

# 超短パルス非回折ビームを用いた高アスペクト加工の研究

学籍番号 1833008 氏名 飯田 浩祐

## 1. はじめに

現在、細菌、細胞をトラップするナノデバイス作成やマイクロ流体デバイスなど多くの場面でマイクロ、ナノオーダーの高アスペクト比(穴深さ/穴径)加工が求められている。

加工対象をガラスとしたとき、フェムト秒パルスレーザーによる穴加工では、非線形光学吸収過程により光学スポット径よりも小さい直径の加工が得られる。最小加工直径はイオンビームミリングや電子ビームリソグラフィなどさらに小さいものがある。しかし、これら手法では、高いアスペクト比の加工は困難であり、いわゆる細長い穴はあけにくい。一方、通常のガウス型回折レーザーでは、そのレイリー長が口径の縮小により減少し、やはり高アスペクト比加工には、ならない。これを打開する手法として、自己収束効果を使った長いフィラメント化も行われているが、この手法では強い非線形を引き起こす高いレーザー強度が必要で、実際の加工応用の要求には適応できない問題があった。最近、この制限を打開する手法として非回折ビームであるベッセルビームを用いることで、レイリー長の制約を回避することが可能なことが示された。[1]

そこで本研究では、この手法を発展させ、より高いアスペクト比加工の手法を開発することを目的とした。

## 2. レーザー加工の定性的特徴

レーザー光を材料に集光した際の照射部の温度上昇の程度と過程がレーザー加工においては重要である。材料ごとに物理的、化学的な照射領域における励起過程は異なるがレーザーのエネルギーが熱エネルギーに変換されることには変わりなくこれが加工の前駆過程となる。この過程は使用されるレーザーにも大きく左右される[1]。

たとえば連続発振: CW レーザーの場合、材料に対して連続的にエネルギーが供給され電子が基底状態から励起状態へ遷移する。その後光などを発せず基底状態に戻り格子振動による熱エネルギー変換される温度上昇が起こる。レーザー出力が高いと照射部周辺の熔融、蒸発などが起こり加工される。

一方でパルス発振型のレーザーの場合パルス幅がマイクロ秒～サブマイクロ秒領域のレーザーの場合は CW 発振の場合と同様の熱的過程が支配的となる。しかし、フェムト秒レーザーパルスを用いた加工では図 1 のような電子—イオンの緩和過程を経ており、イオンの衝突緩和時間よりもパルス幅が短いのでレーザー光が照射されると、初期段階では電子のみ

が励起され定常状態のイオン温度よりもはるかに高い電子温度となる。この状態を経て励起された高いエネルギーを持つ電子はエネルギー緩和時間を経てイオンへの急速なエネルギー緩和が起こる。これにより CW レーザー加工のような熱拡散を抑制することが出来る。

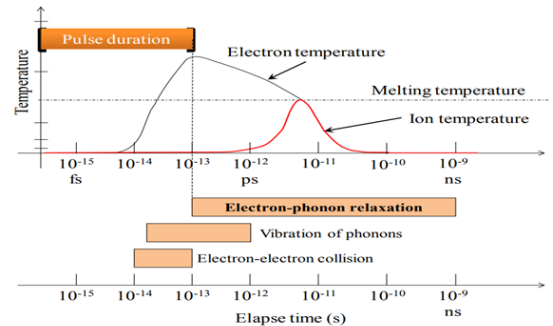


図 1. 超短パルスレーザー(100fs)加工による励起と緩和時間プロセス

本実験においては材料がガラスであるため、フェムト秒パルスレーザーを自由電子を保有しない石英ガラスなどの誘電体に照射した場合、レーザーと物質との相互作用の初期段階において、レーザー光による強電場により多光子吸収が生じ、自由電子が生じる。この自由電子はレーザー光による強電場を受け、逆制動放射により、加速し運動エネルギーを得て、別の束縛電子に衝突をする。この過程を繰り返すことにより、雪崩崩壊(アバランシュ衝突過程)に自由電子が急速に増加する。この結果、初期段階に生成された自由電子が素となり、プラズマが形成され、加工がなされる。実際に加工された結果では、図 2 の左の図はフェムト秒レーザーを用いた加工、右の図はナノ秒レーザーを用いた加工の参考例である。このような特徴を有するフェムト秒レーザーは難加工物質と呼ばれるダイヤモンドやセラミックス、ガラスなどの脆性材料の加工を比較的容易にする。また非熱的過程であるので、微小材料への構造の書き込みなども行われ付加価値の高い構造を作成することも出来る。

