

発展的研究計画スタート支援・報告書

令和4年3月3日
高温プラズマ物理研究系・上原日和

【課題名】

「フェムト秒レーザーを用いた光デバイス開発に基づく萌芽的研究課題の創出」

【本研究の概要】

本研究では、再生増幅フェムト秒レーザーを用いて、各種の材料表面に、新しい構造を持つ微細加工を施す。その発展研究として、

- ①赤外分光イメージングのためのランダムレーザーの開発
- ②特殊光ファイバーを用いたセンサー開発のためのミラー (Fiber Bragg Grating) の加工研究
- ③新しいレーザー発振器開発のための導波路やミラー (Volume Bragg Grating) の加工研究
- ④タングステンと銅との接合強度向上のための、タングステン表面レーザー加工研究

を行う(目的の詳細は申請時の計画書を参照)。本事業で実施する加工検証試験を足掛かりに、次期研究プロジェクトの立ち上げを目指す。研究の成果は、特許の申請と論文発表によって学术界に発信する。

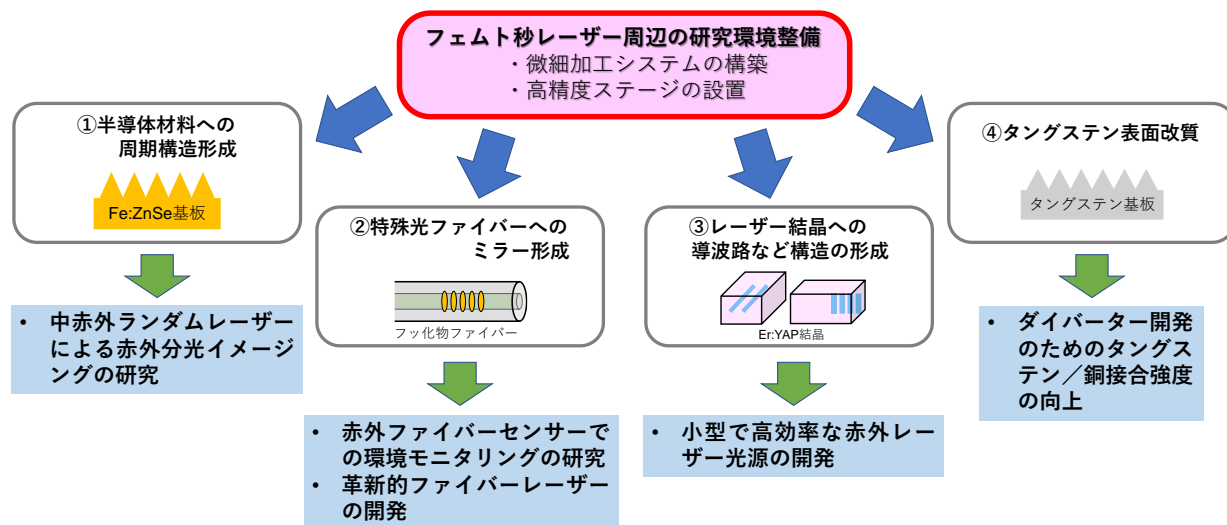


図1 本研究の概要

【本事業による研究環境の整備状況】

発展的研究スタートアップ支援の助成を受け、レーザー加工関連の光学系の整備を行った。本事業に関連して構築を完了、もしくは構築中の光学システムは、以下の4種類である。

- (A) フェムト秒レーザー誘起表面周期構造 (LIPSS) 加工システム
- (B) フェムト秒レーザーを用いたグレーティング加工システム
- (C) ナノ秒 YAG レーザーを用いたタングステン加工システム
- (D) 赤外レーザー加工システム

(A) フェムト秒 LIPSS 加工システムの構築

金属や半導体材料に対して、特定の条件のフェムト秒レーザーを照射することで、材料表面にサブ μm オーダーの周期構造が形成されることが知られており、これをレーザー誘起表面周期構造 (LIPSS; laser-

induced periodic surface structure)という。本研究では、この周期構造を利用したランダムレーザー全視野分光イメージング用ランダムレーザー(研究項目①)、並びにダイバーター材料開発(研究項目④)を目指しており、そのための加工光学系を構築した。図2は、光学系の写真である。再生増幅フェムト秒レーザーから出力された波長 1040 nm のガウシアンビーム($M^2 < 1.1$)を加工対象試料に像転送している。LIPSS 加工では、集光の角度が極めて重要になるが、本システムでは曲率 200~300 mm の球面レンズを対物用に用いることで、直径約 30 μm で極めて平行に近い入射角での照射を実現した。また、試料を二軸自動ステージを使って操作することで、大面積加工が可能である。本システムを利用した加工結果については、後述する。

