

レーザー超精密加工における光波シンセシス

熊 谷 寛

Optical Wave Synthesis in Laser Precise Machining

Hiroshi KUMAGAI

Femtosecond laser precise machining has developed with rapid progress in high-intensity ultrafast lasers. This review surveys and highlights the prospects of femtosecond laser precise machining based on recent researches, such as understanding of interactions between a femtosecond laser and solid materials, laser ablation of metals and bulk modification of transparent dielectric materials, from the view point of potential use of optical wave synthesis.

Key words: femtosecond laser, materials processing, laser ablation, bulk modification, precise machining

高い尖頭出力の超短パルスレーザーが飛躍的に進歩している。すでに帯域幅限界に近い2サイクルパルスの発生がTi:サファイアレーザーで実現し、カタログ品でも20 fs以下の発振器・再生増幅器システムがあり、光パラメトリック増幅器および高調波発生を組み合わせることで、赤外域から紫外域の広い波長範囲で超短パルス光を得ることができ、この商用フェムト秒レーザーの急速な進歩が、最近のフェムト秒レーザー超精密加工のドライビング・フォースになっているといえる。

1987年にIBMとMax-Planck-Institutで相次いで報告されて以来^{1,2)}、ポリマー³⁻⁸⁾、誘電体⁹⁻¹²⁾、半導体¹³⁻¹⁵⁾等のレーザーアブレーション、ダイヤモンド様炭素膜のレーザーアブレーション堆積¹⁴⁾、半導体表面の超高速溶融¹³⁾、透明絶縁材料のレーザー誘起絶縁破壊¹⁶⁾などが盛んに研究されてきた。最近では現象の解明のみならず応用を見据えた、金属のレーザーアブレーション、透明誘電体のバルク改質、生体への応用など、超精密加工分野が精力的に研究されてきている。フェムト秒レーザー加工では、振幅、位相、周波数、波面、パルス波形、コヒーレンスなどの、光波シンセシスのパラメーターをすべて制御する試みは行わ

れていないが、光波シンセシス技術の発展とともに、その重要性が理解されはじめている。本解説ではフェムト秒レーザー超精密加工における光波シンセシス、そのパラメーターの中でもすでに研究が進んでいるパルス幅、パルス波形に注目して解説する。

1. 材料表面プロセッシングにおけるパルス幅依存性

超短レーザーパルスと金属との相互作用において、自由電子は逆制動放射過程によりレーザーエネルギーを吸収する。その後吸収されたレーザーエネルギーは、電子系の加熱、格子系へのエネルギー移乗、金属内部への熱伝導に分配される。レーザー光のパルス幅が電子・フォノン結合時間よりも短い場合、金属内部への熱伝導による損失過程を無視できるため、レーザーエネルギーを格子系に効率よく注入できる。金属は熱伝導率が高く、ピコ秒程度で熱拡散長 $(D_e)^{1/2}$ がバルクのレーザーの吸収長 $(1/\alpha)$ とほぼ同程度になるので、半導体やポリマーなどに比べてフェムト秒レーザーの効果が顕著になる。図1は、真空中でインジウム表面にパルス幅の異なった紫外レーザーパルスを100ショット照射したときのアブレーション表面のSEM写真で

