

超短パルスレーザーを用いた固体 - プラズマ遷移における光学定数の研究

電子工学科 米田研究室 守上英寿

1. はじめに

通常、物質の状態遷移は、固体から始まり固体密度を膨張させながら行われ、液体、気体、そしてイオン化を経てプラズマへと変化していく。この状態遷移は昔からよく知られていた事実である。また、図1に電子密度と電子温度による物質の状態の様子を示した。それぞれの状態における輸送モデルは確立され、固体物理、プラズマ物理などがその代表的な例である。この様にそれぞれの状態における輸送モデルはあるがそれらを結びつける決定的なデータはなく、固体から変化していても途中で膨張を受けたものなどのデータしか今までは存在していなかった。そこで、本研究では物質を固体の状態から、その密度を変えずにプラズマの状態まで変化させることを考え、超短パルスレーザーを物質に照射することで目的としている状態遷移を実現することに成功した。現象自体が非常に短い時間で終わってしまうために、測定には光を用いなければならない。そのため測定に用いた実験装置は独自に開発したエリプソメトリックなポンプ・プローブ計測法をとっている。

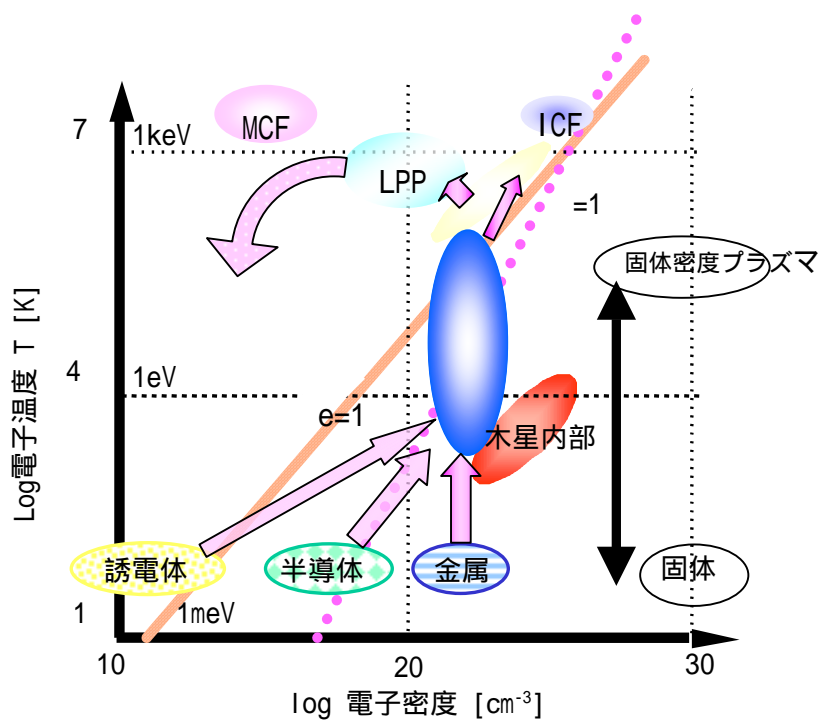


図1 物質の様々な状態の分類

2. 実験システム

物質を加熱する際に密度を一定に保ちながら温度を上昇させ、固体からプラズマへと状態を遷移させる必要から、超短パルスレーザーを用いなければならない。この一連の状態遷移はおよそ300fsでの現象であり、計測には光を用いる必要があった。また、精度のよい測定データを取るために、測定試料の表面から反射された光の偏光状態の変化について、p偏光、s偏光成分の強度比と反射の際の位相変化が得られ、その2つの値の比率を測定するというエリプソメトリーを用いた。これらを考慮して本研究ではエリプソメトリックなポンプ・プローブ計測法を開発した。

