

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 30 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25286086

研究課題名(和文) コヒーレント軟X線を用いた高空間・高時間分解顕微干涉イメージングシステムの開発

研究課題名(英文) Development of high spatial and temporal resolution interference imaging system by using coherent soft x-ray

研究代表者

富田 卓朗 (Tomita, Takuro)

徳島大学・ソシオテクノサイエンス研究部・准教授

研究者番号：90359547

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：フェムト秒レーザー照射によって起こるナノメートルレベルでの微細な加工現象を明らかにするため、フェムト秒レーザーポンプ・軟X線プローブの時間分解イメージングシステムの構築を行った。反射率イメージングからはレーザー加工によって生じる剥離薄膜の膨張過程を明らかにすることができ、膨張途中の剥離薄膜の形状が入射レーザー光の強度プロファイルに一致することを明らかにした。

さらに、軟X線の干渉計測も行うことで、レーザー照射直後の1ナノ秒以下で生じる剥離薄膜の形成とアブレーション痕の形成過程も明らかにすることが出来た。

研究成果の概要(英文)：In order to discuss the nanometer-scaled precise ablation phenomena induced by femtosecond laser irradiation, we constructed the femtosecond laser pump and the soft x-ray probe time resolved imaging system. From the reflective imaging, we succeed to reveal the expansion process of the exfoliated film associated with the femtosecond laser ablation. In addition, it has found that the vertical shape of the exfoliated films is similar to the intensity profile of the incident laser beam used for the laser ablation.

Moreover, by using the soft x-ray interferometry, the formation process of the exfoliated film that has formed within less than one nanosecond, and the formation process of the ablation crater has successfully observed.

研究分野：光物質科学

キーワード：軟X線レーザー 顕微計測 時間分解測定 フェムト秒レーザーアブレーション シングルショット計測

## 1. 研究開始当初の背景

高強度のレーザー光を物質に照射すると、物質を構成している元素が原子や分子となり飛散・改質されることで、物質が加工される。特に、10兆分の1秒程度の短い時間フラッシュのように点滅するフェムト秒レーザーを照射した場合、照射したレーザー光の波長を下回る周期的な凹凸構造の自発的形成や1ショットあたり1原子層分の厚さを遥かに下回る掘削現象などの特異な現象が観察される。これらの現象は微細加工技術が必要とされるマイクロ・ナノ構造の製造分野や眼科手術などの医療分野にもフェムト秒レーザーを用いたレーシック技術として応用が開始されている。しかし、これらの加工過程の詳細は明らかになっていないため、その潜在能力が明らかになっておらず、フェムト秒レーザー照射による加工過程の正確な理解がその応用展開の上で非常に重要となってきている。

そこで本研究では、フェムト秒レーザー特有の微細加工現象を明らかにするため、波長13.9 nmのプラズマ軟X線レーザーを用いた反射率計測および干渉計測により、フェムト秒レーザー照射による加工の基礎過程解明を目指した。プローブ光に可視光よりも遥かに短波長の電磁波である軟X線を用いることで高い空間分解能での観測が可能となり、試料の面内方向と深さ方向の詳細な情報をピコ秒の時間精度で計測した。さらに、軟X線は侵入長も浅いため、フェムト秒レーザーによる加工現象のような表面現象を観測する上で最適である。

## 2. 研究の目的

- (1) フェムト秒レーザーポンプ・軟X線レーザー反射率プローブによって、フェムト秒レーザー照射後の剥離薄膜の時間変化を観察する。
- (2) フェムト秒レーザーポンプ・軟X線レーザー干渉プローブを用いて、フェムト秒レーザー照射後の試料表面の時間変化を観察する。
- (3) 上記の計測の時間分解能を高めるため、フェムト秒レーザーパルスと軟X線レーザーパルスのタイミング評価システムを構築する。

## 3. 研究の方法

(1) フェムト秒レーザーポンプ・軟X線レーザープローブ計測の光学系を構築し、プローブ光の試料からの反射率を測定することで、フェムト秒レーザー照射による加工過程の観察を行った。ポンププローブ計測とは、ポンプ光(試料表面に変化を引き起こす光)が試料に照射されてから、プローブ光(観察光)が試料に照射されるまでの現象を捉えるもので、特に電気的手法では計測が困難なナノ秒程度以

