

펄토초 레이저 펄스 중첩에 의한 금속박막 가공 특성

Metal thin film machining by superposition of dual femtosecond laser pulses

한국기계연구원(KIMM) 김재구, 장원석, 조성학, 윤홍석, 황경현
한국과학기술원 기계공학과 나석주

I. 서론

펄토초 레이저에 의한 재료가공은 최근 들어 상대적으로 긴 펄스레이저에 비해 가공측면에서 우수한 장점이 있어 마이크로머시닝 가공기술 및 더 나아가 나노머시닝 가공기술에 대한 연구가 빡 특성과 가공현상을 고려하여 활발히 진행되고 있다[1-3]. 일반적으로 레이저에 의한 금속의 재료 가공의 원리는 광 에너지가 재료에 흡수되어 열적인 반응에 의해 용융, 증발이 일어나 재료의 제거가 일어난다. 하지만 펄토초 레이저의 경우 펄스폭이 매우 짧음으로 인해 열적인 반응에 이르는 과정이 일반적인 레이저와는 다르다. 짧은 펄스폭에 의한 레이저빔은 먼저 전자에 의해 흡수되고, 이 에너지는 주변의 래티스, 포논에 전달하게 되어 온도가 열역학적 임계온도에 다다르게 되면서 내부의 불안정에 의해 액체 기포내에 핵이 생성된다. 생성된 핵이 임계크기 이상이 되면 계속 성장하게 되어 표면에서 폭발하는 상폭발 모델로 설명되고[4] 이로 인해 과도한 에너지의 조사는 샘플에 대해 열적영향을 미치게 된다. 많은 연구자들은 이외에도 파쇄, 정전기적 폭발 등 여러 가지 모델을 내세우며 원리를 설명하고 있으나[5] 알지 못하는 많은 물성치에 의해 정량적 해석에는 어려움이 있다.

본 가공실험은 마스크의 리페어링, MEMS 구조체에서의 금속의 선택적 리페어링 및 패터닝 등 산업적으로 활용도가 높은 금속 박막을 최소한의 치수 및 고품질의 형상을 얻기 위해 다른 부가적인 장치 없이 편광이 다른 이중 펄스를 중첩하여, 직접 가공을 통해 가공 특성을 관찰하였다.

II. 실험방법

본 실험에서 사용한 레이저는 중심파장 800nm, 펄스폭 250 fs, 반복주기 100 kHz인 Chirped-Pulse-Amplification (CPA) Ti:sapphire 레이저를 사용하였고, 선형적으로 편광 되어 있으며 TEM₀₀ 출력밀도 분포를 갖고 있다. 집광에 사용된 대물렌즈는 x100(NA 0.8)를 사용하였다. 시간지연을 위한 장치로는 마이켈슨 간섭계를 응용하여 구성된 형태로 빔을 분기하여 고정단 부분과 광경로 길이를 조절할 수 있는 운동부 (분해능 0.1 μ m)로 나누고 다시 모아지도록 하였다. 고정단으로의 분기된 빔은 반파장판과 편광판을 이용하여 출력을 조절함과 동시에 편광을 바꿀 수 있도록 하였다. 분기된 두 펄스의 시간차 원점은 이광자 여기 포토다이오드를 사용하였고 포토다이오드의 출력 값이 가장 큰 부분을 시간차 0인 원점으로 정하였다. 전체적인 실험 구성도 및 두 펄스에 의한 시간차 측정은 Fig. 1에 나타내었다. 실험에 사용된 재료는 용융 실리카에 두께 200 nm로 크롬이 코팅되어 있는 박막을 사용하였다.

이중 펄스를 사용하지 않은 펄스열의 중첩에 따른 현상에서는 초기 펄스를 사용하였지만, 레이저 발진시 초기 펄스열의 출력은 안정화 된 후의 값과 상이 하므로 분기된 빔의 다중펄스 입사는 레이저 발진이 안정된 후에 1ms 응답을 갖는 빔 서터를 통해 10,000 개의 펄스수를 조사하였다. 시간차 이중펄스 열에 의해 가공된 표면은 전자주사현미경으로 관찰하였다.

