

課題番号 :2019A-E11

利用課題名(日本語) :レーザー照射回収試料の X 線回折診断
Program Title (English) :X-ray diffraction diagnosis of laser-irradiation recovered samples
利用者名(日本語) :尾崎 典雅¹⁾, 寒河江 大輔¹⁾, 瀬戸 雄介²⁾, 小倉 広之¹⁾, 上林 大介¹⁾, 片桐 健登¹⁾, 兒玉 了祐¹⁾, 宮西 宏併^{1,3)}, 奈良 康永⁴⁾, 宮川 鈴衣奈⁵⁾
Username (English) :N. Ozaki^{1,2)}, D. Sagae¹⁾, Y. Seto³⁾, H. Ogura¹⁾, D. Kamibayashi¹⁾, K. Katagiri¹⁾, R. Kodama^{1,2)}, K. Miyanishi^{1,4)}, Y. Nara⁵⁾, and R. Miyagawa⁶⁾
所属名(日本語) :1) 大阪大学, 2) 神戸大学, 3) 理研, 4) 浜松ホトニクス株式会社, 5) 名古屋工業大学
Affiliation (English) :1) Osaka University, 2) Kobe University, 3) RIKEN, 4) Hamamatsu Photonics K.K., 5) Nagoya Institute of Technology

キーワード: 超高速ショック圧縮、フェムト秒レーザー、新物質新構造、凍結プロセス、シリコン

1. 概要 (Summary)

先行研究に比べてレーザー強度やパルス幅などの条件を変化させて作成したシリコン試料に対して、放射光からの高エネルギー X 線を用いた透過 X 線回折分析を行った。その結果、シリコンの準安定相である bt8、m32 由来と考えられる複数の回折スポットを観測した。レーザーを試料内部に集光した条件での結果と比較検討するための予備実験も実施した。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

2.1 研究目的

シリコンは、数 10 万気圧程度の圧力を印加することにより β 錫構造 (Si-II) や単純六方構造 (Si-V) をはじめとする高压構造に相変化する。また、圧力を開放することにより、R8 (Si-XII) や BC8 (Si-III) などの準安定状態の構造が常温常圧に残存することが知られている[1]。ダイヤモンドアンビルセル (DAC) 装置などを用いた静的圧縮法に比べ、パルスレーザーを用いた動的圧縮法では、圧力や温度の立ち上がりや立ち下りの時間を極端に短くすることができる。とりわけ、フェムト秒レーザーによる動的圧縮を用いれば、常温常圧では残存しないシリコン同素体を残存させられる可能性がある。実際にフェムト秒レーザーを大気中でシリコン単結晶に照射して、高压構造である β 錫構造 (Si-II)、Imma 構造 (Si-XI) および単純六方構造 (Si-V) の残存の報告例がある[2,3]。本研究では、これらの結果の再現性、レーザー照射条件を変えることで実験的に未確認の相の生成、高压構造や準安定構造の残存メカニズムを検討することを目的に実験を実施した。

2.2 フェムト秒レーザー圧縮試料

4 mm 角に切り出した単結晶シリコン試料 (100 面カット) に、チタンサファイアシステムからのフェムト秒レーザーパルスを集光照射し衝撃圧力を加えた後、回収した。最大レーザー出力は約 1 J であった。レーザー光の波長は 800 nm、パルス幅は 25 fs で、集光スポットサイズは $15 \times 12 \mu\text{m}^2$ 、得られた最大エネルギー密度は $1 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ であった。本研究では、試料表面の損傷が比較的小さい $1 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ 、 $1.4 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ について実験を実施した。レーザーパルスの強度コントラストは、偏光回転波発生法を用いて 11 桁までパルスクリーニングした。またこれまでの研究とは異なり、圧力 0.1 Pa 以下まで真空排気したターゲットチャンバー内で照射を行うことで、エアブレークダウンによるレーザーパルスのエネルギー損失や、回収試料における不純物混入に関する問題を回避した。

2.3 X 線回折測定条件

BL22XU ラインに光学系を構築し、透過 X 線回折実験を行った。光子エネルギー 30 keV の X 線を、スリットを用いてターゲット上で約 $20 \mu\text{m}$ のビームとした。試料からの回折 X 線は 2 次元 X 線検出器 (Pilatus 3R 300K) で検出した。試料から検出器までの距離は 242.488 mm であり、検出器 1 ピクセル当たりの分解能は $\pm 0.02^\circ$ であった。試料を $\pm 5^\circ$ 程度まで回転させることで、結晶格子面に対して X 線入射角を変化させたデータも収集した。試料に対して 2 方向からの監視系を独自に設置し、信号検出位置の信頼性と再現性を向上させた。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

本研究で得られた典型的な X 線回折画像を図 1 および図 2 に示す。それぞれの図における黄色の実線は、計算で求めたシリコン母相 (Si-I) における粉末 X 線回折線の位置を表している。図の下側が低角側、上側が高角側であり、黄色の線に沿った方向が方位角方向である。得られた各回折信号に対して回折角 2θ を読み取り、計算および実験で報告されている様々な構造の結晶データから算出した 2θ を比較することで、回折点の由来となる相の同定を行った。なお本実験における角度分解能は $\pm 0.02^\circ$ であり、この範囲内で他の相と混同しない相のみを“同定”とした。図 1 に示したパターンには、シリコンの準安定相である bt8(004)、m32(211)由来と考えられる回折スポットが見られる。結晶データより算出した bt8(116)、m32(530)の 2θ はそれぞれ、 22.510° 、 22.364° であり、いずれも観測された 2θ と分解能の範囲内でよく一致して

