

令和元年6月21日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K04989

研究課題名(和文) 微細加工の制御に向けたフェムト秒レーザーアブレーション過程の軟X線プローブ計測

研究課題名(英文) Observation of the femto second laser ablation process by the soft x-ray laser probe towards the control of laser nano-processing

研究代表者

長谷川 登 (HASEGAWA, Noboru)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 光量子科学研究部・主幹研究員(定常)

研究者番号：50360409

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、フェムト秒レーザーのアブレーションダイナミクスの解明のために、7ピコ秒の時間分解能・1.5ナノメートルの深さ分解能・0.7ミクロンの空間分解能を有する軟X線レーザー干渉計を用いて、アブレーション閾値近傍における膨張表面の時間・空間分解計測を行った。表面計測の観測に最適な軟X線をプローブとしたことで、フェムト秒レーザーアブレーション特有の薄膜構造を伴った膨張過程の時間発展の直接観測が可能となり、ナノメートル級の微小な膨張が始まる初期過程からクレーターの形成までを同一の配置で観測することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した軟X線レーザープローブを用いた時間空間分解計測手法により得られるアブレーションダイナミクスに関する計測結果は、従来困難であったシミュレーションと実験の直接比較を可能とする。また、本計測手法は、金属に限らず軟X線が反射可能な条件であれば様々な材質に対して適応可能であることから、加工シミュレーター等の開発への貢献が期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study, we observed the femto second laser ablation process around the laser ablation threshold towards the understanding and precise control of the laser processing. The soft x-ray interferometer with 7 picosecond time resolution, 1.5 nanometer depth resolution and 0.7 micron lateral resolution was developed for the temporal and spatial resolved measurement. By using this system, we have succeeded in the measurement of the femto second laser ablation process with the thin film structures, and obtaining the data set from the initial stage with nanometer scale expansion to the crater formation in the same experimental arrangement.

研究分野：レーザー工学、プラズマ物理

キーワード：レーザーアブレーション フェムト秒レーザー加工 軟X線干渉計測 時間空間分解計測

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年発達の著しいフェムト秒(fs)レーザーによるアブレーションを利用した加工手法は、固体中の電子と格子の衝突によるエネルギーの拡散時間(>10ピコ秒)よりも十分にパルス幅が短いため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[1]が、微細(ナノメートル)、高速(電子・格子(イオン)の相互作用時間:数十ピコ秒)かつ長時間(格子が破壊され、移動する時間:百ナノ秒以上)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時間空間分解計測が困難であるため、その加工現象のダイナミクスの理解は未だ十分ではない。

我々は「波長 13.9 nm の軟X線レーザーを光源としたプローブシステム」を開発し、fs レーザーアブレーション過程のシングルショット計測に成功している[2]。軟X線は、プラズマに対する透過力が高い一方で、固体に対する侵入長が数 nm 以下であることから、プラズマの影響を避けつつ固体表面の情報を得る事が可能な唯一の波長領域である。更に「可視光と比較して到達可能な空間分解能が高い」、「固体中の自由電子との相互作用が小さいため格子を直接観測、つまり誘電率等ではなく物質の形状を直接観測できる」等、アブレーションを観測する上で際立った利点がある。本システムを用いることで、フェムト秒レーザーアブレーションの新たな知見が得られつつある。

2. 研究の目的

本研究の最終目標は、フェムト秒レーザーのアブレーションダイナミクスを解明し、ナノメートル級の微細加工を実現することにある。フェムト秒レーザー加工を精密に制御するためには、破壊閾値近傍において、固体面の膨張の始まるピコ秒から、大部分の質量が噴出する数百ナノ秒までを連続的に観測し、実験結果を反映した理論モデルの構築を行うことが必要となる。本研究では、軟X線レーザー干渉計により、ピコ秒からサブマイクロ秒までのアブレーション過程を観測し、シミュレーションとの直接比較が可能な時間空間分解されたデータの取得方法を確立する。

