

液体金属表面を利用したプラズマフォトンクス研究

岡田圭一

電気通信大学大学院 電気通信学研究科
電子工学専攻 米田研究室

1. はじめに

光学素子や電子デバイスのエネルギー投入限界は、熱、光電場や印加電場による破壊などが決めている。入力エネルギーが素子のもつ限界を超えた場合、素子を構成する各物質はそれぞれ、固体から液化、気化し、さらにはイオン化を経てプラズマ状態へと転移する。その結果、本来、素子としての機能をもたせている構成要素の各物質は、高エネルギーによる転移からその性質を失い、素子機能を低下、消失してしまい破壊される。しかし、逆にプラズマ化されることを考慮した状態で、素子を設計できれば、扱えるエネルギー密度は桁違いに大きくなり、従来の素子では制御できなかった高エネルギー密度ビームを制御したりすることが可能である。

本研究では、これまで多くの研究がなされてきた水銀Hgについて ~ 2000 K以上の温度領域における未知の物性を対象とし、超短パルスレーザーを用いた光応答を調べる。また、Hgの金属-非金属転移を利用したプラズマフォトンクスデバイスの提案、開発を行い、デバイス性能の評価を目的としている。

2. 金属-非金属転移

固体物理学的なパラメータ領域と理想プラズマ物理学の双方が網羅する領域の中間に位置するWarm Dense Matter (WDM) 領域は、高エネルギー密度状態でプラズマのようにイオン化、電子励起状態でありながら、一方で固体結晶のような秩序性、化学結合力も存在している状態である。

通常のプラズマでは自由電子による光応答が主であり、自由電子近似が用いられ

る。一方、WDM 領域の物質では、イオン化が起こる高エネルギー密度状態でありながら、原子の分極率など物質固有の性格を引きずった物性をもつことが可能になる。例えば、Cu や Au は常温固体で良質な電気伝導率をもち、自由電子近似モデルが適用できる。一方、十分高温なプラズマでは、電子は完全に電離し、自由電子近似が成り立つ良導金属になる。しかしながら、上記の場合の中間の温度、密度領域では電子の局在化などにより、双方での導電率に比べ3~4桁程度も低下する。

Hg 型の原子構造をもつ金属では、高密度効果による準位間の重なり合いにより金属状態がつくられる(図1(a)). しかしながら、温度の上昇にともなうわずかな体積膨張により密度低下(図1(b))が生じると、最外殻の電子のバンドギャップエネルギー幅が減少し、準位間の重なり合いが解ける。このとき、6s と 6p のバンドの開き(図1(c))、金属から非金属に転移する(Bloch-Wilson 転移)[1]. Hg の密度は常温常圧下では、 13.58 g/cc だが、密度が ~ 9 g/ccになると金属-非金属転移をすることが確かめられている[2].

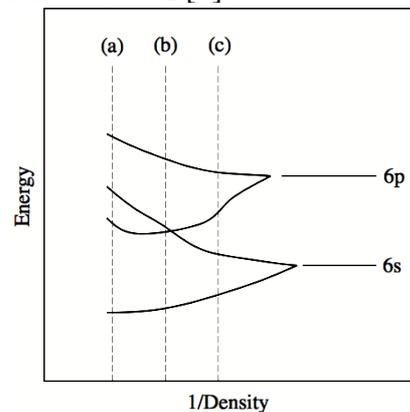


図 1: Bloch-Wilson (Band-Overlap) 転移.

Hgの金属-非金属転移をフェムト秒レーザーポンププローブ画像計測（ポンプ波長248nm, プローブ波長745nm）を用いて実験的に観測した. ポンププローブ計測では図2のような実験系を用いた. ただし, 図2は後述する干渉計測の場合の実験系である. 図3は Hg のポンププローブ画像で, 干渉画像ではなく, ただの反射画像である. 図4, 5は図3の各点（186 psの画像）における反射率の時間変化である. 図4からこの実験条件では, 転移時間（反射率低下時間）は ~ 1.2 ps であり, 密度低下が必要でありながら, 超高速な応答が可能であることがわかる. 図5のc点の転移時間は ~ 70 ps で, c点では a, b点の場合の $\sim 1/6$ の転移速度である. このように照射領域の中に, 遅い変化をしている部分と早い変化をしている部分が観測されている. これから, a, b点とc点では初期到達温度の違いによって, 別の断熱曲線を選んでいくことがわかる.

