

1P016 ガラス内部でのフェムト秒レーザー誘起構造変化のリアルタイム観測

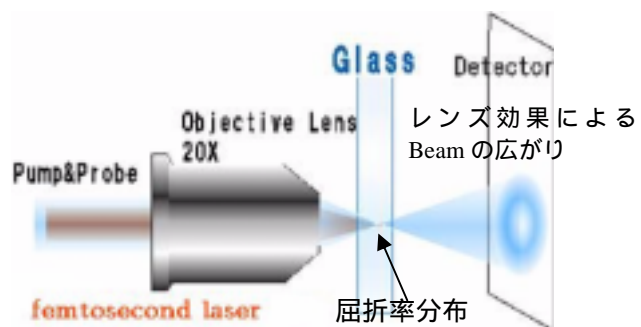
(京大院理) 坂倉政明, 寺嶋正秀

【序】フェムト秒レーザーを透明媒質内部に集光照射して構造変化を引き起こす現象は、近年、ガラスなどに三次元の構造を書き込む精密加工技術として注目されており、三次元光メモリー、光導波路、フォトニック結晶の加工などの応用研究が盛んにされている。レーザーの集光点では多光子過程やトンネルイオン化過程が起こり、その結果強い光励起では激しい熱膨張によって空洞が形成され、比較的弱い励起光では高密度の構造が形成されることが確認されている。このうち高密度の構造は、熱膨張から予想される構造と相反するものであり、そのメカニズムは議論の対象となっている。最近、いくつかの研究グループが、高温高压状態が高密度構造を引き起こす Driving force となっていると提案したが、具体的にどのようなプロセスを経て構造変化が起こっているのか全く明らかにされていない。我々は、メカニズムの解明にはレーザー照射部分の密度分布や温度分布の時間変化を明らかにすることが不可欠であると考え、過渡レンズ法を用いてダイナミクスの検出を試みた。

【実験】過渡レンズ法とは、光励起による屈折率変化をプローブ光の広がりや集光（レンズ効果）から検出する方法である(図 1)。通常はプローブ光の中心での光密度を検出する（過渡レンズ信号）が、信号強度から屈折率変化を求めるには、屈折率分布が Gaussian 形である必要がある。本研究で観測する現象は、集光したフェムト秒レーザーの強電場によって引き起こされるので、プラズマ発生・消失に伴う熱放出、短時間での温度上昇による熱歪みの発生と緩和などが予想される。従って、屈折率分布は通常の解析法が適用できないような複雑な形であるだろう。我々は従来の過渡レンズ法を改良して、プローブ光全体の画像の測定を行い、画像解析からレーザー誘起屈折率分布（過渡レンズ）の時間変化を得た。

実験は、波長 775nm、パルス幅 500fs のレーザー光を二つに分け、片方を 20 倍の対物レンズでソーダ石灰ガラスプレート内部に集光して構造変化を引き起こした。同時にもう一方のレーザー光を BBO 結晶に入射して得た 388nm の光（プローブ光）を励起光と同軸に対物レンズに入射して、構造変化領域を透過した後のプローブ光の Beam 形を CCD カメラによって測定した。時間分解は光学時間遅延によって行った。

【結果】プローブ光の遅延時間が励起光に対して -40ps と 720ps の時の観測面上でのプローブ光のビーム形を図 2 (a) に示す。構造変化が起こっていない時間(-40ps)でのプローブ光のビーム形状はほぼ Gaussian 形であるが、光励起後は劇的に Beam 形が変化する。すべての時刻においてこれらの形状は光軸に関して対称であったので、光軸を中心とした光強度の動



