超短パルスレーザーを用いた高いアスペクト比加工の研究

米田研究室 吉田 侃生

1. はじめに

超短パルスレーザーは現在産業面において半導体の 製造過程や透明物質の内部加工など様々な加工に用い られている.それは超短パルスレーザーが持つパルスの 時間幅の短さと高いピーク強度が加工において多くの ことを可能にしている.

時間幅の短さは加工部周辺に熱によるひび割れなど が発生しない加工や高速現象の観測を行うことができ、 高いピーク強度は中心の強度の高い部分を用いた波長 以下の微細加工や多光子吸収等の非線形現象による透 明物質内部への加工などに応用されている.

透明物質内部の加工は、集光点のみで加工を行うには 集光点以外では物質を破壊せず、集光点のみで破壊する 必要がある.これらを実現するにはパルスの時間幅の制 御と波面の制御が必要である.超短パルスレーザーの増 幅器内では高いエネルギーはレーザー媒質に光学的な 歪みを生じ[1]光学素子などにより収差が生じてしまう ため波面に歪みが生じてしまう.また加工対象であるガ ラス自体の屈折率により収差がでてしまうためそれら を考慮しなければ、球面収差を持った波面は集光時に集 光点を大きくしてしまうため加工精度を低下させてし まう.また超短パルスレーザーのパルス幅は分子の振動 周期と同程度であるため、それを利用することで光と物 質の相互作用を制御することが可能である.[2]しかし光 と物質の相互作用は複雑で、加工に最適な波形は未だ多 くの場合知られていない.そしてこの時間的、空間的位相 の加工における互いの関係も知られていない.

前述した時間的、空間的位相のどちらかをそれぞれ最 適化させたパラメータを組み合わせることで最適な加 工条件になるかもわからないため同時に最適化を行う ことができるシステムが必要であると考えた.

そこで本研究では超短パルスレーザーの光の時間的、空間的な位相制御を行い非線形加工における最適化を目標とした.本論文ではパルス圧縮用回折格子の間隔を制御した分散制御や直径の異なる分散制御板を用いたビームの径方向による時間的位相の最適化、形状可変ミラーを用いた空間波面制御システムによるベッセルビーム加工最適化を行った.



図 1 アキシコンレンズのエラーによるベッセルビー ム強度分布の変化[2]

2. 分散制御実験

実験には RegA9000 を使用した.このレーザーは 250kHz パルス幅 300fs 平均出力 500mW で運転するこ とができる.

はじめにコンプレッサーのグレーティング間隔を変 化させガラス内部の自己位相変調による発光の変化を 調べた.



図 2 実験セットアップ

ベッセルビームを 20 倍、NA=0.4 の長作動距離対物 レンズで側面研磨されたスライドガラス内部に集光 し、側面から CCD を使用して SPM を観測した..

以下に最適に圧縮された状態と回折格子間隔を 0.5mm 広げ分散量-2000fs²のネガティブチャープを与 えた状態での SPMの発光強度と長さをプロットしたグ ラフを示す.



この結果からネガティブチャープを与えると SPM の 発光は後方にシフトしていることがわかる.またチャー プを与えていない SPM の発光強度はガウシアンビーム をベッセルビームに変換した際の強度の特徴を持って おり入射側で最も強く発光しそこから徐々に強度が低 くなっている.アスペクト比の高い加工を行う際では一 様な強度の集光が求められていることからやはり操作 なしではテーパーのかかった穴になることが簡単に予 想できる.

次にネガティブチャープを与えた SPM では中心の強 度が高い山なりの強度分布となった.これはネガティブ チャープによってガラス内部の浅い領域では非線形効 果が弱く発光がなくなり、より内部へ入射したパルス がガラスの材料分散を受け後方で圧縮され SPM が発光 しているものだと考えることができる.この状態の SPM を見るとチャープを与えていない SPM に比べ強度がフ ラットになりより求めているものに近づいているが長 さとしては短くなっているため一様な分散制御のみで はアスペクト比の向上は難しいことが分かった.

3. 径方向分散制御板を用いた分散制御

ー様な分散制御では SPM の延長が難しいことからビ ームの径方向での分散制御システムを構築した. そこで直径の異なる AR ウィンドウを組み合わせた径方 向分散制御システムを作成した.厚さ 1mm の AR ウィン ドウを株式会社大興製作所の協力によって直径 2mm、 3mm、4mm の円盤として切り出しそれを重ね合わせビ ームの径方向で異なる分散を与えることができる.AR ウ ィンドウの基盤は BK7 であるため波長 800nm に対し て GVD=44.651fs²/mm の分散を与えることができる.

このウィンドウをアキシコンレンズの直前に挿入し SPM の発光を調べた.

