

令和 4 年 4 月 11 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01379

研究課題名(和文)透明材料の超短パルスレーザー加工閾値に関する熱的・電子的統一モデリングの構築

研究課題名(英文) Integrated thermal and electronic modeling of ultrashort pulse laser processing of transparent materials

研究代表者

伏信 一慶 (Fushinobu, Kazuyoshi)

東京工業大学・工学院・教授

研究者番号：50280996

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,000,000円

研究成果の概要(和文)：透明材料の超短パルスレーザー加工における熱的・電子的な加工メカニズムについて実験的・理論的な検討を行い、その重畳性について理論的な説明を与えた。溶融石英を対象に超短パルスレーザー加工を行い、その加工閾値については特徴的な振る舞いを示し、パルス幅依存性を有することを確認した。また加工深さについてはフルエンスに対して2段階の特徴を示す。この解析のため電子のrate eq.、電場解析のBPMと、2温度モデルによる電子・格子の温度上昇解析を組み合わせることで、数百fsのパルス幅領域における両者の重畳性を説明できた。これにより当初目的とした統一的モデリングの重要性の確認を果たしている。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ガラスなどの透明材料はスマートフォンやディスプレイ、微量試薬検査など膨大な応用があるが、一般に硬くて脆い材料が多いため機械加工が困難で、レーザー加工が期待される。しかしながら「透明」材料であるため、レーザー光を吸収させ加工に至らせる現象が複雑で、意図した加工を施すための条件設定が極めて複雑である。本研究ではこの課題に理論的説明を与えるため、非線形光学効果と呼ばれる現象により光吸収が強くなる1兆分の1秒程度以下の超短パルスで発光するレーザーを用いた加工現象について、従来から言われてきた電子の挙動と、条件によって共存する熱的な挙動の両者を統一的に論じることの重要性を提起し、実験と理論計算により検証した。

研究成果の概要(英文)：Ultrashort pulse laser processing of transparent materials has been investigated by considering the thermal-electronic mechanism both experimentally and numerically. Fused silica has been chosen for the sample. Experiments show unique characteristics of the ablation threshold with pulse width dependence and the two stage behavior of the ablation hole depth as a function of fluence. Numerical calculation has been developed by combining the rate eq. of the electron number density, BPM scheme for the electric field, and the two temperature model for the electron and lattice temperature calculation to explain the fluence and the pulse width dependence. Initial target is therefore fulfilled by showing the importance of the combined electronic and thermal modeling on the problem.

研究分野：熱工学

キーワード：レーザー 透明材料 加工閾値 熱工学

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 社会のスマート化、インテリジェント化や”more electric”化の進展を支えるデバイスとして、スマートフォンやマルチファンクションディスプレイ、パワー半導体、PVセルなど、多種多様な無機固体の「透明材料」を用いた製品の出荷額が急増する中で、これら透明材料に微細加工を施すための、超短パルスレーザー加工技術の普及が急速に拡大している。

(2) ここでの「透明材料」とは、用いるレーザー光源の発振波長に対して、線形吸収領域での透過率が1に近い材料を指し、多くはガラスや光学材料、半導体などの結晶性、非晶質性のワイドバンドギャップ材料である。従来これら透明材料はレーザー等に対する光学材料として幅広く用いられて来たことから、「加工」がなされてはならず、その観点から熔融石英を中心にダメージを与える閾値の検討が盛んに行われて来た。その過程で、それぞれのパルス幅に対して現象を理解するための物理モデルが提案されてきており、最近の透明材料加工の用途拡大の要請から、このダメージ閾値に関する知見が加工閾値として用いられ、議論が始まっていた。

### 2. 研究の目的

(1) そこで本研究では、透明材料の超短パルスレーザー加工において、その機材選定などの上でも重要となるフェムト秒～ピコ秒～ナノ秒領域での加工閾値を決定する原理を明らかにすることを目的とする。

(2) また、格子温度と電子数密度の影響の比較検討は過去に検討例が見当たらない。一般にフェムト秒レーザーなどの超短パルスレーザーによる加工では、電子数密度が臨界値を超えることによる coulomb explosion が支配的として取り扱われるが、よりパルス幅の長いレーザーにおいて主役となる温度上昇による thermal ablation について考慮する必要がないかどうかは検討の余地がある。前者を非熱的加工、後者を熱的加工と称することにした場合、非熱的と熱的な機構の関係について明確に論じた報告はほとんどない。本研究では両者の影響について実験と理論から論じることにも目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1) 熔融石英のフェムト秒～ピコ秒～ナノ秒領域での加工閾値の実験的探索