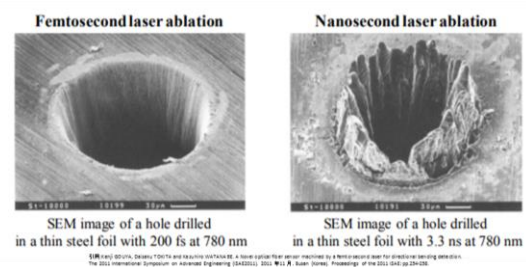


図 2. フェムト秒レーザー加工とナノ秒レーザー加工

### 3. 実験構成

本研究における典型的な実験構成を図3に示す。CW励起された Ti:Sapphire レーザー (パルス幅: 200fs, 中心波長: 800nm, 繰り返し周波数 125kHz) から出射された光は、強度を調整した後にアキシコンレンズに入射しベッセルビーム化されている。アキシコンレンズの頂角は  $0.5^\circ$  であり、レンズから 30cm 程度の位置を中心に 20cm 程度の長さにわたり、いわゆるベッセルビームの中心部分が強い状態を維持できるようにしている。その後、長作動距離対物レンズを用いて、ベッセルビームを高 NA 化条件で得られるように変換し、ナノメートルサイズの加工に適した集光分布を形成している。加工対象は、線形領域では透明な光学ガラスであり、自動ステージを用いて高軸方向に掃引可能になっている。電磁シャッターを用いてシングルショット、マルチショットの条件も調べられるようになっている。

デフォーダブルミラーでアキシコンレンズに照射するための位相変調を行っている。そのためにシャックルトマンやビームスポット径を観察している。

一般の非線形吸収による加工では、加工が行われる強度よりも低い強度で、自己位相変調 SPM などによる白色光発生が起きる。ここでは、その SPM イメージを後方の顕微鏡で同時にモニターし、加工位置だけでなく、最適な焦点位置などが明らかになるように設定されている。また、ナノメートルサイズの穴は、光学顕微鏡では直接観測しにくい。加工が起きると、SPM 強度が低下するので、それにより塑性的な加工を確認している。

