

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ブ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ブ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

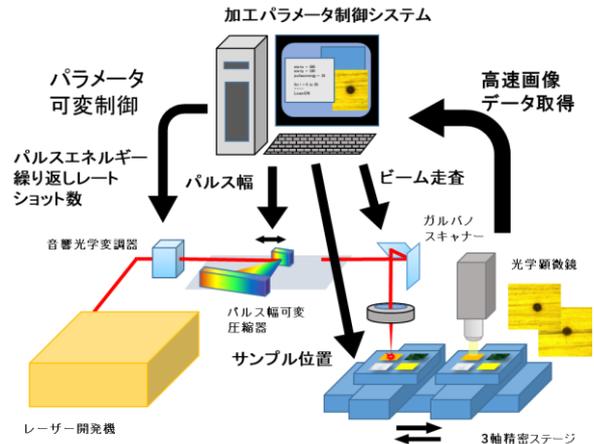


図 1 パラメータ自動可変レーザー加工装置の概略図

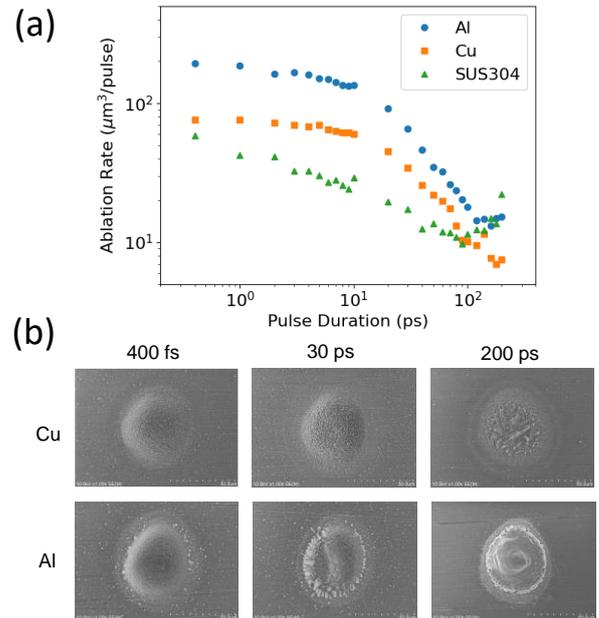


図 2 (a)銅・アルミ・ステンレスの穴あけ加工における加工レートのパルス幅依存性 (b)銅・アルミの加工痕の SEM 画像

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

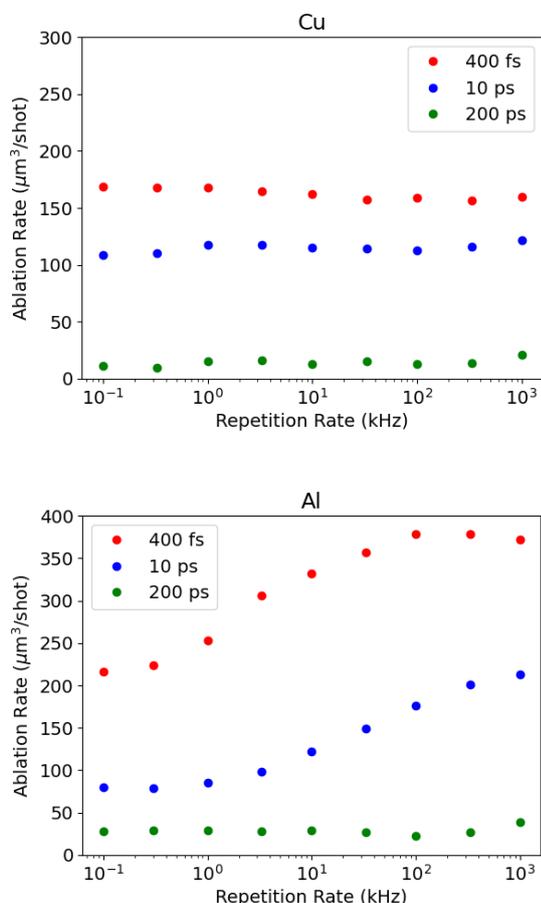


図 3 銅とアルミの穴あけ加工における各パルス幅での加工レートの繰り返しレート依存性

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。

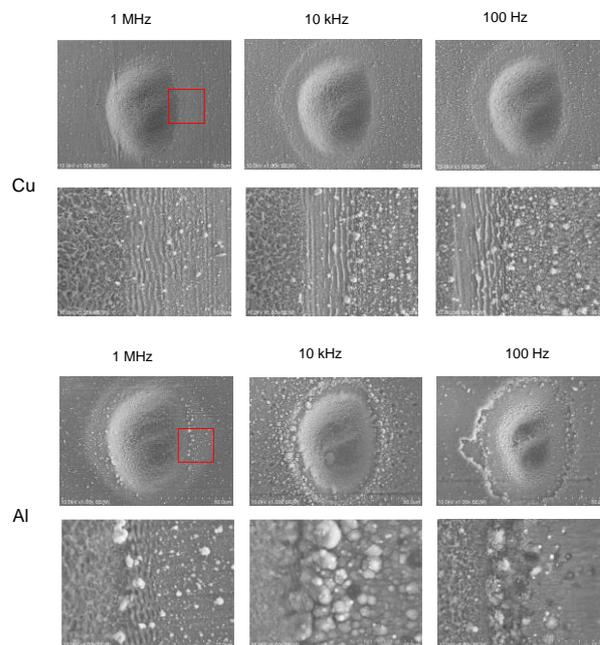


図 4 銅とアルミの加工痕の SEM 画像 (パルス幅 400fs) 下段は上段の赤枠箇所を高倍率で観察した画像である。

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/cm^2 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。