3. 研究の方法

図1に軟X線レーザーを光源とした干渉プローブシステムの概略を示す。軟X線プローブとしては、高強度のNd:glassパルスレーザーを固体上に線状に集光して得られる銀の多価イオンプラズマ中の反転分布を利用したプラズマ軟X線レーザー(SXRL, 波長 13.9 nm、パルス幅 7 ps)を使用した。アブレーション用の光源であるチタンサファイアレーザーは、パルス幅 80 fs、サンプル上での集光プロファイルは半値全幅 100 μm のガウス分布である。光学的な遅延と電気信号による遅延を組み合わせることで、チタンサファイアレーザーが照射されてから最大 100 ms までの現象を観測することが可能である(各レーザーの同期の精度は 2 ps)。

サンプル上の軟X線像は、Mo/Si 多層膜凹面鏡により背面照射型 CCD カメラ上に約 40 倍の倍率で結像される。図2に金のフェムト秒レーザーアブレーション過程の軟X線計測の例を示す。図2(a)はチタンサファイアレーザー照射から約 600 ps 後の軟X線反射像であり、レーザーの照射エリア内部に多数の同心円模様が観測されている。これは、膨張する高密度面(Ablation front: AF)の上方に薄膜状の構造体(Expansion front: EF)が形成され、2つの面から反射した軟X線の干渉により発生したニュートンリングであると予想される。EF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密度・高精度(固体密度の1/2以上、面粗さ数nm以下)な薄膜であることがニュートンリングの解析から見積もられている。図2(b)は、レーザー照射(照射強度 $\sim 1.3 \text{ J/cm}^2$ )から 200 ns 後の軟X線反射像であり、ドーム状に膨張するEFの影(シャドウグラフ)を示している。EFの影の明度は軟X線の吸収量を示しており、EF内部を飛翔する物質の質量を見積もることが可能であり、その総質量は最終的に形成されるクレーターの最大7割に達する。従って、この時点でクレーターの形成はほぼ終了していることが分かる。EFの形成は超短パルスレーザーアブレーション特有のユニークな現象であるが、ニュートンリングを利用した計測では、初期段階において大部分の質量を内包しているAFの情報が見られず(計測できるのはEFとAFの間隔)、また、EFの面精度によっては観測自体が困難である。

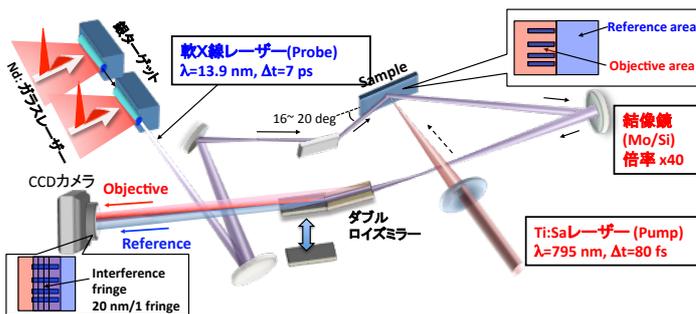


図1) 軟X線レーザープローブ装置

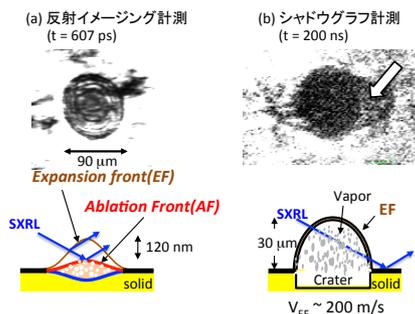


図2) フェムト秒レーザーアブレーション過程の軟X線計測例

本研究では、凹面ミラーと CCD の間には、微小な角度 ( $\sim 0.02$  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を挿入し、軟 X 線を空間的に分割し、軟 X 線を CCD 上で重ね合わせる事で高精度の干渉計測を行う。サンプル鉛直方向の空間分解能は 2 nm、水平方向分解能は  $0.7 \mu\text{m}$  である。参照光側のロイズミラーの角度を変更する事で、同一配置で反射像計測を行う事も可能である。

#### 4. 研究成果

図 3 に金のフェムト秒レーザーアブレーション過程 (照射条件は図 2 と同等) の軟 X 線干渉像を示す。レーザー照射後から 100ps 程度までは照射強度のピーク位置を中心に高さ数十 nm の滑らかな膨張を示すが、200ps 以後では、高さ数十 nm の高さを示す干渉縞に重なって、100 nm 以上の高さを示す輝度の低い干渉縞が観測されており、それぞれは図 2 中の AF と EF を示していると考えられる。レーザー照射から 252 ps 後における、それぞれの干渉縞の示す高さのピーク値は、 $h_{AF} \sim 70\text{nm}$ 、 $h_{EF} \sim 150 \text{ nm}$  であり、AF と EF の間隔は 80 nm である。これは、ニュートンリングを用いた観測により求めた値 (83 nm) と良く一致しており、反射像計測では不可能であった AF と EF の同時直接観測に成功したことを示している。レーザー照射から 1 ns 以降では、AF に相当する干渉縞は低輝度かつぼやけている (EF は観測可能範囲外)。これは、固体表面から粒子が飛散することで境界が不明瞭となる状態、即ちクレーター形成の初期段階 (図 2 (a), (b) の中間状態) であることを示している。

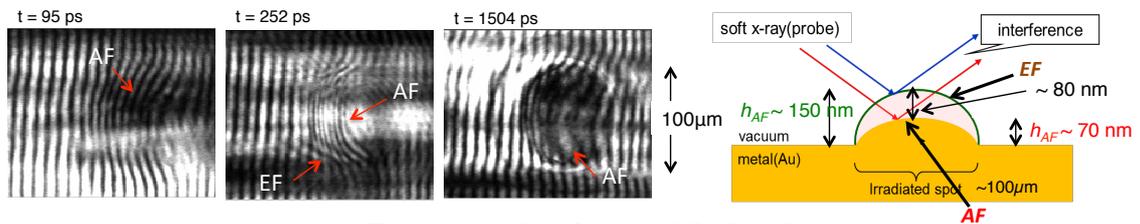


図3) 金のfsレーザーアブレーション過程の干渉計測

図 4 に金のフェムト秒レーザーアブレーション過程における AF と EF の高さの時間発展について、反射計測、干渉計測により計測した結果をまとめた。レーザー照射後 200 ps までは AF が膨張し、それ以後は AF から EF が分離し、AF はその高さをほぼ一定に保持する反面、EF 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  $100 \mu\text{m}$  にも達する。ニュートンリングが観測される時間帯 (200~800 ps) では、EF は軟 X 線に対するビームスプリッターとして機能する程に精度の高い薄膜であり、かつ飛翔した質量は EF に集中していると予想される。EF の面精度が低下し、軟 X 線のビームスプリッターとして機能しなくなった時間帯 (1~500 ns) では EF はシャドウグラフとして観測され、AF から粒子が供給され続けることでクレーターの質量の大部分が EF ドーム内に充填し、最終的には飛散する (EF が観測されなくなる)。フェムト秒レーザーアブレーションの全体像が観測可能となったことで、シミュレーションに対するベンチマークとの直接比較が可能となった。

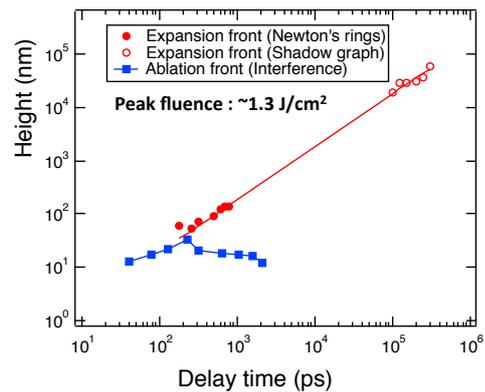


図4) 金のfsレーザーアブレーション過程の全体像

図 5 に、タングステンのフェムト秒レーザーアブレーション過程 (照射強度  $\sim 1 \text{ J/cm}^2$ ) への本計測の適用例を示す。反射計測では、照射範囲の外縁部にニュートンリングが観測されているが、中央部分では観測されていない。これは、金の場合に比較して EF の膜精度が劣っており、照射強度の低い限られた領域でのみ EF が軟 X 線に対するビームスプリッターとして機能している事を示している。一方、干渉計測では AF と EF が明瞭に観測されている。本計測から、高精度の干渉計測により、EF の膜精度に依存しない計測が可能であり、異なる材質においても本計測が有用であることが示された。

