

超短パルスレーザー照射による固体～プラズマ状態遷移の研究

電子工学科 米田研究室 太田 悟

第1章 序論

1.1 本研究の対象領域について

プラズマは固体、液体、気体に次ぐ物質の第4の状態といわれている。物質の温度を上げていくと固体 液体 気体と相変化し、さらに温度を上げることでプラズマ状態となる。自然界には多くの種類のプラズマが存在し、その電子密度や温度によって用途や応用も様々である。図 1.1 に電子密度と温度によるプラズマの分類の様子を示す。

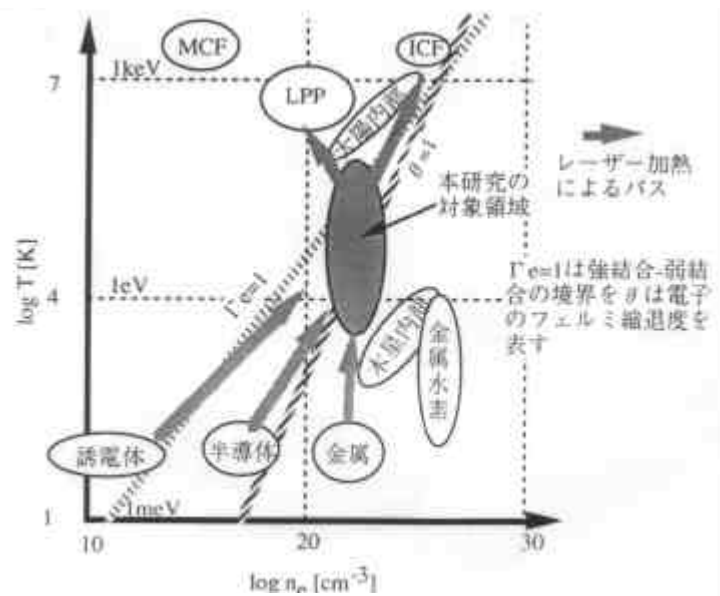


図 1.1 プラズマの分類と応用

さて本研究の対象とする領域は図 1.1 に示したように固体からプラズマへと遷移する領域である。ここで、物質の加熱の仕方や試料とする固体の選び方によっていくつもの状態遷移のパスが考えられるが、最も単純なパスは金属から一直線にプラズマへと遷移するパスである。他の誘電体や半導体からのパスは、加熱の際にキャリアを生成し電子密度を増やすという過程が入るので望ましくない。そのため、金属の中でもちょうど良い電子密度を有し、またありふれた材料でもあるアルミニウムを試料として選んだ。次にこのパスに従うと、密度を保ったまま温度を上げることが必要となる。このような遷移を可能にしたのが超短パルスレーザーである。

1.2 本研究の意義

固体(金属)のレーザー光吸収モデルに関してはプラズマ化した後について多くの研究や実験が為され、既に理論が構築されている。しかし、プラズマ化する以前の状態、つまり固体からプラズマへと変わる遷移領域においてこれらの理論は適用されない。その理由については量子効果の影響などが議論されているが、まだ解明されていない。というのもこの領域での物性はほとんど測定されたことがないため、有効な物理モデルを構築するだけの情報が得られなかったからである。そこで、本研究によってこれまで困難であった固体～プラズマの遷移領域での物性測定を行ない、ここで適用できる新しいモデルを構築しようというのが最終的な目標である。遷移領域の物性が未解明な点、さらにこの領域における物理モデルがこれまで別々に扱われてきた固体物理とプラズマ物理の唯一の接点となり両者を統一す

る可能性を持つという点で、本研究の意義はとても大きい。そして、測定を行なうにあたっては前もって必要なパラメーターを設定し、綿密な実験システムのデザインのもとで光学系や計測器を準備した。この実験デザインも重要で、このような手順を踏まえた実験であるということの意味も大きい。