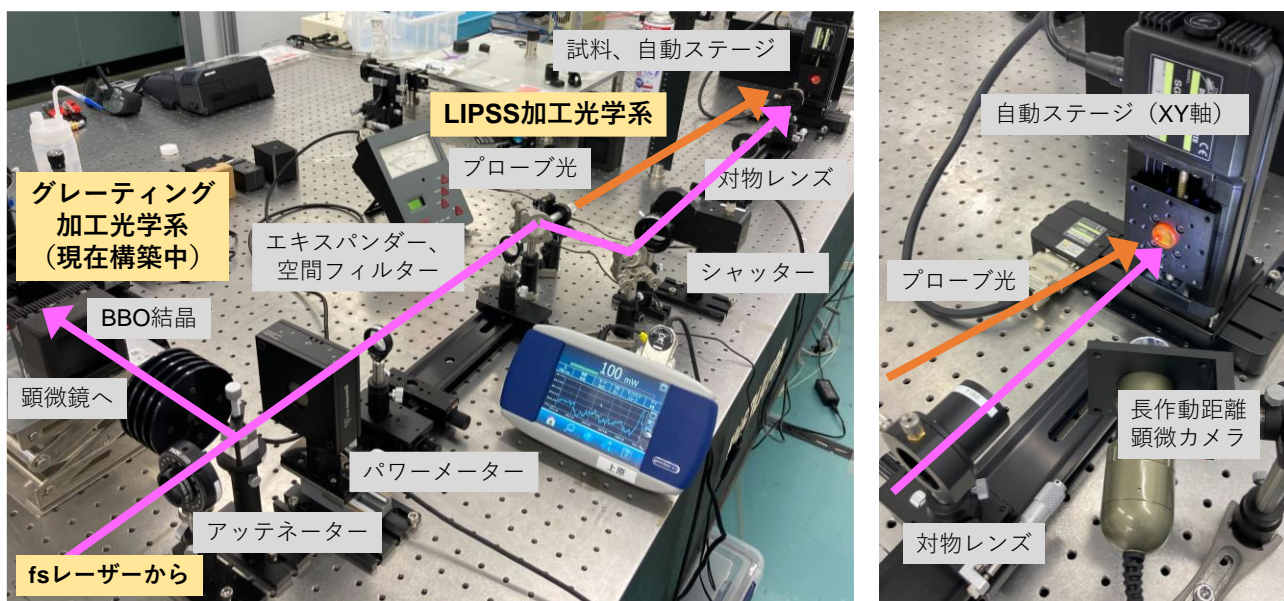


図2 フェムト秒 LIPSS 加工システムの全体写真(@計測実験棟 大実験室)

(B) フェムト秒グレーティング加工システムの構築

ガラスや誘電体など透明材料へのフェムト秒レーザー照射によって、局所的な屈折率変化を誘起できる。著者は、この屈折率変調をナノメートルの精度で周期的に付与することで、ファイバー・ブラッグ・グレーティング(FBG)や光導波路などの機能性光学素子を特殊光ファイバー(研究項目②)やレーザー結晶(研究項目③)の内部に加工することを目指す。現在、グレーティング加工のためのフェムト秒レーザー微細加工光学系を構築中である(図2左)。偏光ビームスプリッターで分岐し、一方の光路を前述の LIPSS 加工に、もう一方をグレーティング加工に用いる。BBO 結晶で発生した第二高調波(波長 520 nm)を光学顕微鏡に導入する。本事業予算で購入した 1 nm 精度の XY 軸自動ステージ(約 250 万円、2 月納品済み)に試料台を設置して、高精度なグレーティング加工を実証する予定である。本光学系は、令和 4 年 6 月頃の完成を予定している。

加工システムが完成次第、フッ化物ファイバーへの FBG 加工、Er:YAP レーザー結晶への導波路加工を試みる。また、当初の予定に含まれていなかった新たなアイデアとして、光ファイバーに貫通穴を形成したコア埋め込み型インラインセンサーをフッ化物ファイバーを用いて初めて実証する。さらに、本光学系を発展させて、将来的には SH 光(ポンプ)とサファイアで発生させたスーパーコンティニウム光(プローブ)を利用したポンプ&プローブ光学系を組み、さまざまな材料物性が顕微鏡下で評価可能なフェムト秒時間分解・過渡吸収分光計測システムを構築する構想である(大型予算の獲得が必要)。

(C) ナノ秒 YAG レーザー加工システムの構築

ダイバーター用タンダステン(タンダ)の表面改質に関する研究(研究項目④)のため、フェムト秒レーザー照射と並行してナノ秒 YAG レーザー加工による検証も行う。そのための微細加工光学系を、本研究費を一部活用し

