コヒーレント軟X線反射率イメージングによる アブレーションダイナミクスの観測

Observation of ablation dynamics by using coherent soft x-ray reflective imaging

Takuro TOMITA Masaharu NISHIKINO Noboru HASEGAWA Yasuo MINAMI

武井 亮太 3) 馬場 基芳 3) 江山 剛史 1) 柿本 直也 1)

Ryota TAKEI Motoyoshi BABA Takashi EYAMA Naoya KAKIMOTO

河内 哲哉 2) 山極 満 2) 末元 徹 3)

Tetsuya KAWACHI Mitsuru YAMAGIWA Tohru SUEMOTO

1) 徳島大学 2) 原子力機構 3) 東京大学

白金、金及びタングステンにおけるフェムト秒レーザーアブレーション過程の観測をシングルショットの軟X線プローブシステムを用いて行った。これら全ての金属において、軟X線反射率の時間発展には明確な励起強度依存性が認められた。時間発展は物質毎に異なるが、何れの物質においても、レーザー照射中心部で黒い円盤状の影が観測された。一方で、白金やタングステンではアブレーション閾値近傍強度で細いリング状の影が観測されたのに対し、金においては同じ場所に明るいリングが観測された。これらの結果はフェムト秒レーザーアブレーションの理論構築に向けた重要な示唆を与えるものである。

キーワード:フェムト秒レーザーアブレーション、時間分解測定、軟X線プローブ、反射率イメージング

1. 目的

近年、フェムト秒レーザー加工の分野では加工閾値近傍の強度でのフェムト秒レーザー照射によって引き起こされる現象に注目が集まっている。例えば、フェムト秒レーザー照射により、照射光の波長を大きく下回る周期を持つナノ周期凹凸構造が発見され、従来のモデルでは説明がつかないことから、その生成メカニズムについて活発な議論が行われている $^{[1-7]}$ 。また、照射フルエンスを変化させると 1shot あたりのアブレーションレート(アブレーションクレーターの深さを照射パルス数で割った値)が閾値特性を持つ、すなわち照射強度に対して不連続に変化し、最もアブレーションレートが低い領域では 1shot 当たりのアブレーションレートが 1 nm を下回ることも報告されている $^{[8]}$ 。しかし、この様な現象が何故起こるのかについては全く明らかになっていないため、フェムト秒レーザーアブレーションメカニズムの理解が急務となっている。

これらのフェムト秒レーザー加工に特有の現象は、フェムトからピコ秒領域での不可逆的なナノメートルスケールでの構造変化であるため、その実態を捉えるにはナノメートルの空間分解能、ピコ秒の時間分解能をもったシングルショットでの時間分解イメージング観察が必要である。これまで、可視光をプローブとして用いたアブレーションダイナミクスの観測例は存在するが、波長による空間分解能の制約のため、ナノメートルスケールでのイメージングは不可能であった[9-12]。そこで、X線をプローブとしたポンププローブ計測によるナノメートルスケールダイナミクスの研究が注目を集めており、各国で活発に研究が行われているが、繰り返し周波数の制限(<10 shots/day)などから、軟X線のシングルショットイメージングは容易ではない。

そこで、我々は日本原子力研究開発機構・関西光科学研究所で開発された 7 ピコ秒のパルス幅を持つ波長 13.9 nm の高コヒーレンス軟 X 線レーザーを光源として用い、フェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの観察を行っている。原子力機構の軟 X 線レーザーは、1 パルスあたりのフォトン数が 10^{10} にも及び、かつ、繰り返しがおおよそ 1 分に一回程度と高い頻度でショット可能であるから、シングルショットでのイメージングが可能である。本研究では、この光源を用い、これまで観測してきた白金に加え、金をはじめとする他の金属におけるアブレーションダイナミクスのデータ取得を行い、金属におけるアブレーションダイナミクスの系統的な理解を目指した。

2. 方法

本研究では日本原子力研究開発機構・関西光科学研究所で開発されたダブルターゲット方式によるプラズマ軟 X 線レーザー(波長 13.9 nm、パルス時間幅 7 ps)をプローブ光として用いた。ポンプ光にはチタンサファイアレーザー再生増幅器からの光(波長 795 nm、パルス時間幅 80 fs)を用いた。

反射率のイメージングでは試料表面における 軟X線反射像を得ることが出来るため、アブレー ションに伴う試料表面の凹凸や密度勾配に関す る情報を得ることが出来る。また、ガウス型強度 分布を持ったポンプ光を用い、ビームの動径方向 にフルエンスが変化することを利用することで、 フルエンス依存性の観測やアブレーション閾値 近傍における現象の観察を可能にした。

軟 X線は大気に吸収されてしまうため、全ての光学素子は真空容器内に設置されている。プラズマ光源からの軟 X線は Mo/Si 多層膜球面鏡によって、試料に転送され、 $20^\circ \sim 24^\circ$ の斜入射角で試料に照射される。試料の像はおよそ 20 倍の倍率で、X線 CCD カメラに転送される。ポンプ光は試料に対してほぼ垂直に照射した。サンプル上でのポンプ光のスポット径は D^2 法を用いて評価した [13]。