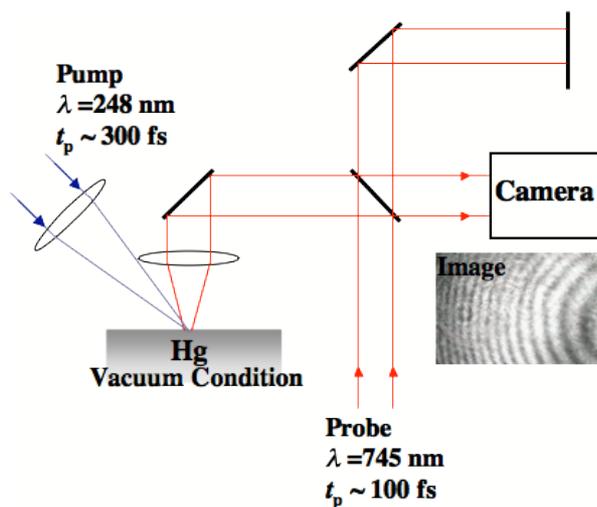


図 2: ポンププローブ画像計測光学系. ターゲットの Hg は真空チャンバー内に置かれており, 真空度は $\sim 10^{-3}$ Torr である. 観測に用いているCCDカメラは通常のものと同様に30Hzで動作しているが, 遅延時間をもつプローブ光で走査することで, Hg表面に生じる高速な現象を時間分解している.

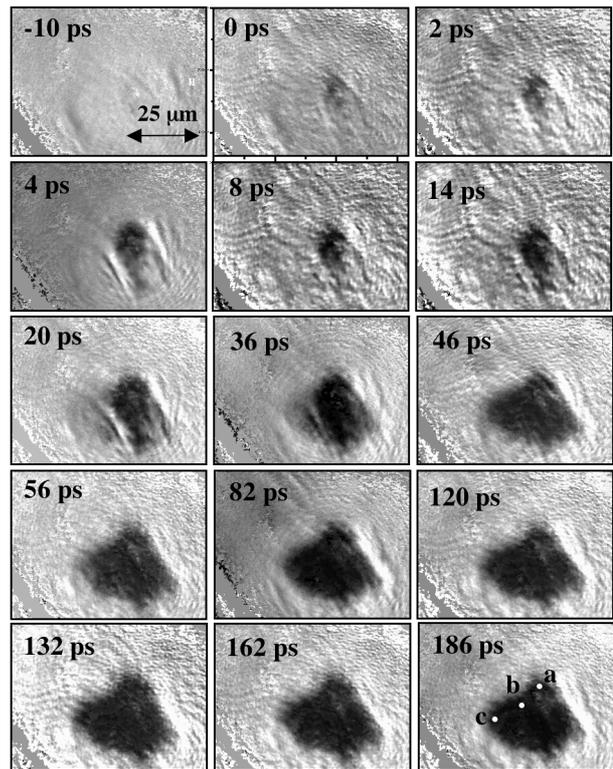


図 3: Hgのポンププローブ反射画像の時間発展. ポンプ照射エネルギー密度は ~ 50 J/cm² である. ポンプレーザーによってターゲット表面に初めて吸収領域が現れたときを0.0 ps としている.

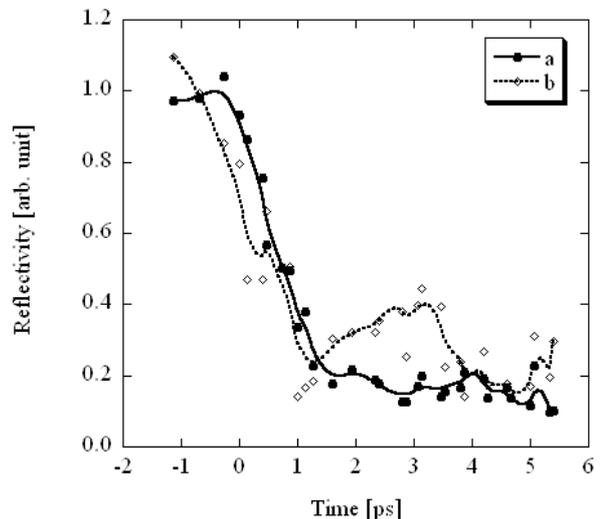


図 4: a,b点におけるHg表面の反射率変化.

