

ビームシェイピングと熱流動挙動解明に基づく 回折限界以下の LIFT 金属細線パターンニング

東京工業大学 工学院 機械系
准教授 伏信 一慶
(2018 年度 一般研究開発助成 AF-2018219-B3)

キーワード：LIFT, 転写実験, 2 温度モデル, 高速度可視化

1. 研究の目的と背景

LIFT (laser induced forward transfer, レーザ誘起前方転写) は狭義には 80 年代に提案¹⁾された手法とされ、特に 2010 年代以降、急速に研究が拡大している。従来からの積層造形技術と異なり μm スケール程度以下の feature size を目指す事が可能であるため、金属細線の描画を嚆矢としつつ、広く電子デバイス、プリントエレクトロニクスや各種センサー、樹脂材料や生体材料への期待が広がっている。特にこの手法のメリットの一つが微細な構造の製作にあると考えたときには、使用するレーザー光の回折限界を超える加工線幅の実現が重要な課題である。一方で LIFT についてはここ 10 年程度で急速に基礎研究が立ち上がってきた段階でもあることから、ドナー薄膜の転写をもたらすレーザー照射後の金属薄膜の挙動が十分に理解されていない。特にこの現象を支配すると考えられる相変化を伴う薄膜の熱的な挙動については全くと言って良いほど研究事例が見当たらない。本研究では、特にこれらの点に焦点を置き、適切なビームシェイピングを施すことによる回折限界を超える加工線幅の実現の可能性を探るとともに、LIFT におけるドナーたる金属薄膜の熱的な挙動について理論的・実験的な検討を行った。

2. LIFT 実験

2.1 実験装置の概要

図 1 に、試験部の模式図²⁾を示す。光源は中心波長 1035 nm のフェムト秒レーザーで、パルス幅は 250 fs (FWHM) である。

レーザー光ビームシェイピングについてはこれまでの研究成果も踏まえ様々検討を行った結果、回折限界以下の線幅を目指すために Bessel beam の高次 lobe の影響を大きく低減できる Airy beam を用いることとした。照射光は図中のマスクで annular beam にした後、対物レンズにより絞ることで Airy beam とする。得られたビーム直径は $1.3 \mu\text{m}$ (FWHM) となる。レーザー光の走査のため、ステージを走査する。実験で用いたドナー基板には厚さ 100 nm の金薄膜をコートしたガラス基板を用いた。基板側からの照射により間隔をおいて設置したターゲット基板に金を転写する。

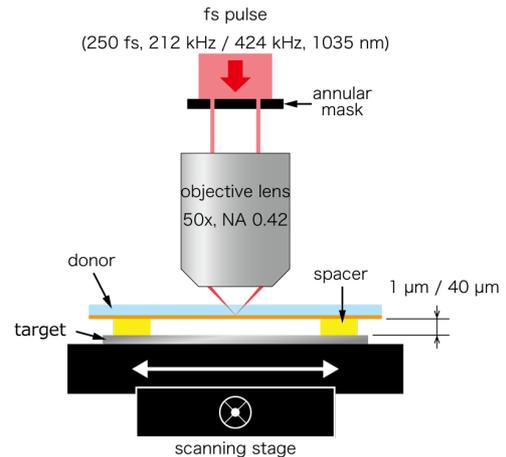
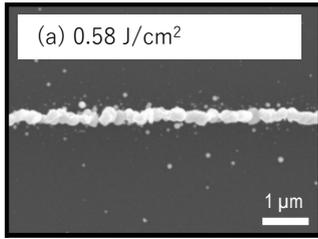


図 1 試験部模式図

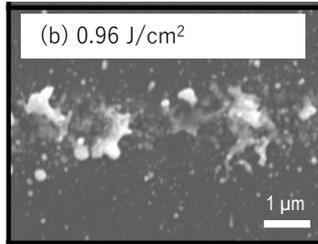
2.2 結果

図 2 に、照射後のターゲット基板表面の代表的な SEM 画像を示す。様々な条件での実験を行っており³⁾、ここで示す結果は、繰り返し周波数 424 kHz、ステージの走査速度はいずれも 80 mm/s、ドナーとターゲット基板間隔は $1 \mu\text{m}$ である。また、レーザーフルエンスは空間ピーク値で表している。図 2 (a) の通り、条件を適切に選択することで、線状転写が可能であることが確認でき、その線幅が概ね 300 nm 程度であることがわかった。一方で図 2 (b) に示すようにフルエンスを上げるとターゲット基板上に飛散した状態で付着している様子が見て取れる。

これらより、フルエンスなどの条件を適切に設定することでビームシェイピングを施したパルスレーザー照射により回折限界を超える線幅の細線の転写が可能である事がわかった。実際には再加熱して溶融・凝固を行う場合に最終的に得られる線幅についても要検討と言える。また、同一条件下でもフルエンスを変えることで明らかに転写される細線の様子が異なる事がわかる。考えられる要因としては適切な溶融条件を作る事で微細な金属液滴が粒状にターゲット基板に転写される事が考えられ、さらにフルエンスを上げると大きなエンタルピー密度が液滴を飛散させる、あるいは一部で蒸発を伴う事で、噴霧状に飛散する事が考えられる。すなわち、フルエンス等の条件による薄膜の熱的な応答が支配要因と考えられる。



(a) 0.58 J/cm²



(b) 0.96 J/cm²

図2 代表的な転写例の SEM 画像

3. 温度上昇の見積もり

3.1 計算の概要

レーザ照射による温度上昇が主たるドナー基板から金薄膜を除去する要因であり、その際の理論的な見積もり方法を入手する必要がある。そこでここではガラス基板上の金薄膜内部の非定常温度上昇の予測を行う数値計算モデルを開発した^{3,4)}。

図3は計算領域の模式図を示す。図中、上側の水色の領域がガラス基板を、下側のオレンジ色の領域が金薄膜をそれぞれ表し、レーザ光は図の上側からガラス基板を透過して金薄膜で吸収されると考える。金薄膜中の赤く塗られた領域がレーザ照射による温度上昇領域を表す。なお、短時間で進行する現象を考えるため、断熱の境界条件を用いた。

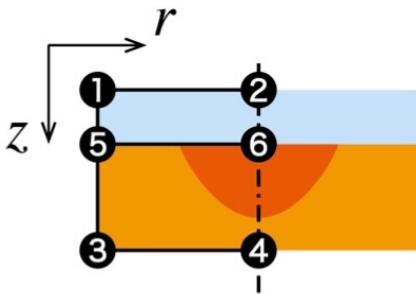


図3 計算領域の模式図

固体内部の温度上昇を求めるためには通常、熱伝導方程式を解けば良いが、フェムト秒レーザのような極短時間の加熱問題の場合、エネルギー伝達のプロセスにも鑑みて、電子と格子の熱的な非平衡性を考慮できるいわゆる2温度モデルによる定式化を行うこととする。

基礎方程式は以下の通りであり、

$$C_e(\partial T_e/\partial t) = \nabla(k_e \nabla T_e) - G \cdot (T_e - T_l) + S \quad (1)$$

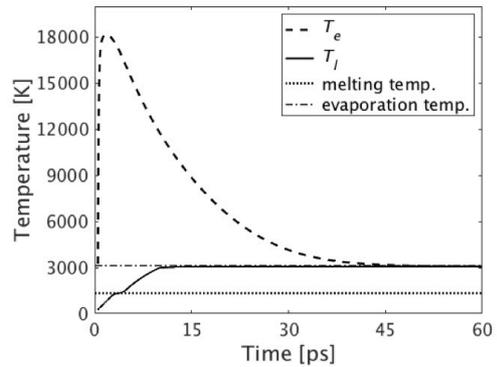
$$\begin{aligned} \rho_e(c_{pl} + L_m \delta_m + L_v \delta_v) (\partial T_l/\partial t) \\ = \nabla(k_l \nabla T_l) + G \cdot (T_e - T_l) \end{aligned} \quad (2)$$

それぞれ電子、格子のエネルギー式である。なお、格子温度を求めるエネルギー式では、溶融・流動は考慮しないものの、相変化による潜熱を考慮した式を用いる。ここで、レーザ照射による加熱は次式で表す。

