

フェムト秒短パルスレーザー加工を用いた石英光ファイバへの機能埋め込み

Function embedding to silica glass optical fibers using femtosecond laser processing

12D5201 合谷 賢治

指導教授：渡辺 一弘 教授

SYNOPSIS

The aim of this thesis is to explore the potential of femtosecond laser microstructuring in a silica glass optical fiber in order to produce functionalized sensor element. In the first step of this work, femtosecond laser irradiation to optical fibers is experimentally demonstrated to obtain the processing condition in terms of irradiation parameters and focal conditions, for two methods of internal modification and laser drilling. Using the condition with the parameters, the fabrication of microstructures is performed to implant sensing function into optical fibers. In the fabrication using internal processing, micro voids are asymmetrically arranged along the optical axis of optical fiber by using a single shot of 210 fs pulse with a pulse energy of 4 μJ at a wavelength of 800 nm. The non-axisymmetric disposition of the micro-void array allows bending direction to be detected by observing increases and decreases in the light intensity propagated in the core. A 2 mm-long sensor element gives average sensitivities of -0.08 and $+0.06$ dB/mm over a 5 mm displacement range for two bending directions. For the second experiment, femtosecond laser drilling is successfully applied to fabricate a through-hole array in a multi-mode optical fiber for fiber optic in-line spectroscopic measurement, using the irradiation parameters adjusted in a pulse train of 1 kHz during 1.2 s, with a pulse width of 350 fs and a pulse energy of 15 μJ per pulse irradiation at a wavelength of 400 nm. Fabricated through holes penetrate the fiber core and work to be a sample cell for a spectroscopic measurement. The spectroscopic measurement will be shown for several liquids including dye of rhodamine 6G (R6G). Even with a single cell volume of approximately 20 μL , the absorption spectrum is appeared in the visible range centered at 530 nm which corresponds to the peak absorption wavelength of R6G.

Keywords : Femtosecond laser machining, Microstructuring, Optical fiber sensor, Micro cavity, Micro through-hole array, Directional bending detection, Spectroscopic measurement, Pico-liter sample cell, Dye absorption

1. はじめに

レーザー加工技術は、光源技術の発展、加工原理の解明、そして新たな改質現象の発見により、その活躍の場を多岐に広げている。特に、超短パルスレーザーと呼ばれる、サブピコからフェムト (10^{-15}) 秒光源の安定発振が可能な装置の開発により、その加工技術の産業応用化は著しい進展を見せている。超短パルスレーザーは、一般的な定義としてピコ (10^{-12}) 秒よりも短いパルスのレーザーに適用され、同時に物質の衝突緩和時間 (ピコ秒程度) よりも短いパルスのレーザーである。パルスレーザーによる加工プロセスは、ピコ秒を境にして熱的プロセスと非熱的プロセスに区分され、フェムト秒レーザーによる加工は非熱的加工に分類される。この非熱的加工では、レーザー照射領域周辺の熱影響による不均一な溶融部が極限まで抑制されるため、被加工材料の局所的な領域のみを空間選択的に改質することができ、均一で精密さが求められる加工にその効果を発揮する。また、フェムト秒レーザーは、非常に短い時間のパルスに光を閉じ込められるため、瞬間的に超高強度電場を容易に誘起させることができる。このような特徴を有するフェムト秒レーザー加工は、難加工材料と呼ばれる、材料の物理的特性や大きさに起因して加工が困難な材料の加工方法として非常に有効である。難加工材料の具体例として、前者はダイヤモンドのように硬度の高い鉱物やセラミックスやガラスのような脆性材料があげられ、光ファイバや薄膜材料のように微小材料が後者になる。フェムト秒レーザーを利用した場合、前者の難加工材料に対しても比較的容易に加工をすることが可能であるため、加工例の報告例は後を絶たない。一方で、微小材料への加工は、その加工特性の調査や構造体の埋め込みといった研究が多くを占めており、活発な報告がなされている[1-5]。

