

GHz バーストモード超高繰り返しフェムト秒レーザーパルスを用いたレーザー加工技術の開発

国立研究開発法人理化学研究所 先端レーザー加工研究チーム

研究員 小幡 孝太郎

(2019 年度 一般研究開発助成 AF-2019224-B3)

キーワード：フェムト秒レーザー，GHz バーストモード，微細加工

1. はじめに

フェムト秒レーザーを用いたレーザーブレイションは、レーザーのパルス幅が電子から格子へのエネルギー伝達時間よりも短いため、レーザーブレイション領域周辺の熱影響部 (Heat-Affected Zone: HAZ) の形成を抑制し、マイクロスケール、さらにはナノスケールでの高品質で高精度な加工を実現することが知られている¹⁻³⁾。また、非常に高いピーク強度により、レーザー光を透明材料に対して効率良く多光子吸収を誘起させることによって、強い吸収を生じさせることができる。近年、数百ピコ秒の極短い時間間隔をもつフェムト秒パルス列 (イントラパルス列) で構成されている GHz バーストモードを用いたフェムト秒レーザー加工は、従来のフェムト秒レーザー加工を超える高品質、高効率加工を実現し、その応用が期待されている⁴⁻¹⁵⁾。GHz バーストモードフェムト秒レーザーパルスを加工対象となる材料へ照射した場合、従来のフェムト秒レーザーパルスの照射方式 (シングルパルスモード) と比較して、レーザー照射による急峻な加熱・冷却を抑制したアブレーションを誘起する特徴をもつ。Ilday のグループによって実施された GHz バーストモードによるフェムト秒レーザーアブレーションの報告では、レーザーパルスで発生した熱が加工領域外に拡散する前にターゲット材料をアブレーションし、蓄積された熱の大部分をアブレーション

された材料とともに除去する (アブレーション冷却) ことで、熱影響の少ない高品質のアブレーションを実現すると述べている⁴⁾。さらに、GHz バーストモードによるアブレーションでは、アブレーション効率が向上する (1 桁以上) ことも示している。これらの成果は、レーザーマイクロ・ナノプロセッシングの分野に大きな影響を与え、複数の研究グループがこれに追隨して GHz バーストモードによるアブレーションの研究を加速させている⁴⁻¹⁵⁾。本研究では、GHz バーストモードアブレーション加工技術の実用化を目標として、金属加工へ応用した場合の加工効率と品質に関する研究結果を報告する。

2. 実験方法

図 1 に、フェムト秒レーザーを用いた GHz バーストモードアブレーション実験装置の概略図を示す。アブレーションは、中心波長 1030 nm の Yb:KGW 高出力フェムト秒レーザーシステム (Light conversion Ltd., Pharos, パルス幅: 220 fs) から得られた超短パルスレーザーを用いて行なった。本フェムト秒レーザーシステムでは、一定の繰り返し周波数を持つ通常のフェムト秒レーザーパルス (シングルパルスモード) と同一の波長とパルス幅を持つ GHz バーストモードフェムト秒レーザーパルス (GHz バーストモード) を装置構成の変更をすることなく発生させることができる。