て構築した(図 3)。Nd:YAG レーザー(鈴木千尋氏管理)の基本波(波長 1064 nm)もしくは第二高調波(532 nm)を用いて、パルスエネルギー数 $10 \mu\text{J} \sim 300 \text{ mJ}$ の範囲での照射が可能であり、加工スポット直径は約 $50 \mu\text{m}$ である。加工の成果については、後述する。

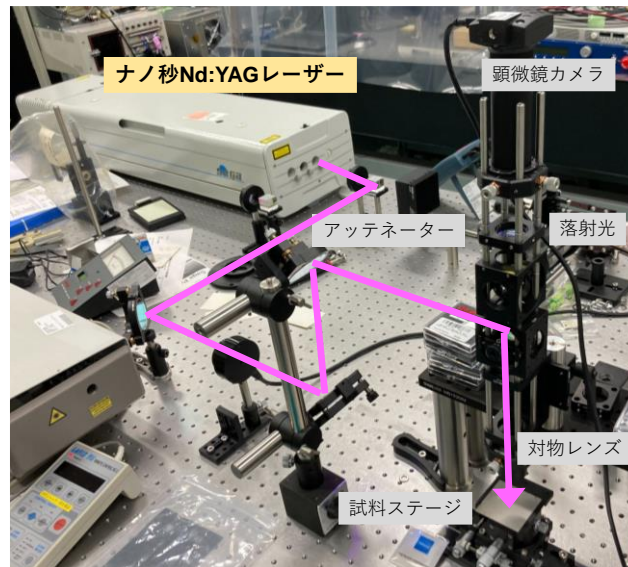


図 3 ナノ秒 YAG レーザー加工システムの全体写真(@計測実験棟 分光実験室)

(D) 赤外レーザー加工システムの構築

著者らが独自開発した波長 2920 nm の LD 励起 Er:YAP レーザーは、高出力・高ビーム品位でありながら、小型・低コストで構築可能である。また、その波長特異性から、材料吸収特性を活かした高スループットなレーザー加工への応用が期待される。Er:YAP レーザー加工の実用性評価のため、樹脂材料や生体材料を対象とした加工光学系を構築した(図 4)。この研究は、NINS 若手分野間連携事業、ならびに ExCELLS 特別共同研究の助成を受けているものであるが、本スタートアップ支援からも光学系構築のために研究費を一部転用しており、報告する。この光学系は、連続波発振動作が可能で小型な Er:YAP 中赤外レーザーを光源としており、フッ化カルシウムやセレン化亜鉛の赤外レンズや金ミラーを使って、2 W の出力で試料に約 $10 \mu\text{m}$ のスポット直径での照射を実現する。樹脂材料によっては、ヒュームが発生するため、吸煙器でこれを除去する。今後は、100 kHz 高速光チョッパーを使った、Er:YAP レーザーの能動 Q スイッチ発振動作を実証し、ナノ秒赤外レーザー加工の検証を行う。

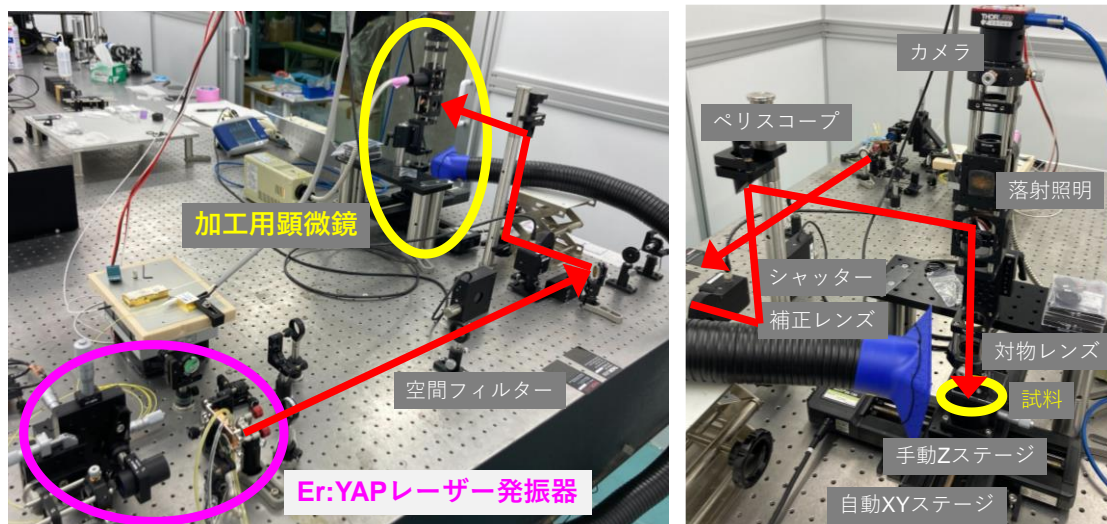


図 4 連続発振 Er:YAP 中赤外レーザー加工システムの全体写真(@計測実験棟 大実験室)