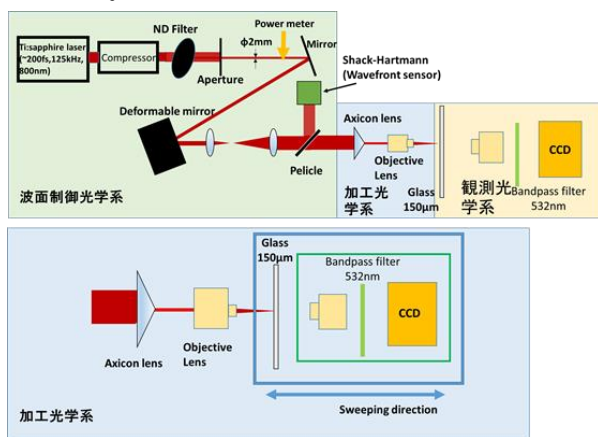


図3 実験セットアップ図

加工穴の観測は、ガラスを金でコーティング後に走査型電子顕微鏡でおこなった。図4には、典型的なナノサイズホール加工例を示している。

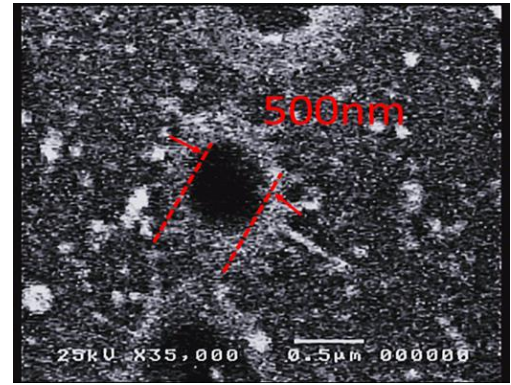


図4 SEMによる加工痕の観測

また、加工後の穴形状が均一な貫通穴となるようにアキシコンレンズ通過前のビーム形状について考えなければならない。アキシコンレンズ通過後のベッセルビームが長い中心ピークを一定の強度で得るためには、 $1/r$  依存性を有する強度プロファイル  $I(r)$  が必要であり、これは増幅器からの出力であるガウシアン型からは程遠い。したがって、部分的に理想的な強度プロファイルを達成するために、単純な円形アイリスでビームをカットした。 $1/r$  のビームプロファイルとガウシアン型のビームプロファイルのグラフを以下に図5として示す。

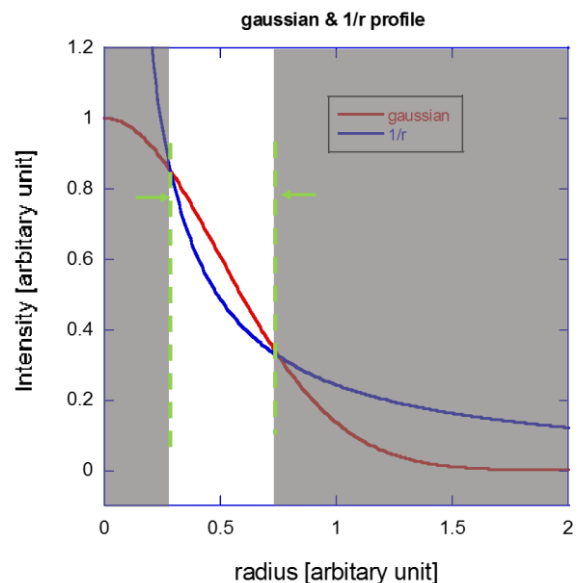


図5.  $1/r$  のビームプロファイル(黒い領域の中心近傍は材料と加工用対物レンズを離すことでカット、右の黒い領域はアイリスを用いることでカット)

また、加工にはベッセルビームのサイドローブが加工痕として現れ無いように出力を ND フィルターを用いて調整した。

### 3. 実験結果

#### 3.1. アキシコンレンズ通過後のビームプロファイルについて

図 6 に伝播距離とビームウェストについて得られた実験結果を示した。なお、ベッセルビーム中心のスポットのビームウェストを計測した。

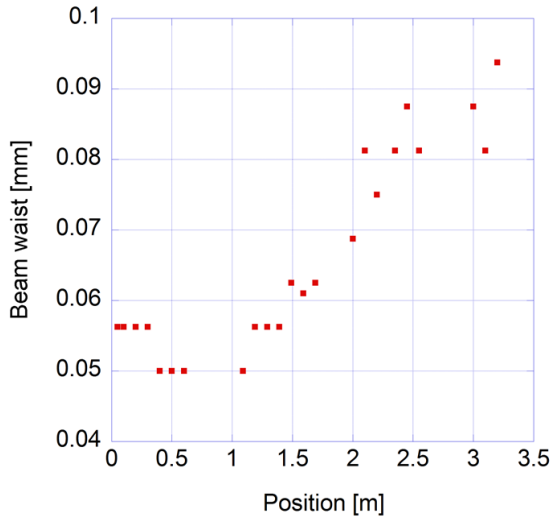


図 6. 伝播距離とビームウェスト

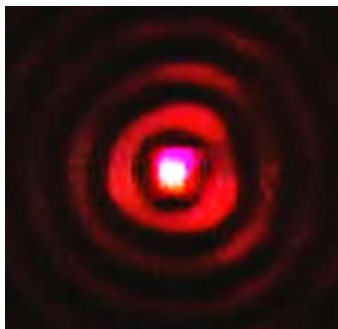


図 7 位置 0.65m におけるベッセルビーム断面

このとき、65cm の位置のビーム断面を観測するとベッセルリングが確認でき、また一次リングの強度分布のバラツキが確認できた。これは入射する波面が位置 0.65m で位相が揃っていないことがわかる。このことは、それ以外の全ての位置についても同様の結果が言えた。