表 1 与える分散量

| ビーム直径 | GDD[fs ²] | |
|---------|-----------------------|--|
| ~2mm | 178.604 | |
| 2mm~3mm | 133.953 | |
| 3mm~4mm | 89.302 | |
| 4mm~ | 44.651 | |

実験の結果を以下に示す.

チャープを与えていない青の実線で示されている SPM では入射直後に非常に高い強度があることがわか るがこれは画像を撮影するまでに即座に加工が完了す るほど十分な強度があり、改質によって光が散乱し強 く見えている.

AR ウィンドウを挿入した状態ではそうでない場合と 比較し入射直後と中盤あたりではわずかに強度が低く なっていることがわかるが 500µm付近では強度が高く なっていることがわかる.これはネガティブチャープが 500µm付近では集光に対してチャープのない状態より 適していることが分かった.

SPM 強度のフラットさを評価するためにピーク強度 の80%でラインを引いたのが灰色と黄色の実線だが AR ウィンドウを挿入した状態では約12µm後方へシフ トしたことが確認できた.

本システムではAR ウィンドウが BK7 で製造されて いるため 1mm あたり44.651fs²/mm しか分散値を与え ることができないがより高分散を持つ透明物質をガラ ス基板として使用することができればより大きな変化 をつけることができ、SPM をより長くすることができ ると考えられる.



図 4 分散制御板による SPM 発光強度 S-NPH3 を用いた分散制御板

4

径方向の分散制御ではBK7 を使用したが 1mm あたり で与えられる分散値 GVD が小さいため高分散ガラスを 採用した.株式会社オハラの協力により高分散ガラス S-NPH3 を提供していただいた.初めにこの高分散ガラス の 800nm での屈折率及び GVD を MATLAB を用いて計 算した.



図 5 波長における群速度分散変化

計算した波長における屈折率と群速度分散の関係を それぞれグラフにプロットした.

これにより波長 800nm では屈折率が n=1.9245、群速 度分散は GVD=330.25fs²/mm と求めることができた. 群速度分散については BK7 の7倍強の値となりより多 くの分散を与えることが考えられる.

オートコリレーターの前方にサンプルを置き透過後のパルス幅を計測した.計測は16回の平均値を取っている.以下の表に厚さごとのパルス幅をまとめた.

| サンプルの合計 | GDD[fs ²] | パルス幅[fs] |
|---------|-----------------------|----------|
| 厚さ[mm] | | |
| 2 | 660 | 200 |
| 4 | 990 | 200 |
| 6 | 1320 | 200 |
| 8 | 1650 | 206 |
| 10 | 1980 | 206 |

表 2 S-NPH3 透過後のパルス幅

結果として最大 10mm の S-NPH3 を透過してもパル ス幅は6fs しか伸びることがなかった.オートコリレータ ーの分解能は 6fs なので 6fs 以下の変化は測定できなか った.

5. 筐体内部コンプレッサーの課題

これまでの実験では筐体内部の回折格子が載るステ ージにステッピングモーターをつけそれを操作し分散 を与え SPM を測定してきた.

しかしこの内部のステージを変化させる方法では回

折格子間隔を変えるとアライメントも元の軸から外れ てしまい、アキシコンレンズや対物レンズへの入射角度 も変化し SPM に影響が出る可能性があることが分かっ た.これによりコンプレッサー直後からのアライメント が外れるためアキシコンレンズまでビーム径の操作な どを行い伝搬距離が長くなればより大きくアキシコン レンズや対物レンズへの入射角度が変わってしまう.

その確認としてアキシコンレンズの直前のミラー角 度を 0.03°傾けた場合の SPM を比較した.傾けたミラー からはアキシコンレンズまで 50mm、対物レンズまでは 400mm の距離がある.対物レンズでは 0.24mm 中心から 外れた位置にビームが来る計算になった.



図 6 対物レンズ入射角度の違いによる SPM 発光強度

赤の実線が対物レンズに垂直に入射した状態の SPM を示し、緑の実線が傾けて入射した状態の SPM の発光 強度を示す.分散値を変更していないにもかかわらず明 らかに発光強度が変化していることがわかる.対物レン ズへの入射角度が垂直からわずかにでもずれると SPM 前方の強度がなく短くなり全体のピーク強度も小さく なる、図 35 で測定した SPM の変化に近いことが起こ ることが確認できた.

よって現状のコンプレッサーでは与える分散が変化 すると対物レンズへの入射角度による収差の影響で SPM の発光も変化し、分散が与える影響を測定するこ とができないことが分かった.