3. 結果及び考察

図 1 の上図にフェムト秒レーザー光照射後の白金 表面での軟X線反射率の時間発展を示す。照射レーザーのピークフルエンスは 1.1 J/cm^2 である。図中に、白い棒で示したスケールバーの長さは全て $50 \mu m$ に対応しており、画像のコントラストはそれぞれの図で最適化してある。

白金では薄黒い円盤状の影が 20 ps において観測されはじめ、円盤状の影は 52 ps の時点ではさらに大きくなっていた。また、52 ps の時点においては円盤状の影の外側にリング上の影も観察された。これらをより詳細に議論するために、各時刻における反射率像の断面をプロットした。断面図からも t = 52 ps における、中心部分での反射率の低下と、緑矢印で示したリング状の反射率低下がはっきり見て取れる。スポット内の位置による反射率の減衰の違いは、観測された反射率変化が強い強度依存性を持っていることを意味している。そこで、以下に示すようにフルエンスを3つの領域に区分して議論を進めていく:

(i) 強励起領域

早い(< 7 ps)反射率低下が観測された領域

(ii) 中励起領域

比較的遅い(~100 ps)反射率低下が観測された領域

(iii) 弱励起領域

反射率変化が観測されなかった領域

照射レーザー光はガウス型のビームプロファイルを 有しており中心から外側に向かってフルエンスが低 下している。強励起領域(i)においては、装置の時

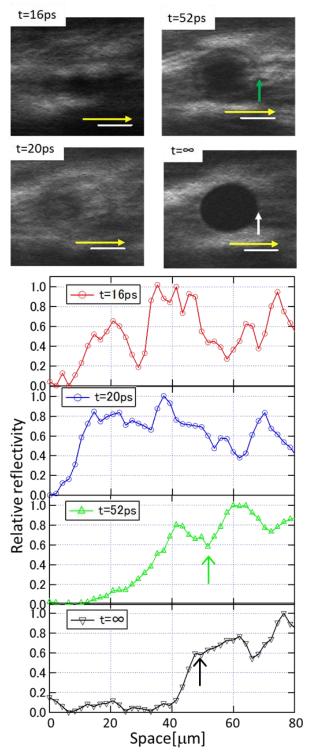


図1: (上図)各遅延時間における白金の軟X線反射率像。 スケールバーは50 μm に対応している。

(下図) 動径方向にそった反射率プロット。上図の黄色矢印に沿って反射率を求めている。但し、上図中の黄色矢印は下方向にずらして描いており、実際の矢印の始点はアブレーションの中心部である。

間分解能以下で生じていると考えられる急激な反射率変化が観測された。一方、中励起領域(ii)においては強励起領域と比較し、反射率の低下が遅く、t=52 ps においても反射率があった。弱励起領域(iii)においては、レーザー照射による軟X線反射率の変化は観測されなかった。さらに、t=52 ps で明瞭に観測されたリング状に反射率低下が起こる位置が、アブレーション痕の端である中励起領域(ii)と弱励起領域(iii)の境界に一致していることは興味深い。

一方で、金における軟X線反射率の時間発展は白金のそれよりもかなり遅い。図2に示すように、円盤状の影が189 ps で見え始め、その影は約1 ns まで成長し続けた。これらをより詳細に議論するために、各時刻における反射率像の断面をプロットした。断面図からも同様の傾向が見て取れる。

さらに、タングステンでは白金の軟X線反射率の時間発展近い結果が得られ、金におけるフェムト秒レーザーアブレーションの時間発展の特異性が確認された。

これらの観測された軟X線反射率の時間発展を理解するために、フェムト秒レーザーアブレーション過程の数値計算結果との比較は重要である。フェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの数値計算については数多くの報告例があるが、ここでは、以下の2つについて議論する。

一つ目は Lennard-Jones ポテンシャルを仮定し たモデルである。 この計算から照射強度の増加に伴 って spallation (機械的破砕)、 nucleation (気泡形成)、 fragmentation (相分離)、 vaporization (蒸発) の各プロセスが照射強度に対 して閾値特性をもって起こることが予想されている [14, 15]。軟X線の反射率は試料表面の粗さや物質表面 の密度勾配に強く依存することがわかっている。我々 の観測では、物質によって現象の時間スケールは異な るもののアブレーションクレーターの中心部で早い 反射率の現象を示し、周辺部で比較的ゆっくりとした 反射率変化を示すといった照射強度に応じた軟X線 の反射率変化が生じ、これは上述のアブレーションス キームにある程度対応しているのではないかと考え られる。加えて、レーザー光照射直後の比較的早い時 刻にアブレーション閾値近傍、つまりアブレーション 痕の端部に相当する場所において、軟X線の反射率が 低下(白金及びタングステン)、または増加(金)す る傾向が観測された。これらの照射強度に依存した現 象は上述のモデルで予測されている照射強度に依存 したアブレーションプロセスに対応している可能性 が考えられるが、上述のモデルはLennard-Jones ポ

