

集光フェムト秒レーザーパルスによる三次元光学素子の作製

渡 辺 歴

Three-Dimensional Photonic Devices by Tightly-Focused Femtosecond Laser Pulses

Wataru WATANABE

By use of localized modification of transparent materials with femtosecond laser pulses the fabrication of three-dimensional photonic device has become possible. In this paper, I review the fabrication technique of three-dimensional optical devices with microscopic bubbles, called voids with femtosecond laser pulses. I show three-dimensional movement of the voids by translation of the focal spot of a focusing lens. I also show the irradiation of femtosecond laser pulses moves a microscopic bubble inside crystalline calcium fluoride and amorphous silica glass. *In situ* observation revealed that the bubble moves against the direction of propagation of laser pulses as far as $2\ \mu\text{m}$. Finally I show the fabrication of the Fresnel zone plate by embedding the voids in silica glass.

Key words: femtosecond laser pulse, void, optical memory, silica glass, integrated optics devices

近年、高いピークパワーを有する超短パルス光（パルス幅がフェムト秒オーダー）の非線形光学現象を利用した加工法が注目されている。フェムト秒レーザーパルスを、1光子では吸収をもたない透明媒質内部に集光すると、非線形光学効果により、媒質は集光点近傍の空間的に限定された領域でのみ改質される。フェムト秒レーザーにより、透明材料内部にナノメートルからマイクロメートルオーダーの三次元的に局在した構造変化領域を自由に誘起することができ、ガラスをはじめさまざまな媒質内部への三次元光メモリの形成¹⁻⁵⁾、レンズの作製⁶⁾、導波路の作製⁷⁻¹⁵⁾、方向性結合器の作製¹⁶⁻¹⁹⁾、回折格子の作製²⁰⁻²⁶⁾、微細空孔（ホール）加工²⁷⁻³⁰⁾などが報告されている。現在、光通信システムのさらなる大容量化、高速化およびデバイスの集積化が必要となっており、三次元空間内に微小光学素子を作製し、高密度に集積する三次元マイクロ光デバイスの加工技術の確立が不可欠となってきている。

本稿では、三次元マイクロ光加工技術として、フェムト

秒レーザーパルスを用いた透明固体内部へのボイドとよばれる直径 $1\ \mu\text{m}$ 程度の微小空泡（空隙）に関する最近の研究成果を紹介する。具体的には、レーザーパルスの集光照射によるボイドの移動現象^{3,4)}、およびフレネルゾーンプレート⁵⁾の作製⁵⁾について述べる。

1. ボ イ ド

1990年代の後半、ハーバード大学の Mazur のグループは、フェムト秒レーザーパルスを高い開口数（numerical aperture; NA）の対物レンズにより透明媒質内に集光すると、集光点近傍において緻密化した媒質に囲まれたボイド（微小空泡）が形成されていることを報告した（図1）^{1,2)}。彼らは、試料を研磨してボイド部分を露出させ、走査型電子顕微鏡（scanning-electron microscope; SEM）により空泡（空隙）の存在を明らかにしている。ボイドは内部が空泡のため、周囲との屈折率差が大きいといった特徴をもつ。集光点近傍のみボイドを生成することができるので、三次元

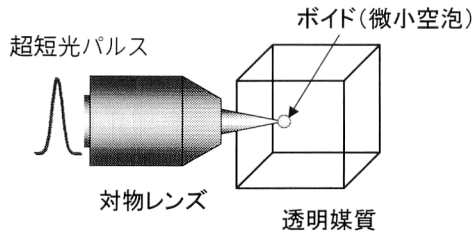


図1 超短パルス光の集光照射による透明媒質内部への構造変化の誘起。

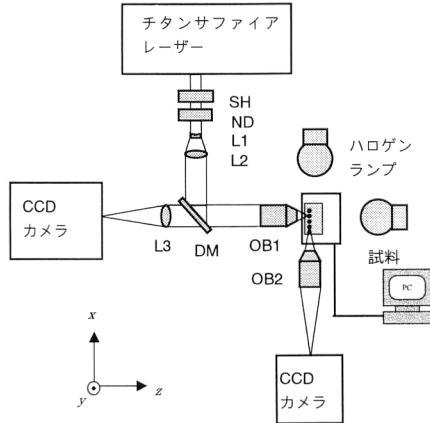


図2 実験光学系。ND, ニュートラルデンシティフィルター; SH, シャッター; OB1, OB2, 対物レンズ; L1, L2, L3, レンズ; CCD, CCDカメラ。

