

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：82626

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25610173

研究課題名(和文) レーザーブレイクダウンしきい値近傍のパーコレーションモデルによる統一的理解

研究課題名(英文) Unified understanding of laser breakdown in the vicinity of threshold by the percolation model

研究代表者

加藤 進 (KATO, SUSUMU)

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・主任研究員

研究者番号：20356786

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：レーザーブレイクダウンを統一的理解するため、物理機構の理解がパルスレーザーに比べて遅れている連続レーザーについて、光学材料の中でも広く利用されているLiNbO<sub>3</sub>系結晶を対象に、その素過程を調べた。

これらの結晶には、可視域から赤外域の光を吸収する長寿命のポーラロンが存在することが知られている。連続レーザーによるブレイクダウンの原因として、この長寿命のポーロンが関与する光誘起吸収モデルを提案した。このモデルは実験で観測されているブレイクダウンしきい値を説明するひとつの候補となる。

研究成果の概要(英文)：We investigated the elementary process in laser breakdown of LiNbO<sub>3</sub>-type crystals under continuous-wave laser irradiation to obtain a unified understanding of laser breakdown.

It is well known that long-lived polarons, which have large absorption cross sections for visible and infrared light, exist in these crystals. We proposed a model of light-induced absorption of the polarons on the cause of the laser breakdown. The model is a candidate to explain the breakdown thresholds observed in experiments.

研究分野：プラズマ物理

キーワード：レーザーブレイクダウン 準安定状態 光学結晶

## 1. 研究開始当初の背景

レーザーブレイクダウンは、レーザー光が強く集光された媒質中での絶縁破壊現象で、透明な媒質が光を吸収し、光学的または電気的特性などが急激に変化する現象である。レーザーブレイクダウンは、レーザー核融合や粒子加速等に代表されるメガジュール級の大型パルスレーザーを用いたものから、光通信などで利用される出力数ワットにも満たない連続光レーザーによるものまで幅広い分野で起こっており、気体、液体、固体など様々な絶縁媒質とレーザー光との普遍的な現象である。

パルスレーザーによるガス中でのブレイクダウンは、レーザーが開発された当初から知られた現象で、大気中での集光強度が約  $10^{11}\text{W}/\text{cm}^2$  に達すると、強い発光や音ともなって絶縁破壊が起こる。その原因は多光子吸収などによる初期電子の供給とそれに続く電子なだれによる衝突イオン化で説明されると考えられている。

一方、連続レーザーによるファイバーヒューズ現象や非線形結晶のブレイクダウンなどは比較的最近発見された現象であり、平均出力が数W～数十W程度の連続レーザーによる閃光を伴う光学材料中でのプラズマの伝播が問題となっている。

パルス幅によらないレーザーブレイクダウンにおける共通点には、しきい値近傍におけるゆらぎが非常に大きいことがあるが、その原因はまだ完全には理解されていない。

## 2. 研究の目的

連続レーザーによるブレイクダウン、特に光学材料については、その発生機構に対する理解が遅れている。

通常、光学材料の線形吸収係数は  $0.01\text{cm}^{-1}$  以下程度、熱伝導率はおおよそ  $(0.01-0.1)\text{Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$  である。このブレイクダウンは集光強度が数  $\text{MWcm}^{-2}$  程度で発生しており、電子なだれ過程は直接的な原因ではないと考えられる。

通常この条件では、吸収されたエネルギーは熱伝導で外部に輸送され、温度上昇はほとんど起こらない。このことより、異なる吸収機構が寄与しているはずであるが、不明な点が多くあり、その原因の解明を研究の目的とする。

## 3. 研究の方法

連続レーザー照射下での絶縁破壊しきい値強度近傍では、ゆっくりとした揺らぎが存在する点に着目した。その揺らぎの原因の一つとして、レーザー照射条件によって吸収係数が大きく変わるモデルを提案する。

パーコレーションモデルでは、繋がる対象とその繋がり方を適切にモデル化することが重要である。放電を記述するモデルでは、繋がる対象のプラズマ状態を電離と再結合により記述することにより、放電進展の特徴がよく再現できることが示されている(学会発表)。

非線形光学材料として広範囲で利用されている  $\text{LiNbO}_3$  系の結晶に対して、連続レーザーによるブレイクダウンモデルを構築する。放電モデルと同様に、繋がる状態の特性や特徴を捉えたモデルの構築が重要と推測され、そのモデルでは必要最小限の適切な状態を取り入れる。

