

## ③外部場操作技術

産業技術総合研究所 光技術研究部門 光波制御デバイスグループ

北村直之, 福味幸平, 西井準治

## Structure Control Technique using High Pressure

Naoyuki Kitamura

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)  
Photonics Research Institute

## 1. はじめに

微小光学素子や光回路の形成には、屈折率の異なる部分を点状、線状、格子状などの形状に組織させる微細加工技術が重要である。積層やエッチングを繰り返して組織形成させる薄膜形成・リソグラフィ等の技術によって、増幅・スイッチなどの多機能導波路デバイスを始めとする光デバイスの製造が進んできた。その一方、より簡素な製造プロセスとして、均質ガラス材料に微細な改質を行う手法も現在盛んに行われるようになってきた。例えば、フェムト秒レーザーを用いてガラス中に多光子吸収を生じさせることにより局所構造や電子状態を変化させて吸収、発光や屈折の機能を持たせたり、非線形光学効果などの機能をもつ微細な結晶粒をガラス母材中に析出させたりする技術である。さらに、圧力・電場などの外部場で構造や物性を変化させる方法がある。圧力ではガラス構造が高密度化することが知られている。ガラスの

高密度化現象についてはNo.77[1]に概説したのでここでは割愛する。シリカガラスの場合、圧力印加による構造再編は加熱することにより安定化する。ガラス転移点で高密度化されれば、600~800℃程度までは密度緩和が生じない[2,3]。高密度化シリカガラスにレーザー光を集光照射し活性化エネルギー以上の加熱を行えば、局所的な構造緩和が起こり、ガラス表面に隆起構造が形成されたり内部に屈折率変化が形成されたりする。屈折率変化や表面形状を微細領域において自在に調整することが可能になれば、今までにない柔軟性に富んだ微細光学素子や光回路の形成技術として大変興味深い。本報告では、このような、高密度化シリカガラスの熱線レーザー照射を利用した改質・改質領域の微細化、さらに、微小光素子形成技術への展開について概説する。

## 2. 微細領域の構造緩和のための赤外線レーザー

赤外線レーザーは切断・溶接などの加工に利用される汎用レーザー装置である。CO<sub>2</sub>レーザー、Nd:YAGレーザーなど、赤外線レ

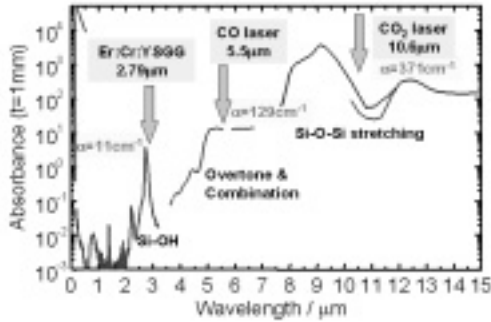


図1 シリカガラスの赤外領域における吸収スペクトル

表1 赤外線レーザーの種類と照射系の集光条件

| レーザー            | 集光レンズ焦点距離(mm) | ビーム径(μm) |
|-----------------|---------------|----------|
| CO <sub>2</sub> | 100           | 80       |
| CO              | 25.4          | 40       |
| Er:Cr:YSGG      | 40            | 6        |

レーザーの種類はかなり増えてきているが、ガラスの振動励起ができる帯域のレーザーはそれほど多くない。波長10 μm 近傍のCO<sub>2</sub> レーザー光はSi-O などガラス構造単位の振動モードを励起できるため、赤外透過性の非酸化物を除くガラス全般に利用できる。一方、波長約1 μm のNd: YAG レーザー光は多くのガラスでは吸収されず、遷移金属や希土類など、近赤外領域に電子遷移による吸収帯が存在するガラスに限られる。図1にシリカガラスの赤外領域における吸収スペクトルを示す。5 μm 以上では振動励起による吸収帯が存在するが、それより短波長では吸収はほとんどない。OH 基を含有するシリカガラスでは、2.74 μm 近傍にOH 基の振動による吸収帯が存在する。透過特性に優れたシリカガラスの加熱には、吸収係数の大きな波長領域の光が得られるCO<sub>2</sub> (波長10.6 μm)、CO (5.5 μm)、Er:Cr:YSGG (2.79 μm) レーザーが適している。本研究では、この3種のレーザーを用いて高密度化シリカガラスの表面および内部の改質を行った。レーザーの照射は基本的には図2に示される単レンズを用いた集光照射系を用いた。各々のレーザーの集光条件は表1のようになる。

