



## レーザー用コーティングの歩み

技術コンサルタント  
伊澤孝男 IZAWA, Takao

私がレーザーに関わってから 40 年以上が経つ。

当時はレーザーの話を中心にしても、SF の世界のように思われ、まともに聞いてもらえないか、レーダーと混同されてしまうか、そんな具合であった。それから 40 年が過ぎ、今ではレーザーが使われない分野を見つけるのが難しいくらいに私たちの生活になくてはならないものになっている。そこで、本稿ではレーザーの基幹部品のひとつである多層膜コーティングの歩みについて述べてみたい。

レーザーは 1960 年にメイマンによって発明されたが、この時に用いられたミラーは、銀コートであった。その後、電子ビーム蒸着 (EB) による吸収の少ない誘電体多層膜ミラー ( $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ ) が開発されて、ガスレーザーや固体レーザーに用いられた。

しかし、70 年代に入り固体レーザーの出力が向上してくると、 $\text{TiO}_2$  ではレーザー耐力が不足し、レーザー出力が上げられない状況に陥った。そのため、ローレンスリバモア研究所をはじめとする研究機関や各国のコーティングメーカーが、高耐力コーティングの研究を必死で行うようになった。そして、研究成果は 1976 年に始まった Boulder Damage Symposium で発表され、情報が共有されるようになった。私は 1980 年の初頭から会議に参加したが、とてもフレンドリーで同業メーカーの研究者とも仲良くなれた。最も研究が活発だったのは、1980 年から 2000 年にかけての 20 年間で、それは各種新型レーザーが開発された時期と重なる。80 年代は、短パルスレーザー (1~10 ns) に対する高耐力コートが中心であったが、90 年代になると真空紫外用フッ化物コートの研究をはじめとし、さまざまな波長域やパルス幅に対して多様な研究が行われた。平行して、コマーシャルベースの低損失コートの研究もメーカーを中心に活発に進められた。

短パルスレーザーに対する研究は、レーザー耐力に対して、さまざまな膜物質と成膜条件の最適値を見出すという地味な作業のくり返しであった。組合せは膨大で、まともにやると途方もない時間がかかるので、少ない実験回数でいかに早く最適解を見つけるかがポイントになる。耐力は成膜条件に大きく依存するので、同じ物質でも実験者によって結果が異なる。あるグループが良い結果を出すと、他のグループがそれを追試するのであるが、全ての条件が公表されるわけではないので、同じ結果にはならないことが多いが、執念深くやると、さらに良い結果が得られたりもした。こうした探求が 10 年以上続き、耐力は飛躍的に向上したが、行きついた先は以外とシンプルで、レーザー耐力は高屈折膜のバンドギャップが大きい (屈折率が低い) ものほど高いということである。結局、耐力と光学特性ともに有利な材料はないということで、ある意味、当然の結果かも知れない。

もっとも、この結果は低くり返しの短パルスレーザー (当時はこれが標準) に限ったことであって、現実には、高平均出力パルスレーザー、KW 級 CW レーザー、超短パルスレーザー、波長可変レーザーなど、さまざまな発振形態があり、個々の最適条件の選定は単純ではない。たとえば、短パルスレーザーの損傷原因は電子雪崩なので、EB による  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  が良かったりするが、高平均パワーレーザーでは、熱破壊が原因になるので、吸収が少なくかつ耐熱性の高い材料とプロセスが重要になる。また、

中赤外波長のいくつかの波長では、損傷原因となる OH 基の低減が最重要になったりもする。ここは、経験がものをいうところでもある。

一方、主要なレーザー用コーティングの技術情報をリバモア研がまとめた論文<sup>1</sup>がある。これは、2008 年から 2017 年にかけて、リバモア研が毎年異なるテーマ（例えば 193nm ミラー）で、世界 30 以上のメーカーから自信作を集め、レーザー耐力と膜物質やプロセスとの関係を統計的に整理したものである。それをみると、何の用途にどのような膜物質とプロセスが用いられているかが一目でわかる。例えば、膜物質としては、 $\text{HfO}_2$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 、 $\text{GdF}_3$ 、 $\text{LaF}_3$  など多く使われ、プロセスとしては、EB、IBS（イオンビームスパッタリング）、IAD（イオンアシスト蒸着）の順に多い。同じテーマでも、メーカーにより物質やプロセスが異なるのは、得意とする技術や市場のポジショニングの違いによるものかと思われる。

こうした物性的な条件のほかに、多層膜内中の電界強度分布の最適化やレーザーコンディショニングといった、さまざまな試みも行われた。レーザーコンディショニングは、リバモア研が最初に行った手法で、マクロ的損傷の引き金となる膜欠陥をパルスレーザーで除去するというものである。やり方としては、実際に使用するレーザーを損傷閾値の半分くらいのパワーから、ゆっくり上げていくと、マクロ的損傷に至る少し手前で、欠陥のみが吹き飛ばされ、損傷閾値が元の 2~3 倍に達するのである。ただし、効果が得られる物質や条件に限られるため、応用は一部にとどまっている。

最後に低損失コートに関しては、一般に光損失が、0.1%以下（反射、透過でいえば、99.9%以上）のものを言い、0.01%以下は超低損失と表現されることも多い。性能面だけに言及すれば、アモルファスで散乱が極めて少ない IBS 膜が圧倒的に有利で（損失 0.01–0.001%）、古くからレーザージャイロミラーなどの特殊な分野で用いられてきた。しかし、成膜レートや成膜範囲などの関係で、当時は生産コストが非常に高く、EB や IAD 膜の損失（主に散乱）を低減する方向で開発が進んだ。結果的に、IBS には及ばないもの、損失は 0.1%以下になり、LD 励起波長変換レーザーなどに広く用いられた。

しかし、2000 年以降、光通信やバイオ用フィルターの市場拡大に対応して、IBS の高効率化が急速に進み、近年は一般レーザーにも積極的に用いられようになった。たとえば、広帯域波長可変レーザー、高フィネス波長変換レーザー、フェムト秒群速度補正ミラー、外部キャビティー型 LD の超低反射端面 AR、吸湿性非線形結晶 AR など、IBS の応用範囲はますます広がっている。

1. Christopher J. Stolz, Raluca A. Negres, “Ten-year summary of the Boulder Damage Symposium annual thin film laser damage competition,” Opt. Eng. 57(12), 121910 (2018)