バーストモード超短パルスレーザーとフィードバック制御の統合による高精度レーザー加工技術の実現

東京大学　大学院理学系研究科　附属フォトンサイエンス研究機構
助教　櫻井　治之
（2023 年度 奨励研究助成（若手研究者枠） AF-2023239-C2）

キーワード：超短パルスレーザー加工，バーストモード，フィードバック

１．研究の目的と背景

次世代微細加工技術として、フェムト秒パルスレーザー加工は近年大きな注目を集めている。その最大の特徴は、従来のレーザー加工と比較して熱影響が極めて小さい点にある。フェムト秒という極短時間スケールは熱伝搬の時間スケールよりも十分に短く、周囲への熱拡散を抑制した状態で加工を進行させることが可能である。

一方で、フェムト秒レーザー加工には大きく二つの課題が存在する。第一に加工速度である。パルスレーザー加工では、1 パルス照射ごとに数百 nm 程度の材料が除去されるが、加工面積はレーザーの集光スポットに制限され、典型的には 100 μm² 程度である。そのため、1 パルスあたりの除去体積は概ね 10 μm³オーダーにとどまる。例えば繰り返し周波数 50 kHz のレーザーを用いた場合では、物質除去レートはおよそ 0.0005 mm³/s と見積もられ、これは一般的な機械加工と比較して数桁低い。この低い加工レートは、長年にわたりレーザー加工の産業応用を制限する主要因となってきた。

第二の課題は、加工品質の制御の難しさである。超短パルスレーザー照射では、極めて高強度の光が短時間に物質へ作用することで、融解や蒸発に加え、相爆発、非熱的な結合切断、クーロン爆発など、多様な非平衡過程が誘起される。これらの現象は材料の除去や最終的な表面状態に大きな影響を及ぼす。さらに、実際の加工は単一パルスではなく多数のパルスを連続照射することで進行するため、前の照射による形状変化や材料状態の変化が後続パルスの吸収・反応に影響し、プロセスは一層複雑となる。その代表例として、レーザー誘起周期表面構造（Laser-induced periodic surface structures: LIPSS）が挙げられる [1]。これは、初期の照射で形成された微小な粗さが、その後のパルスによる表面プラズモン励起と干渉することで、周期構造が自発的に形成される現象である。この構造は応用上有用となる場合もあるが、不要な場合には表面粗さを増大させる要因となる。また、除去加工に伴って生成されるデブリの再堆積も品質に大きな影響を与える。再堆積した粒子は表面品質を劣化させるため、エアーブローや超音波洗浄、あるいは化学洗浄などの後処理が必要となる場合が多い。このように、除去プロセス、材料状態、再堆積など多くの要因が相互に作用するため、加工条件の品質最適化は極めて困難である。

加工レートの向上を目的として、近年では高平均出力かつ高繰り返し周波数の光源が広く検討されてきた。特に Yb 系レーザーは MHz 帯域以上の高繰り返し動作が可能であり、これを用いた高速加工の研究が進展している。しかしながら、繰り返し周波数の増加に伴い材料中に残留する熱の蓄積やデブリの再堆積が顕著となり、加工品質とのトレードオフが避けられない。このため、高速性と高品質を両立する新たな加工手法の確立は、大きな技術課題とされてきた。

この理解を覆した加工法として、GHz バーストモード加工が近年多くの注目を集めている。GHz バーストモード加工では、GHz 間隔で複数パルスが一つの「パケット」としてまとめられて照射され、材料加工がおこなわれる。GHz 間隔でパルスが照射されることで、熱拡散が起こる前の時間スケールで後続パルスが照射され、1 パケット内では効率良く加工を進められることができる。また、パケット同士は通常のフェムト秒レーザーと同様の繰り返しで供給されるため、システム全体の平均出力や熱負荷を抑えることができる。実際、2016 年には GHz バーストモードによる高効率・高品質加工が報告され [2]、その後も加工効率および表面品質の改善が多数報告されている [3]。これに伴い、バースト発生機能を備えた商用レーザーシステムの開発や基礎研究が急速に進展し、現在では繰り返し周波数や波長と並ぶ重要なパラメータとして広く認識されている。