以上より、前節で設計したビームプロファイルが用いられる場合は、平面波が入射した際であるので位相波面が揃っていないので、加工を行う際は波面を整える光学素子を用いなければならないと考えた。また、図 7 におけるビーム中心の白色になっている範囲が最も強度が高いので、この形をより小さくまた円形に整える必要がある。

#### 3.2. 自己位相変調(SPM)発生範囲と加工範囲の違いについて

次に、焦点位置目安として用いる SPM(Self Phase Modulation)と実際に加工される範囲を調べた。図 1 における加工光学系の対物レンズ焦点をガラス裏面に合わせ、観測光学系の焦点をガラス裏面に合わせた。観測光学系を光軸方向に掃引させ SPM 発生範囲と実際に加工される範囲を表 1 にまとめた。

表 1 レーザー出力と SPM 発生範囲、加工範囲

Power [ $\mu$ J]	Range of SPM [ $\mu$ m]	Range of machining [ $\mu$ m]
3-4	150	50
5-6	300	180
8-9	400	200

なので、表 1 を元に焦点位置をガラス中心に配置しレーザー出力を変化させ、ガラス内部にナノチャンネルを作成しこれをガラスを切断することによって観察した。

#### 3.3. アキシコンレンズ-加工用対物レンズの位置について

$1/r$  のビームプロファイルを再現するためにはアキシコンレンズと加工用対物レンズの位置関係について調べなくてはならない。次には (I) アキシコンレンズ-加工用対物レンズを十分近づけ(間隔 17cm)で  $1/r$  のビームプロファイルに沿わない条件で加工を行った結果、また (II) アキシコンレンズ-加工用対物レンズを十分分離し(間隔 57cm)で  $1/r$  のビームプロファイルに適した位置での加工を行った結果である。

##### (I) アキシコンレンズ-加工用対物レンズを十分近づけた場合

実際に加工した結果を以下に図 8 として示した。出力を  $5 \mu$ J/pulse としたときガラス内部に幅 340nm で深さ  $20 \mu$ m 程度の加工ができた。

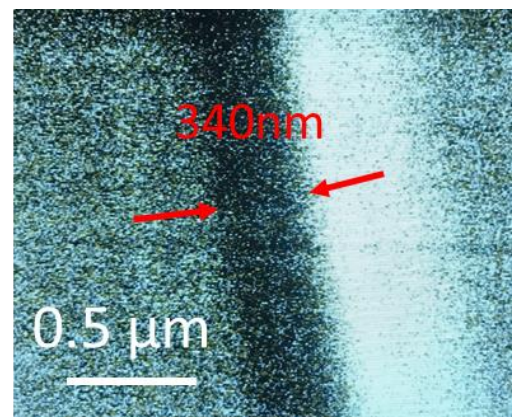


図 8. 出力を  $5 \mu$ J/pulse で加工した際のガラス断面 SEM 画像

表 2 として出力ごとの穴径を示した。出力を上げると穴径は増大していくことが表 2 から分かるが、図 9 からは出力を上げたとしても加工深さがそれほど大きくならないことが分かる。12  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  のレーザー出力の際に加工深さ 70  $\mu\text{m}$  程であった。表 1 からカバーガラス裏面に加工される範囲は 3~4  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  でさえも 50  $\mu\text{m}$  程度あったので出力を大きくすればより深く加工できると考えたがガラス内部で加工される深さはそれよりも小さいものであった。原因としては、ガラスの屈折率が高いレーザー出力により変化するに加工される範囲が短くなったのではないかと考える。