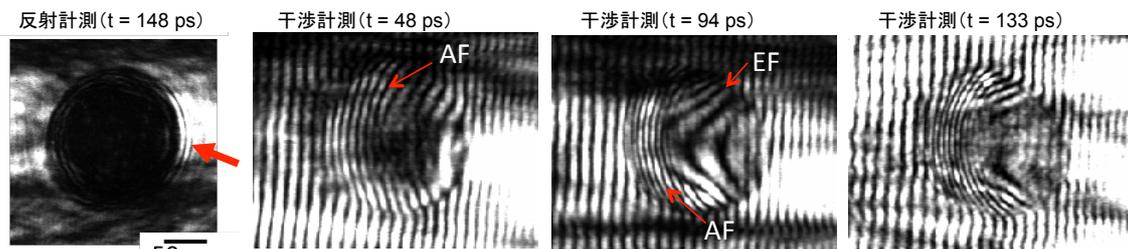


図5) タングステンのfsレーザーアブレーションへの軟X線プローブ計測の適用

本研究では、フェムト秒レーザーのアブレーションダイナミクスの解明を目指して、シミュレーションとの直接比較を可能とする、アブレーション表面の時間・空間分解計測を行った。波長 13.9 nm の軟X線レーザーをプローブとした反射像計測に干渉計測を加えることで、フェムト秒レーザーアブレーション特有の複数の膨張表面を有する膨張過程を観測することに成功した。本計測手法は、基本的に表面精度の初期状態が良く（蒸着膜等）、軟X線の反射が可能な物質であれば金属に限らず（Si、SiC ウェハ等）観測可能であるため、様々な物質に対してアブレーション閾値近傍におけるアブレーションダイナミクスの観測が可能である。従って、シミュレーションとの直接比較が可能なデータセットの取得が可能であり、加工シミュレーターの開発への貢献が期待される。

#### 参考文献

- [1] M Fujita and M. Hashida, J. Plasma Fusion Res. Vol.81, Suppl. 195-201 (2005).
- [2] T. Suemoto. et al. Opt. Exp. 18, 14114-14122 (2010).

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 15 件）

- ① Masahiko Ishino, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, 他 6 名  
Development of soft x-ray laser irradiation beamline for ablation and damage study, Proceedings of SPIE, Vol. 10905, pp. 109051C-1 - 109051C-5 (2019), 査読無し
- ② 長谷川 登, 錦野 将元  
軟X線レーザーによるフェムト秒レーザーアブレーション過程の観察, J. Plasma Fusion Res. Vol.94, No.5, pp.261-265 (2018), 査読有  
[http://www.jspf.or.jp/Journal/PDF\\_JSPF/jspf2018\\_05/jspf2018\\_05-261.pdf](http://www.jspf.or.jp/Journal/PDF_JSPF/jspf2018_05/jspf2018_05-261.pdf)
- ③ Masahiko Ishino, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, 他 10 名  
Study of damage structure formation on aluminum film targets by picosecond soft X-ray laser ablation around threshold region, Applied Physics A, Vol.124, pp.649-1 - 649-8 (2018), 査読有  
DOI: 10.1007/s00339-018-2072-9
- ④ Masahiko Ishino, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, 他 3 名  
Analysis of reflection signal from EUV multilayer mirror for irradiation-induced damage study, Springer Proceedings in Physics 202, pp.315-319 (2018), 査読有
- ⑤ Masaharu Nishikino, Noboru Hasegawa, Masahiko Ishino, 他 11 名  
Progress and Prospects of X-Ray Laser Research in QST, Springer Proceedings in Physics 202, pp.21-24 (2018), 査読有
- ⑥ Satoshi Ichimaru, Masahiko Ishino, Masaharu Nishikino, Noboru Hasegawa, 他 6 名  
Irradiation damage test of Mo/Si, Ru/Si and Nb/Si multilayers using the soft x-ray laser built at QST, Springer Proceedings in Physics 202, pp.303-307 (2018), 査読有
- ⑦ Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, Masahiko Ishino, 他 9 名  
The Observation of Transient Thin Film Structures During the Femto-Second Laser Ablation Process by Using the Soft X-Ray Laser Probe, Springer Proceedings in Physics, Vol. 202, pp. 273-278 (2018), 査読有  
DOI: 10.1007/978-3-319-73025-7\_40
- ⑧ T. Kumada, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, 他 3 名  
Development of Time-Resolved Small-Angle X-Ray Scattering System Using Soft X-Ray Laser, Springer Proceedings in Physics 202, pp.401-404 (2018), 査読有
- ⑨ K. Matsunaga, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, 他 7 名  
Investigation of Surface Excitation Effect for Ablation of 4H-SiC Substrate Using Double-Pulse Beam, Springer Proceedings in Physics 202, pp.321-326(2018), 査読有
- ⑩ Masaharu Nishikino, Noboru Hasegawa, Tetsuya Kawachi  
Formation of x-ray Newton's rings from nano-scale spallation shells of metals in laser ablation, AIP Advances, Vol.7, No.1, pp.015311-1 - 015311-5 (2017), 査読有  
DOI: 10.1063/1.4975218
- ⑪ 長谷川 登, 錦野 将元, 南康夫, 馬場基芳, 大西直史, 伊藤篤史, 河内 哲哉, 末元徹  
超短パルス軟X線レーザープローブによるフェムト秒レーザーアブレーション初期過程の解明, 第 85 回レーザ加工学会講演論文集, pp.179-182 (2017), 査読無
- ⑫ Masaharu Nishikino, Noboru Hasegawa, 他 13 名  
Observation of fs-laser spallative ablation using soft X-ray laser probe, Proceedings of SPIE, Vol.10091, pp. 100910 0-1 - 100910 0-5 (2017), 査読無  
DOI: 10.1117/12.2255725
- ⑬ N. A. Inogamov, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, Masahiko Ishino, 他 12 名  
Rarefaction after fast laser heating of a thin metal film on a glass mount, AIP Conference Proceedings, Vol.1893, pp.070012 (2017), 査読無

