

超短パルスレーザーを用いた極端条件下での導電率特性の研究

電子工学専攻 米田研究室 守上英寿

1. はじめに

物質の導電率()は、その定義式 $\sigma = nq\mu$ (n : キャリア密度、 q : キャリアの電荷量、 μ : キャリアの移動度)において形状依存因子を含まず、物質固有の値であるために他の物質との比較が可能である。また、透磁率を除けば、電磁波の伝播方程式であるマクスウェル方程式に含まれる物質を表す唯一のパラメータである。そのために古くから数多くの計測が行われてきた。例えば、金属の導電率の温度特性は固体物理学では、低温で温度(T)の1乗に高温では温度の5乗に反比例するグリューナイズンの公式で記述される。一方、さらに高温のプラズマ物理学では T の $3/2$ 乗に比例するスピッツァーの抵抗理論などが広く用いられる。

物質の状態は、温度上昇にともない固体からプラズマへと連続的に変化するが、これらを統一して記述できる電子輸送モデルは確立されてこなかった。これは、これらの中間領域に存在する温度: $0.1\text{eV} \sim 10\text{eV}$ (数千 K ~ 数十万 K)、密度: $0.01\text{g/cc} \sim 10\text{g/cc}$ という warm dense matter と呼ばれる領域では GPa オーダーに達する高圧状態となってしまうためにその状態を維持することが難しく、計測結果と理論モデルが広い範囲において一致してこなかったことによる。図1は、これまでに提唱されてきた理論モデル(実線)と実測で得られた $T=10000\text{K}$ におけるアルミニウムの抵抗率(プロット)を密度対抵抗率座標系でプロットした例であるが、広い範囲で一致するモデルは存在していないことがわかる。

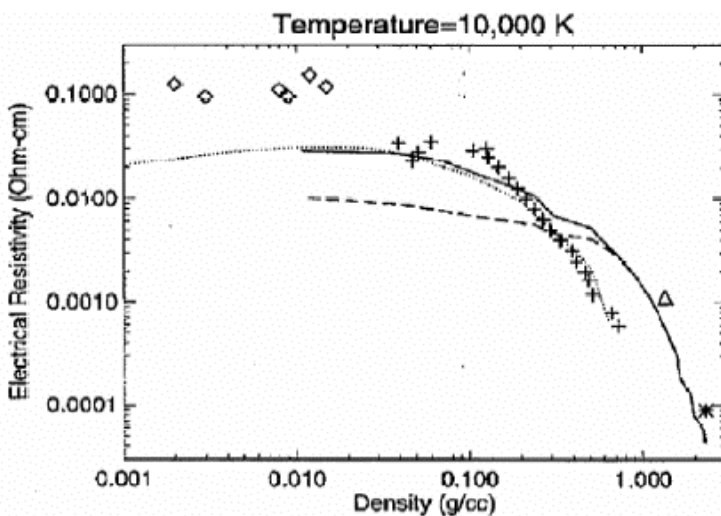


図1: 抵抗率の理論モデルと測定値の比較

そこで本研究では、warm dense matter 領域における物性を明らかにすることを目的とし、最終的には、固体~プラズマ間を統一して記述できる電子輸送モデルの構築を目的としている。実験では、超短パルスレーザーを用いたエリプソメトリックなポンプ・プローブ観測システムを構築し、固体~固体密度プラズマ遷移における光学定数: $n+ik$ の変化を計測することで人為的なモデルなしに複素誘電率 $\epsilon = \epsilon_r + i\epsilon_i$

ϵ_i を算出し、導電率の観測を行った。超短パルスレーザーを加熱源と

して用いることで固体の密度を維持したまま高温化させ、幅広い範囲での導電率の計測を可能にした。

図2は、超短パルスレーザー加熱による物質の状態変化を密度対温度特性上に描いたものである。超短パルスレーザー加熱により図2上の密度が一定である状態遷移を起こすことが期待される。また、加熱時間は加熱パルスのパルス幅程度の fs ~ ps の高速な現象であるために計測法にはポンプ・プローブ法をとった。実際にこの様な加熱を行った物質は、固体密度を保った熱い金属の領域・断熱膨張の領域・冷却領域の3つの領域に別れた加熱・冷却過程を経てその状態を変化させていく。計測では、この断熱膨張成分などの影響が混在した物質からのプローブ光の反射率の積分情報の変化を計測するために得られた結果を解析し、評価する必要がある。