本研究では、このフェムト秒レーザー加工を利用して、難加工材料の一つである石英光ファイバの導波路中に構造体を作製することにより、光ファイバへの機能埋め込みを行った。光ファイバは光信号のまま安定に光伝送できる優れた導波路であり、その特徴からセンシングエレメントとして、幅広い分野での応用が試みられている。その光ファイバへの構造体を作製する手法として内部加工と穿孔加工の2種類の加工方法を用いて行い、提案するセンサ機能の実現性及びセ

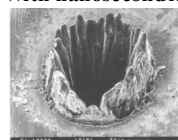
ンサ特性と同時に、構造体の作製手法について検討した。本研究により石英光ファイバへのフェムト秒レーザー加工の特性とセンサ特性が明らかになり、光ファイバセンサの構造に新たな可能性をみるものである。

本論文ではその研究成果を全6章にまとめた。第1章は、研究背景と意義を述べる。第2章は、フェムト秒レーザー加工とその応用事例について述べる。第3章は本研究で使用した光ファイバ加工用のレーザー加工装置及び観察系について解説する。第4章では、光ファイバへの内部加工の特性と内部に構造体埋め込むことによって作製した、方向検知可能な光ファイバセンサについて記述されている。第5章では、穿孔加工を応用した液体検査用センサについて言及した。第6章は本研究の結論である。

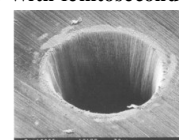
2. フェムト秒レーザー加工の定性的特徴

フェムト秒レーザー加工の特徴は、そのパルス幅が非常に短いことに起因する非線形なエネルギー遷移であるため、ここでは定性的なエネルギー緩和過程とそのエネルギー緩和による熱拡散について述べ、具体的な加工例を示す。ナノ秒レーザーのパルスのように、イオンの衝突緩和時間よりも長いパルス幅の場合、改質プロセスの初期段階において、電子とイオンは熱的に平衡状態にあり、同じ温度経過を示すため熱的過程となる。一方で、被加工部材の衝突緩和時間よりも短いパルスのレーザー光が照射されると、改質プロセス初期段階においては、電子のみが励起され、定常状態のイオン温度よりもはるかに高い電子温度 (熱的非平衡状態) となる。この状態を経て、励起された電子からイオンへの急速なエネルギー緩和が起こるため、熱拡散を抑制することが可能となる。Fig.1 (a) と (b) は、ステンレス鋼表面にレーザー照射した際の両者の

(a) With nanosecond laser (b) With femtosecond laser



SEM image of a hole drilled in a thin steel foil with 3.3 ns



SEM image of a hole drilled in a thin steel foil with 200 fs

Fig. 1 レーザパルス幅による加工の違い[6]

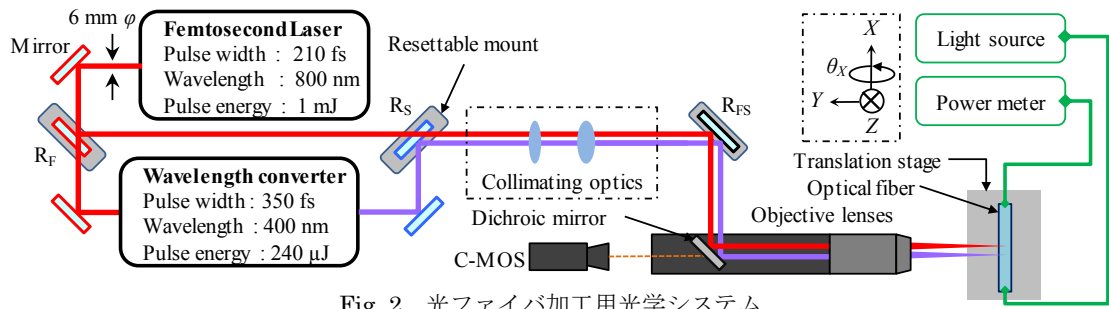


Fig. 2 光ファイバ加工用光学システム

加工例を比較したものであり、(a)：ナノ秒レーザーを用いた例では加工部周辺への熱影響による熔融部がはっきりと確認できる。(b)：フェムト秒レーザーを用いた場合には熔融部はほとんど認められず均一な加工形状が実現されている。

