

【研究項目②三次元化加工システム技術】

1) 波面制御三次元加工システム技術

(a) ホログラム設計用ソフトウェアシステム技術とホログラム設計技術

本研究の目的は、三次元一括加工を実現するためのホログラム設計技術を提案・構築することである。具体的には、①大規模計算のためのソフトウェアシステムを構築すること、②三次元物体を表現するホログラム設計方法を開発すること、③ホログラム設計の高速化を実現すること、である。

ホログラムの設計に必要な環境として、高性能 CPU を搭載した計算機器による HPC (High Performance Computing) 基盤システムを構築した。これを基にガラス内部で 1 辺 $60\mu\text{m}$ の立方体内に直径 $10\mu\text{m}$ 以下の球状異質相を 4 個以上、三次元で形成するホログラムを最初に設計した。また、ガラス内部に直径 $9\pm 0.9\mu\text{m}$ の直線導波路や曲線導波路を形成するためのホログラムも設計した。これらの設計の際、波面計算の計算領域を適切に絞り込むことで設計時間の短縮化を実現した。

本サブテーマで構築した設計技術を用いて、実際にホログラムを作製し、ガラス内部への三次元一括加工を実現できたことから、有効な研究成果である。また計算領域を適切に絞り込む計算手法により、中間目標であるホログラム設計の従来比 3 倍以上の高速化、最終目標の従来比 10 倍以上の高速化を共に達成した。

a) 大規模計算のためのソフトウェアシステムの構築

ホログラム設計に必要な環境として、高性能 CPU を搭載した計算機器による HPC 基盤システムを構築した。従来のシステムでは、ホログラム設計に並列処理を用いても、64 万画素あたり約 100 時間費やすため、マルチコア環境に対応したハードウェアとソフトウェア技術を導入することは重要である。本システムは、従来のワークステーションや汎用 PC に比べ計算時間を大幅に短縮できるため有効なシステムである。

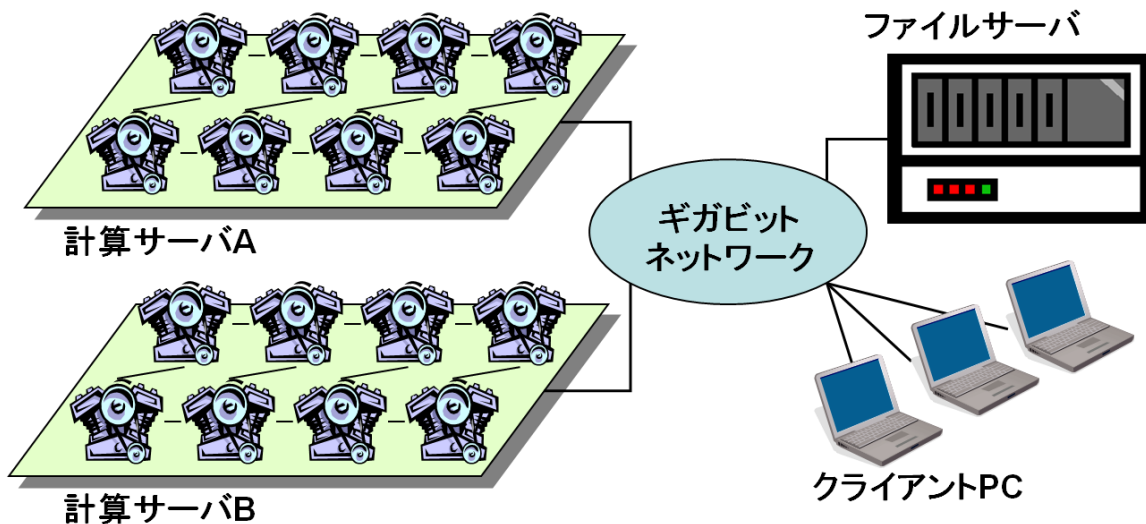


図 3-2-1-a-1. 計算システムの構成

図 3-2-1-a-1 に示す通り、本システムの構成は、デュアルコアプロセッサを 8 機と大容量メモリ (64GB) を搭載した 2 台の計算サーバと、RAID (Redundant Arrays of Inexpensive Disks) 機能を搭載した計算データ収録装置 (ファイルサーバ) をネットワーク接続したものである。これにより並列処理が可能となる。また加えて、最新の GPU コンピューティングシステムを導入し、よりスケラブルなシステムへと拡張した。

本システムを基にアプリケーション (例えば、光学シミュレータなど) を構築する場合、マルチスレッドプログラミング [5] や OpenMP [6]、MPI (Message Passing Interface) [7] などの並列計算技術を用いることで、効率的な大規模計算処理が実現できる。

b) 三次元物体を表現するホログラム設計手法の開発

ホログラム生成には、式 1 に示すフレネル-キルヒホッフの回折積分 [1, 2] を基に、光学的要件 (結像距離や開口サイズなど) を考慮に入れた近似式を用いる場合が多い。例えば、ホログラムと結像位置が有限距離で配置するフレネルホログラム [3] や、無限遠で配置するフーリエ変換ホログラム [3] は、その主な代表例である。

$$U(P) = -\frac{iA}{2\lambda} \iint \frac{\exp\{ik(r_0 + r)\}}{r_0 r} [\cos(n, r_0) - \cos(n, r)] dS \quad (\text{式 1})$$

図 3-2-1-a-2 は式 1 に対応する回折モデルである。

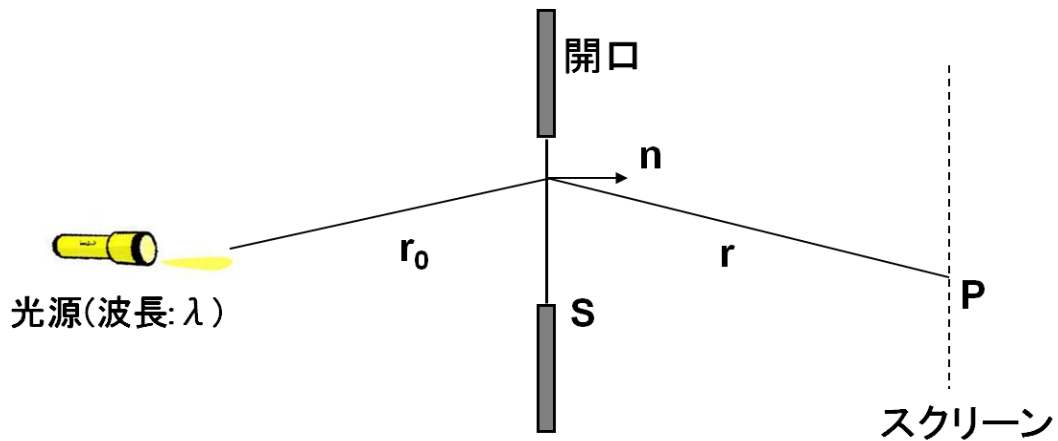


図 3-2-1-a-2. フレネルーキルヒホッフの回折モデル

図 3-2-1-a-2 中の r_0 は光源からの開口上の点への距離を、 r は開口上の点からスクリーン上の観測点への距離を示す。 n は開口面との法線、 A は定数、 λ は波長を示す。

本研究においても、フェムト秒レーザー加工システムを考慮して、フレネルーキルヒホッフの回折積分（式 1）を展開することは重要である。本研究では主に次の 2 点に注目する。

- 光源が開口面（物体あるいはホログラム）から十分離れた位置（無限遠）にあり、光源からの入射波を平面波とみなす。
- 開口面から観測点までの距離に関する近似はしない。

これらを踏まえ、式 1 の展開を以下に示す。

まず、入射波 $\exp\{ikr_0\}/r_0$ は平面波とみなせるので一定となる。これと積分の外側の A を掛け A' とする。

$$U(P) = -\frac{iA'}{2\lambda} \iint \frac{\exp\{ikr\}}{r} [\cos(n, r_0) - \cos(n, r)] dS \quad (\text{式2})$$

また、光源から開口への入射波を示す単位ベクトル \vec{r}_0 と開口面との法線を示す単位ベクトル \vec{n} のなす角は 0° で、 $\cos(n, r_0) = 1$ となる。

$$U(P) = -\frac{iA'}{2\lambda} \iint \frac{\exp\{ikr\}}{r} [1 - \cos(n, r)] dS \quad (\text{式3})$$

\vec{n} と開口からの回折光を示す単位ベクトル \vec{r} （向きは回折波の進行方向とは逆方向）のなす角 (n, r) から、 $\mathcal{X} = \pi - (n, r)$ とすると、 $\cos(n, r) = -\cos\mathcal{X}$ となる。

$$U(P) = -\frac{iA'}{2\lambda} \iint \frac{\exp\{ikr\}}{r} [1 + \cos\mathcal{X}] dS \quad (\text{式 4})$$

最後に、開口関数 $f(x, y)$ を導入する。これは任意の物体の複素振幅分布を示す。

$$U(x', y') = -\frac{iA'}{2\lambda} \iint f(x, y) \frac{\exp\{ikr\}}{r} [1 + \cos\mathcal{X}] dx dy \quad (\text{式 5})$$

以上がフレネル-キルヒホッフの回折積分についての近似である。

次に、式 5 を基に三次元モデルに対応するように回折計算を拡張する。

$$F(x', y'; z) = \bigcup_{z=z_0}^{z_n} f_z(x, y) \quad (\text{式 6})$$

式 6 は、三次元モデル $F(x, y; z)$ を二次元に断層化することを示す。断層化における結像距離の範囲を、 $z_0 \sim z_n$ となる。ここで式 6 と式 5 に適用する。

$$U(x', y'; z) = \bigcup_{z=z_0}^{z_n} \left(-\frac{iA'}{2\lambda} \iint f_z(x, y) \frac{\exp\{ikr\}}{r} [1 + \cos\mathcal{X}] dx dy \right) \quad (\text{式 7})$$

式7は、各々の層 f_z ごとに 式5の回折計算を施し、これらを合成することを示す。

以上を踏まえると、三次元物体のためのホログラム設計の流れは次の通りである。

- ① 目的の三次元物体を二次元モデルに分割する。
- ② 各々の二次元モデルごとにホログラムを生成する。
- ③ 生成したホログラム群を1つホログラムに合成する。

図 3-2-1-a-3 は、1 辺 $60 \mu\text{m}$ の立方体内に直径 $10 \mu\text{m}$ 以下の球状異質相を 4 個形成するためのホログラム設計を示す（図中の番号は上の箇条書き番号に対応する）。

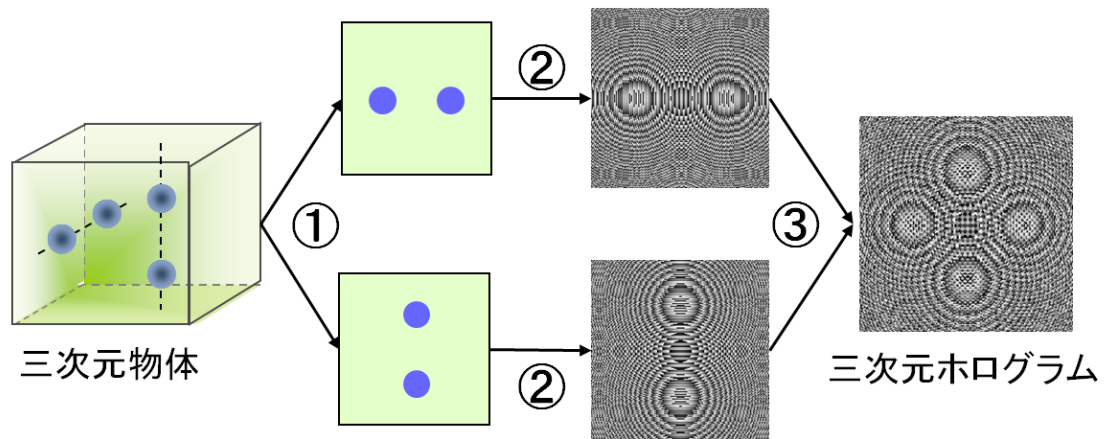


図 3-2-1-a-3. 三次元物体を形成するホログラム設計の概要

設計検証は計算機による波面再生にて行う。つまり、生成したホログラムデータを回折積分に代入し、結像距離ごとの二次元再生像を求め、これら再生像群を立体的に捉え、目的の三次元物体の形成を確認する。実際に図 3-2-1-a-3 で生成したホログラムの再生像を図 3-2-1-a-4 に示す。

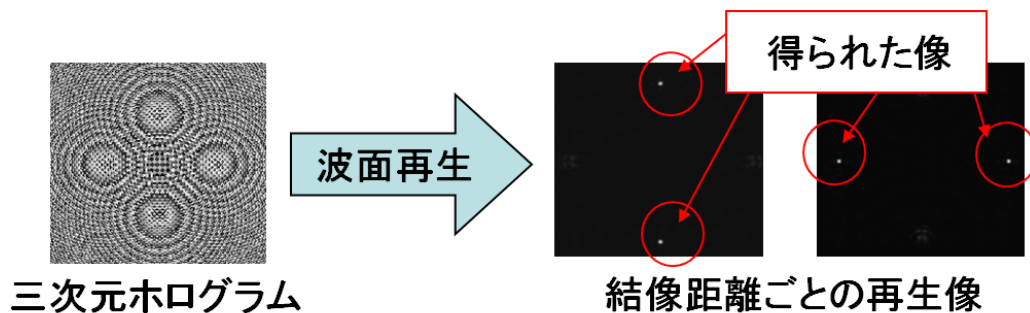


図 3-2-1-a-4. 計算機による波面再生の結果

c) ホログラム設計の高速化の実現

ホログラム設計の際、式 5 で示した回折積分の計算領域を適切に絞り込む計算手法を用いることで設計時間の短縮化を実現した。図 3-2-1-a-5 にホログラム生成の過程をより詳細に示す。

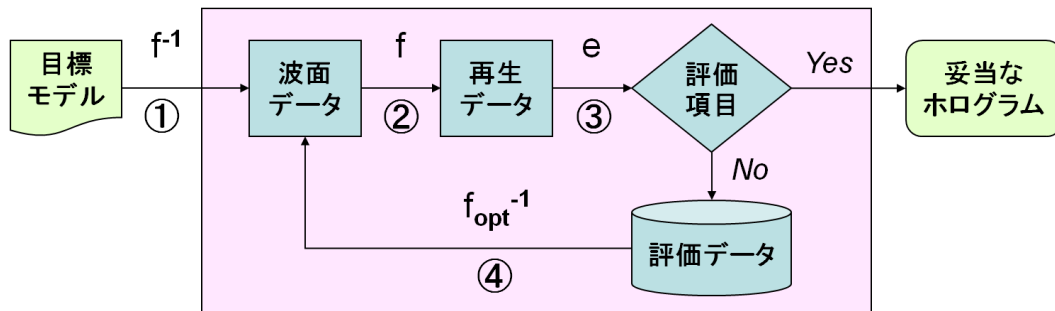


図 3-2-1-a-5. ホログラム生成の詳細モデル

図 3-2-1-a-5 中、 f は式 5 を、 f^{-1} は式 5 の逆変換を示す。 f_{opt}^{-1} は f^{-1} を拡張した変換を示す。また e は再生データと目標モデルを比べ、予め設定した評価項目をテストする関数である。ホログラム設計は、図 3-2-1-a-5 に示したような生成プロセスに基づくことが多い[4]。具体的には次の通りである（箇条書き番号は図 3-2-1-a-5 中の番号に対応する）。

- ① 加工用の目標モデルを定め、 f^{-1} により、これを表現する波面を求める。
- ② 求めた波面から、 f より、再生データを求める。
- ③ 評価関数 e により、評価項目をチェックする。

※十分な結果の波面データを妥当なホログラムとし、生成プロセスは終了する。

- ④ 評価データを基に、 f_{opt}^{-1} により、再び波面を求める。(⇒②へ)

②→③→④→②… の工程を最適化プロセスとする。これはホログラム生成の核となり、ホログラムの精度や設計の高速は、この最適化プロセスに依存する。

ここで、図 3-2-1-a-5 に示した生成モデルを基に、設計時間の短縮化について述べる。まず、ホログラム設計に掛かる合計時間 (CGH_{Time}) を以下の通りに示す。

$$CGH_{Time} = |f^{-1}| + (|f| + |e| + |f_{opt}^{-1}|)N \quad (式 8)$$

$|f^{-1}|$, $|f|$, $|e|$, $|f_{opt}^{-1}|$ は、各々に掛かる計算時間を示す。 N は最適化プロセスの回数を示す。このとき、 $|f^{-1}|$ は 1 回しか行われないので、 CGH_{Time} から除く。同様に、 $|e|$ は他の計算に比べて軽量なので、 CGH_{Time} から除く。

$$CGH_{Time} \Rightarrow (|f| + |f_{opt}^{-1}|)N \quad (式 9)$$

f_{opt}^{-1} は f^{-1} と同様に波面を求める計算である。 f^{-1} は目標モデルと光学条件（波長や結像距離など）を入力値とする。一方、 f_{opt}^{-1} は目標モデルと光学条件に加えて、波面再生の評価データを入力値とする。入力項目に違いはあるが、波面計算部は同じなので、計算時間はほぼ等しくなる。よって、|

f_{opt}^{-1} を $|f^{-1}|$ に置き換えることができる。

$$CGH_{\text{Time}} \Rightarrow (|f| + |f^{-1}|)N \quad (\text{式 } 10)$$

ここで、 $|f|$ と $|f^{-1}|$ について述べる。上で述べた通り、 f は式 5 の回折積分を示し、 f^{-1} はその逆変換である。つまり、 f は光源からの光波の進行方向と同じ方向への回折波面を求め、 f^{-1} は光源からの光波の進行方向とは逆向きの回折波面を求める。 f は f^{-1} (もしくは f_{opt}^{-1}) により求めた波面データと光学条件を入力値とする。よって、 $|f|$ と $|f^{-1}|$ の差は、波面データと目標モデルの違いに依存する。一般に f^{-1} の入力値である目標モデル $g(x, y)$ は、開口関数として以下の通りに定義する。

$$g(x, y) = \begin{cases} 1 & (\text{開口部}) \\ 0 & (\text{遮蔽部}) \end{cases} \quad (\text{式 } 11)$$

このとき、遮蔽部の値は 0 なので、この部分から算出される値も 0 となることは明らかである。よって、遮蔽部に関連する計算は、 CGH_{Time} から除くことができる。ここで、式 11 の開口部の占有率 ρ ($0 < \rho < 1$) と、 $|f|$ の計算時間 T を導入する。

$$\begin{aligned} CGH_{\text{Time}} &\Rightarrow (T + \rho T)N \\ &= (1 + \rho)TN \end{aligned} \quad (\text{式 } 12)$$

よって、式 12 がホログラム設計に掛かる合計時間になる。

本研究では、式 12 が示す設計時間を基にした短縮化手法を提案する。まずレーザー加工での用途を考慮すると、式 12 の ρ は往々にして小さな値であることが多い。例えば、64 万画素で 100 個の球を加工する場合 (1 球を 1 画素で表現する場合)、 $\rho = 100/640000 = 0.00015625$ となる。これは十分に小さい値であり、 $|f^{-1}|$ は $|f|$ に比べ、 CGH_{Time} への影響が小さいと考える。このため、 $|f|$ の計算時間を削減することが重要になる。

そこで、 f により求める再生データに対して計算領域を設定することで、 $|f|$ を削減することを提案する。つまり、目標モデルの開口部とその周辺部分のみの再生データを求め、評価関数 e への入力とするのである。ここで、領域係数 α (≥ 1) を導入し、短縮化した設計時間を CGH'_{Time} とする。

$$\begin{aligned}
CGH'_{Time} &\Rightarrow (\alpha\rho T + \rho T)N \\
&= (\alpha + 1)\rho TN
\end{aligned}
\tag{式 13}$$

|f|はTから $\alpha\rho T$ へと変化する。 $\alpha\rho$ は目標モデルの開口部とその周辺部分を含めた占有率であり、その範囲は、 $0 < \alpha\rho < 1$ である。ここで、設計時間の短縮率 β ($0 < \beta < 1$) を導入する。

$$\beta = \frac{CGH'_{Time}}{CGH_{Time}} = \frac{(\alpha + 1)\rho}{1 + \rho}
\tag{式 14}$$

式 14 を展開して、開口部の占有率 ρ と設計時間の短縮率 β に応じた領域係数 α が求まる。

$$\alpha = \frac{(1 + \rho)\beta}{\rho} - 1
\tag{式 15}$$

例として、上で述べた 64 万画素で 100 個の球を表現するホログラムを設計する場合を考える。式 15 に $\rho = 0.00015625$ 、 $\beta = 1/3$ (3 倍の短縮化) を代入すると、 $\alpha = 2132.666$ ($0 < \alpha\rho = 0.3332290625 < 1$) となる。これは 1 球あたり 2133 画素の計算領域を確保すれば、論理的に 3 倍の短縮化になることを示す。2133 画素は 46×46 画素の矩形領域に相当し、再生データの評価範囲としては十分である。同様に、 $\rho = 0.00015625$ 、 $\beta = 1/10$ (10 倍の短縮化) を代入すると、 $\alpha = 639.1$ ($0 < \alpha\rho = 0.099859375 < 1$) となり、1 球あたり 639 画素の計算領域を確保すれば、論理的に 10 倍の短縮化になることを示す。639 画素は 25×25 画素の計算領域に相当し、これでも再生データの評価は可能であると考えられる。

以上より、式 15 を用いて f の計算領域を適切に絞り込み、図 3-2-1-a-5 のホログラム生成プロセスを実行する計算手法により、設計時間の短縮化が可能となることを示した。実際に、三次元一括加工が可能な 64 万画素のホログラム設計の際、計算領域を 1 画素あたり 25×25 画素に絞り込むことで、約 12 倍の設計高速化を確認した。図 3-2-1-a-6 は、回折積分 1 回あたりの計算時間を測定した結果である。縦軸は計算時間を、横軸は適用した CPU コア数を示す。青色の折れ線は従来手法、赤色の折れ線は本手法の測定結果である。

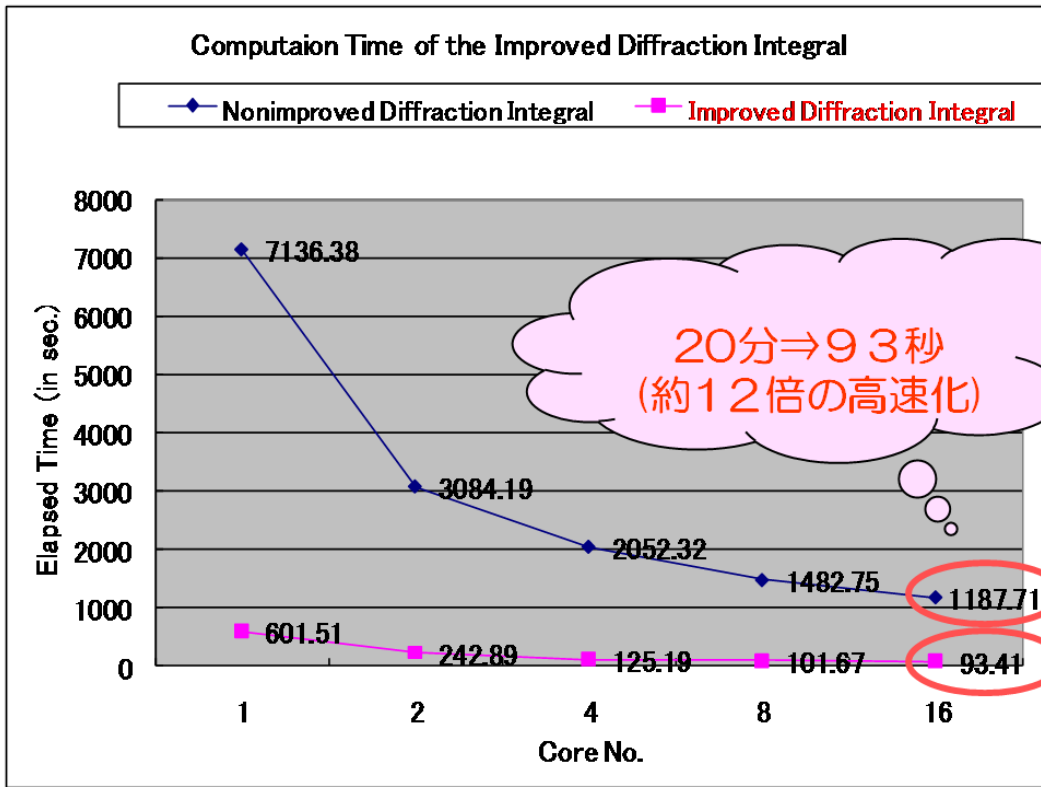


図 3-2-1-a-6. 回折積分 1 回あたりの計算時間測定の結果

d) 三次元ホログラム設計事例

ここでは、上の a) ~c) 節で述べたホログラム設計手法を用いた 5 つの設計事例を挙げる。内容は、①直線モデル、②三次元螺旋モデル、③三次元ドット面心立方格子モデル、④光軸平行直線モデル、⑤マルチレベル強度分布モデル、である。この 5 例により設計の柔軟性を示す。

i) 直線モデル

まず基本形状である直線形状の設計を試みる。直線形状は、例えば、回折格子を始めとする光学素子の製作を考慮する上でも、最も重要な形状の 1 つである。図 3-2-1-a-7 に直線モデルの設計概要を示す。

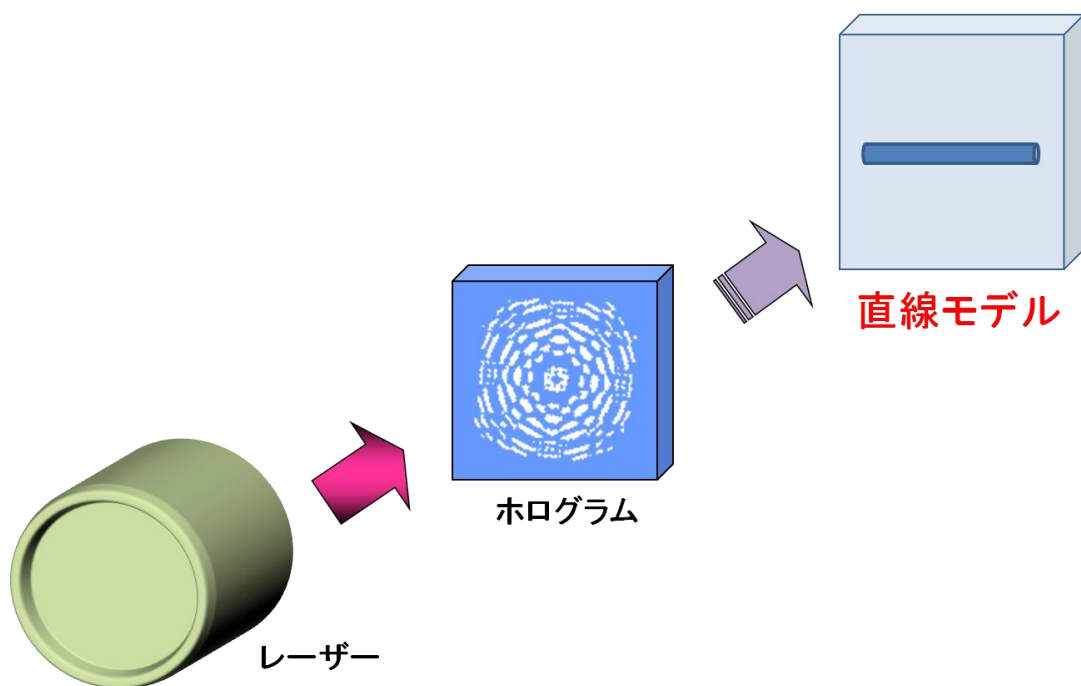


図 3-2-1-a-7. 直線モデルの設計概要

図 3-2-1-a-7 中の「レーザー」から発振したレーザー光は「ホログラム」を通すことで直線形状を形成する。ホログラムは設計によって、任意の位置、任意の長さの直線形状を形成できる。本設計事例においては、「ホログラム」から 100mm の位置に、長さ 2mm の直線形状を設計する。

図 3-2-1-a-8 に直線モデルの設計結果を示す。図 3-2-1-a-8 の「設計モデル」欄の通り、長さ 2mm の直線は、100 ピクセルで表現した。「CGH」欄には設計したホログラムパターンを示した。このパターンの外形は直径 8mm の円形である。これはレーザー加工で用いるビーム形状を考慮したものである。また、ホログラムパターンの階調数については、波面制御素子（例えば、ガラス・ホログラムや空間光変調器など）の仕様に応じて柔軟に対応できる。本設計事例では、2 階調でホログラムを設計した。

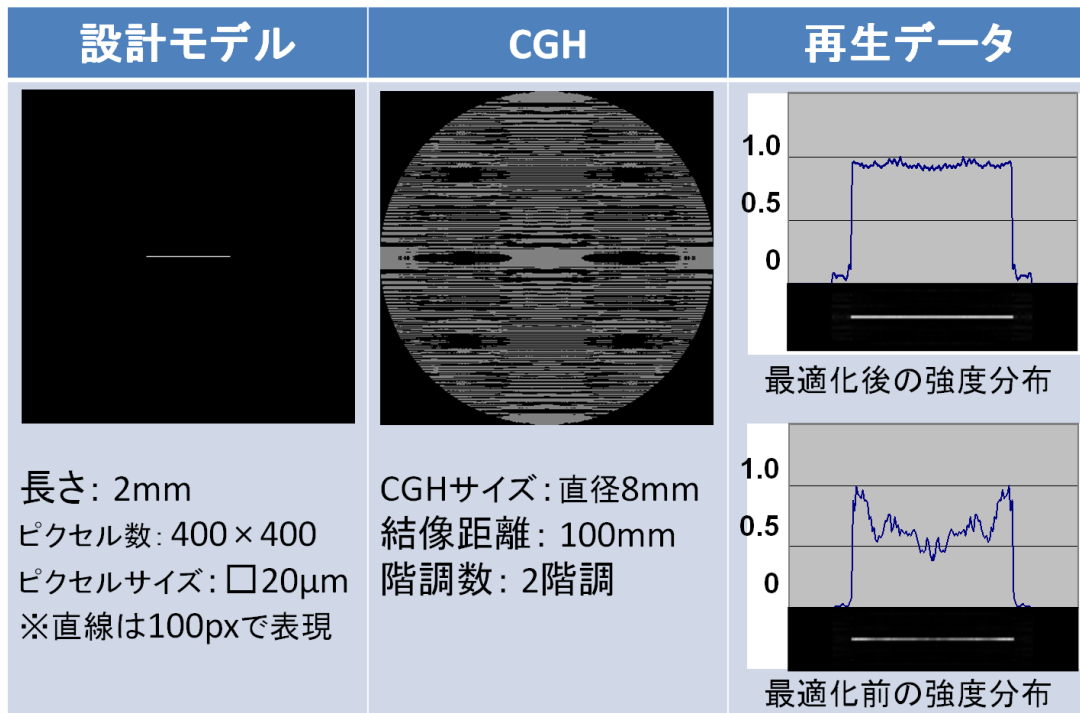


図 3-2-1-a-8. 直線モデルの設計結果

ホログラム設計には最適化処理が必要である。我々は単一方向性アルゴリズム [4] を基にした独自の反復計算手法により、最適化処理を実現した。直線モデルのホログラム設計において、最適化の効果を確認する。図 3-2-1-a-8 の右欄は、最適化前後の直線形状の計算機再生の結果である。右欄下側は最適化前の直線像とその強度分布である。中央部分の強度が低く均一性が十分でない。一方、右欄上側は最適化後の直線像とその強度分布である。右欄下側に比べ、均一性を大幅に改善できた。この事例からも最適化は重要な設計工程の 1 つである。本最適化手法は、直線モデル以外の任意の設計モデルで適用できる。

結像距離	再生データ				
500mm	-20mm	-10mm	±0mm	+20mm	+30mm
300mm	-6mm	-3mm	±0mm	+3mm	+9mm
100mm	-2mm	-1mm	±0mm	+1mm	+2mm

図 3-2-1-a-9. 直線ホログラムの結像距離とその前後での計算機再生の結果

図 3-2-1-a-9 は、3 つの結像距離（100mm、300mm、500mm）で設計した直線ホログラムの各々の結像距離とその前後での計算機再生の結果を示す。3 つの直線ホログラムは各々の結像距離（±0mm）では、所望の直線形状を形成している。ここで、各々の結像距離の前後の強度分布に注目する。結像距離 500mm の場合、-10mm～+20mm の間で光強度に違いはあるものの直線形状が確認できる。これは光軸方向への冗長性の高い強度分布である。同様に結像距離 300mm の場合、-3mm～+3mm の間で直線形状を形成している。結像距離 500mm に比べれば、光軸方向への冗長性は抑えられているが十分ではない。最後に結像距離 100mm の場合、-1mm と +1mm の位置では直線形状の光強度がかなり弱くなっていることが確認できる。つまり、±0mm 付近でしか直線形状を形成していないので、光軸方向への冗長性をよく抑えている。図 3-2-1-a-9 で示した結果から、同じ直線モデルでも、設計によって異なる性質（ここでは、光軸方向への冗長性）の直線形状を形成することを確認した。ターゲットとなるアプリケーションによって、この性質を上手く活用することは、ホログラムを用いたレーザー加工技術の重要な要素の 1 つである。

ii) 三次元螺旋モデル

1 つのホログラムから三次元形状を形成できる。三次元螺旋形状は、三次元形状の特徴的な形状であり、三次元特有の複雑さである「光軸方向へ重なり」を含む事例である。この「光軸方向への重なり」は、例えば、三次元光ストレージにおいて、ビット列を三次元的に一度で配置する場合に非常に有用な要素となる。

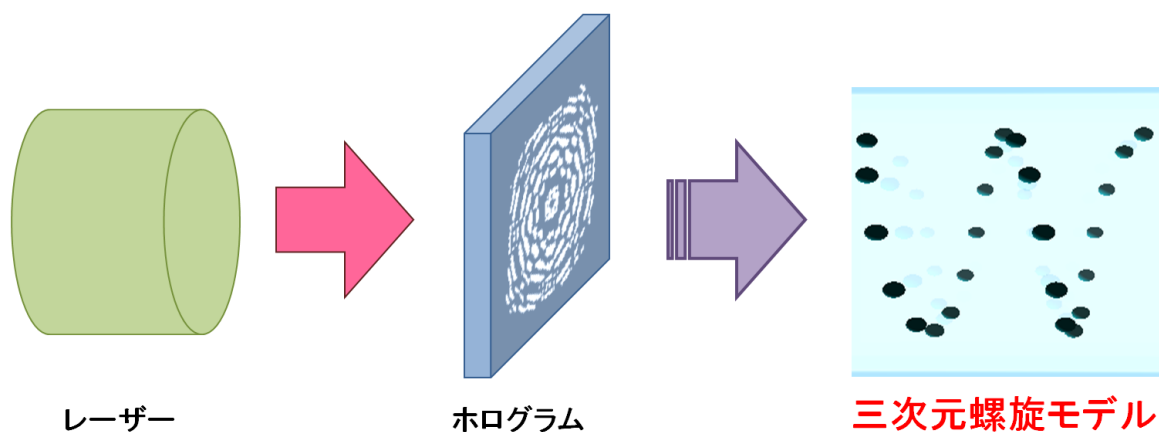


図 3-2-1-a-10. 三次元螺旋モデルの設計概要

図 3-2-1-a-10 は、三次元螺旋モデルの設計概要を示す。螺旋は 24 個のドットを 24 層に配置することで表現する。「光軸方向への重なり」は、(1 層, 13 層) (2 層, 14 層) (3 層, 15 層) (4 層, 16 層) (5 層, 17 層) (6 層, 18 層) (7 層, 19 層) (8 層, 20 層) (9 層, 21 層) (10 層, 22 層) (11 層, 23 層) (12 層, 24 層) の 12 組ある。

図 3-2-1-a-11 は、三次元螺旋モデルの設計結果である。「CGH」欄に設計したホログラムパターンを示す。上の i) 節で示した直線ホログラムと同様、このパターンの外形は直径 8mm の円形で、2 階調で設計した。「再生データ」欄は、三次元螺旋ホログラムの 24 層分の計算機再生の結果である。

「光軸方向への重なり」となる 12 組は、各々光軸方向上に分離したドットとして強度分布が生成されており、設計が良い結果となったことを示す。

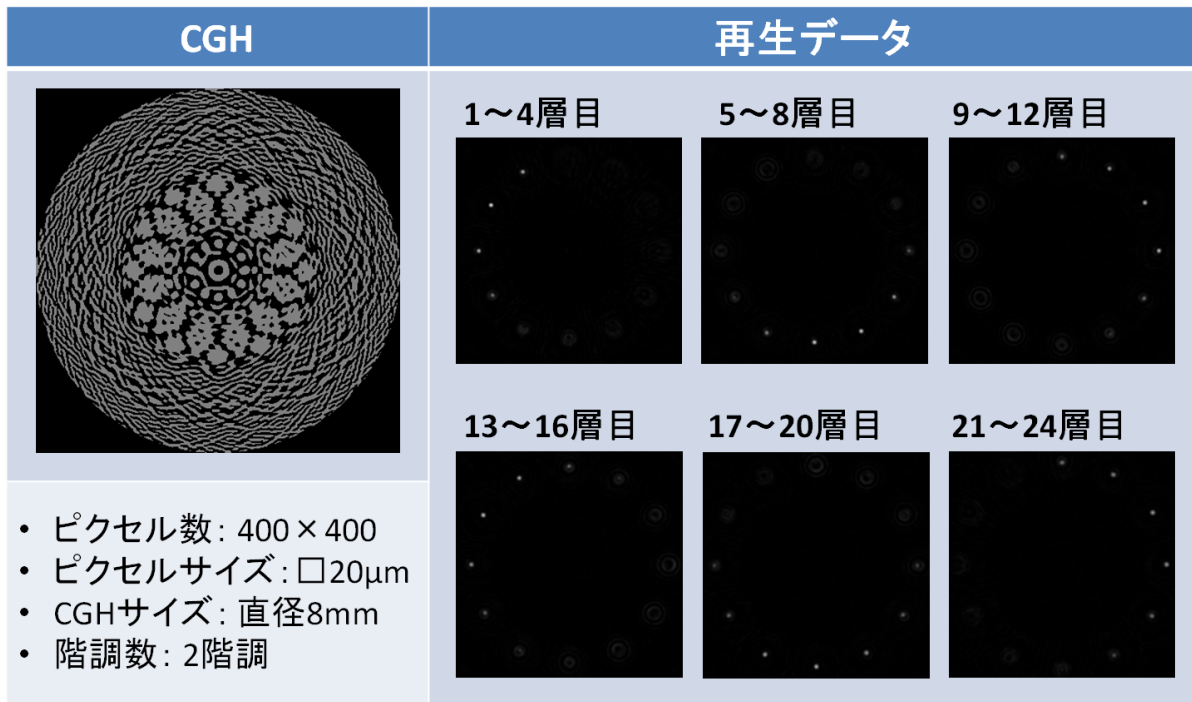


図 3-2-1-a-11. 三次元螺旋モデルの設計結果

iii) 三次元ドット面心立方格子モデル (異質相 100 個)

さらに複雑な三次元形状の設計を試みる。ここでは、最終目標でもある 100 個の異質相を一括で表現するためのホログラムを考慮する。

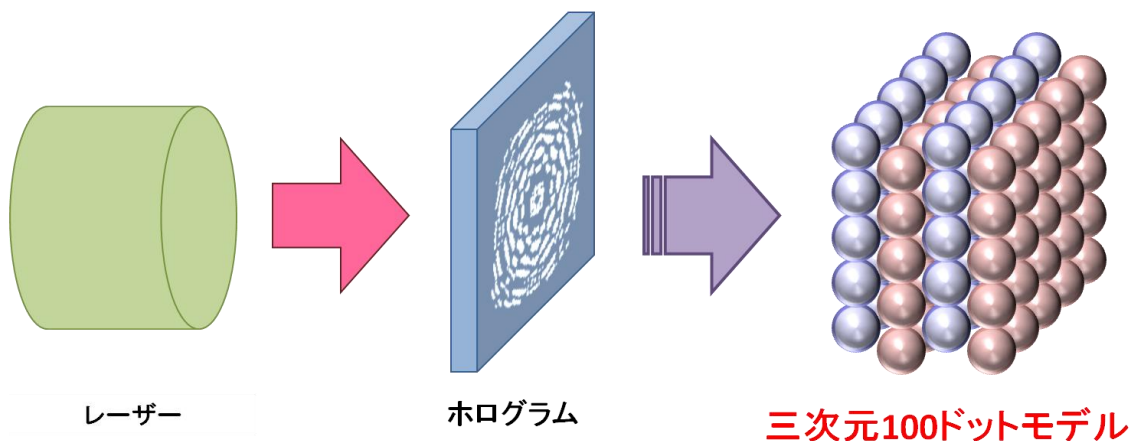


図 3-2-1-a-11. 三次元ドット面心立方格子モデルの設計概要

図 3-2-1-a-11 は、三次元ドット面心立方格子モデルの設計概要である。100 個の異質相は、5×5 の平面格子を 4 層分配置することで表現する。1 層目と 3 層目、2 層目と 4 層目を「光軸方向への重なり」として構成することで、三次元面心立方格子とする。

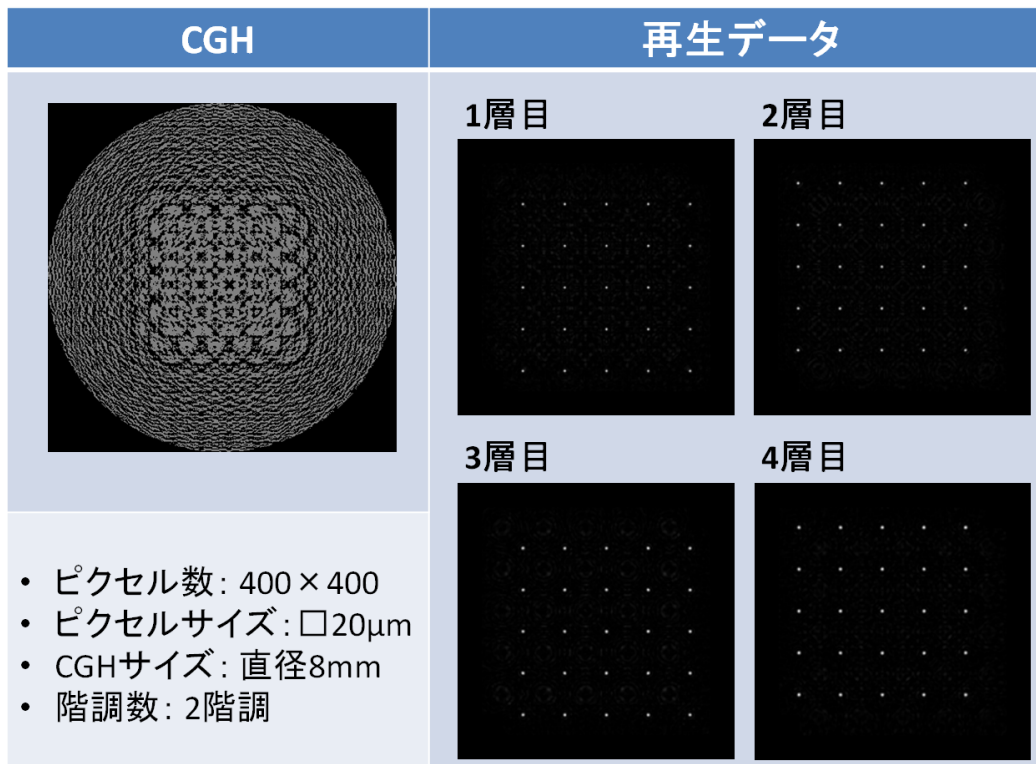


図 3-2-1-a-12. 三次元ドット面心立方格子モデルの設計結果

図 3-2-1-a-12 は、三次元ドット面心立方格子モデルの設計結果である。「CGH」欄には、設計したホログラムパターンが、直径 8mm の円形として 2 階調で表現されている。「再生データ」欄には、4 層分の計算機再生の結果がある。1 層目と 3 層目の再生データを見ると、XY 平面（光軸との垂直平面）上、同じ位置に各々 25 個のドット形状の強度分布がある。これらは、2 層目と 4 層目にはないので、25 組の「光軸方向への重なり」を実現したと確認できる。同様に、2 層目と 4 層目の各々の 25 個のドット形状強度分布に関しても、「光軸方向への重なり」を実現したと確認できる。これにより、100 個の異質相を一度に表現するホログラムの設計を達成した。

iv) 光軸平行直線モデル（長焦点深度ホログラム）

三次元形状を表現するホログラムの応用として、光軸と平行な直線形状の設計を試みる。これは、i) 節で示した直線形状とは垂直の位置関係になる。この光軸平行直線形状も、基本的な形状の 1 つであり、例えば、三次元回路や三次元流路などを考慮する場合、非常に重要な要素となる。

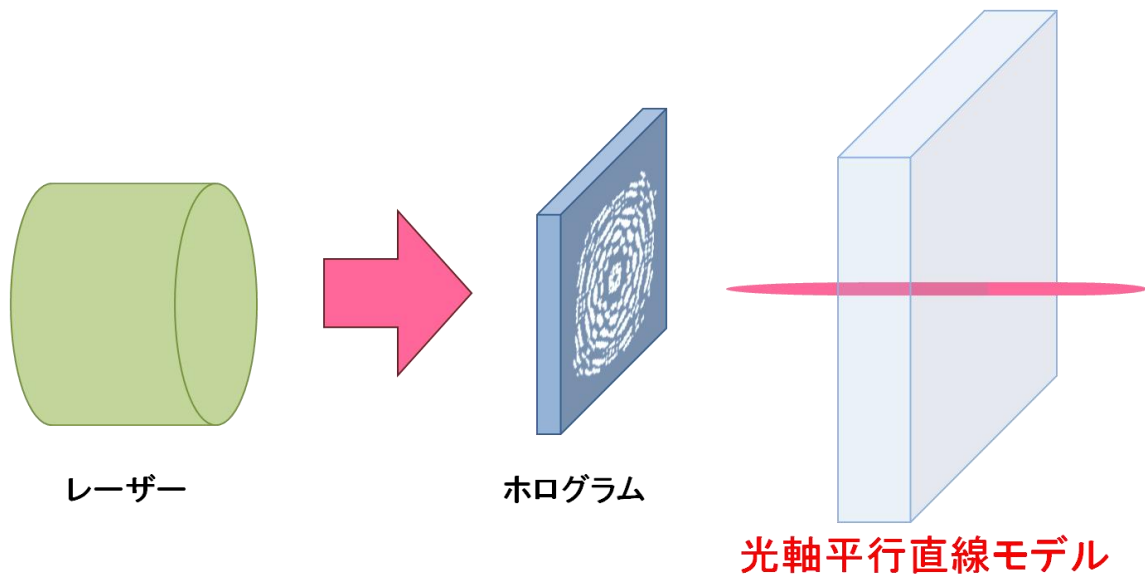


図 3-2-1-a-13. 光軸平行直線モデルの設計概要

図 3-2-1-a-13 は、光軸平行直線モデルの設計概要である。図中に示す通り、加工サンプルを貫通するように光強度分布を形成する。ii) 節と iii) 節で示した三次元形状とは異なり、「光軸方向への重なり」については、不連続な部分がないように設計する必要がある。

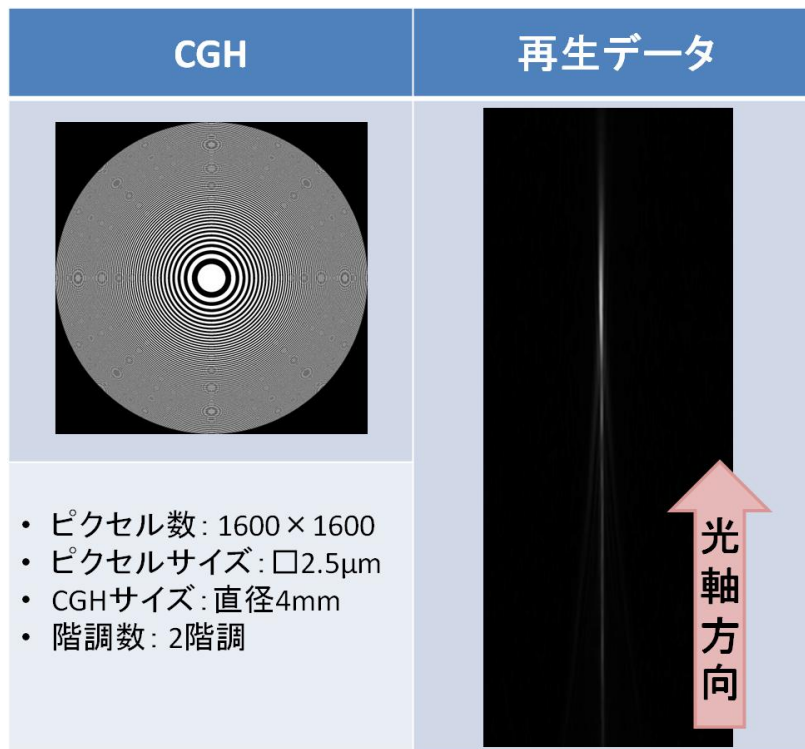


図 3-2-1-a-14. 光軸平行直線モデルの設計結果

図 3-2-1-a-14 は、光軸平行直線モデルの設計結果である。「CGH」欄には、設計したホログラムパターンが直径 4mm の円形として 2 階調で表現されている。「再生データ」欄には、設計したホログラムの計算機再生の結果が XY-Z 平面上に示されている。光線は下から上へ進む。強度分布の形状を見ると、光軸と平行な細長い棒状になっていることが確認できる。これは、所望の光軸平行直線形状であり良い設計結果である。

ここで、この光軸平行直線形状を形成するホログラムを「長焦点深度ホログラム」と呼ぶことにする。

v) マルチレベル強度分布モデル

ここでは、マルチレベルの光強度値で所望の形状を一度に形成するホログラム設計を試みる。i) 節～iv) 節までに設計したモデルでは、光強度の値は 1 つであった。つまり、光強度分布があるか否か（白黒）で形状を表現していた。本事例では、この光強度の値を複数にしてモデルを表現し、一度にこれら複数の光強度値を持つ形状を形成するホログラムを設計する。

