛励起子を形成して，再結合発光を放出し消滅すると考えればこの挙動を定性的に理解することできる．阪東らはこのような考えに基づいてキャリアの生存確率をモンテカルロ法によりシミュレーションを行い，励起直後のキャリアの残在数は，指数関数的に減衰するのに対し，長時間が経過した状態のキャリアの生存確率が拡張指数関数型減衰でフィッティングできることを示した[32]．

3.5 まとめに代えて

本章では，不純物や欠陥の無い物質における電子励起の緩和によって生じる励起子およびキャリアの自己捕獲についてこれまでに蓄積されている知見を述べた．レーザー誘起損傷が生じる高フォトンフラックスや高フルエンスの環境下では，バンド間励起によって生じる過程に加えて，複数の励起状態が時間的・空間的に相関を持つことにより発生する現象が現れる．高フォトンフラックスの下では，励起状態が高密度に形成されるため，励起状態間の相互作用が無視できず，これによる非線形光学過程に加えて非線形な原子過程も生じる．

高強度ナノ秒レーザーや CW レーザーを照射する場

合，フォトンフルエンスは高いが，フォトンフラックスは低く，導入される励起状態の照射時間当たりの濃度はあまり高くない．このため，上述の非線形な原子過程が生じ，損傷に至る確率は小さい．しかしながら，本章で述べたキャリアの自己捕獲およびこれに引き続く欠陥生成過程が生じると状況は一変する．バンド間励起により形成される自己束縛励起子やスモールポーラロンあるいは，これらから形成される欠陥状態が長寿命を持つため，これらの蓄積とともにをこれらを中間状態とした励起・脱励起パスが重要となり，照射時間とともに励起・脱励起の様相が変化する．このような現象は，バンド間励起や励起子帯励起によって導入される励起状態の緩和過程のみを見ていては解明できない．物質に内在する電子格子相互作用によって形成される緩和励起状態の寿命内に，２段目の励起を行うことで，この複雑な現象をシミュレートすることができる．fs レーザーが開発される以前，パルス電子線とレーザー光を用いた二段階励起（二重励起）の実験により，アルカリハライドにおける自己束縛励起子の高励起状態を作ると，F-H 対が形成されることが明らかにされている[9, 30]．fs レーザーを用いて二段階励起の実験を行えば，形成されて間もないバンド内キャリア，あるいは高励起状態にある自己束縛キャリアの励起により，どのような現象が生じるかを観ることできる．最近では，fs レーザーのダブルパルスを用いたレーザー誘起損傷の実験が実施され，成果をあげている[33, 34]．

紙面の制約により定性的な記述に終始し，実験データの詳細や最近の実験結果について十分な紹介ができていないが，小稿がレーザー誘起損傷の機構解明や，その低減を目指した開発に携わる研究者の一助になれば幸甚である．

参 考 文 献

[1] R. Kashyap and KJ. Blow, Electron Lett. **24**, 47 (1988).
[2] S. Guizard *et al.,* Europhys. Lett. **29**, 401 (1990).
[3] P. Audebert *et al.,* Phys. Rev. Lett. **73**, 1990 (1994).
[4] L. Landau, Phys. X. Sowjectunion **3**, 464 (1933).
[5] Y. Toyozawa, *Optical processes in solids* (Cambridge University Press, Cambridge, 2003)
[6] Z.A. Rachko and J.A. Valbis, Phys. Stat. Sol. (b) **93**, 161 (1979).
[7] K.Kan'no *et. al.*, Rev. Solid State Sci. **4**, 383 (1990); Pure Appl. Chem. **69**, 1227 (1997).
[8] R.T.Williams, Semiconductors Insulators **5**, 457 (1983).
[9] T. Yoshinari *et al.,* J. Phys. Soc. Jpn. **45**, 936 (1978).
[10] N. Itoh, Adv. Phys **31**, 491 (1982).
[11] A.L. Shluger and K. Tanimura, Phys. Rev. B **61**, 5392 (2000).
[12] K.S. Song, and R.T. Williams, Phys. Stat. Sol (b) **243**, 3782 (2006).
[13] K. Tanimura *et al.,* Phys. Rev. Lett. **51**, 423 (1983).
[14] C. Itoh *et al.,* Phys. Rev. B **39**, 11183 (1989).
[15] W. Hayes *et al.,* J. Phys. C **17**, 2943(1984).
[16] A.L. Shluger, J. Phys. C, **21**, L431 (1988).
[17] A.J. Fisher *et al.,* J. Phys: Condens. Mat. **2**, 6707 (1990).
[18] D.M. Ramo, Phys. Rev. B **85**, 024120 (2012).
[19] S. Ismail-Beigi and S. G. Louie, Phys. Rev. Lett. **95**, 156401 (2005).
[20] N. Itoh *et al., The Physics and Technology of Amorphous* SiO_2 (Plenum Press, New York, 1988), p.135.
[21] C. Itoh *et al.,* Phys. Rev. B **41**, 3790 (1990).
[22] D.L. Griscom, Phys. Rev. B **40**, 4224 (1989); J. Non-cryst. Solids **352**, 2601 (2006).
[23] Y. Sasajima and K. Tanimura, Phys. Rev. B **68**, 014204 (2003).
[24] R.T. Williams *et al.,* Rad. Eff. Defects in Solids **155**, 265 (2001).
[25] Y. Qiu *et al.,* Nucl. Instru. Methods Phys. Res. B **191**, 98 (2002).
[26] K. Kitamura *et al.,* J. Appl. Phys. **82**, 1006 (1997).
[27] C. Itoh and A. Wada, Phys. Stat. Sol. (c) **2**, 629 (2005).
[28] H. Tang *et al.,* Solid. Stat. Commun. **87**, 847 (1993).
[29] H. Tang *et al.,* Phys. Rev. B **52**, 7771 (1995).
[30] I. Sildos *et al.,* J. Luminescence **87-89**, 290 (2000).
[31] M. Watanabe and T. Hayashi, J. Luminescence **112**, 88 (2005).
[32] T. Bando *et al.,* Physica Stat. Sol. (c) **6**, 105 (2009)
[33] A. Mouskeftaras *et al.,* Appl. Phys. A **110**, 709 (2013).
[34] S. Guizard *et al.,* Appl. Surf. Sci. **336**, 206 (2015).

J. Plasma Fusion Res. Vol.94, No.10 (2018) 501-504

小特集 誘電体光学材料の損傷

4．石英ガラスのレーザー損傷

4. Laser-Induced Damage for Silica Glasses

本越伸二
MOTOKOSHI Shinji
公益財団法人レーザー技術総合研究所

（原稿受付：2018年8月20日）

高強度を持つレーザー光を石英ガラス内部に集光照射すると，ガラス内部はプラズマ発光を伴い絶縁破壊，物理的損傷に至る．この現象を「レーザー（誘起）損傷」と称し，その過程を理解するために，多くの研究が行われてきた．本章では，その一部を紹介し，現状の理解を解説する．

Keywords:
laser, silica glass, damage, breakdown, plasma

4.1 はじめに

レーザー装置には多くの光学部品が使用されている．それら光学部品は，高エネルギーのレーザー光に曝されると，しばしば物理的破壊を生じる．これは「レーザー（誘起）損傷」と呼ばれ，レーザー装置のエネルギーを制限する要因になっている．そのため，レーザー損傷の物理過程を理解し，損傷に至るエネルギー密度（損傷しきい値）を向上する研究が多くの研究機関で行われてきた[1]．レーザー損傷は，入射するレーザー光の特性（波長，パルス幅，偏光など）によって異なった形態を示し，損傷しきい値が変化する．特に，連続波（CW: continuous wave）とパルスレーザーでは，損傷形態が大きく異なり，前者では照射部を中心にした破断となるが，後者ではプラズマ発光を伴った局所的な破壊に留まる．これは損傷過程が異なるためであり，前者は熱応力による破断，後者は電気絶縁破壊と理解されている．

レーザー損傷しきい値の評価方法は，ISO-21254で規格化されている．規格では，評価光学素子に入射されるエネルギー，光学素子上のビームサイズからエネルギー密度を求め，そのエネルギーを照射したときの損傷の有無を顕微鏡で観察することが述べられている．試験方法は1パルス毎に損傷の有無を確認する1-on-1方式と，繰り返しパルスを照射するS-on-1方式が定義されている．また，ISO規格には含まれていないが，照射位置を固定し，低いエネルギー密度より徐々にエネルギーを増加し損傷が発生したエネルギー密度を損傷しきい値とするN-on-1方式も結晶など小さな光学材料の評価に用いられている．

