

超短パルスレーザー照射表面の高精度光学特性研究

電子工学科 米田研究室 齊藤英雄

1. はじめに

導電率（電気伝導度） σ は、その定義式 $\sigma = nq\mu$ （ n ：キャリアの密度、 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ないために物質固有の値であり、他の物質との比較が可能であることから、物質中の電子が電場を与えられたときの動きやすさを表す物理定数として非常に重要である。また、 σ は電磁波の伝播方程式である Maxwell 方程式に含まれる物質を表すパラメータである。そのために古くから数多くの計測が行われ、その温度依存性が研究対象となってきた。固体物理学では、電気伝導度の温度依存性を表す代表的な理論式として Gruneisen の公式が提唱され、低温において非常に多くの物質が $T^{3/2}$ に比例することが実証された。一方、高温状態にあたるプラズマ物理学においては、その抵抗率は $T^{-5/2}$ に比例する Spitzer-Harm の公式が適用されている。さらには、電磁波のような周期振動を持った電場が物質に作用するときにも σ は定義される。この場合、 σ は周波数依存性を持つということが Drude らによって予想され、Drude モデルとして確立・適用されてきた。

通常、高温化にともなう物質の状態は、固体から液体、気体、そしてイオン化をとまなうプラズマ状態へと変化していく。この状態遷移は、昔から周知であるが、たとえば固体では温度 0K、すなわち完全秩序結晶のモデルから摂動を入れて一般状態を解き、プラズマ物理では $T=\infty$ の完全イオン化状態を基準として物理モデルが作られている。しかし、これら固体物理学での状態からプラズマ物理学が支配する状態に変化する、その遷移状態では、秩序性がある程度保持されながら、電子励起やイオン化状態にあるという、これまでに無い状態が作られ、この領域では、輸送過程、状態方程式といった様々な物理過程が現状のモデルでは合わなくなってきたことが議論されるようになった。特に、この領域を **warm dense matter** と称し、世界中でレーザー、イオンビーム、電子ビーム、X線、放電などを利用して研究が進められるようになってきている。レーザーでの研究において、使用するレーザーのパルス幅を 10fs、集光サイズを 10 μm にすれば、繰り返しエネルギーが 1J である時の集光強度は 10²⁰W/cm² にも及ぶ。このような集光照射による極端条件の生成は、レーザーでなければ達成し得ない特徴である。この特徴を用いて、レーザー照射により高温高密度状態を作りだし、固体～固体密度プラズマへと膨張の影響が無視できる状態で極短時間過渡的に変化させ、時間的に同期した他の超短パルスレーザーをプローブ光として使い、複素導電率測定を精密に行うことが可能となっている。

2. 研究目的

前節で述べた **warm dense matter** 領域において、本研究では超短パルスレーザーによる物質の加熱過程を利用することで、図 1 の電子密度対温度特性に示す。固体状態からその密度を変え、ことなくプラズマ状態へと縦軸方向に直線的变化させることを考え、非常に短い時間ではあるが、この状態遷移の物性を解明することを試みている。この加熱過程でも固体状態に近い密度での金属の光学定数測定を高精度で行い、AC 導電率から金属-非金属転移が起きる可能性を、またその光学定数の小さな変化をも観測するためにこの高精度測定が必要である。種々の金属で観測を行い、総合的なモデルを構築することを目的としている。

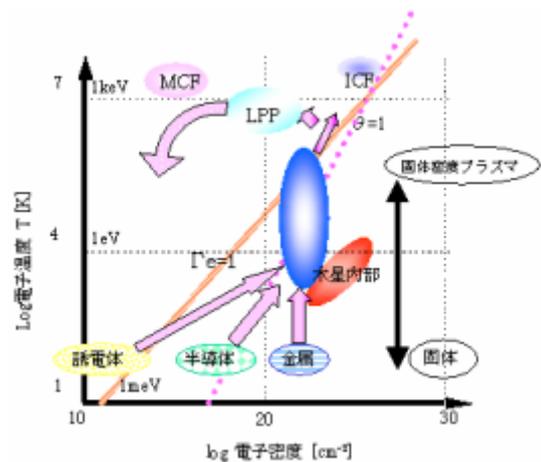


図 1 物質の様々な状態の分類

3. 導電率、誘電率

誘電率は、一般に以下のような表式で表される。

$$\varepsilon = 1 + 4\pi n \alpha + \frac{4\pi i \sigma}{\omega}$$

(ε : 複素誘電率、 α : 原子分極率、 n : 原子密度、 ω : 周波数、 σ : 電子導電率)

