

超短パルスレーザープラズマ X線源を用いたダブルパルス照射による 基板表面励起加工の基礎過程の検討

Time resolved observation for double pulse laser ablation using ultra short pulse laser plasma X-ray source with instant surface excitation on semi conductor target

林 照剛¹⁾, 横尾英昭¹⁾, 黒河周平¹⁾, 松永啓伍¹⁾, 長谷川 登²⁾, 錦野 将元²⁾

Terutake HAYASHI, Hideaki YOKOO, Syuhei KUROKAWA, Keigo MATSUNAGA, Noboru HASEGAWA,

Masaharu NISHIKINO

九州大学¹⁾, 量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所²⁾

(概要)

本研究では、時間的に近接させた2つのフェムト秒パルスビーム(ダブルパルスビーム)を照射した時に、第1のパルス照射後に、ターゲット表面に生じるプラズマ励起、格子系のコヒーレント振動励起などの瞬間的な励起現象を低照度レーザー加工に応用することを検討している。本課題では、フェムト秒レーザー照射直後から100ps程度の時間が経過するまでの過渡的なプラズマ励起および格子系の励起現象、また、励起表面の加工中に生じるターゲット表面の形態変化について、時間分解観察を行い、低照度ダブルパルスビームによるレーザー加工現象の基礎過程を調べる。

キーワード：ダブルパルスビーム，表面励起，時間分解観察，レーザー表面加工

1. 目的

フェムト秒レーザーパルスを半導体表面に照射すると、その高強度電場により、電子系の状態変化(キャリア密度の上昇(インコヒーレント)、表面プラズモン(コヒーレント))や格子系の状態変化(格子温度上昇(インコヒーレント)、コヒーレントフォノン励起)が生じることが知られている。

フェムト秒レーザーによる加工に関する研究では、ダブルパルス照射による加工特性(加工レート等)を評価する研究について報告があるが、ダブルパルスの照射間隔を100ps以下の領域に設定し、ターゲットの加工閾値を下回る低照度ビームでワイドバンドギャップ半導体材料の表面を励起して行う加工については、その表面励起および加工に関する基礎過程の解明は進んでいない。

これまで申請者は、ピコ秒の時間範囲に複数のピークを内包する波形を持つ低照度のパルストレインビームを用いて、半導体材料の表面加工を行う研究を遂行しており(参考文献1)、パルストレインビーム加工時の加工レートの向上、加工閾値の低下などの現象を確認している。しかし、パルストレインビームによる加工では、加工条件が複雑で、加工レートの向上や加工閾値の低下が、加工表面の光吸収率などの過渡的な変化によるものか、加工中の表面形態の変化に由来するかの峻別が困難であり、低照度フェムト秒レーザーを時間的に近接させ、連続して照射し加工する場合の基礎過程を解明することが困難であった。

そこで、研究代表者らは、2つの時間的に近接したフェムト秒パルスを連続して照射し、第1のパルス照射(加工閾値以下の照度)により現れる表面励起効果が減衰する前に、第2パルスを照射し、加工を行う、低照度レーザー加工プロセス(ダブルパルス表面励起加工プロセス)について、その基礎過程を解明することを目指す。

本課題では、低照度レーザービームによる表面励起加工プロセスを単純化して再現できるダブルパルスビームを用いた表面励起加工システムを試作し、加工表面状態(形態、プラズマ密度)を可視化し、その加工基礎過程を明らかにするための基礎実験を遂行する。

2. 方法

低照度ダブルパルスビームにおける表面励起加工において、表面励起、および、励起表面の低照度ビーム加工の基礎過程を理解するため、加工基礎実験を遂行する。ダブルパルスビームによる加

工では、レーザーパルスの役割を表面励起用の第1パルスと加工用の第2パルスに分けて、表面励起過程、および、加工過程をそれぞれ観察する。この実験では、表面励起条件および加工条件をそれぞれに独立して設定できることから、加工条件の設定が容易となる。

本課題では、まずダブルパルスビームによる表面励起の基礎過程について詳細に調べる。まず、表面励起状態の持続時間、持続効果の計測のため、第1のパルスと第2のパルスの照射間隔 100fs から 100ps まで変化させた場合の、加工閾値 (Damage threshold) を計測する実験を行った。

レーザー照射条件および、加工したターゲット材料についての詳細を以下の表にまとめる。

表1. ターゲット材料

加工材料	SiC Si-面 (0001), オフ角 4°
表面粗さ	<1 nm
基板厚さ	310 μm
光学バンドギャップ	3.26 eV

表2 レーザー照射条件

パルス幅	74 fs
中心波長	794 nm (1.56 eV)
繰り返し周波数	10 Hz

加工閾値の測定は、レーザー光を直径 80μm のスポットサイズに集光照射し、スポット位置を中心に、空間的なエネルギープロファイルがガウス分布となる照射スポットを形成する。次に、スポット照射位置の中心点を基準に、照射エネルギーのエネルギーが 1/e² 幅となるビーム直径と、1パルスあたりの照射エネルギーとなるパルスエネルギーを取得し、図1に示す照射レーザーの集光照射位置におけるエネルギースペクトルを取得する。次に、加工痕の外径を SEM および AFM により計測し、加工領域と対応するエネルギー値から、加工閾値を計測する。