$\text{LiNbO}_3$  系の結晶の特徴として、可視域から赤外域の光を吸収するポーラロンが存在することが知られており、その寿命は、組成や不純物の有無などにも依存するが、マイクロ秒からミリ秒程度である。このポーロンは基底状態と異なる光学的特性を持つ長寿命励起状態であり、一種の準安定状態と考えることができる。

希ガスの放電では、準安定状態を介したペニング電離が重要な役割を示すことが知られている。結晶のレーザーブレイクダウンにおいても、モデルでは上記のポーロンが重要な役割を持つと仮定する。

#### 4. 研究成果

集光強度が数 $\text{MWcm}^{-2}$ 程度の連続レーザーにおける $\text{LiNbO}_3$ 系結晶の破壊原因の候補として、長寿命のポーラロンが関与する光誘起吸収を提案した。

この光誘起吸収は、以下の3つの過程、1) 二光子吸収によって伝導電子やホール生成、2) 伝導電子やホールが捕捉されることによるポーラロンの生成、3) ポーラロンによる一光子吸収から構成される。

$\text{LiNbO}_3$ 系結晶のポーラロンの時間緩和は、stretched-exponential 関数で記述される特徴を持っているが、その原因については完全には明らかにされていない。ここでは、上記の2光子吸収で生成される伝導電子とポーラロンによる吸収過程を、図1に示す簡略化したカイネティックモデルで取り扱った(雑誌論文)。このとき、ポーラロンの緩和は指数型による近似を用いた。

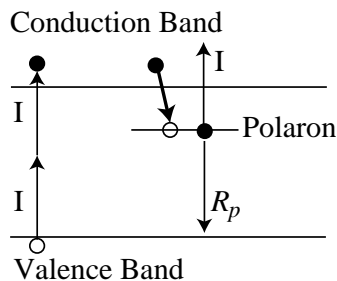


図1. カイネティックモデルの概念図

連続レーザー照射下では、ポーラロンの生成と消滅が釣り合い定常状態になっていると仮定できる。このとき、 $\text{LiNbO}_3$ 結晶中におけるポーラロン密度 $n_p$ は、レーザー強度を $I$ 、その周波数を $\omega$ とすると、

$$n_p \approx \frac{1}{R_p} \frac{\beta I^2}{2\hbar\omega}$$

と近似的に求めることができる。ここで、 $\beta$ は二光子吸収係数、 $R_p$ は緩和係数である。緩和係数に逆比例してポーラロン密度は高くなる。このポーラロンの密度と光吸収断面積を

用いることにより、ポーラロンによる吸収エネルギー密度が評価できる。

ポーラロンによる吸収、線形吸収、および2光子吸収による $\text{LiNbO}_3$ 結晶の温度上昇のレーザー強度依存性を図2に示す。ここで、波長 $0.53\mu\text{m}$ の光に対する線形吸収係数を $0.025\text{cm}^{-1}$ 、二光子吸収係数を $2.5 \times 10^{-10}\text{cmW}^{-1}$ 、ポーラロンの吸収断面積を $10^{-17}\text{cm}^2$ 、緩和係数を $10^6, 10^5, 10^4\text{s}^{-1}$ 、熱伝導係数を $0.046\text{Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$ とし、円柱対称を仮定した加熱領域の半径を $10\mu\text{m}$ 、境界までの距離を $1\text{mm}$ とした。

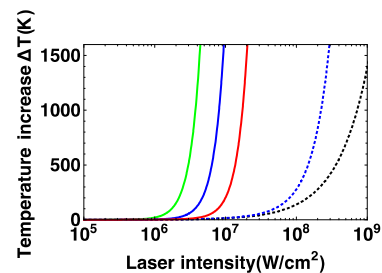


図2 温度上昇のレーザー強度依存性 緑、青、赤の実線は緩和係数が $10^6, 10^5, 10^4\text{s}^{-1}$ の場合のポーラロンによる吸収、点線、破線は線形吸収、二光子吸収パワー密度を表している。

この吸収エネルギー密度はレーザー強度の3乗に比例し、数~十数 $\text{MWcm}^{-2}$ 程度のレーザー強度で融点まで達し、結晶破壊におけるゆらぎの原因となる可能性を示した。

緩和過程の指数型による近似は、吸収エネルギー密度を簡易に評価できる利点はあるが、stretched-exponential 関数で記述される緩和の特徴を記述できない不十分なモデルである。

