

ダブルパルス照射フェムト秒レーザープロセッシングにおける 素過程の考察

宮崎大学 産学・地域連携センター
准教授 甲藤 正人

(平成 29 年度 一般研究開発助成 AF-2017212)

キーワード：超短パルスレーザー，レーザープロセッシング，エネルギー移譲，初期過程

1. 研究の目的と背景

レーザー加工において、穿孔・ドリリング、溝掘り・スクライビングや切断・カッティングなどの材料加工へ様々なパラメータのレーザーが活用されている。特にパルスレーザーを用いた加工においては、微細な領域の加工が要求される場合が多い。レーザー光が加工対象に照射された際、材料内の電子の振動として光のエネルギーが吸収され、電子の振動のエネルギーが材料の熱エネルギーへと変換し、材料において溶融ならびにアブレーションが生じる。この場合、レーザー強度が最も高いビームの中心部分が主に加工されるが、その周辺部も熱的な影響を及び、材料が変成する箇所、いわゆる熱変成部が広がる。微細加工の場合は、この熱変成部分が小さい加工、いわゆる非熱的加工と呼ばれる加工が望ましく、材料の諸特性に合わせて、パルスエネルギーやパルス幅等のレーザーパラメータの最適化が必須である。

金属や半導体においては、非熱的な加工は、パルス幅がピコ秒以下の短パルスレーザー光により実現されており、昨今の短パルスレーザー光源に要求される仕様・性能として、パルス幅の圧縮と高エネルギー発振による高ピーク強度の実現ならびに高い加工スループットを実現するための高繰り返し発振が挙げられる。

短パルスレーザー加工プロセスにおいては、レーザーによる電子励起と格子振動への緩和による二温度モデルにより説明されている。また、励起電子の誘導脱励起過程による加工制御も提案されており、興味深い技術となっている。高繰り返しレーザーやバーストモードでの加工においても、レーザー照射から加工プロセス結果へ至るまでにおいては、レーザーから材料へのエネルギー移譲過程を知ることが重要である。短パルスレーザー加工におけるプロセスの基礎過程においては、ポンプ&プローブ法によりレーザーを照射した表面の形状変化を捉えた研究例がある。しかし、レーザー照射から数 100 ps 後までの観測であり、熱エネルギーによる緩和・拡散が収束する数 ms オーダーまでの長時間スケールでの状態変化を観測した例はない。高繰り返しレーザーやバーストモードレーザーのパルス間隔は、 μs オーダーまで近づいており、エネルギーが材料に蓄積される効果により、加工現象が変化することが十分に予想される。また、現在の実用技術としては、高繰り返し発振のレーザーを用いての高スループット加工が

要求される。高繰り返しレーザーによる加工において、同一箇所に複数ショットを照射する、あるいは低速で走査して照射して線状に照射する場合においては、同一箇所に複数のレーザーパルスが短い時間間隔で照射されることになる。これにより、加工対象に熱エネルギーの蓄積が起こり、加工結果に影響を与えることが予測される。これらのことから光・電子・格子振動のエネルギー移譲プロセスに関する知見を得ることは非常に重要である。

これらのことから、本研究においては、パルス照射間隔を熱エネルギーの緩和までを考慮した時間スケールに拡張し、レーザー照射から電子励起、熱エネルギーによる緩和・拡散が収束する数 μs オーダーまでの長時間スケールまで変化させ、照射するパルスの時間間隔が加工に与える影響について、実験的に観察し、基礎的な知見を得ることを目的とした。

2. 実験方法

本研究においては、2 台の近赤外フェムト秒チタンサファイア (Ti:Sapphire, TiS) レーザーを用いて構築した同期発振システムを使用を計画した。1 台は Spectra Physics Spitfire Pro ($\lambda = 882 \text{ nm}$, パルスエネルギー $< 1 \text{ mJ}$, パルス幅 $> 170 \text{ fs @ } 1 \text{ kHz}$) であり、もう 1 台は Spectra Physics Spitfire Ace ($\lambda = 800 \text{ nm}$, パルスエネルギー $< 5 \text{ mJ}$, パルス幅 $> 120 \text{ fs @ } 1 \text{ kHz}$) である。この 2 台の TiS レーザーにおいて、Spitfire Pro の発振器として使用している Tsunami を主発振器として、2 台の Tsunami の発振器周波数を同期させ、増幅器を含めた全システムのタイミングを制御することで、同期発振を実現した。これにより、2 台の TiS レーザー出力のパルス間に、最大 $2 \mu\text{s}$ の間隔を、ジッター 2 ps において与えることができる。

しかしながら、2017 年度途中から、波長 882 nm の TiS レーザーの Tsunami の励起用レーザーの出力が低下した。調整を実施したが、それぞれの TiS レーザー出力は単体では得られるものの、2 台を同期発振させることが困難となった。これは、上述の通り、Tsunami の出力を全システムの同期信号としているためである。このため、2 台を同期発振させての実験を一旦休止せざるを得なくなった。そこで、まずは波長 800 nm の TiS レーザーを用い、干渉光学系により短い時間間隔のダブルパルスを発生させ、低パル

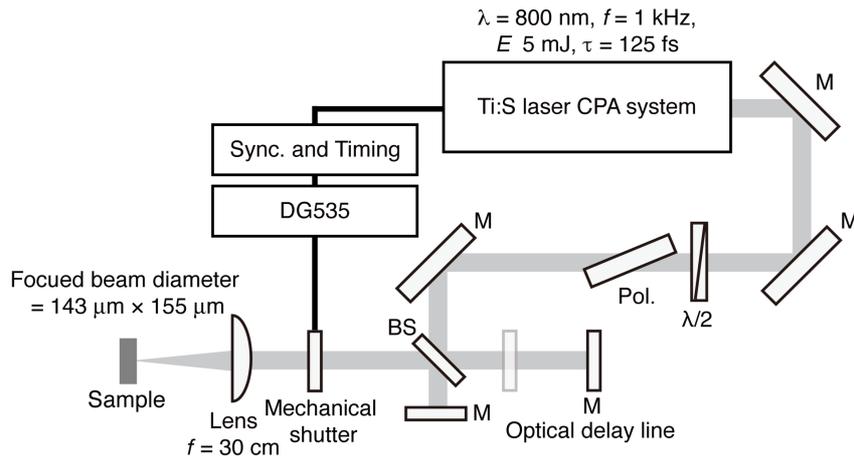


図1 干渉光学系を用いた TiS レーザーのダブルパルス照射系

ス数で低いフルーエンスにより、加工しきい値近傍付近での初期過程におけるエネルギー移譲を観察することに重点を置き、実験を行った。

図1に実験装置の概略を示す。波長 800 nm の TiS レーザー出力を $\lambda/2$ 板とポラライザーを用いてパルスエネルギーを調整し、干渉光学系を通すことで、ダブルパルスを得た。用いた光学系での最大遅延時間は 550 ps であった。得られたダブルパルスを同軸上に重ね、焦点距離 30 cm のレンズで集光し、試料表面に照射した。レーザーのパルスエネルギーはレンズを透過した直後でパワーメーターで実測した。また、焦点位置でのレーザーの集光径は減光後に CCD カメラを用いて実測し、 $143 \mu\text{m} \times 155 \mu\text{m}$ と求められた。また、レーザーと同期した信号により高速電磁シャッターを開閉することにより、照射するパルス数を切り出した。これにより、常に同じタイミングで設定したパルス数だけ試料に照射することを可能とした。

試料には半導体であるシリコン (Si) を用いた。本実験では真性半導体 (ノンドーブ) の Si 基板を用い、表面の面方位が (100) と (111) の Si 基板を用いた。レーザーを照射した後にデジタルマイクロスコープで Si 基板の表面を観察し、加工の進展の様子を調べた。

3. 結果・考察

(1) 加工の初期過程

まずは、ノンドーブ Si(100) 基板を用い、シングルパルスのレーザーを照射し、加工の様子ならびに加工閾値を調べた。照射するショット数を固定し、エネルギーを変えることで照射フルーエンスならびに照射パルス数の変化による加工の進展を観察した。この結果、1 ショットでレーザーの照射位置が判別できるのは、パルスエネルギーが $40 \mu\text{J}$ 、フルーエンスにして 0.23 J/cm^2 付近であった。2 ショットでは 0.14 J/cm^2 以上、ショット数を増やした場合は 0.11 J/cm^2 以上の照射フルーエンスでビーム中心部が白

い変色箇所が観測され始めた。これは結晶質から非晶質 (アモルファス) への変成が誘起された箇所である^{2,3)}。つまりは、照射パルス数を増やすことで、表面にアモルファス変成が観測できるしきい値が低下していることがわかった。また、30 ショットまで到達すると、中心部から周期構造形成とアブレーションが観測された。

図2に 0.12 J/cm^2 で照射した際に観測された加工痕をショット数毎に示す。2 ショット以下では加工痕を判別することができなかった。アモルファスに変化した後にビーム中心部からアブレーションへと加工が進展しているの

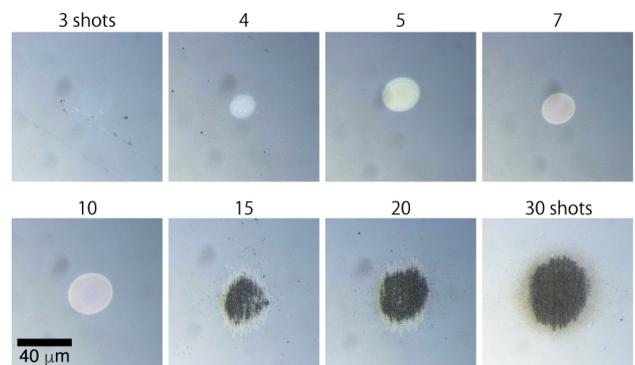


図2 Si(100) - フルーエンス 0.12 J/cm^2 照射

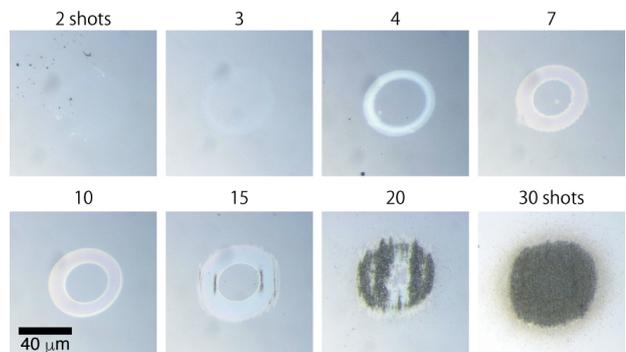


図3 Si(100) - フルーエンス 0.14 J/cm^2 照射

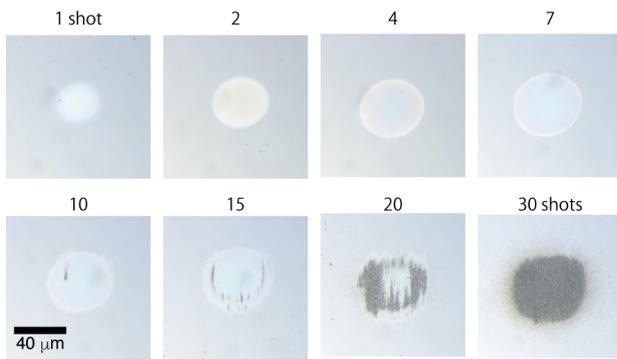


図4 Si(111)・フルーエンス 0.12 J/cm² 照射

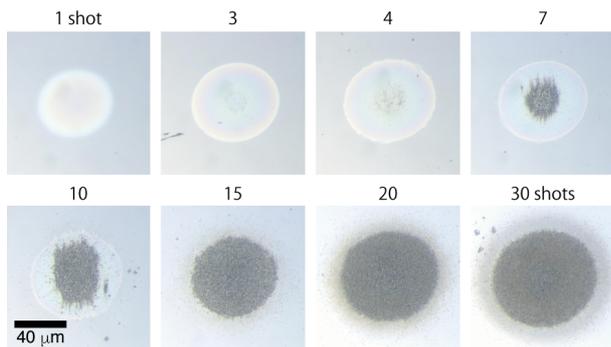


図5 Si(111)・フルーエンス 0.14 J/cm² 照射

がわかる。

図3にフルーエンスを 0.14 J/cm² とした場合における、ショット数毎の加工痕の変化を示す。このフルーエンスでは、アモルファスがリング状に観測された。これは、強度の高い中心部分は熔融状態まで達し、その後急冷する際に再度結晶化したと考えられている。15 ショットからアブレーションが観測されているが、リング状の部分からアブレーションが始まっている。これは、アモルファス部分のアブレーションのしきい値が低いことが要因であると考えている。ショット数を重ねると、円形状にアブレーションが進行していることがわかる。

これらの結果から、複数パルス照射後の加工痕が同様に円形であっても、その初期の状態は異なっており、加工後の物性や結晶性などに違いがあることも想定される。

図4に表面の面方位の異なる Si(111) 基板を用い、シングルパルスをフルーエンス 0.12 J/cm² で照射した際のパルス数に対する加工痕の変化を示す。(111) 面においては、1 ショット照射においてもアモルファス化が観測された。また、変成部の大きさも (100) 面の加工に比べて大きいことがわかる。リング状のパターンは観測されるが、リング内側も変成した状態が保たれていることがわかる。

図5に Si(111) 面、フルーエンス 0.14 J/cm² の場合を示す。同様に、リング状のパターンが観測され、内部も変成した状態が保たれていることがわかる。

図6に Si(100) 基板ならびに Si(111) 基板において、シングルパルス 1 ショットのみをフルーエンスを変えて照射した際の加工痕の変化を示す。Si(100) 基板において、アモルファス化の形跡が顕著には見られず、円形の薄い照射痕が 0.23 J/cm² あたりから見られた。0.34 J/cm² 付近で照射中心でアブレーションが観測された。Si(111) 基板においては、0.14 J/cm² からアモルファス化が見られ、同じく 0.34 J/cm² で中心部にアブレーションが観測された。Si(111) 基板のアモルファス部分は、フルーエンスの増加とともに直径が増大し、内部に複数の円環パターンが見られるようになった。

Si 結晶について、例えばエッチングや放電加工の際に面方位による異方性が原因で加工速度が変わることが知られており、これは熱伝導率の異方性によるものであることが示唆されている⁴⁾。<111> 方向、つまりは Si(111) 基板における深さ方向への熱伝導率が最も低く、<100> 方向の 1/5 程度である⁴⁾。これによって、Si(111) 基板の場合は、熱エネルギーが照射面に蓄積しやすく、アモルファス化が顕著に見られ、また熱伝搬の方向性からアモルファス化の環状パターンが形成されたのではないかと推測している。

P 型 Si(100) 基板を用いた場合は、ノンドーブ Si(100) に比べて、加工痕の変化については有意の差が得られなかったものの、若干の加工しきい値の低下が観測された。これについては、キャリア密度の違いが初期過程に影響したことが考えられるが、実験結果の再現性の確認が必要である。

また同一箇所ショット数を重ねて照射した場合、中心部からアブレーションが生じる場合とアモルファス部からアブレーションが生じる場合があった。シングルパルス照射時の繰り返しは 1 kHz であり、照射パルス間隔は 1 ms である。この時間間隔においては、加工のしきい値は各パルスでのピーク強度で決まると考えられる。また、アブレーションのしきい値はアモルファス部の方が結晶質部に比べて低いと予想される。図2の 0.12 J/cm² 照射では中心部はアモルファスの状態のまま、次のショットが照射され、アブレーションに進行するが、0.14 J/cm² においては、中心部は一旦熔融した後に再度結晶化しており、アブレーションしきい値が高く、このため周辺部のアモルファス部から先にアブレーションが生じると考えられる。何れ

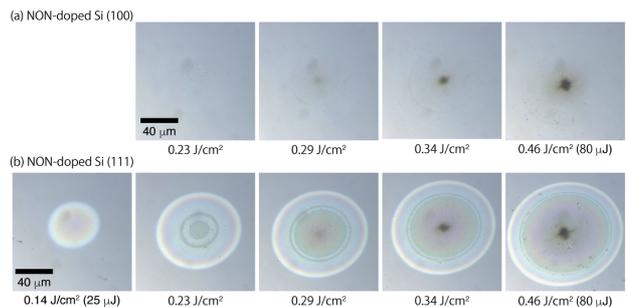


図6 シングルパルス・1 ショット照射時の加工痕

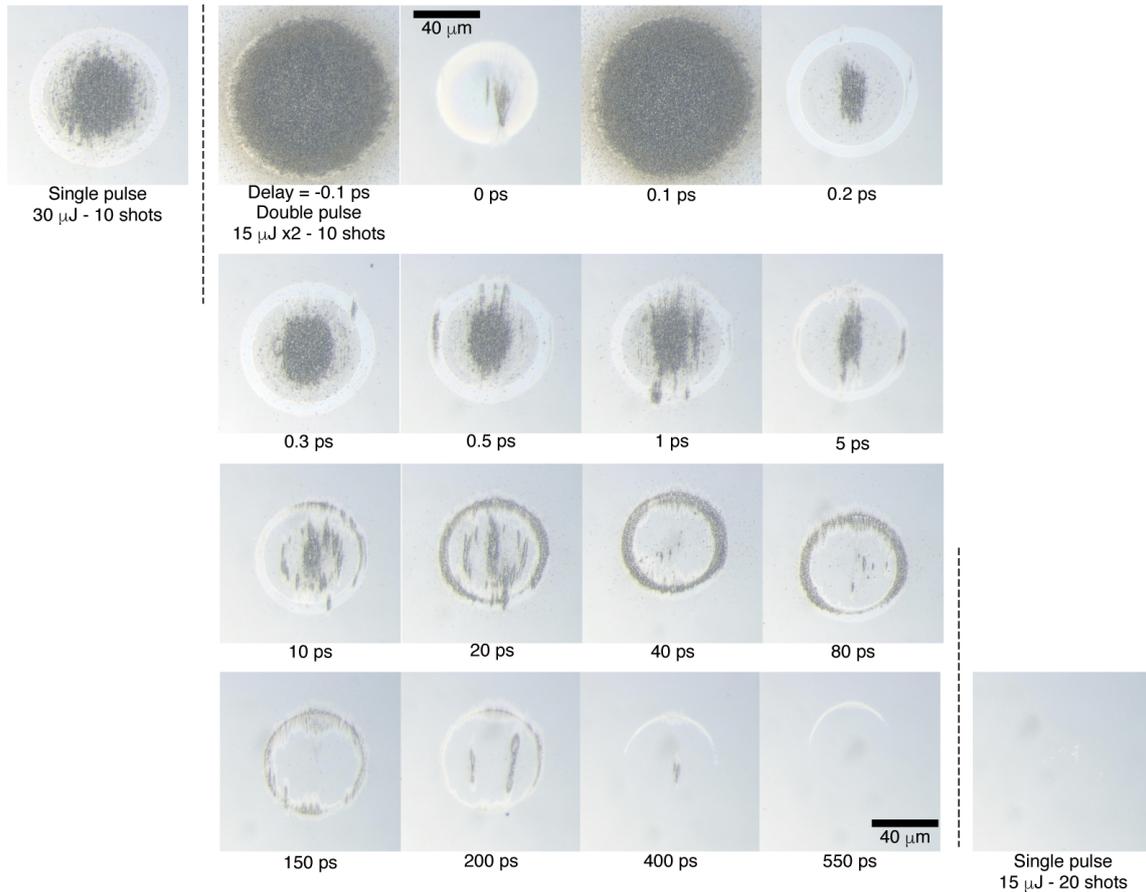


図7 Si(100) - フルーツ 0.086 J/cm² ダブルパルス・10ショット照射

の場合においても、1ショットでの照射では変化がなくても、その表面には徐々に欠陥生成などの“種”が形成、蓄積され、複数回照射することにより、加工痕として視認されるようになったと推測される。また、加工初期における周期構造形成やアブレーションは結晶の欠陥等によるしきい値の低下に敏感であり、定量的な実験結果を報告することは困難であるが、しきい値付近の照射では、同じ条件にも関わらず大きく加工痕が見られるケースがあり、周辺には周期構造が見られた。また、図6にも見られるが、1ショットの照射でも、任意の点を起点とした周期構造形成が観察されることがある。これらより、アブレーションのしきい値は基板の状態に大きく左右され、また加工も欠陥等を起点として、進展していることが示唆された。