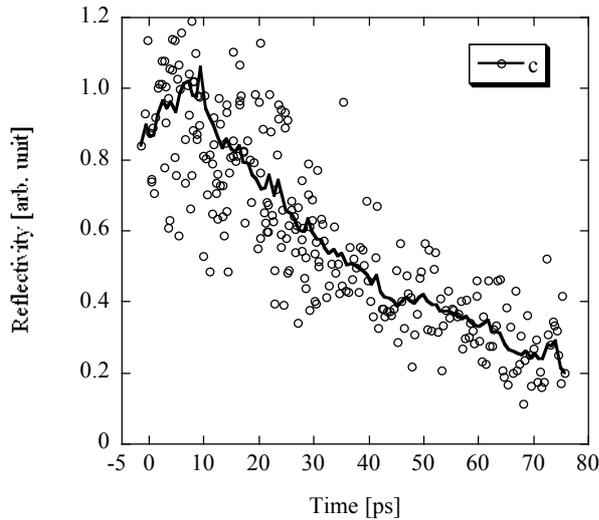


図 5: c点におけるHg表面の反射率変化.

3. 干渉計測

ただの反射画像計測では、Hg表面の反射率分布、反射率の時間変化を知ることができない。ポンプレーザー加熱によるHg表面の膨張の様子を詳しく観測するために干渉計測を行う。図6, 7にポンププローブ干渉計測画像を示す。

図6はポンプレーザー照射エネルギー密度が $\sim 25 \text{ J/cm}^2$ のときの干渉計測画像の時間変化である。図6によると、0.0 ps のときに膨張によって、初めて干渉縞の屈曲部が現れてから、 $\sim 3.5 \text{ ps}$ で1フリンジ程度まで屈曲する。その後、1フリンジ程度屈曲した状態は、 $\sim 7.0 \text{ ps}$ まで維持するが、金属-非金属転移による吸収領域の寄与が大きくなることにより、7.0 ps 以降、干渉縞を観測することが難しくなり、 $\sim 11 \text{ ps}$ 以降からは、完全に干渉縞の屈曲を観測することができなくなる。

図7はポンプレーザー照射エネルギー密度が $\sim 2.5 \text{ J/cm}^2$ の場合である。図7によると、 $\sim 3.0 \text{ ps}$ 経つと0.5フリンジ程度まで屈曲する。その後 $\sim 25 \text{ J/cm}^2$ のときと同様に、金属-非金属転移による吸収領域の寄与が増大し、干渉縞を観測することが難しくなる。 $\sim 7.0 \text{ ps}$ 以降からは、完全に干渉縞の屈曲を観測することができなくなる。

図8は、図6, 7の干渉縞変位から求めた膨張長の時間変化である。図8によると、 25 J/cm^2 の場合の膨張速度は $\sim 1.0 \times 10^5 \text{ m/s}$

で、 2.5 J/cm^2 の場合の膨張速度は $\sim 5.8 \times 10^4 \text{ m/s}$ である。

干渉計測で観測した膨張速度が、通常の流体運動としての膨張であるとする、膨張速度は音速に従う。Hgの音速 V_s は以下のように表せる。

$$V_s = \sqrt{\frac{kT}{M_p A}} \text{ [m/s]}. \quad (1)$$

ただし、 $T \text{ [K]}$ は温度、 k はボルツマン定数 $[\text{J/K}]$ 、 M_p は原子質量単位で、 A はHgの原子量である。図9はHgの音速を温度の関数として表したものである。

