

高繰り返しシングルショット分光を用いた $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ 薄膜の

LIPPS 形成に伴う超高速ダイナミクスの観測

Observation of Ultrafast Dynamics Associated with Multi-Shot LIPPS Formation in $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ Thin Films Using High Repetition-Rate Single-Shot Spectroscopy横国大院理工¹, 筑波大², 東大理³○(D2)小林真隆¹, 浅川寛太¹, 嵐田雄介^{1,2}, 小西邦昭³, 湯本潤司³, 五神真³, 武田淳¹, 片山郁文¹Yokohama National Univ.¹, Univ. of Tsukuba², The Univ. of Tokyo³○(D2)M. Kobayashi¹, K. Asakawa¹, Y. Arashida^{1,2}, K. Konishi³, J. Yumoto³,M. Kuwata-Gonokami³, J. Takeda¹ and I. Katayama¹

E-mail: katayama-ikufumi-bm@ynu.ac.jp

フェムト秒パルス光を用いたレーザーアブレーションでは、アブレーション閾値付近でサンプル表面上に照射するパルス光の回折限界よりも小さい周期的なナノ構造(LASER-induced periodic surface structures, LIPSS) が形成される。この過程はプラズモン伝播に係わるフェムト秒オーダーの現象により生じるとされ[1]、LIPSS形成過程におけるマルチパルス照射の影響にも興味を持たれている。しかしながら、繰り返し計測を基礎とするこれまでのポンプ・プローブ分光法では、LIPSS形成過程のカギとなる光励起後の超高速ダイナミクスを調べることは難しかった。そこで我々は、最近開発した高繰り返しシングルショット分光法[2,3]を駆使して、マルチパルス照射に伴うLIPPS形成やアブレーション過程の超高速ダイナミクスの観測を行った。サンプルとしてカルコゲナイド合金 $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST) 薄膜を用い、アブレーション閾値付近の励起密度におけるLIPPS形成過程及びアブレーションのダイナミクスをパルス照射ごとの過渡応答変化から調べた。

光源にYb:KGW再生増幅レーザー (中心波長1028 nm, 繰り返し75 kHz, パルス幅290 fs, 出力0.2 mJ)を用い、光パラメトリック増幅器を通して中心波長1300 nmのプローブ光を発生させ、回折格子対を用いて40 ps程度のパルス幅に伸張した。ポンプ光には基本波の1028 nmを使用し、サンプルはサファイア基板上に20 nm厚で蒸着したGST薄膜を用いた。プローブ光はサンプル透過後にチャープファイバースラッググレーティング(CFBG)を通し時間的に拡張してから、オシロスコープと高速フォトダイオードを用いてパルス波形を検出し、その変化から過渡応答を検出した。

Fig. 1(a)にポンプ光 (励起密度29 mJ/cm²) を400発照射した後のGST表面のレーザー顕微鏡画像を示す。コントラストの濃い部分が結晶相からアモルファス相へ相変化した領域であり、更に照射領域全体にわたり高さ~40 nm、溝周期~900 nmのLIPSSが形成されている[4]。LIPSS領域におけるマルチパルス照射時の過渡透過率変化をFig. 1(b)に示す。ポンプ光1発目で結晶相からアモルファス相へ相変化した、2発目以降からアモルファス相での応答が得られたが、照射回数の増加に伴い過渡透過率変化の減衰が観測された。これはLIPSS形成に伴いGSTの表面形状が変化し、ポンプ光で励起されたプラズモン-ポラリトンの伝播特性が変調を受けたためだと考えられる[5]。

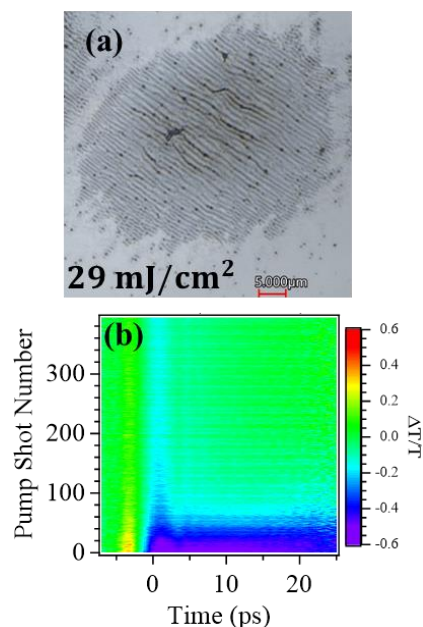
[1] G. Miyaji and K. Miyazaki, *Opt. Exp.* **16**, 16265 (2008).[2] M. Kobayashi *et al.*, *Sci. Rep.* **6**, 37614 (2016).[3] M. Kobayashi *et al.*, *Opt. Lett.* **44**, 163 (2019).[4] Y. Katsumata *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 031907 (2014).[5] K. Makino *et al.*, *Sci. Rep.* **8**, 2914 (2018).

Fig. 1 (a) GST surface after the irradiation of 400 pump pulses observed with a laser microscope. The length of scale bar is 5 μm . (b) Normalized transient transmission changes ($\Delta T/T$) of GST observed at surface shown in (a). The vertical axis corresponds to the number of irradiated pump laser shots repeated every 66.5 μs (15 kHz), and the horizontal axis is the pump-probe delay time.