レーザー損傷しきい値は，光学素子の光学特性，特に吸収係数に大きく依存する．同じ光学素子であっても，製造方法，含有不純物量などによって異なった損傷しきい値を示す[2]．使用するレーザー光の特性によっても異なるため，レーザーの条件に合わせた最適な光学素子の開発研究が現在も進められている．

本章では，パルスレーザーによる石英ガラス材料の絶縁破壊損傷について，これまでの研究と現状の理解を紹介する．

4.2 石英ガラスの特徴

石英ガラスの物性値を**表1**に示す．石英ガラスは，紫外から近赤外域まで広い透過帯域を持つことから，可視・近赤外レーザー用のレンズや光学窓として，広く利用されている材料である．また，適当な機械強度を持つことから加工研磨が容易であり，線膨張係数が比較的小さいため高い面精度の研磨が可能で，高反射ミラー用基板材料としても利用されている．更に，耐候性にも優れ，原料が豊富であることから，安定に材料入手が可能であり，レーザー損傷物理を理解する上で，最も適した材料と言える．

4.3 レーザー波長依存性

4.2で示したように，石英ガラス材料は紫外から近赤外域に亘り，高い透光性を持つ．しかしながら，近赤外域から短波長になるに従い僅かに屈折率が高くなり，吸収係数も増加する．その結果，レーザー損傷しきい値は短波長になるに従い，低い値を示す．Kuzuuらは，含有不純物量の異なった石英ガラス材料について，Nd:YAGレーザーの基本波（波長1064 nm）から第4高調波（波長266 nm）に対するレーザー損傷しきい値を評価した[2]．**図1**に石英ガラス材料のレーザー損傷しきい値波長依存性を示す．図中のプロットは石英ガラス材料の種類を示し，含有不純物量（カタログ値）の詳細は参考文献[2]に述べられている．図

Institute for Laser Technology, OSAKA 550-0004, Japan

author's e-mail: moto@ilt.or.jp

©2018 The Japan Society of Plasma Science and Nuclear Fusion Research

より，ガラス純度に係わらず短波長になるに従い損傷しきい値は低下することがわかる．興味ある点は，波長1064 nm，266 nm では，異なった種類でもレーザー損傷しきい値はほぼ同じ値を示したのに対して，波長 526 nm，355 nmでは差が表れていることである．他に比べて低い損傷しきい値を示したガラスは，Cl が約1000倍含有(ED-C)，Al など金属不純物が100倍以上含有（OX，HR）している．この結果，これらの不純物は 1064 nm の光には影響をしない．また，紫外 266 nm になると，石英ガラス自身の吸収係数が大きくなるため，含有不純物量による損傷しきい値の差は現れなかったと言える．

表１　石英ガラスの物性値．

屈折率（656 nm）		1.4564
透過帯域	nm	170～2600
屈折率温度係数（0～20℃）	$\times 10^{-6}\,K^{-1}$	14.6～15.2
密度	g/cm^3	2.201～2.203
縦弾性係数	$\times 10^4\,N/mm^2$	7.0～7.25
ねじれ剛性率	$\times 10^4\,N/mm^2$	3.0～3.1
ポアソン比		0.17
圧縮強さ	N/mm^2	1150
引張強さ	N/mm^2	50
曲げ強さ	N/mm^2	67
ねじれ強さ	N/mm^2	30
モース強さ		5.5～6.5
マイクロビッカース硬さ	N/mm^2	8600～9800
ヌープ硬さ（荷重 100 g）	N/mm^2	5800～6100
内部減衰		1×10^{-5}
音速（縦波）	m/s	5720
超音波速度　縦波	m/s	5944～5968
横波	m/s	3769～3774
超音波速度の温度係数	$\times 10^{-5}\,K^{-1}$	71～81.4
歪み点	℃	1000～1125
徐冷点	℃	1100～1220
軟化点	℃	1600～1710
線膨張係数（0～100℃）	$\times 10^{-6}\,K^{-1}$	0.51
比熱（0～100℃）	J/kg K	772
熱伝導率（20℃）	W/m K	1.38
体積抵抗率（20℃）	$\times 10^{16}\,\Omega m$	1
誘電正接（1 kHz）		5×10^{-4}
誘電率（20℃）		3.7
絶縁破壊の強さ（20℃）	kV/m	25～40

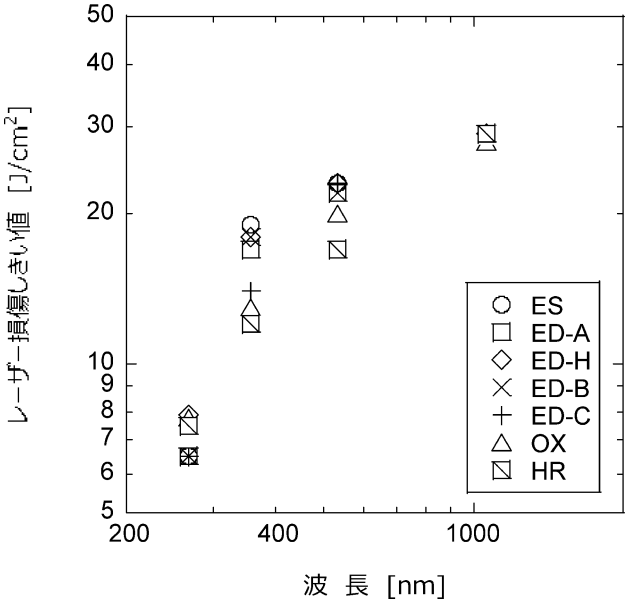


図１　石英ガラスのレーザー損傷しきい値の波長依存性[3]．

4.4　レーザーパルス幅依存性

これまでにも多くの研究機関が，石英ガラスのレーザー損傷しきい値を評価し報告している[3-18]．そのデータを波長とパルス幅で分類し，**図 2** のようにまとめた．図の横軸は照射レーザーパルス幅であり，各プロットは照射レーザー波長を示している．355 nm，20 ps の 2 点（図中？マーク）のしきい値が少し高い値を示しているが，全てのデータはパルス幅が短くなるに従い，損傷しきい値が低下することを示している．図中の破線は，パルス幅の二乗根に比例する直線を示している．複数の研究機関がそれぞれの石英ガラス材料に対して，それぞれの波長で評価した結果であるが，概ね破線の傾きと一致していることがわかる．このことから，パルスレーザーによる損傷過程が電気絶縁破壊，局所的な電界集中による破壊であることが明らかである．

注目すべき点は，0.1 ps と10^4ps（10 ns）のパルス幅の損傷しきい値が上記破線から外れることである．10 ps 以下のパルス幅の損傷過程については，絶縁破壊に至るまでの衝突電離を繰り返す時間が足りないことが，既に報告されている[12-14]．また，0.01 ps 以下の短パルスの場合では，各研究機関の結果がばらつき，損傷過程が異なることも報告されている[19]．

一方，パルス幅 10 ns の Q スイッチ Nd:YAG レーザー装置は，基礎科学分野また産業分野で広く利用されているレーザー装置の一つである．**図 2** の 10 ns 付近のパルス幅

