

ベクトルビームを用いた超微細レーザー加工技術の開発

東北大学 多元物質科学研究所
准教授 小澤 祐市
(2018年度 一般研究開発助成 AF-2018208-B2)

キーワード：レーザー穴あけ，フェムト秒レーザー，ベクトルビーム

1. 研究の目的と背景

ピコからサブピコ秒，あるいはフェムト秒のパルス幅を持つ超短パルスレーザー光によるレーザー加工は，連続波・ナノ秒パルスレーザー光を用いた加工に比べて，熱影響を低減した高品質な微細加工が得られる利点を持つ。このため近年は，電子デバイス分野や自動車関連分野を始めとした多くの分野に対してレーザー微細加工プロセスの導入が進んでいる。本研究では，レーザー微細加工技術のさらなる進展へ向けて，レーザー光の振幅や偏光および位相の空間分布制御に立脚した新たなレーザー加工技術の開発を目的とした。具体的には，このような光の基本的なパラメータの空間分布制御によって得られる光ビーム（ベクトルビーム）の特異な集光特性がレーザー加工プロセスにどのように寄与するかについて実験的に検証する。これらの実験を通じて，既存の限界を超える加工分解能や加工精度を実現する新しいレーザー加工技術の開発につなげることを本研究の大きなねらいとする。以降では，その背景となる基本原理とベクトルビームの集光特性について述べ，本研究の実験結果の詳細について報告する。

光ビームの断面において，偏光方向が空間的に分布を持つビームはベクトルビームと呼ばれる。ベクトルビームの中でも，光軸に対して半径方向に沿って偏光した径偏光（ラジアル偏光）や方位角方向に偏光した方位偏光（アジマス偏光）は，その偏光の軸対称性に起因して，通常の直線偏光や円偏光ビームでは得られない集光特性を持つことが知られている¹⁾。特に，径偏光ビームは，開口数 (NA) の大きな対物レンズで強く集光すると，光軸方向に振動する軸方向電場が焦点に強く発生する。さらに，集光する径偏光ビームが多重リング状の強度分布を持つ高次横モードビーム（径偏光 Laguerre-Gauss, $LG_{p,1}$ ビーム）である場合に，焦点における集光スポットサイズが，横モード次数 p が大きくなるほど従来のガウスビームの集光よりも小さくなる極めて特異な性質を有している²⁾。例として，波長 $\lambda=1 \mu\text{m}$ の円偏光ガウスビームおよび径偏光 $LG_{5,1}$ ビームを $NA = 0.85$ の対物レンズで集光した場合の焦点での強度および各偏光成分の 1 次元プロファイルを計算した結果を図 1 (a) および (b) にそれぞれ示している。本集光条件では，円偏光ガウスビームによる集光スポットサイズは約 700 nm と計算されるのに対して，径偏光 $LG_{5,1}$ ビームでの中心スポットサイズは 590 nm となる。このような微小集光スポット特性をレーザー微細加工に適用できれば，加工分解能や加工精度のさらなる向上が図れるも

のと期待される。しかしながら，図 1 (b) に示すような軸方向電場 ($|E_z|^2$) から構成される微小な集光スポット特性が，レーザー微細加工に対してどのように寄与するかについてはほとんど明らかになっていない。以上を背景に本研究では，金属材料に対するレーザー微細加工をターゲットとして，高 NA 条件においてベクトルビームを強く集光した場合の加工特性について実験的に明らかにすることを旨とした³⁾。

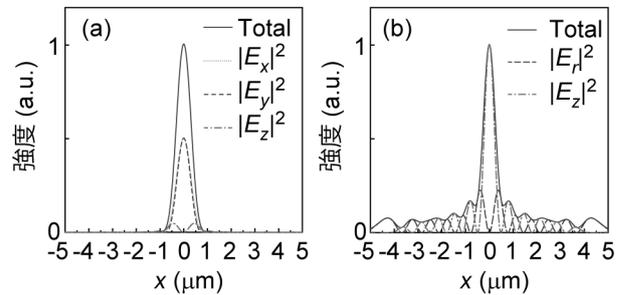


図 1 (a)円偏光ガウスビームおよび(b)高次径偏光 LG ビーム($LG_{5,1}$) を $NA = 0.85$ の対物レンズで集光した場合の焦点断面における強度プロファイルの計算結果。

2. 高次径偏光ビームの金属表面への集光

2.1 数値計算

図 1 で示した数値計算例は，ベクトルビームを高 NA レンズによって空气中に強く集光した場合の焦点での強度分布を計算したものである。一方で，レーザー加工においてはレーザー光の焦点位置に加工試料が配置されるため，実際の焦点近傍での光の強度分布は，加工試料表面での反射および試料への入射（吸収）を考慮する必要がある。この点を明らかにするため，空气中から金属試料に対して径偏光ビームを強く集光した場合の焦点近傍での強度分布をベクトル回折理論に基づいて計算を行った。図 2 に，径偏光ビームを $NA=0.85$ の対物レンズで銅表面に集光した場合の半径方向電場（図 2 左）および軸方向電場（図 2 右）の強度分布をそれぞれ表示している。ただし，本計算では集光する径偏光ビームの波長は 1040 nm として，対物レンズ瞳面での振幅分布を平面波状とした。また，焦点位置を銅表面 ($z = 0$) とし，真空中から銅（複素誘電率 $\hat{\epsilon} = -51.56 + 5.29i$) に集光すると仮定した。銅を始めとして高い反射率を持つ金属材料への光照射では，金属表面での強い反射光と入射光の干渉により，入射側（真空側）では半径方向電場および軸方向電場の何れに対しても明瞭な定在波が形成する（図 2 の $z < 0$ の領域）。一方で，金

属側（銅内部）では、金属による光吸収によって 20 nm 程度の範囲で急激に光強度が減衰する様子（表皮効果）が見られる（図 2 における $z \geq 0$ の領域）。ただし、金属内部における半径方向電場と軸方向電場の強度分布を比較すると、入射側では光軸上に強く存在している軸方向電場（ピーク強度比では半径方向電場の 2.2 倍）は、金属内部では半径方向電場と比べて著しく減衰することがわかる。本条件では、金属内部における軸方向電場のピーク強度は半径方向電場のピーク強度に対して 2.5%程度となる。これらは、異種材料界面における電場の境界条件を反映した結果であり、界面における電場の法線成分に対応する軸方向電場については、媒質間の誘電率の比に応じて振幅が変化するためである^{4,5)}。

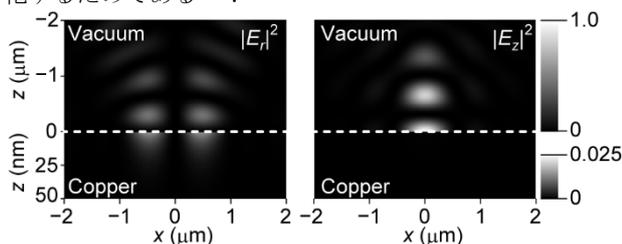


図 2 径偏光ビームを銅表面に強く集光した場合の強度分布 ($NA = 0.85, \lambda = 1040 \text{ nm}$)。左：半径方向電場，右：軸方向電場。

図 2 の計算結果から、径偏光ビームを真空中あるいは大気中から集光する場合には、焦点での軸方向電場は金属内部では半径方向電場に比べて無視できるほど減衰することがわかった。金属試料に対するレーザー加工では、照射レーザー光が金属内部に侵入し、その光エネルギーの吸収を起点として加工プロセスが進むことに基づけば、焦点での軸方向電場はレーザー加工プロセスに直接寄与する可能性は極めて小さいことを示唆している。

一方で、界面入射側での軸方向電場は、試料表面上では定在波の腹となるため、強い電界強度が表面上に形成される点に注目したい。本特性は、反射率の高い金属ほど顕著に生ずる。例えば、本条件において、300 fs のパルス幅で 100 nJ のエネルギーを持つパルスを集光した場合には、図 2 に示す銅表面での定在波の瞬間的な振幅の大きさは 30 GV/m 程度に達する。このような強い軸方向電場による定在波の存在は、金属表面でのアブレーション過程において、その初期過程で生じ得る高エネルギーの荷電粒子との相互作用をもたらし、通常の加工プロセスとは異なるアブレーションプロセスが生ずることが予想される。本検討結果を踏まえ、径偏光ビームを強く集光した場合の加工プロセスを実験的に明らかにするために、ベクトルビームを用いた独自のレーザー加工実験系を構築し、レーザー加工試験を試みた。

3. 高次径偏光ビームによるシングルショットレーザー加工実験

3・1 実験方法

本実験では、図 3 に示すような独自のレーザー加工実験系を構築した。波長 1040 nm のパルスレーザー光（パルス幅 300 fs，最大パルスエネルギー 40 μJ ）を、加工用光源として採用した。本加工光学系では、液晶型空間光変調器（LCOS-SLM）および 12 分割波長板をレーザー光路中に挿入し、任意のリング数を持つ高次横モードベクトルビームを生成できる。なお、分割波長板は、透過型液晶素子により構成されており、駆動電圧を制御することでベクトルビームへの変換の有無を電気的に切り替えることが可能である^{6,7)}。また、分割波長板の手前に設置した 1/2 波長板を用いて、分割波長板に入射する直線偏光ビームの偏光方向を回転させることで径偏光と方位偏光の切り替えを行った。

本実験では、焦点に軸方向電場を発生する径偏光ビームと、これに直交した偏光分布を持つ高次方位偏光ビーム、および比較のために円偏光ビームでの照射実験を行った。方位偏光ビームは、高 NA 条件での集光に対しても軸方向電場が発生せず、常に横方向電場からなるドーナツ状の強度分布を形成する。そこで、これらのビームを用いた場合の加工痕の形状を観察することで、径偏光ビーム照射時の軸方向電場による寄与について考察することとした。また、円偏光照射を行う場合は、分割波長板の動作をオフにした上で、光路中に 1/4 波長板を挿入した。

レーザー光は $NA = 0.85$ の対物レンズを用いて試料表面上に集光し、シングルショットでの加工を行った。得られた加工痕は走査型電子顕微鏡により観察した。

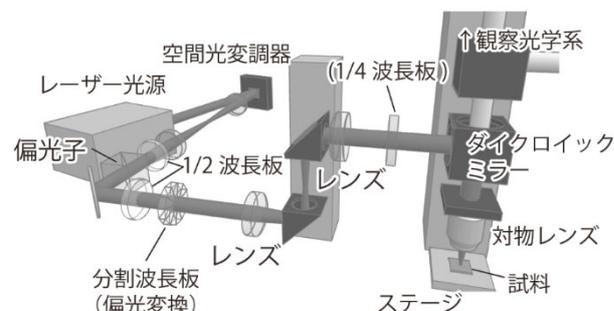


図 3 レーザー加工光学系

3・2 実験結果

図 4 に空間光変調器を用いて 6 重リング状の $0-\pi$ 位相シフトを持つ位相分布を印加した円偏光、方位偏光および径偏光ビームを用いて、鏡面研磨された各種金属薄板（100 μm 厚）および比較のためにシリコン基板をシングルショットで加工した結果を示す。照射パルスエネルギーは、各レーザー照射条件・材料において加工しきい値の 2 倍となるように設定した。なお、各条件での加工しきい値は照射偏光および材料に依存し、焦点位置で数 10 から数 100 nJ の範囲であった。

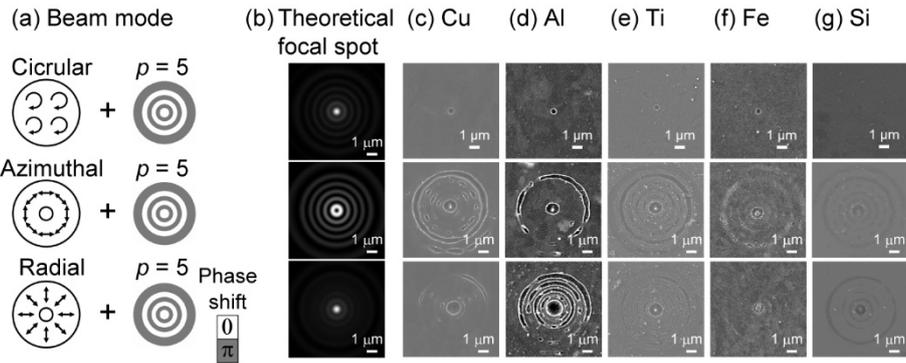


図4 各種金属試料に対する円偏光（上段），方位偏光（中段）および径偏光（下段）ビームを用いた $NA=0.85$ のシングルショットレーザー加工により得られた加工痕の電子顕微鏡写真. (a) 照射レーザー光の偏光状態および位相分布, (b) 焦点での集光スポットの計算結果, (c) – (g) 鏡面研磨された銅, アルミニウム, チタン, 鉄（ステンレス鋼）の各種薄板およびシリコン基板に対するレーザー加工結果.

なお, 図4(a)で示している位相パターンは, 図1(b)で検討した径偏光 $LG_{5,1}$ ビームに相当する. 図4(b)に示すように, このような位相分布を持つ径偏光ビームの集光では, 中央に強度を持つスポット状となり, その周囲に複数のサイドローブを伴った強度分布となる. 一方で, 方位偏光の場合は, 焦点中央での強度分布はゼロとなるドーナツ状強度分布を示す. また, 円偏光の場合にもサイドローブを伴うスポット状の強度分布となる. 円偏光ビームと径偏光ビームの集光を比べると, 何れも中心部はスポット状の強度分布となる. しかしながら, 両者の違いは, その中心のスポットが円偏光ビームでは面内方向電場（横電場）によって形成されているのに対して, 径偏光ビームでは軸方向電場（縦電場）によって形成されている点にある.

円偏光ビームの照射（図4上段）では何れの材料に対しても, 中央部のみがアブレーションされたスポット状の加工痕が得られた. 前述したように, 円偏光照射での理論的な集光スポットは, 多重リング位相分布の付与のためにサイドローブを伴うが, 横電場による鋭いスポット状の強度分布が中央に形成され, その集光スポット形状に従った加工痕が形成されている.

次に, 方位偏光ビームの場合には（図4中段）, 全ての材料において, 集光スポットのサイドローブの位置に対応したリング状加工痕が観察されることに加え, 中央部にはピラー構造を伴うドーナツ状の加工痕が形成された. このことから, 横方向電場のみ有する方位偏光ビームに対しては, 材料に依存せず焦点での強度分布を反映した加工が得られることがわかった.

これに対して, 径偏光ビームを照射した場合（図4下段）, チタンおよび鉄（ステンレス鋼）の薄板, シリコン基板については方位偏光と同様にドーナツ状の加工痕が照射部中央に形成された. 一方で, 銅およびアルミニウムについては, スポット状の加工痕が確認された. 前項での検討結果から, 径偏光ビームを金属表面に強く集光した場合の金属内部では, 軸方向電場は強く減衰し, ドーナツ状の強度分布を持つ半径方向電場（横電場）が支配的となる. このような径偏光ビームの集光特性を踏まえると, チタン, 鉄

で観察されたドーナツ状の加工痕は妥当な結果であると考えられる. シリコン基板に対しても本結果と一致する同様の議論が既に報告されている⁸⁾. 一方で, アルミニウムおよび銅に対して得られたスポット状の加工痕は, 前述の考察内容とは反するものであり, アブレーションプロセスに対する軸方向電場の寄与の可能性を示す結果といえる. これに加えて, 軸方向電場の発生が無視できる開口数の低い集光条件 ($NA=0.3$) によって同様のシングルショット加工を銅表面に対して行ったところ, 径偏光と方位偏光で明瞭な差異は観察されず, 何れもドーナツ状の加工痕となることもわかった.

銅表面に対して径偏光ビームを強く集光した場合の加工特性についてより詳細に検討するため, 加工痕形状についての照射エネルギー依存性を調査した. 図5に, 6重リング状の方位偏光および径偏光ビームを用いた銅表面に

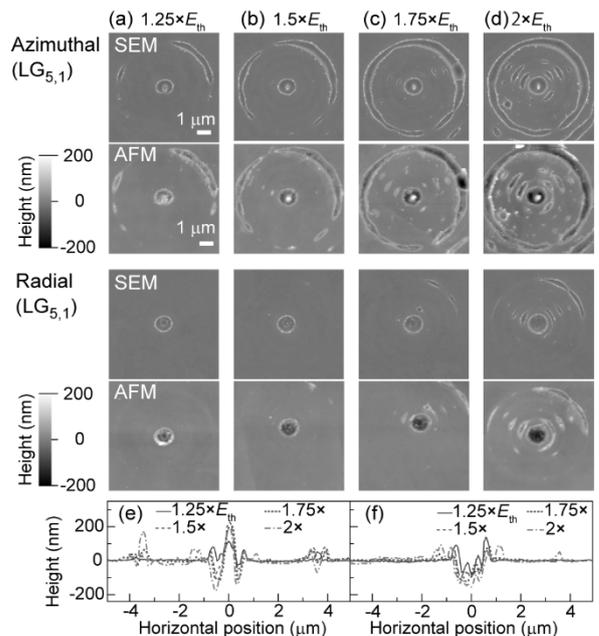


図5 銅表面に対するシングルショットレーザー加工での照射エネルギー依存性と加工痕断面における深さプロファイルの計測結果.

対するシングルショット加工について、照射エネルギーをそれぞれの偏光状態におけるアブレーションしきい値 E_{th} に対して 1.25 倍, 1.5 倍, 1.75 倍, および 2 倍とした場合の加工痕形状を、電子顕微鏡法 (SEM) および原子間力顕微鏡法 (AFM) で観察し、加工痕の深さプロファイルを計測した結果を示す。本観察結果から、方位偏光ビームを用いた場合の加工痕は、ドーナツ状のアブレーション痕が明瞭に確認され、また照射エネルギーの増大に従って中央部分に形成されるピラー構造が明瞭化することがわかる。一方で、径偏光ビームの照射では、アブレーションしきい値近傍から 2 倍の照射エネルギーの範囲において、何れも中央部分は消失しており、窪んだ形状であることが確認された。この観察結果から、径偏光ビームを照射した場合のスポット状加工痕は、約 $1\ \mu\text{m}$ の直径に対して $100\ \text{nm}$ 程度の深さを持つことがわかった。

このように、径偏光ビームを用いた場合のシングルショットレーザー加工で得られるスポット状の加工痕は、開口数が極めて大きな集光条件の下で、特に反射率の高い銅やアルミニウムなどにおいて特異的に生ずる現象であることがわかった。前項で検討した通り、径偏光ビームを反射率の高い銅表面に集光した場合、表面は軸方向電場による強い定在波が形成される。本実験では、高次径偏光ビームを用いた場合の銅やアルミニウムに対する加工しきい値は $340\ \text{nJ}$ および $200\ \text{nJ}$ であり、他の材料よりも数倍から 1 桁程度大きい値であった。このことから、他の金属材料と比較して、アブレーション加工が生ずる条件においては、試料表面には非常に強い軸方向電による定在波が発生していたと予想される。

現段階では、金属表面に発生する強い軸方向電場による定在波が、具体的にどのようなプロセスに基づいてアブレーション加工に寄与するかを詳細に説明するまでには至っていない。しかしながら、本実験結果から予想される機構の一つとして、高強度の光パルス照射によって金属表面から外部へ放出される高エネルギー電子が加工プロセスに関与した可能性が考えられる。つまり、パルス照射で表面から放出された高エネルギー電子が、ごく近傍に存在する強い軸方向電場によって光軸方向に加速され、一部が試料へ再衝突することでアブレーションプロセスが促進する可能性が考えられる。実際に、異種媒質の界面上に軸方向電場による定在波を形成し、この定在波を用いた荷電粒子の加速（あるいは減速）が可能であることが実験的に報告されている⁹⁾。本実験では、これと類似した状況が金属界面上で生じたと考えられる。ただし、このような加工メカニズムを詳細に解明するためには、加工雰囲気や、ポンププローブ法によるアブレーション過程の時間分解計測などによる精密測定が今後必要になると思われる。これらの実験を通じて軸方向電場が焦点に強く発生する条件での加工特性や機構を明らかにできれば、微小集光スポット特性を持つ高次径偏光ビームの特性を駆使した新たなレーザー微細加工プロセスの開拓につながると期待される。

