フォトリックナノジェットを用いた レーザ微細加工に関する研究（第1報）*

－フォトリックナノジェットの基本的加工特性－

上野原 努** 水谷 康弘*** 高谷 裕浩***

Study on Laser Micro Machining Using a Photonic Nanojet (1st report)
- Fundamental Characteristics of Laser Micro Machining Using a Photonic Nanojet -

Tsutomu UENOHARA, Yasuhiro MIZUTANI and Yasuhiro TAKAYA

A photonic nanojet (PNJ) is a fine high-intensity light beam that is generated at the backside of a dielectric microsphere irradiated a laser light. A PNJ has a smaller beam diameter than the incident wavelength. Moreover, a PNJ can propagate a longer distance than 1 μm while maintaining a high intensity with minimal divergence. We propose a laser micro machining method using a PNJ. In this paper, hole machining experiments and finite-difference time-domain simulations were conducted to investigate the fundamental characteristics of laser micro machining using a PNJ by controlling PNJ position in the propagation direction. Hole machining experiments showed that a PNJ is suitable for micro/nano machining. The simulations also showed that nanometer scale machining is possible even though the position of PNJ changes by 1 μm in the propagation direction due to the minimal divergence beam.

Key words: photonic nanojet, laser micro machining, FDTD simulation, laser ablation, micro/nano machining

1. 緒 言

レーザアブレーション加工は、物体表面にマイクロメートルもしくはサブマイクロメートルスケールの構造を作製する加工法として広く応用されている。このような物体表面の微細構造は、例えば、反射防止¹⁾や撥水効果²⁾など、微細構造がない場合に比べて特異な機能を発現することが知られている。また、微細構造による表面プラズモン共鳴によって、特定の波長のみの反射率を高めて色を発現する技術も報告されている³⁾。特に、波長400から800nmの可視光の領域で光の反射を制御するためには、波長以下すなわち数百ナノメートルスケールの構造が求められる。従来のレーザアブレーション加工で用いられる集光ビームは、焦点で最も小さなビーム径となり、デフォーカスするとビームが拡大するとともに光強度は減衰する。これによって、焦点からわずかでもずれると加工分解能が低下する、あるいは、強度の減衰によって加工ができないといった課題が生じる。したがって、従来の集光ビームを用いたレーザ加工では、さらなる高分解能化を達成するのは困難であり、ビーム径を維持したまま焦点深度を増大させることが望まれている。

近年、サブマイクロメートルスケールのビーム径を維持したままマイクロメートルオーダーの焦点深度が得られる現象としてフォトリックナノジェット(Photonic nanojet: PNJ)が報告されている⁴⁾。PNJとは、直径数マイクロメートルの誘電体マイクロ球にレーザ光を照射することでマイクロ球の後方に発生するビームのことである。PNJのビーム径は、高開口数(Numerical aperture: NA)の対物レンズで集光したビームの焦点におけるビーム径と

同程度あるいはより小さい。マイクロ球をレンズとして考えると、曲率半径が非常に小さい、すなわち、レンズのパワーが非常に大きいことで小さなビーム径が得られる。また、Leclercらは、PNJの強度ピークが球の近くに現れることで、回折限界を議論する際のスカラー近似が適用されないと主張している⁵⁾。したがって、PNJにおいては、従来の集光ビームのように、回折限界に制限されないビームが得られる。また、小さいビーム径を保ちながら、ほとんど発散することなく数マイクロメートルの距離を伝搬する。すなわち、高NAの対物レンズによる集光ビームと比べて、PNJは、小さいビーム径を有するだけでなく、長焦点深度特性にも優れている。これまでに、PNJの強度分布を様々なパラメータによって制御している例^{6)~8)}だけでなく、マイクロ球を加工試料上に直接設置した状態でPNJを発生させることで、サブマイクロメートルスケールの微細な加工を実現した例^{10)~13)}が報告されている。しかしながら、PNJの長焦点深度特性を応用した加工例の報告はなかった。PNJの長焦点深度特性をレーザ加工に応用することができれば、デフォーカス位置においても、サブマイクロメートルスケールの加工分解能を維持することが可能となる。したがって、対物レンズによる集光ビームを用いたレーザアブレーション加工¹⁴⁾¹⁵⁾に比べて、厳密な照射位置制御に依存しないロバストな加工が実現する。