空間に自由にかつ高密度にボイドを作製可能であり、ボイドをデータのビットと見立てた三次元光メモリーが提案されている^{1,3)}。ボイドの生成メカニズムは現在のところ十分には解明されていないが、microexplosion (微小爆発) がひとつの有力な説明とされている^{1,2)}。透明媒質中に、フェムト秒レーザーパルスが高いNAを有するレンズで集光すると、集光点付近では非常に大きなエネルギーが閉じ込められ、多光子イオン化が起こる。一度自由電子が生成されると、この電子は周囲の原子やイオンと衝突し、アバランシェイオン化が起こる。このとき、集光点付近ではプラズマ密度が急激に増加すると同時に吸収係数が増加し、光子は電子によって吸収され、微小領域に閉じ込められたプラズマが爆発的に拡散する。プラズマの拡散はきわめて高速であり、プラズマの拡散後には衝撃波が拡散する。その後、プラズマは緻密化し、媒質内部に永続的な光学損傷、つまりボイドを生成すると考えられている。

2. ボイドの移動

2.1 実験光学系

図2に、フェムト秒レーザーパルスによるボイドの生成光学系およびその観察光学系を示そう⁴⁻⁶⁾。チタンサファ

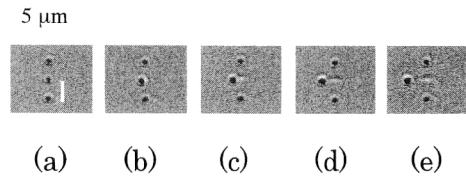


図3 ボイドの移動。

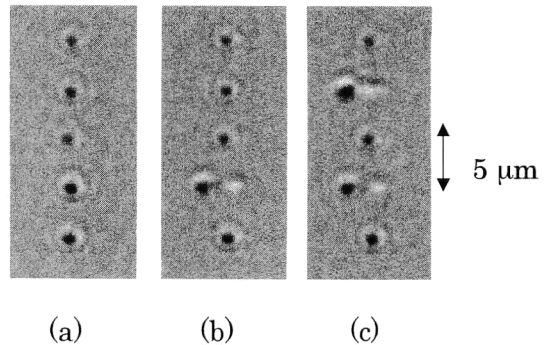


図4 書き換えメモリーの基礎実験。

イアレーザー光パルス (波長 800 nm, パルス幅 130 fs, 繰り返し周波数 1 kHz) を、対物レンズ (NA 0.55) により透明媒質内部に集光している。集光点付近の構造変化は、シリカガラスをハロゲンランプで側面より照射し、光源の反対側に設置した長作動距離対物レンズを用いて実時間で観察している。

2.2 ボイドの移動と結合

フェムト秒レーザーパルスの照射によりボイドを移動させる技術について述べよう⁴⁾。試料として側面を光学研磨した厚さ 3 mm のシリカガラスを用い、試料表面から約 300 μm の位置にボイドの書き込みを行っている。1/125 秒 (8 パルス) の露光を行い、深さが同じ位置 (光軸と垂直方向) に 3 つのボイドを作製している (図 3(a))。図 3 はボイドの透過顕微鏡像であり、黒い部分がボイドに相当する。なお、パルスは左から右に伝播している。次に、集光レンズの焦点を中央のボイドに設定し、レーザーパルスの入射側 (-z 方向) に 0.5 μm 焦点を移動し、1/125 秒 (8 パルス) の露光を行っている。この集光点の移動とレーザーパルスの露光を繰り返すことにより、ボイドが約 5 μm 移動しているのがわかる。ボイド生成時の入射光強度は 0.95 μJ/pulse, 移動時の入射光強度は 0.74 μJ/pulse である。ボイドが移動したあとは構造変化とみられる痕跡が残ることがわかる。

ボイドの移動の応用として、図4にメモリーの書き換え実験例を示そう⁴⁾。まず y 軸方向 (同じ深さ) に 5 つのボ

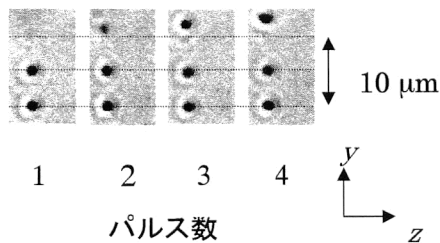


図5 光軸と垂直方向へのボイドの移動。

イドを $5\mu\text{m}$ 間隔に生成し(図4(a)), 上に述べた手法で図の上から4番目のボイドを移動させ(図4(b)), 続いて上から2番目のボイドを移動させている(図4(c)). ボイドの位置をビットの状態とすると, メモリーの記録状態を変化させることが可能である.

2.3 ボイドの三次元移動

光軸に対し垂直方向にボイドを移動させることができる. ここでは, フッ化カルシウム結晶(CaF_2)に関する実験結果について述べよう⁵⁾. レーザーパルスの入射エネルギーは約 386 nJ/pulse とし, 試料内部(深さ $200\mu\text{m}$)に集光している. 図5は, 透過型顕微鏡により観測した CaF_2 内部でのボイドの移動を示している. マーカーとしてのボイドを作製後, 集光点を図中の左上に設定し, シングルレーザーパルスを照射してボイドを作製している. 集光点を $+y$ 軸に沿って $1\mu\text{m}$ 移動し, パルスを照射し, 集光点の移動とパルス照射を繰り返している. ボイドは, 光軸に対し垂直方向に約 $3\mu\text{m}$ 移動することがわかる.

2.4 パルス照射によるボイドの移動

レーザーパルスを連続照射することにより, 光軸入射側へのボイドの移動が可能であることも見出されている⁵⁾. すなわち, 光学系を移動させることなく, レーザーパルスを連続照射することのみにより, シリカガラスおよび CaF_2 内部のボイドが移動する. 図6に CaF_2 を用いた実験結果を示そう. 生成したボイドは照射するパルス数により, パルスの伝播方向と反対側に移動し, 約 $2\mu\text{m}$ 移動している.

ボイドが動くメカニズムは次のように考えられる^{3,4)}. 先に述べたように, フェムト秒レーザーパルスを集光した場合, 集光領域では, 多光子吸収やアバランシェイオン化によって非線形のエネルギー吸収が起こり, オプティカルブレイクダウンが生じ, 高密度のプラズマ状態となる. このプラズマは周辺へ広がり, ボイドが生成される. 生成されたボイドは, 空泡と周辺の構造変化領域から成り立っていると考えられる. 周辺部ではカラーセンターなどの構造欠陥が生じており, 境界部分でブレイクダウンが発生しやすくなると考えられる. 次のレーザーパルスによって境界部

パルス数

1 パルス

2 パルス

3 パルス

4 パルス

5 パルス

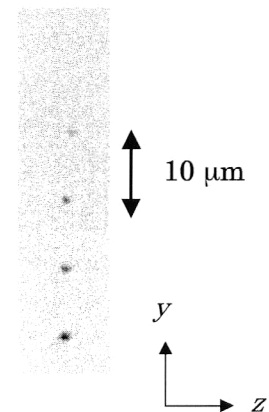


図6 パルスの照射によるボイドの移動。

分を中心にブレイクダウンが発生し, 押しやられた媒質はもとにあったボイドを埋めることにより, ボイドが移動していくようにみえる. レーザーパルスの照射により三次元的にボイドを移動させる技術は, 書き換え可能なメモリーへの応用やチューナブルなフォトニックデバイスなどさまざまな応用が考えられる. 現在のところ, 一度状態を書き換えるともとに戻すことはできない.