フェムト秒レーザー加工のもう一つの特徴は、パルスのピーク強度 ($\text{J}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{cm}^{-2}$) が非常に高いために多光子吸収と呼ばれる非線形光学現象を容易に誘起する点である。一光子過程では、ほとんど吸収が生じないガラス (エネルギーギャップ： 9.0eV) のような透明材料の加工においても、この多光子過程を経てレーザーエネルギーを被加工対象に吸収させることができる。この効果により、透明なガラスにおいても加工をすることができ、照射条件を調節し集光レンズを用いれば、内部のみの改質が実現される。

3. 光ファイバ加工用光学システム

Fig.2 に光ファイバの加工に用いた加工システムを示す。本システムは、レーザー制御装置、集光光学系、加工位置制御用ステージから構成される。レーザー光源の基本波 (800nm, パルス幅 210fs, 最大パルスエネルギー 1mJ, 繰り返し周波数 1kHz) は、波長変換装置を通して、第二高調波 (400nm, パルス幅 350fs, 最大パルスエネルギー 240μJ, 繰り返し周波数 1kHz) に変換される。レーザー光のビーム径は、集光光学系により調整されたのちに、対物レンズにより集光され光ファイバへ照射される。照射位置はステージの移動によって制御され、3 軸上に回転ステージを設けることで、光ファイバの全方向から加工・観察を可能にした。このステージを使った照射位置制御によって自由度の高い加工を実現した。実験では、レーザーの照射方向とその垂直方向から加工部の観察を行う。光ファイバに光源と光パワーメータを接続することで、加工によって生じた光損失 (挿入損失) を観察する。

4. 空洞化領域の配列による方向検知機能の付加

光ファイバ内部にボイドと呼ばれる空洞化領域を作り込むことで光散乱現象を利用した屈曲センサの実現を試みた。さらに空洞化領域を非軸対称な配置で構造化することで、屈曲量だけでなく方向検知可能な屈曲センサの検証を行った [7]。まず、コア径 $9\mu\text{m}$ のシングルモード光ファイバ内部に加工を行うための対物レンズと照射パラメータの選定を行い、本実験での照射条件を決定する。発振パラメータの選定条件は、①光ファイバ内部のコア-クラッド境界にボイドと呼ばれる空洞化領域の生成が可能であることと、②クラッド表面の損傷が比較的小さいことである。①の条件は、空洞化領域が光ファイバコアにある場合、透過光に対する散乱源として働くことが期待できるために設定する。②は、クラッド表面の損傷が機械的強度を劣化させ、屈曲センサに曲げを与えたときに光ファイバの破断の原因になってしまうため、可能な限り避けるべきである。以上の 2 つの条件から、実験では対物レンズの開口数は 0.45、レーザー発振パラメータは、波長

800nm, パルス幅 210fs, 1 つのボイド当たりパルス数 1, フルエンスは $250\text{J}/\text{cm}^2$ を採用した。光学系の調整と対物レンズによって、レーザー光はスポットサイズが $1.36\mu\text{m}$ まで絞り込まれ、そのときのレイリー長は $1.81\mu\text{m}$ である。

Fig.3 は、内部構造体の模式図と実際の顕微鏡画像である。図の (a) -i に示すように、作製する構造体は光ファイバの光軸に対して非軸対称に配列されている。図のように構造体を非軸対称に設計することで、光ファイバの屈曲方向に依存して光強度が変化することが期待される。また、空洞化領域を電子顕微鏡で観察した結果 [Fig.3 (b) -i], 光ファイバ内部のレーザー集光点にボイドが生成されていることを確認した。このボイドの領域は光ファイバ光軸方向に $10\mu\text{m}$, 長さ $2\mu\text{m}$, 厚さ $0.2\mu\text{m}$ の大きさであることを顕微鏡観察により確認した。本実験では、センサの作製再現性, センサ感度 (dB/mm) について調べるために、センサ長の異なる 3 種類のセンササンプルをそれぞれ 3 サンプル用意する。ボイドの配列方法は、模式図 (a) -ii と iii に示すように連結した直線状に配置し、それぞれのボイドの間隔はボイドの光軸方向の長さを考慮して $10\mu\text{m}$ 間隔で配列し、これをセンサ部とした。サンプル $S_{0.5}$, $S_{1.0}$, $S_{2.0}$ のセンサ長が 0.5, 1.0, 2.0mm となるように、ボイドの配列数をそれぞれ 51, 101, 201 個ずつとした。加工と同時に各サンプルの挿入損失 (加工により発生する透過光損失) を観察するために、波長 1310nm の LED 光源とパ

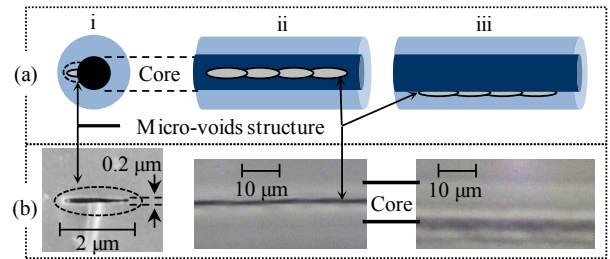


Fig. 3 内部構造体の模式図(a)と顕微鏡画像(b)

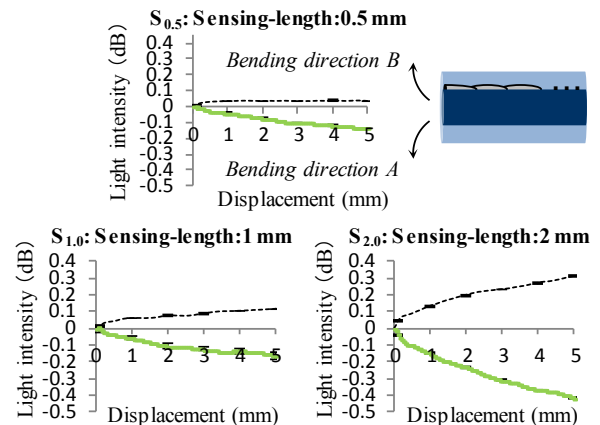


Fig. 4 各サンプルの変位に対する光強度変化
A 方向：実線, B 方向：点線

Table 1 センサ長と挿入損失, 光強度変化量, センサ感度

Sensing length (mm)	Insertion loss (dB)	Intensity change in bending direction A		Intensity change in bending direction B	
		Decrease (dB at 5 mm)	Average sensitivity (dB/mm)	Increase (dB at 5 mm)	Average sensitivity (dB/mm)
0.5	0.51	-0.14	-0.03	+0.04	+0.01
1	1.05	-0.20	-0.04	+0.13	+0.03
2	2.01	-0.41	-0.08	+0.27	+0.06

ワーメータを用いて光強度の変化を測定した。挿入損失を観察した結果、コアクラッドにボイドを作ることで一つのボイド当たり 0.01dB の光損失が発生することを確認した。

測定実験では、屈曲に対する光強度の変化を観察するために、作製したサンプルのそれぞれに対して、専用の測定ステージを用いて、ステージを変位 (0-5mm, 0.01mm 刻み) させることでセンサ部に曲げを与えた。屈曲方向は、構造体が曲げの外側となる方向 (A 方向) と内側となる方向 (B 方向) の 2 方向に曲げを与えた。測定結果を Fig.4 と Table 1 に示す。Fig.4 はサンプル $S_{0.5 \sim 2.0}$ の各 3 サンプルのうちの一つを示し、Table 1 はそれぞれのセンサ設計と挿入損失, 光強度変化 (5mm 変位点), センサ感度の平均値をまとめたものである。サンプル $S_{0.5}$ を例にとると、各方向において変位量とともに光強度変化量が増加し、A 方向の 5mm 屈曲時には光強度が 0.14dB 減少し、B 方向では 0.04dB 増加することを確認した。サンプル (b), (c) と比較し、センサ長が大きくなるほどセンサ感度が増加するという結果を得た。

実験結果から、フェムト秒レーザ加工によって作製した、非軸対称な内部構造体を有する光ファイバセンサの実現性及び再現性が示された。また、センサ長の異なるサンプルを比較した結果から、容易にセンサ感度を調整可能であることを確認し、本センサの有用性が示された [8]。

5. 穿孔加工による光ファイバ分光センサの作製

マルチモード光ファイバは、シングルモード光ファイバと比べて広帯域の光伝送が可能である。この光ファイバに穿孔加工によって、透過光に被検査試料が直接的に作用する構造を作製し、光ファイバ中の貫通孔について、分光計測におけるサンプルセルとしての実用性を検証した [9]。

まず、光ファイバに穿孔加工する際の加工パラメータの選定条件について述べる。選定条件は、①マルチモード光ファイバのコア (62.5 μm) を貫く深さの孔が達成されることと、②加工孔周辺の入口と孔の途中でクラックが比較的少ない

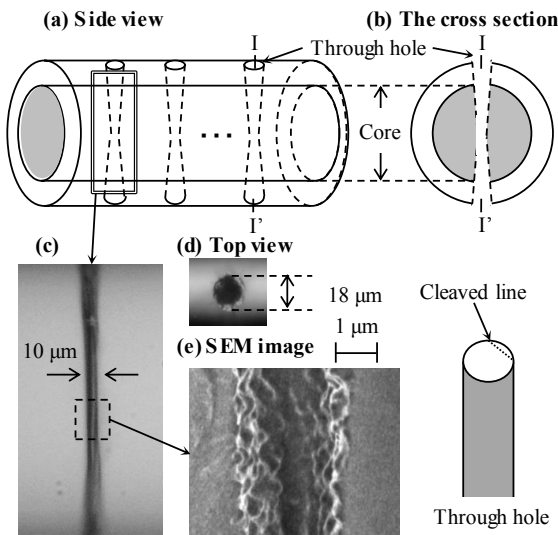


Fig. 5 貫通孔配列の模式図 [(a), (b)] と顕微鏡画像 [(d)-(e)]

ことである。①は、被検査液体と光ファイバコア内の透過光との作用面積 (体積) を確保するために重要である。以上の 2 つの条件から、対物レンズの開口数は 0.40 を採用し、レーザ発振パラメータは、波長 400nm, パルス幅 350fs, 1 つの孔当たりパルス数 600, フルエンスは 600J/cm² とした。光学系の調整と対物レンズによってレーザ光はスポットサイズが 1.82 μm まで絞り込まれ、そのときのレイリー長は 6.50 μm である。

貫通孔の作製では、光ファイバの 2 方向から各孔の頭頂部を突き合わせるように穿孔加工を行うことで、貫通形状を得た。Fig.5 に貫通孔 (セル) の模式図 [(a), (b)] と顕微鏡観察 [(c) - (e)] によって得られた観察結果を示す。(a) と (b) に示すように、光ファイバコアをセルが貫いており、直線状に配列するようにセンサ部の設計をした。(c) と (d) の光学顕微鏡観察によって、貫通構造が形成していることを確認し、セルの大きさがウエスト部分では 10 μm , 入口は 18 μm という計測結果を得た。セルを 2 つの円錐台からなる構造としてセル体積を計算した結果、その体積は 20 ピコリットルと微小な体積であることがわかった。さらにセルの内側を電子顕微鏡に観察すると、100-500nm 程度の凹凸構造が形成されていることを確認した。この構造は空気雰囲気下で、ガラスなどの誘電体に対して、多パルス発振で照射すると、レーザ照射部の周囲に発生する微小な縁 (リム) が幾重にも折り重なって構造化するという実例 [10] があり、この凹凸構造も同様のものと考えられる。

本センサの有用性とセンサ特性について調べるために、センサ部のセル数が 1 と 10 のセンササンプル S_{01} と S_{10} を準備した。サンプル S_{01} と S_{10} の挿入損失は、それぞれ 1.0 と 1.6dB 程度となった。測定実験は、白色光源 (400-1800nm) とスペクトラムアナライザを光ファイバに接続し、複数の被検査