この測定には、ポンプ・プローブ光としてモードロックチタンサファイアレーザーの基本波($\lambda = 745\text{nm}$, $\tau = 120\text{fs}$), 2, 3 倍波を用いて計測をする。ここで使用されるポンプ光は、必要な強度を得るために KrF レーザー増幅システムにより増幅されるが、試料上では $10\mu\text{m}$ に集光するためには増幅系において、過飽和吸収体やスペイシャルフィルターを置き、きれいな空間モードの光を作り出せるようにされている。実際の測定は、真空チャンバー内に設置された試料表面でおよそ 60° の入射角を持つ 45 度に直線偏光された時間遅れが可能なプローブ光($\lambda = 745\text{nm}$)と直入射されたポンプ光($\lambda = 248\text{nm}$)を $5\mu\text{m}$ の精度でオーバーラップさせる。その時におけるプローブ光のパルス列の変化を観測し、反射されたプローブ光の偏光成分(s 偏光、p 偏光、右回り円偏光、左回り円偏光)の強度を真空チャンバー外部に設置された複数のフォトディテクターで受光し、その後ボックスカー積分器を通し、最終的にはコンピュータの画面上に各偏光成分の強度の変化がモニターされるようになっていいる。その様子を図 2 に示した。次に測定で得られた各偏光成分の強度から偏光度を求め、フレネルの公式、スネルの公式を用いることで人為的なモデルを用いることなく、照射物質の複素屈折率 $n+ik$ さらに、その定義である複素誘電率 $\epsilon_1+i\epsilon_2$ を求められるようになっていいる。また、測定システムからの誤差は複素屈折率の n に対しては 15% 、 k に対しては 1% となっており、ほどほど精度で測定が行える実験システムになっていいる。また、測定に使用した試料はアルミニウム (Al)、金 (Au)、光学的に黒い金 (Gold Black) であるが、その物質表面などにおける酸化膜などの影響の少ない Au での測定を主に行った。

