

令和 3 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03485

研究課題名（和文）高強度極端紫外光パルスによる非線形光学過程における非線形分極率の解明

研究課題名（英文）Contribution of non-linear polarization in non-linear optical process

研究代表者

岩崎 純史（Iwasaki, Atsushi）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・教授

研究者番号：30447073

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 1,900,000円

研究成果の概要（和文）：金属表面などの固体試料において、光パルスによる励起によって反射率が時間変化することがよく知られており、これは光吸収後の電子励起による電子温度の励起が、周りの格子系に緩和することによって起因する。本研究では、固体表面における紫外光パルス励起によって起きる反射率の時間変化が、過渡的な誘電率の変化によることを、実験とシミュレーションとの比較によって明らかにした。励起フルエンスを大きくすることによって、励起される状態が増えることによって、誘電率の変化を誘起していることがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

様々な物質と光との相互作用を応用した光を使った技術は、身の回り環境の計測やものづくりに用いられています。この研究では、光が物質と相互作用するとき、最初に起きる主な過程である光吸収と、物質がその結果どのように励起されて結合解離やアブレーションなどの物質加工に至るのか、ということについて、短い時間での物質の様子を実時間で観測する手法を用いて測定しました。この結果を再現するかシミュレーションしたところ、試料膜厚や光励起フルエンス、励起波長による実験条件の違いによる実験結果をよく再現することが明らかとなりました。

研究成果の概要（英文）：It is well known that on metal surface, the reflectance changes with time due to absorption and excitation by light pulses, which means that the excitation of electronic temperature by electronic excitation right after the absorption of photons is relaxed to the surrounding lattice system. In this study, it was clarified by comparison between experiments and simulations that the temporal change of reflectance caused by ultraviolet light pulse excitation on the solid surface is due to the transient change of permittivity. It was found that increasing the excited fluence induces a change in the permittivity by increasing the excited state.

研究分野：レーザー分光、強レーザー場科学

キーワード：フェムト秒レーザー アブレーション 過渡反射 二温度モデル

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年のレーザー技術の発展によって、パルス幅、波長が制御されたレーザーパルスの発生が可能となった。光と物質との相互作用において、物質が光に吸収されたのちに起きる物質固有の応答が、その後の反応にどのように影響を与えるかについて、精密に計測することが可能となっている。固体や気体試料では、光励起によって電子励起される。固体の場合には、電子励起後に物質の温度の上昇に至るが、励起が強い場合にはアブレーションなどの加工プロセスに至る。

現在広く用いられている連続光や短パルスレーザーによる金属のアブレーションにおいて、レーザー照射周辺部の熱ダメージ発生がプロセスにおいて問題となる。これは、連続光や短パルスレーザー照射によって金属を切断する場合などにおいて、熔融した箇所周辺部も熱伝導によって高温になり、熔融や変形する。そのため、熱の影響を受けてしまう領域は、レーザーを照射した領域よりも、大きくなり、加工品質に大きく影響する。近年、ピコ秒からフェムト秒のパルス幅を持つ超短パルスを用いたレーザー微細加工では、熱の影響が少ないと言われているが、実際の材料を加工する場合には、このような高品質の加工を実現するための条件出しが必要となる。その一方で、光励起後の電子やその緩和ダイナミクスについて様々な研究が行われている。光励起後に電子温度と格子温度の上昇を経て、物質の加工に至るプロセスでは、物質の光励起における非線形な応答が重要な役割を果たしていると考えられるが、その詳細は未だ明らかになっていない。レーザー加工に至るプロセスを実験と理論的に明らかにすることは、様々な材料の高品位な加工条件を学理によって予測するための重要な一歩となるため、その研究の進展が期待されている。

2. 研究の目的

本研究では、固体薄膜試料表面に紫外波長領域のフェムト秒レーザーパルス照射し、固体薄膜が光パルスを吸収した後の過程において、物質の非線形性がどのように現れるかを明らかにする。金属薄膜試料において、バンドギャップ付近の光の反射率は、物質の電子状態を鋭敏に反映した反射スペクトルを示す。このことを用いて、(1) 励起パルスの光吸収後に起きる電子励起とその後の格子励起の様子が、どのように反射率と結びつくのかについて、(2) 励起パルスの照射光密度であるフルエンスに対して、温度の上昇がどのような依存性を示すのか、(3) これらの現象がどのように理論的に理解できるのか、以上の点を明らかにすることを本研究の目的とした。