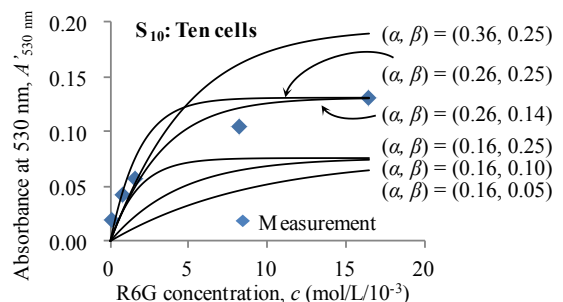
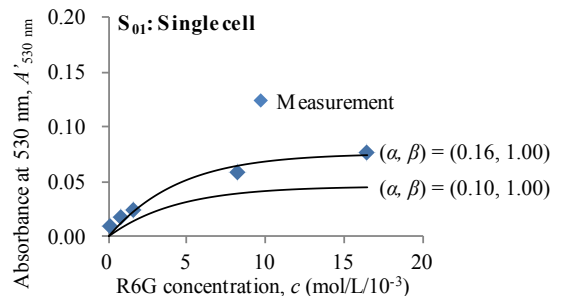


Fig. 6 波長 530nm における吸光度と導出したモデルによる計算結果

液体サンプルにセンサ部を浸すだけの簡便な手法である。まず、屈折率センサとしての有用性を調べるために、3種類の液体〔水(1.33), エタノール(1.36), パラフィンオイル(1.48)〕にセンサ部を浸し、そのスペクトルの観察を行った。実験結果から、屈折率の増加にともなって透過光強度が大きくなることを確認した。光ファイバの屈折率を基準にして考えると、液体に浸していないときのセル内の屈折率が空気の1.00であるのに対して、液体が侵入することで屈折率差が小さくなり、フレネル反射の影響が緩和されたためであると考えられる。さらに、S₁₀の場合の方が、屈折率変化に対する応答が直線的になり、セル数の違いによる感度の違いを確認した。

つぎに、ローダミン6G (R6G) 色素を用いた分光計測の観察結果について述べる。液体サンプルは、R6G エタノール溶液の濃度が0.17-16.5M (M: 10⁻³・mol/L) となるように調合した。実験により得られたR6G溶液の吸収スペクトルから、S₀₁とS₁₀のどちらのセンサにおいても、R6Gの吸収ピーク波長である530nmを中心に、色素による吸収が生じており、R6G濃度に依存して吸光度が増加していることを観測した。S₀₁とS₁₀を比較すると、S₁₀はセル数が10倍になっているにもかかわらず、S₀₁の吸光度の2倍程度であることがわかる。ピーク波長の530nmの吸光度について、より詳しく考察するために、吸光度とR6G濃度の関係をFig.6に示す。測定実験で得られた結果(◆)を見ると、濃度が大きくなるにつれて、吸光度が対数関数的に増加しているようにみえる。一般的には、濃度*c* (mol/L) とセル長*L* (cm) に対する吸光度*A_λ*の変化は、線型的なランベルト・ベールの法則に従い、式(1)で定義される。

$$A_{\lambda} = -\log_{10}(T) = \varepsilon_{\lambda} c L, \quad (1)$$

ここで*T*は透過度、 ε_{λ} (L/cm・mol) はモル吸光係数である。濃度とセル数に対する吸光度*A_λ*の非線形な変化を調べるために、面積とセル長の係数 α と β を式(1)に導入する。係数 α (<1) は、実効的な作用面積であり、光ファイバコアとセルの断面積の比で定義される。 β (≤1) は実効的なセル長の係数で、セル長*L*を貫通セルの直径*L'*とセル数*n*、 β の積に置き換えることで式(2)を得た。

$$A'_{\lambda} = -\log_{10}\left(\frac{I}{I_0}\right) = -\log_{10}\left\{\alpha 10^{-\varepsilon_{\lambda} c (n\beta L')} + (1-\alpha)\right\} \quad (2)$$

計算で用いた、波長530nmにおけるモル吸光係数 $\varepsilon_{\lambda=530nm}$ は、10.5×10⁴ (L/cm・mol)を用いた。この計算モデルをもとにして行った、実験結果とのフィッティングで得られた対数曲線をFig.6に実線で示す。Fig.6 (S₀₁):セル数1では、(α , β)

