フェムト秒レーザーを用いた透明材料の 接合技術*

Welding and Joining between Transparent Materials with Femtosecond Lasers

渡邊 歴** 玉木隆幸***
Wataru WATANABE and Takayuki TAMAKI

Key words femtosecond laser, ultrashort laser pulse, welding, joining, glass, hermetic seal

1. 緒 言

耐熱性、気密性に優れ、微細な封止技術を開発するためには、低温プロセスまたは熱影響の少ない精密接合技術が必要である。レーザー接合は非接触で微細な接合が可能である。また、パルス幅がピコ秒からフェムト秒オーダーの超短パルスレーザーは物質表面や内部の微細な加工が可能である¹⁾²⁾。この超短パルスを密着させた2つの透明材料の境界面に集光照射すれば、レーザーパルスの波長に対して吸収がない材料を直接接合できる^{3)~6)}。本稿では、超短パルスレーザー接合の基本原則を概説し、ガラスをはじめとした透明材料間の接合、および、透明材料と金属や半導体との接合に関する原理と研究動向について述べる。

2. レーザ接合

レーザー接合法は、(1) 熱変形が少なく高強度、(2) 非接触で特殊な雰囲気が必要、(3) 高速な接合が可能、(4) 微細領域の接合が可能という特徴をもつ。しかし、レーザー接合法は媒質の線形吸収現象による熱発生を用いるため、レーザー光が照射される全領域にわたり被接合材料の溶融が生じることになる。例えば、図1(a)のように透明材料と吸収材料が重ね合わされているとき、レーザー光は透明材料を透過後、吸収材料にて線形吸収される。このため、レーザー光が照射される吸収材料の全領域にわたり線形吸収が生じ、熱が発生する。そして、被接合材料の溶融が生じることにより、2つの材料を接合することができる。または、図1(b)のように、透明材料間に吸収材料が中間層として介在されている場合、中間層において線形吸収による熱が発生し、材料が溶融し、2つの材料を接合することができる。しかし、被接合材料や中間層として用いる材料は、レーザー波長に対して吸収する材料を選択しなければならず、材料の種類に制限があることになる。この線形吸収を用いることにより、例えばCO₂レーザー(波長10ミクロン)

ン)やYAGレーザー(波長1ミクロン)を用いた、ガラス間の接合やガラスとシリコン間の接合が報告されている。

3. 超短パルスレーザー接合

3.1 超短パルスレーザーによるガラス内部加工

パルスレーザーにおいて、レーザーが発振している時間の幅をパルス幅という。また、ピコ秒からフェムト秒というごく短いパルス幅をもつレーザーを超短パルスレーザーと称している。さらに、パルス幅が数百フェムト秒以下のパルスレーザーをフェムト秒レーザーと称している。フェムト秒レーザーではパルスの持続時間がきわめて短く、光エネルギーが閉じ込められる。図2にパルスレーザーのパルス列とパルス幅との関係を示す。フェムト秒レーザーではパルス列が繰り返し発振され、このパルス列の時間間隔の逆数、すなわち、光源の繰り返し周波数は重要なレーザー加工因子となる。このような超短パルスレーザーからのパルス列をガラスなどの透明材料内部へ集光照射すれば、集光点近傍の微小領域において局所的な内部加工を実現することができる。通常のレーザーでは、物質と光との相互作用は電界に比例した線形光学による影響のみがほとんどである。一方、超短パルスレーザーでは、パルス幅が短いためピーク強度が高くなる。このため超短パルスレーザーでは電界の二乗、三乗などに対応した非線形光学過程が寄与するのが特徴である。また、超短パルスレーザーでは、電子振動から格子振動へのフォノンカップリングが起きる前にレーザーパルスの照射が終了するため、熱が拡散する範囲が限定され、微小な領域のみ材料をクラックなしで溶融することができる。レーザーパルスをガラス内部に集光すると、集光点近傍の領域において、多光子イオン化やトンネルイオン化などの非線形吸収現象が生じる。この非線形吸収により、局所的に材料が溶融され、局所的な構造変化が誘起されることにより、内部加工が実現される¹⁾²⁾。