【本事業の今年度研究成果】

①全視野分光イメージングのためのランダムレーザーの開発

赤外波長域は多くの分子の共鳴線が存在する「指紋領域」に当たるため、赤外吸収分光によって、微量分子の存在を直接的に高速・高感度で検出することが可能になる。代表者らは、赤外分光計測技術を 2 次元・3 次元の全視野イメージングへと展開した「赤外分光イメージング」デバイスを開発することによって、微量分子や同位体元素の空間分布やその変化のその場計測の実現を目指している。全視野イメージングの実現には、低い空間コヒーレンスと高い輝度を両立する赤外ランダムレーザーの開発が不可欠である。

本研究項目では、鉄添加セレン化亜鉛などの半導体基板にフェムト秒レーザーを照射することで、LIPSS を形成し、そのランダムな構造内で生じる光のアンダーソン局在によって中赤外波長のランダムレーザーの発振を実証することを目指している。今年度は、そのための基礎的研究として、窒化ガリウム(GaN)とセレン化亜鉛(ZnSe)の比較的ワイドバンドギャップな半導体遷移に基づいたランダムレーザーの発振を目指した。

設備項目(A)を用いて、多結晶 ZnSe 基板上にフェムト秒レーザーを照射した。レーザーパワー、繰り返し率、走査速度などを最適化した結果、図 5 に SEM 像を示した LIPSS 構造の作製に成功した。レーザーの偏光方向とは垂直な方向に顕著な周期構造が形成され、構造周期は約 250 nm であった。ZnSe 半導体のフォトルミネッセンス波長は 500 nm 近傍(非常に綺麗な青色)であることが知られており、ランダムレーザーが発振する場合も、同様の波長帯が予想される。仮に媒質屈折率を 1.0(実際はモード領域における等価屈折率)、基板と水平方向に閉じ込めが生じると仮定した場合、ブラッグ波長は 250 nm となり、LIPSS の構造周期とよい一致を示している。今後、AFM を用いた断面プロファイル計測を進める。また、令和 4 年 3 月中に北海学園大・藤原英樹教授を訪問し、レーザー顕微分光システムを用いたランダムレーザー発振実験を行う予定である。ZnSe の青色ランダムレーザー発振は、これまでにナノ粉末を用いたランダム系でしか報告例がなく、LIPSS 基板で発振が観測された際のインパクトは大きい。