筆者らは、PNJの長焦点深度特性に着目して、PNJの位置制御によるサブマイクロメートルスケールの加工を実現してきた¹⁶⁾。しかしながら、PNJの強度分布と加工しきい値の関係によって加工径を推定し、PNJの長焦点深度による加工特性の解明には至っていなかった。そこで本報では、PNJの長焦点深度特性が加工に及ぼす影響を、強度分布と加工しきい値の関係から明らかにすることを目的とした。PNJの位置制御による加工実験および電磁場シミュレーションを援用した加工シミュレーションを行い、それらを比較することでPNJの長焦点深度特性による加

* 原稿受付 令和元年5月14日

掲載決定 令和元年8月21日

** 学生会員 大阪大学大学院 日本学術振興会特別研究員
DC2 (大阪府吹田市山田丘2-1)

*** 正会員 大阪大学大学院 (大阪府吹田市山田丘)

工特性を明らかにした。

2. フォトニックナノジェットを用いたレーザ加工

図1に、PNJを用いたレーザアブレーション加工の概念図を示す。PNJの長焦点深度特性を利用するために、加工試料から離れた状態でマイクロ球の位置を制御する。ここで、マイクロ球の上方より、所望の強度分布が得られるように波長および偏光を制御したレーザを照射しPNJを発生させる。PNJの照射によってアブレーションされた材料はマイクロ球と加工試料の隙間から除去されるため、連続的な走査による加工が可能になる。また、PNJの強度分布を制御可能なパラメータ、例えば、入射光の波長や強度分布、あるいは、マイクロ球の直径や屈折率の制御によって、所望の加工形状に応じてPNJの強度分布を制御することで、フレキシブルな加工を実現できる。

一般的に、サブマイクロメートルスケールのレーザアブレーション加工の光源には、フェムト秒レーザが用いられている。フェムト秒レーザは、パルス幅がフェムト秒オーダーの光が特定の周期をもってパルス列を成している。これにより、非常に短い時間で高い強度のビームを加工試料に照射することが可能となり、熱の影響を抑制した高精度な加工が可能である。本研究でも、アブレーション加工を実現するために、加工用レーザ光源としてフェムト秒レーザを用いる。フェムト秒レーザのようなパルスレーザを用いると、発生するPNJもパルス状となり、熱影響を受けにくい高精度な加工が実現する。以上のように、PNJの強度分布制御と位置制御、さらに、パルスレーザを組み合わせることで、サブマイクロメートルスケールの3次元微細加工が可能になる。

3. PNJの強度分布解析

PNJは、集光ビームのように電磁場分布の理論解はない。したがって、PNJの強度分布を求めるためには数値計算を用いる必要がある。そこで、電磁場の解析手法の一つである、Finite-difference time-domain(FDTD)法を用いてPNJの強度分布解析を行った。FDTD法は、マクスウェル方程式を時間および空間差分し、電場および磁場をYee格子に配置し、解析領域全体の電磁場分布を逐次時間を更新しながら計算する手法である^{17)~19)}。解析モデルの自由度の高さおよび計算精度から、FDTD法を用いた。

PNJ強度分布解析の解析モデルを図2に示す。PNJの制御パラメータは、実験環境を想定した。入射光の波長は800 nm、偏光はx軸方向の直線偏光とした。NA=0.5の集光ビームを16 μm

Fig. 1 Schematic diagram of laser micro machining using a PNJ

Fig. 2 Simulation model for PNJ

Fig. 3 PNJ simulation result by FDTD method. (a) intensity distribution on the xz plane and beam profiles in (b) the x direction and (c) the z direction. (d) beam diameter of the PNJ and a focused laser beam with NA of 0.9 from $z = 0.5$ to $2.5 \mu\text{m}$