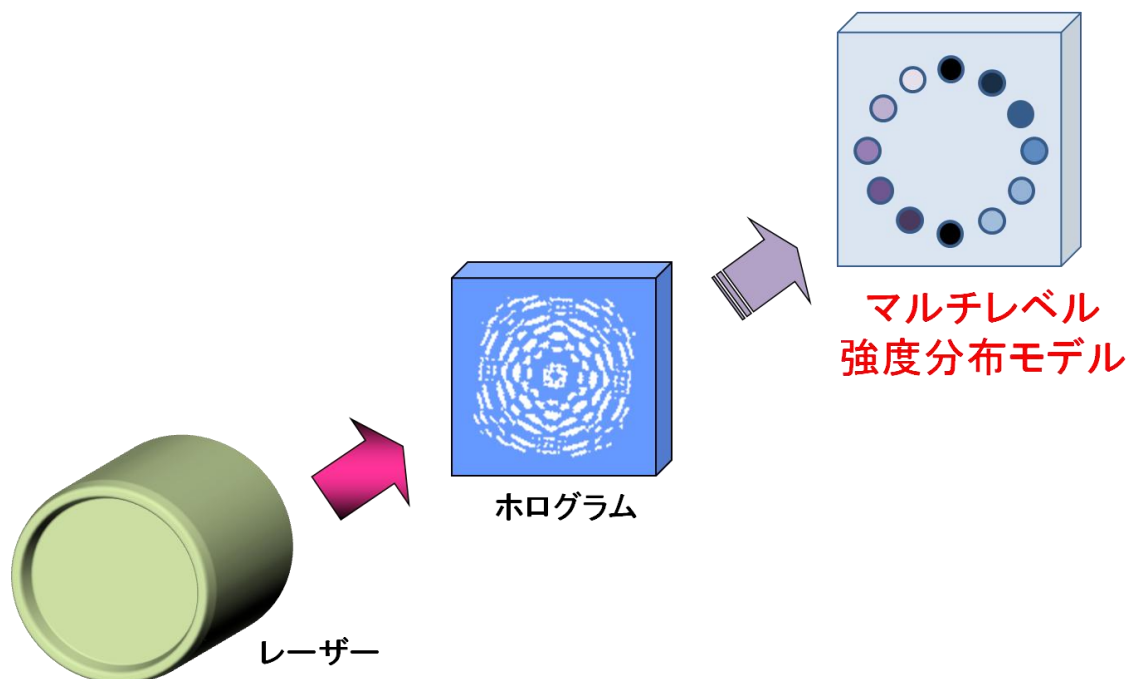


図 3-2-1-a-15. マルチレベル強度分布モデルの設計概要

図 3-2-1-a-15 は、マルチレベル強度分布モデルの設計概要である。図で示す通り、12 個のドット

を同一円周上に等間隔で配置することで、11種類の光強度値を表現する。同一円周上にドットを配置する理由は、ビームプロファイル（ガウシアン分布）の影響でなく、ホログラムパターンからの回折によって、光強度値が制御できることを確認するためである。


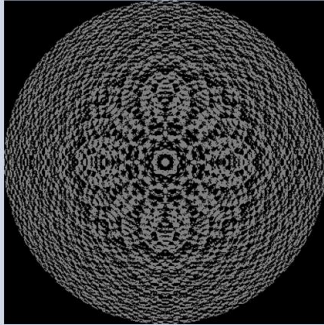
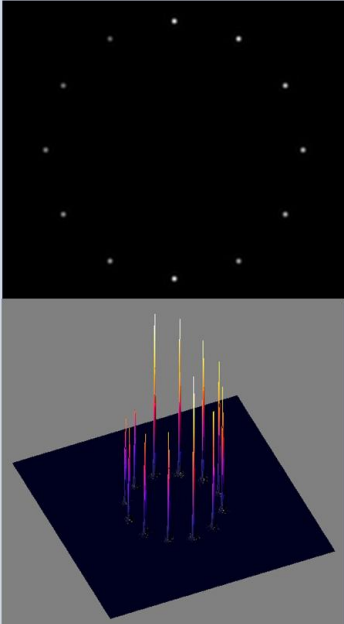
設計モデル	CGH	再生データ
		
<ul style="list-style-type: none"> 強度階調数：11階調 強度最小値：最大値/2 	<ul style="list-style-type: none"> ピクセル数：400 × 400 ピクセルサイズ：□20μm CGHサイズ：直径8mm 階調数：2階調 	

図 3-2-1-a-16. マルチレベル強度分布モデルの設計結果

図 3-2-1-a-16 は、マルチレベル強度分布モデルの設計結果である。「設計モデル」欄には、光強度値の詳細な設定が示されている。光強度値の最大値を 100%として、その最小値を 50%に設定し、5%ずつ段階的に光強度値に変化を与えた。「CGH」欄には、設計したホログラムパターンが直径 8mm の円形として 2 階調で表現されている。「再生データ」欄は、設計したホログラムの計算機再生の結果である。上側は XY 平面（光軸と垂直平面）の再生データで 12 個のドットが確認できる。下側は光強度の値を高さとして表現した三次元プロファイルデータである。光強度値の最大値から段階的に減衰しており、最小値は、概して最大値の半分程度である。これにより、2 階調のホログラムでマルチレベルの光強度値を持つ形状を形成できることが確認できた。

e) 光デバイスとしてのホログラム素子の応用

本プロジェクトでは、ホログラムはフェムト秒レーザー加工の高効率化を図るために導入する波面制御素子である。このための設計手法や基本設計事例は、a) 節～d) 節で述べた。しかし、我々が設計する三次元ホログラムはレーザー加工用ツール以外にも活用できると考える。そこで、本節ではホログラムが生成する光強度分布を信号処理ツールとして用いることを考慮する。ここでは、このホログラムによる情報伝達をホログラム信号処理と呼ぶこととする。このホログラム信号処理の事例として、「蛍光ガラスによるホログラム信号処理」と「イメージコンジットによるホログラム信号処理」、「段差面によるホログラム信号処理」を挙げる。

i) 蛍光ガラスによるホログラム信号処理

図 3-2-1-a-17 は、蛍光ガラスと UV レーザーを用いたホログラム信号処理の概要を示す。これは、200nm～400nm の紫外光を高効率で可視光に変換する蛍光ガラス[8]をターゲットにして、UV レーザーによってホログラムを波面再生することで、所望の形状を蛍光ガラス上に可視光で受信するものである。

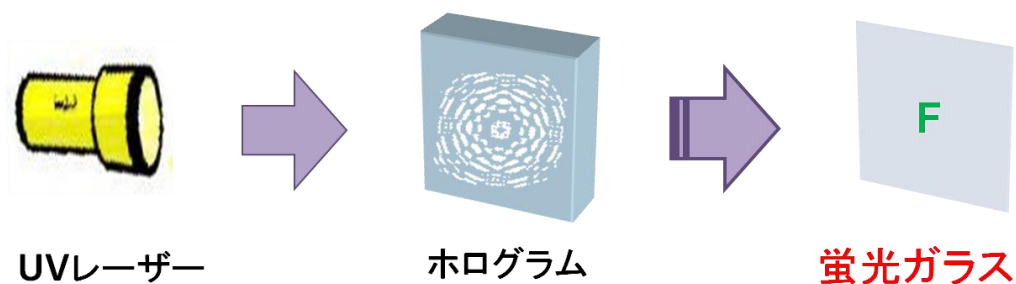


図 3-2-1-a-17. 蛍光ガラスを用いたホログラム信号処理モデル

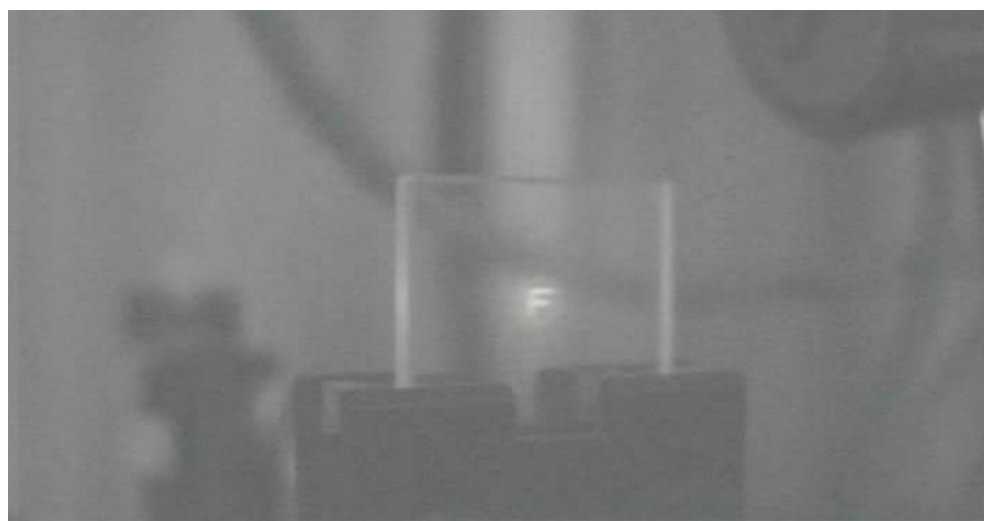


図 3-2-1-a-18. 蛍光ガラスへの「F」信号の伝達結果

図 3-2-1-a-18 は、実際に蛍光ガラスへ「F」信号を伝達した結果である。蛍光ガラスの中心部に「F」が表示されていることから、所望の信号処理の実現が確認できた。UV レーザーのスイッチを切れば、信号表示も消え、透明なガラスとして機能する。また別の応用事例として、簡易的な透明ガラススクリーンへの適用も考慮できる。

ii) イメージコンジット (像導伝管) によるホログラム信号処理

図 3-2-1-a-19 は、イメージコンジットを用いたホログラム信号処理の概要を示す。イメージコンジットとは、細い光ファイバを数万～数百万本整列させて、熔融させたガラスブロックのことである。このイメージコンジットの端面をターゲットにして、ホログラムを波面再生することで、所望の形状を反対側の端面で受信するものである。

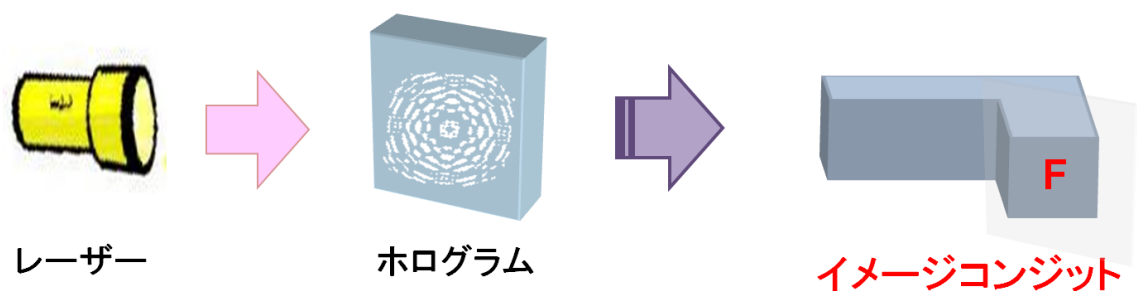


図 3-2-1-a-19. イメージコンジットを用いたホログラム信号処理モデル

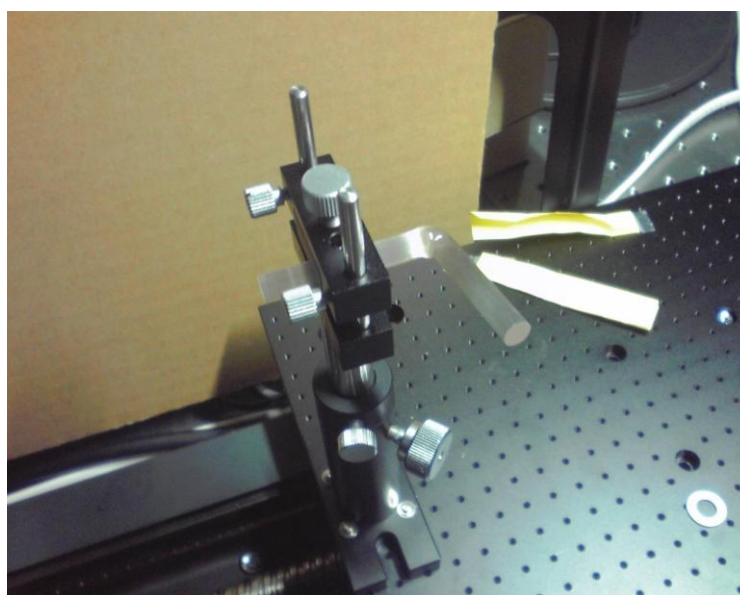


図 3-2-1-a-20. L字型イメージコンジットの実物像

図 3-2-1-a-20 は、実際に用いた L 字型のイメージコンジットの写真である。図 3-2-1-a-21 は、この L 字型イメージコンジットの端面を拡大したもので、この時、反対側の端面から「F」信号を伝達した結果である。イメージコンジットの端面中心部分に「F」が表示されていることから、所望の信号処理の実現が確認できた。イメージコンジットは光ファイバの集まりであることから、ホログラムによって、通信のための光線の分岐やスイッチ機能の実現への可能性を示した。



図 3-2-1-a-21. イメージコンジットへの「F」信号の伝達結果

iii) 段差面によるホログラム信号処理

ここでは、段差のある面に対するホログラム信号処理を試みる。図 3-2-1-a-22 は、段差面を考慮した三次元ホログラムの設計概要である。ここでは、段差 10mm の 3 段平面をターゲットにする。

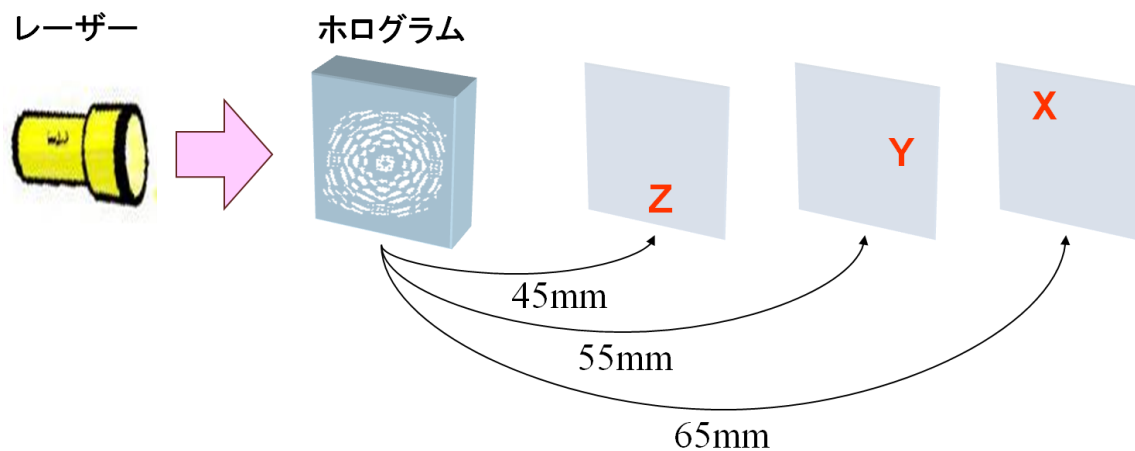


図 3-2-1-a-22. 段差面ホログラム信号処理のための三次元ホログラムの設計モデル

図 3-2-1-a-23 は、段差のある面に各々「X」「Y」「Z」信号を伝達した結果である。図 3-2-1-a-22 の設計モデルを基にしたホログラムからの波面再生により、所望の信号処理が実現したことが確認できた。

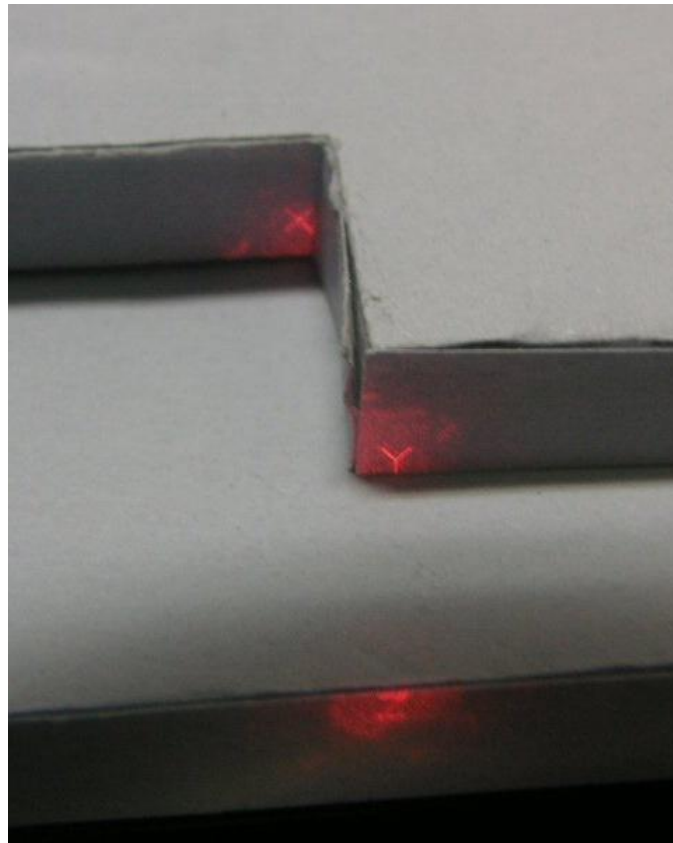


図 3-2-1-a-23. 段差面を用いた「X」「Y」「Z」信号の伝達結果

参考文献

- [1] M. Born and E. Wolf 著, 草川徹, 横田英嗣 訳: “光学の原理Ⅱ”, 東海大学出版会, 1975.
- [2] E. Hecht 著, 尾崎義治, 朝倉利光 訳: “ヘクト光学Ⅱ —波動光学—”, 丸善株式会社, 2003.
- [3] 物理学辞典編集委員会編: “物理学辞典改訂版[縮刷版]”, 培風館, 1992.
- [4] B. Kress and P. Meyrueis 著, 小館香椎子 監訳, 藤野誠, 駒井友紀 訳: “デジタル回折光学”, 丸善株式会社, 2005.
- [5] Bil Lewis, Daniel J. Berg 著, 岩本 信一 訳: “Pスレッドプログラミング”, ピアソン・エデュケーション, 1999.
- [6] OpenMP Architecture Review Board: “OpenMP.org”, <http://openmp.org/wp/>, 2008.
- [7] “Message Passing Interface (MPI) Forum Home Page”, <http://www.mpi-forum.org/>,
- [8] 株式会社住田ガラス ルミラス -機能性蛍光ガラス- ホームページ, <http://www.sumita-opt.co.jp/ja/products/optical/lumilass.html>

(b) 光デバイスと光情報処理用ホログラムの設計技術

a) はじめに

近年のインターネットや携帯電話の普及による通信需要の増大により、情報ネットワークの高速化・大容量化が求められており、光通信システムの高機能化が重要である[1-4]。また、スーパーコンピュータ等では、CPU間、CPUの内部においても高速かつ大容量のデータ通信を行う必要があり、電気配線から光配線（光インターコネクション）[5]へのシフトが始まっている。これらを構成する光デバイスの安価な大量生産方法の開発が重要となっている。

フェムト秒レーザーパルスガラス等の透明体内部に集光すると非線形光学効果による多光子吸収が起こり、集光部周辺のみで屈折率変化等の異質相が形成される。この現象を利用したガラス内部への様々なデバイスの試作が報告されており[6]、1つのプロセスで光デバイスを作製できる点がフェムト秒レーザー加工の利点である。

これらの試作では、対物レンズでフェムト秒レーザーパルスをガラス内部に集光し、ガラスを固定したステージを走査することでデバイスを作製する。このため、デバイス作製時間が長く、ステージの走行時の振動等の外乱により加工精度が制限される。また、通常はフェムト秒レーザー光源から供給されるパルスエネルギーより下げて加工を行うため、エネルギー効率が悪い。

このような問題を解決するための1つの方法がホログラムを使ったフェムト秒レーザー一括加工である。回折格子[7]や多光束干渉[8、9]等を使った加工方法もあるが、これらは加工形状に制限があり、加工の自由度はホログラムを使った場合の方が高い。文献[10]ではガラス・ホログラムを使って、非周期的に配置された多数のスポットが一括加工できることを示した。文献[11]では3次元のスポットが1つのホログラムで一括加工可能であることが示された。また、文献[12]では、LCOS-SLMを使って動的にホログラムを変えて、多数のスポットを加工する試みも行われている。

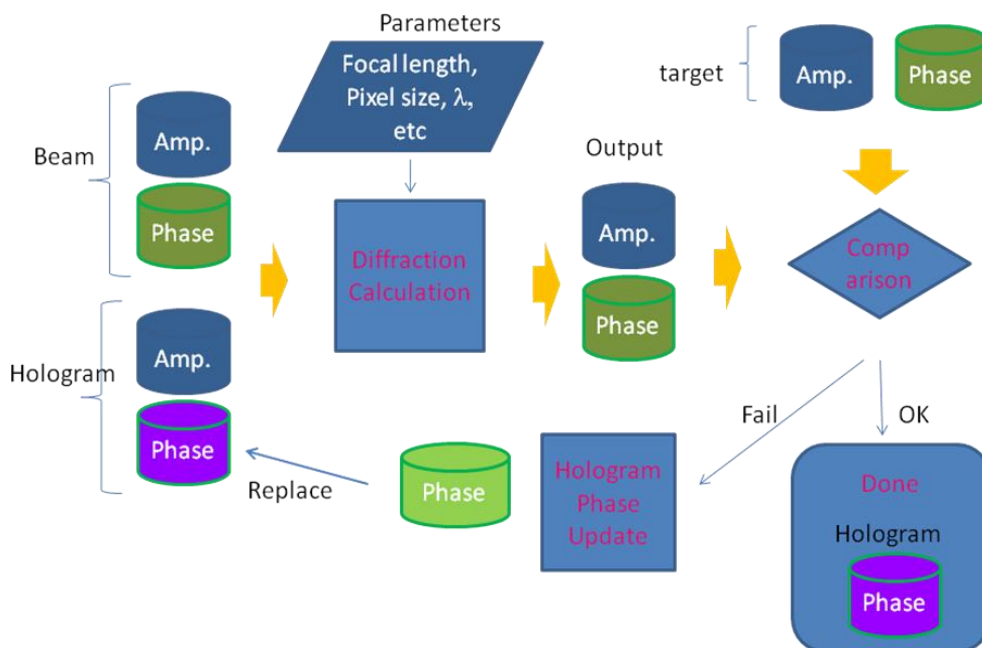
文献[10-12]では、複数のスポットを配置した構造の一括加工で、直線や曲線の一括加工の報告はされていなかった。本章では、全長約1cm程度の直線、曲線、円を、縮小光学系を用いず等倍(1:1)でガラス内部に一括加工するための位相ホログラム設計方法の検討を行った。設計したホログラムでは、直線、曲線、円を高い像質で再生することができた。また、すでに設計されたホログラムを2つ組み合わせ、複雑な強度分布を再生する方法、ホログラム合成方法について検討した。

b) ホログラム設計方法とその具体例

ホログラムには振幅を変調する振幅型、位相を変調する位相型、両方を変調することも原理的には可能である。振幅型ホログラムは、入射波の振幅を減衰することにより、振幅を変調するためエネルギー利用効率が低くなる。フェムト秒レーザー一括加工用ホログラムとしては、入射レーザーのエネルギーをできるだけ利用することのできる位相型が適している。また、ガラス内部に集光されたフェムト秒レーザーは非線形光学効果による多光子吸収により異質相を形成する。この多光子吸収の閾値効果により、強度の高い部分のみで吸収が起こるといった特徴がある。このため、ホログラムの生成す

る再生像には高い一様性が要求される。つまり、直線導波路や曲線導波路を一括加工で作製するためには線上の強度一様性が重要である。一方、ノイズは閾値以下ならば吸収されないため、閾値以下のノイズは許容される。

計算機ホログラフィ[13-16]を基にしたさまざまな位相ホログラムの設計手法が考案されている。例えば、GS法[17]、Optimal Rotation Angle法[18]、Simulated Annealing法[19]等である。ここでは、図(2)(b)-1に示すようなアルゴリズムで位相ホログラムを計算する。とくに、線上の強度の一様性を高くなるように注意している。



図(2)(b)-1 位相ホログラム計算概略図

以下では、直線、曲線、円を再生するホログラムの設計について述べる。なお、一括加工で使用するフェムト秒レーザーの波長が800nmであるため、ホログラムの設計、再生像の計算には断りがない限り、波長は800nmを用いる。

・直線を生成する位相ホログラムの設計 ([20-22])

入射レーザーの強度分布はガウス分布($\sigma = 3.5\text{mm}$)とし、直線の全長 $L = 3.5\text{mm}$ 、結像距離: 8.5cm 、ピクセルサイズ: $10\mu\text{m}$ 、ホログラムサイズ: $7\text{mm} \times 7\text{mm}$ (700×700 ピクセル)で、位相段数 256 段、4 段、2 段の位相ホログラムを計算した。位相 256 段では十分に小さな位相ステップでの計算しているため、理想的な場合と考えることができる。フレネル近似による回折計算[13-16]を行い、これらのホログラムの再生像強度を得た(図(2)(b)-2)。図(2)(b)-3は直線上の強度プロファイルで、階調化により、強度は低くなっているが、再生された直線の強度の一様性の劣化は小さく、直線外部のノイズも小さい。また、直線の全長 $L = 11\text{mm}$ 、結像距離: 8cm 、ピクセルサイズ: $5\mu\text{m}$ 、ホログラムサイズ: $12.5\text{mm} \times 12.5\text{mm}$ (2500×2500 ピクセル)のホログラム位相分布も計算できており、(2)(g)章で示されているように、フェムト秒レーザー一括加工で導波路が作製されている[26]。

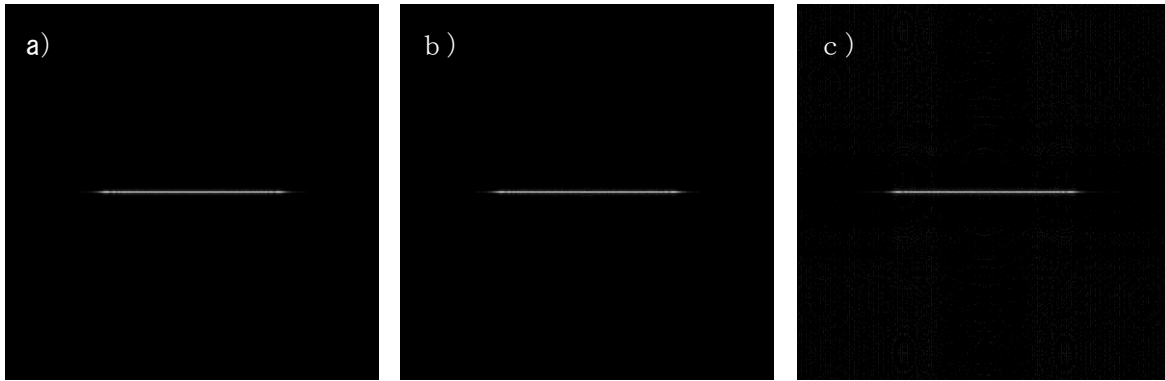


図 (2) (b) - 2 直線を再生する位相ホログラムの計算による再生像 a) 位相 2 5 6 段 b) 位相 4 段

c) 位相 2 段

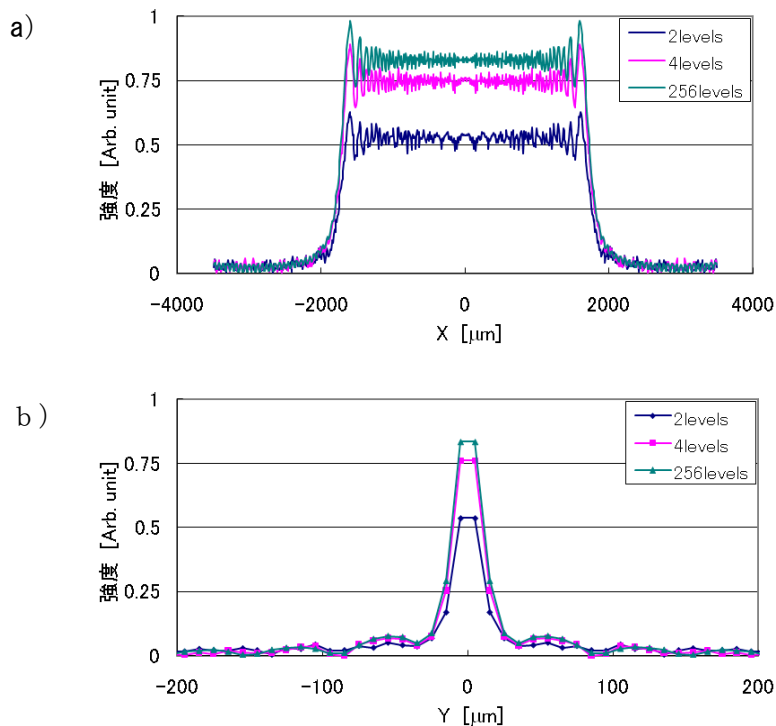


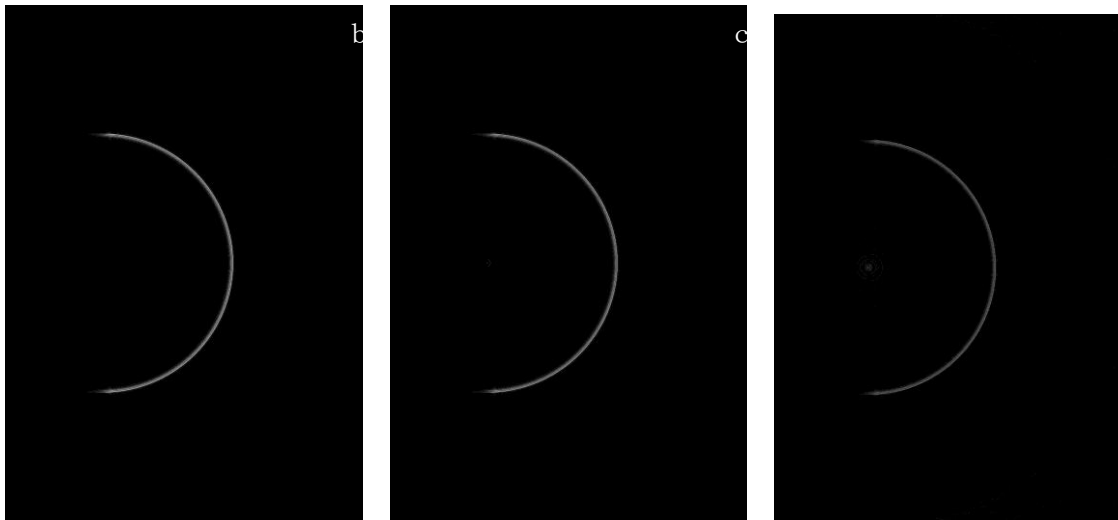
図 (2) (b) - 3 図 (2) (b) - 3 の再生像強度のプロファイル a) 直線上のプロファイル b) 直線に垂直な方向のプロファイル

・曲線を生成する位相ホログラムの設計 ([2 1])

ここでは曲線の一例として半円を生成する位相ホログラムの設計について述べる。曲線導波路では、直線導波路で問題となる伝搬損失だけでなく、曲げ損失も考慮する必要がある。曲げ損失はレーザー照射部分と母材の屈折率差 (Δn) に強く依存し、ガラス種類やレーザー加工条件により異なる。これまでフェムト秒レーザーを用いた合成石英への加工で得られている結果は $\Delta n \approx 0.01$ 程度 [2 3] であり、曲線導波路の曲げ損失を抑えるためには半径は数 mm 程度必要となる [4、2 4]。したがって、半径が数 mm の半円を一括加工することがホログラムには要求される。

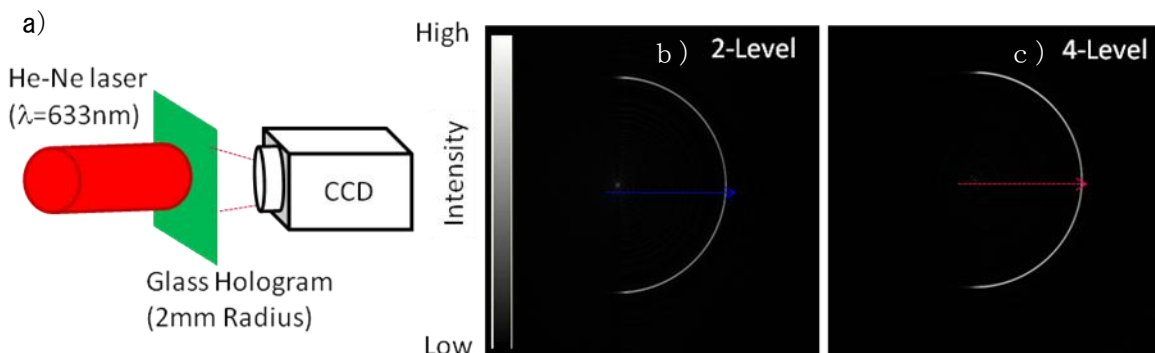
半径 2 mm (弧長 6.28 mm)、ピクセルサイズ: 5 μm 、ホログラムサイズ: 8 mm \times 8 mm (1600 ピク

セル×1600 ピクセル)、結像距離：5 cm として、位相段数 256 段、4 段、2 段の場合の位相ホログラムを計算した。これらの設計結像距離での再生像をフレネル近似での伝搬計算により計算し、図(2)(b)-4に示した。図(2)(b)-4 a)の位相 256 段での再生像では設計通り半円強度が生成されている。しかし、位相 4 段と位相 2 段での再生像の場合は、半円の中心付近にスポット状に強度の高いノイズが存在する。これは、再生像の半径にも依存して、半径が大きいほどノイズが高くなる傾向がある。



図(2)(b)-4 半円を再生する位相ホログラムの計算による再生像 a) 位相 256 段 b) 位相 4 段 c) 位相 2 段

位相 4 段と位相 2 段のホログラムを作製し、He-Ne レーザー (波長：633nm) を照射し、再生像を観察した (図(2)(b)-5 a))。図(2)(b)-5 b) と図(2)(b)-5 c) は He-Ne レーザーでの再生像である。図(2)(b)-6に強度プロファイルを示した。計算上の再生像と同様に、半円の中心にスポットノイズがあるが、位相 2 段に比べて位相 4 段の場合の方が低い。このように半円強度を再生するホログラムでは、中心付近にノイズが現れるため、このノイズが問題となる場合は位相 4 段以上でホログラムを設計する必要がある。



図(2)(b)-5 He-Ne レーザーでの半円再生像の観察 a) 観察系概略図 b) 位相 2 段の場合の再生像強度 c) 位相 4 段の場合の再生像強度

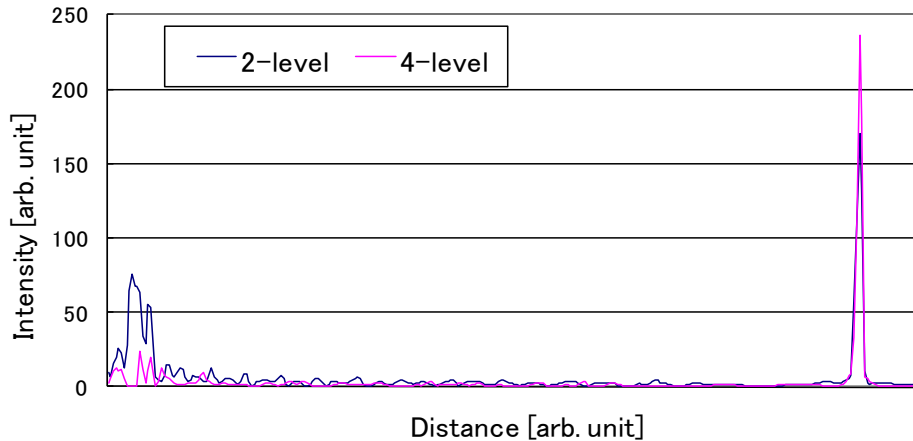


図 (2) (b) - 6 図 (2) (b) - 5 b) と c) の強度分布の He-Ne レーザーでの再生像強度のプロファイル

・円を生成する位相ホログラムの設計

閉曲線は光デバイス中では共振器等に利用される。閉曲線として円を生成するホログラムを設計する。導波路として機能させるためには、曲げ損失を考慮すると $\Delta n \approx 0.01$ では半径数mmの円を一括加工する必要がある。ここでは、半径 1 mm (周長 6.28 mm)、ピクセルサイズ: 10 μm 、ホログラムサイズ: 8 mm \times 8 mm (800 ピクセル \times 800 ピクセル)、結像距離: 10 cm として、位相段数 256 段、4 段、2 段の位相ホログラムを計算した。これらのホログラムによる設計結像距離での再生像をフレネル近似により計算した。結果を図 (2) (b) - 7 に示した。半円の場合と同様に円の中心部分にノイズが現れており、位相 2 段の方が位相 4 段に比べてより強く現れている。また、円の半径が大きくなるほど、ノイズが強くなる傾向がある。半円の場合と同様に、このノイズが問題となる場合は、位相 4 段以上で設計する必要がある。

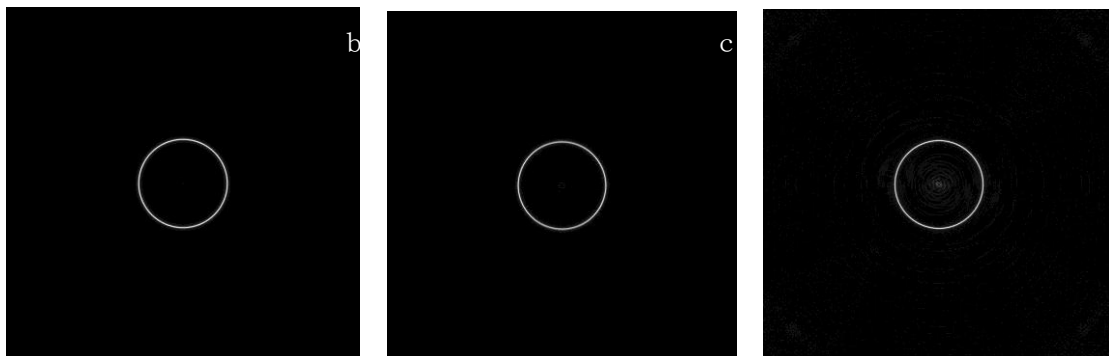


図 (2) (b) - 7 円を再生する位相ホログラムの計算による再生像 a) 位相 256 段 b) 位相 4 段 c) 位相 2 段

c) ホログラム合成方法とその具体例

b) 節で示したように、直線、半円、円等を高い像質で再生する位相ホログラムの設計できることが分かった。これらのホログラムを合成することにより、複雑なデバイス形状を 1 つの位相ホログラムで生成することができるかを検証する。一般に個々に設計されたホログラムを合成しても、単純に個々の再生像の合成像にはならない。ホログラムの合成による再生像質の劣化が予想されるが、再度

ホログラムの設計を行う場合と比較して、大幅に計算時間を短縮できる。

・ホログラムの合成

合成後の位相ホログラム $\varphi(x, y)$ とすると、

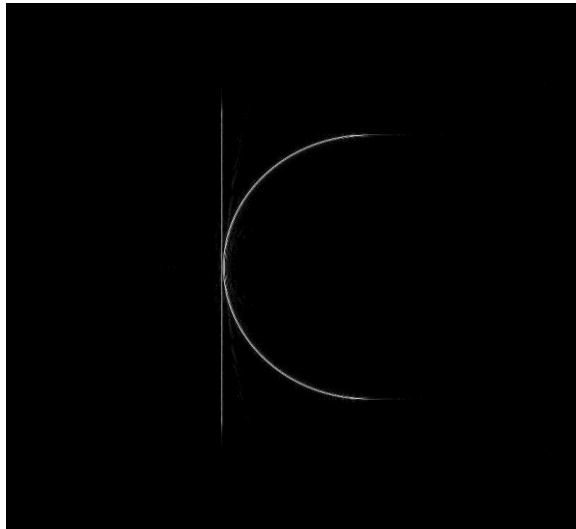
$$\omega(x, y) = \sum_i A_i(x, y) \exp[i\phi_i(x, y) + i\Delta_i(x, y)] \quad (\text{式 (2) (b) - 1})$$

$$\varphi(x, y) = \arg[\omega(x, y)] \quad (\text{式 (2) (b) - 2})$$

のように計算できる。ここで、 $\phi_i(x, y)$ はすでに求められているホログラムの位相、 $A_i(x, y)$ は任意の実数係数、 $\Delta_i(x, y)$ は位相に対するオフセットとする。単純な合成では $A_i(x, y) = 1$ 、 $\Delta_i(x, y) = 0$ であるが、合成ホログラム $\varphi(x, y)$ の生成する再生像質が向上するように $A_i(x, y)$ と $\Delta_i(x, y)$ を選ぶことも可能である。 A_i と Δ_i を位置の関数として最適値を探すには多くの計算を必要として現実的でないため、 A_i と Δ_i は場所に依存しないものとして扱う。以下では、 A_i を依存しない係数、 $\Delta_i = 0$ としてホログラムの合成を行う。

・直線ホログラムと半円ホログラムの合成

直線と半円をそれぞれ再生する位相ホログラムの合成を行う。この合成ホログラムの再生像をガラス内部へ一括加工することにより方向性結合器としての利用が考えられる。ピクセルサイズ：10 μm 、ホログラムサイズ：8 mm \times 8 mm (800ピクセル \times 800ピクセル)、結像距離：12 cmで設計した直線の全長は6 mmの位相ホログラムと半径2 mm (弧長6.28 mm) の位相ホログラムを合成した。直線と半円の強度が等しくなるように、(式 (2) (b) - 1) の $A_{\text{直線}}$ と $A_{\text{半円}}$ を決めた。直線と半円との最近接距離を20 μm とした。合成ホログラムの再生像をフレネル近似で計算した。図 (2) (b) - 8に示すように、直線と半円はどちらも途切れることなく、ほぼ等しい強度比で再生されている。ノイズも全体には低いが、直線と半円の近接した付近や直線と半円の間在线上の連続したノイズが存在する。これらのノイズがどのように一括加工したデバイスの性能に影響するか注意する必要がある。この合成ホログラムをガラス・ホログラムとして作製した。作製したホログラムに He-Ne レーザーを照射し CCD で観察した。この再生像を図 (2) (b) - 9に示した。直線、半円ともに良好に再生できており、ノイズレベルも十分に低い。



図(2)(b)-8 直線と曲線を同時に再生する位相4段ホログラムの計算による再生像



図(2)(b)-9 作製した位相4段ホログラムのHe-Neレーザーによる再生像

・半円ホログラムと半円ホログラムの合成

次に半径3mmの半円と半径2mmの半円を生成するホログラムの合成を行う。ホログラムのピクセルサイズ: $10\mu\text{m}$ 、ホログラムサイズ: $8\text{mm} \times 8\text{mm}$ (800 ピクセル $\times 800$ ピクセル)、結像距離: 11cm として位相4段ホログラムを設計した。個々のホログラムでの再生像強度を計算し、合成後のホログラムの強度比が等しくなるように係数 $A_{\text{半径}3\text{mm}}$ と $A_{\text{半径}2\text{mm}}$ を決めた。この合成ホログラムの計算による再生像を図(2)(b)-10に示した。半径2mmの半円と半径3mmの半円が同時に再生されている。強度は弱い、2つの半円の間にはノイズによるパターンも存在しており、これらの一括加工への影響には注意する必要がある。

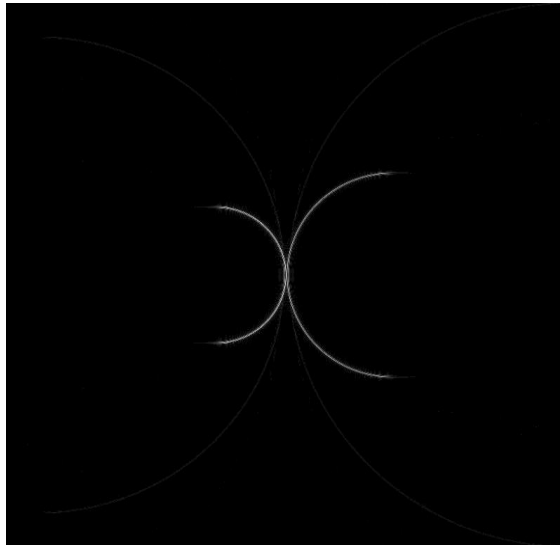


図 (2) (b) - 10 異なる半円を同時に再生する位相 4 段ホログラムの計算による再生像

・直線ホログラムと円ホログラムの合成

直線 (全長 6.6 mm) と円 (半径 1 mm、全長 6.28 mm) を再生する合成ホログラムを計算した。ホログラムピクセルサイズ: $10 \mu\text{m}$ 、ホログラムサイズ $8 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$ (800 ピクセル \times 800 ピクセル)、位相 4 段、結像距離: 11 cm とした。それぞれのホログラムから強度比が等しくなるように係数 $A_{\text{直線}}$ と $A_{\text{円}}$ を決めた。図 (2) (b) - 11 は計算で得られた合成ホログラムの再生像である。円と直線の最近接部付近ではノイズが存在するが、円と直線は概ね良好に再生されている。同様に直行する直線 2 本と円を同時に再生する位相 4 段ホログラムを設計し、再生像の計算を行った (図 (2) (b) - 12)。設計通り、直行する 2 本の直線と円が再生できている。

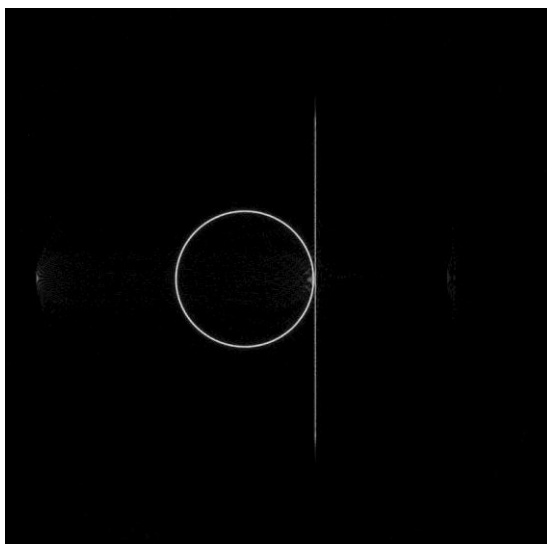


図 (2) (b) - 11 直線と円を同時に再生する位相 4 段ホログラムの計算による再生像

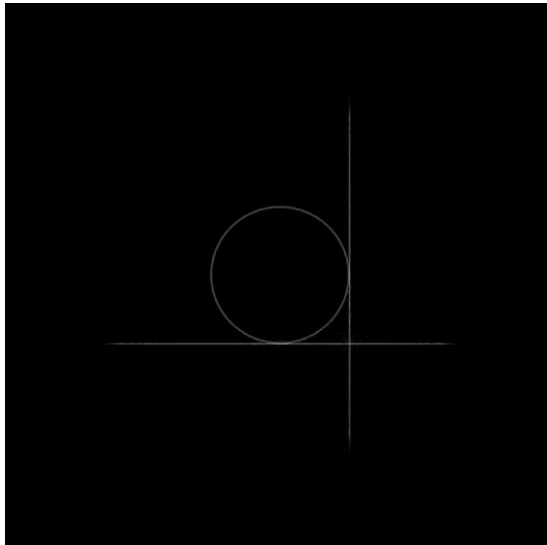


図 (2) (b) - 1 2 直線 2 本と円を同時に再生する位相 4 段ホログラムの計算による再生像

d) まとめ

ホログラムを用いたフェムト秒レーザー一括加工により直線導波路、半円（曲線）導波路、円導波路を作製するための位相ホログラムの設計方法の検討し、計算機ホログラフィを基にしてこれらの位相ホログラムを計算した。位相ホログラムの計算による再生では、直線、半円、円を低ノイズで、高い強度一様性で再生できることを確認した。半円や円では、階調化により中心付近にスポット状ノイズが生じるため、これが問題ある場合には位相 4 段以上でホログラムを設計する必要がある。

個々には高い再生像質の位相ホログラムが設計可能となったので、これらを合成してより複雑な再生像を生成するための合成ホログラムの検討を行った。これは 2 本の導波路からなる光デバイス（結合器、共振器、分波器、合波器等）を一括加工で作製するためのホログラムを設計することに相当している。また、このようにホログラムを合成することで、再度設計する場合に比べて、計算時間を大幅に短縮できる。本章では、直線ホログラムと半円ホログラムの合成、異なる半径の半円ホログラムの合成、直線ホログラムと円ホログラムの合成について検討を行った。直線ホログラムと半円ホログラムを合成する場合、この合成ホログラムの再生像では、直線と半円が良好に再生されている。強度は低いがノイズも現れており、このノイズによる一括加工への影響には注意する必要がある。また、実際のデバイスの性能は導波路間の結合長に依存し、これは導波路間の最近接距離で制御可能である。合成ホログラムの場合は、導波路間の距離を考慮して、ピクセルサイズ等のパラメータを設定する必要がある。ホログラムの合成方法については、さらに検討が必要な部分もある。

本章で設計したホログラムは、(2) (c) 章のガラス・ホログラム作製プロセスにより実際にガラス・ホログラムとして作製し、ガラス内部へのフェムト秒レーザー一括加工を行った。結果は (2) (f) 章に示されている。

参考文献

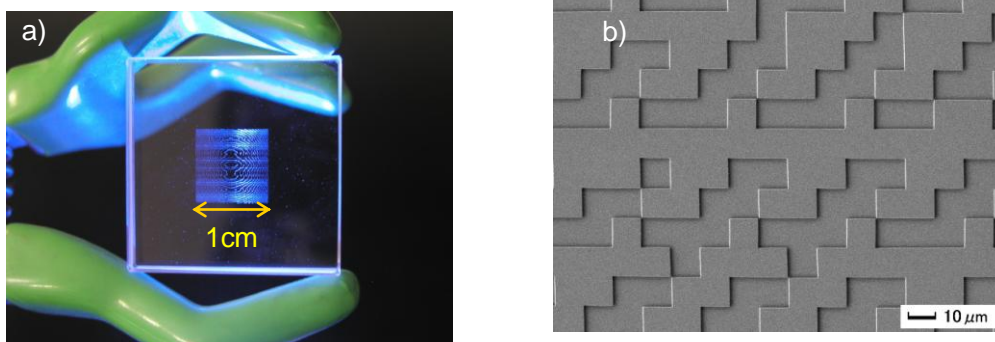
- 1) 三木哲也、須藤昭一、“光通信技術ハンドブック”、オプトロニクス社、2001年
- 2) オプトロニクス社編、“光通信技術の最新資料集 V”、オプトロニクス社、2002年
- 3) 電子ジャーナル社編、“2004 オプトデバイス技術大全”、電子ジャーナル社、2004年
- 4) 末松安晴、小林功郎、“フォトンクス 光エレクトロニクスとその進展”、オーム社、2007年
- 5) 三上修、(社)エレクトロニクス実装学会 光回路技術実装技術委員会(監修)、“光配線実装技術ハンドブック”、オプトロニクス社、2008年
- 6) R. R. Gattass, E. Mazur, “Femtosecond laser micromachining in transparent materials”, Nature Photonics 2, 219 (2008)
- 7) J. Amako, K. Nagasaka, and K. Nishida “Chromatic-distortion compensation in splitting and focusing of femtosecond pulses by use of a pair of diffractive optical elements”, Opt. Lett. 27, 969 (2002)
- 8) T. Kondo, S. Matsuo, S. Juodkazis, and, H. Misawa, “Femtosecond laser interference technique with diffractive beam splitter for fabrication of three-dimensional photonic crystals”, Opt. Lett. 79, 725 (2001)
- 9) K. Kawamura, et. al., “Femtosecond-laser-encoded distributed-feedback color center laser in lithium fluoride single crystals”, App. Phys. Lett. 84, 311 (2004)
- 10) Y. Kuroiwa, N. Takeshima, S. Tanaka, K. Hirao, “Arbitrary micropatterning method in femtosecond laser microprocessing using diffractive optical element”, Opt. Express 12, 1908 (2004)
- 11) S. Hasegawa, Y. Hayasaki, and N. Nishida, “Holographic femtosecond laser processing with multiplexed phase Fresnel lenses”, Opt. Lett. Vol.31, 1705 (2006)
- 12) Y. Hayasaki, T. Sugimoto, and N. Nishida, “Variable holographic femtosecond laser processing by use of a spatial light modulator”, Appl. Phys. Lett. 87, 031101 (2005)
- 13) 辻内順平、「ホログラフィー」、裳華房、1997年
- 14) (社)応用物理学会、日本光学会 光設計研究グループ 監修、「回折光学素子入門」、オプトロニクス社、2006年
- 15) B. Kress and P. Meyrueis, “Digital Diffractive Optics “, JOHN WILEY & SONS, New York, 2000
- 17) R. W. Gerchberg and W. O. Saxton, “A practical algorithm for the determination of phase from image and diffraction plane pictures”, Optik 35, 237 (1972)
- 18) J. Bengtsson, “Kinoform design with an optimal-rotation-angle method”, Appl. Opt. 33, 6879 (1994)
- 19) M. S. Kim, M. R. Feldman, and C.C. Guest, “Optimum encoding of binary phase-only filters with a simulated annealing algorithm”, Opt. Lett. 14, 545 (1989)

- 2 0) J. Suzuki, M. Yamaji and S. Tanaka, “Waveguide fabrication with femtosecond laser pulse shaped by computer-generated hologram” , Proc. SPIE 7201, 72011C (2009)
- 2 1) J. Suzuki, Y. Arima, M. Yamaji, H. Kawashima and S. Tanaka, “Curved-waveguide fabrication using femtosecond laser processing with glass-hologram” , Proc. SPIE 7589, 75890T (2010)
- 2 2) J. Suzuki, Y. Arima, and S. Tanaka, “Optical device fabrication using femtosecond laser processing with glass-hologram” , Proc. SPIE 7925, 79251D (2011)
- 2 3) T. Hashimoto and S. Tanaka, “Large negative refractive index modification induced by irradiation of femtosecond laser inside optical glasses” , App. Surf. Sci. 257, 5429 (2011)
- 2 4) 岡本勝就、「光導波路の基礎」、コロナ社、1992年

(c) ガラス・ホログラム作製技術（基盤技術）

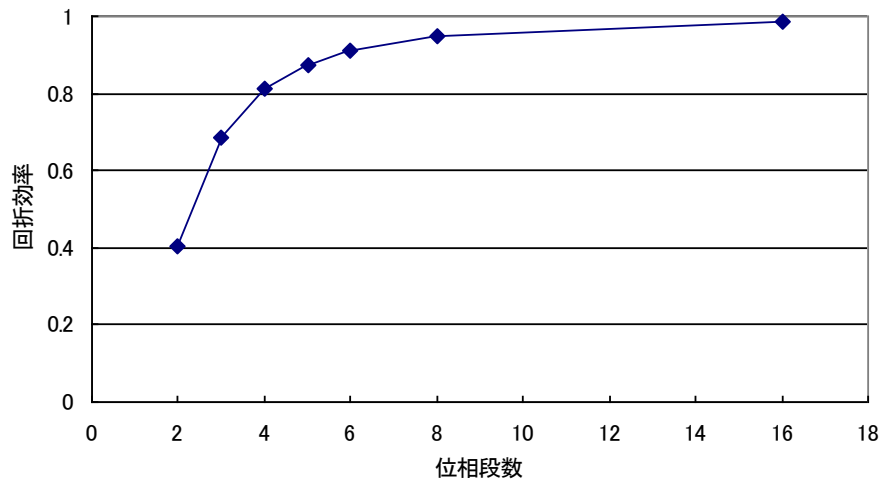
a) はじめに

ガラス・ホログラムは計算機ホログラフィ（Computer-Generated Holography : CGH）によって得られた位相分布をガラス表面に階段構造として作製した光学素子である[1-3]。この階段構造によりフェムト秒レーザーの波面が変調され、設計強度分布へと変換される。通常、CGH で得られた位相分布は「ピクセル」と呼ばれる小領域ごとに計算され、0から 2π の値を持っている。ガラス・ホログラムの基板として合成石英を使用する。合成石英はフェムト秒レーザーの波長 800nm に対しての透過率が高いため、フェムト秒レーザー耐性に優れている。したがって、高いエネルギーのフェムト秒レーザーパルスを照射できるため、大面積（体積）の加工が可能となる。このように、ガラス・ホログラムを用いたフェムト秒レーザー一括加工はデバイス生産に適している。

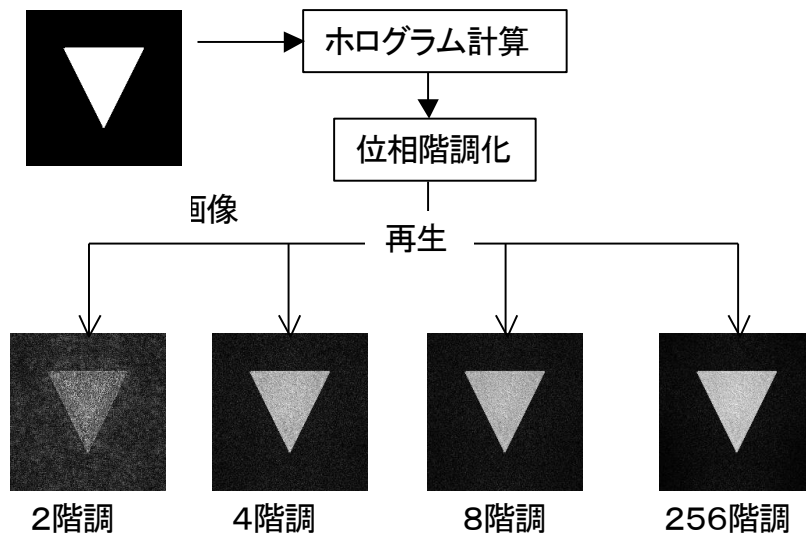


図（2）（c）－1 a) ガラス・ホログラム全体図（中心付近の 1 cm 口に段差構造が形成されている） b) ホログラムパターンの拡大図（SEMで観察）

ガラス・ホログラム作製において重要なパラメータは、ホログラム位相段数、ピクセルサイズ、ピクセル数等で、これらは、ガラス・ホログラムの性能にも影響を与える。ホログラム位相段数が増えるに従って回折効率が向上し[1-5]、加工効率が向上する（図（2）（c）－2）。同時に、ホログラムの再生する像質も向上する（図（2）（c）－3）。ピクセルサイズを微細化することで、回折限界による上限はあるものの解像度が向上する[1-3]。ピクセル数を増加することで、ホログラムの有効面積が増加し、入射フェムト秒レーザーのエネルギーを有効に利用することが可能となる。しかし、これらはガラス・ホログラム作製時間の長期化や作製難度が高くなるというデメリットを引き起こす。したがって、これらのパラメータは目的によって適切に選ぶ必要がある。位相4段では、図（2）（c）－2から回折効率約80%、図（2）（c）－3から再生像質の劣化も小さい。位相ホログラムを設計するCGHでは、スカラー波回折理論[1-3、5]を基にしていることから、フェムト秒レーザー波長以下の回折計算には適していない。したがって、ホログラムのピクセルサイズとしては、レーザー波長程度が目安となる。



図(2)(c) - 2 位相段数と回折効率 (文献[2-5])



図(2)(c) - 3 位相段数と各段数のホログラムによる再生像の関係(一例)

プロジェクト開始時においては、ホログラム設計方法の確立とフェムト秒レーザー一括加工の基礎データ取得が最優先課題であり、様々な位相分布のガラス・ホログラムを短期間で作製することが必須であった。また、「一括加工によるデバイス生産では、設計したホログラムを作製し、それを使ってデバイスの試作を行い、問題点をホログラムの設計にフィードバックし、再度ホログラム設計・作製、デバイス試作・・・」というプロセスを短期間に行う必要がある。そこで、短期間でガラス・ホログラム作製に重点を置いて、ガラス・ホログラム作製プロセスの構築を行った。ここでは、位相段数4段、ピクセルサイズ10 μ m、ホログラムサイズ5mm \times 5mmのパラメータでガラス・ホログラム作製することにした。次に構築した作製プロセスの問題点を調査し、作製プロセスの改良を行った。このガラス・ホログラム作製プロセス改良により、本プロジェクトでの目標である「ガラス・ホログラム作製精度として ± 40 nm以下」を達成した。さらに、様々なホログラムを作製することで明らかになった、帯電や長時間描画時の位置精度の劣化等の問題を対策することで、位相段数8段、ピクセルサイズ1 μ m(～レーザー波長)、ホログラムサイズは10mm \times 10mm以上のようなパラメータでのガラス・ホログラムを試作が可能となった。

b) ガラス・ホログラム作製プロセスの構築

ガラス・ホログラムの段差構造では、段の幅は数 μm ～数十 μm 、段の深さは数百 nm のオーダーである。この構造を精度よく形成するため、ガラス・ホログラム作製には電子線（EB）リソグラフィとリアクティブイオンエッチング（RIE）を用いることとした。これらは、長年にわたり半導体製造に利用され、高精度で nm オーダーの微細構造を作製可能にしている[6、7]。本プロジェクトで使用したEB描画装置[8]と RIE 装置[9]は主に実験室での開発用途に使用される装置である。EB 描画装置[8]は加速電圧 30 kV の点描画方式で、1 スポットは約 30nm である。このため、100nm 以下の微細パターンの描画も可能であるが、多数のスポットを重ねてパターンを形成するため、大面積パターンでは描画時間が長くなるという欠点がある。また、RIE装置[9]はドライプロセスで、高アスペクト比での加工が可能で、加工の自由度が高いという特徴がある。しかし、低圧で高密度プラズマを発生させることができず、エッチング条件には制限がある。

図（2）（c）－4にガラス・ホログラム作製プロセスの概略図を示す。ガラス・ホログラム作製はガラス（合成石英）基板の上に金属膜を成膜し、さらにEB描画用レジストを塗布した三層基板を用いる。ホログラム位相パターンをこの基板の上にEB描画する。ここで用いたEB描画レジスト（日本Z EON、ZEP520A）はポジ型で、EB照射部分が現像後に除去される。未照射部分のレジストをマスクとして金属膜をエッチングすることにより金属膜を除去する。レジストを剥離して、金属膜をマスクとしてガラスをエッチングし、ガラス基板表面に段差構造が形成される。多段ホログラムの場合は、再度基板にレジストを塗布して、EB描画、各エッチングを行う。最後に金属膜を剥離し、ガラス・ホログラムが完成する。各工程終了後に、光学顕微鏡で目視にてチェックを行い、早期に問題点を見つけ出すようにしている。最後に作製したガラス・ホログラムは走査型電子顕微鏡（SEM）[10]で作製した段差構造の観察や測定を行い、ガラス・ホログラム作製精度の確認を行っている。

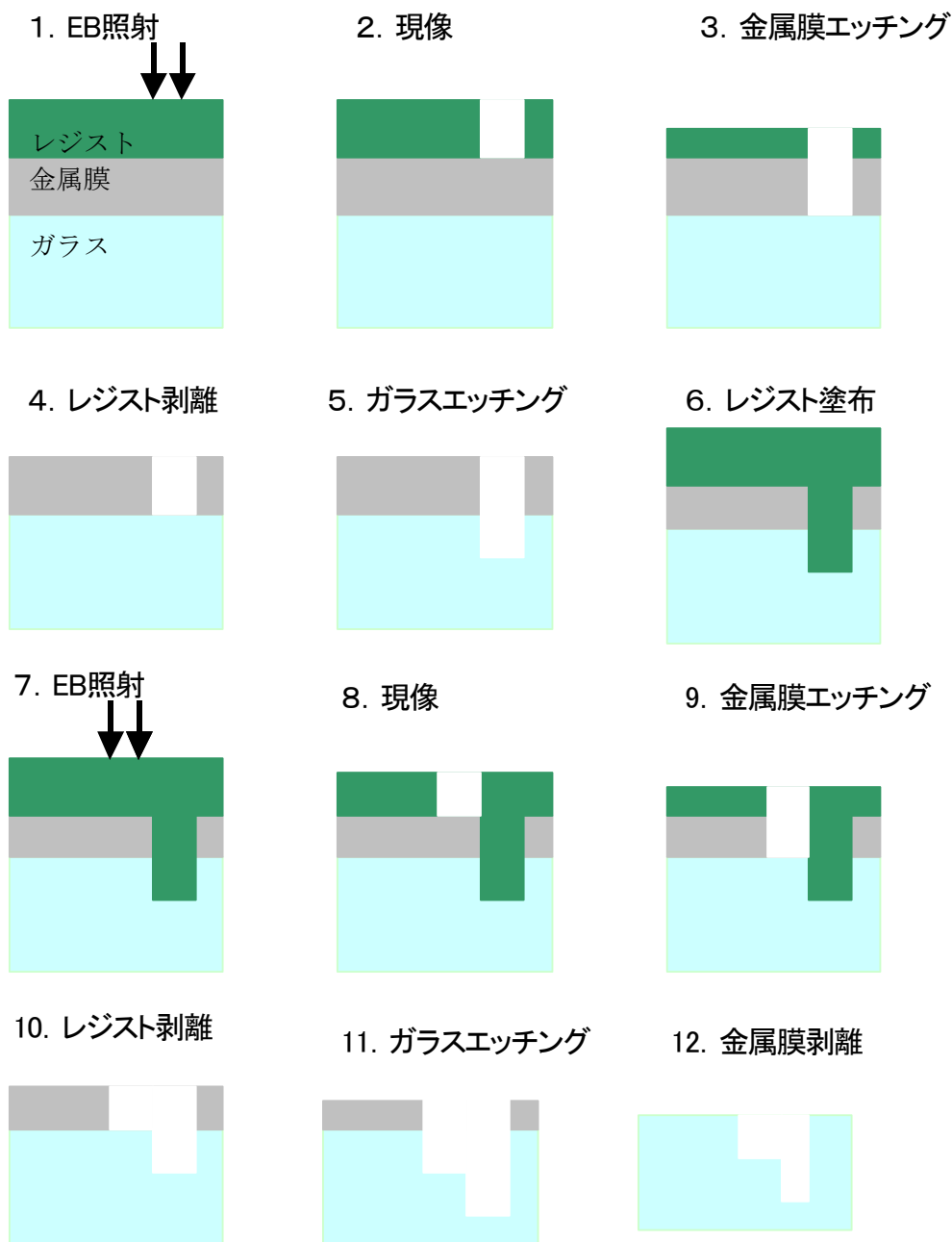
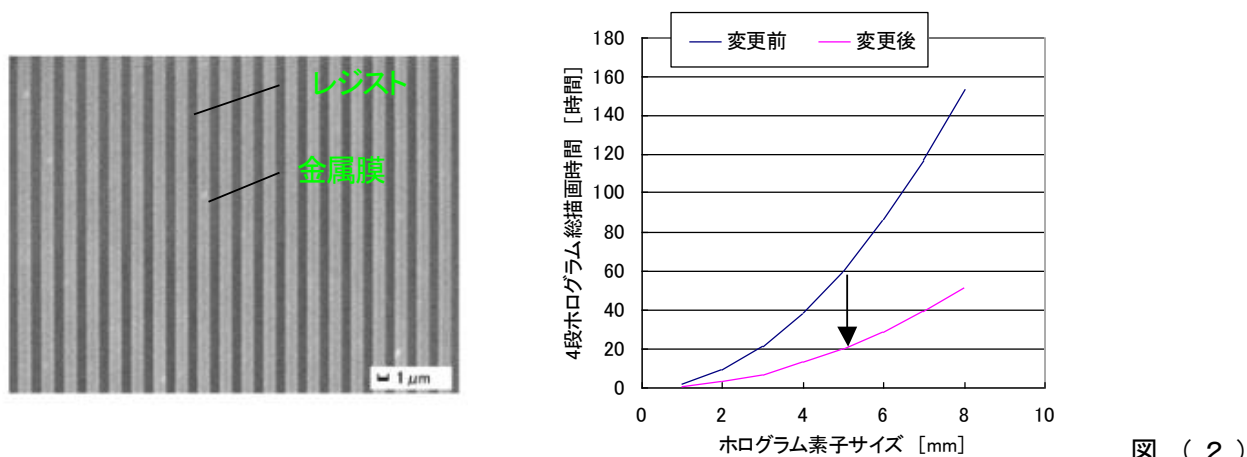


図 (2)

(c) - 4 多段ガラス・ホログラム作製プロセス (さらに多段のホログラムを作製する場合は、工程 11. の後、再度工程 6 ~ 11 を繰り返す)

図 (2) (c) - 4 に示したガラス・ホログラム作製プロセスにおいて、EB 描画時間はホログラム位相分布 (ホログラム面積やピクセルサイズ) に依存して数時間から数日かかる。その他の工程は十分程度である。したがって、ガラス・ホログラムの作製期間を短縮するためには、EB 描画時間の短縮することが最も効果的である。点描画方式の EB 描画装置では、描画時間は 1 点の照射時間と描画面積で決まる [6 - 8]。通常 EB 描画ではサブ μm のパターンを解像するための描画・現像条件が用いられる。この条件では 1 点の照射時間が長いため、描画時間は長くなる傾向がある。ホログラム位相分布の設計ではスカラー波回折理論 [1 - 3, 5] を基にしていることから、フェムト秒レーザー波長以下の回折計算には適していない。そこで、ガラス・ホログラムのピクセルサイズとしてはフェムト秒レーザー波長程度 ($1\mu\text{m}$ 程度) のパターンが解像すればよい。したがって、 $1\mu\text{m}$ 線幅のパター

ンが解像するように、描画・現像条件を調整した。図(2)(c)-5 a)に示したように、1 μ m幅のパターンが解像している。このEB描画・現像条件を用いることで、EB描画時間はピクセルサイズ10 μ m、ホログラムサイズ5mm \times 5mm(500ピクセル \times 500ピクセル)のホログラムパターンの描画で約35%に短縮できた(図(2)(c)-5 b)参照)。



(c)-5 (a) 設計線幅 1 μ mの現像後のレジストパターン (b) ホログラム素子サイズに対するEB描画時間

一般に多段ホログラムは、 2^N 段のホログラムをN回描画・プロセスによる作製方法が用いられる[2, 3]。例えば、4段ホログラムでは、1回目の描画で、1段目と2段目、2回目の描画で3段目と1段目の描画を行う。ここでは最深段の1段目は2回描画され、総描画時間はこの分だけ長くなる。そこで、最深段から1段ずつを描画する方法(N段をN-1回描画で作製する方法)を採用した。例えば、4段ホログラムでは3回描画を行うが、約25%の描画時間が短縮可能となる。さらに多段の場合は、さらに短縮されることになる。

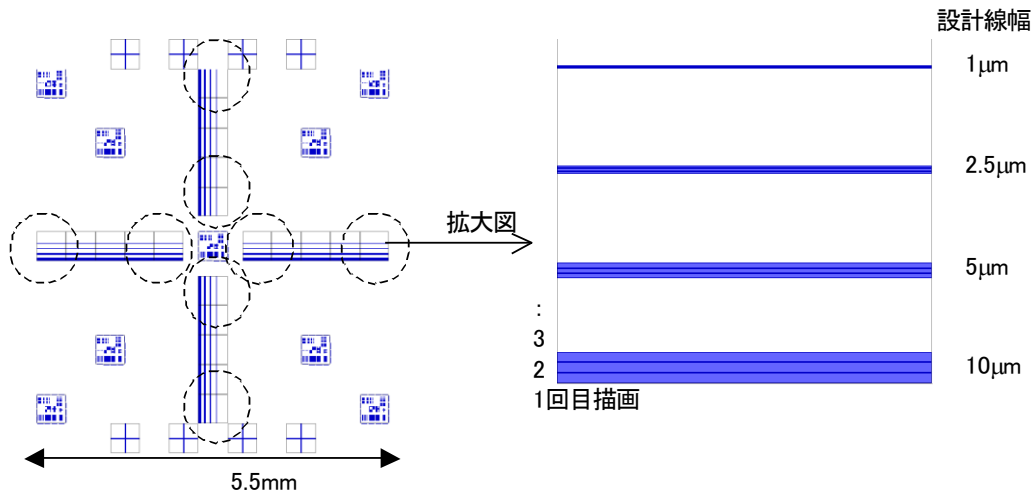
金属膜エッチングとガラスエッチングはRIE装置で行った。金属膜エッチングとガラスエッチングでは、選択比、エッチング壁面の形状、垂直性、ラフネスを考慮して、それぞれエッチング条件を決めた。表(2)(c)-1に金属膜エッチング、レジスト剥離、ガラスエッチング、金属膜剥離の各条件を示した。

表(2)(c)-1 金属膜エッチング、レジスト剥離、ガラスエッチング、金属膜剥離の各条件

	ガス	RF パワー [W]	試料室内圧力 [pa]	エッチング時間 [s]
金属膜エッチング	SF6 (9sccm) CHF3 (3sccm)	10	2	600
レジスト剥離	O2 (120sccm)	40	10	600
ガラスエッチング	CHF3 (6sccm)	250	10	段数依存 2段では 600 4段では 225
金属膜剥離	SF6 (9sccm) CHF3 (3sccm)	40	2	360

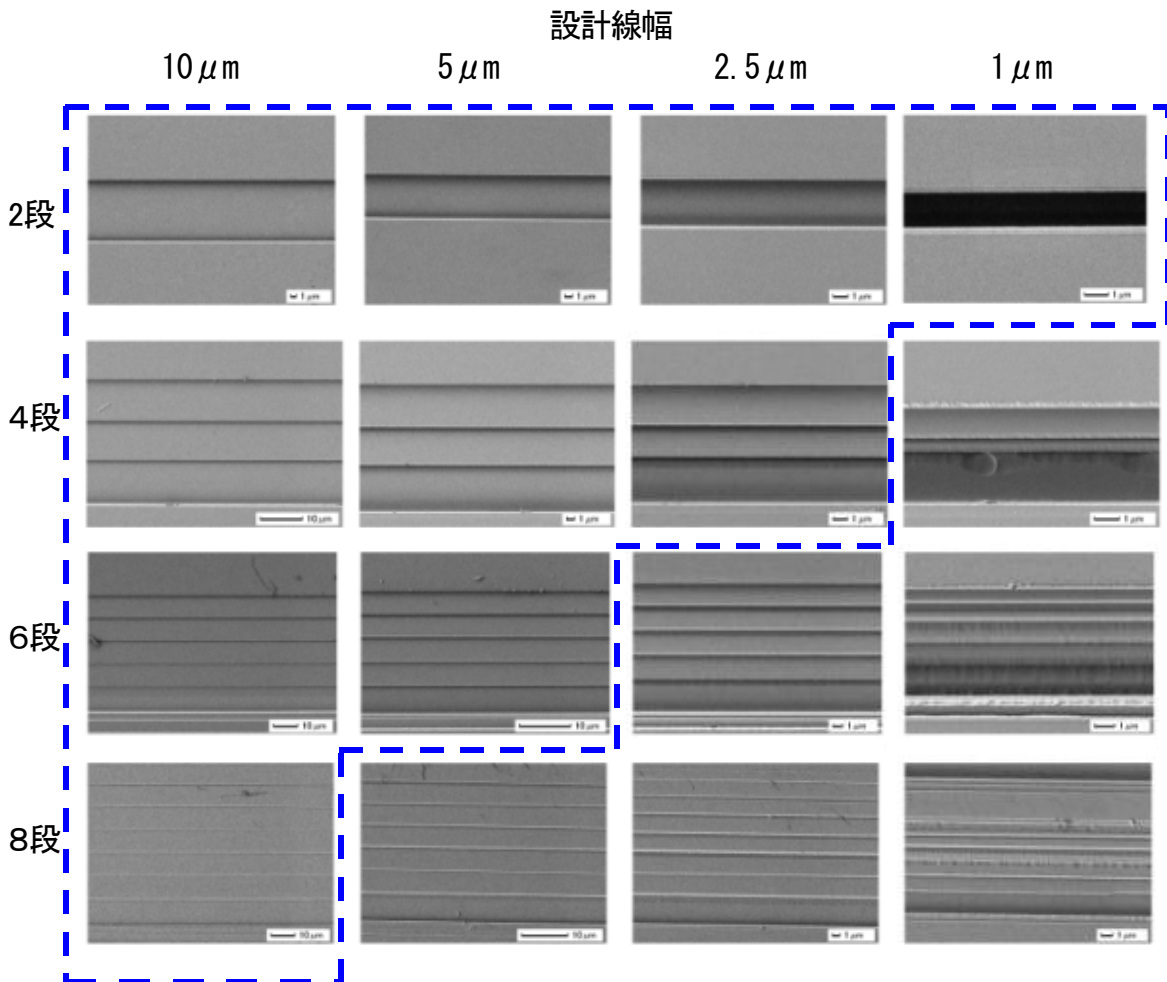
このように構築したガラス・ホログラム作製プロセスで、どのようなガラス・ホログラムが作製可能かテストパターンを用いて調査した。図(2)(c)-6に示すように、テストパターンの外形は5.5mm \times 5.5mmで、段幅10、5、2.5、1 μ mの階段パターンを十字型に配置している。このテストパ

ターンを 2、4、6、8 段で作製し、走査型電子顕微鏡（SEM）でそれぞれのパターンを観察した（図（2）（c）－7）。図（2）（c）－7から、段幅が狭くなるに従って、または段数の増加するに従って、パターン形状の劣化が見られる。例えば、段幅 $10\mu\text{m}$ では 8 段まで良好に作製されているが、段幅 $1\mu\text{m}$ では 2 段以上の階段パターンのラフネスや段幅のばらつきが目立つ。このプロセスでは、段幅により作製可能な段数が異なり、段幅 $10\mu\text{m}$ では 8 段、段幅 $5\mu\text{m}$ では 6 段、段幅 $2.5\mu\text{m}$ では 4 段、段幅 $1\mu\text{m}$ では 2 段という結果であった。



図（2）

(c)－6 プロセステスト用階段パターンの概略図



図

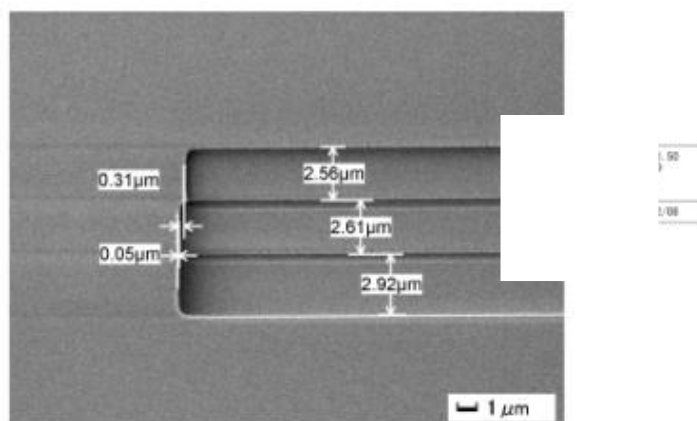
(2)(c) - 7 試作した階段パターンのSEM像 (画像毎に観察倍率が異なる)

c) ガラス・ホログラム作製プロセスの改良

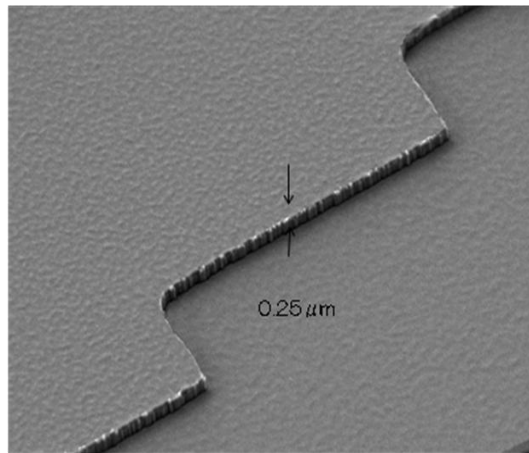
b) 節で構築したガラス・ホログラム作製プロセスでは、幾つかの問題点があり、これら問題点の改善を行った。また、様々な位相分布のガラス・ホログラムを作製することで現れた問題点のうち、帯電による位置ずれ、長時間 EB 描画での位置精度の劣化への対策について報告する。

・ガラス・ホログラム作製プロセスの改良

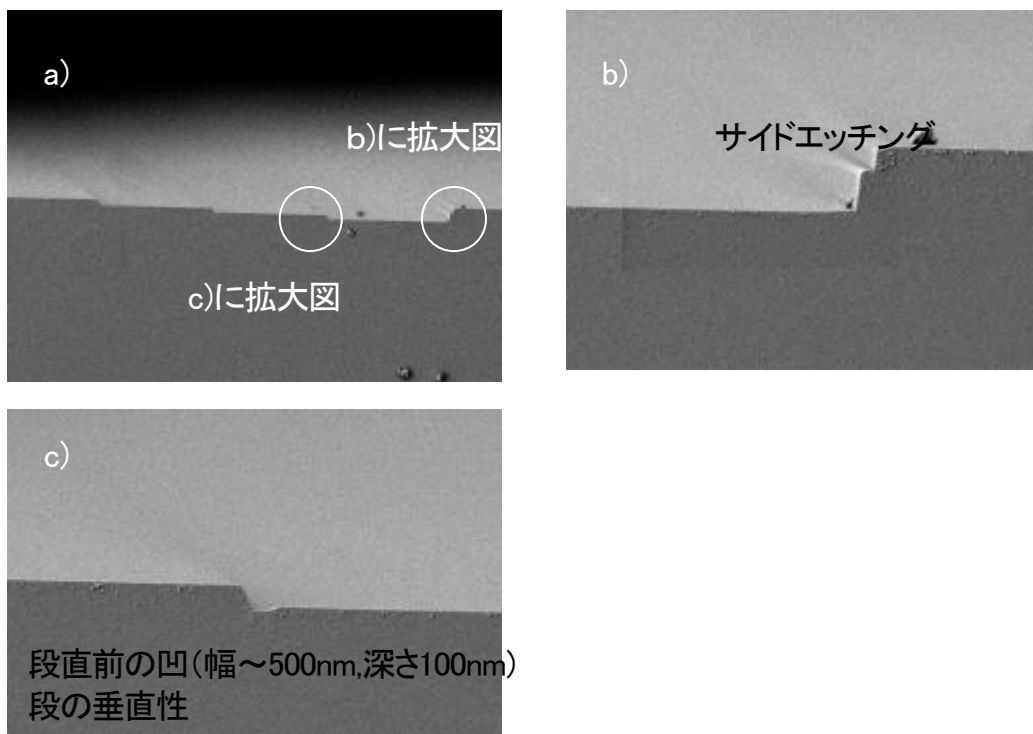
前節ではガラス・ホログラム作製プロセスを構築したが、段幅により作製可能な段数に制限があり、段幅が狭い場合はラフネスや段幅のばらつき等の問題点があった。そこで、SEMを使ってパターンの形状を詳細に観察した。図(2)(c) - 8は段幅 $2.5\mu\text{m}$ のパターンを表面から見たSEM像である。1段目の段幅が2段目と3段目に比べて約 500nm 程度太く、これは設計段幅によらず同様な傾向である。図(2)(c) - 9は傾斜をかけて段の側壁を観察したSEM像である。側壁のラフネス、表面のラフネスがみられる。次に階段パターンを割断し、断面方向からの観察し、作製プロセスの問題点を検討した。図(2)(c) - 10は段幅 $10\mu\text{m}$ の4段パターンの断面図である。図(2)(c) - 10から、段が深い程段の角が丸くなっている。段は垂直ではなくテーパを持っており、1段目と4段目の境界では図(2)(c) - 10b)のようにサイドエッチングがみられる。また、図(2)(c) - 10c)から段直前で幅 500nm 、深さ 100nm の凹ができています。図(2)(c) - 10には示していないが、約 70nm 程度段の深さのばらつきがある。これらを1つずつに対して対策を行うのでは効率が悪いため、これらの問題点の傾向から、ガラス・ホログラム作製プロセス中の問題点の検討を行った。



図(2)(c) - 8 設計段幅 $2.5\mu\text{m}$ の4段パターンのSEM像 (表面観察)



図(2)(c)-9 設計段幅 $2.5\mu\text{m}$ の4段パターンのSEM像(傾斜観察)



図(2)(c)-10 設計段幅 $10\mu\text{m}$ 、位相4段テストパターンのSEMによる断面観察 a)4段パターン全体図、b)とc)は拡大図

高倍率のSEM像観察からは、作製されたガラス・ホログラムからオーバーエッチングによるダメージやラフネスが見られる。そこで、レジスト膜厚や金属膜厚を薄膜化して、エッチング時間をできるだけ短くして、ダメージを軽減する方法をとることにした。金属膜エッチング、ガラスエッチングのエッチングレート、選択比を高精度で測定した。得られた選択比から4段、6段、8段を作製するのに必要な金属膜厚を求めて、金属膜厚を薄膜化し、ホログラムの段数により金属膜厚調整した。再度、選択比が高くダメージの少ないエッチング条件を探した。次にレジスト塗布条件を決定し、金属膜エッチング時間、ガラスエッチング時間を段ごとに最適化した。

改良したガラス・ホログラム作製プロセスで段幅 1 、 2.5 、 5 、 $10\mu\text{m}$ のテストパターン(図(2)(c)-6)を段の深さ 400nm で作製した。結果は図(2)(c)-11~図(2)(c)-14に示した。図(2)(c)-11a)~図(2)(c)-14a)に示したように、段幅 $2.5\sim 10\mu\text{m}$ パターンでは段幅は設計値 $\pm 40\text{nm}$ で作製されている。段幅 $1\mu\text{m}$ パターンでは1段目の段幅が広く改善の余地

はあるが、段幅 $2.5\mu\text{m}$ 以上のパターンでは最終目標値の $\pm 40\text{nm}$ 以下を達成している。段の深さについては、図 (2) (c) - 1 1 b) ~ 図 (2) (c) - 1 4 b) に示したように、すべての段幅のパターンで設計値 $\pm 40\text{nm}$ で作製されている。また、段の直前の凹は 20nm 以下となり、サイドエッチング、表面ラフネス、段側面ラフネス等の問題は低減されている。

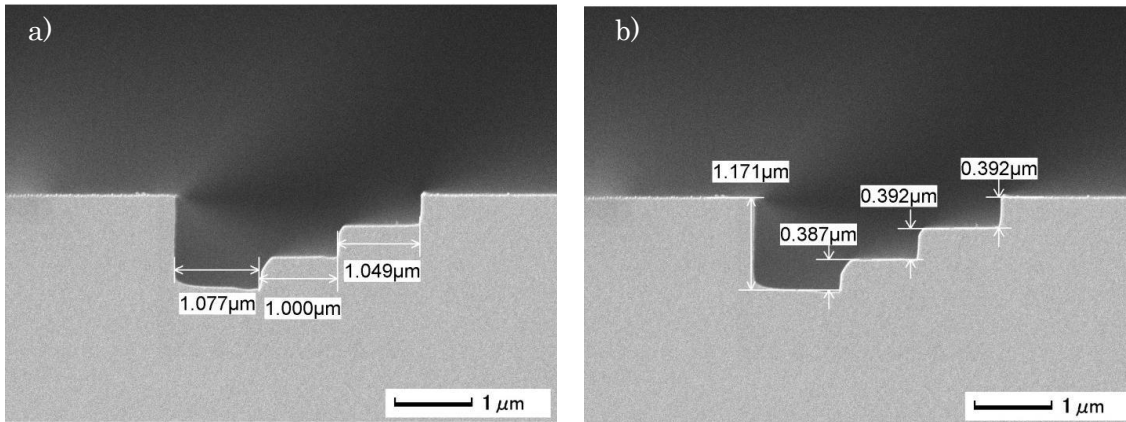


図 (2) (c) - 1 1 プロセス改良後の設計段幅 $1\mu\text{m}$ の 4 段パターンの SEM 像 (断面観察) a) 段幅測定 b) 段の深さ測定

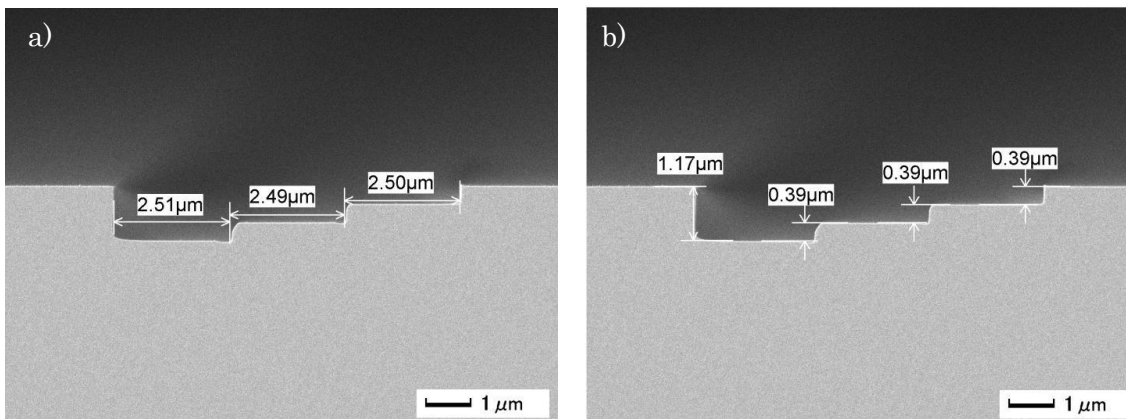


図 (2) (c) - 1 2 プロセス改良後の設計段幅 $2.5\mu\text{m}$ の 4 段パターンの SEM 像 (断面観察) a) 段幅測定 b) 段の深さ測定

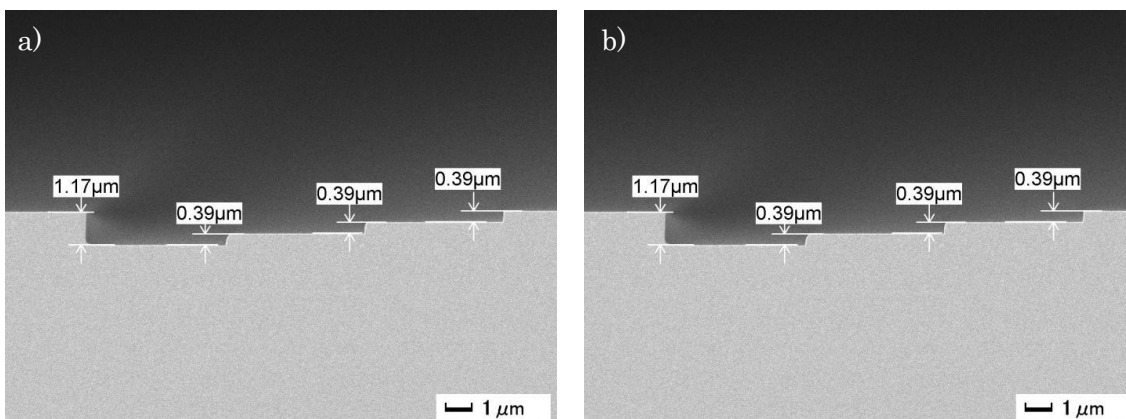
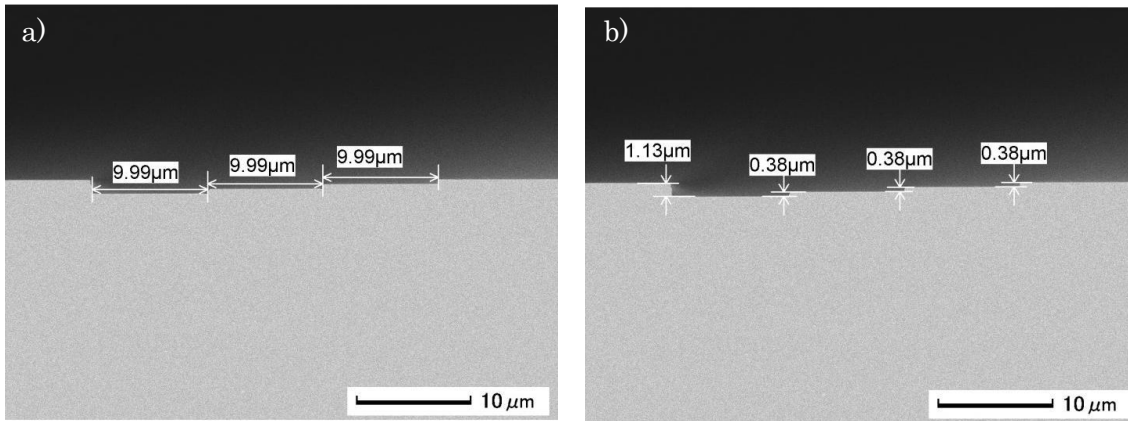


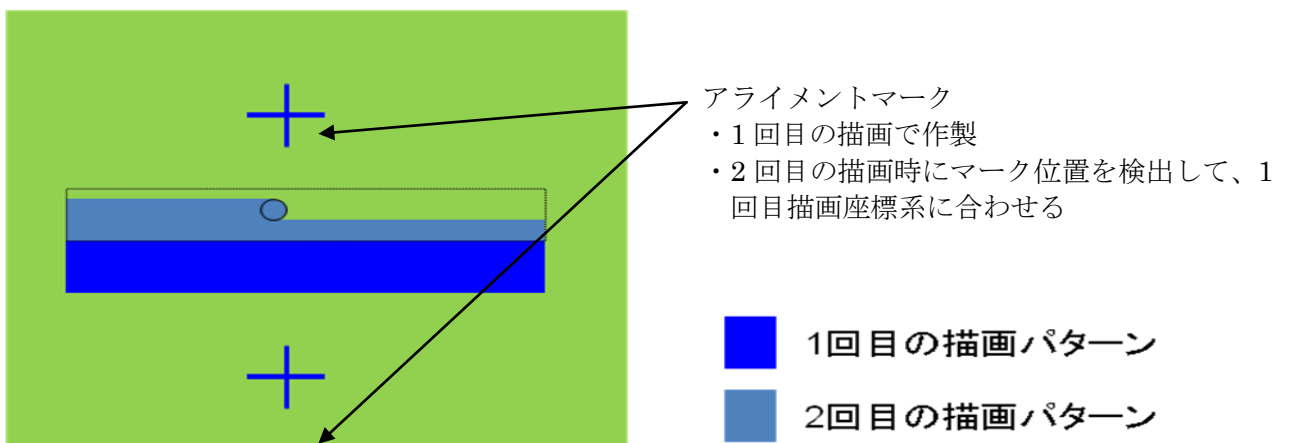
図 (2) (c) - 1 3 プロセス改良後の設計段幅 $5\mu\text{m}$ の 4 段パターンの SEM 像 (断面観察) a) 段幅測定 b) 段の深さ測定



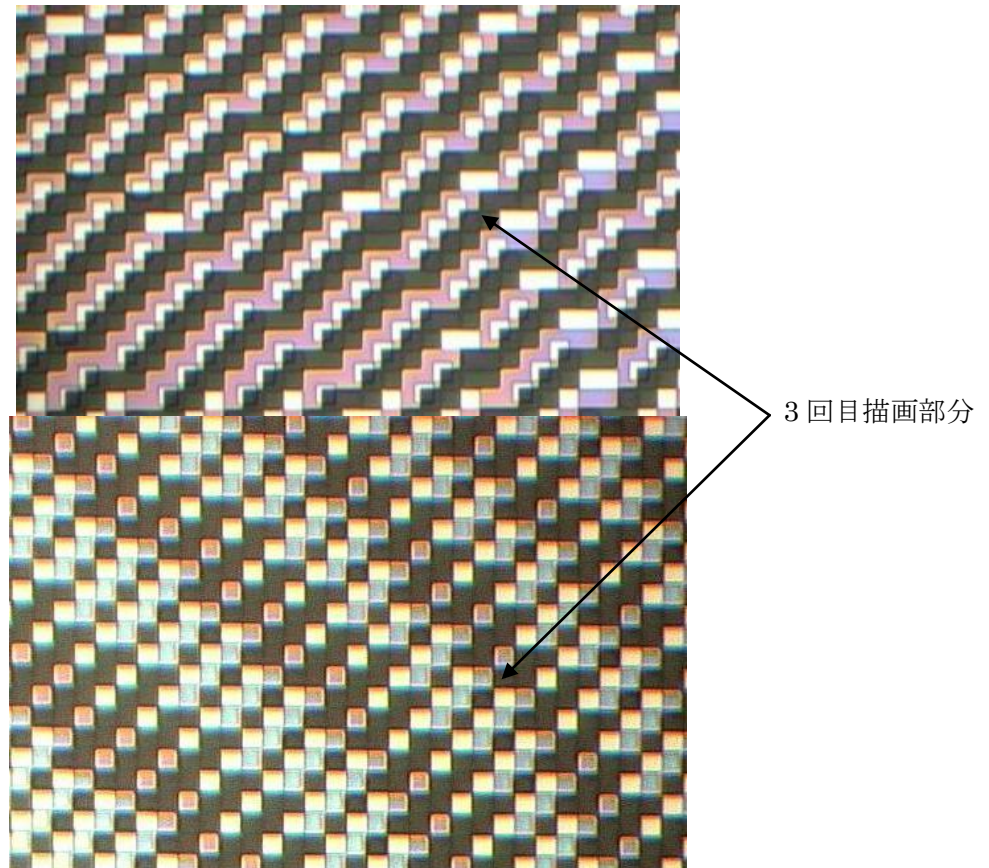
図(2)(c)-14 プロセス改良後の設計段幅 $10\mu\text{m}$ の4段パターンのSEM像(断面観察) a) 段幅測定 b) 段の深さ測定

・帯電による位置ずれへの対策

多段ホログラムを作製するためには、1枚の基板に複数回のEB描画を行う必要がある。2回目以降の描画では、1回目のEB描画座標系に合わせて描画を行う(レジストレーション描画[8])。まず、1回目のEB描画座で基板上に作製した2か所のアライメントマークを電子線ビームでスキャンし、反射電子を検出してアライメントマークの位置を高精度に決定する。次に2点のマーク座標から1回目の描画座標系を算出し、この座標系で2回目のEB描画を行う(図(2)(c)-15)。このレジストレーション描画時に、2つの問題が発生した。1つはマークスキャン時の帯電によりマークスキャンが失敗することである。もう1つの問題は、2回目以降のEB描画でのパターンでの帯電による位置ずれである。図(2)(c)-4のガラス・ホログラム作製プロセスには示していないが、レジスト塗布(工程6.)後に、帯電防止剤を塗布している。しかし、2回目以降のEB描画では、すでにプロセスを終えたパターンのガラス部分の面積が大きくなるため、帯電の影響が大きくなり、位置ずれが発生する。図(2)(c)-16a)はピクセルサイズ $5\mu\text{m}$ 、4段ホログラムの3回目の現像後の光学顕微鏡像で、位置ずれを起こしている。ただし、この位置ずれについては、描画パターン依存性が強く、すべての場合に発生するという訳ではない。



図(2)(c)-15 レジストレーション描画概念図



図（2）（c）－16 ピクセルサイズ $5\mu\text{m}$ 、位相4段ホログラムの3回目描画後のレジストパターンの光学顕微鏡像 a)帯電防止膜なし（位置ずれあり） b)帯電防止膜あり（位置ずれなし）

この位置ずれ対策として、レジストの下地に帯電防止材を成膜し、帯電の影響を小さくする工程を追加することにした（図（2）（c）－17）。帯電防止材の選定では、薄膜でも導電性が高く、膜の剥離が容易であることに注意した。帯電防止材の除去されずに残ると、フェムト秒レーザーを吸収し、透過率を下げるため一括加工性能を下げることになる。また、レーザーの吸収によるガラス・ホログラムの損傷も発生する可能性がある。様々なテストを行い、帯電防止材を選定した。レジスト塗布前に帯電防止材を基板全体に成膜してEB描画を行うと図（2）（c）－16 b)のように位置ずれがほぼなくなった。成膜した帯電防止材は非常に薄く、金属膜エッチングやレジスト剥離で剥離されるため、特にこの帯電防止材を除去する工程は設けていない。また、先ほどのマークスキャンの失敗も、帯電防止材の成膜によりほとんどなくなった。

マークスキャンによるマーク位置検出に関しては、位置精度検出向上のためにマークの大きさ、スキャンピッチ、マーク検出アルゴリズムの改良も行った。

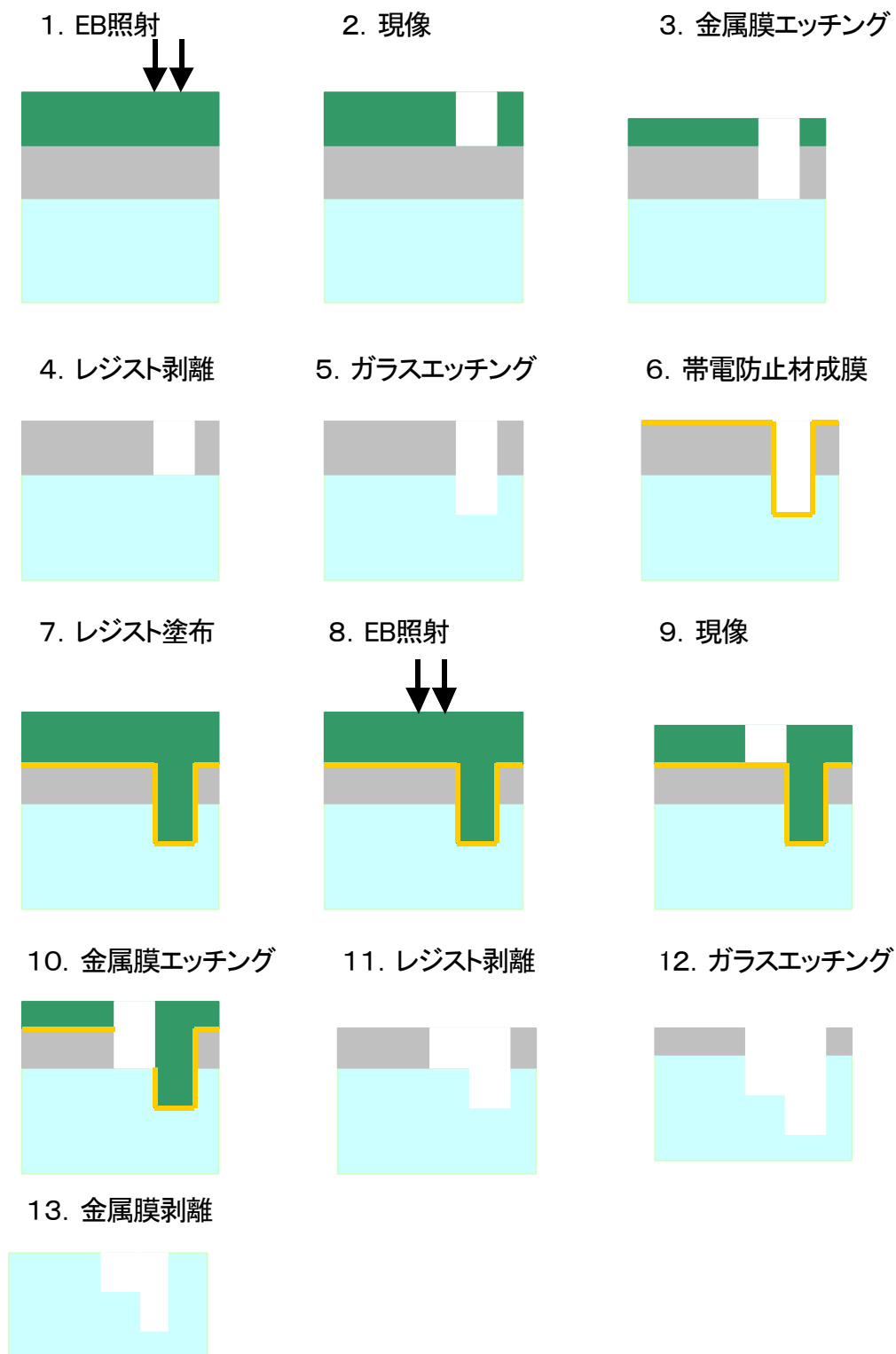


図 (2)

(c) - 17 帯電対策後 (工程 6.) の多段ガラス・ホログラム作製プロセス (さらに多段のホログラムを作製する場合は、工程 12. の後、再度工程 6 ~ 12 を繰り返す)

・長時間 EB 描画での位置精度劣化への対策

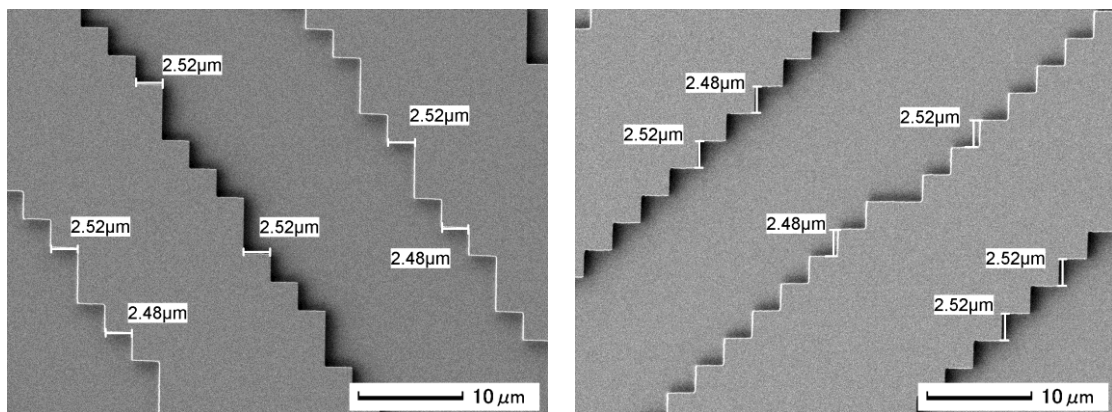
フェムト秒レーザー一括加工では入射エネルギーをできるだけ有効に使用し、大面積 (体積) に加工をすることが望ましい。ホログラムの多段化による回折効率の向上とともに、ホログラム位相分布の有効面積を拡大する必要がある。有効面積を拡げることは、ホログラムの EB 描画時間が増加につな

がる。長時間のEB描画では、温度や気圧等の環境変化や鏡筒内の帯電により電子線の軌道がドリフトし、位置精度の劣化が予想される。レジストレーション描画では2か所のマークの位置を決定している。そこで、EB描画中1時間に1回マークをスキャンしマーク位置を決めることで、電子線軌道のドリフトを補正することにした。これにより、位置精度の劣化を低減することができ、描画時間3日以上 $10\text{mm} \times 10\text{mm}$ 以上の有効面積の多段ガラス・ホログラムの描画も可能となった。

d) ガラス・ホログラム作製例

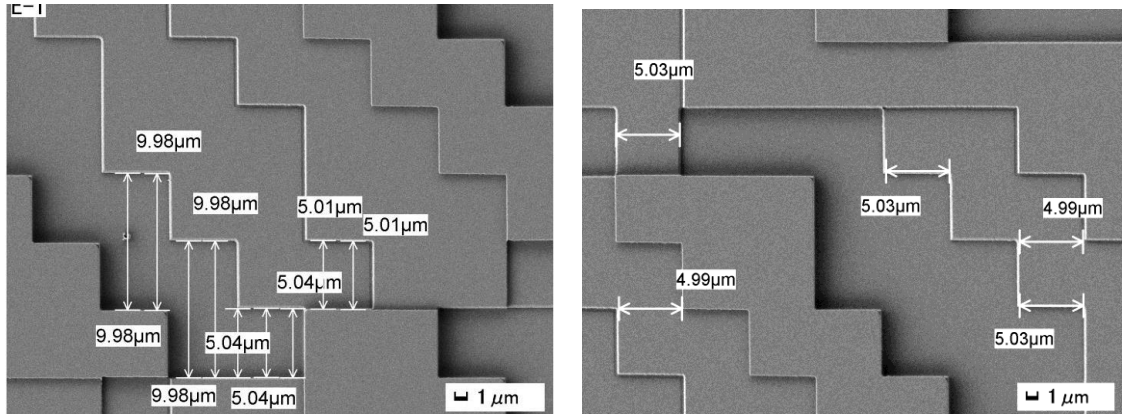
これまで構築・改良したプロセスで作製した一括加工用ガラス・ホログラムの作製例を示す。作製した一括加工用ガラス・ホログラムは、ほぼ全数についてSEMによるパターン形状の観察と計測を行った。一般にガラスは絶縁体であるため、帯電によりSEMでの観察は困難である。ガラス・ホログラムの場合も、SEMでの直接観察は困難であり、帯電防止コートを使用する必要がある。通常のSEM観察で用いられる帯電防止コート（金、白金、白金パラジウム等）は、剥離が容易でないためガラス・ホログラムに一旦コートしてしまうとガラス・ホログラムの透過率を低下させ、一括加工に影響を与えると予想される。そこで、導電性に優れ、容易に剥離が可能な帯電防止コートを探した結果、オスmium（Os）コート[11]が最適であった。Os膜はアモルファス状で他の帯電防止コートに比べて導電性が高い。回り込みがよく、短時間でコートができるためサンプルへのダメージも小さいという特徴がある。SEM観察前にOsコートし、観察後にOsを除去するが、高エネルギーパルス（ 14mJ/pulse ）のフェムト秒レーザー一括加工に使用しても問題は発生していない。

作製した一括加工用ガラス・ホログラムには様々なピクセルサイズ、位相段数、ホログラムサイズであり、すべてを示すことはできないが、典型的なガラス・ホログラムについてSEM観察結果を示す。図(2)(c)-18はピクセルサイズ $2.5\mu\text{m}$ 、ホログラムサイズ $4\text{mm} \times 4\text{mm}$ （ 1600 ピクセル $\times 1600$ ピクセル）、位相2段で作製したホログラムのSEM観察結果である。パターン形状は良好である。寸法を測定した結果は、いずれも設計値ピクセルサイズ $2.5\mu\text{m} \pm 40\text{nm}$ 以下で作製されている。

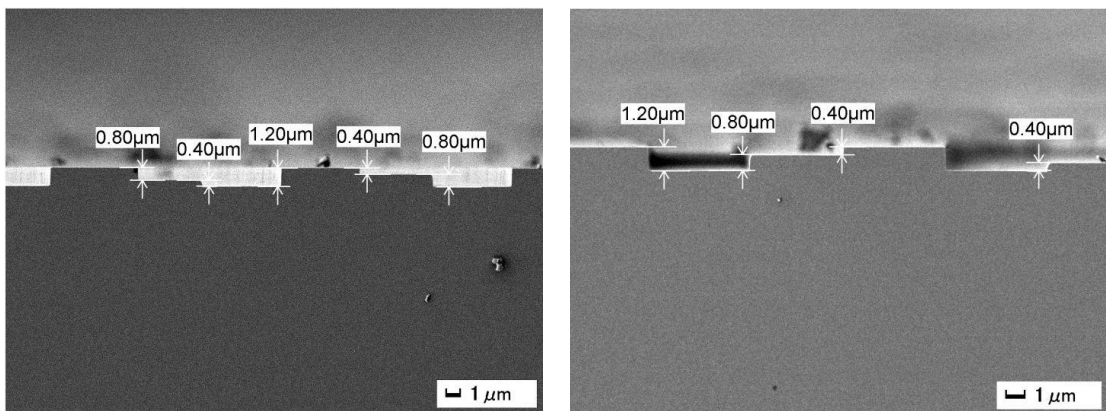


図(2)(c)-18 ピクセルサイズ $2.5\mu\text{m}$ 、位相2段ガラス・ホログラムのSEM観察例（左右は異なる場所の観察例）

図(2)(c)-19はピクセルサイズ $5\mu\text{m}$ 、ホログラムサイズ $12.5\text{mm} \times 12.5\text{mm}$ （ 2500 ピクセル $\times 2500$ ピクセル）の位相4段ガラス・ホログラムの作製結果である。4段は非常に良好に形成されている。図(2)(c)-19に示されているように、測定したパターン幅は設計段階 $5\mu\text{m} \pm 40\text{nm}$ 以下である。また、抜き取りでピクセルサイズ $5\mu\text{m}$ 、位相4段のガラス・ホログラムを切断し、ホログラム断面をSEM観察した。図(2)(c)-20に結果を示す。段の深さも設計値 400nm に対して、 $\pm 40\text{nm}$ 以内で作製されている。

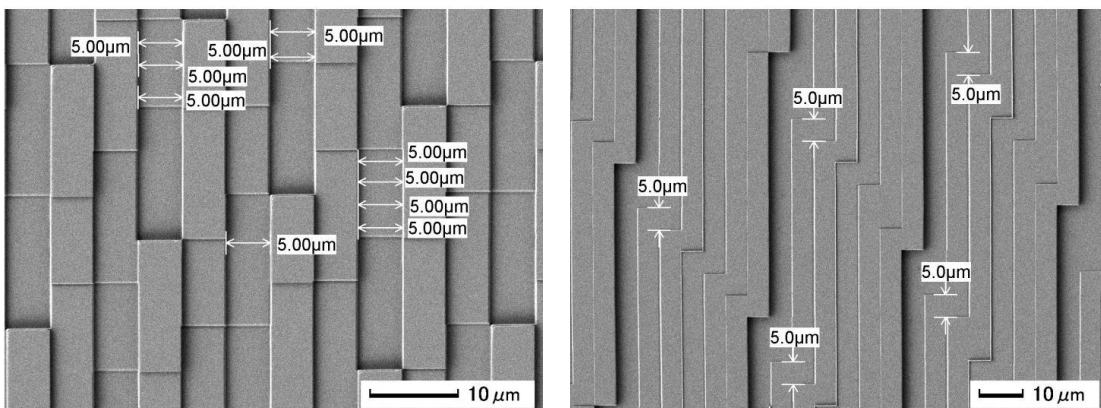


図(2)(c)-19 ピクセルサイズ $5\mu\text{m}$ 、位相4段ガラス・ホログラムのSEM観察例（左と右は異なる場所の観察例）

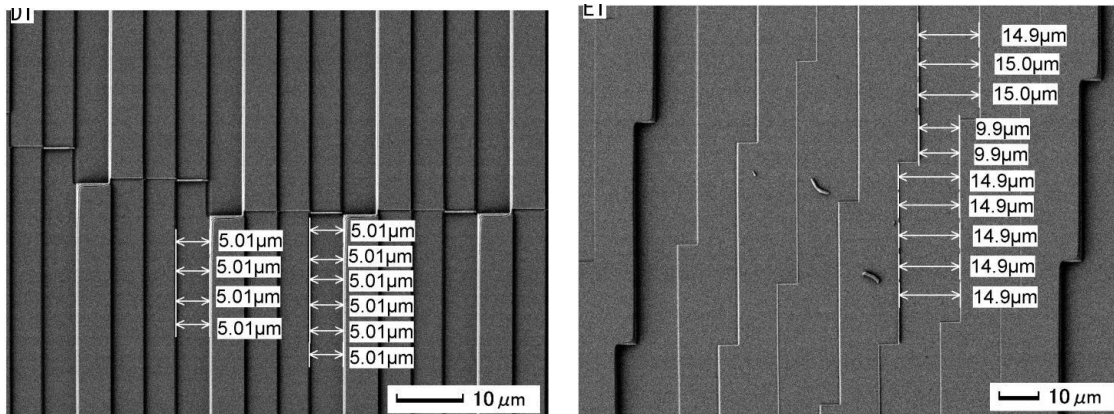


図(2)(c)-20 ピクセルサイズ $5\mu\text{m}$ 、位相4段ガラス・ホログラムのSEMによる断面観察例（左と右は異なる場所の観察例）

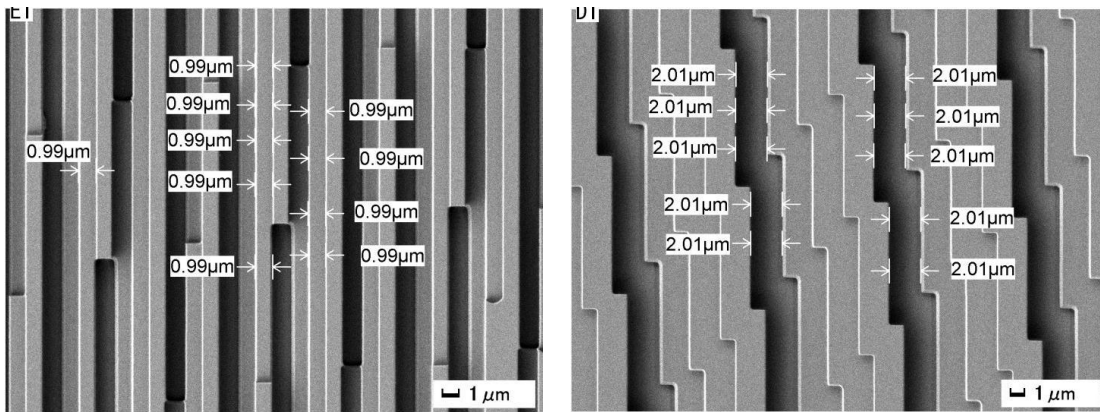
図(2)(c)-21と図(2)(c)-22はピクセルサイズ $5\mu\text{m}$ 、ホログラムサイズ $12.5\text{mm} \times 12.5\text{mm}$ (2500 ピクセル $\times 2500$ ピクセル)、位相6段と位相8段のガラス・ホログラムのSEM観察結果である。図(2)(c)-21の位相6段、図(2)(c)-22の位相8段ともにレジストレーション描画時の段ずれがみられるが、この段ずれは 100nm 以下のため再生像質の劣化は小さいと考えられる。位相6段、位相8段ともに、パターンはおおむね良好に形成されている。図(2)(c)-23はピクセルサイズ $1\mu\text{m}$ 、ホログラムサイズ $13\text{mm} \times 13\text{mm}$ (13000×13000 ピクセル)、位相4段のガラス・ホログラムのSEM像である。フェムト秒レーザーの波長と同程度のピクセルサイズでも4段が良好に作製されている。



図(2)(c)-21 ピクセルサイズ $5\mu\text{m}$ 、位相6段ガラス・ホログラムのSEMによる観察例
(左と右は異なる場所の観察例)



図(2)(c)-22 ピクセルサイズ $5\mu\text{m}$ 、位相8段ガラス・ホログラムのSEMによる観察例
(左と右は異なる場所の観察例)



図(2)(c)-23 ピクセルサイズ $1\mu\text{m}$ 、位相4段ガラス・ホログラムのSEMによる観察例
(左と右は異なる場所の観察例)

e) 作製したガラス・ホログラムの性能

多段ガラス・ホログラムの性能を調査するために、改良後の作製プロセスで位相 2 段、位相 4 段ガラス・ホログラムの試作し、これらの再生像を CCD で観察し比較を行った。

まず、図 (2) (c) - 2 4 に示した直径 $100\mu\text{m}$ の円盤 20 個を再生する位相ホログラムを位相 256 段で設計した (図 (2) (c) - 2 5 a))。ホログラムのピクセルサイズは $10\mu\text{m}$ 、ホログラムサイズ $5\text{mm}\times 5\text{mm}$ (500 ピクセル $\times 500$ ピクセル) である。これらを 4 段 (2 段) に階調化して、位相 4 段 (位相 2 段) の位相ホログラムを得た (図 (2) (c) - 2 5 b) と図 (2) (c) - 2 5 c))。位相段数 256 段、4 段、2 段ホログラムの再生像の計算を行った。図 (2) (c) - 2 6 a)、b)、c) にそれぞれの再生像を示した。また、図 (2) (c) - 2 7 には、再生像中心パターンの強度プロフィールを示した。予想通り、段数が増えるほど強度が増し、一様性が高い。

次に図 (2) (c) - 2 5 b) と図 (2) (c) - 2 5 c) の位相 4 段と位相 2 段のホログラムを試作した。図 (2) (c) - 2 8 a) と b) は光学顕微鏡で観察した全体図である。ガラス・ホログラムのほぼ同じ場所を SEM で観察を行った結果を図 (2) (c) - 2 8 c) と図 (2) (c) - 2 8 d) に示した。位相 4 段、位相 2 段の場合も位相パターンは良好に形成されている。また、位相 4 段の方がより複雑な位相分布を持っていることが分る。

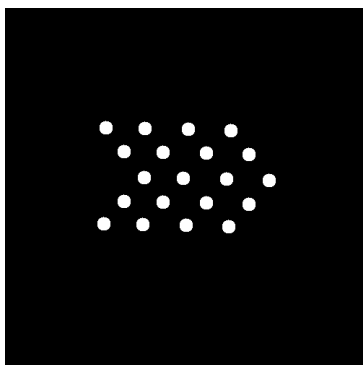


図 (2) (c) - 2 4 ホログラム性能評価用強度分布 ($100\mu\text{m}\phi$ 20 個の円盤)

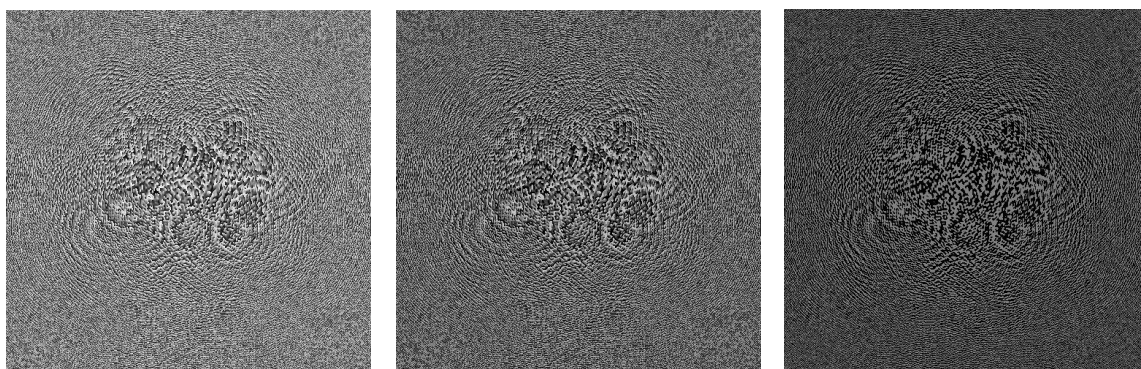
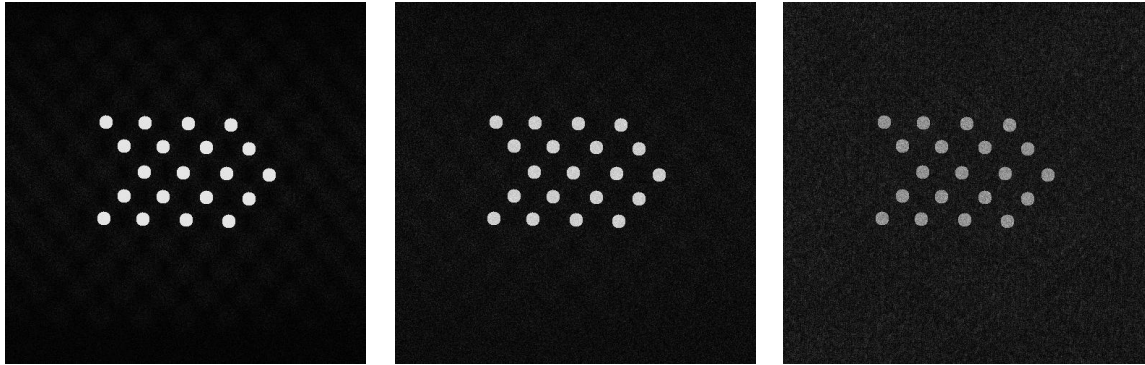
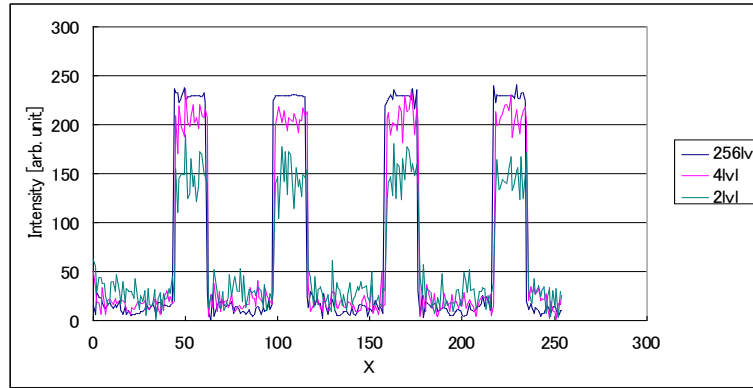


図 (2) (c) - 2 5 図 (2) (c) - 2 4 を再生する位相ホログラム a) 位相 256 段 b) 位相 4 段 c) 位相 2 段



図(2)(c)-26 図(2)(c)-25のホログラムの計算による再生像 a)位相 256 段での再生像 b) 位相 4 段での再生像 c) 位相 2 段での再生像



図(2)(c)-27 図(2)(c)-24の計算による再生像の強度プロファイル (中心付近のラインプロファイル)

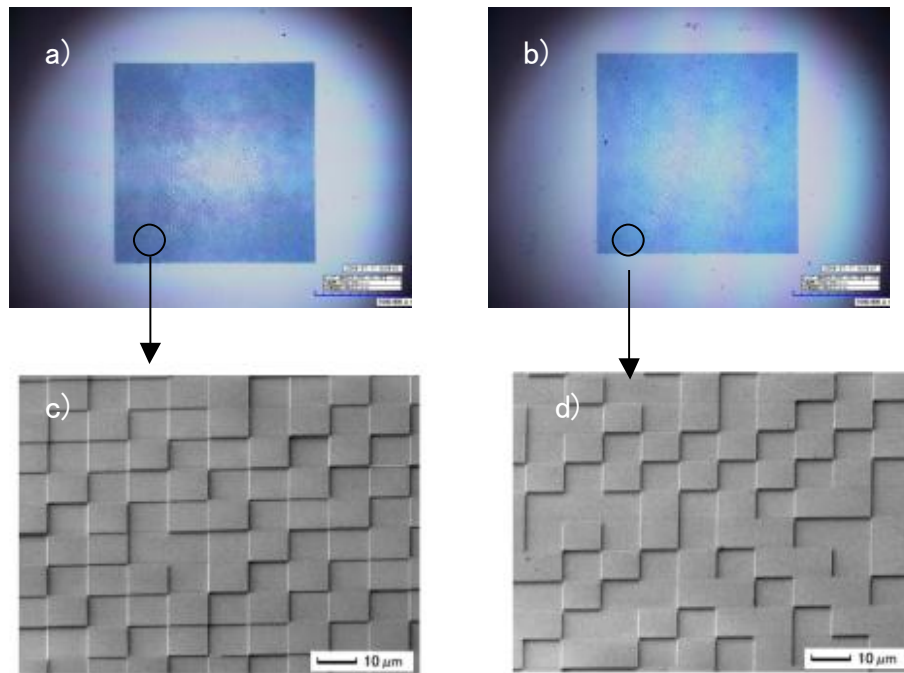


図 (2)

(c) - 28 作製したガラス・ホログラム a) 位相 4 段ホログラムの全体図 b) 位相 2 段ホログラムの全体図 c) 位相 4 段ホログラムの SEM による拡大図 d) 位相 2 段ホログラムの SEM による拡大図

これらのホログラムを図 (2) (c) - 29 に示すような光学系で観察し、再生像の比較を行った。光源は波長 633nm の He - Ne レーザーで、ビーム径を拡大するためのビームエキスパンダーを使用した。ガラス・ホログラムの間には光量調整用の ND フィルタを置いた。今回の測定では、位相 2 段と位相 4 段での再生像の直接比較を行うため、同じ ND フィルタを用いて位相 2 段と位相 4 段のガラス・ホログラムへの入射光量が等しくなるようにした。ガラス・ホログラムの後方には 2 次元ステージ上に CCD カメラを設置し、様々な結像距離での再生像の観察が可能である。

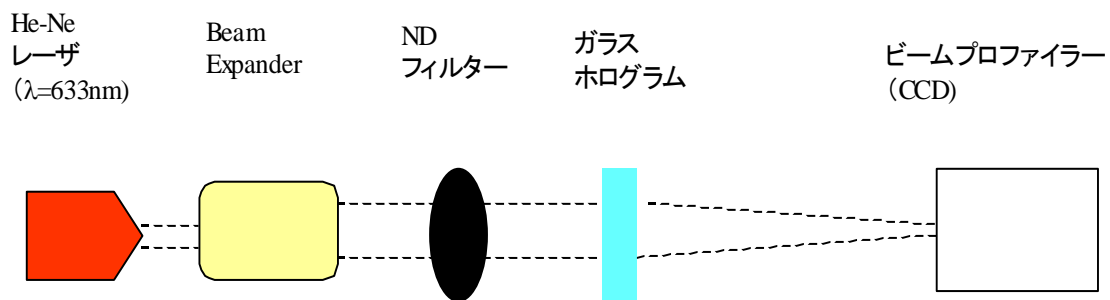
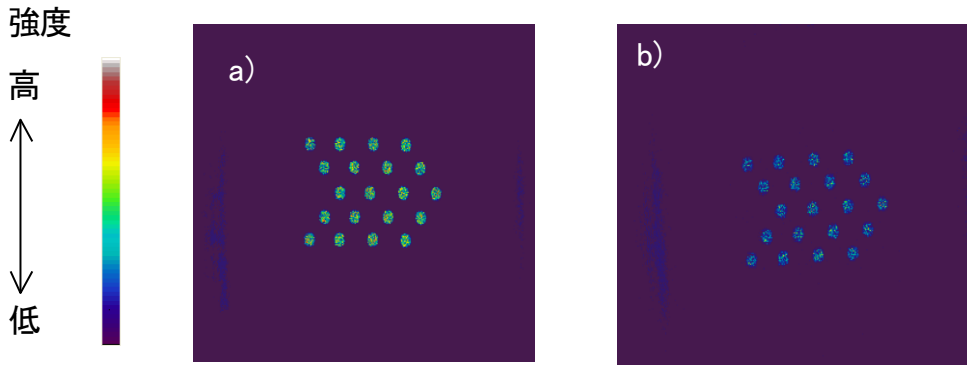


図 (2)

(c) - 29 ガラス・ホログラム再生像観察概略図

位相 4 段と位相 2 段のガラス・ホログラムの再生像を最適な結像距離で観察した結果を図 (2) (c) - 30 に示した。計算結果と同様に位相 4 段ホログラムの方が位相 2 段ホログラムよりも再生強度が高い。これは、構築・改良を行ったガラス・ホログラム作製プロセスの有効性を示している。また、様々なガラス・ホログラムを使ったガラス内部への一括加工結果においても、多段化による効率の改善が見られた。



図(2)(c) - 30 He-Ne レーザーによる作製したガラス・ホログラムの再生像 a) 位相 4 段の場合 b) 位相 2 段の場合

f) まとめ

ガラス・ホログラム作製プロセスの構築を行った。EB描画条件の最適化により5mm×5mmのホログラムの描画時間は約35%になり、ガラス・ホログラム作製期間を大幅に短縮できた。この作製プロセスの問題点を検討し、プロセスの改良を行った。4段のテストパターンでは、段幅2.5μm以上で段幅、段の深さは設計値±40nmで作製できた。なお、深さについては段幅1μm以上のパターンで設計値±40nmで作製できた。実際に一括加工に使用するピクセルサイズ2.5μmの位相2段ホログラム、ピクセルサイズ5μmの位相4段ガラス・ホログラムでも、ホログラムパターンの幅と段の深さが設計値±40nmで作製できていることを確認した。これらの結果により、プロジェクトの最終目標値である「波面制御素子の作製精度±40nm以下」を達成した。また、e)節で示したように、ピクセルサイズ1μm、ホログラムサイズ13mm×13mm(13000ピクセル×13000ピクセル)、位相4段ホログラムも良好に作製できており、フェムト秒レーザー波長程度のピクセルサイズの多段ホログラムも作製可能である。現状では、ガラス・ホログラム全面をSEMで観察・測定することは不可能である。しかし、(2)(g)章で述べるように、ピクセルサイズ5μm、素子サイズ12.5mm×12.5mm(2500ピクセル×2500ピクセル)の位相4段ホログラムを用いて、1cm導波路を一括加工で作製し、導波光が観察できていることから、ホログラム全面においても高精度で作製されていると考えられる。また、ガラス・ホログラムの多段化により効率が向上していることから、作製誤差は十分小さいと考えられる。

今回開発したガラス・ホログラム作製プロセスにおいても、改善すべき点はまだある。フェムト秒レーザー一括加工によるデバイス製造では、「ホログラム設計→ガラス・ホログラム作製→一括加工→問題点の設計へのフィードバック、ホログラム再設計→ホログラム作製→一括加工→・・・」、というようなサイクルを繰り返す必要があり、ガラス・ホログラム作製期間を短期間化することは必須である。プロセスの大半はEB描画に費やされており、EB描画時間を短くする必要がある。本プロジェクトで使用した点描画方式EB装置は実験室で使用する開発用途の装置であり、最先端の半導体製造プロセスで使用されているものより性能面で劣っている。最先端の半導体リソグラフィー用マスクでは、可変整形ビーム型EB描画装置[6、7、12]が使用され、描画精度と速度ともに優れている。描画時間については、本研究室で100時間かかるものが、10分程度で描画可能である。描画精度についても、寸法誤差については数nm程度である[12]。また、プロセス改良後でも、設計段幅1μmの段の角が丸くなることが観察されている。(図(2)(c)-11)。これは深い段でとくに顕著にあらわれる。ガラスエッチング時に角の先端に電界が集中し、段の角でダメージをうけている。本プロジェクトで使用したRIE装置では、低圧で高密度プラズマを発生させることができないため、総

エッチング時間の長くなる最深段でのダメージを取り除くことはできなかった。しかし、低圧で高密度プラズマを発生させることのできる装置では電界集中を低減し、角が丸くなりにくい条件があることを確認している。このように、先端の装置を利用することで、さらに高性能のガラス・ホログラムを作製可能である。

本プロジェクトではテスト用基板を含めて、655枚の基板をEB描画し、プロセスした。作製したガラス・ホログラムを使ったフェムト秒レーザー一括加工においては、プロジェクトの中間目標や最終目標である「 $60\mu\text{m}\times 60\mu\text{m}\times 60\mu\text{m}$ 内部に100個以上の異質相を一括加工で形成する」とともに、3次元らせん構造[13]、導波路[14-16]、回折格子[17、18]等の様々な加工を行うことができた。

参考文献

- 1) 辻内順平、「ホログラフィー」、裳華房、1997年
- 2) (社)応用物理学会、日本光学会 光設計研究グループ 監修、「回折光学素子入門」、オプトロニクス社、2006年
- 3) B. Kress and P. Meyrueis, “Digital Diffractive Optics”, JOHN WILEY & SONS, New York, 2000
- 4) H. Damman, “Spectral characteristics of stepped-phase gratings”, Optik 53, 409-417, 1979.
- 5) J. W. Goodman, “An Introduction to Fourier Optics”, McGrawHill, New York, Second Edition.
- 6) 田邊功、法元盛久、竹花洋一、「フォトマスク技術」、工業調査会、2006年
- 7) S. M. Sze, “VLSI Technology”, McGrawHill, New York, Second Edition, 1998
- 8) 株式会社クレステック、「高分解能電子線描画装置 CABL-2100LBNG 取り扱い説明書」
- 9) 株式会社サムコインターナショナル研究所、「REACTIVE ION ETCHING SYSTEM MODEL:RIE-10NRG OPERATION MANUAL」
- 10) 日本電子株式会社、「JSM-7500F 電界放出形 走査電子顕微鏡 INSTRUCTIONS」
- 11) メイワフォーシス株式会社、「Neco-ST ネオオスミウムコーター 操作ガイドライン」
- 12) T. Kamikubo, et. al., “Electron beam mask writer EBM-7000 for hp 32nm generation”, Proc. SPIE 7488, 74881E (2009)
- 13) M. Yamaji, H. Kawashima, J. Suzuki and S. Tanaka, “Three dimensional micromachining inside a transparent material by single pulse femtosecond laser through a hologram”, App. Phys. Lett. 93, 041116 (2008)
- 14) J. Suzuki, M. Yamaji and S. Tanaka, “Waveguide fabrication with femtosecond laser pulse shaped by computer-generated hologram”, Proc. SPIE 7201, 72011C (2009)
- 15) J. Suzuki, Y. Arima, M. Yamaji, H. Kawashima and S. Tanaka, “Curved-waveguide fabrication using femtosecond laser processing with glass-hologram”, Proc. SPIE 7589,

75890T (2010)

1 6) J. Suzuki, Y. Arima, and S. Tanaka, “Optical device fabrication using femtosecond laser processing with glass-hologram” , Proc. SPIE 7925, 79251D (2011)

1 7) H. Kawashima, M. Yamaji, J. Suzuki and S. Tanaka, “Microfabrication of gratings inside a transparent material using femtosecond laser processing with computer generated holograms” , Proc. ICALEO, 1495–1499 (2009)

1 8) H. Kawashima, M. Yamaji, J. Suzuki and S. Tanaka, “Microdrilling of sheet materials with femtosecond laser pulses shaped by computer generated holograms” , Proc. ICALEO, 762–766 (2010)

(d) ホログラムによる加工のための基盤技術

1) 研究の背景

フェムト秒パルスレーザーを用いた透明媒体の内部加工は、光導波路^[1, 2]や三次元光メモリなどの光デバイスをはじめとする様々なデバイス加工への応用性と将来性によって幅広い分野から注目されているだけでなく、超短パルス光と物質との相互作用という基礎物理学的の面でも、電子励起・振動励起・アブレーションの各過程を独立して扱うことができるため多くの関心がよせられている。レーザーと物質との相互作用、とくに絶縁破壊についての研究はレーザーの歴史自体と同じくらい古く、1963年には既に Maker ら^[3]によって理論的に偏光の影響などが詳細に調べられている。1974年には Bloembergen^[4]によって実際にアブレーションの実験が行われている。そこから既に半世紀が経過しようとしているが、いまだその相互作用の詳細については解明されていない部分が多い。さらに、これらの研究は連続波に限定されたものである。つまり電磁波であるレーザー光は時間的・空間的に変化する“場”として捉えられてはいるが、パルスレーザーの場合はその“場”自体がテンポラリーな扱いとなり、より扱いが難しくなる。よってパルスレーザーによるアブレーション実験とその理論的な解析が行われたのはこれよりずっと後であり、90年代後半に Hannover 大学の研究グループによって発表された^[5, 6]。ここでは電子温度と格子温度それぞれについて時間的・空間的な変化を議論しており、光子が相互作用領域を通過するタイムスケールと電子温度・格子温度が上昇するタイムスケールとの違いにより生じる相互作用が異なってくるまで解説したおそらく最初の論文である。そこで用いられた被加工物質は光が透過しない物質（金属）であり、対象とした加工は当然表面アブレーションである。我々が本プロジェクトにおいて研究している対象は光に対して透明な物質の内部へのフェムト秒パルスレーザー加工であり、系はさらに複雑さを増す。実際、これまでもフェムト秒パルスレーザーを用いた透明媒体内部への加工に関する研究は数多くなされているが、どのような仕組みでどのような物理的・化学的変化が起きて、どのような性質の被加工領域がどの程度の大きさに生じるのかについては、全くといっていいほど理論が追いついていない状態である。本プロジェクトで達成しなければならない三次元微細加工はそれぞれの異質相の形状および相対位置について高い精度が要求されるため、これら未解明の基礎過程について解き明かすことは非常に重要である。超短パルスを用いることで、物質の電子系に光が吸収（電子励起）された後に引き続いて起こる電子系から格子系へのエネルギー移行（振動励起）のタイムスケールが始まるまでに光パルスは相互作用領域を通過してしまっているため、これまでの連続光やナノ秒パルスではこれら電子励起と振動励起の過程に加えてその後のアブレーションまでが混在して起きていた状況とは全く異なり、理論的にはこれら全ての素過程が時間的に独立して捉えられる。その意味でフェムト秒パルスレーザーのもたらす知見は非常に大きいと期待できる。本報告書ではその解明への足がかりとして、特にパルス幅を変化させたときの加工形状の変化から、光吸収プロセスがどのように変わっていくかについても議論している。

フェムト秒パルスレーザーを用いることの利点としては、このような素過程の解明という面に限らず、熱的影響による加工領域の物理的・化学的変化が無視できることが挙げられる。これは光子のエネルギーがフェムト秒のオーダーで電子系に吸収される一方で、熱的変化が生じるナノ秒のオーダーの時点では既にパルスレーザーは対象領域を通過してしまっていることに依る。また別の利点としては、相互作用により生じるプラズマの扱いが容易になり、これにより加工精度を向上させられることが挙げられる。パルス幅が長くナノ秒のオーダーになる場合、物理的・化学的に既に变化した物質とプラズマとが共存した系を想定しなければならず、特にアブレーション加工に至っては蒸発した物質とプラズマとの相互作用まで考慮しなければならないが、フェムト秒パルスであればそれらの効果は無視できるため、プラズマプルームの性質は物質やレーザーの特性に依存しないため比較的容易にシミュ

レーションすることが可能である。

本章では、このフェムト秒パルスレーザーとガラス・ホログラムを用いた三次元加工に関する報告を行う。レーザーによるガラス内部の改質でデバイスを作製する場合、多くの点やある程度の長さを持った線を作製することがほとんどである。そのためには、これまではガラスサンプルを高精度の3軸ステージ上に設置し、1点加工した後にサンプルを動かして次の点を加工する、あるいはレーザーのシャッターを開放したままサンプルを動かしながらライン加工を行う逐次描画法が主に用いられてきた。この加工法は任意の3次元形状の加工が可能であるため自由度は高いが、例えばデバイス作製に1万点の加工が必要な場合、2個/秒の速度で加工を行ったとしても1時間以上を要するため大量生産にはおおよそ適していない。またライン加工を行う際には、設定速度までの加減速の影響で端の部分が中央部分と異なる加工になる欠点もある。最近ではこの逐次描画法をさらに発展させ、レーザー加工後にアニーリングとフッ酸によるエッチングを行ってマイクロ流路を作る方法も確立された^[7]。しかしこの手法でも、加工時間で最もネックになるのはレーザー加工過程である。この加工時間の問題を解決するために提案されたのが三次元一括加工法であり、様々な分野において実用化が期待されている。

一方でレーザーによるガラスの内部加工については、すでに広く応用されているにもかかわらず、実際に光と物質とがどのような過程をふんでどのように変質されているかについてはいまだ未解明の部分が大きく、基礎研究がまったく追いついていないのが現状である。近年アブレーションに関しては研究が進んできたが、それでも未知の部分が多い。内部加工については、言うまでもなくさらに未開拓である。そこで本報告書では、プロジェクトの最終目標の1つであるガラス内部の60 μm 立方体積内への100点異質相一括加工に関する報告とあわせて、超短パルス光とガラスとの相互作用についても得られた知見について議論する。

2) 理論

2-1) レーザーと物質との相互作用

ひとことにレーザーと物質との相互作用といっても、そのプロセスは複雑である。物質の光パルスに対する応答は、パルスの強度やパルス幅、照射パルス数、繰返し周波数、レーザー波長などのレーザーのパラメータとともに物質の屈折率や透過率、熱伝導率や原子の配置にも依存してくる^[8]。特にこのプロセスを時間軸にそって光の強度への依存性ととともに示したのが図3-1-2-(2)-(c)-1である。まずレーザーパルスとして相互作用領域に到達した光子は電子によって吸収される。金属の場合、到達する光子の密度に対して物質が十分な自由電子密度を持つため、光子および自由電子の密度に比例した確率のもとでこの吸収が行われ、エネルギーが電子に移行し、より高いエネルギーの自由電子となる。半導体の場合、光子の吸収は価電子帯の電子によって行われる。価電子帯にある電子が伝導帯に励起するためには禁制帯の幅(バンドギャップ)に相当するエネルギーを光子から得る必要があるが、多くの場合光子のエネルギーはバンドギャップに匹敵するため、金属の場合と同様に線形に吸収が行われる。これに対し絶縁体の場合も半導体と同様自由電子密度が非常に低く($\sim 10^{-9}/\text{cm}^3$)、光子の吸収は価電子帯の電子によって行われるが、バンドギャップが半導体に比べて非常に大きいため、これを超えるためには多光子吸収過程が必要になる。いずれの場合においても電子へのエネルギー移行の時間スケールはパルス幅によって決定される。別の言い方をすれば、パルスが通過した後は光子による電子励起は起きない(厳密には、高いエネルギーを持った電子による他の電子の励起、つまり impact ionization は起こり得る)。

吸収されたエネルギーは続いて電子からフォノンへと移行される。すなわち振動による格子の温度上昇である。金属においては、高いエネルギーの電子から低いエネルギーの格子へのエネルギー移行は two-temperature model によって説明される^[9]。これは電子系と格子系の温度をそれぞれ定義し、1次元の2温度拡散モデルとして全体の系を捉えたものである。

このモデルは幾つかの仮定を付け加えることで絶縁体にも適用可能であるが^[10]、電子-フォノンのカップリング以外にも electron trapping や再結合などの過程も考慮に入れなければならない、系は複雑になる^[11]。特にパルス幅が電子の励起にかかる時間のオーダーに近くなってくると、電子の温度というパラメータを定義すること自体の意味が崩れてくるため、超短パルスの場合にはこのモデルの扱いには注意が必要である。また、レーザーの光強度に関してもこのモデルは制約がある。パルスの光強度が十分に高く、“強い”励起により融解やアブレーションが引き起こされる場合にはこのモデルで正確に表現することができるが、パルス幅が十分に短く電子励起過程が熱過程よりも前に終了する場合で、かつ励起される電子の量もあまり多くない“弱い”励起の場合には、電子からフォノンへのエネルギー移行は遅れを伴う可能性があり、超短パルスによるエネルギー移行を正確に表現するためにはモデルのさらなる進化が必要と思われる^[12]。

まず前提としてパルス幅が有限の値であり、その中でさらに光軸方向に対しても強度分布を持っていることを考慮すると、光子密度が最も高くなる対物レンズの焦点をパルスの最初の部分が通過する際、光子密度は多光子吸収を起こすには十分高くなく、よって焦点近傍のガラスでさえパルスにとっては透明であり（これが表面アブレーションの場合であればもちろん約4%のフレネル反射は存在するが）そのまま通過する。その直後光子密度は自己収束の臨界密度を一気に超え、自己収束が始まる。このとき多光子吸収の臨界点も超えるため、焦点近傍におけるパルスとガラスとの最初の相互作用である光子から電子へのエネルギー移行が多光子吸収により行われると同時に、自己収束が始まる^[13, 14]。一方で多光子吸収により束縛電子は自由電子となりプラズマ状態を形成するが、これは逆にパルスをデフォーカスさせる効果をもたらす。つまりこれらのバランスにより光子が吸収され得る領域の大きさが決まってくる^[15]。光子の吸収は多光子吸収がトリガーとなって始まり、これによって価電子帯から伝導帯へ励起された電子が種となり逆制動輻射による衝突イオン化やトンネルイオン化が次々と起こり電子雪崩となって自由電子が増大していく。加工の際にクラックの発生がみられる場合は、この電子増大が進み過ぎていることが要因と考えられる^[15]。

パルスが加工領域を通り過ぎたのち、励起された電子は価電子帯に緩和される。この電子-正孔再結合により、バンドギャップ E_g （シリカガラスの場合 ~ 8.9 eV）に相当するエネルギーが格子系の局所的な体積内に移行される。このエネルギーが物質の温度を上昇させ、融解させる。多くの場合は融点どころか沸点も超えるため、この場合には気化することになる。温度が上昇した領域は安定状態から vapor bubble や vapor layer といった新たな相を含む準安定状態へと移行する^[15]。

フォトンの電子系による吸収過程には多光子吸収とカスケード衝突による逆制動放射の2種類がある。多光子吸収とは、仮想準位を介してバンドギャップに相当するエネルギーになるように複数のフォトンを一度に吸収する現象である。仮想準位とは、電子と1つのフォトンとが相互作用する際にそのフォトンのエネルギーがバンドギャップよりも低い場合、これを吸収することはできないが一時的にとどめておくことのできる現象を表した概念である。フォトンは量子であり、エネルギーと時間のパラメータ間に不確定性を持つ。つまり非常に短い時間であれば本来のエネルギーと大きくずれた量子として振る舞うことができる。このエネルギーの不確かさを利用して、電子は吸収することのできないエネルギーをもったフォトンを受取り励起状態になることができる。ところが励起状態にとどまることはエネルギー保存則から許されない。そのため、この「非常に短い時間」の後には必ずフォト

ンを放出して基底状態に戻る。この時放出される光子は、エネルギー保存則から吸収された光子のエネルギーと同じエネルギーを持つ。つまり不確定性原理により決まる時間以上の時間スケールで観測してもこの吸収過程を見ることはできない。このような遷移を仮想遷移と呼び、このときに使われる準位を仮想準位と呼ぶ。この寿命は振動数の逆数程度であり、800nm の光であれば 2.66fs になる。この仮想準位の寿命の間に次の光子も吸収され、寿命 $1/2\nu$ を持つより高いエネルギー $2h\nu$ の仮想準位へ励起が起こる。エネルギー準位が上に行くほど準位の間隔が狭くなり、擬似的な連続体となるため光子の吸収が進んでいく。そして結果的にイオン化を起こすために十分な光子数が吸収される。またカスケード衝突とは、光子により励起された自由電子が、集光されたレーザー光による逆制動放射、つまり光子と衝突するたびに吸収していき、原子と衝突するまでに他の電子を自由電子に励起させるのに十分な量の光子を吸収していればこの電子を励起させることを繰り返して自由電子を増大させる現象である。この過程では多光子吸収と異なり比較的長い時間光子のエネルギーを自由電子が蓄えておくことができ、一般的にその寿命は振動励起の周期程度 ($\sim 100\text{fs}$) とされている。つまり多光子吸収よりもその寿命差は少なくともカスケード衝突による自由電子の生成過程の方が起こりやすいといえることができる。またカスケード衝突には自由電子の移動による電子-原子衝突過程が必要であり、そのため多光子吸収より時間的に遅く起きる。その意味では、これら 2 つの吸収過程が混在する場合には、多光子吸収がトリガー的役割を果たしカスケード衝突によって増倍するという構図になっていると思われる。このように光子の吸収は全く異なる 2 つの過程によって行われ

光子-電子相互作用 (=電子励起) は、そのほとんどが相互作用領域をパルスが通過する間に起きる。これに対して、引き続いて起こる電子-フォノン相互作用 (=格子振動、原子移動を伴わない融解) はパルス到達後から数 ps~数十 ps のオーダーで始まる^[16]。また原子・分子の動きを伴う物質の改質・アブレーションなどは数 ns~のオーダーで起こる^[16]。つまりパルス幅が長い、あるいは連続波の場合、最初に届いた光子のエネルギーが既に原子・分子にまで移行が進んでいる中に後続の光子が次々と到達するため、上記の 3 つのプロセスが混在する中で物質の改質が進むが、パルス幅が数十 fs~数百 fs 程度の場合、これら 3 つの素過程が時間的に独立した状態で起こる。つまり光と物質との相互作用を考える上で、超短パルス光を用いることは現象を簡素化することにもつながる。

本報告書では主に 1 パルスのみでの照射実験の結果について議論しているが、作製するデバイスによっては複数のパルスを連続して同じ領域に照射する方が都合がよい場合もあり、またそれが必須となる場合もある。このような場合、これら照射されるパルス同士は十分にそのパルス幅が短く、かつパルス間が十分に離れているため、加工領域において互いに影響を及ぼしあうことはできない。つまり多くのパルスを照射したからといって、前のパルスによって励起された電子が後続のパルスの到達まで励起されていることは当然あり得ず、これよりもタイムスケールの長い格子振動や熱拡散でさえ次のパルスの到達までには収束している。つまり、到達するパルスは常に安定状態の物質と相互作用する。しかしこれは、最初のパルスと最後のパルスとが同じ相互作用を起こすという意味にはならない。加工閾値を超えるパルスが 1 つでも通過した後であれば必ず欠陥などが形成され、これによって禁制帯中に新たな電子状態が作られ、多光子吸収に必要な光子数の平均値が減少し、吸収率が增加する。よって連続パルス照射の場合、加工領域の状態のうち吸収に影響を受けるものは、照射パルス数の増加とともに指数関数的な変化を見せる^[17, 18]。実際、繰返し周波数 1kHz で数秒間の照射を行うと異質相が徐々に濃くなり、屈折率の変化量が大きくなっていることが確認できた。このようなパルスの蓄積効果についてはこれまでも幾つかの報告がなされており、特に繰返し周波数が MHz のオーダーになると熱の蓄積効果も無視できなくなってくるため、加工形状の制御が難しくなるという報告もある^[17, 18]。さらに、このように熱の蓄積が起こり得る場合、シリカガラスはその低い熱伝導率 (=1.38Wm⁻¹

K^{-1}) と熱膨張率 (ネットワーク構造に依存するがおよそ $0.55 \times 10^{-6} K^{-1}$ 程度) によりその蓄積効果は他の物質の場合に比べて著しいといえる。この蓄積された熱エネルギーは溶融部分に高圧・高温領域を形成し、衝撃波を生む。パルスパワーが極めて高い場合あるいは連続パルス照射の場合、溶融する堆積は大きくなり、中心部分が冷却されるまでにかかる時間が結晶化に必要な時間よりも長くなれば部分的に結晶化するケースもある^[15]。

レーザーパルスが被加工領域に到達すると、光子のエネルギーはいくつかの非線形吸収過程を介して核内電子に吸収される。このとき電子はその熱容量の小ささにより、一時的に数千度にまで加熱される。加熱された電子は 1-100ps 程度の時間をかけて格子温度を上昇させるが、その時間は electron-phonon coupling の強さに依存して物質ごとに異なってくる。

レーザーパルスをレンズにより集光した場合など、光子を高密度に凝縮させることでその領域中の原子・分子はイオン化されプラズマが発生することが知られている。多数の微小な異質相を狭い領域に加工するためには、各異質相の大きさを正確に制御しなければならず、そのためには発生するプラズマの性質について理解することが非常に重要である。本加工法において特に考えなければならないのは、主にプラズマ内の自由電子密度が極度に増大することでパルス後半の光子が反射されてしまうケースである。

レーザー照射により生成されるプラズマは、レーザーの強度がそれほど強くない場合には電子-電子相互作用は無視できるため、プラズマ中の自由電子の特性はプラズマの吸収と反射によって決定される。Saha の式^[19]を用いると、自由電子密度 N_e は次式で表すことができる。

$$N_e \sim 5.8 \times 10^{-4} \frac{N_g T_g^{5/4} [K]}{p_g^{1/2} [\text{bar}]} \exp\left(-\frac{E_{ion}}{2k_B T_g}\right) \quad (\text{式. 1})$$

ここで T_g はプラズマ温度、 N_g は粒子密度、 E_{ion} はイオン化エネルギー、 p_g は圧力であり、理想気体を仮定している。平衡状態では衝突周波数 γ は電子と原子 (あるいは分子) との衝突現象に限定して考えることができるため、電子-原子衝突断面積 σ_{ea} 、プラズマ粒子密度 N_p 、電子の速度 v_e とすると

$$\gamma \sim \sigma_{ea} N_p v_e \quad (\text{式. 2})$$

と表すことができる。ここで、生じるプラズマの密度がそれほど小さくなく $\gamma \ll \omega_p$ ($\omega_p = N_e e^2 / m_e \epsilon_0$ はプラズマ周波数) の近似が適用できる場合、プラズマの吸収係数は

$$\alpha \sim \frac{\gamma \omega_p^2}{\omega^2 c} \sim \frac{N_e N_p}{\omega^2} \sim \lambda^2 \quad (\text{式. 3})$$

となる。このときイオン化の割合はそれほど高くないため、自由電子はレーザーからの光子の供給により直接多光子吸収を起こす。あるいはレーザーによる場で加速された電子の衝突が引き起こす衝突イオン化 (impact ionization) がメインのチャンネルとなり増大していく。被加工領域にポイドでなく異質相を形成する場合は、照射されるレーザーの強度は比較的低くしなければならず、プラズマの吸収係数は上記の条件を満たしていると考えられる。このときプラズマによりパルス後半の光子が反射される影響は無視することができ、現象はより簡単にモデリングすることができる。

