

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 3 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390103

研究課題名(和文)超短パルス軟X線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

研究課題名(英文)A study of the initial process of the femtosecond laser ablation by using the soft x-ray laser probe.

研究代表者

長谷川 登 (HASEGAWA, NOBORU)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究職

研究者番号：50360409

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：高速・微細現象であるため計測が困難であったフェムト秒レーザーアブレーションの初期過程を「フェムト秒レーザーポンプ・軟X線レーザープローブ装置」を改良することで詳細計測を行った。照射強度がアブレーション閾値近傍の場合、膨張する表面(Ablation front)から薄膜状の構造体(Expansion front)が放出されることを明らかにした。特に金をサンプルとした場合には、厚さ10ナノメートル以下、面粗さ数ナノメートル以下の極めて精度の高い薄膜が形成される。更に、実験結果を分子動力学(MD)シミュレーションの指標とすることで、100ピコ秒以内の初期過程を計算機上で再現することに成功した。

研究成果の概要(英文)：We have succeeded in observation of the details of the temporal evolution of the ablating surfaces induced the femto-second laser by using the shingle-shot soft x-ray laser probe system. The ablation front with a solid or the melted surface and the expansion front with thin film structure were observed. Especially the sample of Au, the expansion front separated from the ablation front was thin, dense and smooth, therefore it works as the beam splitter for the soft x-rays at the time within 1 ns after the laser irradiation. The surface roughness of expansion front was better than a few nm, and the formation of nano-bubble structures were expected below the ablation front. In addition we have observed the result of the theoretical simulation for the femtosecond ablation process within 100 ps by using the molecular dynamics (MD) simulation.

研究分野：プラズマ物理

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

1. 研究開始当初の背景

フェムト秒レーザー加工では、特にアブレーション閾値強度近傍において明確な閾値特性が観測されており、加工の制御に繋がるとして注目されている[1]。閾値特性の存在は、照射強度によってアブレーション過程が異なる事を示唆しているが、その機構は未だ明らかにされていない。物理機構の解明には時間分解計測が不可欠であるが、高速(電子・原子核の相互作用時間: 数十ピコ秒)、微小(ナノメートル級)な現象であり、更にアブレーションによって生じる表層プラズマにより可視光領域のプロブは使用困難となる事から、その計測は困難である。故に従来では、アブレーションの終状態(クレーター)の観測と分子動力学(MD)シミュレーション等が研究の中心であり、それらの直接的な比較も難しかった。

申請者らは、高強度のプラズマ軟X線レーザー(SXRL)を用いたプロブ計測手法を開発することで、フェムト秒レーザー照射金属表面のアブレーションの時間スケールが照射強度に極めて敏感である事を示し、またアブレーション閾値強度近傍でのみ発生する特異的な現象を観測することに成功している。特に「アブレーション閾値近傍強度でのダイナミクス」は、アブレーション機構の解明に繋がるため、より詳細な計測が求められている。

2. 研究の目的

本研究の最終目標は、フェムト秒レーザー照射におけるアブレーション機構の解明にある。研究期間内においては、アブレーションの初期過程の時間・空間分解計測を行うための「フェムト秒レーザーポンプ・軟X線レーザープロブシステム」を整備・改良し、レーザー照射から数百ピコ秒以内のアブレーション閾値強度近傍での初期過程の観測を行う。更に複数の物質に対する観測及びシミュレーションとの比較を行い、アブレーション機構の解明を目指す。

3. 研究の方法

(1) 軟X線レーザープロブ計測

軟X線は、プラズマに対する透過力が高い一方で、固体に対する浸透長が数 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(図1)。申請者らは、プラズマ軟X線レーザー(SXRL)を利用したポンプ・プロブ計測システム(図2)を開発し、研究開始時点において、深さ方向分解能約 1 nm、水平方向分解能 2 μm 、時間分解能 7 ps での金属表面のシングルショット計測に成功している[2]。図2内のロイズ鏡は軟X線を参照光と信号光に分割し受光面(CCD)上で重ね合わせる役割をしており、ミラーの角度の調整により、干渉計測と非干渉(反射像)計測を選択可能である。軟X線の反射率は表面形

