

# 超短パルスレーザー照射金属の光学定数測定の研究

電子工学専攻 米田研究室 太田 悟

## 1. はじめに

電気伝導率 ( ) や誘電率 ( )、透磁率 (  $\mu$  ) は Maxwell 方程式をみても分かるように電磁波相互作用を表す物質の性質を示す物理量である。特に一般には光の周波数 領域では  $\mu=1$  と考えられるものが多いので、よく知られる複素光学屈折率 (  $n - ik$  ) と は簡単な式で結び付けられ、その分散に関するいくつかの理論が提唱されている。例えば、Drude モデルでは古典的な金属電子理論によって以下の式のように記述されている。

$$\hat{\epsilon} \equiv \hat{n}^2 = 1 - \frac{4\pi Ne^2}{m} \frac{1}{\omega(\omega - i\beta)} \quad (1)$$

$$\sigma = \frac{Ne^2}{m(\beta - i\omega)} \quad (2)$$

また、金属の抵抗率の温度変化に関しては (  $=1/$  ) は Bloch-Grüneisen の法則などがあり、多くの金属で低温で温度(T)の 1 乗、高温で T の 5 乗に比例する。一方、もっと高温状態になると、物質はイオン化してプラズマとなり、そこでは Spitzer 理論などが用いられ、T の 3/2 乗に反比例する理論が使われている。当然、物質の状態は温度上昇にともない金属からプラズマへと連続的に遷移していくが、両者の抵抗率などを決める電子輸送理論は統一的な考えはされていない。

このような背景の中で、低温域から高温まで記述可能な新しい電子輸送モデル構築に向け、特に上述の状態遷移領域をはさんでの の高精度な計測、そのデータによる理論のテストなどが試みられるようになってきた。図 1 は現状にある理論と実測された抵抗率をプロットした例であるが、それらは大きくずれていることが分かる。

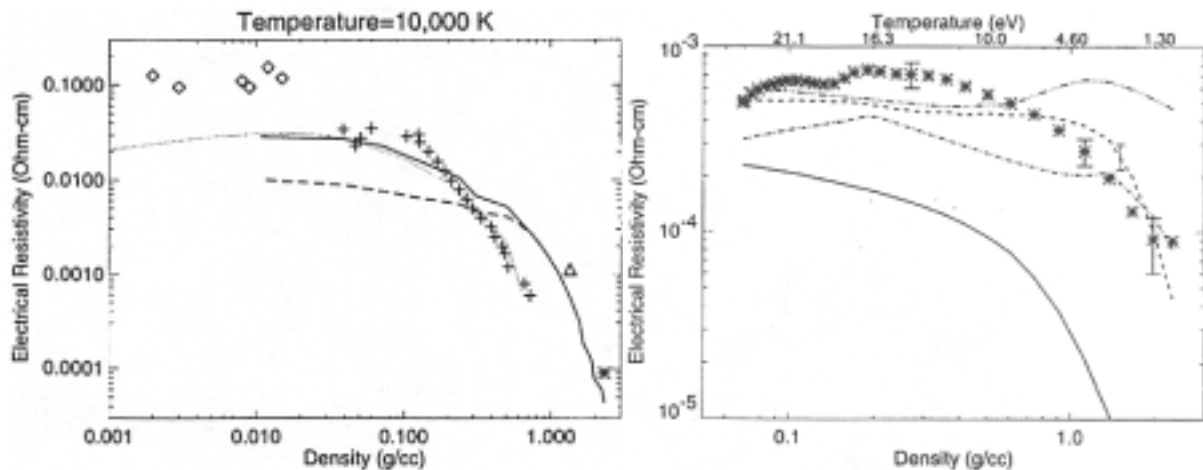


図 1 抵抗率～密度グラフ

また、例えば、金属の固体状態にある物質をその融点、沸点を越えて温度上昇させれば、物質は膨張し、低密度時のデータのみがとられ、またこの膨張により内部と表面で密度差や温度差ができることで、測定精度を低下させてしまうため、得られるデータ領域が限られてしまう難点があった。

そこで、本研究ではフェムト秒超短パルスレーザーを用いたポンプ・プローブ計測により状態遷移領域における光学定数の変化を測定することを行った。超短パルスレーザーの利用により、固体の密度を維持したまま高温高密度プラズマへと状態を変化させることが可能であり、幅広いパラメータ領域でを求めることを可能にするためである。図2では密度-温度空間における常温固体金属からの加熱経路を示している。金属では初期に自由電子が存在するため、超短パルスレーザーを用いれば、均一密度の物質を加熱することが可能である。