6. 分散制御に必要な分散量の計算

はじめに今回のパルス幅200fs では分散値を与えた場合 パルス幅がどのように変化するか計算を行った. 中心波長 $\omega = 0$ の周りでテーラー展開すると

$$\delta\phi(\omega) = \delta\phi(0) + D_1\omega + \frac{D_2}{2!}\omega^2 + \frac{D_3}{3!}\omega^3 + \cdots$$
 (6)

このときの D_2 は群速度分散 GDD でありこのパルスがガ ウス型 $A(t) = A_0 e^{-at^2}$ である場合パルス幅 Δt

$$\Delta t = \sqrt{\frac{2\ln 2}{a}} \tag{7}$$

で表されるため、分散を受けたパルス幅Δt1は

$$\Delta t_1 = \Delta t \sqrt{1 + \left(4 \ln 2 \frac{D_2}{\Delta t^2}\right)^2} \tag{8}$$

として計算することができる.

以下のグラフにパルス幅 200fs のパルスが GDD-10000fs²から10000fs²まで分散を受けたときに出力されるパルス幅をプロットした.

±10000fs²を与えたとしても 40fs しかパルス幅が延長 していないことが分かる.

分散制御板では2種類の透明媒質で作られた分散制御 板を挿入したが、それぞれ1mmの厚さで挿入した場合 のパルス幅を以下の表にまとめた.



図 7 200fs のパルス幅が分散を受けた場合の出力パル ス幅

| 表 | 3 | 透明媒質 | 1mm | 透過後のノ | シレス幅 |
|---|----------|----------------------------------------|-----|-------|---------------------------------------|
| ~ | <u> </u> | ~ / //// / / / / / / / / / / / / / / / | | | · · · · · · · · · · · · · · · · · · · |

| | GDD[fs ²] | パルス幅[fs] | | |
|--------|-----------------------|----------|--|--|
| BK7 | 44.651 | 200.0010 | | |
| S-NPH3 | 330.25 | 200.0524 | | |
| | | | | |

表 3 から分かるように分散制御板を 1mm 挟むだけで はたとえ S-NPH3 のような高分散ガラスを用いても 200fs 程度のパルス幅ではほとんど影響を与えることが できないことが計算から確認することができた.

今回は200fsのレーザーを使用しているが現在では非線 形圧縮を用いて簡単に 50fs 以下の超短パルスを作り出 すことができ、レーザー加工においても高い非線形効果 を得るためにはパルス幅の短いレーザーを選択するこ とは容易に想像できる.ではどの程度のパルス幅からレ ンズなど透明媒質の透過による分散を考慮しなければ いけないか計算を行った.図 325はS-NHP3を1mm透 過した場合のパルス幅変化を横軸に入力パルス幅、縦軸 に出力パルス幅を示している.



図 8 S-NPH3 厚さ 1mm を挿入した場合のパルス幅 の変化

このグラフからも今回の200fs程度のパルス幅では変わらないことがわかり、約50fs付近から入力パルス幅 と出力パルス幅に違いが出はじめ30fsより短くなった あたりで急激に出力パルス幅が伸びていることが計算 から確認できた.

現在 50fs 以下のパルス幅を持つ超短パルスレーザー は容易に手に入れることができ、今回のような非線形効 果を用いた透明媒質への加工ではパルス幅の短いもの がより高い非線形効果を起こすため選択されることが 多い.そのような短いパルス幅では確かにレンズなど透 過系の光学素子はパルス幅を長くしてしまうため反射 系の光学素子で構成させるが、分散制御のこれまでの実 験で用いた全体に負の分散をあらかじめ与えることや、 径方向の分散性制御によって透過系の光学素子を使っ たセットアップの構築も可能であると考える.

7. 波面制御実験セットアップ

波長 800nm,250kHz,高繰り返し、パルス幅 200fs,平均 出力 0.5W 以上のスペックの超短波パルスレーザーを用 いて実験を行った.空間波面の制御には形状可変ミラー (DM)を採用した.形状可変ミラーは矩形 DM と自作した メンブレン型 DM の 2 種を使用した.形状可変ミラーで 変化した波面は 4f 光学系によってイメージリレーをし てアキシコンレンズまで伝搬する.アキシコンレンズに は頂角 179°のものを使用し,集光用の対物レンズには 低パルスエネルギーでも加工ができるようにNA=0.5の 長作動対物レンズでガラス内部に集光した. 対物レンズとアキシコンレンズの間隔によってNAが変 化するため対物レンズは1軸ステージにのせ間隔調整が できるようにした.

本実験においてガラス内部の集光を確認するために ガラス内に集光時自己位相変調により発生する白色光 SPM[3]の長さを指標とした.これにより波面状態を変化 させた場合でも SEM を利用せずにリアルタイムでどの ようにベッセルビームが集光しているか確認すること ができる.



