ナノプロジェクト研究最前線

超短パルスレーザを用いた三次元光機能性素子の作製

*㈳ニューガラスフォーラム
**京都大学　工学研究科

武島延仁*・成田善廣*・平尾一之**

Fabrication of three-dimensional optical devices by using ultra-fast laser pulses

Nobuhito Takeshima*, Yoshihiro Narita*, Kazuyuki Hirao**
*New Glass Forum
**Department of Material Chemistry, Kyoto University

1. はじめに

情報通信産業の発展に伴い，光通信や光情報機器の分野を中心にさまざまな光デバイスや光学素子が開発されている。これら光学素子には，高機能，高性能，小型，低コストや生産性など多くの要求があり，これら要求を満足するための研究・開発が盛んに行われている。

ガラスにおける光機能性は，材料の設計（含有する元素など）においてなされており，基本的にはパッシブ（受動的）なものであった。近年これらをアクティブ(能動的)化するために，ガラス中にイオンや微粒子を分散させる，超短パルスレーザ光を照射する，超微細加工を施すといったナノテクノロジーを駆使したガラスとナノテクノロジーの融合，すなわち「ナノガラス技術」の開発が進められている[1)]。我々は，平成 13 年度より 5 ヵ年の計画で NEDO「ナノガラス技術」プロジェクトにおいて三次元光回路の開発を，超短パルスレーザを用いることによって行っている。

フェムト秒レーザは，GW/cm^2～TW/cm^2 と高い電場強度を得ることが可能なパルスレーザである。この高い電場強度は多光子吸収を誘起し，レーザ光が吸収されない波長域においても集光スポットにおいてのみ加工することが可能となる。したがって，ガラスのような透明材料において三次元的な加工が可能となる[2)]。これまでに，この技術を用いたさまざまな研究成果が報告されている[3)~11)]。先にも述べた通り，ガラス材料は含有する元素等によりさまざまな光機能を付与することが可能であり，特に微細な結晶をガラス中に分散させることによってさらに多様な光機能性を実現させることが可能である[12)~17)]。

我々は，材料設計とレーザ加工の両面のアプローチから光回路の実現を目標とした。特に，光機能性結晶や微粒子の析出をガラス内部の任意の位置に形成する技術とそれらを制御する技術の開発を行った。本稿においては，微結晶の

〒300-2635　つくば市東光台 5-9-9
筑波研究コンケーシアム
TEL 029-848-1880
FAX 029-848-1882
E-mail: takesima@ngp.trc-net.co.jp

析出および光機能性素子の形成[9)~11)]に関して報告する。

2. 実験方法

これまでに，フェムト秒レーザを用いた微細加工を行うためにはレーザ光の倍波領域において効率的に吸収を誘起することが必要であるという知見を得ている。このために，倍波領域において吸収が存在する物質の添加やガラスの構造欠陥による吸収の付与等さまざまな方法を検討してきた。その中で，今回は ZnS, PbS を添加したケイ酸塩ガラスに関して報告する。実験に用いたガラスは，$62.5SiO_2$-$1.5Al_2O_3$-$3.0B_2O_3$-1.0CaO-14.5ZnO-$11.5Na_2O$-$3.5K_2O$-2.5ZnS (PbS) mol%である。切断・研磨加工を施した上記ガラス材料に，図 1 に示すような光学系を用いてレーザ光を集光照射した。加工条件は，波長 800 nm，パルス幅 200 fs，繰返し周波数 250 kHz，パルスエネルギー 0.02～2.0 μJ，ステージスキャンスピード 100～1000 μm/s である。集光する対物レンズには，40X（NA0.55）を用いた。ステージはコンピュータ制御により走査し，3 mm 角のラインアレイを形成した。ラインアレイは，周期を変化させ 3～15 μm 間隔で形成した。

ラインアレイを形成したガラス材料は，顕微鏡によりラインアレイの観察を行い，分光光度計によりレーザ照射領域の光吸収特性を測定した。また，オプティプローブ（東レリサーチセンター）により屈折率を評価した。結晶析出の有無，組成変化を調べるために，電子線マイクロアナライザ（EPMA）および透過型電子顕微鏡（TEM）によりレーザ照射領域を観察した。

3. 結果および考察

図 2 に作製したラインアレイの平面および断面の反射顕微鏡像を示す。反射率の大きな領域が 10 μm 周期で形成されている様子がわかる。このラインは，断面像からわかるようにレーザ照射領域の外周部において反射率が高くなっている。EPMA による組成分析の結果，レーザ照射領域において組成が大きく異なっている様子が観測された。この分相のため屈折率が変化し，外周部において反射率が増大していると考えられる。レーザ照射領域中央部においては，Al_2O_3, SiO_2 および O 量の増大が観測されているが，この分相に関しては熱的効果のみでは説明できず，詳細は明らかとなっていない。

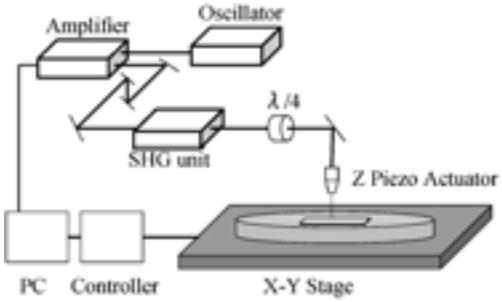

Fig. 1 The experimental setup for the fabrication of the line array.

