

超短パルスレーザープラズマX線源を用いたダブルパルス照射による 基板表面励起加工過程の調査に関する研究

Investigation of surface excitation effect in double pulse laser ablation using ultra short pulse laser plasma X-ray source with instant surface excitation on semi conductor target

九大 林 照剛¹⁾, 黒河周平¹⁾, 横尾英樹¹⁾, 松永啓伍¹⁾, 量研 錦野将元²⁾, 長谷川登²⁾

Terutake HAYASHI, Syuhei KUROKAWA, Hideki YOKOO, Keigo MATSUNAGA, Noboru HASEGAWA, Masaharu NISHIKINO

¹⁾九州大学 ²⁾ 量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所,

(概要)

本研究では、時間的に近接させた2つのフェムト秒パルスビーム（ダブルパルスビーム）を照射した時に、第1のパルス照射後に、ターゲット表面に生じるプラズマ励起、格子系のコヒーレント振動励起などの励起現象を解明し、低照度レーザー加工に応用することを目指す。本課題では、フェムト秒レーザー照射直後から100ps程度の時間が経過するまでの過渡的なプラズマ励起および格子系の励起現象について調べ、ターゲット表面の加工形状変化に及ぼす影響について検討した。

キーワード：ダブルパルスビーム，表面励起，時間分解観察，レーザー表面加工

1. 目的

フェムト秒レーザーパルスを半導体表面に照射すると、半導体表面の電子が伝導体に励起され、電子加速による加熱と格子温度上昇（インコヒーレント）、また、光照射条件によっては、電子運動である表面プラズモン励起（コヒーレント）や格子運動であるコヒーレントフォノン励起が生じることが知られている。これまで、ダブルパルスビームを用いたフェムト秒レーザーによる加工に関する研究では、第1のパルスを照射した直後のターゲットの表面励起状態とその基礎過程が未解明であり、その加工に及ぼす影響、また加工メカニズムは明らかにされていない。

これまで申請者は、研究代表者らは、2つの時間的に近接したフェムト秒パルスを連続して照射し、第1のパルス照射（加工閾値以下の照度）により現れる表面励起効果が減衰する前に、第2パルスを照射し、加工を行う、低照度レーザー加工プロセス（ダブルパルス表面励起加工プロセス）について基礎実験を行ってきた。本課題では、低照度レーザービームによる表面励起加工プロセスにおいて、光表面励起の効果と光反射率の変化を調査し、その加工に及ぼす影響についての検討を行った。

2. 方法

低照度ダブルパルスビームにおける表面励起加工において、表面励起、および、励起表面の低照度ビーム加工の基礎過程を理解するため、加工基礎実験を遂行する。ダブルパルスビームによる加工では、レーザーパルスの役割を表面励起用の第1パルスと加工用の第2パルスに分けて、表面励起過程、および、加工過程をそれぞれ観察する。

本課題では、まずダブルパルスビームによる表面励起の基礎過程について詳細に調べる。まず、表面励起状態の持続時間、持続効果の計測のため、第1のパルスと第2のパルスの照射間隔100fsから100psまで変化させた場合の、光反射率を計測する実験を行った。

表1. ターゲット材料

加工材料	SiC Si-面 (0001), オフ角 4°
表面粗さ	<1 nm
基板厚さ	310 μm
光学バンドギャップ	3.26 eV

一般に、半導体表面の反射率 R は複素屈折率 \tilde{n} によって以下の式で表される。

$$R = \frac{|\tilde{n}-1|^2}{|\tilde{n}+1|^2} \tag{1}$$

ここで、複素屈折率 \tilde{n} は複素誘電率の関数で、 $\tilde{n} = \sqrt{\epsilon(\omega)}$ である。また、複素誘電率は Drude の式より表面プラズマ振動数 ω_p 、レーザー振動数 ω 、緩和時間 τ を用いて(2)式のようにあらわされる¹⁾。

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + \frac{i}{\tau})} \tag{2}$$

式(2)中の表面プラズマ振動数は、表面の励起電子密度 n_e 、電子の電荷 e 、電子質量 m 、真空の屈折率 ϵ_0 を用いて以下の式で決定される¹⁾。

$$\omega_p^2 = \frac{n_e e^2}{m \epsilon_0} \tag{3}$$

式(1)~(3)から、半導体の表面反射率 R は変数である表面の励起電子密度 n_e を見積もることで計算することができると思われる。

レーザを照射した際の表面電子励起現象は、価電子帯電子が吸収したエネルギーが材料のバンドギャップを越えた時に発生する。今回用いるレーザの光子エネルギーは 1.56eV であり、4H-SiC のバンドギャップである 3.26eV を越えるためには、多光子吸収過程を経ると考えられる。しかし、SiC の三光子以上の吸収をモデル化し、励起電子数を計算し、表面反射率を求める場合、その非線形過程の光吸収率を計測することは困難である。そこで、本課題では、フェムト秒レーザを照射した際の反射率を実験的に調べ、反射率の測定結果から、表面励起電子数の時間変化についての検討を行った。

反射率測定実験に用いた装置の概略図を Fig.1 に示す。本実験では、中心波長 794nm、パルス幅 84fs、繰り返し周波数 10Hz のプラズマ X 線源を用い、SiC ターゲットの加工に用いた。加工面は研磨した(0001)Si 面であり、照射したレーザは (1120)面に平行になるように偏光方向を設定した。