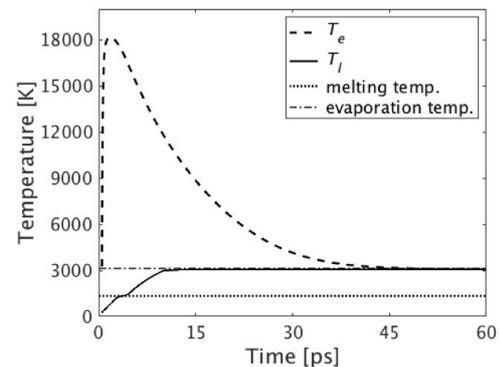
$$\begin{aligned} S = (1 - R) / \{1 - \exp(-\alpha d_{gold})\} \\ \cdot 2\{4(\ln 2) / \pi\}^{0.5} (\alpha F / t_p) \\ \exp\{-(r/r_0)^2 - \alpha z - 4(\ln 2)(t/t_p)^2\} \end{aligned} \quad (3)$$

3.2 計算結果

図4はシングルショットでの非定常温度上昇の計算結果である。図に示す通り、極短時間でエネルギー投入と熱容量の小ささを反映して電子温度は急激な上昇を示したのちに低下し、格子温度と平行に達している。一方、格子温度は照射から数 ps 程度の遅れをもって上昇し、一定値へと漸近し、電子温度と平行に達していく様子が見取れる。パルス幅は 250 fs であるが、格子温度の上昇は数 ps 程度の遅れをもって立ち上がる様子がわかり、今回のように温度上昇起因の材料挙動を考える上での2温度モデルの重要性が理解できる。また、今回の条件で概ね材料が蒸発する温度に達していることもわかる。



(a) 0.96 J/cm²



(b) 2.5 J/cm²

図4 電子・格子温度計算例

非定常の温度上昇は金薄膜内に温度分布を生じながらの現象であることが図5からわかる。この時間領域では全体として電子温度は上昇し、格子温度は低下する。また、図5(a)と(b)から、電子、格子温度ともに照射後2 psではまず照射側の温度が高いものの、40 ps後の図5(c)と(d)では断熱の境界条件で模した空気と接する側の温度が高くなる傾向がわかる。

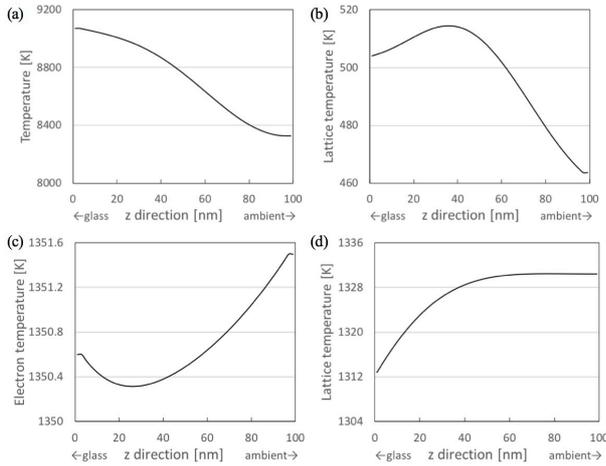


図5 対称軸上での薄膜内厚さ方向温度分布 ((a) T_e at 2 ps, (b) T_l at 2 ps, (c) T_e at 40 ps, (d) T_l at 40 ps)

一方今回のモデルでは電子のバリステック輸送の効果を取り入れている。図6はその効果を取り入れなかった場合との比較を示したものであり、図から明らかなように、バリステック輸送を考慮することで電子、格子温度分布の平坦化がもたらされている。計算結果より、現象としては、薄膜全域でほぼ均一に温度が上がり相変化をもたらす事が考えられる。

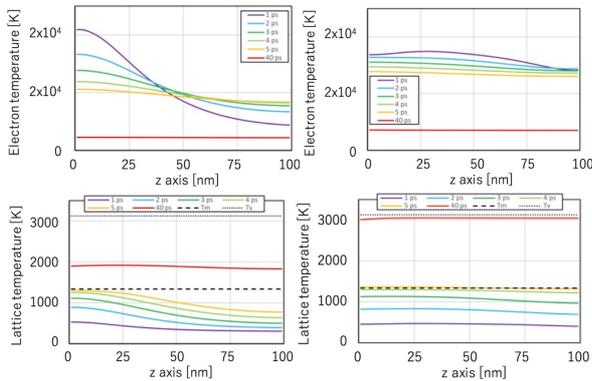


図6 電子のバリステック輸送(EBT)の効果 (左上: T_e , EBT無し、右上: T_e , EBT有り、左下: T_l , EBT無し、右下: T_l , EBT有り)

図7に薄膜内の格子温度分布を示す。図のように比較的一様な温度分布が得られ、全域で相変化を生じて転写が生じる事が考えられる。

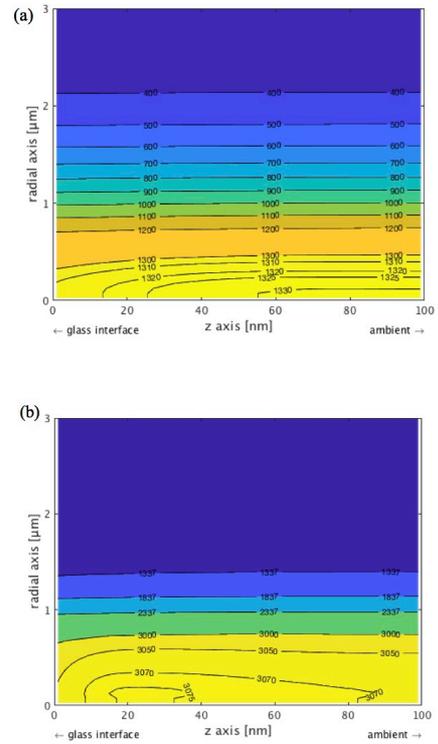


図7 薄膜内格子温度分布 ($t = 40$ ps, (a) 0.96 J/cm^2 , (b) 2.5 J/cm^2)

4. 理論計算の検証

4.1 実験の概要

理論計算はシングルショットの結果であり、これとの比較のためにシングルショットにより LIFT の閾値を求めるための実験を行った。

図8に実験装置を示す。実験で用いたレーザは波長 532 nm の Nd:YAG レーザでパルス幅 5.5 ns、ハイスピードビデオカメラは 220,472 fps である。また、観察のためドナー基板とターゲット基板の間隔は 1 mm とした。

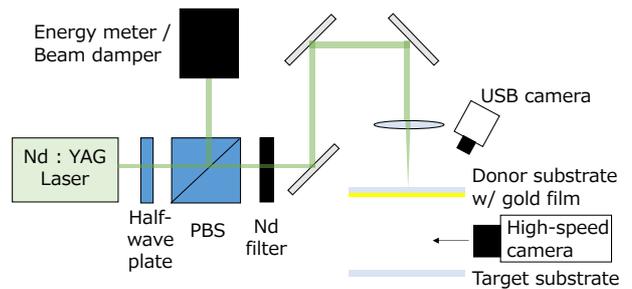


図8 実験装置の模式図

4・2 実験結果

図9は金薄膜をドナー基板側から除去できた確率(除去できた回数/照射回数)のプロットであり、これをLIFT確率と呼ぶ。照射回数は各条件に対していずれも10回である。また、フルエンスはここでもピーク値で整理した。図のように、概ね 1.2 J/cm^2 付近でLIFT確率が0%でなくなり、 1.3 J/cm^2 付近以上では100%となった。また、今回の実験条件では 1.6 J/cm^2 以下では一つの粒子状で放出されるのに対して、 2.5 J/cm^2 以上の2条件においてはスプレー状に飛散する様子が確認された。

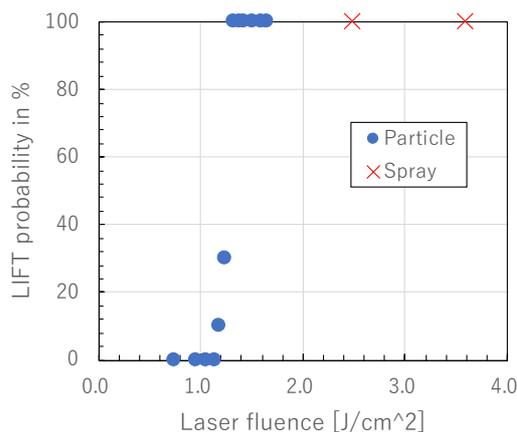


図9 LIFT 確率の実験結果

図10と図11はこの時の高速ビデオカメラの画像を示したものであり、各フレームは上記フレームレートに照らして概ね $4.5 \mu\text{m}$ 間隔で撮影したものである。図10の通り、 1.51 J/cm^2 では粒子状の物質が飛翔する様子が観察される一方で、図11に示すように 2.48 J/cm^2 では飛散した噴霧状の物質がframe #3以降、ターゲット基板上で流動する様子が観察された。これらの結果は数値計算で予測された熔融・蒸発の閾値を与えるフルエンスとも整合するものであり、熔融・蒸発の間のフルエンスで粒子状物質の飛翔が始まり、蒸発の閾値に近づくことで噴霧状の物質飛散が確認される。計算と実験でパルス幅が異なるが、実験の方がパルス幅が長いことを考えると、より大きなフルエンスを要すると考えられることから、結果の整合性については合理的と言える。今後、照射後の物質の熱流動状況をより精緻に解析することで、より正確にこれらの閾値の決定ができるものと考えられる。