下の時間間隔を計測するうえで有用な手法である。具体的には、ポンプ光もしくはプローブ光の光路長を変化させることで、光の到達時間を変化させることにより、ポンプ光の照射部の時間変化を測定する測定方法のことである。

(2) (1)の光学系に、2枚の鏡を同一平面上からごく僅かに角度をつけたダブルロイズ鏡と呼ばれる光学素子を組み込むことで CCD 上にプローブ光の干渉縞を発生させる。この干渉計測によりフェムト秒レーザー照射による加工過程、特に、フェムト秒レーザー加工過程初期における表面の微小変位を観察した。

(3) 上記の計測中にポンプ光とプローブ光の一部をそれぞれ分離する光学系を構築した。この分離した光を利用し、フェムト秒レーザーパルスと軟X線レーザーパルスをストリークカメラに取り込むことで、反射率や干渉計測の観測中にピコ秒の精度でのレーザーパルス間のタイミング揺らぎを評価することを可能にした。

## 4. 研究成果

(1) 剥離薄膜形状の観察: 図1のような光学系を構築し、ポンププローブ法の反射率計測によってフェムト秒レーザー光を金属薄膜(タングステン、金、白金)に照射することによって生じる剥離薄膜の観察を行った。試料の金属薄膜は表面の平坦性を確保するため、石英基板等に蒸着を行って作製した。蒸着した金属薄膜の厚さは100 nmから113 nmであった

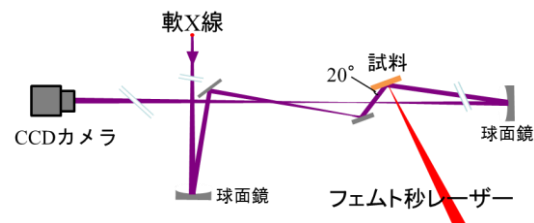


図1: 反射率計測の実験装置概略図

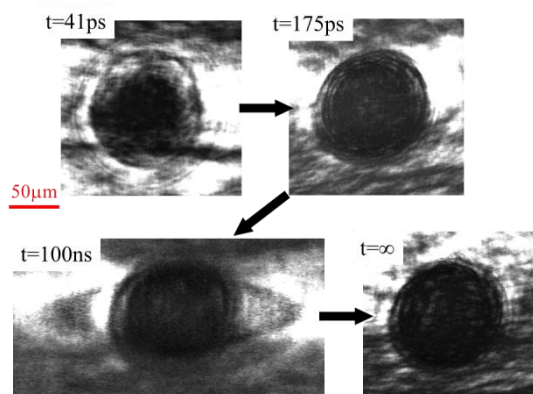


図2: タングステンにフェムト秒レーザー光を照射した際における反射率像の時間発展

が、本研究で議論する剥離薄膜の厚さは 10 nm 程度であるため、実際にはバルクの金属材料の加工過程を観察しているものと等価であると考えられる。

図 2 に反射率像の時間発展を示す。像の左上の数字はフェムト秒レーザーが照射されてからの時間を示している。 $t=\infty$ では、レーザー照射によって試料表面に凹凸が生じていることを示している。この凹凸が形成されるまでの時間帯で大きく二つの特徴的な反射率像が得られた。フェムト秒レーザー照射後 100 ピコ秒から 300 ピコ秒程度の時間帯において  $t=175$  ピコ秒のようなニュートンリング、50 ナノ秒から 300 ナノ秒程度の時間帯において  $t=100$  ナノ秒のときと同じような楕円形の低反射率部が観察できた。

現在、加工過程は光散乱や可視光イメージングなどの先行研究によってある程度体系付けられており、飛散物は薄膜となり飛散することが知られている。ニュートンリングはこの薄膜で反射した軟 X 線と試料表面つまり、加工された凹部の底面で反射した軟 X 線との干渉によって発生したと考えられる。この結果は、これまであらゆる状況下で観測されてきたニュートンリングの中で最も短波長の電磁波領域におけるニュートンリングの観察に成功したことになる。

