自動パラメータ可変技術による超短パルスレーザー加工の パルス幅・繰り返しレート依存性の広域連続的分析

国立研究開発法人産業技術総合研究所 電子光基礎技術研究部門 主任研究員 吉富 大 (2020年度 一般研究開発助成 AF-2020222-B3)

キーワード: 超短パルスレーザー,パルス幅,繰り返しレート

1. 研究の目的と背景

フェムト秒~ピコ秒の超短パルスレーザーを用いたレ ーザー加工は,加工部位への熱影響を低減した高品位な加 工が可能となることから、金属・ガラス・セラミックス・ 樹脂・複合材など多種多様な材料の微細加工において極め て有用な技術となっている¹⁾. 超短パルスレーザー加工の ダイナミクスはまだ完全には解明されていないが、概略的 には次のように理解されている²⁾. レーザー光を物質に照 射すると、電子励起を伴って光は物質に吸収される. 高い エネルギーを得た電子系は電子間の散乱を通して,高温の 熱平衡状態に達する.電子系のエネルギーは電子格子相互 作用を通して,格子系へ移動し,物質の急速な加熱による 相変化や相爆発が起き、物質の除去が起きると考えられる. 最も簡単なモデルとしては,電子温度と格子温度の変化を 記述した二温度モデルで議論されることが多い^{3~6)}.レ ーザーのパルス幅が電子格子緩和時間よりも十分長い場 合は,平衡化後の一温度モデルで考えることができ,熱拡 散による侵入長の寄与から加工の閾値フルーエンスがパ ルス幅の平方根に比例することが知られる.パルス幅が電 子格子緩和時間と同程度かそれよりも短くなると、平衡に 至る前の電子の熱拡散が関与し、単純な平方根則では記述 できなくなる⁷⁾. このように、レーザー加工現象はパルス 幅に大きく依存する^{8~21)}.

さらに吸収過程を詳しく考えると、金属の場合はドルー デモデル(イオンによる散乱を考慮した自由電子モデル) で理解されるが²⁾,半導体や誘電体の場合は非線形吸収 (多光子過程やトンネリング)に続いて衝突電離が始まる ことで加速的に電子密度が増加し、金属的なふるまいを示 すようになる.非線形吸収は光のピーク強度に依存し、衝 突電離もレーザー電場の強さに依存するため、パルス幅が 現象を決める重要なパラメータとなる^{9,12)}.

レーザー加工はレーザーパルスの繰り返しレートにも 大きく依存する^{22~27)}.繰り返しレートを変えることは, パルスの間隔を変えることと同義であり,先行パルスの残 存効果が後続パルスへ与える影響に関係する.パルス間隔 が熱拡散時間よりも短くなると,加工部に熱が蓄積される 効果が現れる^{22~24)}.繰り返しが GHz 領域のバースト加 工では,低繰り返しの加工に比べて加工効率が向上するこ とが報告されている^{25~27)}.また,パルス間隔がアブレ ーションにより生じたプルームが消失する時間よりも短 いと,後続パルスの照射がプルームにより妨げられるシー ルド効果が起きる^{22,28)}.

このように、レーザー加工はパルス幅や繰り返しレート に大きく依存することから、加工速度や品位が最適となる パルス幅や繰り返しレートの領域(プロセスウィンドウ) を見出すためには、パルス幅や繰り返しレートの広域連続 的な依存性を調べ、最適化することが重要となる.しかし、 広域連続的に複数のパラメータを可変した加工データを 収集するためには、手動でのパラメータ調整では限界があ る.我々はこれまで、パルス幅やパルスエネルギー・繰り 返しレートなどの複数パラメータを広域連続的に自動可 変制御できる超短パルスレーザー加工装置を開発してき た^{20,29)}.本装置を用いると、レーザーパラメータ可変 制御と同期して、加工装置のステージ制御を行うことがで きるため、パラメータ可変加工データを効率的に収集する ことが可能である.