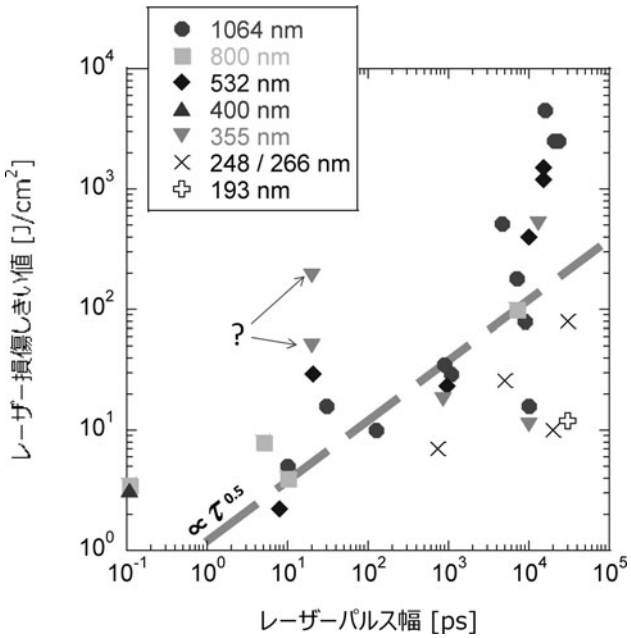


図２　石英ガラスのレーザー損傷しきい値のパルス幅依存性[3-18]．

で，石英ガラスの損傷しきい値が2桁以上違うことは使用する上で大きな問題である．このばらつきの原因は，誘導ブリルアン散乱である[20]．誘導ブリルアン散乱は，音響フォノンにより屈折率の粗密格子構造が形成され，入射光を後方散乱（反射）として現れる．石英ガラスの格子構造形成には数nsの時間が必要であるため，パルス幅が短いときには誘導ブリルアン散乱は発生しない．また，誘導ブリルアン散乱の発生しきい値は，レーザー損傷しきい値よりも1桁ほど低いため，パルス幅が長いときには，損傷に至るパルスの前半で誘導ブリルアン散乱が起こり，多くのエネルギーは散乱により損傷する焦点位置に届かない．結果，**図2**の10 ns付近の高い損傷しきい値は，入射した多くのエネルギーを誘導ブリルアン散乱により損失したため見かけ上高くなったと考えられる．

4.5 材料温度依存性

照射レーザーの特性と同様に，材料の物性値の変化はレーザー損傷しきい値に影響を及ぼす．**図3**に石英ガラス材料の温度を-150℃～200℃に変化したときのレーザー損傷しきい値を示す[21]．各プロットは純度の異なった石英ガラス材料の種類を示し，照射レーザー波長1064 nm，355 nmの場合の結果を示している．図は，照射レーザー波長，石英ガラスの純度に関わらず，温度増加とともにレーザー損傷しきい値は低下することを示している．温度に対する変化の割合は，含有不純物量の多いガラスの方が大きくなることもわかった．Mikamiらは，石英ガラス基板上のコーティングではあるが，100 fsパルスではレーザー損傷しきい値の温度依存性はなくなることを示している[22]．4.4で述べたように，パルス幅が10 ps以下になると，十分な衝突電離が起きず絶縁破壊が起きにくい．即ち，温度増加によるレーザー損傷しきい値の低下は，衝突電離が生じやすくなったことに起因することがわかる．

誘電体材料内の伝導帯電子数密度$N(t)$は，

$$\frac{\mathrm{d}N(t)}{\mathrm{d}t}=\gamma_{(n)}I(t)^n+\beta N(t)I(t)-\frac{1}{\tau}N(t) \qquad (1)$$

で変化すると考えられる．ここで，Iは照射レーザー強度，βは衝突電離を行う増倍係数，$\gamma_{(n)}$はn光子励起による光電離係数，τは価電子帯に緩和する時定数である．照射レーザーパルス時間波形の中で伝導帯電子数密度Nが誘電体材料の臨界電子数密度に到達することにより絶縁破壊を引き起こす．この電子数密度のレート方程式に当てはめると，温度増加により衝突電離増倍係数βが大きくなると考えることができる．しかしながら，これらβ, γの理論式は明らかになっていない．今後，様々な条件のレーザー損傷しきい値を評価することにより，材料物性値との関係が明らかになるだろう．

4.6 繰り返しパルスによる影響

繰り返しパルス照射時のレーザー損傷しきい値が，1パルス照射時に比べて低下することが報告されている[7,9,16]．これは，繰り返し周波数やパルス数の増加に従い低下し，レーザー波長，パルス幅，材料の種類に関わらず同様の傾向を示している．この原因については，熱の蓄積や応力，微小損傷，欠陥生成などが考えられるが，未だ明らかになっていない．

この原因を明らかにするために，2パルスのレーザーパルスによるレーザー損傷しきい値の評価を行った[23]．**図4**に2パルスのパルス間隔に対する石英ガラスのレーザー損傷しきい値を示す．縦軸のレーザー損傷しきい値は予め測定された1パルスの損傷しきい値で規格化している．照射レーザーの波長は193 nmであり，2光子励起により石英ガラスの価電子帯電子を伝導帯へ遷移することが可能である．含有不純物量の異なった2つの石英ガラスのどちらも，2パルスの間隔が短くなるに従い損傷しきい値は

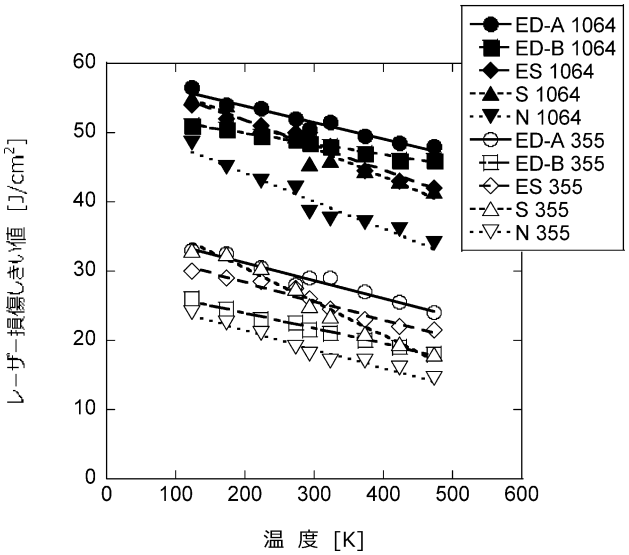


図3 石英ガラスのレーザー損傷しきい値の温度依存性[21]．

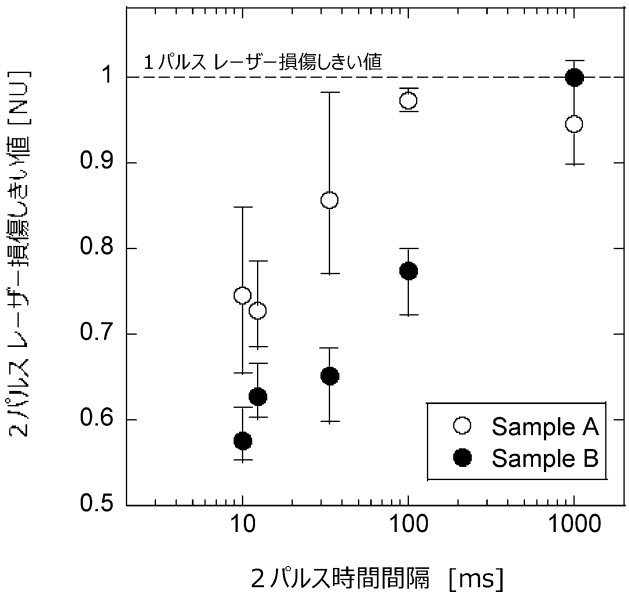


図4 2パルス照射による石英ガラスのレーザー損傷しきい値[23]．

低下した．また含有不純物量の多いサンプルＢの方が低下の割合が大きいこともわかった．２パルスの照射であるため，熱の蓄積とは考えにくい．またパルス間隔によって低下の割合が変化することから，１パルス目の照射による微小損傷の生成が原因ではないこともわかる．その結果，２パルスによる損傷しきい値の低下の原因は，欠陥の生成によるものと考えられる．更なる追試で明らかになるだろう．

4.7　まとめ

光学素子のレーザー損傷，特にプラズマ発光を伴って損傷する石英ガラス材料に対するパルスレーザー損傷について，これまでの研究と，現状の理解について紹介した．

パルスレーザーによる損傷は，電気絶縁破壊によるものであり，レーザーの波長，パルス幅，光学材料の純度，温度などにより，損傷しきい値が変化する．高耐力光学素子を開発するためには，損傷の物理，物質と光の相互作用を理解することが必要である．

