

## ポンププローブ軟 X 線干渉計の開発と アブレーションダイナミクスへの応用

物質系専攻 学籍番号：47-086036 寺川 康太

指導教員：末元 徹 教授

キーワード：レーザーアブレーション、軟 X 線、干渉計、ダブルロイズ鏡

### 1. 研究の動機

近年、レーザーアブレーション、光誘起相転移現象、表面における物質の自己組織化といった光照射で生じるマクロな物質秩序の制御が課題となっており、それらのメカニズムの解明には、現象の初期過程で局所的に生じる新しい秩序がマクロなスケールに成長するまでのダイナミクスの観測手法の確立が不可欠である。局所的な相は、パルス光照射毎にナノメートルの空間スケール、ピコ秒からフェムト秒の時間スケールで非可逆的に形成されるので、観測には X 線をプローブとしたポンププローブ計測をシングルショットで行う必要があるが、これまで試料表面形状を観測可能な反射型の X 線イメージング観測手法は確立できていない。

本研究の対象であるレーザーアブレーションとは、固体表面に高強度パルスレーザー光を照射したとき、物質を構成する元素が原子、分子、クラスターなどの様々な形態で爆発的に放出され、物質表面がエッチングされる現象であり、薄膜形成、プラズマ形成などの分野に応用がなされている。また近年、加工深さの閾値が照射フルエンスを変化させると複数現れることや照射光の波長以下の周期を持つナノ周期凹凸構造が発見され、1 nm を下回る深さの加工や波長以下のスケールの加工への応用が期待されるなど、レーザーアブレーションのメカニズムの解明に関心が集まっている。

本研究では、日本原子力研究開発機構で開発したプラズマ軟 X 線レーザーを用いて、ピコ秒の時間スケールでナノメートルスケールの表面形状をシングルショット計測可能なポンププローブ軟 X 線干渉計を開発した。更に、プラチナ膜のアブレーションダイナミクスにおいて、アブレーション閾値近傍のフルエンス照射部でのナノメートルスケールの表面形状の過渡的な変化を初めて観測した。

### 2. 実験

アブレーションダイナミクスの観測は、プラズマ軟 X 線レーザー(波長 13.9 nm、パルス幅 7 ps)をプローブ光、チタンサファイアレーザー(波長 800 nm、パルス幅 70 fs)をポンプ光とするポンププローブ軟 X 線干渉計を用いて、シングルショットで行った。プラズマ軟 X 線レーザーは高い空間コヒーレンス(ビーム発散角  $< 0.5$  mrad)と単色性( $\delta\lambda/\lambda \sim 10^{-4}$ )を持ち、1 パルスあたりのフォトン数は  $10^{10}$  にも及ぶため、シングルショットでの干渉観測に適している。

図 1 はポンププローブ軟 X 線干渉計の模式図を示す。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

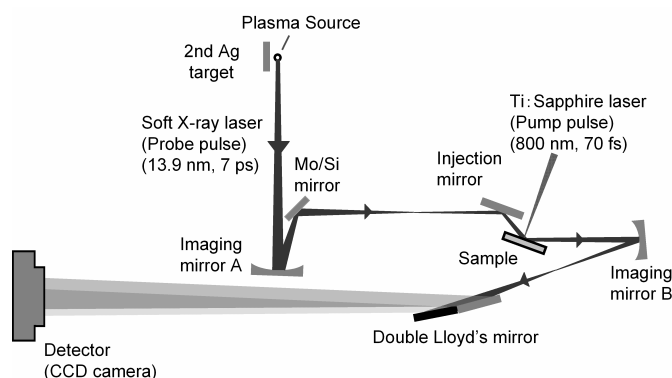


図 1 ポンププローブ軟 X 線干渉計の模式図

容器内に設置されている。

プラズマ光源は Mo/Si 多層膜球面鏡 A によって、試料の 500 mm 前にはほぼ等倍で転送され、 $20^{\circ} \sim 24^{\circ}$  の斜入射角(グレイジングアングル)で試料に照射される。試料の像は Mo/Si 多層膜球面鏡 B によって、およそ 20 倍の倍率で、X 線 CCD カメラに転送される。2 枚のプラチナ鏡に微小な角度(ロイズ角)をつけたダブルロイズ鏡と呼ばれる光学素子を用いて、軟 X 線レーザーを 2 つに分けて、CCD カメラ上で 2 つのビームを重ねることで干渉縞を得る。

