

フェムト秒レーザーアブレーションの軟X線時間分解計測

Observation of the femto second laser ablation dynamics by using the soft x-ray laser

長谷川 登<sup>1)</sup>、錦野 将元<sup>1)</sup>、石野 雅彦<sup>1)</sup>、ヂン タンフン<sup>1)</sup>、河内 哲哉<sup>1)</sup>、南 康夫<sup>2)</sup>、馬場 基芳<sup>3)</sup>、末元 徹<sup>4)</sup>

Noboru Hasegawa<sup>1)</sup>, Masaharu Nishikino<sup>1)</sup>, Masahiko Ishino<sup>1)</sup>, Dinh Thanh-Hung<sup>1)</sup>, Tetsuya Kawachi<sup>1)</sup>, Yasuo Minami<sup>2)</sup>, Motoyoshi Baba<sup>3)</sup>, Tohru Suemoto<sup>4)</sup>

<sup>1)</sup>量研関西、<sup>2)</sup>徳島大学、<sup>3)</sup>埼玉医大、<sup>4)</sup>豊田理研

<sup>1)</sup>KPSI, QST, <sup>2)</sup>Tokushima Univ., <sup>3)</sup>Saitama Medical Univ., <sup>4)</sup>TPCRI

近年発達の著しいフェムト秒レーザーによるアブレーションを利用した加工は、熱的な影響が従来の加工手法と比較して著しく小さく、熱ダレの少ない新しいナノメートル級の精密加工技術として注目されている。特にアブレーション閾値近傍では、表面を固体（もしくは液体）のまま層状に剥離させる現象（Spallation<sup>[1]</sup>）や、グレーティング状構造（LIPPS<sup>[2]</sup>）等の特異的な構造体の形成、照射強度による加工速度の非線形な変化、等の従来の熱プロセスでは説明できないユニークな現象が観測されている。これらの現象を応用するには、そのダイナミクスを観測し、理論モデルとの比較を通じて物理過程を理解することが重要である。しかしながら、フェムト秒レーザーアブレーションは、微細（ナノメートル）、高速（電子・格子の相互作用時間：～10ピコ秒）かつ長時間（格子が破壊され、移動する時間：ナノ秒）に渡る現象であり、更に可視光領域のプロブ光では空間分解能の制限や表面に発生するプラズマへの侵入長等の理由により、そのダイナミクスの観察が難しい現象でもある。

我々は「シングルショット計測が可能な、波長13.9 nmのプラズマ軟X線レーザー(Soft x-ray laser: SXRL)を光源としたプロブシステム<sup>[3]</sup>」により、特にアブレーション閾値近傍におけるダイナミクスの観測を行っている。軟X線は、可視光よりも空間分解能が高く、かつ硬X線に比較して物質への侵入長が短いため、物質表面の微細構造の観測に最適な光源である。加えて、自由電子との相互作用が小さいため、プラズマに対する透過率が高く、固体表面の形状を直接観測することが可能である等、アブレーションを観測する上で際立った利点がある。図1にTi:Sapphire (Ti:S) レーザーポンプ・SXRLプロブシステムの概略を示す。サンプル上でのTi:S

レーザー（パルス幅80 fs）の空間分布は直径100 μm (FWHM)のガウス分布である。軟X線によりプロブされたサンプル上のアブレーションの像は、Mo/Si多層膜凹面ミラーにより、軟X線用CCDカメラ上に結像される。凹面ミラーとCCDの間には、微小な角度(～0.02 deg)を有する2枚の平面ミラーから構成されるダブルロイズミラーが挿入されており、軟X線を空間的に2分割し、CCD上で重ね合わせる事で干渉計を構成している。サンプル上での深さ方向の分解能は2 nm以下、水平方向分解能は0.7 μmである。ロイズミラーの参照光側の角度を変更する事により、同一配置における反射像計測を行う事も可能である。軟X線の反射率は、表面状態に敏感であるため（波長13.9 nmの場合、4 nm程度の面粗さで反射率が半分減少する）、反射像計測は表面粗さの計測に相当する<sup>[4,5]</sup>。

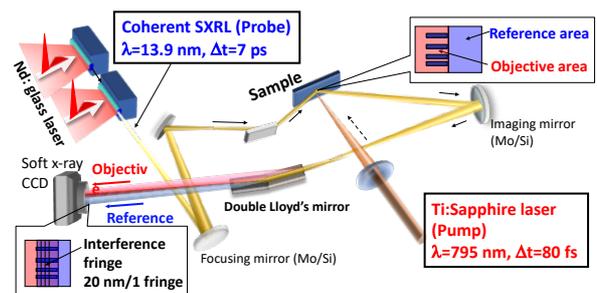


図1) 軟X線レーザープロブシステム<sup>[3]</sup>

図2に、石英基板上に蒸着した金（厚さ100 nm）をサンプルとして、fs レーザーアブレーションにおける膨張過程を複数の手法により観測した結果及び観測結果から予想されるアブレーション過程の描像を示す。照射強度のピーク値（照射中心位置での局所的な強度）は1ショットで明確なクレーター（深さ約70 nm）が形成される強度（～1.3 J/cm<sup>2</sup>）とした。

