

## 高出力の超短パルスレーザーからの強襲に耐える光学材料

ローラン・ガレ

近IRからUV領域までのレーザー誘起損傷しきい値の測定によって、高出力の超高速レーザーの厳しさに耐える光学材料—バルクまたは薄膜形態の金属、半導体または誘電体を選択することができる。

短パルスレーザー(いわゆる超高速レーザー)は、チャープパルス増幅の出現以来、機能とアプリケーションの両面で急速な成長を遂げている。当初は最先端の基礎研究が原動力であったが、現在のフェムト秒(fs)レーザーの開発は多数の産業的手法、調査、医療応用と深く結びついている。さらに、制御方法の実現によりナノメートルスケールで物質に作用して、フェムト秒分解能で事象を監視する道を開き、超高速レーザーは予想を超えるパワーの研究ツールとして物理学、化学、生物学を開拓している。

そのようなフェムト秒レーザーパルスの発生と操作には、例えば、パルス伸長やスペクトル歪みを抑制する能力をもつ具体的な光学部品が必要になる。現状では、これらの光学部品のピークパワー操作能力が高出力、高性能の超高速レーザーシステムの発展を妨げかねない(図1)<sup>(1)</sup>。

光学材料のレーザー誘起損傷閾値(LIDT)の実験的測定は、基礎的な超高速レーザー研究に適した光学材料の識別に関連が深い。このLIDT情報は、光学部品の設計または理論モデルとの比較にも利用できる。

残念ながら、公表されているLIDTデータは、一般に、レーザー損傷測定が様々な条件で行われ、それが食い違いの原因になるので、比較が困難である。こ

のため、仏フレネル研究所でのわれわれの研究目的は、①類似条件で評価され、損傷試験された光学材料(バルクと薄膜)のレーザー損傷抵抗を比較し、②最先端の測定技術に基づいて、LIDTの波長、パルス持続時間、パルス数などのレーザー動作条件依存性を議論することである。

### 誘電体バルクとコーティング材料

誘電体材料の場合、材料の損傷は時間的に分離可能な一連の事象の結果である。まず、誘電体材料に非常に高いピークパワー(例えば、 $10\text{TW}/\text{cm}^2$ の最大強度に相当する100フェムト秒で $1\text{J}/\text{cm}^2$ )のパルスを照射すると、材料の物理的な光イオン化(PI)と衝突イオン化(II)過程によってアバランシェ過

程が引き起こされる。照射条件(波長、パルス持続時間)に応じて、PIまたはII過程のいずれかが優勢になりうる。しかしながら、フェムト秒パルスの終端では、材料内に高エネルギー自由電子が超高密度で発生するであろう。

これらのイオン化プロセスの一環として、ホットエレクトロンガス(強い非平衡状態にある)のエネルギーは、第2ステップの数ピコ秒の時間スケールで起こる過程で格子内に移動する。次いで、照射条件と材料特性に依存する材料の局所的な物理的破壊がナノ秒ないしマイクロ秒の時間スケールの熱または機械的效果によって起きるのである。

エネルギー付与の物理的機構(IIとPI)は、材料とバンドギャップに直接依存する効率をもつ。したがって、そ

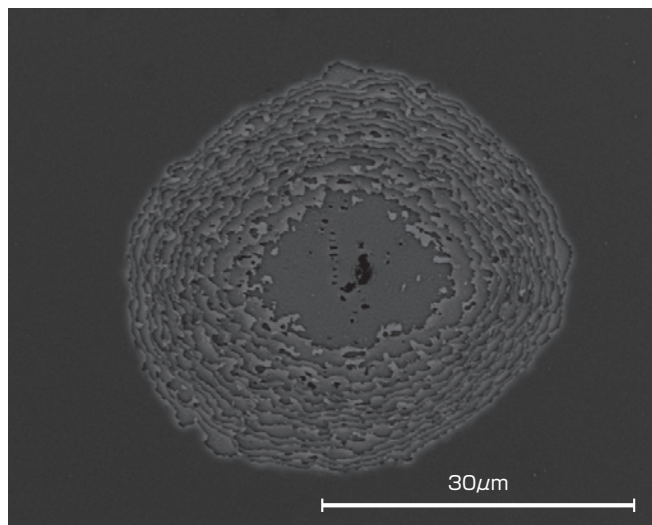


図1 走査電子顕微鏡像は、1030nmで複数の500フェムト秒照射を受けた高反射多層コーティング上の損傷箇所を示している。コーティング欠陥(画像の中心に位置する)が開始後、損傷は、連続照射下でコーティングの全ての層が除去されるまで増大した。