状(面粗さ)に強く依存している(3 nm の表面粗さで反射率は約半分になる)ため、反射像計測は局所的な面粗さの観測に相当する。本システムでは、軟X線の空間分解計測が可能であるため、フェムト秒レーザーの照射プロファイルをガウス分布とすることで、局所的な照射強度に対するアブレーション過程の変化を1ショットで観測することができる。本システムを用いて、複数の金属(プラチナ、金、タングステン)を対象として、アブレーション閾値強度近傍におけるナノメートル級の表面変位の時間分解計測を行った。

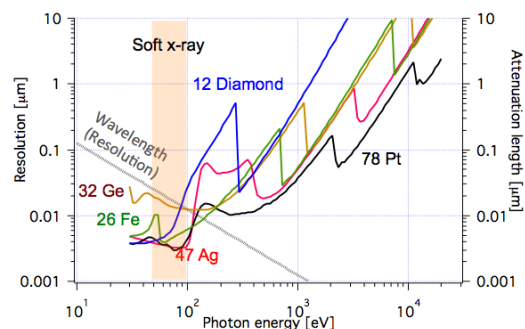


図1. プロブ光と侵入長・空間分解能の関係

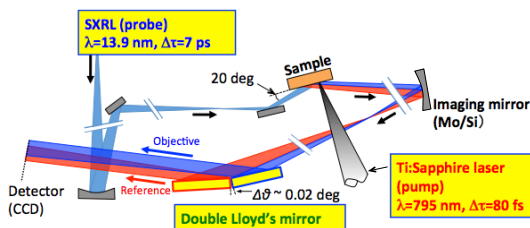


図2. fs レーザーポンプ・軟X線レーザープロブシステム

(2) 分子動力学シミュレーションによるアブレーション過程の再現

フェムト秒レーザーによるアブレーション過程を再現するために、レーザーからのエネルギーの吸収は Lambert-Beer の法則(指数関数的な吸収)によりエネルギーの空間的な分布を決定し、各粒子の運動は大規模並列計算用の分子動力学シミュレーションコード LAMMPS[3]をベースに独自のポテンシャル関数を導入して計算を行った。

4. 研究成果

(1) フェムト秒レーザーアブレーションの初期過程の観察

サンプルは、照射前の表面状態によるレーザーの吸収量等の不確定性の影響を避けるために、厚さ 100 nm の金の蒸着膜を使用した。アブレーション閾値強度近傍の現象を詳細に観測するため、照射レーザーの空間分布はガウス分布(直径 170 μm 、 $1/e^2$)とし、1ショットで明確なクレーターが形成される照射強度(ピーク強度 1.8 J/cm²)とした。図3に、アブレーション表面(Ablation front: AF)の干渉像の時間発展を示す。干渉縞 1 本

分のシフトは 20 nm の膨張に相当している。赤い点線は、レーザー照射後に形成されたクレーターのリム構造の位置を示しており、この位置での照射強度 (1.1 J/cm^2) がアブレーション閾値に相当する。 $t = 41 \text{ ps}$ (図 3(a)) で中央部が僅かに膨張を開始しており、 $t = 230 \text{ ps}$ (図 3(b)、(d)) では、約 35 nm の膨張及び、周辺部との不連続的な干渉縞のシフトが観測されている。観測された膨張量は、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) よりも大きいことから、AF の下層ではナノバブルの形成等の密度の減少が生じていると考えられる。しかしながら AF の高さはこの後、縮小に向かうことが干渉計測から観測されている。