一方で、加工品質に強く影響する因子として、レーザー波長も古くから重要視されてきた。短波長化により集光スポット径の縮小が可能となり、微細加工に有利である。また、多くの材料では短波長ほど吸収が大きく、加工閾値の低下といった利点がある。このため、第二高調波や第三高調波を用いた加工が広く利用されている。

しかしながら、これまでのバースト加工研究の多くは赤外域で行われており、波長変換との組み合わせは十分に検討されてこなかった。これは、バーストパルスの時間波形制御の複雑さに加え、個々のサブパルスエネルギーが低下することによる波長変換効率の低下が主な要因である。

以上を踏まえ、本研究では二つの目的を設定する。第一に、精密加工技術としてのバースト加工と波長変換技術の融合の有効性を検証する。第二に、バースト加工により実現される高品質加工を前提とし、インライン計測を用いた

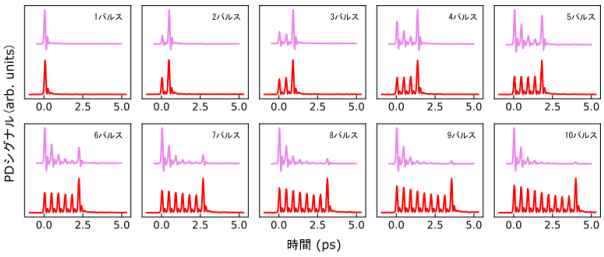


図 1　バーストパルス発生時の基本波（赤）及び三倍波（紫）の時間波形．右上にバーストパルス設定数を示す．

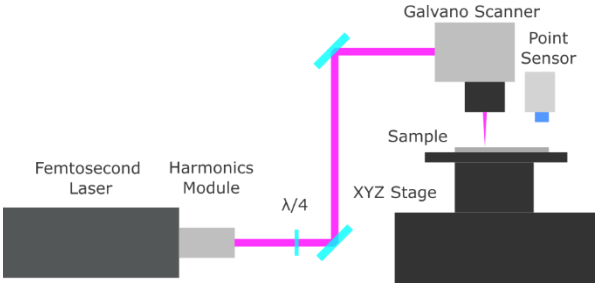


図 2　レーザー加工及びインライン評価光学系

加工状態のフィードバック制御の可能性を探る。これらを通じて、加工速度と品質のトレードオフおよび最適化の困難さに対する新たな解決指針の提示を目指す。

2．実験方法

2・1　加工系の概要

本研究では、光源として Yb:KGW フェムト秒再生増幅器(CARBIDE CB3-80-0800-20-HB, Light Conversion)を用いた。中心波長は 1030 nm、パルス幅は 230 fs、繰返し周波数は 100 kHz である。本再生増幅器には GHz バーストモード機能が搭載されており、約 400 ps 間隔で 1〜10 パルスからなるパケットを出力することが可能である。さらに、自動高調波発生モジュール(CBM03-2H-3H, Light Conversion)を備えており、第二高調波発生および基本波との和周波発生の二段階過程により、中心波長 343 nm 付近の第三高調波を生成することができる。本研究では、近赤外(NIR)パルスの GHz バーストを本モジュールにより第三高調波へ変換した。

図 1 に、高速フォトダイオード(基本波：ET-3500, EOT、第三高調波：UPD-50-UP, Alphalas）および帯域幅 6 GHz のオシロスコープ(InfiniiVision MSOX6004A, Keysight)により取得した、高調波発生モジュールにおける入出力パルス波形を示す。図 1 中の赤線で示される基本波では、バーストモード特有の系統的な強度変動が観測された。本光源においては、バーストパケット内の最後のパルスがそれ以前のパルスよりも強度が高くなる傾向が確認された。本研究では、可能な限り平坦な強度分布となるようバーストの包絡線を調整し、この条件は実験を通じて一定とした。

一方、図 1 中の紫線で示される第三高調波では、パケット内の後続パルスほど強度が低下する傾向が観測された。このことから、バースト内における変換効率がパルスごとに変化していることが示唆される。この要因として、後ほどの追実験で、発生法から起因する基本波のバーストパルス内でのパルス幅の違いが支配的であったことが判明した。理想的にはより均一なバーストパルスの生成が望ましいが、本研究では得られたパルスプロファイルをそのまま用いた。

