

## 短パルスレーザーを用いた表面加工技術の開発

松尾 真一郎<sup>a)</sup>・伊豆 光平<sup>b)</sup>・富高 譲<sup>b)</sup>・甲藤 正人<sup>c)</sup>・青山 智夫<sup>d)</sup>・横谷 篤至<sup>e)</sup>Development of Surface Processing Technique using  
Short Pulse Laser of fs-regionShin-ichiro MATSUO<sup>a)</sup>, Kouhei IZU<sup>b)</sup>, Yuzuru TOMITAKA<sup>b)</sup>,  
Masahito KATTO<sup>c)</sup>, Tomoo AOYAMA<sup>d)</sup>, Atsushi YOKOTANI<sup>e)</sup>

## Abstract

In recent years, pulse lasers which have pulse widths of fs-region have become to be used for various proposes such as semiconductor fabrications, MEMS, mechanical engineering and so on. The advantage of using short pulse laser is suppressing the heat affected area around the processed part, and therefore, not only the precise processing without the partial melting but also the easy observation of small morphological changes of irradiated become portion to be achieved. The laser induced periodic surface structure(LIPSS) are the typical example of such changes. In general, these kind of advantages are often emphasized by comparing with the nanosecond lasers. However, there is the difference as much as 100,000 times between these two lasers. This fact is considered to be a reason of the lack of information about mechanism of the periodic structure formation. From this point of view, in this study, we have tried to observe the morphological changes of surface produced by the irradiation of pulse laser with different pulse widths in fs-region. As a result, we found the formation condition of a  $\mu\text{m}$ -order-periodic structure which was different from the LIPSS. This structure is so-called 'ripple'. In the present paper, we discussed the irradiation condition (pulse width, fluence, and shot numbers) for producing the ripple with the pulse width controlled fs-laser and investigated the possibility to apply to new surface processing technique.

**Keywords:** Fs-laser, Processing, Morphological change, LIPSS, Ripple

## 1. はじめに

一般的にレーザー加工は被加工物にレーザーを集光し、アブレーションを利用して穴あけや切断を行う。レーザー加工は非接触加工であるため、機械加工で用いる刃物など摩擦や消耗等による加工精度の低下などが起こらないため、量産化に適した技術として認識されている。その中でも、フェムト秒領域の短パルスレーザーを利用した場合は、さらに熱影響を軽減できるというメリットが加わる。その特徴を生かし、ここ十数年、MEMS、半導体製造などの産業応用分野で盛ん

に研究開発が行われてきた<sup>1,2)</sup>。図1にアブレーションの閾値近傍で起こる現象を模式的にまとめた。アブレーションには閾値があり、それより十分低いエネルギーのレーザーを照射した場合、表面には何の変化も起こらない。しかし、閾値直下のエネルギーではアブレーションは起こらなくても、表面に様々な形態変化が生じる事が報告されている<sup>3)</sup>。また、このエネルギー領域で生じる現象は照射パルス数や繰り返し率を増やすと観察されることも報告されており<sup>4)</sup>レーザー照射による潜在損傷の可能性も示唆されているなど、これらの現象は穴あけ加工に比べて複雑なメカニズムで形成されているが、詳細なメカニズムはまだ解明されていない。しかしながらこれらの現象は魅力的で、最近では穴あけ切断加工に加えて、この表面形態変化を積極的に利用した新しい加工技術を開発しようとする動きも活発である<sup>5-9)</sup>。表面に現れる形態変化の代表例は、レーザーの偏光方向の垂直に形成されるリップ