表 2. レーザー出力と穴径(アキシコンレンズ-加工用対物レンズを近づけた場合)

レーザー出力と穴径(対物レンズ焦点をアキシコン頂点に合わせた場合)	
レーザー出力 $\mu\text{J}/\text{pulse}$	穴径 $\mu\text{m}$
5	0.34
12	2.1
24	3.3

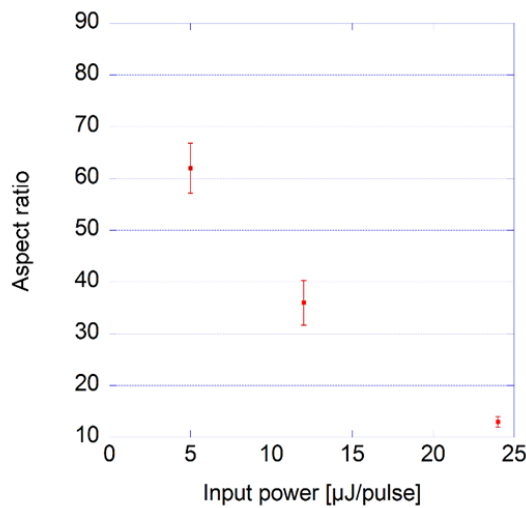


図 9. アキシコン-加工用対物レンズ間距離を近づけた場合におけるアスペクト比とレーザー出力特性

## (II) アキシコンレンズ-加工用対物レンズを十分離れた場合

実際に加工した結果を以下に図 10 として示した。出力を 5  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  としたときガラス内部に幅 180nm で深さ 20  $\mu\text{m}$  程度の加工ができた。

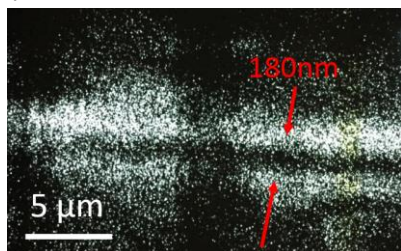


図 10. 出力を 5  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  で加工した際のガラス断面 SEM 画像

表 3. レーザー出力と穴径(対物レンズ焦点をアキシコン頂点に合わせた場合)

アキシコンレンズ-対物レンズ間(ベッセルビーム伝播中心に焦点を合わせた)	
レーザー出力 $\mu\text{J}/\text{pulse}$	穴径 $\mu\text{m}$
5	0.18
12	3
24	5.1

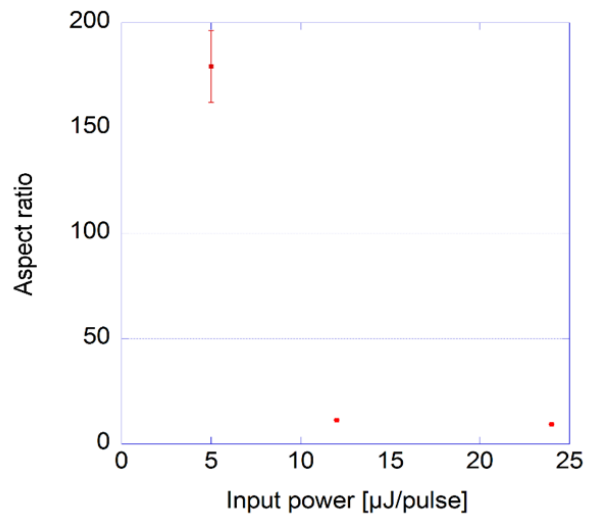


図 11. アキシコン-加工用対物レンズ間距離を離れた場合におけるアスペクト比とレーザー出力特性

アスペクト比に関して出力を上げると大きく下がっていき近づけた場合よりも低くなってしまった。深さに関しては 12  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  時には 35  $\mu\text{m}$  ほどで近づけた場合の半分程度になっていた。これはガラス内部伝播中に光エネルギーが最初の電子を励起しアバランシュ過程を起こせないほど非線形な吸収を起こし吸収され低くなってしまったものであると考えられる。また図 12 に加工断面の SEM 画像を示す。この結果から画像中心部に起伏が生じており、ガラス割断が垂直に行われなかったのも原因ではないかと考える。

