

# 誘電体多層膜の多重照射効果の研究

1833129 三村幸祐

主任指導教員：米田仁紀 指導教員：白川晃

## 1. はじめに

本研究の目的は、高繰り返し高強度レーザーで再評価されつつある多重照射によるレーザー損傷問題を、光学薄膜の屈折率変化などを高精度に *in situ* 測定することにより、明らかにすることである。光学損傷は、その多層の薄膜材料の高品質化や母材の超低散乱化などにより単一照射に対しては、波長  $1\mu\text{m}$  レーザーで  $200\text{J}/\text{cm}^2$  を超え始めている。しかし、通常の使用方法である多重照射条件では、その使用強度は1桁程度小さくなることが言われており、今後さらに高繰り返しレーザーが使われるようになると、この使用強度の低下は、ミラーなどの素子の大型化につながり、応用にとって最も重要な要素の1つとされるコンパクト化が出来なくなる[1]。これまで多重照射による膜質の変化は予測されていたものの、*in situ* での計測が行われておらず、リアルタイムでどのような膜質変化が出て、それが損傷につながっていくかは不明な問題となっていた。そこで、本研究では、レーザー照射時の光学素子表面の膜質変化を高感度で検出する装置の開発し、多重照射によるレーザー損傷メカニズムの検討を行うことを目的とした。

## 2. 高繰り返し化していくレーザーシステム

NIFは大型でかつ高出力のレーザーシステムであり、そこではこれだけのダメージマネージメントの対策が必要であると書いた。ではより身近な研究室規模の実験装置ではダメージマネージメントが必要でないのかというところとは言えない。

近年ではレーザーの繰り返し周波数は非常に高いものになっており、この高繰り返し化は今後も加速していくと考えられる。仮に  $10\text{ppm}(0.001\%)$  損傷率)の誘電体多層膜ミラーに  $10\text{kHz}$  のレーザーを照射するシステムがあるとすると、その損傷確率は、

$$1 \text{ 秒後} : I_{1s} = 10\%$$

$$4 \text{ 秒後} : I_{4s} = 23\%$$

$$1 \text{ 秒後} : I_{7s} = 50\%$$

と計算できる。この数字は、高繰り返しレーザーシステムの数秒間の運用において、少なくとも1回以上のショットでミラーのどこかに欠損が生まれている可能性がこれだけあるということを示している。

このように高繰り返しレーザーシステムでは高出力なレーザーでなくともこれだけの損傷確率を持つことがある。レーザーダメージは高出力なレーザーに限り起こるものではなく、それほど大きくない出力のレーザーでも確率的に起こりうるものであるためだ。これだけの損傷確率を含んでいれば正常なシステムの運用も困難であり、ミラーそのものの損傷率のオーダーを少しでも下げることや損傷があるたびにミラーを交換するという対処方法は本質的ではなくなってしまう。そのためダメージマネージメントという考え方は今後、実験室単位でも必要になってくるのである。

## 3. 誘電体多層膜

ガラス基板に高屈折率の誘電体材料と低屈折率の誘電体材料を交互に組み合わせて多層膜を生成すると、高い反射率を持つミラーを作成することができる。こうして作成されるミラーは誘電体多層膜ミラーと呼ばれ、金属膜のミラーよりも反射率を高くできることや誘電体膜の化学的な安定性から光学装置に多く使用されている。本研究ではこの誘電体多層膜ミラーをターゲットとして、レーザーの多重照射に対する膜質変化を計測する。

## 4. エリプソメトリーの概要

研究内容としては高感度な膜質変化の検出には非接触で常時モニターできるシステムが必要であり、そのために今回はエリプソメトリーを使用した。エリプソメトリーは光学測定手法であり、試料からの光反射による変更状態の変化を測定することにより、その試料の光学特性や薄膜の厚みなどを測定することができる。光を測定プローブとして用いるため薄膜成長などの実時間計測が可能であり、他にも化学気相成長法、エッチング、酸化・熱処理などに利用されている。[2]

