コヒーレントビームの干渉パターン制御とナノ周期構造の形成

中田 芳樹

大阪大学 レーザーエネルギー学研究センター (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-6)

Control of the Interference Pattern of Coherent Beam and Fabrication of Periodic Nanostructure

Yoshiki NAKATA

Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

(Received July 14, 2015)

In this paper, control of interference pattern of four, six beams or eight beams at two wavelengths is shown. The patterns can be controlled by phase and amplitude variation between beams. In addition, a variety of 2D- and 3D- nanostructure in matrix, such as nanobump, nanodrop, nanowhisker, MHA (Metallic Hole Array), designed pattern, bimetallic-nanobelt, duplicated periodic structure of interference pattern and LIPSS (Laser-induced periodic structure) are shown.

Key Words: Femtosecond laser, Interference, Processing, Ultraviolet femtosecond laser, Nanostructure

1. はじめに

レーザーの干渉性と高ピークパワーを利用して物質表面に干渉パターンを直接描画する試みがある。ナノ秒レーザーでは熱伝導の影響で加工品質や加工解像度が不足し¹⁾、光解離性の高い一部の高分子材料のみ良好な加工結果が得られていた²⁾。一方フェムト秒レーザーは熱伝導の影響が小さく熱変成領域が狭いため、干渉加工に最適である。本手法はナノ周期構造が簡単に作製でき、また微細な熱プロセスを利用した3次元ナノ周期構造の形成やメタマテリアルの作製などが可能である。一方、コヒーレントなビーム間の位相や強度を変調する事で干渉パターンのコントロールが可能であり³⁻⁵⁾、様々な周期パターンを一括加工出来る事が分かってきた⁶⁻¹⁸⁾。

本稿では、干渉パターンのシミュレーションとデザインについて述べ、さらに実際の加工例を示す。

2. 干渉パターンのコントロール

レーザーの干渉では、単一波長のレーザーを均等に分歧して干渉させるのが一般的である。ここで、干渉するビーム間の位相差や強度比を変調する事で、干渉パターンがデザイン出来る^{3-5,10)}。これを用いる事で、様々なメタマテリアルをシングルプロセスで作製出来る。近年ではSLM(Spatial Light Modulator)を用いたパターンコントロールの研究が盛んで有るが、干渉パターンを用いる場合にはパターンが数万以上配列した構造が簡単にできる点に特徴がある。ここでは、膨大な干渉パラメーターの組み合わせの中から一部を示す。

Fig. 1 (a-1), (a-2)はそれぞれ4ビーム干渉の模式図で

ある。Fig. 2 (a) - (c)は異なるパラメーターに対する4ビーム干渉パターンのシミュレーション結果である⁴⁾。Fig. 2 (d)は位相差と強度比の表記方法、Fig. 2 (e)はしきい値パターンの配列の説明である。 F_{th} と F_{max} はそれぞれ加工しきい値とフルエンスの最大値であり、グレーが加工しきい値フルエンス以上の加工領域を表している。干渉角度 $\theta_{1-4} = 14.6^\circ$ 、波長 $\lambda = 785 \text{ nm}$ とした。干渉パターンの明るさはそれぞれのピーク値に対して規格化している。

Fig. 2 (a)のビーム間位相差が無く強度が同じ場合、ピークがマトリクス状に並んでいる。また、フルエンスと共に加工穴径が大きくなる。一方、一本のビームに位相 π を加えたFig. 2 (b)の場合、ピークの数密度がFig. 2 (a)

Fig. 1 Schemes of interference. (a-1) bird's eye view and (a-2) top view of interference of four beams, (b) six beams and (c) eight beams at two different wavelengths.

Fig. 2 Interference patterns of four beams. Illustration on each interference pattern explains phase and amplitude shift, based on the rule shown in lower-left sketch. Lower-right inset explains threshold pattern, which are shown under interference patterns. With kind permission from Springer Science+Business Media: Appl. Phys. A, “Designing of interference pattern in ultra-short pulse laser processing”, 112, 2013, 191, Y. Nakata, K. Murakawa, K. Sonoda, K. Momoo, N. Miyanaga, T. Hiromoto, Fig. 2 (a) (e) and Fig. 5 (c).