3. ボイドを用いたフレネルゾーンプレートの作製

シリカガラス内部にボイドを配列することにより, フレネルレンズを作製することができる⁶⁾. フレネルゾーンプレートは, 一点を中心とし, 半径 $r_m = \sqrt{2m\lambda f}$ ($m=1, 2, 3, \dots$) の多数の円盤(輪帯)から成り立っている(ただし, λ は波長, f は主焦点距離). この輪帯を1つおきに塗りつぶし逆位相の光を遮ると, 同位相の光のみ集光され, レンズとして作用する. 図7(a)がボイドを用いたフレネルゾーンプレート作製法である. ゾーンプレートの暗輪帯の部分では, ボイドを $1\mu\text{m}$ 正方格子状に書き込むことにより光を遮っている. 図7(b)に設計の概要を示す. 使用する光を波長 632.8 nm の He-Ne レーザー光とし, 主焦点距離を 3 mm , サイズを $400\mu\text{m}$ としてフレネルゾーンプレートを設計している. この場合, 中心輪帯半径 r_1 は $43.5\mu\text{m}$ となる. 試料を設置した微動ステージを光軸に垂直な面内で走査し, 試料表面から $300\mu\text{m}$ の深さにフレネルゾーンプレートを書き込んでいる. 図8(a)が作製されたフレネルゾーンプレートの光学顕微鏡像, 図8(b)がその拡大図である. ボイドを書き込んだ偶数次輪帯では, 光が透過しないことがわかる. フレネルゾーンプレートに He-Ne レーザー光を入射させ, 集光点における強度分布を50倍の対物レンズにより CCD カメラ上に結像したところ, 集光点での分解能は $7.1\mu\text{m}$ 程度であり(図9), 理論値の $6.1\mu\text{m}$ と

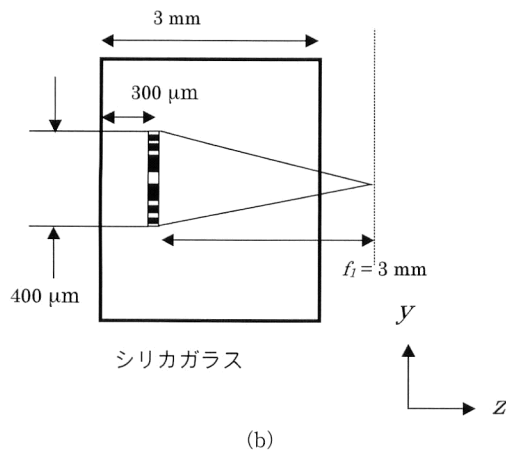
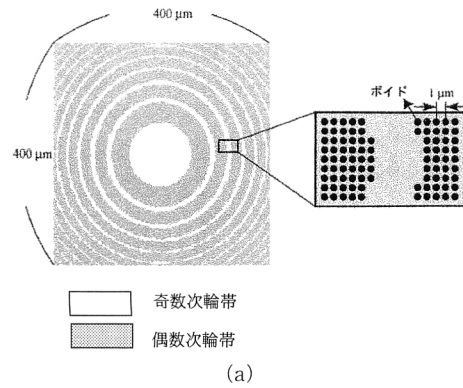


図7 ボイドを用いたフレネルゾーンプレートの作製概念図。

ほぼ同程度の分解能が得られている。回折光強度は約2%であり、理論値の10%に比べて低い。これは、ボイドの書き込み精度のため輪帯の境界が滑らかでないことが原因と考えられる。シリカガラス中に、レンズ作用をもつフレネルゾーンプレートを作製することが、はじめて実験により示された。ガラス内部にレンズを作ることにより、アライメントフリーで導波路に光を結合することも可能となるであろう。

4. 最近の動向

ここまで、フェムト秒レーザーパルスをガラス内部に集光照射することによるボイドの応用例として、ボイドの移動現象とフレネルゾーンプレートの作製について述べた。また、フェムト秒レーザーにより、さまざまなガラス内部に屈折率変化領域を自由に誘起することができる。ガラス内部への屈折率変化誘起に関する最近の研究動向について簡単に紹介しよう。レーザーパルスの集光点を走査することにより、光導波路、分岐路、方向性結合器などの作製が報告されている。三次元光導波路、結合器の作製が、0.8 dB/cmの損失で作製されている^{13,14)}。また、導波路に機能をもたせるべく、蛍光ガラスへの導波路作製も報告されてい