8. 矩形 DM による SPM 測定

はじめに矩形 DM を使用して波面制御による SPM 発 光の変化について調べた.ミラーの形状を変化させずに 集光した場合では分割されたベッセルビームが確認さ れた.これはアキシコンレンズのエラーや高 NA 対物レ ンズの球面収差によってガラス内部では自己干渉効果 が起きていない部分が存在していると考えている.また 分割されたベッセルビームの入射側はアキシコンレン ズ入射前のガウシアンビームの外側が発生させ,ベッセ ルビーム後方側は内側のビームが発生させていること がわかった.

そこでビームの中心のみを形状可変ミラーを最大 2.7µm 変化させ凸面にして集光すると1本に再結合した SPM イメージを得ることができた.



(a)分裂した SPM,(b)DM を使用して再結合した SPM

9. メンブレン型 DM

矩形 DM では中心対称であるベッセルビームにおい て適していないため DM の可変部分が円形になるよう なメンブレン型 DM を開発した.この DM は直径 5mm の 穴の空いた合成石英基盤に 500µm まで研磨された誘電 体ミラーを貼り付けて作成した.穴の空いた面に水圧ポ ンプによって最大 10bar まで圧力をかけることでミラー 表面をわずかに変形させることができる.



図4 メンブレン型 DM とその構成図

10. メンブレン型 DM による SPM 測定

はじめに圧力ごとのビームパターンを撮影した.ニア フィールドをアキシコンレンズの地点にて CCD カメラ で撮影し,ファーフィールドをさらに 30cm 遠くにビー ムを飛ばした地点で同様に撮影した.ニアフィールドで は圧力ごとに大きな変化は確認できなかったがファー フィールドでは圧力が大きくなるとリング状のパター ンになることがわかった.これは DM 可変部と接着部の 境目で圧力がかかると凹面のように変形しリング状に 集光しているためだと考えられる.



図5 圧力によるファーフィールドパターンの変化

このように変化したパターンを持つビームでベッセ ルビームを発生させ集光した場合 2bar では矩形 DM よ り長く 160µm にも達し,発光強度も安定した SPM を得 ることができた.



図 6 メンブレン型 DM による再結合した SPM 11. **高速加工実験**

繰り返し周波数 250kHz にもなるとピエゾアクチュエ ータやステッピングモーターではシングルショットの 加工は難しいため高速なステージを選択が必要になっ た.そこで高速回転するモーターにガラスを取り付ける ことで 500mm/s 以上でターゲットを高速で動かすこと が可能になりシングルショット加工の加工表面の画像 を取得することに成功した.

この実験では低パルスエネルギーでも加工がし易い ように株式会社オハラ様より提供していただいた特殊 なバンドギャップを持つガラスを使用して加工実験を 行った.



図 9 加工したガラス



図 7 加工表面の SEM 画像 左,ステッピングモーター使用時 右,高速モーター使用 時

また高速ステージを利用しなければシングルショット加工イメージが取れないと考えていたが SEM で表面をよく観察すると穴径と同じ間隔でナノホールが表面に空いていることが確認出来きた.



図 10 精密ナノホール連続加工 最後にガラスを割断し断面を SEM で見て高アスペク ト加工を確認した.

割断方法がナノホールに対して非常にアバウトであ

るため穴の軸と割断軸がずれていると考えられ高アス ペクト加工穴の全容を確認することはできなかったが その一部を撮影することに成功した.画像では長さ70um 程度の加工痕が見え穴径は50nm 程度であることがわか った.この結果によりアスペクト比は1400にも到達した ことが確認できた.もしSPM 発光長と同じ160umの穴 が空いていたとしたらアスペクト比は3200を超えたこ とになるため正確に測定できる割断法を考える必要が ある.



図 11 割断面の SEM 画像 左,高アスペクト加工全景 右,高アスペクト加工穴径

12. まとめ

メンブレン型 DM を開発しミラー表面形状を凸型とす ることで 160 µ m もの長く安定した SPM の発生を確認 できた.ベッセルビーム加工においては通常のガウシア ンビームではなく,ファーフィールドにおいてリング状 になるようなビームパターンが適していることが分か った.

加工に適したガラスを使用し高速加工でもアスペクト 比1000を達成し、アスペクト比3000を超える可能性を 示すことができた.

今後の展望としてはさらなる低パルスエネルギー,高繰 り返し化のための材料側からのアプローチが必要だと 考えている.

参考文献

[1]電子ビームリソグラフィを用いた 3 次元ナノ加工 山崎 謙治 生津 英夫 NTT 物性科学基礎研究所 NTT 技術ジャーナル(2006).

[2] [8] Oto Brzobohatý, Tomáš Čižmár, and Pavel Zemánek, "High quality quasi-Bessel beam generated by round-tip axicon," Opt. Express 16, 12688-12700 (2008)

[3]Astronomical Adaptive Optics François Rigaut Publications of the Astronomical Society of the Pacific, Volume 127, Number 958 (2015)