

時間分解 VUV 反射分光による石英表面における強励起ダイナミクス (量研機構・関西研) ○赤木 浩、和田資子、乙部智仁、板倉 隆二

Intense-laser induced excitation dynamics on fused silica surface with time-resolved VUV reflection spectroscopy

(QST-KPSI) ○Hiroshi Akagi, Yoriko Wada, Tomohito Otobe, Ryuji Itakura

[序] 高強度レーザーパルスを固体表面に照射して高密度電子励起(電子正孔対生成)を起こすと、プラズマ状態が形成された後、電子エネルギーが原子核の運動エネルギーに変換されることでアブレーションが進行する。我々のグループでは、金属や半導体のフェムト秒レーザーアブレーションで観測される膜剥離過程が、バンドギャップの大きな透明材料でも起きることを示した[1, 2]。しかしながら、電子励起からアブレーションに至るまでの機構は明らかでなく、それを解明することが本研究の目的である。

高強度レーザーパルスによって生成した励起電子は、その密度で定義されるプラズマ周波数 ω_p より低い周波数の光を強く反射する。

$$\omega_p = (ne/\epsilon_0\mu)^{1/2} \quad (1)$$

ここで、 n は電子正孔対密度、 e は電荷、 ϵ_0 は真空での誘電率、 μ は電子正孔対の換算質量である。我々は、高強度フェムト秒レーザーパルス照射による高密度電子励起が真空紫外領域における超高速光スイッチとして働くことを利用して、周波数分解光ゲート(FROG)法による真空紫外パルスの波形・位相計測が可能であることを実証した[3, 4]。一方、短パルスのプローブ光を利用した時間分解反射率計測により、励起電子密度の時間変化を追跡することが可能である。

本研究では、近赤外の高強度・フェムト秒レーザーパルスによって熔融石英表面に生じる高密度電子励起状態の生成から緩和までの過程を反射分光で追跡する。式(1)より、プラズマ周波数は励起電子密度の平方根に比例することから、より高密度の励起電子状態を観測するためには、高周波数(短波長)のプローブ光が有効である。そのため、真空紫外(VUV)域のプローブ光を利用した。

[実験方法] チタン・サファイア増幅器出力からの基本波パルス(中心波長 795 nm, パルス幅 ~ 80 fs)を、パルスバルブによって高調波ビームライン内に導入された Xe ガスジェットに集光し、発生した 5 次高調波(160 nm)を VUV プローブパルスとした。VUV パルス

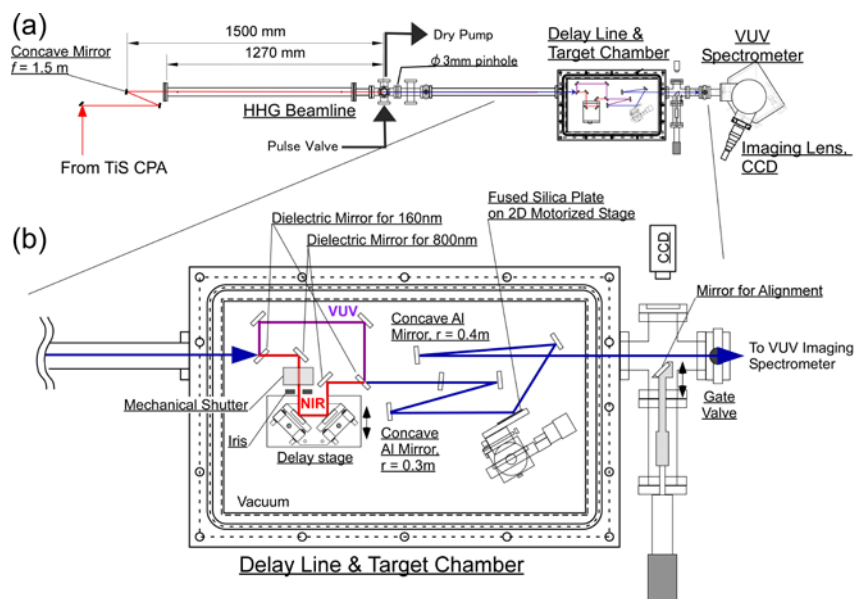


図 1. 実験装置図。(a) 全体図と、(b) ターゲットチャンバーの拡大図。

は誘電体多層膜ミラー(160 nm 反射、795 nm 透過)によって基本波と分離され、光学遅延を経たのち、再び多層膜ミラーによって同軸に合流させた。基本波パルスおよび VUV パルスを凹面鏡で石英基板上に集光し、反射された VUV パルスを VUV 分光器に入射して反射スペクトルを測定した。遅延時間を変えながら測定を行うことでスペクトルグラムを取得し、FROG 解析によって VUV パルス波形と VUV 反射率の時間変化を同時に抽出した[2, 3]。