本研究では、パラメータ自動可変超短パルスレーザー加 工装置を用いて、金属やガラスにおいて超短パルスレーザ ー加工のパルス幅や繰り返しレートの広域連続的分析を 行った.このような広域連続的分析を行うことによって, 例えば,所望の品位の穴あけ加工を行うために,フェムト 秒レーザーではなく、100 ピコ秒レーザーでも目的に十分 な加工品位が得られるならば、大きな設備投資や維持コス トの削減を見込むことができる.実際に何ピコ秒以下であ れば所望の品位が得られるかなどを知るためには、広域連 続的な分析が必要である.また、一定の平均パワーに対し て、繰り返しレートとパルスエネルギーはトレードオフの 関係になるが、これらの組み合わせを適切に選ぶことによ り、エネルギー効率を最適にした加工が実現できる. 上記 のような実用的意義に加えて、パルス幅や繰り返しレート 依存性を詳細に調べることは, 超短パルスアブレーション に関与する物理過程を詳細に理解するうえでも,連続的な パラメータ依存性データは非常に有効であると考えられ る.

2. 研究方法

本研究では我々が開発したパラメータ自動可変超短パ ルスレーザー加工装置を用いた.本装置の構成を図1に示 す.レーザー光源として,イッテルビウム添加ファイバー を用いた超短パルスチャープパルス増幅器を開発し,パル ス圧縮器の回折格子を自動ステージに載せ,回折格子間隔 を自動制御することにより,パルス幅の3桁広域可変性 (400 fs~400 ps)を実現している.この時間領域は,物 質依存が大きい電子格子相互作用の緩和時間が分布する 領域であり,パルス幅による熱影響の違いが顕著に現れ, 興味深い時間領域である.また,最終増幅器の後には音響 光学変調器を設置し,パルスエネルギー・ショット数・繰 り返しレートの制御を行った.パルスエネルギーは2桁の 範囲で,ショット数はシングルから無限まで任意に,繰り 返しレートは1 MHz の任意分数周波数で可変制御可能で ある²⁹⁾.

パルス幅・パルスエネルギー・ショット数・繰り返しレ ートのパラメータと,照射系のガルバノスキャナーやサン プルステージはすべて,単一のプログラムから制御可能に なっており,任意の手順でパラメータを可変しながら,所 望の位置に所望の形状の加工を自動的に行うことができ る.マトリックス状にパラメータを変えながら照射するこ とにより,データ収集を自動で行うことができる³⁰⁾.マ トリックス状に照射すれば,市販のレーザー共焦点顕微鏡 で3D形状を自動測定できる.測定した多数の形状データ から加工痕の深さと除去体積を自動解析するPythonのソ フトウェアを開発した.これにより,例えばパルス幅 25 条件×パルスエネルギー18条件の計 450条件でのパーカ ッション加工における除去体積のデータを加工 20分・計 測 8時間・解析 30分の計 9時間程度で収集することがで きる.

3. 研究成果

3・1 金属の穴あけ加工におけるパルス幅依存性

産業部材として多く用いられる 3 種類の代表的な金属 である銅・アルミニウム・ステンレス (SUS304) への穴 あけ加工を行い,パルス幅に対する広域連続的な依存性を 調べた.レーザーの波長は 1033 nm,繰り返しレートは 1 MHz であり,焦点距離 100 mm のf θ レンズを通してサ ンプル上に集光した.集光直径は 42 µm,平均フルーエ ンスは 2.2 J/cm² であり,100 ショットを照射した.パル ス幅を 400 fs から 200 ps まで変えて照射し,加工痕の 3 次元形状をレーザー共焦点顕微鏡で測定した.3次元形状 をもとに計算した加工レート(除去体積をショット数で除 した値)を図 2 (a) に示す.

3種類の金属すべてにおいて、短パルス領域ではパルス 幅が長くなるにつれ、加工レートが減少していく様子が見 られた.このことは、アブレーション閾値が増加している ことに対応している.先行研究によると、パルス幅が長く なると、深部への熱拡散によってエネルギーが散逸するた め、アブレーション閾値が増加すると考えられる⁸⁾.詳細 に見ると、銅の場合はパルス幅の増加とともに 200 ps に 至るまで加工痕の体積が単調に減少を見せているのに対 し、アルミやステンレスの場合は体積の極小点が存在して いる.これらの金属は熱伝導率(表1)が大きく異なり、

表1 各種金属の熱伝導率³¹⁾

金属の種類	熱伝導率(W/mK)
銅	394
アルミニウム	222
SUS304	16



図1 パラメータ自動可変レーザー加工装置の概略図



図2 (a)銅・アルミ・ステンレスの穴あけ加工における 加工レートのパルス幅依存性 (b)銅・アルミの加工痕の SEM 画像

パルス幅依存性の違いに熱伝導の影響が関係していると 推察している.