また，レーザー損傷以外の様々な非線形光学現象や欠陥生成についても評価を行い，損傷過程の理解に繋げていきたい．

謝　辞

本章で紹介した研究の一部は，大阪大学レーザー科学研究所共同研究により実施されたものである．関係の諸先生に感謝の意を表します．

参 考 文 献

［１］A.A. Manenkov, Proc. SPIE **7132**, 713202-1 (2008).
［２］本越伸二：Optronics 419, 112 (2016).
［３］N. Kuzuu *et al.,* Appl. Opt. **38**, 2510 (1999).
［４］D. Milam Appl. Opt. **16**, 1204 (1977).
［５］W.L. Smith, Opt. Eng. **17**, 489 (1978).
［６］P.A. Temple *et al.,* Appl. Opt. **21**, 3249 (1982).
［７］L.D. Merkle *et al.,* Opt. Eng. **22**, 405 (1983).
［８］F. Rainer *et al.,* Nat. Bur. Stand. Spec. Pub. **669**, 157 (1984).
［９］L.D. Merkle *et al.,* Nat. Bur. Stand. Spec. Pub. **688**, 128 (1985).
［10］R.S. Taylor *et al.,* Appl. Opt. **27**, 3124 (1988).
［11］L.D. Merkle *et al.,* Phys, Rev. B **38**, 1473 (1988).
［12］D. Du *et al.,* Appl. Phys. Lett. **64**, 3071 (1994).
［13］B.C. Stuart, Phys. Rev. Lett. **74**, 2248 (1995).
［14］M. Lenzner *et al.,* Phys. Rev. Lett. **80**, 4076 (1998).
［15］C.B. Schaffer *et al.,* Meas. Sci. Technol. **12**, 1784 (2001).
［16］J-Y. Natoli *et al.,* Appl. Opt. **41**, 3156 (2002).
［17］R.M. Brusasco *et al.,* Proc. SPIE **4679**, 4679-60 (2002).
［18］T. Kamimura *et al.,* Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L1229 (2004).
［19］A-C. Tien *et al.,* Phys. Rev. Lett. **82**, 3883 (1999).
［20］H. Yoshida *et al.,* Opt. Eng. **36**, 2557 (1997).
［21］K. Mikami *et al.,* J. Phys: Conf. Series **244**, 032023 (2010).
［22］K. Mikami *et al.,* Proc. SPIE **8190**, 819001A1 (2012).
［23］S. Motokoshi *et al.,* Proc. The 6th Advanced Lasers and Photon Sources (Yokohama, Apr. 2017) ALPS17-7.

J. Plasma Fusion Res. Vol.94, No.10 (2018) 505-508

小特集 誘電体光学材料の損傷

5．ファイバフューズ現象

5. Fiber Fuse Phenomenon

轟　眞市
TODOROKI Shin-ichi
物質・材料研究機構　機能性材料研究拠点

（原稿受付：2018年８月14日）

シリカガラス系単一モード光ファイバに数Wの光を注入した上でその一部分を加熱すると，そこから強い光を発する点が現れて光源に向かって走り始める現象が知られている．発見から30年以上経った今でも，この現象の発生メカニズムを実験を通して明かにしようとする研究例は少ない．本章では，この現象について明らかになったことを簡潔にまとめたのち，発生条件を実験を通して検討した筆者の研究を紹介する．

Keywords:
fiber fuse, optical fiber, laser-induced damage, dissipative soliton, periodic void formation

5.1　はじめに

今から31年前の９月末，後にファイバフューズと呼ばれるようになる現象の初めての報告が英国から発信された[1]．平均出力約１WのQ-スイッチNd:YAGレーザ光を使って第２次高調波発生をする実験のさなか，高電圧を印加した金属電極とシリカガラス製光ファイバの接点から光源に向かって，青白い光が発生して走り出した，とある．その当時のビデオ映像が文献[2] 電子版の図３に掲載されている．発見者のKashyap博士は，この現象の重要な鍵となる以下の２点を当時から指摘していた[3]．(1)光の軌跡上に残る空孔内に酸素ガスが存在すること，および(2)光ファイバを1050℃以上に熱すると光損失が増加することである．

ファイバフューズの研究報告が増えだすのは，レーザー技術の進歩によりその出力が飛躍的に増加して以降，すなわち今世紀に入ってからである．光通信回線に深刻な損傷を残す恐れがあることから，光通信関係の学協会・学術雑誌を中心に情報交換がなされていった．産業界の興味は現象の抑止対策であり，学術界はそのメカニズムであったが，研究対象である輝点が動き回ることが災いして，現象解析はもっぱらマクロな視点に留まり，輝点の伝搬や停止・消滅に興味が集中した．その発生メカニズムにメスを入れるためには，ミクロな視点を設定し，かつ定量的で再現性のある条件設定のもとで現象を捕まえなければならず，現在でも敷居の高いテーマであり続けている．

筆者はこのテーマに2004年から取り組み続けてきた．この現象を超高速ビデオカメラでその場観察することでミクロな視点を導入し[4]，現象発生後にレーザー光源を強制停止したあとに残される損傷列の写真を多数収集した中から再現性ある規則性を発見し[5,6]，この現象の発生確率に準ずるものを，発生点に注入されるレーザー光強度と加熱条件との関係で議論した[7]．

本章では，シリカガラス製光ファイバにおけるファイバフューズ現象に関して今まで明らかになってきたことを簡潔にまとめた後に，筆者が検討した発生条件に関する知見を紹介する．

5.2　散逸ソリトン

この現象の物理的枠組みは「**散逸ソリトン**†」ととらえることができる[8]．野火が枯れ草を舐めるように燃やしつくしていくのと同様に，光と熱を放射する反応領域がエネルギーの入力方向に向かって動いていく．この時，エネルギーの入出力は均衡を保ち，反応領域は孤立波として安定に移動していく．これをその場観察したビデオ映像は，**表１**(1)に示したURLで閲覧できる．

Dianovらは，ある条件での輝点からの光放射スペクトルの解析に基づいて，その温度が数千Kから一万Kのオーダーであることを示した[10]．シリカガラスの軟化温度よりはるかに高温の領域（直径約10 μm）が安定に存続でき

表１　本章と関連する動画のURL.

(1)	ファイバフューズ伝搬のその場観察[6] https://youtu.be/c1s6MYHf96o http://imeji.nims.go.jp/imeji/collection/8/item/10
(2)	ファイバフューズ発生のその場観察[9] https://youtu.be/97cswtkHquM http://imeji.nims.go.jp/imeji/collection/8/item/12

National Institute for Materials Science,Tsukuba, IBARAKI, 305-0044, Japan
author's e-mail: TODOROKI.Shin-ichi@nims.go.jp

©2018 The Japan Society of Plasma Science and Nuclear Fusion Research

る理由は，それを取り囲むガラスの厚み（60 μm強）を熱が伝搬する時間よりも速く輝点が移動するためである（毎秒1 m 前後）[6]．この輝点内で起きている反応として信じられているのは，SiO_2 の分解による酸素ガスと SiO_x（$x \leq 1$）の生成である．その情況証拠として挙げられるのは，先に指摘した(1)酸素ガスの残留，および，(2)の損失増加は SiO_x（$x \leq 1$）の存在を仮定すれば説明可能である点[11]である．

ファイバフューズと呼ばれる現象はフッ化物ガラスやカルコゲナイドガラス[12]，高分子[13] から構成される光ファイバにおいても報告されているが，その様相はシリカガラス系で観察されるものとは大きく異なっている．これは，散逸ソリトンとして均衡を保ちうる温度や移動速度，反応が材料によって異なるためである．ちなみに，フッ化物やカルコゲナイドによる光ファイバは，シリカガラス系よりも格子振動が弱いことを利用して，より長波長の光の伝送や，溶かしこんだ希土類イオン等の光励起状態を非輻射緩和しにくくする目的で用いられる．高分子系ファイバは，伝送損失が高いもののコア径が大きく曲げに強いので，近距離伝送やセンシングに用いられる．いずれのファイバも120～350℃程度の加熱で伝送損失が増大するので，発生に要する光強度は小さく伝搬速度も毎秒数～数十 mm 程度である．フッ化物とカルコゲナイドの場合，輝点が観測されずファイバの破壊はファイバ断面全体に及ぶ．高分子の場合は輝点の軌跡は炭化している．

5.3　エネルギー入出力の均衡と空孔列生成

輝点に投入される光エネルギーとそこから散逸するエネルギーが均衡を保った定常状態にあれば，その軌跡に残される損傷も定常的なものが残される．シリカガラス製単一モード光ファイバの場合は周期的空孔列が残され，その間隔は定常的な注入光強度の増加とともに増加していく[5]．この均衡を破るような変化を導入すると，別の均衡状態への遷移が始まり，その履歴は空孔列の変調として記録されるので，ファイバフューズのエネルギー状態の変化を追跡する手法として利用できる[6]．このような変化として導入できるものは，注入光強度の他に，ファイバ構造，すなわち導波構造やファイバの被覆状態が挙げられる．