a) 電気電子工学専攻大学院生

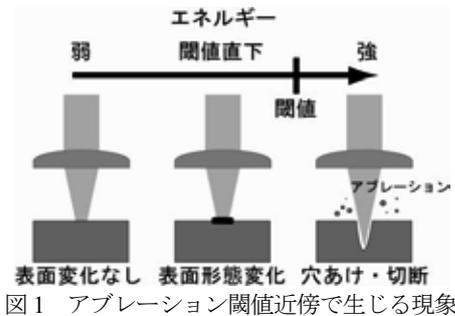
b) 電気電子工学科学部生

c) 産学・地域連携センター准教授

d) 電気電子工学科准教授

e) 電気電子工学科教授

ス(LIPSS: Laser Induced Periodic Surface Structure)であり、すでにナノメータサイズの起伏を簡単に作製できる方法として産業応用が進められている<sup>10-14)</sup>。しかし、レーザー照射面には、LIPSS 以外にも様々な構造が見られる。それらはまだ研究の歴史が浅くこれまで積極的に利用されていないのが現状である。しかも従来の論文の多くではフェムト秒レーザー加工の特徴は、ナノ秒レーザーと比較されていることが多いが<sup>15-16)</sup>、両者のパルス幅は約 10 万倍もの差があり、諸現象をパルス幅でスケールアップするのは困難なためか、フェムト秒領域内でパルス幅を変化させ表面形態変化の観察を行ったデータは少ないのが現状である。そこで本研究では、フェムト秒領域の短パルスレーザーを用いた表面加工法を開発する目的で穴あけ加工閾値直下のフルエンスで、どのような表面形態変化が生じるかデータ収集を行った。その結果、積極的に研究や利用されていないミクロンサイズのある程度揃った周期構造を形成する表面加工法を提案し、その加工条件や特徴を調べた。



2. 表面変化のパルス幅依存性

2.1 実験装置・方法

図2に実験装置構成図を示す。フェムト秒レーザー発生装置（波長: 882 nm、パルス幅: 160 fs、繰り返し周波数: 1 kHz）から発振したレーザー光を、パルス幅伸長装置を用いて、パルス幅 190 fs と 300 fs に調整しオートコリレータで随時確認し実験を行った。サンプルは Si、Sn、Zn、Ti を用いた。

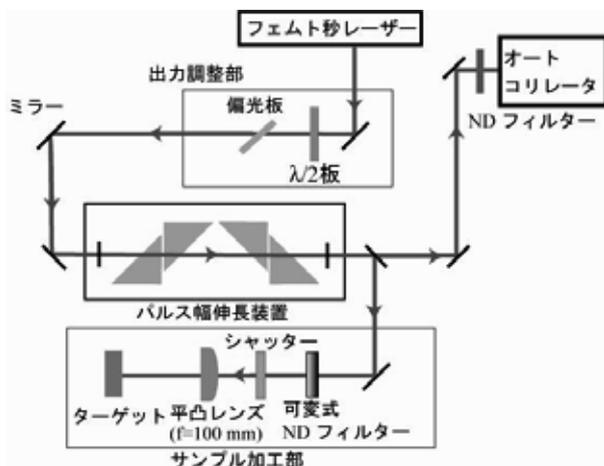


図2 実験装置構成図

エネルギーは各サンプルの穴あけ加工閾値直下とし、予備実験として 1~10 μJ/pulse の範囲内を 0.25μJ/pulse 刻みでエネルギーを変化させ、ショット数 120 shots で加工を行い、表面変化の生じるエネルギーを求めた。表1に各サンプルの加工に用いたエネルギーを示す。焦点位置とビーム径はナイフエッジ法を用いて測定した。ショット数は 10~1200 shots で加工を行った。そして照射面を金属顕微鏡とデジタル画像処理装置を組み合わせて観察した。

表1 加工に用いたエネルギー (μJ/pulse)

	Si	Sn	Zn	Ti
190 fs	5.5	1.5	2.75	3.0
	5.75	1.75	3.0	3.25
300 fs	6.5	1.5	4.0	2.5
	7.0	1.75	4.25	2.75

2.2 実験結果・考察

結果の例として Si の照射面を図3に示す。表面形態変化が生じた照射面には 3 種類の特徴的なパターンが見られた。A は明るく変色したように見える部分、B は画像縦向きにできた細かい縞模様の表面形態変化が生じている部分であり、それぞれ従来からアモルファス相、および LIPSS(Laser Induced Periodic Surface Structure)と呼ばれているものである<sup>17)</sup>。それら以外に今回、C として示した画像横向きにできたある程度周期性の見られる縞模様の表面形態変化が観察され、本研究では、これをリップルと呼ぶこととした。

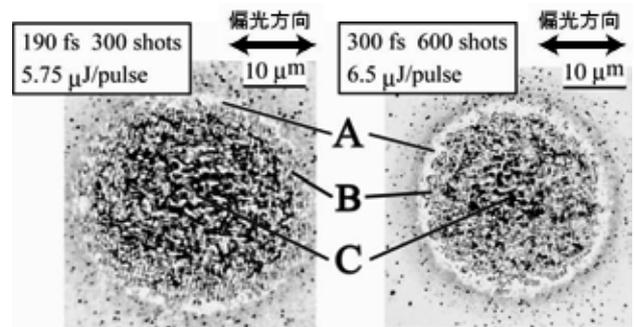


図3 Siの照射面

本研究ではこれらができるレーザー照射条件、パルス幅、フルエンス、ショット数を明らかにする目的で、照射面の各部分のフルエンスを見積もり、それに対応して表面に生じた形態変化の領域を図示することを試みた。Si について、アモルファス相および LIPSS についてまとめた結果を図4、図5に示す。グラフの縦軸はフルエンス、横軸はショット数で今回の研究で測定した範囲を破線で示す。アモルファス相は形成される領域を比較すると 300 fs の方が広い領域の加工条件で生じた。これにより、アモルファス相を安定して表面に形成

したければフェムト秒領域内でもある程度パルス幅の長いレーザーを用いた方が有利である。また、300 fs のときによく傾向が見られるように、アモルファスのできる領域はフルエンスとショット数が反比例しており照射トータルエネルギーが、約  $25 \text{ J/cm}^2$  となった時に形成されることが分かった。このことより、閾値未満の弱いエネルギーで見た目に変化が表れない場合でも微細欠陥のような潜在核が形成されていることが示唆される。その潜在核は照射間隔 1 ms 程度では消失せず、積算されていると考えられる。より低エネルギーで照射実験を行い図 4 のような反比例の線に乗らない領域が見つければ、潜在核形成の閾値を求めることができる可能性がある。190 fs でも 300 fs ほど顕著ではないが同様の反比例の関係が伺えた。このことにより潜在核そのものにフェムト秒領域のパルス幅に大きな依存性はないと考えられる。LIPSS はパルス幅で領域を比較すると 190 fs の方が低エネルギーかつ広い領域の加工条件で生じた。LIPSS を用いた安定加工のためには、フェムト秒領域内でもできるだけパルス幅の短いレーザーを用いた方が有利であることが分かった。

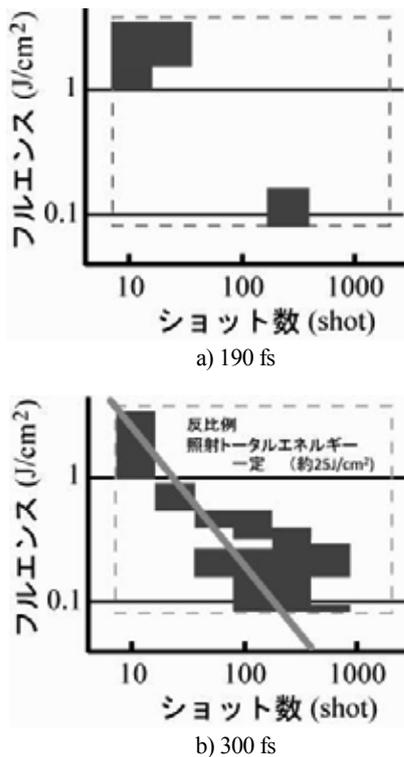


図 4 Si のアモルファスが生じた領域

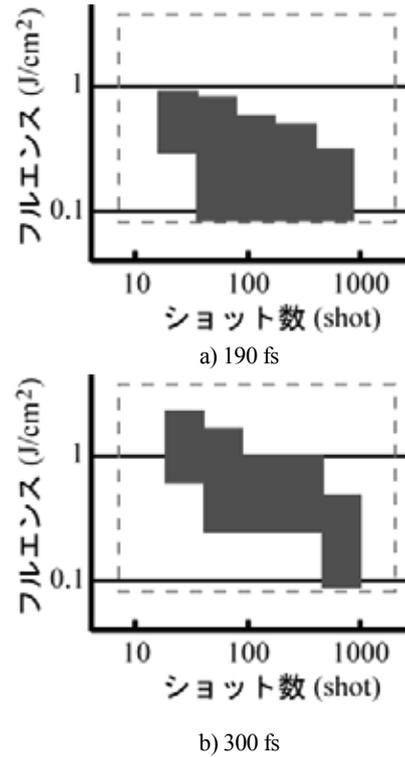


図 5 Si の LIPSS が生じた領域

次に、リップルの生じる条件を調べようと試みたがリップルは LIPSS と異なり、必ずしもきっちりの間隔で縞模様が形成されているわけではないので工夫が必要となった。図 6 に Si について各ショット数で生じた LIPSS とリップルのピッチを測定した結果を示す。グラフの縦軸は 3ヶ所で測定したリップルのピッチ、横軸はショット数を示す。リップルは所々とぎれた構造であるため、とぎれた部分を測定した場合、本来あるべき場所の縞を跳ばして計測してしまうため、ピッチは大きめの値をとる。縞模様の不揃いな傾向が大きい時には、図 6 のように上下に大きくばらついてしまう。つまり、このグラフの上下のばらつきは、リップルのピッチの揃い方を表している。図 6 に示されるように 190 fs では比較的揃った縞模様が 300 shots のときにできており、そのピッチは約  $3 \pm 0.3 \mu\text{m}$  であった。300 fs では比較的揃った縞模様が 600 shots のときにできており、ピッチは約  $2.5 \pm 0.7 \mu\text{m}$  であった。以上より、リップル形成には最適なショット数があることが分かり、パルス幅によって最適なショット数は違うことが分かった。比較のために LIPSS についても同様の計測を行い図 6 にあわせて示した。LIPSS はおおよそ加工に用いた波長程度の周期で形成されておりばらつかない。リップルと LIPSS は全く異なったものであることが分かった。他のサンプルについても同様の計測を行い、形成条件とピッチをまとめたものを表 2 に示す。

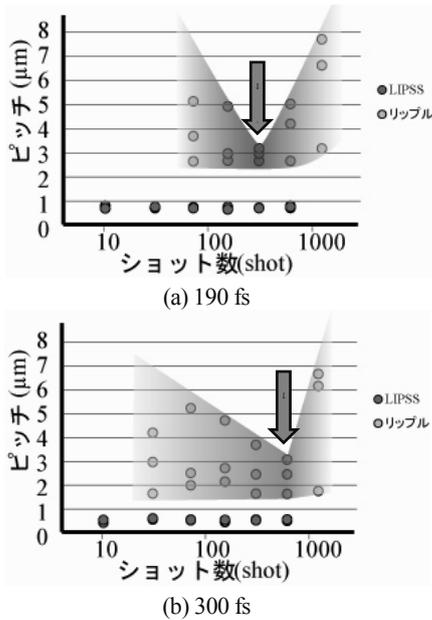


図6 ピッチのショット数依存性

表2 リップルのピッチ

	Si		Sn		Zn		Ti	
	190 fs	300 fs	190 fs	300 fs	190	300 fs	190	300 fs
最適なショット数	300	600	300	600	—	—	—	—
ピッチ(μm)	2.5±0.5	2.4±0.8	3.3±1.1	3.0±0.7	—	—	—	—
最適なショット数	300	300	300	300	—	—	—	—
ピッチ(μm)	3.0±0.3	1.6±0.3	3.4±0.7	3.9±1.2	—	—	—	—

### 3. 一次元スキャン加工

#### 3.1 実験装置・方法

図7にスキャン加工に用いた実験装置構成図を示す。基本構成は図2で示したものと同じで、それに図7で示すようにサンプルホルダーにYZ面でスキャンを可能としたPC制御の2軸ステージを取付けて行った。パルス幅は190 fsと300 fsで行った。サンプルはSi、Sn、Zn、Tiを用いた。エネルギーは各サンプルの穴あけ加工閾値直下とし、Siの190 fsでは5.25 μJ/pulse、300 fsでは6.5 μJ/pulse、Snの190 fsと300 fsでは1.5 μJ/pulse、Znの190 fsでは3.0 μJ/pulse、300 fsでは3.5 μJ/pulse、Tiの190 fsと300 fsでは2.5 μJ/pulseで行った。