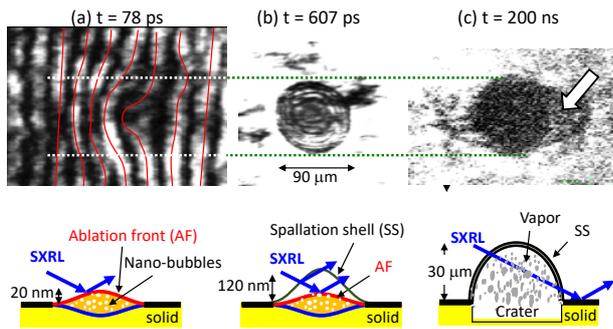


図2) 金のfsレーザーアブレーション過程の観測<sup>[6-10]</sup>

図2(a)は、レーザー照射から78 ps後の膨張する表面(ablation front: AF)の干渉計測像をである。中央部分の膨張量は約20 nmであり、固体から液体への相変化による体積変化(100 nmの厚さに対して約10 nm)よりも膨張量が大きいため、AFの下層ではナノバブルの形成等による密度の低下が予想される。一連の干渉計測からAFは35 nm程度まで膨張した後には縮小に向かうことが確認されている。図2(b)は、レーザー照射から607 ps後の軟X線反射像であり、同心円状の複数の明線が観測されている。同心円の間隔は一定ではなく、中央部に近づくにつれて広がっており、また時間の経過( $t = 200 \text{ ps} \sim 1 \text{ ns}$ )と共にその本数も増加することが確認されている。これは、2つの膨張表面からの軟X線の反射光が干渉したことにより発生したニュートンリングであると考えられる。つまりAFの上方には軟X線に対するビームスプリッターとして機能するほどに高精度な薄膜が存在することを示している。これは、アブレーション閾値近傍において表面を固体のまま層状に剥離させるspallation現象により発生したSpallation shell (SS)であると考えられる。ニュートンリングの明度から推測されるSSの厚さは10 nm以下、面粗さは数nm以下、密度は固体密度の数十%以上であり、極めて精度の高い薄膜であることが分かる。また、ニュートンリングの間隔を解析することにより、SSの形状を観測することも可能である。本結果から見積もられるSSの質量は、照射後に形成されるクレーターの質量の1/4程度であり、またニュートンリングの輝度が周辺部の輝度と同程度である(SSの内側における軟X線の吸収が小さい)ことから、噴出物の大部分は未だAFの下層に留まっていることが予想される。図2(c)は、レーザー照射から200 ns後の軟X線反射像を示している。この時間帯におけるSSは密度の低下によりビームスプリッターとしての機能は失われているがドーム状構造は保持されており、軟X線のシャドウグラフとして観測されている(図中の矢印)。この影は、ド

ーム内の粒子による軟X線の吸収を示しており、時間と共に明度を増しながら画面横方向に膨張する。これを解析することでSSの形状及び内部の粒子の総量を見積もることが可能である。本結果から、深さ70 nmのクレーターの質量の半分以上が、SS内部に充満している事が見積もられており、この時点でクレーターの形成はほぼ終了していると考えられる。

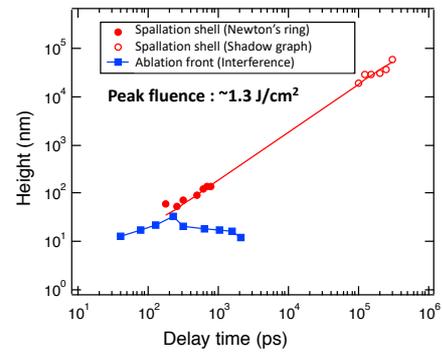


図3) 金のfsレーザーアブレーションの膨張過程<sup>[10]</sup>

図3に干渉計測、ニュートンリング、シャドウグラフの解析から得られた金のfsレーザーアブレーションにおける膨張表面の高さの時間発展を示す。レーザー照射後200 psにAFからSSが分離し、AFはその高さをほぼ一定に保持する反面、SSはほぼ等速で長時間にわたり膨張を続け、最終的には高さ100 μmにも達することが明らかになった。

軟X線レーザープローブにより、フェムト秒レーザーアブレーションのダイナミクスの全体像が観測されたことで、実験とシミュレーションとの直接の比較が可能となり、加工シミュレータの開発等に繋がることを期待できる。講演では他の物質についての観測結果も交えて紹介する。

- [1] N. A. Inogamov, et al., Journal of Experimental and Theoretical Physics, 107, No. 1, 1 (2008).
- [2] M. Fujita and M. Hashida, J. Plasma Fusion Res. **81**, 195-201 (2005).
- [3] T. Suemoto, et al., Optics Express, 18, No.13, 14114 (2010).
- [4] T. Tomita, et al., Optics Express, 20, 29329 (2012).
- [5] N. Hasegawa, et al., Proc. of SPIE, 8140, 81400G-1 (2011).
- [6] M. Nishikino, et al., Proc. of SPIE, 10091, 100910O-1 (2017).
- [7] N. Hasegawa, et al., JAEA-Conf 2015-001, 17 (2015).
- [8] M. Nishikino, et al., AIP Advances 7, 015311 (2017).
- [9] N. Hasegawa, et al., Springer Proceedings in Phys., 202, 273-277 (2018).
- [10] N. Hasegawa, M. Nishikino, J. Plasma Fusion Res. **94**, No.5 261-265 (2018).