励起光を吸収した後、電子系への吸収を経て、格子温度上昇によって、物質の加工に至ると考えられているが、その際の電子温度の上昇と電子 - フォノン結合が、レーザー加工が起きる閾値付近でどのような振舞いを示すかについては明らかになっていない。そこで本研究では、加工閾値付近での電子励起ダイナミクスと電子 - フォノン結合について明らかにするために、フェムト秒レーザーパルスを用いた過渡反射率測定装置を開発した。

3. 研究の方法

過渡反射測定装置は、フェムト秒レーザーシステムの出力 (35 fs, 1 mJ/pulse) を薄膜偏光子によって励起パルスと検出パルスに分け、励起パルスを、 χ -BBO 結晶によって二倍波発生を行い 400 nm のパルスとした。プローブパルスは、サファイア板に残りのレーザーパルスを集光することによって白色光を発生させ、短波長透過フィルタによって 450 nm から 650 nm の領域のみとした。励起パルスとプローブパルスの遅延時間は、ステップモーターによって制御された光学遅延ステージを変化させた。反射スペクトルは、ファイバー分光器に導入して反射スペクトルを測定した。過渡反射スペクトル計測は、定量性が重要になるため、分光器の検出器は、レーザーのトリガーに対して同期され、レーザーパルス照射のパルス数が必ず決まった回数となるように設定した。また、バックグラウンド信号、熱雑音による信号などによる変化に対するスペクトル信号強度比をできるだけ高くするために、シャッターを導入して励起パルス光の導入を

制御し、励起パルスがオンの場合とオフの場合を同一遅延時間に対して複数回測定して平均化した。

4. 研究成果

厚み 40 nm, 50 nm の多結晶、および厚み 200 nm 単結晶金薄膜試料を用いた。波長 400 nm の紫外パルスによる励起の場合には、最大 6.7 mJ/cm² の励起フルエンスで測定を行った。また、波長 800 nm の近赤外パルスによる励起の場合には、最大 14 mJ/cm² の励起フルエンスで測定を行った。例として、波長 400 nm, フルエンス 5.9 mJ/cm² の励起パルスを厚さ 50 nm の多結晶金薄膜に照射した場合の過渡反射率変化を図 1(a)に示す。このスペクトルでは、遅延時間に対して、シャッターをオンの場合とオフの場合の差 ΔR を、オフの場合のスペクトル R で規格化した反射率変化 $\Delta R/R$ を示している。波長 530 nm より短波長側では、時間ゼロにおいて反射率変化 $\Delta R/R$ が増加しており、長波長側では減少しており、その後、 $\Delta R/R = 0$ に向かって減衰していることがわかる。これは、励起パルスによって、フェルミ準位付近に電子励起され、時間とともに緩和する様子を表している。バンド間遷移より光エネルギー側の波長 530 nm より短波長側では、電子の占有軌道である d バンドより励起されフェルミ準位より高エネルギー側の電子分布が増加し、反射率が増加すると考えられる。厚みの異なる試料に対しては、全体的な過渡反射率スペクトルは似た傾向を示すが、最大反射率変化や減衰時間などが異なることがわかった。

過渡反射率を理論的に理解するための方法として、電子温度 T_e と格子温度 T_l の時間 t に対する微分方程式として与えられる二温度モデルを用いた。以下に微分方程式を示す。

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla(\kappa \nabla T_e) - G(T_e - T_l) + S(r, t)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = G(T_e - T_l)$$

