

第 63 回放射線化学討論会
超短パルスレーザーによる石英ガラスの加工現象の
ポンプ・プローブイメージング

早稲田大学 理工学術院総合研究所

寺澤 英知*, 鷲尾 方一

産業技術総合研究所 先端オペランド計測技術オープンイノベーションラボラトリ

佐藤 大輔, 盛合 靖章, 小川 博嗣, 田中 真人, 黒田 隆之助

産業技術総合研究所 分析計測標準研究部門

澁谷 達則

東京大学大学院 物性研究所

小林 洋平

東京大学大学院 工学系研究科附属 光量子科学研究センター

坂上 和之

1 はじめに

超短パルスレーザーと呼ばれるフェムト秒からピコ秒のパルス幅を有するレーザーが物質に照射された際、そのレーザーのエネルギーが閾値を超えていると物質の破壊現象が発生する。この非可逆的な破壊現象は、超短パルスレーザーの超短パルス性かつ超高強度性もたらす非線形吸収等により、加工された母材において熱影響部を極めて減少させたり¹⁾、数百ナノメートル以下の形状を形成したり^{2,3)}するなど形状加工としての優位性を持つことから、材料を選ばない高

品質かつ高精細な微細加工技術としての応用が期待されている。

超短パルスレーザーによる加工現象の優位性を最大限活用するには、その破壊現象のメカニズムを解明する必要がある。超短パルスレーザーが物質に照射されると、フェムト秒からピコ秒の時間領域で、電子系エネルギーが急上昇し物質中の電子系エネルギーと格子系エネルギーが非熱平衡状態になると理解されている^{4,5)}。この非熱平衡状態である過程は非熱的過程と呼ばれ、ナノ秒以上のパルスレーザーや連続波レーザーではこの非熱的過程を経ず、超短パルスレーザーによる破壊現象の主たるメカニズムとして知られている。しかし、その詳細についてはさらなる実験的な確認が求められており、理論的な説明に関しても多くの議論がなされている。

超短パルスレーザー加工の利用が期待されている材料の一つとして、石英ガラスが挙げられる。石英ガラスは、高純度かつ耐熱性や透過性に優れた性質を持つ反面、機械加工や従来のレーザー加工では微細加工が困難であるとされている。超短パルスレーザー加工は、この石英ガラスに対して高精細な表面微細加工としての利用が期待されている⁶⁻⁸⁾。さらに、超短パルスレーザーを対物レンズで試料内部に集光し、その集光領域で材料の改質を誘起させることで、内部微細加工が可能になる^{2,9)}。これは、三次元に加工できることか

Pump-probe imaging of processing phenomena by ultrashort laser pulse in quartz glass

Eichi TERASAWA* and Masakazu WASHIO (*Waseda Research Institute for Science and Engineering, Waseda University*), Daisuke SATOH, Yasuaki MORI, Hiroshi OGAWA, Masahito TANAKA and Ryunosuke KURODA (*OPERANDO-OIL, National Institute of Advanced Industrial Science*), Tatsunori SHIBUYA (*Research Institute for Measurement and Analytical Instrumentation, National Institute of Advanced Industrial Science*), Yohei KOBAYASHI (*The Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo*), Kazuyuki SAKAUE (*Photon Science Center, Graduate School of Engineering, The University of Tokyo*), 〒169-0072 東京都新宿区大久保 3-4-1 早稲田大学 理工学術院総合研究所 鷲尾研究室
TEL: 03-5286-3893, FAX: 03-3205-0723,
E-mail: wisdom_terasawa@akane.waseda.jp