被覆状態の変化が均衡を破ることについては，もう少し説明を要する．一般に，ガラス製光ファイバは中心部のコアとそれを囲むクラッド層からなるが，その外側は高分子の保護層に被われている．光ファイバが曲げられると，伝搬光の一部がコアからクラッド層に漏れだすので，それを外に逃すために，保護層の屈折率はクラッド層よりも大きくする．保護層を除去した区間にファイバフューズを走らせると，その発光はクラッド層表面で反射してコアに戻り再吸収される．さらにクラッド層表面に白色塗料のような光散乱体を塗布すると，再吸収効果は増強される．

図1にその実験例を示す．**図1**上に示すように，保護層を除去ししてその一部を白色塗料で被った区間にファイバフューズを走らせた．その後白色被覆を除去して光学顕微鏡写真を撮影し，被覆終端前後での空孔間隔の変化を調べた（**図1**下参照）．明らかに，白色被覆区間内では空孔間隔が約5％増加しており，塗料からの散乱戻り光が再吸収されているのが分かる．

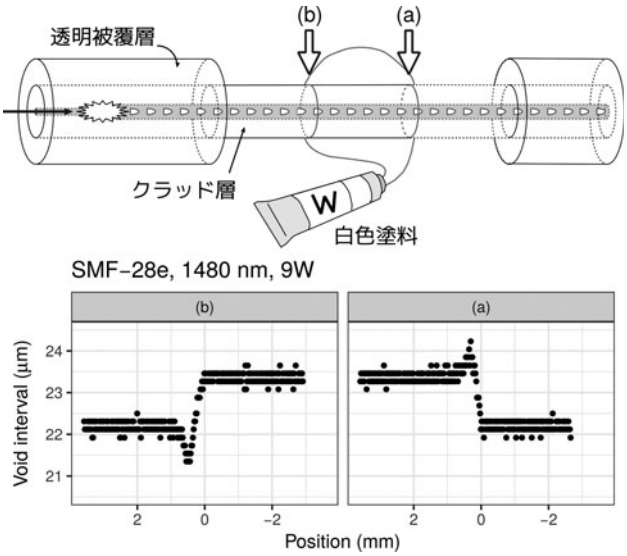


図1　（上）実験系：単一モード光ファイバ（Corning 社製 SMF-28e）の被覆を一部除去し，その中間部分を白色塗料で被覆した区間にファイバフューズを走らせた．CW（連続光）光源（波長 1480 nm，9 W）からの光は左側から入り，ファイバフューズは右から左に走る．（下）白色被覆区間の終端前後での，空孔間隔の位置依存性．

注目すべきは，終端を通過した直後に空孔間隔の値がオーバーシュートあるいはアンダーシュートすることである．ファイバフューズの伝搬速度から計算すると，その遅れはサブミリ秒のオーダーであることがわかる．このような挙動が現れる原因は，再吸収される光の側ではなく，むしろ再吸収する側，すなわちファイバフューズとそれを取り囲むガラス融液にあると考えるのが妥当である．中心部分の温度が数千℃に達しているとはいえ，室温のガラスに取り囲まれている以上，その内側のガラス融液の粘性が全体の動きに影響を与える．ファイバフューズに供給される光の総量が急激に変化すれば，それに追随して均衡を取り戻すのにサブミリ秒の遅れが必要なのである．

この遅れに着目すると，エネルギー入出力の均衡を破る他の要因，すなわち注入光強度の急変や導波構造の変化に伴う空孔列の変調が説明できるようになる[6,14]．また，均衡を取り戻せないほど急激な変化を与えれば，ファイバフューズを消滅させることができ，現在までに提案されているファイバフューズ停止デバイスは，みなこの原則に則っている[6]．

5.4　発生条件の検討

消滅とは逆に，静から動を作り出す発生現象をひも解いていくのは容易なことではない．経験的には，シリカガラス製単一モード光ファイバの場合，数Wの光を伝搬しているファイバの一部分を加熱すると発生し，光の強度を強くすれば，より短時間に発生することが知られている．筆者がこの問題に取り組み始める2005年までに，先行研究は2件しかなかった．Davis らは，十数種類の単一モード光

ファイバを検討した結果，発生に必要なエネルギー密度（波長：1064 nm）は約 3 MW/cm^2 と結論した[15]が，発生させるために数分かかることもある，との記述もあり，エネルギー密度以外にも注目すべき条件がありうる印象を残した．柳らは，光ファイバコネクタの脱着と 2 W の光（波長：1480 nm）の導通試験を接触面の清掃なしに繰り返すと，160回目にファイバフューズが発生したことを報告した[16]．

筆者は超高速カメラを使って発生現象のその場観察に成功し，輝点発生前に前駆現象が存在することを明かにした[9]．**表 1**（2）に示したURLで閲覧できる動画では，右側の光ファイバ端面に接触させた酸化コバルト粉末が入射光（CW 1480 nm，9 W）を熱に変換していくうちに，暗い輝点が現れてゆっくりと光源方向に移動しはじめ，端面から 300 μm に達した頃に定常的な明るい輝点へと成長する様子が記録されている．しかし，この前駆現象は撮影する度に少しづつ異なるタイミングで観察されることから，発生現象を定量的に分析しようとするなら，統計的な取扱いが欠かせないことがわかる．また，注入するレーザー光はファイバフューズ発生前は系の加熱に使われるが，その発生タイミングにばらつきがある以上，温度上昇や熱の散逸にもばらつきがあると認めざるを得ず，「条件を一定にしている」とは言い難い．よって注入レーザー光とは別に，加熱条件も独立に検討する必要がある．

そこで，レーザー光強度と加熱条件を独立に変化させた上で各条件で10回分を集計する実験を行った[7]．再現性を確保できる加熱源として，ファイバ融着接続器に内蔵されたアーク放電電極を用いた．加熱の強度は，通常の融着接続に用いる強度を100%として，100～160%まで変化させた．光ファイバの透明被覆層を剥いて電極間に固定し，所定の強度の CW 光（波長：1480 nm）を透過させた上で，熱を加えた．加熱時間は最大 1 秒間として，光の透過がなくなるまでの時間，Δt を記録した．これを集計したものを**図 2** に示す．透過が失われる原因として，ファイバフューズの「発生」（●）の他に，発生して直ちに止まって空孔が残されたもの（「自発停止」，○），加熱部分が「変形」するのみで空孔は認められなかったもの（△）があった．

加熱強度が100%の場合，レーザー光強度が5.5 W 以上でファイバフューズが発生し，それ以外のものは 1 秒間の加熱を終えても光ファイバに変形は見られなかった（「不発」，×）．よってこの値を境に，外からの加熱がコアの温度を 1 秒以内に1050℃に到達させ，レーザー光の熱変換が始まってファイバフューズの発生に至ると解釈できる．レーザー強度が大きくなると Δt が小さくなることがこれを裏付けている．

加熱強度を大きくすると，より小さいレーザー強度およびより短い加熱時間でで光透過が失われるようになる．それと同時に，発生と不発の間に 2 種類の状態，「自発停止」と「変形」，が現れるようになる．「変形」をもたらすレーザー強度が，加熱強度の増大とともに小さくなるのは，外からのより強い加熱が，コア部の選択的温度上昇がおこる前にクラッド部の変形を引き起こしてしまうからである．

