

令和元年6月26日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2017～2018

課題番号：17K18989

研究課題名（和文）自由電子レーザーによるLIPSS発現の研究

研究課題名（英文）Study on LIPSS generation by free electron laser

研究代表者

入澤 明典 (Irizawa, Akinori)

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：90362756

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,500,000円

研究成果の概要（和文）：テラヘルツ・遠赤外自由電子レーザー（THz-FIR FEL; Terahertz-Far infrared Free Electron Laser）を用いて、Si半導体表面に回折限界を大きく超える（波長の1/25）超微細構造（LIPSS; Laser Induced Periodic Surface Structure）を作成し、そのサイズを制御することに成功した。LIPSSの間隔はTHz-FIR FELの波長、照射強度、照射パルス数に依存し、特に照射パルス数とLIPSS間隔の間にべき乗則が成り立つことを発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

一般に、光学的手法による材料加工では波長程度の加工精度が限界であるが（回折限界）、本研究は新しいデバイス作成・加工技術の展開につながる可能性を持ち、新しい機能性物質の創成に貢献する発見である。また、基礎物理学としても、物質へのレーザー照射によるこの超微細構造発生を自己組織化臨界現象という観点から説明・理解することにより、その生成メカニズムに関する貴重な情報を得ることに成功した。

研究成果の概要（英文）：Using a terahertz and far infrared free electron laser, we succeeded in controlling the size of the ultrafine structure (LIPSS; Laser Induced Periodic Surface Structure) far beyond the diffraction limit (1/25 of the wavelength) on a semiconductor Si surface. We found that the interval of LIPSS depends on the wavelength, the irradiation intensity and the number of irradiation pulses of THz-FIR FEL, in particular, the power law holds between the number of irradiation pulses and the LIPSS interval.

研究分野：放射光による固体物性研究

キーワード：放射光 自由電子レーザー 半導体 非線形効果 テラヘルツ 赤外

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

#### <THz FEL>

遠赤外(低エネルギー光子)・テラヘルツ(高周波電磁波)領域はいわゆる光と電波の境界にあたりそれぞれの特徴を合わせ持った領域である。研究代表者はこの領域での超伝導物質や強相関物質の光学応答による物性研究を専門とし、分光測定に有利な強力な光源としての THz FEL における光源安定性や波長操作性の向上と同時に、大強度コヒーレント遠赤外線・テラヘルツ波を用いた全く新しい利用研究分野の開拓を計画した。

#### <半導体非線形応答>

その過程でいくつか見つかった光と物質の新しい相互作用が、半導体非線形応答と LIPSS 発現である。通常 10meV 程度の光子では到達不可能な 1eV 以上のバンドギャップ(半導体 Si)を超える電子励起が THz FEL により可能であることを発見した。この様な大強度コヒーレントテラヘルツ波特有の非線形な電子励起現象を研究している過程で、損傷閾値を超えて光入力を行ってしまった際に偶然見つかったのが回折限界を大きく超えた表面超微細構造である LIPSS (Laser Induced Periodic Surface Structure) の発現である。LIPSS 自体は近赤外レーザーが発明された後 1960 年代にはすでに発見されており、1990 年代のフェムト秒(fs)レーザーの完成とともに極短パルスのレーザーという条件の下で LIPSS が生成しやすいということから、現在に至るまで研究が盛んに行われてきた。この現象はレーザー加工の分野で波長以下の微細構造を作成する新しい技術として、材料表面の光学特性や撥水性能制御、光加工による微細なデバイス作成を視野に入れた応用面で注目されている。本研究で取り上げる THz FEL による LIPSS は我々により初めて発見された。これまで近赤外レーザーで見つかっている主たる LIPSS 構造が波長に対する比率 $\sim 0.4$ で電場方向に垂直であるのに対し、THz FEL による LIPSS 間隔はこれを大きく超える $\sim 0.04$ という超微細構造で電場に平行であった。これは従来のプラズモン励起や高調波を起源とする LIPSS 発現機構説では説明不可能であり、これまで行われてこなかった様々な波長での研究を試み、それに基づく理論形成を新たに挑戦する研究であった。

### 2. 研究の目的

本計画は半導体表面へのレーザー照射によって発現する LIPSS について、従来の近赤外域の fs レーザー(波長: $\sim 800\text{nm}$ )とは大きく異なる遠赤外・THz 領域(波長: $50\sim 100\mu\text{m}$ )および中赤外域(MIR)(波長: $5\sim 14\mu\text{m}$ )の FEL を用いて研究を行い、結果の相違点、類似点、および規則性を調べ、この現象について物理的理解を深めることを目的とし、広い波長域に渡って固体表面での波長限界を大きく超えた周期構造作成とその制御を目指した。THz FEL での実験と並行してこれまで実施されたことのない MIR FEL を用いての実験を行い、異なる波長域での LIPSS 発現に関する新たな結果を得ることで、近赤外から遠赤外までの広い波長域での LIPSS 形成に関する研究結果を集約し、新しい理論、もしくは従来の理論を発展させたものを構築し、将来的には x 線領域の FEL を用いた超微細 LIPSS 発現の実験も視野に入れて、様々な固体表面で、様々な波長のレーザーを用いての LIPSS 形成とその制御に関する新しい研究分野を開拓することを目的とした。

