

LiF 単結晶内部での超短パルスレーザー誘起応力波の 時間分解観測と応力波干渉による構造制御

(*京都大学) 坂倉政明, 石黒佑季, 福田直晃, 下間靖彦, 三浦清貴

Time-resolved observation and control of ultrashort pulse laser-induced stress waves and structural changes inside a LiF single crystal

(Kyoto Univ.) Masaaki Sakakura, Yuki Ishiguro, Naoaki Fukuda, Yasuhiko Shimotsuma, Kiyotaka Miura

[序]

固体材料のレーザー加工は、基板の切断・表面処理・機能性付加など多様な用途に利用される。特に、1 ピコ秒以下の超短パルスレーザーを用いると、透明固体内部での局所的な光励起や再現性の高い構造変化を誘起できるため、ガラスなどの透明固体材料内部に様々な機能を付与するために応用されている。超短パルスレーザーによる透明固体内部での光励起では、応力や熱が光励起領域の周囲に伝わるため、光励起領域以外でも構造変化が起こる場合がある。特に単結晶の場合は、応力の影響が長距離に及んで、結晶面の滑りによる転位欠陥やへき開面でのクラックが生じる[1]。例えば、岩塩型結晶構造であるフッ化リチウム(LiF)単結晶に超短パルスレーザーを集光照射すると、集光点から<100>方向にクラックが生じ (Fig. 1(a))、<110>方向に転位欠陥が生じる (Fig. 1(b))。このような光励起領域から離れた構造変化の原因として、レーザー誘起応力波が挙げられる。応力波は応力緩和時間よりも短い光励起によって発生し、応力パルスの伝播により長距離に影響を及ぼすため、転位欠陥やクラックの形成で重要な役割を果たすと考えられる。従って、応力波の干渉性を利用して応力分布を変調することができれば、特定の転位欠陥やクラックの形成を抑制あるいは促進できると期待される。そこで我々は、空間光変調器を用いた多点同時レーザー照射により複数の応力波を同時発生し、応力波を干渉させることで LiF 単結晶内部で過渡応力分布を変調し、クラック形成の変化を調べることでクラック形成制御の可能性を調査した。本講演では、まず、クラック発生に寄与する応力成分を明らかにするために Pump-probe 偏光顕微鏡によるクラック形成時の歪み分布の観測結果を示し、その結果に基づいて、多点同時レーザー照射によるクラック形成の抑制と促進のメカニズムについて議論する。

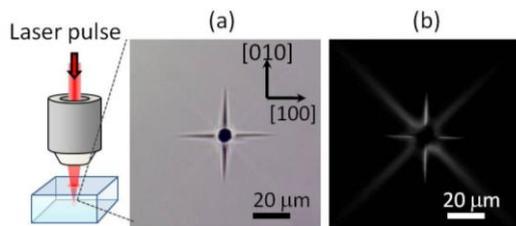


Fig. 1. Transmission optical microscope image (a) and crossed-Nicols polarization microscope image (b) of a fs laser induced modification inside a LiF single crystal. (a) shows four cracks from the photoexcited region, and in (b), the bright region in the <110> directions are dislocation bands.

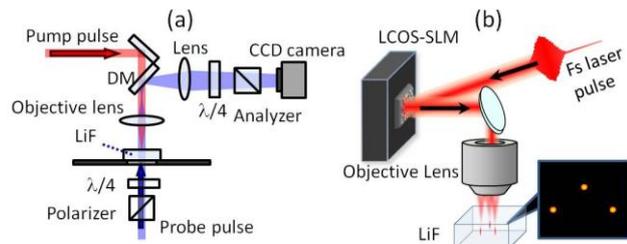


Fig. 2. (a) Pump-probe polarization microscope for the observation of birefringence distribution during laser-induced crack formation. DM is a dichroic mirror, and $\lambda/4$ is a quarter waveplate. (b) Parallel laser processing system with a spatial light modulator (SLM) for simultaneous multiple spots' laser irradiation inside a LiF crystal.

[実験法]

① クラック形成時の歪み分布の時間分解観測法 (Pump-probe 偏光顕微鏡)

Figure 2(a) に Pump-probe 偏光顕微鏡の光学系を示す。波長 800 nm、パルス幅 100 fs のレーザーパルス(Pump 光)を 50 倍の対物レンズ(NA=0.80)を用いて LiF 単結晶の(001)面に垂直に入射し、結晶内部の集光領域のみを光励起した。Probe 光として、Pump 光を β -BBO 結晶に透過させて得た二倍波を用いた。Probe 光は光学遅延し、円偏光とした後、Pump 光と反対の方向から光励起領域を透過させ、対物レンズと結像レンズを通った後、CCD カメラでその強度分布を観測した。また、CCD カメラの直前に $\lambda/4$ 板と検光子を置き、 $\lambda/4$ 板を様々な方位にして強度分布を取得した。

得られた強度分布の $\lambda/4$ 板の方位依存を解析することで応力や歪みによる異方屈折率の方位と大きさの分布を得た。

②多点同時レーザー照射法[2]