デフォーカスして、マイクロ球に照射した。なお、集光ビームは、回折理論に基づいてデフォーカス位置における電磁場分布を計算し、 $z=0$ の xy 平面に与えた。マイクロ球は直径 $8.0\ \mu\text{m}$ 、屈折率 1.45 とした。周囲の媒質の屈折率は 1.00 とした。解析領域境界での反射の影響を抑制するために、境界条件を Perfectly matched layer(PML)吸収境界とした。

FDTD 解析により得られた PNJ の規格化電場強度分布を図 3 に示す。図 3 の(a)には zx 平面の強度分布を示し、(b)には $z=0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5\ \mu\text{m}$ の位置における x 方向の規格化ビームプロファイルを示す。図 3(c)には、マイクロ球の中心軸における z 軸方向すなわち伝搬方向のビームプロファイルを示す。ただし、 $z=0$ はマイクロ球の表面位置である。PNJ のビーム径は x 方向のビームプロファイルにおける半値全幅(FWHM)として定義される。 z が 0.5 から $2.5\ \mu\text{m}$ の範囲におけるビーム径を評価した結果を図 3(d)に示す。また、比較のために $\text{NA} = 0.9$ のレンズで集光したビームのビーム径も図 3(d)に示す。ただし、集光ビームは $z = 1.5\ \mu\text{m}$ を焦点位置とした。

z の増加にともなう、図 3(b)に示すように、 x 方向のビームは徐々に広がり、(c)に示すように、最大の強度は減少する。ビーム中心から遠い位置ではビームが広がっていく一方で、ビーム中心付近ではあまり発散しないため、FWHM で定義されるビーム径はあまり発散していない。 z が増加したときに現れるビーム中心から遠い位置における波状のプロファイルは、球に入射したビームと球に入射せず球の外側を伝搬したビームの干渉によるものであると考えられる。また、干渉によって、 z が $1.7\ \mu\text{m}$ 程度まではビーム径が拡大した後、また縮小した傾向を持つと考えられる。 $\text{NA}=0.9$ の集光ビームは、焦点から $1\ \mu\text{m}$ デフォーカスするとビーム径が著しく大きくなる一方で、PNJ はデフォーカスした状態でも $1\ \mu\text{m}$ 程度のビーム径を維持している。すなわち高 NA の集光ビームに比べて、長焦点深度特性を有している事がわかる。この長焦点深度特性によって、試料に照射する位置を変化させた場合でも、加工径に関してロバストな加工制御が可能になると考えられる。

4. PNJ を用いた加工装置

PNJ を用いたレーザ加工の基本的な特性、特に、PNJ の長焦点深度特性がデフォーカス位置における加工径に与える影響を明らかにするために、PNJ の位置制御が可能な加工装置を構築した。構築した加工装置として、図 4(a)には加工装置の全体の構成、(b)には加工部の拡大図を示す。また、主要な装置の諸元を表 1 に示す。この装置は大きく分けて 3 つの要素からなり、それぞれ、レーザ加工系、位置検出系および観察系である。フェムト秒レーザ(Spectra-Physics, Mai-Tai)を加工用のレーザ光源とし、 $1/2$ 波長板と偏光ビームスプリッタを用いてレーザのパワーおよび偏光を制御した。照射時間、すなわち、照射パルス数を制御するために設置したメカニカルシャッターを通過したレーザはダイクロイックミラーによって反射され、対物レンズ(ミツトヨ, M plan Apo SL 80x)に入射し、マイクロ球に照射される。ここで、PNJ の位置すなわちマイクロ球と加工試料との間の距離 h を制御するため、マイクロピペットを導入しマイクロ球を横から保持した。マイクロピペットは内径 $5\ \mu\text{m}$ のシリカガラス製であり、マイクロ球を空気吸引しピエゾステージで位置決めした。入射光の偏光は x 軸方向の直線偏光とし、マイクロピペットも x 軸に平行かつ水平から $20\ \text{deg}$. 傾けて設置した。加工試料には単結晶シリコンウェハ[100]を用いた。サンプルを設置する試料台は、