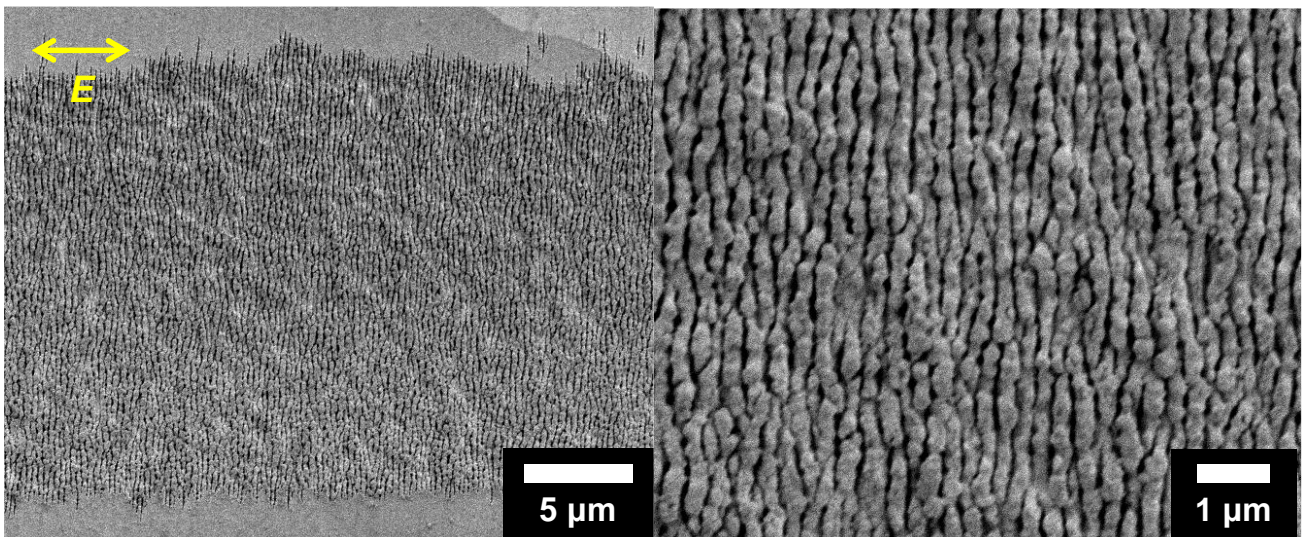


図 5 ZnSe セラミックス基板上に形成したフェムト秒 LIPSS の SEM 像

半導体基板表面へのランダム構造の作製手法として、フェムト秒 LIPSS 形成のほかに、プラズマ照射による表面加工も並行して行った。名古屋大・大野哲靖教授が保有するダイバータ模擬実験装置を用いて、高周波バイアスを印加した p 型-GaN テンプレートに Ar プラズマを 80 分間照射した。GaN、Si、GaAs に対して同様のプラズマ照射を行った結果を図 6 の SEM 像に示す。可視光の波長オーダーの粒径を有する、短距離

秩序に乏しいランダム構造を大面積に形成することに成功した。(a)に示した GaN 試料に対して、レーザー顕微分光システムを用いたランダムレーザー発振実験を行った。波長 355 nm、パルス幅 0.3 ns、繰り返し周波数 1 kHz の単一横モードレーザーを用いて、顕微鏡下での励起を行った結果、図 7(a)の発光スペクトルが得られた。波長 360~380 nm に亘って、GaN 特有の青色フォトルミネッセンスが観測された。励起パワーが増加すると、波長 365 nm において狭線幅な発光ピークが現れた。このピーク波長における発光強度を励起パワーに対して両対数でプロットしたものが図 7(b)である。励起パワー270 μ W までは発光が線形に増加したが、それ以降でスロープが顕著に増加した。この入出力特性から、明確なしきい値 240 μ W を有することがわかり、ランダムレーザーが発振した。なお、同一の GaN 基板上で構造の異なる領域において、発振のしきい値の明確な変化が確認されている。そのため、令和 4 年 3 月中に藤原氏を訪問し、レーザー顕微分光システムを用いたランダムレーザー発振実験を行う。構造とランダムレーザー特性との相関について詳細に調査し、早期の論文発表を計画している。