もし、電子導電率の部分に Drude モデルを仮定すれば、以下のようなになる。

$$\varepsilon = 1 + \underbrace{(\varepsilon_{atom} + i\varepsilon_{atom})}_{\text{原子分極率}} + \underbrace{\left[-\frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{(\omega\tau)^2}{1+(\omega\tau)^2} + i \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{\omega\tau}{1+(\omega\tau)^2} \right]}_{\text{電子分極率}}$$

ここで、第1項は真空の誘電率、第2項は原子の分極率、第3項は平均衝突時間 τ 、プラズマ周波数 ω_p で記述される自由電子による寄与(Drude モデル)を表している。

Drude の理論から複素誘電率を求めると次のようになる。Drude Model に従うと金属表面の電子と照射されたレーザーの電場の関係は以下のようなになる。

$$m\ddot{r} + m\beta\dot{r} = eE \quad \begin{array}{l} \beta : \text{Dumping / resistive factor} \\ E : E - \text{field of Laser} \end{array}$$

これより電気伝導度 σ は下式となる。

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

一方、複素誘電率の定義より複素誘電率 $\hat{\varepsilon}$ は

$$\hat{\varepsilon} = \hat{n}^2 = 1 + \frac{4\pi i \sigma}{\omega} \quad \hat{n}(= n + ik) : \text{複素屈折率}$$

なので、 σ を代入すると、

$$\hat{\varepsilon} = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{(\omega^2 + \beta^2)} + i \frac{\omega_{pe}^2}{(\omega^2 + \beta^2)} \frac{\beta}{\omega} \quad \omega_{pe}^2 = \frac{4\pi Ne^2}{m} : \text{プラズマ振動数}$$

となり、複素屈折率 $\hat{n} = n + ik$ を用いてその実部と虚部を表すと

$$\text{Re} \cdot \hat{\varepsilon}(\omega) = n^2 - k^2 = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{(\omega^2 + \beta^2)}$$

$$\text{Im} \cdot \hat{\varepsilon}(\omega) = 2nk = \frac{\omega_{pe}^2}{(\omega^2 + \beta^2)} \frac{\beta}{\omega}$$

4. 測定システム

図2は実験システムである。このシステムでは、mode-lock Ti:Sapphire レーザーの基本波 ($\lambda=745\text{nm}$ 、 $\tau=120\text{fs}$) とその第3高調波をエキシマレーザーで増幅させたもの ($\lambda=248\text{nm}$ 、 300fs) をそれぞれプローブ光、ポンプ光として計測を行った。ターゲットより反射されたプローブ光のストークスパラメータ変化を計測するために、s偏光(Rs)、p偏光(Rp)、右回り円偏光(I₃)、左回り円偏光(I₄)の4つの強度変化を同時に計測した。時間発展はプローブ光に6.67fs/stepの遅延時間を与え、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なデータ収集するシステムになっている。測定は精度チェック用に金(Au)、タングステン(W)、亜鉛(Zn)について行った。

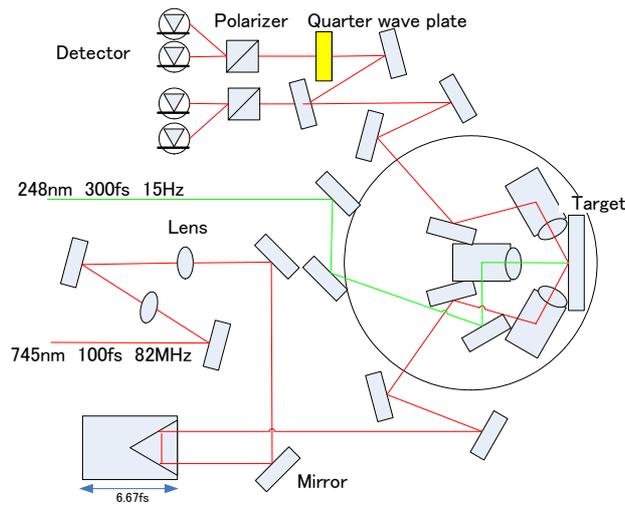


図2 測定システム

5. 結果

測定結果解析にはX, Yプロット法を採用している。これは4つの測定量より3つのストークスパラメータが得られ、そのうち2つのパラメータについての比を取っている。Xはs偏光の反射率強度に対するp偏光の反射率強度変化を表しており、Yは位相差の変化によるターゲット表面の変化を表している。

$$X = \frac{|r_p|^2}{|r_s|^2} = \frac{R_p}{R_s} \quad Y = \frac{I_3 - I_4}{I_3 + I_4} = \frac{2|r_s||r_p|\sin(\delta)}{|r_s|^2 + |r_p|^2}$$