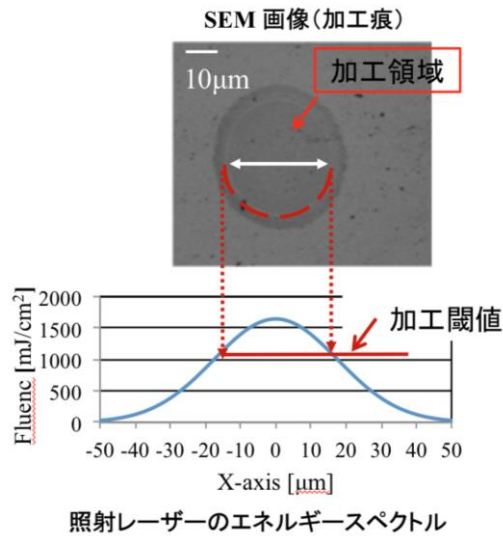


図1 加工閾値の測定方法

上述の方法で、まず第1の励起用パルスの表面励起効果の大きさとその持続時間についての検討を行った。表面励起効果の持続時間とその大きさを定量的に評価するため、第1のパルス照射後、400ps までのパルス間隔に至るまで、レーザーの照射強度を固定したまま、パルスの照射間隔を変化させて加工実験を行い、表面励起効果の持続時間および、加工閾値の変化量を測定した。

3. 結果及び考察

図1に、ダブルパルスビームを照射して SiC 表面を加工した時の加工閾値を示す。1パルスあたりのピーク照度は励起用の第1パルス、加工用の第2パルスともに、880mJ/cm² であり、ダブルパルスビームを1回照射した時の加工閾値を図中に併記する。図中の青線は、ピーク照度 1760mJ/cm² のシングルパルスビームを1回照射した時、加工表面が熔融 (Annealing)、再凝固する場合の最小照度、図中の赤線は、アブレーション

ョンによる除去加工が起こる場合の加工閾値を示す。

図中のプロットは、 $650\text{mJ}/\text{cm}^2$ の照度の第1パルスで励起された励起面に対して、アブレーション加工を行うのに必要な照射照度の下限値を示しており、単一のパルスを照射した場合に加工面の溶融が起こるのに必要な照度 ($990\text{mJ}/\text{cm}^2$) を下回る $650\text{mJ}/\text{cm}^2$ の照度のパルスを 10ps 以下の時間間隔で2回照射するとアブレーション加工が行われることが確認される。また、第1パルスと第2パルスの照射時間間隔を 10ms とした場合は、表面に加工痕が残らないことから、時間的に近接したパルスを持たない照度 $650\text{mJ}/\text{cm}^2$ のパルスを単独照射に関しては、SiC 表面に影響を及ぼさないことがわかる。

次に、表面励起効果の持続時間について検討する。第1パルスの照射後、 10ps の範囲までは、第2パルスでのアブレーション加工に必要なエネルギーがほとんど変化しないことから、その表面励起効果は、 10ps までの範囲では、そのほとんど残存することが確認される。SiC における表面励起は、第1パルス照射時の多光子吸収により価電子帯の電子が導電帯に励起された事に起因すると考えられる。4H-SiC は間接遷移型の半導体であり、導電帯に励起された電子が、空孔と再結合する場合には、格子イオンへのエネルギー拡散が必要となる。キャリア電子の間接遷移によって、ターゲット表面の励起効果が失われるのは、第1パルスの照射後 10ps のオーダーとなるとされ (参考文献2)、このことは、 10ps 以下の時間オーダーで第1パルスの励起効果が失われないこととよく一致すると考えられる。

図2に 0.4ps から 400ps までの範囲で、パルス照射間隔を増加させた場合に、アブレーション加工に必要な照射エネルギーの変化を調べた結果を示す。図中には、図1にも記載したシングルパルスで加工した場合の、アブレーション加工閾値、およびアニリング加工閾値を、それぞれ赤の実線、青の実線で記載している。また、図中の緑のプロットは、第1パルスおよび第2パルスのピーク強度を示している。図中の赤のプロットは、第1パルスと第2パルスの照射エネルギーの合計値を示しており、第1パルスと第2パルスの強度比は $1:1$ となるように設定している。