また、パルス幅による加工の様子の違いを見るために、 走査型電子顕微鏡 (SEM) による加工痕の詳細な観察を 行った. 図2(b)は、銅とアルミにおいて、異なるパルス 幅に対する加工痕の SEM 観察像を示している.アルミの 場合,パルス幅が長くなると,熱影響による溶融再固化の 痕跡とみられるリムが顕著に発生していることが分かる. 一方,銅の場合はそれほど顕著には見られなかった.これ らの違いは熱伝導率の違いに起因すると思われる.

3・2 金属の穴あけ加工における繰り返しレート依存性

次に、銅とアルミの穴あけ加工における繰り返しレート に対する広域連続的な依存性を調べた.照射条件は前節と 同様で、繰り返しレートを 100 Hz から1 MHz まで変化 させた.図3にパルス幅400 fs, 10 ps, 200 ps における 加工レートの繰り返しレート依存性を示す.銅では3種類 のパルス幅において、繰り返しレートにほとんど依存しな い結果が得られたのに対し、アルミでは 400 fs と 10 ps において,繰り返しレートに対して加工レートが増加する 結果が得られた. 先行研究では, 主に 100 kHz~1 MHz の繰り返しレートにおいて, 蓄熱効果による加工レートの 増加とプルームのシールド効果による加工レートの減少 が報告されている.本研究の結果では、アルミにおいて高 繰り返しでの加工レートの増加が見られたが,銅において は見られなかった. アルミに比べて, 銅の熱伝導率が高い ためと考えられる.一方で先行研究に比べて低繰り返し領 域(1 kHz 程度)から増加が見られることや長パルス(200



図3 銅とアルミの穴あけ加工における各パルス幅で の加工レートの繰り返しレート依存性

ps)では増加が見られないことは単純な蓄熱効果だけでは 説明できず,他にも要因があると考えられるが、詳細はま だ明らかではない.

次に,繰り返しレートに対する加工品質への影響を調べた.加工痕を光学顕微鏡で観察したところ,低繰り返しで は加工痕周囲に変色が見られた.この原因を探るために, SEM 観察を行った結果を図4に示す.銅では10 kHz, 100 Hz の低繰り返しでデブリの増加が見られた.アルミ では10 kHz でデブリ量が極大となり,粒径数ミクロンの デブリも見られた.変色の傾向と符合しており,変色の原 因はデブリであると考えられる.エネルギー分散 X 線分 光法(EDS)による元素分析を行った結果,デブリの多 い条件では酸素濃度の増加が見られたため,酸化物のデブ リが生成して堆積したと考えられる.繰り返しレートによ ってデブリの発生量が変わる理由については明らかでは ない.粒子が発生し飛散する時間スケールと後続パルスと の間隔の時間スケールに関係していると考えられるが,詳 細についてはさらなる実験的検討を要する.



図4 銅とアルミの加工痕のSEM 画像(パルス幅 400fs) 下段は上段の赤枠箇所を高倍率で観察した画像である.

3・3 ガラスの穴あけ加工におけるパルス幅依存性

次に, ガラスの穴あけ加工におけるパルス幅依存性を調べた. ガラスとしては, 光学材料としてよく用いられるシ リカガラスと工業的に重要な無アルカリガラスの Eagle XG (Corning)を対象とした. 照射条件は前節と同様で あるが, 集光直径は 35 μm である. パルス幅を 400 fs か ら 200 ps まで, 平均フルーエンスを 0.1 J/cm² から 5.2 J/cm² まで変化させたときの加工レートのマッピングを 図 5 に示す. いずれのガラスでも長パルス領域では加工が 起きなかった. レーザー波長に対して透明な材料では非線 形吸収が加工の開始点となるため,長いパルスではアブレ ーション閾値を超えるエネルギー吸収に必要な電場強度 が得られないからと考えられる.照射した最大フルーエン ス 5.2 J/cm²において,加工が起きる最長のパルス幅はシ リカガラスと Eagle XG でそれぞれ 30 ps と 50 ps であっ た.シリカガラスの方が Eagle XG に比べて吸収端が短波 長であることから,初期の非線形吸収により大きな電場強 度が必要となり,短パルスである必要があるからと考えら れる.