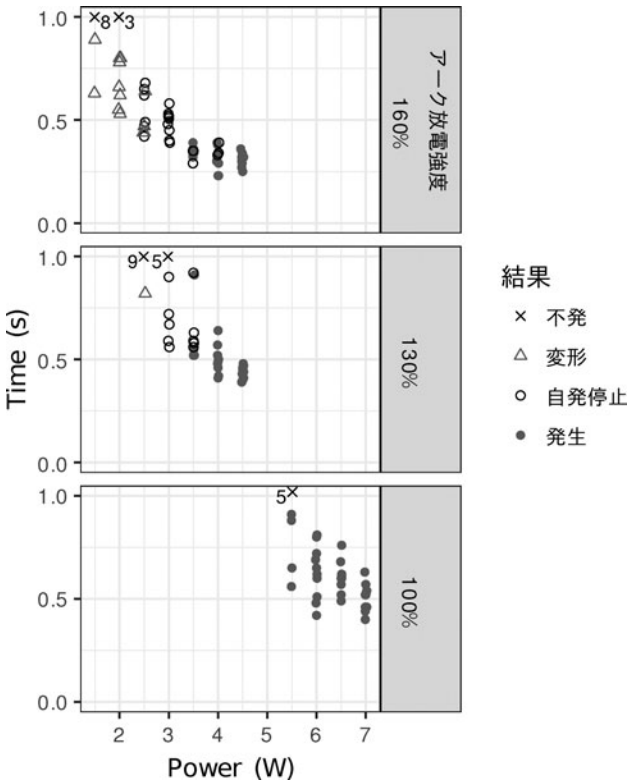


図 2　単一モード光ファイバ（Corning 社製 SMF-28e）の被覆を一部除去し，所定の強度の光（波長 1480 nm）を透過させておいて，アーク放電による加熱を最大 1 秒間行った時の，光透過が失われるまでの時間（Δt）のレーザー光強度依存性および加熱強度依存性．原因となった現象別に記号を変えてプロットした（本文参照）．

「自発停止」の場合は，コア部の選択的温度上昇によってファイバフューズが発生したものの，加熱領域を脱出した途端に周囲から熱を奪われて消滅してしまったものと考えられる．「自発停止」と「発生」の境界のレーザー強度に注目すると，加熱強度が増大してもレーザー強度は 3.5 W 付近のまま大きく低下していない．これは，ファイバフューズが発生して外の冷たい区間を安定に走行するためには，発生の瞬間からレーザー光の熱変換量が十分必要であることを物語っている．言い換えれば，加熱強度の増大はレーザー強度の減少を補う役割はないのである．以上の議論を，加熱強度とレーザー強度の関係に注目してまとめたものを**図 3** に示す．

5.5　まとめ

シリカガラス系単一モード光ファイバにおいて発生するファイバフューズは，その軌跡に周期的空孔列が残ることを利用すれば，その挙動を解析することができる．輝点に対するエネルギー入出力の変動を与えると，それを取り囲むガラス融液の粘性による応答の遅れが観測される．発生プロセスを理解するためには，注入するレーザー光強度と外部加熱条件を独立に設定した上で，発生に要する時間を統計的に分析する必要がある．外部加熱はレーザー光の熱への変換を開始させるのに必要だが，光ファイバが形を保てる程度に熱変形を抑えなければならない．その上で，ファイバフューズが加熱領域から飛び出して冷たい光ファ

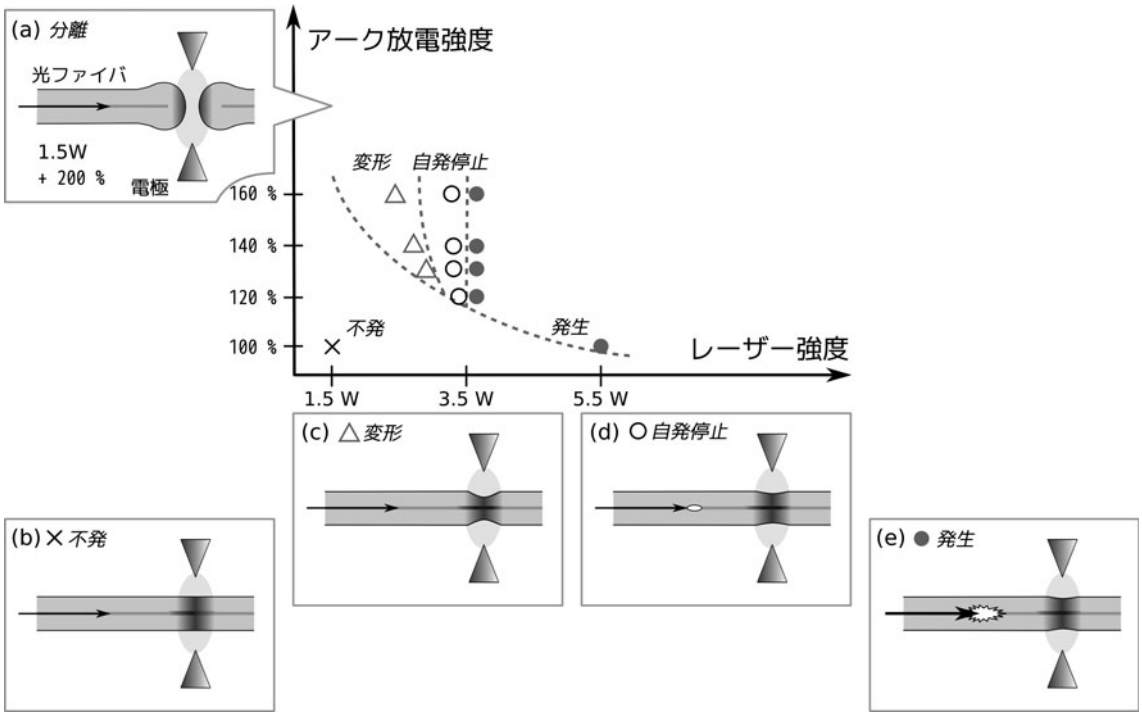


図 3　図 2 に示したファイバフューズ発生試験結果を，加熱強度とレーザー光強度の関係を軸に定性的にまとめた図.

イバを通り抜けていっても存続できる程度に，レーザー光の熱変換が確立されている必要がある.

ファイバフューズに関してさらに情報を得たい方は，まず総説[2, 6]にあたることをお勧めする. 筆者は，職場への見学者に対してファイバフューズのデモ実験を長年行っているが，珍しい現象であることが手伝って，老若を問わず背景説明の段階から強い興味を持って耳を傾けてもらる. ファイバフューズ現象が役に立つ応用先は教育，と言えるほどの手応えである.

参 考 文 献

[1] R. Kashyap *et al.,* Eighth National Quantum Electronics Conference, Post Deadline (Poster) Session PD7, (1987).
[2] R. Kashyap, Optics Express **21**, 6422 (2013).
[3] R. Kashyap, *Lasers '87; Proc. the 10th Int. Conf. Lasers and Applications,* (STS Press, McLean, VA, 1988) p.859.
[4] S. Todoroki, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 4022 (2005).
[5] S. Todoroki, Optics Express **13**, 6381 (2005).
[6] S. Todoroki, *Fiber fuse – light-induced continuous breakdown of silica glass optical fiber* (Springer Japan, Tokyo, 2014).
[7] S. Todoroki, Scientific Reports **6**, 25366 (2016).
[8] N. Akhmediev *et al.,* Phys. Lett. A **372**, 1531 (2008).
[9] S. Todoroki, Optics Express **13**, 9248 (2005).
[10] E.M. Dianov *et al.,* IEEE Photon. Technol. Lett. **18**, 752 (2006).
[11] 首藤義人：電子情報通信学会和文論文誌 **J94-B**, 928 (2011).
[12] E.M. Dianov *et al.,* Electron. Lett. **38**, 783 (2002).
[13] Y. Mizuno *et al.,* Appl. Phys. Lett. **104**, 043302 (2014).
[14] 轟 眞市：電子情報通信学会誌 **96**, 441 (2013).
[15] D.D. Davis *et al.,* SPIE Proceedings **2714**, 202 (1996).
[16] S. Yanagi *et al.,* Electron. Lett. **38**, 977 (2002).

