



講座 レーザー生成プラズマの新しい温度、密度領域における物性とシミュレーション

4. 固体物性からみたレーザーアブレーション

4. Laser Ablation: From the Viewpoint of Solid State Physics

富田卓朗

TOMITA Takuro

徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部

(原稿受付：2013年5月21日)

三次元微細加工や非熱加工など、他の加工法にはない独特の加工技術としてフェムト秒レーザーアブレーションが注目を集めているが、その基礎的な物理過程はほとんどわかっていないのが現状である。また、フェムト秒レーザー照射は非常に短い時間（ ~ 100 fs）で非常に高いエネルギー（ $\sim 10^9$ J/cm³）を微小な領域（ ~ 1 μ m³）に注入できる唯一の手法であることから、局所的に高温・高密度状態を生成する手段として利用できる可能性もある。そこで、本章では、フェムト秒レーザー照射によって自発的に固体表面に形成されるレーザー誘起ナノ周期構造や、フェムト秒レーザー照射による物性改質、また、フェムト秒レーザー照射によって誘起される衝撃波と、それに伴う残留応力について、最近の研究成果を紹介するとともに、これらの結果からレーザー生成プラズマの新領域開拓についての展望を述べる。

Keywords:

femtosecond laser ablation, Coulomb explosion, laser-induced nanostructure, Raman spectroscopy, transmission electron microscopy, high density plasma, shock wave, warm dense matter

4.1 レーザーアブレーションの歴史的背景

レーザーアブレーションとは、レーザー照射により固体材料表面が切断、除去、変形、改質される現象のことであり、1960年のMaiman[1]によるルビーレーザー発明後、まもなくの1962年にBreechとCross[2]によってメリーランド大学における分光学の国際会議で初めて発表された。その後、穴あけ、切断から、表面における自発的構造形成などの形態変化に留まらず、レーザー照射による物性改質などに至るまで様々な現象が報告されるようになった[3-5]。アブレーションに用いるレーザーとしては1990年頃までは連続波やナノ秒のパルスレーザーを用いた研究がほとんどであり、その加工・改質過程は二温度モデルなどの熱的なプロセスで説明されてきた。

一方、1990年代に入ると自己モード同期とチャープパルス再生増幅法による高強度フェムト秒レーザーが市販されるようになり、フェムト秒レーザーを用いた加工・改質が注目を集めるようになった。フェムト秒レーザーは数fs～数100fs（フェムト秒）の時間幅で強力な光パルスを発生することのできるレーザー光源であり、再生増幅システムを使用することでテーブルトップクラスのレーザーでもmJ（ミリジュール）クラスの高強度なフェムト秒パルスを容易に発生することができる。この強い光電場を用いることで物質の化学結合を非熱的に切断することが可能になり、フェムト秒レーザー加工という新しい応用分野が開拓されつつある[6,7]。

また、フェムト秒レーザー照射では、光によって励起された電子エネルギーが格子に緩和するよりも早く、照射が完了するため、強い照射によって、高温・高圧力状態をつくり出すことが可能である。このフェムト秒レーザー照射によってつくり出される過渡的な状態は固体密度（ガラスを例にとると2～3 g/cm³）程度で数千Kの高温に達することもある。この状態はプラズマ物理学におけるwarm dense matter (WDM) 状態に迫るものであり、巨大惑星内部の状態に匹敵する[8,9]。つまり、フェムト秒レーザー照射は惑星内部における物質状態を模擬する手段として用いることができる可能性があり興味深い。

そこで、本章では、フェムト秒レーザー用いた加工・改質法について述べるとともに、その基礎過程およびレーザープラズマとの関連およびその将来展望について述べる。

4.2 フェムト秒レーザーアブレーションによる非熱的加工

フェムト秒レーザー加工がナノ秒や連続波のレーザー加工と大きく異なる点の一つは、パルス幅が非常に短い（ ~ 100 fs）ため、レーザー照射中の熱拡散が非常に小さいということである。レーザーアブレーションに伴う詳細な熱拡散の解析は他の文献[10]に詳しく書かれているので詳細は割愛し、ここでは、パルス時間幅の間に起こる熱拡散長をフェムト秒とナノ秒のレーザーを例にとって比較する。