いる。

一方、図 2 は同じ測定条件で、異なる試料を観察した結果であるが、明らかに図 1 の回折角とは異なる信号が広角側に検出されていることがわかった。すなわち、残存する準安定構造はレーザー照射条件に強く依存することが示唆されている。本研究のように、一桁程度エネルギー密度を変化させた場合には、到達ピーク圧力が大きく異なるので、衝撃圧縮下で形成された高圧相(または準安定相)、およびその状態からの解放過程におけるシーケンスも大きく異なることを意味していると考えられる。しかしながら、どちらにしても単結晶のシリコン母相のスポット状ピークを取り囲むようにして回折スポットが出ていることから、単結晶シリコンと格子面関係のある準安定構造が高速急冷の結果残存していることが暗示されている。

今後は得られた準安定構造に関するピークと母相との関係を検討することで、圧縮過程はもちろん凍結過程における格

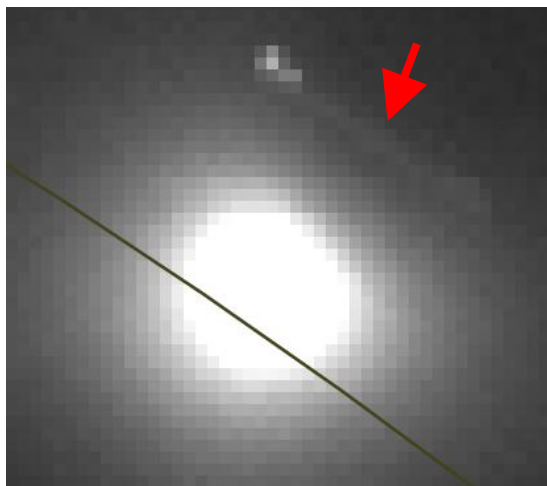
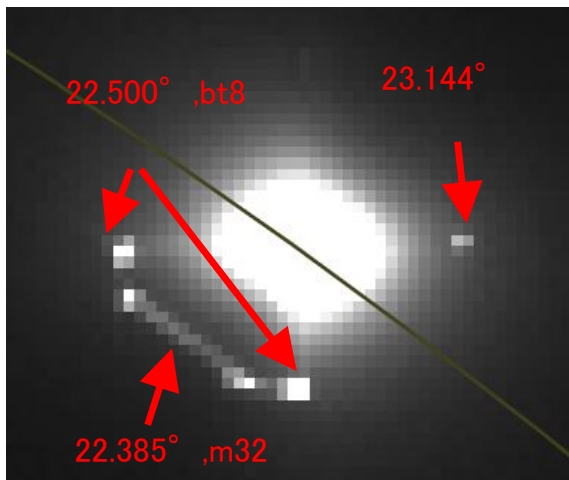
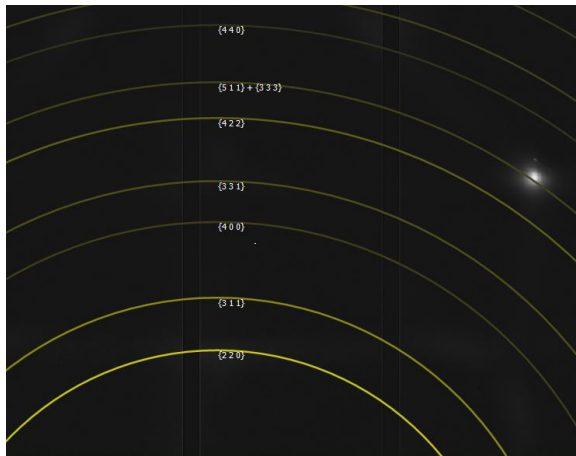
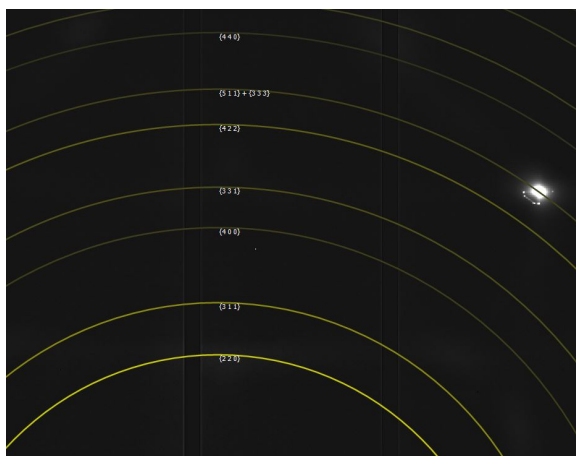


図 1. $1 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ のエネルギー強度で照射されたシリコン回収試料の X 線回折画像 (上は全体、下は 511 回折スポット周辺の拡大図)。

図 2. $1.7 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ のエネルギー強度で照射されたシリコン回収試料の X 線回折画像 (拡大した回折スポットは図 1 と同じ)。

子のダイナミクス、および凍結メカニズムを明らかにしていく予定である。

グラム(Q-LEAP)JPMXS0118067246、および株式会社コンポ
ン研究所の支援のもと進められました。

4. その他・特記事項 (Others)

4.1 参考文献

- [1] Wippermann *et al.*, Appl. Phys. Rev. 3, 040807 (2016).
- [2] Tsujino *et al.*, Rev. Laser Eng. Suppl. 2008, 1218 (2008).
- [3] 辻野他、レーザー加工学会誌 19, 54, (2012).
- [4] Wang *et.al.*, Phys. Rev. Lett. 110, 165503 (2013).

4.2 謝辞

本研究は、文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププロ