

令和 5 年 5 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K12494

研究課題名（和文）自由電子レーザーを用いた軟X線領域における物質改変の内殻電子の影響に関する研究

研究課題名（英文）Influence of inner shell electron on material processing by soft X-ray free electron laser

研究代表者

坂上 和之（Sakaue, Kazuyuki）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・准教授

研究者番号：80546333

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題では、従来より微細なレーザー直接加工を可能とする軟X線レーザーによる加工に取り組んだ。従来のレーザー光と比べて10倍以上高い光子エネルギーの光を用いることから、その加工の物理過程を調べた。シリコン、サファイヤ、ダイヤモンドなど様々な対象に対してサブマイクロメートルスケールのレーザー直接微細加工を実現した。加工メカニズムとしても、内殻電子による吸収の影響が加工後の物質の構造を決めることや、光イオン化エネルギーや物質の結合エネルギーとの関係などにより、物質表面で起こる加工の過程が異なることが確認でき、新たな加工としての軟X線加工を拓いた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題における上記の成果は、軟X線レーザーによる加工の原理をすべて理解するにはもちろん至らないものの、その一部を明らかにした。従来のレーザーでは到達困難なサブマイクロメートルスケールの直接微細加工を実現し、見出した軟X線レーザー加工のユニークな特徴は、今後より微細化が進むレーザー加工技術開発において、重要な知見となる。これらの成果より次世代のレーザー直接微細加工の基盤を確立することができたといえる。今後この基盤を活用し、軟X線レーザーによる加工のメカニズムに関する研究や特徴的な加工の抽出に取り組んでいく。

研究成果の概要（英文）：In this project, we worked on processing using a soft x-ray laser, which enables direct laser processing more precisely than conventional lasers. Since the photon energy of the laser light is 10 times higher than that of conventional laser light, the physical process of the processing was investigated. Laser direct micro-processing on the sub-micrometer scale was achieved on various targets such as silicon, sapphire, and diamond. As a processing mechanism, it was confirmed that the effect of absorption by inner-shell electrons determines the structure of the material after laser irradiation and that the processing mechanism on the material surface differs depending on the relationship between the photoionization energy and the binding energy. These achievements open up soft X-ray processing as a new laser processing.

研究分野：量子ビーム科学

キーワード：軟X線レーザー レーザー加工 光・物質相互作用

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) レーザーによる物質の改変・加工はレーザーの波長やパルス幅、物質の特性などによって非常に多彩に変化する。物質の改変は光のエネルギーを物質に伝えることによって可能となることから、物質において吸収が大きな光の波長を選定することが望ましい。一方で、パルス幅に関して考えると、物質における光の吸収は物質中の電子によって行われ、そのエネルギーが格子に伝わることで熱となる。このとき電子から格子等への熱伝導に要する時間よりも短いパルス幅(一般に ps 以下)のレーザーを用いることによって、熱影響を低減し、高品位な加工が可能となる。

(2) 物質による吸収が非常に強い波長帯としては、軟 X 線～極端紫外光(波長 124nm~0.1nm)が挙げられる。その特性上、非常に生成しにくい波長帯ではあるが、近年の自由電子レーザー(FEL)技術・高次高調波発生(HHG)技術の発展により、物質の改変に用いることが可能なほど高強度なパルスが得られるようになってきている。さらにこれらの技術によって生成される軟 X 線ビームはその原理から ps 以下の極短パルス性を有するため、非常に効率のかつ高品位な加工が期待できる。

(3) 軟 X 線ビームによる加工は近年の光源の進展とともに研究に着手され始めたという状況である。このような先進的な量子ビーム光源を用いて、世界に先駆けて軟 X 線と物質の相互作用を研究し明らかにすることは非常に重要であり、短波長・短パルス光源による加工を世界でリードできる基盤を築くことが可能である。