ここでは、フェムト秒レーザーをガラス内部に集光したときの加工例を示す。繰り返し周波数1MHz、中心波長1064nm、パルス幅250fsのファイバレーザーを用い、レーザーパルスを開口数0.40の対物レンズによりホウケイ酸ガ

*原稿受付 平成27年5月20日

**立命館大学理工学部(滋賀県草津市野路東1-1-1)

***奈良工業高等専門学校(奈良県大和郡山形町22番地)

図1 レーザを用いた接合原理。(a) 線形吸収現象によるレーザー接合、(b) 中間吸収材料を用いたレーザー接合。

図2 パルスレーザーのパルス列とパルス幅

図3 フェムト秒レーザーパルスをホウケイ酸ガラス内部に集光することにより得られた構造変化の透過顕微鏡像

図4 フェムト秒レーザーを用いた透明材料の接合概念図

ラス表面から深さ 300 μm の内部に集光照射する。レーザーの入射強度 1 W、露光時間 1/60 秒で誘起された構造変化の透過顕微鏡像を図 3 に示す。レーザーパルスをガラス内部に集光しているため、ガラス表面を傷つけることなく、材料内部の微細領域のみをクラックが発生することなく溶融可能であることがポイントである。

3.2 超短パルスレーザー接合の原理

超短パルスを透明材料内部に集光すると材料を非接触でかつ局所的に内部加工ができることから、図 4 に示すように、超短パルスを 2 つの基板の境界面に集光することにより、局所的な溶融が生じ、2 つの基板を接合することができる^{7)~10)}。この接合法は、高精度、中間層が不要、微細領域の接合が可能という利点をもつ。媒質が透明であれば、中間層なしで、2 つの透明基板を直接接合することに特徴がある。しかし、レーザーパルスを集光するため、任意面積を接合するためには、集光点を二次元的に走査する必要がある。また、超短パルスレーザー接合では、基板間の隙間が大きくなれば基板間でアブレーションが生じ、接合が不安定になるため、圧力をかけることにより基板間の隙

図5 フェムト秒レーザーを用いたガラスとガラスの接合例

間を低減し、レーザーパルスを照射する必要がある。

3.3 ガラス接合

超短パルスをを用いたガラスとガラス接合の一例を示す。図 5 は、接合面を含む側面方向から観察した透過顕微鏡像である⁹⁾。波長 800 nm、繰り返し周波数 1 kHz、パルス幅約 100 fs の光パルスを集光し、試料走査により接合領域を形成した。接合部の引張り強度は約 15 MPa である。ガラスの接合では、ホウケイ酸ガラス、石英ガラスなど同種のガラスだけでなく、異種ガラスの接合も可能である^{7)~11)}。近年の同種ガラス接合、異種ガラス接合の報告例は文献 5) にまとめられている。

3.4 高分子材料の接合

熱可塑性のため複雑な形状に加工することが可能であり、さまざまな光学的用途に用いられている PMMA (polymethyl methacrylate) 材料間のマイクロ接合が報告されている¹²⁾。また、PMMA 基板はマイクロ流路に用いられるため、直接接合によるマイクロ流路チップの気密性封止が試みられている¹³⁾。

3.5 ガラスと吸収材料の接合

超短パルスレーザー接合では透明材料間を中間層なしに溶接することが一つの大きな利点であるが、図 1 (a) で示したように、透明材料と吸収材料の微細溶接も可能である。レーザーパルスは透明材料側では吸収されることなく透過し、下方の吸収材料との境界面でレーザーパルスが集光され、吸収材料の集光領域のみ線形吸収により材料が溶融し、溶融した材料が固まることにより接合が実現される。従来のレーザー溶接と異なり、熱的な影響が少ないため微細な接合が可能となる。MEMS や各種センサを作製するためには、ガラス基板とシリコン基板との気密封止が必要である。このため、フェムト秒レーザーを用いた、ガラスとシリコンの接合が報告されている¹⁴⁾¹⁵⁾。また、銅などの金属とガラスの接合が報告されている¹⁶⁾。さらに、この技術を応用して、異なる金属の微細接合も報告されている¹⁷⁾。