ここで、 C_e 、 C_l はそれぞれ電子とフォノンの熱容量、 G は電子-フォノン相互作用、 $S(r, t)$ は入力したレーザーパルスによる吸収を表す。 $S(r, t)$ には、実際のレーザーパラメタから計測した値を用いた。また、 C_e と G は文献値を用いてシミュレーションを行った。励起フルエンスに対して、到達する電子温度最大値は上昇する。得られた電子温度、格子温度は、それぞれバンド間遷移に起因する誘電率、およびバンド内遷移に起因する誘電率として、誘電率の時間依存性をおよび反射率の時間依存を求めた。この時、バンド間遷移に起因する誘電率として、Joint density-of-state から計算し、バンド構造は文献値のものを採用した。バンド内遷移に起因する誘電率として、Drude モデルを用いた。また、試料の誘電率変化を検証するため、試料の定常状態における誘電率の評価を、分光エリプソメータ M-2000DI-T (J. A. Woollam 社製) を用いて行った。波長 300 nm から 1000 nm の範囲の入射光を、厚さ 50 nm の多結晶金薄膜試料に入射し、その入射角を変化させながら反射率測定を行った。得られた反射率スペクトルを再現するように、モデル関数を用いた最小自乗解析を行った結果誘電率 ϵ_1 、 ϵ_2 を得た。Drude モデルのパラメタは、定常状態の誘電率を再現する値を用いた。これらの結果を用いて、シミュレーションした過渡反射率測定結果を図 1(b)に示す。実験結果をばば再現する結果が得られた。多結晶試料では、励起フルエンスや厚みを変化させても、シミュレーションによって反射率変化をよく再現できた。一方で、単結晶試料の場合には、フルエンスが 3 mJ/cm² 以上ではシミュレーションで反射率変化を再現できず、予測より大きな反射率変化が現れた。これは、励起パルスの吸収によって起きる電子分布に起因する非線形効果の可能性が挙げられ、励起光の多光子吸収やカスケード吸収によるものと考えられる。更なる検証を行うためには、ダメージ閾値近傍まで、反射率変化を精密に測定すること、および、二温度モデルに用いているパラメタの温度依存性について検討が必要だと考えられる。また、実験では正の過渡反射率変化と負のかと反射率変化を与える波長は変化しているのに対して、シミュレーション結果では一定の値を示している。この原因については、文献においても様々な議論があり、今後検討を進める必要がある。

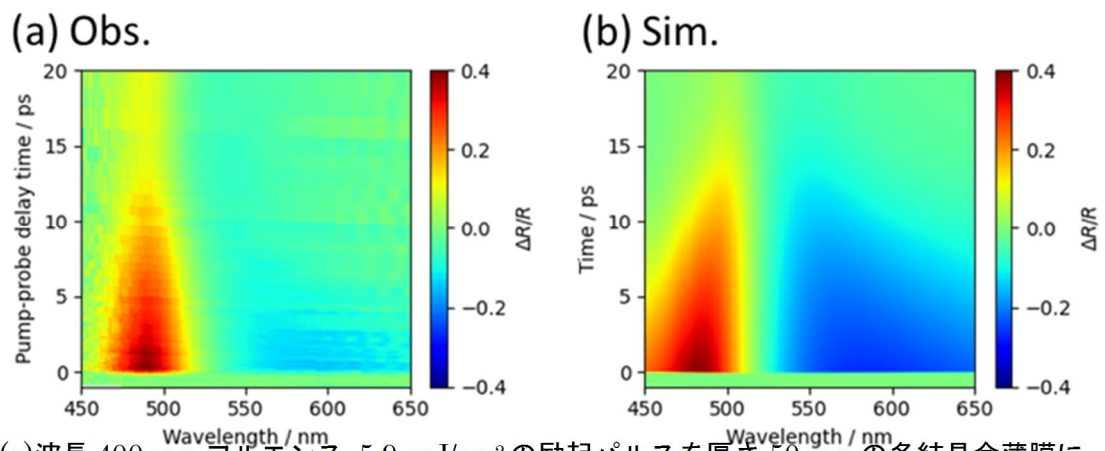


図 1(a)波長 400 nm、フルエンス 5.9 mJ/cm² の励起パルスを厚さ 50 nm の多結晶金薄膜に照射した場合の過渡反射率と、(b)同条件におけるシミュレーション結果。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 岩崎純史, 山内 薫	4. 巻 30
2. 論文標題 サブフェムト秒分解能で観る光の場の中の分子および固体の超高速ダイナミクス	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 光アライアンス	6. 最初と最後の頁 28-33
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Astushi Iwasaki, Ryosuke Hayashi, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Ultrafast electron relaxation process after optical excitation of gold thin film at 400 nm by transient reflectometry
3. 学会等名 第13回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Atsushi Iwasaki
2. 発表標題 Next generation soft X-ray light sources and applications
3. 学会等名 Symposium on Recent Development in Ultrafast Intense Laser Science (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岩崎 純史
2. 発表標題 シートFELによるコヒーレント極端紫外パルス光源
3. 学会等名 PF研究会「高繰り返し極短パルス光源の未来」(招待講演)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------