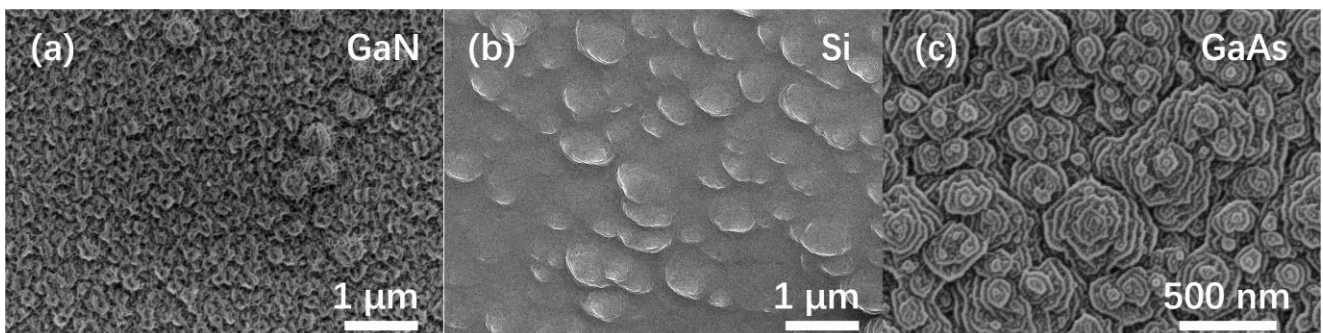


図 6 高周波バイアス印加 Ar プラズマ照射により表面改質した半導体基板の SEM 像

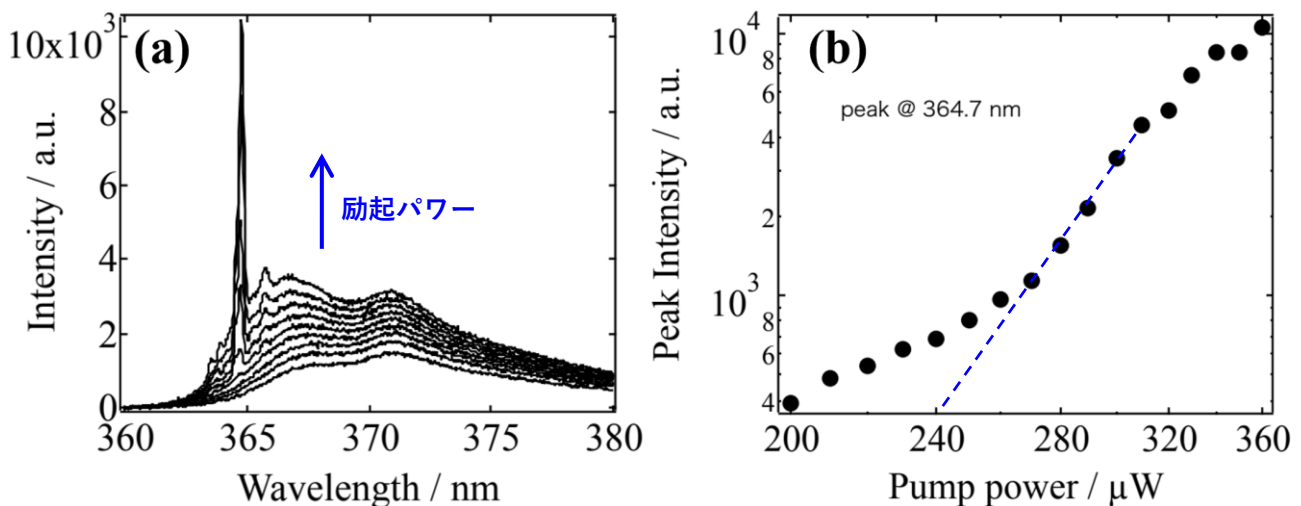


図 7 (a)GaN ランダムレーザーの発振スペクトル、(b)発振ピーク強度の励起パワー依存性

②特殊光ファイバーへのグレーティング加工、③レーザー結晶への導波路加工

一般的に普及している石英ガラスから成る光ファイバーは、波長が 2.4 μ m よりも長い中赤外領域における材料吸収が大きく、赤外吸収分光や中赤外ファイバーレーザー用途に用いることができない。一方、フッ化物ガラス光ファイバーは、中赤外領域で最も光学品質に優れたファイバーであり、近年、赤外光伝送用途やファイバーレーザー媒質として需要が高まりつつある。本研究項目では、フェムト秒レーザーを用いたフッ化物ガラス光ファイバーへのファイバー・ブラッグ・グレーティング (FBG) 描画技術を開発する。FBG とは、光ファイバーのコア層に周期的な屈折率変調を付与したもので、特定の波長のみを高効率で反射させることができる。

これにより、核融合施設や周辺の環境モニタリングを可能にするセンサーデバイスや、計測用レーザー光源を実現することを目標としている。

また著者らは、核融合科学に関連した同位体計測や環境計測に適用可能な高出力・中赤外固体レーザーの開発をおこなっている。これまでに世界最高効率や最高出力を有する $3\ \mu\text{m}$ や $4\ \mu\text{m}$ 波長帯のレーザーを実証してきた。本課題では、フェムト秒レーザーを用いて、固体レーザー媒質にマイクロメートルサイズの導波路や体積・ブラッグ・グレーティング (VBG) とよばれるミラー加工を施す。これにより、従来になく小型、高出力で、ビーム特性に優れた中赤外レーザーを実現することを目標としている。

設備項目(B)に記載の通り、現在、加工システムの構築中である。ナノメートル精度の2軸ステージはすでに納入済みであり、顕微システムに必要な部品の調達、組立てを行い、令和4年6月頃の完成を予定している。加工システムが完成次第、フッ化物ファイバーへのFBG加工、Er:YAPレーザー結晶への導波路加工を試みる。

また、当初の予定に含まれていなかった新たなアイデアとして、光ファイバーに貫通穴を形成したコア埋め込み型インラインセンサーをフッ化物ファイバーを用いて初めて実証する。図8に概略を示したように、フェムト秒レーザー微細加工でフッ化物ファイバーのコア中心を横切る直径 $10\ \mu\text{m}$ 前後の貫通穴を形成する。この穴に導入したガス・液体試料は、ファイバー伝搬モードと強く相互作用することが予想される。著者がこれまでに実証したフッ化物赤外光ファイバーセンサーは、非伝搬光である近接場光(エバネッセント波)を利用していたため、感度が低かった。本提案で埋め込み式のフッ化物ファイバーセンサーが実現すれば、極めて高感度で独創性の高いセンサーデバイスが実現する。