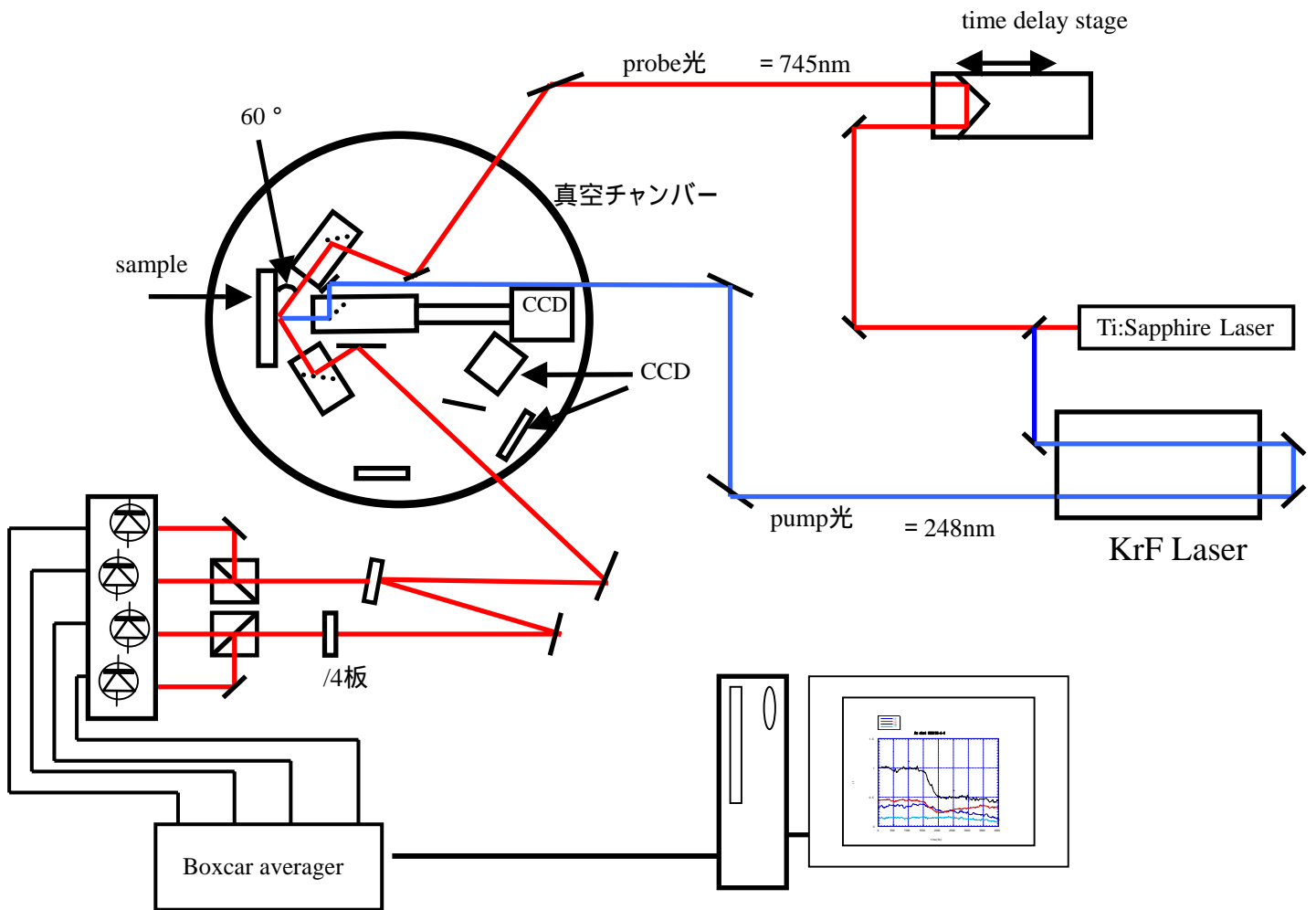


図 2 実験装置

3. 結果・考察

測定された各偏光成分の強度をもとに光学定数である複素屈折率・複素誘電率の変化の一例として図 3.1 と図 3.2 に示した。

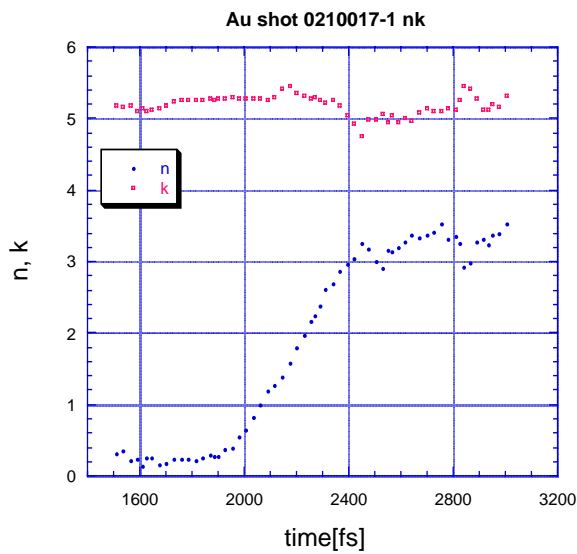


図 3.1 Au の複素屈折率の変化

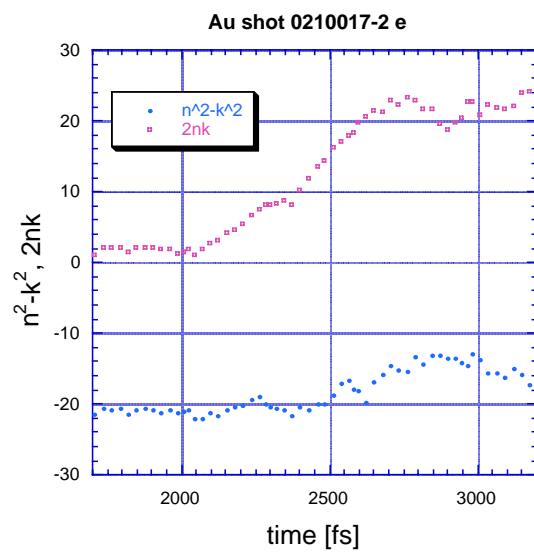


図 3.2 Au の複素誘電率の変化

これらの測定結果より、Au の常温状態の固体からプラズマまでの光学定数の変化にかかる時間はおよそ 1ps であるということがわかった。また、その誘電応答からでは $2nk$ (複素誘電率の虚数部) の変化に注目すると変化の途中で一度停留しているという測定データが多々得られこの点は Au が沸点を迎えている点であると考えられる。このようにして得られたデータを一つの図の上にとまとめると図 3.3 の軌跡を描くことがわかった。