本実験では (1)照射エネルギーを変化させた際の反射率変化と、(2)レーザ照射後の反射率の時間変化を調査した。

(1)照射エネルギーを変化させた際の反射率変化では、シングルパルス照射し、照射するパルスエネルギーを 5 μ J から 120 μ J まで変化させ、反射光を測定することで照射エネルギーと反射率の関係を調査した。

(2)レーザ照射後の反射率の時間変化では、パルスエネルギーを 40 μ J で固定し、ファーストパルス照射後、同じ場所に 400fs~300ps のパルス間隔をつけて同じエネルギーのセカンドパルス照射し、その反射光を計測することで反射率の時間変化を調査した。

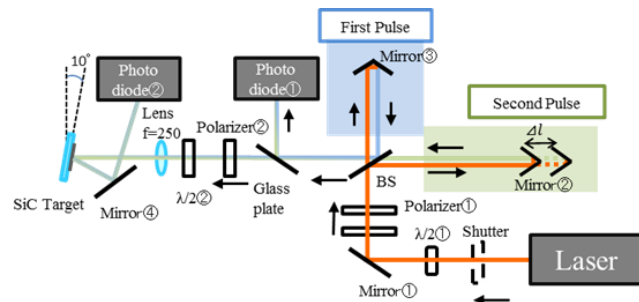


Fig.1 Experimental Setup

3. 結果及び考察

Fig.2 に(1)の実験の結果を示す。Fig.2 から、パルスエネルギーが 5~27 μ J の範囲では反射率は 15~17%と変化が少なく、27 μ J 以降、反射率が一度低下したのち急激に増加し、パルスエネルギーが 100 μ J の条件において 27%を示した。パルスエネルギーの増加とともに反射が増加したことは、SiC の価電子帯電子がパルス照射中 70fs 以内に励起していることを示しており、これは以前の実験 7) において Si で見られた現象と同様である。また、パルスエネルギー 27 μ J のパルスは、ピークフルエンスが 1000mJ/cm² となり、SiC のシングルパルスでの加工閾値である 990mJ/cm² を越える。

Fig.3 に、(2)の実験の結果を示す。丸で示した点がパルス間隔を変えた際の反射率であり、参考として棒線でパルスエネルギーを 40 μ J の時のシングルパルス反射率である 16.4%を示している。

Fig.3 から、70fs のパルス照射中に励起する電子の数は、800fs でピークになり 1~150ps の時間間隔で徐々に減少することがわかる。また、パルス照射後 800fs の状態では、最大の反射率が 34%と通常の 2 倍以上に増加しており、電子励起による反射率上昇が著しいことがわかった。一方パルス照射後 150ps の状態では、反射率がシングルパルス反射率よりも 35%ほど低い 10.7%を示している。

(1)の実験結果から、セカンドパルス照射中にも表面の電子励起・反射率上昇が起こっていると考え

られるため、この時間では電子励起を上回るほどの反射率低下現象が起こっている。Linde らの報告では²⁾、Si にフェムト秒レーザを照射した際、100ps の時間オーダーでアブレーションフロントが形成され、干渉の結果反射率が大きく低下することがわかっており、SiC においても同様の現象が起こることによって平均的な反射率を低下させる原因となったことが考えられる。

本課題では、半導体にフェムト秒レーザを照射した際確認される反射率変化に着目し、SiC を対象として投入エネルギーによる反射率の違いと、時間経過による反射率の変化について調査した。

照射エネルギーと反射率の関係を調べた実験では、加工閾値を越えるエネルギーのレーザを照射することで、照射エネルギーの増加とともに反射率が増加することがわかった。反射率の時間変化を調べた実験では、反射率はレーザ照射後 800fs でピークとなり、150fs で最小になることがわかった。また、レーザ照射後 150fs の条件において、反射率がシングルパルス反射率を下回ったことから、この時間オーダーで SiC 表面にアブレーションフロントが形成される可能性を示唆した。

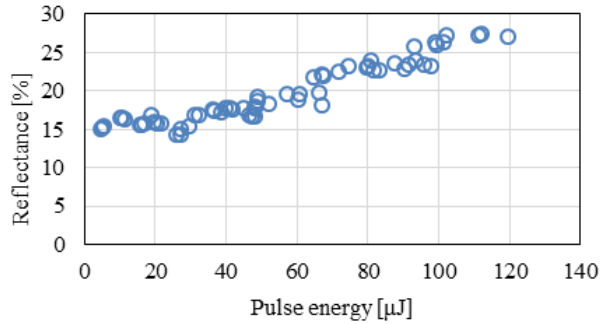


Fig.2 Relationship between reflectance and pulse Energy

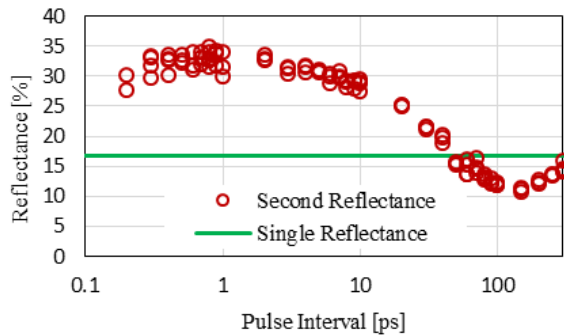


Fig.3 Time resolved reflectance for photo-excited surface

4. 引用(参照)文献等

- (1) Palik, Edward D. Handbook of optical constants of solids. Vol. 3. Academic press, 1998.
- (2) Von der Linde, D., and K. Sokolowski-Tinten. Applied Surface Science 154 (2000): 1-10.