### 3. 研究の方法

THz FEL による LIPSS を基点に MIR FEL も利用し、広い波長域で系統的に波長、強度、パルス数、パルス間隔、偏光方向を変えた照射実験を様々な半導体試料に対して行い、従来から知られている fs レーザーによる LIPSS 発現現象との関連を明らかにすることで、レーザー光と固体表面の相互作用についての幅広い新しい物理的知見を得る方法で行った。LIPSS 形成の手順は、まず z スキャン法を用いてレーザー強度と対象試料の吸収応答を計測することから始めた。Z スキャン法は照射光を集光しておき、その光軸(z 軸)に平行に試料を移動させることで焦点近傍の光密度の大きな領域において物質が非線形な応答を示すことを調べる手法で、最大集光点を精密に割り出すことが可能である。非線形応答の閾値を求める際にはこの様にして求めた焦点位置に試料を固定し、ワイヤーグリッドにより光強度の変調を行った。THz FEL は直線偏光のため、ワイヤーグリッドの角度により光強度を精密に連続可変することができる。これにより、非線形応答の閾値、LIPSS 発現、およびアブレーションの閾値を精密に割り出すことが可能となった。集光には光強度の減衰のない軸外し放物面鏡を用いた。また、FEL のパルスごとの強度揺らぎを精密にモニターするため THz FEL の一部をビームスプリッターで取り出し、パルスごとに強度モニターすることで測定精度を向上した。これらのセッティングの元で FEL の光強度に加え、波長、パルス数、パルス間隔、偏光方向、などを精密に制御した。試料作成にはコンピュータ制御のステージを用いて制作したラスタースキャン法によるイメージング装



図1 焦点位置での試料のXY位置自動制御の様式図と実際に照射条件を変えながら $500\mu\text{m}$ の間隔で自動照射した試料(Siウエハ)

置の機構を改良し、それぞれ条件を変えながらパルス毎に一定間隔で試料上に LIPSS が作成されるようコンピュータ制御することで系統的におこなった(図1)。出来た LIPSS 試料は、実体顕微鏡での観測・撮影をおこない、画像解析により LIPSS 間隔の精密な解析を行った。

#### 4. 研究成果

照射に用いた ISIR THz FEL のマクロパルス周波数は 5Hz、波長  $80\mu\text{m}$  のとき最大強度  $10\text{mJ}$  程度である。軸外し放物面鏡を含む光学集光系を用いることで直径  $150\mu\text{m}$  程度まで集光することが可能であった。ミクロパルス幅は自己相関方により約  $20\text{ps}$  とわかっている。これにより、最大電場強度は  $10\text{MV/cm}$  に及び、この強集光状態に半導体試料 Si を設置すると、その表面に LIPSS が系統的に形成されることがわかった。

その構造のサイズ(縞の間隔)および形成される方向は、照射した自由電子レーザーの偏光方向に依存し、単なる熱励起現象だけでは説明できないことがわかる。波長および光強度に依存することを確認し、特に照射パルス数によってサイズがコントロールできることがわかり、その照射パルス数と LIPSS 間隔の間にべき乗則が成り立つことを発見した。図2に示すようにパルス照射回数によってこの微細構造は変化し、対数-対数プロットにおいて線形関係が見られた。これは一般的に自己組織化による散逸構造においてしばしば見られる関係性であり、LIPSS 構造発生が自己組織化臨界現象の一種である可能性を示唆する。これまでの近赤外 fs レーザーでの実験結果についてもデータの再解釈を行うことにより同様のべき乗則が見られており、LIPSS 構造発現が物質や波長によらず共通に見られるスケールリング則に乗っ取った現象である可能性を提唱した。これは自己組織化臨界現象という観点からレーザー誘起の LIPSS 構造形成を説明することが可能であることを示唆し、物質、照射レーザー条件によらない総合的な理解と XFEL による LIPSS 生成なども含めた新たな展開に一歩近づく発見となった。

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

1. A. Irizawa, S. Suga, T. Nagashima, A. Higashiya, M. Hashida, and S. Sakabe, Appl. Phys. Lett. 111, 251602 (2017). DOI:10.1063/1.5006014 (査読有)

〔学会発表〕(計 14 件)

(国内学会 6 件)