研究申請時点で所有の Nd:YAG ナノ秒パルスレーザーに加え、波長 1040 nm のパルス幅連続可変再生増幅器を新規導入し、様々な報告例のある加工閾値のパルス幅依存性を再取得し、以後の理論モデリングの準備とする。特に既往研究での公開例が少ない加工閾値の統計的挙動も取得する。理論検討を容易にする目的から、検討例の多い熔融石英を対象とする。

#### (2) 照射部反射光計測による透明材料の加工閾値と電子数密度の関係の実験的解明

従来1次元非定常熱伝導に基づくパルス幅の 1/2 乗則で加工閾値がよく整理できるとされてきたピコ秒領域でのデータ取得を行う。

#### (3-3) 理論モデルの統一的検討による加工閾値に関するモデリングの統一理論提案

除去加工による加工穴深さなどの特性が非熱的な電子の挙動によるものか、あるいは温度上昇による熱的なものか、これらの関係をフェムト秒領域において実験的にデータ取得する。また並行して今回開発する電子数密度に関するレート方程式、レーザー光伝播による場所の関数としての電場を求めるための BPM、これに電子温度と格子温度を連成して求めるための2温度モデルによる双方のエネルギー方程式とを連成させた数値解析スキームを開発し、非熱的・熱的な加工メカニズムの重畳性について検討を行う。

### 4. 研究成果

まず加工確率に関する検討を行った。これは加工閾値がフルエンスに対して確率的に変化する領域が存在するためである。パルスエネルギーはビームスプリッタと ND フィルタによって調節した。焦点におけるスポット径を変化はビーム整形と凸レンズの焦点距離の調整によって行った。スポット径は概ね 14~20  $\mu\text{m}$  の範囲に調整した。また、凸レンズの焦点位置と加工対象の表面が一致するように、加工対象を設置した。ビームのスポット径は CCD カメラによって測定を行った。エネルギーを評価する指標としてパルスの平均フルエンスを使用した。これは1パルスあたりのエネルギーを焦点におけるビーム面積で除する事で得られる。波長は Nd:YAG レーザの基本波、第二高調波、第三高調波を使用した。各フルエンスについて 20 回の照射におけるフルエンスの平均値を測定したのち、50 回のシングルショット加工実験を行い、加工閾値、加工穴径、加工穴深さを測定した。加工を行う対象として熔融石英を選択した。

結果を図1に示す。図のように、加工閾値は実際にはフルエンスに対して確率を有することが理

解できる。特に、吸収係数の小さな基本波においてはより緩やかにフルエンスに対して加工確率が上昇することが読み取れ、より短波長で吸収係数の大きな領域では急峻に立ち上がることが読み取れる。

また図2は加工穴深さの波長依存性を示す。図中の直線はBeerの法則を用いてフルエンスと吸収係数で整理できる関係式による予測値であり、いずれの波長でも低フルエンス領域では良い一致を示すが、より高フルエンス領域になると実験値との差異が顕著になることがわかる。これはフルエンスの増大による熱影響によるものと考えられ、以後の考察の基盤ともなる。

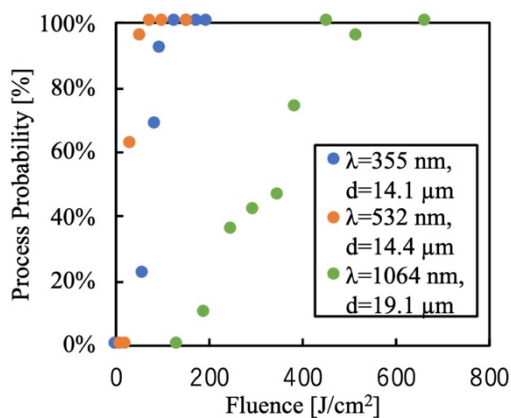


図1

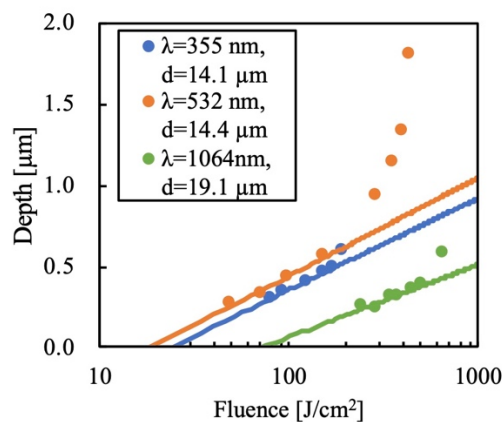


図2

一方でよりパルス幅の短い領域での加工特性についても検討を行った。実験には中心波長 1040nm のフェムト秒レーザ+再生増幅器のシステムを用い、パルス幅 280fs 固定での実験を行った。並行して理論解析も実施した。図3はその一例であり、レーザ光照射面の光軸中心上の値である。このフルエンスの場合では格子温度は 1600 K 程度しか上昇せず、そのままでは加工閾値には至らないが、フルエンスの上昇に伴い閾値に達し、さらなるエネルギー投入が行えることが確認できる。