の2倍となっている。位相差と強度比をコントロールすると干渉パターンが様々に変わり、Fig. 2 (c) (v) の条件では光が弱い領域がアイランド型になっており、同様のパターンを持つ負屈折率メタマテリアルの作製に利用できる¹⁹⁾。

Fig. 1 (b) の模式図に示すような6ビーム干渉の場合の干渉パターンをFig. 3に示す。干渉角度 $\theta_{1-6} = 14.6^\circ$ 、波長 $\lambda = 785 \text{ nm}$ とした。Fig. 3では、Fig. 2と異なり電界強度を $E = 1.0, 0.5$ で変えてシミュレーションしている。(しきい値パターンの説明はFig. 2と同様)ビーム間位相差が無く強度が同じ場合、Fig. 3 (a) のようにピークが三角格子状に並ぶ。次に一本のビームに位相 π を加えたFig. 3 (b) の場合、三角格子でない配列が現れた。Fig. 3 (b) (i) – (iv) に見られるラインとドットが交互に配列した構造は、負屈折率を持つメタマテリアルと同じ構造である²⁰⁾。Fig. 3 (c) (ii), (iii) は “Single SRR (Split-Ring Resonator)” であり、非線形性を持つ代表的なメタマテリアル構造である。

Fig. 1 (c) のような多波長の場合でも、条件によって

Fig. 3 Interference patterns of six beams. Thres hold patterns are explained in Fig. 2. With kind permission from OSA: Appl. Opt. “Design of interference using coherent beams configured as a six-sided pyramid”, 51, 2012, 5004, Y. Nakata, K. Murakawa, K. Sonoda, K. Momoo, N. Miyanaga, Fig. 2 (a) (e) and Fig. 4 (e).

は干渉パターンを生じる。Fig. 4は $\lambda_1 = 2, \lambda_2 = 785 \text{ nm}$ 、干渉角度 $\theta_{1-8} = 14.6^\circ$ でシミュレーションをおこなった結果である。(しきい値パターンの説明はFig. 2と同様) Fig. 4 (a) は位相差がない場合であり、干渉パターンが形成される事が分かる。Fig. 1 (a) と比較すると、ピークの周期が同じである事が分かる。また、Fig. 4 (a) (ii), (iii) のようにリング状の低フルエンス領域が現れる。Fig. 4 (a) (i) ではリングが4カ所でカットされてお

Fig. 4 Interference patterns with two different wavelengths ($\lambda_1 = 2\lambda_2 = 785 \text{ nm}$). Thres hold patterns are explained in Fig. 2. With kind permission from Springer Science+Business Media: Appl. Phys. A, “Change of interference pattern using fundamental and second-harmonic wavelengths by phase shift of a beam”, 117, 2014, 207, Y. Nakata, Y. Matsuba, K. Murakawa, N. Miyanaga, Fig. 3 (a).

り、この条件で金属薄膜を加工すると、4カ所にカットがあるSRRが作製出来る²¹⁾。位相差を加えたFig. 4 (b) (v) (vi)では市松模様(チェッカー)が形成されており、同様の形状を持つプラズモニックデバイスの作製に有効である。Fig. 4 (c)は振幅と位相差を同時に変えた場合であり、高フルエンス領域が網目状になっている。

3. フェムト秒レーザー干渉加工

3.1 フェムト秒レーザー干渉加工装置

実験装置の模式図をFig. 5に示す¹⁴⁾。フェムト秒レーザービームからDOE(Diffractive Optical Element)で1次光を回折させ、2枚の凸レンズから成る縮小光学系を用いてターゲット表面に干渉パターンを形成し加工する。他の干渉系であるMach-Zehnderタイプと比較すると、optical delayのコントロールが不要、装置構成が簡単、干渉範囲が広い等の特徴がある¹⁸⁾。

3.2 フェムト秒レーザー干渉加工を用いた2次元・3次元構造作製

本小節ではパラメーター変更によって作製される様々なナノ周期構造を示す。

Fig. 6はビーム本数による干渉パターンの変化を利用した加工である^{15,16)}。厚さ10 nmの金薄膜をターゲットに用い、(a)4ビーム干渉、(b)3ビーム干渉及び(c)2ビーム干渉パターンでシングルショット加工した。ビームの本数で基本的な干渉パターンが変化し、それが加工形状に反映されている。一方、前節で示したような干渉パターンを用いる事で、シングルプロセスで様々なデザイン周期構造を作製できる。Fig. 7はビーム間の(a)位相、(b)位相と振幅をコントロールして作製した構造である。Fig. 7 (a)は1ビームに位相差を加えた場合に相当し、強弱のピークが交互に並ぶ。その結果、強いピークではナノドロップ、弱いピークではナノバンプが形成された。Fig. 7 (b)はFig. 2 (c)に相当する。

Fig. 5 Scheme of experimental setup.