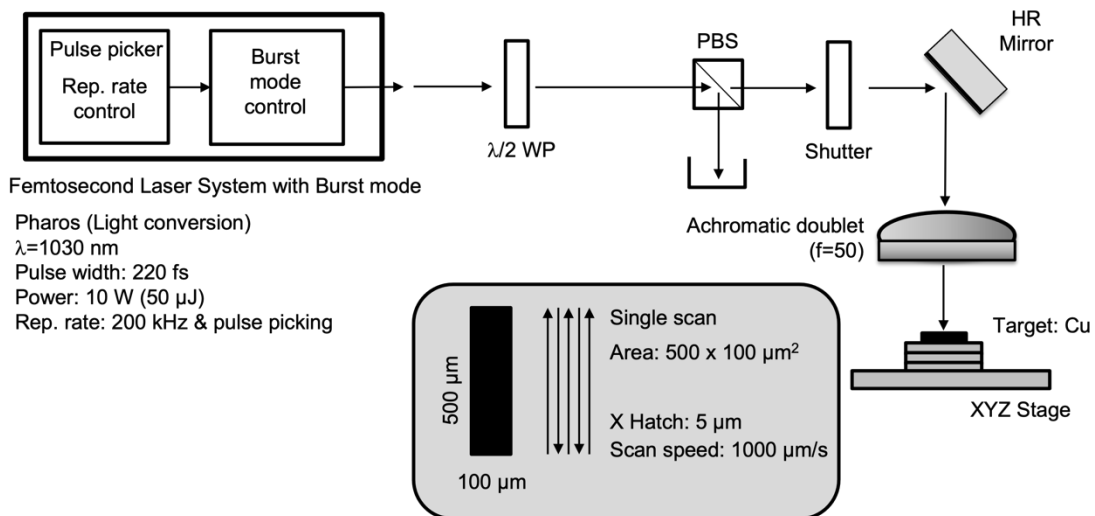


図 1 GHz バーストモードフェムト秒レーザー加工装置の概略図。

GHz バーストパルス列 (イントラパルス列) に含まれるパルス数は最大 25 パルスまで調整可能である. 図 2 に, 高速フォトディテクター (Elecrto-Optics Technily, Inc., ET-3500) で観測した (a) 10 パルスで構成する GHz バーストパルス波形と, 比較として (b) シングルパルスモードのパルス測定波形を示す. バーストパルス内の各パルス (イントラパルス) は, 205 ps (周波数 4.88 GHz) の一定の間隔を有している. このパルス間隔は, イントラパルス数を変更した場合でも 205 ps 一定の間隔を維持する. また, 各イントラパルスのパルス幅は, イントラパルス数に関わらず, シングルパルスモードのレーザーパルスと同一のパルス幅 (220 fs) を維持している. パルス列を構成する各イントラパルスのパルスエネルギーは, シングルパルスモードで設定されたパルスエネルギーをバーストパルス内のイントラパルス数で割った値とほぼ同じである. イントラパルスのエネルギーは, 各種パラメーター制御によって, ほぼ一定となるように調整されている. しかし, バーストパルス列を発生させるレーザーシステム内部の電気光学系の特性上, イントラパルス列の最後尾のパルスが非常に強くなっている. また, 最後尾のパルス後には, ごくエネルギーの

弱いパルスが含まれる. ターゲット材料へ照射されるレーザーパルスのパルスエネルギーは, 半波長板 ($\lambda/2$ WP) と偏光キューブビームスプリッター (PBS) からなる偏光光学素子を用いて調整し, 機械シャッター (Shutter) で照射パルス数を制御した. レーザーパルスは, 焦点距離 50 mm のアクロマートレンズ (Achromatic doublet) で直径 19.2 μm のスポット径に集光し, 試料表面へ照射した. 試料には, 無酸素銅板 (寸法: 10 mm \times 10 mm, 厚さ 2 mm, JIS: C1020) を使用した. 試料は, コンピュータ制御の XYZ ステージ (シグマ光機株式会社, OSMS20-85) にセットし, 実際の 2 次元平面上へのレーザー直接描画による加工を想定して, 走査速度 1000 $\mu\text{m}/\text{s}$, ピッチ 5 μm でレーザービームを 1000 \times 500 μm^2 の領域に走査した. 加工領域のサイズは, ステージが移動方向を変更する際に発生する加減速によってレーザーパルスが過照射される領域と, 加工領域周辺に形成される傾斜領域を分析結果から除去して, 平坦な加工領域のみからの実験データを考察するために決定された. アブレーション処理後, レーザー走査型顕微鏡 (Zeta Instruments Inc, Zeta-20) および走査型電子顕微鏡 (SEM) (Thermo Fisher Scientific K. K., Quattro S) を用いて, アブレーションした領域の深さおよび表面形態をそれぞれ評価した.

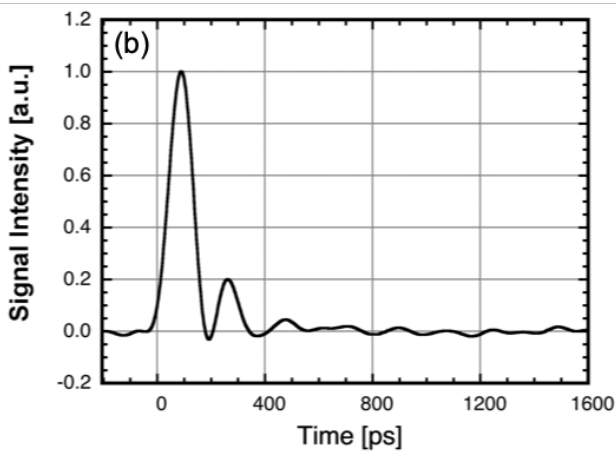
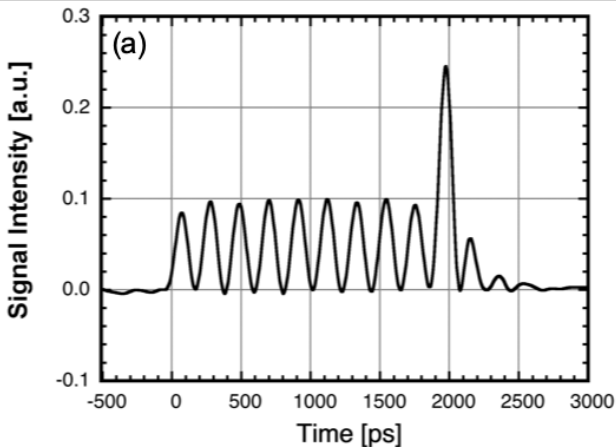