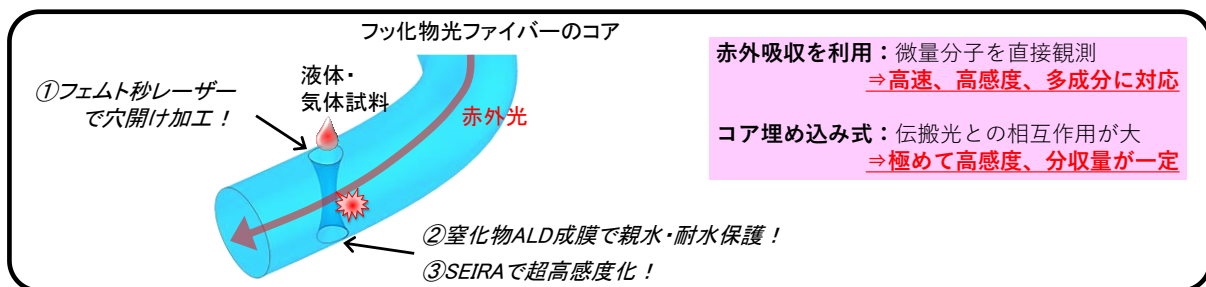


図8 フェムト秒レーザー微細加工を適用した埋め込み式光ファイバーセンサー開発の概要

④タングステンのレーザー表面改質

耐熱性の高いタングステンと除熱性に優れた銅との接合技術は、核融合炉におけるダイバーター開発において極めて重要な研究課題である。本研究項目では、レーザー微細加工によってタングステン表面改質を施し、アンカー効果の増大による接合強度の向上や残留応力の緩和効果の発現を目指す。

整備項目(A)のフェムト秒 LIPSS 加工システムと、整備項目(C)のナノ秒レーザー加工システムを用いた2種類のアプローチで、核融合用タングステン基板への表面構造の形成を行った。フェムト秒レーザー加工では、図9(a)に示した LIPSS 構造の形成に成功し、フルエンスによる構造周期の変化も確認した。一方、ナノ秒レーザー加工では、図9(b)のようなクレーター状の加工痕が形成された。加工痕内部は熔融を経た表面形状となっており、穴の周囲は蒸発したタングステンが堆積して再凝固するため、突起が形成された。金属の電子-フォノン結合の時定数は一般的に数 ps 程度であり、フェムト秒レーザーは非熱的、ナノ秒レーザーは熱的損失の大きな加工となる。今後、2つのアプローチでの加工検証を継続し、タングステン材料のレーザー加工特性の詳細な評価、また表面ナノ構造の大面积化を試みる。

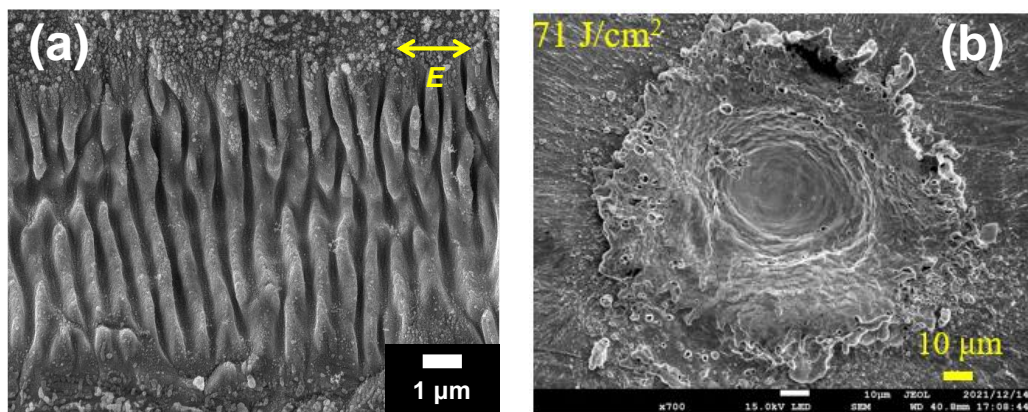


図 9 (a)フェムト秒レーザー加工、(b)ナノ秒レーザー加工を施したタングステン

【本事業に関連した今年度業績】

論文

- Weichao Yao, Enhao Li, Hiyori Uehara, and Ryo Yasuhara, “Efficient diode-pumped Er:YAP master-oscillator power-amplifier system for laser power improvement at 2920 nm,” *Optics Express* 29(16), 24606-24613 (2021). 加工用赤外レーザーの高出力化
- Kenji Goya, Yuya Koyama, Yoshiaki Nishijima, Shigeki Tokita, Ryo Yasuhara, and Hiyori Uehara, “A fluoride fiber optics in-line sensor for mid-IR spectroscopy based on a side-polished structure,” *Sensors and Actuators: B. Chemical* 351, 130904 (2022). フッ化物赤外光ファイバーセンサーの実証
- Enhao Li, Hiyori Uehara, Weichao Yao, Shigeki Tokita, Fedor Potemkin, and Ryo Yasuhara, “High-efficiency, continuous-wave Fe:ZnSe mid-IR laser end pumped by an Er:YAP laser,” *Optics Express* 29(26), 44118-44128 (2021). 加工用赤外レーザーの開発

