

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02647

研究課題名（和文）電子波の回折限界に迫る回折素子の作製

研究課題名（英文）Fabrication of diffraction element approaching diffraction limit of electron wave

研究代表者

佐藤 俊一（Sato, Shunichi）

東北大学・多元物質科学研究所・教授

研究者番号：30162431

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,700,000円

研究成果の概要（和文）：全ての物質は、粒子と波の両方の性質を有している。波としての性質を最も有効に活用されている代表例は光である。波には回折という現象があるが、現代の光技術はその回折限界に達している。一方、電子波に対する技術開発は発展途上であり、電子の波としての性質を最大限には活用できていない。本研究では、電子波に対して、その回折限界に迫る回折素子を実現するための作製技術の開発を行った。具体的には、ほとんどの電子が透過できる薄膜材料をナノ加工できる技術開発に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では厚さが数10nmの自立した薄膜のレーザー加工を実現した。この厚さでは、ほとんどの電子が透過できるようになるため、回折素子としての効率が格段に向上することが期待できる。また、光の運動量は極めて小さいため、代表的なナノ加工法である集束イオンビームに較べると、加工ダメージが小さいという利点がある。さらに、加工は1パルスのレーザー照射だけで十分であり、原理的には1秒間に10000個以上の加工が可能となる。

研究成果の概要（英文）：All matter has both particle and wave properties. Light is a typical example in which wave properties are most effectively utilized. Waves is known to diffract but modern optical technology has reached its diffraction limit. On the other hand, the development of technology for electron waves is still in progress, and the properties of electron waves have not been fully utilized. In this research, we have developed a fabrication technology to realize a diffraction element approaching the diffraction limit for electron waves. Specifically, we have succeeded in developing technology that enables nanoprocessing of thin films that allow most electrons to pass through.

研究分野：光工学

キーワード：レーザーナノ加工

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

電場や磁場を用いる電子レンズは、レンズ固有の収差が大きい上に、電磁場の不安定性に基づく収差も加わるため、開口角を小さくする必要がある。そのため、光学顕微鏡で使用されるような大きな開口角を持つ分解能の大きなレンズの製作が困難であった。

2. 研究の目的

本研究では、ワンショットレーザー干渉加工によって半導体薄膜に同心円パターンを形成し、光学的レンズと同等の性能を持つ薄膜電子レンズの作製プロセスの基盤技術を確立する。最も重要な点は、半導体薄膜が電子の透過率が高いため、この薄膜電子レンズが位相効果を持つ回折光学素子として機能し、高い集光効率を有することである。

3. 研究の方法

本研究では、ワンショットないし数ショットで微細加工が可能な多光束干渉法によって任意の空間パターンを半導体薄膜上に形成・加工する方法を用いる。この方法は、本研究者グループが開発に成功しているらせん状位相を有する“電子渦”生成用ホログラムの作製に使用されたものを基盤としているものである。

4. 研究成果

超短パルスレーザーを用いて厚さが数 10 nm から数 nm 程度の薄膜を加工する新技術の開発に取り組んだ。例えば、2 nm 厚の Au や 20 nm 厚の SiO₂、さらに単層 graphene など異なる材料の薄膜加工を試みた。その結果、いずれもレーザーの照射条件を最適化することで数 100 nm の分解能を有する 2 次元加工を施すことが可能であることを見出した。また、レーザー光の干渉を利用したパターンニング加工において、これまでの 2 光束干渉によるスリット回折格子状のパターンに加えて 4 光束や 6 光束の加工を施すことができる新たなレーザー加工光学系を開発し、様々な 2 次元格子状パターンを薄膜に施すことができた。さらに、薄膜試料を配置するステージに nm の分解能を有するピエゾモーターステージを導入することで、レーザー光の干渉縞だけでは実現できないパターンニングも自由に行えることができた。さらにこの技術を単層グラフェン膜に展開し、超短パルスレーザーを照射した際に生じる加工や構造変化の様子を系統的に調査した。その結果、80 nm 以下のナノ穴あけ加工を実証することに成功した。高分解能の透過電子顕微鏡を使ってレーザーを照射したグラフェンを観察したところ、グラフェン結晶中に原子レベルの欠陥や、直径数 nm の微小な穴が形成されていることが判明した。本研究によって、超短パルスレーザーの照射によりグラフェン結晶中に原子欠陥を導入する新手法を得ることができた。加えて、走査電子顕微鏡法を用いてレーザーを照射したグラフェン表面を詳細に観察したところ、レーザー照射領域ではコンタミネーションが有意に低減していることが明らかとなった。グラフェン膜は従来の表面洗浄手法では容易に破損してしまうのに対して、本研究で得られた知見は損傷の少ない表面洗浄法としての利用も期待できる。以下に具体的な事例を示す。