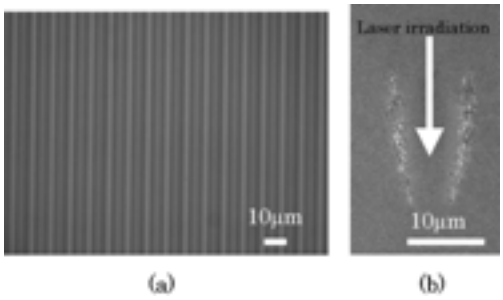

Fig. 2 Microscopic images of the PbS-doped glass (a) in plane view (b) glass in cross-section view.

図 4 に作製したラインアレイの断面方向の屈折率プロファイルを示す。この結果，およそ 10%の屈折率変化が観測された。高屈折率領域は，設計通りに 10 μm の周期を形成している様子がわかる。また，PbS ドープガラスの高屈折領域には図 5 に示すように，大きさ約 60 nm の Pb の単結晶微粒子が形成しておりこ

の微粒子が屈折率増大の一因となっていると考えられる。

図 6 に作製したラインアレイの吸収スペクトルを示す。ライン周期の増大に伴い吸収ピーク波長が高波長側に変化した。このことから，この吸収は回折によるピークであると推察される。この推察を実証するために積分球を用いて吸収スペクトルを測定した。その結果を図 7

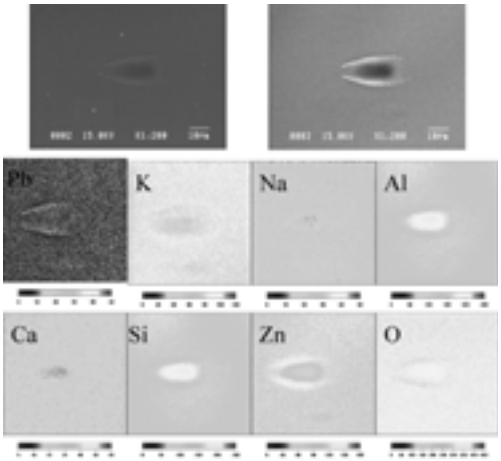

Fig. 3　EPMA images of the laser-irradiated area in the PbS-doped glass.

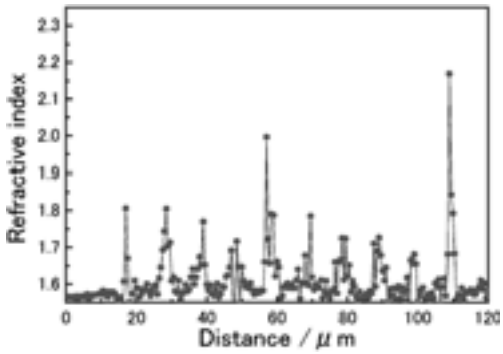

Fig. 4　Refractive index profiles measured by BPR in the PbS-doped glass (Wavelength: 675 nm).