学会発表

- 合谷賢治、小山勇也、西島喜明、時田茂樹、安原亮、上原日和、「側面研磨フッ化物ファイバーによる中赤外センサーデバイスの開発」、第 82 回応用物理学会秋季学術講演会
- 合谷賢治、上原日和、西島喜明、時田茂樹、「フッ化物ファイバを導波路とした中赤外光ファイバセンシングシステム」、光ファイバ応用技術研究会 (OFT)
- Enhao Li, Hiyori Uehara, Weichao Yao, and Ryo Yasuhara, “A watt-level mid-IR Fe:ZnSe laser pumped by a 3 μm Er:YAP laser”、第 6 回フォトニクスワークショップ
- Enhao Li, Hiyori Uehara, and Ryo Yasuhara, “A high optical efficiency, CW mid IR Fe:ZnSe laser pumped by an Er:YAP laser”、2021 年度レーザー学会中部支部若手研究発表会
- 上原日和、ヤオ・ウェイチャオ、安原亮、「3 μm 帯固体レーザーの高出力化のための増幅特性ならびに二波長励起法の検証」、2021 年度レーザー学会中部支部若手研究発表会
- Enhao Li, Hiyori Uehara, and Ryo Yasuhara, “Highly-efficient CW 4 μm Fe:ZnSe laser pumped by an Er:YAP laser”、レーザー学会学術講演会第 42 回年次大会
- 合谷賢治、西島喜明、時田茂樹、安原亮、上原日和、「フッ化物ファイバーを導波路とした中赤外光ファイバセンシングシステムによる赤外分光計測」、レーザー学会学術講演会第 42 回年次大会
- Quan Shi, Shin Kajita, Ryo Yasuhara, Noriyasu Ohno, and Hiyori Uehara, “Surface modification of

GaN/GaAs/Si by Ar plasma irradiation with radio frequency biasing for optical applications”、第 69 回応用物理学会春季学術講演会

- Enhao Li, Hiyori Uehara, and Ryo Yasuhara, “Study of the CW laser amplification properties of the Fe:ZnSe crystal at mid-IR band”、第 69 回応用物理学会春季学術講演会
- Haotian Yang, Hiyori Uehara, Chihiro Suzuki, and Ryo Yasuhara, “Processing properties of tungsten and tungsten alloys using nanosecond Nd:YAG laser”、第 69 回応用物理学会春季学術講演会
- 上原日和、ヤオ・ウェイチャオ、安原亮、「3 μm 帯固体レーザーの高出力化のための増幅特性の評価」、第 69 回応用物理学会春季学術講演会
- 上原日和、松尾保孝、合谷賢治、西島喜明、安原亮、村上政直、小西大介、「フッ化物光ファイバーデバイスの需要拡大のための耐候性・親水性ナノ薄膜の形成」、第 69 回応用物理学会春季学術講演会
- 上原日和、「呼気診断や環境モニタリングに応用可能な光ファイバーガスセンサー」、JST 新技術説明会

総説・解説

- 上原日和、合谷賢治、「環境モニタリングや医療など幅広い応用が期待される赤外光源・ファイバセンサ」、光アライアンス 2021 年 9 月号

特許出願

- 合谷賢治、上原日和、「光ファイバーおよびファイバーセンサ」、特願 2021-069885
- 上原日和、安原亮、合谷賢治、松尾保孝、村上政直、小西大介、「光ファイバーおよび光ファイバーの製造方法」、特願 2022-019461

【本事業に基づいた所外研究者との共同研究】

①ランダムレーザーの開発

- ・北海学園大学 藤原英樹教授(ランダムレーザー分光計測)
- ・名古屋大学 大野哲靖教授、東京大学 梶田信教授(プラズマ誘起表面改質)
- ・横浜国立大学 西島喜明准教授(ランダム構造のプラズモン応用)

②ファイバグレーティング加工、③レーザー結晶への導波路加工

- ・秋田県立大学 合谷賢治助教(フェムト秒グレーティング加工への助言)
- ・北海道大学 松尾保孝教授(ファイバー表面改質実験)

④タングステン表面改質

- ・名古屋工業大学 宮川鈴衣奈助教(フェムト秒 LIPSS 形成、助言)

⑤赤外レーザー加工

- ・生理学研究所／生命創成探究センター 根本知己教授(生体加工)
- ・順天堂大学 大友康平准教授(生体加工)
- ・北見工業大学 吉田裕教授(金属加工)