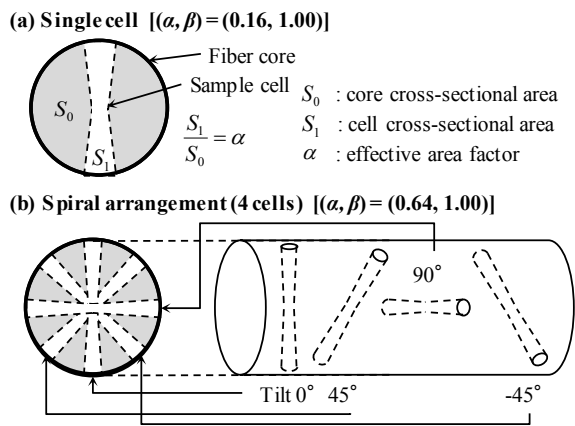


Fig. 7 配列方法による実効断面積の違い

= (0.16, 1.00) を与えた場合に実験結果との良い一致が得られた。実際のセルの面積比 [Fig.7 (a)] はコアの25%に相当し、この面積比 (=0.25) よりも計算モデルから得た α (=0.16) が小さいことがわかる。これは、セルの形状が円筒であり、表面の凹凸構造により透過光が散乱されているためであると考えられる。つぎにFig.6 (b):セル数10では、(α , β) = (0.26, 0.14) を与えた場合に実験結果との良い一致が得られ、このときの α は実際の面積比 (=0.25) よりもわずかに大きい値を示した。この原因として、コアの中心軸と配列されたセルの位置不整合によるものと考えられる。また、 β の値がセル数1のセンサよりも小さい原因は、配列された10個のセルのうち、始めのセルによって透過光のモードが乱れ、後方のセルに入射する光が減少したためと考えられる。計算モデルを用いた解析により、セルの実効的な作用面積は実際の面積比よりも小さいことと、セルを並列に配列することは効果的ではないことが明らかになった。これらはFig.7 (b)で示すようにセルを螺旋的に配置することで吸光度の向上が期待できることを示す結果である。この結果から、光ファイバ中に作製した微小セルによって、分光計測における有用性が示された[11]。

6. おわりに

本研究では、フェムト秒レーザ加工を応用した石英光ファイバの構造的機能化として、新たなセンサ構造を提案し、そのセンサ特性を示した。構造体の作製は、内部加工と穿孔加工でそれぞれ行い、そのセンサ特性の評価を行った。構造体の作製方法、レーザ照射条件を明らかにし、方向検知屈曲センサを作製するために、内部加工によって、シングルモード光ファイバ内部にボイドを配列し、非軸対称な構造体を作製した。2方向の曲げに対するセンサ応答を観測した結果、屈曲方向に依存した光強度の変化を示し、方向検知センサとして機能することを確認した。また、光ファイバ分光センサのために、穿孔加工を応用して光ファイバのコアを貫く孔配列を作製した。R6G色素を用いて吸収スペクトルを観察したところ、R6Gの吸収ピークと一致するスペクトルが得られ、本センサの実現性が確認された。作製した貫通孔の体積が20ピコリットルであり、液体サンプルが微量であっても分光計測が行えていることが示された。本研究は、選定した照射条件を用いて行った加工実験から、光ファイバに構造体を書き込むことを達成し、有用性のあるセンサ機能を示すことができた。フェムト秒レーザ加工による難加工材料へのアプローチは、産業応用での需要が高まっており、本研究で示した石英光ファイバに対する内部及び穿孔加工の照射条件は、その一助となるものである。

参考文献

- [1] W. Watanabe, et al., Opt. Express 10, 978-983(2002)
- [2] C. B. Schaffer, et al., Opt. Lett., 26, 93-95(2001)
- [3] I. B. Sohn, et al., Opt. Express 18, 19755-19756 (2010)
- [4] M. Barberoglou, et al., Appl. Surf. Sci. 255, 54, 25-29 (2009)
- [5] G. Dumitru, et al., Appl. Phys. A 74, 729-739 (2002)
- [6] B.N. Chichkov, et al., Appl. Phys. Lett. 63, 109-115 (1996)
- [7] 特許出願: 特開 2011-180133.
- [8] K. Goya, et al., The Rev. of Laser Eng., 41-9, 718-721(2013)
- [9] 特許出願: 特願 2014-43340 平成 26 年 3 月 5 日.
- [10] A. B. Yakar, et al., Appl. Phys. Lett. 83, 3030-3032(2003)
- [11] K. Goya, et al., Sens. /Act. B, (Accepted for publication, Dec. 2014)