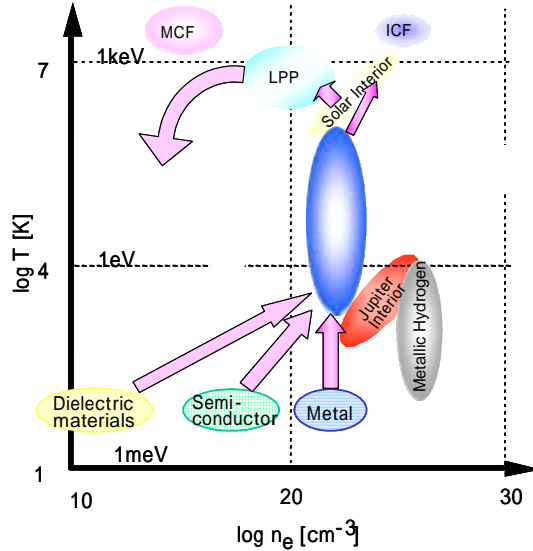


図2 状態遷移における温度上昇の経路

## 2. 実験システム

本研究で使用した測定システムの概要を図3に示す。

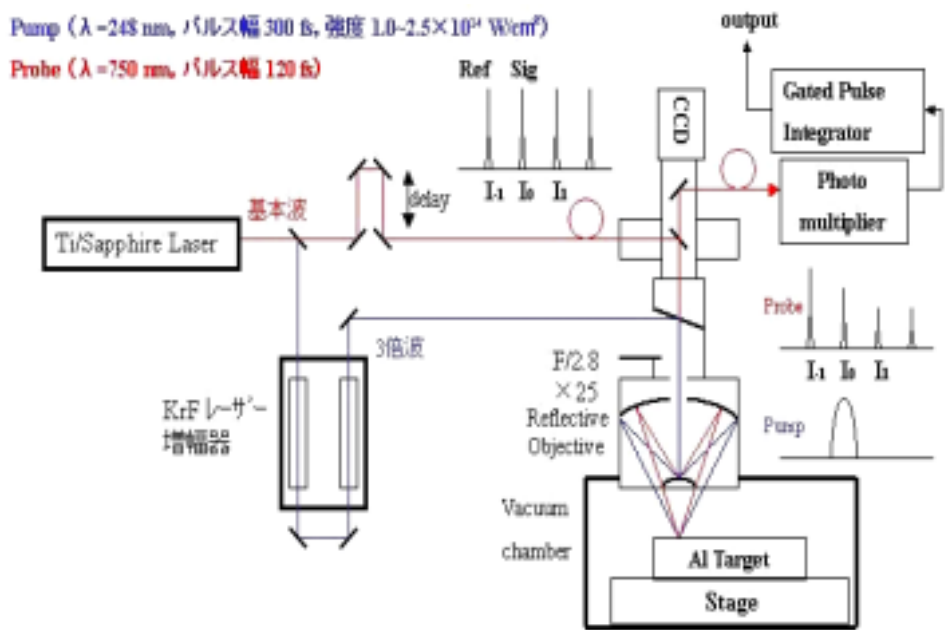


図3 実験システムの概要

実験はフェムト秒超短パルスレーザーを用いたポンプ・プローブ計測による光学定数（複素屈折率  $n-ik$ ）測定を行う。チタンサファイアレーザーの3倍波を KrF レーザーにより増幅し（ $\lambda = 248\text{nm}$ 、FWHM = 300fs） $10^{14}\text{W/cm}^2$  の強度で照射することでポンプ 光とする。プローブは基本波（ $\lambda = 750\text{nm}$ 、FWHM = 120fs）を用い、両者の時間関係はプローブ側の光学遅延光路で 5fs の分解能で行う。ポンプ光による電子密度の増加はデータの理解を複雑にするので、今回は初期状態で十分に高い電子密度を有するアルミニウム薄膜を試料として用いる。実験では反射率を計測し、物質の吸収の様子を観測できるシステムを構築した。この研究におけるもっとも重要な部分は、得られた測定データの精度にある。そのため、SN 比の向上として次のようなものを考慮した。

- ・ボックスカー積分器によってパルス毎の振幅のばらつきを低減
- ・プローブにパルス列を使用し、ポンプ光による変化の直前状態を参照して変化を検出
- ・プローブビーム集光径を小さくし、ポンプ光加熱の空間的な均一性を保持

### 3 . 実験結果

実験によって得られた Al の反射率の典型的な変化を図 4.1 に示す。グラフからはポンプ光照射によって反射率が減少する様子がわかる。また前述した S/N 対策の結果、使用したシステムでは反射率の決定精度は  $\pm 2.5\%$  であることも明らかになった。