25 J/cm^2 の場合の膨張速度 $\sim 1.0 \times 10^5 \text{ m/s}$ が通常の流体運動としての膨張速度であるとする、求められる温度は図9から $\sim 2.0 \times 10^4 \text{ eV}$ である。同様に、 2.5 J/cm^2 の場合の膨張速度 $\sim 5.8 \times 10^4 \text{ m/s}$ に対しての温度は $\sim 5.5 \times 10^3 \text{ eV}$ である。本研究で用いたポンプレーザーで達成している温度は数eVなので、 25 J/cm^2 、 2.5 J/cm^2 の場合の双方とも、位相反射面が異常に高速に変化していることがわかる。この理由は、干渉計測で測定した膨張速度は、通常の流体運動による膨張ではなく、波長745 nmの光に対する“見かけ上”の膨張を観測しているものと考えられる。すなわち、Hg表面の波長745 nmに対する光学特性が急激に変化すれば、流体自身が動かなくてもこのような高速な変化は可能であると考えられる。

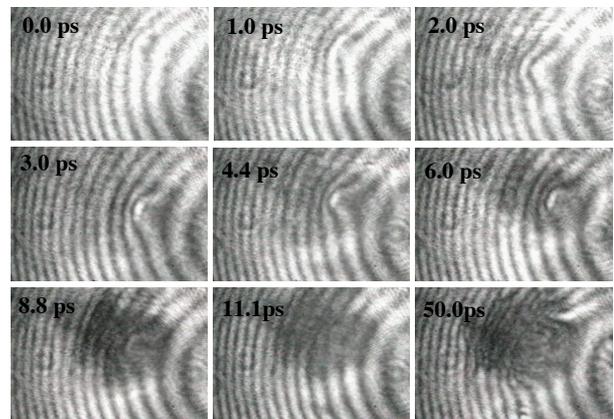


図 6: Hgのポンププローブ干渉像. ポンプ照射エネルギー密度は $\sim 25 \text{ J/cm}^2$.

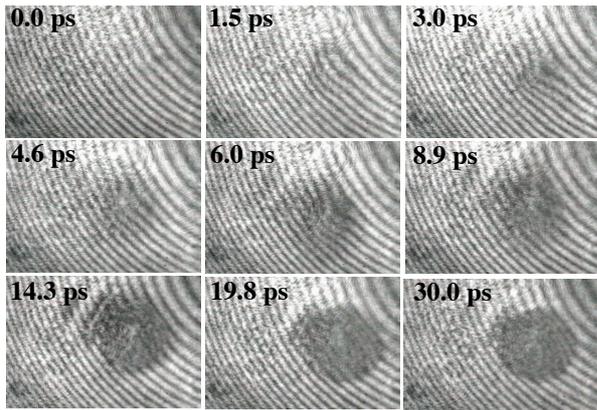


図 7: Hgのポンブプローブ干渉画像. ポンプ照射エネルギー密度は $\sim 2.5 \text{ J/cm}^2$.

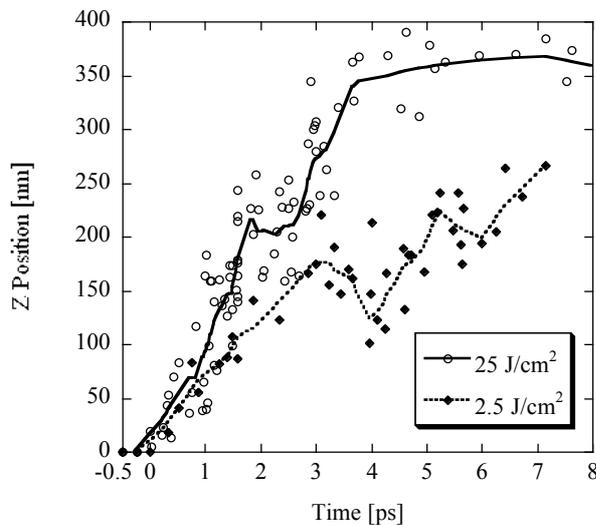


図 8: 干渉縞変位から求めた見かけ上（波長 745 nm）の膨張長の時間変化.