4. まとめと今後の展望

本研究では、次世代のレーザー加工において要求されるサブミクロンから究極的にはナノメートルオーダーでの超微細加工技術を達成するための基盤技術として、レーザー光の偏光や位相の空間分布を高度に制御したベクトルビームによる新しいレーザー微細加工技術の開発を目的とした。実際に、独自のレーザー加工光学系を構築し、ベクトルビームに変換した超短パルスレーザー光を高 NA レンズを用いて金属表面に強く集光した場合の加工特性を詳細に検討した。本実験から、径偏光ビームの強い集光によって焦点に生ずる軸方向電場が、材料依存的にアブレーション加工に寄与する可能性を初めて示すことに成功した。加工メカニズムの詳細については今後のさらなる検討が必要であるものの、本結果は、高 NA 集光条件下において形成される光の 3 次元的なベクトル場が、レーザー加工に対して重要な役割を果たす潜在性を強く示唆している。

本研究で着目したベクトルビームの集光特性は、対物レンズの NA が大きい場合に効果的に得られる¹⁰⁾。レーザー加工のさらなる微細化を目指す上で、対物レンズの高 NA 化は避けては通れない方向性といえる。本研究で用いるベクトルビームは、このような高 NA 加工条件においてこそ効果を発揮するビームであり、本研究結果は、次世代のレーザー加工技術の開発に対して重要な知見になると考えられる。

謝 辞

本研究は、公益財団法人天田財団の一般研究開発助成 (AF-2018208-B2) を受け実施されたものであり、ここに謝意を表します。また、本研究の遂行において、東北大学多元物質科学研究所 佐藤俊一教授および佐藤氏 (同研究室修士学生・当時) ならびに研究室の皆様には多大なご協力とご助言をいただきました。

参考文献

- 1) K.S. Youngworth, T.G. Brown: Focusing of high numerical aperture cylindrical-vector beams, *Opt. Express*, 7, (2000), 77
- 2) Y. Kozawa and S. Sato: Sharper focal spot formed by higher-order radially polarized laser beams, *J. Opt. Soc. Am. A*, 24, (2007), 1793
- 3) Y. Kozawa and S. Sato: Laser microprocessing of metal surfaces using a tightly focused radially polarized beam, *Opt. Lett.*, 45, (2020), 6234
- 4) D.P. Biss and T.G. Brown: Cylindrical vector beam focusing through a dielectric interface, *Opt. Express* 9, (2001), 490
- 5) M. Hashimoto *et al.*: Enhancement of second-harmonic generation from self-assembled monolayers on gold by excitation with a radially polarized beam, *Opt.*

- Lett. 34, (2009), 142
- 6) Y. Kozawa *et al.*: Lateral resolution enhancement of laser scanning microscopy by a higher-order radially polarized mode beam, *Opt. Express* 19, (2011), 15947
 - 7) S. Matsusaka, Y. Kozawa, and S. Sato: Micro-hole drilling by tightly focused vector beams, *Opt. Lett.* 43, (2018), 1542
 - 8) R. Drevinskas *et al.*: Laser material processing with tightly focused cylindrical vector beams, *Appl. Phys. Lett.*, 108, (2016), 22107
 - 9) T. Plettner *et al.*: Visible-Laser Acceleration of Relativistic Electrons in a Semi-Infinite Vacuum, *Phys. Rev. Lett.*, 95, (2005), 134801
 - 10) Y. Kozawa and S. Sato: Small focal spot formation by vector beams, *Prog. Opt.* 66, (2021), 35