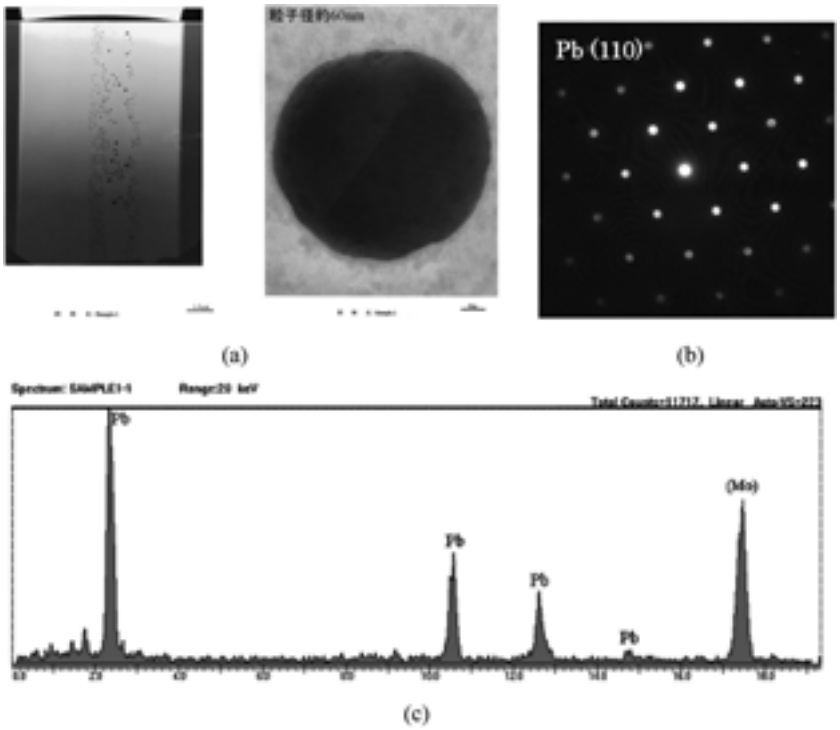

Fig. 5　Results of TEM analysis (a) TEM images (b) electron diffraction pattern (c) EDX analysis.

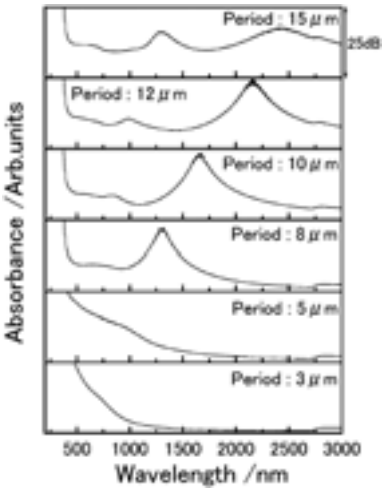

Fig. 6 Absorbance spectra of fabricated gratings that had periods from 3 μm to 15 μm in PbS-doped glass.

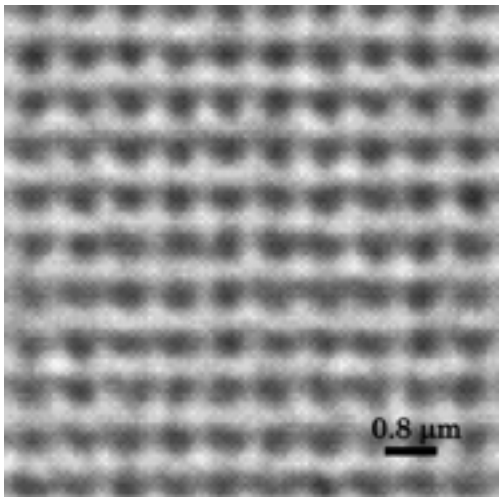

Fig. 8 Microscopic images of the fabricated woodpile structures in plane view. The period was 0.8 μm. The structures consist of 36 layers with a layer spacing of 1.0 μm.

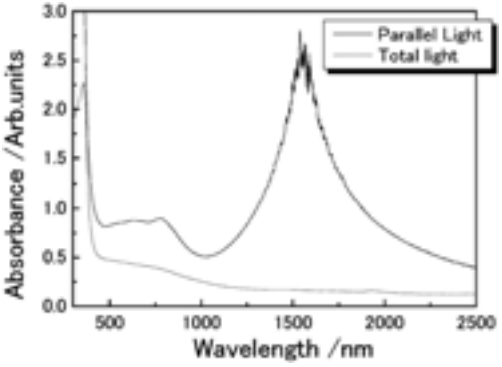

Fig. 7 Absorbance spectra of a collimating light and a diffusion light in PbS-doped glass.

に示す。平行光による測定では 1500 nm 付近に 90％以上の吸収が観測されているのに対し，全光における吸収スペクトルでは 1500 nm 領域に吸収は観測されていない。したがって，この 90％を超える吸収ピークは，回折によるものであると結論付けられる。以上のように，10％を超える比屈折率差をガラス中に形成することによって，90％を超える透過回折効率を実現した。

図 8 は ZnS ドープガラス中に作製した三次元周期構造の顕微鏡像である。構造は woodpile 構造とした。X-Y 周期 δ は 0.6～0.8 μm，Z 周期 δZ は 1.0 μm とした。レーザはパルスエネルギー 20 nJ，繰返し周波数 250 kHz，パルス幅 200 fs の条件で照射を行った。形成したロッドは断面 500×700 nm の Z 軸方向へ伸びた楕円形状であった。Z 軸方向は，レーザ光のスペクトル幅（約 30 nm）と材料の非線形性による影響で XY 平面方向と比較して伸びた形状となる。このため，形成する形状は楕円となる。これは，フェムト秒レーザーによる加工が自己収束のような非線形過程による加工であることから，Z 軸方向への伸びを抑制することは困難である。この問題をできるだけ取り除くためには，広い領域で収差補正された対物レンズを使う。また，NA の大きな液浸レンズを使用することである。これらの対策を施したとしても，サブミクロンの円形状を得ることは困難であると考えられ，これらの問題を解決する新たな材料の開発が必要である。