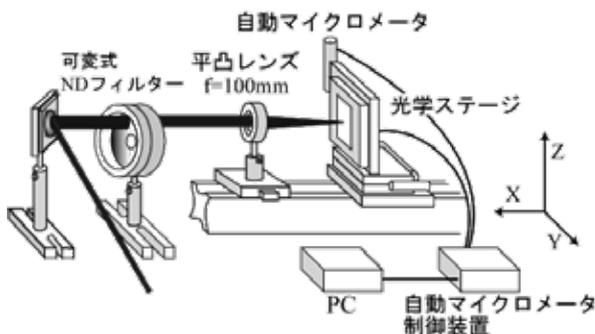


図7 サンプル加工部の模式図

スキャンの方法は、図8(a)で示すように加工痕がロの字になるようにサンプルを移動させながら照射を行った。サンプルを固定したと考えた場合のビームの照射経路を図8(b)に矢印で示す。ロの字の1辺は300 μm、スキャン速度を毎秒約30~100 μmの速度で変化させて加工を行った。これは一か所あたり300~2000ショットしたことに相当する。照射面は金属顕微鏡とデジタル画像処理装置を組み合わせで観察した。

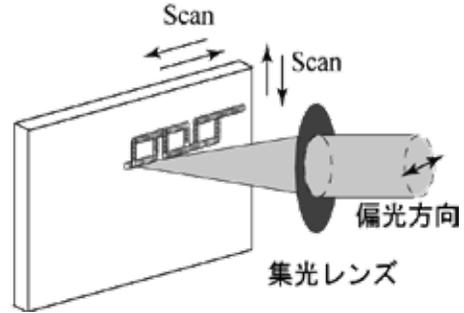


図8(a) スキャン加工の模式図

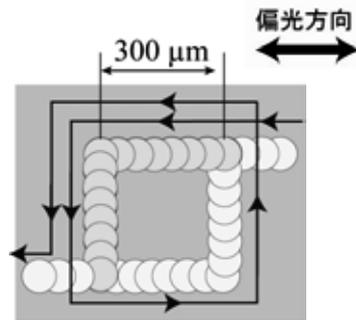


図8(b) ビームの照射経路の模式図

#### 3.2 実験結果・考察

Snにパルス幅190 fs、エネルギー1.5 μJ/pulse、ショット数1200 shotsで加工を行った場合の、加工痕の例を図9に示す。レーザー照射は、直径23 μmのスポットで断続的に行なったにもかかわらず、スキャンにより形成されるリップルには、レーザービームパターンに相当するような模様は見られず、つながった縞模様が形成された。図9の偏光方向は全て画像横向きで、(a)と(b)のサンプルには画像縦方向に、(c)と(d)のサンプルには画像横方向に照射前から表面にスクラッチが入っていた。(a)と(b)、(c)と(d)をそれぞれ比較するとスキャンの方向に関係なく同一サンプルであれば同一方向のリップルが形成されることが分かった。また、(a)と(c)、(b)と(d)を比較すると、サンプルを90°回転させただけでレーザーの照射条件は全く変化させていないにもかかわらずリップルの形成方向が90°回転した。このことにより表面に存在するスクラッチがリップル形成の初期条件として影響し、縞模様の方向を決めている可能性が強い。