その後、この薄膜は数十ナノ秒間膨張を続け、レーザー照射部の外側で反射していた軟 X 線を遮る高さになると、その影が現れ、 $t=100$  ナノ秒のときのような楕円形の低反射率部が発生した。この  $t=100$  ナノ秒のときのような反射率像から、その影の形状と、軟 X 線の入射角を考慮することで実際の剥離薄膜の形状が求められる。図 3 にこの方法によって求めた剥離薄膜形状の時間発展を示す。このグラフから、剥離薄膜の形状はガウス型関数の形状をしており、加工に用いたフェムト秒レーザー光の強度分布、つまりガウス型の強度分布と相似との関係にあることが明らかになった。このことから、レーザー照射によって生じる薄膜の形状はレーザーの強度分布により制御できるといえる。この成果は本研究によって初めて明らかになったものであり、この結果から剥離薄膜の形状は加工に用いるレーザーの強度分布によって精密に制御でき

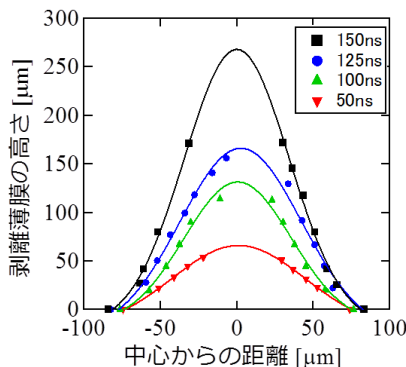


図 3：剥離薄膜形状の時間発展

ることがわかった。さらに、この結果を利用することでフェムト秒レーザー加工における飛散物(デブリ)の低減や制御に繋がることも期待できる。

(2) 試料表面形状の観察：

図 4 のように(1)の実験装置にダブルロイズ鏡を組み込み、干渉計測を行った。ダブルロイズ鏡とは二枚の鏡を微小な角度だけずらすことによって、1 枚目の鏡で反射した軟 X 線と 2 枚目の鏡で反射した軟 X 線との間に光路差を作り、干渉縞を発生させる素子のことである。

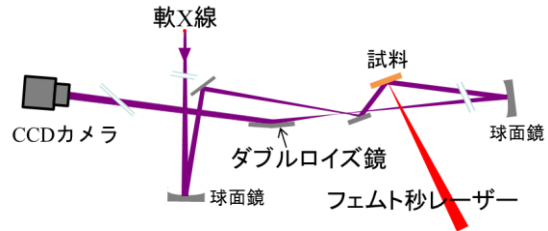


図 4：干渉計測装置の概略図

この実験によって得られた干渉像を図 5 に示す。この縦縞の干渉像において、干渉縞が直線の部分は試料表面が平坦であることを示し、左側へシフトしていることは試料表面が表面から膨張していることに対応している。右側へのシフトは試料表面がへこんでいることを示している。図 5 より、 $t=19$  ピコ秒でフェムト秒レーザー照射部の中央付近が左方向にシフトし、 $t=71$  ピコ秒でそのシフト量が増加していることがわかる。その後、 $t=260$  ピコ秒では  $t=\infty$  と同じように黒い円盤の淵付近で左側へ、中央付近で右側へシフトしていることがわかる。このように軟 X 線の干渉計測を用いることで、フェムト秒レーザー光照射直後の表面形状の変化をプラズマ等の影響を受けることなく観測することができた。

この干渉像を解析することによって、表面形状を三次元像に復元することができ、復元された形状が図 6 のようになる。図 6 から、フェムト秒レーザー照射後、試料表面は一度