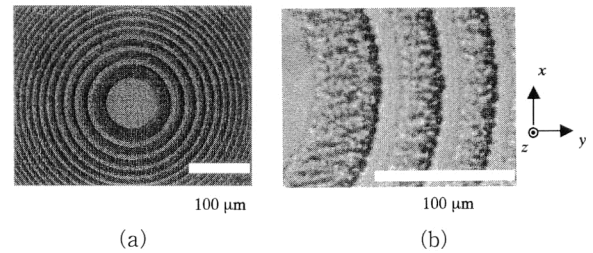


図8 作製したフレネルゾーンプレートの透過顕微鏡像。

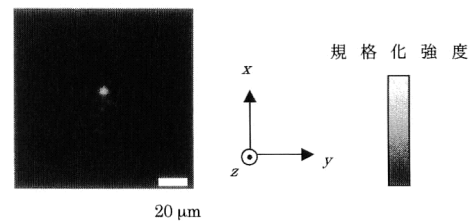


図9 集光点での強度分布。

る¹⁵⁾。ガラス内部への光回路および光学素子の作製は、従来の光ファイバー技術との相性から、既存の技術と融合することができ、大容量の情報を取り扱う次世代光通信情報処理システムの構築が期待されている。また、透明ガラス内部に直径が数μmから数百μmの三次元マイクロホールやチャネルの作製が報告されている²⁷⁻³⁰⁾。このような技術は、マイクロ分析化学システム (total analysis system; μ -TAS) での応用が期待されている。

本研究は、大阪大学大学院工学研究科物質・生命工学専攻の伊東一良教授、山田和宏氏、本学卒業生の遠間正真氏、黒田大介氏、産業技術総合研究所関西センターの西井準治博士との共同研究結果であり、深く感謝いたします。

文 献

- 1) E. N. Glezer, M. Milosavljevic, L. Huang, R. J. Finlay, T.-H. Her, J. P. Callan and E. Mazur: "Three-dimensional optical storage inside transparent materials," *Opt. Lett.*, **21** (1996) 2023-2025.
- 2) E. N. Glezer and E. Mazur: "Ultrafast-laser driven micro-explosions in transparent materials," *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997) 882-884.
- 3) 三澤弘明: 特許 8220688 (1995)
- 4) W. Watanabe, T. Toma, K. Yamada, J. Nishii, K. Hayashi and K. Itoh: "Optical seizing and merging of voids in silica glass with infrared femtosecond laser pulses," *Opt. Lett.*, **25** (2000) 1669-1671.
- 5) W. Watanabe and K. Itoh: "Motion of bubble in solid by femtosecond laser pulses," *Opt. Express*, **10** (2002) 603-608.
- 6) W. Watanabe and K. Itoh: "Fabrication of Fresnel zone plate embedded in silica glass by femtosecond laser pulses," *Opt. Express*, **10** (2002) 603-608.
- 7) K. Miura, J. Qiu, S. Fujiwara, S. Sakaguchi and K. Hirao:

- “Three-dimensional optical memory with rewritable and ultrahigh density using the valence-state change of samarium ions,” *Appl. Phys. Lett.*, **80** (2002) 2263–2265.
- 8) K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto and H. Hirao: “Writing waveguides in glass with a femtosecond laser,” *Opt. Lett.*, **21** (1996) 1729–1731.
 - 9) K. Miura, J. Qiu, H. Inouye, T. Mitsuyu and K. Hirao: “Photowritten optical waveguides in various glasses with ultrashort pulse laser,” *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997) 3329–3331.
 - 10) K. Yamada, W. Watanabe, T. Toma, K. Itoh and J. Nishii: “*In situ* observation of photoinduced refractive index changes in filaments formed in glasses by femtosecond laser pulses,” *Opt. Lett.*, **26** (2001) 19–21.
 - 11) K. Yamada, W. Watanabe, J. Nishii and K. Itoh: “Anisotropic cross-sections of refractive-index change in silica glass induced by self-trapped filament of linearly polarized femtosecond laser pulses,” *J. Appl. Phys.*, **93** (2003) 1889–1892.
 - 12) C. B. Schaffer, A. Brodeur, J. F. Garcia and E. Mazur: “Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy,” *Opt. Lett.*, **26** (2001) 93–95.
 - 13) M. Will, S. Nolte, B. N. Chichkov and A. Tunnermann: “Optical properties of waveguides fabricated in fused silica by femtosecond laser pulses,” *Appl. Opt.*, **41** (2002) 4360–4364.
 - 14) S. Nolte, M. Will, J. Burghoff and A. Tunnermann: “Three-dimensional structuring of glass by ultrashort laser pulses,” *Proc. SPIE*, **4984** (2003) 194–201.
 - 15) G. Cerullo, R. Osellame, S. Taccheo, M. Marangoni, D. Polli, R. Ramponi, P. Laporta and S. De Silvestri: “Femtosecond micromachining of symmetric waveguides at 1.5 μm by astigmatic beam focusing,” *Opt. Lett.*, **27** (2002) 1938–1940.
 - 16) D. Homoelle, W. Wielandy, A. L. Gaeta, E. F. Borrelli and C. Smith: “Infrared photosensitivity in silica glasses exposed to femtosecond laser pulses,” *Opt. Lett.*, **24** (1999) 1311–1313.
 - 17) A. M. Streltsov and N. F. Borrelli: “Fabrication and analysis of a directional coupler written in glass by nanojoule femtosecond laser pulses,” *Opt. Lett.*, **26** (2001) 42–43.
 - 18) K. Minoshima, A. M. Kowalevicz, I. Hartl, E. P. Ippen and J. G. Fujimoto: “Photonic device fabrication in glass processing with a femtosecond laser oscillator,” *Opt. Lett.*, **26** (2001) 1516–1518.
 - 19) K. Minoshima, A. M. Kowalevicz, E. P. Ippen and J. G. Fujimoto: “Fabrication of coupled mode photonic devices in glass by nonlinear femtosecond laser materials processing,” *Opt. Express*, **10** (2002) 645–652.
 - 20) T. Toma, Y. Furuya, W. Watanabe, J. Nishii, K. Hayashi and K. Itoh: “Estimation of the refractive index change in glass induced by femtosecond laser pulses,” *Opt. Rev.*, **7** (2000) 14–17.
 - 21) L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz: “Writing of permanent birefringent microlayers in bulk fused silica with femtosecond laser pulses,” *Opt. Commun.*, **171** (1999) 279–284.
 - 22) K. Kawamura, T. Ogawa, N. Sarukura, M. Hirano and H. Hosono: “Fabrication of surface relief gratings on transparent dielectric materials by two-beam holographic method using infrared femtosecond laser pulses,” *Appl. Phys. B*, **71** (2000) 119–121.
 - 23) K. Kawamura, N. Sarukura, M. Hirano and H. Hosono: “Periodic nanostructure array in crossed holographic gratings on silica glass by two interfered infrared-femtosecond laser pulses,” *Appl. Phys. Lett.*, **78** (2001) 1038–1040.
 - 24) Y. Li, W. Watanabe, K. Yamada, T. Shinagawa, K. Itoh, J. Nishii and Y. Jiang: “Holographic fabrication of multiple layers of grating inside soda-lime glass with femtosecond laser pulses,” *Appl. Phys. Lett.*, **80** (2002) 1508–1510.
 - 25) Y. Li, W. Watanabe, K. Itoh and X. Sun: “Holographic data storage on nonsensitive glass with a single femtosecond laser pulse,” *Appl. Phys. Lett.*, **81** (2002) 1952–1954.
 - 26) Y. Li, K. Yamada, T. Ishizuka, W. Watanabe, K. Itoh and Z. Zhou: “Single femtosecond pulse holography using polymethyl methacrylate,” *Opt. Express*, **10** (2002) 1173–1178.
 - 27) A. Marcinkevicius, S. Juodkazis, M. Watanabe, M. Miwa, S. Matsuo and H. Misawa: “Femtosecond laser-assisted three-dimensional microfabrication,” *Opt. Lett.*, **26** (2001) 277–279.
 - 28) Y. Kondo, J. Qiu, T. Mitsuyu, K. Hirao and T. Yoko: “Three-dimensional microdrilling of glass by multiphoton process and chemical etching,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38** (1999) L1146–L1148.
 - 29) M. Masuda, K. Sugioka, Y. Cheng, N. Aoki, M. Kawachi, K. Shihoyama, K. Toyoda, A. Helvajian and K. Midorikawa: “3-D microstructuring inside photosensitive glass by femtosecond laser excitation,” *Appl. Phys. A*, **75** (2002) 1–4.
 - 30) Y. Li, K. Itoh, W. Watanabe, K. Yamada, D. Kuroda, J. Nishii and Y. Jiang: “Three-dimensional hole drilling of silica glass from rear surface with femtosecond laser pulses,” *Opt. Lett.*, **26** (2001) 1912–1914.

(2003年4月21日受理)