一般に、拡散長 l_{diff} は、 κ を拡散係数、 τ をレーザーのパルス幅とすると、

$$l_{\text{diff}} = \sqrt{2\kappa\tau}$$

で与えられる。たとえば、室温における鉄の拡散係数 κ は、 $2.3 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 程度であるので、拡散長 l_{diff} は 100 fs のパルス幅では 2.1 nm、10 ns のパルス幅では 0.68 μm となる。したがって、熱によって変質される領域はフェムト秒レーザーの方が約 2 桁も小さいことになる。他の物質においても拡散係数によって拡散長は異なるが、フェムト秒レーザーの方で拡散長が約 2 桁小さいことは基本的には変わらない。また、フェムト秒レーザーによる拡散長 (2.1 nm) はフェムト秒レーザーを用いた最小加工サイズ (~200 nm) に比べて十分に小さいので、実質的にはフェムト秒レーザー加工における熱的な影響は無視できる [10]。ただし注意しておきたいのは、フェムト秒レーザー加工でも熱的影響が無視できない場合もあるということである。ここで述べた状況はフェムト秒レーザー照射によって材料除去が速やかに行われることを仮定しており、照射強度や照射フルエンスの空間分布を適切に選択しないと熱影響は小さくできない。一般に、熱影響は照射強度が強すぎても弱すぎても大きくなるため、その中間の適切な領域を選択することが熱影響の少ない加工を実現するためには必須である。

一方で、フェムト秒レーザーを用いた加工においては熱拡散の抑制のみならず、加工プロセスそのものにもナノ秒や連続波のレーザーによるプロセスとは大きな違いがある。図 1 に示すように、ナノ秒や連続波のレーザーにおいてはレーザー被照射部が加熱され、蒸発することにより材料の除去が起こる。それに対し、フェムト秒レーザーにおいては、クーロン爆発と呼ばれる光励起によって生じる原子間結合の直接的な切断によって材料の除去が起こる。具体的には、フェムト秒レーザー光のような強い光電場が固体表面に入射すると、原子間の結合に関与する電子が直接剥ぎ取られる。残されたイオンはクーロン力によって反発し、固体表面から飛散する。通常、ナノ秒や連続波の加工では電子励起のあと、電子格子相互作用を通じて、熱エネルギーが格子に伝達されることで加工周辺部への熱影響を生じるが、クーロン爆発によるアブレーションは、ピコ秒

以下の時間領域で起こるので、格子へのエネルギー緩和が起こるよりも早く被照射部の除去が起こり、周囲への熱影響がほとんど生じない。このように、クーロン爆発は、フェムト秒レーザーに特有の高光電場下のみで起こるアブレーションプロセスの一つである [11]。これらのことから、フェムト秒レーザー加工が非熱的加工と呼ばれているゆえんである。フェムト秒レーザーによる非熱的加工の一例として、参考文献 [12] に挙げるホームページの画像が興味深い。この画像によると、フェムト秒レーザー照射によってマッチ棒の先端部 (火薬部) が発火することなく切断できている。それに対し、フェムト秒レーザー照射以外のレーザー照射では、マッチ棒の先端部は発火してしまう。これは、フェムト秒レーザーが通常の加工法と比べて、加工部周辺にほとんど熱影響を与えない加工法であることの好例である。

4.3 レーザー誘起ナノ周期構造

レーザー誘起ナノ周期構造は通称“リップル構造”と呼ばれ 1965 年に Birnbaum がルビーレーザーの光をゲルマニウム表面に照射することで発見した [13]。リップル構造は一般に光の電場方向に垂直に形成され、周期は照射レーザーの波長にほぼ等しいことが知られていた。リップル構造の生成メカニズムについては理論、実験の両面から活発に研究がなされ、1980 年代前半頃には Sipe らによって入射光と固体表面からの散乱光、および表面電磁波との干渉によって発生するとする説が提唱され、幅広く受け入れられている [14-17]。このモデルによると、形成されるナノ周期構造の周期は、

$$\Lambda = \frac{\lambda}{1 \pm \sin \theta}$$

となる。ここで、 Λ は生成されるナノ構造の周期、 λ は入射レーザー光の波長、 θ はレーザーの入射角である。分母の \pm は、半導体ではプラスをとり、金属ではマイナスをとることが知られている。具体的には、半導体ではリップル構造形成中にサンプル表面で前方散乱が起こることで、光入射方向と同方向に表面電磁波が伝搬する。一方で、金属ではリップル構造形成中にサンプル表面で後方散乱が起こることで、光入射方向と逆方向に表面電磁波が伝搬する [5, 18]。

しかし、近年のフェムト秒レーザーの照射実験により、このモデルでは説明できない照射波長の数分の一 (1/2 以下) の周期をもつリップル構造が数多く報告されてきている [19-21]。レーザー加工分野では、レーザーの波長程度の周期をもつリップル構造のことを“粗いリップル構造 (coarse ripple)”，フェムト秒レーザー照射特有の波長の数分の一の周期をもつフェムト秒レーザー照射特有のナノ周期構造のことを“細かいリップル構造 (fine ripple)”と呼んでいる。図 2 に我々がフェムト秒レーザー照射によって単結晶シリコンカーバイド (SiC) 上に作製したリップル構造の走査型電子顕微鏡像を示す。照射に用いたフェムト秒レーザーの波長は 800 nm、照射パルスエネルギーは