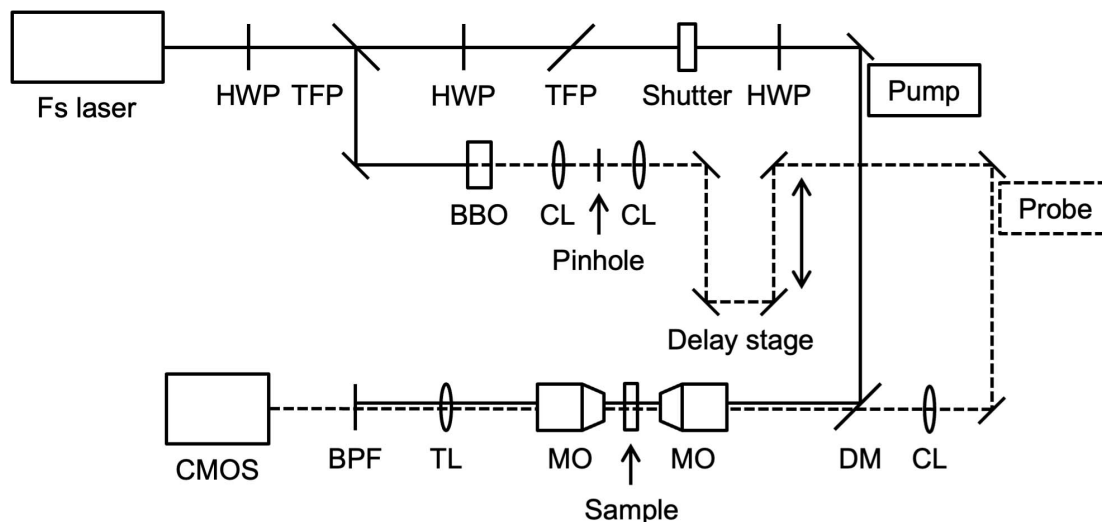


Figure 1. Schematic diagram of pump-probe imaging experiments. Abbreviations: HWP Half-Wave Plate, TFP Thin Film Polarizer, CL Convex Lens, DM Dichroic Mirror, MO Microscope Objective, TL Tube Lens, BPF Band-Pass Filter.

ら, 三次元光導波路¹⁰⁾ や, 試料内部に複屈折を生じさせることで複屈折による方位と位相差の二次元を加えた五次元データストレージ¹¹⁾ などの応用が期待されている。

我々は, 超短パルスレーザーによる加工現象のメカニズム, 特に非熱的過程を経ているとされるフェムト秒からピコ秒の超高速時間領域のダイナミクスの解明を目的とし, ポンプ-プローブ分光法による時間分解イメージングに関する研究を行ってきた。加工現象の非熱的過程を計測するには, 超高速時間領域で起こる非可逆的な破壊現象を測定する必要がある。我々は, 測定毎にポンプ光照射位置を変えながら時間分解測定を行うことで, 超高速時間領域の加工現象のオペランド計測を可能にしている¹²⁾。本研究では, 今まで我々が行ってきたポンプイメージング装置の測定対象範囲のさらなる拡大に向け, 超短パルスレーザー加工の応用が期待される石英ガラスの内部加工現象について, ポンプ光を加工光としプローブ光を試料透過光とする同軸入射型のポンプ-プローブイメージング装置を新たに開発し, その測定を行った。

2 実験

2.1 実験装置

本研究において開発したポンプ-プローブイメージング装置の概略を Fig. 1 に示す。レーザー光源に

は波長 800 nm のフェムト秒チタンサファイアレーザーを利用した。本レーザー光源は, 「超短パルスレーザー加工オープンイノベーションプラットフォーム (Ultra-short pulse Laser Processing Open innovation Platform, ULPOP)」¹³⁾ のものを使用した。レーザー光源からのパルスレーザーを薄膜偏光子 (Thin Film Polarizer, TFP) によって二つに分割し, それぞれをポンプ光とプローブ光として利用した。ポンプ光による加工は, 波長 800 nm のフェムト秒パルスレーザーを使用し, 対物レンズによって加工試料の内部に集光し内部加工を行った。ポンプ光のパルスエネルギーは半波長板 (Half-Wave Plate, HWP) と薄膜偏光子によって調整し, パルス照射回数は電動シャッターによって制御した。プローブ光による測定には, BBO 結晶によって波長変換した波長 400 nm のパルスレーザーを使用し, 対物レンズによって拡大された透過光イメージを CMOS カメラで撮像した。その CMOS カメラの前にバンドパスフィルター (Band-Pass Filter, BPF) を設置することで, 波長 800 nm のポンプ光やプラズマ発光などの波長 400 nm 以外の光を除去した。加工試料への照射では, ダイクロイックミラー (Dichroic Mirror, DM) を用いることで, ポンプ光とプローブ光が同軸で垂直に入射される。ポンプ光とプローブ光の遅延時間は, 1 ステップ間隔が 2 μm の遅延ステージによって調整した。