$\text{LiNbO}_3$ 結晶におけるポーラロンに対しては、詳しいカイネティックモデルが既に提案されている。このモデルに基づき、レート方程式を構築した。緩和速度が異なる3種類のポーラロンが存在することにより、stretched-exponential 関数で記述される緩和をある条件のもとで再現することができた(雑誌論文)。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計5件)

Susumu Kato, Sunao Kurimura, and Norikatsu Mio, Rate-equation model of light-induced heating in LiNbO<sub>3</sub>-type crystals under high-average-power laser irradiation, Optical Material Express 6, 396 (2016), 査読有

DOI:10.1364/OME.6.000396

Akira Sasaki, Susumu Kato, Eiichi Takahashii, Yasuaki Kishimoto, Takashi Fujii, and Seiji Kanazawa, Simulation of discharge in insulating gas from initial partial discharge to growth of a stepped leader using the percolation model, Japanese Journal of Applied Physics 55, 026101 (2016), 査読有

DOI:10.7567/JJAP.55.026101

Susumu Kato, Sunao Kurimura, Hwan Hong Lim, Norikatsu Mio, Induced heating by nonlinear absorption in LiNbO<sub>3</sub>-type crystals under continuous-wave laser irradiation, Optical Materials 40, 10-13 (2015), 査読有

DOI:10.1016/j.optmat.2014.11.029

Akira SASAKI and Susumu KATO, Statistics of Clusters of Ionized Regions in the Simulation of Discharge using a Percolation Model, Plasma and Fusion Research 9, 3401120 (2014), 査読有

DOI: 10.1585/pfr.9.3401120

Akira Sasaki, Susumu Kato, Eiichi Takahashi, Seiji Kanazawa, A Percolation Model of the Streamer Discharges, JPS Conf. Proc. 1, 015029 (2014), 査読有

DOI:10.7566/JSPSC.1.015029

〔学会発表〕(計8件)

加藤進 LiNbO<sub>3</sub>結晶における光励起吸収の緩和に関するカイネティックモデル, 日本物理学会第71回年次大会, 2016年3月21日, 東北学院大学(宮城県・仙台市)

Susumu Kato, Sunao Kurimura, and Norikatsu Mio, Rate-equation model of light-induced heating in LiNbO<sub>3</sub>-type crystals under high-average-power laser irradiation, Nonlinear Optics 2015, 2015年7月29日, 「Kauai(USA)」

佐々木明, 鳥居建男, 加藤進, 高橋栄一, 藤井隆, 金澤誠司, パーコレーションモデルによる放電の時空間構のシミュレーション, プラズマ/放電/パルスパワー合同研究会, 2015年6月6日, 北海道大学(北海道・札幌市)

加藤進, 栗村直, Hwan Hong LIM, 三尾典克, 高平均出力レーザー光の吸収に対するポラロンによるカイネティックモデル, 日本物理学会2014年秋季大会, 2014年9月7日, 中部大学(愛知県・春日井市)

佐々木明, 鳥居建男, 加藤進, 高橋栄一,

岸本泰明, 藤井隆, 金澤誠司, パーコレーションモデルによるSF<sub>6</sub>ガス中の放電の特性の解析, 日本物理学会第69回年次大会, 2014年3月30日, 東海大学(神奈川県・平塚市)

Akira SASAKI and Susumu KATO, Statistics of Clusters of Ionized Regions in the Simulation of Discharge using a Percolation Model, 23rd International Toki Conference (ITC-23) on Large-scale Simulation and Fusion Science, 2013年11月20日, (岐阜県・土岐市)

S. Kato, Catastrophic Breakdown in Nonlinear Optical Crystals under Continuous-wave Laser Irradiation, 4th International Workshop on Mechanisms of Vacuum Arcs (MeVArc 2013), 2013年11月6日, 「Chamonix(France)」

佐々木 明, 鳥居建男, 加藤進, 高橋栄一, SF<sub>6</sub>ガス中の放電の時空間の構造形成のパーコレーションモデルによる解析, 日本物理学会2013年秋季大会, 2013年9月25日, 徳島大学(徳島県・徳島市)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

加藤 進 (KATO, Susumu)

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・主任研究員  
研究者番号: 20356786

### (2) 研究分担者

佐々木 明 (SASAKI, Akira)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門量子ビーム応用研究センター・研究副主幹  
研究者番号: 10215709