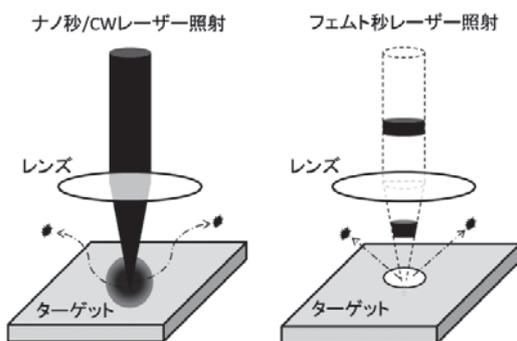


図 1 ナノ秒や連続波 (CW) レーザーによるレーザーアブレーションとフェムト秒レーザーアブレーションの違い。

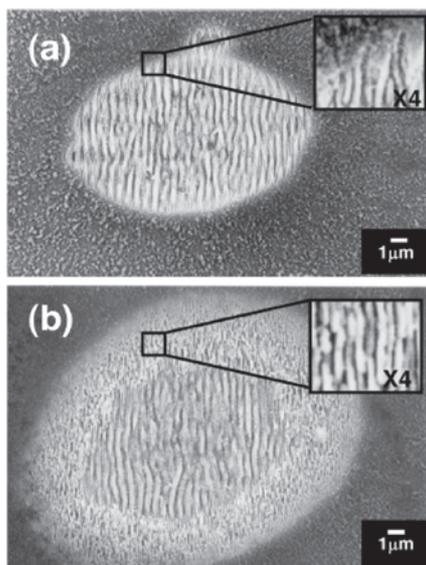


図2 フェムト秒レーザー照射したSiC表面の走査型電子顕微鏡像 (a)粗面化していない ($Ra:0.0002 \mu\text{m}$) 基板上的ナノ周期構造. 中心部に粗い ($\sim 500 \text{ nm}$) 周期構造のみが観測される. (b)粗面化した ($Ra:0.005 \mu\text{m}$) 基板上的ナノ周期構造. 中心部の粗い周期構造に加え, 周辺部に細かい ($\sim 250 \text{ nm}$) 周期構造も観測される. (参考文献[23]より)

$3 \mu\text{J}$, 照射パルス数50である. 粗いリップル構造が中心部, 細かいリップル構造が周辺部に形成されており, 照射レーザー光のビームプロファイルはガウス型をしていることから, 各リップル構造が局所フルエンスに応じ, 明確な境界をもって形成されていることがわかる[22]. さらに, 図2 (a)は初期表面粗さ (Ra) が $0.0002 \mu\text{m}$ (平坦な試料), 図2 (b)は初期表面粗さが $0.005 \mu\text{m}$ (粗い試料) のSiCに対して照射したものであるが, 粗い試料上へは細かいリップル構造が大面积でできているのに対し, 平坦な試料上へは細かいリップル構造がほとんどできていない. 一方で, 粗いリップル構造の形成面積は両方の試料でほぼ同じ, すなわち粗いリップル構造の形成閾値は初期表面粗さの影響を受けないことがわかる. このことから, 細かいリップル構造の形成は, 表面凹凸によるポテンシャル変調の影響により, 光励起キャリアが局在化するためであることが示されたが, その詳細な過程は明らかになっていない[23]. また, これまでは複数パルスの照射がリップル構造形成に必須であると考えられていたが, 必ずしもそうではないことがシリコン基板へのフェムト秒レーザー照射によって明らかになっている[24].

このように, 細かいリップル構造の生成については特に活発に議論が行われており, 様々なモデルが提唱されているがいずれも統一的な理解に至ってはいない. 現在, 議論されているモデルとしては,

1. 自己組織化モデル[25-27]
2. パラメトリック緩和モデル[28]
3. 表面プラズモンモデル[29, 30]

などがある. これらの詳細については, 各参考文献に譲るが, 以下にそれぞれの特徴を簡潔に示す.

1のモデルにおいては, フェムト秒レーザー照射によ

て生じる非平衡状態から緩和する際に自己組織化が起こるとするものである. イオンスパッターにおいてもフェムト秒レーザー照射と同様の構造が生じることから[31], フェムト秒レーザー照射におけるナノ構造生成についても同じメカニズムによるものであるとしている. しかし, フェムト秒レーザー照射に伴う自己組織化現象が具体的にどのような物理的過程によって生じているかは明らかにされておらず, 今後明らかにすべき課題も多い.

次に, 2のパラメトリックモデルにおいては, 入射レーザー光が表面プラズマ波にパラメトリック緩和する過程を考慮することによってフェムト秒レーザー照射による周期構造形成を説明するモデルで, 特定の強度範囲ではこのモデルで説明できることがわかっている. しかし, ナノ周期構造の形成ダイナミクスをどのように説明するかなどの問題点も残されている.

3の表面プラズモンモデルでは, フェムト秒レーザー励起によって固体表面に表面プラズモンポラリトンが生成され, それが周期的構造形成に繋がるとするものである. このモデルも, 精力的に検討され, 計算と実験的とのよい一致が見られているが, 強励起領域での分岐 (bifurcation) 現象などこのモデルでは説明が難しい実験事実もあり, 今後の解明が期待される.