これに対しレーザーの強度が非常に高い場合、プラズマの生じた領域にあるほぼ全ての原子・分子はイオン化した状態にあり、電子温度と原子温度が著しく異なる非平衡状態となる。このとき主要なイオン化チャンネルは逆制動輻射 (inverse Bremsstrahlung) であり、プラズマ吸収係数は

$$\alpha \sim B \lambda^3 \frac{Z^2 N_i N_e}{T_p^{1/2}} \left[1 - \exp\left(-\frac{\hbar \omega}{k_B T_p}\right) \right] \sim \lambda^3 \quad (\text{式. 4})$$

となる。

2-2) シリカガラス

ここまでパルスを構成する光子を中心として相互作用について議論してきたが、ここからは物質側であるシリカガラスを主体としてこの相互作用について考えてみる。フェムト秒パルスレーザーによる加工はガラスに限らず、レーザーの波長よりも吸収端が短波長側にある物質であれば原理的にはなんでも加工可能である。実際本加工法はガラスに限らずアクリルなどの樹脂類にも適用できることが確認されているが、ここではシリカガラスを対象を限定する。

シリカ (SiO_2) は地球上の岩石の 95%以上を形成しており、自然界に存在する最も豊富な物質のひとつである。また産業界においても SiO_2 は金属酸化物半導体になくはならない物質である。このような背景から、これまで合成石英ガラスに関する様々な理論的^[20, 22]・実験的^[22-24]研究がおこなわれてきた。特に分子構造、相転移、高圧化での振る舞い、optical breakdown、アブレーションなどに関する研究がさかんである。特に結晶やアモルファスなど数多くの状態を持つシリカガラスは、圧力および温度に対して複雑な振る舞いをする。フェムト秒パルスレーザーがシリカガラスに照射される際には、圧力や温度は局所的に急激に変化するため、現象はさらに複雑になる。

3) 実験装置及び加工方法

本加工法に用いたフェムト秒パルスレーザーの外観を図 3-1-2-(2)-(c)-3、3-1-2-(2)-(c)-4 に、光学系概略図を図 3-1-2-(2)-(c)-5 および図 3-1-2-(2)-(c)-6 に示した。概略図中央は増幅部であり、真空チャンバー内に設置されたチタンサファイア結晶を中心に 2 つのミラーが設置され、1~9 パスまでの光路が結晶を通過するマルチパス方式をとっている。1~4 パスはオシレータ光の 80MHz のままであり、目視による確認が可能である。その後レーザー光はポッケルスセルと呼ばれる光スイッチング E/O 変調器および偏光板を通じて Q スイッチがかけられる。4 パスまでは横偏光であり、ポッケルスセルに $\pi/2$ だけ位相差が生じるように電圧をかけておくと、反射光もまた $\pi/2$ 位相がずれるため、最終的に半周期分の位相がずれ、ポッケルスセル直前に置かれた偏光子を再び通過することはできない。ここに反転分布が最大となるタイミングに合わせてパルスジェネレータにより電圧を取り除くトリガーをかけることで発振が始まり強力なパルスを得ることができる。本装置で用いているパルスジェネレータは 1Hz、10Hz、100Hz、1kHz の 4 種類に設定可能であり、したがってレーザーの繰返し周波数もこの 4 種類に設定可能である。

光軸調整は以下のような手順で行った。

- (1) オシレータ (図 3-1-2-(2)-(c)-5 中の Femtosource) 内のミラーを調整し、連続発振・モードロックいずれのモードでも適切な出力 (連続発振時 800mW、モードロック時 550mW 以上) が得られるようにした。
- (2) オシレータ光を M04 および M0 ミラーにより二軸調整し、増幅部に導入した。
- (3) M1、M2 ミラー上に見える 1 パス~4 パスのオシレータ光のスポット位置を確認しながら、それらが適切な位置にくるように、かつ A1、A2 スリットおよびチタンサファイア結晶中央部を通過するように M04、M0、M4、M6 ミラーを調整した。チタンサファイア結晶チャンバー内は常時真空引きされているが、図 3-1-2-(2)-(c)-7 のように水滴が付着することもあるため、付着が生じた場合にはこれを拭き取る。
- (4) 5 パス~8 パスの光軸を M9 ミラーにより調整した。
- (5) 9 パスの光軸を M11、M12、M13、M14 ミラーにより調整し、圧縮部にオシレータ光が導入されるのを確認した。
- (6) ポライザ Pol2 により 5 パス以降の横偏光を全てカットした。
- (7) ポンプ光 Nd:YLF がチタンサファイア結晶および M1 ミラーの適切な位置に入射するように M19 および M20 ミラーで二軸調整を行った。

- (8) ポンプ光の出力を 7W にし、2 パスのオシレータ光をフォトダイオード PD3 に入射させて 30 倍に増幅されるように M04、M0、M4、M6 ミラーを調整した。同様に 4 パスのオシレータ光が 1000 倍に増幅されるように上記ミラーを再調整した。
- (9) ポンプ光の出力を 23.3A まで上げ、圧縮部入口において 500mW 程度の出力が得られるようにオシレータ光およびポンプ光の光軸を再調整した。ただしポンプ光の劣化によりこの電流値で十分な出力が得られなくなってきた場合には最大 32A まで上げて調整を行った。この際、M21 と M1 の間に衝立をはさみ、M21 で反射されたポンプ光の成分はカットした。
- (10) M21 と M1 の間の衝立を取り除き、出力が 1W 得られることを確認した。

出力がモードロック時で 550mW 以上、中心波長は 809nm（半値幅は 106nm）になるように以上のような光軸調整を定期的に行った。

用いたホログラムは、ホログラム 01～05 は正方形で縦横 8mm、ホログラム 06～11 は円形で直径 8mm である。後半のホログラムの形状を変えた理由は、レーザーパルスの光軸に垂直な方向の断面形状が直径 8mm の円形であり、ホログラムもこれに合わせることでより効率的に光を利用するためである。本報告書で使われるホログラム一覧は表 1 にまとめた。

4) 結果と考察

4-1) レンズのみによる加工

4-1-1) 逐次描画加工実験

三次元一括加工法ではフェムト秒パルスレーザーと被加工物質の他にホログラムと対物レンズが必要である。ホログラムはパルスの位相分布の制御のために用いられ、対物レンズは結像領域における光強度(=光子密度)を十分に上げるために光を縮小するデバイスとして用いられる。これら2つの素子を含んだ系の3次元位相分布は非常に複雑になる。そこでまず対物レンズだけを用いて加工試験を行い、レーザーパルスと物質との相互作用について確認した。

まず目視で確認できる程度の比較的大きなサイズの加工試験を行った。レーザーのパルス幅は66fs、パルスパワーは820 μ J/pulse、繰り返し周波数は1kHzで、用いたサンプルは合成石英ガラス(東ソー:ESグレード2面研磨、25 \times 25 \times 3mm)である。図3-1-2-(2)-(c)-8は加工ステージを動かしながらレーザーを連続照射する逐次描画法で一辺が2mmの立方体枠型に加工した例である。このように対物レンズのみで集光させた場合、意図する深さに3次元的な異質相を形成できることを確認した。ただしここで行った条件での逐次加工の場合、ステージを動かす速さをおよそ1mm/secより速くすると加工領域は目視で確認することができなかった。これは、同一または非常に近い位置に複数のパルスを照射することで加工領域の性質、特に屈折率が変化していることを示している。図3-1-2-(2)-(c)-2に示したようにそれぞれの相互作用のタイムスケールと照らし合わせて考えてみても、パルス光と物質との相互作用が全て完了してからおよそ1ms後に次のパルスが到達するため、前後するパルス同士が影響を及ぼし合うことは考えられない。よって、最初のパルスによって加工された領域の屈折率変化は目視するには十分ではなく、後続のパルスがこの加工領域にある程度重なることで、より大きな屈折率変化をもたらしていると推測される。ここでの加工条件では、1パルスで加工される領域の大きさは光軸方向に垂直な面でおおよそ30 μ mであるため、前述のステージ速度で考えると同一箇所に30発のパルスが照射されて初めて目視で確認できるほどの屈折率変化をもたらしていることになる。しかし本プロジェクトで作製しなければならない異質相は屈折率変化 Δn が0.015もあれば十分であり、この場合は1ヶ所に1パルスの1/1000程度の光が照射されれば十分なレベルである。このことから3次元一括加工法によって理論上は1000個の異質相を1パルスで加工可能なことが分かる。

4-1-2) 表面アブレーション実験

表面に対物レンズの焦点を合わせアブレーションを起こさせた場合の、加工形状と照射パルス数との関係について調べた。図x022は左から1kHz、100Hz、10Hz、1Hzでそれぞれ1秒間照射した(つまりそれぞれ1000、100、10、1パルス照射した)場合の光学顕微鏡で見たアブレーション形状である。通常、連続波のレーザーを用いると熱的影響の及ぶ範囲に熔融による境界の不明瞭な加工痕ができてしまうが、フェムト秒パルスレーザーの場合熱拡散が起きる前にフォトンの供給がなくなるため、熱による変形を最小限に抑えられていることが確認できる。また照射パルス数に比例してアブレーション半径が大きくなっているのが確認できる。これは後続のパルスが加工領域に到達する際にはすでに前のパルスによってアブレーション加工がされており、アブレーション加工された領域はそのラフネスおよび化学的变化によって屈折率の変化した状態になっているため、新たな加工を生じさせていると考えられる。この効果により後続のパルスはアブレーション

ションをさらに拡げていくが、その影響が及ぶ範囲は限定的であるため、ここでは示されていないがさらに数万パルス照射するとアブレーション半径は飽和する。また、1パルスのみ照射した場合はこの図からは加工が確認できないが、レーザーのパルスパワーは加工閾値を超えているため、1パルスだけでも加工はできるはずである。よって倍率を上げなければ見えないほど小さい加工か、あるいは加工の際のシャッタを切るタイミングとパルスの周期との同期がとれておらずにパルスが到達していなかった可能性が考えられる。

この加工サンプルは側面を光学研磨することで側面からの観察も可能にした。これにより、アブレーション半径だけでなく深さも照射パルス数に比例して深くなっていることが分かる。1000パルスの場合はアスペクト比およそ4であるが100パルスでは1程度である。深さのパルス数依存性についても数万パルスでの飽和を確認した。このような傾向はホログラムを介した加工でも同様に見られると思われるため、照射するパルス数は加工形状を最適化するために重要なパラメータのひとつであることが分かる。

また、このアブレーションテストを行った時点でのビームの質はあまりいいとは言えず、これによりアブレーション形状はきれいな正円を描いていない。そこでビームエキスパンダーを光路上に設置しビーム半径を上げた上で、その中心近傍の比較的強度プロファイルが整った部分を用い、外側をしぼりによって取り除いてビーム整形を行った。これによりビームの強度プロファイル（横モード）は図3-1-2-(2)-(c)-9のようになった。なおM5の対物レンズ（焦点距離10mm）を使用し、ガラスサンプルの表面からの反射光をCCDカメラにて観察した。しぼりとの干渉により同心円状の干渉模様が生じており、これによりシングルモードのビームよりも空間的コヒーレンスが悪くなっている影響は考えられるが、一方でホログラムを計算する際には入力光としてフラットな強度分布を想定しているため、その意味ではこのハイハット型に近い強度分布はより忠実な再生像を結像する可能性はある。以降の加工試験は主にこの強度分布にて行っている。

ここで行ったアブレーション試験をさらにすすめて、ソーダライムガラスおよびシリカガラスにパルスパワーを変えながら同様のアブレーション試験を行い、パルスパワーとアブレーション形状との相関を調べた。このうちソーダライムガラスに照射した結果を図3-1-2-(2)-(c)-10に示した。照射パルスパワーが減少するにしたがってアブレーション半径およびアブレーション深度が減少しているのが確認できる。アブレーション半径 d_{abl} とパルスパワー E との関係は次式で表すことができる。

$$d_{abl}^2 = \frac{1}{2} d_w^2 (\ln E - \ln E_{thr}) \quad (\text{eq. x8})$$

ここで d_w はビームウエスト、 E_{thr} はアブレーション閾値であり、アブレーション半径が0のときのパルスパワーに等しい。よってアブレーション半径の2乗とパルスパワーの自然対数とは比例関係にあることが予想されるため、これをグラフ化してみたのが図3-1-2-(2)-(c)-11である。予想通りの比例関係を確認することができる。このグラフからアブレーション半径が0のときのパルスパワーの値を外挿してみると、ソーダライムガラスでは $E_{thr} = 1.7 \mu\text{J/pulse}$ 、合成石英ガラスでは $E_{thr} = 2.1 \mu\text{J/pulse}$ となる。合成石英ガラスについては過去に同様の実験が行われており^[24]、グラフ中に示したように今回の我々の結果とよく一致している。ただしこれよりも高出力の状態で照射すると、もはやパワーとアブレーション半径との関係は単なる比例ではなく、下に凸の曲線を描く。

また、アブレーション深度はパルスパワー I が光子吸収により減衰していく次式によって表わされる。

$$dI = -\alpha_1 I dz - \alpha_2 I^2 dz - \alpha_3 I^3 dz - \dots$$

(式. 9)

ここで α_1 、 α_2 、 α_3 、はそれぞれ 1 光子吸収係数、2 光子吸収係数、3 光子吸収係数である。1 光子吸収のみが起きているとすると式 x9 より

$$L = \frac{1}{\alpha_1} (\ln I - \ln I_{thr})$$

(式. 10)

ただし I_{thr} はアブレーション閾値である。同様に 2 光子吸収のみを考慮する場合は

$$L = \frac{1}{\alpha_2} \left(\frac{1}{I_{thr}} - \frac{1}{I} \right)$$

(式. 11)

3 光子吸収のみを考慮する場合は

$$L = \frac{1}{\alpha_3} \left(\frac{1}{I_{thr}^2} - \frac{1}{I^2} \right)$$

(式. 12)

となる。実際にアブレーション加工試験を行い深度をプロットしたものが図 3-1-2-(2)-(c)-12 である。パルスパワーが増加するにしたがってアブレーション深度が大きくなっていることは確認できるが、何光子吸収が主なチャンネルになっているかは判別がつきにくい。式 10-12 の曲線は $I-L$ でグラフ化すると全て上に凸の曲線となってしまう、カーブフィッティングをしなければ各チャンネルの重みが分からないためである。そこで次のようにして 1 光子、2 光子、3 光子、あるいはそれ以上の多光子吸収のいずれがメインのチャンネルになっているかを判断する。まず 1 光子吸収のみが起きている場合は、 I を対数でとることにより L と直線関係になり、その傾きの逆数から 1 光子吸収係数を求めることができる。しかし図 3-1-2-(2)-(c)-12 の横軸を対数にとると、直線ではなく下に凸の曲線となってしまう。よって支配的なチャンネルは 1 光子吸収ではなく 2 光子以上の多光子吸収であると推測できる。次に式 11、12 の定数項を除いて両辺の対数をとると、それぞれ

$$\ln L = \ln I + \ln \alpha_2$$

(式. 13)

$$\ln L = 2 \ln I + \ln \alpha_3$$

(式. 14)

となる。つまり両対数でプロットすると、その傾きが 1 に近ければ 2 光子吸収、2 に近ければ 3 光子吸収がメインのチャンネルとなることがわかる。そこで図 3-1-2-(2)-(c)-12 のグラフを両対数でプロットしてみたところ図 3-1-2-(2)-(c)-13 のようになり、ホログラムの有無にかかわらずその傾きは 1 に近いことが判明した。このことから今回の実験条件では主に 2 光子吸収によりアブレーションが形成されていたことが明らかとなった。ここで用いたソーダライムガラスは波長 800nm の光による 2 光子吸収のエネルギーに等しい 400nm 付近でシリカガラスよりも若干吸収が大きいことも、この結果を裏付けるものといえる。ただし、このフィッティングは自由電子の生成が多光子吸収のみで起きていると仮定した場合の話である。実際には多光子吸収だけでなく電子雪崩による二次的な増大も起こり得るため、特に後者による自由電子生成の割合が高くなる比較的広いハルス幅の場合にはこの仮定が成り立たなくなることに注意したい。

この結果をホログラムの有無で比較するため、ホログラムを用いない前述の実験との比較を容易にするため、1 点のみに集光するホログラム 04 を用いて同様の実験を行った。これらの結果を比較してみると、ホログラムを用いた場合の方がアブレーション深度は小さい。これには 2 つの

要因が挙げられる。1 つはホログラムの回折効率に起因するものである。今回用いたホログラムは 1 ドットに集光するだけのものであり、回折効率はホログラムの中では高い方であると推測されるが、それでもホログラムを通した後のレーザー強度は約 30%にまで落ちている。回折効率が落ちるということは、それだけアブレーションに使われるフォトン数が減っていることになる。

もう 1 つの要因は NA 値の違いによるものである。フレネルレンズ型ホログラムを通した場合、ホログラムなしの場合よりも NA 値が高くなる。つまりビーム径の z 依存性が大きいため、フルエンスつまり光子密度も速く減衰する。これらの効果を確認するため、ホログラムの回折効率を 30% とし、これによるフルエンスの減少を考慮したグラフに書き直したものを図 3-1-2-(2)-(c)-14 に示した。この図を見ると明らかなように、アブレーション深度はフルエンスの関数であることが分かる。つまりホログラムの有無に関わらず、加工領域に到達したビームの光子密度により加工深さが決定されることが判明した。

このように光子密度でアブレーション現象を捉える場合、式 9 について再考してみる必要がある。この式では光の減衰が物質への吸収のみで起きているとしているが、対物レンズを用いて集光しているため、レンズの NA による光の減衰についても考慮しなければならない。レンズにより集光することによる z 方向の強度変化は

$$I(z) = \frac{w^2}{r^2} I = \frac{w^2 NA^2}{z^2(1 - NA^2)} \quad (\text{式. 16})$$

と表わされる。ここで w はビームウエストである。この項を式 x9 に挿入すると

$$\frac{dI}{dz} = -\frac{2w^2 NA^2}{z^3(1 - NA^2)} - \alpha I - \beta I^2 - \dots \quad (\text{式. 17})$$

I_2 以上の項は非常に小さいと仮定してこの式を I について解くと

$$I = \frac{e^{\alpha L} I_{th}}{1 - \frac{2w^2 NA^2}{1 - NA^2} \int_0^L \frac{e^{\alpha z}}{z^3} dz} \quad (\text{式. 18})$$

となる。この式により得られる計算結果を実測値と比較したものが図 3-1-2-(2)-(c)-15 である。式 18 の解を求める際に 2 光子以上の吸収過程を非常に小さいとして無視しているため実測値との乖離が見られると予想していたが、実際には非常に良くフィッティングすることができた。これは 2 光子以上の吸収過程の効果をフィッティングパラメータだけで吸収できてしまった可能性もあるが、実際に I の 1 乗に比例する項がアブレーション深度を決定付けていると捉えることもできる。もちろん、アブレーション加工が起きるためには、そのトリガーとして必ず 5~6 光子による多光子吸収が起きなくてはならない。しかし自由電子の生成チャンネルには、既に生成された自由電子がレーザー場（あるいは新たな光子の衝突）からエネルギーを得て他の電子を励起させる逆制動放射（あるいは衝突イオン化）も存在する。これらはパルス強度の 1 乗に比例するため、自由電子の多くがこれらのチャンネルによって生成されていると考えれば、図 3-1-2-(2)-(c)-15 のフィッティングも説明できる。つまりこの結果から、多光子吸収過程は加工の種となる自由電子を生成し、これが逆制動放射あるいは衝突イオン化によって電子雪崩を引き起こし、自由電子が増大している可能性が示唆された。

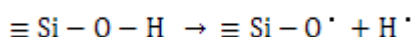
ここまでのアブレーション試験の結果を見てみると、シリカガラスとソーダライムガラスとでアブレーション深度にほとんど差がないことが分かる。特に閾値はほぼ同じ値となっている。これはソー

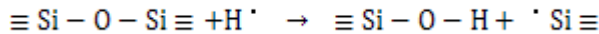
ドライムガラスの方がシリカガラスに比べて加工されやすいという一般的な認識とは異なる結果である。これはアブレーションの閾値が、発生するプラズマの臨界密度によって特徴づけられており、この臨界密度は照射する物質の性質に依らず光の波長のみで決まってくることに起因する。

加工の閾値については、議論しておくべき点が他にも幾つかある。まずは「加工の閾値」とは何か、という定義の問題である。正確には、物質内に何かしらの物理的・化学的変化が起きれば加工はされているわけであり、その意味ではたった 1 つの電子が多光子吸収により自由電子になれば加工されたということもできる。しかし一般的には、光が照射された領域を光学顕微鏡を用いて観察し、非照射領域との違いが確認できたところを閾値として扱っているケースが多い。つまりある程度の屈折率の変化が必要であり、そのためにはある程度の構成原子の移動が必要である。次に「加工の閾値」の持つ意味であるが、この閾値が高いことは当然その物質が加工されにくいことを意味する。光で物質を加工する場合、比較的長いパルス幅の照射では加工のされやすさは電子から原子へのエネルギーの移行しやすさが大きく影響してくる。これは長いパルス幅の場合、パルスが相互作用領域を通過している最中に、電子から原子へのエネルギー移行も同時に行われており、これによって電子雪崩のために必要な余分なエネルギーを持った自由電子が減少してしまうためである。またパルス強度の時間依存性がガウシアンに近い形状をしているために、閾値を超える一定量の光子を確保するためにはパルス幅が長い場合にはそれだけピークパワーが高くならなければならない。これら 2 つの効果により、シリカガラスの場合加工閾値はパルス幅 τ に対して $\tau^{0.502}$ の依存性を持つことが明らかとなっている^[29]。他の一般的なガラスでも $\tau^{0.3} \sim \tau^{0.6}$ の範囲での依存が確認されている^[23]。

4-1-3) 内部加工試験

次に前述の M5 レンズ (焦点距離 35mm) および M20 レンズ (焦点距離 10mm) の 2 種類のレンズを用いて内部加工試験を行った。レーザーの条件はパルス幅 66fs、繰り返し周波数 1kHz、照射時間 1s である。被加工サンプルはソーダライムガラスであり、加工深さは 1400 μm である。加工したサンプルを光軸に対して垂直な向きから光学顕微鏡により観察したものを図 3-1-2-(2)-(c)-16 に示す (図上方がレーザー光源方向)。図 3-1-2-(2)-(c)-17 左は 205 $\mu\text{J/pulse}$ のパワーで照射した場合の加工形状である。ガラス内部においてクラックを伴ったボイドが形成されているのが分かる。またその上方に茶色く変色した異質相も確認された。パワーを 100 $\mu\text{J/pulse}$ にまで落とすことでこの異質相は見られなくなる。さらにパワーを 55 $\mu\text{J/pulse}$ にまで落とすと、被加工領域の様子は一変する。それまでのような光路外の部分にまでおよぶ破壊とは異なり、 $\phi 5 \mu\text{m}$ 内に密度の偏りによると思われる縞模様が形成される。これらの異質相は閾値の異なる別の加工と定義することができる。加工のメカニズムも全く異なっており、ボイドは非常に高い電子密度により加工部分がプラズマ状態となり、熔融状態を経た後にボイドとなる。シリカガラスの場合にはボイド周辺に Si 密度の高いシェルが作られているため、おそらくボイドには酸素が充満しているものと思われる。茶色に変色した異質相は特にソーダライムガラスのように吸収端が比較的長波長側に伸びているガラスにおいて発生しやすい。加工される位置は、加工点のボイド上端より上側が主である。吸収端が長波長側に伸びたガラスでは Si-O-Si ネットワーク密度は低く、OH 基やハロゲン元素、あるいは様々な欠陥などによる終端が高い密度で存在する。特に OH 基がイオン化される場合、次式で示すような過程を経てカラーセンターを作ることが知られている。





(式. 15)

ソーダ石灰ガラスの場合には OH 基濃度が高いため、これによって着色がみられたと考えられる。また縞模様のように観察された異質相は本来作製しようとしている異質相に最も近く、ボイドの発生や着色を伴わずに原子の偏りにより屈折率を変化させていると思われる。加工により形成される異質相はこのように照射するパルスのパラメータに大きく依存してくるため、作製したい異質相の種類を考えながらパルスのパラメータを決める必要がある。

このように異質相といっても様々な種類があり、さらにそれぞれの異質相でどのような変化が起きているかについては未だ明らかにされていない部分が多い。そこでまず、もっとも変化が大きいと思われるボイドについて顕微ラマン測定法を用いて性質を調べた。サンプルはシリカガラス表面から $20\mu\text{m}$ の深さに 1mm 角の広さで千鳥格子に異質相を並べて作製した。用いた対物レンズは 90 倍で、光源である波長 514.5nm Ar⁺レーザーのビーム径は $1\mu\text{m}$ 、レーザーパワーは 100mW 、クロススリットは $200\mu\text{m}$ とした。得られたスペクトルを図 3-1-2-(2)-(c)-52 に、フィッティング結果を図 3-1-2-(2)-(c)-18 および表 3 に示す。これによると、加工部・非加工部ともに石英ガラス中のランダムネットワークに由来するラマンバンド (460 、 800 、 1060 、 1200cm^{-1} 付近) と 3 員環および 4 員環構造に由来する比較的シャープなラマン線 (600 および 495cm^{-1} 付近) が確認できる。ピーク強度比をグラフで比較したものを図 3-1-2-(2)-(c)-19 に、ピーク波数を比較したものを図 3-1-2-(2)-(c)-20 に示した。加工部では非加工部よりも 3 員環および 4 員環構造に由来するラマン線が相対的に大きく観測されていることから、構造中に含まれる 3 員環および 4 員環構造の割合が大きくなっていることがわかる。またガラスの結晶化の際に見られるシャープなラマン線は観測されていないことから、異質相における結晶化は起こっていないものと思われる。ピーク波数についてみると、加工することでピーク波数が高波数側にシフトしているのが確認できる。一般的に、物質に応力が生じると観測されるその応力に応じてラマン線のピーク波数がシフトすることが知られている。圧縮応力が生じている場合には高波数側、引っ張り応力が生じている場合は低波数側にシフトする。このことを考慮すると、加工部では非加工部と比較して大きな圧縮応力が生じたものと思われる。加工部周辺の Si 濃度が高くなることとこの結果をあわせて考えると、ボイドが形成されるほどの高フルエンスのレーザー照射の場合、フォトンの吸収によって自由電子が爆発的に形成されそのエネルギーが原子に吸収されると、その過程がどういう形であれ最終的に加工領域の外殻部にネットワーク密度の高い領域が形成されていると推測される。また同時にラマンスペクトルのベースラインが高波数側で上昇して観測されていることから、異質相による蛍光が増加していると考えられる。これは加工により新たに生じた欠陥構造による可能性が高い。ただし顕微ラマンによる測定では顕微鏡で焦点をあわせた位置から数~数十 μm の深さ領域の平均情報を取得しているものと考えられるため、純粋に異質相だけのスペクトルとなるとこれよりもさらに顕著に変化が見えるものと思われる。

ここで行った加工試験は非常に高いパルスパワーを用いることでクラックが発生したものや広い範囲での着色なども見られたが、原子の偏りのみで異質相を作製する場合は、対物レンズの Rayleigh 長とビームウエストとで作られる空間のうち加工閾値を超える領域のみが加工される。つまり加工される領域のアスペクト比は、対物レンズによって決まってくるこれら 2 つのパラメータに大きく依存することになる。次章で触れるホログラムを用いた加工ではこのようなアスペクト比の制約は一切なく、各異質相を自由な形状で設計・加工可能である。さらに加工可能領域も、対物レンズの場合には焦点を中心とした上記空間内においてのみ可能であるが、ホログラムを用いた場合、加工点の中心は加工閾値を超えることが可能な範囲内であればどこにでも設計可能である。これらは 3 次元一括加工法の大きな利点であり、ユニークな特徴であるといえる。

また、ここで行った加工は繰返し周波数 1Hz で 1 秒間の照射、つまり 1 つのパルスのみを加工点に照射している。ここで繰返し周波数を 1kHz に変えて数秒間の照射を行った連続パルス照射の場合について考えてみる。これらのパルス同士は十分にそのパルス幅が短いため、加工領域において互いに影響を及ぼしあうことはできない。つまり多くのパルスを照射したからといって、前のパルスによって励起された電子が後続のパルスの到達まで励起されていることは当然あり得ず、これよりもタイムスケールの長い格子振動や熱拡散でさえ次のパルスの到達までには収束している。つまり、到達するパルスは常に安定状態の物質と相互作用する。しかしこれは、最初のパルスと最後のパルスとが同じ相互作用を起こすという意味にはならない。加工閾値を超えるパルスが 1 つでも通過した後であれば必ず欠陥などが形成され、これによって禁制帯中に新たな電子状態が作られ、多光子吸収に必要な光子数の平均値が減少し、吸収率が増加する。よって連続パルス照射の場合、加工領域の状態のうち吸収に影響を受けるものは、照射パルス数の増加とともに指数関数的な変化を見せる。実際、繰返し周波数 1kHz で数秒間の照射を行うと異質相が徐々に濃くなり、屈折率の変化量が大きくなっていることが確認できた。このようなパルスの蓄積効果についてはこれまでも幾つかの報告がなされており、特に繰返し周波数が MHz のオーダーになると熱の蓄積効果も無視できなくなってくるため、加工形状の制御が難しくなるという報告もある^[17,18]。さらに、このように熱の蓄積が起こり得る場合、シリカガラスはその低い熱伝導率 (=1.38Wm⁻¹K⁻¹) と熱膨張率 (ネットワーク構造に依存するがおよそ 0.55×10⁻⁶K⁻¹ 程度) によりその蓄積効果は他の物質の場合に比べて著しいといえる。

4-2) ホログラムを用いた 2 次加工

4-2-1) ホログラム再生シミュレータ

ホログラムを用いたフェムト秒パルスレーザーによる 3 次元加工システムにおいて、加工の結果得られた加工精度などの情報をホログラム作製サイドにフィードバックすることは、異質相形状の計算値と測定値との差を逡減させる上で非常に重要である。そのためには、再生イメージからホログラムの干渉模様を計算するシミュレータを用いることで、より精度の高い再生イメージを得るためにホログラムに対しどのような変更を加えるべきかを把握することが必須となる。ここでは、このシミュレータの前段階として作成した振幅ホログラム再生シミュレータの詳細および再生結果について記述する。

今回作成した振幅ホログラム再生シミュレータは、ホログラム上の各点からスクリーンに伝搬した光の強度分布を求め、それをホログラム全体について積分することでスクリーン上の干渉模様を計算するという、Huygens-Fresnel の原理^[25]に基づいたアルゴリズムを用いている。これを式で表すと、スクリーン上の任意の点 (X, Y) における光の強度は以下ようになる。

$$I = A \int \frac{\delta(x, y) \exp[ik\sqrt{R^2 + (X-x)^2 + (Y-y)^2}]}{\sqrt{R^2 + (X-x)^2 + (Y-y)^2}} dx dy$$

(式. 5)

ただし x, y はホログラム上の座標であり、 $\delta(x, y)$ は光がホログラムのその点を通り得る場合に 1、通り得ない場合には 0 となるデルタ関数、A は入射光の強度を決定する任意係数である。

ユーザーインターフェースの外観を図 3-1-2-(2)-(c)-21 に示した。入力値はスクリーンの大きさ、ホログラム-スクリーン間距離 R[mm] の最小値 R_{min}、最大値 R_{max}、刻み幅 ΔR、2 次元のホログラムパターンである。ホログラムパターン上の白いセルは光を通す部分に相当する。出力は ΔR ごとのスクリーン上のパターンとして右側のピクチャボックスに表示されていく。また [amp] の値を

変更することで入射光の強度を変え、その計算結果を即時に確認することが可能となっている。

図 3-1-2-(2)-(c)-22 および 3-1-2-(2)-(c)-23 に示したのは単純な方形スリットを入力ホログラムとしたときの再生イメージである。中央の 0 次光の周辺に $1/2\pi$ 、 $3/2\pi$ 、 $5/2\pi$ ……の位置を中心に干渉模様を確認することができる。

4-2-2) ビームプロファイラによる再生テスト

フェムト秒パルスレーザーとホログラムを用いた 3 次元一括加工を行うためには、まずホログラムが意図する再生像を再生しているかどうか、簡単な光学系を用いて手軽に確認できる必要がある。そのためこれを実現することのできる光学系を構築した (図 3-1-2-(2)-(c)-24)。光源には波長 633nm の He-Ne レーザーを用いた。ホログラムが 8mm×8mm の大きさであるのに対し、光源から得られるビーム径が 3mm 程度しかなかったため、ビームエキスパンダーを挿入することで約 5mm までビーム径を拡げた。その後ろにアパーチャーおよび ND フィルタを挿入しビームの調整を行った上でホログラムを通した再生像を得た。

再生試験に用いたホログラムは合計 8 個で、このうち 2 つがフーリエ変換ホログラム (ホログラム 01、02)、残り 6 つがフレネル変換ホログラム (ホログラム 03~08) である。このうちフーリエ変換ホログラムの再生像を図 3-1-2-(2)-(c)-25 および 3-1-2-(2)-(c)-26 に示した。中央に見えている明るいスポットは 0 次光である。この 0 次光をはさんで物体像と共役像が確認できた。このアルゴリズムにより作製したホログラムは無遠で結像するように作られているため、ホログラムとスクリーンとの間の距離を任意に変えても像の大きさが変わるだけで同じ形の再生像を見ることができた。

フレネル変換ホログラムの設計図と実際にビームプロファイラにより得られた再生像との比較を図 3-1-2-(2)-(c)-27 にまとめた。異なる大きさのドットを表現したホログラム 05 とライン形状のホログラム 07 を除けばほぼ設計通りの再生像が得られていることが分かる。ただし入射したビームの強度プロファイル (横モード) が理想的ではないため、背景に同心円状の光が見えてしまっている。この背景光はおそらくビームエキスパンダーを通したときに生じているものと考えられるため、できればもともと径の大きなレーザーで再生させる方がよい。この同心円の分布が偶然にもハイハット型に近い強度プロファイルを実現させており、これはある意味設計時の入射光がフラットな強度を持っていることを考えると、通常の高ス分布の場合よりはよい再生像を結像している可能性も考えられる。いずれにせよこの同心円状の背景光がライン形状の集光を邪魔している可能性は考えられるが、ホログラム 05 の結果と併せて考えると、単に出来る限り小さいドットに集光する場合に比べて、縦横にある程度の長さを持つ形状に集光することに困難があるように思われる。

また、ここで行った再生試験では光軸方向への像の伸びについては検証することができなかった。特にホログラム 03 は 3 つの面にそれぞれ異なる再生像を結像することのできるホログラムであるため、光軸方向の分解能の高い方法で再生検証を行うべきである。

4-2-3) フレネル変換ホログラムを用いた 2 次元一括加工試験

フェムト秒レーザーとホログラムを用いた 3 次元一括加工では、特に光軸方向に関する設計や強度プロファイル調整が非常に難しい。そこでまず光軸方向に関しては無視できる 2 次元ホログラムを用いて加工試験および加工条件の最適化を行った。

最初に用いたホログラムは 5×5 の 25 点を同一平面内に結像させるホログラム 08 である。パルス幅 66fs、パルスパワー 820 μJ/pulse、繰り返し周波数 1kHz、照射時間 1s で照射した結果、表面から 350 μm の深さに最も顕著に加工された。図 3-1-2-(2)-(c)-28 はこの深さに焦点を合わせて光学顕微鏡により観察したものである。なお、サンプルの位置合わせに用いている波長 633nm 半導体レーザーの焦点はサンプル表面に合わせてある。この波長は加工に用いるレーザーの波長に比べて短いため、対物レンズを通すと手前に結像する。これは色収差と呼ばれる現象で、物質の屈折率が波長に依存して変化することに由来する。つまり波長 633nm のレーザー焦点より深い位置に波長 800nm のレーザーが結像することはこれに矛盾しないが、これによる差はレンズの作動距離にも依存するが数 μm 程度であり、350 μm という深さの差の説明はつかない。対物レンズを用いた加工ではこの現象は説明がつかないため、ホログラムによってもたらされたものと推測される。この推測の妥当性については 4-3 節で議論する。25 個の各ドットには濃淡の差がみられるが、この加工を行った時点ではまだレーザーの強度プロファイルむらが顕著に見られたため、それが原因であると思われる。

異質相の大きさはそれぞれ直径約 5 μm、また両端 2 点間距離が 50 μm、となっている。設計上これらの値はそれぞれ 128 μm、2688 μm である。両端 2 点間距離で縮小率を見積もると、約 1/54 に縮小されているのが分かる。ここで用いている対物レンズは M5（光学的鏡筒長 210mm）のレンズである。よって焦点距離 f は

$$\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} = \frac{1}{f}$$

$$r_1 = 5r_2 = 210$$

(式. 6)

とな $\therefore f = 35[\text{mm}]$ る。この値を用いることで、実際の倍率 β は次式によって算出される。

$$b = a - f \frac{\beta + 1}{\beta}$$

(eq. x7)

ここで b はホログラムの結像距離であり、ホログラム 08 の場合 1600mm である。 a はホログラムーレンズ間距離で、ここでは 350mm に設定されている。ここから求められる倍率は $\beta \sim 1/35$ である。実際の縮小率はこれより高くなっているが、この式から求められる倍率は対物レンズ焦点における倍率であり、ホログラムと対物レンズを同時に用いた加工の場合はレンズ焦点において結像するとは限らないため、この倍率と異なってくることも考えられる。そのためフィードバックのプロセスなしに加工形状の大きさまで正確に決めようとする場合には、ホログラムとレンズの位置関係やレーザーパルスの強度プロファイル、対物レンズによる光路の変化などを考慮した厳密な計算が必要になる。また、それぞれの異質相の大きさもホログラムによって設計可能であるが、これは各異質相の相対位置の場合のように光学設計だけで決定されるものではなく、レーザーのパルス幅やパルスパワーによっても複雑に変化するため、各異質相の大きさまで含めた設計をするためにはレーザー光と物質との相互作用について詳細に知る必要がある。

次にこの 25 点加工結果を光学顕微鏡により光軸方向に垂直な方向から観察してみた結果を図 3-1-2-(2)-(c)-29 に示す。同図上側は図 3-1-2-(2)-(c)-28 と同じ光源方向から見た観察像で、下側がそれと垂直な方向から見た観察像である。横から見ると、表面アブレーションを伴わずガラス内部だけに 5 本のラインが加工できていることが分かる。2 方向から見たこれらの結果から、ガラス内部に 25 個の異質相が設計通りの相対位置を持って加工できていることが確認できた。しかし一方で、異質相の光軸方向への伸びが顕著であることも明らかになった。この加工例の場合、伸

びは $500\mu\text{m}$ に達している。もっとも、このような光軸方向への異質相の伸びは一概に悪いとはいえない。フィルタなどのデバイスでは 1 回の加工でなるべく大きな屈折率変化をさせなければならないケースもあり、そのような場合にはこの伸びが有利に働く。ただし本プロジェクトの最終目標の 1 つでもある、 $60\mu\text{m}$ 立方体内への異質相 100 個同時加工を達成するためには、言うまでもなく最低でも光軸方向への伸びを $60\mu\text{m}$ 以下に抑えなければならず、同一光軸上に複数の異質相を作るのであればやはり最低でも $30\mu\text{m}$ 未満にならなければならない。そこで我々はレーザーおよびホログラムのパラメータの最適化によりこの伸びを極限まで抑えることに取り組んだ。これについては後の章に記す。また、この伸びは光路上にしぼりを入れずにパルスそのままホログラムに入射するとさらに $1000\mu\text{m}$ ほど伸びてしまう。つまりしぼりを入れることでパルスの直径がホログラムの一辺の長さよりも短くなるように調整することが最低限の条件となる。ただししぼりを入れることでパルスの位相のコヒーレンス性の悪化も起こり得るため、その影響についても検討する必要がある。

また光軸方向への異質相の形状依存性については、伸びていること以外にも像が 2 か所に加工されていることが判明した。図 3-1-2-(2)-(c)-30 はホログラム 08 を用いてガラス内部に異質相を加工する際に、加工する深さを $100\mu\text{m}$ ずつ深くしていった加工を並べ、表面から $750\mu\text{m}$ の深さに光学顕微鏡の焦点を合わせて観察した像である。一番左上が表面に最も近い位置 ($350\mu\text{m}$) に加工したものであり、一番右下が最も深い位置 ($2050\mu\text{m}$) で加工したものである。つまり異質相を下から上に向かって光軸方向に $100\mu\text{m}$ ごとに断面観察し並べた図と捉えることができる。この図から、結像綿から上 (光源方向) には $300\mu\text{m}$ 以上伸びているのに対し、下には $200\mu\text{m}$ 程度しか伸びていないことが分かる。この上下の伸びの違いの要因について、当初は結像面に向かって集光しながら異質相を形成するため、結像面より下では加工のエネルギーが十分に残っていないためと考えた。しかしこの推測が正しくないことは、加工深さを $2000\mu\text{m}$ 以上にまで深くしていくと再び 5×5 の異質相が加工されていることから明らかになった。よって一度結像面を通過しても、レーザーは再生像を加工するために十分なエネルギーを残している。おそらく像の上下の伸びやすさの違いは、ホログラムによってどのように位相を制御しているかに依存する部分もあるし、また対物レンズの焦点に対してどの位置に結像させるかにも依存してくるものと思われる。いずれにせよ伸びは上にも下にも抑える必要がある。

また、この図をみると意図した像が異なる深さの 2 か所において結像していることが分かる。この 2 ヶ所に結像する様子を分かりやすく図示したものが図 3-1-2-(2)-(c)-32 である。この 2 つの像はほぼ同じ形状をしているように見えるが、点对称かどうかについてはここでは判断することができない。いずれにせよ対物レンズだけを用いた加工の際にはこのような現象は見られず、またホログラムだけを用いたビームプロファイラによる再生試験においても見られないため、対物レンズとホログラムを組み合わせたことで生じる現象であると考えられる。これについては 3 次元ホログラムにより改めて検証を行っているため、説明は後の章に譲る。

また、図 3-1-2-(2)-(c)-30 の加工を行った際に表面に形成されたアブレーションの様子を図 3-1-2-(2)-(c)-33 に示した。この結果から、アブレーション量は加工深さに依存することが判明した。特に結像面が表面から $750\text{--}1150\mu\text{m}$ 、 $1750\text{--}2050\mu\text{m}$ 離れているときにアブレーションが非常に少ないことが分かる。この現象については図 3-1-2-(2)-(c)-30 で得られた知見から容易に想像されるように、異質相が形成される領域、つまり結像面から上に $300\mu\text{m}$ 、下に $200\mu\text{m}$ の範囲に表面が位置するとアブレーション量が大きくなると解釈できる。

4-2-4) ホログラムの位置による加工への影響

光路に対するホログラムの位置の影響について調べるため、ホログラム 08 を用いて試験を行った。フェムト秒パルスレーザーのパルス幅を 66fs、パルスパワーを $820\mu\text{J}/\text{pulse}$ 、繰り返し周波数 1kHz、照射時間 1s で照射した。ホログラム位置はホログラムの中心がビーム径の中心に来る位置を基準とし、そこから x、y 方向 (xy 平面は光軸に対して垂直とし、+x 方向は光源から見て右、+y 方向は光源から見て上とする) に $\pm 5\text{mm}$ まで 1mm ピッチでホログラムを動かして検証した。加工された異質相の焦点付近における様子を図 3-1-2-(2)-(c)-31 に示す。これをみると、中心より-x 方向にずれた位置にホログラムを置いたときに最も鮮明に加工されていることが分かる。

まずホログラムの中心をビーム径の中心に持ってきた場合に像がボケる点について考察してみる。ここで用いたホログラムは一辺の長さが 8mm であるのに対し、ビーム径は $\phi 4.5\text{mm}$ である。ホログラムの中心をビーム径の中心に置いた場合、中心から半径 2.25mm の範囲を照射することになるが、この部分はホログラム上に描かれた干渉縞の密度が低く、外側に行くにしたがって密に描かれている。そのため情報量の密度も低いことが予想され、像の不鮮明さにつながったものと考えられる。しかし-x 方向に偏った場合にのみ鮮明になる点については、ホログラムを回転させた場合に鮮明になる方向も回転することから、光源側の影響、つまりビームの強度プロファイルの角度偏りのためであると思われる。この実験から、ビームの強度プロファイルはできる限り角度依存性の少ない分布にする必要があることと、ビーム径とホログラムの大きさは一致することが望ましいことが明らかになった。

またこの加工結果を見てみると、ホログラムの一部にしか光が当たっていない場合でも図形全体が加工できていることが確認できる。つまりそれぞれの異質相はホログラム全体からの光の干渉によって作られている。これはホログラムの特性上当然のことではあるが、ホログラムの中央を通過する光と端を通過する光との光路差について考慮する必要があることを示している。この光路差について、ホログラムの設計値を変えながら算出したデータを表 2 にまとめた。実験に用いているフェムト秒パルスレーザーは最短で 25fs までパルス幅を縮めることが可能なため、表に示した計算結果から考えるとこのような場合は中央と端の光は干渉しないことになる。しかし実際にはそのような短パルスにおいても非常に良く結像しており、光路差だけでは説明できない現象が起きていると思われる。更に、超短パルスが物質内を伝搬する際に幾つかのパルスに分割される現象が報告されており、このような現象が起きていることも可能性の 1 つとして考えられる。

4-3) ホログラムを用いた 3 次元加工

4-3-1) 3 次元フォトニック結晶モデル

3 次元構造の一括描画の第一段階として、まず前「ナノガラスプロジェクト」で作製された図 3-1-2-(2)-(c)-34 左側に示したような 3 つの異なる層に分布した合計 24 点のホログラムで実験を行った。設計上、第一層の焦点距離は $1300\mu\text{m}$ 、第二層は $1600\mu\text{m}$ 、第三層は $1900\mu\text{m}$ となっており、各面の大きさは一辺が $3000\mu\text{m}$ となっている。これらの値から、M5 対物レンズ (焦点距離 35mm) を用いて集光させた場合の各面間の距離は $230\mu\text{m}$ 、各面は一辺 $83\mu\text{m}$ であることが分かる。ただしこの値は結像位置が対物レンズの焦点であるという前提のもとであり、それぞれの面が異なる位置に結像するこのホログラムを用いた場合はこの値通りではない。図 3-1-2-(2)-(c)-34 右側は実際にソーダライムガラス中に第二層の深さを $1000\mu\text{m}$ に合わせて加工した異質相を、光学顕微鏡の焦点を $700\mu\text{m}$ 、 $1000\mu\text{m}$ 、 $1300\mu\text{m}$ に合わせて観察した像である。この結果をみると、各面の異質相は全て加工されており、ホログラムを用いた 3 次元微細加工が可能であることを示しているが、異質相の光軸方向への伸びは著

しく、第二層の異質相は第一層にまで到達してしまっている。下方向への伸びと合わせるとおよそ $300\ \mu\text{m}$ ほど光軸方向へ異質相が伸びていることになる。前章で示した 2 次元ホログラムの加工結果では図 3-1-2-(2)-(c)-32 の通り約 $500\ \mu\text{m}$ ほどの伸びが見られたため、それに比べると幾分伸びは抑えられているものの、やはり $60\ \mu\text{m}$ 立方体内に 100 点を加工するというプロジェクトの目標達成のためには、この結果よりも少なくとも 100 分の 1 程度に伸びを抑える必要があることが判明した。これまでも他の手法により異なる深さへの同時加工を行った例もあるが^[26-34]、3 層以上への加工はこれまで成功したという報告はない。この加工ではかなり強いパルスパワー ($500\ \mu\text{J}/\text{pulse}$) で 1000 パルスの照射を行ったため、光の強度が強すぎてこのように伸びが発生したとも考えられるが、それほどの高強度でも加工されていない点があるというのもまた別の課題である。伸びを 2 桁小さくしながらすべての点を加工するためには、ホログラム設計の段階で各点における光強度をある程度均等にする、あるいはある程度ばらつきが許容されるような工夫を考案する必要があることが判明した。

4-3-2) 3次元マトリックスモデル

以上のように前章の 3 次元フォトニック結晶モデルの加工試験結果に様々な問題点があったことから、本プロジェクトではまず単純なモデルで実験することから始めた。まず第 1 層に 7 点が直線状に並び、第 2 層にこれと垂直な直線上に 7 点並んだ合計 14 点を結像するホログラムを作製した。このホログラムを用いた加工結果を図 3-1-2-(2)-(c)-35 に示す。このホログラムを設計する際には、できる限り全ての点の光強度が均等になるようにした。にもかかわらず、加工結果を見てみるとやはりすべての点が等しい濃さで作製されているとは言い難い。また全ての点が加工されるようにフルエンスを大きくしたため、加工は光軸方向に約 $125\ \mu\text{m}$ 伸びている。この結果から、設計時に各点の光強度を均等にするだけでは、均一な加工をするためには十分でないことが明らかとなった。そもそも設計の際には入力光としてフラットな強度分布を用いており、実際に用いている光がガウシアンであることとの差異もこのような不均一性をもたらしている一因であると考えられる。このような設計時と実際の光との差については連続光かパルスか、の違いもある。設計時には連続光を入力値として与えているのに対し、実際にはパルス光が与えられる。パルスの場合、ホログラムの中央を通過してきた光と端を通過してきた光とでは光路差が生じる。この差がパルス幅に匹敵するオーダーになると、一部の点は光が十分に集まらずに加工されない場合や加工されても像が乱れる場合が起こり得る。また設計時には考慮されていないもう 1 つの要因として、加工に用いるガラスのパラメータの屈折率が挙げられる。設計時は全空間を屈折率 1 として考えているため、よりガラスの深い位置に加工すれば設計時との差が大きくなっていく。以上の事柄を考慮すると、実際の加工では各点のホログラムからの距離、レンズからの距離、光軸中心からの距離、ガラスサンプル表面からの距離に応じて光強度が複雑に変化しているものと思われる。よってこれらを厳密に計算に取り入れ、それぞれの光強度ピークを均一に揃えることは現実的ではないため、これに代わる工夫が必要なことが判明した。つまり光の強度が、設計した点に近づくに従って緩やかに増加していくような強度分布ではなく、理想的には設計した点の周囲には強度 0 の領域しかなく、設計した領域内では強度が最高になるようなデルタ関数的に設計されることが最も良い。完全にデルタ関数にすることはできないため、出来る限り急峻な強度分布とある程度同じレベルのピークの高さを設計することになる。これにより、与えられた光強度がある程度強くても弱くても、ピークの強度分布をその強度で輪切りした際にどの点も同じ大きさになる。

このような修正を踏まえて次に用意したホログラムは、第 1 層に 2 点、第 2 層に 2 点というさらに単純な 4 点モデルである。この加工結果を図 3-1-2-(2)-(c)-36 に示した。直径約 $3\ \mu\text{m}$ 長さ $22\ \mu\text{m}$ のほぼ等しい大きさの点が 4 点加工できているのが確認できる。前章で示した結果と比べると、およそ $200\ \mu\text{m}$ におよぶ光軸方向への伸びは 10 分の 1 程度にまで抑えられていることがわかる。この加工によ

り、一辺 $60\mu\text{m}$ 立方体内への 2 点加工というプロジェクト中間目標を無事達成することができた。これをさらに拡張し、点の数を 2 倍にしたホログラムの設計図が図 3-1-2-(2)-(c)-37、加工結果が図 3-1-2-(2)-(c)-38 である。 2×2 と比べると異質相はより広い領域に分布しているにもかかわらず、光軸方向への伸びは $12\mu\text{m}$ にまで抑えることに成功している。