Fig. 4 Experimental setup: (a) overall configuration and (b) machining part. PBS: polarized beam splitter, BS: beam splitter, BPF: band pass filter and NA: numerical aperture

Table 1 Specifications of experimental setup

Femtosecond laser	Wavelength	800 nm
	Pulse duration	100 fs
	Repetition rate	80 MHz
	Average power	2.5 W
Objective lens	Numerical aperture	0.5
	Magnification	80
	Focal length	2.5 mm
	Working distance	15.0 mm
Microsphere	Diameter	8.0 μm
	Material	SiO ₂
	Refractive index	1.45

ピエゾステージに設置することで精密な位置決めを行った。また、マイクロ球の位置を検出するために、共焦点光学系を実装した。共焦点光学系は、対物レンズ、ビームスプリッタ($R:T=1:9$)、バンドパスフィルタ(透過波長 $800 \pm 10\ \text{nm}$)、レンズ($f=200\ \text{mm}$)、ピンホール($\phi = 25\ \mu\text{m}$)およびフォトディテクタ(Thorlabs, DET36A/M)で構成した。ここでは、加工用レーザを共焦点光学系による位置検出用のレーザとしても用いた。対物レンズの焦点位置に試料表面が一致したときに反射光はピンホールを通過するようにアライメントされているため、試料を光軸方向に走査させながらフォトディテクタでの受光量をモニタリングすることで、試料の表面位置の検出を可能にした。シリコン基板表面およびピペットで保持したマイクロ球の上端表面の位置をそれぞれ検出することで、マイクロ球とシリコン基板の間の距離 h を制御した¹⁹⁾。また、実験状態を観察するために、白色光および CCD カメラからなる顕微鏡観察系も構築した。

5. PNJによる加工実験

入射パワー P を205, 410, 605 mW, マイクロ球とシリコン基板の間の距離 h を1.0, 1.5, 2.0 μm として、それぞれの組み合わせの条件で10回ずつ穴加工を行った。また、照射パルス数は160,000パルスとした。マイクロ球には、図4(b)に示すように、 $\text{NA}=0.5$ の対物レンズで集光したビームを焦点から16 μm デフォーカスして照射した。集光ビームをデフォーカスしてマイクロ球に照射した理由は、マイクロ球に入射するときのレーザ光の波面の曲率半径が大きいが、小さいビーム径および高い光強度が得られるためである²⁰⁾。このとき、発生しているPNJは図3に示すとおりである。また、アブレーションされた材料によるマイクロ球の汚染の影響を除外するために、マイクロ球は加工条件ごとに交換した。

$P=605\text{ mW}$, $h=1.0\text{ }\mu\text{m}$ のときの加工痕の表面形状を原子間力顕微鏡(Atomic force microscope: AFM)によって測定した結果を図4(a)および(c)上部に示す。プローブ半径は20 nm, 先端角度は22.5 deg.である。加工痕の周囲が、シリコン基板の表面に比べて、大きく盛り上がっていることがわかった。フェムト秒レーザによるシリコンの加工ではフルエンスに依存した3つのしきい値が存在することがBonseらの実験によって明らかとなっている²¹⁾。フルエンスが高い順に、アブレーションしきい値, アニールしきい値, 酸化しきい値である。図5(a)で示した加工痕の周囲の盛り上がり部は、シリコンが酸化して生じた可能性がある。加工したままの状態では図5(c)の上部に示す加工痕のように、適切な評価が困難であるため、酸化物を除去する必要がある。

フッ化水素酸による洗浄を行うことでシリコンの酸化物である SiO_2 の除去を試みた。なお、フッ化水素酸により、シリコンの酸化物は、

の反応によって除去される²²⁾。フッ酸によって除去可能なのは、シリコンの酸化物のみであるため、確実に酸化物を除去するた

Fig. 5 Removal of silicon oxide by hydrofluoric acid. AFM image of (a) before hydrofluoric acid cleaning (b) after Hydrofluoric acid cleaning. (c) cross-sectional profiles in the x direction including the deepest position