最後に, レーザー波長程度の周期をもつナノ周期構造でも, 古典的な干渉モデルで説明できないものが報告されてきており[32], レーザー誘起ナノ周期構造の生成メカニズムに関する議論は今後も活発に続くものと予想される.

4.4 フェムト秒レーザー照射による物性改質

ここまではフェムト秒レーザーを加工閾値近傍の強度で照射した場合の表面形状変化について説明してきた. フェムト秒レーザー照射に伴って形状のみならず物性の変化も起こることがよく知られている. また, フェムト秒レーザーアブレーション過程を理解するためには表面形状のみならず物性の観点からのアプローチも重要である. しかし, これまで, フェムト秒レーザー照射に伴う物性変化を議論した研究は形状変化を議論した研究と比較して非常に少なかった. その中で, 我々は, 共焦点顕微鏡ラマン分光システムと透過型電子顕微鏡観察を用いてレーザー誘起ナノ周期構造の物性分析を行ったのでその結果を紹介する.

ラマン散乱の励起光源としては波長 488 nm の半導体レーザーを用い, 測定系の空間分解能は約 $1 \mu\text{m}$ であった. ラマン測定の結果, 図3 (a)に示すように粗いリップル構造上で単結晶 4H-SiC のピークに加え, 矢印で示す位置に, アモルファスシリコン (a-Si), アモルファス炭素 (a-C) の D バンドおよび G バンド, アモルファスシリコンカーバイド (a-SiC) のピークが確認できた. さらに, 細かいリップル構造上でも粗いリップル構造と同様に, 単結晶 4H-SiC , a-Si, a-C, a-SiC のピークが確認できた. また, 粗いリップル構造と比較すると細かいリップル構造でアモルファス相からの信号がより強いことが明らかになった[33]. このアモルファス相の深さ方向の分布を議論するため透過型電子顕微鏡を用いた観察を行った. その結果, アモルファス相の厚

さは数 10 nm でナノ周期構造の表面に沿ってほぼ一様に分布し、それより内部では単結晶の SiC のみが観測された [34].

また、SiC 以外の材料においても、同様の傾向は観測されている。井澤らは、図 4 に示すように、シリコンにピークフルエンス 0.21 J/cm^2 でフェムト秒レーザーパルスを 20 発照射した断面の透過型電子顕微鏡観察を行った。この結果から、フェムト秒レーザー照射部に数 10 nm 程度の均一なアモルファス層が生成されていることがわかる。特に、このアモルファス層の厚さは照射レーザーフルエンスや照射パルス数にほとんど依存しなかったということは注目に値する。これらの結果から、フェムト秒レーザー照射に伴う表面のアモルファス化や相分離現象は単結晶 SiC に限った現象ではなく、シリコンなどの他の物質でも観測されるフェムト秒レーザー照射によって普遍的に起こる現象と考えられる [35].

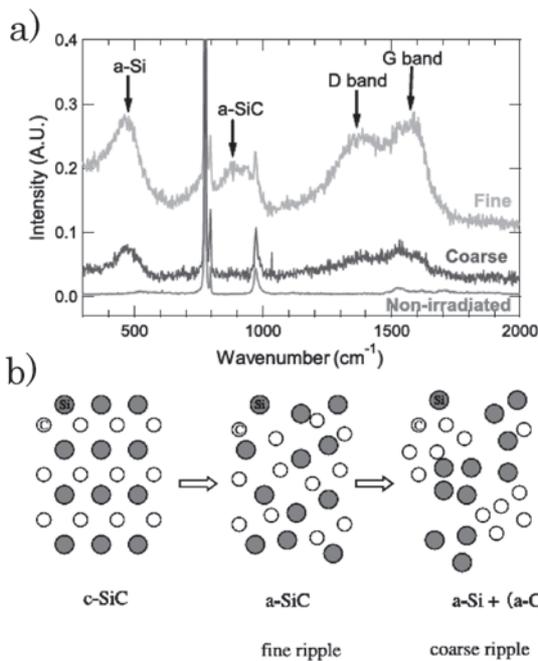


図 3 (a) フェムト秒レーザー照射した SiC 基板表面のラマンスペクトル (Fine: 細かいリップル構造, Coarse: 粗いリップル構造, Non-irradiated: 未照射部). (b) フェムト秒レーザー照射によって引き起こされる相分離の概念図 (参考文献 [33] および [34] より).

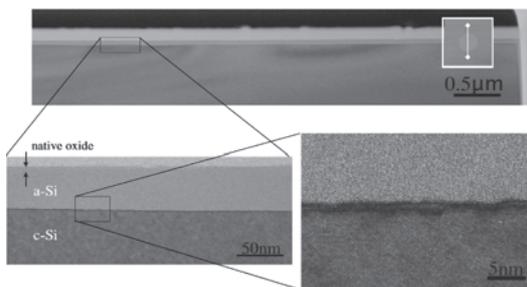


図 4 単結晶シリコン表面にピークフルエンス 0.21 J/cm^2 でフェムト秒レーザーパルスを 20 発照射した断面の透過型電子顕微鏡像 (参考文献 [35] より).