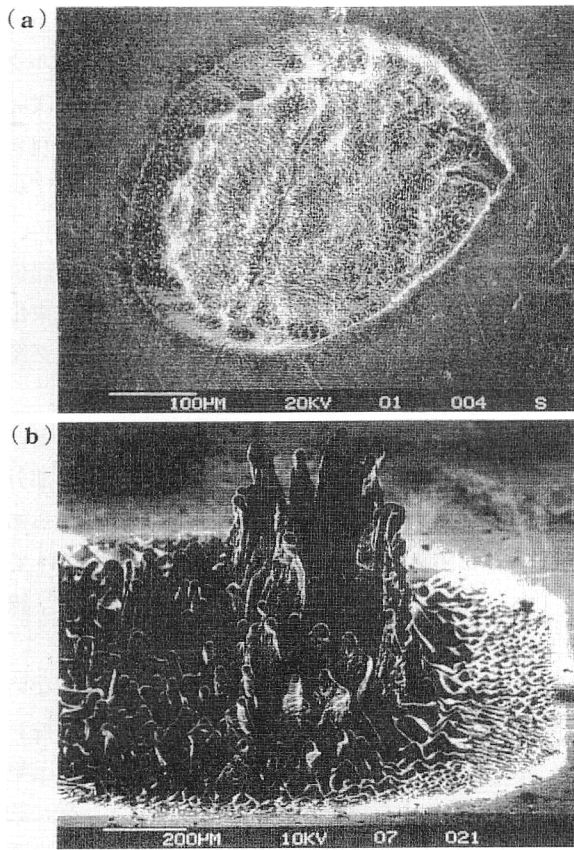


図1 紫外レーザーアブレーションされたインジウム (固体) 表面のSEM写真¹⁷⁾。レーザーパラメーター: (a) 248 nm, 500 fs, $F=0.32 \text{ J/cm}^2$, (b) 308 nm, 15 ns, $F=1.4 \text{ J/cm}^2$ 。

ある¹⁷⁾。図1(a)は波長248 nm, パルス幅500 fsであり, 図1(b)は波長308 nm, パルス幅15 nsである。後者は無数の突起が表面から迫り出していて, 周辺部にも熱によると思われる変成がみられるが, 前者においては縁部分がはっきりとしている。

図2は金のレーザー(770 nm)アブレーション閾値フルエンスのパルス幅依存性の実験値および計算値を示した図である¹⁸⁾。100 psよりパルス幅が長い領域では, 閾値は主として入力パルスエネルギーの熱拡散によって決まるため, パルス幅の平方根に比例する。パルス幅が100 ps以下になってくると次第に $f^{1/2}$ の振る舞いから逸脱しはじめ, 1 ps領域になると閾値はほぼ一定値になる。これは熱拡散長(D_T)^{1/2}がバルクのレーザー吸収長($1/\alpha$)とほぼ同じか, それ以下になるためである。つまりこの時間領域では, パルスの終結までに熱拡散がほとんど認められないことになる。さらにパルス幅が短くなると, 表面もしくは固体内部での熱勾配が急峻になる。蒸発面の有限の速度が表面近傍の熱勾配の緩和を決め, 固体内の熱拡散が材料のより深い部分での温度プロファイルを決定する。蒸発面の速度が相

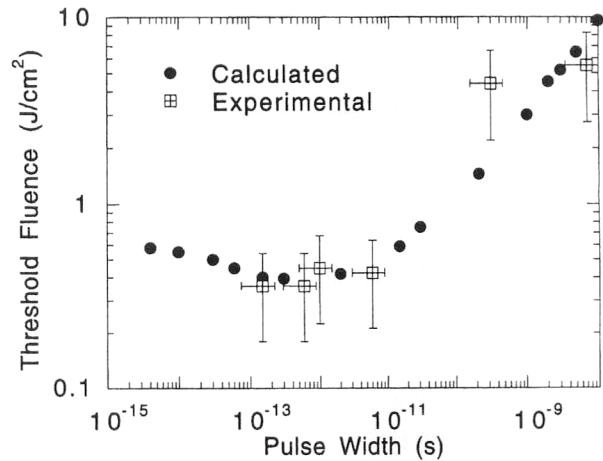


図2 金のレーザー(770 nm)アブレーション閾値フルエンスのパルス幅依存性の実験値および計算値¹⁸⁾。

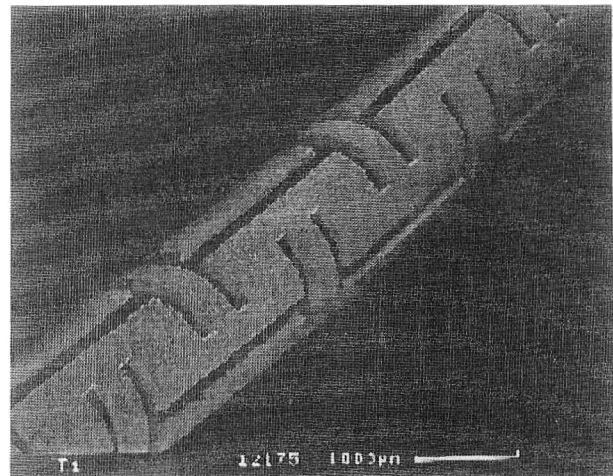


図3 チタン製の移植組織のフェムト秒レーザーマシーニング²⁰⁾。

対的に遅く, 表面近傍の熱勾配が急峻であるため, むしろ吸収された入力パルスエネルギーの多くがバルクのほうに引き取られることになるので, 蒸発の閾値が増大することになる。