図 2 高速フォトディテクターで観測した (a) 10 パルスで構成する GHz バーストパルス波形と, 比較として (b) シングルパルスモードのパルス波形.

3. 実験結果および考察

図 3 に, バーストパルス内のイントラパルス数を異なるパルス数 (2 ~ 25 パルス) で銅のアブレーションを行なった場合におけるアブレーション深さの入力レーザーパワー依存性を示す. 比較のため, シングルパルスモードのアブレーション結果も示す. バーストモード, シングルパルスモードとも, 繰り返し周波数は 200 kHz である. バーストモードで銅試料をアブレーションした場合, 同じ入力レーザーパワーでのアブレーションの深さが総じて浅く, GHz バーストモードのアブレーション効率はシングルパルスモードよりも低いことがわかった. バーストモードでは加工効率が低下する理由の一つとして, プラズマ遮蔽の影響が考えられる. レーザーアブレーションによって誘起されたプラズマの生成時間は, ターゲットとなる材料や照射されるレーザーの条件に依存するが, レーザー照射後 10 ps ~ 数 ns の時間スケールで発生し, その時間スケール以降に入射されたレーザー光を遮蔽する. 特に銅をターゲットとしたアブレーションの場合, 10-50 ps からプラズマの膨張と密度の増加が始まり, 1 ns 付近で最大になる¹⁶⁾. 本実験で用いられたパルス間隔が 205 ps であるイントラパルス列のアブレーションを考えると, 2 番目のイントラパルスからプラズマ遮蔽の影響を受け始め, その後プラズマ遮蔽効果は増長する. 以降, 約 1 ns でプラズマ遮蔽効果は飽和するため, 5 番目以降のイントラパルスは, 1 番目のイントラパルスと比較して, プラズマの遮蔽効果が最大となり, アブレーションに寄与できるエネルギーが激減するため, シングルパルスモードと比較して全体の加工効率が低下すると考えられる. 別の理由としてアブレーション

シオン冷却を仮定するならば、バーストモードアブレーションによりターゲット内部温度が低下し、レーザーパルスで発生した熱のターゲット内部への拡散を抑制するため、熱が発生した領域（レーザー光が吸収された領域）近傍のみでアブレーションが生じ、加工深さが減少したと考えられる。一方、シングルパルスモードアブレーションでは、発生した熱の一部がターゲット内部に拡散し、レーザー光照射領域よりも深い領域がアブレーションされている可能性がある。シングルパルスモードのレーザーアブレーションで用いられたレーザーパルスのパルスエネルギーは、入力レーザーパワーを繰り返し周波数で割った値であるが、バーストモードのイントラパルスエネルギーは、それをバーストパルス内のイントラパルス数でさらに割った値となる。バーストパルス内のパルスエネルギーは、シングルパルスモードではアブレーション閾値以下であるにも関わらずアブレーション加工が生じている。この結果は、GHz 周波数領域の超高繰り返しレーザーパルス列であるバーストモードの照射によって、ターゲット材料内に発生した熱が加工領域からターゲット材料内部に拡散する前に後続パルスが入射され、アブレーションを連続的に誘起したためと考えられる。

イントラパルスエネルギーをシングルパルスモードのパルスエネルギーと同じにして 10 イントラパルスからなるバーストモードでアブレーションを行った場合の、アブレーション深さの入力レーザーパワー依存性を図 4 に示す。実験は、照射領域に投入されるバーストモードとシン