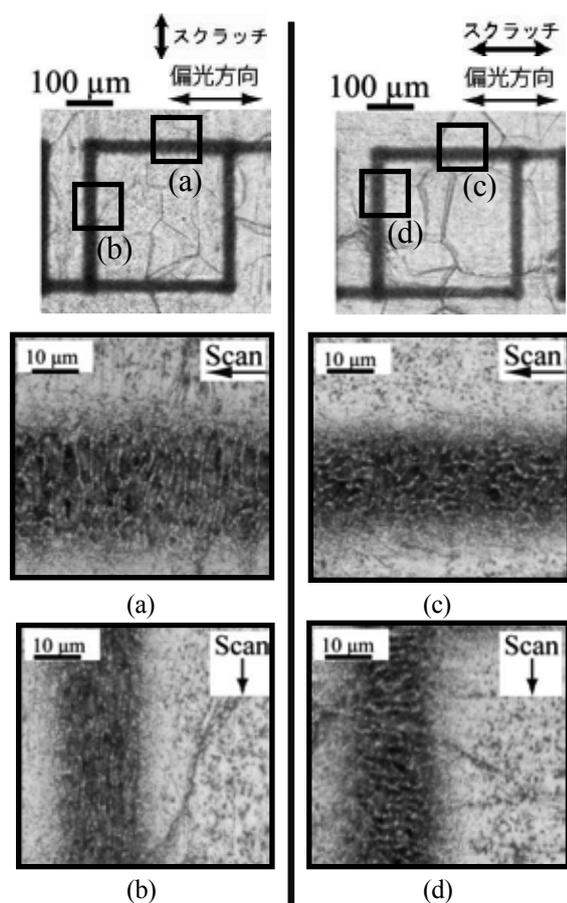


図9 スズの加工痕の例 (1200 shots)

このリップルの周期性を評価するために、形成されたリップルに含まれる周波数成分を高速フーリエ変換 (FFT) 解析した。金属顕微鏡とデジタル画像処理装置で得た原画像は縦 1600 ピクセル、横 1200 ピクセルであり、スキャン加工部の中心軸から左右に 3 ピクセル、計 7 ピクセルを横方向に平均し、縦方向には画像上から下まで 1 ピクセルごとに 1600 ピクセル分の輝度データを取得し FFT 解析を行った。図 9(d) に示したものの原画像を含め 0~2000 ショットで得た同様の画像について解析した結果を図 10 に示す。グラフの横軸はスキャン軸方向のピクセル数(1600 ピクセル)から見積もった波数、縦軸は FFT の強度を示す。0 ショットのデータはランダムで特定の周期をもたないスクラッチを反映しており、それが 300 ショット、1000 ショット、2000 ショットとショット数を増やすことにより、2.8  $\mu\text{m}$ 、3.4  $\mu\text{m}$ 、4.0  $\mu\text{m}$ 、5.3  $\mu\text{m}$  のピッチを有するリップルに成長していくことが分かった。2000 ショットで顕著になっている複数のピークは、それぞれの周波数成分がそれぞれ異なったメカニズムでできている可能性が考えられるが、現時点では解析はそこまで進んでおらず、詳細なメカニズムの解明には更なる研究が必要である。

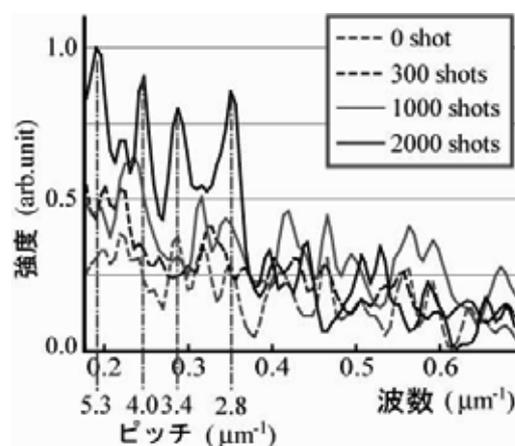


図 10 FFT 解析結果

他のサンプルについても同様の解析を行い、得られたピッチを表 3 にまとめた。Ti については明確なピッチを持つリップルを形成することはできなかった。表中 190 fs のデータと 300 fs のデータを比較すると、フェムト秒領域内であればパルス幅には強い影響力は見られなかった。また Si の場合などは必ずしもショット数を増やすことにより明確なリップルが形成されるわけではなく、最適ショット数があることが伺えた。これはスキャンしない場合でも表 2 で示したようにリップル形成には最適ショット数が存在するので、スキャンした場合に得られたデータでも同様の傾向が見られたものと思われる。

表 3 FFT 解析によるピッチ

	パルス幅 (fs)	エネルギー ( $\mu\text{J}/\text{pulse}$ )	300 shot	1000 shot	2000 shot
Si	190 fs	5.25	3.6~5.6 $\mu\text{m}$	3.1~6.0 $\mu\text{m}$	—
	300 fs	6.5	3.2~5.3 $\mu\text{m}$	5.4 $\mu\text{m}$	—
Sn	190 fs	1.5	—	3.2~4.2 $\mu\text{m}$	2.8~5.3 $\mu\text{m}$
	300 fs	1.5	—	3.9~4.5 $\mu\text{m}$	3.8~5.4 $\mu\text{m}$
Zn	190 fs	3.0	—	3.8 $\mu\text{m}$	4.3 $\mu\text{m}$
	300 fs	3.5	—	3.3~4.0 $\mu\text{m}$	2.9~3.6 $\mu\text{m}$
Ti	190 fs	2.5	—	—	—
	300 fs	2.5	—	—	—