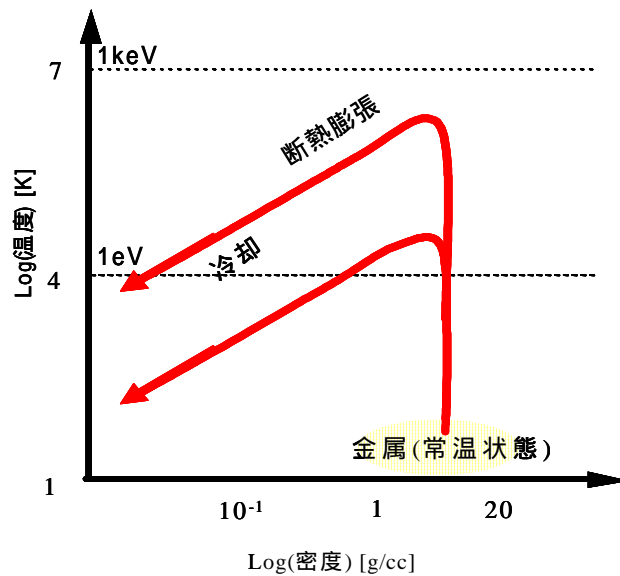


図 2：物質の相図上での状態遷移

ここでは、物質の誘電率（ ）を式（ 1 ）に示される真空の誘電率（第 1 項）・原子の誘電率（第 2 項）・電子の誘電率（第 3 項）の 3 つの成分のバランスで評価している。

$$\varepsilon = 1 + [\varepsilon_r + i\varepsilon_i]^{atom} + \left[-\frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{(\omega\tau)^2}{1 + (\omega\tau)^2} + i \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \right]^{electron} \dots (1)$$

（ ω_p : プラズマ周波数、 ω : プローブ光の周波数、 τ : 平均衝突時間）

照射対象とした物質は、金(Au)、銅(Cu)、アルミニウム(Al)、ステンレス(SS304)、タングステン(W)、スズ(Sn)、鉄(Fe)、モリブデン(Mo)、ガラス(SiO₂)、Gold Black の計 10 種類の物質を用いた。それぞれ良導体や磁性体、誘電体といった性質を持つものの代表である物質について計測を行い、数多くの物質について計測を行うことで観測システムや構築したモデルの確認を行うことができるようになっていく。また、常温時における物質の光学定数は、Palik の Optical handbook から決定され、Au については、使用した周波数に対してその反射率から得られる光学定数が精度よく再現された。他の物質についてはターゲット上の一部分に Au のチップを貼り付け、光学系で乗ってくる誤差を考慮し常温時における光学定数として取り扱った。

2 . 観測システム

図 3 に実際に用いた観測システムの概図を示した。この観測システムでは、モードロックチタンサファイヤレーザーの基本波（ $\lambda = 745\text{nm}$, パルス幅=120fs, 照射強度= $\sim 10^{10}\text{W/cm}^2$ ）をプローブ光に 3 倍波（ $\lambda = 248\text{nm}$, パルス幅=300fs, 照射強度= $10^{12} \sim 10^{14}\text{W/cm}^2$ ）をポンプ光に利用している。真空チャンパー内に設置されたターゲット表面において直入射されたポンプ光と 45° に直線偏光された入射角が 64° のプローブ光をポンプ光の照射領域内で $5\mu\text{m}$ の精度でオーバーラップさせ、反射されたプローブ光の p 偏光(R_p)、s 偏光(R_s)、右回り円偏光(I₃)、左回り円偏光(I₄)の 4 つの反射率強度の変化をチャンパー外部に設置された 4 つの独立な検出器で随時検出し、最終的にはボックスカー積分器、16bitA/D 変換を通してデータを取り込んでいる。このポンプ・プローブ計測では、プローブ光は 13.4fs/step の遅延時間が持てる光学系が組み込まれているのでポンプ光による固体～固体密度プラズマ遷移の現象を fs オーダーで分解できるようになっている。また、計測対象の積分情報を評価するには得られる情報を多くする必要からプローブ光はフォトニッククリスタルファイバーを通すことで白色光として用い、散乱光の計測も行えるようになっている。