熱拡散領域を限定できる超精密加工では, 例えば波長800 nm, パルス幅200 fsの光パルスを用いたAgのアブレーションにおいて, 3 μmの直径に集光したところ, 直径300 nm, 深さ52 nmの穴が開けられている¹⁹⁾。アルミナ, シリコン, ゲルマニウム, 水晶など熱伝導率が比較的高い材料はもちろんのこと, 金属やグラファイトなどの高熱伝導率材料においても, 精密な加工ができる。図3はチタン製の移植組織のフェムト秒レーザーマシーニングの例である²⁰⁾。約1.5 mmのチタン製の移植組織に幅100 μm程度の複雑なパターンを直描している。フェムト秒レーザーの特長が生きた金属の超精密加工例である。

2. 透明誘電体の超精密バルク改質

多光子イオン化による自由電子の密度が指数関数的に増大するアバランシ過程²¹⁾により、十分なほどの束縛電子がイオン化されると、透明材料は絶縁破壊される。この透明材料表面の絶縁破壊もしくは屈折率変化を利用した例として、フェムト秒レーザー(波長 800 nm, パルス幅約 100 fs, 単一パルスエネルギー 1 mJ, 繰り返し 10 Hz) の 2 光束干渉による、固体材料への単一ショットのアブレーション直接記録が報告されている²²⁾。従来のレーザー露光プログラムと異なる点は、空気の 3 次非線形性を利用するなど、2 光束干渉のための高精度な (30 μm 以内) 光路調整法を必要としている点と、2 光束干渉領域では光強度が高く、感光性のない記録材料への書き込みも可能になる点である。図 4 にフェムト秒レーザー干渉露光システムを示す。同システムを用いると、サファイア表面に表面レリーフ型ホログラムを形成できる(図 5)。それぞれの回折格子は 1 回の

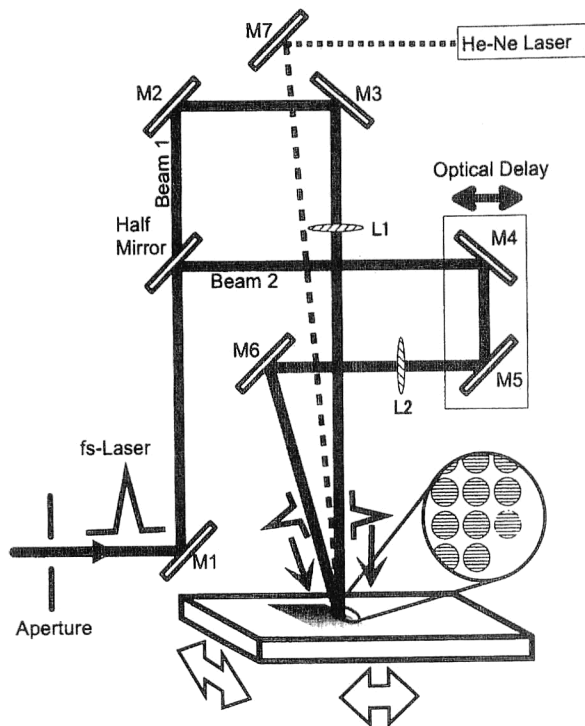


図 4 フェムト秒レーザー干渉露光システム²²⁾。

レーザーパルス照射により形成されている。

一方フェムト秒レーザーを用いた透明誘電体のバルク改質については、光メモリー^{23,24)}、光導波路²⁵⁻²⁷⁾、3次元加工^{28,29)}などに向かって研究が進められてきた。透明材料の光学的な絶縁破壊の研究については以前から行われていたが¹⁶⁾、固体内部の加工法に発展させている点が新しい。このバルク改質は、光 Kerr 効果による自己集束化、自己位相変調や、イオン化、自由電子の発生による自己非集束化あるいは群速度分散等を考慮すべき新しいプロセッシング領域にあり、将来の光波シンセシスが生きる領域である。

ピコ秒レーザーでは、石英ガラス内部に集光すると、ピコ秒パルスの立ち上がり、立ち下がり部分とピーク部分とで焦点の位置が移動する現象が現れ、改質は表面からある程度深いところから始まり、表面のほうに近づいていく²⁸⁾。1パルス内で焦点位置が移動することによって、線上の加工ができる。