2. 研究の目的

本研究は、先端的量子ビームを用いた加工の評価を行うとともに、軟 X 線領域の特筆的な特徴である“内殻励起”に着目し、軟 X 線ビームと物質の相互作用を明らかにし、その高度利用を開拓することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 本研究は、主として軟 X 線自由電子レーザー(FEL) (SACLA BL-1 (RIKEN 播磨))を用いて行った。ニッケル等の金属で精密に製作された反射ミラーによって収束し、物質に照射することでレーザーによる直接微細加工を行う。FEL においては、電子ビームやアンジュレータを調整することによって波長が可変であり、特に軟 X 線領域に吸収端を持つシリコン(100eV)やアルミニウム(72eV)およびその化合物を対象に研究を実施する。

(2) 波長(Photon energy)としては 10%未満しか変化しないが、吸収端をまったく 2 つの波長で物質の加工を実施する。吸収端前後における吸収長の大きな変化にともない、照射痕自身の形状や痕近傍の物質の構造に大きく違いが現れるため、原子間力顕微鏡やレーザー顕微鏡、透過型電子顕微鏡などを駆使して、その構造変化や構造変化層の厚さなどを詳細に計測・評価した。これにより照射における熱影響の大きさや改変のプロセス、加工の品質を議論する。対象物質としては、シリコンやシリコンの化合物(SiC/SiO₂ など)、アルミニウムとその化合物(Al₂O₃(サファイヤ・アルミナ)、AlN)、難加工材料としてのダイヤモンドに対して軟 X 線による加工を実施した。

4. 研究成果

(1) 軟 X 線自由電子レーザーを回転楕円集光ミラーで集光することによって、1 マイクロメートル以下の微細な集光スポットを実現し、これを用いて加工を実施することによって、サブマイクロメートルの微細加工が実現できることを確認した。

(2) シリコンの内殻電子の光吸収端の上下にあたる 92eV と 120eV での加工の違いに関して観察した。加工の対象としては、100eV に吸収端を持つシリコン及びそれを含む化合物として、ガラスを対象とした。それぞれシリコンの吸収端のエネルギーの前後にあたる 92eV 及び 120eV の光子エネルギーのレーザーを用いて加工を行い、その加工形状や加工性等の変化を調査した。92eV と 120eV での加工の違いについて加工後の結晶構造などを観察して詳細に議論し、光の侵入長、つまり内殻電子による吸収が、レーザー照射時に物質に与える構造変化を決定していることを見出した。図 1 に各エネルギーで照射した際のシリコン表面に生成した加工痕のレーザー顕微鏡像を示した。92eV(波長 13.5nm)の照射時には白く見える領域が観察されるが、120eV(波長 10.3nm)の照射時には観察されないことがわかる。これはシリコンが加工された後、構造がアモルファスとなるか再結晶化するかという照射後の構造がレーザー侵入深さで決定されていることを示している。

(3) 金属アルミニウム、サファイアなどの Al を中心とした材料においては、光イオン化エネルギーや物質の結合エネルギーとの関係などにより、物質表面で起こる加工の過程が異なることが確認され始めており新たな知見が得られている。今後詳細な評価・解析を行っていく。

(4) 難加工材料としてのダイヤモンドに対してもサブマイクロメートルの微細加工を実現し、通常の赤外や可視のレーザー光と比較して約 1 桁小さいエネルギーで加工できることを確認した。(図2) 一般にレーザー加工で用いられているレーザー光では、加工のために多くのエネルギーが必要(10J/cm²程度)であるが、物質に吸収されやすい軟X線領域の光を用いることで、これを300mJ/cm²まで低減でき、効率的に加工できることがわかる。これによって、軟X線による加工の優位性を示すことができた。加工結果としては、通常のレーザー光と同様に加工部の炭化などが確認されており、同様の過程で加工が進んでいることが示唆された。

(5) 本研究課題におけるこれらの成果は、軟X線レーザーによる加工の原理をすべて理解するにはもちろん至らないものの、その一部を明らかにし、そのユニークな特徴を示すとともに、従来のレーザーでは困難な微細加工を実証した。これらの成果より次世代のレーザー直接微細加工の基盤を確立することができたといえる。今後もこの基盤を活用し、軟X線レーザーによる加工のメカニズムに関する研究や特徴的な加工の抽出に取り組んでいく。