主に用いられているエリプソメトリーの測定装置は大きく分けて3つあり、これらの測定装置は、セットアップの原理に由来するそれぞれ長所短所がある。

表 1.エリプソメトリーの種類[2]

測定装置	長所	短所
回転検光子型	装置構成が簡単	$S_3$ が測定不能 $\Delta = 0$ および $180$ で測定誤差が増加
回転補償子型	偏光度スペクトルが測定可能 測定感度が一定	装置構造および補正が複雑
位相変調器型	高速測定	特定の領域で測定誤差が増加 $S_1$ および $S_2$ のどちらかが測定不能 測定可能波長数が少ない

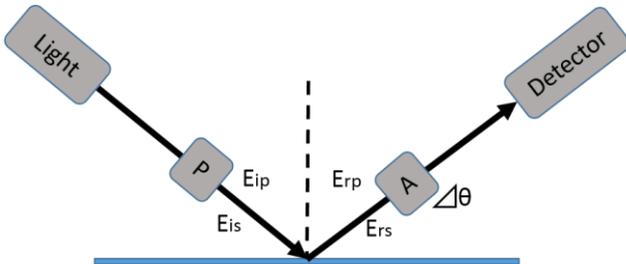
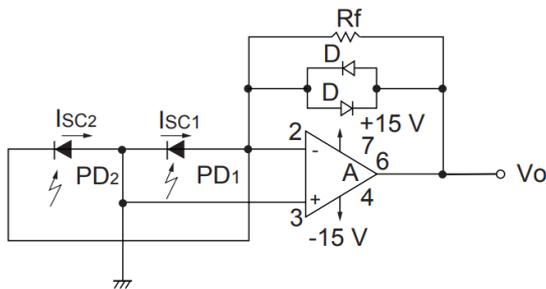


図 1. 回転型エリプソメトリーの概要図

図 1 に最もよく使用されている回転検光子型エリプソメトリーの場合、この方式は比較的構成が容易で、本研究にも使用している。偏光解析にはサンプル照射前の偏光情報も必要であるが、サンプル前で偏光子を使用して傾き角  $45$  度の直線偏光にしておくことにより、それを簡易化している。サンプル反射後では検光子を回転させて、各傾き  $\theta$  ごとに反射光強度を検出器で測定することにより、偏光状態を知ることができる。

ただし後述するが、この方式では検光子の回転速度や機械的な雑音の問題により、比較的高い精度が出ない傾向にある。

### 5. 光量バランス検知回路



PD: S1226/S1336/S2386 シリーズなど  
 A : LF356 など  
 D : ISS270A など  
 $V_o = R_f \times (I_{sc2} - I_{sc1})$  (V) ( $V_o < \pm 0.5$  V)

図 2. 光量バランス検知回路図[3]

光量バランス検知回路の回路図を図 2 に示す。この回路は 2 つのフォトダイオードがついていて、この PD に光入射が入るとその各信号の差分をとってオペアンプで増幅させる回路である。後述するが、本研究ではウォラストンプリズムで分離させた s,p 波それぞれをこの 2 つの PD に入射させて、その差

分を増幅させて信号として出力するのに使用する。

この回路では 2 つの PD に入る光量が等しい場合は  $V_0$  が零になる。受光感度は図の抵抗  $R_f$  の大きさで決まり、 $V_0$  の大きさは  $0.5V$  以内に抑えられている。2 つの PD に入る光量が等しい状態 (バランス状態) の近傍で最も受光感度が高くなる。

この回路を使用するメリットとしては、

- コモンモード除去
- 低ノイズ
- バランス状態での高感度

であり、差分増幅ディテクタは 2 つの信号差を検出しコモンモード除去を行うことにより、ノイズ中に隠れてしまうレベルの微小信号を取り出すことができる。

### 6. 回転検光子型エリプソメトリーの実際

エリプソメトリー実験を行うにあたって、はじめに最も一般的な方法として知られる回転検光子型エリプソメトリーを試してみることにした。以下にそのセットアップ、計測精度の評価、およびレーザー照射時の測定結果を記述する。

実験図は図 3 に示す。まずはセットアップの測定精度を確認するために、YAG レーザーを照射させずにエリプソメトリーの測定を行った。

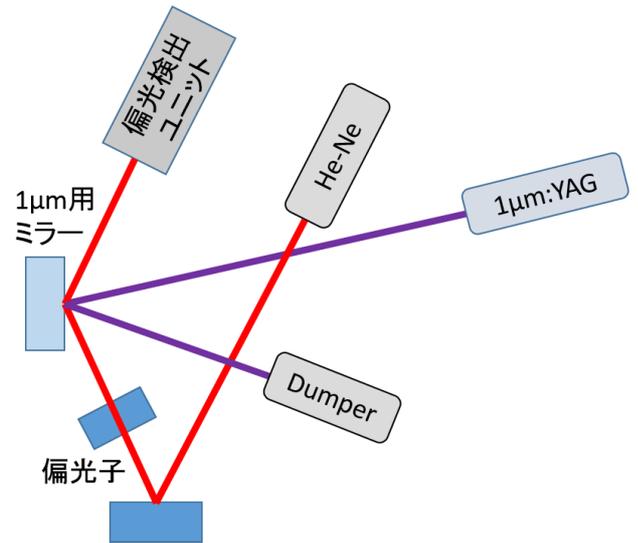


図 3. 回転検光子型エリプソメトリーの実際図

ターゲット前でターゲットの x, y 軸に対して傾き角  $45$  度の直線偏光にするために、偏光子を置いている。偏光検出ユニットがエリプソメトリー装置の本体であり、周囲にはアクリルハウジングをほどこし、レーザーダメージテストを行うにあたっての埃よけを行った。YAG レーザーの危険管理としては、ターゲット付近での産卵を防ぐために黒いプラバンで囲うことによって、周囲と遮っている。また、YAG レーザーは明示的にダンプするために、入射角約  $15$  度で照射し、反射をダンパーで遮った。

ストークスパラメータの時間平均値と標準偏差をまとめたものを表2に示す。

約7時間の測定を行ったが、ストークスパラメータは微小な標準偏差をもって、安定した。その精度は標準誤差が $10^{-4}$ オーダーであることから、

測定精度  $\sim 10^{-3}$

オーダーであると見積もることができる。

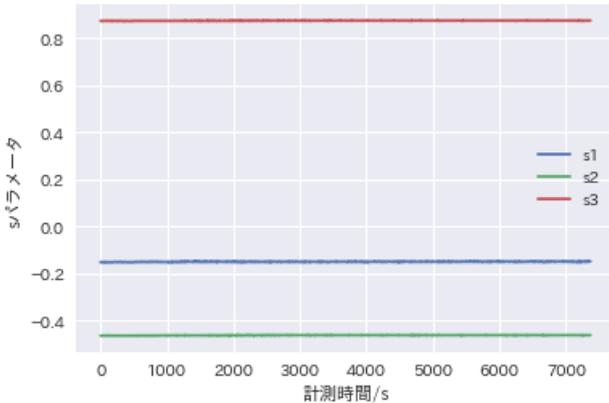


図4. 回転検光子型による測定データ

表2. 回転検光子型による測定データの平均値と標準偏差

ストークスパラメータ	平均値	標準偏差
$s_1$	-0.149	$8.28 \times 10^{-4}$
$s_2$	-0.461	$6.93 \times 10^{-4}$
$s_3$	0.875	$5.28 \times 10^{-4}$

これは偏光のx,y成分が1波長分ずれることによりストークスパラメータが1ずれることを考えると、偏光回転1周分の $10^{-3}$ 倍の偏光回転は測定できるということを示すと考えられる。

次にこのセットアップにYAGレーザーを照射した。するとターゲット表面の破壊を迎えてもストークスパラメータの標準誤差以上の変動が見られなかった。これにより、この偏光測定ユニットの精度ではレーザー照射によるターゲット表面の光学特性変化を検出するには不十分であると判断した。

この方式が低い精度となる原因として考えられるのは、機械的な検光子の回転による雑音や回転速度の限界などがある。

したがってこれを改善するためには反射光のs,p成分を同時に計測することや、信号の絶対値ではなく微小な変動のみフォーカスできる構成が必要になると考えられる。

## 7. 差分増幅によるエリプソメトリーの実験

前述の回転検光子型エリプソメトリーの実験は既製品の偏光検出装置を使用した。それではレーザーによるターゲットの光学特性変化を検出するには不

十分の精度であった。そこで次に反射光の複数の偏光成分を同時に計測し、それらの差分信号を検出してそれらをアンプによって信号増幅させる光量バランス検知回路によって測定精度を向上させようとした。

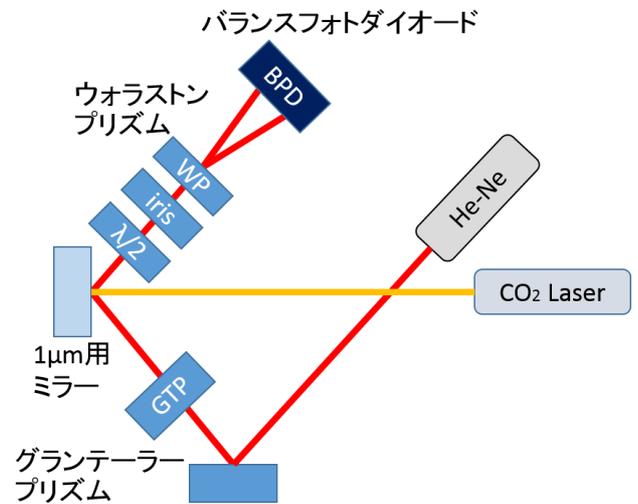


図5. 差分増幅によるエリプソメトリーの実験図

光量バランス検知回路を用いたエリプソメトリーのセットアップを図5に示す。

前章での問題点としては、

- 検光子回転による機械的な雑音
- 回転速度による限界
- 信号に対する変動の比が小さい

などの原因による測定精度の悪さがあった。この実験ではこれらの対策をしなければならぬ。

まず改善点としてはウォラストンプリズムを用いて反射光をs,p波に分離してそれらを同時に計測しているということである。これにより前述の機械的な雑音や検光子の回転速度による限界を克服できると考えられる。

また光量バランス検知回路(バランスフォトダイオード)を用いることによって測定精度の飛躍的な向上を目指した。この回路は入力2つの信号の差分が0に近い付近で高感度で検知できる。それによってこれまで信号の絶対値を測定してそのうちの微小な信号の変動を計測しようとしていたが、この方法では同程度の信号を入力させて信号0付近からの変動だけをアンプによって増幅することになるため高感度での検知が期待できる。

計測の方法としてはまず、He-Neレーザーの偏光状態をターゲット照射前に傾き角45度の直線偏光にする。するとターゲット反射後に偏光状態の変動があるはずだが、光量バランス検知回路に入力させる2つの信号は同程度の信号強度にしたい。そのためウォラストンプリズムでs,p直線偏光波に分離する前に1/2波長板を使用してs,p成分の大きさが等しくなるように調整する。すると光量バランス検知回路に

入力される2ビームは等しくなり、その差分のみが信号として得られる。回路内部ではその変動信号がオペアンプにより増幅され、変動検知という意味合いでは大きな精度の向上が見込める。これは本研究での目的はエリプソメトリーによるターゲットサンプル表面の光学的定数の決定ではなく、レーザー照射によるターゲット表面の特性変化を検出できるか否か、もしくはそのためにどれほどの精度が必要かを検出するための実験であることに由来する。