さらに、我々はフェムト秒レーザー照射によって引き起こされる物性改質を局所電気伝導度制御技術に展開する研究も開始している [36]. 図 5 にシリコンカーバイドの電極間にフェムト秒レーザー光を照射して改質した部分の抵抗を測定した結果を示す。照射フルエンス 5.0 J/cm^2 から 6.7 J/cm^2 において抵抗値が二桁以上も劇的に変化していることがわかる。このような不連続な抵抗値の変化は図 3 において述べたフェムト秒レーザー照射に伴う相分離との関連からも興味深い。さらに、フェムト秒レーザー照射に特有の内部加工 (改質) 技術と、フェムト秒レーザー照射に伴う電気伝導特性変化を上手く組み合わせれば、フェムト秒レーザー照射による半導体の三次元回路作製技術に繋がる可能性もあり、今後の発展が期待できる。

4.5 フェムト秒レーザーを用いた透明材料の内部加工

フェムト秒レーザー照射に特徴的な現象として、前述の非熱的加工に加え、透明材料内部の加工が挙げられる。フェムト秒レーザー光は非常に強い光電場、すなわち高い光子数密度をもった光であるため、集光部において、多光子吸収が発生する。多光子吸収によって伝導帯に生成された電子は、光電場によって加速され、アバランシェイオン化を引き起こす [37]. アバランシェ過程による大量の電子生成によって、結晶格子が不安定になり、透明材料内部で空洞化や、物性改質を引き起こす。ここで、再度強調しておきたいことはフェムト秒レーザー照射による内部加工・改質は集光部を材料内部に調整し、適切な照射条件を選択すれば「表面に影響をまったく与えることなく」、「透明固体材料の内部を三次元的に加工・改質可能」であるということである。このことを活かし、フェムト秒レーザーを用いた感光性樹脂の三次元造形 [38] や、フェムト秒レーザー支援エッチング [39] 等が活発に研究されている。

また、我々は単結晶 SiC の内部にフェムト秒レーザー照射を行い、被照射部の断面 TEM 観察およびラマン分光計

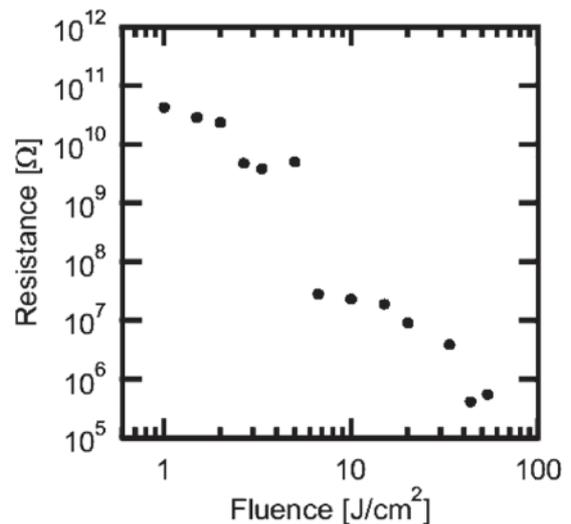


図 5 フェムト秒レーザー改質部における電気抵抗の照射フルエンス依存性 (参考文献 [36] より).

測を行った[40, 41]. 図6 (a)に示すように, サンプル表面からフェムト秒レーザー内部に集光照射し, 照射点をライン状に走査することで直線状の改質部を数本作り, そのうちの一本の断面を観察した. 図中では光の進行方向を k , 光電場の方向を E , 観察方向を目で示している. 図6 (b)はこの改質部の透過型電子顕微鏡像であり, フェムト秒レーザーをSiC内部に集光照射した部分においてIからVに示すような5つのグループに別れて光の進行方向に改質部が存在していた. さらに, それぞれの改質部の中には150 nmと300 nmの周期をもった歪み構造が周期的に分布しており, この歪の方向は光電場に平行であった. この内部周期構造はTaylorらによって報告されているナノプラズマモデルによって説明できる可能性があり現在検討を進めている[42, 43].

この改質部周辺において顕微ラマンによるマッピング測定を行ったところ, 782.5 cm^{-1} に観測されるSiCの縦波光学フォノンモードに対応するピークにシフトが観測された(図6 (c)). このピークシフトから, フェムト秒レーザー照射によるSiCの内部改質部には, 最大で1.4 GPaの圧縮応力, もしくは最大で0.4 GPaの引張応力が残留応力として働いていることが明らかになった. また, ラマンピークの幅も図6 (d)に示すように広がっていることから, 応力の分布(偏り)があることも明らかになった. これらの残留応力はフェムト秒レーザー照射によって引き起こされる衝撃波の痕跡であるものと考えられる.