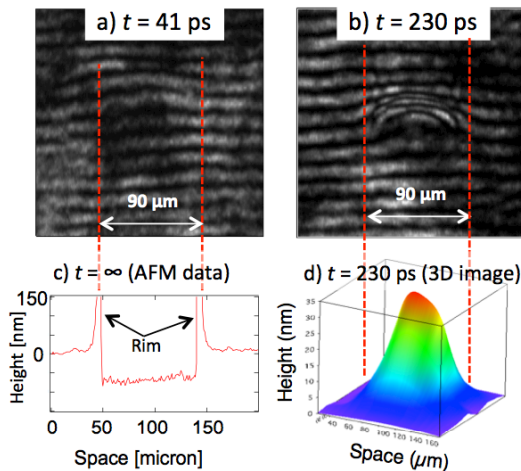


図 3. 軟 X 線干渉像 (a)、(b)。クレーターの AFM 像 (c)。干渉像から得られた AF の地形 (d)。

図 4 に、軟 X 線干渉計の Reference 成分を除いた、反射像の時間発展を示す。同心円状の明線が複数観測されており、この同心円の間隔は中央部に近づくにつれて広がっており、また時間の経過と共にその本数も増加している。これは、AF の上方にドーム状の薄膜 (Expansion front: EF) が形成され、それぞれの面からの反射光の干渉により発生したニュートンリング (図 4(c)) であり、図 3(b) においても中央部分にその一部が見られている。軟 X 線領域においてニュートンリングが観測されたことは、アブレーション家庭医において発生した EF が軟 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精度が高いことを示している。軟 X 線の反射率は面粗さに対して特に敏感であることから、ニュートンリングの間隔 (1 つの間隔が 20 nm の高さに相当) 及び明度の時間変化を解析することで、EF の形状に加えて、厚み、密度等の情報も得ることが可能であり、EF は厚さ 10 nm 以下、面粗さ数 nm 以下、固体密度の数%以上の密度を持つ極めて精度の高い薄膜であることが判明した。この現象は、レーザーの照射強度に対して敏感であり、ピーク強度が 2 J/cm^2 を越えるとニュートンリングは観測されなくなる。

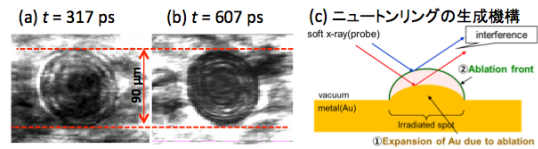
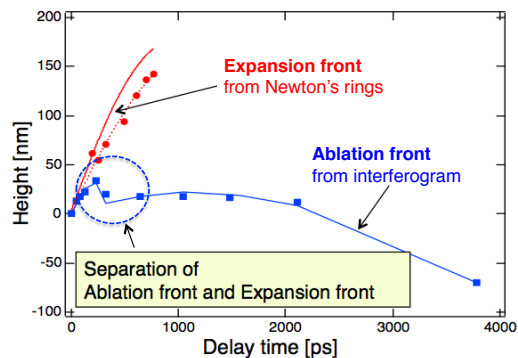


図 4. 軟 X 線反射像 (a)、(b)。ニュートンリングの生成機構 (c)。

軟 X 線干渉計測と反射像計測から得られたアブレーションの初期過程の時間発展を図 5 に示す。青線は干渉計測により観測された AF の高さ、赤点線はニュートンリングから得られた量 (AF と EF の間隔)、赤線は実際の EF の高さ (青線+赤点線) を示している。レーザー照射から約 200 ps 後に AF から EF が分離し、AF の高さは約 2 ns まで大きく変化しないことに対して、EF は約 0.8 ns、高さ 150 nm 程度まで数 nm 以下の面精度を保持しながら (ニュートンリングが観測される) 膨張する。軟 X 線のビームスプリッターとして機能していることから、高密度 (固体密度の数分の 1 以上) かつ面精度の高い薄膜 (膜厚 10 nm 以下) である事が示されているが、その質量はクレーター内部の噴出物の僅か数%程度と見積もられ、またニュートンリングの輝度が周辺部の輝度と大差ない (微粒子による軟 X 線の吸収が少ない) 事からも、この時間帯では噴出物の大部分はまだ AF 側に