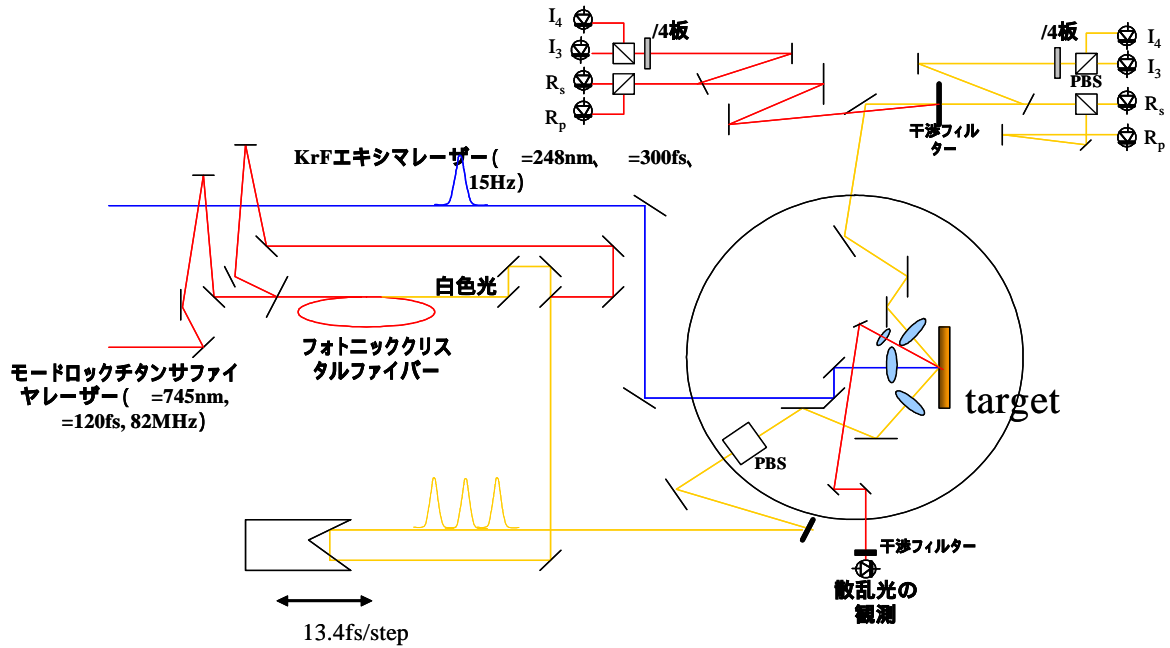


図3：実験に用いた観測システムの概図

3. 実験結果

計測は数多くの物質について行われたが、中でも一番多くの測定が行われ、解析の進んでいる Au についての結果を示す。観測結果は、 $X=R_p/R_s$ 、 $Y=(I_3-I_4)/(I_3+I_4)=2|R_p|/|R_s|\sin(\theta)/(|R_p|^2+|R_s|^2)$ の二つのパラメータにまとめられる。X成分は、ターゲットに垂直な方向の変化により大きく変化し膨張成分の大きさを表し、Y成分は位相差の情報が入っているパラメータになっている。X,Yの典型的な計測結果を図4に、この結果から得られる光学定数の変化を図5に示した。

