

時間分解真空紫外反射分光を用いた 強レーザー場中透明固体材料の時空間ダイナミクス

量研関西研

○板倉隆二, 和田資子, 赤木 浩, 乙部智仁

Time-resolved VUV reflection spectroscopy of spatio-temporal dynamics of transparent solid in intense laser fields

○Ryuji Itakura, Yoriko Wada, Hiroshi Akagi, Tomohito Otobe
Kansai Photon Science Institute, QST, Japan

【Abstract】 We investigate spatio-temporal dynamics of transparent solid excited by an intense laser pulse. Time-resolved vacuum ultraviolet (VUV) reflection spectra of fused silica (FS) and polyethylene terephthalate (PET) are measured in a spatially resolved manner. The time-dependent VUV reflectivity of both FS and PET increases sharply by the irradiation of the pump laser pulse, and reaches the peak within 100 fs. It is found that PET exhibits faster rising of the reflectivity than FS. The decay from the peak proceeds on the picosecond timescale. PET exhibits faster decay than FS. The difference between FS and PET is ascribed to their bandgaps and densities. It is also revealed that the VUV reflectivity depends on the spatial position within the area as small as the focal spot size of the VUV pulse, reflecting the spatial profile of the excited electron density and the curvature of the excited surface.

【序】 フェムト秒レーザーパルスを固体材料に集光照射すると、非熱的な高精度加工が実現することが知られている。我々は、透明材料（石英、有機透明材料）のフェムト秒アブレーションにおいて、スパレーションと呼ばれる膜剥離が起こり、剥離した膜が等速飛行していることを明らかにした [1,2]。バンドギャップの大きい透明材料は、金属や半導体に比べるとアブレーション閾値が大きく、アブレーションを起こすために大きな励起エネルギーが必要であることから、一部の結合のみが切断される膜剥離が起こることは予期せぬ発見であった。本研究は、レーザーによる電子励起から膜剥離に至るエネルギー移動、緩和、さらには体積膨張などの時空間ダイナミクスを明らかにすることが目的である。近赤外のフェムト秒強レーザーパルスをポンプ光とし、真空紫外（VUV）パルスをプローブ光とする。プラズマの電荷密度は共鳴周波数の自乗に比例するため、短波長のプローブ光は、高い励起電子密度を有するプラズマの観測に効果的である。また、本研究では、反射パルスの空間強度分布にも着目し、強レーザー励起された透明固体材料の時空間ダイナミクスを観測した。

【実験】 チタン・サファイアレーザーの出力パルス（80 fs, 795 nm, 10Hz）を真空中に設置したパルスバルブから噴射された Xe 原子ビームに集光し、高次高調波を発生させた。VUV 領域の 5 次高調波（ 5ω : 160 nm, 20 fs）を誘電体多層膜ミラーにより反射・分離し、透過した基本波（ ω : 795 nm）の光学遅延を制御した。もう一枚の誘電体多層膜ミラーを用いて、 5ω と ω とを再び同軸に合わせ、入射角 $\sim 55^\circ$ 、P 偏光として試料基板（熔融石英（FS）およびポリエチレンテレフタレート（PET））へと集光した。測定中、試料基板の新しい表面にレーザーパルスが照射されるように、2次元電動ステージを用いて試料を平行移動させた。試料表面にて反射されたプローブ光は瀬谷波岡型分光器の入射スリットへ像転送され、分光器の出射口に MCP およびフォスファースクリーンを設置し、スクリーン上に蛍光として現れる 5 次高調波のスペクトルと縦方向の空間分布の 2 次元分布を CCD カメラによってシングルショット測定した。

ポンプ光のフルエンスはFSのアブレーション閾値 (3.3 J/cm^2) をわずかに超える程度とし、FS と PET への照射は同じ条件にて行った [3, 4]。