一方、フェムト秒レーザーでは焦点の移動が残らないほど高速に加工が開始する。特に発散ぎみにフェムト秒レーザーを透明媒質に入れると、光 Kerr 効果による自己集束効果とイオン化による自己非集束効果がソリトン様に釣り合うチャネリングが固体中でもみられる²⁹⁾。実験では透明媒質として光ファイバーが利用されているが、チャネリング、バルク改質をその場で観察できる利点がある。パルス幅 110 fs, 繰り返し周波数 1 kHz の Ti: サファイアレーザー (790 nm) を用い、コア/クラッドの直径が 100/110 μm

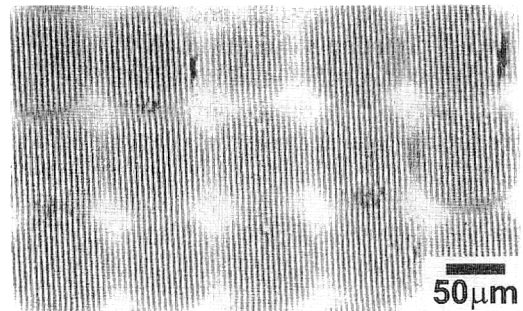


図 5 サファイア上に記録された多数の表面レリーフ型回折格子²²⁾。

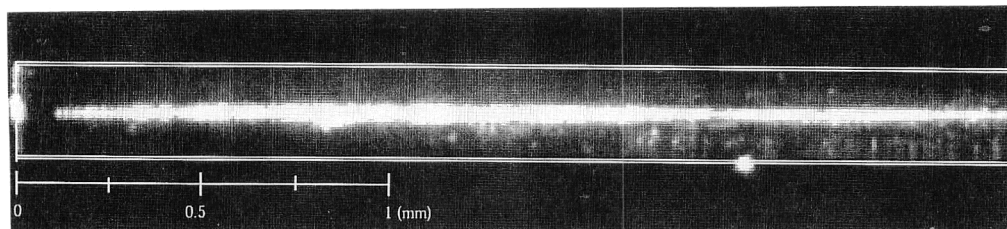


図 6 ファイバー中のフェムト秒レーザーの伝搬によるプラズマチャネリングの形成²⁹⁾。

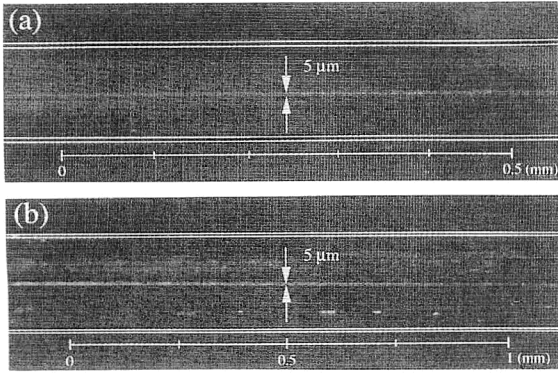


図7 フェムト秒レーザー照射後のファイバー内部の改質²⁹⁾。(a) コア径100 μm, (b) コア径200 μm.

等のマルチモードシリカファイバーを使用している。入力強度が $1.5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ を超えると、光ファイバーの入力端から9~10 mmの長さのプラズマチャネリングが形成される(図6)。急速なプラズマの緩和が、固体内部にカラーセンターを形成する³⁰⁾。図7はフェムト秒レーザー照射後の顕微鏡写真である。直径5 μmの改質領域では屈折率が0.01程度上昇し、導波路になることが示されている。

さらに固体内部で強く集光すると点状の微小空孔を発生できる。フェムト秒レーザー光を光学顕微鏡に導入してその焦点において加工する顕微加工装置の報告例を図8に示す³¹⁾。多光子励起用として、Ti:サファイアレーザーの第二高調波(波長400 nm, パルス幅150 fs)を用いている。この第二高調波を光学顕微鏡の油浸対物レンズ(×100倍, NA 1.3)を用いてほぼ回折限界にまで集光し、3軸ピエゾアクチュエーターにセットしたサンプルに照射し、CCDカメラとビデオによってその場観測している。図9に同装置による3次元光データ記録例を示す。ビットサイズは回折限界のスポットサイズと一致し、 $0.3 \mu\text{m}$ であり、同一平面内の間隔は $1.5 \mu\text{m}$ であり、層間距離は $5 \mu\text{m}$ 、層数40である。記録密度 11.1 GB/cm^3 に相当し、最大 72.9 GB/cm^3 までの高密度を達成している。同様な手法は、光データ記録だけでなく、フォトニック結晶作製技術にも応用でき、2次元、3次元のフォトニック結晶の作製に成功している³²⁾。焦点付近の屈折率変化部分を機械研磨することにより、直径250 nm程度の微小空孔が形成されていることが確認されている。