実験図を図5に示す。まずはこのセットアップの測定精度を計算してみた。このセットアップで得られた信号は1つのPD から160V 程度の出力があり、またその差分出力からはレーザーによる偏光回転などがない状態で10mV 以下のノイズレベルが測定できた。したがって2つのPD入力が1 波長分ずれることにより出力電圧は160Vを示すことから、2つの入力の位相差が計算できて、その大きさは位相差1周期分の

$$\text{位相差} = \frac{10\text{mV}}{160\text{V}} = 6 \times 10^{-5}$$

倍となる。すなわちこの精度で位相差を検出することができることがわかった。

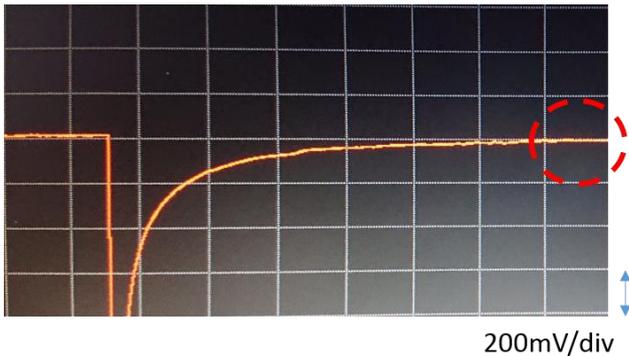


図 6. CO<sub>2</sub> レーザー、10W0.5 秒照射による偏光回転

CO<sub>2</sub> レーザーを10Wで0.5秒照射した際の差分検出データを図6に示す。このスケールは200mV/divであり、データは s, p 波の差分のデータを表している。

この図ではマイナス方向に立ち上がっている時点で CO<sub>2</sub> レーザーを照射していて、熱による反応と思われる立ち上がりが起こっている。そして時間が立つとまた0点に戻っていることを確認できる。

また図7には 10W の CO<sub>2</sub> レーザーを 3 秒間照射した際の差分データを示す。

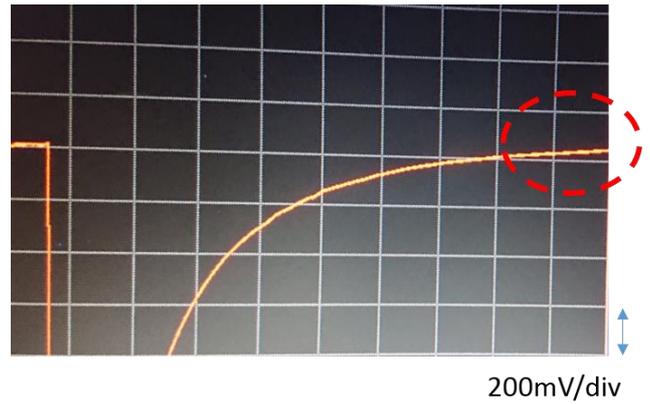


図 7.CO<sub>2</sub> レーザー、10W3 秒照射による偏光回転

今回のデータでもレーザーを照射した時点でマイナス方向に立ち上がりが起こっていることが確認できるが、一定時間が経過したあとに0に戻らずプラス方向にオフセットを持っていることがわかる。先程の 0.5 秒の照射がマイナス立ち上がりから0へと戻っていくのに対して、このグラフではマイナスの立ち上がりからプラス値の漸近線に近づいているため、明らかに照射表面に膜質の変化があったことがわかる。