試料には石英基板上に蒸着されたプラチナ膜(厚さ 100 nm)を用い、ポンプ光は試料に対してほぼ垂直に照射される。ポンプ光の典型的なエネルギーとフルエンスはそれぞれ、 $130 \mu\text{J}$ 、 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  である。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 ポンププローブ軟 X 線干渉計の空間分解能の評価

図 2(a)は FIB 加工でプラチナ膜上に作成したテストパターンの SEM 像を、(b)はテストパターン表面をシングルショットで観測した干渉像を示す。(b)内の左方向への縞のシフトが表面のへこみに対応している。図 2(c)は、干渉像から復元した表面形状を示す。図 2(d)において、AFM 観測から得られた断面形状と干渉像から得られた断面形状は、線幅や溝の深さについてよく一致している。

同プラチナ膜の平坦部における RMS を評価したところ、 $0.5 \text{ nm} \sim 0.8 \text{ nm}$  であったので、試料鉛直方向の空間分解能は  $1 \text{ nm}$  以下であると見積られる。試料面内方向の空間分解能は図 2(d)内の矢印で示したエッジから評価した。AFM で観測した矢印部のエッジのだれはおよそ  $500 \text{ nm}$  程度であるが、干渉計ではおよそ  $1.8 \mu\text{m}$  にだれて見えている。従って、試料面内方向の空間分解能は  $1.8 \mu\text{m}$  と見積られる。

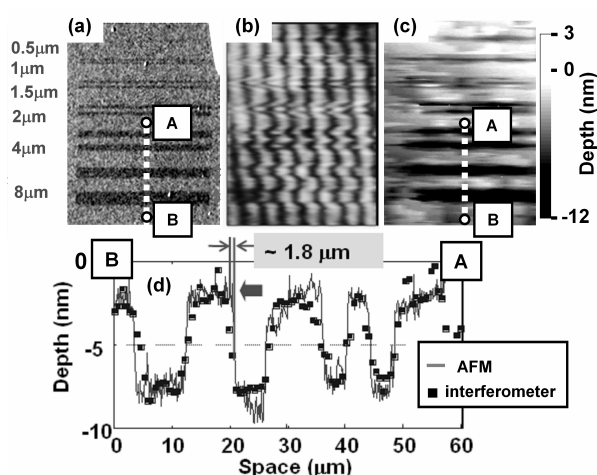


図 2 テストパターンの(a) SEM 像 (b) 干渉像 (c) 復元した表面形状(Frame size:  $90 \mu\text{m} \times 120 \mu\text{m}$ )、(d) A-B 断面形状

#### 3.2 アブレーションダイナミクスの観測

図 3 の(a)は  $t = 25 \text{ ps}$ 、(b)は  $t = 50 \text{ ps}$  におけるアブレーションの干渉像を示す。干渉縞の右方向へのシフトが膨らみを表し、縞 1 本分のシフトは  $17 \text{ nm}$  に相当する。時間が経過するに連れて、干渉縞の右方向へのシフトが大きくなっている。図(c)はガウス型のドーム地形から計算した干渉縞を示す。(b)と(c)の縞のフィッティングから、 $t = 50 \text{ ps}$  における表面の高さは  $35 \text{ nm}$ 、表面膨張の速度を  $700 \text{ m/s}$  と見積もった。その速度は Linde らが観測したサブナノ秒からナノ秒領域におけるアブレーションフロントの噴出し速度と一致していたので[1]、観測した表面形状は初期過程におけるアブレーションフロントであると考えられる。高分解能の軟 X 線干渉計を用いることで初めて、初期過程における数十ナノメートルの高さのアブレーションフロントの観測に成功した。

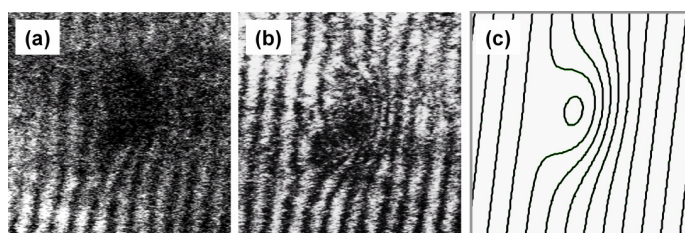


図 3 (a)  $t = 25 \text{ ps}$ 、(b)  $t = 50 \text{ ps}$  における干渉像 (c)ガウス型のドーム地形から計算した干渉縞 (Frame size:  $250 \mu\text{m} \times 250 \mu\text{m}$ )