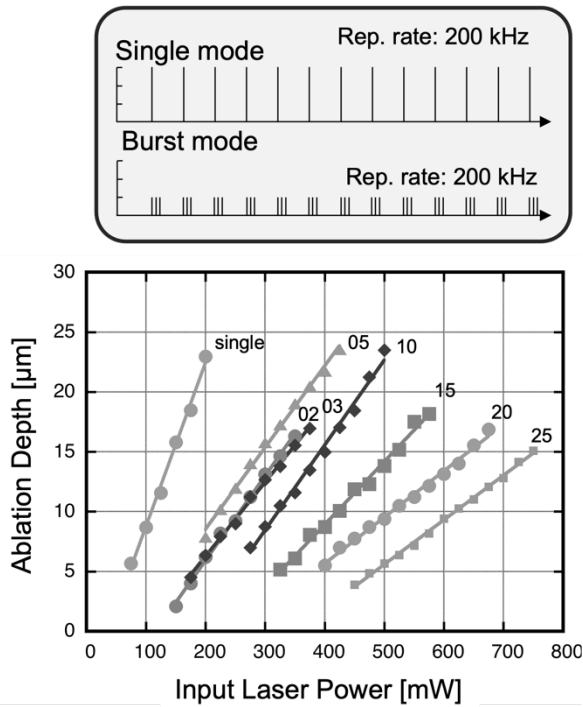


図 3 異なるイントラパルス数での GHz バーストモード加工によるアブレーション深さの入力レーザーパワー依存性。

グルパルスモードの総パルス数が同一になるように、繰り返し周波数をシングルパルスモードでは 200 kHz、バーストモードでは 20 kHz とした (図 4 上部)。シングルパルスモードの場合、アブレーション閾値は、おおよそ 100 mW となり、この閾値以下ではアブレーションが発生しなかった。一方で、10 イントラパルス列のバーストモードでは、アブレーション閾値が 25 mW となった。すなわち、バーストモードアブレーションでは、シングルパルスモードでのアブレーションと比較して、アブレーション閾値が 1/4 に低下した。一方、シングルパルスモードでのアブレーション閾値となる 100 mW でのバーストモードのアブレーション深さは、シングルパルスモードアブレーションとほぼ同じであるが、入力レーザーパワーが増加すると、バーストモードでのアブレーションは、シングルパルスモードの場合よりも著しく減少している。レーザーパワーが 150 mW でのバーストモードでのアブレーション深さは、シングルパルスモードのアブレーション深さの半分以下である。つまり、入力レーザーパワーを関数とするアブレーション深さの直線の傾きは、バーストモードの方が遥かに小さい。これは前述した通り、アブレーション冷却を仮定した場合、ターゲット材料内部への熱拡散の抑制効果によって説明できる。すなわち、バーストモードではレーザー光のエネルギーが吸収された領域近傍のみでアブレーションが生じるのに対し、シングルパルスモードアブレーションでは熱の拡散によりより深い領域がアブレーションされたためと推察される。同時に、アブレーション閾値の減少は、熱拡散の抑制によりレーザーのエネルギーがより有効に

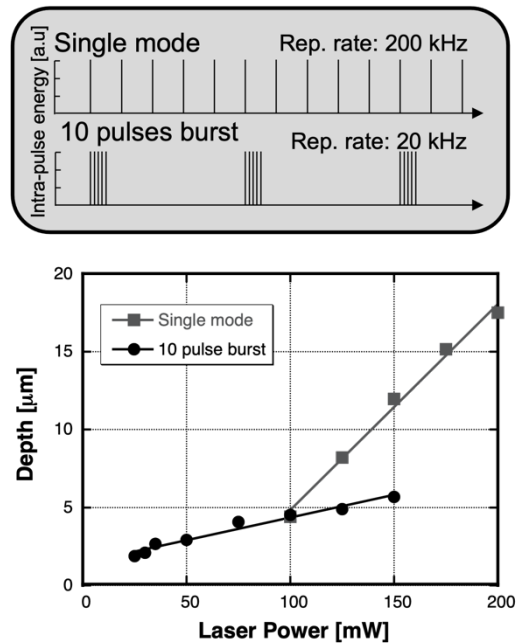


図 4 同一イントラパルスエネルギーでのアブレーション深さの入力レーザーパワー依存性。

アブレーションに利用されたためではないかと考察される。従って、バーストモードでのアブレーションは、シングルパルスモードの場合と比較してアブレーション効率は低下するものの、加工深さを精密制御可能な加工法といえる。