生成した第三高調波は、1/4 λ 板により直線偏光から円偏光へ変換した。その後、レーザー光はガルバノスキャナ(excelliSCAN 14, Scanlab)に導入され、焦点距離 65 mm の f-theta レンズにより集光した。スキャナに入射したレーザー光は、自動 XY(AI-LM-35000-XY, ALIO Industries)および Z ステージ（ZA16A-32F01, 神津精機）から構成される三軸自動ステージシステム上に集光された。光学系の外観図を図 2 で示す。焦点におけるビームの $1/e^2$半径は、独自に改良した CMOS カメラを用いて直接測定し [4]、短軸および長軸方向でそれぞれ 4.1 μm および 4.3 μm と求められた。ステージ表面には試料がおかれ、今回の実験では、厚さ 350 μm、直径 3 インチ、比抵抗約 10 Ω・cm、結晶方位<100>の研磨シリコンウェハが用いられた。

2・2　インライン評価系の概要

加工結果をインラインで評価するため、コンパクトなクロマティック共焦点型ポイントセンサ(CHRocodile C, Precitec)をガルバノスキャナヘッド近傍に設置した。図 2 で point sensor として示してある。垂直分解能 30 nm、横方向分解能 2.5 μm、測定レンジ 500 μm のプローブヘッドを用いた。本研究では、センサから得られる「距離」と「反射信号強度」の 2 つの指標に着目した。距離情報は試料表面の高さに対応しており、加工による除去深さの評価が可能である。一方、反射信号強度の変化からは反射率の変化を評価することができる。反射率は、第一に粗いアブレーション形状や再凝固物（リキャスト）に起因する表面粗さの変化、第二に材料の光学特性の変化を把握するための指標となる。厳密には、本センサでは高さに応じて異なる波長成分が検出されるが、本研究で扱う測定レンジ（数 μm）はセンサの全レンジ（500 μm）と比べて十分に小さいため、色分散の影響は無視した。また、信号強度の絶対値自体には大きな意味を持たないため、本研究では「相対反射率」として、加工面の信号強度を未加工表面の信号強度で規格化した値を用いた。さらに、XY ステージをラスタ走査することで、加工面の 2 次元分布をインラインで取得可能である。なお、より詳細な評価が必要な場合には、レーザー走査型顕微鏡（VK-X1000, Keyence、以下 LSM と略記）による ex situ 測定を実施した。

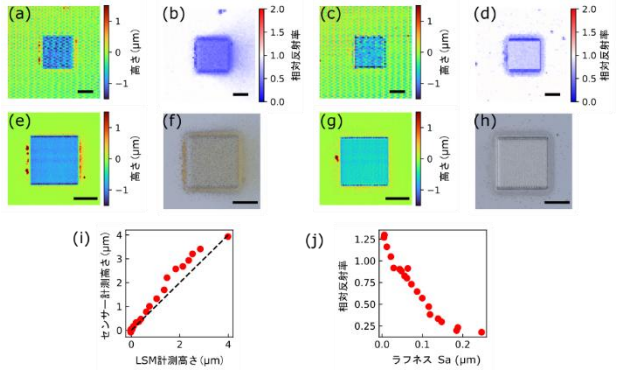


図 3　(a-h)通常パルス及びバーストパルス加工でのポイントセンサ及び LSM での加工結果評価. (i,j)各ポイントセンサと LSM 計測の定量比較．スケールバーは 50 μm.