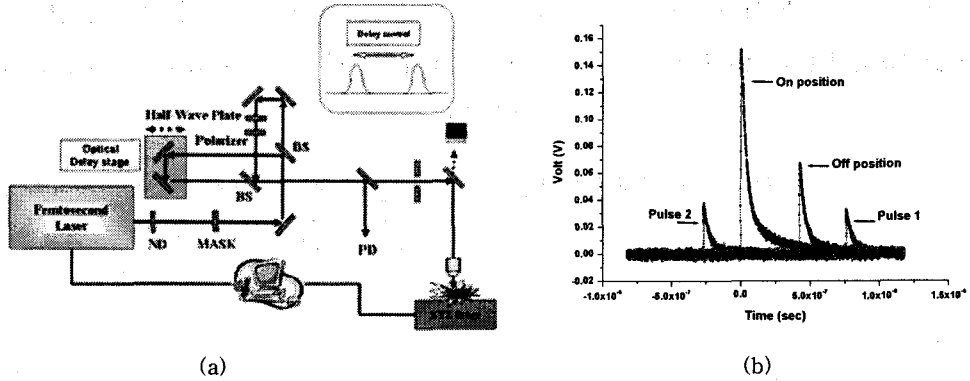


Fig. 1 (a) Schematic layout of the experimental setup and (b) time difference by photodiode output according to the optical path length

III. 결과 및 고찰

빔이 분기되지 않은 단일펄스를 200nm 두께의 크롬 박막에 조사했을 때 펄스 수에 따른 가공현상을 Fig. 2에 나타내었다. 펄스당 3.5nJ의 에너지에 의한 단일 펄스의 경우 Fig. 2 (a)에 나타난 것처럼 표면에만 용융이 일어났다가 다시 고체화 되면서 수십 나노미터 크기의 드롭릿 형성을 보였다. 이 조건에서는 재료의 제거가 앞서 기술한 상폭발 해석 또는 약한 에너지 영역에서의 Hertz-Knudsen의 표면증발로 설명된다 하더라도 그에 대한 뚜렷한 형상을 관찰하기 어렵다. 다만, 표면에 광침투 깊이 또는 열확산 깊이 정도의 열이 용융에 기여하고, 용융된 영역이 고상화 되면서 표면 장력에 의해 드롭릿이 형성된 것처럼 보인다. 다른 에너지를 가진 조건에서도 유사한 경향을 보였다. 다른 에너지 조건들에서 수행된 실험결과들로부터 손상임계밀도 (P_c) 및 샘플에서의 초점반경 (w)을 구할 수 있으며, 빔의 공간상 분포를 가우시안으로 보았을 때 각 에너지에서의 가공된 직경을 통해 다음 식과 같이 유도된다.

$$P_c = \exp \left(\frac{\ln P_2 - \left(\frac{r_2}{r_1}\right)^2 \ln P_1}{1 - \left(\frac{r_2}{r_1}\right)^2} \right) \quad w = \frac{r_1}{\sqrt{\frac{1}{2} \ln \frac{P_1}{P_c}}}$$

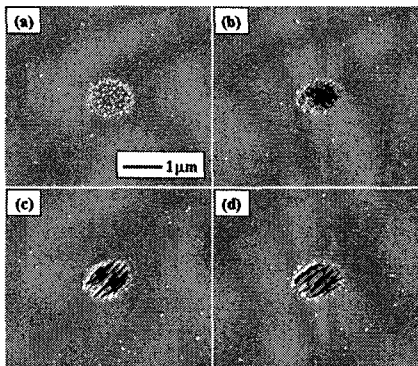


Fig. 2 Ablation pattern at an energy of 3.5 nJ with (a) 1, (b) 5, (c) 20, and (d) 200 pulses

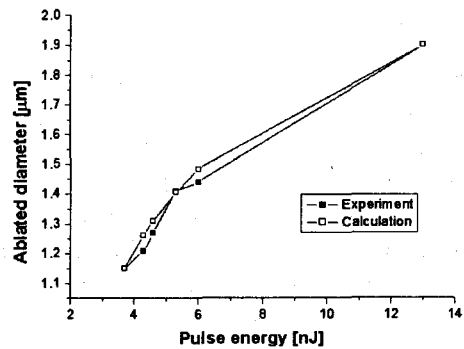


Fig. 3 Comparison of the diameter of the ablated area in experiment and the calculation based on Eq. (1) and (2)

계산된 임계에너지는 1.8nJ이며 샘플에서의 빔 직경은 1.9 μm 로 되어 임계에너지 밀도는 약 60mJ/cm²으로 계산되었다. 회절한계에 의한 빔 크기가 $d = 2.44f\#$ 이므로 1.22 μm 가 되어 측정에 의해 유도된 값에 비해 작지만 Fig. 4와 같이 전체 실험데이터를 피팅해 보면 유도된 임계에너지 및 빔 직경은 어느 정도 타당한 값이라 여겨진다.

시간차를 가진 분기된 펄스에 의한 가공 특성은 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4의 (a) 및 (b)의 편광 방향은 서로 수직으로 되어 있으며 각각의 펄스에 의해 10,000 여개의 펄스수를 조사해도 0.4 nJ 근방에서는 현저한 가공이 관찰되지 않았다. 하지만 두개의 펄스 간격을 0 ps 으로 하여 입사하였을 경우 (c)의 전자주사 현미경 사진과 같이 사선 방향으로 주기적 줄무늬가 형성되었다. 줄무늬 간격은 약 200 nm 간격으로 형성되었고 시간차를 늘일수록 주기적 줄무늬 패턴이 없어지다가 10 ps 이상의 시간차를 가지면 재료의 제거가 그다지 크지 않음을 알 수 있었다.

재료의 임계에너지 근방에서 펄스를 중첩시키면 레이저 편광방향에 수직인 방향으로 주기적인 줄무늬 패턴, 이른바 리플이라 불리는 현상이 나타난다는 사실은 수십 년 전부터 보고 되어 왔다[6]. 리플은 금속뿐만 아니라 거의 모든 재료에서 나타나는 현상으로 먼저 입사된 빔에 의해 형성된 재료의 표면과 입사된 빔과의 간섭에 의해 형성되는 것으로 유추되고 있으나 정확한 생성 메커니즘은 아직도 논의 중이다.

금속에 대해 시간차를 가진 펄스에 의한 본 실험 결과와 극초단펄스 열 해석에 응용되는 2 온도 모델을 동시에 고찰하면 재료의 제거 및 리플의 형성을 다음과 같이 유추할 수 있다. 2 온도 모델은 비평형 상태의 전자 및 격자의 열전달을 서로 분리하여 다른 물성으로 해석하며 다음 식과 같이 기술된다 [7].

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k_e \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - G(T_e - T_l) + S(x, t)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = G(T_e - T_l)$$