図 9 に作製した woodpile 構造の反射スペクトルを示す。比較のため Rigorous Coupled

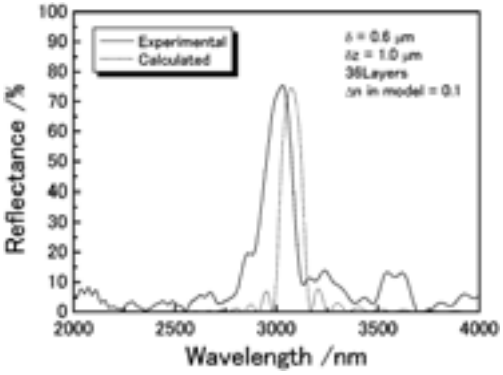

Fig. 9 The infrared reflectance spectrum of the fabricated woodpile structures (solid curve). The δ value was 0.6 μm and δz was 1.0 μm. Dashed curve: the same spectrum calculated using RCWA.

Wave Analysis（RCWA: DiffractMOD）を用いて同条件の構造（ロッド形状，δ, δZ）をシミュレーションした結果も示す。波長 3.0 μm に反射率 70％以上の反射バンドを観測した。実測値と計算値は良い一致を示し，三次元構造が設計通りに形成されていることを示している。また，さまざまな屈折率を持つ構造の計算結果との比較により，レーザ照射により誘起された屈折率増加は 0.1 であると推察される。さらに，反射バンドの短波長化のためには構造の更なる微細化が必要である。

4. ま と め

フェムト秒レーザを用いて ZnS（PbS）ドープガラス中にラインアレイを形成した。その結果，分相により 10％を超える屈折率差が誘起され，通信波長帯における回折効率が 90％を超える透過回折素子の形成に成功した。また，三次元微細周期構造を形成し，波長 3.0 μm において 70％を超える反射率を観測した。この結果は，RCWA による計算結果と良い一致を示し，形成したロッドの屈折率差 Δn は約 0.1 であると推察された。

参 考 文 献

1）平尾一之，New Glass, 19, 3, (2004) 53.
2）K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto and K. Hirao, Opt. Lett. 21, (1996) 1729.
3）E. N. Glezer and E. Mazur, Appl. Phys. Lett. 71, (1996) 882.
4）K. Kawamura, N. Sarukura, M. Hirano and H. Hosono, Appl. Phys. Lett. 78, (2001) 1038.
5）J. Qiu, M. Shirai, T. Nakaya, J. Si, X. Jiang, C. Zhu and K. Hirao, Appl. Phys. Lett. 81, (2002) 3040.
6）N. Takeshima, Y. Kuroiwa, Y. Narita, S. Tanaka and K. Hirao, J. Non-Cryst. Solids 336, (2004) 234.
7）N. Takeshima, Y. Kuroiwa, Y. Narita, S. Tanaka and K. Hirao, J. Ceram. Soc. Jpn. Supplement 112－1, PacRim5 Special Issue, 112[5], (2004) S887.
8）Y. Kuroiwa, N. Takeshima, Y. Narita, S. Tanaka and K. Hirao, Opt. Express 12, 9, (2004) 1908.
9）N. Takeshima, Y. Kuroiwa, Y. Narita, S. Tanaka and K. Hirao, Opt. Express 12, 17, (2004) 4019.
10）N. Takeshima, Y. Narita, S. Tanaka, Y. Kuroiwa and K. Hirao, Opt. Lett. 30, 4, (2005) 352.
11）N. Takeshima, Y. Narita, T. Nagata, S. Tanaka and K. Hirao, Opt. Lett. 30, 5, (2005) 537.
12）R. Sakai, Y. Benino and T. Komatsu, Appl. Phys. Lett. 77, (2000) 2118.
13）T. Fujiwara, R. Ogawa, Y. Takahashi, Y. Benino and T. Komatsu, Phys. Chem. Glasses 43C, (2002) 213.
14）B. Bhattacharjee, D. Ganguli, K. Iakoubovskii, A. Stesmans and S. Chaudhuri, Bull. Mater. Sci. 25, (2002) 175.
15）Y. Takahashi, K. Kitamura, Y. Benino, T. Fujiwara and T. Komatsu, Appl. Phys. Lett. 86. (2005) 091110.
16）永金知浩，北村直之，西井準治，平尾一之，New Glass 19, 1, (2004) 60.
17）Y. Watanabe, G. Namikawa, T. Onuki, K. Nishio and T. Tsuchiya, Appl. Phys. Lett. 81, (2001) 2125.