次のステップとして作製したホログラムはさらに倍の 2×8 の 16 点ホログラムである。各層ごとに 2 点ずつ配置されている点は同じだが、2 点を結ぶ直線が 45 度ずつ右回りに傾いていくように設計されており、第 1 面と第 5 面とが同じ配置になっている（図 3-1-2-(2)-(c)-39 参照）。つまり二重螺旋が 2 周りする構造であり、次章で示す 3 次元螺旋モデルの原形となっている。図 3-1-2-(2)-(c)-40 は左側がモデル図、右側が実際に加工したサンプルの光学顕微鏡像を 2 方向から観察したものである。この加工で特筆すべきは、光源方向から見て他の異質相の影になる領域、例えば図中の A の異質相の影に入っている位置 B にも異質相を作製できている点である。仮に逐次描画法によって上側の異質相を先に作製してしまうと、その影になる領域にはそのままでは加工できなくなる。我々の三次元一括加工法ではこのような制約がないため、これもこの加工法の利点の 1 つということができる。ただしこの加工結果を見てみると、下の層にいくほど異質相が外に広がっており、設計とのずれが大きくなっているのがわかる。この原因は対物レンズのもつ性質に依るもので、焦点からの距離が異なれば倍率も異なってくることに起因する。つまりレンズ焦点から遠い異質相ほど光軸に近い位置に補正して設計しなければならないことが明らかとなった。この補正は設計する位置だけにとどまらず、その強度についても異質相の位置によって変化させる必要がある。倍率が異なるということは、すなわちその加工領域に集まるフォトンの密度も異なってくることを意味するからである。ホログラムパターンを計算する際にこれら位置と強度の補正をかけることが、より高精度な加工のためには必須となる。

4-3-3) 3次元螺旋モデル

三次元加工を明確に示すためのモデルとして、本プロジェクトでは 24 点の異質相が 3 次元螺旋状に並ぶ構造を作製することを 100 点加工への足がかりと位置付けた。このモデルの設計図を図 3-1-2-(2)-(c)-41 に示す。各レイヤーに 1 点ずつ配置され、レイヤー間距離は 1mm となっている。時計のように 12 層で一周し、合計 24 点で 2 周分の螺旋を描いている。各点の大きさは 1 ピクセルであり、ピクセルサイズは $20\mu\text{m}$ 角である。また同図には実際の加工結果も併せて記載した。この加工はパルスパワー $150\mu\text{J/pulse}$ 、パルス幅 30fs で行われたものである。これまでの加工結果と比較してみると、光軸方向への伸びが全くなく、ほぼ球状に近い異質相が 24 個加工できており、前章までの結果から飛躍的に進化したことが確認できる。その直径も約 $2\mu\text{m}$ と、回折限界に近い値まで縮めることができている。またそれぞれの異質相の相対位置も、設計した通りのスケールになっている。これまでも 1 点のみの加工であれば、ND フィルタなどを用いてできる限りレーザーの強度を閾値付近まで抑えることで伸びのない加工は可能であったが、このように比較的高いパワーで多くの点を同時に加工しながら光軸方向への伸びを完全に抑えるという加工は、間違いなく世界でも初めての成功であるといえる。このような加工に至ることができた要因としては、やはり各点における光強度の補正や相対位置の補正をかけたことが挙げられるが、パルス幅やフルエンス、ホログラムーレンズ間距離などの最適化も大きく貢献した。同図にはこれらのパラメータを最適化する前の加工も比較のために載せているが、その差は歴然である。これらのパラメータの最適値は用いるホログラムや被加工サンプルの材質、表面研磨の状態、レーザーの波長など様々な要因によって変化してくるため、それぞれの加工条件に合ったパラメータを用いることが肝要である。

ただしここで注意しなければならないのは、ホログラム自体は直径 $2\mu\text{m}$ の球体を加工するようには設計されていないことである。各異質相は $20\mu\text{m}\times 20\mu\text{m}\times 1\text{mm}$ の大きさに設計されており、M20 の対物

レンズを通すことでこれは約 $0.3\mu\text{m}\times 0.3\mu\text{m}\times 0.2\mu\text{m}$ となる。つまり設計より大きい加工になっている。この設計値との差は、おそらく上に挙げたすべてのパラメータを最適に設定したとしても埋められるものではないと考えている。フォトンの吸収により発生するプラズマが仮に設計通りの大きさであったとしても、そのあとに続いて起こる衝撃波や熱の伝搬により、加工領域の大きさはこれより大きくなるものと思われる。またこれらの影響により加工領域は液体と気体の共存する状態を経由するため、流体力学的に安定する球体に落ち着く。つまり加工領域と設計時の異質相の大きさに差が生じるような微細加工の条件下では加工形状は球状になるものと推測される。この差が生じるのは、設計の大きさが衝撃波や熱の伝搬する特徴的なスケールよりも小さい場合であり、これらのスケールは材質によって異なってくる。

4-3-3) 100点加工

プロジェクト最終目標のひとつである 100 点一括加工を達成するために、我々は 3 次元フォトニック結晶モデルで設計を行った。全体は 4 層から成り、各層に 5×5 の 25 点ずつ配置している。第 1 層と第 3 層の各点の xy 座標は同じで、第 2 層と第 4 層はこれに対して半ピッチ分 xy 両方向にずらした構造となっている。図 3-1-2-(2)-(c)-42 に、このホログラムを用いた加工結果を横から見た光学顕微鏡像を示した。3 次元螺旋の結果に比べると光軸方向への伸びがあり、上の 2 層と下の 2 層とで異質相の濃さに差があるものの、 $60\mu\text{m}$ 立方体内に 1 回のフェムト秒パルスレーザー照射により 100 点の異質相を一括で加工することに成功した。3 次元螺旋の結果に比べてこのように強度ムラや相対位置のずれがあるのは、この加工情報をホログラムの設計にフィードバックして再設計する時間が不足していたためであり、これによって解決できるものと思われる。ただし、各異質相の強度や相対位置の補正については、異質相の配置によって補正の度合いが異なってくるため、この点については様々なバリエーションの設計を行って検証してみる必要がある。

4-3-5) 応用 3 次元加工

ここまでのホログラムでは点状の異質相のみを作製してきたが、ホログラムによる集光は任意の図形に対して行うことが可能なため、導波路にも応用可能な線型の異質相も試みた。図 3-1-2-(2)-(c)-43 に加工例を示す。開発当初は同図左側のように直線にはならず、途切れ途切れの点線しか加工することができなかった。これは当初は直線領域内の光強度をそこまで厳密に揃えていなかったため、部分的に加工されてしまったものと思われる。そこで次章に示したような光強度分布の改善を行った結果、同図右側のように直線状の異質相を形成することに成功した。またこの加工をさらに発展させ、点と直線の両方を一度に加工することも試みた。図 3-1-2-(2)-(c)-44 左側は図 3-1-2-(2)-(c)-6 の 3 次元螺旋ドット異質相に直線状異質相を加えたモデルであり、実際の加工結果をその右側に示した。

さらに、光軸に垂直な方向から見た際に V 字に見えるような形の異質相を作るようなホログラムを作製し、これによって図 3-1-2-(2)-(c)-45 のような V 字を作製することにも成功した。これまで光軸に垂直な面内への 2 次元加工が行われた例は多数あるが、このように光軸方向へ分布する像を作製するためには光軸方向への伸びを制御しなければ実現不可能であり、このような加工が行われたのは我々の知る限り世界でも初めてである。そういった意味でも本報告書にまとめた伸びの抑制に関する議論は非常に大きな成果であるといえる。

4-4) レーザーおよびホログラムパラメータの加工への影響

4-4-1) 光強度分布

本加工法で最も重要になるのは、各異質相における光強度分布の制御である。それは前述のように、

光強度のバラつきがこれまで三次元一括加工法のネックであり、これによって三次元加工の自由度に制限があったことから明らかである。光強度は、特に光軸方向に対して複雑に依存する。原理的には、描く点と CGH との距離が長いほど、あるいは対物レンズの焦点位置からの距離が長いほど、同じ濃さに設計されたはずの光の強度は低くなる。また、光軸に垂直な面内においても、光軸中心からの距離の増加に伴い強度は減少していく。さらに同一面内あるいは同一光軸上の異質相の数も、強度に影響を与える可能性が考えられる。このように強度の変化は種々の影響を受けて非常に複雑なものとなる。またその変化量は、例えば光軸方向に大きく離れた点の場合のように非常に大きい可能性もある。そのようなクリティカルなケースにも対応するため、各点の光強度はできる限り広い範囲で可変であることが求められる。仮に全ての点が同じ光強度で設計されたとすると、一部の点は加工されそれ以外は加工されないという事態が生じる。また全ての点が加工されたとしてもそれらの物理的・化学的性質は異なってしまうことがほとんどである。

被加工部分は、大きく分けて 3 つに分類することができる。1 つめは屈折率変化領域である。屈折率の変化は、レーザーパルスと物質との相互作用により生じる変化のマクロ的な指標であり、この屈折率が照射によって変化するというだけで、実際どのような変化が被加工部分に生じているかについては、まだ詳細は明らかにされていないのが現状である。シリカガラスのバンドギャップは約 1.54eV あるため、波長 800nm のレーザーで加工するためにはおそらく光子 5~6 個の多光子吸収がトリガーとなり、それに引き続いて起こる電子なだれによって Si-O-Si ネットワークの共有結合電子（主に価電子帯を占める O_2 の 2p 軌道電子）が伝導帯に励起され、被加工部分の原子分布に偏りが生じることで屈折率の変化を起こしているものと思われる。実際、被加工部分の断面を SEM で観察し元素分布を EDS により解析したところ、図 3-1-2-(2)-(c)-46 のように加工中心部分に Si 原子が偏り、逆に O 原子が減少しているのが分かった。この元素分布変化に関する知見はまだ詳細には得られていないが、ガラスの組成によっては被加工部分の屈折率が増加するものだけでなく減少するものについても確認されており、屈折率の大きな異質相を効率よく形成するためには、このような元素分布の変化と屈折率の変化量との関係を明らかにする必要がある。また、元素分布に偏りを生じさせるほどの大きな変化でなくても、例えば SiO_2 tetrahedra 間の結合角の変化によっても消衰係数 $1100cm^{-1}$ 付近のピーク波数はシフトするため、理論的には屈折率の変化をもたらすはずである。この場合、原子スケールを遥かに超える距離の原子の移動を伴わないため、加工にかかる時間は分子振動周期より遥かに短いオーダーになり得る。これが現実的に可能かどうかについても、今後は明らかにしていく必要がある。

2 つめは複屈折変化領域である。これは屈折率変化に必要な光強度よりさらに強いレーザーを照射することで、加工部分に偏光の向きと垂直方向に回折限界以下の幅で縞模様が描かれるものであり、この縞模様が屈折率の異方性をもたらしている。この縞模様を利用した回折限界以下の微細加工については多くの研究が行われているが、まだ明らかにされていない部分が非常に大きい。また、この微細構造を利用してフッ酸処理を行うことで極細管の加工を行っている例もあり、今後注目を集めるものと思われる。

そしてさらに光強度を上げると加工部分にはマイクロボイドが生じる。多くのデバイス作製の際には屈折率変化領域もしくは複屈折率変化領域が用いられ、形状の再現性が低いマイクロボイドが用いられるケースは稀である。ここで生じる変化は対象領域からの物質の除去という意味では表面アブレーションと類似している部分もあるが、実際にはその閾値もメカニズムも全く異なる。表面アブレーションの場合は取り除かれた物質は周りに飛散するが、内部のマイクロボイドの場合は逃げ場所がないため、加工中心はボイドになりその周りはその分高密度な領域が形成される。そのため加工部分とその周辺との屈折率差は非常に大きいものとなる。しかしマイクロボイドの閾値は屈折率変化

および複屈折率変化の閾値より高いため、ボイドの周りにそういった変化の領域ができてしまいマイクロボイド単体での加工には何かしらの工夫が必要である。

このように光強度によって加工される領域の性質は全く異なってくるため、集光点における光強度のプロファイルを厳密に制御することは加工精度向上のために不可欠である。しかしこの光強度は、集光点と CGH との距離、あるいは対物レンズの焦点との距離、光軸中心からの距離に依存して複雑に変化する（図 3-1-2-(2)-(c)-47 参照）。つまり各点における光強度を等しく設計してしまうと、ある点は加工されても別の点は加工されないといった問題が生じる。また全ての点が加工できたとしても、異質相（屈折率変化領域）とマイクロボイドとが混在してしまう。そこで、それぞれの点の位置を考慮に入れた計算により各点の光強度を算出する必要がある。

このように各点の光強度の制御は本加工法の重要なポイントである。よって光強度の設計値を変えたときに実際の光強度分布がどのようになるか、また加工の形状がどのように異なってくるかを調べるため、図 x0505 左側に示すような CGH を作製した。つまり 7 つの点が同一面内（焦点距離 60cm）かつ光軸中心から同一距離に存在し、それぞれの光強度設計値が強度最大の点を 100%としたとき 90%、80%、70%、60%、50%になるようにそれぞれ設計されている。これらの点は同じ光強度で設計すれば同じ形状・性質に加工されるものである。つまりこの CGH を用いて光強度プロファイルや実際の加工形状を見ることで設計上の光強度変化がどの程度影響を与えるかが判明する。

この CGH を用いた際の光軸方向への光強度分布の計算値を 3-1-2-(2)-(c)-48 右側に示した。括弧内の数字は強度 100%の点のピーク値に対する各点のピーク値を示している。つまりこの値は本来設計上のパーセントと一致しなければならない。これはこの誤差をフィードバックして計算を繰り返すことで時間さえかければ容易に到達可能であるが、設計値に対して実際の加工がどのように反応するかを知ることが目的であるため、ここでは行わない。特に注目されるのは、このプロファイルが非常に特殊な形状をしている点である。ガウシアン分布上に 3 つの鋭いピークが重なった形になっている。このような特殊な形状を示す要因は以下のように考えられる。本来 1 点に集光された光は、その焦点距離に比例して光軸方向に伸びた形になる。本加工法で用いる CGH あるいは対物レンズももちろんこの性質を持っているため、特に工夫をしなければ集光領域は数百 μm 近く伸びてしまう。しかし我々の計算ではこの伸びをできる限り抑えるようにしているため、数 μm レベルの加工が可能となっている。このとき集光点は光軸方向に対してある長さの中に抑えるように設計されるため、このような特殊なプロファイルになっているものと思われる。外側の 2 つの鋭いピーク間の距離はおよそ $10\mu\text{m}$ である。つまりこの $10\mu\text{m}$ の範囲内と範囲外とで強度に大きな差が出るように設計されており、これにより光強度にある程度のバラつきが生じる場合でも比較的均一な加工が実現できている。理想的には真中の鋭いピークを取り除きトップフラットなプロファイルを実現できれば加工の均一性はさらに向上するため、今後はこれを計算上で実現できるように改良を加えていく必要がある。

またこの CGH を用いて実際にシリカガラスの表面にアブレーション加工を行ったサンプルの SEM 画像を 3-1-2-(2)-(c)-49 右側に示した。アブレーション加工で確認を行ったのは、内部加工よりも明確に大きさを測定できるためである。内部加工でもこの 7 点加工は実現できているが、光学顕微鏡の分解能の限界のため、大きさを明確に比較するには至っていない。アブレーション半径を比較してみると、光強度に非常に強い相関を持っていることが分かるが、一方で加工形状にバラつきがあるのも確認できる。加工形状は CGH により作られる光強度プロファイルだけでなくパルスレーザーの光強度プロファイルの影響も受けるため、これらいずれかの光軸方向に対して垂直面内のプロファイルが真円からずれていれば光強度によってアブレーション形状が異なってくる可能性はあるが、この加工自

体がアブレーションの加工精度に近いオーダーで行われているため、加工精度による影響の方が強いことが予想される。実際この真円からのずれは再現性がないため、この点からも後者の影響によるものと思われる。

4-4-2) パルス幅

フェムト秒パルスレーザーのパルス幅は、フォトンが電子に吸収されるタイムスケールを特徴づける重要なパラメータであり、これによって吸収のメカニズムが変わってくる。加工形状のパルス幅への依存性は複雑で、これまでも数多くの実験や理論計算が行われてきた^[23, 30-34]。特に加工閾値のパルス幅依存性については多くの研究がなされており、 $\tau^{1/2}$ に比例することが知られている^[23]。これに関しては様々な解釈があり、パルス幅が広がることで閾値を超えるフォトンの割合が減ることや、多光子吸収の際に仮想準位にとどまることのできる寿命やカスケード衝突で得たエネルギーを再放出するまでの時間に対してパルス幅が長すぎることで再放出が起きフォトンの利用効率が下がることなどが原因ではないかとされている。また、この $\tau^{1/2}$ 依存領域は数 ps より長いパルス幅領域において見られる現象であり、これよりも短いパルス幅になるとこの法則からずれて閾値の減少がにぶくなってくる。このパルス幅領域ではパルス幅が短くなるほどカスケード衝突による電子増倍の割合が減り、徐々に多光子吸収が支配的な吸収チャネルとなってくる。そして 30fs 程度の短パルス領域になると、今度は $\tau^{1/2}$ よりも急峻な別の漸近線に近づいてくる。この漸近線は、すべてのフォトン吸収が多光子吸収のみを介して起こったと仮定した場合の近似曲線であり、これよりもフォトンの利用効率が下がることはないため、この曲線より左側に行くことはない。我々は多光子吸収とカスケード衝突による電子増倍の割合が変化する 30-300fs の過渡領域において、ガラス内部加工試験により吸収チャネルの加工への影響について調べた。まずパルスのフルエンス F 一定の条件、つまりパルスのピークパワーは一定であり、パルス幅とともにフォトン数が増加する条件でパルス幅を変えながら測定を行った。この結果のうち、フルエンスを $150 \mu\text{J}/\text{pulse}$ に固定したときの値を図 3-1-2-(2)-(c)-50 に示す。パルス幅が狭くなるにしたがって加工形状の光軸方向への伸びが減少しているのが分かる。パルス幅が狭ければ、ホログラムの異なる部分を通ってきた光同士がある点に集まるときに、その重なり合う体積もその分狭くなり、加工される体積も減少する。ここで得られた結果はこの傾向に矛盾しないものであるが、その効果だけが抽出されたデータとはいえない。それはフルエンス一定でパルス幅を変えているため、1 パルスに含まれるフォトン数 N はパルス幅に比例して増加してしまうためである。本システムにおいて可変となるパルスのパラメータにはパルス幅 τ ・フルエンス F ・フォトン数 N がある。これらのうち 1 つを固定し 1 つを変化させると、残りの 1 つもそれに従って変化してしまう。図 3-1-2-(2)-(c)-50 の場合では F を固定したうえで τ を変化させているため、 N も同時に変化している。つまりパルス幅を狭くしたときのパルス中のフォトン数の減少も加工形状に影響を与えていることになる。フォトン数が減少すれば加工体積は小さくなるため、この効果と前述の効果の両方が同図には現れているといえる。

このように、パルス幅の加工への影響を把握するためには、3 つのパラメータそれぞれに対する依存性を全て調べ、抽出する必要がある。そこで次に N を一定にして τ を変化させながら光軸方向の加工長さを同様に調べたところ、図 3-1-2-(2)-(c)-51 のような結果が得られた。このグラフを見てみると、ここで用いたフルエンスの値であれば、パルス中の光子数が一定であれば加工される長さも一定ということが分かる。Groff らはアルミニウムにアブレーション試験を行い τ 依存性を調べており、ここでも 80fs~1ps の範囲においては同様にパルス幅依存性が無いことを確認しており^[30]、我々の結果はこのデータとも矛盾しない。ホログラムを用いた加工の場合、原理的にはパルス幅が短くなるとホロ

グラムによって異なる光路を通ってきた光同士が干渉する領域はその分狭くなるため、加工閾値を超える領域も狭くなり、これによって加工体積は減少するものと考えられる。しかし今回用いたホログラムの場合、それぞれの点は光軸方向に 1mm の長さに設計されている。対物レンズに M20 を用いた場合、横倍率は約 1/67 となるため、縦倍率はこの 2 乗となり、完全に光軸方向への伸びがない加工となった場合、長さは $0.2\mu\text{m}$ ということになる。

一方で前述のように、フォトンから電子へのエネルギー移行には主に多光子吸収 (multi photon absorption : MPA) とカスケード衝突 (avalanche ionization : AI) による電子増倍が考えられ、パルス幅が長ければ AI が主なチャネルとなり、短ければ MPA 主体となる。MPA は一度に 6 個のフォトンが 1 つの電子の相互作用領域内に同時に到達して初めて吸収できるのに対し、AI は 1 個のフォトンでも衝突すれば吸収可能である。つまり MPA は 6 光子でバンドギャップを超えるものとすればフォトン密度の 6 乗に比例し、AI は 1 乗に比例する。このことがフォトンが高密度になる短パルス領域において MPA がメインで起こる根拠とされているが、MPA の場合、”同時に”存在しなければならないといっても、どの程度”同時”でなければならぬかは、仮想準位の寿命に依存する。仮想準位とは、電子と 1 つのフォトンとが相互作用する際にそのフォトンのエネルギーがバンドギャップよりも低い場合、これを吸収することはできないが一時的にとどめておくことのできる現象を表した概念である。フォトンとは量子であり、エネルギーと時間のパラメータ間に不確定性を持つ。つまり非常に短い時間であれば本来のエネルギーと大きくずれた量子として振る舞うことができる。このエネルギーの不確かさを利用して、電子は吸収することのできないエネルギーをもったフォトンを受取り励起状態になることができる。ところが励起状態にとどまることはエネルギー保存則から許されない。そのため、この「非常に短い時間」の後には必ずフォトンを出して基底状態に戻る。この時放出されるフォトンは、エネルギー保存則から吸収されたフォトンのエネルギーと同じエネルギーを持つ。つまり不確定性原理により決まる時間以上の時間スケールで観測してもこの吸収過程を見ることはできない。このような遷移を仮想遷移と呼び、このときに使われる準位を仮想準位と呼ぶ。この寿命は振動数の逆数程度であり、800nm の光であれば 2.66fs となる。これに対してカスケード衝突により自由電子が得たエネルギーはおおよそ 100fs 程度の寿命を持つ。つまりこの寿命の差が MPA と AI との発生確率の差を生んでいるが、測定した範囲内において加工される体積はパルス幅にほとんど依存していないため、前述のパルス幅減少に伴う干渉領域の減少の効果を加味すると、主な吸収過程がパルス幅に依存して AI から MPA に変化したとしても、吸収効率はむしろ若干増えている可能性がある。

パルス幅が長くなるとコヒーレンス時間も長くなると誤解しやすいが、群遅延分散などにより異なる周波数の平面波の位相にずれを生じさせてパルス幅を広くする場合には、広くしても $t_{\text{coh}} \sim 1/\Delta\nu$ の関係は成り立っており、スペクトル分散によってパルス幅が広がっても Fourier 変換限界パルスのパルス幅程度しかコヒーレンス時間はないということである。逆に言うと、Fourier 変換限界パルスに近い場合だけが、コヒーレンス時間としてパルス幅を用いることができる。

5) 結論

三次元一括加工法によるガラス内部の三次元微細加工をフェムト秒パルスレーザーとガラス・ホログラムを用いて実現し、一辺 $60\mu\text{m}$ のガラス内部立方体領域内に 100 個の異質相を一括で作製することでプロジェクトの最終目標をクリアした。実現するためにはフェムト秒パルスレーザーのフルエンス、パルス幅、それにホログラムの焦点距離やホログラム-レンズ間距離を適切にすることが必須であり、これにより最大の問題であった異質相の光軸方向への伸びを抑え、伸びの全くない球状の加工にも成功した。本加工法の確立により、導波路や 3 次元光メモリなどの光学デバイスをはじめとする様々なデバイスの製造工程に本加工法が組み込まれることが期待される。

参考文献

- [1] K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto, and K. Hirao, "Writing waveguides in glass with a femtosecond laser," *Opt. Lett.* **21** (1996) 1729.
- [2] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, "Study of damage in fused silica induced by ultra-short IR laser pulses," *Opt. Comm.* **191** (2001) 333.
- [3] P. D. Maker and R. W. Terhune, "Study of optical effects due to an induced polarization third order in the electric field strength," *Phys. Rev.* **137** (1965) A801.
- [4] N. Bloembergen, "Laser-induced electric breakdown in solids," *J. Quantum Electr.* **10** (1974) 375.
- [5] B. N. Chichkov, C. Momma, S. Nottle, F. von Alvensleben, and A. Tünnermann, "Femtosecond, picoseconds and nanosecond laser ablation of solids," *J. Appl. Phys. A* **63** (1996) 109.
- [6] S. Nottle, C. Momma, H. Jacobs, A. Tünnermann, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, and H. Welling, "Ablation of metals by ultrashort laser pulses," *J. Opt. Soc. Am. B* **14** (1997) 2716.
- [7] K. Sugioka, Y. Hanada, and K. Midorikawa, "3D integration of microcomponents in a single glass chip by femtosecond laser direct writing for biochemical analysis," *Appl. Surf. Sci.* **253** (2007) 6595.
- [8] D. Hülseberg, A. Harnisch, and A. Bismarch, "Microstructuring of glasses," Springer Berlin Heidelberg (New York, 2008), ISBN 978-3-540-26245-9.
- [9] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, T. L. Perel' man, "Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses," *Sov. Phys. JEPT* **39** (1974) 375.
- [10] R. Stoian, M. Boyle, A. Thoss, A. Rosenfeld, G. Korn, and I. V. Hertel, "Laser ablation of dielectrics with temporally shaped femtosecond pulses," *Appl. Phys. Lett.* **80** (2002) 353.
- [11] M. Toulemonde, J. M. Costantini, Ch. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, and F. Studer, "Track creation in SiO₂ and BaFe₁₂O₁₉ by swift heavy ions: a thermal spike model," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **116** (1996) 37.
- [12] B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanek, and G. Simon, "Ultrafast dynamics of nonequilibrium electrons in metals under femtosecond laser irradiation," *Phys. Rev. B* **65** (2002) 214303.
- [13] A. Brodeur, C. Y. Chien, F. A. Ilkov, S. L. Chin, O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, *Opt. Lett.* **22** (1997) 304.
- [14] O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C. Y. Chien, S. L. Chin, *Opt. Lett.* **22** (1997) 1332.
- [15] V. Koubassov, J. F. Laprise, F. Théberge, E. Förster, R. Sauerbrey, B. Müller, U. Glatzel, and S. L. Chin, "Ultrafast laser-induced melting of glass," *Appl. Phys. A* **79** (2004) 499-505.
- [16] B. Rethfeld, K. Sokolowski-Tinten, D. Von der Linde, and S. I. Anisimov, "Timescales in the response of materials to femtosecond laser excitation," *Appl. Phys. A* **79** (2004) 767.
- [17] M. Lenzner, J. Kruger, W. Kautek, F. Krausz, *Appl. Phys. A* **69** (1999) 465.
- [18] H. O. Jeschke, M. E. Garcia, K. H. Bennemann, *J. Appl. Phys.* **91** (2002) 18.
- [19] D. Bauerle, "Laser processing and chemistry," Springer, Berlin-Heidelberg, 3rd ed., 2000.
- [20] R. J. Hemley, C. T. Prewitt, and K. J. Kingma, "Silica - Physical Behavior, Geochemistry, and Materials Applications, Review of Mineralogy, 29," (Mineral. Soc. America, Washington, DC 1994) p. 41.
- [21] R. J. Hemley, C. T. Prewitt, and K. J. Kingma, "Silica - Physical Behavior, Geochemistry, and Materials Applications, Review of Mineralogy, 29," (Mineral. Soc. America, Washington, DC 1994) p. 369.
- [22] M. Lenzner, J. Kruger, S. Sartania, Z. Cheng, C. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and

F. Krausz,

- [23] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, "Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics," *Phys. Rev. B* 53 (1996) 1749.
- [24] M. Watanabe, "Study of femtosecond laser ablation of multicomponent glass," *Reports Res. Lab. Asahi Glass Co. Ltd.*, 55 (2005) 27.
- [25] Eugene Hecht, *Optics*, Addison Wesley (2002).
- [26] Y. Kuroiwa, N. Takeshima, Y. Narita, S. Tanaka, and K. Hirao, *Proc. SPIE* 5339, (2004) 185.
- [27] Y. Kuroiwa, N. Takeshima, Y. Narita, S. Tanaka, and K. Hirao, *Opt. Exp.* 12 (2004) 1908.
- [28] S. Hasegawa, Y. Hayashi, and N. Nishida, *Opt. Lett.* 31 (2006) 1705.
- [29] B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, "Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses," *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995) 2248.
- [30] B. Le Brogoff, F. Vida, S. Laville, M. Chaker, T. Johnston, O. Barthelemy, J. Margot, and M. Sabsabi, "Laser-ablated volume and depth as a function of pulse duration in aluminum targets," *Appl. Opt.* 44 (2005) 278.
- [31] F. Brygo, Ch. Dutouquet, F. Le Guern, R. Oltra, A. Semerok, J. M. Weulersse, "Laser fluence, repetition rate and pulse duration effects on paint ablation," *Appl. Surf. Sci.* 252 (2006) 2131.
- [32] X. Zeng, X. Mao, R. Greif, and R. E. Russo, "Ultraviolet femtosecond and nanosecond laser ablation of silicon: ablation efficiency and laser-induced plasma expansion," *Proc. of SPIE* 5448 (2004) 1150.
- [33] B. Sallé, O. Gobert, P. Meynadier, M. Perdrix, G. Petite, and A. Semerok, "Femtosecond and picoseconds laser microfabrication: ablation efficiency and laser microplasma expansion," *Appl. Phys. A* 69 (1999) S381.
- [34] C. Momma, S. Nottle, B. N. Chichkov, F. von Alvensleben, and A. Tünnermann, "Precise laser ablation with ultrashort pulses," *Appl. Surf. Sci.* 100 (1997) 15.

Appendix

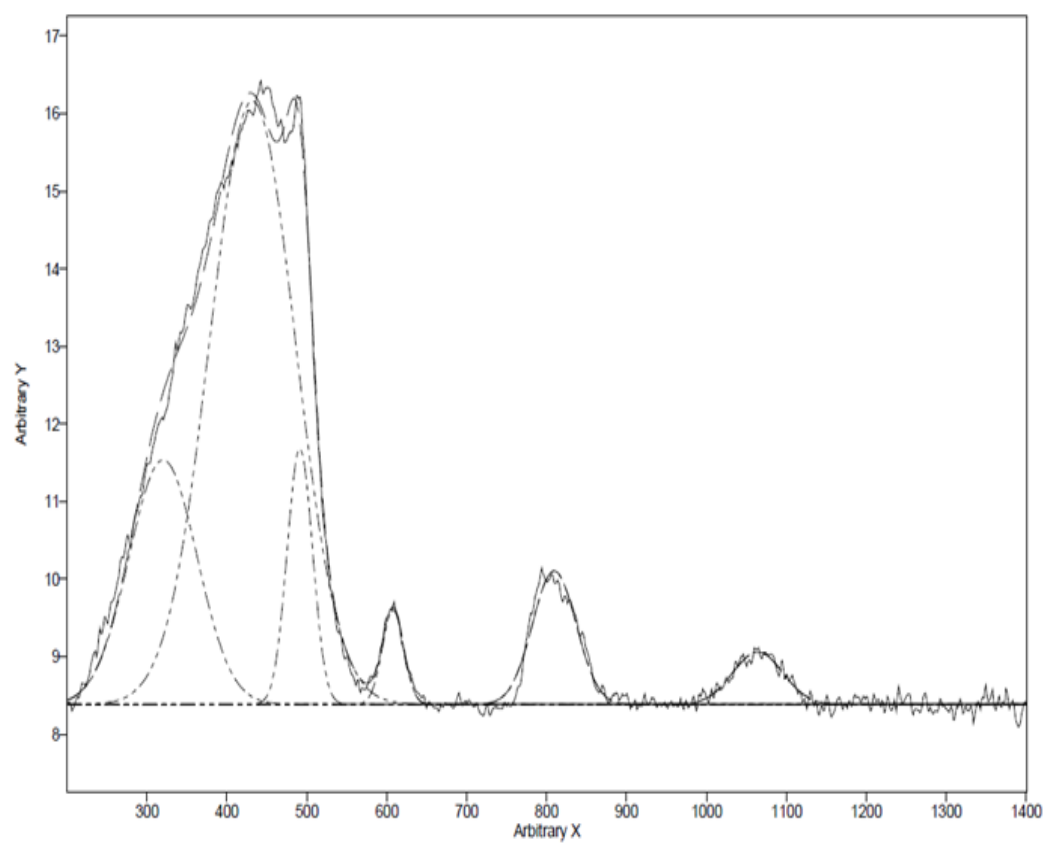
表 1 ホログラム一覧

ホログラム番号	設計仕様	焦点距離 [mm]
01	文字(NGF)	1600
02	文字(NGF ロゴ)	1600
03	3層フォトニック結晶モデル	1300,1600,1900
04	1点モデル	1600
05	点バリエーションモデル	1600
06	7点モデル	1600
07	ラインモデル	1600
08	5x5モデル	1600
09	24点螺旋モデル	100
10	24点螺旋+ラインモデル	100
11	V字モデル	100

表 3-1-2-(2)-(c)-2: ホログラムからの光の波数差

ホログラム一辺の長さ	4mm					
ホログラム対角長さ	5.7mm					
半対角	2.8mm					
時間		100fts	200fts	300fts	400fts	500fts
光の進む距離(nm)		30000	60000	90000	120000	150000
$\lambda=800\text{nm}$ の波数		37.5	75	112.5	150	187.5
再生距離(mm)	波数差					
200	25.0	1.5	3.0	4.5	6.0	7.5
400	12.5	3.0	6.0	9.0	12.0	15.0
600	8.3	4.5	9.0	13.5	18.0	22.5
800	6.2	6.0	12.0	18.0	24.0	30.0
1000	5.0	7.5	15.0	22.5	30.0	37.5
1200	4.2	9.0	18.0	27.0	36.0	45.0
1400	3.6	10.5	21.0	31.5	42.0	52.5
1600	3.1	12.0	24.0	36.0	48.0	60.0
1800	2.8	13.5	27.0	40.5	54.0	67.5
2000	2.5	15.0	30.0	45.0	60.0	75.0
2200	2.3	16.5	33.0	49.5	66.0	82.5
2400	2.1	18.0	36.0	54.0	72.0	90.0
2600	1.9	19.0	39.0	58.5	78.0	97.5
2800	1.8	21.0	42.0	63.0	84.0	105.0
3000	1.7	22.5	45.0	67.5	90.0	112.5

ホログラム一辺の長さ	5mm					
ホログラム対角長さ	7.1mm					
半対角	3.5mm					
時間		100fts	200fts	300fts	400fts	500fts
光の進む距離(nm)		30000	60000	90000	120000	150000
$\lambda=800\text{nm}$ の波数		37.5	75	112.5	150	187.5
再生距離(mm)	波数差					
200	39.1	1.0	1.9	2.9	3.8	4.8
400	19.5	1.9	3.8	5.8	7.7	9.6
600	13.0	2.9	5.8	8.6	11.5	14.4
800	9.8	3.8	7.7	11.5	15.4	19.2
1000	7.8	4.8	9.6	14.4	19.2	24.0
1200	6.5	5.8	11.5	17.3	23.0	28.8
1400	5.6	6.7	13.4	20.2	26.9	33.6
1600	4.9	7.7	15.4	23.0	30.7	38.4
1800	4.3	8.6	17.3	25.9	34.6	43.2
2000	3.9	9.6	19.2	28.8	38.4	48.0
2200	3.6	10.6	21.1	31.7	42.2	52.8
2400	3.3	11.5	23.0	34.6	46.1	57.6
2600	3.0	12.5	25.0	37.4	49.9	62.4
2800	2.8	13.4	26.9	40.3	53.8	67.2
3000	2.6	14.4	28.8	43.2	57.6	72.0



1=	Gauss	(320,3.1509,100)	2=	Gauss	(431.88,7.7771,125.82)	3=	Gauss	(491.14,3.2985,37.28)
4=	Gauss	(607.73,1.2198,31.229)	5=	Gauss	(809.53,1.7207,64.112)	6=	Gauss	(1064.2,67597.73.953)
7=	Offset	(8.3824)						

図 3-1-2-(2)-(c)-53: 加工部のラマンスペクトルフィッティ
、ノイズ甲

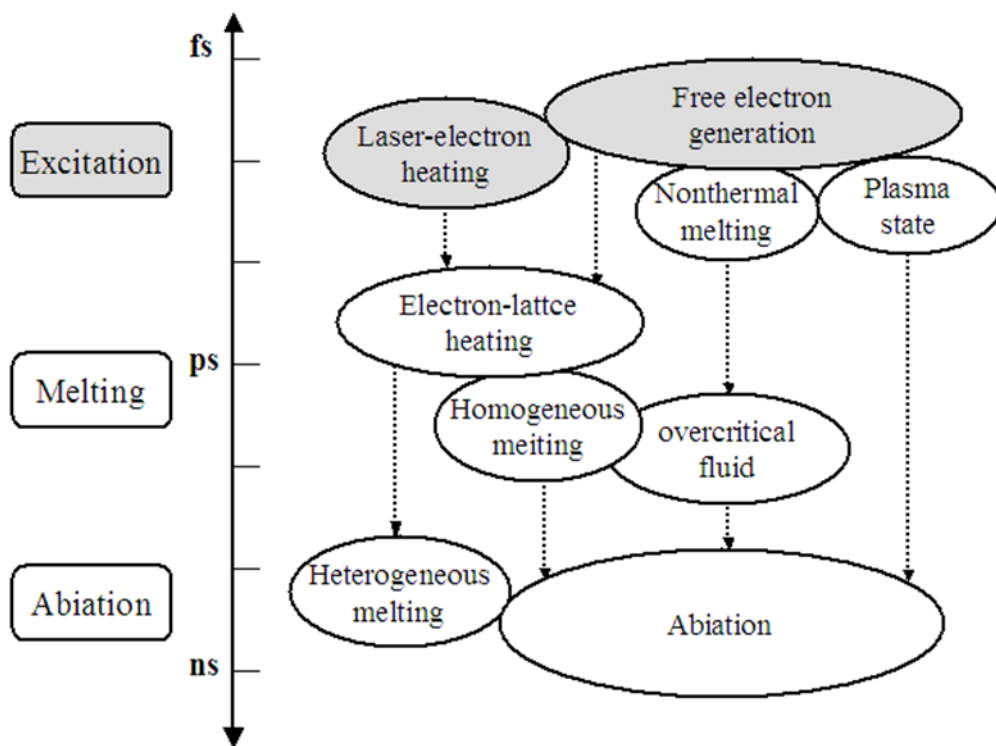


図 3-1-2-(2)-(c)-1 : 光と物質との(およびそれに引き続いて起こる)相互作用の時間スケール

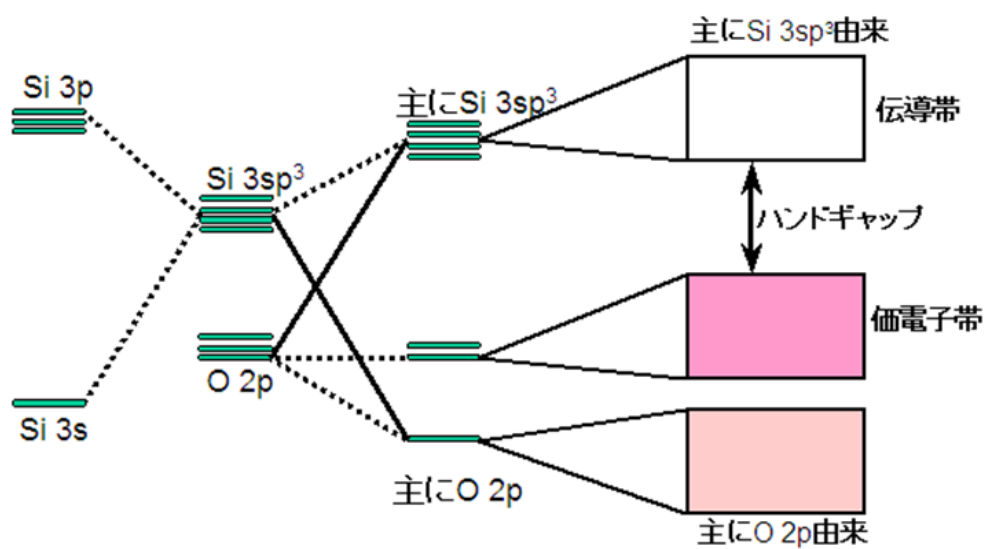


図 3-1-2-(2)-(c)-2: シリカガラスのバンド構造

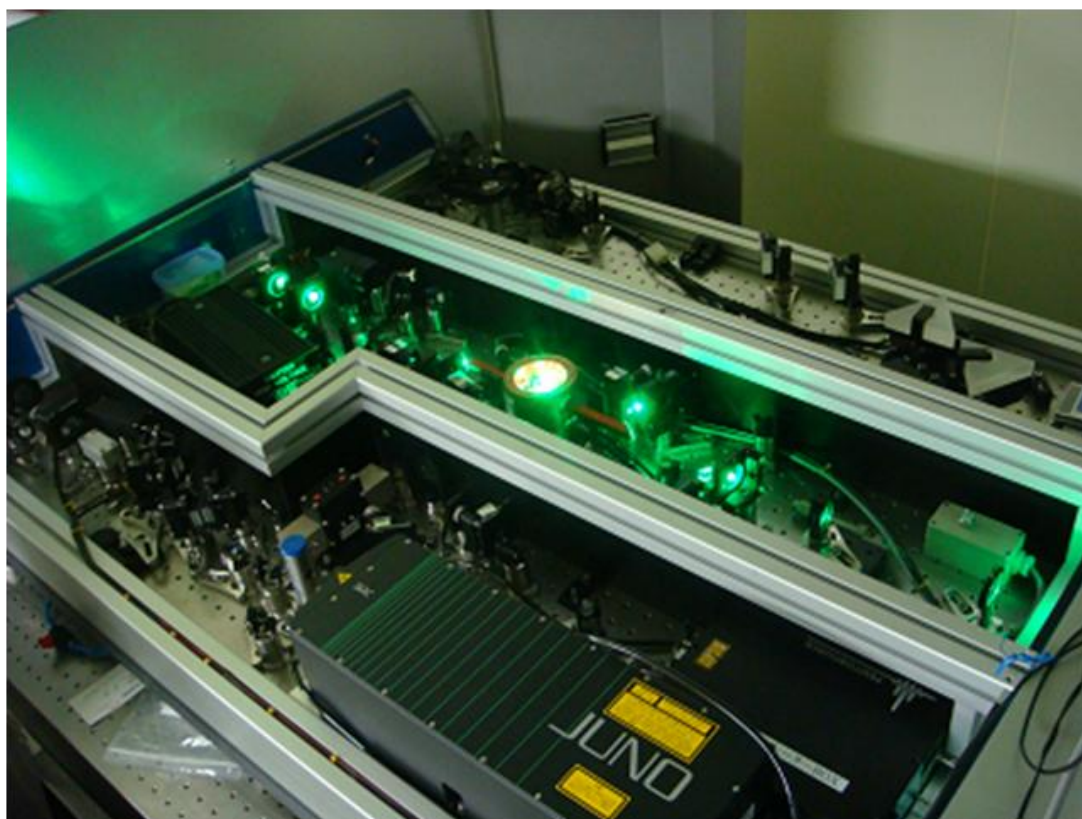
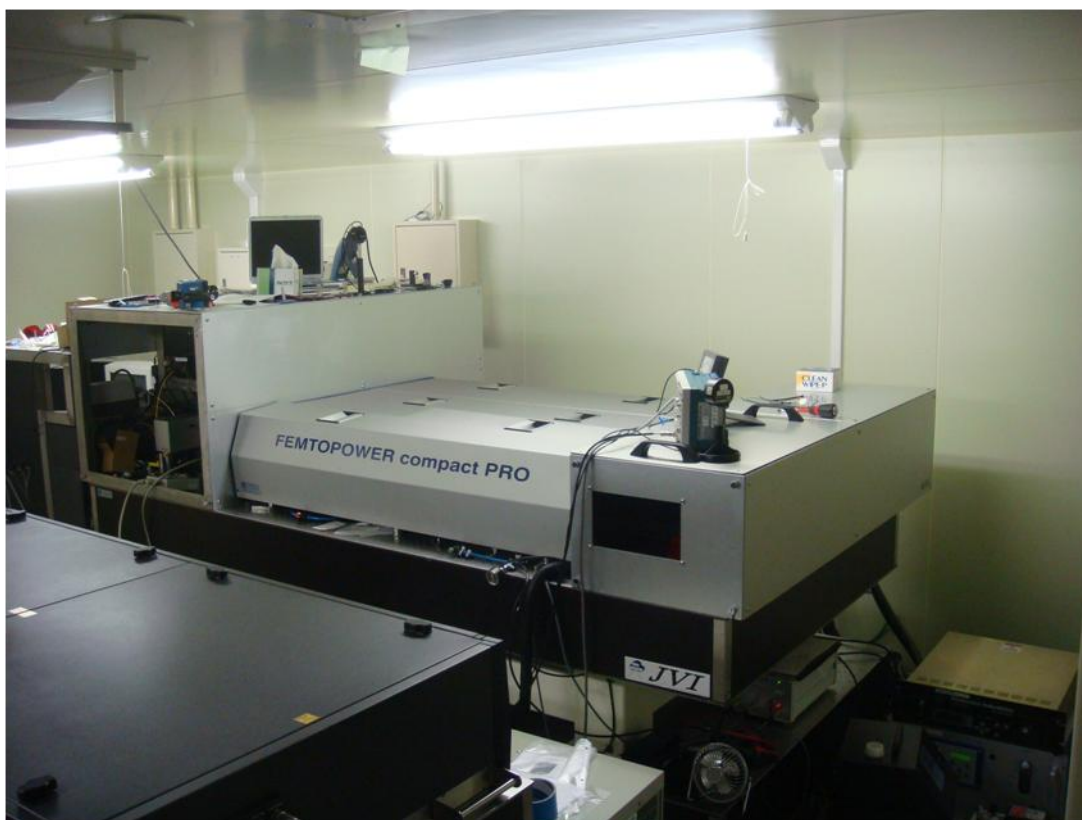


図 3-1-2-(2)-(c)-3、3-1-2-(2)-(c)-4: フェムト秒パルスレーザーの外観

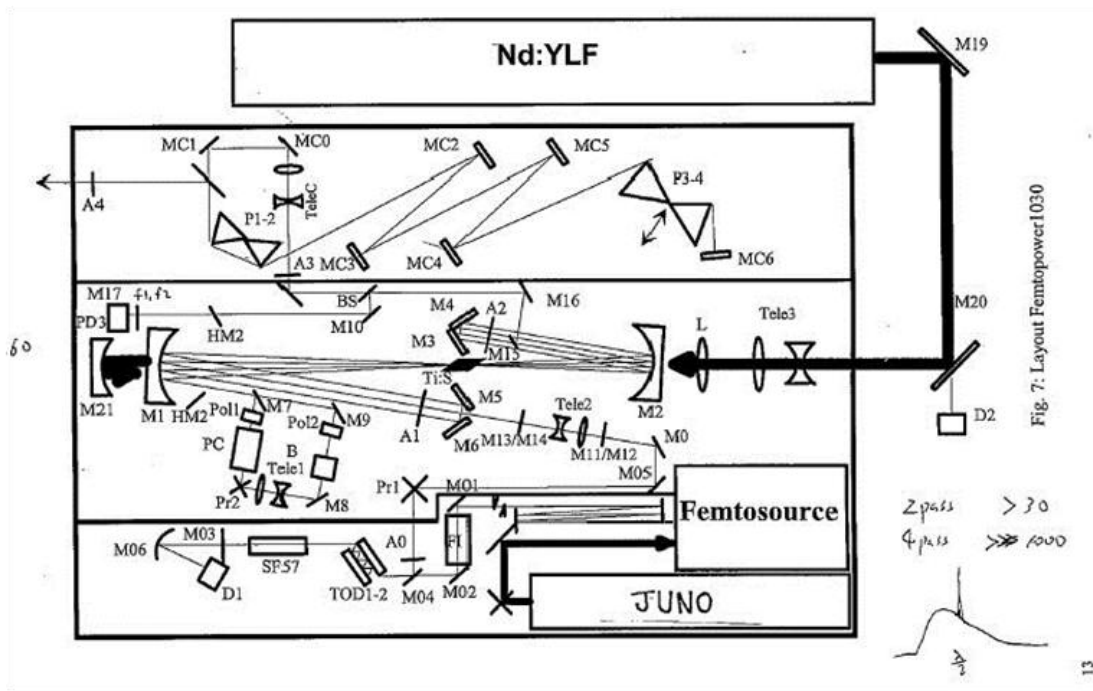


図 3-1-2-(2)-(c)-5: フェムト秒パルスレーザーの光学系概略図

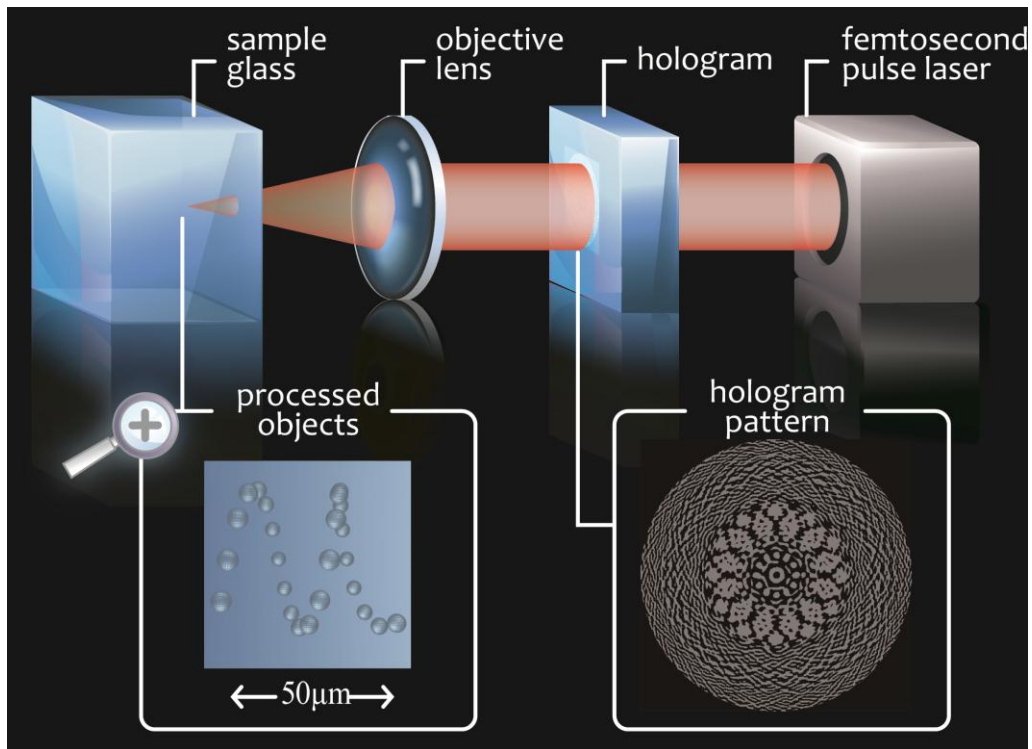


図 3-1-2-(2)-(c)-6: 三次元一括加工法光学システム概略図



図 3-1-2-(2)-(c)-7: Ti:S チャンバー内の結露状況



圖 3-1-2-(2)-(c)-8: 立方体粹型加工結果

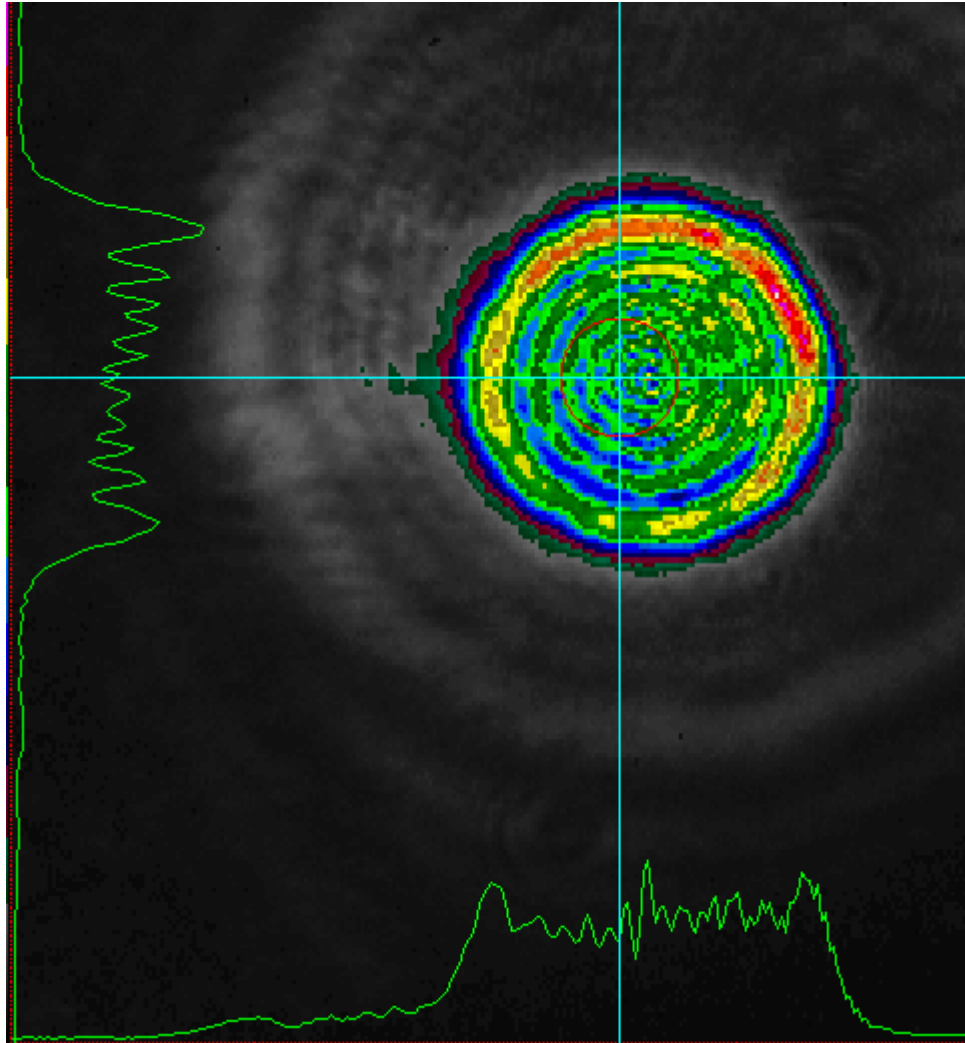


図 3-1-2-(2)-(c)-9 : ビームの強度プロファイル(横モード)