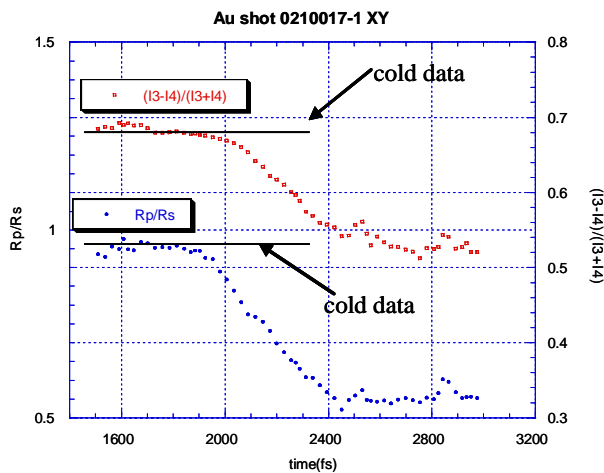


図4：AuのX Yの時間発展波形

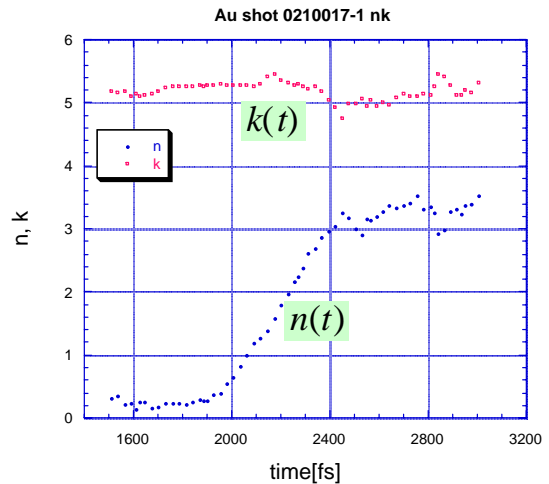


図5：Auの光学定数の変化

図4において常温状態は直線的に保たれており、ポンプ光による変化が反射率の減少になって現れている。この観測システムでは、比で結果を取り扱うのでこのようなきれいな光学定数測定が得られる。また、固体表面からの膨張成分の影響が無視できる時間を決定することもこの観測システムからは、可能である。X、Yから得られたn、kに対してフレネルの式を適用し反射率を再現し実測で得られた反射率の変化と比較する方法である。この比較によって再現された反射率と実測で得られた反射率が一致する時間では、反射がひとつの界面で反射しているので固体密度の熱い金属からの応答を観測してお

り、それ以降の離れてくる時間では断熱膨張などの影響を受けている時間であると判断できる。図6、7ではそれぞれ p 偏光の反射率での比較と円偏光の一つの成分の反射率の比較を行った結果である。この時の照射強度では、膨張成分の影響が無視しえなくなる時間 t_s-t_0 は、ポンプ光の加熱開始時間からおよそ 400fs であることがわかった。これらの時間は、反射率成分が異なった図6、7で一致していることが分かった。