衝撃波そのものを観測する試みとして, 早崎らは, 可視光のポンププローブイメージングによって, 図6に示すような, フェムト秒レーザー照射直後から周辺に広がる衝撃波のイメージングに成功している[45]. 図7はガラスにパルスエネルギー50 nJで800 nm, 45 fsのフェムト秒レーザー光を照射後の様子を観察したもので, 位相像(上段)と振幅像(下段)が得られている. この図からわかるように衝撃波は, フェムト秒レーザー光を照射後, 同心円状に広がっていつている. 最近では, フェムト秒レーザー光を多焦点で照射し, 衝撃波の伝搬形状を制御することで, フェムト秒レーザー加工の新たな制御パラメータを導入する試みも行われつつある[46].

4.6 内部照射技術を用いた高密度プラズマ生成への期待

これまではフェムト秒レーザー照射によって固体表面および内部に生じる不可逆かつ半永久的な変化を, 主に終状態, つまり現象が完了した状態から議論してきた. 本節では, これらの結果を踏まえ, フェムト秒レーザー照射によって過渡的に生じる物質状態について議論を行うとともに, 過渡状態を直接捉える試みについて紹介する.

フェムト秒レーザー照射後, 光吸収やimpact ionizationによってキャリアが励起される. 励起されたキャリアはキャリア・キャリア散乱(電子・電子散乱など)やキャリア・フォノン散乱(電子・格子相互作用など)を経て, オージェ再結合や輻射再結合, またはキャリア拡散等によって, キャリアそのものが消滅するか, もしくはキャリ

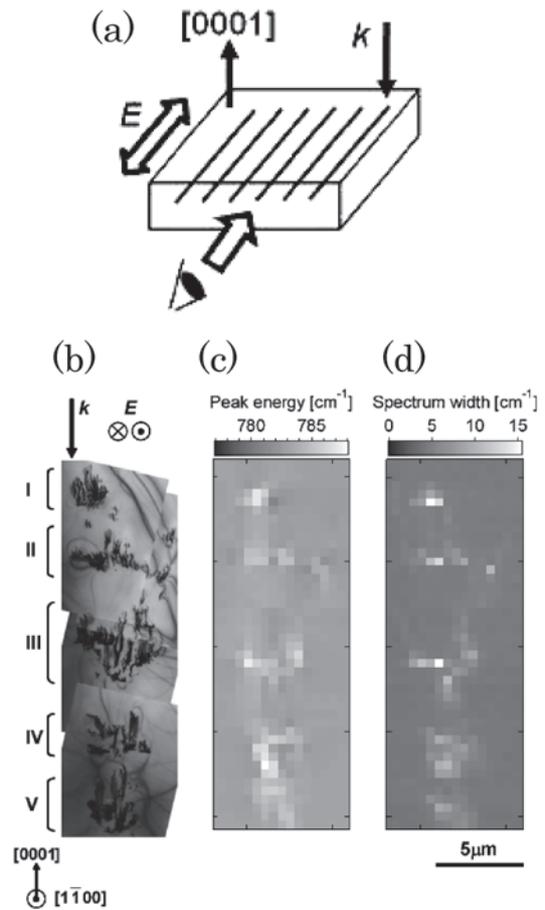


図6 (a)フェムト秒レーザー内部改質部における物性評価の概念図. k は光の進行方向, E は光電場方向であり, サンプル断面に数本のライン状改質部を作製した. その断面を目の方向から観察した((b)-(d)). (b)SiC内部へフェムト秒レーザー照射を行った箇所の透過型電子顕微鏡像. IからVに示すような5つのグループに別れて光の進行方向に改質部が存在していた(光は紙面の上から下に入射し, 光電場は紙面に垂直である). (c)(b)と同部分におけるラマンピーク位置. (d)(b)と同部分におけるラマンスペクトル幅(参考文献[41]より, 観測の概念図は参考文献[44]から引用).

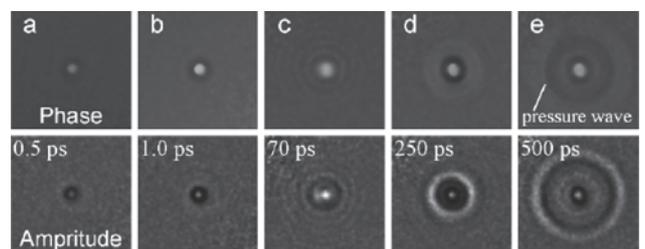


図7 $t =$ (a) 0.5 ps, (b) 1 ps, (c) 70 ps, (d) 250ps, (e) 500 ps におけるプローブパルスの位相(上段)および振幅像(下段)パルスエネルギーは $E = 50 \text{ nJ}$, イメージサイズは $8.3 \mu\text{m} \times 8.3 \mu\text{m}$. (参考文献[45]より).