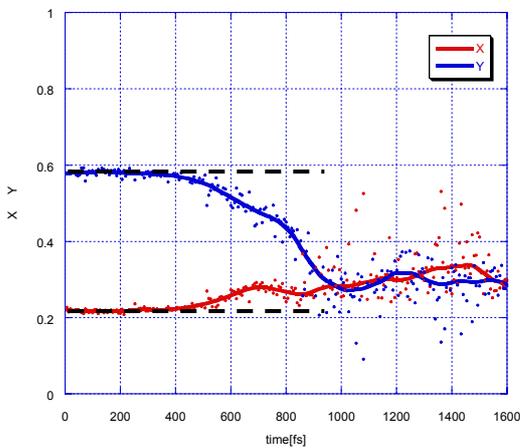


図3 時間対X, Yプロット

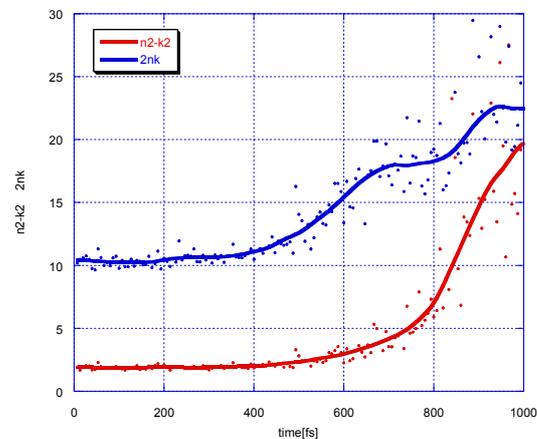


図4 時間対複素誘電率

図3に時間対X Yプロット結果を示す。図中点線は膨張前の加熱過程を示しており、単一境界面を観測している、つまり熱く過熱された固体密度の金属からの応答を観測している。膨張の有無については、X, Yより得られる屈折率n, kに対してフレネルの反射式を適用することで得られる反射率と、実測した反射率との比較により矛盾が発生した時刻を膨張開始時刻と決めている。屈折率n, kより複素誘電率を求めると図4のようになる。

5. 1 金

酸化しにくい安定な物質である金を用いて精度評価を行った。本システムにおいて測定の精度を決定する要因は、

1. プローブ光の雑音低下
2. ポンプ光の安定化
3. ターゲット表面の清浄性

この中で1のために発振器からパルス列をそのまま使い、強度の安定性を取らせている。また、外からの雑音光、主は増幅部の自励発振光の影響を低減させ、さらに2を改善するために、25Hzで稼動するレーザーパルス1つ1つを独立の実験としてデータ収集が可能なシステムを構築している。本研究ではBOXCAR積分器を1~3shot取り込みとして使用しており、レーザーパルス1つ1つを独立の実験としてデータ収集している。これにより入射光の安定度が0.5%であるなか、反射率の精度を1%程度に抑えることに成功した。

図5での反射率特性中の点線はn、kより求めた反射率である。これにより膨張時刻は測定開始より470fsであることが分かる。膨張前では精度が1%を保っており、本研究の目的である加熱中の光学特性の変化を観測する上でこの精度が重要な要素となる。

