フェムト秒レーザーによる材料加工に関する研究

~高時間分解能イメージングなどによる加工過程の計測~

金光 泰¹⁾·福本 英人¹⁾·長友 章悟¹⁾·楢原 達哉²⁾·横谷 篤至³⁾

Study on Material Processing with Femtosecond Laser ~Measurement of Processing Process by Imaging of High Time Resolution and etc.~

Yasushi KANAMITSU, Hideto FUKUMOTO, Shogo NAGATOMO, Tatuya NARAHARA, Atsushi YOKOTANI

Abstract

Recently, femtosecond lasers have become to used for the microfabrication such as drilling and cutting of various kind of materials which can be used in the MEMS (Micro Electro Mechanical Systems) technology. However it is generally said that thermal effects can be decrease by using short pulsed lasers, the burr and the molten walls are often observed around the drilled holes in certain kinds of material such as Si even if the femtosecond laser is used. Then, we have tried to estimate the degree of the thermal effects during the drilling process with the femtosecond lasers. In this work, we observed the diameter of the hole formation with double pulsed laser changing delay time between the two pulses. Double pulsed laser ($\lambda = 780$ nm, $\tau = 100$ fs, f = 10 Hz, $\Delta t = 0 \sim 40$ ps, $E_1, E_2 = 100 \,\mu$ J) was focused on the Si substrate and glass using a lens with a focal length of 100 mm. An image-intensified CCD camera with a high-speed gate of 5 ns was utilized to take images of a drilled hole during the drilling process. As a result, the double pulsed laser can be expected to suppress the heat influence from the single pulse laser. Especially, at delay time of about 5-7 ps, heat influence became the minimum. We think that these phenomena caused by the fact that the second pulse was irradiated some metalized surface which was made by the liquefaction by the first pulse irradiation.

Key Words:

Femtosecond laser, Microfabrication, Thermal effect, Drilled hole, Image-intensified CCD camera

1. はじめに

近年,電子機器の開発において小型化,高性能化,低コスト 化,低消費電力が要求されており,電子機器を構成する電子デ バイスの極小化が進められている¹²⁰。そのため,小さな部品 中に組み込んでしまえるさらに極小な多機能デバイスを作 る MEMS(Micro Electro Mechanical Systems)技術が求められ ている。MEMS の分野では微細加工を必要とする材料が多 種使用されており,デバイスそのものがミクロンサイズであ

1)	電気電子工学専攻	2)	電気電子工学科
3)	電気電子工学科教授		

るので,加工精度としてナノメートルオーダーが要求される が,そのような精度で材料を選ばない,新しい非接触加工とし てレーザー加工の開発が期待されている。従来の加工用レ ーザーとして用いられているナノ秒レーザーでは,熱拡散に よりエネルギーが照射部周辺に伝わるため,材料融解再固化 による盛り上がりを発生させてしまう⁴⁰。そこで,熱拡散よ りも早くエネルギーを注入できるフェムト秒レーザーを用 いて研究を行ってきた。フェムト秒領域のパワーを用いる ことで熱影響は大きく低減できた。しかし,フェムト秒レー ザーを用いても完全に熱影響を抑制することが出来たわけ ではない。そこで本研究ではフェムト秒レーザーアブレー ションによるシリコン基板への加工穴形成過程を観察し,熱 影響との関係を調べる目的で,厚さ 50 µm の極薄シリコン 基板にフェムト秒レーザーを照射し,高速ゲート付きのイメ ージインテンシファイアを装着した CCD カメラを使用して, ゲート幅 5 ns でフェムト秒という超短パルスによって瞬時 に起こる加工現象を時間的にとらえて解析した。

過去の研究で,時間波形制御を行ったダブルパルスフェム ト秒レーザーで極薄シリコン基板のダイシングを行った結 果,従来のレーザーダイシング方法で発生していたクラック やチッピングが見られなかった。時間波形制御による利点 は,マイクロクラックの発生を抑制しつつ,加工穴底面が平坦 な円柱状の加工溝を得ることが出来るという点である。ま た,パルス間の時間差が 10 ps の時に加工穴は最も浅くなり, 加工底面が平坦になるという結果が出た³。しかし,いまだ 詳細な現象は把握されていない。そこで本研究では,遅延時 間を制御したダブルパルスフェムト秒レーザーによる加工 穴形成過程を高速度 ICCD カメラを用いて観察し,遅延時間 制御による固体材料の微細加工特性の評価を行った。

またこれまでの研究において高速度 ICCD カメラの時間 分解能 200 ps で測定を行い,フェムト秒レーザーによる加工 開始数 ns の現象の解明を行ってきた⁸。しかし,高速度 ICCD カメラの時間分解能には限界がある為,カメラ単体では加工 開始数 ps という短時間の現象を捉えることはできない。そ こでポンププローブ技術を組み合わせた高時間分解能実験 装置の開発を行った。

2. ダブルパルスによる加工穴形成過程の計測

2.1 実験装置及び方法

図1に実験装置構成図を示す。装置はフェムト秒レーザ ー発生部、サンプル加工部、撮影部の三つから構成されて いる。フェムト秒レーザー発生部で、Ti:Sapphire レーザー システムから発振させたレーザー(エネルギー:0~1.5 mJ/pulse,パルス幅:100 fs,繰り返し周波数:10 Hz)はスリッ トを通すことでビーム径を絞った後,サンプル加工部へ送り、 遅延光学系素子を通すことでダブルパルスにする。図2に 遅延光学系素子を示す。遅延光学系素子は、パルスを分割し 再度空間的に重ね合わせる際に、一方のパルスの光路長を変 化させることにより遅延時間の制御を行った。ダブルパル スにしたレーザーは焦点距離100 mmの平凸レンズを用い て、サンプルへ集光照射した。平凸レンズの前面にメカニ カルシャッターを配置し、サンプルへのレーザーのショッ ト数を1ショットに制御した。撮影部は、レンズなどの障

害物を避けて,加工穴形成過程をできるだけ正面から撮影 するため、フェムト秒レーザーの光軸から約15°の位置に ICCD カメラを設置した。照明用光源として、CW の Nd: YAG レーザーの第二高調波(出力:50 mW)を用いた。ここで、ア ブレーションによって生じるプラズマやプルームの自発発 光は撮影の妨げとなるため、カメラの前面に色ガラスフィ ルターを挿入する事で、プルームなどの雑光を分離し、サ ンプル表面で反射した照明光のみをカメラに入光させた。 また、Ti:Sapphire レーザーシステムの励起光として用いて いる Nd:YLF レーザーの Q スイッチ信号をトリガーとし,パ ルスジェネレーターを用いてカメラのシャッターが開くタ イミングと、レーザーがサンプルに照射されるタイミング を一致させた。なお、再生増幅に要する時間は光軸調整の たびに変化するので、タイミング調整は撮影に先駆けて必 ずおこなった。カメラのゲート幅は 5 ns に設定した。また、 サンプルにはシリコン基板、ガラス基板を用いた。



図1 実験装置構成図



図2 遅延光学系素子

発振させたフェムト秒レーザーは,第1,第2パルスのエネ ルギーE₁, E₂を(E₁, E₂) =(100 µJ, 100 µJ)として実験を行った。 その時の遅延時間は0 s, 70 fs, 5 ps, 10 ps, 20 ps, 30 ps, 40 ps の 7 通りで実験を行った。カメラのゲート幅を5 ns に設定し て撮影を行い,加工穴の直径変化を計測し,立ち上がり時間を 調べた。最終加工穴直径の90%となる時間を立ち上がり時 間として定義した。過去の研究から,この立ち上がり時間の 長短と熱影響の大小には相関があることが分かっているた め,立ち上がり時間を見ることで熱影響の度合いを見積った。

また,ガラスにおいては,第 1,第 2 パルスのエネルギー E_i , E_2 を (E_i , E_2) =(100 µJ, 100 µJ), (E_i , E_2) =(30 µJ, 30 µJ)の 2 通り のエネルギーで実験を行なった。

2.2 実験結果及び考察

2.2.1 シリコンの時間分解測定

図3 にパルスエネルギー (E, E) =(100 µJ, 100 µJ)の時の 高速度 ICCD カメラによって正面から撮影した遅延時間毎 の加工穴の観察結果を示す。このすべての画像は 100 µ m 角の大きさで、写真の下の数値はレーザーを照射してからの 経過時間(ns)である。フィルターを挿入することでプラ ズマやプルームの自発発光を撮影することなく,ほぼ正面か ら時間の経過とともに加工穴直径が増加していく様子を撮 影することができた。図 4 に遅延時間 5 ps における加工穴 直径の時間変化をグラフ化した結果を示す。横軸にレーザ ーを照射してからの経過時間(ns),縦軸に加工穴直径(µm)をと り 1 ns 毎にプロットした。この加工穴直径は、ICCD カメラ の画像と加工を行ったサンプルの光学顕微鏡写真を対応さ せて調べた。ここで、最終加工穴直径の90%となる時間を立 ち上がり時間と定義しグラフ内に記入した。各遅延時間に おける加工穴直径の時間変化のグラフから立ち上がり時間 は、遅延時間が0 s の時は約 14 ns, 70 fs の時は約 13 ns, 5 ps の 時は約8 ns, 10 ps の時は約10 ns, 20 ps の時は約10 ns, 30 ps の時は約10 ns, 40 ps の時は約10 ns であることがわかった。 遅延時間に対する立ち上がり時間のグラフを図5に示す。 このグラフから,遅延時間が数 ps~10 ps 付近で立ち上がり時 間が最も短くなることがわかった。数 ps~10 ps で立ち上が り時間が短くなった原因は,第1パルス照射後,数 ps~10 ps の間にレーザー照射部が液化しているのではないかと推測 できる。固体と液体では吸収率や反射率が異なる。そのた め吸収される第2パルスのエネルギーが変化したと推測で きる。レーザーの中心ほどビームの強度が強いため、照射部 中央に近い部分ほど液化がはやく進む。そこにちょうど第2

パルスが照射されると、ビームの中心に近いほど吸収される 割合が減少する。このように全体的に吸収されるエネルギ ーが減少するため、立ち上がり時間が短くなったと考えられ る。過去の研究で、レーザー照射後 10 ps 以降においてアブ レーションが生じた際に発生するプルームが観測された ⁹。 このプルーム噴出中に第 2 パルスが照射されると、その粒子 群によって第 2 パルスが遮蔽される。この時噴出する粒子 の密度が最も高い角度はレーザー光と平行な角度であるた め第2パルスの中央の強度が大きく減少すると予想できる。 このため、遅延時間 10 ps~40 ps では立ち上がり時間に差が 生じなかったと推測できる。





図4 加工穴直径の時間変化



図5 遅延時間依存性

2.2.2 ガラスの時間分解測定

図6にパルスエネルギー (E, E,) =(100 µJ, 100 µJ)のとき の高速度 ICCD カメラによって正面から撮影した遅延時間 毎の加工穴の観察結果を示す。図7にパルスエネルギー(E, E2) =(30 µJ, 30 µJ)のときの高速度 ICCD カメラによって正 面から撮影した遅延時間毎の加工穴の観察結果を示す。高 速度 ICCD カメラによって得られたすべての画像は 100 µm 角の大きさで,写真の下の数値はレーザーを照射してからの 経過時間(ns)である。フィルターを挿入することでプラ ズマやプルームの自発発光を撮影することなく,ほぼ正面か ら時間の経過とともに加工穴直径が増加していく様子を撮 影することができた。図8にパルスエネルギー(E,E)=(100 μJ, 100 μJ)のときの遅延時間 5 ps における加工穴直径の時間 変化をグラフ化した結果を示す。横軸にレーザーを照射し てからの経過時間(ns),縦軸に加工穴直径(µm)をとり 1 ns 毎 にプロットした。ここで,最終加工穴直径の 90%となる時間 を立ち上がり時間と定義しグラフ内に記入した。パルスエ ネルギー (E₁, E₂) =(100 μJ, 100 μJ)のとき, 各遅延時間にお ける加工穴直径の時間変化のグラフから立ち上がり時間は、 遅延時間が0sの時は約9ns,70fsの時は約6ns,5psの時は約 4 ns,10 psの時は約4 ns,20 psの時は約6 ns,30 psの時は約6 ns,40 ps の時は約6 ns であることがわかった。パルスエネル ギー (E₁, E₂) =(30 µJ, 30 µJ)のとき, 各遅延時間における加 工穴直径の時間変化のグラフから立ち上がり時間は.遅延時 間が0sの時は約5 ns, 70 fsの時は約4 ns, 5 psの時は約1 ns, 10 ps の時は約2 ns, 20 ps の時は約4 ns, 30 ps の時は約4 ns, 40 ps の時は約4 ns であることがわかった。遅延時間に対する立 ち上がり時間のグラフを図9に示す。このグラフから2通 りのパルスエネルギーにおいても遅延時間が数 ps~10 ps 付 近で立ち上がり時間が最も短くなることがわかった。この 数 ps~10 ps で立ち上がり時間が短くなった原因は,シリコン で述べた考察と同じと推測できる。よって、パルスエネル ギーに関係なく遅延時間が数 ps~10 ps の間で立ち上がり時 間が最も短くなると推測できる。







図7 ガラスの加工穴形成過程 (E₁, E₂=30 µJ)



図8 加工穴直径の時間変化 (E₁, E₂=100 µJ)



図9 遅延時間依存性

3. ポンププローブを用いた時間分解測定装置開発

3.1 実験装置及び方法

図 10 にポンププローブを用いた時間分解測定装置構成図 を示す。フェムト秒レーザーを照明用光源として用いる際, 私達が加工に用いている波長 882 nm のレーザーは ICCD カ メラの感度が低い為,照明として用いることができない。そ こで、レーザーを波長変換結晶に通し第二次高調波(SHG)を 発生させ,ICCD カメラの感度が高い波長 441 nm にすること でカメラの照明用光源として用いる。ただし、波長変換結晶 を通じ発生する SHG の出力がカメラで撮影するのに十分で なければいけない。そこで,非線形光学結晶の中でナノ秒レ ーザーを使って技術確立されてきた結晶を使用する必要が ある。また,フェムト秒レーザーはピークパワーがナノ秒レ ーザーよりはるかに高く,波長幅が広いことを考慮し,我々の 目的に新しくどのような結晶を用いればよいか検討する必 要がある。そこで,今回波長変換を行う非線形光学結晶とし て,紫領域で良好な透過率を示し,かつ高ピークパワーレーザ ーに対して耐レーザー損傷性の高い KDP 結晶と LBO 結晶

について波長変換特性を調べた。その後,ポンププローブ時 間分解測定装置を用いて実際に加工穴の撮影を行った。



図10時間分解測定装置構成図

3.2 実験結果及び考察

KDP 結晶と LBO 結晶の非線形光学特性を表 1 に示す。 この結果,非線形光学定数も大きく,波長帯域の広いフェムト 秒レーザーに適した LBO Type I 結晶を用いることとした。 Ar*ion レーザーと試作した LBO 結晶を用いて発生させた 441 nm 光を照明として撮影した ICCD カメラの画像を図 11 に示す。Ar*ion レーザーを用いて ICCD カメラ単体で撮影 した物と比べて,遜色ない撮影ができることがわかった。こ れによりフェムト秒レーザーを用いた加工穴形成において、 加工開始から数 ps という初期過程を観察することができる。

表1 非線形光学特性

KDP 結晶					
位相整合	Туре І		TypeII		
位相整合角	$\theta = 42.58$		$\theta = 64.08$		
FWHM (° mm)	0.50	\bigtriangleup	1.14	0	
角度波長依存性(°/nm)	0.02	\odot	0.06	0	
非線形光学定数 deff(pm/V)	0.16	\bigtriangleup	0.18	\bigtriangleup	
性能指数	0.64	\bigtriangleup	0.62	\bigtriangleup	
LBO 結晶					

位相整合 位相整合角	Туре I (XY 面) θ =90		Туре I (XZ 面) θ =27.4		Туре∐ (ХҮ 面) <i>θ</i> =90		TypeII (YZ 面) θ =49.3	
	$\phi = 24.3$		$\phi = 0^{\circ}$		$\phi = 62.8$		φ=90°	
FWHM (°mm)	1.00	0	0.66	\bigtriangleup	1.88	$^{\odot}$	3.00	0
角度波長依存性(°/nm)	0.08	0	0.05	0	0.13	\bigtriangleup	0.22	\triangle
非線形光学定数 deff(pm/V)	0.89	\odot	0.62	0	0.56	0	0.68	0
性能指数	9.90	\odot	5.07	0	4.54	0	6.31	0



ゲート幅 200ps

図 11 ICCD カメラの画像

4. まとめ

我々は、ダブルパルスフェムト秒レーザーアブレーション でシリコン及びガラスの穴開け加工を行い、その加工穴形成 過程を ICCD カメラで時間分解測定することで遅延時間と 立ち上がり時間の関係を調べた。

- シリコン基板の加工でレーザーエネルギー (*E₁*,*E*₂)
 =(100 µJ,100 µJ)の時,遅延時間が数 ps~10 ps で立ち 上がり時間が最も短くなる。
- ガラス加工でレーザーエネルギー(*E*₁,*E*₂) =(100 µJ,100 µJ)の時,遅延時間が数 ps~10 ps で立ち上が り時間が最も短くなる。
- ガラス加工でレーザーエネルギー (*E*₁,*E*₂) =(30 µJ,30 µJ)の時,遅延時間が数 ps~10 ps で立ち上がり時間 が最も短くなる。
- フェムト秒レーザーをダブルパルスにするとシン グルパルスに比べ立ち上がり時間が短くなる。

以上の結果より,照射エネルギーに関係なくフェムト秒レ ーザーをダブルパルスにすることで立ち上がり時間が短く なり,さらに遅延時間が数 ps~10 ps の時に立ち上がり時間が 最も短くなることが分かった。よってダブルパルスにする ことで熱影響の少ない微細加工ができると考えられる。

また,我々は高時間分解能撮影が可能な,ポンププローブ時 間分解測定装置の開発を行った。

 照明用光源として 882 nm のレーザーの第二次高調 波を用いる為、波長変換結晶として、紫領域で良好 な透過率を示し、かつ高ピークパワーレーザーに対 して耐レーザー損傷性の高い KDP 結晶と LBO 結 晶のパラメータの比較を行った結果、LBO Type I 結 晶が最適であることがわかった。 LBO 結晶を実験装置に組み込み,ポンププローブにより加工穴の撮影を試みたところ,撮影することができた。

以上の結果から,フェムト秒レーザー加工において,レーザ 一照射後数 ps という超高速現象の解明を行うことができる ようになった。

参考文献

- S. Ohmi and R.T. Tung "Effect of Ultrathin Mo and Mo Six Layer on Ti Silicide Reaction" J. Appl. Phys, 86, pp. 3655-3660 (1999).
- S. Ohmi and R. T. Tung "Silicide Formation in Co-Deposited Ti Six Layers; The Effect of Deposition Temperature and Mo", J. Electronic Materials, 28, pp.
- 1115-1122(17999): ーションとその応用」, 電気学会(レ ーザーアブレーションとその産業応用調査専門委員 会), コロナ社 (1999).
- 4) J. Ihlemann, B. Wolff and P. Simon, "Nanosecond and Femtosecond Excimer Laser Ablation of Fused Silica", *Appl. Phys.* A54, p. 363, (1992).
- B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore and M. D. Perry, "Laser-Induced Damage in Dielectrics with Nanosecond to Subpicosecond Pulses", *Phys. Rev. Lett.*, 74, p. 2248, (1995).
- J. Ihlemann, A. Scholl, H. Schmit and B. Wolff-Rottke, "Nanosecond and Femtosecond Excimer-Laser Ablation of Oxide Ceramics", *Appl. Phys.*, A60, p. 411, (1995).
- 7) 黒木 泰宣、「フェムト秒レーザーを用いた極薄半導体基 板のダイシング技術の開発 ~時間波形制御による高 精度加工の検討~」、宮崎大学修士論文、(2003).
- 6) 向本 徹,「フェムト秒レーザーを用いた半導体製造関連 材料の加工」,宮崎大学大学院修士論文,(2005)
- 水野 俊男、「フェムト秒レーザーを用いた半導体関連材料の加工特性の評価」宮崎大学修士論文,(2004).
- 10) 川原 公介,「フェムト秒レーザーを用いた半導体基板の 加工技術の開発」,宮崎大学大学院修士論文,(2002).