3.6 集光点の走査方法

接合に適した走査方法について検討が行われている。正形状に外部から内部（圧着部）へ（図 6 (a)）、または、内部から外部へ試料を走査し（図 6 (b)）、大きさ 2 mm 四方の正方形内に収まる接合部領域を形成した。接合前には、超短光パルスレーザー接合時に生じる被接合試料の境界面における表面損傷を抑制するために、治具を用いて、試料境界面における隙間を局所的に減少させている（図 7）。具体的には、ステンレス平板とレンズが備え付けられたス

図6 走査方法の違いによる接合部領域の検討

表1 走査方法と接合強度の関係

走査方法	最大荷重 [N]	接合強度 [MPa]
外部から内部	17.4	4.35
内部から外部	18.0	4.50

内部から次々に接合が行われる
→中心から離れていても試料間隙を抑
えることが可能

間隙：大
接合が困難

図7 レーザパルスの集光点の走査方法による接合領域の差異

テンレス平板との間に試料を配置し、ステンレス平板間に圧力を加えることにより、レンズ周辺部上の圧着部（密着部）において、試料間隙を100 nm以下にしている。

次に、入射パルスエネルギー0.4 μJ、溝間隔50 μmにて各接合部領域を形成し、接合された試料に対し引張り試験を行い、試料が分離した際の最大荷重および接合強度を求めた。表1より、外部から内部へ向かう走査方法より、内部から外部へ向かう走査方法の方が高い接合強度が得られていることがわかる。これは、図7に示すように、密着部から離れた点では試料間隙が大きくなるため、外部から内部へ向かう走査方法では接合される領域が小さくなり、周囲からの応力が狭い領域に集中することにより、接合された状態を維持することが困難になるためであると考えられる。一方、内部から外部へ向かう走査方法では、レンズにより密着された位置から接合が行われるため、中心から次々と接合が実現され、レンズから離れた位置であっても試料間隙を抑えることが可能となり、より低いエネルギーにおいても接合が実現されることが考えられる。このため、外部から内部へ向かう走査方法よりも、内部から外部へ向かう走査方法の方がより大きな面積の接合に適しているといえる¹²⁾。また、集光点の走査を複数回にすることにより、大面積接合が可能であることが報告されている¹⁸⁾。

4. 材料の溶融と接合のメカニズム

4.1 熱蓄積と構造変化の大きさとの関係

レーザーパルスをガラス材料に照射したときに熱が発生

図8 AF45ガラスにレーザーパルスを集光し、走査加工したときのネットフルエンスと溶融半径のシミュレーション結果

し、熱の拡散によりガラス材料が局所的に溶融する¹⁹⁾。この熱の分布、拡散を考えることにより、ガラス材料における溶融をモデル化できる²⁰⁾。レーザーパルス列により累積される熱のダイナミクスを有限差分の熱拡散モデルを用いてシミュレーションする。電子加熱および電子フォノン結合の時間は1 ps以下であり、ガラス材料を考えた場合、その熱拡散時間（1 μs程度）よりもはるかに短いため、レーザーパルスを熱源と仮定する。集光点の光エネルギーは空間的にガウス分布とする。熱拡散方程式は次のように表せる。

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial T}{\partial r} \right) = \frac{r^2}{D} \frac{\partial T}{\partial t} \quad (1)$$

ここで、 r は半径方向距離、 T は温度、 t は時間であり、 D は熱拡散係数である。レーザーパルスにより瞬間的に温度上昇が生じ、その後、熱拡散する。レーザーの繰り返し周波数が高い場合は、熱が拡散する前に、新たなレーザーパルスが到達し、温度が上昇する。空間的に考えれば熱分布はレーザーパルスの照射数とともに広がっていくことになる。図8にホウケイ酸系無アルカリガラスであるAF45の溶融半径とネットフルエンスのシミュレーション結果を示す。レーザーパルスの集光点が走査速度 v で移動すると仮定すれば、ネットフルエンスは式(2)で定義される。

$$NF = \frac{2w_0 R}{v} F_v \quad (2)$$

ここで、 F_v は単一パルスあたりのフルエンスであり、単位面積あたりのエネルギー量を表す。また、 w_0 はスポットサイズ、 R は繰り返し周波数である。ネットフルエンスは、単一パルスのフルエンスと到達するパルス数の積となる。繰り返し周波数は1 MHz、1パルスあたりのパルスエネルギーを1 μJとすれば、エネルギーは1 Wとなる条件とした。溶融する最大半径は、材料の溶融温度以上に達した領域とする。図8から、パルス列による熱の蓄積効果により、集光点近傍の温度が上昇し、集光スポットサイズ（約1 ミクロン）以上の領域でガラス材料が溶融し、構造変化を起こすことができることがわかる。さまざまなガラ