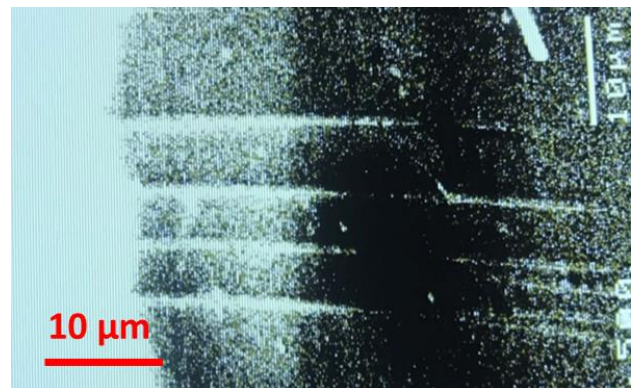


図 12. アキシコン-加工用対物レンズ間距離 57cm、レーザー出力 5  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  時の SEM 画像

### 3.4. 静止加工実験

図4から穴径が不均一であったが Ti:Sapphire レーザーがパルス励起型であったのが原因でこれを CW 励起型(200fs, 125kHz)のピーク強度が短い間であれば 5%以下で安定なレーザーを用いて加工を行った。実際に加工を行った結果を図13として以下に示す。加工対象はカバーガラス(厚さ:150 $\mu$ m)

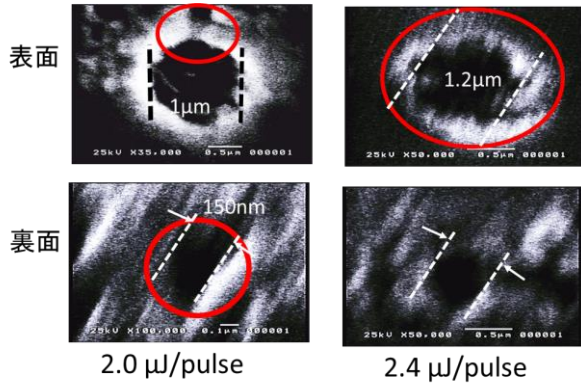


図13. 出力を変化させた際における静止加工実験結果

この結果から、最小口径 150nm, アスペクト比 1000 を達成しているが、問題点がいくつかある。一つは穴径が円形状から離れてしまっていることである。これはデフォーカブルミラーを調整が不十分であると考えられる。また、ガラス表面と裏面で穴径が大きく差があり、テーパー状になってしまっていることも問題である。これは非線形吸収をガラスない伝播中に起こしてしまっているからで、1/r のビームプロファイルだけでなく物理的なフィルターをかませるべきであると考えた。