この結果からどの程度の出力の YAG レーザー照射なら検知可能なかを概算してみたい。そのために以下のことを仮定する。

- 対象は熔融ガラスであるため CO<sub>2</sub> レーザーの吸収率は 100%
- 1μm の YAG レーザーは 10ppm(0.001%) 吸収

すると、ガラスから見ると吸収するエネルギーは、CO<sub>2</sub> レーザーの 10W は YAG レーザーにおける

$$I = 10 \times \frac{100}{0.001} = 1\text{MW}$$

と同等だと考えられる。

またこの装置では 10mW までの精度で測定できることを確認しているため、この図では 200mV の信号として確認できるということは、

$$I = 1\text{MW} \times \frac{1}{200} = 5\text{kW}$$

以上のエネルギーを持つ YAG レーザー照射であれば膜質変化を検出できるという見積もりができる。

## 8. YAG レーザーによる差分検出エリプソメトリー

前章でガラスに高い吸収率を持つ CO<sub>2</sub> レーザーでまず試してみたところ、この装置がある一定以上のレーザーエネルギーであれば検出可能であり、YAG レーザーの場合のエネルギーのおおよその概算ができた。そこで実際に YAG レーザーを照射してそのエネルギーが検出可能であるか、またターゲットの欠損が検出可能であるかを検証してみた。

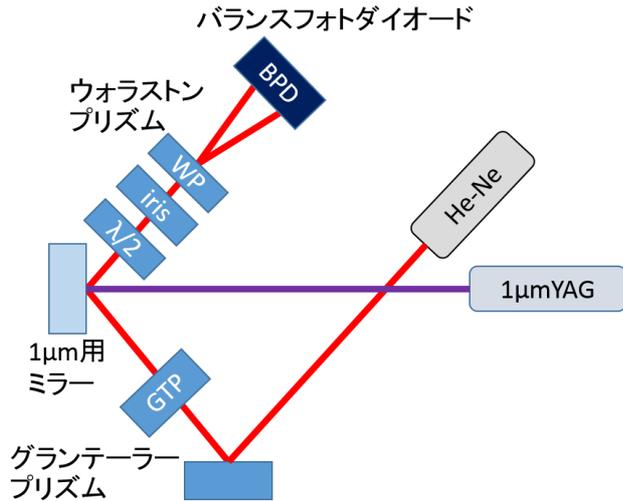


図 8. YAG レーザーによる差分検出エリプソメトリー実験図

YAG レーザーを使用した差分検出エリプソメトリーの実験図を図 8 に示す。基本的には前述の実験の CO<sub>2</sub> レーザーを YAG レーザーに置き換えたもの。

このレーザー出力は前章の CO<sub>2</sub> レーザーの実験により計算した測定可能な出力 5kW には満たないが、これほど高出力のレーザーが一般に研究室で使用されるものではなく、現実的ではない。また 2.9W でも十分ミラーにレーザー損傷が発生する出力であるため、レーザー損傷等による膜質変化を測定しなければならないという本研究の題意によれば、このスペックが有意義であると思われる。そのため本実験では、

- 雑音レベル以上の信号の変化が見られるか
- 実際にこの出力のレーザー照射による膜質変化は計測できないのか
- 計測できない場合、どれほどの精度が必要だと考えられるのか

について検証した。

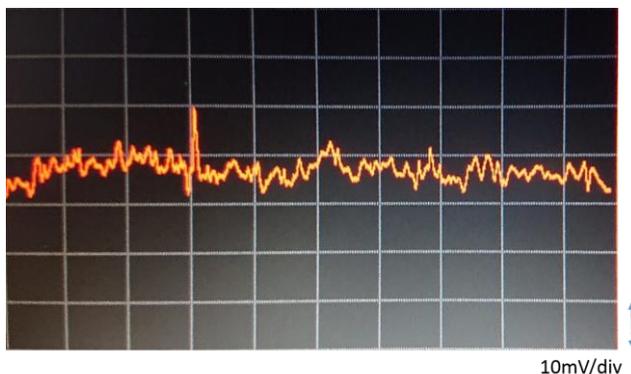


図 9. YAG レーザーを照射し、ターゲット破壊した際の差分検出データ

YAG レーザーを照射したときの差分信号を図 9 に示す。この実験によりターゲットの表面には欠陥が見られたが、それでも差分信号には雑音以上の変動は見られなかった。