3. 透明媒質中を伝搬するフェムト秒パルスの波形変化

フェムト秒レーザー光が上述の透明媒質中を伝搬するとき、媒質との相互作用によって非線形現象を生じ、その伝搬ダイナミクスがきわめて複雑になっている。しかしこれ

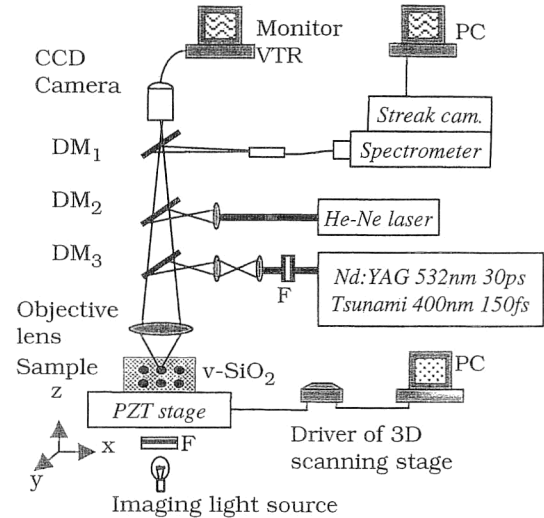


図8 フェムト秒レーザー加工装置³¹⁾。DM:ダイクロイックミラー, F:ニュートラルフィルター。

Bit planes pile:

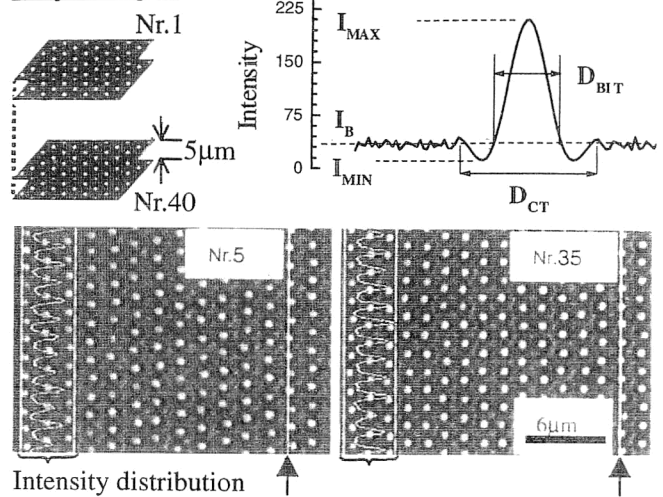


図9 フェムト秒レーザー加工による3次元光データ記録³¹⁾。

までは集光点付近を十分な時間分解能でその場観察する手段がなかったため、この複雑な光伝搬ダイナミクスはほとんど解明されていなかった。最近、高い光強度によって誘起される非線形屈折率を巧妙に利用する、フェムト秒時間分解偏光画像化計測法(FTOP: femtosecond time-resolved optical polarigraphy)が開発された³³⁾。媒質中を伝搬するフェムト秒レーザー光を直接、フェムト秒域の時間分解スナップショットとして、連続的に画像化計測するものである。図10に実験装置の構成を示す。波長800 nm, パルス幅100 fsのパルス光(直線偏光)は、光分岐器でプローブ光とポンプ光に分割される。ポンプ光は可変光学遅延を与えた後、半波長板で電場が誌面鉛直方向の直線偏光に変換され、レンズで測定用媒質へと集光される。他方、