そこで、ガラス中心付近に焦点を合わせビーム径 10mm のものに対して中心の強度をカットするようにハードタイプのフィルター直径 3mm のものを用いた。

結果は 0.3mJ と大きなエネルギーを投入に無ければガラスを加工できずレーザーも CW 励起ではなく利得を得やすいパルス励起のものを用いて加工を行った。

以下にフィルターを用いなかった場合(a)とフィルターを用いた場合(b)を示した。

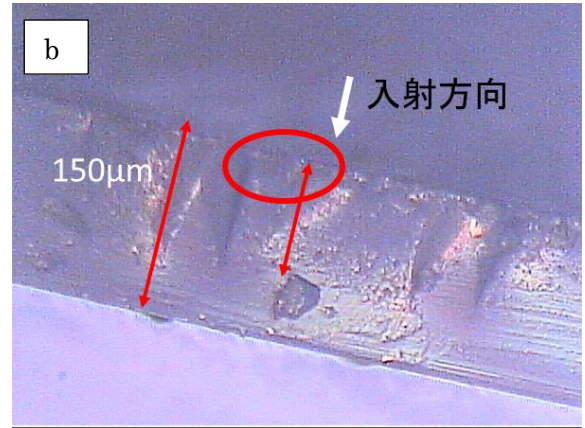
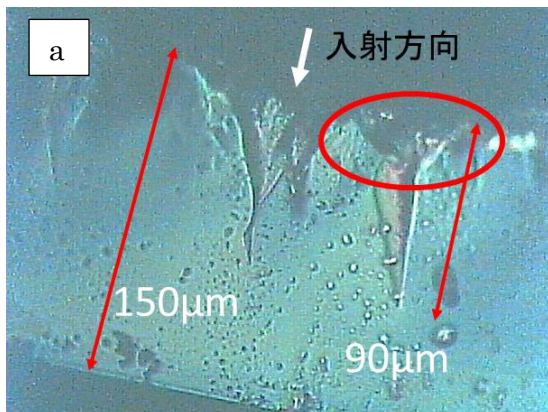


図14. レーザー出力 0.3mJ を用いた際における加工にハードタイプフィルターを用いなかった場合上図(a), 用いた場合(b)

上記の結果から、0.3mJ/pulse という大きなエネルギーを要さなければ加工が出来なかったが、ビーム中心を試験的にカットすることでガラス表面のダメージを軽減できたと考えられる。

### 3.5. 掃引加工実験結果

更にアスペクト比 1000 以上を目指すため、光軸方向に掃引加工し高アスペクト比化を狙った。

掃引加工時のガラス表面裏面に加工される穴径とパルスエネルギーの結果は図5のようになった。

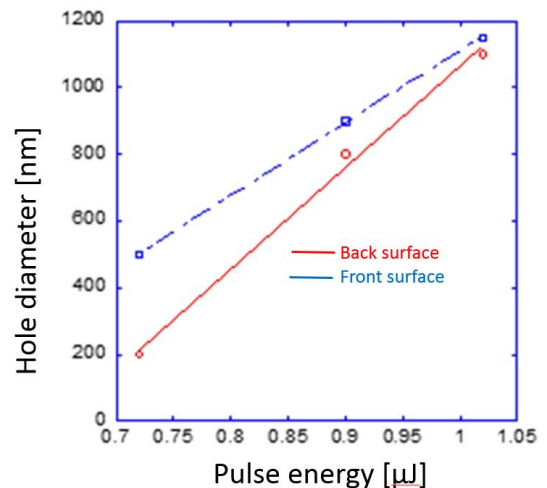


図15 掃引加工時のガラス表面裏面に加工される穴径とパルスエネルギー

以上の結果からレーザーのエネルギーがガラス表面近傍で吸収されていることが分かる。しかし、最大のアスペクト比は焦点位置を中心に置いた際に 1000 を達成しており、また掃引加工時にも 750 を達成している。

#### 4. まとめ

実験を通して、ガラスの厚さ 150 $\mu\text{m}$  の内部に穴径 120nm アスペクト比 200 程度の深さの加工を成功させた。更に高アスペクト比化を狙うために掃引加工を行った結果、ガラス通過中にエネルギーが吸収され表裏面において穴径の違いが生まれることがわかった。1 / r 依存性を有する強度プロファイル I (r) 以外にもガラスの吸収を考慮しなければならないことが分かった。

#### 5.参考文献

[1] 電気学会：最新レーザプロセッシングの基礎と産業応用：オーム社(2007)

[2] P. K. Velpula, M. K. Bhuyan, F. Courvoisier, H. Zhang, J. P. Colombier, and R. Stoian, "Spatio-temporal dynamics in nondiffractive Bessel ultrafast laser nanoscale volume structuring," *Laser Photon. Rev.* 10, 230–244 (2016)

[3] M. K. Bhuyan, F. Courvoisier, P. A. Lacourt, M. Jacquot, R. Salut, L. Furfaro, and J. M. Dudley, "High aspect ratio nanochannel machining using single shot femtosecond Bessel beams," *Appl. Phys. Lett.* 97, 081102 (2010).