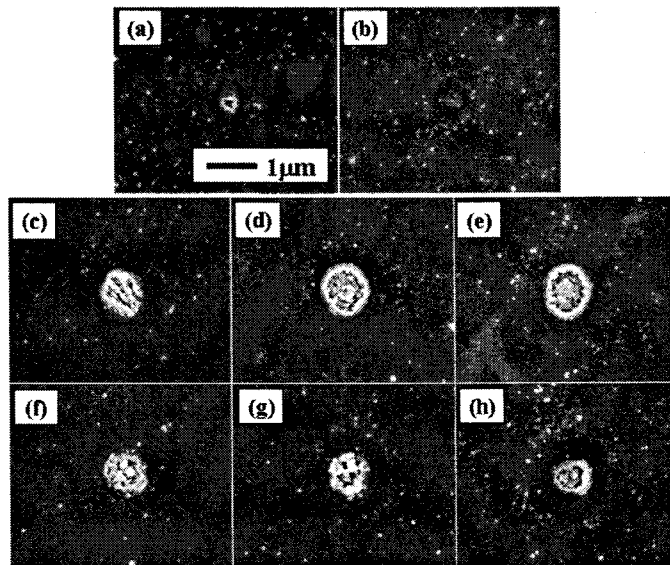


Fig. 4 Ablation of a Cr thin film with 10,000 pulses and a single pulse energy of (a) 0.44 nJ and vertical polarization and (b) 0.4 nJ and horizontal polarization. The time delay between (a) and (b) was (c) 0, (d) 0.5, (e) 1, (f) 10, (g) 30, and (h) 50 ps.

여기서 C 는 비열, k 는 열전도도, T 는 온도 그리고 S 는 레이저 열원항이다. 하첨자 e 와 l 은 각각 전자와 격자를 나타낸다.

금속의 자유전자에 의해 흡수된 레이저 에너지는 전자-전자 충돌에 의해 전자 열화를 가져와 전자온도가 결정되고 전자-격자 결합상수에 의해 전자 온도가 격자로 확산되어 격자 온도를 결정하는 형태로 설명 된다. 결합상수가 크면 전자의 온도가 주위의 격자로 많은 에너지를 전달하고 작으면 적게 전달한다. 한편 리플은 선행 펄스에 의해 형성된 파와 나중에 입사되는 파와의 간섭으로 볼 수 있으며 리플의 간격(Λ)은 $\Lambda = \lambda / (1 \pm \sin \theta)$ 로 기술되지만 입사파장보다 훨씬 작은 리플 간격이 최근 많이 보고 되고 있다 [8-9].

따라서 초기 레이저 펄스가 재료에 입사하면 자유전자에 흡수된 에너지는 고온의 전자가스를 형성하면서 동시에 플라즈몬과 같은 표면전자기파를 형성하는 것으로 볼 수 있다. 고온의 전자가스는 시간이 지나면서 전자-격자 결합상수에 따라 격자로 전달이 되어 평형상태에 이르게 되며 이의 시간은 수십 피코초로 알려져 있다 [10]. 이 시간 이내에 다른 펄스가 도달하게 되면 Fig. 4의 (d) 및 (e)와 같이 고온의 전자에 형성된 표면파가 서로 간섭을 일으키고, 이후에 도달하게 되면 앞선 펄스에 의한 고온의 전자는 격자로의 에너지 전달이 끝난 상태이므로 Fig. 2의 (c) 및 (d)와 같이 격자의 파동과 간섭하는 것으로 생각된다. 또한 재료의 제거에 직접적인 영향을 주는 것은 간섭된 고온의 표면전자기파 강도로 볼 수 있다. Fig. 4의 (c)의 경우는 분기된 두개의 빔이 동시에 입사한 것이므로 편광의 합벡터 방향으로 리플이 형성된 것을 관찰할 수 있다. 결과적으로 각 펄스간의 편광 방향을 수직으로 하고 펄스간의 시간간격을 고온의 격자로 전달하는 시간 이내로 조절하면 재료가공에 효과적이라 할 수 있다.

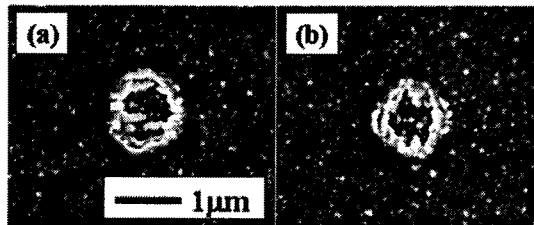


Fig. 5 Ablation on a Cr thin film with 10,000 pulses and a single pulse energy of (a) 1.4 nJ and vertical polarization and (b) 1.3 nJ and horizontal polarization

또한, 가공크기에 있어서도 Fig. 3에서처럼 에너지가 증가 할수록 가공크기도 커지며 단일 편광일 경우 가장자리에 Fig. 5와 같이 리플이 형성되어 있으나, 시간차를 가지며 편광방향이 서로 직각인 이중펄스를 이용하게 되면 적은 에너지로 리플이 제거된 최소 가공 크기를 얻을 수 있어 가공의 분해능을 높일 수 있다.