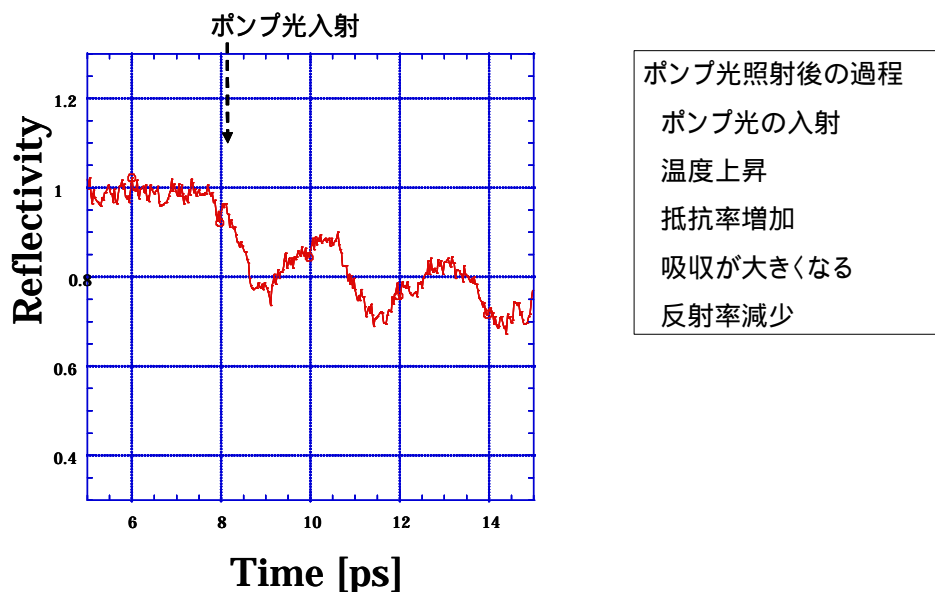


図 4.1 Al の反射率変化

また、ポンプ光の強度を変化させたときの反射率変化の強度依存性は図 4.2 のようになることが測定により明らかになった。

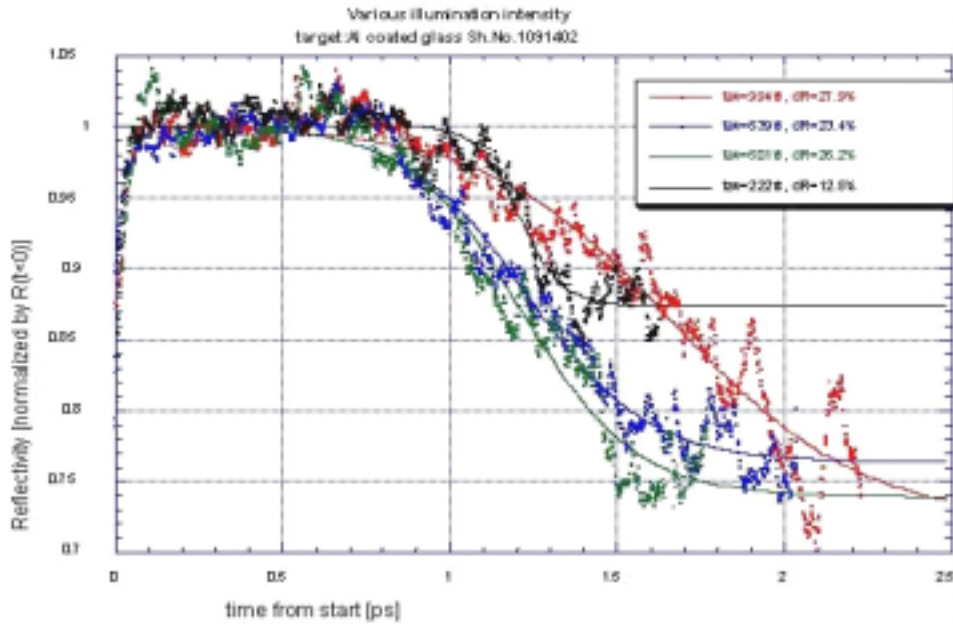


図 4.2 反射率変化の強度依存性

## 4 . 考察

### 4.1 レーザー加熱後の現象

ポンプ光によって加熱される物質の変化と測定に用いるプローブ光の関係は図 5 のようになると推測される。加熱された部分から熱が伝搬していく。このうち、反射率変化は数 100fs の時間で起こる現象であるので、試料の外へ拡散するプラズマがプローブ光へ与える影響をここでは無視する（波長程度に広がるまでは数 ps の時間が必要）。一方、物質内部へは高温化された部分の情報が伝搬し、この波によって温められた Al の厚みが時々刻々と大きくなり、層状媒質のようになっていると考えられる。熱が内部へ伝わる速度は音速程度と見積もられるため、反射率変化の起きる時間内で形成される高温層の厚さはプローブ光の波長にも満たないが、電磁波の反射は表皮効果厚み内のパラメータに依存するため、この短時間内にもこの熱波の進行の影響が表れることが考えられる。