図4の挿入図はポンププローブ計測後に光学顕微鏡で観測したアブレーション痕像を示す。グラフは、 $t = 50 \text{ ps}$  と  $t = \infty$ の時刻において測定した干渉縞から復元した表面形状のA-D断面図を示す。 $t = 50 \text{ ps}$ では、アブレーション外周部C点より外側のB点からD点に向かってに連れて表面は緩やかに高くなっていき、C点において表面の高さは8 nmに達する。点Cにおいて、表面形状は連続であるので、アブレーション中にはB-C間においても、C-D間のアブレーション領域と同様の気泡構造[1]が形成されていると考えられる。

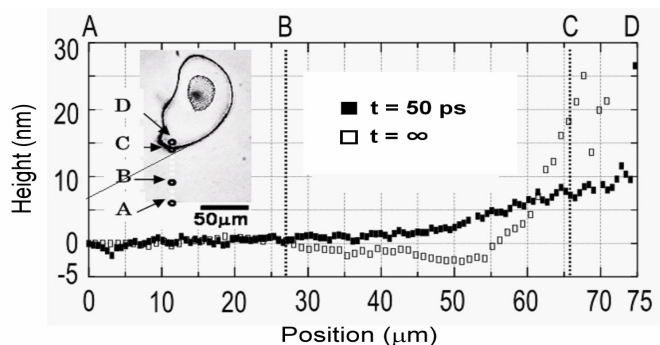


図4 (挿入図)アブレーション痕の光学顕微鏡像  
(グラフ) 表面形状のA-D断面図

$t = \infty$ では、外周部Cにおいて表面は20 nm程度せり上がっており、B点から約30  $\mu\text{m}$ に渡って最大で2.5 nm

のへこみが生じていた。両時刻において表面形状の変化の始まる場所はB点で一致している。

表面形状の変化の起源を気泡の大きさと密度から考察した。ポンププローブ計測後のアブレーション痕のSEM観測から、照射フルエンスが大きい程気泡は大きくなり、密に形成されていることが分かる。従って、B-C領域でアブレーションフロントが形成されているのにも関わらず表面が吹き飛ばないのは、光照射で気泡がある大きさあるいは密度に形成されないとそれ以上気泡が成長、集合できず表面を吹き飛ばすまでには至らないからだと考えられる。それは今まで報告されている、アブレーションが照射フルエンスに対して閾值的に振る舞うことと整合している。そして、最終的にC点で形成される堤防構造は成長したアブレーションフロントが吹き飛ばずに残ったものであると考えられる。B-C領域で表面が膨らんだ後にへこむ起源の可能性として、レーザーアニールがあげられる。Lindeらの観測により、B-C領域の表面の反射率は液体のそれと等しいことが報告されているので、気泡を含む液体が固体へ再結晶化する過程で、もともとのプラチナ膜の欠陥が無くなり完全結晶に近づいたために密度が上がり、体積が減った可能性がある。

#### 4. 結論と今後の展望

1.8  $\mu\text{m}$ (面内方向)、1 nm以下(鉛直方向)の空間分解能を持つポンププローブ軟X線干渉計を開発し、プラチナ膜のアブレーションダイナミクスを観測した。ポンプ光照射から約50 ps後に、初期過程におけるアブレーションフロントを観測した。また、アブレーション閾値近傍におけるナノメートルスケールのダイナミクスを初めて観測した。今後は、ダイナミクスのより詳細な時間依存性、試料を他の金属や半導体にすることでダイナミクスの物質依存性を観測する。

##### 【参考文献】

[1] D. Linde et al, Appl. Surf. Sci. 154-155 (2000) 1-10

##### 【投稿論文】

「Single-shot picosecond interferometry with one-nanometer resolution for dynamical surface morphology using a soft X-ray laser」Optics Express Vol. 18, No. 13 14114 (2010) (非筆頭)

##### 【学会発表】

日本物理学会 2009年秋季大会「軟X線レーザー干渉計を用いたナノスケール擾乱の高時間分解観察」(非筆頭)  
日本物理学会 2010年春季大会「軟X線レーザープローブによる固体表面ダイナミクス観測手法の開発」(非筆頭)  
日本物理学会 2010年春季大会「ポンププローブ軟X線干渉計によるアブレーションダイナミクスの観測」(筆頭)  
日本物理学会 2010年秋季大会「フェムト秒レーザーパルス蓄積照射によるアブレーション過程の観察」(非筆頭)

##### 【プロシーディングス】

「Soft X-ray interferometer for time-resolved diagnostics of laser-aided nano-fabrication」  
2010 17th International Conference on Ultrafast Phenomena, pp. TuE1 (非筆頭)