【結果と考察】得られた時間分解反射率の空間分布(縦方向)の2次元プロットを Figs. 1a, 1b に示す。遅延時刻 $\tau=0$ 付近の立ち上がりを Fig. 1c に拡大表示した。FS、PET 両方とも反射率が急峻に増加し、100 fs 程度でピークに到達することがわかる。さらに詳細を見ると PET の方が、早い時刻から立ち上がりが始まる。このことは、PET が 4.4 eV、FS は 9 eV 程度であるバンドギャップの違いを反映していると考えられる。励起に必要な基本波の光子数は、それぞれ、3 光子と 6 光子と大きく異なる。励起に必要な光子数が多い FS の方がポンプ光のピーク時刻付近に励起確率が集中し、立ち上がりの傾きは急峻になる。

ピコ秒オーダーの反射率の減衰についても、PET の方が早いことがわかった。この減衰は、アブレーションの前駆的に体積膨張が起こり、電子密度が低下することに起因すると考えられる。PET は、炭素、水素、酸素からなる軽い原子により構成され、FS は質量数の大きなケイ素を含み、密度も PET の 1.27 g/cm^3 に対し、FS は 2.20 g/cm^3 と重い。この重さの違いが体積膨張の速度を決め、観測された減衰の時間と関連していると考えられる。

空間分布について詳細を見ると、FS、PET ともに、主たる信号の上部に減衰時間の長い成分 (赤線で囲まれた部分)、があり、緩和時間の異なる 2 つの成分が存在することがわかる。この 2 成分は、(1) 強レーザー励起によって膜剥離が起こる領域と(2) 励起後も剥離等が起こらず、表面が残留する領域の 2 つの領域をプローブしたものと考えられる。この 2 つの領域は、減衰時間だけでなく、信号の立ち上がり時間も異なる。上部の長寿命の領域は立ち上がり時間も遅く、励起表面の曲率の変化を反映しているものと考えられる。実際、信号の立ち上がり時間は空間位置によって変化しており、表面の膨張による反射光の広がり角度が変化していることにより説明できる。

反射率の増加は、励起電子密度に直接関係している。得られた時間分解反射率の空間分布に対して、Drude モデルに基づく反射率変化と空間原子密度および表面の曲率変化の評価を行い、電子励起から空間膨張に至る時空間ダイナミクスについて議論する。

【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).

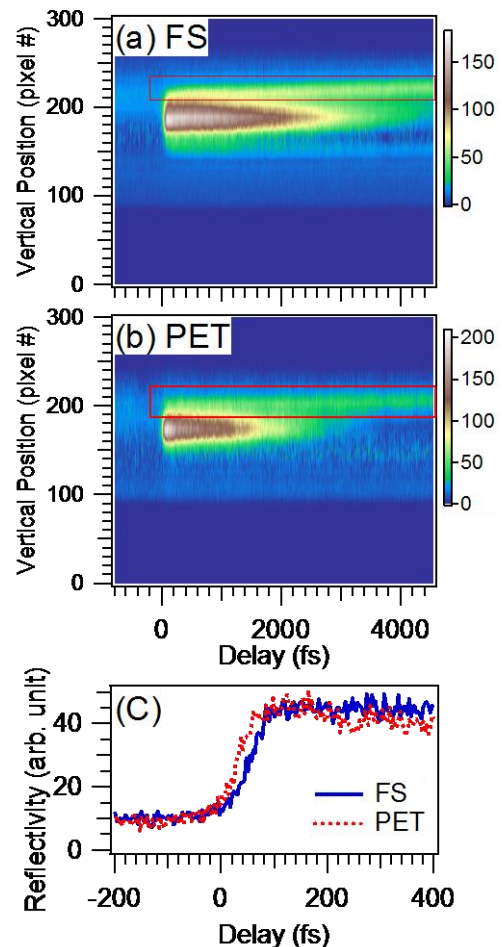


Fig. 1. Time-resolved spatial distribution of VUV reflectivity (160 nm) of (a) fused silica and (b) polyethylene terephthalate. (c) Reflectivity integrated over the vertical coordinate. The height of maps is in an arbitrary unit.