アブレーションされた領域の表面形状を SEM で観察した。図 5 にシングルパルスモード (a) と 2 イントラパルス列で構成されたバーストモード (b) で作製した試料の SEM 像を示す。SEM 観察には、図 3 の実験で作製されたアブレーション深さが約 10 μm となる試料をそれぞれ用いている。シングルパルスモードのレーザーアブレーションで作製された試料の加工領域の表面形状は、レーザーの走査方向に沿って平行な線状の溝が形成されている。さらに加工領域は、レーザー照射前と比較して表面粗さが増大している。一方、バーストモードでアブレーションした試料の表面形状は、シングルパルスモードで形成された線状の溝は見られず、滑らかな表面形状を示している。バーストモードアブレーションで得られた滑らかな加工面は、アブレーション冷却が一つの要因として考えられる。すなわちアブレーション冷却により、非熱的な加工が実現され、平坦な表面が得られた。これらの加工形状に大きな差が発生する要因として、シングルパルスモードアブレーションでは熱影響領域の形成により粗い加工表面形状になったのではないかと考えられる。また別の要因として熱影響領域の

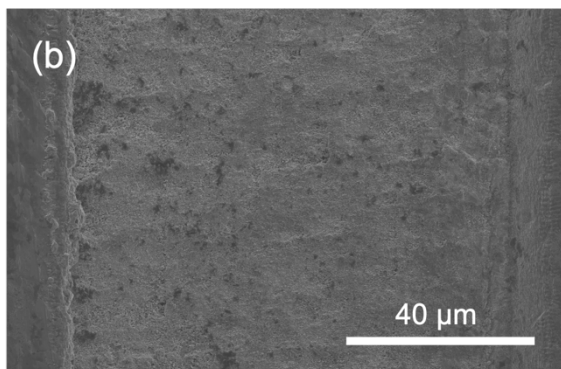
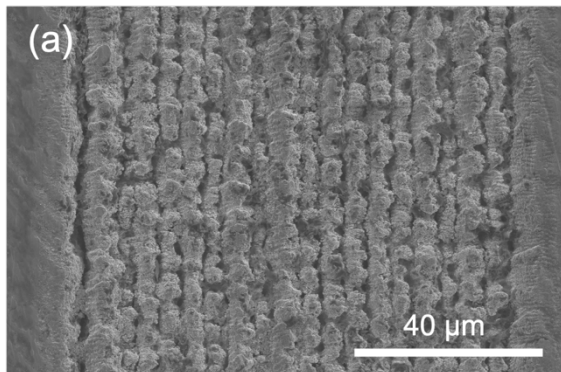


図 5 加工痕の SEM 観察像 ((a)シングルパルスモード, (b)GHz バーストパルス (2 イントラパルス))。

急峻な加熱・冷却サイクルの緩和があげられる。バーストモードでは、レーザー照射によって加熱・冷却サイクルが繰り返されるが、イントラパルス列による比較的小さいパルスエネルギーの連続的なレーザー照射により、急峻な加熱・冷却を抑制することができる。すなわち、熱影響による試料の溶融、再固化が緩やかに行なわれたことによって滑らかな表面形状を形成したと考えられる。以上の結果は、GHz 領域の超高繰り返し周波数でレーザーアブレーションを行うと、アブレーション冷却の影響によって、試料内に生じる熱拡散を抑制する仮説を裏付けるものである。また GHz バーストモードによる低アブレーション速度での精密なアブレーションは、より滑らかなアブレーション面の実現に寄与する。その結果、銅の GHz バーストモードによるアブレーションは、より品質の高いアブレーション表面を形成するために有効であると考えられる。

4. 結論

GHz バーストモードフェムト秒レーザーパルスを用いた銅試料のアブレーション加工特性を検討した。その結果、バーストモードフェムト秒アブレーションは、従来のシングルパルスモードフェムト秒レーザーアブレーションと比較して、アブレーション効率が低下することがわかった。一方で、バーストパルスのイントラパルスエネルギーは、シングルパルスモードにおけるアブレーション閾値より小さいにも関わらずアブレーション加工が生じる。この結果は、GHz オーダーの超高繰り返しレーザーパルス列であるバーストモードの照射によって、ターゲット材料内に発生した残留熱が加工領域から拡散する前に、後続のパルスが照射され、アブレーションを連続的に誘起したためと考えられる。また、イントラパルスエネルギーと照射パルス数をシングルパルスモードと同一にして 10 イントラパルスのバーストモードでアブレーションを行った結果、従来のシングルパルスモードアブレーションと比較して、アブレーション閾値が 1/4 に減少した。加工領域の表面観察から、GHz バーストモードによるアブレーションでは、アブレーション加工領域の平坦性がシングルパルスモードと比較して改善されることを見出した。以上のことから、GHz バーストパルスによる銅レーザーアブレーションは、精密な加工深さ制御と、より高品質なアブレーション表面を形成するために有効な手法であると考えられる。一方、最近の実験結果では、異なる材料に対しては異なる特性を示すことが観察されており、今後多様な材料に対して GHz バーストパルスアブレーションの加工特性を検討することが必要である。