(図 1) 過渡レンズ法

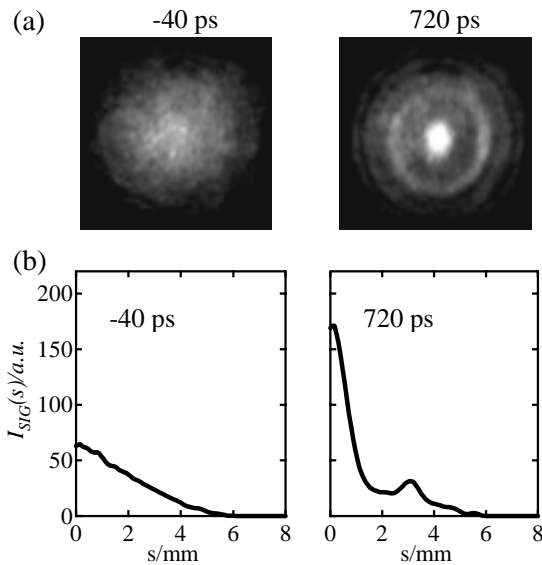
径分布を計算した(図 2 (b))。光強度の動径分布 $I_{SIG}(s)$ と過渡レンズによる位相変化分布 $\Delta\phi(r)$ は Fresnel の回折理論から次のように関係づけられる。

$$I_{SIG}(s) = \varepsilon \left| \frac{2\pi}{\lambda z_0} \int_0^\infty E_0(r) \exp \left\{ j \left(\Delta\phi(r) + \pi \frac{r^2}{\lambda z_0} \right) \right\} J_0 \left(2\pi \frac{rs}{\lambda z_0} \right) r dr \right|^2$$

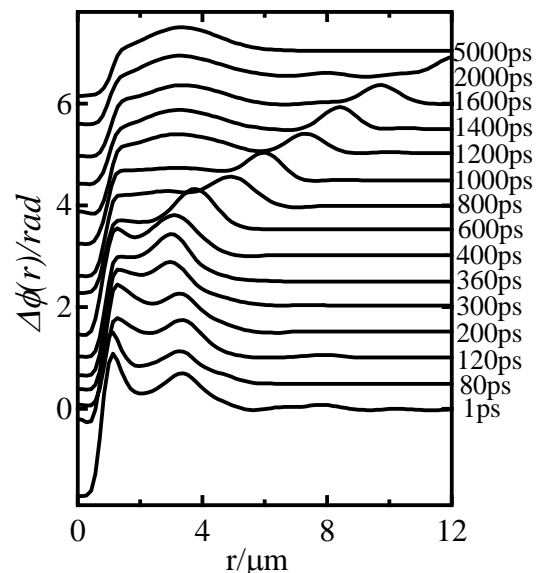
ここで、 s と r は観測面上、過渡レンズ面上での光軸からの距離、 ε は誘電率、 z_0 は過渡レンズから観測面までの距離、 λ はプローブ光の波長、 $E_0(r)$ は過渡レンズ上での Probe 光の電場、 $J_0(x)$ は 0 次の Bessel 関数である。

この式を用いて、全ての遅延時間での光強度の動径分布を fitting し、位相変化分布 $\Delta\phi(r)$ の時間変化を得た(図 3)。プローブ光の位相変化は構造変化領域での屈折率変化に比例するので、位相変化分布は屈折率変化分布に対応する。1ps には屈折率分布が大きく変化し、300ps 付近で幅が $1\mu\text{m}$ のピークが発生して時間経過とともに伝播する。この伝播するピークは急激な温度上昇によって生じた熱歪みの緩和によって発生した圧力波を表わし、伝播速度はソーダ石灰ガラス中での音速にほぼ一致した。この圧力波の大きさからレーザー集光部分の圧力上昇と温度上昇がそれぞれ 0.3GPa と 4000K 以上と見積もられた。一方、中央の位相変化に注目すると、20~100ps と 500~800ps で屈折率の上昇が確認された。これらの屈折率変化は急激な高温高压状態になったことによる構造変化に由来すると考えられ、最終的な高密度状態につながるダイナミクスであると予想される。

フェムト秒レーザー集光照射によるガラス内部での屈折率分布変化を観測したのは本研究が初めてであり、この観測結果がメカニズムの解明の大きな手がかりになると思われる。討論会ではメカニズムと関連した議論を行う予定である。



(図 2) CCD カメラで測定した Probe 光の強度分布



(図 3) フェムト秒レーザー集光照射後の屈折率分布による Probe 光の位相変化の動径分布