ス材料におけるシミュレーション結果から、材料の比熱、徐冷点が低ければ、材料に熱が蓄積されやすいと考えられる。

5. 超短パルスレーザ接合の研究動向

接合の安定性、大面積接合に向けて、試料の接合面の洗浄で試料の密着度の向上、試料持具の改良が報告されている^{21)~23)}。また、引張り試験による接合強度の評価、耐久性、リークテストの評価から、実用化に向けた検証が始まりつつある。これらの技術の応用として、光ファイバーとガラスとの接合²⁴⁾、太陽電池の封止²⁵⁾²⁶⁾、マイクロ流路¹³⁾などへの展開の検討が始まっている。

6. 結 言

超短パルスレーザを用いたレーザ接合について紹介した。超短パルスレーザ接合は、中間層なしに、ガラス間の接合が可能である。また、ガラスと金属、ガラスとシリコンなどの接合も可能である。超短パルスレーザによる接合技術は、気密性パッケージング技術に展開され、薄膜太陽電池、有機ディスプレイ、マイクロ流路などにも応用が期待されている。

参 考 文 献

- 1) K. Itoh, W. Watanabe, S. Nolte and C.B. Schaffer: Ultrafast Processes for Bulk Modification of Transparent Material, *MRS Bulletin*, **31** (2006) 620.
- 2) R.R. Gattass and E. Mazur: Femtosecond Laser Micromachining in Transparent Materials, *Nature Photonics*, **2** (2008) 219.
- 3) 渡邊歴, 太田道春, 伊東一良: フォトニクス産業応用に向けた超短パルスレーザマイクロプロセッシング, *レーザー研究*, **41** (2013) 780.
- 4) W. Watanabe, T. Tamaki and K. Itoh: in Femtosecond Laser Micromachining: Photonic and Microfluidic Devices in Transparent Materials, Eds, R. Osellame, G. Cerullo, R. Ramponi, Topics in Applied Physics, Springer, (2012) 467.
- 5) K. Sugioka and Y. Cheng: Femtosecond Laser Three-dimensional Micro- and Nanofabrication, *Appl. Phys. Rev.*, **1** (2014) 041303.
- 6) I. Miyamoto, K. Cvecek, Y. Okamoto and M. Schmidt: Internal Modification of Glass by Ultrashort Laser Pulse and Its Application to Microwelding, *Appl. Phys. A*, **114** (2014) 187.
- 7) T. Tamaki, W. Watanabe, J. Nishii and K. Itoh: Welding of Transparent Materials Using Femtosecond Laser Pulses, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **44** (2005) L687.
- 8) W. Watanabe, S. Onda, T. Tamaki, K. Itoh and J. Nishii: Space-selective Laser Joining of Dissimilar Transparent Materials Using Femtosecond Laser Pulses, *Appl. Phys. Lett.*, **89** (2006) 021106.
- 9) W. Watanabe, S. Onda, T. Tamaki and K. Itoh: Direct Joining of Silica Glass Substrates by 1 kHz Femtosecond Laser Pulses, *Appl. Phys. B*, **87** (2007) 85.
- 10) T. Tamaki, W. Watanabe and K. Itoh: Laser Micro-welding of Transparent Materials by a Localized Heat Accumulation Effect Using a Femtosecond Fiber Laser at 1558 nm, *Opt. Express*, **14** (2006) 10460.
- 11) J. Bovatsek, A. Arai and C.B. Schaffer: Three-dimensional Micromachining Inside Transparent Materials Using Femtosecond Laser Pulses: New Applications, in CLEO/QELS and PhAST 2006, California, USA, May, (2006).
- 12) 村上智亮, 玉木隆幸, 渡邊歴, 小関泰之, 押田至啓: 第58回応用物理学関係連合講演会, (2011) 6a-KH-6.
- 13) A. Volpe, F. Di Niso, C. Gaudiuso, A. De Rosa, R. M. Vázquez, A. Ancona, P.M. Lugarà and R. Osellame: Welding of PMMA by a Femtosecond Fiber Laser, *Opt. Express*, **23** (2015) 4114.