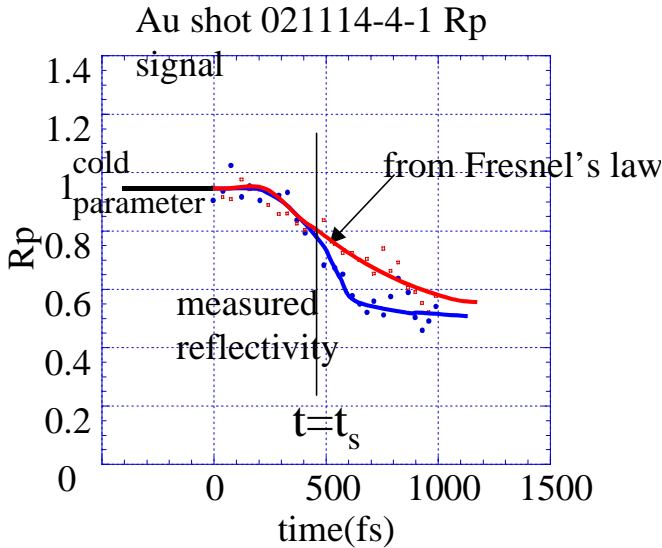


図6：Rpでの反射率波形の比較

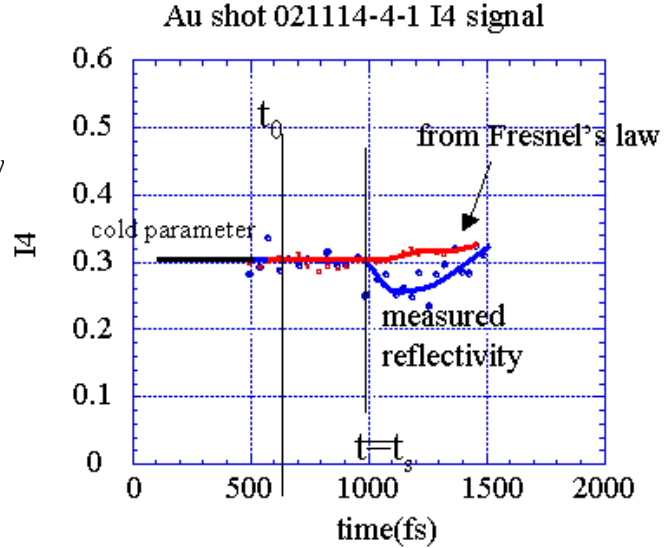


図7：I4での反射率波形の比較

また、X成分とY成分を2次元座標上にとり、この座標系で照射強度に違い（照射強度= $10^{12} \sim 10^{14} \text{W/cm}^2$ ）を持たせたときの観測結果をまとめたものを図8に示した。常温状態では $t=0$ の点で $(X,Y)=(0.98, 0.65)$ である。固体～固体密度プラズマ遷移にかかった時間は、どの照射強度でもおよそ 500fs～1ps 程度の現象で、照射強度が弱い場合では $X=0.98 \sim 0.6$ まで変化し、照射強度を上げると $X=0.98 \sim 0.2$ 、さらに上げると $X=0.8$ 付近で屈曲するデータが得られ、照射強度が異なった場合でも初期状態から数 fs の間では、唯一の軌跡上を異なった時間で動くことがわかった。これらの結果を式(1)において第3項の電子による寄与のみを考慮して平均衝突時間の変化のみで再現すると、図8上の緑の

