

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19760467

研究課題名（和文） 光による転位制御と偏光素子への応用

研究課題名（英文） Control of dislocation using femtosecond laser and application to polarizing devices

研究代表者

兼平 真悟 (KANEHIRA SHINGO)

京都大学・産官学連携センター・産官学連携助教

研究者番号：30437248

研究成果の概要：

本研究では、誘電体材料に超短パルス光であるフェムト秒レーザーを集光照射し、局所的に応力を付加することにより転位を形成し、転位の形成メカニズムを探ると同時に、レーザー反応領域の微細構造を多角的に分析する。そして、転位形成領域に発生する局所的な屈折率差を利用し、偏光素子への応用を図る。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,300,000	0	1,300,000
2008 年度	1,900,000	570,000	2,470,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	570,000	3,770,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学、無機材料、物性

キーワード：超短パルス光

## 1. 研究開始当初の背景

ガラスなどの透明材料を高機能化する方法の一つとして、レーザー照射法が提案されている。現在までに、YAG レーザーやエキシマレーザー等を始めとするレーザーにより、ガラス表面に光導波路の作製等が行われてきた。しかし、表面加工のみではガラスの高機能化には限界があるため、ガラス内部を局所的に構造改質することが今後重要となるものと思われる。

ガラス内部加工に適したレーザーの一つとして、フェムト秒レーザーが提案されている。フェムト秒 (femtosecond : fs) レー

ザーは、パルス幅がフェムト秒オーダー ( $10^{-18} \sim 10^{-15}$  sec.) の非常に短いレーザーを指す。フェムト秒レーザーをガラスやポリマー等の透明材料に照射した時、レーザーの有するエネルギーが熱拡散速度よりも速いフェムト秒オーダーの短時間で吸収されるため、熱の発生に伴うクラック形成等を抑えることが可能であり、高精度、高効率な微細加工を行うことができる。又、集光点付近の電場強度が  $\text{TW}/\text{cm}^2$  にも達するため、空間選択的に多光子吸収反応を励起させることができる。(図 1)

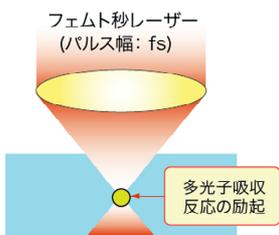


図 1. 多光子吸収反応



図 2. レーザー照射後の屈折率変化領域

フェムト秒レーザーをガラスに集光すると、焦点付近を中心として数ピコ秒以内に圧力波が発生し、圧力波が緩和する時に歪み領域が形成し、結果として屈折率変化領域が形成される。この反応を利用すると、透明材料内部の焦点付近にのみ高屈折率領域や微細ポイドを形成することができる。

## (図 2)

フェムト秒レーザーにおける集光条件を調節することで、レーザーのスポット径を保ったまま (~1 $\mu\text{m}$  程度) 集光部をライン状に引き伸ばすことが可能である。本現象は、一般的にフィラメントと呼ばれている。レーザー光を 1 点に集光すると、焦点付近にのみ歪みが生じ、スポット又は同心円状の屈折率変化領域が形成される。ところが、フィラメントを用いた集光を行うと、フィラメントに沿った幅広い領域に歪みが誘起され、ライン状の屈折率変化領域が形成される。最近の研究で申請者らは、上述のフィラメント現象を利用することで複数のナノサイズの空孔からなる周期構造体を 1 回で作製できる技術開発に成功している。

(Nano Lett., 5[8] 2005, 国際特許 PCT/JP2006/303707) 本法を用いて作製した周期構造体は、フォトニック結晶を始めとする光学素子への応用が期待できる。

フィラメント技術を効果的に利用すると、多彩な反応を透明材料内部に誘起することが可能であり、特異形状を有する構造体への作製に非常に有力な手段となりうる。結晶は、岩塩型構造、六方最密充填構造、スピネル構造を始めとする多くの構造が存在し、各々の結晶において光学・力学的性質が異なる。ガラスが等方的な構造を有するのに対し、単結晶は異方性を有する点が決定的に異なる。そのため、フェムト秒レーザーによるフィラメント現象を用い、単結晶内部に局所的なひずみを与えると、ガラスとは異なる異方性を有した転位構造を形成できるのではないかと、という着想に至った。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、誘電体内部に格子欠陥

の一種である転位をレーザー光を用いて形成し、自在にコントロールする技術開発を行うことである。そして、転位を利用した偏光素子の開発を目指した基盤技術の開発を行う。まず第一に、単結晶内部に転位構造を導入可能な実験条件の調整を行う。具体的には

