

ホログラフィックフェムト秒レーザー加工の高性能化

宇都宮大学 オプティクス教育研究センター

准教授 早崎芳夫

(平成 19 年度一般研究開発助成 AF-2007205)

キーワード：ホログラム，空間光変調，ナノ加工

1. 研究の目的と背景

近年の社会的な環境意識の高まりによって，製造工程や廃棄などの環境に対するコストを含めた評価が重要となっている．レーザー加工は，高いレーザー利用コストから，高付加価値製品の製造プロセス以外では実用化困難であるという考え方であった．しかし，半導体加工技術等，化学的な処理を含む多くの加工法と比較して，ドライプロセスであるレーザー加工は，低エネルギーで低排出であり経済性に優れた技術であるという認識が確立しつつある．

フェムト秒レーザーは，半導体光検出器や太陽電池上へのナノ構造の形成による検出感度の高帯域・高感度化や金属に特殊な光沢感を与えるカラーメタルなどの表面修飾技術，フォトニック結晶や3次元光導波路などの3次元構造形成技術，多光子顕微鏡におけるバイオサイエンス，レーザーパルスの時間的偏光制御による分子の量子制御など，新しい研究開発に用いられており，本研究で進められているフェムト秒レーザーパルスの並列光制御技術を簡便な方法で提供できれば，科学や産業を支える基盤的な技術の一つになり得る．

我々は，フェムト秒レーザーをホログラムで多数に分岐して，高スループット・高光利用効率な加工を可能にするホログラフィックフェムト秒レーザー加工を開発した．本技術の加工スループットや光利用効率は，既存技術である単一ビームの操作による加工と比較して圧倒的に高く，並列度の調整によって高い光利用効率を得られる技術である．従来のレンズアレイや干渉パターンによる並列照射技術は，固定の光学系であったため，任意の形状の加工は難しく，並列照射を可変に制御しようという発想には至らなかった．

これまでに，我々は，空間光変調素子の特性や光強度分布を考慮したホログラム設計法を考案し，本技術の開発当時の均一性（最大ピーク強度に対する最初ピーク強度）60%に比べて，95%と劇的に向上させた．このように，ホログラムが，均一性を指標として，かなり高いレベルまで到達できた．さらに並列度の向上を高い均一性を維持しつつ行うためには，ビームや光デバイスの空間的不均一の補正が必要であるが，ホログラム設計ソフトウェア上に，これらを十分に表現することは難しい．

ホログラフィックフェムト秒レーザー加工の本質的なもう一つの課題として，ホログラムの波長分散（フェムト秒パルスは広帯域なので，ホログラムなどの回折光学素子を通過すると，時間的・空間的にパルスが広がってしまう）によって，集光径や波長幅の増加することである．任意の回折パターンに対する波長分散

を補正する技術はこれまでにない．

本研究では，上記の2つの課題に対して，同時並列的に研究を遂行した．1つは，加工光学系の空間特性を補正するための計算機ホログラムの光学系内での設計について示す．もう1つは，我々が考案したホログラフィック時空間レンズによる波長分散補正手法について示す．

2. ホログラムの光学系内最適化

2.1 多重位相フレネルレンズの計算機内最適化

フレネル型計算機ホログラムの一種である多重位相フレネルレンズ(MPFL: multiplexed phase Fresnel lenses)の研究例について報告する．MPFLは位相フレネルレンズ(PFL)を所望の集光パターンを得られるように，焦点位置や焦点距離で，重ね合わせたものである．その時，各PFLの中心の位相を適切に調整すると，均一な回折ピークを有するホログラムが設計できる．

次に，均一性の評価のためにMPFLをコンピュータ内で再生させる際に，LCSLMに照射されるフェムト秒パルスの空間強度分布と，LCSLMの空間周波数特性が考慮される．理想状態の位相分布 $\theta(\mathbf{r})$ に対して，実際にLCSLMに形成される位相分布を $\theta_a(\mathbf{r}) = \mathcal{F}^{-1}\{\mathcal{F}\theta(\mathbf{r})/(1 + l^2v^2)\}$ から計算される．ここで， \mathcal{F} と \mathcal{F}^{-1} はそれぞれ，空間的フーリエ変換とその逆変換であり， l と v はそれぞれ，拡散長と空間周波数である．