のLIDTは材料のバンドギャップ値に直接依存する(図2)。

バルク材料の場合、フッ化物は酸化物よりも優れたレーザ損傷抵抗をもつ。もちろん、半導体材料は損傷しきい値が極めて低い。薄膜材料の場合、絶縁破壊フルエンスのバンドギャップエネルギーに対する明瞭な線形スケールリングが広範囲の材料で観察されている。しかしながら、そのLIDTは堆積技術とは関係がない。例えば、酸化ハフニウム(HfO<sub>2</sub>)試料の結果は、それらが蒸着やスパッタリングなどの異なる技術で作製された試料であるにもかかわらず、低分散である。

材料混合物(いくつかの酸化物または酸化物とフッ化物の共蒸着)の場合には、より複雑な依存関係が観察された<sup>(2)</sup>。これらの条件下での光学材料の選択は損傷抵抗が関心事である限り明瞭であるように見えるが、次章で詳述するように、「インキュベーション」または「疲労」効果など、他にも検討すべき材料が存在する。

## 金属膜

超短・高出力レーザアプリケーション用のミラーは、大きな帯域幅にわたって高反射率で低吸収であることが要求される。金属膜、特に金層は、超高速レーザシステムにおけるミラーとして重要な役割を果たす。これらの材料は、照射点に損傷を誘起するに十分なエネルギーを付与するフルエンス値まで耐えることができる。

1ピコ秒以下の短パルスは熱過程を伴うが、この熱は照射領域外に拡散する時間がないので、エネルギー密度だけが問題になる。これは、損傷しきい値がパルス持続時間に依存しないことを意味し、非常に短いパルス持続時間(<20fs)での金属ミラーは、反射率の

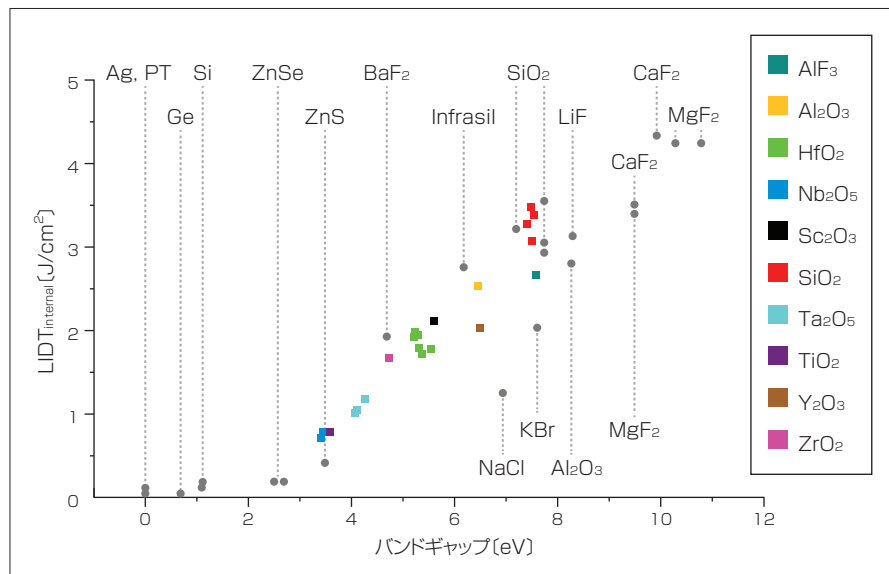


図2 レーザ誘起光学薄膜材料(それぞれの説明がつけられた着色四角)とバルク材料(灰色の円)の表面の損傷閾値(LIDT)が測定された光学バンドギャップの関数として示されている。全試料は同一条件、1030nmで500fsのシングルショットLIDT測定でテストされた。これらの値は試料内の電場分布を考慮して内部LIDTとして示されている。各点は、異なる試料に対応する。