1. 入澤明典「THz-FEL を用いた物性研究」第 25 回 FEL と High-Power Radiation 研究会、兵庫、2019/2 (口頭)
2. 入澤明典、菅滋正、長島健、東谷篤志、橋田昌樹、阪部周二「ISIR THz-FEL を用いた物質制御」第 32 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、福岡、2019/1 (口頭)
3. 入澤明典、菅滋正、長島健、東谷篤志、橋田昌樹、阪部周二「遠赤外テラヘルツ領域の自由電子レーザーによる半導体非線形応答」日本物理学会 第 73 回年次大会、東京、2018/3 (口頭)
4. 入澤明典「赤外領域の FEL を用いた固体物性研究」第 24 回 FEL と High Power Radiation 研究会、京都、2018/2 (口頭)
5. 入澤明典、菅滋正、長島健、東谷篤志、橋田昌樹、阪部周二「ISIR THz-FEL を用いた物質の非線形応答」第 31 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2018/1 (口頭)
6. 入澤明典「赤外自由電子レーザーによる物質科学の新展開」ビーム物理研究会 2017、名古屋、2017/11 (口頭)

(国際会議 8 件)

1. A. Irizawa: "Lase Induced Fine Structure on Si by THz-FEL Irradiation",

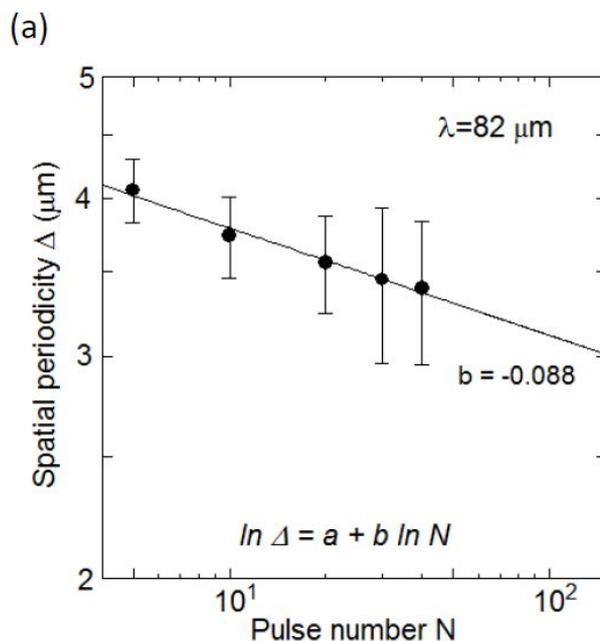


図2 照射パルス数に対する LIPSS 間隔の変化。べき乗則に従って間隔が減少していることが分かる。

- International Conference on Low-Energy Electrodynamics in Solids (IRMMW-TH z 2018), Nagoya, Japan, 2018/9 (oral)
2. A. Irizawa: “Novel Responses of Solids by Terahertz Free Electron Laser”, International Conference on Low-Energy Electrodynamics in Solids (Channeling2018), Ischia, Italy, 2018/9 (invited)
  3. A. Irizawa: “Nonlinear phenomena on semiconductors by THz-FEL irradiation”, International Conference on Low-Energy Electrodynamics in Solids (LEES 2018), Ancona, Italy, 2018/6 (invited)
  4. A. Irizawa: “Nonlinear Phenomena on Solids by Using THz-FEL”, 6th International Conference on Superconductivity and Magnetism (ICSM2018), Antalya, Turkey, 2018/5 (invited)
  5. A. Irizawa: “Nonlinear phenomena by intense THz wave from free electron laser”, Seminar Industriali 2018 - THz per Applicazioni Scientifiche e Trasferimento Tecnologico, Rome, Italy, 2018/4 (invited)
  6. A. Irizawa: “Applications of THz-FIR radiation sources”, 2nd International workshop on CSR and free electron lasers from ultra short bunch electron beam, Sendai, Japan, 2017/9 (oral)
  7. A. Irizawa: “Development of solid state physics by using FEL”, The 8th International Symposium of Advanced Energy Science, Kyoto, Japan, 2017/9 (invited)
  8. Akinori Irizawa, Masaki Fujimoto, Keigo Kawase, Takeshi Nagashima, Atushi Higashiya: “Synchronous 2D scanning on materials using pulsed THz-FEL”, Workshop on Infrared Microscopy and Spectroscopy using Accelerator-based Sources (WIRMS2017), Oxford, UK, 2017/9 (oral)

〔図書〕(計 2件)

1. 入澤明典「大阪大学 ISIR THz-FEL の開発と利用研究」日本赤外線学会誌 (特集 赤外線に関連した共同利用施設) 28(1) (2018) 5-14.
2. 全炳俊, 清紀弘, 入澤明典, 加藤政博「電子加速器によるテラヘルツ波の発生」化学工業 (特集 新しいテラヘルツ科学の展望) 68(3) (2017) 12-17.

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0件)

取得状況 (計 0件)

〔その他〕

ホームページ

<https://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/as/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 長島 健

ローマ字氏名: Nagashima Takeshi

所属研究機関名: 摂南大学

部局名: 理工学部

職名: 教授

研究者番号 (8桁): 60332748

(2) 連携研究者

連携研究者氏名: 築山 光一

ローマ字氏名: tsukiyama Kouichi

所属研究機関名: 東京理科大学

部局名: 理学部第一部

職名: 教授

研究者番号 (8桁): 20188519

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。