2.2 多重位相フレネルレンズの光学系内最適化

コンピュータ内で最適化されたMPFLの回折ピークは，0.99以上の均一性を有する．しかし，実際の光学再生では，光学システムの空間的な特性により，その均一性は低下する．光学再生において高い均一性を有するMPFLを得るために，光学的に計測された回折ピーク強度を用いてMPFLが最適化される．

その最適化プロセスにおいて，MPFLの光学再生像がイメージセンサーによって計測される．コンピュータは，その計測値をもとに所望のパターンを得るためのMPFLを再計算し，LCSLMに再表示される．これらは，十分な均一性を有するMPFLが得られるまで繰り返される．LCSLMは書き換え可能であるため，この繰り返し最適化を容易に実現できる．我々は，その最適化アルゴリズムとして，開口数の調節と最大位相変調量の調節にもとづく手法を提案した．

2.3 加工光学系

図1はホログラフィックフェムト秒レーザー加工システムを示す．レーザーパルス（中心波長800nm）は，

減光フィルタを用いて光量を調節された後、ビームエキスパンダーによりビーム径を拡大され、LCSLM 上の MPFL により回折され、面 P1 で所望のパターンを形成した。回折パターンの計測には CMOS (complimentary metal-oxide semiconductor)イメージセンサーが用いられた。MPFL の回折パターンは、レンズと開口数 0.85 の 60 倍対物レンズ(OL)で構成される縮小光学系を用いてサンプル表面に結像された。入射エネルギー E は、面 P2 でのエネルギー値とレンズ L5 から OL で構成される縮小光学系の透過率の積であった。加工の状態を観察するために、ハロゲンランプと CCD(charge coupled device)イメージセンサーが用いられた。

サンプルには純水とエタノールで超音波洗浄されたスライドガラス(Matsunami)を使用し、3 軸の自動ステージにセットされた。

加工形状の観察には、原子間力顕微鏡(AFM: atomic force microscope)、および走査型電子顕微鏡(SEM: scanning electron microscope)を用いた。

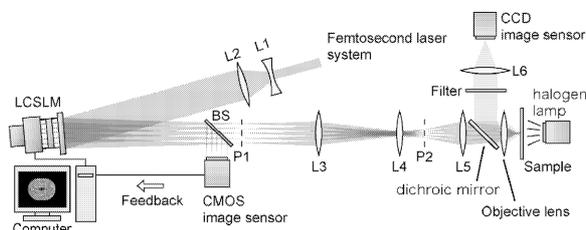
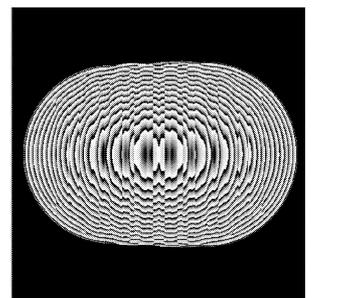


図 1 ホログラフィックフェムト秒レーザー加工システム。

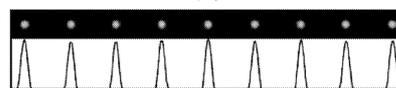
2.4 加工実験の結果

加工光学系内で最適化された MPFL がホログラフィックフェムト秒レーザー加工に適用された。図 2(a)は適応的最適化をともなった MPFL の位相分布を示す。図 2(b)は P1 面で観測されたその光学再生像と、強度プロファイルを示す。均一性は 0.95 であった。回折効率は 58 %であり、LCSLM の空間周波数特性によって理論値の 98%から減少した。図 2(c), 2(d)は、それぞれ、加工領域の SEM 像と AFM 像である。図 2(e)は AFM プロファイルを示す。加工は $E = 1.50 \mu\text{J}$ で実行された。作製されたピットの最大径は 779 nm, 最小径は 658 nm であり、均一性は 0.84 であった。加工しきい値エネルギー付近 ($\sim 90 \text{ nJ}$)においては、入射エネルギーの増加につれて、ピット径は急激に増加した。従って、加工しきい値エネルギー付近での波長以下の加工を複数同時に行うためには、回折ピーク強度の精密な制御を必要とする。