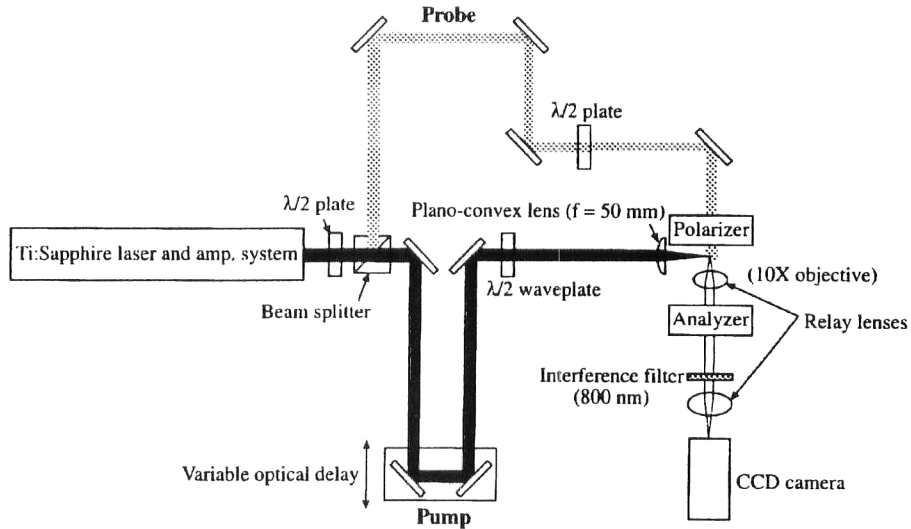


図10 フェムト秒時間分解偏光画像化計測システム³³⁾.

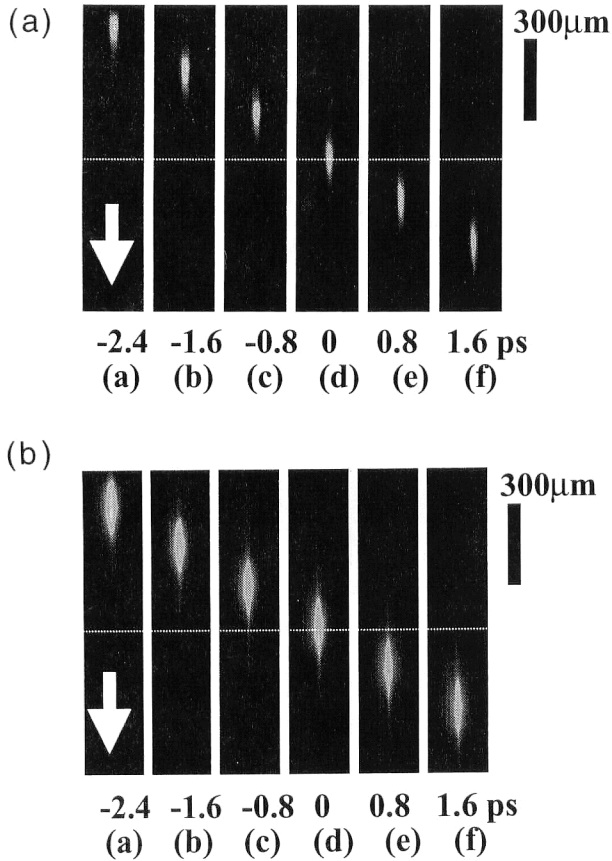


図11 合成石英中を伝搬するフェムト秒パルスの画像化計測³⁴⁾.

プローブ光は半波長板で電場の方向を 45° 回転させ、さらに直線偏光の消光比を上げるため、同方向に向けた偏光子を通過させたのち、ポンプ光焦点近傍の相互作用域をポンプ光の伝搬軸に対して垂直な平行光として媒質に入射する。この相互作用域でプローブ光の偏光状態が変化するが、この変化は偏光子と垂直な向きの検光子によって抽出