Figure 2(b)に多点同時レーザー照射法を示す。①と同じフェムト秒レーザーパルスの空間位相分布を空間光変調器(LCOS-SLM; 浜松ホトニクス)で変調した後、50倍の対物レンズ(NA=0.80)で集光することによりLiF単結晶内部に複数の集光スポットを形成して、多点で同時に光励起した。

【結果】

1. クラック形成時の歪み分布の観測

Figure 3(a), (b)に Pump-probe 偏光顕微鏡によって得た異方屈折率分布から計算した光励起後 2000 ps と 4000 ps での主歪みの分布を示す。この時、パルスエネルギーは 2 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ であった。歪み領域の外側の境界は丸みを帯びた四角形状であり、時間経過とともに大きくなることから、これはレーザー誘起応力波の主成分である。特徴的な形状は、音速が方位によって異なることに起因する。また、この時間スケールで光励起領域(中心部)から $\langle 100 \rangle$ 方向に 4 つのクラックが発生していることが分かった。クラックの先端は応力波の内側にあり、その周囲に応力波の伝播方向への応力が分布している。格子歪みを弾性力学に基づいてシミュレーションすると、Fig. 3(c)に示すようにクラック先端の周辺でクラック先端を引き裂く方向に格子が歪んでいることから、クラック先端周辺の応力がクラックの伸長に寄与していると考えられる。従って、クラック先端周辺の応力分布を変調するように応力波を干渉させれば、クラック伸長を抑制あるいは促進させられると考えられる。

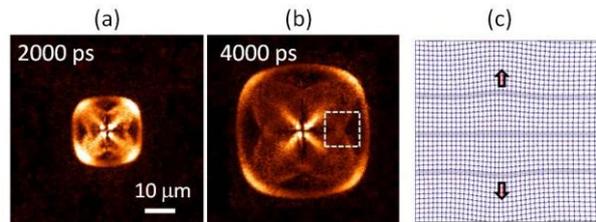


Fig. 3. (a), (b) Principle strain distributions at 2000 ps and 4000 ps after photoexcitation inside a LiF single crystal by a focused fs laser pulse. (c) Simulated lattice deformation in the region enclosed by a white broken line in (b).

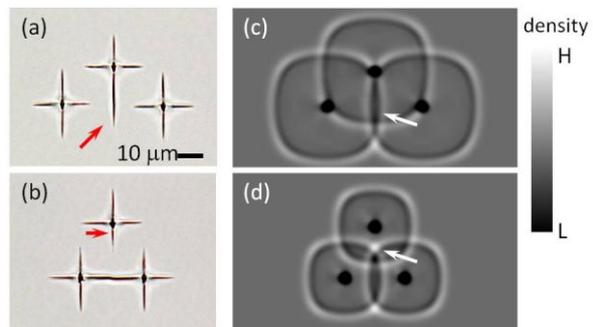


Fig. 4. (a), (b) Transmission optical microscope images of cracks by simultaneous laser irradiation at three spots inside a LiF single crystal. (c), (d) Simulated density distributions after simultaneous stress generation at three spots. (c) 3600 ps, (d) 2400 ps.

2. 多点同時レーザー照射によるクラック形成

Figure 4(a), (b)はLiF単結晶内部の3点に同時にフェムト秒レーザーパルスを照射して生じたクラックの透過顕微鏡像である。3つの集光点は二等辺三角形の頂点に位置し、Fig.4(a)ではその頂角が 105° であるのに対して、図2(b)では 60° である。どちらの集光点分布でもクラックが生じたが、頂角が 105° の場合は、頂点の光励起点から底辺方向へ伸びるクラックが長くなる(Fig. 4(a)の矢印で示したクラック)のに対して、頂角が 60° の場合はそれに相当する位置でのクラックが他のクラックよりも短かった(Fig. 4(b)の矢印で示したクラック)。

この違いの原因を明らかにするために、応力波の干渉を弾性力学に基づいてシミュレーションした。Figure 4(c), 4(d)にそれぞれFig. 4(a), 4(b)の集光点分布でシミュレーションした光励起後の密度分布を示す。Figure 4(a)の集光点分布では、光励起後3600ピコ秒でクラックに沿って低密度の領域が現れた(Fig. 4(c)の矢印で示した領域)。一方、Fig. 4(b)の集光点分布では光励起後2400ピコ秒でクラックの先端が圧縮されることが分かった(Fig. 4(d)の矢印で示した領域)。この過渡密度分布の違いから、Fig. 4(a)の集光点分布では応力波干渉による低密度領域の形成がクラック伸長を促進し、Fig. 4(b)の集光点分布では、応力波干渉によるクラック先端での圧縮がクラック伸長を抑制したと考えられる。

[1] M. Sakakura et al., *Optics Express*, **19** (2011) 17780.

[2] Y. Hayasaki et al., *Applied Physics Letters*, **87**, (2005) 031101.