図 3 は、入射エネルギーに対する、ガラス表面に作製された 9 個のピットにおける最大径と最小径、均一性を示す。図中の \times , Δ , \circ は、それぞれ、最適化をともなわない MPFL, 計算機で最適化された MPFL, 加工光学系内で最適化された MPFL の加工結果である。それぞれの加工において、9 個のピットが観測される最小エネルギーは、それぞれ、 $E = 1.10, 1.00, 0.90 \mu\text{J}$ であった。光学系で最適化された MPFL の場合、 $E = 0.90 \mu\text{J}$ で、最小ピット径は 264 nm であった。光学系内でのホログラムの最適化によって、高い均一性と、より小さなピット径の複数同時作製を可能にした。



(a)



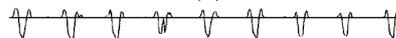
(b)



(c)



(d)



(e)

3 μm

図 2 (a) MPFL と(b)その光学再生像。(c)構造物の SEM 像、(d)AFM 像と(e)そのプロファイル。

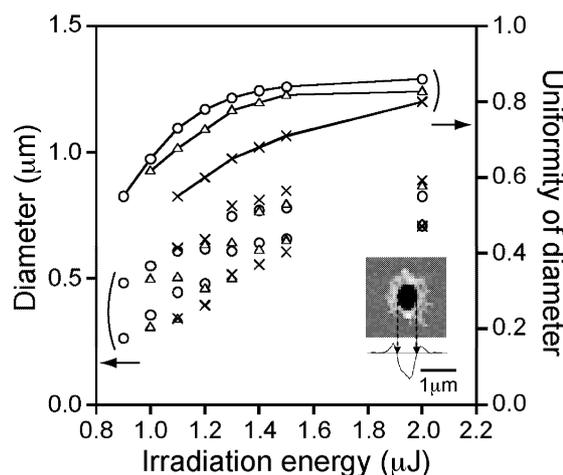


図 3 入射エネルギーに対する最大ピット径、最小ピット径、均一性。 \times , Δ , \circ は、それぞれ、最適化なし、計算機内最適化、光学系内最適化の場合である。

3. 回折型時空間レンズ

3.1 原理

図 4 は、回折型時空間レンズの原理図である。これは、回折光学素子において生じる波長分散の問題を解決する一方法として、回折格子による分光と計算機ホログラムの集光による新しい時空間レンズが提案された。フェムト秒レーザーパルスは、回折格子によって分光され、光をコリメートする円筒レンズの焦点面上にある空間光変調素子に表示された回折レンズによって再度サンプル上に集光される。回折レンズ上の各点において、分光されたそれぞれの波長に対応したホログラムが表示される。全ての波長は、回折レンズの集光点で重ね合わされる。その結果として、最短パルスが焦点のみで形成される。この光学系により回折光学素子を用いて波長分散のない集光が実行できる。

LCSLM に照射された光の各点 x での波長は、以下の回折格子の式から幾何光学的に導出される。

$$\lambda_d(x) = d \{ \sin \{ \theta_c + \arctan(x/f_{cl}) \} - \sin(\theta_i) \}, \quad (1)$$

ここで、 d は回折格子の周期、 θ_c は中心波長 λ_c の回折角、 θ_i と θ_d は、入射角と回折角、 f_{cl} は円筒レンズの焦点距離である。この式を $x=0$ 周りでテイラー展開すると以下ようになる。

$$\lambda_d(x) = \lambda_c + \{ d \cos(\theta_c) / f_{cl} \} x + \{ d \sin(\theta_c) / f_{cl}^2 \} x^2 + \dots \quad (2)$$

第3項は、実験光学系における $|x| < 10 \text{ mm}$ において非常に小さいので、係数 $\alpha = d \cos(\theta_c) / f_{cl}$ で線形近似できる。

$$\lambda_d(x) = \lambda_c + \alpha x. \quad (3)$$

焦点距離 f_{dl} を有する回折レンズの位相分布は、以下の式で設計される。

$$u_{dl}(x, y) = \text{mod}[\pi(x^2 + y^2) / \{ f_{dl} \lambda_d(x) \}, 2\pi]. \quad (4)$$

