



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とした破断となるが、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

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),

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℃)	$\times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$	14.6~15.2
密度	g/cm^3	2.201~2.203
縦弾性係数	$\times 10^4 \text{ N/mm}^2$	7.0~7.25
ねじれ剛性率	$\times 10^4 \text{ N/mm}^2$	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
マイクロピッカース硬さ	N/mm^2	8600~9800
スूप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	$\times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$	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℃)	$\times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$	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℃)	$\times 10^{16} \Omega\text{m}$	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

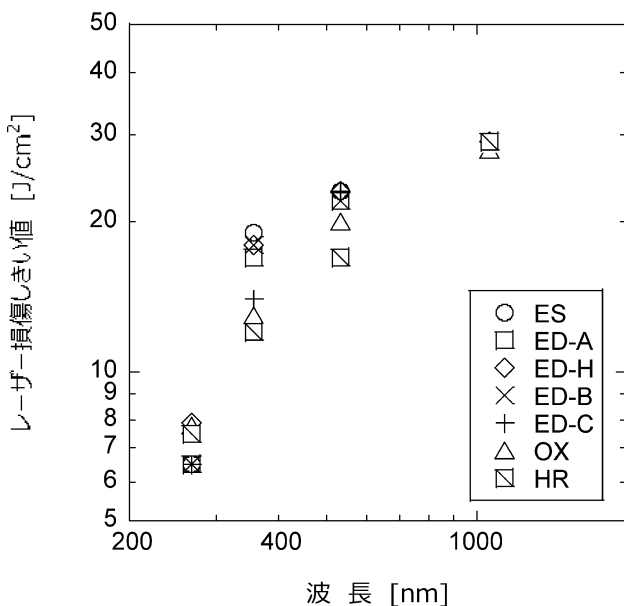


図 1 石英ガラスのレーザー損傷しきい値の波長依存性 [3].

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。

4.4 レーザーパルス幅依存性

これまで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 10^4 ps (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

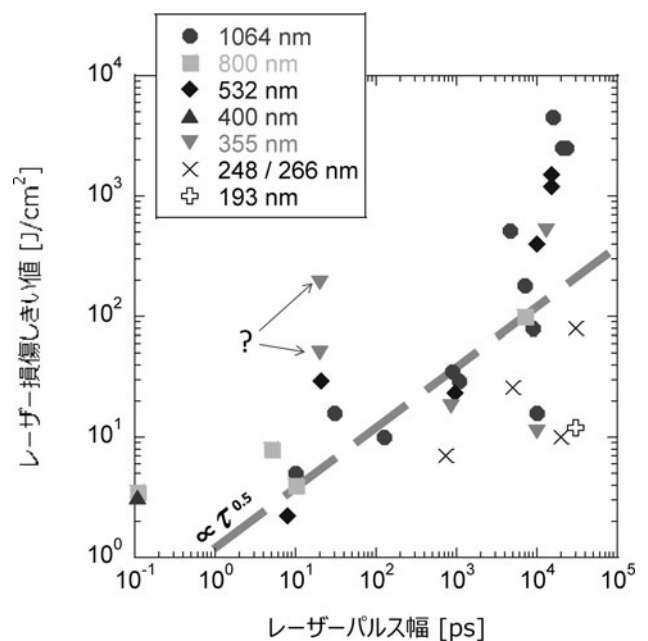


図 2 石英ガラスのレーザー損傷しきい値のパルス幅依存性 [3-18].

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、

$$\frac{dN(t)}{dt} = \gamma_{(n)} I(t)^n + \beta N(t) I(t) - \frac{1}{\tau} N(t) \quad (1)$$

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

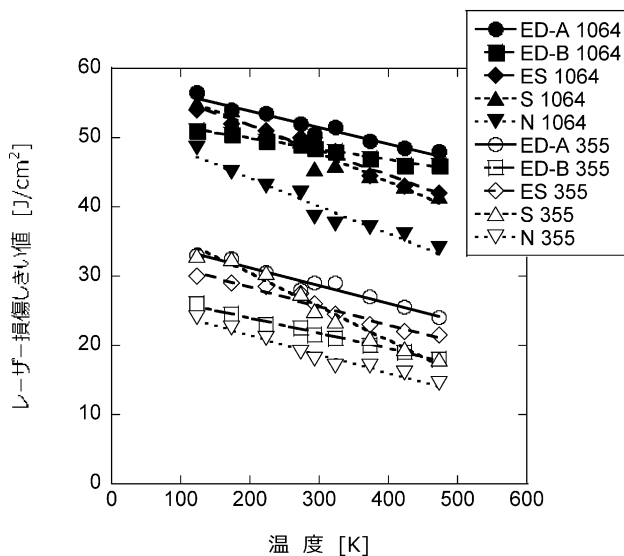


図3 石英ガラスのレーザー損傷しきい値の温度依存性[21]。

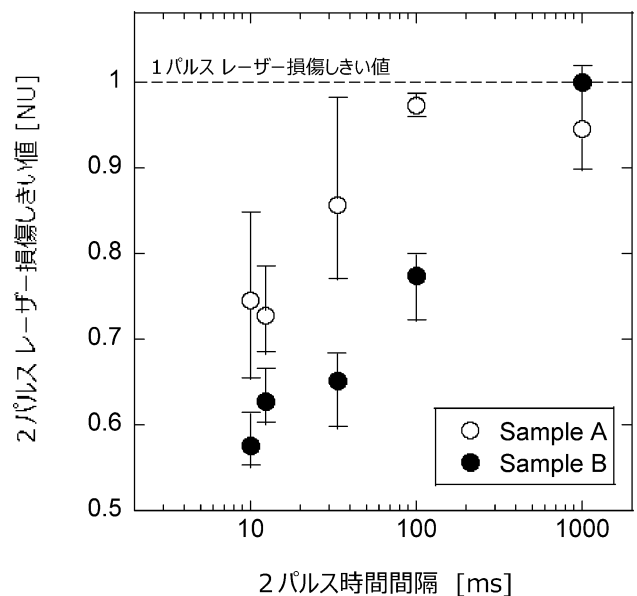


図4 2パルス照射による石英ガラスのレーザー損傷しきい値[23]。

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.