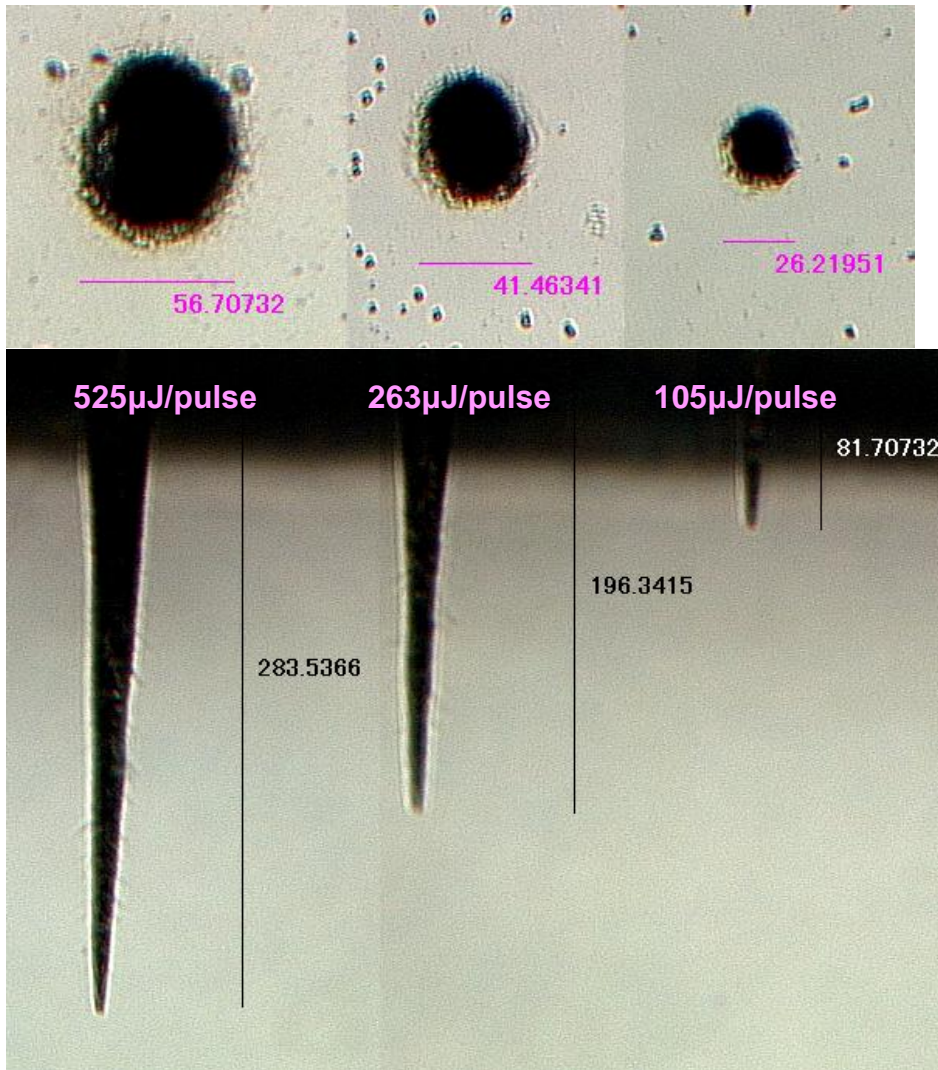


図 3-1-2-(2)-(c)-10: パルスパワーとアブレーション深さとの相関
(ソーダライムガラスに加工)

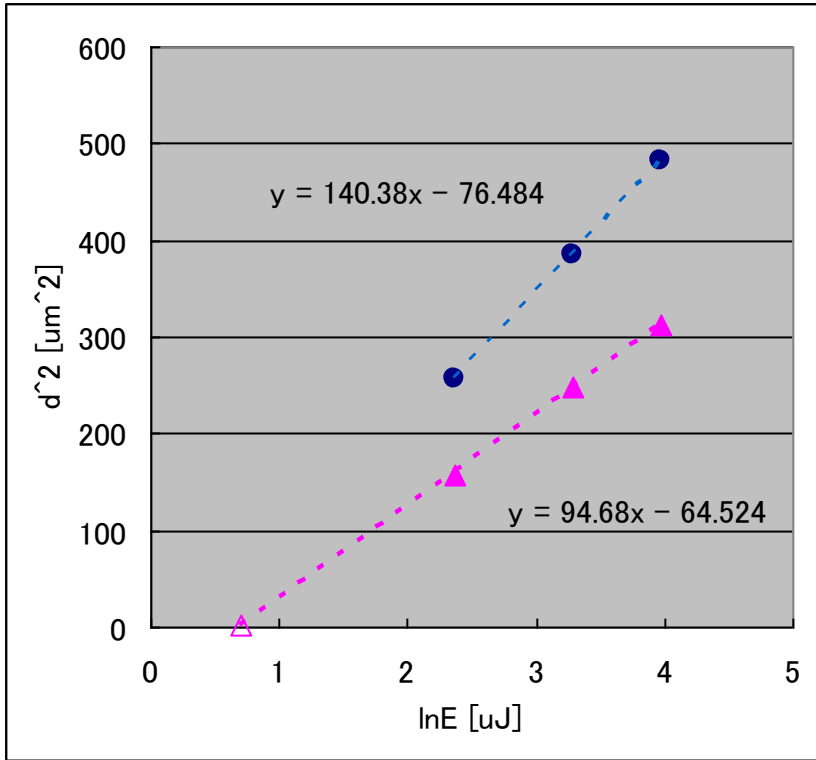


図 3-1-2-(2)-(c)-11: パルスパワー E とアブレーション半径 d_{abl} との関係; ●:ソーダライムガラス、▲:合成石英ガラス。△は文献値。

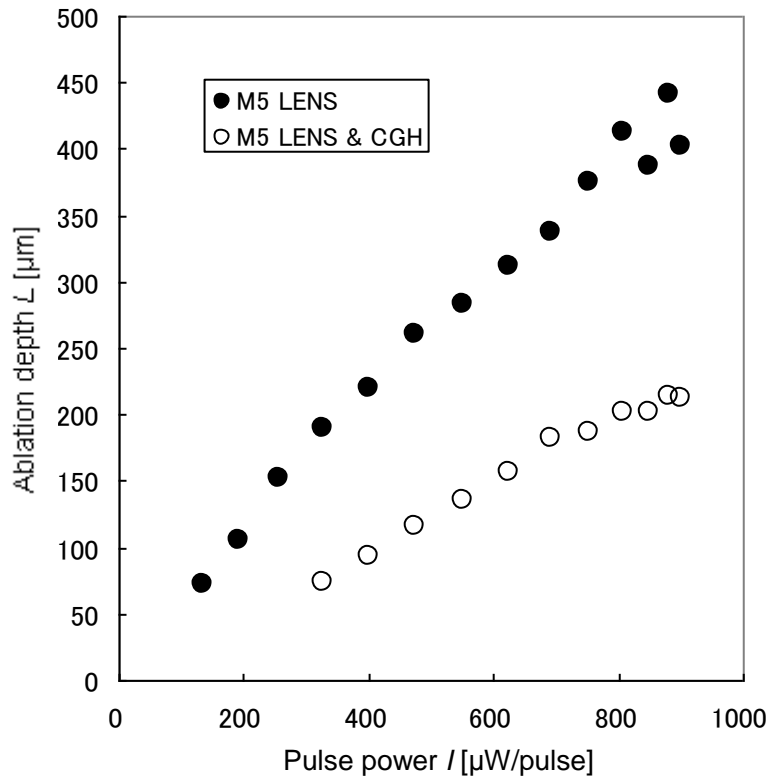


図 3-1-2-(2)-(c)-12: アブレーション深度 L のパルスパワー I 依存性;
 ●:対物レンズのみ、○:対物レンズ+CGH

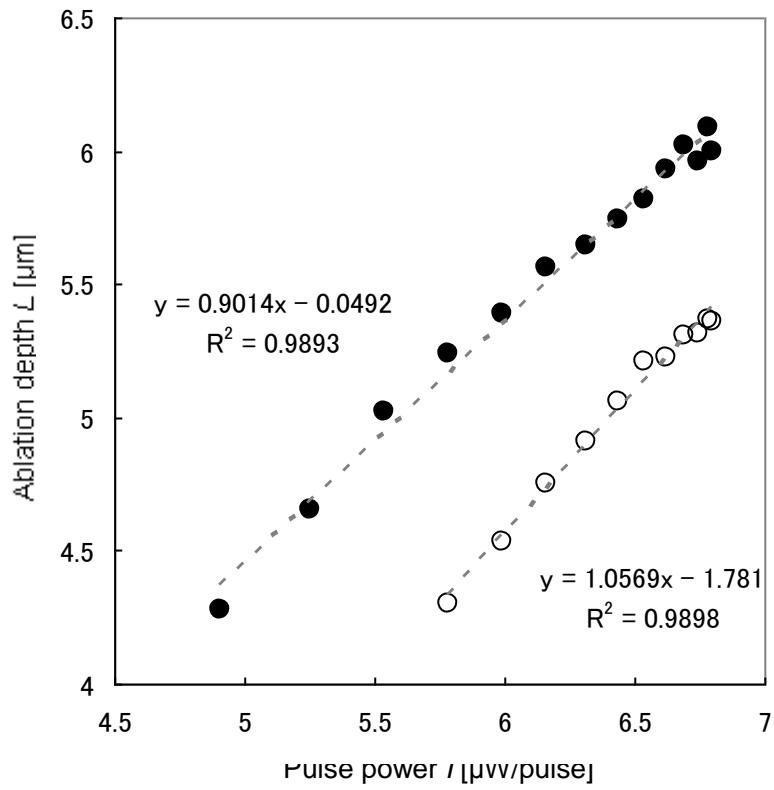


図 3-1-2-(2)-(c)-13: アブレーション深度 L のパルスパワー I 依存性 (両対数); ●: 対物レンズのみ、○: 対物レンズ+CGH

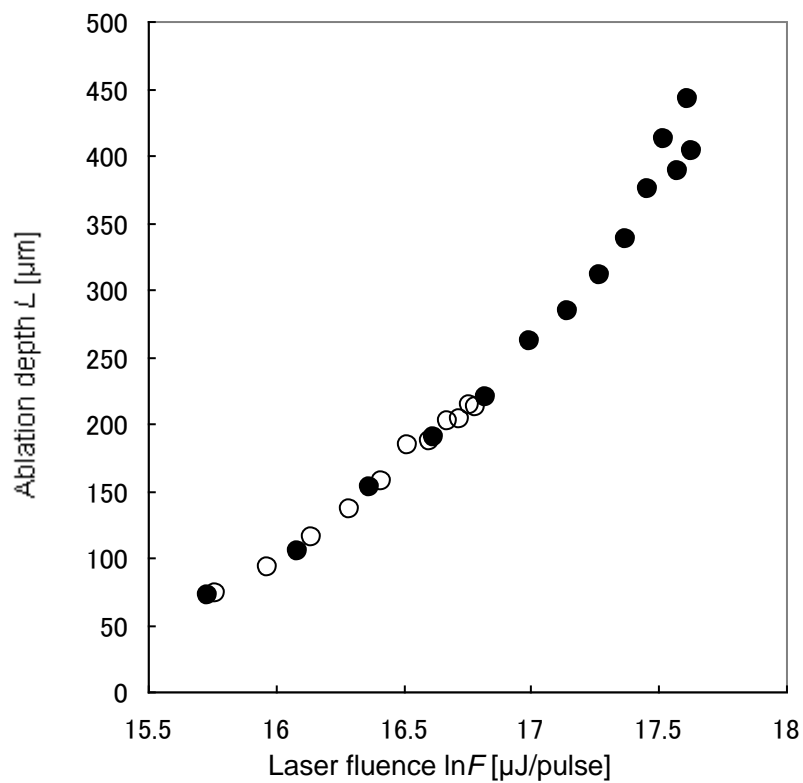


図 3-1-2-(2)-(c)-14: フェムト秒パルスレーザーのフルエンス F とアブレーション深度 L との関係を両対数でプロットしたグラフ; ●: 対物レンズのみ、○: 対物レンズと CGH

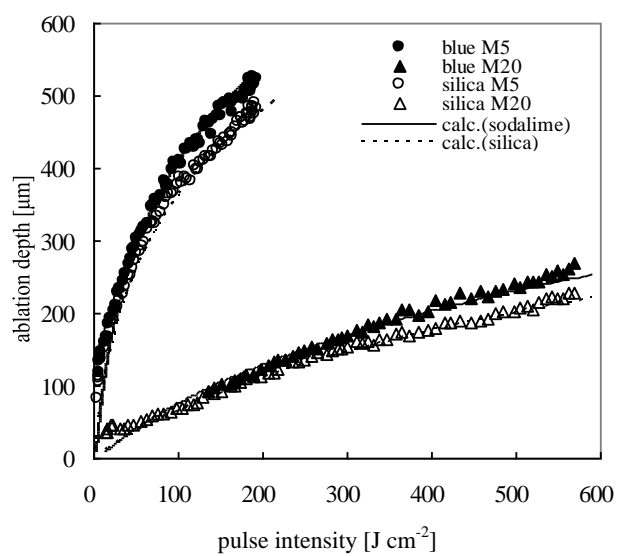
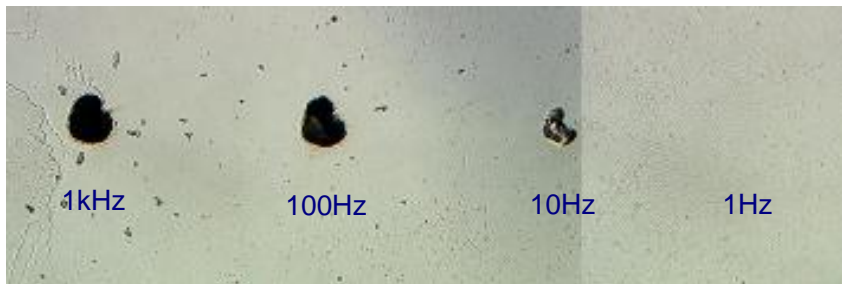
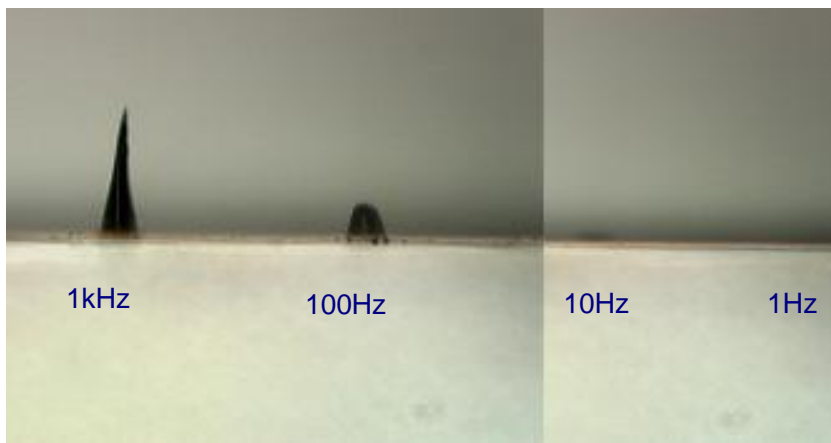


図 3-1-2-(2)-(c)-15: アブレーション深度のパルス強度依存性の計算値との比較

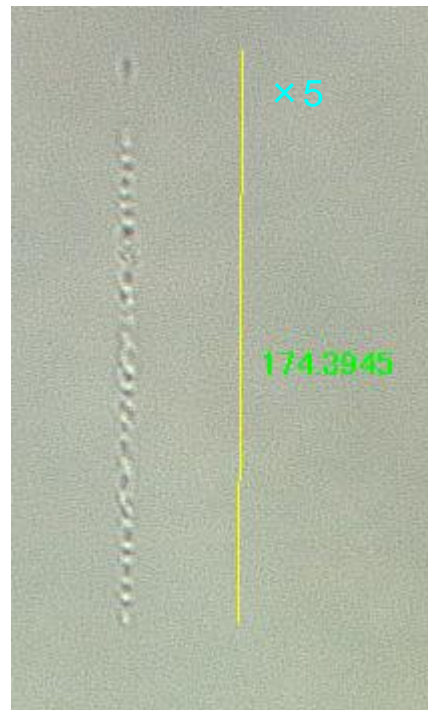
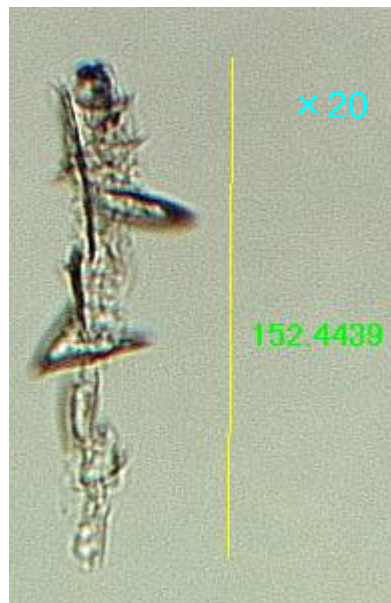


(加工面から見た図)



(側面から見た図)

図 3-1-2-(2)-(c)-16 : 対物レンズのみで作製したアブレーション形状



182 μm

図 3-1-2-(2)-(c)-17: 対物レンズのみで集光させた場合の加工形状; (左)205 $\mu\text{J/pulse}$, (中)100 $\mu\text{J/pulse}$, (右)55 $\mu\text{J/pulse}$

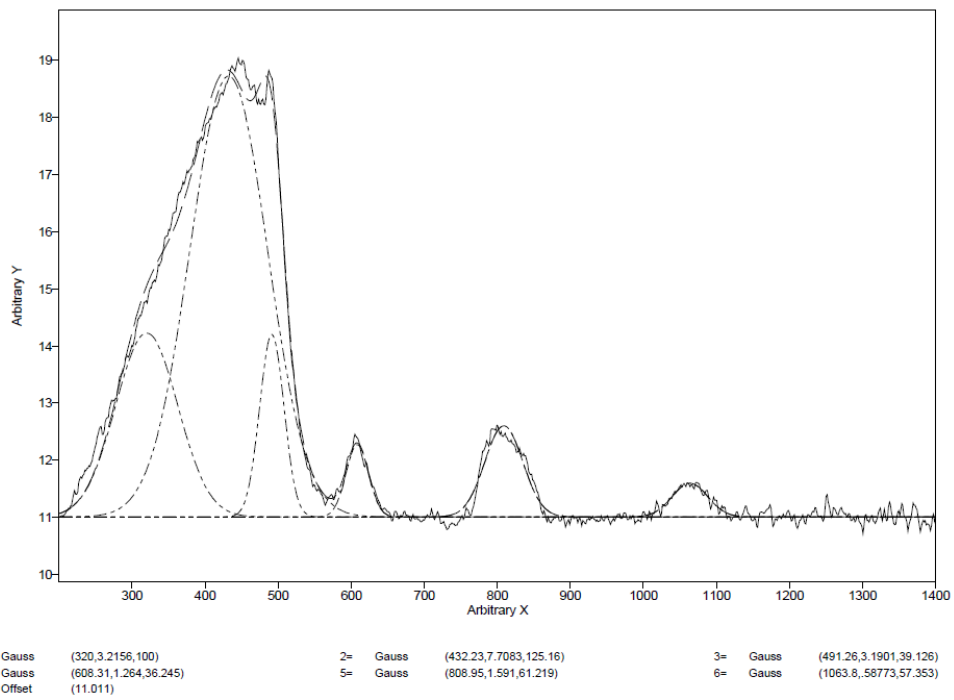


図 3-1-2-(2)-(c)-18: ラマンスペクトルのフィッティング

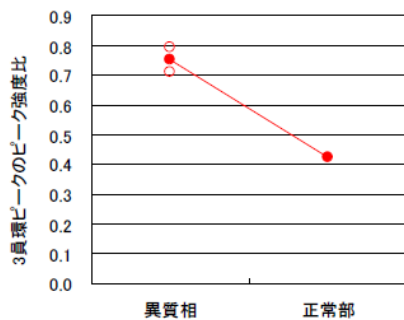


Fig.6-1 3員環(600cm⁻¹付近)のピーク強度比

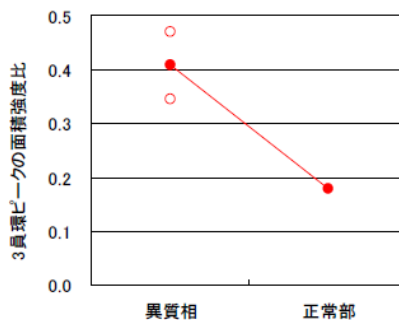


Fig.6-2 3員環(600cm⁻¹付近)の面積強度比

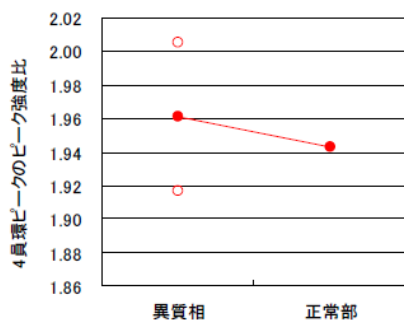


Fig.7-1 4員環(495cm⁻¹付近)のピーク強度比

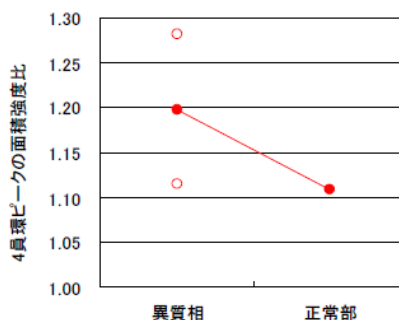


Fig.7-2 4員環(495cm⁻¹付近)の面積強度比

800cm⁻¹付近のラマン線に対する相対強度比較図

図 3-1-2-(2)-(c)-19: ラマンスペクトルのピーク強度比

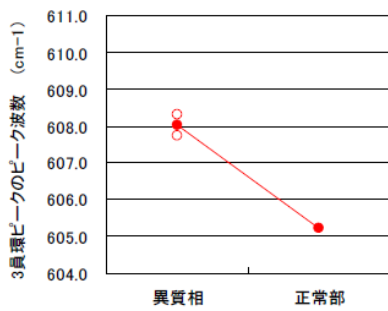


Fig.8-1 3員環(600cm⁻¹付近)のピーク波数

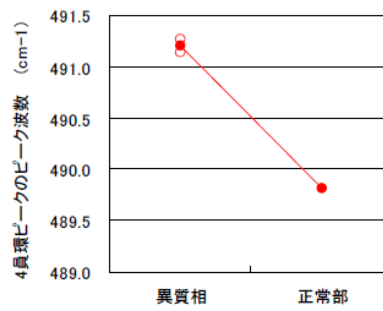


Fig.8-2 4員環(495cm⁻¹付近)のピーク波数

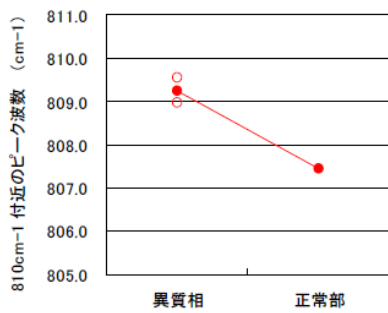


Fig.8-3 810cm⁻¹付近のピーク波数

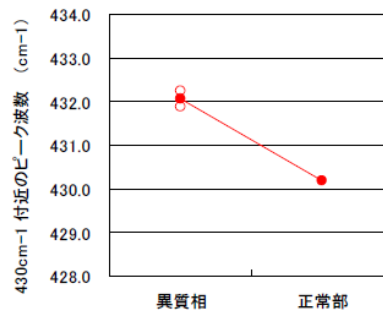


Fig.8-4 430cm⁻¹付近のピーク波数

図 3-1-2-(2)-(c)-20:ラマンスペクトルのピーク波数比

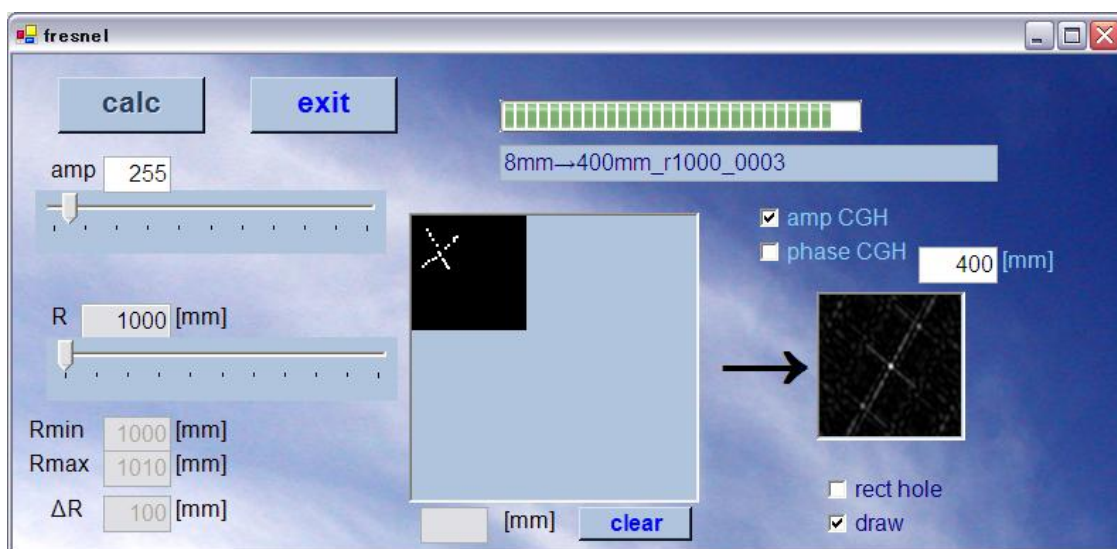


図 3-1-2-(2)-(c)-21: シミュレータのユーザーインターフェース

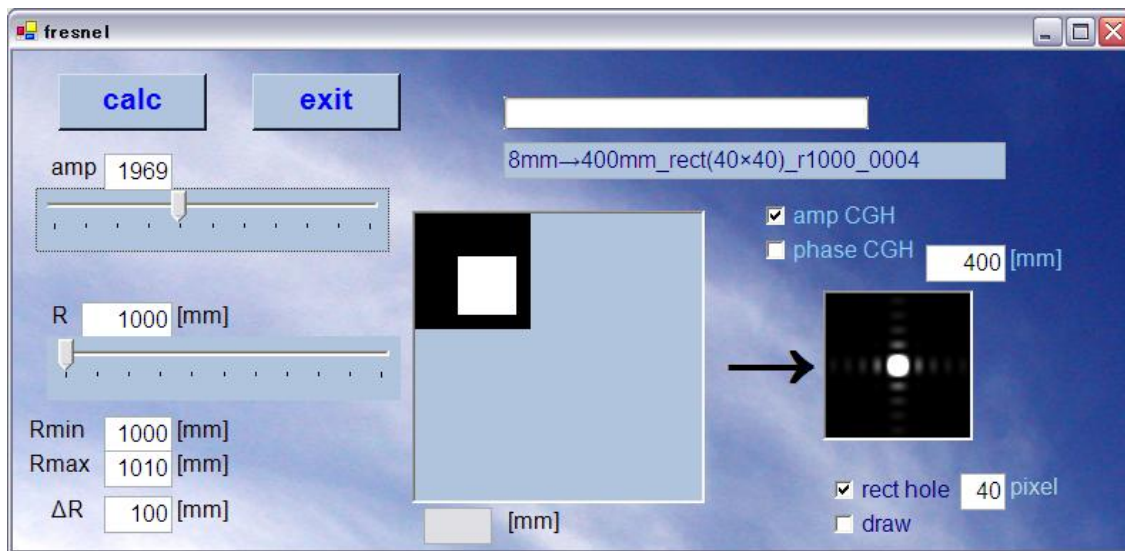


図 3-1-2-(2)-(c)-22: 方形スリットに対する計算結果

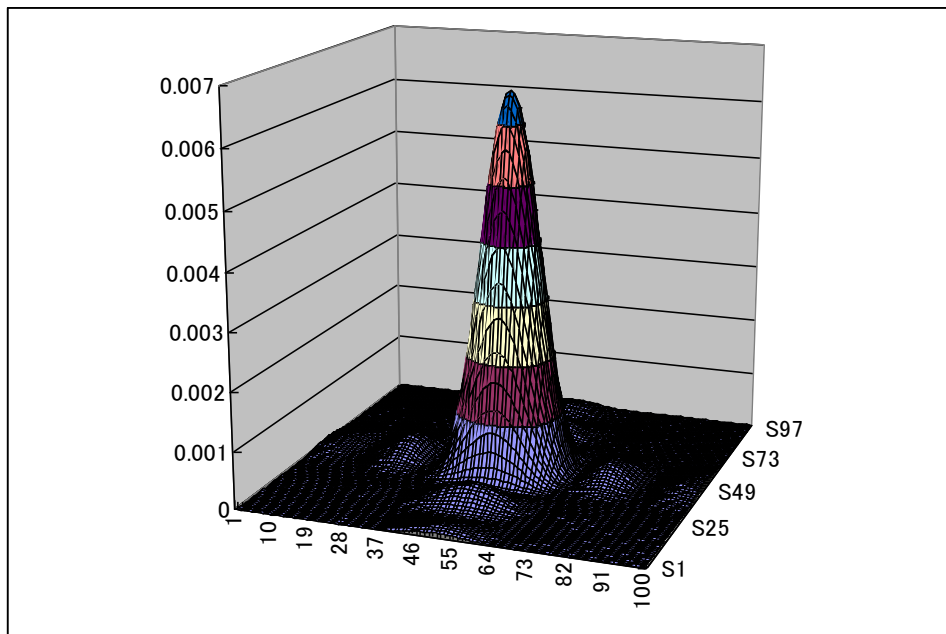


図 3-1-2-(2)-(c)-23: 方形スリットに対する計算結果
(3D 表示)

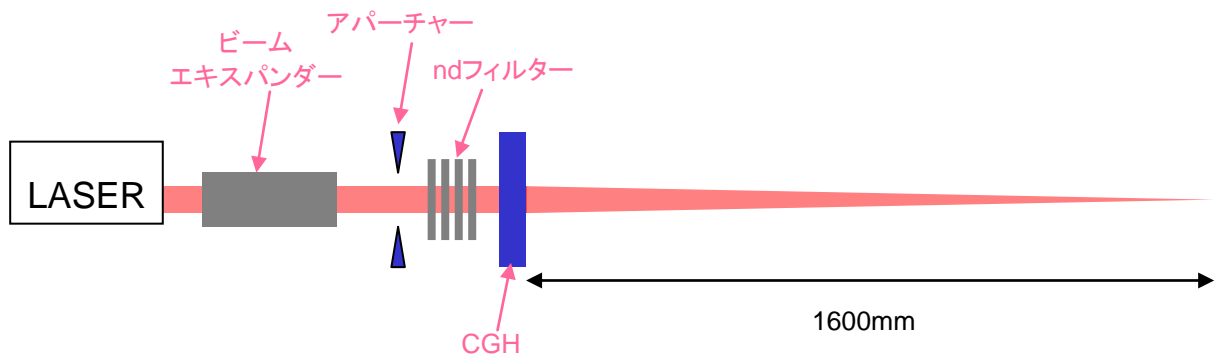


図3-1-2-(2)-(c)-24: 計算機ホログラム再生試験用光学系



図3-1-2-(2)-(c)-25: フーリエ変換ホログラム01の再生像



図3-1-2-(2)-(c)-26: フーリエ変換ホログラム02の再生像

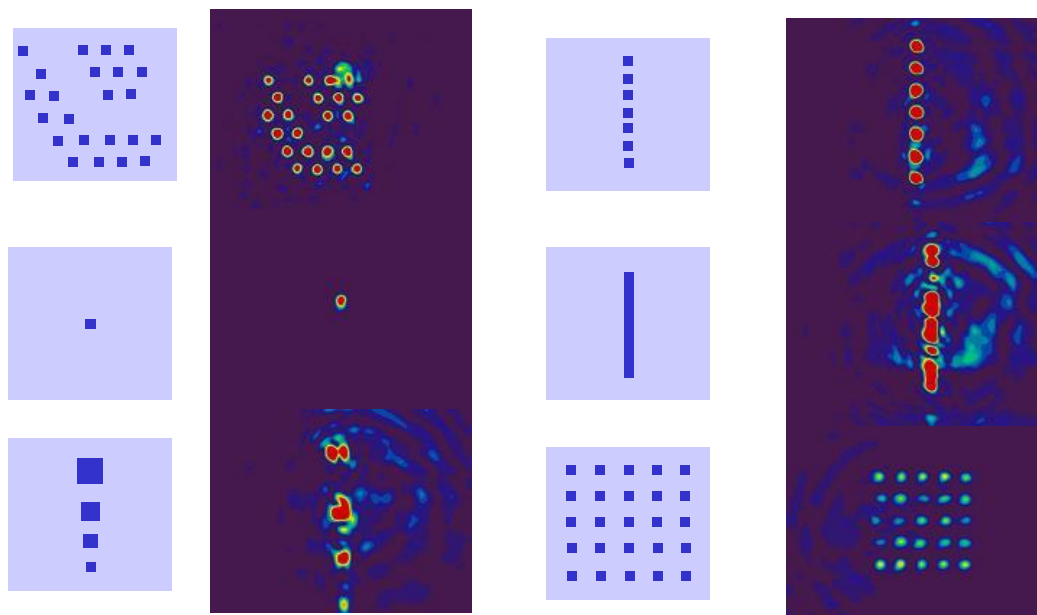


図3-1-2-(2)-(c)-27: フレネル変換ホログラム03~08の設計値および再生像

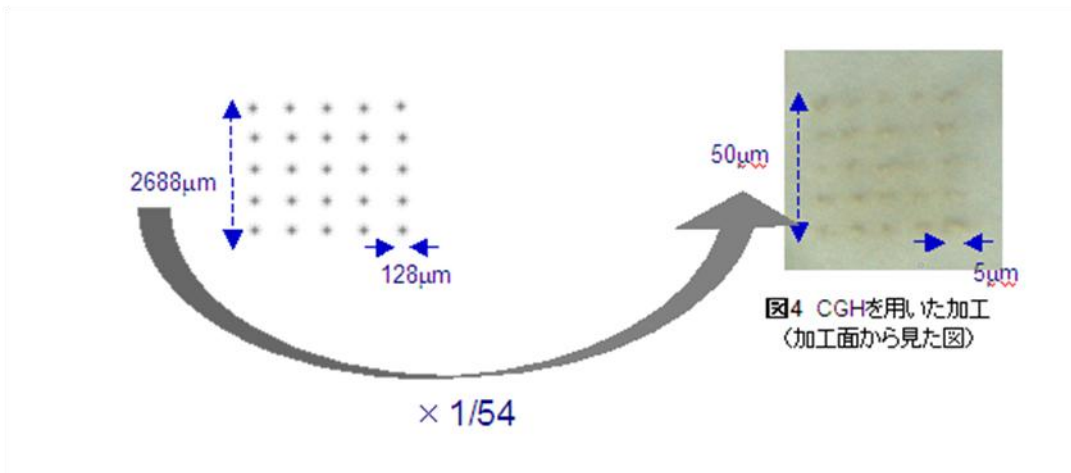


図 3-1-2-(2)-(c)-28: ホログラム 08(5×5)による内部加工結果を光源方向から見た光学顕微鏡写真

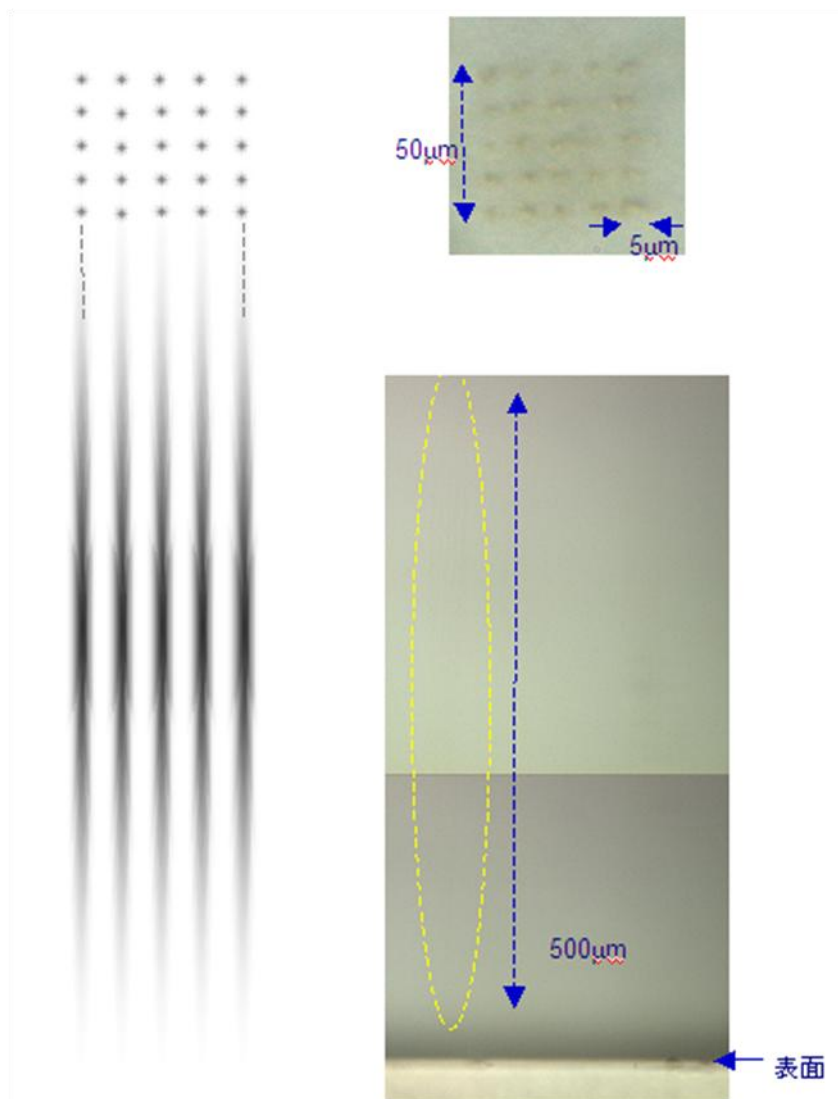


図 3-1-2-(2)-(c)-29: ホログラム 08(5×5)による内部加工結果
(光源方向・光源に垂直な方向から見た光学顕微鏡写真)

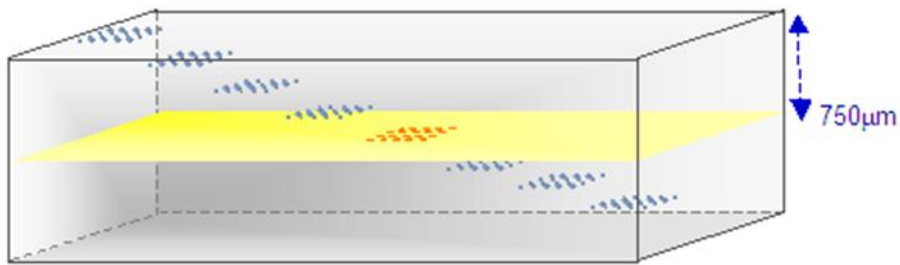
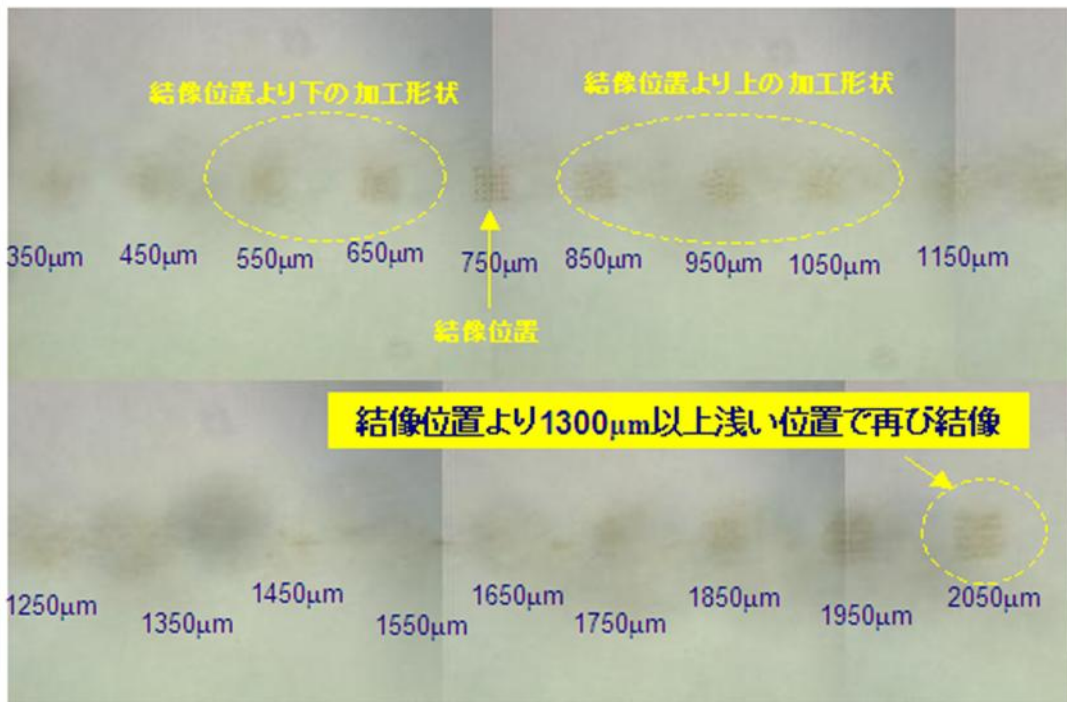


図 3-1-2-(2)-(c)-30: 結像深さを変えながらホログラム 08 (5×5)による内部加工を行ったサンプルを表面から 750 μ m の深さに光学顕微鏡の焦点を合わせて観察した像

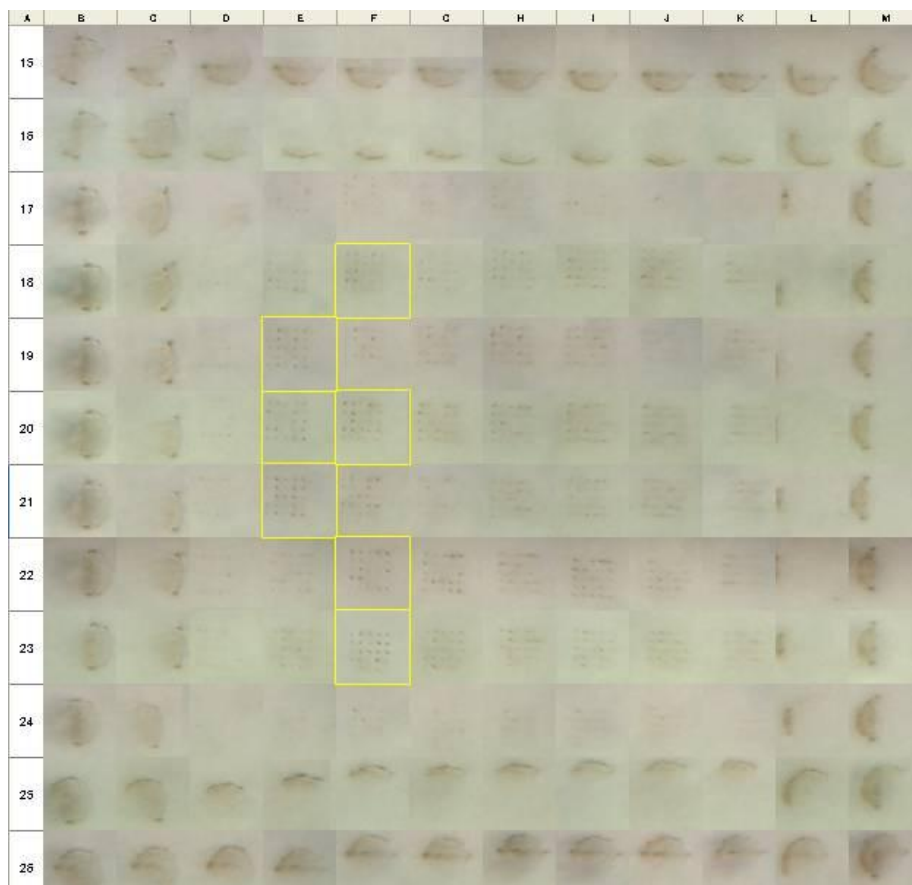


図 3-1-2-(2)-(c)-31: CGH 位置を変えた時の加工形状の変化; 図右方向が CGH を+x 方向に動かした加工、図上方向が CGH を+y 方向に動かした加工。黄色の枠=比較的鮮明になったもの

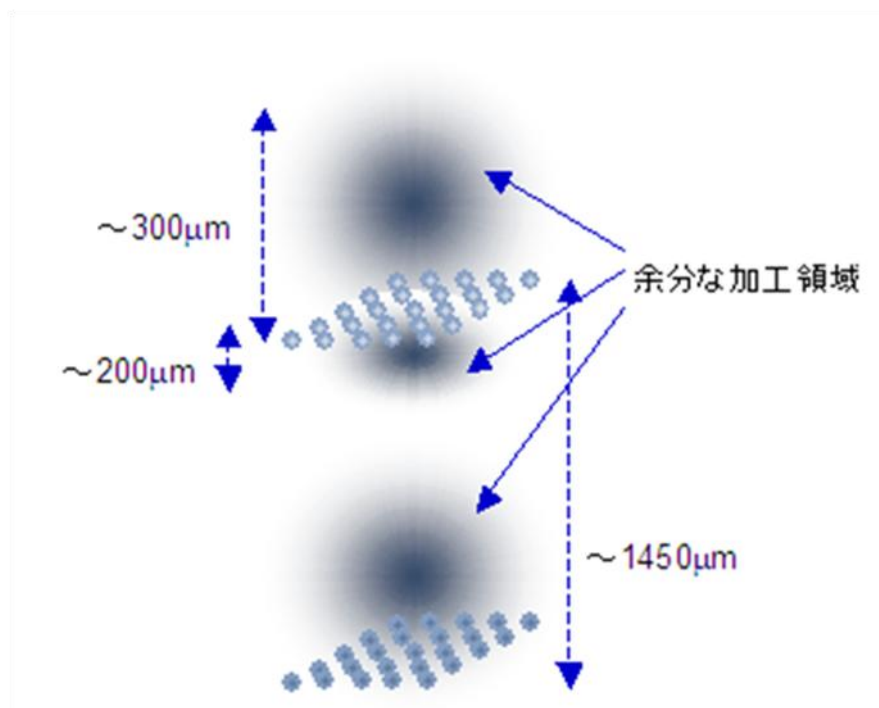


図 3-1-2-(2)-(c)-32: ホログラム 08(5×5)による内部加工された異質相形状の概念図

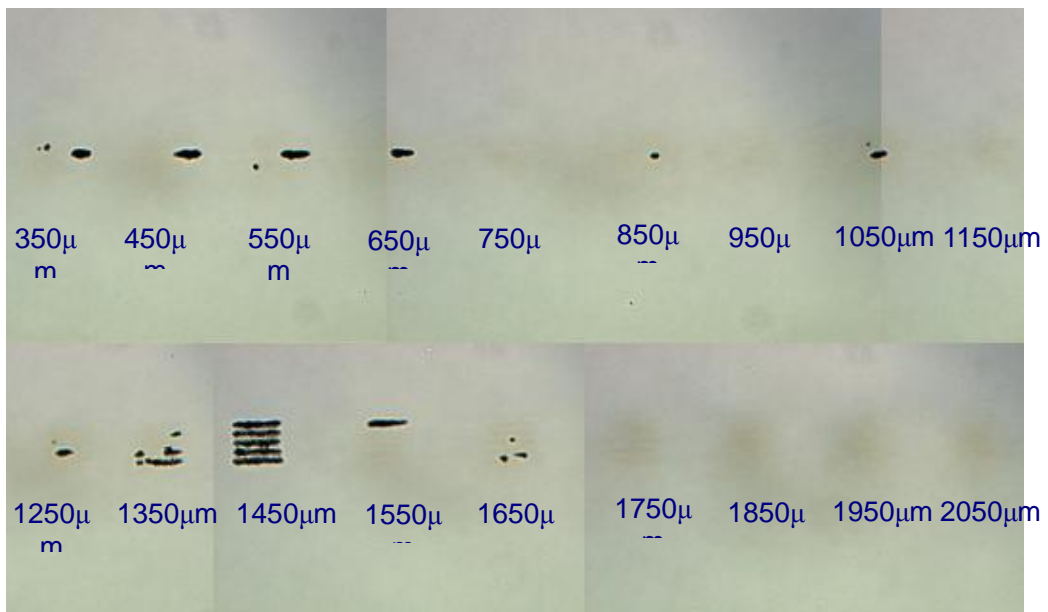


図 3-1-2-(2)-(c)-33 : 結像深さを変えたホログラム 08(5×5)による加工サンプルの表面アブレーション量の比較; 図内青字はサンプル表面から結像深さまでの距離を示す。