我々はこの回折レンズをチャープ回折レンズ(CDL: chirped diffractive lens)と名付けた。

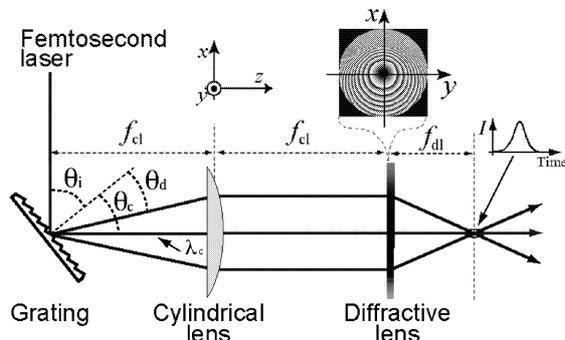


図4 ホログラフィック時空間レンズの原理。

3.2 実験システム

図5は、回折型時空間レンズの実験光学系である。実験光学系は、主に、フェムト秒レーザーシステム、LCSLM、円筒レンズと回折格子から構成される。フェムト秒レーザーパルスは、中心波長 800nm、パルス幅 45fs を有する。レンズ L1 から円筒レンズ CL2 の光学系でビームを x 方向に拡げる。GaAsP フォトディテクターは、波長 800nm 近辺に感度が無く、フェムト秒レーザーパルスの2光子吸収を光電変換する。GaAsP フォトディテクターと遅延干渉光学系でレーザーパルスの自己相関を計測する。計測された自己相関波形は、パルスがガウシアンであると仮定してフィッティングされ、パルス幅が算出される。

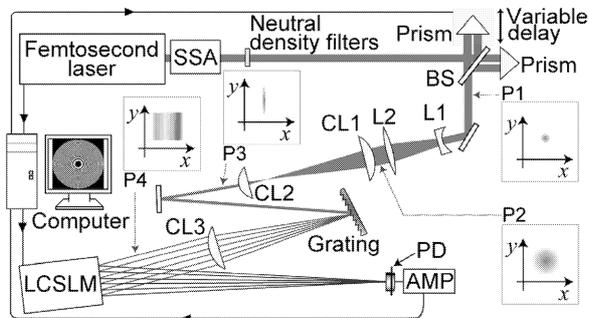


図5 ホログラフィック時空間レンズの光学系。

3.3 実験結果

図6は、それぞれ、P1で示されたビームスプリッター

直後、CDLの集光点の155mm手前、焦点面での自己相関波形である。実線は、パルス幅 t_p とチャープパラメータ c_p で記述される線形チャープを有する自己相関波形の理論曲線である。図5(a)に示すP1での t_p と c_p は、それぞれ 240 fs と 5 と算出された。図5(b)に示す155mmでの t_p と c_p はそれぞれ 445 fs と 9 と算出された。そのパルスは、P1でのパルスと比較して、更に波長分散が与えられた。集光点では、 t_p は、レーザーの出射パルスと同程度の 45fs に短パルス化され、 c_p も 0 となり、パルスのチャープは無くなった。CDLの α は理論的には 4.8×10^{-6} と算出されるが、 $\alpha = -30.0 \times 10^{-6}$ から 30.0×10^{-6} の範囲での実験において、 3.0×10^{-6} の時が最短パルスであった。この違いは、回折レンズの軸方向の波長分散と光学系内の波長分散のバランスの結果である。