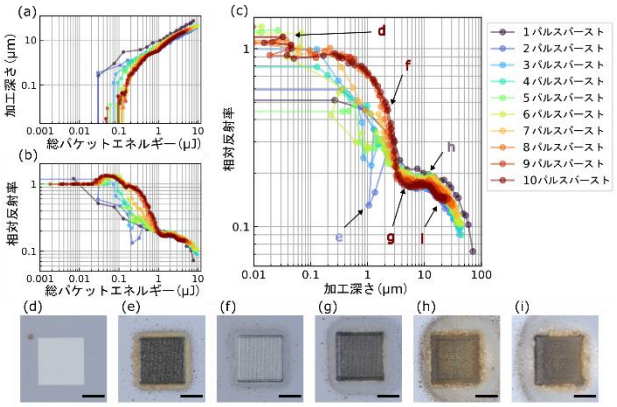


図 4　バーストパルス加工時のバーストパケット内総エネルギーと(a)加工深さ及び(b)相対反射率の関係、およびそれらの関係を(c)相対反射率対加工深さでプロットしなおしたもの．(d)-(i)各代表的な加工結果の光学顕微鏡画像．スケールバーは 50 μm.

３．実験成果

3・1　レーザー加工のインライン評価

シリコン表面に対し、長さ 100 μm の直線加工をピッチ 2.5 μm で 40 本描画することで、100 μm × 100 μm の正方形ピットを形成した。レーザー繰返し周波数は 100 kHz、走査速度は 100 mm/s とし、加工深さを増加させるため同一パターンを 5 回繰り返した。すべての加工は補助ガスや気流を用いない大気環境下で実施した。

図 3(a)および(b)は、単一パルス（バーストなし）・0.13 μJ（ピークフルエンス 0.47 J/cm²）の第三高調波パルスによる加工結果の高さ分布および相対反射率を示す。これに対し、図 3(c)および(d)は、総エネルギー0.32 μJ（総ピークフルエンス 1.2 J/cm²）の 10 パルスバースト照射による加工結果である。これら 2 条件は、いずれも約 1 μm の同程度の除去深さ（すなわち同程度の加工レート）となるよう選定した。

いずれの条件においても、本システムにより除去深さの変化に加え、加工領域周囲におけるリキャストの有無（高さがゼロより高く、かつ反射率が低下した領域）を検出することができた。また、図 3(a)および(c)の高さ分布には、数百 nm 程度の振幅を有する縦縞状の構造が観察されるが、これは XY ステージのラスタ走査時の振動に起因するものである。

図 3(b)と(d)を比較すると、(d)の方では加工中心部および周辺領域において、より高い反射率が観測されていることが分かる。これらの結果は、除去率が同程度であるにもかかわらず、バースト加工の方が表面品質が高く、リキャストデブリが少ないことを示唆している。

インライン測定結果の妥当性を検証するため、対応する単一パルス加工（図 3(e), (f)）およびバースト加工（図 3(g), (h)）について、LSM により取得した高さ分布および光学像を比較した。ポイントセンサは空間分解能の点で劣るものの、定性的な特徴は良好に一致していることが確認された。

さらに、ポイントセンサで得られた相対反射率と、LSM により測定した表面粗さ(Sa)との比較を行った結果、良好な相関関係が確認された。このことから、本センサは表面粗さの変化に対して十分な感度を有しており、アブレーション品質の評価に有効であることが確認された。

3・2　バースト加工特性のマッピング

インライン評価系を用いることで、関連するパルスエネルギーを掃引し、各種バースト条件におけるアブレーション特性を効率的に比較することが可能である。本研究では、サブパルス数が最大 10 のバースト条件について、0.001～10 μJ（あるいは各バースト条件で許容される最大エネルギー）までパルスエネルギーを変化させた。繰返し周波数、走査速度、走査パターンなど、パルスエネルギー以外の加工条件は前節と同一とした。

図 4 に、このパラメータ掃引の結果を示す。図 4(a)および(b)は、それぞれポイントセンサにより測定された除去深さおよび相対反射率である。アブレーション効率の観点では、図 4(a)に示されるように、バースト加工条件において顕著な深さの増加は確認されず、本実験範囲においては効率向上は認められなかった。この要因の詳細な解明は本研究の範囲外であるが、各サブパルスのエネルギー低下に伴うピーク強度の低下あるいは照射時間の増加などが、高いエネルギー局在を必要とする材料分解に不利に作用した可能性が考えられる。また、この挙動は、近赤外領域におけるシリコン加工で報告されている結果とも異なる [5),6)]。これは、本研究で用いたバーストのパルス数が比較的小さく熱蓄積が限定的であることや、波長の違いによる吸収過程・非線形性の差異、さらに本装置に固有の時間波形の不均一性などが影響している可能性がある。