パルス間隔が 10ps 以下の領域では、合計照度 $1290\text{mJ}/\text{cm}^2$ のダブルパルスビーム (第1パルス $645\text{mJ}/\text{cm}^2$ 、第2パルス $645\text{mJ}/\text{cm}^2$) での加工が可能だが、パルス間隔が 100ps 以上になると、合計照度 $1580\text{mJ}/\text{cm}^2$ のダブルパルスビーム (第1パルス $790\text{mJ}/\text{cm}^2$ 、第2パルス $790\text{mJ}/\text{cm}^2$) による加工が必要になる。従って、 1ps から 100ps の範囲にパルスの照射間隔が広がる間に、 $290\text{mJ}/\text{cm}^2$ 相当の励起効果が失われ、導電帯の励起電子から格子イオンへ拡散したと考えられる。

パルス照射直後に現れるダブルパルスの第1パルスの励起効果が、シングルパルスによる加工閾値とダブルパルスの第2パルスの加工閾値の差であるの見積もると、その励起効果は $430\text{mJ}/\text{cm}^2$ となる。パルス照射直後の励起効果は、 10ps までは、ほぼその全量が保存され、それ以降は、徐々にその効果が失われるものの 400ps までは維持される。

以上の結果から、ダブルパルスビームの照射を行うことにより、多光子吸収などの高強度電界による非線形光学現象を利用しないと加工できないワイドバンドギャップ半導体材料を、単パルス照射の場合と比較して、低い照度のビームで加工できることが実験的に確認された。提案手法では、表面励起面は、 10ps 程度持続することから、ダブルパルスの時間間隔を 10ps 以内に維持することで、ワイドバンドギャップ材料の低照度ビーム加工技術が確立できる可能性を示した。

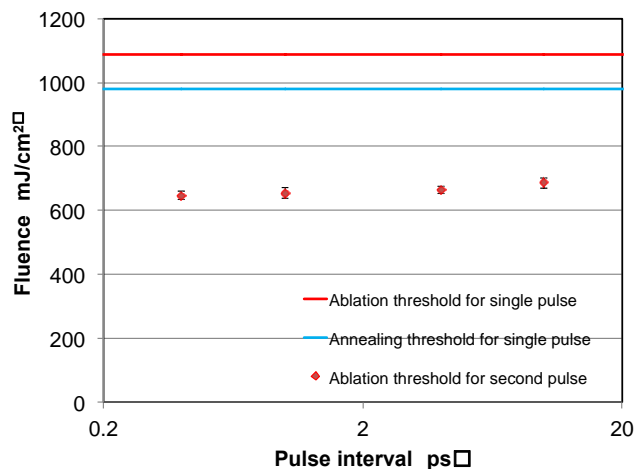


図1 ダブルパルスビーム照射時の加工閾値の比較

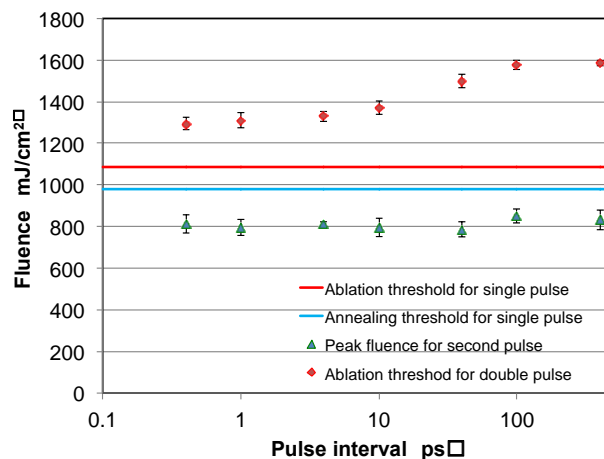


図2 パルス間隔とダブルパルス照射時の加工エネルギーの関係

今後は、ダブルパルスレーザーを用いた時の励起面の加工現象の解明するための検討を行う。深さ数 10nm の範囲で加工されるプラズマ励起表面の加工現象に伴う形態変化を、軟X線レーザーを用いた表面観察で可視化すれば、プラズマ励起表面を低照度ビームで加工する場合の加工メカニズムが解明できると考えられることから、表面形態の時間分解計測をするためのフェムト秒レーザー照射条件の最適化と軟X線レーザー実験装置へのマイケルソン型ダブルパルス発生装置組み込みの検討を行う。実験装置の完成後は、第一パルスを照射した面に対する、時間分解反射率計測実験等を行う他、その励起効果の時間依存特性に対するさらに詳細な調査を行うと共に、表面励起後に、第2パルスを照射した時の加工形態の変化を時間分解観察する実験を計画する。

4. 引用(参照)文献等

- 1) 林照剛, 福田悠介, 道畑正岐, 高谷裕浩, “パルストレーンビームを用いたコヒーレントフォノン励起加工に関する研究(第一報) —コヒーレントフォノン励起加工システムの構築と加工基礎実験—,” 精密工学会誌, vol. 80, no. 9, pp. 867-872, 2014.
- 2) K. C. Phillips, H. H. Gandhi, E. Mazur, and S. K. Sundaram, “Ultrafast laser processing of materials: a review,” Adv. Opt. Photonics, vol. 7, no. 4, pp. 684-712, 2015.