Fig. 6 Periodic structures fabricated by interference pattern of (a) four, (b) three and (c) two beams.

Fig. 7 Matrix fabricated with (a) phase shift and (b) phase shift and amplitude variation of four beams.

Fig. 8 (a) aluminum-gold bimetallic nanobelt. (b) top view of (a).

また、これらを機械的・化学的に剥離する事で独立したナノ構造を作製する事も可能である。Fig. 8はアルミ350 nm + 金200 nmの2層薄膜を2ビーム干渉加工し、剥離する事で作製したバイメタルナノベルトである。ボトムアップ型の作製法と異なり、素材や多層構造の設計が自在である。

一部の金属薄膜では、金属の流体的プロセスがフリーズして3次元ナノ構造が形成される場合が多い。Fig. 9は厚さ40.9 nmの銀をサファイア(0001)基板に堆積したターゲットに2.4 μm周期の4ビーム干渉パターンで加工をおこなった結果である。比較的低フルエンスでナノバンプ、高フルエンスでナノウィスカーが形成された¹⁷⁾。頂点の最小曲率半径は5 nmであり、ボトムアッププロセスで作製されるMW-CNTや還元プロセスで作製される金属ナノロッドに匹敵する。同様の形状は金でも作製出来る。Fig. 10 (a)は厚さ57 nmの金をシリカガラス基板の堆積したターゲットに2.4 μm周期の4ビーム干渉パターンで加工をおこなった結果である。銀の場合と同様に比較的高いフルエンスでナノウィスカーが形成された。Fig. 10 (b)は頂点部分のTEM(Transmission Electron Microscope)像であり、頂点の曲率半径が4 nmで有る事、また多結晶である事が分かる。一般的に還元プロセスで合成した金属ナノ結晶は単結晶であり、それらと異なる構造が形成されている⁶⁾。

Fig. 9 (a) silver nanobump and (b) nanowhisker. The fluence was 91 mJ/cm² and 125 mJ/cm², respectively. © Copyright (2014) The Japan Society of Applied Physics.

Fig. 10 (a) Gold nanowhisker matrix. (b) TEM image of a summit of a gold nanowhisker. From Nakata *et al.* 2013,⁶⁾ with permission of Elsevier.

Fig. 11 Shortening the lattice const. by use of SHG. (a) $L = 1,300$ nm period processed by 785 nm, (b) $L = 760$ nm period processed by 785/2 nm.

4ビーム干渉パターンの周期は $L = \lambda / \sqrt{2} \sin \theta$ であり、短周期化には第2高調波 (SHG) を用いるのが効果的である。Fig. 11は一例であり、基本波では $\theta = 25.8^\circ$ で $L = 1,300$ nmの周期に対しSHGでは $\theta = 21.4^\circ$ で $L = 760$ nmであった。金ターゲットの場合は紫外域の方が吸収率が高いというメリットもある。

3.3 多重周期構造(干渉+LIPSS)¹¹⁾

超短パルスレーザーを複数回照射する事で、偏光と直交方向にLIPSS (Laser-Induced Periodic Surface Structure) が形成される事が知られている。Fig. 12は2ビーム干渉パターンを用いてLIPSSを形成した結果である。パルス幅は130 fs、波長790 nm、フルエンス 59 mJ/cm^2 で50ショット照射した。干渉角度は 19° である。ターゲットはCr薄膜(膜厚44 nm)蒸着シリカガラス基板である。Fig. 12(a-1) (a-2) の場合は $1.2 \mu\text{m}$ の周期構造に直交するLIPSSが形成されている。一方Fig. 12(b-1) (b-2) では偏光方向が 90° 回転しているため、干渉パターンとLIPSSが平行である。次にLIPSSの周期を求めるため、2D-FFT

Fig. 12 (a-1) (a-2) (b-1) (b-2) Dual periodic structure of interference pattern and LIPSS for different polarization. (a-3) and (b-3) are corresponding 2D-FFT power spectrum. With kind permission from Springer Science+Business Media: Appl. Phys. A, "Effect of interference pattern on femtosecond laser-induced ripple structure", 98, 2010, 401, Y. Nakata, N. Miyanaga, Fig. 3 (b) and (c).