一方で、加工品質の観点からは、図 4(b)に示されるように、バースト加工において全体的に高い相対反射率が得られており、品質の顕著な改善が確認された。この加工速度と品質のトレードオフを明確化するため、図 4(a)および

(b)のデータを、除去深さと相対反射率の関係として再整理した結果を図 4(c)に示す。同図において、右上に位置するデータ点は、高効率かつ低粗さの加工条件を示唆する。本結果から、約 0.1～2 μm の除去深さ範囲において、バースト照射では単一パルスに比べて高い反射率が得られることが分かる。これは、単一パルスでは到達困難な高品質加工領域へのアクセスが、バースト照射により可能となることを示している。

図 4(d)～(i)には、代表的なクレータの光学顕微鏡像を除去深さの順に示す。対応するデータ点は図 4(c)中に示しており、文字色はバースト数に対応している。すべてのパルス数条件において、除去深さが 0.1 μm 未満かつ反射率が 1 を上回る領域（図 4(d)）が観測された。これは図 4(c)の左上領域に対応し、薄くシリコン表面が溶融している条件に対応すると思われる [7]。パルスエネルギーがしきい値（図 4(a)では約 0.1 μJ）を超えると、除去深さの増加と反射率の低下が同時に生じ、アブレーションが開始する。

単一パルスおよび低バースト数条件において、中程度のエネルギー領域（除去深さ 0.1～2 μm）では、反射率低下はリキャストの形成およびバンプ状構造の生成に起因する（図 4(e)）。これに対し、高バースト数条件では同一エネルギー領域において明確に異なる挙動を示す。図 4(f)および図 4(g)に示すように、バースト加工では平滑な加工形状が得られ、周辺のデブリやリキャストが顕著に低減される。また、溶融状の特徴が顕著に現れる点は、近赤外バースト加工で報告されている傾向とも一致する。これらの違いは、アブレーション生成物の流動挙動の変化に起因する可能性がある [8]。

さらにパルスエネルギーを増加させ、除去深さが 3 μm を超える領域では、デブリおよび表面粗さが徐々に増加（図 4(h)）し、最終的には単一パルス加工と類似した粗い加工形態（図 4(h), (i)）へと移行する。

以上の結果より、バーストモード照射は、特に表面品質およびリキャスト特性の観点において、高品質加工を実現する新たな手法であることが示された。なお、走査速度(100～500 mm/s)および走査ライン間隔(1～5 μm)を変化させた場合についても同様の実験を実施したが、数値的な差異は認められるものの、本研究で示した傾向は定性的に一致していた。

3・3　インライン評価を用いたフィードバック

高品質なバースト加工条件の有用性を示すため、半球形状構造の加工結果について比較を行った。加工は材料除去を 50 回反復することで実施した。各反復では、全体としてドーナツ状のパターンにおいて、間隔 2 μm の同心円軌道に沿ってレーザーを走査し、走査速度 200 mm/s で 4 回繰り返した。ドーナツ形状の内側半径を段階的に変化させることで、最終的に半球状のシリコン構造を形成した。

単一パルスでは 0.13 μJ、10 パルスバーストでは 0.87 μJ の第三高調波パルスを用い、各反復で約 1 μm の層を除去する条件とした。バースト条件のパルスエネルギーは、平滑加工が得られる領域内で、かつ加工速度と品質のバランスが良好となる値を選定し、反復ごとの除去量が適切となるよう微調整を行った。