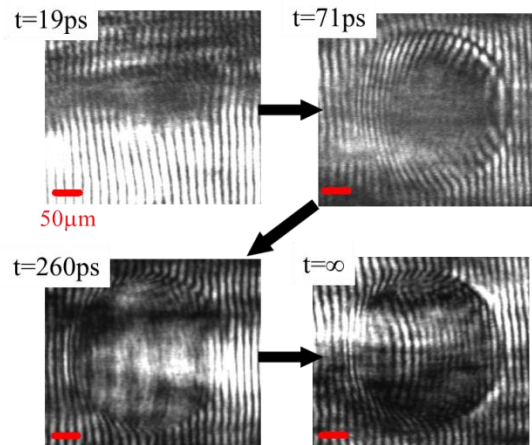


図 5：タングステンにフェムト秒レーザーを照射した際における干渉像の時間発展

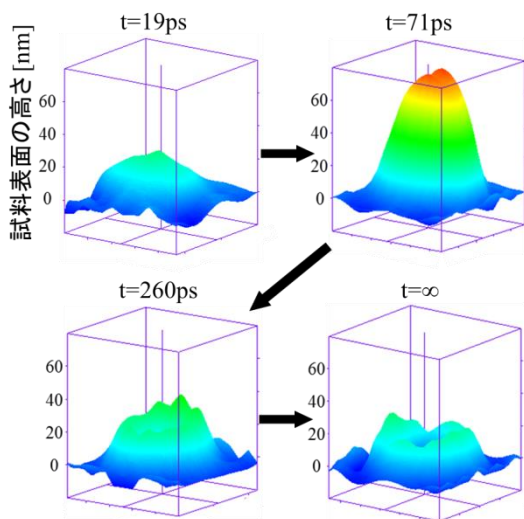


図 6：試料表面形状の時間発展

膨張した後にへこんでいくことを見出した。この結果から反射率像によって得られた剥離薄膜の持続的な膨張とは対照的に試料表面は比較的早い時間帯からへこみはじめることが明らかになった。

(3) タイミング計測システムの構築：(1)と(2)の計測からもわかるように、フェムト秒レーザー照射によって生じる現象はピコ秒からナノ秒領域で起こる高速な現象である。この計測には、ポンプ光とプローブ光の照射タイミングをピコ秒の精度で正確に計測するシステムが必要となる。そこで我々は、図 7 のようなタイミング計測システムを構築し、ストリークカメラによってポンプ光とプローブ光の時間差を測定した。

まず、赤と紫で示した光を同時にストリークカメラに取り込むようにポンプ光とプローブ光の光路を構築した。次に、ポンプ光とプローブ光をそれぞれ分離した光(橙と緑)の時間差を計測する。この橙と緑の時間差が  $t=0$  のときの時間差となる。

この時間差がわかることにより、ポンプ光とプローブ光に光路差を発生させてストリークカメラで得られた時間差から橙と緑の時間

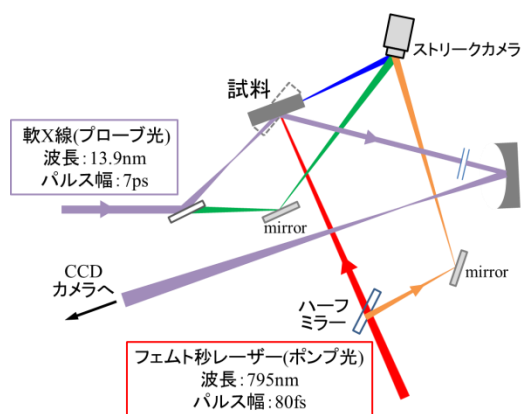


図 7：ポンプ光とプローブ光のタイミング計測システム

差を差し引くことで、試料でのポンプ光とプローブ光の時間差を得ることができる。

以上のようにポンプ光とプローブ光のタイミングを計測するシステムを構築した。この計測システムは前述した反射率計測や干渉計測にも用いられている。さらに、この手法は国内外の他の軟X線光源を用いた時間分解計測にも適用可能な汎用的な手法である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

① N. Kakimoto, T. Eyama, R. Izutsu and T. Tomita, The Shape of The Exfoliated Surface during Femtosecond Laser Ablation, Journal of Laser Micro/Nanoengineering (査読有), Vol. 11, pp. 91-94, 2016  
DOI: 10.2961/jlmn.2016.01.0017