めに2.5%フッ化水素酸に10分間浸した。図5(a)で示した試料をフッ酸洗浄したあとのAFM測定結果を図5(b)および(c)下部に示す。加工痕周囲の盛り上がった部分が除去されたことがわかる。この結果より、加工痕周囲の盛り上がり部はシリコンの酸化物であり、また、酸化物を除去することで加工痕の適切な評価が可能となった。以降、加工実験後の加工試料をフッ酸洗浄した後にAFMで測定した。

入射パワー P およびシリコン基板の位置 h を変化させながら加工実験を行った。代表的な加工痕の x 方向の断面プロファイルを図6に示す。加工痕において、最も深くなる位置を通るように x 方向の断面プロファイルを取った。図6(a)に示すように、加工領域以外の領域の高さを基準高さとし、加工痕の断面プロファイルと基準高さの交点の間の距離を穴径と定義した。図6に示す断面プロファイルから穴径を測定した結果を図7に示す。ただし、エラーバーは標準偏差である。加工痕の形状は、先端に行くほど細くなるテーパ形状となった。これは、図3(b)に示すように、ビームの中心ほど強度が高く、より深い位置においても高いフルエンスのビームが照射されるためである。図6(a)に示す

Fig. 6 Cross-sectional profiles of machined hole. (a) $P = 205\text{ mW}$, (b) $P = 410\text{ mW}$, and (c) $P = 615\text{ mW}$

Fig. 7 Evaluation results of machined hole

とおり, $P=205$ mW, $h=1.0$ μm のときは 1 μm よりも小さい加工径が得られていることがわかる。また, 図 7(b)および(c)に示すとおり, より大きなパワーの $P=410$ および 615 mW においては, h の増加に伴い, 穴径が小さくなるのがわかる。また, 同じ h においては, P が大きいときに, 大きな加工径が得られた。これは, レーザアブレーションのメカニズムをよく表した結果である。PNJ を 1 μm デフォーカスしたにもかかわらず, 穴径が 1 μm 程度あるいはそれ以下の加工が実現された。このことから, PNJ の長焦点深度特性を利用した加工が可能であることが実験的に示された。また, 加工深さに関しては, フェムト秒レーザがシリコン基板表面に照射されると, 吸収によって内部では急激に光強度が減衰するために, 試料の深い位置まで光が到達せず, 100 nm 程度の穴深さになったと考えられる。なお, $P=205$ mW のときは, $h=1.0$ μm のときのみ加工ができ, $h=1.5$ および 2.0 μm のときは加工ができなかった。これはマイクロ球表面から遠ざかるにつれて PNJ の光強度が減少し, 大きな h では加工しきい値を超えるフルエンスにならなかったためだと考えられる。

6. 試料表面の強度分布解析による加工結果の考察

6.1 加工シミュレーションのアルゴリズム

シリコン基板の位置 h を制御したときの加工径の変化を定量的に考察するためには, 加工試料に対して PNJ を照射した際の加工試料上での強度分布を明らかにし, その強度分布と加工しきい値の関係から加工領域を推定する必要がある。図 8(a)に, 加工シミュレーションのアルゴリズムを示す。このシミュレータは大きく分けて, FDTD 法によって PNJ の電磁場分布を計算する部分と加工しきい値判定を行う部分の 2 つからなる。