J. Plasma Fusion Res. Vol.94, No.10 (2018) 509-511

小特集 誘電体光学材料の損傷

6．まとめ

6. Summary

加藤　進，栗村　直[1)]
KATO Susumu and KURIMURA Sunao[1)]
産業技術総合研究所，[1)]物質・材料研究機構

（原稿受付：2018年9月21日）

レーザー技術はプラズマの発生や計測に多大に貢献し，今後もその重要性は変わらない．加えて，近年，レーザー加工，ディスプレイなどで高平均出力レーザーが利用されるようになり，光学素子の損傷とその回避はますます重要な課題となっている．光学材料，特に透明誘電体の損傷は，その現象自身がプラズマと直接関係するかどうかにかかわらず，プラズマ科学の重要なテーマである高出力レーザーを用いた核融合，粒子加速，EUVやX線などの短波長光源などのプラズマ応用や高エネルギー密度科学，宇宙プラズマなどの基礎研究において重要な問題である．

「はじめに」でも述べたように，レーザー開発においてはプラズマ発生は邪魔者でしかない．本小特集では，敢えてプラズマを利用する立場と異なり，プラズマが発生することが，材料が本来持っていた特性を制限する現象に焦点を当て，今後のプラズマ科学の発展がレーザー技術のブレークスルーをもたらす可能性があるではないかと考え，本小特集を企画しました．

誘電体内部の損傷では，絶縁破壊型の損傷に加え，着色現象，光誘起屈折率変化などが問題視されている[1]．第2章で述べられているように，レーザーによる誘電体の損傷とブレイクダウン（絶縁破壊）との関係は単純では無い．特に，レーザーブレイクダウンにおける「電子なだれ」は古くからの問題ではあるが，パルス幅がナノ秒以下ではその重要性はほぼ否定されている．一方ナノ秒以上のパルス幅では「電子なだれ」の影響は未だ解決されていない．その原因の一つとして，第4章で述べられている誘導ブリルアン散乱などの非線形光学現象の発生が発生機構や損傷しきい値の決定を困難にしていることが考えられる．パルス幅が長い極限である連続光レーザーや高繰り返しレーザーではどう影響するかはさらに複雑である．第5章で扱っている連続光レーザーによるファイバフューズ現象について，発見者のKashyap教授は解説の中でプラズマ発光の伝播であると断言しており，損傷がプラズマ発生につながっている[2]．

光学材料には様々な誘電体が用いられるが，完全に定比組成（stoichiometric）の物質は一般に存在しない．そのため，誘電体自身に本質的に内在（intrinsic）する問題なのか，それとも不純物や格子欠陥などの外的要因（extrinsic）によるものなのかを厳密に区別することは難しい．第3章で示されたように長年の光物性研究により，アルカリハライドに加えて石英でも励起子や束縛状態と欠陥生成の関係はかなり解明されている．また，ニオブ酸リチウムと酸化チタンでは束縛状態としてポーラロンが形成されることがわかってきている．しかし，光学材料に使われる誘電体の多くでは，どのような緩和が起こり，束縛状態が形成されるかはまだ明らかになっていない．ダブルパルスフェムト秒レーザーを用いた実験によって，着色現象，光誘起屈折率変化，ブレイクダウンに関与する励起状態や束縛状態がさらに解明され，損傷原因の理解につながることが期待される．

最近のレーザー技術の進展によりkWクラスのレーザーが開発され，定常的に状態を変えるほどの高平均出力レーザーが登場してきている．ファイバフューズ現象や第二高調波発生においては数十MW/cm^{2}を越える集光強度の光が透明誘電体中を通過していく．このとき，光により励起された伝導電子やホールなどのキャリアは，格子振動とエネルギーや運動量を交換しながら，再結合により束縛状態や基底状態へ遷移して消失，再励起を繰り返す．この準定常状態は非平衡開放系と見なすことができ，物理的に普遍性の高いモデルである．レーザーによる損傷のしきい値は，この状態が安定的に存在できる限界によって決まっていると考えることもできる．上記損傷直前の準定常状態は，大気中における希ガスジェットが電源周波数数十kHzで電離と再結合を繰り返し放電プラズマを維持している状態[3,4]と類似性が高いと考えられる．希ガスにおける準安定原子が自己束縛励起子やポーラロンに，電子の中性ガスとの衝突によるエネルギー緩和は，格子振動との緩和に対応している．この様に対応関係を考えると，プラズマにおいて培われた安定性に関する理論が適用できるのではないかと頼もしくなる．この考えは新しいものではなく半導体における静電破壊と同様であり[5]，その手法を援用できる可能性が高く急速な進展が期待できる．

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba, IBARAKI 305-8568, Japan
corresponding author's e-mail: s.kato@aist.go.jp

©2018 The Japan Society of Plasma Science and Nuclear Fusion Research

本小特集によって，高平均出力レーザー照射下の透明誘電体がプラズマの非平衡状態の一つとして認知できる可能性が見いだされた．物性物理学で培われた光物性の知見をプラズマ科学に持ち込むことで，高出力レーザーの開発に貢献し，プラズマ科学の更なる発展を望んでやまない．

参 考 文 献

［1］レーザー学会編：レーザーハンドブック（オーム社，2005）p.548.

［2］R. Kashyap, Opt. Express **21**, 6422 (2013).

［3］Y. Fujiwara *et al.,* Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 10301 (2016).

［4］H. Yamada *et al.,* Plasma Sources Sci. Technol. **27**, 05LT 02 (2018).

［5］M. Levinshtein *et al., Breakdown Phenomena in Semiconductors and Semiconductor Devices* (World Scientific, 2016).

小特集用語解説

・ポッケルス効果（第１章）

電気光学効果と呼ばれ，外部から印加する電場に対して材料内部で屈折率が変化する．屈折率変化が電場の１次に比例する効果をポッケルス効果と呼び，２次に比例する効果はカー効果と呼ばれる．外部電場で位相を変調できるため．自分自身との干渉や偏光面の回転を利用して，ON/OFF といった光強度の変調に利用される．レーザーの Q スイッチや光通信の超高速変調器が実現されている．Q スイッチはOFF時にエネルギーを蓄積してON時に高いピークパワー生みだし，高強度レーザーを実現する技術として用いられている

・格子振動（フォノン）（第２章，第３章）

電子散乱の観点から固体における格子振動とガスを対比すると，気体では，電子の散乱は，希ガスなどの単原子分子の場合は電子励起，電離を伴わない場合，運動量のみを移行する弾性散乱だけである．原子数が２個以上の分子では，それぞれの原子が電子を共有することで繋がって回転と振動の内部自由度が存在するため，電子励起や電離を起こせないエネルギーの電子では弾性散乱に加え，回転や振動を励起する非弾性散乱が起こる．一方，固体では，多数の原子が電子を共有するため，結晶格子上の原子が振動する内部自由度を持ち，これを格子振動と呼ぶ．電子は結晶場との相互作用により結晶中に格子振動を励起する非弾性散乱によりエネルギーのやりとりする．格子振動は最終的には熱となり結晶の温度上昇につながる．

・インキュベーション効果（第２章）

固体誘電体にレーザーを照射する際，固体誘電体が損傷を受ける１パルスあたりの最小照射フルエンス（単位面積あたりのエネルギー）を照射フルエンスの損傷閾値 F_{Lth} と呼ぶことが多い．実験で F_{Lth} を測定する際は，シングルパルス照射で行われることが多い（1-on-1 方式）．実は，同じ場所を何度もレーザーで照射している（S-on-1 方式）と，１パルスあたりの照射フルエンスが F_{Lth} より低くても損傷が起き，しかもレーザー照射の繰り返し回数が多いと損傷が起きる１パルスあたりの最小照射フルエンスが段々と下がってくることが知られている．この現象を「インキュベーション効果」と呼んでいる．また，レーザー照射の繰り返し回数がある程度以上になるとインキュベーション効果が飽和することも知られている．

・ラッキーな衝突（第２章）

自由電子はレーザー電場で加速され，電子の運動方向に加速されれば運動エネルギーが増え，逆向きに加速されれば運動エネルギーが減る．レーザー電場は周期的に向きが反転するので，電子の運動方向と電場による加速方向が常に一致するようなことはほとんど起こり得ないが，もしそうなるように電子が弾性散乱されるなら，この電子の運動エネルギーは急速に増大する．このような衝突を「ラッキーな衝突」と呼ぶ研究者がいる．ほんの少数の電子でもラッキーな衝突を何度か続けて起こせば，衝突電離を起こせる運動エネルギーを獲得し，ブレイクダウンにつながる自由電子の雪崩的増大をトリガーし得る．ブレイクダウンは，「確率的に低くても，もし起きればブレイクダウンにつながるようなラッキーな衝突」に支配されているのだと考える研究者がいる．つまり，ブレイクダウンは，「普通は確率的に無視するような現象こそが実は大事なのだ」という事例の一つであり，そういう意味では原発事故と似た性格を持っているのかもしれない．