高い誘電体スタックに匹敵するLIDTを持つことになる。

光学コーティングに使用される最も一般的な金属は、金、銀、銅、白金、ニッケル、アルミニウムである。アルミニウムは優れた紫外線、可視光線、遠赤外線反射率を有しているが、アルミニウムの反射率は700~900nmの波長で大幅に低下する。ニッケルと白金の場合も、その反射率は反射ミラー用途には低すぎる。

銀は、酸化の問題が大気曝露時に存在するものの、その高い反射率と蒸着の容易さゆえに光学用途において最も一般的に使用されている金属の一つである。

金と銅は、同様の赤外線スペクトル品質を持ち、700nm以上の赤外線反射コーティングとして十分に機能する。ガラス上の金は一般に柔らかく損傷しやすい膜を形成するが、この問題は、金を基板に強く接着させるクロムまたはニッケル膜によって解決される。エネルギー付与過程もガラス上の金の接

着強さを改善する。

レーザ損傷抵抗の観点から、金と銀は、材料の物理的性質に基づいて、銅よりも優位であるに違いない。しかしながら、これらの2つの材料に関しては利用可能な実験データが不足していることを考えると、約1J/cm<sup>2</sup>の値が報告されているとはいえ、金または銀がより優れたレーザ損傷抵抗を有するかどうかを結論付けることは困難である<sup>(3),(4)</sup>。さらに、損傷抵抗は膜厚にも依存する。“ホット”電子は膜深くまで容易に拡散するので、厚い膜ほど、LIDTも高くなる。

## レーザ動作パラメータ依存性

経験的作業と理論的研究に基づいて、レーザの動作パラメータ(パルス持続時間、波長、偏光、繰り返し率、パルス数、スポットサイズ)の関数としてLIDT依存性のいくつかのスケールリング則が導出された。これは、1セットの条件のもとで適正と評価された光学コンポーネントを異なる条件セット