謝 辞

本研究を行うにあたり、公益財団法人天田財団一般研究開発助成 (レーザープロセッシング: AF-2019224-B3, 2019 年度) の助成をいただいたことに感謝いたします。

参考文献

- 1) K. Sugioka, and Y. Cheng: Ultrafast lasers—reliable tools for advanced materials processing, *Light Sci. Appl.* **3** (2014) e149.
- 2) S. Nolte, F. Schrepel, and F. Dausinger: Ultrashort pulse laser technology, *Springer Series in Optical Sciences* (2016) 195.
- 3) K. C. Phillips, H. Gandhi, H. E. Mazur, and SK. Sundaram: Ultrafast laser processing of materials: a review, *Advances in Optics and Photonics* **7** (2015) 684.
- 4) C. Kerse, H. Kalaycıoğlu, P. Elahi, B. Çetin, D. K. Kesim, Ö. Akçaalan, S. Yavaş, M. D. Aşık, B. Öktem, H. Hoogland, R. Holzwarth, and F. Ö. Ilday: Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses, *Nature* **537** (2016) 84.
- 5) K. Mishchik, G. Bonamis, J. Qiao, J. Lopez, E. Audouard, E. Mottay, C. Hönniger, and I. Manek-Hönniger: High efficiency femtosecond ablation of silicon with GHz repetition rate laser source, *Opt. Lett.* **44** (2019) 2193.
- 6) G. Bonamis, E. Audouard, C. Hönniger, J. Lopez, K. Mishchik, E. Mottay, and I. Manek-Hönniger: Systematic study of laser ablation with GHz bursts of femtosecond pulses, *Opt. Exp.* **28** (2020) 27702.
- 7) D. Metzner, P. Lickschat, and S. Weißmantel: High-quality surface treatment using GHz burst mode with tunable ultrashort pulses, *Appl. Surf. Sci.* **531** (2020) 147270.
- 8) N. Hodgson, H. Allegre, A. Starodoumov, and S. Bettencourt: Femtosecond laser ablation in burst mode as a function of pulse fluence and intra-burst repetition rate. *J. Laser Micro Nanoeng.* **15** (2020) 236.
- 9) D. Metzner, P. Lickschat, and S. Weißmantel: Optimization of the ablation process using ultrashort pulsed laser radiation in different burst modes, *J. Laser Appl.* **33** (2021) 012057.
- 10) A. Žemaitis, M. Gaidys, P. Gečys, M. Barkauskas, and M. Gedvilas: Femtosecond laser ablation by bursts in the MHz and GHz pulse repetition rates, *Opt. Exp.* **29** (2021) 7641.
- 11) H. Matsumoto, Z. Lin, J. N. Schrauben, and J. Kleinert: Ultrafast laser ablation of silicon with ~GHz bursts, *Journal of Laser Applications* **33** (2021) 032010.
- 12) K. Obata, F. Caballero-Lucas, and K. Sugioka: Material processing at GHz burst mode by femtosecond laser ablation, *J. Laser Micro Nanoeng.* **16** (2021) 19.
- 13) K. Sugioka: Will GHz burst mode create a new path to femtosecond laser processing?, *Int. J. Extrem. Manuf.* **3** (2021) 043001.
- 14) D. J. Förster, B. Jäggi, A. Michalowski, and B. Neuenschwander: Review on Experimental and Theoretical Investigations of Ultra-Short Pulsed Laser Ablation of Metals with Burst Pulses, *Materials*, **14** (2021) 3331.
- 15) F. Caballero-Lucas, K. Obata, and K. Sugioka: Enhanced ablation efficiency for silicon by femtosecond laser microprocessing with GHz bursts in MHz bursts (BiBurst), *Int. J. Extrem. Manuf.* **4** (2022) 015103.
- 16) D. J. Förster, S. Faas, S. Gröninger, F. Bauer, A. Michalowski, R. Weber, and T. Graf: Shielding effects and re-deposition of material during processing of metals with bursts of ultra-short laser pulses, *Appl. Sur. Sci.* **440** (2018) 926-931.