DOI: 10.1063/1.4971600

- ⑭A. Faenov, Masahiko Ishino, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, 他 7 名  
Soft x-ray laser ablation of metals and dielectrics, Proceedings of SPIE, Vol. 10243, pp. 102430S-1 - 102430S-10 (2017), 査読無
- ⑮ Masahiko Ishino, Masaharu Nishikino, Noboru Hasegawa, 他 2 名  
Study of optical emission during spallative ablation induced by soft x-ray laser pulses, Springer Proceedings in Physics 169, pp.405-409 (2016), 査読有  
DOI: 10.1007/978-3-319-19521-6\_53

[学会発表] (計 24 件)

- ① Noboru Hasegawa  
Study of the dynamics of the femto-second laser ablation by using the soft x-ray laser probe in QST, SPIE Photonics West LASE LAMOM, San Francisco, California, USA, 2019.02.05.
- ② Masahiko Ishino  
Development of soft x-ray laser irradiation beamline for ablation and damage study, SPIE Photonics West LASE LAMOM, San Francisco, California, USA, 2019.02.05.
- ③ Nishikino Masaharu  
Surface Ablation by Soft X-ray Laser Pulse for EUV nano-scale fabrication, SPIE Photonics West /LAMOM XXIV, 招待講演, San Francisco, California, USA, 2019.02.02.
- ④ 錦野 将元  
軟 X 線自由レーザーによる材料表面加工応用に向けた表面アブレーション, レーザー学会学術講演会第 39 回年次大会, 東京都, 港区, 東海大学, 2019.01.12.
- ⑤ 長谷川 登  
金属薄膜のフェムト秒レーザーアブレーション過程の観察, レーザー学会学術講演会 第 39 回年次大会, 東京都, 港区, 東海大学, 2019.01.12.
- ⑥ 長谷川 登  
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, 第 35 回プラズマ・核融合学会, 招待講演, 大阪府, 吹田市, 大阪大学, 2018.12.03.
- ⑦ Shinichi Namba  
Anomalous enhancement of water window X-rays emitted from laser produced Au plasma under low-pressure nitrogen atmosphere, 2nd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics (AAPS-DPP2018), 石川県, 金沢市, 石川県文教会館, 2018.11.12.
- ⑧ Shinichi Namba  
Fully coherent plasma x-ray laser by injection of a parametrically amplified high-order harmonic beam, 60th Annual Meeting of the APS Division of Plasma Physics, Portland, Oregon, USA, 2018.11.5.
- ⑨ Masahiko Ishino  
EUV laser irradiation system with intensity monitor, 16th International Conference on X-Ray Lasers, Prague, Czech Republic, 2018.10.07.
- ⑩ Shinich Namba  
Li-like Aluminum plasma soft x-ray laser by means of recombination scheme, 16th International Conference on X-Ray Lasers, Prague, Czech Republic, 2018.10.07.
- ⑪ Noboru Hasegawa  
Study of the laser ablation process of metals by using the soft x-ray laser, 16th International Conference on X-Ray Lasers, Prague, Czech Republic, 2018.10.07.
- ⑫ Masahiko Ishino  
EUV Laser Ablation and Damage Examination, SACLA Users' Meeting 2018, 兵庫県, 佐用町, SPring-8, 2018.09.06.
- ⑬ Noboru Hasegawa  
Study of the laser ablation process of metals and dielectrics using the soft x-ray lasers in QST, World Congress of Smart Materials 2018, 大阪府, 大阪市, ハイアットリージェンシー大阪, 招待講演, 2018.03.06.
- ⑭ 長谷川 登  
フェムト秒レーザーアブレーションで発生する過渡的な微細構造の観測, レーザー学会第 38 回年次大会, 京都府, 京都市, 都京都市勤業館やこめっせ, 2018.01.23.
- ⑮ 石野 雅彦  
超短パルス軟 X 線レーザー照射によるアブレーション, 第 78 回応用物理学学会秋季学術講演会, 福岡県, 福岡市, 福岡国際会議場国際センター福岡サンパレス, 2017.09.05.
- ⑯ Masahiko Ishino  
Soft x-ray laser ablation of metals and dielectrics, SPIE Optics + Optoelectronics 2017, San Diego, California, USA, 招待講演, 2017.04.24.
- ⑰ Masaharu Nishikino