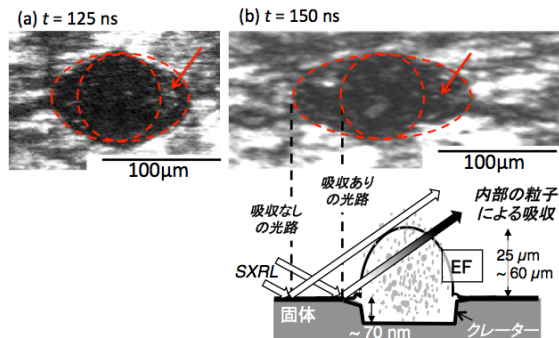
留まっていることが判明した。

図 5. Ablation front (AF) と Expansion front (EF) の時間発展

(2) アブレーションの過程における粒子の噴出とクレーターの形成

図 6 はレーザー照射後から 125 ns、150 ns 後の軟 X 線反射像を示している。この時間帯での EF は軟 X 線に対するビームスプリッターとしての機能は喪失しているが、ドーム状の構造は保持されており、EF を通過した軟 X 線の輝度の低下 (影絵) として観測されている (図中の矢印)。この影は、時間と共に明度を増しながら画面横方向に膨張することが確認されていることから、EF の膨張と共に内部の密度が低下している事を意味している。この影を解析することで EF 内部の粒子の総量を見積もる事が可能であり、深さ 70 nm のクレーターの質量の半分以上が、EF 内部に充満している事が判明した。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と言える。EFは照射レーザーのピーク強度が 1.8 J/cm^2 の場合、 $t = 0.3 \text{ } \mu\text{s}$ まで観測されており、最大高さは $60 \text{ } \mu\text{m}$ に達する。これらは、ピーク強度に大きく依存しているが、ニュートンリングの観測の場合と異なり、ピーク強度 4.4 J/cm^2 の場合にも観測されており、その場合約 $1 \text{ } \mu\text{s}$ まで持続し、最大高さ



は $400 \text{ } \mu\text{m}$ にも達する。
 図 6. ナノ秒時間帯における EF の計測

今回観測された薄膜状の EF は、他の物質においても観測されている。金の場合、EF の形状は照射レーザーの空間プロファイルがガウス分布であるにも関わらず、ほぼ 2 次関数で表される。一方でタングステンの場合ではガウス分布に近い空間プロファイルが観測されている。これは、金では加工閾値が相対的に高く ($\text{Au}: 1.1 \text{ J/cm}^2$, $\text{W}: 0.3 \text{ J/cm}^2$)、ガウス分布を有する照射レーザー分布の裾野の照射強度の低い領域がアブレーションに寄与 (粒子に運動量を与える) していないため考えられる。これは EF の形状がレーザーの局所的な照射強度に依存している事を示すと共に、EF の形状制御の可能性を示している。

(3) 分子動力学シミュレーションとの比較

図 7 に、吸収されたエネルギー密度を 0.024 J/cm^2 、 0.044 J/cm^2 とした場合の金のアブレーションの分子動力学シミュレーションの結果を示す。金のフェムト秒レーザーに対する反射率を 98% と仮定するとそれぞれが 1.2 J/cm^2 、 2.2 J/cm^2 での実験条件に相当する。図 7 (a) では、厚さ 10 nm 以下の薄膜が構造を保持しつつ飛翔していることから、この薄膜が実験における EF に相当し、ニュートンリングの発生に寄与していると考えられる。これに対して照射強度が 2 倍程度に相当する図 7 (b) では膜構造が早期に失われており、実験結果と良い一致が得られている。現象の時間スケールについても、図 7 (a) における 100 ps 時点での薄膜の飛翔距離は約 10 nm であり、 200 ps 時点でニュートンリングが観測され始める (20 nm の高さに相当) 実験結果と良い一致が得られている。以上から、アブレーションの初期過程における実験結果を分子動力学シミュレーションにより再現する事に成功したと言える。

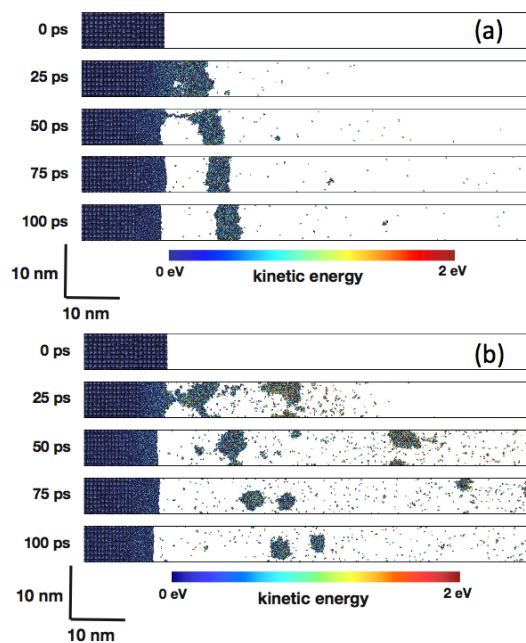


図 7. 分子動力学シミュレーションによる金のアブレーションの再現。(a) 照射強度 1.2 J/cm^2 相当。(b) 照射強度 2.2 J/cm^2 相当。

(4) まとめと今後の展望

物質表面の観測に最適な軟 X 線レーザープローブを用いる事で、フェムト秒レーザーアブレーション過程の初期過程における特異的な現象 (ナノメートル級の薄膜の形成) を捉える事に成功し、更に、実際にクレーターが形成されるナノ秒の時間帯における観測を行う事で、アブレーション過程の大まかな描像を得ることに成功した (図 8)。更に、本結果をベンチマークとすることで、 $t < 0.1 \text{ ns}$ の時間帯において分子動力学シミュレーションを用いて実験結果を再現する事に成功している。今後、シミュレーションとの詳細な比較を行う事で、フェムト秒レーザーアブレーション機構の解明と制御を行う予定である。