2.2 実験条件

本実験の測定試料は、合成石英ガラス（23 mm × 23 mm × 1 mm，両面鏡面）であり，三軸方向に移動可能なサンプルホルダーに設置された．ポンプ光による加工は，パルスエネルギーが200 nJ，パルス幅が130 fsのパルスレーザーを全てシングルショットで行い，サンプルホルダーを移動させることで全てがレーザー未照射の位置に照射される．対物レンズによる集光の深さは，試料の表面から約100 μmの位置である．本実験の遅延時間の基準は，ポンプ光とプローブ光の最大強度が重なる時間によって定め，その時間を $t = 0$ sと定義した．また，各遅延時間における透過光イメージの取得の際に，ポンプ光の照射中の透過光イメージをポンプ光の照射前の透過光イメージで規格化することで，遅延時間毎の測定で生じるバックグラウンドの影響を除去した．

3 実験結果と考察

ポンプ光照射中におけるプローブ光から得られた透過光イメージの一つをFig. 2に示す．Figure 2の領域(a)がおおよそそのポンプ光照射領域に対応しており，そのポンプ光照射領域の周辺(b)までに同心円状の干渉

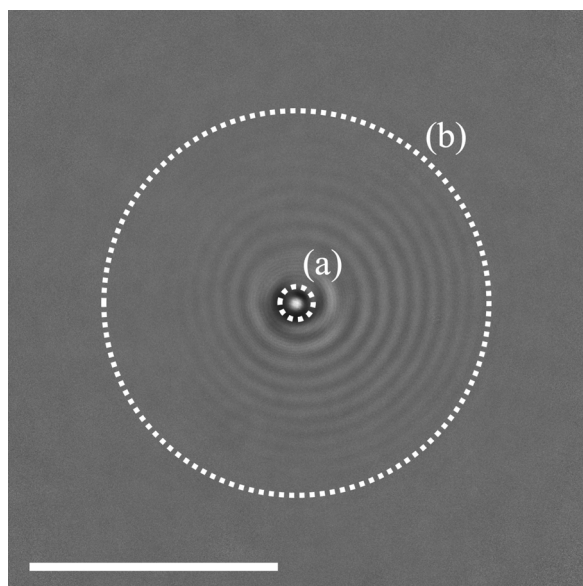


Figure 2. Time-resolved transmission image after exposure to a pump pulse (800 nm, 130 fs, 200 nJ) by the pump-probe equipment of Fig. 1. The scale bar is 15 μm.

縞のような光強度パターンが形成されていることがわかる．そして，この干渉縞がホログラムによる微粒子計測技術^{14,15)}に使用されている干渉縞と類似していることがわかった．この技術は，測定光である入射波とその入射波が微粒子によって散乱された散乱波が干渉することによって生じる干渉縞から，観察対象である微粒子の情報（大きさや位置，屈折率など）を取得するものである．本研究と関連付けると，観察対象がポンプ光による状態変化領域，入射波がプローブ光，散乱波がポンプ光由来の状態変化領域により散乱したプローブ光になる．つまり，本装置によって得られた透過光イメージから微粒子計測ホログラムと類似した干渉縞を確認し，これはポンプ光照射による材料の状態変化によって干渉縞が形成されたことが示唆された．

また，他の遅延時間における透過光イメージとの比較により，Fig. 2で確認されたような干渉縞が遅延時間によって変化していることを確認した．たとえば，レーザー照射直後付近($t \sim 0$ s)と加工終状態($t = \infty$ s)で確認された干渉縞を比較すると，その間隔や強度が変化していた．これはレーザー照射後における材料の過渡的な状態変化を反映していることが示唆される．現在，その干渉縞の変化が意味する状態変化領域の特性（空間分布や屈折率など）について検討を行っている．