[結果と考察] 図2(a)は実測されたスペクトルグラム、図2(b)は FROG 解析によって再構築されたスペクトルグラムである。2つの一致は良く、FROG 解析の信頼性を示している。図3は FROG 解析によって得られた VUV プローブパルス強度および位相、図4は VUV 反射率および反射位相の時間変化を示す。1つのスペクトルグラムを測定・解析することで、これらの情報を同時に決定できることが本手法の利点である。また、図3に示すように、VUV プローブパルスは < 20 fs の時間幅を有し、フーリエ変換限界に近いことがわかった。すなわち、5 次高調波を利用することで、基本波の $< 1/4$ の時間幅を持つプローブパルスが利用できることになり、短い時間スケールの情報を精度良く求めることが可能である。

図4に示す通り、VUV 反射率は基本波ポンプパルスのパルス幅と同程度の時間(100 fs 程度)で立ち上がっており、ポンプパルス内で電子励起が完了していることが分かる。また、反射率が一定の状態が ~ 500 fs 程度続いた後、ポンプパルス照射から ~ 8 ps ほどでポンプパルス照射前の反射率程度にまで低下した。従って、数 ps の時間で励起電子密度が減少していることを示している。

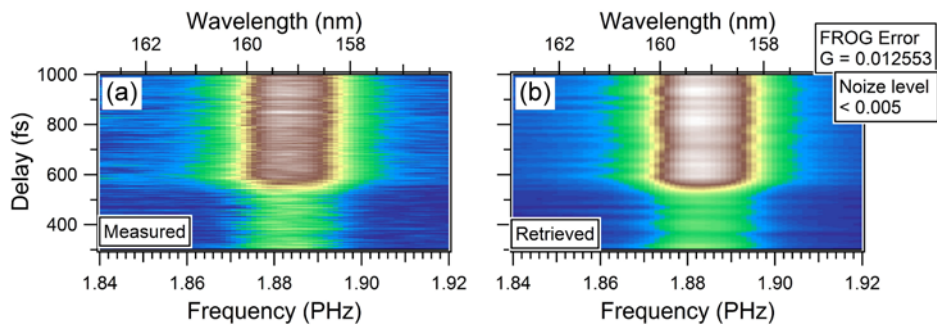


図 2. (a) 測定されたスペクトルグラムと、(b)再構築されたスペクトルグラム

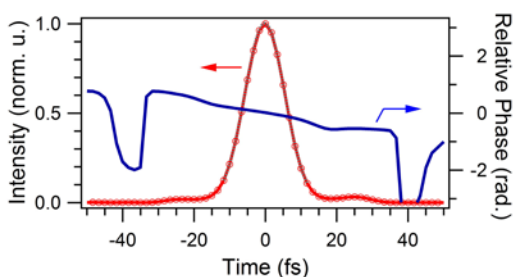


図 3. FROG 解析で得られた VUV パルス強度(赤線)と位相(青線)

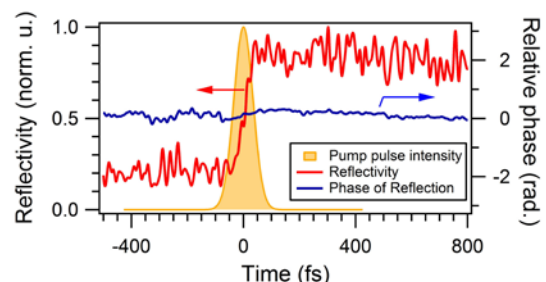


図 4. FROG 解析で得られた VUV 反射率(赤線)と反射位相(青線)。黄色ハッチはポンプパルス強度。

[参考文献]

- [1] T. Kumada, H. Akagi, R. Itakura, T. Otobe, and A. Yokoyama, *J. Appl. Phys.* **115**, 103504 (2014).
- [2] T. Kumada, H. Akagi, R. Itakura, T. Otobe, M. Nishikino and A. Yokoyama, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 221605 (2015).
- [3] R. Itakura, T. Kumada, M. Nakano, and H. Akagi, *Opt. Express* **23**, 10914 (2015).
- [4] R. Itakura, T. Kumada, M. Nakano, and H. Akagi, *High Power Laser Sci. Eng.* **4**, e18 (2016).