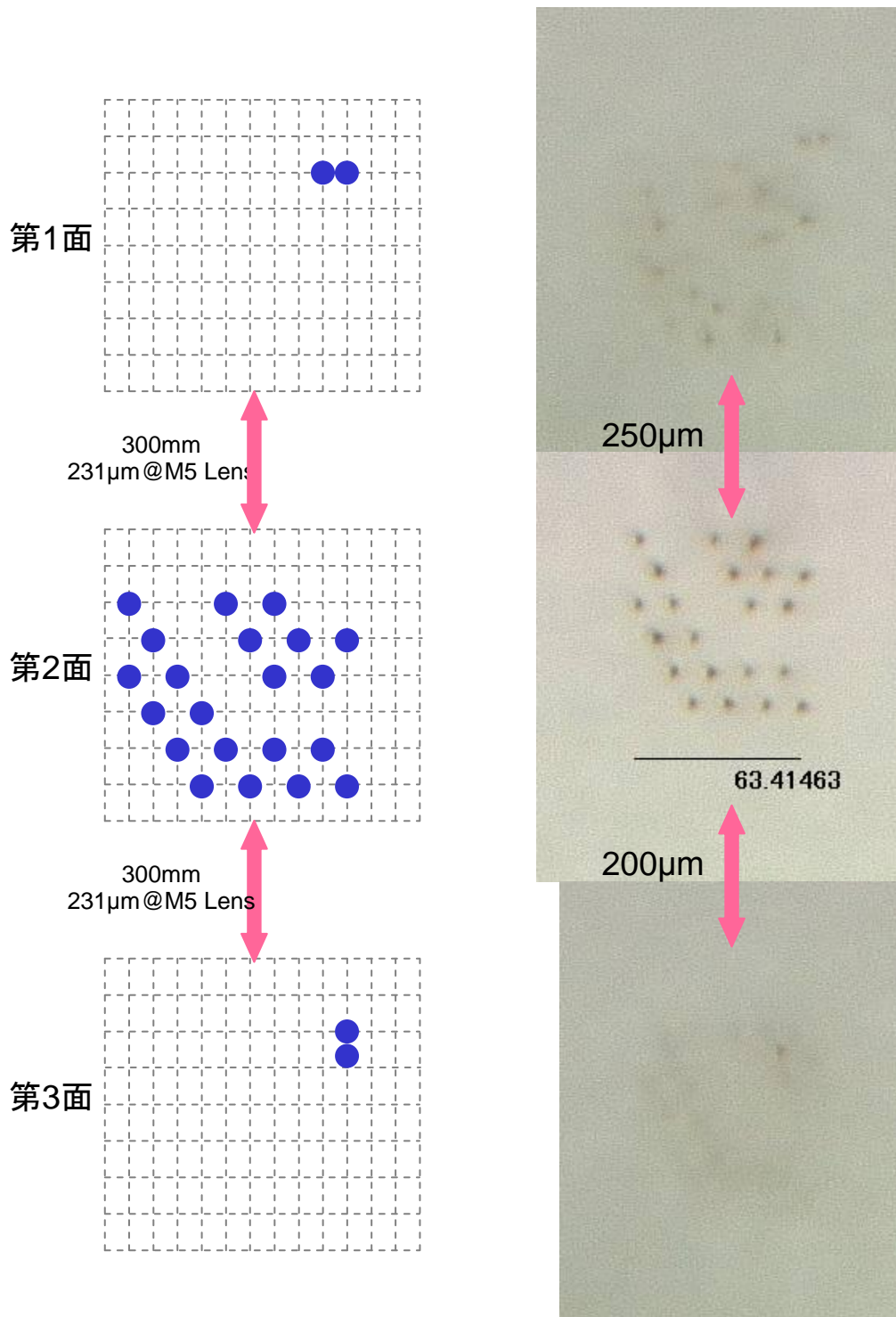


図 3-1-2-(2)-(c)-34: 3次元フォトニック結晶モデルの設計値(左)および実際の加工形状(右)



図 3-1-2-(2)-(c)-35: 7×2ドット加工結果(上: 第1面、下: 第2面)

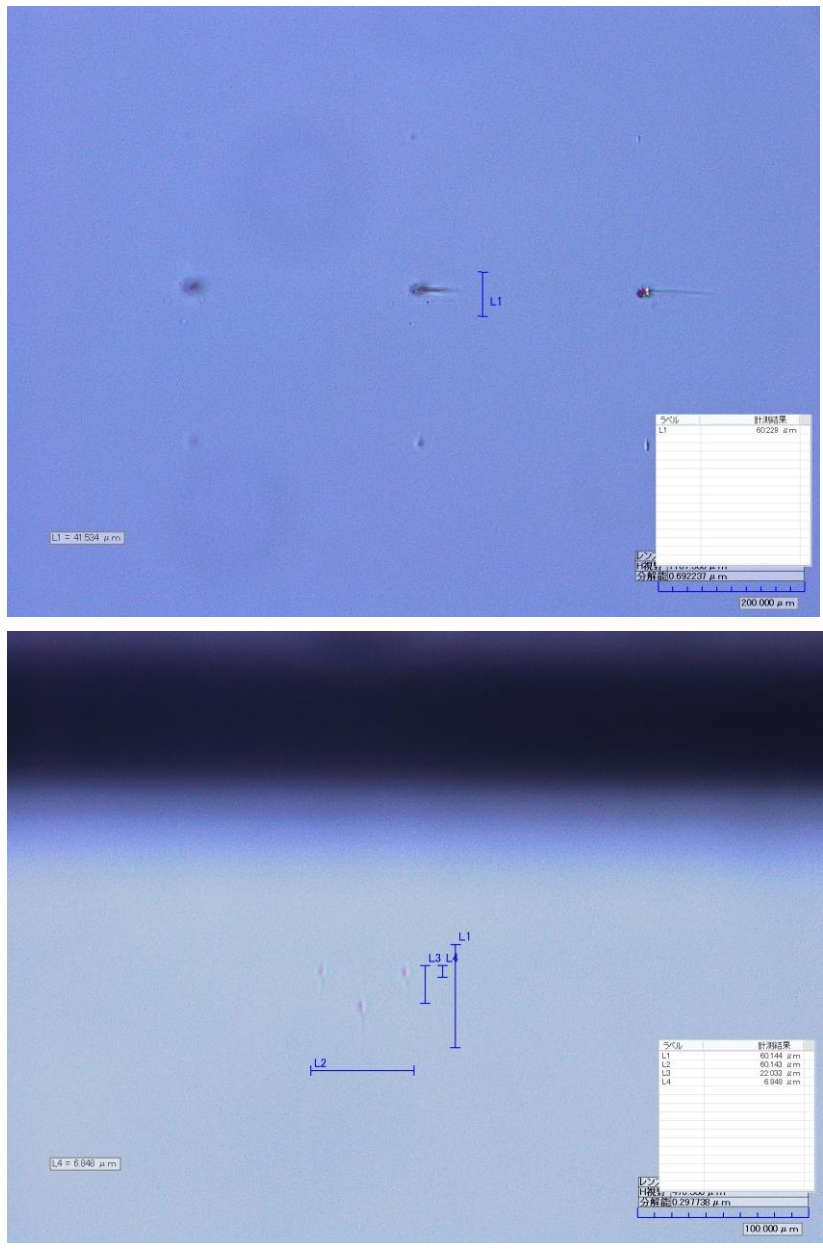


図 3-1-2-(2)-(c)-36: 2×2ドット加工結果(上:レーザー入射方向から観察、
下:レーザー入射方向と垂直な方向から観察)

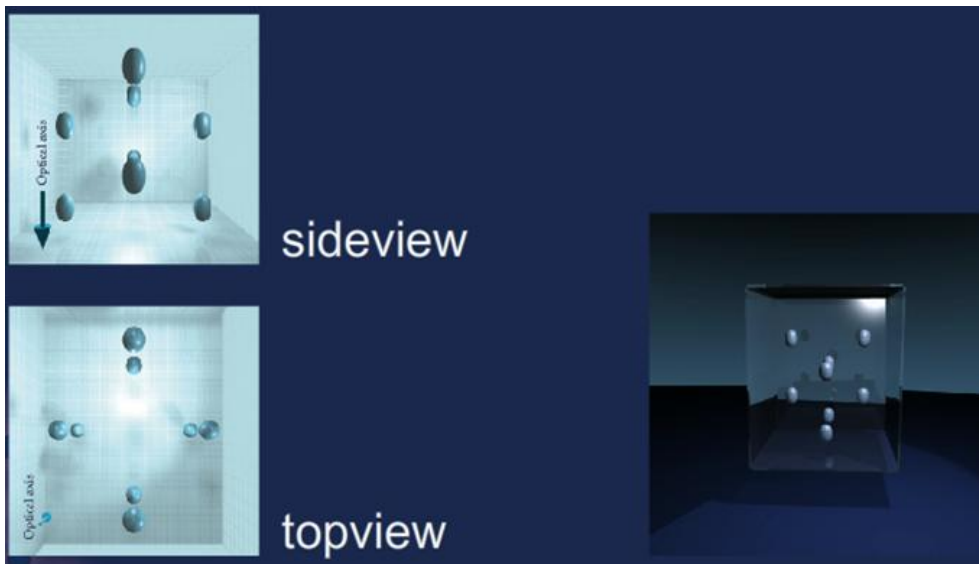


図 3-1-2-(2)-(c)-37:2×4ドット設計図

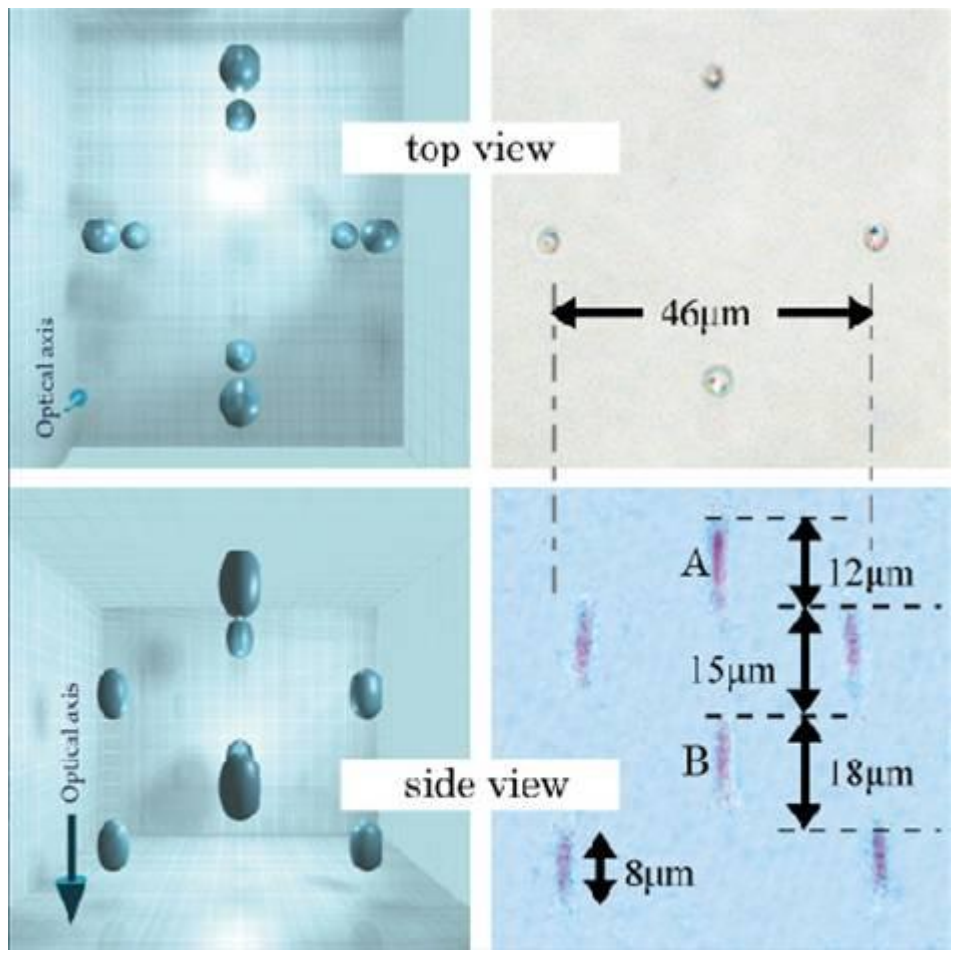


図 3-1-2-(2)-(c)-38: 2×4ドット加工結果

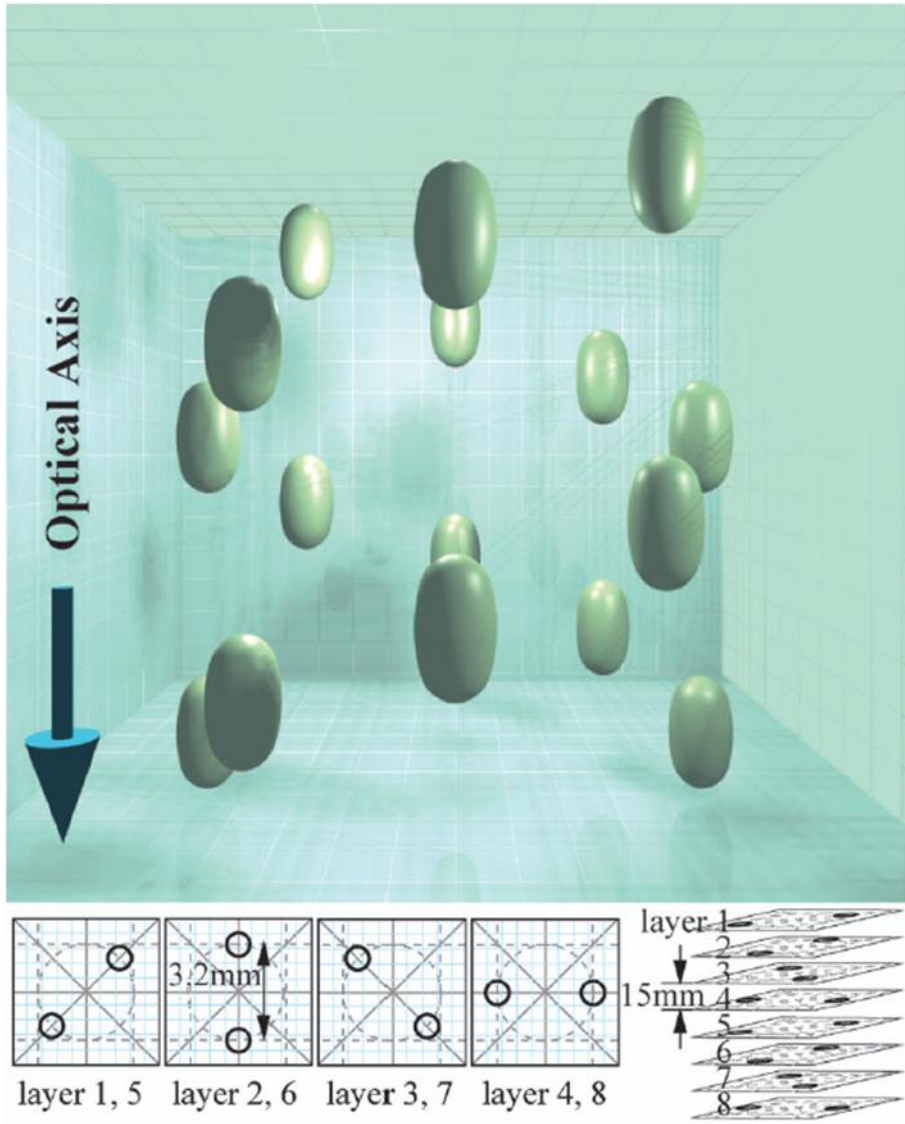


図 3-1-2-(2)-(c)-39: 2×8 モデル設計図

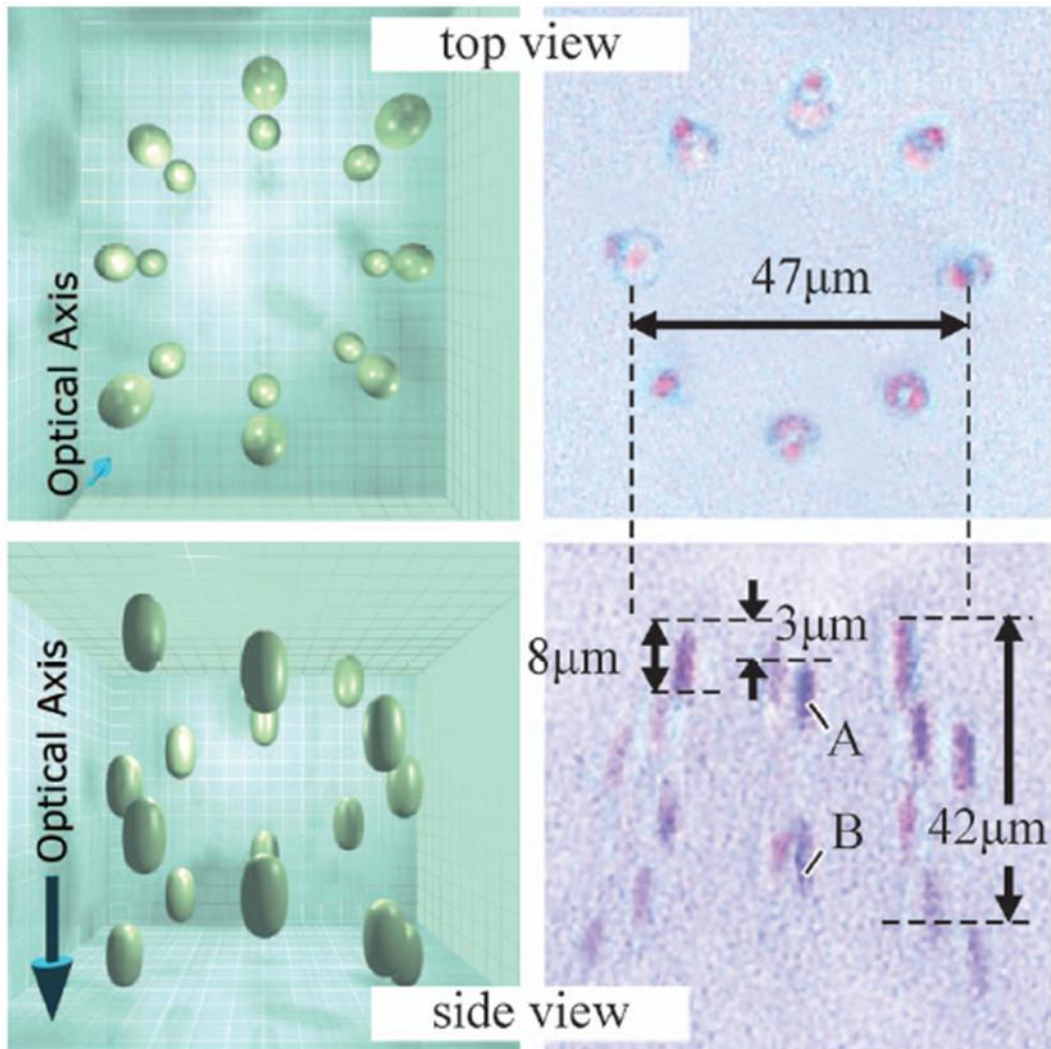


図 3-1-2-(2)-(c)-40: 2×8 モデル加工結果

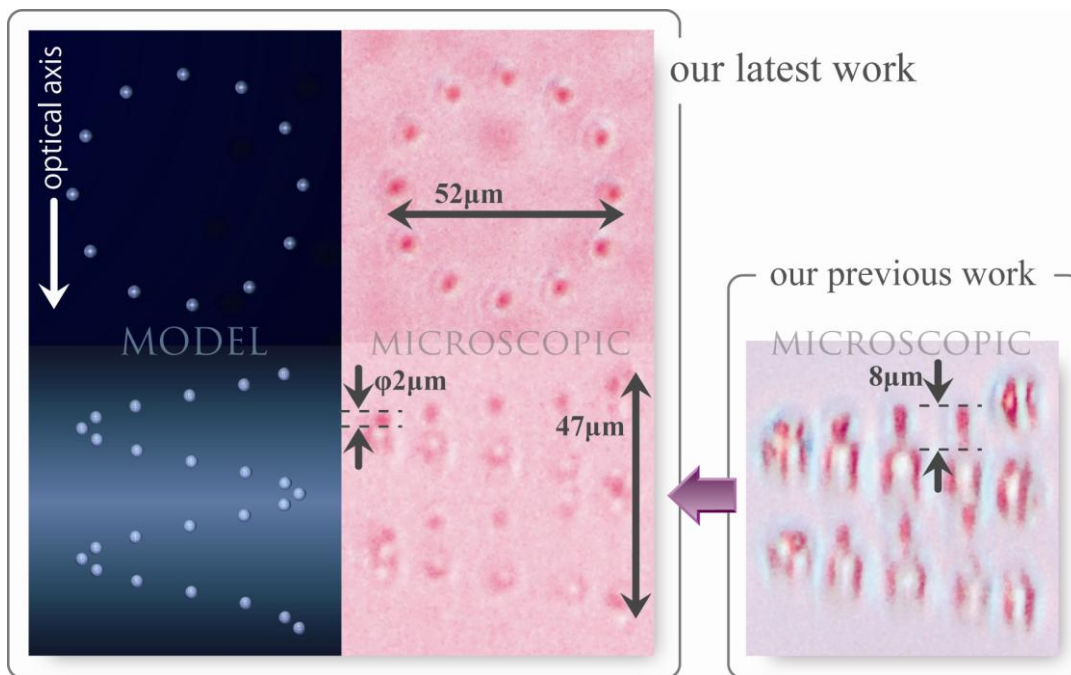


図 3-1-2-(2)-(c)-41: 加工例(モデル図と光学顕微鏡写真):左図上側は光源方向から、下側はそれに垂直な方向からの観察像。右図は過去の加工例で、現在は光軸方向への伸びを抑えた均一な加工ができていることがわかる。

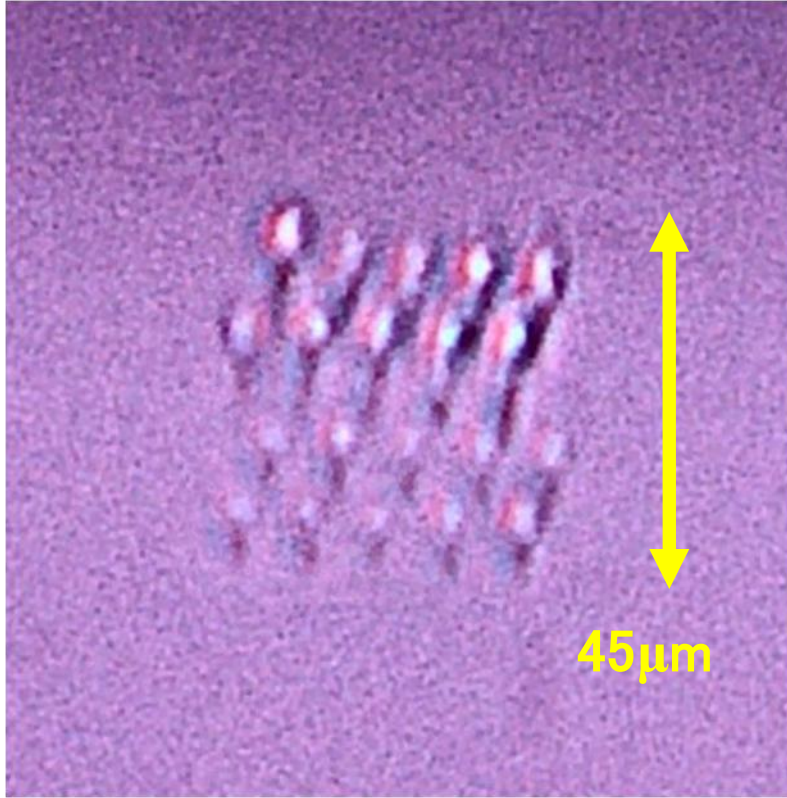


图 3-1-2-(2)-(c)-42: 100 点加工结果



図 3-1-2-(2)-(c)-43: ライン加工

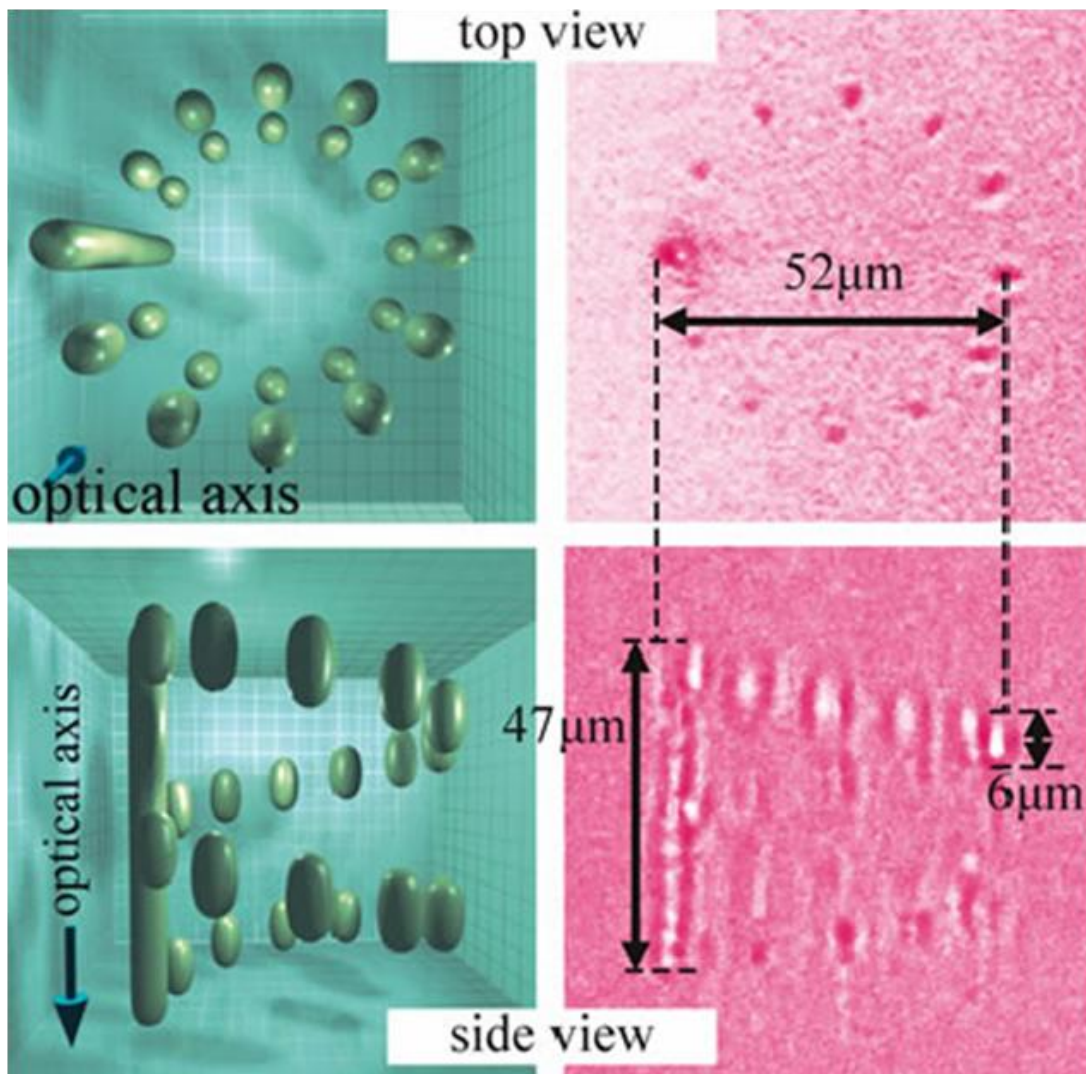


図 3-1-2-(2)-(c)-44: ライン+ドット加工

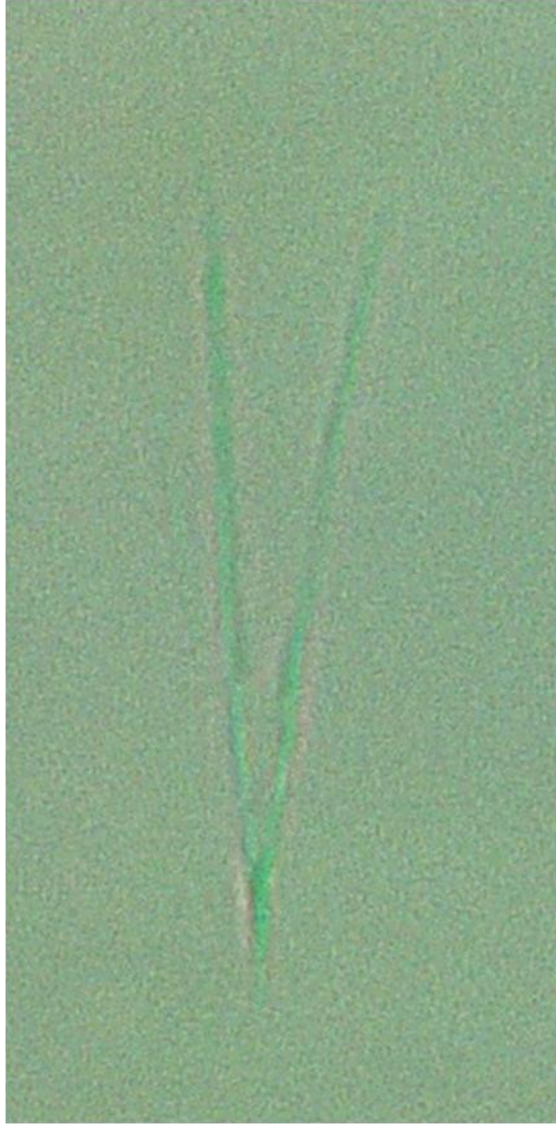


图 3-1-2-(2)-(c)-45: V 字加工

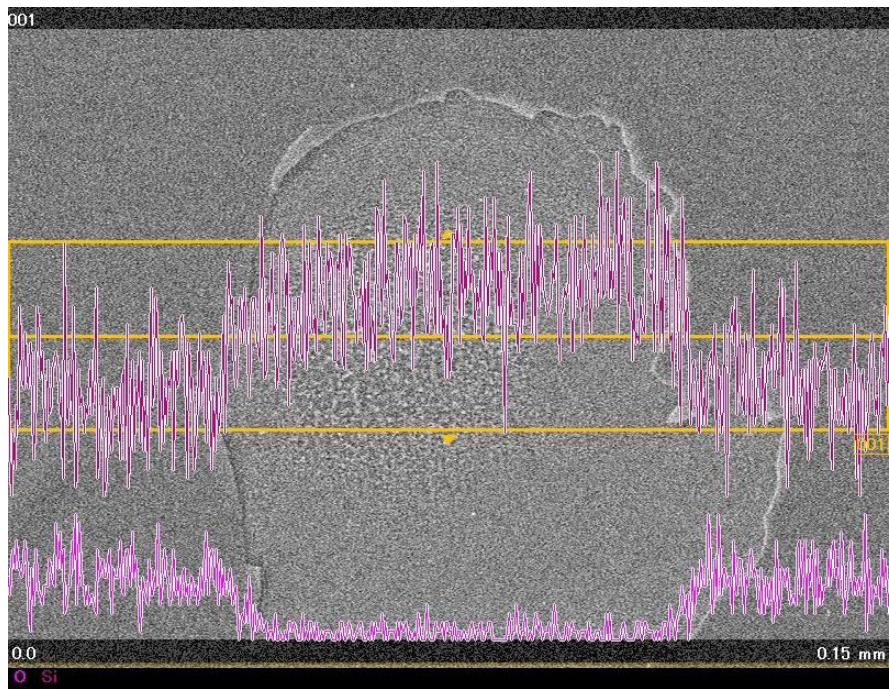


図 3-1-2-(2)-(c)-46: 異質相の EDS 観察結果

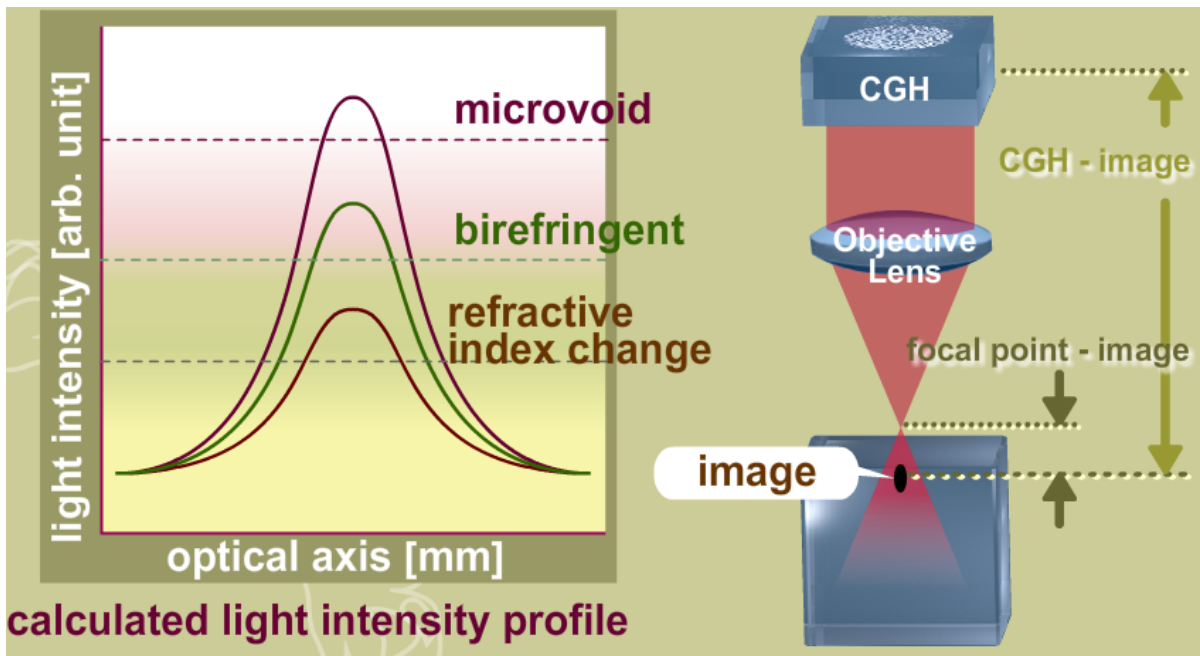


図 3-1-2-(2)-(c)-47: 異質相の種類ごとの閾値の概略図

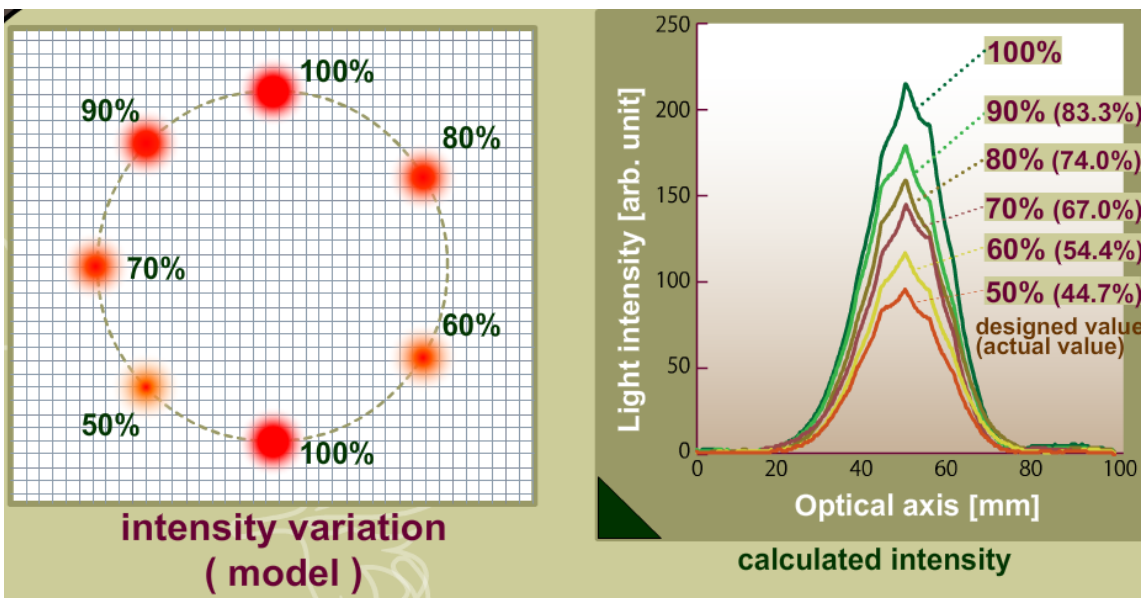


図 3-1-2-(2)-(c)-48: 強度変化ホログラム

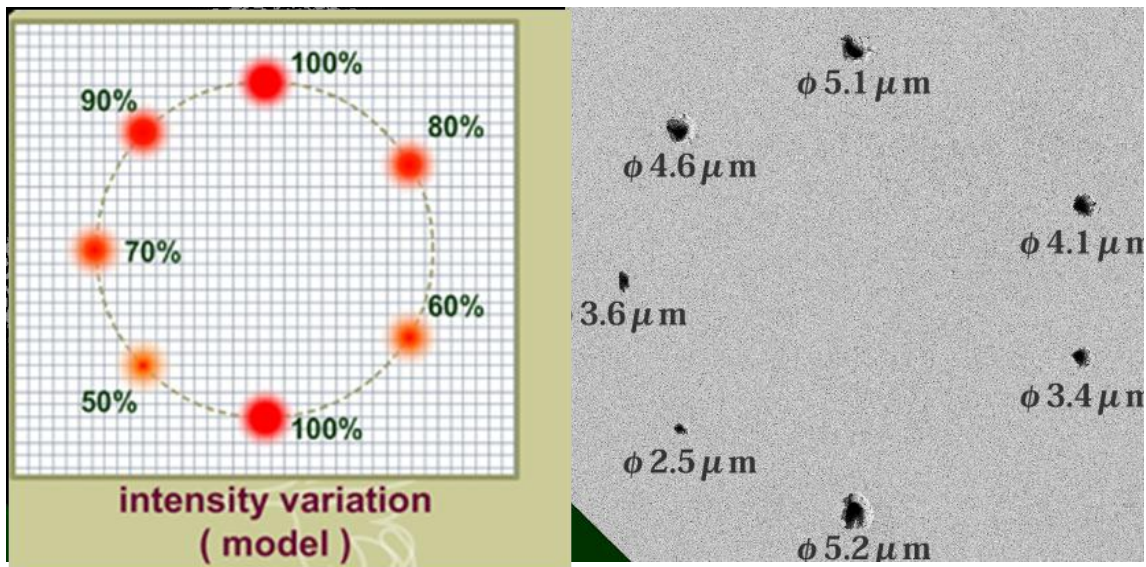


図 3-1-2-(2)-(c)-49: 強度変化ホログラムによる加工結果

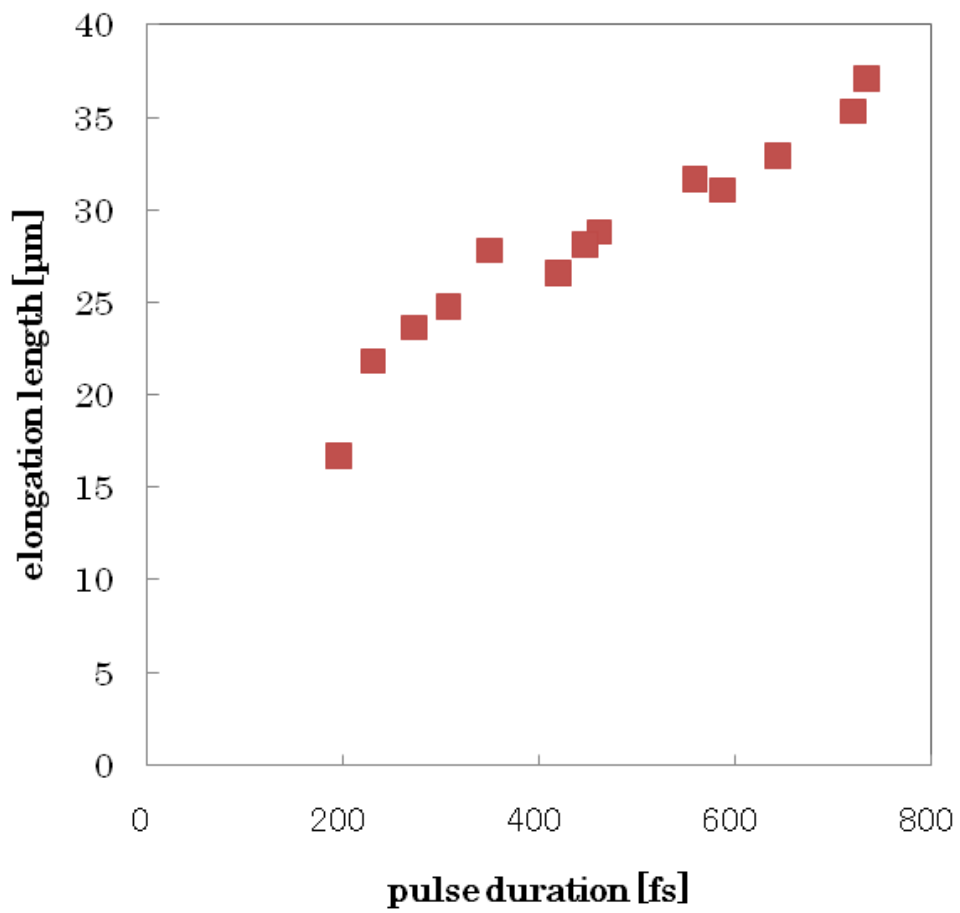


図 3-1-2-(2)-(c)-50: フルエンス一定の条件下におけるアブレーション深度のパルス幅依存性

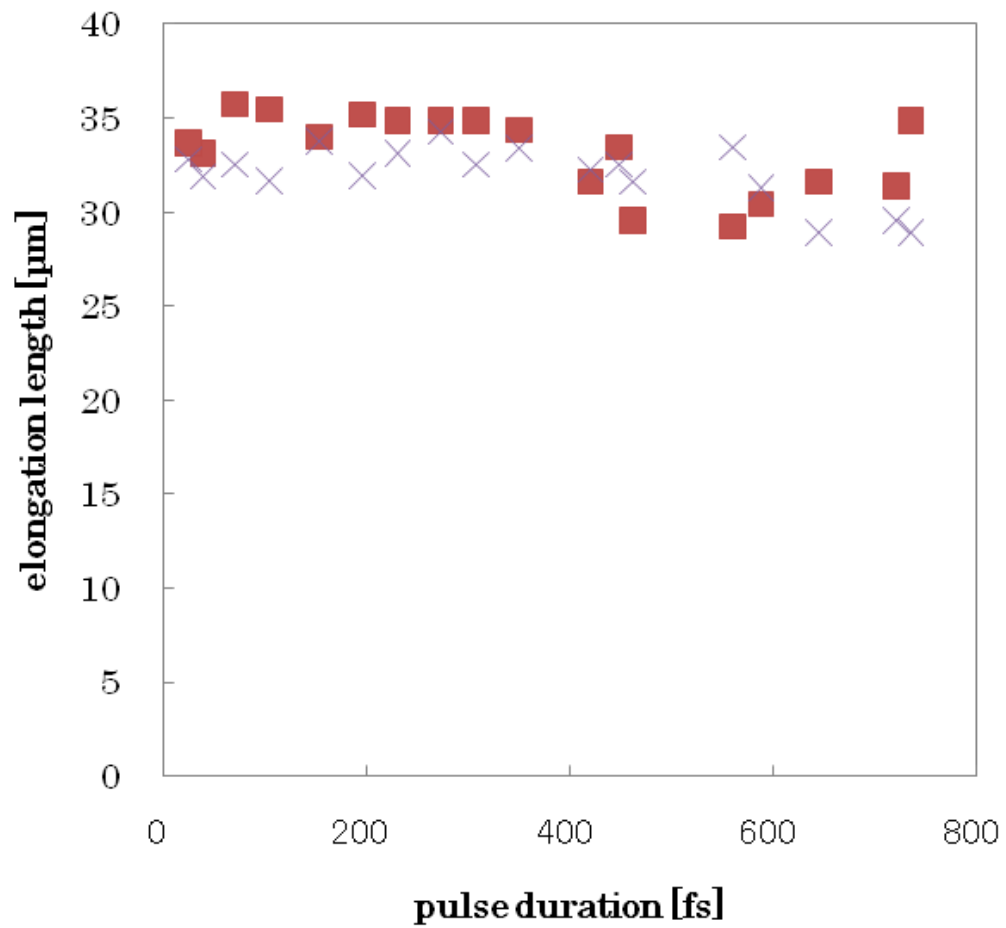


図 3-1-2-(2)-(c)-51: フォトン数一定の条件下でのアブレーション深度のパルス幅依存性

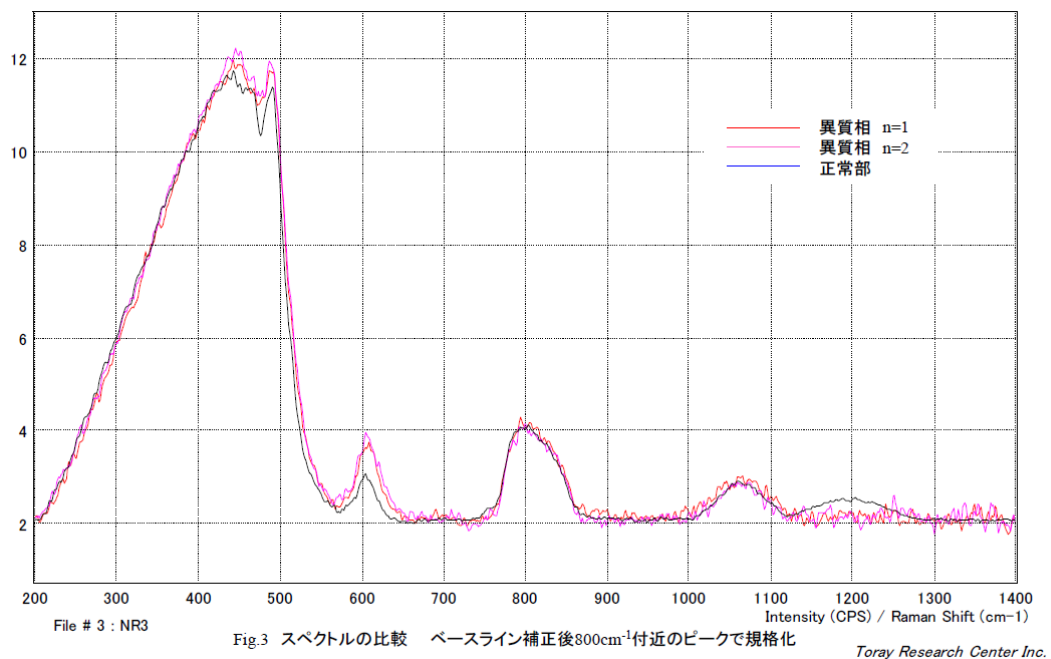


図 3-1-2-(2)-(c)-52: 加工部・非加工部のラマンスペクトル比較

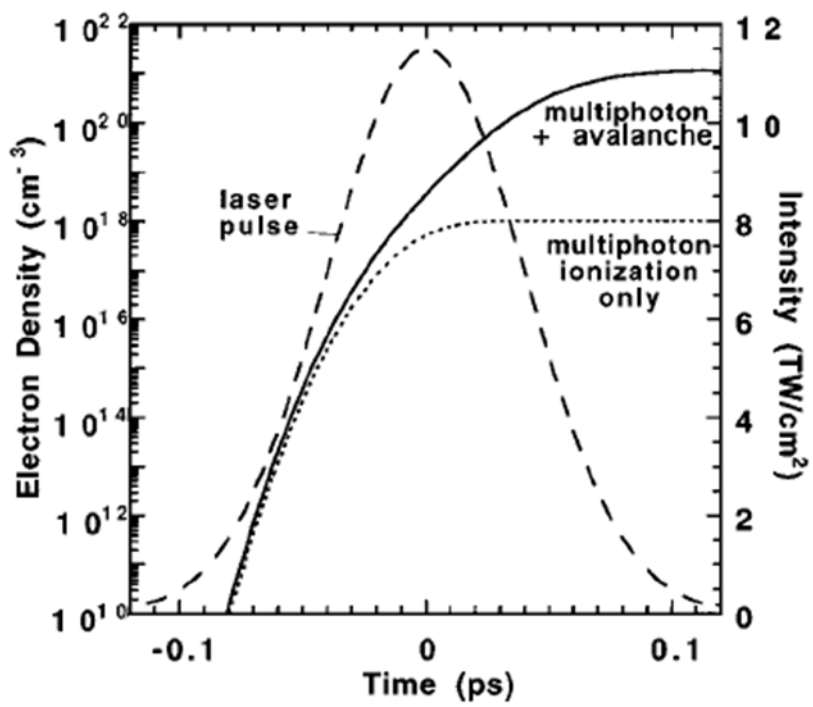


図 x030: パルスに対する多光子吸収および電子雪崩の割合の時間変化

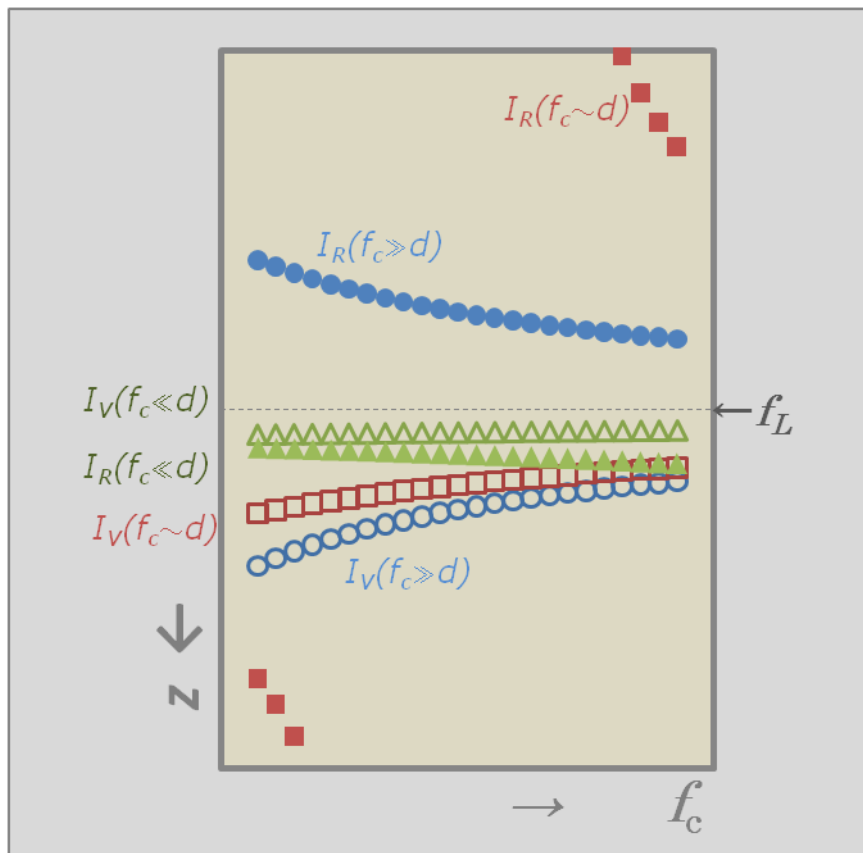


図 x052: ホログラム-レンズ間距離と結像位置の関係