Observation of femtosecond laser spallative ablation dynamics by using soft x-ray laser probe, SPIE OPTICS + OPTOELECTRONICS, San Diego, California, USA, 2017.04.23.

⑱ Masaharu Nishikino

Observation of fs-laser spallative ablation by soft x-ray laser probe, SPIE Photonics west, 招待講演, San Francisco, California, USA, 2017.01.29.

⑲ 長谷川 登

軟X線レーザープローブによるフェムト秒レーザーアブレーション初期過程の観測, 光・量子ビーム科学合同シンポジウム 2016, 大阪府, 豊中市, 千里ライフサイエンスセンター, 2016.11.24.

⑳ 長谷川 登

超短パルス軟X線レーザープローブによるフェムト秒レーザーアブレーション初期過程の解明, レーザ加工学会, 招待講演, 大阪府, 吹田市, 大阪大学, 2016.06.10.

㉑ Masaharu Nishikino

Study on Initial Process of fs Laser Ablation Dynamics by using Soft x-ray Laser Probe, CLEO:2016, 招待講演, San Jose, California, USA, 2016.06.05.

㉒ Noboru Hasegawa

The observation of transient thin film structures during the femto-second laser ablation process by using the soft x-ray laser probe, The 15th International Conference on X-Ray Lasers, 奈良県, 奈良市, 奈良春日野国際フォーラム, 2016.05.22.

㉓ Masahiko Ishino

Progress and Prospects of X-ray Laser Research in QST, International Conference on X-ray Lasers 2016, 奈良県, 奈良市, 奈良春日野国際フォーラム, 2016.05.22.

㉔ Masahiko Ishino

Damage on EUV multilayer optics caused by irradiation of focused pico-second soft x-ray laser pulses, XOPT, 神奈川県, 横浜市, パシフィコ横浜, 2016.05.18.

[その他]

特になし

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：錦野 将元

ローマ字氏名：NISHIKINO, Masaharu

所属研究機関名：国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構

部局名：関西光科学研究所 光量子科学研究部

職名：グループリーダー

研究者番号 (8桁)：70370450

研究分担者氏名：石野 雅彦

ローマ字氏名：ISHINO, Masahiko

所属研究機関名：国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構

部局名：関西光科学研究所 光量子科学研究部

職名：主幹研究員

研究者番号 (8桁)：80360410

研究分担者氏名：難波 慎一

ローマ字氏名：NAMBA, Shinichi

所属研究機関名：国立大学法人 広島大学

部局名：工学研究科

職名：教授

研究者番号 (8桁)：00343294

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。