図5 シリカガラスと Eagle XG の穴あけ加工における加 エレートのパルス幅とフルーエンス依存性

シリカガラスの加工閾値フルーエンスのパルス幅依存 性を注意深く見ると、最短のパルス幅 400 fs の場合より も1 ps 以上の場合において閾値が低くなっている. 先行 研究によれば、シリカガラスの加工は非線形吸収による電 子励起から始まるが、その後、破壊が起きる臨界電子密度 (10²¹ cm⁻³ 程度)に達する過程では、励起電子がレーザ 一電場から加速を受けて原子に衝突することによる衝突 励起による電子密度増加が支配的である.フェムト秒パル スでは非常に短時間の間に臨界電子密度に達する必要が あり、より大きなレーザー電場が必要となり、閾値を増加 させることになる.一方でパルス幅が長くなると、ピーク 強度が低くなり、より大きなフルーエンスが必要となるた め、やはり閾値を増加させる⁹⁾. Eagle XG においても同 様のことが起きると考えられるが、より詳細な測定が必要 である.

4. まとめと今後の展望

本研究では、金属とガラスにおける超短パルスレーザー 加工において、レーザーのパルス幅と繰り返しレートに対 する依存性の広域的な調査を行った. 銅・アルミ・ステン レス (SUS304)の3 種類の金属について、400 fs から 200 ps までのパルス幅依存性を調べた. 加工レートはパ ルス幅が長くなるにつれて減少する一般的な傾向が見ら れたが、アルミやステンレスについては極小点があること が分かった.長いパルス幅では加工痕周囲に熱影響とみら れる溶融再固化によるリム発生が観測された.

また, 銅・アルミについて, 100 Hz から1 MHz まで の繰り返しレート依存性を調べた. アルミでは高繰り返し で加工レートが増加する傾向が見られ, 蓄熱の影響が考え られるが, 他要因についての検討も必要である. 繰り返し レートによって, デブリ発生量にも違いが見られた.

シリカガラス・Eagle XG の2種類のガラスの穴あけに おいて、パルス幅とフルーエンスの依存性を調べた. 非線 形吸収のため、加工が起きるパルス幅上限が存在した. シ リカガラスの加工閾値のパルス幅依存性からは衝突電離 による電子生成が支配的であることが示唆された.

本研究で行ったような加工パラメータの広域連続的な 分析により,最適なプロセスウィンドウの探索ができるだ けでなく,超短パルスレーザー加工のダイナミクスを明ら かにするための基礎的知見が得られる.さらに,パラメー タを加工の間に動的に変調することにより,加工ダイナミ クスを制御して,高生産性と高品位を両立する新たな加工 レジームが見いだせる可能性がある.

現在, 我々は加工中のインプロセスモニタリングを併用 することにより, 加工中の状況に応じた最適パラメータを 与えることにより所望の加工を実現する「アクティブ制御 レーザー加工」をめざして研究を進めている. さらに, 本 研究によりパラメータ自動可変加工装置を用いて得られ た大量の広域パラメータに対する加工データは, 機械学習 によるレーザー加工のモデリングに応用可能である. 機械 学習の手法を積極的に取り入れ, コンピュータ上のモデル 空間で高速に最適化を行う研究にも取り組んでいる.

謝 辞

本研究成果は,公益財団法人天田財団 2020 年度一般研 究開発助成金(助成番号: AF-2020222-B3)の支援を受け て行われたものであり,ここに深く感謝の意を表す.