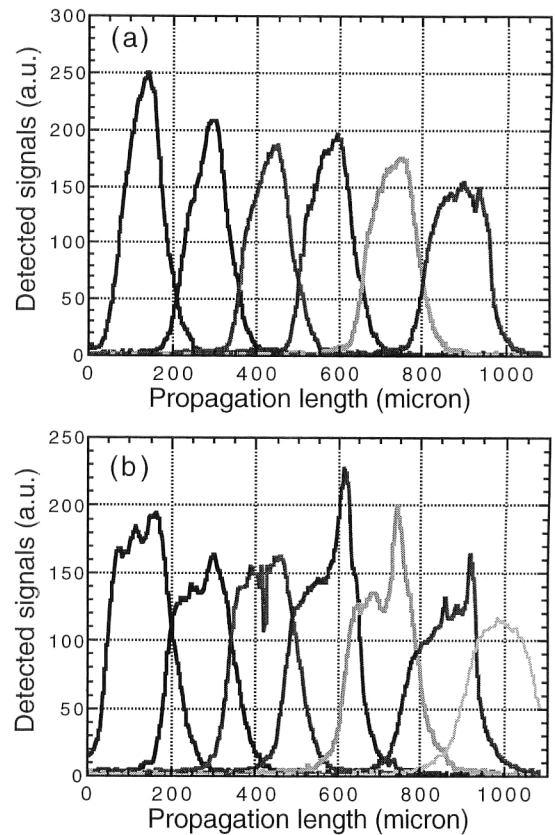


図12 合成石英中を伝搬するフェムト秒パルス波形の変化。

され、拡大リレーレンズ系で CCD カメラで撮像されるしくみである。

図11はフェムト秒レーザーを、焦点距離 60 mm のレンズで合成石英中に集光したときの FTOP 像である³⁴⁾。レーザーエネルギーは、それぞれ (a) $14.8 \mu\text{J}$ 、(b) $135 \mu\text{J}$ とした。(a) と (b) とを比較して、明らかに後者の条件のとき、パルス幅がのびていることがわかる。図12がレーザー

光伝搬軸と平行な断面の波形を示したものである。図 12(a) の $14.8 \mu\text{J}$ の場合、表面から 7.5 mm 伝搬する焦点近傍では、焦点の 0.5 mm 手前で 0.32 ps 、 0.5 mm 奥で 0.46 ps のパルス全幅になっている。さらにエネルギーの大きい (b) の $135 \mu\text{J}$ の場合では、焦点の 0.5 mm 手前で 0.75 ps 、 0.5 mm 奥で 0.82 ps になっていることがわかる。もともとのパルス全幅からすると 2~3 倍パルス幅がのびていることがわかる。さらに (b) ではパルスの先頭部分に強いピークがみられ、パルス断面像とともに検討することで、自己集束していることがわかる。加工したいまきにその位置では、加工に適さないパルス波形に変形していることが観察できた。加工したい点でいかに最適なパルス波形を形成するかが、効率的な精密加工への重要なステップになる。

4. レーザー超精密加工における光波シンセシスの展望

最近のフェムト秒加工を概観してみると、材料表面の精密加工では材料固有の熱伝導度から最適なパルス幅が見いだせ、生じるプラズマブルームの電子密度からレーザー波長の長波長側の限界値が決まることがわかる。透明材料では材料内部の加工ができるが、材料内部では FTOP 像からわかるように初期のパルス幅よりも大幅にのびていることがわかる。ここに今後光波シンセシス技術が生きる新領域が潜んでいるように思われる。加工点で最適なパルスになるように、振幅、位相、周波数、波面、パルス波形、コヒーレンスなどのパラメーターを制御し、入力パルスを設計する必要があるからだ。最適な入力パルスでは、現在再生増幅器を必要としているフェムト秒レーザー加工を、モード同期レーザーのみの単純な形態で実現することができるだろう。最後に、光波シンセシス技術の適応により、応用範囲が拡大し、レーザー超精密加工がさらに発展することを期待している。

なお、FTOP による固体中のフェムト秒レーザーパルスの伝搬の観察は、浜松ホトニクスとの共同研究により得られたものである。浜松ホトニクス中央研究所の土屋裕氏、青島紳一郎氏、藤本正俊氏、理化学研究所の趙聖学氏のご協力に感謝します。

文 献

- 1) R. Srinivasan, E. Sutcliffe and B. Braren: Appl. Phys. Lett., **51** (1987) 1285-1287.
- 2) S. Küper and M. Stuke: Appl. Phys. B, **44** (1987) 199-204.
- 3) S. R. Cain, F. C. Burns, C. E. Otis and B. Braren: J. Appl. Phys., **72** (1992) 5172-5178.