第2章 実験システムの設計

本研究ではまず実験システムの設計からはじめる。固体からプラズマへと遷移するパスはいくつも存在し、得られるプラズマの状態によって応用も様々である。ここでは電子の生成を必要としない簡単なパスを通すため、電子密度の大きさが適当であり、単純でありふれた金属であるアルミニウムを試料として実験を行なう。加熱の際、熱拡散の影響による物質の膨張が起こる前に、密度を一定に保ったまま温度を上昇させ固体からプラズマへと状態遷移させる必要からフェムト秒の超短パルスレーザーを用いなければならない。この状態遷移はおよそ 300fs で完了してしまうために、計測は光で行なう必要がある。そこで超短パルスレーザーを使用したポンプ・プローブによって物質の光学定数（第1段階としてアルミニウムの反射率）を測定する。ここで使用されるポンプ光及びプローブ光にもシステム設計上の工夫がしてある。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 20 μm に集光するためには増幅系にも過飽和吸収体や空間フィルターを置き、きれいな空間モードの光をつくりださなければならない。また、測定の精度はプローブ光の品質に拠るところが大きいため、集光系までは偏波面保持の単一モード光ファイバーを用いている。ファイバー内部でのチャープの影響を考慮し、またポンプとプローブの波長が選別されなければならないことから、ポンプ光には紫外光（ $\lambda = 248\text{nm}$ ）プローブ光には赤外光（ $\lambda = 750\text{nm}$ ）を使ってポンプ・プローブを行なっている。集光系は省エネルギー化により高繰り返し測定をするための顕微鏡、ポンプ光とプローブ光の色収差をなくすための反射型対物レンズを使用する。このように、研究目的と測定対象が明確である場合にはそれを実行するための実験システムのデザインが重要となる。本研究ではこの実験デザインにも重点を置いて、今回のシステムはこのようなデザインに基づいて構成されている。図 2.1 にそのシステムの概要を示す。

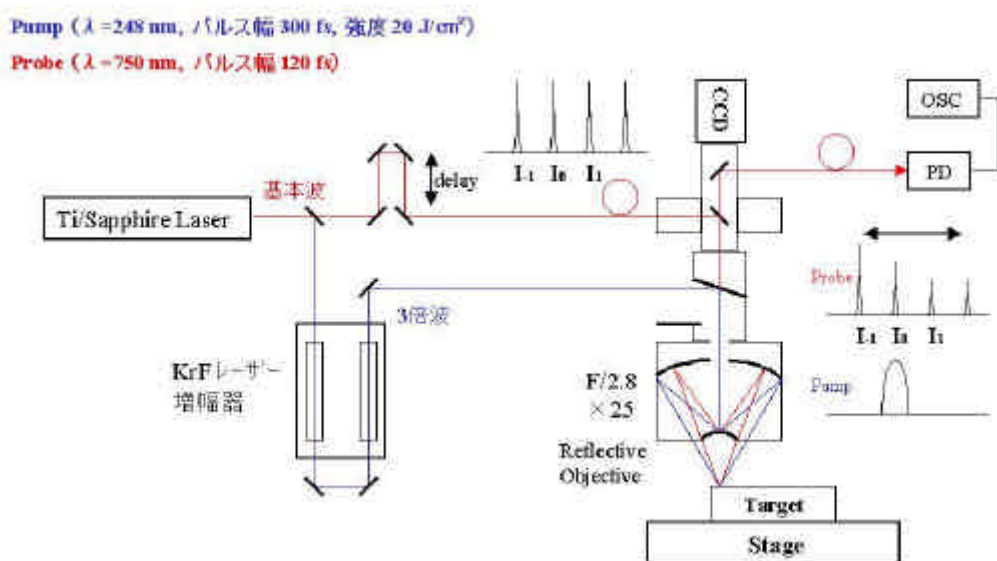


図 2.1 実験システム

第3章 実験および結果の考察

3.1 実験方法

測定はプローブ光パルス列の変化を観測することで行なわれる。ポンプ光が入射される前はプローブパルス列のピークは I_{-1} 、 I_0 、 I_{+1} ともそろっている。ここでプローブパルス列は 400ps の時間遅延をもたせることができるので、プローブパルス I_0 とポンプ光の時間的タイミングを合わせて I_0 の変化を観測し、 I_{-1} とのピーク値の比を計算する。パルス I_{-1} はポンプ光入射以前の試料の状態である完全な金属状態の試料表面で反射しているが、パルス I_{+1} はポンプ光入射からかなりの時間が経過した状態、すなわちプラズマとなっている試料表面で吸収されている。このためピーク値は小さくなっている。いま注目しているパルス I_0 はこの 400ps の間にポンプ光による試料表面の変化によってピーク値が I_{-1} 、 I_{+1} へと変化する。この過渡領域が本研究で目的とする固体～プラズマの状態遷移領域である。

3.2 実験結果

測定されたプローブパルスのピーク値をもとに反射率を計算する。反射率： R は変化していないパルス I_{-1} とポンプ光によって変化するパルス I_0 の比によって求められる。