(Fast Fourier Transform)解析をおこなった¹¹⁾。矢印で示したピークがLIPSSによるものであり、Fig. 12(a-3)では242 nm、Fig. 12(b-3)では177 nmとなった。干渉パターンが無い場合は242 nmであり、干渉パターンによってLIPSS周期がコントロール出来る事を初めて示した。また2D-FFTによるLIPSSの正確な解析を初めておこなった^{11,22)}。

4. まとめ

干渉パターンのコントロールとフェムト秒レーザー干渉加工法による2次元・3次元ナノ周期構造について示した。本手法は装置構成の簡単さと単位ナノ形状の多様性から類似の研究が増えつつある。今後は応用例を増やす事で有用性を実証し、実用化フェーズに繋げていきたい。

謝 辞

本研究の一部は、日本学術振興会・基盤研究(B)(no. 23360035)及び文部科学省・新学術領域「電磁メタマテリアル」(no. 23109509)、先端加工機械技術振興協会の支援を受けて行われた。ここに謝意を表する。

参考文献

- 1) H. J. Gerritsen: J. Appl. Phys. **38** (1967) 2054.
- 2) H. M. Phillips, D. L. Callahan, R. Sauerbrey, G. Szabo, and Z. Bor: Comput. Eng. **165** (1992) 158.
- 3) Y. Nakata, K. Murakawa, K. Sonoda, K. Momoo, and N. Miyanaga: Appl. Opt. **51** (2012) 5004.
- 4) Y. Nakata, K. Murakawa, K. Sonoda, K. Momoo, N. Miyanaga, and T. Hiromoto: Appl. Phys. A **112** (2012) 191.
- 5) Y. Nakata, Y. Matsuba, K. Murakawa, and N. Miyanaga: Appl. Phys. A **117** (2014) 207.
- 6) Y. Nakata, N. Miyanaga, K. Momoo, and T. Hiromoto: Appl. Surf. Sci. **274** (2013) 27.
- 7) Y. Nakata, K. Momoo, N. Miyanaga, T. Hiromoto, and K. Tsuchida: Appl. Phys. A Mater. Sci. Process. **112** (2013) 173.
- 8) Y. Nakata, K. Murakawa, N. Miyanaga, and K. Momoo: Appl. Phys. Express **5** (2012) 2.
- 9) Y. Nakata, K. Momoo, T. Hiromoto, and N. Miyanaga: *Proc. SPIE* (2011) p. 1.
- 10) Y. Nakata, T. Hiromoto, and N. Miyanaga: Appl. Phys. A Mater. Sci. Process. **101** (2010) 471.
- 11) Y. Nakata and N. Miyanaga: Appl. Phys. A Mater. Sci. Process. **98** (2010) 401.
- 12) Y. Nakata, K. Tsuchida, N. Miyanaga, and H. Furusho: Appl. Surf. Sci. **255** (2009) 9761.
- 13) Y. Nakata: SPIE Newsroom **2** (2009) 1.
- 14) Y. Nakata, T. Okada, and M. Maeda: Appl. Phys. A **79** (2004) 1481.
- 15) Y. Nakata, T. Okada, and M. Maeda: Jpn. J. Appl. Phys., Part 2 Lett. **42** (2003) L1452.
- 16) Y. Nakata, T. Okada, and M. Maeda: Appl. Phys. Lett. **81** (2002) 4239.
- 17) Y. Nakata, N. Miyanaga, K. Momoo, and T. Hiromoto: Jpn. J. Appl. Phys. **53** (2014) 096701.
- 18) Y. Nakata, T. Okada, and M. Maeda: Appl. Phys. A Mater. Sci. Process. **77** (2003) 399.
- 19) V. M. Shalaev, W. Cai, U. K. Chettiar, H.-K. Yuan, A. K. Sarychev, V. P. Drachev, and A. V. Kildishev: Opt. Lett. **30** (2005) 3356.
- 20) U. Huebner, J. Petschulat, E. Pshenay-Severin, A. Chipouline, T. Pertsch, C. Rockstuhl, and F. Lederer: Microelectron. Eng. **86** (2009) 1138.
- 21) A. Ishikawa, T. Tanaka, and S. Kawata: J. Opt. Soc. Am. B Opt. Phys. **24** (2007) 510.
- 22) Y. Nakata, K. Tsuchida, and N. Miyanaga: Opt. Lasers Eng. **47** (2009) 847.