得られた実験結果では、光の強度を増加させていくと反射率変化大きさだけでなく、その時間が伸びるという現象が観測された。パルス幅がほぼ一定であるのに対して変化時間が伸びることは通常の均一モデル（ポンプ光照射による温度上昇にともなう、吸収率や抵抗率が非線形に変化することも含め、均一であるモデルは検討の結果否定された。）では起こりえないため、このデータの説明も可能な反射率モデルを提案した。

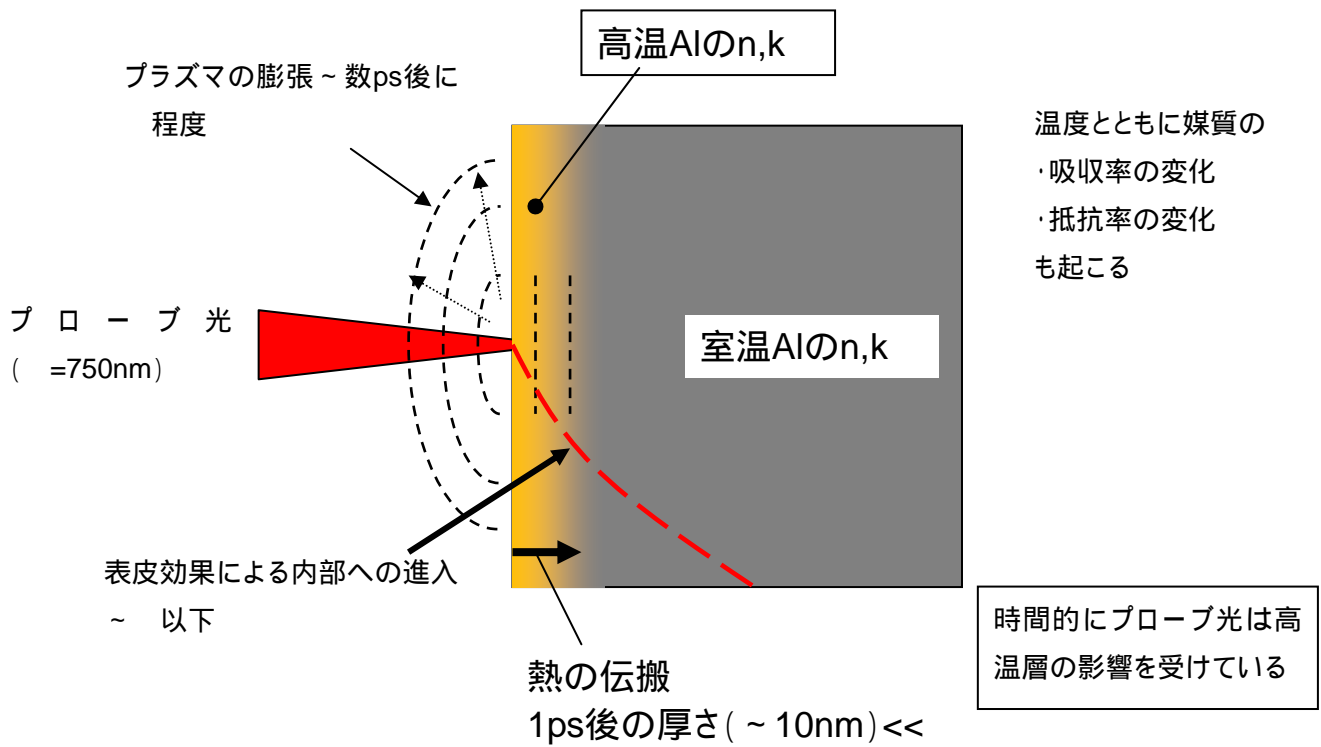


図5 ポンプ照射後の現象

#### 4.1 2層構造モデル

提案したモデルは高温化された部分と、低温のまま残っている金属の2層構造を仮定している。この場合の金属膜の反射率は

$$r = \rho e^{i\delta_r} = \frac{\rho_{12} e^{i\phi_{12}} + \rho_{23} e^{-2\nu_2\eta} e^{i(\phi_{23} + 2u_2\eta)}}{1 + \rho_{12}\rho_{23} e^{-2\nu_2\eta} e^{i(\phi_{12} + \phi_{23} + 2u_2\eta)}} \quad (3)$$