アが移動することによって励起領域から存在なくなり, 被照射領域におけるキャリア密度が減衰する. また, 励起領域において, キャリア密度が減衰する途中で, 前述したようなアブレーションや熱拡散, 再結晶化が生じる[47]. 特に, 前節で述べた透明固体材料内部へのフェムト秒レ

ザー照射においては、光吸収や impact ionization によってキャリアが励起されても内部であるため、原子や電子の飛散が起こらず、エネルギーは散逸することができない。その結果、エネルギーが被照射領域に留まることで電子温度が極めて高い状態になっている。その後、電子エネルギーが格子エネルギーに変換され、高温度・高圧力状態が生じる。具体的には、サファイア結晶内部に 100 nJ, 800 nm, 200 fs のフェムト秒レーザーパルスを集光照射すると圧力 10 TPa, 温度 5×10^5 K 程度になっていることが予測されている [48]。フェムト秒レーザー照射で生じる、このような高温度・高圧力状態は warm dense matter (WDM) 状態より 2 桁程度密度が低い、WDM に迫る状態といっても過言ではないだろう。さらに、このような状況が実現する前後での温度の上昇および下降率は 10^{18} K/s と急速な加熱・冷却プロセスとなっていることも指摘されている [48]。この極限的な高温度・高圧力状態とそれに伴う急速な加熱・冷却プロセスは非常に小さな体積 ($\sim 0.2 \mu\text{m}^3$) でかつ、非常に短時間 (\sim 数 10 ps) の間しか存在しないが、それでも、このような高温度・高圧力条件を比較的簡便につくり出せることの意義は大きい。また、フェムト秒レーザー照射後の急速な冷却プロセスを経て常温常圧状態に戻る段階で、高温相の凍結による新物質創成が起こる可能性もあり興味深い。

上記のような理由からもフェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの理解は重要であり、その過渡状態の観測には様々な試みがなされている。特に、可視光をプローブとして用いた研究は比較的以前より行われている [49]。しかし、可視光を用いたプローブではフェムト秒レーザーアブレーションに伴うプラズマの噴出によって視野が遮られてしまい、観測できる照射フルエンス領域が限られてしまう。そこで、我々は、近赤外フェムト秒レーザーポンプ・軟 X 線プローブの時間分解反射率イメージング、および干渉イメージング光学系を構築し、フェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの観測を行なっている。軟 X 線はレーザーアブレーションに伴うプラズマ噴出に対してほぼ透明であるため、プラズマの影響を受けずに固体表面を観測するのに適している [50]。現在、我々はアブレーションフロントの膨張や照射フルエンスに敏感に依存して変化するアブレーション過程の観測に成功している [51]。一方で、絶縁体 [52]、半導体 [53] や金属 [54] などにおけるフェムト秒レーザーアブレーションプロセスのシミュレーションも近年活発に行われるようになってきた。このように実験、理論の双方からの検討が進むことによって、フェムト秒レーザーアブレーションの新領域を切り拓き、他分野との融合研究に繋がっていくものと期待している。

4.7 おわりに

本章では、フェムト秒レーザーアブレーションについて、その特徴と今後の可能性について述べてきた。1 章ではレーザーアブレーションの歴史的背景を、2 章ではフェムト秒レーザーアブレーションによる非熱的加工について述べた。また、3 章では近年注目を集めているレーザー誘

起ナノ周期構造の生成について述べ、4 章でそれらの物性分析とフェムト秒レーザー照射を用いた動的な物性改質の可能性について述べた。最後に、5 章でフェムト秒レーザーに特有の内部照射技術を用いた改質と衝撃波の発生について説明したあと、6 章では内部集光照射による高密度プラズマ生成への期待について述べる。

このようにフェムト秒レーザープロセッシングへの期待は急速に高まっている。一方で、フェムト秒レーザーアブレーションプロセス、特に、フェムト秒レーザー照射によって生じる高温度・高圧力状態とそこからの緩和過程についてはほとんど明らかにされていないのが現状である。これらを明らかにするためには、レーザー照射中や照射直後におけるプラズマ状態の診断や、被照射材料が照射直後の極限的な非平衡状態から平衡状態に緩和するまでの原子状態に関する研究など、幅広い分野からの統一的な議論が不可欠になるであろう。