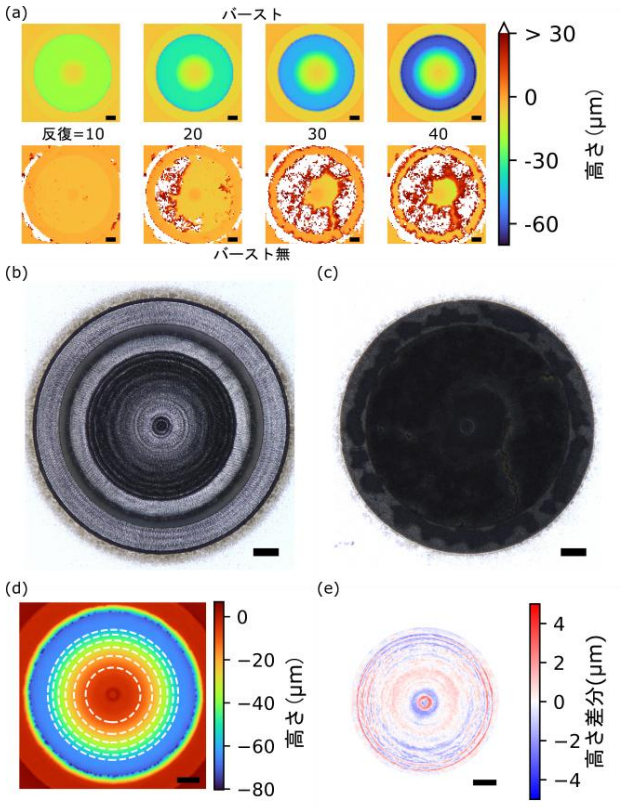


図 5　(a)バースト及びバースト無の場合の加工の途中評価画像. (b)バースト及び(c)バースト無の最終形状の光学顕微鏡像. (d)バースト加工の球面形状の曲面フィット、および(e)フィットとの差分. 図中のスケールバーは 50 μm.

各反復後の表面形状は、ポイントセンサによりインラインで測定した。得られた高さデータを中心からの距離の関数としてプロットし、各距離における平均高さを算出した。測定された中心高さを頂点とする半径 200 μm の理想半球形状を基準として設定し、その形状より 1 μm 高い位置に対応する半径を次の内側半径と定義した。

図 5(a)に、10 回、20 回、30 回、40 回目の反復後の形状をインライン計測した結果を示す。高さが初期表面（高さ 0）よりも大きい領域はリキャストの存在を示している。バースト照射による加工では、気流を導入していないにもかかわらず、ほぼリキャストのない表面が得られている。一方、単一パルス加工では顕著なリキャストの蓄積が観測された。特に約 30 回以降では、リキャストにより表面形状が覆われ、アルゴリズムによる正確な加工制御が困難となる。

図 5(b)および(c)に、それぞれ 50 回反復後のバースト加工および単一パルス加工の結果を示す。バースト加工では、良好な半球形状が形成されているのに対し、単一パルスの場合はリキャストにより形状の大部分が不明瞭となって

いる。

図 5(d)には、バースト加工面に対して半球フィッティングを行った結果を示し、破線で等高線を併記している。フィッティングにより得られた半径は 206 μm であった。図 5(e)にはフィッティング形状との差分を示す。このときの標準偏差は 0.76 μm と評価された。本研究で用いた走査およびフィードバックアルゴリズムは比較的簡易なものであり、さらなる改良の余地はあるものの、バーストモード加工が高品質加工に有効であることを十分に示す結果が得られた。

４．結論と今後の展望

本研究では、フェムト秒レーザー加工における主要課題である加工品質およびその制御の困難さに対し、GHz バースト照射と第三高調波加工を組み合わせた新たな加工手法を提案し、その有効性を実験的に検証した[9]。

まず、バースト照射を用いた第三高調波加工により、単一パルス加工と比較してアブレーション効率の顕著な向上は確認されなかったものの、表面品質の大幅な改善が得られることを明らかにした。特に、バースト照射ではリキャストおよびデブリの生成が抑制され、より平滑な加工面が形成されることが確認された。この結果は、従来の「高効率化と高品質化のトレードオフ」という課題に対し、少なくとも品質の観点から有効な解決手段を提示するものである。

次に、インライン評価系としてクロマティック共焦点センサを導入し、加工中に除去深さおよび相対反射率を同時に計測することで、アブレーション挙動および表面状態のリアルタイム把握を可能とした。これにより、従来は事後評価に依存していた加工品質の評価をプロセス中に実施し得ることを示した。また、相対反射率が表面粗さおよびリキャストの指標として有効であることを実験的に確認し、インライン評価による品質指標の妥当性を示した。

