

光学材料、光学薄膜の損傷機構のパーコレーションモデル

佐々木 明

量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所

1. はじめに

本報告書では、大阪大学レーザー科学研究所猿倉研究室で行っている、光学損傷の理論、シミュレーションに関する共同研究の成果と、その一環として行っているフィリピンマプア大学の教育、研究プログラムに対する協力の現状について報告する。

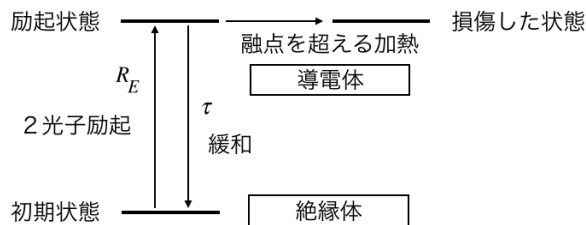
2. 光学損傷の研究

本共同研究の目的は、光学素子のレーザー光による損傷、光学損傷のメカニズムを明らかにし、光学素子の耐力を高めることを通じ、レーザーの性能の向上に貢献することである。

光学損傷には、材料中の光と原子、分子のミクロな相互作用がきっかけとなって、目に見える大きさのマクロな材料の破壊が起こるといふ特徴がある [1]。

本共同研究では、光学損傷を、レーザー照射による材料の絶縁体-導体転移と結びつけ、この現象を、それが起こる閾値を持つ、臨界現象として理解する可能性について、理論およびシミュレーションによる検討を行っている。

透明な光学材料が強いレーザー光にさらされると、二光子吸収などの過程を通じて伝導電子が生成すると考えられる(図1)。このことは、初期に絶縁体である光学材料のある場所が導体に変わる、導体転移することを意味すると考えられる。そして、導体となった光学材料は光を吸収して加熱され、その温度が融点を超えると材料の構造の破壊、損傷が起こると考えられる。



(図1) 光学材料と強いレーザー光の相互作用の原子過程モデル

伝導電子、あるいは励起された媒質原子のポピュレーションは、レート方程式、

$$\begin{aligned} \frac{dN_I}{dt} &= -R_E N_I + \frac{N_E}{\tau} \\ \frac{dN_E}{dt} &= R_E N_I - \frac{N_E}{\tau}, \end{aligned}$$

で表される。 N_I は基底状態、 N_E は励起状態のポピュ

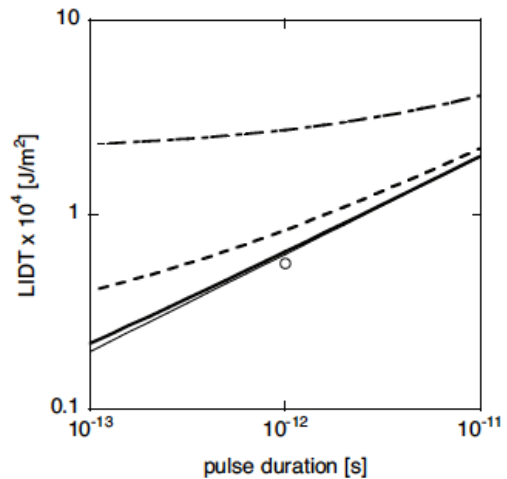
レーションを、 R_E は励起レート、 τ は励起状態の緩和時間である。

レーザー光の強度に空間的な不均一性があることなどを考えると、ポピュレーションは、材料の中で導体転移が起きた場所の割合を表すと考えられる。ここに、パーコレーション理論を用いると、ポピュレーションがある閾値を超えると、材料全体が導体転移すると考えられる。パーコレーションの閾値は、考える系の構造によって決まり、もし系が三次元の正方格子をなすと考えると0.25である [2]。

導体転移した材料中の伝導電子が、レーザーの電界によって加速されると、材料中に電流が流れると考えられる。短パルスレーザーで照射された材料では、ここに材料の抵抗値を与えて、ジュール加熱の大きさがわかり、材料の熱容量 ρc_v の値より、温度がどれだけ上がるかがわかる。そして、温度が ΔT 上がり、材料の融点を超えたら破壊すると考えて、フルエンスの形で損傷閾値が下のように表される。

$$F_{3D} = \sqrt{0.287 \frac{h\nu}{\beta} \frac{\rho}{m_p M} t_{pulse} + \frac{\Delta T \rho c_v}{A_p}},$$

ここで、 β は二光子吸収の吸収係数、 $m_p M$ は材料の分子量、 t_{pulse} はレーザー光のパルス幅、 A_p は導体転移した材料の吸収係数[1/m]である。(図2)は、この理論によるZnSeのフルエンスの閾値(LIDT)が、実験結果ともよく合うことを示す。



(図2)ZnSeの損傷閾値の理論値(線)と実験値(○)。理論値は、ポーラロン効果による吸収係数が 10^5 (一点鎖線)、 10^6 (点線)、 10^7 (実線)の場合を示す。