参考文献

- G. A. Mourou, D. Du, S. K. Dutta, V. Elner, R. Kurtz, P. R. Lichter, X. Liu, P. P. Pronko, and J. A. Squier: US Patent 5656186 (1997).
- B. Rethfeld, D. S. Ivanov, M. E. Garcia, and S. I. Anisimov: J. Phys. D: Appl. Phys. 50 (2017) 193001.
- S. I. Animsov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man: Zh. Eksp. Teor. Fiz. 66 (1974) 776 [Sov. Phys. JETP 39 (1974) 375].
- P. B. Corkum, F. Brunel, and N. K. Sherman: Phys. Rev. Lett. 61 (1988) 2886.
- 5) S.-S. Wellershoff, J. Hohlfeld, J. Güdde, and E. Matthias: Appl. Phys. A 69 (1999) S99.
- D. S. Ivanov and B. Rethfeld: Appl. Surf. Sci. 255 (2009) 9724.
- M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz: Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 4076.
- S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tünnermann, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, and H. Welling: J. Opt. Soc. Am B 14 (1997) 2716.
- D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier, and G. Mourou: Appl. Phys. Lett. 64 (1994) 3071.
- 10) B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry: Phys. Rev. B 53 (1996) 1749.
- M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz: Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 4076.
- A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane, and G. Mourou: Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 3883.
- 13) X. Zhu, A.Yu. Naumov, D.M. Villeneuve, and P.B. Corkum: Appl. Phys. A 69 (1999) S367.
- M. Hashida, A.F. Semerok, O. Gobert, G. Petite, Y.Izawa, and J.F. Wagner: Appl. Surf. Sci. 197-198 (2002) 862.
- 15) R. Le Harzic, D. Breitling, M. Weikert, S. Sommer, C.Föhl,S. Valette, C. Donnet, E. Audouard, and F. Dausinger: Appl. Surf. Sci. 249 (2005) 322.

- 16) D. Giguère, G.Olivié, F. Vidal, S. Toetsch, G. Girard, T. Ozaki, and J. -C. Kieffer: J. Opt. Soc. Am. A 24 (2007) 1562.
- 17) B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal, and J. C. Kieffer: Phys. Rev. B 84 (2011) 094104.
- 18) C. S. R. Nathala, A. Ajami, W. Husinsky, Bilal Farooq, S. I. Kudryashov, A. Daskalova, I. Bliznakova, and A. Assion: Appl. Phys. A 122 (2016) 107.
- 19) D. A. Zayarny, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, A. A. Kuchmizhak, O. B. Vitrik, and Yu. N. Kulchin: JETP Lett. 103 (2016) 752.
- 20) A. Narazaki, H. Takada, D. Yoshitomi, Kenji Torizuka, and Y. Kobayashi: Appl. Phys. A 126 (2020) 252.
- J. Winter, M. Spellauge, J. Hermann, C. Eulenkamp, H. P. Huber, and M. Schmidt: Opt. Express 29 (2021) 14561.
- 22) A. Ancona, F. Röser, K. Rademaker, J. Limpert, S. Nolte, and A. Tünnermann: Opt. Express 16 (2008) 8958.
- 23) F. D. Niso, C. Gaudiuso, T. Sibillano, F. P. Mezzapesa, A. Ancona, and P. M. Lugarà: Opt. Express 22 (2014) 12200.
- R. Weber, T. Graf, P. Berger, V. Onuseit, M. Wiedenmann, C. Freitag, and A. Feuer: Opt. Express 22 (2014) 11312.
- 25) C. Kerse, H. Kalaycıoğlu, P. Elahi, B. Çetin, D. K. Kesim1, Ö. Akçaalan1, S. Yavaş, M. D. Aşık, B. Öktem, H. Hoogland, R. Holzwarth, and F. Ö. Ilday: Nature 537 (2016) 84.
- 26) K. Mishichik, G. Bonamis, J. Qiao, J. Lopez, E. Audouard, E. Mottay, C. Hönninger, and I. Manek-Hönninger: Opt. Lett. 44 (2019) 2193.
- B. Neuenschwander, B. Jaeggi, D. J. Foerster, T. Kramer, and S. Remund: J. Laser Appl. 31 (2019) 022203.
- 28) J. König, S. Nolte, and A. Tünnermann: Opt. Express 13 (2005) 10597.
- 29) D. Yoshitomi, H. Takada, K. Torizuka, and Y. Kobayashi: Conference on Lasers and Electro-Optics (2019) SM3L.2.
- T. Takahashi, S. Tani, R. Kuroda, and Y. Kobayashi: Appl. Phys. A 126 (2020) 582.
- 31) 日本金属学会編「金属便覧」丸善 (2000)