まず, 解析モデルを設定し, そのモデルにおける電磁場分布を FDTD 法に基づいて計算し, 試料に照射される光のフルエンスを導出する。ここで, FDTD 法によって求められた電場分布 E から, 試料位置でのビームの光強度 I は,

$$I = \varepsilon v \langle E^2 \rangle_T, \quad (2)$$

と求まる。ここで, ε は加工試料の誘電率, v は加工試料中の光速, E は電場, $\langle E^2 \rangle_T$ は E^2 の時間平均を表す。繰り返し周波数 R のパルスレーザによる加工を想定し, 1 パルスあたりの光強度すなわちフルエンス F は光強度 I を用いて,

$$F = \frac{I}{R}, \quad (3)$$

となる。なお, 光強度 I の単位は W/cm^2 であり, フルエンス F の単位は J/cm^2 である。

加工試料として割り当てられた全ボクセルにおいてその位置におけるフルエンスを加工試料の加工しきい値 F_{th} と比較する。照射されたビームのフルエンスが試料の加工しきい値を上回っている場合には, その位置のボクセルの物理定数を背景媒質のものに置換することで加工試料が除去された状態を再現する。図 8(b)に示すように, シリコン基板表面位置での物理定数分布において, 除去された領域は背景媒質である空気物理定数となっているため, この領域とボクセルサイズから加工径を求められる。

6.2 加工シミュレーションモデル

図 2 に示す解析モデルに, 図 4(b)に示すように, マイクロ球の下方にシリコン基板, マイクロ球を保持するマイクロピペットを導入した。マイクロピペットは内径 5 μm, 外径 6 μm および屈折率は 1.45 とし, x 軸方向に平行でかつ水平から 20 度傾けて設置した。その他のパラメータは, 図 2 に示すパラメータと同じとした。入射光のパワーは 410 mW と設定した。また, 強度をフルエンスに換算するために, 繰り返し周波数は実験で使用した 80 MHz とした。マイクロ球によって発生した PNJ が加工試料であるシリコン基板に照射されるように, シリコン基板からマイクロ球までの高さ h を変化させた。

シリコンは, 複素誘電率が光の周波数(波長)に依存する分散性媒質であるため, 電場分布は Deinega らが提案したモデル²³⁾を用いて ADE(Auxiliary differential equation)法によって計算を行った。ADE 法とは, 電束密度 D と電場 E あるいは分極ベクトル P の間に成立する微分方程式に着目して FDTD 表現を得る方法である。なお, このモデルにおける波長 800 nm の光に対するシリコンの複素屈折率は $3.689 + 0.005i$ とした。ここでは, 加工実験の加工痕評価と同様に, シリコンの酸化しきい値をもとに加工形状を求めた。シリコンの酸化しきい値は, 既知のビームを照射

 Fig. 8 Simulation algorithm. (a) flow chart. E: electric field, H: magnetic field, t: time, t_{judge} : maximum time, F: fluence, F_{th} : fluence threshold and A: Physical constant. (b) evaluation method of hole diameter

した際の加工結果から求めた 33.9 mJ/cm^2 と設定した。

6.3 加工シミュレーションによる加工実験結果の考察

シリコン基板からマイクロ球までの高さ h を変化させて、シリコン基板表面のフルエンス分布を求めた。レーザのパルス幅を考慮し、シリコン基板表面にPNJが照射されてから 100 fs 間の電場強度分布の時間平均を式(2)により計算し、フルエンス分布を求めた。解析により得られたシリコン基板表面のフルエンス分布を図9に示す。図9(a)および(b)は、それぞれ $h=1.0$ および $2.0 \mu\text{m}$ のときのシリコン基板表面におけるフルエンス分布である。 x 方向と y 方向でフルエンス分布が非対称であるのはマイクロピペットの影響である。また、図9(c)は、 $h=1.0, 1.5, 2.0 \mu\text{m}$ におけるシリコン基板表面での x 方向のフルエンスのプロファイルである。 h の増加に伴って、ビームは拡大しているが、最大フルエンスが減少していることで、加工しきい値を超えたフルエンスで照射される領域が小さくなったために加工径が小さくなっていることが明らかになった。

加工シミュレーションによって推定した加工径と加工実験を比較した結果を図10に示す。シミュレーションにより得られた結果を見ると、 h が $1.7 \mu\text{m}$ よりも小さい領域では、加工径に大きな変化は見られない。これは、 h が $1.7 \mu\text{m}$ 程度までは、図2(d)