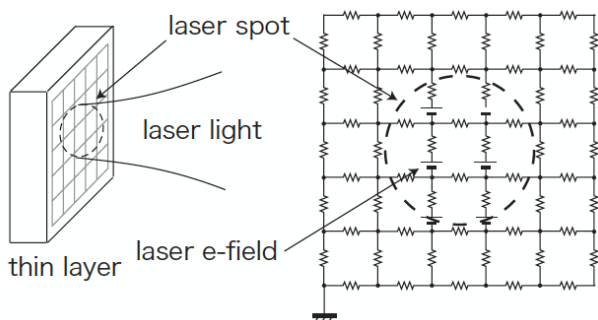
(図 2)は、フルエンスの閾値はパルス幅が 1 ps 程度よりも短い時は一定の値に近づき、長い時はパルス幅の 1/2 乗に比例するという、実験的にしばしばみられる依存性を再現している。

これまでの理論では、損傷閾値を、二光子吸収過程などによって生成した電子の密度が臨界密度を超えるとといった、人為的な条件を用いて考えていたのに対して、この理論では、損傷閾値を、材料の導体転移という臨界現象と関連づけられて決まることの特徴である [3]。

光学材料中に生成した伝導電子による電流は、ポーラロン効果によって大きな抵抗を受ける [4]。従って、二光子吸収によって導体転移が起こると、すぐにレーザー光の大きなエネルギーが媒質に吸収されるようになり、加熱が起こり、材料の破壊が起こる。すなわち、導体転移は、降伏現象のような振る舞いを示す。

異なる光学材料でも、二光子吸収の断面積、密度、ポーラロン効果による吸収係数などの値が似通っていれば、損傷閾値は似たような値になる、すなわち解析の結果はトリビアルということになる。より現象を深く理解するためには、各種の物性定数の正しい値を知ることや、実験結果との詳しい比較を行うことが必要と考えられる。

また、本共同研究では、パーコレーションモデルと電気回路のモデルを組み合わせたシミュレーションを行っている [5]。(図 3)のように、光学薄膜、あるいは材料表面の損傷を考えるため、薄膜上に 2 次元のセルを配置し、レート方程式によってその状態を決める。各時刻において、励起状態のポピュレーション、あるいは平均的な導体領域の割合を求め、それに比例する確率によって、ランダムに、セルが絶縁性と導電性のいずれであるかを定める。



(図 3)パーコレーションモデルによる光学損傷のシミュレーションのモデル

次に、セルは直流の電気回路を構成すると考え、レーザーの電界を起電力として与え、材料の状態を抵抗の値として与え、回路方程式を解いて、電流を計算する。そして、セルの抵抗値から加熱の大きさを計算し、温度上昇を計算し、損傷に至るかどうかを計算するモデルをたてて、シミュレーションを行っている。レーザー光強度が最も強い場所から導体転移が始まるが、ある広がりを持った領域が導体転移して閉じた回路が作られることによって、大きな電流が流れるようになり、加熱が起こることが示される。すなわち、電子雪崩の発生が、パーコレーション現象として表される。また、セルが導体転移す

る条件として、レーザーの二光子吸収とともに、強い電界によるトンネル電離を考慮すると、ある場所で導体転移が起こることで局所的に電界が強められ、近隣の場所での導体転移が誘起されるようになり、セル間の相互作用が考慮される。

系に含まれるセルの一つにおいて、温度が融点を超えることを以って損傷が起こったとし、その時のフルエンスの値を損傷閾値とするが、その値はシミュレーションを実行するごとに異なるので、シミュレーションを多数回繰り返して、統計的に意味のある値を求める。シミュレーションは、実験で見られる、損傷閾値のばらつき、統計的な性質も再現することができると考えられる。このような方法により、現在、損傷閾値の材料の物性値に対する依存性や、損傷のモルフォロジーの解析を行っている。

3. フィリピンマプア大学の教育、研究プログラムに対する協力

本共同研究の一環として、フィリピン、マプア大学における物理学の教育の充実、大学院の設立を目指すプロジェクトへの協力を行っている。フィリピンでは高い経済成長率が持続し、高い専門性を持つ人材への需要が高まっている。大学院において質の高い教育が行えるよう、それにふさわしい研究テーマの設定、研究のインフラストラクチャ、学生指導の方法を確立するための協力を行っている。初期の研究手法として、理論、シミュレーションを考え、テーマとして、光学損傷で扱っている、放電現象の統計物理学を考え、具体的には雷現象の物理の解明をテーマとして学生指導に対する協力を行っている。将来のために、現地の産業、社会に役立つテーマの探索も行っている。

2019 年 10 月に現地を訪問してセミナー、指導、今後の方針についての議論を行う一方、Black board システムなどを活用して、遠隔でのセミナー、プログラミング指導を行うとともに、より生産的な方法を見出すための検討を行っている。

ACKNOWLEDGEMENTS

この共同研究を行うにあたり、大阪大学レーザー科学研究センター、清水俊彦博士、ジャクリン・ガバイン博士、メルビン・エンピゾ博士、ロン・ムイ博士ほかのメンバーの方との議論、および産業技術総合研究所加藤進博士との議論に感謝します。

REFERENCES

- [1] R. M. Wood, *Laser-Induced Damage of Optical Materials* (Institute of Physics Publishing, 2003).
- [2] D. Stauffer and A. Aharony, eds., *Introduction to Percolation Theory* (Tahylor and Francis, Philadelphia, 1994).
- [3] B. C. Stuart, et al. *Phys. Rev. E* 53, 1749 (1996).
- [4] S. Kato et al. *Opt. Mater.* 40, 10 (2015).
- [5] A. Sasaki et al. *Phys. Rev. Lett.* 105, 075004 (2010).