IV. 결론

펄초 레이저 펄스를 분기하고 분기된 각 펄스의 시간차를 조절하여 크롬 박막의 가공 특성을 분석하였다. 공간상 분해능을 높이기 위해 고배율 대물렌즈를 이용하였다. 단일 펄스를 조사한 결과 표면의 드립티이 형성됨을 관찰 하였고, 다중 펄스가 조사 되었을 경우는 파장보다 훨씬 작은 간격을 가진 리플이 형성되었다. 실험결과에서 얻어진 손상 임계에너지는 1.8 nJ, 샘플에서의 빔 직경은 $1.9 \mu\text{m}$ 로 에너지 밀도는 $60 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ 로 계산되었다. 편광방향이 서로 직각인 분기된 이중펄스를 이용한 경우 시간차가 0 ps인 경우 리플방향은 각 편광의 합 벡터 방향으로 형성되었으며 10ps 이전에 다음 펄스가 도달하면 리플이 없이 깨끗한 가공을 얻을 수 있었다. 실험결과로 리플 형성을 분석하면 초기펄스에 의해 유도된 고온 전자의 파동과 뒤이어 오는 펄스에 의한 고온의 전자 파동이 서로 간섭을 일으키는 것으로 여겨지며, 이는 뒤이어 오는 펄스가 고온의 전자 온도가 격자로 확산되기 이전에 도달하여야 함으로 보인다.

간섭된 최종 전자온도의 크기가 결국 격자로 전달되므로 간섭된 고온 전자 진동 크기가 재료제거에 직접적 영향을 미치는 것으로 여겨진다. 또한 이중펄스를 사용하게 되면 적은 에너지에 의해 작은 크기의 제거 가공을 할 수 있어 고품위의 가공에 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

V. 참고문헌

1. S. Nolte, B. N. Chichkov, H. Welling, Y. Shani, K. Lieberman, and H. Terkel, "Nanostructuring with spatially localized femtosecond laser pulses," *Opt. Lett.*, Vol. 24, No. 13, pp. 914-916, (1999)
2. K. Venkatakrishnan, B. Tan, and N. R. Sivakumar, "Sub-micron ablation of metallic thin film by femtosecond pulse laser," *Optics & Laser Tech.*, Vol. 24, pp. 575-578, (2002)
3. J. Bekei, J. H. Klein-Wiele, and P. Simon, "Efficient submicron processing of metals with femtosecond UV pulses," *Appl. Phys. A*, Vol. 76, pp. 355-357, (2003)
4. D. A. Willis, and X. Xu, "Heat transfer and phase change during picosecond laser ablation of nickel," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 45, pp. 3911-3918, (2002)
5. D. S. Kim, and B. K. Oh, "Numerical Analysis of Femtosecond Laser Material Processing," *J. of KSPE*, Vol. 23, No. 1, pp. 48-55, (2006)
6. D. Bauerle, "Laser processing and chemistry," 3rd ed. Springer, pp. 574-586, (2000)
7. T. Q. Qui, and C. L. Tien, "Femtosecond laser heating of multi-layer metals-I. Analysis," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 37, pp. 2789-2797, (1994)
8. R. Wagner, J. Gottmann, A. Horn, and E. W. Kreutz, "Subwavelength ripple formation induced by tightly focused femtosecond laser radiation" *Appl. Surf. Sci.*, in press.
9. A. Borowiec, and H. K. Haugen, "Subwavelength ripple formation on the surface of compound semiconductors irradiated with femtosecond laser pulses," *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 82, No. 25, pp. 4462-4464, (2003)
10. B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanek, and G. Simon, "Ultrafast dynamics of nonequilibrium electrons in metals under femtosecond laser irradiation," *Phys. Rev. B*, 65, 214303 (2002)