に示すように、 h の増加によってビーム径が拡大する一方で、図2(c)に示すように、最大のフルエンスは減少していくために、加工しきい値との関係から、加工径がほとんど変化しなかったと考えられる。これは、PNJの長焦点深度特性をよく表した結果である。さらに、 h が $1.7 \mu\text{m}$ より大きい領域では、 h の増加に伴うビーム径の縮小とフルエンスの低下によって、より小さな加工径が得られたと考えられる。また、加工実験での加工径と加工シミュレーションでの加工径を比較すると、 h が 1.5 および $2.0 \mu\text{m}$ のときはおよそ一致した。 h が $1.0 \mu\text{m}$ のときは実験値とシミュレーション値にずれはあるものの、 h が増加するにつれて加工痕の穴径が小さくなっていく傾向は、加工実験と加工シミュレーションで一致した。 $h=1.0 \mu\text{m}$ における穴径が一致しなかったのは、図9(c)に示すとおり、 $h=1.0 \mu\text{m}$ の位置におけるフルエンスは $h=1.5$ および $2.0 \mu\text{m}$ におけるフルエンスよりも高いため、熱の拡散が生じることで加工痕が大きくなったためであると考えられる。同様に、 $P=205 \text{ mW}$ 、 $h=1.0 \mu\text{m}$ のときの穴径のシミュレーション結果は $0.44 \mu\text{m}$ 、加工実験では $0.80 \mu\text{m}$ であり、一致しなかった。しかしながら、 $P=410 \text{ mW}$ 、 $h=1.0 \mu\text{m}$ における差異よりも小さな差異であった。ここで、図9(c)からわかるように $P=410 \text{ mW}$ 、 $h=1.0 \mu\text{m}$ のときのシリコン基板表面における最大フルエンスは 126.9 mJ/cm^2 であり、 $P=205 \text{ mW}$ 、 $h=1.0 \mu\text{m}$ のときは 63.5 mJ/cm^2 である。加工しきい値 33.9 mJ/cm^2 との差は $P=410 \text{ mW}$ のときのほうが大きく、より熱の影響が大きく現れたと考えられる。したがって、 $h=1.0 \mu\text{m}$ におけるシミュレーションと加工実験の差異は、熱の影響であると考えられる。

$h=1.0 \mu\text{m}$ から $2.0 \mu\text{m}$ まで $1.0 \mu\text{m}$ にわたってPNJは小さいビーム径を保って伝搬している。PNJの長焦点深度特性により、デフォーカスした場合でも、 $1 \mu\text{m}$ 程度あるいはそれを下回る径の加工が可能であることが実験的およびシミュレーション的に示された。

7. 結 言

本研究では、フォトニックナノジェットを用いたレーザ微細加工技術を提案し、加工実験および電磁場解析に基づいた加工シミュレーションから、次のような結果を得た。

- (1) PNJの伝搬方向の位置制御による加工実験から、PNJによって $1 \mu\text{m}$ 程度あるいはそれ以下の径の加工が可能であることを実証した。
- (2) FDTD法を用いた電磁場シミュレーションにより、PNJの長焦点深度特性によって、PNJを $1 \mu\text{m}$ 以上デフォーカスして試料に照射したときも、フルエンス分布と加工しきい値の関係から、試料表面上で $1 \mu\text{m}$ 以下の加工径が得られることが明らかとなった。
- (3) 加工実験と電磁場解析に基づいた加工シミュレーションを比較すると、加工径に関して良好な一致が見られた。

以上の結果から、PNJはサブマイクロメートルスケールの微細加工技術として有効であることが示された。

今後は、PNJを用いたレーザ加工において加工分解能を向上させるために、PNJの強度分布制御を行い、位置制御と組み合わせることで高分解能かつフレキシブルな加工技術へと発展させていく予定である。

Fig. 9 Fluence distribution of the PNJ on the Si substrate surface with h of (a) 1.0 and (b) $2.0 \mu\text{m}$. (c) beam profiles

Fig. 10 Comparison between machining experiment and simulation with $P = 410 \text{ mW}$