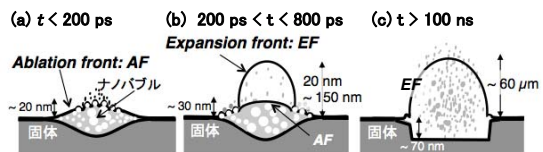


図 8. 本研究から得られた、閾値強度近傍でのフェムト秒レーザーアブレーション過程の全体像。

参考文献

- [1] M Fujita and M. Hashida, J. Plasma Fusion Res. Vol. 81, Suppl. 195-201 (2005).
- [2] Hasegawa N. et al. Proceedings of SPIE 2011, 8140, 81400G-1 - 81400G-8 (2011).
- [3] S. Plimpton, Journal of Computational Physics, Vol. 69, pp. 40-42 (1972).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 15 件) (全て査読あり)

- ① T. Kumada, M. Nishikino, 他 3 名
Dynamics of spallation during femtosecond laser ablation studied by time-resolved reflectivity with double pump pulses
Applied. Physics Letters **108**, 011102 (2016).
- ② N. A. Inogamov, N. Hasegawa, 他 18 名
Hydrodynamics driven by ultrashort laser pulses and the optical pump X-ray probe experiment
Applied Physics B **119**, 413-419 (2015).
- ③ C. M. Kim, M. Nishikino, 他 7 名
Polarization of amplified spontaneous emission in a plasma active medium
Phys. Rev. A, **92**, 043807 (2015).
- ④ M. Ishino, 他 8 名
Low electron temperature in ablating materials formed by picosecond soft x-ray laser pulses
Proc. of SPIE **9589**, 958904-1-6 (2015).
- ⑤ Thanh-Hung Dinh, N. Hasegawa, 他 8 名
Temporal behavior of unresolved transition array emission in water window soft x-ray spectral region from multiply charged ions
Appl. Phys. Lett. **107**, 121101 (2015).
- ⑥ M. Ishino, 他 8 名
Very low electron temperature in warm dense matter formed by focused picosecond soft x-ray laser pulses
Journal of Applied Physics **116**, 183302 (2014).
- ⑦ M. Baba, M. Nishikino, 他 7 名
Submicron scale image observation with a grazing incidence reflection-type single-shot soft X-ray microscope
Japanese Journal of Applied Physics, **53**, 080302-1-4 (2014).
- ⑧ N. Hasegawa, 他 15 名
Observation of the laser-induced surface dynamics using the single-shot soft x-ray probe
Springer Proc. in Phys, **147**, pp.117-120 (2014).
- ⑨ M. Nishikino, T. Kawachi
X-ray laser plasma amplifiers
Nature Photonics, **8**, 352-354 (2014)
- ⑩ M. Ishino, 他 13 名

Nano-meter size modification of metal surfaces induced by soft x-ray laser pulse
Springer Proc. in Phys, **147**, pp.121-124 (2014)

⑪ J. Seres, S. Namba, 他 8 名
Parametric amplification of attosecond pulse trains at 11 nm
SCIENTIFIC REPORTS **4**, pp.04254-1-7 (2014)

⑫ M. Ishino, 他 14 名
Nano-meter size modification of metal surfaces induced by soft x-ray laser single pulse
Springer Proc. in Phys, **147**, pp.121-124 (2014).
DOI 10.1007/978-3-319-00696-3_20

⑬ M. Ishino, 他 15 名
Nano-meter scale modifications on material surfaces induced by soft x-ray laser pulse irradiation
Proc. of SPIE **8849** 88490F-1-8 (2013).

⑭ M. Nishikino, 他 12 名
Observation of the nano-scale surface dynamics of femtosecond laser ablation by time-resolved soft x-ray imaging technique
Proc. of SPIE **8849**, 88490E-1-6 (2013).