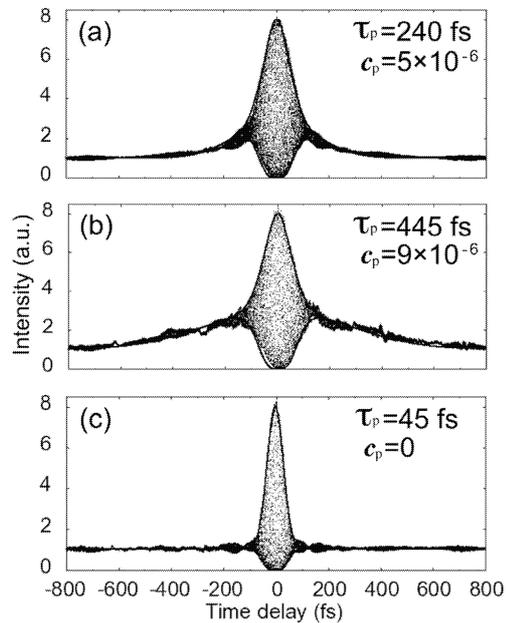


図6 (a) P1面上、(b) $z = 155 \text{ mm}$ 、(c) 焦点面で ($z = 0 \text{ mm}$)の自己相関波形。

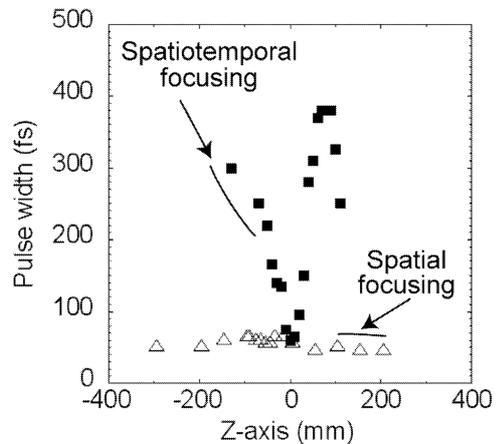


図7 時空間集光と空間集光のパルス幅比較

図7に分光したビームをDSTL($f=1000\text{mm}$)により集光したとき(■)、また分光していない通常の並行ビームを回折レンズ($f=1000\text{mm}$)により集光したとき(△)、それぞれの光軸方向

に対するパルス幅を示す。回折レンズによる集光では、光軸方向に対してパルス幅は変化しないのに対し、DSTLによる集光では、焦点付近でのみフェムト秒オーダーのパルス幅が得られた。

4. まとめ

本助成の申請時に、2つの目標を設定した。1つは、最大加工点数の向上と加工の高精度化とを同時に実現することであり、その数値目標としては、並列ビーム内の均一性の95%を維持しつつ同時加工点数の最大化をはかることと並列に表面加工された加工痕の平均加工径500nm以下で、最大加工径に対する最小加工径80%、最大並列加工数256個とすることである。前者の均一性を最大限に維持しながら、高並列化を進める研究では、ホログラムの新しい最適化法である第2高調波最適化法(特許申請済)により20程度の並列化で97%以上の均一性を得ている。並列度の最大化を目指す研究では、均一性はまだ十分ではないが、256の並列加工は実現された。

もう一つの目標は、並列加工における波長分散補正技術の開発である。フェムト秒レーザーをホログラムなどの回折光学素子で生じる波長分散を補正し、物体に照射されるパルス幅を光源と同程度の150フェムト秒以下にすることを数値目標とした。研究途中、光源を45fsのフェムト秒レーザーパルスに変更したが、光源と同程度のパルス幅を集光点上で得た。

発表論文

- 1) K. Fujita, A. Takita, K. Nagao, T. Ichikawa, Y. Hayasaki, "Data recording on dental prostheses for personal identification," *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol. 47, No. 9, pp.7190-7194 (2008).
- 2) H. Takahashi, S. Hasegawa, A. Takita, Y. Hayasaki, "Sparse-exposure technique in holographic two-photon polymerization," *Optics Express* Vol. 16, No. 21, pp. 16592-16599 (2008).
- 3) S. Hasegawa and Y. Hayasaki, "Adaptive optimization of hologram in holographic femtosecond laser processing system," *Opt. Lett.* Vol. 34, No. 1, pp. 22-24 (2009).
- 4) M. Miyazaki and Y. Hayasaki, "Motion control of low-index microspheres in liquid based on optical repulsive force of focused beam array," *Opt. Lett.* Vol. 34, No. 6, pp. 821-823 (2009).
- 5) A. Takita and Y. Hayasaki, "Interference measurement of superposition of laser-induced shock waves in water," *Jpn. J. Appl. Phys.* 48, 09LD04 (2009).
- 6) S. Hasegawa and Y. Hayasaki, "Performance analysis of adaptive optimization of multiplexed phase Fresnel lenses," *Jpn. J. Appl. Phys.* 48, 09LE03 (2009).
- 7) K. Kimura, S. Hasegawa, and Y. Hayasaki, "Diffractive spatiotemporal lens with wavelength dispersion compensation," *Opt. Lett.* Vol. 35, Iss. 2, 139-141 (2010).