一方で実験で得られた加工穴深さはフルエンスに対して上昇することが確認できるが、ある値を境に一層の加工深さの上昇が確認できた。これに対して、非熱的な加工メカニズムのみを前提とした解析を行った場合には、低フルエンスでの加工深さは予測できるものの、高フルエンスでの加工深さを予測できない。ここに2温度モデルを考慮した数値計算を行うと、高フルエンス領域での余剰なエネルギー投入により熱的な加工メカニズムも寄与し、加工深さが増進する効果が数値的に確認でき、またその絶対値も計算で予測可能であることを示した。

以上の取り組みにより、超短パルスレーザによる透明材料の加工において、これまで支配的と考えられている非熱的な加工メカニズムに加えて、熱的な加工メカニズムの重畳性に関する考え方について実験的、理論的な考察を加えた。これにより、当初目的とした電子と熱の挙動に関する統一的なモデリングの重要性の確認を果たしている。

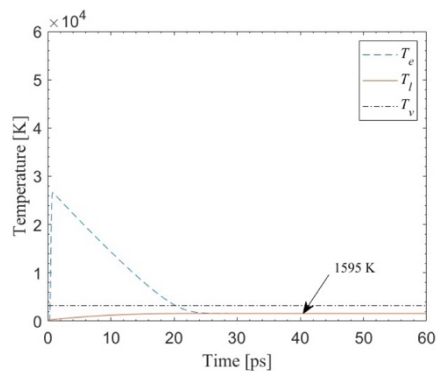


図3

<引用文献>

- ① F. Sha, S. Liu, M. Chijiwa, J.A. L'huillier, K. Fushinobu, Numerical study on ultrashort pulse laser processing of transparent material, Proc. ISTEP32, Paper No. 38, 2022
- ② B. Kim, H. K. Nam, S. Watanabe, S. Park, Y. Kim, Y.-J. Kim, K. Fushinobu, S.-W. Kim, Selective laser ablation of metal thin films using ultrashort pulses, Int. J. Precision Engineering and Manufacturing-Green Technology, 8, 771-782, 2020
- ③ 劉, 中村, 井関, 伏信, 透明材料の短パルスレーザ加工特性, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2019 講演論文集, F224, 2019
- ④ 中村, 清川, 伏信, パルスレーザによる透明材料の加工特性, 第 55 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, F135, 2018

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 B. Kim, H. K. Nam, S. Watanabe, S. Park, Y. Kim, Y.-J. Kim, K. Fushinobu, S.-W. Kim	4. 巻 8
2. 論文標題 Selective laser ablation of metal thin films using ultrashort pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Int. J. Precision Engineering and Manufacturing-Green Technology	6. 最初と最後の頁 771-782
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s40684-020-00272-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 1件/うち国際学会 6件）

1. 発表者名 F. Sha, S. Liu, M. Chijiwa, J.A. L'huillier, K. Fushinobu
2. 発表標題 Numerical study on ultrashort pulse laser processing of transparent material
3. 学会等名 ISTP32（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Fushinobu
2. 発表標題 Key roles of thermal engineering in photonic subtractive/additive manufacturing (Keynote)
3. 学会等名 2nd ACTS（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 劉 聖輝、中村 勇太、清川 春矢、井関 凌也、伏信 一慶
2. 発表標題 透明材料の短パルスレーザー加工特性
3. 学会等名 日本機械学会熱工学コンファレンス 2019
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 Y. Nakamura, K. Fushinobu, A. Tamura
2 . 発表標題 Numerical analysis of pulse laser assisted curing region of photocurable resins
3 . 学会等名 ASME InterPACK2019 ( 国際学会 )
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 S. Watanabe, B. Kim, S.-W. Kim, K. Fushinobu
2 . 発表標題 Two-temperature modeling of the thermal response of gold thin film under femtosecond laser irradiation
3 . 学会等名 ThermaComp2020 (accepted for publication) ( 国際学会 )
4 . 発表年 2020年

1 . 発表者名 S. Kiyokawa, Y. Nakamura, K. Fushinobu
2 . 発表標題 Numerical analysis of the transparent materials machining by using short pulse lasers
3 . 学会等名 ISTP-29 ( 国際学会 )
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 S. Watanabe, B. Kim, S.W. Kim, K. Fushinobu
2 . 発表標題 Femtosecond laser induced forward transfer of Au nanoparticles for laser direct writing with sub-wavelength resolution
3 . 学会等名 ISTP-29 ( 国際学会 )
4 . 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------