これにより時間に伴う反射率変化は図 3.1 の左図ようになる。なおポンプ光が入射されたのは 150ps あたりである。

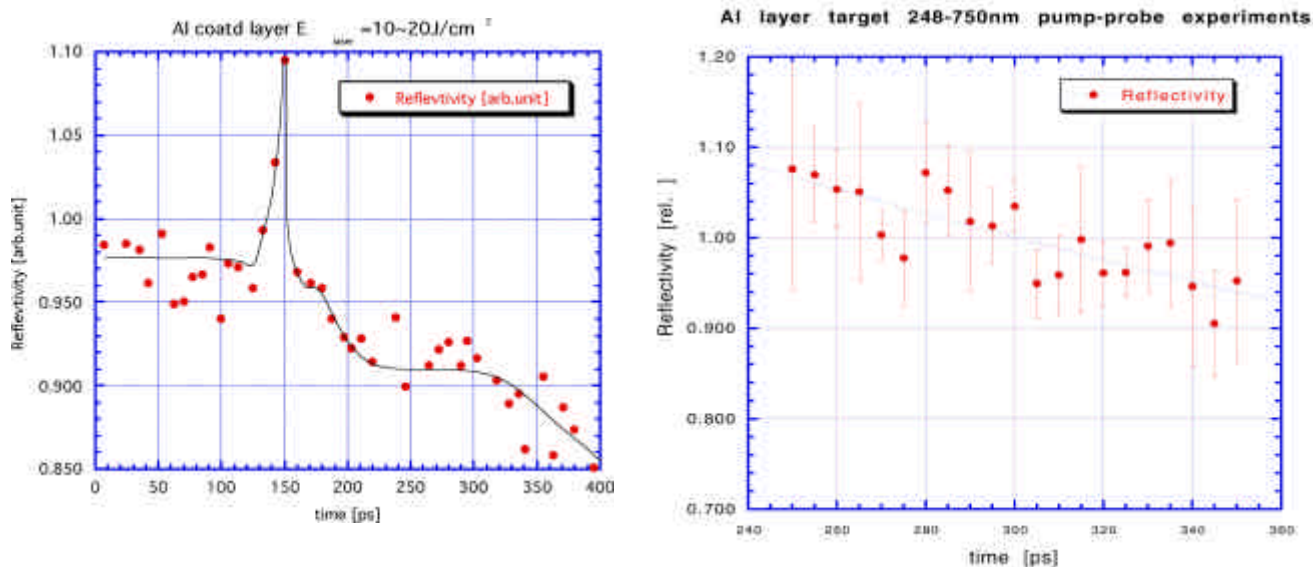


図 3.3 測定した Al の反射率の時間変化

さらに、遷移領域を越えて完全にプラズマ化した後の反射率について詳しく観測した結果を図 3.1 の右図に示す。280ps 付近の反射率増加は、ちょうどこの時刻におけるプラズマのスケール長が波長程度の大きさであるので、干渉効果が起きているためと考えられる。

3.3 考察

図 3.3 をみるとポンプ光入射直後の 140ps で反射率が急激に増加することがわかる。ここでどのような物理現象が起きているかはまだ不明だが、アルミニウムがもともと有している 92%程度の反射率が 100%近くまで上昇したものと考えられる。言い換えれば、8%は吸収されていた光が何らかの理由で吸収されなくなったということになる。しかし、吸収されていた 8%が全て反射されていたとしても、測定値である $R = 1.1$ の反射率というのは大きすぎる感がある。いずれにせよ本研究のねらいとしている固体～プラズマの遷移領域では何かが起きているということが実験によっても明らかになった。

プラズマ化した後についてしてみると、この時間領域では吸収が増加していき緩やかな曲線となって

いる。プラズマのスケール長と吸収の関係などから照らし合わせてみても、ここでの吸収は Drude モデルに従うと考えられる。ただし、260ps ~ 280ps あたりにやや大きな反射率変化が図 3.1 の左右両方に認められる。これは波長程度まで広がったプラズマの干渉効果によるものと考えられる。

第 4 章 結論

4 . 1 実験のまとめ

本実験をまとめると次のようになる。

実験デザインに基づいた実験システムの完成
ポンプ光入射直後の反射率の特異性の測定
プラズマによる干渉効果の測定

4 . 2 今後の課題

今後の課題として次のようなものが挙げられる。

ポンプ光入射直後の変化の、位相変化なども含めた細かい測定
空気の影響を避けるための真空チャンバー内での測定
熱雑音に弱いフォトマルからフォトダイオードのバランスディテクターへの変更
ボックスカーインテグレーターによるより狭い範囲でのパルス情報の積算

これらを終えた上で次の 2 つが大きな目標である

遷移領域における物質の複素屈折率の測定
遷移領域における新しい物理モデルの構築

測定の最終的な目標は物質の複素屈折率を求めることであったが、今回の実験ではプローブ光を試料に垂直入射したため反射率の測定しか行なえなかった。今後はプローブ光を斜入射し、エリプソメトリによる偏光状態の解析から複素屈折率を求めることが課題となる。遷移領域での様々な光学定数が測定できれば、そこから光と物質の相互作用が明らかになる。