② M. Baba, M. Nishikino, N. Hasegawa, T. Tomita, Y. Minami, R. Takei, M. Yamagiwa, T. Kawachi and T. Suemoto, Submicron scale image observation with a grazing incidence reflection-type single-shot soft X-ray microscope, Japanese Journal of Applied Physics (査読有), Vol. 53, pp.080302 (1-4), 2014  
DOI: 10.7567/JJAP.53.080302

③ T. Tomita, M. Nishikino, N. Hasegawa, Y. Minami, R. Takei, M. Baba, T. Eyama, S. Takayoshi, T. Kaihori, T. Morita, Y. Hirano, T. Kawachi, M. Yamagiwa and T. Suemoto, Time-resolved soft x-ray imaging of femtosecond laser ablation processes on metals, Journal of Laser Micro/Nanoengineering (査読有), Vol.9, pp. 137-142, 2014.  
DOI: 10.2961/jlmn.2014.02.0011

④ 富田 卓朗、固体物性からみたレーザーアブレーション、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、プラズマ・核融合学会誌、査読有、Vol. 89、2013 年、493-499 頁  
URL: <http://ci.nii.ac.jp/naid/110009636051/>

〔学会発表〕(計 32 件)

① 江山 剛史、柿本 直也、井筒 類、富田 卓朗、長谷川 登、錦野 将元、南 康夫、馬場 基芳、河内 哲哉、山極 満、末元 徹、金属のフェムト秒レーザーアブレーション過程における剥離形状と照射強度分布の相関、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 23 日、早稲田大学早稲田キャンパス(東京都・新宿区)

② 柿本 直也、江山 剛史、井筒 類、富田 卓朗、長谷川 登、錦野 将元、南 康夫、馬場 基芳、河内 哲哉、山極 満、末元 徹、軟 X 線シャドウグラフを用いたフェムト秒レーザー照射によるタンゲステンの剥離薄膜形状の観測、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月

22日、早稲田大学早稲田キャンパス（東京都・新宿区）

③ T. Tomita, Single-shot soft x-ray imaging for the understanding of femtosecond-laser induced nano-periodic structure formation process, The 15th Symposium on Advanced Photon Research, 13th Nov. 2014, Japan Atomic Energy Agency (Kyoto・Kizugawa-shi)

④ N. Kakimoto, T. Eyama, T. Tomita, N. Hasegawa, M. Nishikino, Y. Minami, R. Takei, M. Baba, T. Kaihori, T. Morita, Y. Hirano, T. Kawachi, M. Yamagiwa and T. Suemoto, Observation of femtosecond laser ablation process in nanoseconds region by soft x-ray shadow graph, 9th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications, KUNIBIKI MESSE (Shimane Prefectural Convention Center), 1st Oct. 2014, (Shimane・Matsue)

⑤ T. Tomita, N. Hasegawa, M. Nishikino, T. Eyama, Y. Minami, R. Takei, M. Baba, T. Kaihori, T. Morita, Y. Hirano, T. Kawachi, M. Yamagiwa and T. Suemoto, Observation of the transient state of the femtosecond laser ablation phenomena on various metals, 8th International Conference on Reactive Plasmas 31st Symposium on Plasma Processing, 6th Feb. 2014, Fukuoka Convention Center, (Fukuoka・Fukuoka),

[その他]

研究室ホームページ

<https://cms-ldap.db.tokushima-u.ac.jp/DAV/person/S10703/WEB/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

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・准教授

研究者番号：90359547

### (2) 研究分担者

長谷川 登 (HASEGAWA, Noboru)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・  
量子ビーム応用研究部門・研究職

研究者番号：50360409

(平成27年度より削除)

錦野 将元 (NISHIKINO, Masaharu)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・  
量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：70370450

(平成27年度より削除)

河内 哲哉 (KAWACHI, Tetsuya)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・  
量子ビーム応用研究部門・研究主幹

研究者番号：40343941

(平成27年度より削除)

末元 徹 (SUEMOTO, Tohru)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：50134052

(平成27年度より削除)

大西 直文 (OHNISHI, Naofumi)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：20333859

(平成27年度より削除)

### (3) 研究協力者

江山 剛史 (EYAMA, Takashi)

柿本 直也 (KAKIMOTO, Naoya)

井筒 類 (IZUTSU, Rui)