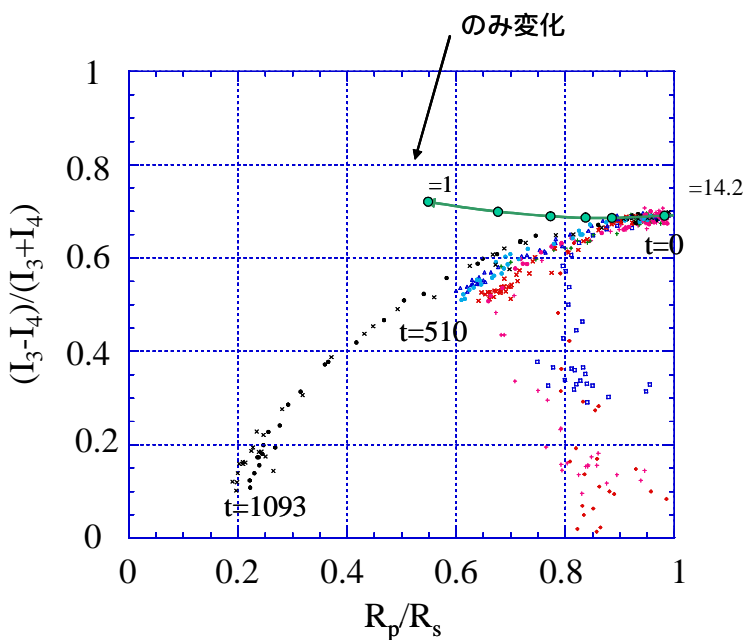


図8：AuのXYトラジェクトリーの照射強度依存

プロットの様に変化し、 $X=0.98 \sim 0.9$ までの初期状態においては再現性が得られるが、それ以降では再現されない結果となった。これを説明するには、観測された膨張成分が誘電体のようなものに変化したことが考えられ、原子分極率()の変化を求めると、常温時では $=(-29.4+0.14i) \times 10^{-24} \text{cm}^3$ であるが、1ps後の複素誘電率の値から求められるその値は、 $=(-1.75+0.2i) \times 10^{-24} \text{cm}^3$ となりこの計測によってはじめて求められた。また、この値から算出される固体～固体密度プラズマ遷移における導電率の変化は、 $=2 \times 10^3 \text{S/m}$ から $=3.5 \text{S/m}$ へと大きく減少していることが分かった。

実際に Saha の方程式から算出されたイオンバランスの結果は図 9 のようになる。ここでは、プラズマの密度が 0.1g/cm^3 の時のその構成する物質のバランス変化を温度対密度の座標上で示している。どの温度領域でも中性の Au が支配的に存在し、高温状態では、 Au^+ 、 e がドミナントであるが温度が減少するにつれて Au^+ 、 Au が共存する状態が存在し、電子 (n_e) の支配率が下がっていく。つまり n_e が中性の Au に捕獲され電子の局在化を引き起こし、その導電率を減少させていることを示している。

この導電率の急激な低下現象を引き起こす結果は、周波数依存性にも現れており、図 10、11 のそれぞれプローブ波長 $\lambda = 780\text{nm}$ での計測結果と $\lambda = 850\text{nm}$ での計測結果と電子による寄与を考えた場合のその再現を比較したものを示した。