(2) ダブルパルス照射による加工過程

ダブルパルス照射において、各パルスのフルーツの設定は、シングルパルス照射においては加工痕が観測できないが、2倍のフルーツでは加工痕が観測される条件とした。照射回数は10ショットと固定した。

図7にノンドープ Si(100) 基板を試料として、1パルスのエネルギーを 15 μJ (0.086 J/cm²) に設定し、ダブルパル

スのパルス間隔を -0.1 ps から 550 ps まで変化させた際の加工痕の変化の様子を示す。また、シングルパルス照射でフルーツ 0.17 J/cm² で 10 ショットならびに 0.086 J/cm² で 20 ショット後の表面の様子も併せて示す。パルス間隔が長くなることで、この2条件の加工結果間で変化するはずである。2つのパルスが重なる ±0.2 ps 付近までは、ビームの干渉効果により、0 ~ 4 倍のフルーツが照射されることになり、加工痕の変化が大きい結果となった。0.2 ps 以後、リング状のアモルファス部と中心部のアブレーション部が観測された。中心部のアブレーション部はシングルパルスに比べると若干小さくなっているのがわかる。0.5 ps 以後は中心部のアブレーションが観測されている。一般的には電子のエネルギーから格子振動への緩和は 1 ps オーダーと言われている。図7では照射間隔が 1 ps 後から、アブレーション部の変化が大きいことがわかる。パルス間隔が 5 ps を超えると、アモルファスの環状部がアブレーションを起こしている。40 ps では、ほぼ環状部のみがアブレーションを起こしている。これは、1st パルスで蓄積されたエネルギーがまだ残存している状態のためと考えられている。200 ps 以降では、アモルファスリングも小さく薄くなった。550 ps 後とシングルパルス (1 ms

間隔)の20ショット照射を比較すると、550 psにおいても、アモルファス変成部が視認でき、また1stパルスのエネルギーが残存していることがわかる。

また、Si(111)基板を用いた場合においても、加工痕形状は異なるものの、照射間隔を550 psとした際においても、1stパルスのエネルギーが残存していることが示唆される結果が得られた。

4. まとめと今後

近赤外フェムト秒レーザーによる加工において、照射パルス数の少ない初期状態での加工過程に着目し、加工痕を観察した。

まずは結晶質シリコンを試料として、シングルパルス照射により低ショット数での加工痕の進展を観察した。この結果、アモルファスへの変成とアブレーションへの進展の様子が観察された。また、加工は1ショット毎での変成の蓄積とその状態でのしきい値が大きく影響していることがわかった。複数ショットを重ねて照射した加工痕には、その差異は大きくは見られない。また、今回試料に用いたシリコンにおいては、 possible しきい値が結晶面方位により大きく異なる結果が得られた。これは、熱伝導率の異方性が関係していると考えている。

次に、ダブルパルス照射を行った結果から、シリコンにおいては、550 ps まで最初のパルスのエネルギーが残存していることが示唆された。

今後は、より短焦点のレンズを用いるなどし、レーザーのフルエンスを向上させ、1ショットのみのダブルパルス照射において、時間遅延をつけての実験を行う予定である。また、遅延時間を1 ns以上に設定し、熱変成相が観測できるフルエンス条件での実験を再始動を検討する。

謝辞

本研究において、レーザー装置は2006～2008年度文部科学省特別研究推進事業(大学間連携)ならびに2012年度文部科学省特別研究経費を基に設置された。また、2016年度一般財団法人一樹工業技術奨励会研究助成金により支援を受けて整備を実施した。ここに謝意を表す。

また、研究の遂行に協力頂いた宮崎大学の加来昌典准教授と研究室学生諸氏に謝意を表す。

参考文献

- 1) 甲藤正人, 加来昌典, 宮永憲明, 塚本雅裕, 横谷篤至, レーザー学会第509回研究報告 **RTM-17-19~24**, 29 (2017).
- 2) Y. Izawa, Y. Setuhara, M. Hashida, M. Fujita and Y. Izawa, *Jpn. J. of Appl. Phys.* **45**, 5791 (2006).
- 3) 井澤友策, 藤田雅之, *O plus E* **30**, 475 (2008).
- 4) 橋本敬史, 川上太一, 国枝正典, 2007年精密工学会春季大会学術講演会講演論文集 p.502.