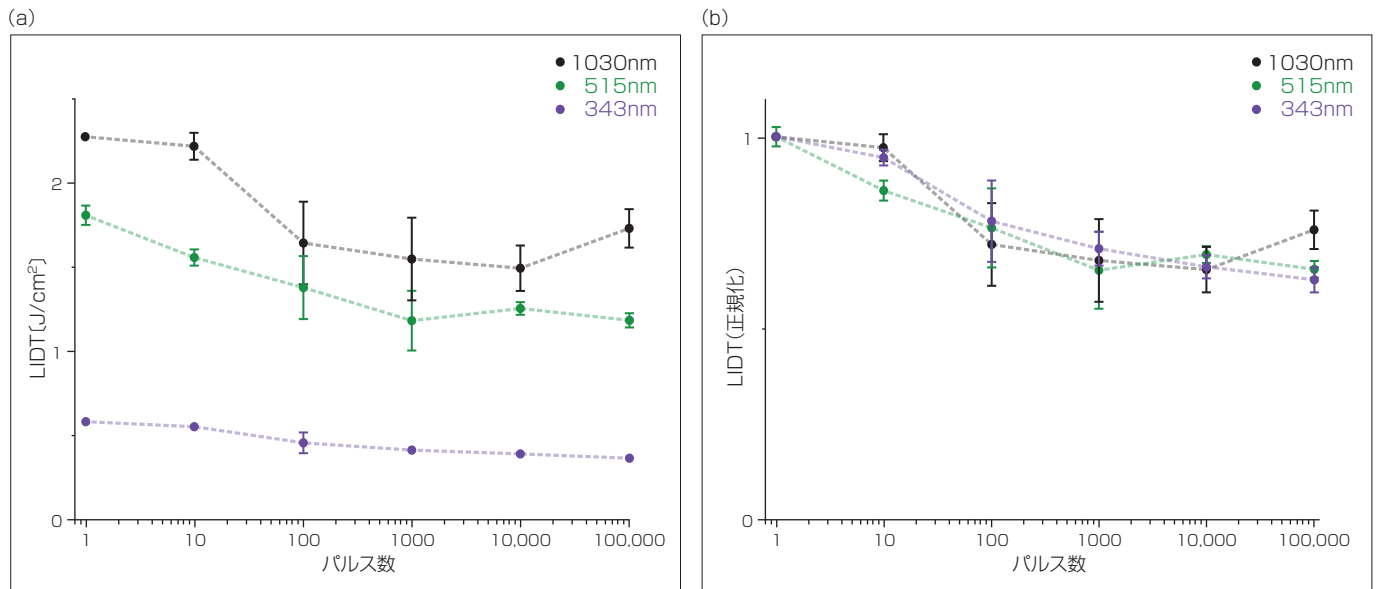


図3 レーザ誘起損傷閾値(LIDT)は石英ガラス基板上に堆積された酸化ハフニウム(HfO<sub>2</sub>)膜について示されている。試験は、1kHzの繰返し率をもつさまざまな波長に対して500fsで行われた。(a) J/cm<sup>2</sup>の値と(b)正規化された値は異なる波長でのインキュベーション挙動に匹敵する。

に適用する必要がある時など、実用上非常に有用である。光損傷効果に特に結びつく3つのレーザーパラメータは、レーザーパルス持続時間、波長、パルス数である。

誘電体材料の場合、LIDTはほぼT<sup>k</sup>で定義される、ここで、Tはパルス持続時間、kは約0.3の固定パラメータである<sup>(5)</sup>。このT<sup>k</sup>関係は、材料に関係がなく、光イオン化を核とするアバランシェイオン化過程に帰属されることが見出された。しかし、前に述べたように、金属の場合、LIDTはピコ秒1ないしフェムト秒の範囲のパルス持続時間に依存しない。

前述したように、光学材料のイオン化はレーザー波長に依存する非線形過程の結果である。これらの過程は、いくつかの光子の同時吸収が関係する。材料のバンドギャップエネルギーを越えるために必要な光子数が増加するとともに、その過程の効率は低下する。したがって、光子エネルギーが増加(波長が減少)するとともに、必要なエネルギーが低下し、LIDTも一般に低下する。

複数パルスの場合、損傷閾値は、いわゆるインキュベーションまたは疲労過程におけるパルス数が増えると低下する。損傷抵抗の減少は、直接入射パルス数に関係するだけでなく、パルス持続時間、場合によっては、繰返し率のような他の照射条件にも関係する<sup>(6)</sup>。損傷抵抗の低下は、材料によっては50%以上に達する。この過程は、固有の欠陥(製造方法に関連)とレーザー誘起電子欠陥(照射条件に関連)依存性に関係する(図3)。このパルス依存特性を特定の材料について定量化するという観点で、ひきつづき広範な体系的な研究が必要である。

要約すると、単一バルクと薄膜光学材料の性能は、LIDTの線形発展に関

与するバンドギャップ値に基づいてランク付けすることができる。したがって、堆積パラメータは、少なくとも単一パルス照射では重要ではない。しかしながら、混合膜の場合にはより複雑な挙動が観察される。さらに、材料の組み合わせが膜に特定の性質を付与し、高い損傷閾値を達成する場合もある。金属膜、特に銀と金は、そのLIDT値が誘電体材料に匹敵するので、超短パルス(サブ20fs)の高出力用途に適している。しかしながら、光学素子が複数のサブピコ秒照射に曝されたときは、全体的に、ユーザーは、インキュベーションや疲労を考慮しなければならない。最後に、LIDTは材料選択だけでなく、その製造メリットにも深く関係する。

#### 参考資料

- (1) L. Gallais et al., Opt. Lett. 39, 6, 1545-1548 (2014).
- (2) L. Gallais and Mireille Commandré, Appl. Opt., 53, 4, A186-A196 (2014).
- (3) B. C. Stuart et al., J. Opt. Soc. Am. B, 13, 2, 459-468 (1996).
- (4) B. Wang et al., Opt. Exp., 21, 12, 14698-14711 (2013).
- (5) M. Mero et al., Phys. Rev. B, 71, 11, 115109 (2005).
- (6) M. Mero et al., Opt. Eng., 44, 5, 051107 (2005).

#### 著者紹介

ローラン・ガレ(Laurent Gallais)は仏エクス=マルセイユ大学フレネル研究所の準教授。  
e-mail: laurent.gallais@fresnel.fr URL: <http://www.fresnel.fr/spip/>