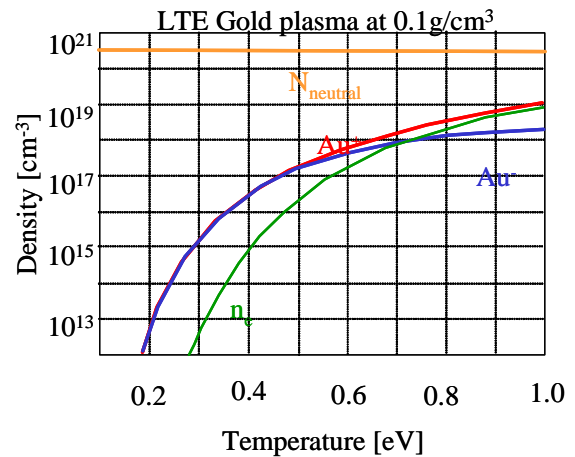


図 9 : Saha 方程式からの構成要素の密度変化

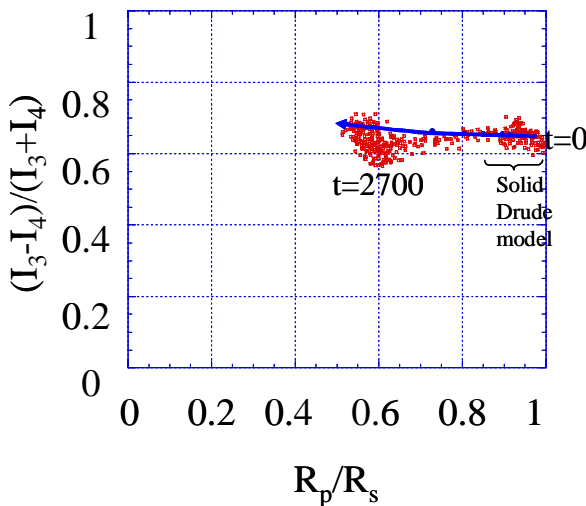


図 10 : $\lambda = 780\text{nm}$ での X Y の軌跡

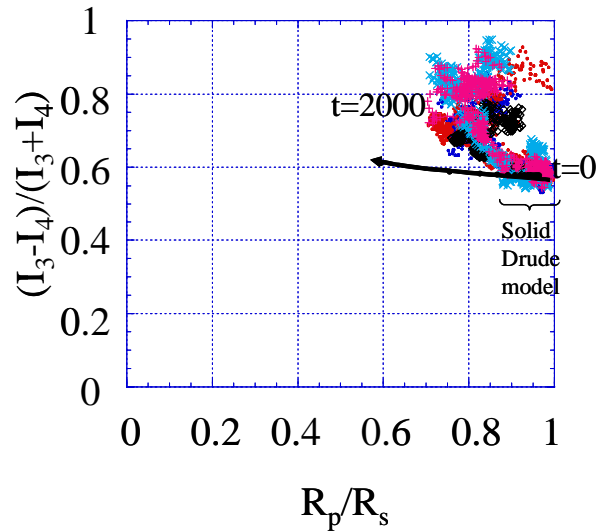


図 11 : $\lambda = 850\text{nm}$ での X Y の軌跡

これらを $\lambda = 745\text{nm}$ で得られた結果と比較すると、再現性のある一致領域は初期状態からおよそ 1ps と伸びていることが分かった。また、X 軸方向への変化の大きさと経過時間に違いが見られた。X 軸方向の変化の長さから、より長波長側での計測のほうが、高密度側の固体表面を長い間観測していることを示している。さらに Y 軸方向への変化にも違いが見られ、位相差の変化が $\lambda = 745\text{nm}$ の場合と異なった変化を引き起こしていることが考えられる。

これらの周波数依存性から分かったことをまとめると、図 12 に示したような膨張成分に密度分布が存在し、プローブ周波数が数十 ~ 数百 nm 異なっただけで、その膨張成分の異なった部分を観測していることになる。 $\lambda = 745\text{nm}$ の時にはより低密度側までの観測ができ、長波長側になると固体表面に近い部分を長い間観測しているものと思われる。