参考文献

- [1] T.H. Maiman, *Nature* **187**, 493 (1960).
- [2] F. Breech and L. Cross, *Appl. Spectroscopy* **16**, 59 (1962).
- [3] J.C. Miller, *AIP Conf. Proc.* **288**, 619 (1993).
- [4] 電気学会編：レーザーアブレーションとその応用（コロナ社，1999年）。
- [5] D. Bäuerle, *Laser processing and Chemistry* (Springer, Berlin, 2000), 3rd ed.
- [6] 藤田雅之，橋田昌樹：応用物理 **73**, 178 (2004).
- [7] 橋田昌樹他：応用物理 **75**, 451 (2006).
- [8] 米田仁紀：プラズマ・核融合学会誌 **81**, Suppl. 172 (2005).
- [9] 米田仁紀：プラズマ・核融合学会誌 **83**, 624 (2007).
- [10] 松尾繁樹：レーザープロセッシング応用便覧（増原宏編，NGT，2006年）p. 385-393.
- [11] N.M. Bulgakova *et al.*, *Laser Ablation and its Application*, (C.R. Phipps eds., Springer, 2006) p.17.
- [12] 例えば，<http://www.hokuhoku.ne.jp/rmec/16pdf/10.pdf>
- [13] M. Birnbaum, *J. Appl. Phys.* **36**, 3688 (1965)
- [14] J.E. Sipe *et al.*, *Phys. Rev. B* **27**, 1141 (1983).
- [15] J.F. Young *et al.*, *Phys. Rev. B* **27**, 1155 (1983).
- [16] J.F. Young *et al.*, *Phys. Rev. B* **30**, 2001 (1984).
- [17] Yu. V. Vigant *et al.*, *Sov. Phys. JETP* **64**, 123 (1986).
- [18] 南 志昌，豊田浩一：レーザー研究 **28**, 824 (2000).
- [19] N. Yasumaru *et al.*, *Appl. Phys. A* **76**, 983 (2003).
- [20] A. Borowiec and H.K. Haugen, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4462 (2003).
- [21] P. Rudolph and W. Kautek, *Thin Solid Films* **453-454**, 537 (2004).
- [22] T. Tomita *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, L444 (2006)
- [23] T. Tomita *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 153115 (2007)
- [24] T. Tomita *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 013104 (2008).
- [25] M. Henyk *et al.*, *Appl. Phys. A* **69**, S355 (1999).
- [26] J. Reif *et al.*, *Appl. Phys. A* **92**, 1019 (2008).
- [27] J. Reif *et al.*, *Phys. Stat. Solidi C* **6**, 681 (2009).
- [28] S. Sakabe *et al.*, *Phys. Rev. B* **79**, 033409 (2009).
- [29] G. Miyaji and K. Miyazaki, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 123102 (2007).

- [30] G. Miyaji and K. Miyazaki, *Opt. Express*, **16**, 16265 (2008).
[31] P. Sigmund, *J. Mater. Sci.* **8**, 1545 (1973).
[32] T. Tomita *et al.*, *Appl. Phys. A*, **105**, 89 (2011).
[33] M. Yamaguchi *et al.*, *Appl. Phys. A* **99**, 23 (2010).
[34] T. Tomita *et al.*, *Appl. Phys. A* **100**, 113 (2010).
[35] Y. Izawa *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, 5791 (2006).
[36] M. Deki *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 133104 (2011).
[37] L. Jiang and H.L. Tsai, *Int'l. J. Heat Mass Transfer* **48**, 487 (2005).
[38] S. Kawata *et al.*, *Nature* **412**, 697 (2001).
[39] A. Marcinkevičius *et al.*, *Opt. Lett.* **26**, 277 (2001).
[40] T. Okada *et al.*, *J. Appl. Phys.* **106**, 054307 (2009).
[41] M. Yamamoto *et al.*, *Appl. Phys. Express* **3**, 016603, (2010).
[42] V.R. Bhardwaj *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 057404 (2006).
[43] R. Taylor *et al.*, *Laser Photon. Rev.* **2**, 26 (2008).
[44] T. Okada *et al.*, *Mater. Sci. Forum* **725**, 19 (2012).
[45] Y. Hayasaki *et al.*, *Opt. Express* **19**, 5725 (2011).
[46] Y. Hayasaki *et al.*, *Opt. Mater Express* **2**, 691 (2012).
[47] S.K. Sundaram and E. Mazur, *Nature Mat.* **1**, 217 (2002).
[48] S. Juodkazis *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 166101 (2006).
[49] K. Sokolowski-Tinten *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 224 (1998).
[50] 富田卓朗他：レーザー研究 **40**, 592 (2012).
[51] T. Tomita *et al.*, *Opt. Express* **20**, 29329 (2012).
[52] D. Perez and L.J. Lewis, *Phys. Rev. B* **67**, 184102 (2003).
[53] P. Lorazo *et al.*, *Phys. Rev. B* **73**, 134108 (2006).
[54] L.V. Zhigilei *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **113**, 11892 (2009).



とみ た たく ろう
富田卓朗

徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部 助教。主な研究分野：光物性，半導体物理，光物理，特に，光照射によって固体表面及び内部に生じる不安定状態とその緩和過程に興味を持っている。趣味は，水泳，釣り，読書。最近は育児（2歳の双子）に追われ，釣りに行く時間が取れない。釣りの代わりにスーパーの鮮魚コーナーに立ち寄るのが趣味になりつつある。