- 松尾 直之、「フェムト秒レーザーを用いた極薄半導体基 板のダイシング技術の開発 〜加工ダイナミックスの 計測〜」、宮崎大学大学院修士論文、(2003).
- 12) 沢田 博司,「フェムト秒レーザーアブレーションにおけるレーザ発振条件の加工特性に及ぼす影響」,精密工学会誌,69巻,1号,P84,(2003).
- 13) 黒澤 宏,「レーザー 基礎の基礎」、オプトロニクス社, (1999).
- 14) 宮崎 建創, 超短パルス高強度レーザーの基礎, レーザ 一加工学会誌 Vol. 8, No.3, P28, (2001).
- J.Herrmann/B.Wilhelmi 「超短光パルスレーザー」,共 立出版株式会社,(1991).
- 16) R. Stain, M. Boyle, A. Thoss, A. Rosenfeld, D. ashikenasi, G. Corn, E. Campbell, I. V. Hertel, "Ultrafast laser ablation of dielectrics employing temporally shaped femtosecond pulses", SPIE Proc. 2nd Int. Symp. on laser Precision Microfabrication, Singapore, 2001. P. 78, (2002).
- R. Srinivasan, E. Sytcliffe and B. Bararen, "Ablation and Etching of Polymethylmethacrylate by Very Short (160 fs) Ultraviolet (308 nm) Laser Pulses", *Appl. Phys. Lett.*, **51**, p. 1285, (1987).
- S. Küper and M. Stuke, "Femtosecond UV Excimer Laser Ablation", *Appl. Phys.*, B 44, p. 199, (1987).
- S. R. Cain, F. C. Burns, C. E. Otis and B. Bararen, "Photothermal Description of Polymer Ablation: Absorption Behavior and Degradation Time Scales", *J. Appl. Phys.*, 72, p. 5172, (1992).
- 20) Z. Bor, R. Racz, G. Szabo, D. Xenakis, C. Kalpouzos and C. Fotakis, "Femtosecond Transient Reflection from Polymer Surfaces during Femtosecond UV Photoablation", *Appl. Phys.*, A 60, p. 365, (1995).
- S. küper and M. Stuke, "Ablation of Polytetrafluorethylene (Teflon) with Femtosecond UV Eximer Laser Pulses", *Appl. Phys. Lett.*, 54, p. 4, (1989).

- 22) S.Preuss, M. Spath, Y. Zhang and M. Stuke, "Time Resolved Dynamics of Subpicosecond Laser Ablation", *Appl. Phys. Lett.*, 62, p. 3049, (1993).
- B. Wolff-Rottke, J. Ihlemann, H. Schmit and A. Scholl, "Influence of the Laser-Spot Diameter on Photo-Ablation Rates", *Appl. Phys.*, A60, p. 13, (1995).
- 24) E. N. Glezer and E. Mazur, "Ultrafast-Laser Driven Micro-Explosions in Transparent Materials", *Appl. Phys. Lett.*, **71**, p. 882, (1997).
- J. Sun, J. P. Longtin and P. M. Norris, "Ultrafast Laser Micromachining of Silica Aerogels", *J. Non-Cry. Sol.*, 281, p. 39, (2001).
- 26) K. Kumagai, M. Okoshi and M. Hanabusa, "Micromachining Transparent Materials by Femtosecond Laser", *Rev. Laser Eng.*, 27, p. 773, (1999).
- S. Küper and M. Stuke, "Femtosecond UV Excimer Laser Ablation", *Appl. Phys.*, B 44, p. 199, (1987).
- 28) E. Ohmura and I. Miyamoto, "Molecular Dynamics Simulation of Laser Ablation Phenomina", *Rev. Laser Eng.*, 26, p. 800, (1998).
- 29) K. Kawahara, Y. Kurogi, N. Matsuo, H. Sawada, A. Yokotani and K. Kurosawa, "Morphological Characterization of Various Kind of Materials in Femtosecond-Laser Micromachining", SPIE Proc. 2nd Int.Symp.On laser Precision Microfabrication, Singapore, 2001, P86, (2002).
- 30) K. Kawahara, Y. Kurogi, N. Matsuo, H. Sawada, A. Yokotani and K. Kurosawa, "Development of Dicing Technique for Thin Semicondutor Substrates with Femtosecond Laser Ablation" SPIE Proc. 3rd Int. Symp. On Laser Precision Microfabrication, Osaka, 2002. P526,(2003).