1. 転位導入に適した単結晶の調査
2. レーザー照射条件の調査
3. 転位構造の観察と改質部の組成分析

である。以上を調査することにより、転位構造の形成プロセスを明らかにし、転位構造作製の基礎技術・知識を確立する。次に、転位構造の偏光素子への応用実験を行う。転位構造を単結晶内部の幅広い範囲に書き込み、外部から光を導入することで、光学散乱特性等の確認を行う。そして、偏光素子としての応用性について検討を行う。

## 3. 研究の方法

再生増幅されたTi:Sapphireレーザー (Ifrit、波長780nm、繰り返し周波数1kHz、パルス幅238fs) を100倍対物レンズ (NA : 0.9) を用いて、MgO単結晶(001)面に集光照射した。レーザー照射した後のMgO単結晶は、構造変化領域の観察用に2種類の加工を施した。まず、レーザー照射部付近まで研磨処理を行い、さらにミリング処理等を行うことでTEM観察用の試料とした。そして、深さ方向の構造変化を確認するために、MgOサンプル側面の鏡面研磨を行い、光学顕微鏡や偏光顕微鏡を用いて観察を行った。又、パルスエネルギーやパルス数、繰り返し周波数等を変化させることで欠陥形状の制御を試み、形成プロセスに関して考察を行った。

## 4. 研究成果

図3(a)に、レーザー照射後のMgO単結晶(001)面の偏光顕微鏡写真(クロスニコル: 明視野像)を示す。レーザー光は6 $\times$ 6の合計36ヶ所、50 $\mu\text{m}$ 間隔に周期的に照射した。レーザー光の焦点部を中心として、クロス状に光る領域が形成されていることが分かる。クロスニコル像において明るく観察される領域は、応力集中等の原因で屈折率が変化し、入射ハロゲン光の直線偏光が回転する複屈折が誘起されている。本現象は、アモルファス構造を有するガラスに対してレーザー光を照射した時には、全く見られない。つまり、クロス状の構造変化領域は、単結晶の有する結晶構造に由来している可能性が高いことを示している。

図3(b)に、レーザー照射部における光学顕微鏡写真を示す。焦点部には、パルスエネルギー20 $\mu\text{J}$ 、125パルスのレーザー光を集光照射した。焦点部において、直径が約8 $\mu\text{m}$

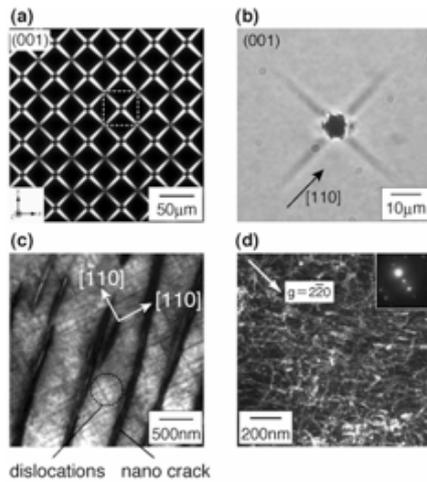


Fig.3. (a) Polarizing microscope crossed Nicols images of cross-shaped patterning array on (001) MgO facet. Array pattern (6×6) with a period of 50 um is written inside the MgO single crystal. (b) Optical microscope image of MgO (001) facet viewed from the top of the sample after irradiation with 125 pulses. (c) Transmission electron microscope (TEM) bright-field image and (d) weak-beam dark-field images of dislocation structures at the focal point.

程度の黒いドットが観察される。さらに、ドットを中心として対角線方向に伸びる、屈折率変化に基づく黒い直線状の構造変化を確認することができる。つまり、**図3(a)**におけるクロス状の構造変化は、レーザー照射により自発的に形成する中心部のドットと、4本の屈折率変化領域から形成されている。この微細構造変化領域は、(001)面におけるあらゆる位置において形成する。直線状の屈折率変化領域は、常に $[110]$ 方向に向かって伸びることも確認しており、単結晶の固体物性に由来することが分かる。