図 1 に本研究で用いた装置の概要を示す。反射型液晶空間光変調器 (LCOS-SLM) を用いてレーザー光を任意の本数に回折・分岐して、0 次と 2 次以上の回折光を取り除き、1 次回折光を薄膜上に集光し、干渉させた。本光学系を用いて厚さ 10 nm の SiN 薄膜に加工を施し、SEM で観察した結果を図 2 に示す。加工痕はそれぞれ SLM に読み込ませる位相パターンを変えて、(a)2 光束、(b)3 光束、(c)4 光束および(d)6 光束で加工を行ったものである。これらの加工痕の加工形状や加工周期は、位相パターンから計算した加工痕のシミュレーション結果に非常に近く、基本原理の検証に成功した。また、より薄い厚さ 5 nm の SiN 薄膜への加工にも成功した。

図 3. a はレーザーを照射していない自立グラフェンの TEM 像、b は四光束干渉による穴あけ加工を施したグラフェンの加工穴周囲の TEM 像、c は b における穴や欠陥を着色して示したものの、d は c の赤い枠部分を拡大したものである。フェムト秒レーザーを照射していないグラフェン膜は一樣に周期的な構造を維持しているのに対して、フェムト秒レーザーを照射したグラフェンには数 nm の穴(c の青い部分)や、1 nm に満たない原子レベルのコントラスト変化(c の橙色の部分)が確認できた。これらはいずれも FE-SEM による表面観察では確認できなかったものである。ラマン分光の結果と比較・検討すると、グラフェンの炭素原子間の距離が 0.142nm であることから、この原子レベルのコントラスト変化は、炭素原子が膜から数個離散して生じた欠陥であることが示唆される。そのため、FE-SEM で観察された加工穴は、この原子レベルの微小な欠陥が、レーザーパルスの繰り返し照射によって数 nm の穴となり、さらに SEM で分解できるサブミクロンスケールの大きさの加工穴にまで成長したものと推察される。