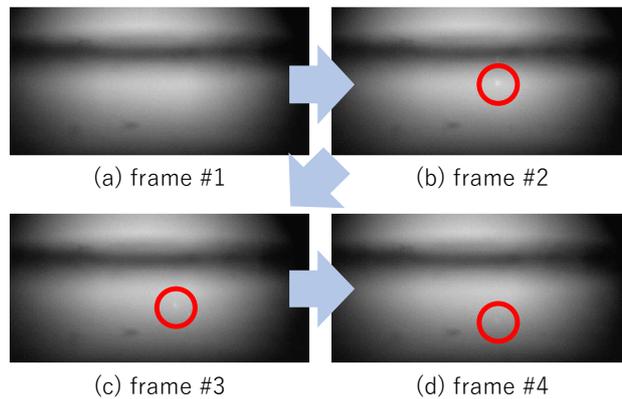


図10 可視化画像 (1.51 J/cm^2)

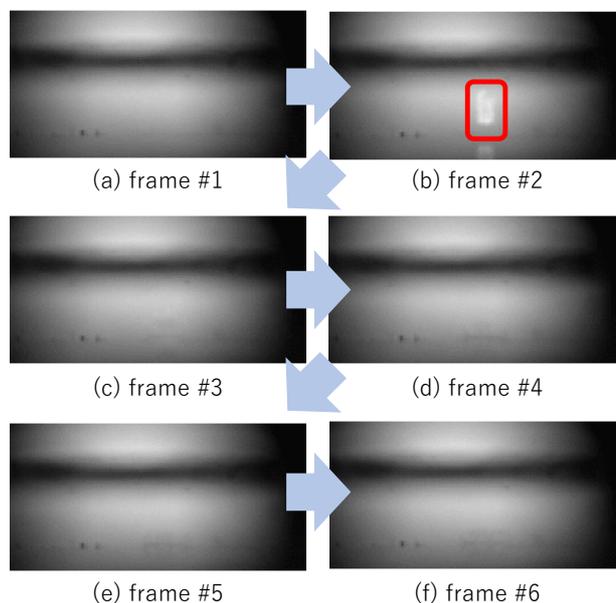


図11 可視化画像 (2.48 J/cm^2)

5. 結言

ビームシェイピングを適切に施すことで回折限界以下の線幅のLIFTを実現できることを確認した。また、その際の現象解明には、とりわけ今回の条件においてはパルス幅数ps以下の超短パルスレーザーを用いる場合には2温度モデルによる理論解析が格子温度の非定常応答をより正確に表現できることを示した。さらにシングルショットによる実験と計算との比較で、相変化を考慮した計算で現象の閾値の領域について整合性のある結果を得る事ができた。

参考文献

- 1) J. Bohandy, B. F. Kim, and F. J. Adrian, Metal deposition from a supported metal film using an excimer laser, *J. Appl. Phys.*, vol. 60, pp. 1538, 1986
- 2) 渡邊 ; 修士論文, 東京工業大学理工学研究科, 2019
- 3) B Kim, H. K. Nam, S. Watanabe, S. Park, Y. Kim, Y-J. Kim, K. Fushinobu, S.-W. Kim, Selective Laser Ablation of Metal Thin Films Using Ultrashort Pulses, *Int. J. of Precis. Eng. And Manuf.-Green Tech.*, DOI 10.1007/s40684-020-00272, 2020
- 4) S. Watanabe, B Kim, S.-W. Kim, K. Fushinobu, Two-temperature modeling of the thermal response of gold thin film under femtosecond laser irradiation, *Proc. ThermaComp2020* (meeting postponed due to the covid-19)
- 5) K. Fushinobu, Key roles of thermal engineering in photonic subtractive/additive manufacturing, 2nd ACTS - Asian Conference on Thermal Sciences 2020, Oct. 3-7, 2020, online (Keynote lecture)