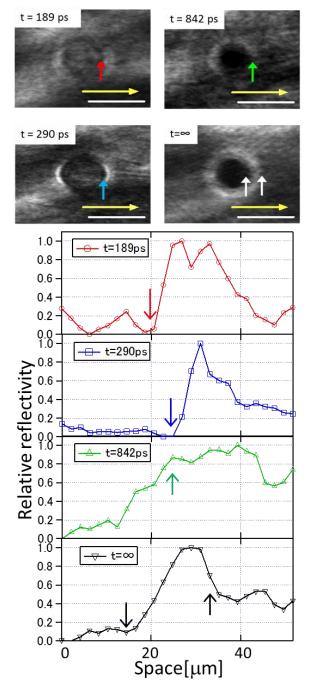


図2: (上図) 各遅延時間における金の軟 X 線反射率像。 スケールバーは 50 µm に対応している。

(下図) 動径方向にそった反射率プロット。上図の黄色矢印に沿って反射率を求めている。但し、上図中の黄色矢印は下方向にずらして描いており、実際の矢印の始点はアブレーションの中心部である。

テンシャルを仮定した絶縁体に対するモデルであるため、今回、我々が対象とした金属との比較には限界がある。その他のモデルとしては、金属のアブレーションを電子系と格子系の温度を独立に設定した二温度モデルに基づいて計算した Zhigilei らのモデルがある [16, 17]。彼らのシミュレーションではアブレーション閾値強度より高い照射強度において基板から液体の層が剥離して飛散するようす(spallation)が再現されている。しかし、実験で観測されたような複雑なアブレーションの照射強度依存性や物質に依存したアブレーションダイナミクスを再現するには至っていない。

4. まとめと今後の展開

チタンサファイアレーザーポンプ・軟X線反射率イメージング光学系を用いて白金、金、およびタングステンにおけるフェムト秒レーザーアブレーション過程の観測を行った。ガウス型の強度分布をもったポンプ光をもちいることで、強度に依存したアブレーションダイナミクスを捉えることに成功した。ポンプ光は連続的な強度分布を持つにも関わらず、観測されたアブレーションダイナミクスには明確な閾値特性が見られた。これらの励起強度に対する閾値特性をもったアブレーションダイナミクスの振る舞い、既報の数値計算結果に類似する点もあるが、明確な定量的な議論を行うには至っていない。今後は、より高空間分解能の実験によって、より詳細なアブレーションダイナミクスを明らかにするともに、実験と比較可能な数値計算を行うことで、フェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの更なる理解に繋げることを考えている。

5. 参考文献

- [1] J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston, and H. M. Driel: Phys. Rev. B 27 (1983) 1141.
- [2] J. F. Young, J. S. Preston, H. M. Driel, and J. E. Sipe: Phys. Rev. B 27 (1983) 1155.
- [3] J. F. Young, J. E. Sipe, and H. M. Driel: Phys. Rev. B 30 (1984) 2001.
- [4] N. Yasumaru, K. Miyazaki, and J. Kiuchi: Appl. Phys. A 76 (2003) 983.
- [5] A. Borowiec, and H. K. Haugen: Appl. Phys. Lett. 82 (2003) 4462.
- [6] T. Tomita, K. Kinoshita, S. Matsuo, and S. Hashimoto: Jpn. J. Appl. Phys. 45 (2006) L444.
- [7] T. Tomita, K. Kinoshita, S. Matsuo, and S. Hashimoto: Appl. Phys. Lett. 90 (2007) 153115.
- [8] 藤田雅之, 橋田昌樹: 応用物理 73 (2004) 178.
- [9] D. von der Linde, and K. Sokolowski-Tinten: Appl. Surf. Sci. 154-155 (2000) 1.
- [10] K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, D. von der Linde, A. Oparin, J. Meyer-ter-Vehn, and S. I. Anisimov: Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 224.
- [11] V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, and D. von der Linde: J. Opt. Soc. Am. B 23 (2006) 1954.
- [12] V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, and D. von der Linde: Appl. Phys. A, 78 (2004) 483.
- [13] J. M. Liu: Opt. Lett. 7 (1982) 196.
- [14] D. Perez and L. J. Lewis: Phys. Rev. B 67 (2003) 184102.
- [15] P. Lorazo, L. Lewis, and M. Meunier: Phys. Rev. B 73 (2006) 134108.
- [16] B. J. Garrison, T. E. Itina, and L. V. Zhigilei: Phys. Rev. E, 68, (2003) 041501.
- [17] L. V. Zhigilei, Z. Lin, and D. S. Ivanov: J. Phys. Chem. C 113, (2009) 11892.