そこで必要と思われる精度を計算してみた。1μm の YAG レーザーに対して 10ppm の損傷率を持つミラーを考えると、10W の CO<sub>2</sub> レーザーはミラーにとって 5kW の YAG レーザーの照射によるエネルギー吸収と等しいと考えられるため、必要な精度は

$$\text{必要な精度} = 6 \times 10^{-5} \times \frac{2.9W}{5kW} \sim 10^{-7}$$

オーダーであると計算できる。

### 9. 差分増幅と高出力 LD における多重照射エリプソメトリー測定

ここではさらにプローブレーザーに He-Ne よりモード安定であり数十倍の光量を入射できる LD 励起レーザーを使用し、再度実験を行った。

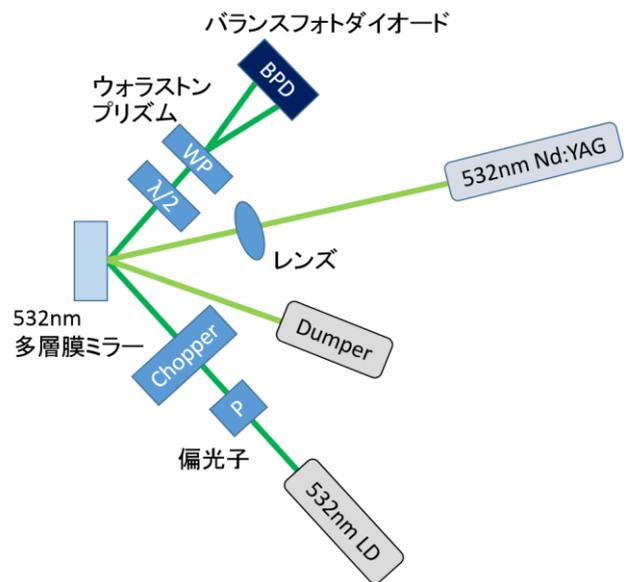


図 10. YAG レーザーによる差分検出+LD エリプソメトリー実験図

図 10 に実験図を示す。この実験では s,p 波の光学的な分離、光量バランス回路に加えてプローブ光を 532nm の LD 励起レーザーに、また YAG レーザーも 532nm のものを使用し、532nm の多層膜ミラーをターゲットに実験を行った。繰り返し周波数は低く、さらに単位面積あたりの光強度も近年の 1on1 テストでの損傷閾値 200mJ/cm<sup>2</sup> に比べ非常に小さくなっているが、このレベルの照射でも多重照射条件では十分に大きな損傷確率を持つ。

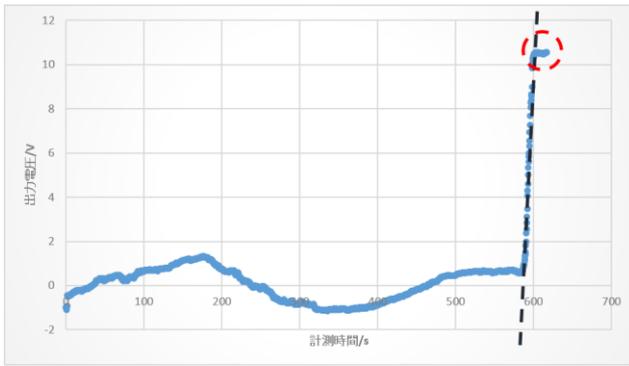


図 11. YAG レーザー照射による損傷試験

図 11 に YAG レーザーを約 10 分間照射した際のエリプソメトリー測定過程データを示す。この図を見ると途中で直線的な出力電圧の変化が起こっており、実際にこのときに損傷が確認された。したがって YAG レーザー照射による損傷は確認できたわけだが、これは 100Hz のレーザーを約 10 分照射したことにより起こっている。したがってここからショット数を計算すると

$$100\text{Hz} \times 600\text{s} = 6 \text{ 万ショット}$$

となる。これは研究背景で示した 10kHz を 7 秒照射した際のショット数 7 万回と近く、この場合の損傷確率 50% という値とも今回のこのデータは合致している。