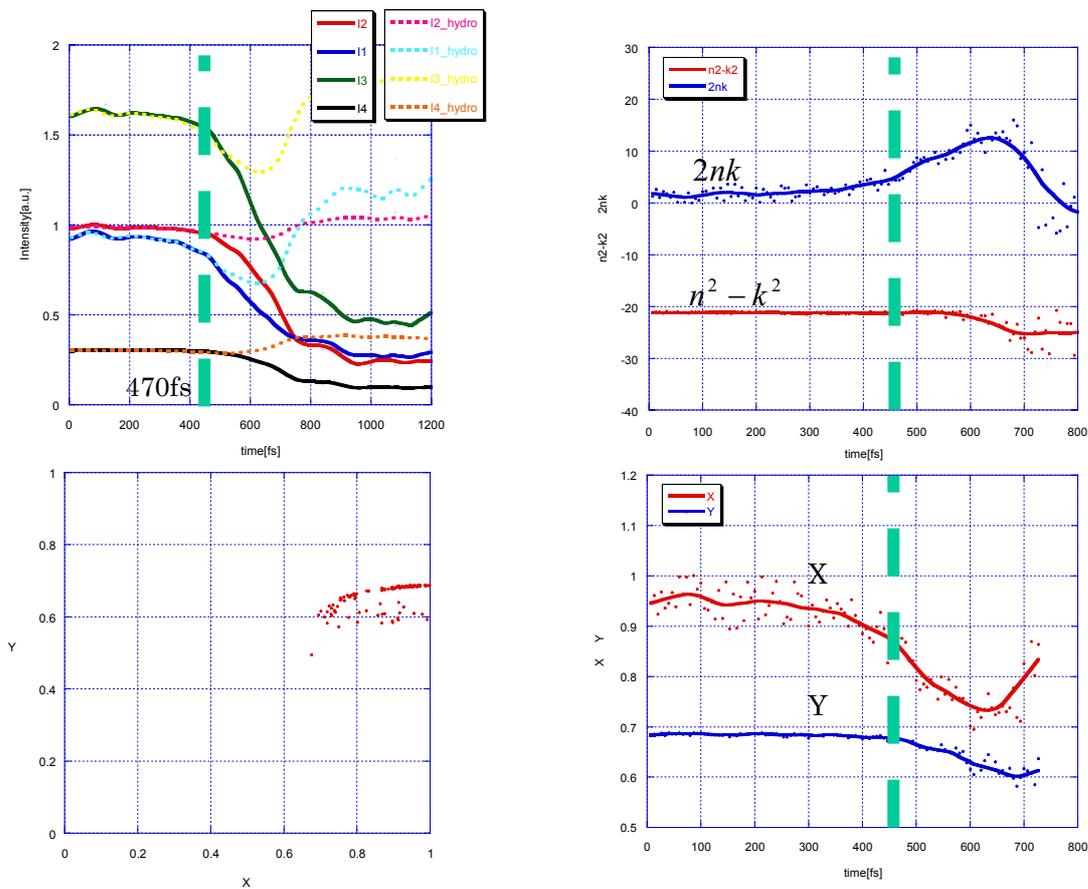
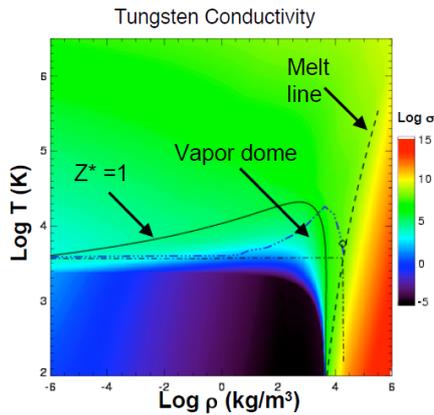


図5 金における各特性(左上：反射率、右上：複素誘電率、左下：XYプロット、右下：XYの時間発展)

5. 2 タングステン

Quantum Molecular Dynamics 計算により固体密度を保ったまま沸点以上に温度をあげると、常温固体より数桁 DC 導電率が下がるという結果がある(図6)。Drudeの金属電子論より赤外領域において電子分極率が主となっている。ここでPalikの光学定数ハンドブック(図7)よりタングステンの赤外領域での複素屈折率の勾配と、745nmでの複素屈折率は一致しない。これはこの波長においては電子分極率ではなく原子分極率が主となっていることを示している。このような性質を持つ高融点金属であるタングステンが、加熱過程においてどのような光学特性を示すか、その測定を行った。



M.Desjarlais, Workshop on Accelerator-Driven Warm

Dense Matter February 22-24, 2006 より抜粋

図6 タングステンの光学特性(左: DC 導電率特性、右: 複素屈折率特性)