謝 辞

本研究は JSPS 科研費 JP18J10140 の助成を受けたものであり、ここに謝意を示します。

参 考 文 献

- 1) K. C. Phillips et al.: Ultrafast laser processing of materials: a review, *Advances in Optics and Photonics*, **7**, 4 (2015) 684.
- 2) A. Y. Vorobyev et al.: Femtosecond laser blackening of platinum, *J. Appl. Phys.*, **104** (2008) 053516.
- 3) T. Matsumura et al.: Millimeter-wave broadband antireflection coatings using laser ablation of subwavelength structures, *Applied Optics*, **55**, 13 (2016) 3502.
- 4) A. Y. Vorobyev et al.: Multifunctional surfaces produced by femtosecond laser pulses, *J. Appl. Phys.*, **117** (2015) 033103.
- 5) K. Kumar et al.: Printing colour at the optical diffraction limit, *nature nanotechnology*, **7** (2012) 557.
- 6) Z. Chen et al.: Photonic nanojet enhancement of backscattering of light by nanoparticles: a potential novel visible-light ultramicroscopy technique, *Optics Express*, **12**, 7 (2004) 1214.
- 7) S. Leclercq et al.: Properties of a three-dimensional photonic jet, *Optics Letters*, **30**, 19 (2005) 2641.
- 8) S. Lee et al.: Optical resonances in microsphere photonic nanojets, *Journal of Optics*, **16** (2014) 015704.
- 9) K. Yu-long et al.: Parameter optimization for photonic nanojet of dielectric microsphere, *Optoelectronics Letters*, **9**, 2 (2013) 0153.
- 10) E. McLeod et al.: Subwavelength direct-write nanopatterning using optically trapped microspheres, *nature nanotechnology*, **3** (2008) 413.
- 11) Z. B. Wang et al.: Laser micro/nano fabrication in glass with tunable-focus particle lens array, *Optics Express*, **16**, 24 (2008) 19706.
- 12) A. Pena et al.: Direct writing of micro/nano-scale patterns by means of particle lens arrays scanned by a focused diode pumped Nd:YVO₄ laser, *Applied Physics A*, **101**, 2 (2010) 287.
- 13) L. N. D. Kallepalli et al.: Long range nanostructuring of silicon surfaces by photonic nanojets from microsphere Langmuir films, *Journal of Physics D: Applied Physics*, **46**, 14 (2013).
- 14) N. Kodama et al.: Formation of periodic surface nanostructures on Ti₃₊:Al₂O₃ crystals using femtosecond laser pulses, *Applied Surface Science*, **257**, 3 (2010) 686.
- 15) I. Anghel et al.: Femtosecond laser ablation of TiO₂ films for two-dimensional photonic crystals, *Optics & Laser Technology*, **52**, (2013) 65.
- 16) T. Uenohara et al.: Laser micro machining beyond the diffraction limit using a photonic nanojet, *CIRP Annals - Manufacturing Technology*, **66** (2017) 491.
- 17) K. S. Yee et al.: Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media, *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, **14**, 3 (1966) 302.
- 18) 宇野亨 他: 数値電磁界解析のための FDTD 法 - 基礎と実践-, コロナ社 (2016).
- 19) A. Taflov et al.: Computational electrodynamics the finite-difference time-domain method third edition, Artech house, (2005).
- 20) A. Dong et al.: Analysis of a photonic nanojet assuming a focused incident beam instead of a plane wave, *J. Opt.*, **16** (2014) 125001.
- 21) J. Bones et al.: Femtosecond laser ablation of silicon-modification thresholds and morphology, *Appl. Phys. A*, **74** (2002) 19.
- 22) S. Verhaverbeke et al.: The etching mechanisms of SiO₂ in hydrofluoric acid, *J. Electrochem. Soc.*, **141**, 10 (1994) 2852.
- 23) A. Deinega et al.: Effective optical response of silicon to sunlight in the finite-difference time-domain method, *Optics letters*, **37**, 1 (2012) 112.