また、

- 電圧の変化が直線的
- 変化後ゆるやかな変動

が確認できることから損傷箇所は 1 箇所だと考えられる。そして最も多重照射下の損傷に置いて対策を必要とするのは起きた 1 つの損傷を拡大させないことである。1 つ損傷が起こるとそれを起点に、損傷は指数関数的に大きく拡大していく。つまり今回 1 点の損傷で検出できたということは、損傷の拡大防止などの対策を行うことが可能であることを示している。

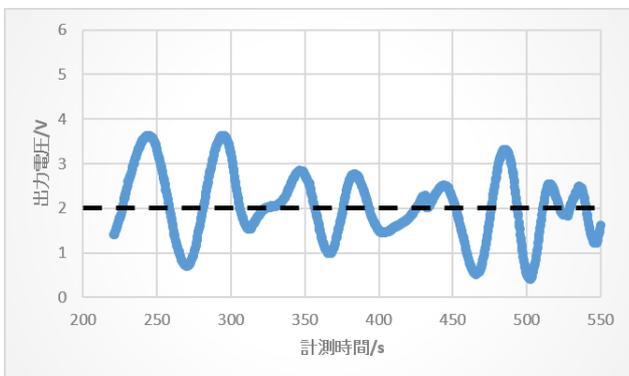


図 12. YAG レーザーによる多重照射試験 (レーザー

一照射前)

また図 12 にはレーザーを照射する前のエリプソメトリー測定データを、図 13 にはレーザー照射後のエリプソメトリー測定データを示している。この変動を見ると平均値が 2.05V から 3.89V に変化していることが確認できた。さらに照射後には無損傷の状態においてもスパイク状の直線的な変動も確認できた。これは損傷時の挙動にもよく類似しており、これを確認することで損傷の予兆として、事前検知ができる可能性がある。

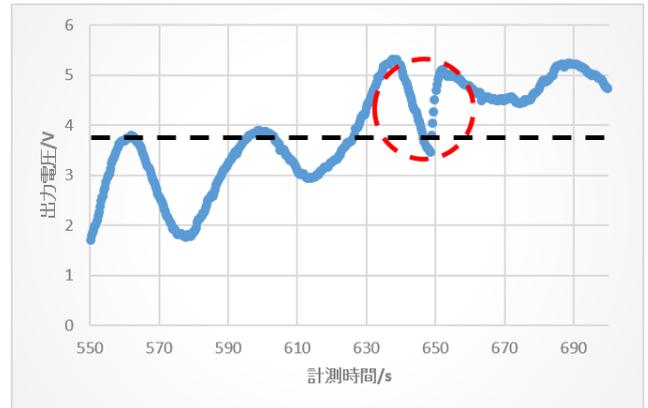


図 13. YAG レーザーによる多重照射試験 (レーザー一照射後)

## 10. まとめ

光学素子表面の膜質変化を検出するエリプソメトリーシステムが完成した。回転検光子型エリプソメトリーを使用した検出器では、偏光の 1 周回転の約  $10^{-3}$  倍の測定精度が出た。しかしこの装置ではレーザー損傷を検出できず、精度が不十分であることがわかった。そこで、回転検光子型の回転機構を覗いて機械的な雑音の除去、および s,p 波の差分を取ることでコモンモード除去、検出器には光量バランス回路を用い実験を行った。その結果、約  $10^{-5}$  まで測定精度を向上させることができた。しかし膜質変化を検出できたのは CO<sub>2</sub> レーザー照射だけで、1 $\mu\text{m}$  の YAG レーザーの照射を検出するためには約  $10^{-7}$  の測定精度が必要であることがわかった。

### 参考文献

- [1] M.L.Speeth, P.J.Wegner, "OPTICS RECYCLE LOOP STRATEGY FOR IF OPERATIONS ABOVE UV LASER INDUCED DAMAGE THRESHOLD", LLNL-JRNL-658250(2016)
- [2] 藤原裕之 『分光エリプソメトリー』, 丸善株式会社
- [3] BeamQ. <http://www.beamq.com/laser/laserdiode/Si> フォトダイオード/応用回路例.pdf