**図3(c)**に、レーザー焦点付近におけるTEM観察写真を示す。中心部における黒いドットは、ボイドではなく数10nm領域の幅を有する直線状のクラックの集積体であることが分かる。又、クラックの周囲は黒色に変化しており、バックグラウンドに $\langle 110 \rangle$ 方向に配向した数nmの幅を有するナノ細線が高密度に形成されている。一般的に、MgOを始めとする岩塩型構造を有する結晶は、(110)面においてすべりが起こりやすいことが知られている。そのため、MgO単結晶に外部から応力が印可された時、(110)面において転位領域が形成され、応力の緩和が起こる。そして、転位領域においては格子面がひずんだ状態のまま保持されている。**図3(c)**において見られるナノ細線の正体は、格子欠陥の一種である転位線であることが予測できる。**図3(c)**で確認されるような、規則正しく一定方向にならんだ転位線は、通常のインデンテーション法のような応力印可方法では確認されず、レーザー照射

でのみ見られる現象であるといえる。

**図3(d)**に、Weak Beam法を用いて観察したレーザー照射部付近のTEM写真（暗視野像）を示す。**図3(d)**において、 $[220]$ 方向から電子線を照射した時のナノ細線領域は、白く網目状に観察される。つまり、**図3(c)**において観察されたナノ細線の正体は、転位線であることを裏付けている。本構造は、フェムト秒レーザーにおけるフィラメント現象に強く依存することを確認している。それは、転位線は点欠陥ではなく、線状や面状の欠陥であることに由来していると思われる。

以上のことから、

1. フィラメント現象により、線状に伸びた光集光領域に応力が誘起される。
2. 光により誘起された応力は、(110)面が幅広い範囲ですべることで緩和され、その際に高密度に凝集した転位線が形成する。
3. 転位線は、結晶構造に依存した方向(この場合は $\langle 110 \rangle$ 方向)に揃って形成される。

以上の1→3というプロセスを経ることで、クロス状の特異パターンが形成されることが推定できる。本構造は、フィラメントと単結晶が効果的に反応して形成される、一つの興味深い現象であるといえる。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計9件)

[1] S. Kanehira, K. Miura, and K. Hirao, "Ion exchange in glass using femtosecond laser irradiation", *Appl. Phys. Lett.*, 93, 023112-4 (2008) : Selected for the August 2008 issue of *Virtual Journal of Ultrafast Science.* : 査読有り

[2] S. Kanehira, K. Miura, K. Hirao, N. Shibata, and Y. Ikuhara, "Cross patterning on MgO based on dislocations using femtosecond laser irradiation", *Appl. Phys. A*, 92, 913-6 (2008). : 査読あり

[3] K. Miura, K. Hirao, Y. Shimotsuna, M. Sakakura, and S. Kanehira, "Formation of Si structure in glass with a femtosecond laser", *Appl. Phys. A*, 93, 183-8 (2008). : 査読あり

[4] T. Chen, J. Si, X. Hou, S. Kanehira, K. Miura, and K. Hirao, "Photoinduced microchannels

inside silicon by femtosecond pulses", Appl. Phys. Lett., 93, 051112-4 (2008).: 査読あり

[5] Masashi Hamabe, Kiyotaka Miura, Yasuhiko Shimotsuma, Masaaki Sakakura, Shingo Kanehira, Masayuki Nishi, Kazuyuki Hirao, "Three-dimensional Deposition of Silicon Structure from Silicate Glass with Dispersed Metallic Aluminum by Femtosecond Laser Irradiation", *Journal of Wuhan University of Technology-Mater. Sci. Ed.* 22, p5-8 (2008).: 査読あり

[6] Shingo Kanehira, Kiyotaka Miura, Kazuyuki Hirao, Naoya Shibata, and Yuichi Ikuhara, "Writing of Nano-Micro Structure Using Femtosecond Laser Irradiation", *Smart Processing Technology (High Temperature Society of Japan)*, Vol. 2 163-6 (2008): 査読あり

[7] 兼平真悟

「フェムト秒レーザーを利用したナノ・マイクロ構造の形成」, オプトロニクス, No.2 (2007): 査読なし

[8] 兼平真悟, 平尾一之

「フェムト秒レーザープロセッシングによる3次元ナノ構造体の創製」, 溶接学会誌, Vol. 4 (2007): 査読なし

[9] 藤井高志, 兼平真悟, 平尾一之

「セラミックス材料のTHz周波数帯域での特性」, セラミックス協会誌 Vol. 4 (2007) : 査読なし

[学会発表] (計 15 件)

[1]兼平真悟 (京大産官学連携センター), 三浦清貴, 平尾一之 (京大・院) 柴田直哉, 幾原雄一 (東大・院) “フェムト秒レーザーによる転位構造制御と微細構造解析” 日本セラミックス協会 第20回秋季シンポジウム (日本セラミックス協会, 9/12-14) 名古屋工業大学.