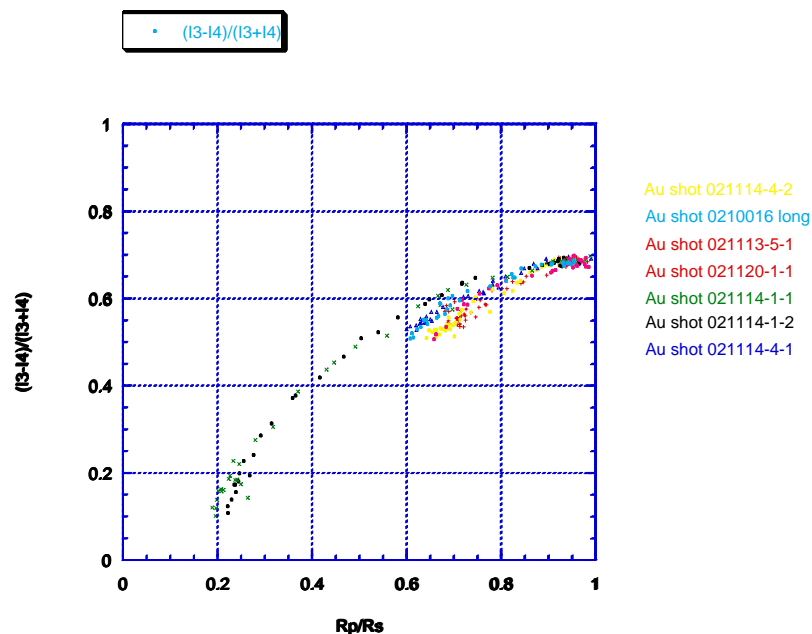


図 3.3 Au の偏光パラメータ比の変化

図 3.3 を見ると、どの測定データも同じ軌跡上の上のっていることがわかった。その中でも大きな変化を見せたものと、小さな変化を見せたものがあるが、変化の大きいものに関して注目する。この大きな変化がおよそ 1ps で起こったということは、原子の熱運動速度からでは考えにくく、この変化は、おそらく金属表面に存在していた原子がイオン化し、その途中で再結合するという

プロセスが考えられる。その結果今回得られたものは、金属から出てくる中性ガスによるものだと考えられる。一方、図 3.3 に対して物質の自由電子の振る舞いを記述するドルーデモデルから得られる軌跡を描いたものが図 3.4 である。これらの図を比較すると初期状態においては精度よくドルーデモデルによって再現されるが、その後半においてはドルーデモデルでは記述できないものとなっていることがわかった。これらのことを説明するためには、金属表面における断熱膨張などの影響を考慮に入れたモデルが必要になることが予想される。

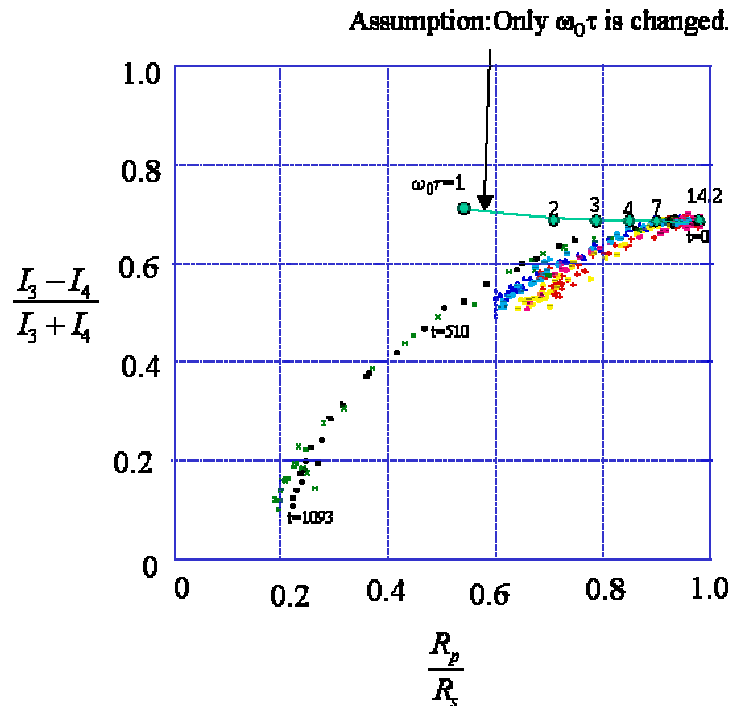


図 3.4 ドルーデモデルとの比較

4 . 結論

今回測定できたことをまとめると次のようになる。

- ・超短パルスレーザーを用いることで極限状態における複素屈折率、複素誘電率を測定することが出来た。
 - ・Au の固体 固体密度プラズマ状態での複素屈折率及び複素誘電率を求めることが出来た。
 - ・複素屈折率の変化を見ることで、沸点がわかるなどの物質の状態を見積もることが出来た。
- 以上のことより、開発された実験システムは物質の固体 プラズマ遷移間における光学的な特徴を捉えることが出来る優れた実験装置であるといえる。

今後の課題

- ・実験の測定精度を上げる。
- ・より安定したデータを取れるようにする。

測定から得られた光学定数の誤差は n については 15% のっているなのでこの誤差を小さくする。また、測定する物質を変えたときに、測定データには多少のばらつきが見られこの誤差が実験装置における光学系からの誤差か、測定試料表面における酸化膜からの影響なのかをはっきりさせる必要があり、再度光学系、観測系を見直す必要がある。