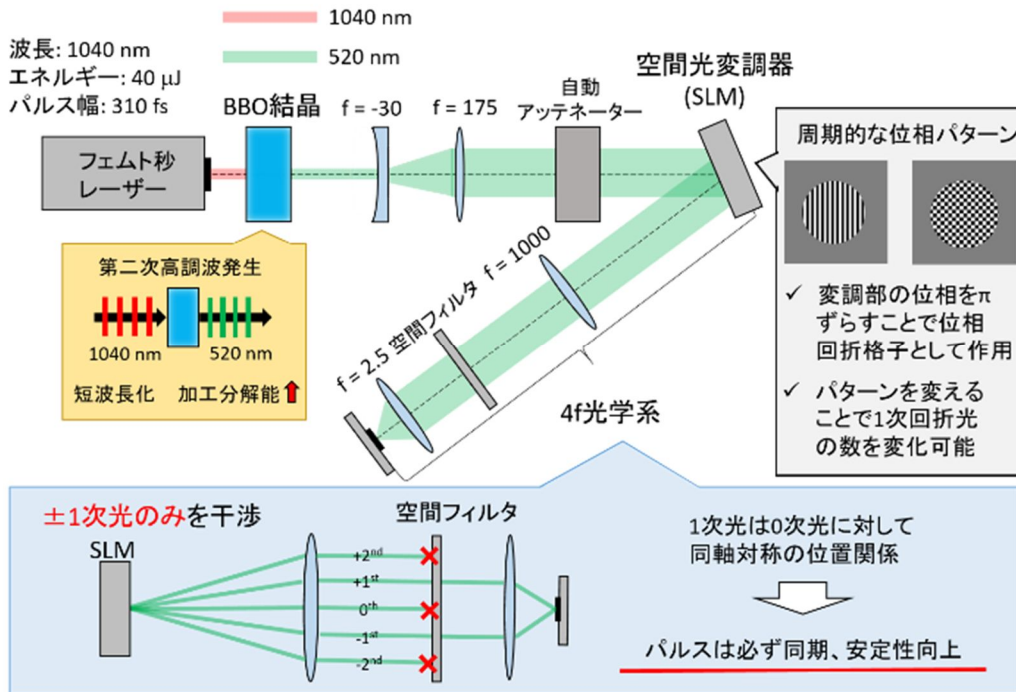


図 1. 構築した光学系の概略

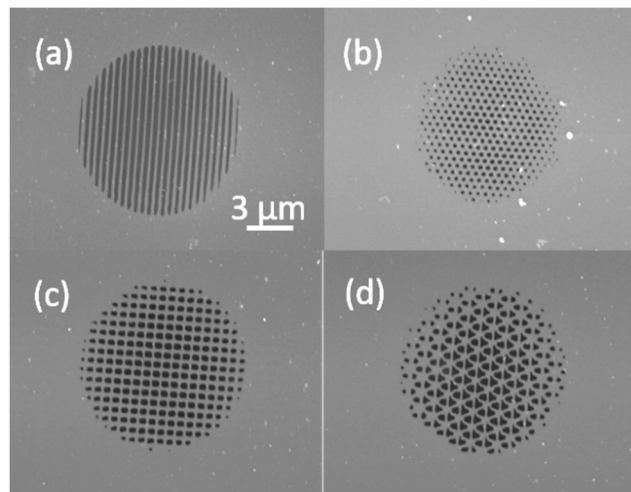


図 2. フェムト秒レーザーで加工を行った厚さ 10 nm の SiN 薄膜の SEM 像。(a) : 2 光束干渉による格子状加工(加工周期 520 nm)、(b) : 3 光束加工による六角格子状加工(加工周期 570 nm)、(c) : 4 光束加工による正方格子状加工(加工周期 700 nm)、(d) : 6 光束加工による花びら状の加工。