⑮ M. Nishikino, 他 7 名
Development of Soft X-ray microscopy using Fresnel Zone Plate for Observation of Laser-Induce Surface Dynamics
Springer Proc. in Phys, **147**, pp.117-120 (2013).

[学会発表] (計 14 件)

① M. Nishikino
Source Development of Plasma-based Soft X-ray Laser and the Applications for Probing Nano-scale Dynamics of Laser Ablation
Compact EUV and X-ray Sources, Long Beach, USA, 2016. 3. 21.

② 錦野将元
X線レーザープローブを用いた fs レーザー薄膜アブレーションの観測
レーザー学会・第 36 回年次大会、愛知県、名古屋市、名城大学、2016 年 1 月 10 日 (招待講演).

③ M. Nishikino
Observation of dynamics and modification of solid surface using a picosecond soft x-ray laser
SPIE Optical Engineering and Applications, San-Diego, USA, 2015. 8. 9. (招待講演).

④ M. Ishino

Low electron temperature in ablating materials formed by picosecond soft x-ray laser pulses

SPIE Optics + Photonics, San-Diego, USA, 2015. 8. 9.

⑤ M. Ishino

Ablation Mechanism and Some Ideas of Applications of Modified Surface Structures Induced by Picosecond Soft X-Ray Laser,

The 4th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS' 15), 神奈川県, 横浜市, パシフィコ横浜, 2015. 4. 22.

⑥ S. Namba

Pump-Probe Spectroscopy for Temporal Characterization of Laser-Plasma XUV Pulses

European Physical Society on Plasma Diagnostics, Frascati, Italia, 2015. 4. 14.

⑦ M. Nishikino

Development of 0.1Hz SXRL beam lines and recent applications results

COST-MP1203 WG5: High brightness and coherent X-ray sources for advanced spatial and temporal metrology, Jena, Germany, 2015. 3. 30. (招待講演).

⑧ N. Hasegawa

A study of the femto-second laser ablation process in metals by using a soft x-ray laser probe

PLASMA CONFERENCE 2014, 新潟県, 新潟市, 朱鷺メッセ, 2014. 11. 21

⑨ M. Nishikino

Observation of Femtosecond Laser Ablation Tungsten by using Soft X-ray Laser

PLASMA CONFERENCE 2014, 新潟県, 新潟市, 朱鷺メッセ, 2014. 11. 21

⑩ M. Ishino

Investigation of interactions of soft x-ray laser pulses with matters

16th International Conference Laser Optics 2014
Saint-Petersburg, Russia, 2014. 07. 03.

⑪ M. Nishikino

Observation of Weakly Excited Ablation Dynamics with Femtosecond Laser by using Time-Resolved Soft X-ray Imaging Technique

The 14th International Conference on X-ray Lasers, Fort Collins, Colorado, USA, 2014. 5. 30. (招待講演).

⑫ M. Ishino

Investigation of Optical Emission from the Surfaces Interacting with Soft X-Ray Laser Pulses

International Conference on HIGH ENERGY DENSITY SCIENCE 2014, 神奈川県, 横浜市, パシフィコ横浜, 2014. 04. 24.

⑬ M. Nishikino

Observation of the surface dynamics of femtosecond laser ablation by time-resolved soft x-ray imaging technique

The 8th International Conference on Internal Fusion Science and Application, 奈良県, 奈良市, 新公会堂, 2013. 09. 08.

⑭ N. Hasegawa

A study of the femto-second laser ablation process in metals by using a single shot soft x-ray laser probe

The 12th Asian Pacific Physics Conference, 千葉県, 千葉市, 幕張メッセ, 2013. 07. 18

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長谷川 登 (HASEGAWA NOBORU)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・量子ビーム応用研究センター・研究副主幹

研究者番号：50360409

(2) 研究分担者

錦野 将元 (NISHIKINO MASAHARU)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・量子ビーム応用研究センター・研究副主幹

研究者番号：70370450

石野 雅彦 (ISHINO MASAHIKO)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・量子ビーム応用研究センター・研究副主幹

研究者番号：80360410

難波 慎一 (NANBA SHINICHI)

広島大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：00343294

大西 直文 (OHNISHI NAOFUMI)

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号：20333859