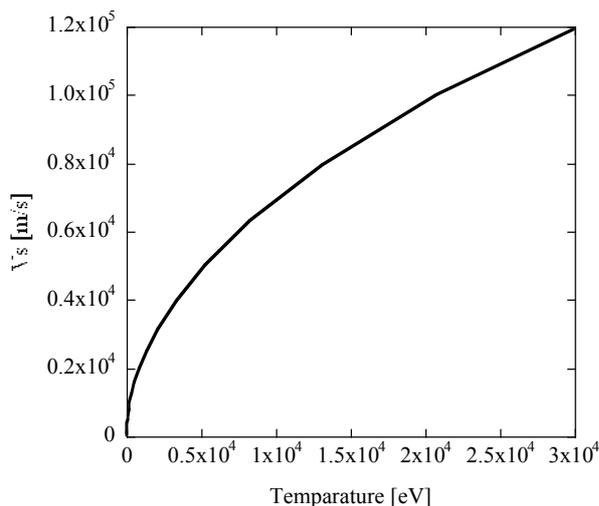


図 9: 温度の関数で表したHgの音速. 縦軸の $V_s [\text{m/s}]$ は音速で, 横軸の温度は eV で表している.

4. 反射スペクトル

ポンブプローブ計測とは別に, Hgからの反射スペクトルの計測を行う. ポンプ光, プローブ光として中心波長745 nm の超短パルスレーザーを用いる. 図10にHgからの反射スペクトルの照射強度依存を示す. 図10の(a), (b), (c), (d)は照射強度を表しており, (a), (b), (c), (d)の順に照射強度が強い.

図10より, 照射強度を強くすることで, 反射スペクトルの半値全幅(FWHM)が広がっていることがわかる. 照射強度(d)の場合の反射スペクトル幅が $\sim 5.3 \text{ nm}$ に対し, 照射強度(a)の反射スペクトル幅は $\sim 6.5 \text{ nm}$ で, 1.2 nmのスペクトル広がり確認できる. さらに, 照射強度(a)のときの中心波長では, 入射光の中心波長745 nm に対して, $\sim 2.0 \text{ nm}$ の青方偏位 (Blue Shift) が起きている.

青方偏位は, 反射面が観測点にとって近づいたときに起こるドップラー効果である. 反射面が観測点から見て角度 θ の方向に速さ V で運動している場合, 観測点での光の周波数 ν_1 は,

$$\nu_1 = \nu_2 \cdot \frac{\sqrt{1 - \left(\frac{V}{c}\right)^2}}{1 - \left(\frac{V}{c}\right) \cos \theta}, \quad (2)$$

となる. ここで, ν_2 は入射する光の周波数, c は光速である.

この青方偏位が通常の流体運動としての膨張による反射面変化からのドップラー効果によるものと仮定すると, 膨張速度は $8 \times 10^5 \text{ m/s}$ である. 膨張速度 $8 \times 10^5 \text{ m/s}$ を実現するのに必要な温度は, 音速を考えると $13.3 \times 10^5 \text{ eV}$ であり, 実際の温度と比べると桁違いに高い. すなわち, 反射スペクトル計測で測定した膨張速度は, 通常の流体運動による膨張ではなく, ポンププローブ干渉計測のときと同様に波長745 nm の光で見た“見かけ上”の膨張を観測していると考えられる.

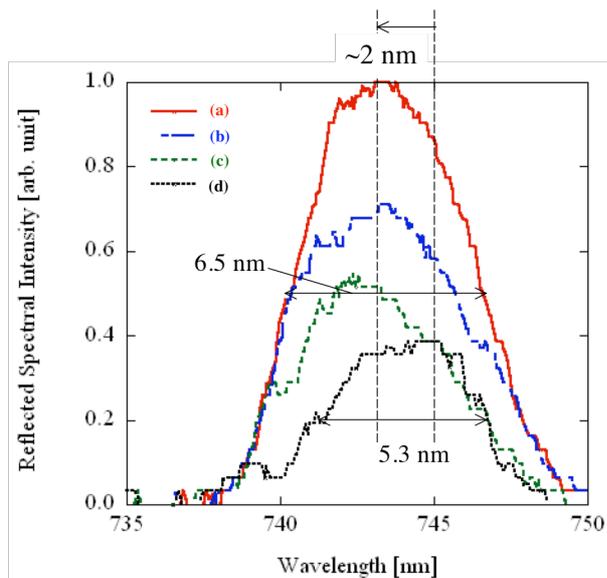


図 10: Hg表面からの反射スペクトルの照射強度依存(波長745 nm).