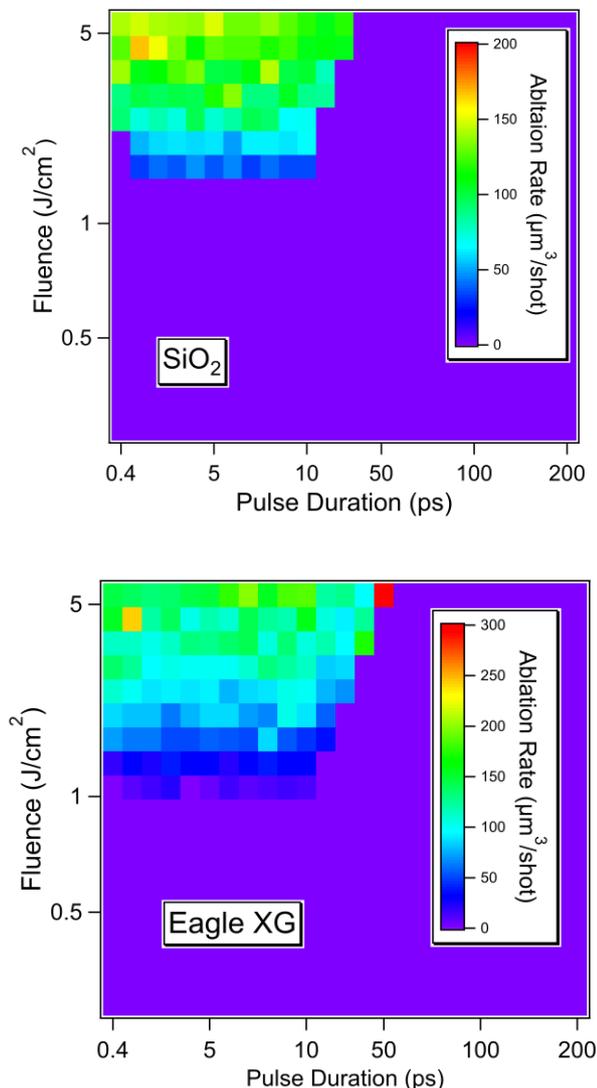


図5 シリカガラスと Eagle XG の穴あけ加工における加工レートのパルス幅とフルーエンス依存性

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 (10^{21} cm^{-3} 程度) に達する過程では、励起電子がレーザー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るため、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

- 1) 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).
- 2) B. Rethfeld, D. S. Ivanov, M. E. Garcia, and S. I. Anisimov: J. Phys. D: Appl. Phys. 50 (2017) 193001.
- 3) S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man: Zh. Eksp. Teor. Fiz. 66 (1974) 776 [Sov. Phys. JETP 39 (1974) 375].
- 4) 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.
- 6) D. S. Ivanov and B. Rethfeld: Appl. Surf. Sci. 255 (2009) 9724.
- 7) M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz: Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 4076.
- 8) S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tünnermann, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, and H. Welling: J. Opt. Soc. Am B 14 (1997) 2716.
- 9) 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.
- 11) M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz: Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 4076.
- 12) 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.
- 14) 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. D. Giguère, G. Olivié, F. Vidal, S. Toetsch, G. Girard, T. Ozaki, and J. -C. Kieffer: J. Opt. Soc. Am. A 24 (2007) 1562.
- 16) 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.
- 17) 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.
- 18) 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.
- 19) A. Narazaki, H. Takada, D. Yoshitomi, Kenji Torizuka, and Y. Kobayashi: Appl. Phys. A 126 (2020) 252.
- 20) J. Winter, M. Spellauge, J. Hermann, C. Eulenkamp, H. P. Huber, and M. Schmidt: Opt. Express 29 (2021) 14561.
- 21) A. Ancona, F. Röser, K. Rademaker, J. Limpert, S. Nolte, and A. Tünnermann: Opt. Express 16 (2008) 8958.
- 22) F. D. Niso, C. Gaudiuso, T. Sibillano, F. P. Mezzapesa, A. Ancona, and P. M. Lugarà: Opt. Express 22 (2014) 12200.
- 23) R. Weber, T. Graf, P. Berger, V. Onuseit, M. Wiedenmann, C. Freitag, and A. Feuer: Opt. Express 22 (2014) 11312.
- 24) 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.
- 25) K. Mishichik, G. Bonamis, J. Qiao, J. Lopez, E. Audouard, E. Mottay, C. Hönninger, and I. Manek-Hönninger: Opt. Lett. 44 (2019) 2193.
- 26) B. Neuenschwander, B. Jaeggi, D. J. Foerster, T. Kramer, and S. Remund: J. Laser Appl. 31 (2019) 022203.
- 27) J. König, S. Nolte, and A. Tünnermann: Opt. Express 13 (2005) 10597.
- 28) D. Yoshitomi, H. Takada, K. Torizuka, and Y. Kobayashi: *Conference on Lasers and Electro-Optics* (2019) SM3L.2.
- 29) T. Takahashi, S. Tani, R. Kuroda, and Y. Kobayashi: Appl. Phys. A 126 (2020) 582.
- 30) 日本金属学会編「金属便覧」丸善 (2000)