さらに、これらの評価結果を活用し、半球構造の加工においてフィードバック制御を実装した。その結果、バースト照射条件ではリキャストの蓄積を抑制しつつ安定した形状制御が可能であり、単一パルス加工では困難であった高精度形状加工を達成した。この結果は、加工品質の向上が単なる表面状態の改善にとどまらず、プロセス制御の安定化および高精度形状創成に直接的に寄与することを示している。

以上より、GHz バースト照射と短波長加工の組み合わせは、従来のフェムト秒レーザー加工における品質制御の課題を緩和し、さらにインライン計測と組み合わせることでフィードバックに基づいた高度な加工制御を可能とする有望なアプローチであることが示された。本手法は、加工速度と品質の両立を目指すうえでの、新たな技術的指針を与えるとともに、マイクロメートルからサブマイクロメートル領域における高精度除去加工の実用化に向けた基盤となるものである。

以上の成果を踏まえ、今後の重要な展開としては、インライン計測に基づく加工条件の自律最適化が挙げられる。本研究では、インラインで取得した形状および反射率情報を用いることで、加工状態を加工系内で評価可能であることを示したが、次の段階としては、こうした評価情報を直接フィードバックし、最適な加工条件を自動的に探索・更新するシステムの構築が求められる。実際に、ベイズ最適化を基盤とした自律最適化ルーチンの開発を進めており、基本波バースト照射において、加工速度と加工品質（反射率）を同時に最適化する試みを行っている。その結果、一晩で数千条件に及ぶパラメータ探索を自動実行し、最適条件を導出することが可能となりつつある。このようなアプローチは、従来経験的かつ試行錯誤に依存していたレーザー加工条件の決定プロセスを大きく変革し、適応的かつ高効率なプロセス設計を実現する基盤技術となることが期待される。

謝　辞

本研究は公益財団法人天田財団の 2023 年度奨励研究助成のご支援を受けて実施しました。ここで深く感謝の意を申し上げます。また、研究の一部は文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)JPMXS0118067246、内閣府の総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)「光・量子を活用した Society5.0 実現化技術」により実施されました。

参考文献

1) J. Bonse, S. Höhm, S. V. Kirner, A. Rosenfeld and J. Krüger, "Laser-Induced Periodic Surface Structures—A Scientific Evergreen," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* 23 (2017) 900615

2) C. Kerse, H. Kalaycioglu, P. Elahi, B. Çetin, D. K. Kesim, Ö. Akçaalan, S. Yavas, M. D. Asik, B. Öktem, H. Hoogland, R. Holzwarth, and F. Ö. Ilday, “Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses,” Nature 537 (2016) 84–88.

3) A. Žemaitis, M. Gaidys, M. Brikas, P. Gečys, G. Račiukaitis, and M. Gedvilas, “Advanced laser scanning for highly-efficient ablation and ultrafast surface structuring: experiment and model,” Sci. Rep. 8 (2018) 17376.

4) H. Sakurai, K. Konishi, H. Tamaru, J. Yumoto, and M. Kuwata-Gonokami, “Direct correlation of local fluence to single-pulse ultrashort laser ablated morphology,” Commun. Mater. 2 (2021) 38.

5) K. Mishchik, G. Bonamis, J. Qiao, J. Lopez, E. Audouard, E. Mottay, C. Hönninger, and I. Manek-Hönninger, “High-efficiency femtosecond ablation of silicon with GHz repetition rate laser source,” Opt. Lett. 44 (2019) 2193.

6) 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.
7) J. Bonse, K.-W. Brzezinka, and A. Meixner, “Modifying single-crystalline silicon by femtosecond laser pulses: an analysis by micro Raman spectroscopy, scanning laser microscopy and atomic force microscopy.” *Appl. Surf. Sci.* 221 (2004) 215.
8) M. Park, Y. Gu, X. Mao, C. P. Grigoropoulos, and V. Zorba, “Mechanisms of ultrafast GHz burst fs laser ablation,” Sci. Adv. 9 (2023) eadf6397.
9) H. Sakurai and K. Konishi, “Laser processing of silicon with GHz burst pumped third harmonics for precise microfabrication,” Opt. Express 31 (2023) 40748.