5. デバイスへの応用

ポンププローブ画像計測, 反射スペクトル計測では, Hg の反射面変化は非常に速い速度(10^5 m/s オーダー)で起こっていることを示している. このようなHgの金属-非金属転移に起因すると考えられる非常に速い反射面変化を利用して, 数 100 fs のパルス幅をもつ超短パルスレーザーを対象とするデバイスを提案する.

プラズマフォトニクスでは, レーザーによって生成される高エネルギー密度状態という観点から, デバイスとしての工学的可能性を考えている. デバイスの媒体がプラズマの状態で素子としての機能を実現できれば, デバイスへの投入エネルギーは桁違いに増加できる. 例えば, 従来のプラズマミラーを利用した高フラックスビームの制御などである. また, WDM 領域などの新たな物性領域を利用することになる. さらに, デバイス媒体がプラズマなのでダメージフリーであることが期待できる.

光を Hg 表面に入射した場合, Hg 表面が金属的性質をもっていれば, よく反射する. しかしながら, 超短パルスレーザーによる, 加熱, 膨張が生じ, 非金属転移した後はバンド間遷移による強い吸収が起き

るために, 急激な反射率低下を起こす. 上の一連の過程が, 入射するパルスの時間的な幅よりも早い速度で起これば, 金属-非金属転移による反射率低下が, パルス幅の時間的な後半を反射しなくなる. 結果として, 入射したパルスの時間的な幅より, Hg 表面から反射したパルスの時間的な幅は短くなることが考えられる. 図11に上記の過程の概念図を示す.

上記のような考えをもとに図12のようなHgセルをプラズマフォトニックデバイスとして制作した. 本デバイスは, Hgの金属-非金属転移を利用した超高速光遮断器である. 図13に, 入射パルス(中心波長 745 nm, パルス幅 90fs)と反射パルスの自己相関波形強度を示す. 図13の結果は, FROG(Frequency Resolved Optical Gating)によって測定した結果である. 図13より, 反射パルスのパルス時間幅は60 fs で入射パルスと比べ 30 fs の短縮が観測できる.

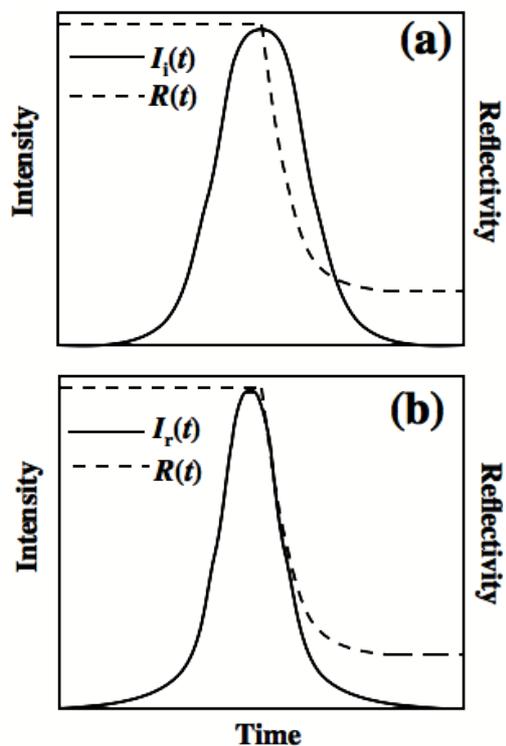


図 11: Hg 金属-非金属転移スイッチの概念図. (a)は入射パルス $I_i(t)$ とHg表面の反射率の時間変化 $R(t)$. (b)は反射パルス $I_r(t)$ とHg表面の反射率の時間変化 $R(t)$.