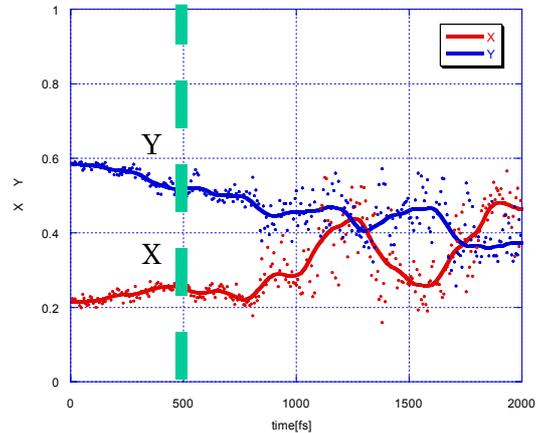
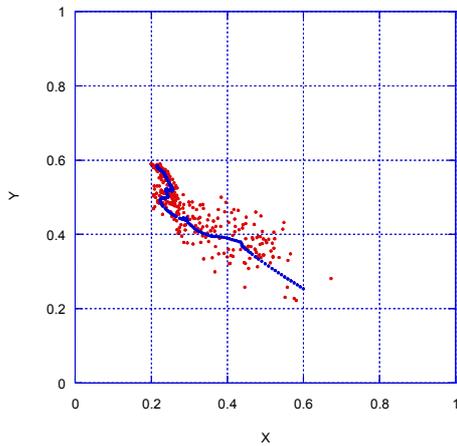
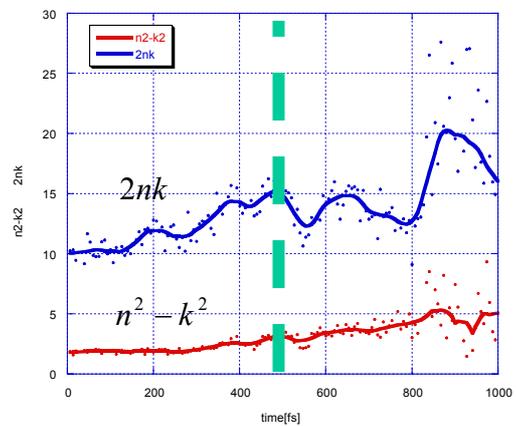
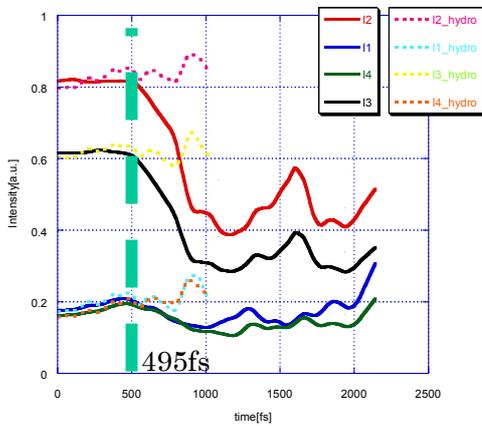
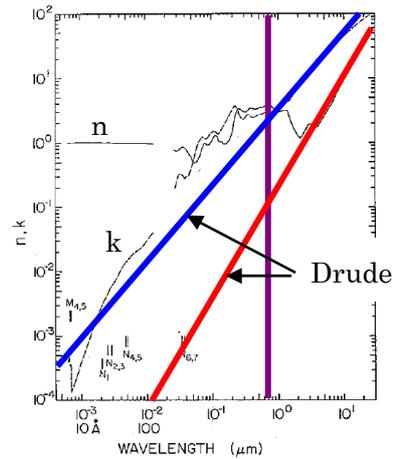


図7 タングステンにおける各特性(左上: 反射率、右上: 複素誘電率、左下: XYプロット、右下: XYの時間発展)

5. 3 亜鉛

水銀と最外殻電子構造が同じ亜鉛で、水銀同様の金属-絶縁体遷移(以下 M-NM 遷移)が起こりえると考えている。水銀では、5d 電子軌道が完全に占有された状態での 6s と 6p 電子軌道のエネルギー準位の重ねあわせ状態により金属性を示すことが、また膨張し重なり合いが解けることで絶縁体遷移を起こすと考えられている。

水銀と同様の最外殻電子構造をもつ金属では少し膨張しただけで、M-NM 遷移が起きる

と考えられている。水銀は常温時では密度が 13g/cm^3 であり、M-NM 遷移が起きる密度は 9g/cm^3 である。故に原子間距離が 13% 離れたときに M-NM 遷移が起きると考えられる。

これまでは水銀で $1500\text{K}\sim 1700\text{K}$ と低温での測定は行われてはいたが、それ以上の高温での測定は不可能であった。しかし本研究ではレーザーを用いた加熱、計測を行っているため 2000K 以上の加熱が可能である。この上で亜鉛が高温において、どのような振る舞いをするかについて、その光学特性の測定を行った。