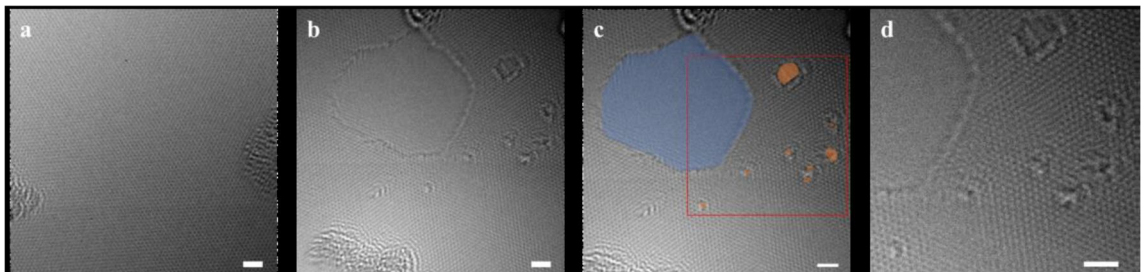


図 3. TEM/STEM による高分解観察の結果。a: レーザーを照射していないグラフェンの TEM 像。b: 四光束干渉加工したグラフェンの加工穴周囲のコンタミを除去した領域の TEM 像。c: 図 b におけるグラフェン膜の穴や欠陥を着色して示したもの。d: 図 c の赤で囲った領域の拡大図。スケールバーは全て 1 nm。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 6件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Uesugi Yuuki, Kozawa Yuichi, Sato Shunichi	4. 巻 16
2. 論文標題 Electron Round Lenses with Negative Spherical Aberration by a Tightly Focused Cylindrically Polarized Light Beam	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 L011002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevApplied.16.L011002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yuuki Uesugi, Yuichi Kozawa, Shunichi Sato	4. 巻 11647
2. 論文標題 Nanoprocessing of free-standing thin films by ultrafast laser ablation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proceedings of SPIE	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1117/12.2587393	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kozawa Yuichi, Sato Masaki, Uesugi Yuuki, Sato Shunichi	4. 巻 45
2. 論文標題 Laser microprocessing of metal surfaces using a tightly focused radially polarized beam	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 6234 ~ 6234
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.405852	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yuuki Uesugi, Ryota Fukushima, Yuichi Kozawa, and Shunichi Sato	4. 巻 28
2. 論文標題 Ultrafast laser ablation of 10-nm self-supporting membranes by two-beam interference processing	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 26200-26206
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.400941	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Naohiro Kadoguchi, Yuuki Uesugi, Makoto Nagasako, Testuro Kobayashi, Yuichi Kozawa, Shunichi Sato	4. 巻 -
2. 論文標題 Nanoprocessing of self-suspended monolayer graphene and defect formation by femtosecond-laser irradiation	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.3c00594	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yuuki Uesugi, Taito Miwa, Naohiro Kadoguchi, Yuichi Kozawa, Shunichi Sato	4. 巻 129
2. 論文標題 Multi beam ultrafast laser processing of free standing nanofilms	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics A	6. 最初と最後の頁 101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s00339-022-06361-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yuuki Uesugi, Yuichi Kozawa, and Shunichi Sato	4. 巻 24
2. 論文標題 Properties of electron lenses produced by ponderomotive potential with Bessel and Laguerre-Gaussian beams	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Optics	6. 最初と最後の頁 54013
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2040-8986/ac6524	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Yuuki Uesugi, Taito Miwa, Naohiro Kadoguchi, Yuichi Kozawa, Shunichi Sato, and Koh Saito
2. 発表標題 Toward the realization of innovative optical elements utilizing nanofilms and laser light in the field of electron microscopy and matter wave optics
3. 学会等名 ICMaSS 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 上杉 祐貴、小澤 祐市、佐藤 俊一
2. 発表標題 集束レーザー光を使った低速電子線向け電子レンズの提案
3. 学会等名 第18回日本加速器学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三輪 泰斗、門口 尚広、上杉 祐貴、小澤 祐市、佐藤 俊一
2. 発表標題 強く集光したベクトルビームを用いた金属表面へのダブルパルスアブレーション加工
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三輪 泰斗、門口 尚広、上杉 祐貴、小澤 祐市、佐藤 俊一
2. 発表標題 極薄膜の複数フェムト秒レーザー光束干渉加工
3. 学会等名 第76回応用物理学会東北支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 門口 尚広、三輪 泰斗、上杉 祐貴、小澤 祐市、佐藤 俊一
2. 発表標題 フェムト秒レーザーを用いた単層グラフェンの加工プロセスの開発
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 門口 尚広、三輪 泰斗、上杉 祐貴、小澤 祐市、佐藤 俊一
2. 発表標題 フェムト秒レーザーによる自立した単層グラフェン膜の加工
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuuki Uesugi, Ryota Fukushima, Yuichi Kozawa, Shunichi Sato
2. 発表標題 Single-shot interference processing of ultrathin plates by femtosecond laser
3. 学会等名 21st International Symposium on Laser Precision Microfabrication (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuuki Uesugi, Yuichi Kozawa, Shunichi Sato
2. 発表標題 Nanoprocessing of free-standing thin films by ultrafast laser ablation
3. 学会等名 Photonics West 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------