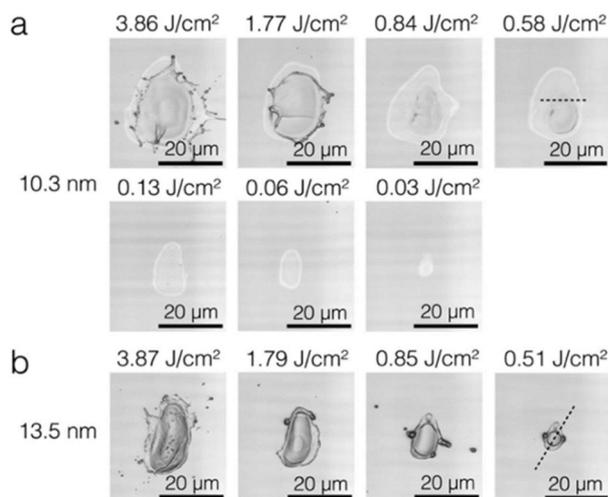


図1：シリコンに対する92eV(13.5nm)/120eV(10.3nm)軟X線による加工結果

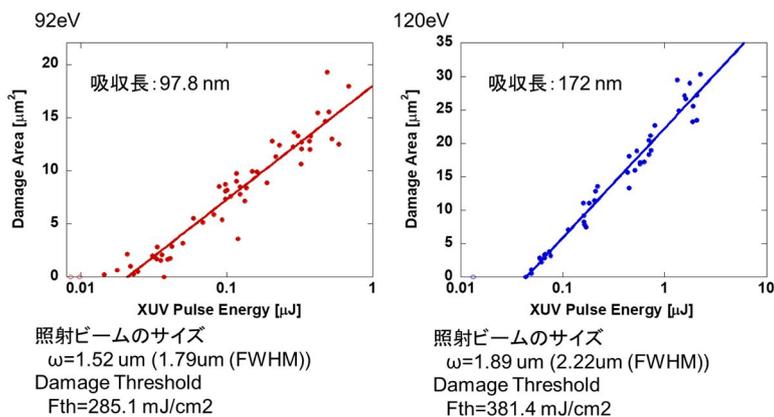


図2：難加工材料としてのダイヤモンドのレーザー直接微細加工閾値の測定

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Shibuya Tatsunori, Sakaue Kazuyuki, Ogawa Hiroshi, Satoh Daisuke, Dinh Thanh-Hung, Ishino Masahiko, Tanaka Masahito, Washio Masakazu, Higashiguchi Takeshi, Nishikino Masaharu, Kon Akira, Kubota Yuya, Inubushi Yuichi, Owada Shigeki, Kobayashi Yohei, Kuroda Ryunosuke	4. 巻 29
2. 論文標題 Independent contribution of optical attenuation length in ultrafast laser-induced structural change	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 33121 ~ 33121
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.432130	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 Shibuya T., Sakaue K., Ogawa H., Dinh T.-H., Satoh D., Terasawa E., Washio M., Tanaka M., Higashiguchi T., Ishino M., Kubota Y., Inubushi Y., Owada S., Nishikino M., Kobayashi Y., Kuroda R.	4. 巻 59
2. 論文標題 Ablation threshold and crater morphology of amorphous and crystalline SiO ₂ glass for extreme ultraviolet femtosecond pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 122004 ~ 122004
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abc85a	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 Sakaue Kazuyuki, Motoyama Hiroto, Hayashi Ryosuke, Iwasaki Atsushi, Mimura Hidekazu, Yamanouchi Kaoru, Shibuya Tatsunori, Ishino Masahiko, Dinh Thanh-Hung, Ogawa Hiroshi, Higashiguchi Takeshi, Nishikino Masaharu, Kuroda Ryunosuke	4. 巻 45
2. 論文標題 Surface processing of PMMA and metal nano-particle resist by sub-micrometer focusing of coherent extreme ultraviolet high-order harmonics pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 2926 ~ 2926
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/ol.392695	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0件

〔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
---------	---------