・遍歴電子，遍歴励起子（第３章）

固体中の電子は格子を構成する原子と強く結びついているが，原子間隔が狭まると，隣接する原子の同様な電子状態の波動関数の重なりにより電子状態は幅を持ち，バンドを形成する．バンドを形成した電子状態にある電子の良い量子数は，波数 k である．この波数は電子の運動量と $p=\hbar k$ の関係で結ばれており，運動状態を特徴づける．このような状態にある電子を遍歴電子（あるいは単に自由電子）と呼ぶ．励起子は正確には１電子状態ではないが，電子と正孔から構成する準粒子として取り扱うと，やはり波数 k_{ex} によりその状態を特徴付けることができる．このような励起子を遍歴励起子，あるいは自由励起子と呼ぶ．この波数 k_{ex} は励起子の重心運動を特徴づける．

・強結合近似における飛び移り積分（第 3 章）

強結合近似では，電子が強く原子に束縛されている状態を固体中の電子を取り扱う出発点とする．原子間隔が離れている場合は，電子は強く結合している原子を離れて動き出すことはできないが，実在する物質の格子間隔程度に近付くと，ハミルトニアンにより異なる原子の同様な電子状態との重なりが生じ，電子は隣接する原子に飛び移ることができる．この飛び移りやすさを表すのが飛び移り積分（transfer integral）である．強結合近似のもとでは，電子のバンド幅はこの飛び移り積分の値に比例する．

・アルカリハライド（第 3 章）

アルカリ金属（Li，Na，K，Rb，Cs）とハロゲン原子（F，Cl，Br，I）のイオン性化合物の総称．カチオン（陽イオン）とアニオン（陰イオン）の半径の比率により配位数が異なるが，塩化ナトリウム，塩化カリウムなどの 4 配位をとる結晶の場合，塩化ナトリウム型結晶構造となる．結晶の格子点にある個々のイオンは，結晶中の全てのイオンからの静電的相互作用エネルギーの総和（マーデルングエネルギー）によって安定化されている．電子構造についてみると，価電子帯がハロゲンアニオンの p 軌道，伝導帯はアルカリ金属の s 軌道から形成されており，バンドギャップエネルギーは 6 eV 以上である．このため，結晶は無色透明である．

・色中心（F 中心，H 中心，Vk 中心）（第 3 章）

イオン結晶を構成するアニオン格子の原子が外れ，空格子点（空孔）が形成されると，電子を捕獲した欠陥が形成される．この欠陥の電子状態は箱型ポテンシャルに捕らえられた電子と考えることができる．アルカリハライド結晶では，この電子の光学遷移が可視紫外域に現れるため，欠陥を有する結晶は特有の色を呈する．この色を与える原因を色中心（Farbzentrum = color center）と呼んだ．その名前の起源となる F 中心は，アルカリハライド結晶ではハロゲン空孔に電子が 1 つ捕獲された状態である．イオン性の高い酸化物においても F 中心と呼ばれる欠陥が存在するが，これは酸素空孔に電子が 2 つ捕獲された状態であり，電子が 1 つ捕獲された状態を F^+ 中心と呼ぶ．H 中心は，格子間ハロゲン原子が隣接するハロゲンイオンと結合してハロゲン分子イオンの形態をとる欠陥である．Vk 中心は自己束縛正孔であり正孔の局在したアニオン（原子）が隣接するアニオンと結合してハロゲン分子イオンの形態をとる．

・ブロッホ状態（第 3 章）

並進対称性を持つ結晶の 1 電子状態の波動関数は，ブロッホの定理により，自由空間における電子の波動関数（平面波波動関数）が格子の周期を持つエンベロープ関数で変調された関数で与えられる．このような波動関数で表される 1 電子状態をブロッホ状態と呼ぶ．

・確率共鳴（第 3 章）

一般には，微弱な信号にある適当な強度のランダムノイズが乗ることにより，信号強度がある確率で強まる現象をいう．この現象は，最初，Benzi らによって氷河期の周期性を説明するモデルとして提唱された（R.Benzi *et al.,* Telus **34**, 10 (1982).）．その後，生体系や固体物理の分野においても確率共鳴で説明される現象が見出され，機械制御などでも用いられている．誤解を恐れずに極めて簡略化して述べると，ある現象が観測可能な状態となるしきい値を持つ場合，しきい値に達しない信号は観測可能な結果を与えない．しかしながら，その微弱信号に適当な強度のランダムなノイズを加えると，信号とノイズの重なりによりしきい値を超える場合が生じ，現象が観測可能となる．

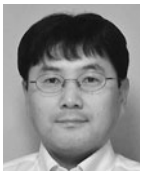
・光誘起屈折率変化（第 3 章）

ニオブ酸リチウムに代表されるニオブ酸アルカリやタンタル酸リチウムなどの結晶にレーザー光や紫外光を部分的に照射すると，照射された部分の屈折率が変化し，長時間にわたってその変化が維持される．これを光誘起屈折率変化と呼ぶ．光誘起屈折率変化はシリカ系ガラスでも見出されており，現在では光導波路の作製法としての応用されている．光誘起屈折率変化の原因については，欠陥構造の光誘起構造変化，レーザー照射による欠陥生成，深い準位に捕獲されたキャリアの光励起による再配置などが提案されている．

・散逸ソリトン（第 5 章）

プラズマ中におけるイオン音波などを記述する kdV 方程式におけるソリトンでは，波束は線形分散による広がりと非線形性による急峻化とのバランスによって安定に伝播する．一方，散逸はあらゆる系に存在する．散逸ソリトンは熱や粒子の発生とその散逸がバランスすることによって安定的に存在し，ファイバフューズだけでなく放電プラズマにおける縞構造，反応拡散系などの非平衡散逸系において普遍的な現象である．

小特集執筆者紹介



栗村　直（くりむら　すなお）

物質・材料研究機構　主幹研究員．早大理工物理卒（1988）／修了（1990）．博士（工学）．富士通研究所研究員，学振特別研究員DC/PD，スタンフォード大学訪問研究員（1997-1999），分子科学研究所助手（1999-2001）を経て，物質・材料研究機構現職．早稲田大学助教授・教授を兼任，併任．応用物理学会フォトニクス分科会副幹事長．非線形光学デバイス・材料，光導波路，光共振器の研究に従事．レーザー学会上級会員，日本光学会特別会員，OSA senior member，応用物理学会会員．

加藤　進（かとう　すすむ）

1993年大阪大学工学研究科電磁エネルギー工学専攻博士課程修了．博士（工学）．現在，国立研究開発法人産業技術総合研究所電子光技術研究部門先進プラズマプロセスグループ主任研究員．主な研究分野は，レーザーと物質の相互作用，大気圧プラズマに関するシミュレーション．最近，プラズマ生成の初期過程に興味を持っています．

遠藤琢磨（えんどう　たくま）

広島大学大学院工学研究科機械システム工学専攻教授．1985年大阪大学工学部電気工学科卒．1990年大阪大学大学院工学研究科電磁エネルギー工学専攻博士課程修了・工学博士．学振特別研究員，㈶レーザー技術総合研究所研究員，名古屋大学助手・助教授，広島大学助教授・准教授を経て，2009年より現職．現在の研究分野は，パルスデトネーション技術とレーザー点火．

伊東千尋（いとう　ちひろ）

和歌山大学　副学長，システム工学部　教授．1990年名古屋大学大学院学研究科物理学専攻修了．理学博士．その後，旭化成工業株式会社，名古屋大学大学院理学研究科を経て，現在に至る．現在の専門は，光物性をベースとして新奇な物性を示す物質の開発と物性制御方法の開発（物性工学）．酸化物からナノカーボンまで，興味ある現象を示す物質を研究対象としている．最近，毎朝5時前に猫に起床させられる生活を続けている．

本越伸二（もとこし　しんじ）

公益財団法人レーザー技術総合研究所，レーザー技術開発室・室長，主任研究員．1994年大阪大学大学院工学研究科博士後期課程修了．工学博士．光学素子のレーザー損傷に関する研究，高耐力光学素子開発に従事．レーザー損傷耐性試験を行う国内唯一の機関として，年間100個を超える光学素子の評価を行う一方で，レーザー損傷しきい値のデータベースの構築を進めている．

轟　眞市（とどろき　しんいち）

物質・材料研究機構 機能性材料研究拠点 主席研究員．京都大学で学位を取って日本電信電話株式会社に5年在籍の後，現在の所属の前身である無機材質研究所に入って20年が経過．研究対象がガラスから光ファイバ，画像解析やIoTを通じたセンサ材料の高付加価値化へと変遷中．AndroidやiOS上で動く研究者用画像解析アプリを作るのが楽しみ．