によって計算される。温度上昇による高温媒質の  $n$ 、 $k$  の変化は未知であるが、一般的には金属では初期の電子密度が高く、振動された電子の減衰パラメータのみが変化すると考えられるので、Drudeの理論(1)、(2)式)に表われた減衰率( )のみを変化させ、パラメータ依存性を調べた。図7は の値によって(3)式の反射率が変化する様子を示している。この結果、加熱するパルスはパルス幅中で終了しているが、その後の熱波の内部への進展により外部からみた反射率が増加して行くことが示され、観測された事実を定性的に説明することができた。

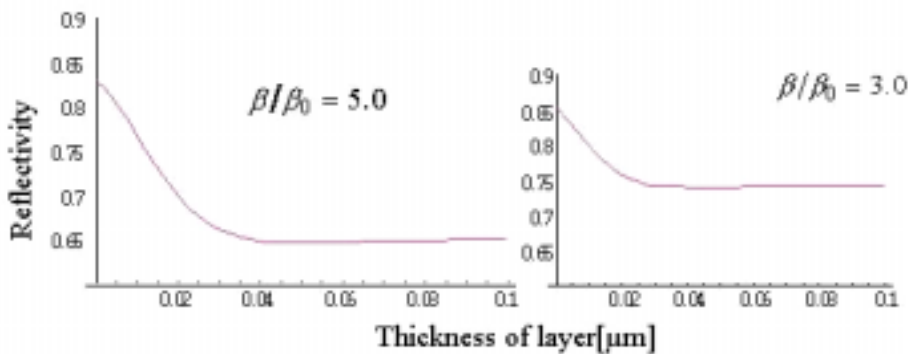


図7 モデルによる反射率の計算

2層構造での反射率は高温層の厚みに応じて図7のような変化を示すことが示されたが、プローブ光がこの層の影響を受けるのかどうかを見積もらなければならない。

ポンプ光に照射された金属表面の熱が内部に伝搬する速度は、音速(固体中)程度と見積もられる。音速は一般に温度の1/2乗に比例する関数であり $\sqrt{ZkT/Am}$ で考えられる。今 $kT \sim 1\text{eV}$ として $Z/A \sim 1/2$ とすると $7 \times 10^3 \text{ m/s}$ 、 $1\text{ps}$ で $7\text{nm}$ となる。この様に金属内部への熱伝導波はちょうどパルス幅程度、もしくはさらに早い時間で表皮効果程度に侵入するため、高温層の影響はその表面の温度変化だけでなく、内部への熱伝導波の進展状況も表面から見た反射率に影響してくることがわかった。よってプローブ光の感じる反射率は

$\text{観測される反射率変化} = \underbrace{\text{ポンプ照射による反射率の減少}}_{\text{パルス幅分の変化}} + \underbrace{\text{高温層の生成と拡大による反射率の変化}}_{\text{パルス通過後の変化}}$
--

である。この複合的な変化を考慮することで、実験結果の特異性を完全に説明できることが示された。

## 5. 結論

本研究は固体～プラズマの状態遷移領域での複素屈折率を測定する目的で反射率測定システムを構築し、超短パルス照射時の金属表面の反射率の時間変化を観測した。その結果次のことが明らかになった。

1. 照射強度の増加に伴い $10^{14}\text{W/cm}^2$ 近傍では反射率の総変化量は一様に増加した
2. 反射率の変化に要する時間は照射強度の増加に伴い増加傾向を示した
3. 2層モデルを提案しこのことの説明が可能であることを示した
4. モデル解析により表面から見た場合の反射率変化にはその表面温度だけでなく、内部への熱波の伝搬が照射条件(特に パルス幅×音速～表皮効果厚 の場合)では重要になることを示した

特に高温媒質の生成は計測に大きな影響を与えるため、本研究のようなポンプ・プローブ計測を行なう際には、あらかじめ考慮に入れておく必要がある。超短パルスを用いた他の測定実験では、このような媒質構造の変化に言及することがないので、本研究の大きな成果といえる。

## 参考文献

- ・ John F. Benage, Jr. PHYSICS OF PLASMAS vol.83, num.7, 2040(2000)
- ・ B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanec, G. Simon Applied Physics A, Materials Science & Processing
- ・ M. Born and E. Wolf 『Principle of Optics』 Chapter
- ・ Richard M. More 『Quantum Conduction Phenomena in Hot Dense Plasmas』
- ・ E. D. Palik 『Handbook of Optical Constants of Solid』 Academic Press, Orlando, FL, 1985