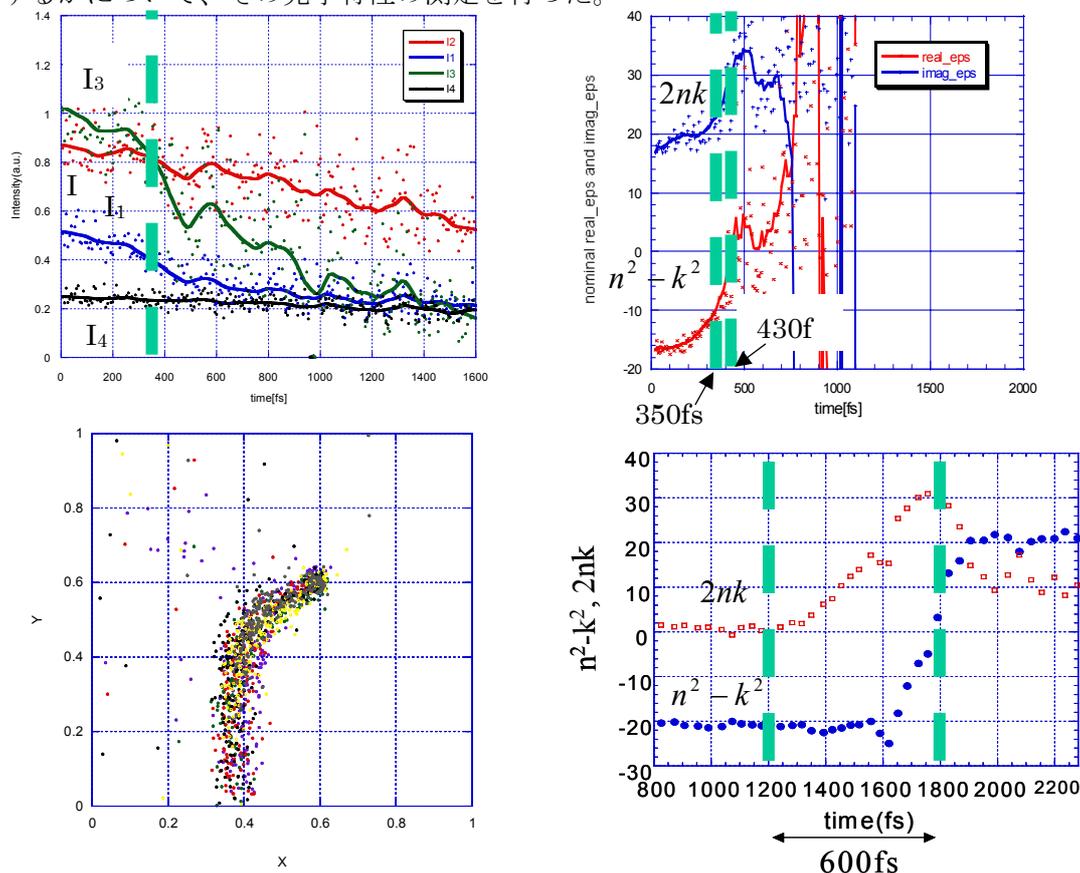


図8 亜鉛における各特性(左上：反射率、右上：複素誘電率、左下：XYプロット)と金における複素誘電率(右下)

6. 結論

タンゲステンでは、 745nm の光に対する誘電率虚部が $10\rightarrow 15$ に変化し、実部がほぼ変化しない状態であることが初めて観測された。原子分極率の部分においても抵抗率（誘電率の虚部）が増加していることを示していることになる。これは Quantum Molecular Dynamics 計算に反しない結果が得られたとも言える。

金などの金属では M-NM 遷移が起きるには、膨張による密度低下がなければならない。図8では膨張開始から 600fs 程かかっている。また、他の金属でも膨張によって密度が低下しなければ M-NM 遷移が起らないことが今までの研究で分かっている。しかし、亜鉛は 350fs で膨張し始めることが分かり、 430fs に誘電率の実部が負から正へ変わっていること分かる。つまり、膨張開始から 80fs で M-NM 遷移が起こる結果が得られた。これは膨張成分が主になる以前に M-NM 遷移を起こす現象が測定できたと言える。膨張成分が主ではなくなると考えると、この現象は温度効果によるものと考えられる。これは膨張をとまなわれない M-NM 遷移が存在する可能性を示している。