- 4) H. Kumagai, K. Midorikawa, K. Toyoda, S. Nakamura, T. Okamoto and M. Obara: Appl. Phys. Lett., **65** (1994) 1850-1852.
- 5) Z. Bor, R. Racz, G. Szabo, D. Xenakis, C. Kalpouzos and C. Fotakis: Appl. Phys. A, **60** (1995) 365-368.
- 6) S. Küper and M. Stuke: Appl. Phys. Lett., **54** (1989) 4-6.
- 7) S. Preuss, M. Spath, Y. Zhang and M. Stuke: Appl. Phys. Lett., **62** (1993) 3049-3051.
- 8) S. Nakamura, K. Midorikawa, H. Kumagai, M. Obara and K. Toyoda: Jpn. J. Appl. Phys., **35** (1996) 101-106.
- 9) J. Ihlemann, B. Wolff and P. Simon: Appl. Phys. A, **54** (1992) 363-368.
- 10) B. Wolff-Rottke, J. Ihlemann, H. Schmit and A. Scholl: Appl. Phys. A, **60** (1995) 13-17.
- 11) B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore and M. D. Perry: Phys. Rev. Lett., **74** (1995) 2248-2251.
- 12) J. Ihlemann, A. Scholl, H. Schmit and B. Wolff-Rottke: Appl. Phys. A, **60** (1995) 411-417.
- 13) P. Saeta, J.-K. Wang, Y. Siegal N. Bloembergen and E. Mazur: Phys. Rev. Lett., **67** (1991) 1023-1026.
- 14) F. Müller, K. Mann, P. Simon, J. S. Bernstein and G. J. Zaal: Proc. SPIE, **1858** (1993) 464-475.
- 15) W. Kautek and J. Kruger: *Proceedings of First International Symposium on Semiconductor Proceedings and Characterization with Lasers*, Stuttgart, Germany, April (1993), Mater. Sci. Forum Stuttg., **173** (1993) p. 17.
- 16) D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier and G. Mourou: Appl. Phys. Lett., **64** (1994) 3071-3073.
- 17) T. Gotz and M. Stuke: Appl. Phys. A, **64** (1997) 539-543.
- 18) P. P. Pronko, S. K. Dutta, D. Du and R. K. Singh: J. Appl. Phys., **78** (1995) 6233-6240.
- 19) P. P. Pronko, S. K. Dutta, J. Squier, J. V. Rudd and G. Mourou: Opt. Commun., **114** (1995) 106-110.
- 20) S. Nolte, C. Momma, G. Kamlage, B. N. Chichkov, A. Tünnermann, V. Alvensleben and H. Welling: *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO '98)*, Opt. Soc. Am., **6** (1998) p. 510.
- 21) X. Liu and G. Mourou: Laser Focus World, **33** (1997) 101-118.
- 22) K. Kawamura, T. Ogawa, N. Sarukura, M. Hirano and H. Hosono: Appl. Phys. B, **71** (2000) 119-121.
- 23) E. N. Glezer, M. Milosavljevic, L. Huang, R. J. Finlay, T.-H. Her, T. P. Callan and E. Masur: Opt. Lett., **21** (1996) 2023-2025.
- 24) E. N. Glezer and E. Mazur: Appl. Phys. Lett., **71** (1997) 882-884.
- 25) K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto and K. Hirao: Opt. Lett., **21** (1996) 1729-1731.
- 26) K. Miura, J. Qie, H. Inoue, T. Mitsuyu and K. Hirao: Appl. Phys. Lett., **71** (1997) 3329-3331.
- 27) T. Chadiad, O. M. Efimov, L. B. Glebov, K. C. Richardo and E. V. Stryland: *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO '98)*, Opt. Soc. Am., **6** (1998) p. 373.
- 28) D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, H. Varel and E. E. B. Campbell: Appl. Phys. Lett., **72** (1998) 1442-1444.
- 29) S.-H. Cho, H. Kumagai, I. Yokota, K. Midorikawa and M. Obara: Jpn. J. Appl. Phys., **37** (1998) L737-L739.
- 30) S.-H. Cho, H. Kumagai, K. Midorikawa and M. Obara: Opt. Commun., **168** (1999) 287-295.
- 31) M. Watanabe, H. -B. Sun, S. Juodkasis, T. Takahashi, S.

- Matsuo, Y. Suzuki, J. Nishii and H. Misawa: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **37** (1998) L1527-L1530.
- 32) H.-B. Sun, S. Matsuo and H. Misawa: *Opt. Rev.*, **6** (1999) 396-398.
- 33) M. Fujimoto, S. Aoshima, M. Hosoda and Y. Tsuchiya: *Opt. Lett.*, **24** (1999) 850-852.
- 34) H. Kumagai, M. Fujimoto, S. Aoshima, S. H. Cho, Y. Tsuchiya and K. Midorikawa: *Technical Digest of The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Pacific Rim 2001)*, IEEE Lasers Electro-Opt. Soc., I (2001) I-310.

(2001年5月30日受理)