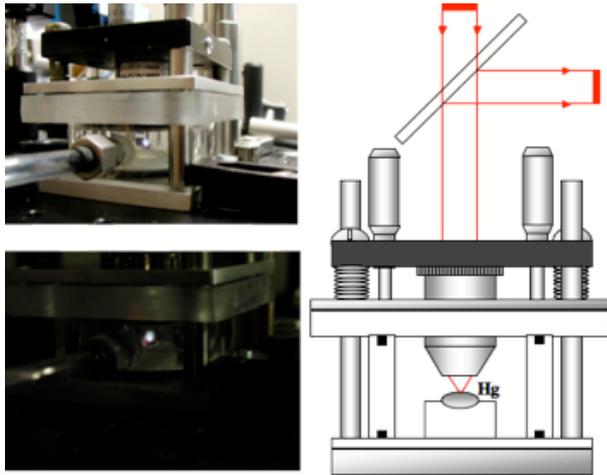


図 12: 制作した Hg セル. 写真中央の輝部で超短パルスレーザーが集光し, プラズマが発生している.

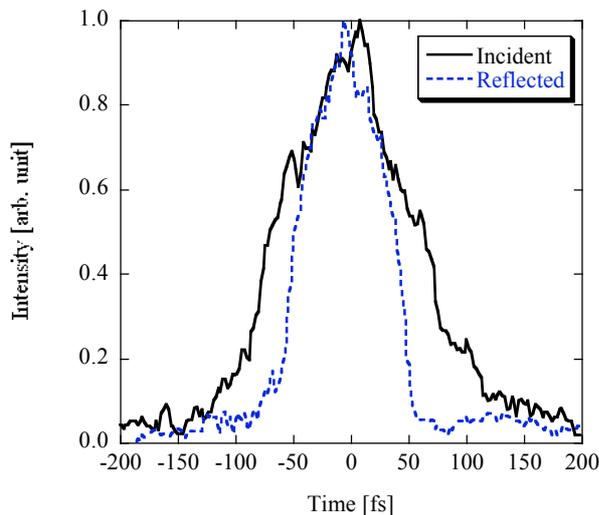


図 13: 入射パルスと反射パルスの自己相関波形強度.

6. まとめ

本研究では, Hg について, これまで調べられてきた温度よりもより高温時の未知の物性を対象とし, 超短パルスレーザーを用いた光応答をポンププローブ画像計測, 反射スペクトル計測を用いて調べた. また, WDM 領域における Hg の金属-非金属転移を利用した, 超高速光遮断機能をもつプラズマフォトリックデバイスを提案, 開発し, その性能を評価した. 得られた結果から結論を以下に示す.

- ・ポンププローブ反射画像計測から, 金属

-非金属転移を観測した. 転移時間は, 速いものでは ~ 1.2 ps, 遅いものでは ~ 70 ps が観測できた. また, この吸収する領域は, 数 ns 維持することがわかった

- ・ポンププローブ干渉画像計測から見かけ上 (波長 745 nm) の膨張速度は, 10^5 m/s オーダーであることがわかった. この膨張速度を通常の流体運動として説明しようとする, 求められる温度は 10^4 eV オーダーであるが, 見積もられる実際の温度は数 eV なので, 位相反射面が異常に高速に変化していることがわかった.

- ・反射スペクトル計測から, 照射強度を強くすることで, 反射スペクトル幅が広がることがわかった. 最大で 1.2 nm のスペクトル広がり確認できた. さらに, ~ 2.0 nm の青方偏位が起こることが確認できた. この青方偏位が, 通常の流体運動としての反射面変化からのドップラー効果によるものと仮定すると, 膨張速度は 8×10^5 m/s であり, 非常に高速な現象であることがわかった.

- ・Hg の金属-非金属転移に起因して生じると考えられる高速な反射面変化を利用して, プラズマフォトリックデバイスとして超高速光遮断器を制作し, 超短パルスレーザーの短パルス化が実現できた. 具体的には, 最も速いもので 60 fs の応答時間が確認できた.

- ・Hg の転移時間は 100fs 台の高速性をもつこと, 吸収領域の持続時間は数 ns 以上継続することが明らかになった. これより, 開発した超高速光遮断器は sub 100 fs の超短パルスレーザー発生や, レーザーシステムでの後方反射光の保護デバイスとして使用できることがわかった.

参考文献

- [1] Friedrich Hensel and William W. Warren, Jr : "FLUID METALS", PRINCETON UNIVERSITY PRESS
- [2] F. Hensel, E.U. Franck "Metal-Nonmetal Transition in Dense Mercury Vapor", Reviews of modern Physics Vol 40, pp.