[2] 柴田壮亮 (京大・院), 兼平真悟 (京大産官学連携センター), 三浦清貴, 平尾一之 (京大・院) “フェムト秒レーザーを用いたFe-Si系薄膜の相転移制御” 日本セラミックス協会 第20回秋季シンポジウム (日本セラミックス協会, 9/12-14) 名古屋工業大学.

[3]兼平真悟 (京大産官学連携センター), 三浦清貴, 平尾一之 (京大・院) 柴田直哉, 幾原雄一 (東大・院) “フェムト秒レーザーを利用した単結晶内部への転位パターンの形成” 日本金属学会 2007年秋期 (第141回) 講演大会 岐阜大学 9/19-21.

[4]兼平真悟 (京大産官学連携センター) “超短パルスレーザーを用いた透明材料のナノ加工” ニューガラスフォーラム第2回ガラス科学技術研究会 (招待講演) ニューガラスフォーラム本部 (東京) 10/16.

[5]兼平真悟 (京大産官学連携センター) “フェムト秒レーザーによる超精密光加工” 第2回NEDO光集積ラボラトリーシンポジウム (京大ローム記念館、10/25)

[6]S.Kanehira (Kyoto U.)

"Nano patterning originated from dislocations using femtosecond laser irradiation" Nanotech in Japan, 2008 (4/14) (Poster) Tokyo 4/14.

[7]兼平真悟, 三浦清貴, 平尾一之 (京大) 柴田直哉, 幾原雄一 (東大) "フェムト秒レーザーを用いた高密度転位制御と光学特性評価" 日本セラミックス協会 第21回秋季シンポジウム 9/17-19, 北九州国際会議場 (小倉市).

[8] 柴田壮亮, 兼平真悟, 坂倉政明, 下間靖彦, 三浦清貴, 平尾一之 (京大) "フェムト秒レーザーで誘起した局所転位の増殖過程解析"

日本セラミックス協会 第21回秋季シンポジウム 9/17-19, 北九州国際会議場(小倉市)..

[9]文致原, 兼平真悟, 三浦清貴, 平尾一之(京大) 柴田直哉, 幾原雄一(東大)  
"フェムト秒レーザー照射によるルビー内局所領域におけるマイクロパターン形成" 日本セラミックス協会 第21回秋季シンポジウム 9/17-19, 北九州国際会議場(小倉市) .

[10]三浦清貴, 下間靖彦, 坂倉政明, 兼平真悟, 西正之, 清水雅弘, 平尾一之(京大)  
"レーザーによるガラス内部への元素分布形成" 日本セラミックス協会 第21回秋季シンポジウム 9/17-19, 北九州国際会議場(小倉市) .

[11]兼平真悟, 三浦清貴, 平尾一之(京大) 柴田直哉, 幾原雄一(東大) "フェムト秒レーザーを用いた転位増殖プロセスの制御"  
日本金属学会 2008年秋期(第142回)講演大会 9/23-25, 熊本大学.

[12]文致原, 兼平真悟, 三浦清貴, 平尾一之(京大) 柴田直哉, 幾原雄一(東大)  
"フェムト秒レーザー照射によるルビー内局所領域におけるマイクロパターン作製"  
日本金属学会 2008年秋期(第142回)講演大会 9/23-25, 熊本大学.

[13]兼平真悟, 三浦清貴, 平尾一之(京大) 柴田直哉, 幾原雄一(東大)  
"光を用いた局所転位構造の形成と制御"  
2008年度セラミックス総合研究会(Closed)  
10/23-24, 宮島商工会館.

[14]兼平真悟(京大): 依頼講演  
"フェムト秒レーザーによる透明材料のナノ加工と光制御を目指した高次接合構造の形成"  
大阪大学接合科学研究所全国共同利用成果発表会 (JWRI Symposium 2008, 10/30) 大阪大学.

[15]栄田壮亮, 坂倉政明, 兼平真悟, 下間靖彦, 三浦清貴, 平尾一之(京大)  
"フェムト秒レーザーによる単結晶内部への転位形成と応力波伝播" 日本セラミックス協会 2009年年会(日本セラミックス協会, 3/16-18) 東京理科大学.

## 6. 研究組織

(1)研究代表者  
兼平 真悟(KANEHIRA SHINGO)  
(京都大学・産官学連携センター・産学官連携助教)  
研究者番号: 30437248

(2)研究分担者  
なし

(3)連携研究者  
なし