招待講演 (国際会議)

- 1) Y. Hayasaki, "Holographic femtosecond laser processing," Optical Society of Korea, Summer Meeting 2008, (Phoenix Park, Korea, July 10-11, 2008).
- 2) Y. Hayasaki, "Holography in femtosecond laser processing," Japan Taiwan Bilateral Science & Technology

Symposium "Frontiers in Functional Optics" (Utsunomiya, Nov. 10-12, 2008).

- 3) Y. Hayasaki, "Holography in femtosecond laser processing," International Topical Meeting on Information Photonics 2008 (Awaji, Nov. 16-20, 2008).
- 4) Y. Hayasaki, M. Isaka and A. Takita, "Pump-probe digital holography for Observation of femtosecond laser induced phenomena," CLOE/Pacific Rim 2009, (Shanghai, China, Aug. 30-Sep.3, 2009).
- 5) Y. Hayasaki, "Holographic femtosecond laser processing," Photonic West 2010, (San Francisco, Jan.23-28, 2009).

国際会議

- 1) S. Hasegawa and Y. Hayasaki, "Optimization of computer generated hologram using two-photon absorption detector," 6th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications (ICPEPA) (Sapporo, Japan, 9-12 Sep., 2008).
- 2) S. Hasegawa and Y. Hayasaki, "Optimization of hologram based on optical estimation of parallel laser beam," International Topical Meeting on Information Photonics 2008 (Awaji, Japan, Nov. 16-20, 2008).
- 3) A. Takita and Y. Hayasaki, "Observation of addition of multiple-laser-induced shock waves with pump-probe interference microscopy," International Topical Meeting on Information Photonics 2008, (Awaji, Japan, Nov. 16-20, 2008).
- 4) S. Hasegawa and Y. Hayasaki, "Parallel femtosecond laser processing with a computer-generated hologram," Photonic West 2009 (San Jose, USA, Jan. 25-30,2009).
- 5) A. Takita and Y. Hayasaki, "Dynamics of femtosecond laser-induced breakdowns in water," Photonic West 2009 (San Jose, USA, Jan. 25-30,2009).
- 6) K. Kimura, S. Hasegawa, S. Yamashita, Y. Hayasaki, "Diffractive spatiotemporal lens with wavelength dispersion compensation," 2009 OSA Optics & Photonics Congress, Digital Holography and Three-Dimensional Imaging (DH), (Vancouver, British Columbia, Canada, April 26-30, 2008).
- 7) S. Hasegawa and Y. Hayasaki, "Optimization of computer-generated hologram in holographic femtosecond laser processing," The 5th International Congress on Laser Advanced Materials Processing (LAMP2009) (Kobe, June 29-July 2, 2009).
- 8) K. Kimura, S. Hasegawa and Y. Hayasaki, "Simultaneous spatial and temporal focusing performed by diffractive lens displayed on spatial light modulator," The 5th International Congress on Laser Advanced Materials Processing (LAMP2009) (Kobe, June 29-July 2, 2009).
- 9) A. Takita and Y. Hayasaki, "Phase contrast imaging using optical Kerr effect," OIE '09 - The Eighth Japan-Finland Joint Symposium on Optics in Engineering (Tokyo, Sep 3-5, 2009).
- 10) Y. Hayasaki, A. Takita, and M. Isaka, "Pump-probe interference microscope observation for femtosecond laser-induced phenomena," *Fringe 2009* (Ed. W. Osten and M. Kujawinska), pp. 477-480, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2009. 他7件