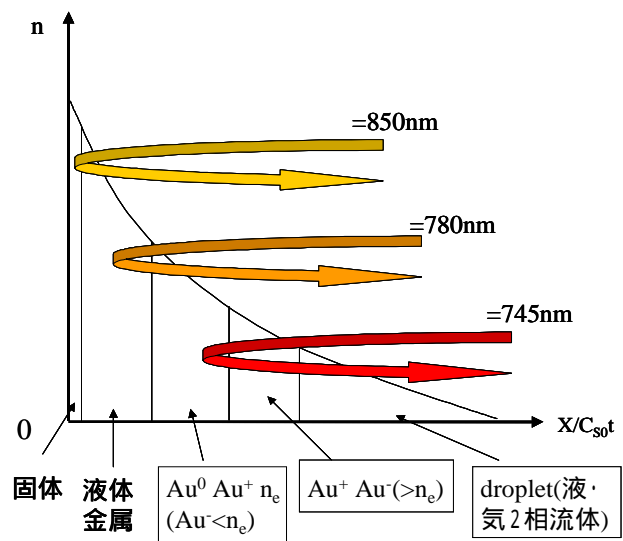


図 12 : 固体表面からの膨張成分の詳細な分布

実際にこのような分布が存在するのを確認したものが図 1 3 に示した散乱光の変化に示した。この

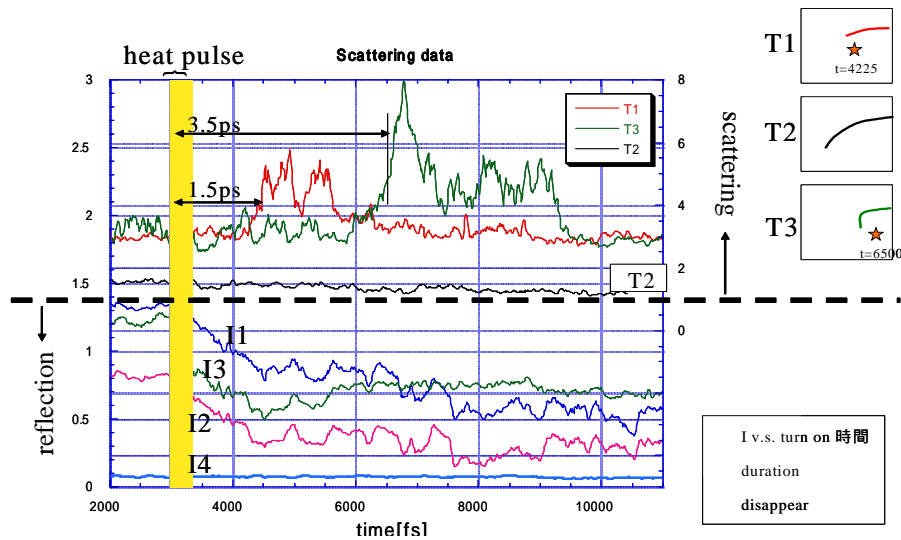


図 1 3 : 散乱光の強度変化の照射強度依存性

図は、ポンプ光による反射率の変化と同時刻の散乱光の変化を測定した結果を示している。ポンプ光の強度は、XY座標上で $T1 < T2 < T3$ の順で強くなっている。その結果、照射強度が T1 である比較的最も弱い場合には、散乱光がポンプ光による反射率の減少時間から 1.5ps 後に立ち上がった。次に照射強度の強い T2 の場合では、散乱光の変化は見せず、最も強い照射強度である T3 の場合では、3.5ps 後に散乱光が立ち上がる結果となった。つまり、照射強度を変えることで、膨張成分の分布の一部であるドロップレット領域からの応答が照射強度依存を示しており、確かに図 1 2 に示したような分布があることを示していることが明らかになった。

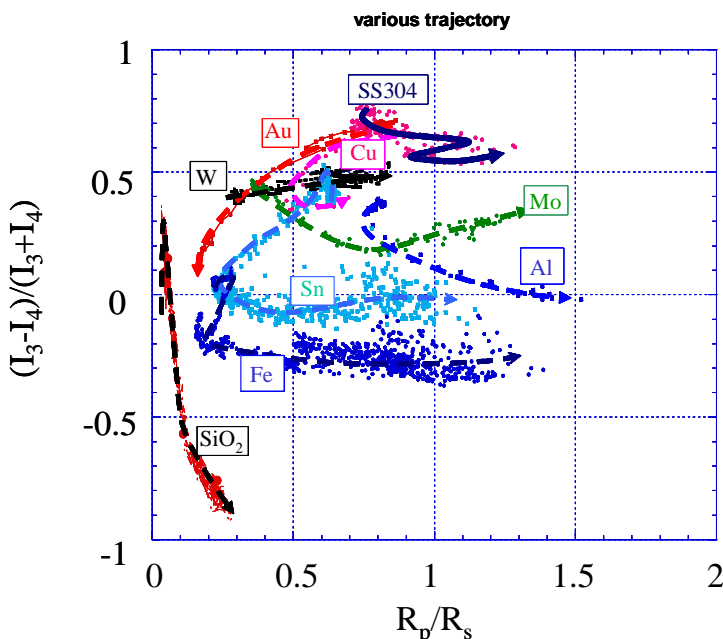


図 1 4 : 計測された全物質の X Y の変化

最後に、図 1 4 に計測した全物質の結果を XY 2 次元座標上にまとめた。物質の特性などの違いで軌跡の進む方向が異なった結果が得られ、各物質の見かけ上の光学特性の変化をおおまかに捉えることができた。同族の物質である Au と Cu ではその進む方向性がある程度一致し、族による変化の分類などができる可能性があることがわかった。

4 . 結論

多くの物質についての固体～固体密度プラズマ遷移における光学定数の変化を計測することができた。また、Au の結果についての解析からは、高密度プラズマ中における中性ガスの原子分極率をはじめ観測し、電子の局在化による導電率の急激な低下現象を初め

て観測することができた。

5 . 今後の予定

今後はさらに計測で得られる独立パラメータを増やすために多入射角での計測を行うとともに、Au 以外での物質についての解析を進めていく予定である。