- 14) A. Horn, I. Mingareev, A. Werth, M. Kachel and U. Brenk: Investigations on Ultrafast Welding of Glass-glass and Glass-silicon, *Appl. Phys. A*, **93** (2008) 171.
- 15) I. Miyamoto, Y. Okamoto, A. Hansen, J. Vihinen, T. Amberla and J. Kangastupa: High Speed, High Strength Microwelding of Si/glass Using Ps-laser Pulses, *Opt. Express*, **23** (2015) 3427.
- 16) Y. Ozeki, T. Inoue, T. Tamaki, H. Yamaguchi, S. Onda, W. Watanabe, T. Sano, S. Nishiuchi, A. Hirose and K. Itoh: Direct Welding between Copper and Glass Substrates with Femtosecond Laser Pulses, *Appl. Phys. Express*, **1** (2008) 082601.
- 17) H. Huan, L.M. Yang, S. Bai and J. Liu: Femtosecond Fiber Laser Welding of Dissimilar Metals, *Appl. Opt.*, **53** (2014) 6569.
- 18) H. Huang, L.-M. Yang and J. Liu: Ultrashort Pulsed Fiber Laser Welding and Sealing of Transparent Materials, *Appl. Opt.*, **51** (2012) 2979.
- 19) C.B. Schaffer, J.F. Garica and E. Mazur: Bulk Heating of Transparent Materials Using a High-repetition-rate Femtosecond Laser, *Appl. Phys. A*, **76** (2003) 351.
- 20) M. Eaton, H. Zhang, P.R. Herman, F. Yoshino, L. Shah, J. Bovatsek and A.Y. Arai: Heat Accumulation Effects in Femtosecond Laser Written Waveguides with Variable Repetition Rate, *Opt. Express*, **13** (2005) 4708.
- 21) K. Cvecek, R. Odato, S. Dehmelt, I. Miyamoto and M. Schmidt: Gap Bridging in Joining of Glass Using Ultra Short Laser Pulses, *Opt. Express*, **23** (2015) 5681.
- 22) K. Cvecek, I. Miyamoto, J. Strauss, M. Wolf, T. Frick and M. Schmidt: Sample Preparation Method for Glass Welding by Ultrashort Laser Pulses Yields Higher Seam Strength, *Appl. Opt.*, **50** (2011) 1941.
- 23) D. Hélie, M. Bégin, F. Lacroix and R. Vallée: Reinforced Direct Bonding of Optical Materials by Femtosecond Laser Welding, *Appl. Opt.*, **51** (2012) 2098.
- 24) D. Hélie, S. Gouin and R. Vallée: Assembling an Endcap to Optical Fibers by Femtosecond Laser, *Opt. Mater. Express*, **3** (2013) 1742.
- 25) 太田道春, 篠原亘, 伊東一良: 第78回レーザ加工学会論文集, (2013) 139.
- 26) 米村正寿, 加藤寛, 高橋秀知, 太田道春: 第79回レーザ加工学会講演論文集, (2013) 153.

渡邊 歴

1999年大阪大学大学院工学研究科応用物理学専攻博士後期課程修了。博士(工学)。1999年大阪大学大学院工学研究科助手, 2006年より独立行政法人産業技術総合研究所研究員, 主任研究員。2013年より立命館大学理工学部電気電子工学科教授。2003年第44回光学論文賞(応用物理学学会(日本光学会)), 2010年文部科学省平成22年度科学技術分野の文部科学大臣表彰若手科学者賞。

玉木隆幸

2007年大阪大学大学院工学研究科物質・生命工学専攻博士後期課程修了。博士(工学)。2007年奈良工業高等専門学校電子制御工学科助教, 2010年トロント大学(カナダ)電子情報工学専攻訪問教授(兼任), 2012年奈良工業高等専門学校電子制御工学科講師, 2014年より奈良工業高等専門学校電子制御工学科准教授。第29回応用物理学論文賞(JJAP論文奨励賞)。