4 おわりに

超短パルスレーザー加工における非熱的過程の解明に向け，石英ガラスの内部加工の超高速過渡透過イメージングに着手した．透過光イメージにおいてポンプ光照射領域周辺に干渉縞が観測され，その干渉縞はポンプ光照射による材料の状態変化に起因するものと考察された．そして，遅延時間によってその干渉縞が変化していることが確認され，材料の過渡的な状態変化が示唆された．今後は，干渉縞と加工状態の比較を進め，加工状態を推定する手法を確立することを目指す．

〈謝 辞〉

本研究の一部は，NEDO 委託事業「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」により実施しました．関係各位の皆様に御礼申し上げます．

〈参考文献〉

- 1) T. Shibuya, D. Satoh, M. Tanaka, H. Ogawa, R. Kuroda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 58 (2019) S11A02.
- 2) Y. Shimotsuma, P.G. Kazansky, J. Qiu, K. Hirao, *Phys. Rev. Lett.*, 91 (2003) 247405.
- 3) K. Sakaue, H. Motoyama, R. Hayashi, A. Iwasaki, H. Mimura, K. Yamanouchi, T. Shibuya, M. Ishino, T.-H. Dinh, H. Ogawa, T. Higashiguchi, M. Nishikino, R. Kuroda, *Opt. Lett.*, 45 (2020) 2926.
- 4) M. V. Shugaev, C. Wu, O. Armbruster, A. Naghilou, N. Brouwer, D. S. Ivanov, T. J. Y. Derrien, N. M. Bulgakova, W. Kautek, B. Rethfeld, L. V. Zhigilei, *MRS Bull.*, 41 (2016) 960.
- 5) B. Rethfeld, D. S. Ivanov, M. E. Garcia, S. I. Anisimov, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 50 (2017) 193001.
- 6) T. Shibuya, T. Takahashi, K. Sakaue, T.H. Dinh, H. Hara, T. Higashiguchi, M. Ishino, Y. Koshiba, M. Nishikino, H. Ogawa, M. Tanaka, M. Washio, Y. Kobayashi, R. Kuroda, *Appl. Phys. Lett.*, 113 (2018) 171902.
- 7) E. Terasawa, T. Shibuya, D. Satoh, Y. Moriai, H. Ogawa, M. Tanaka, R. Kuroda, Y. Kobayashi, K. Sakaue, M. Washio, *Appl. Phys. A.*, 126 (2020) 446.
- 8) T. Shibuya, K. Sakaue, H. Ogawa, T.-H. Dinh, D. Satoh, E. Terasawa, M. Washio, M. Tanaka, T. Higashiguchi, M. Ishino, Y. Kubota, Y. Inubushi, S. Owada, M. Nishikino, Y. Kobayashi, R. Kuroda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 59 (2020) 122004.
- 9) S. Gross, M. J. Withford, *Nanophotonics*, 4 (2015) 332.
- 10) T. Meany, M. Gräfe, R. Heilmann, A. Perez-Leija, S. Gross, M. J. Steel, M. J. Withford, A. Szameit, *Laser Photon. Rev.*, 9 (2015) 363.
- 11) Project Silica proof of concept stores Warner Bros. ‘Superman’ movie on quartz glass, <https://news.microsoft.com/innovation-stories/ignite-project-silica-superman/>
- 12) D. Satoh, T. Shibuya, E. Terasawa, Y. Moriai, H. Ogawa, M. Tanaka, Y. Kobayashi, R. Kuroda, *Appl. Phys. A.*, 126 (2020) 795.
- 13) 産総研ニュースリリース, “深紫外光を含む超短パルスレーザー加工プラットフォームを構築”, 2019/09/24, https://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2019/pr20190924_2/pr20190924_2.html.
- 14) F. C. Cheong, B. J. Krishnatreya, D. G. Grier, *Opt. Express.*, 18 (2010) 13563.
- 15) B. Leahy, R. Alexander, C. Martin, S. Barkley, V. Manoharan, *Opt. Express.*, 28 (2020) 1061.