#### 4. まとめ

本研究では、フェムト秒領域の短パルスレーザーを用いた表面加工法を開発する目的で、穴あけ加工閾値直下のフルエンスでどのような表面形態変化が生じるかデータ収集を行った。観察されたものの中でも、現状積極的に研究や利用されていないミクロンサイズのある程度揃った周期構造が形成される「リップル」を用いてスキャン加工を行い形成される構造の特徴を調べた。以下に、その成果についてまとめる。

- ・表面変化のパルス幅依存性の実験より、Si 照射面にはアモルファス相、LIPSS、リップルの 3 種類の特徴的な表面変化が生じた。
- ・アモルファス相はフェムト秒領域内でもある程度パルス幅の長いレーザーを用いた方が有利であり、LIPSS はできるだけパルス幅の短いレーザーを用いた方が有利である。
- ・リップル形成には最適なショット数があり、パルス幅によって最適なショット数は異なった。
- ・Sn の一次元スキャン加工の実験より、リップルはスキャンに伴ってつながった縞模様が形成されることが分かった。
- ・その縞模様の方向は Sn の表面に存在するスクラッチの方向により決まる。
- ・リップルのピッチはフェムト秒領域内であれば、パルス幅による強い影響は見られなかった。
- ・Si、Sn、Zn、Ti について同様の実験を行い、結果をまとめることができた。

以上より今後、より詳しく研究を進めていけば、新たな加工法の開発へと進展していくと思われる。

## 参考文献

- 1) 邸, 平尾, レーザー研究, 30, 239 (2002)
- 2) 三澤, レーザー研究, 30, 233 (2002)
- 3) R.Srinivasan, W.J.Leigh, J.Am.Chem.Soc. 104 6784-6785 (1982)
- 4) D.V.Tran, H.Y.Zheng, Y.C.Lam, V.M.Murukeshan, J.C.Chai, D.E.Hardt, Optics and Lasers in Engineering, 43, 977-986 (2005)
- 5) 宮崎健創, J. Vac. Soc. Jpn., Vol.53, No.6 379-386 (2010).
- 6) A.M.Ozkan, A.P.Malshe, T.A.Railkar, W.D.Brown, M.D.Shirk, P.A.Molian, Appl. Phys. Lett., 75 (23), 3716-3718 (1999)
- 7) 橋田, 清水, 阪部, レーザー研究, 33 (8), 514-518 (2005)
- 8) 安丸, 宮崎, 木内, レーザー研究, 33 (8), 519-524 (2005)
- 9) 沢田, レーザー研究, 33 (8), 525-529 (2005)
- 10) J.E.Sipe, J.F.Young, J.S.Preston, H.M.van Driel, Phys. Rev., B27 (2), 1141-1154 (1983)
- 11) J.F.Young, J.S.Preston, H.M.van Driel, J.E.Sipe, Phys. Rev., B27 (2), 1155-1172 (1983)
- 12) J.F.Young, J.E.Sipe, H.M.van Driel, Phys. Rev., B30 (4), 2001-2015 (1984)
- 13) A.E.Siegman, P.M.fauchet, IEEE J-Quantum Electronics, 22 (8), 1384-1403 (1986)
- 14) M.C.Cross, P.C.Hohenberg, Rev. Mod. Phys., 65, 851-1112 (1993)
- 15) J. Kruger, S. Martin, H. Madebach, L. Urech, T. Lippert, A. Wokaun, W. Kautek, Appl. Surf. Sci., 247,406 (2005)
- 16) X. Zhu, D.M. Villeneuve, A.Yu. Naumov, S. Nikumb, P.B. Corkum, Appl. Surf. Sci., 152, 138 (1999)
- 17) Y. Izawa, Y. Setuhara, M. Hashida, M. Fujita, and Y. Izawa, Jpn. J. Appl. Phys., Vol.45, No.7, 5791-5794, (2006)