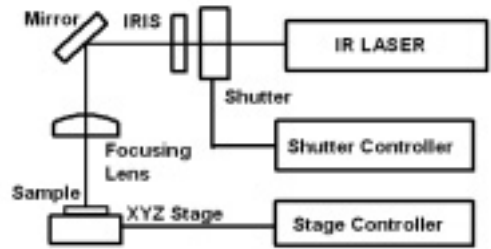


図2 赤外線レーザー照射系のブロック図 (レーザー光源として、CO<sub>2</sub> レーザー、CO レーザーおよびEr:Cr:YSGG レーザーを用いた)

### 3. 赤外線レーザーによる高密度化シリカガラスの微細領域の改質

#### 3-1 CO<sub>2</sub> レーザーおよびCO レーザーによる微細加工

CO<sub>2</sub> レーザー、CO レーザー各々の波長でのシリカガラスの吸収係数は371 cm<sup>-1</sup>、129 cm<sup>-1</sup>であるので、おおよそ表面からそれぞれ50 μm、100 μm 程度の深さでレーザー光のエネルギーはその大部分を吸収されることになる。ガラス表面ほど吸収エネルギーが大きいので、表面の過昇温を抑える必要があり、照射エネルギーを上げれば深くまで改質できるというわけには行かない。適度な吸収係数を持つレーザー光の選択と集光条件が改質領域のサイズや表面隆起の大きさを左右する。結論から言えば、CO<sub>2</sub> レーザーでは吸収係数が大きく、照射時のガラス表面の温度上昇が著しいので、回折限界に近い数十 μm まで集光すると表面の蒸発が支配的となり、構造緩和を効果的に行うことが難しくなる。CW 発振のCO<sub>2</sub> レーザーでは、直径80 μm 程度までの集光条件が最適であることがわかった。これに対して、CO レーザーは吸収係数がCO<sub>2</sub> レーザーに比べて1/3であるので、レーザーのエネルギー密度を上げて過昇温による蒸発は生じにくい。ビーム径40 μm でも良好な加熱を行うことができた。ガラス表面から内部に渡って構造緩和が生じると、ガラス表面に隆起構造が形成される。ガラス内部の改質領域の断面形状は二次関数型となるが、隆

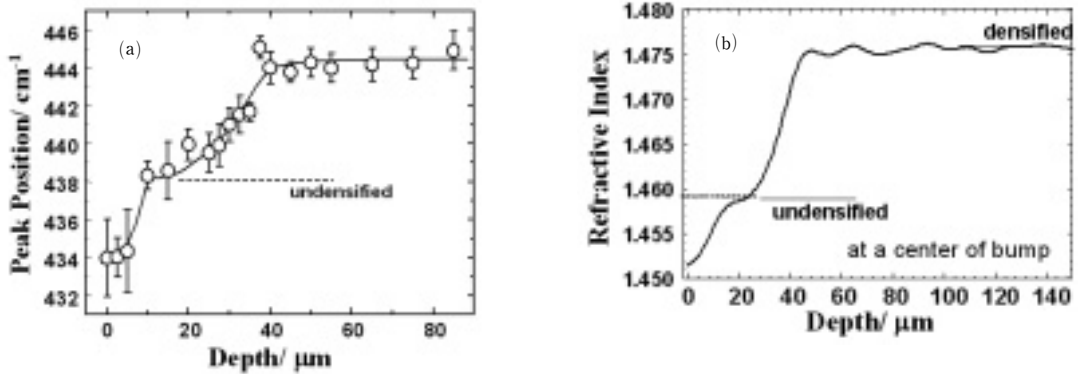


図3 COレーザー集光照射後に形成された隆起構造の中心から深さ方向に至る、  
(a) ラマン散乱スペクトルの  $440\text{ cm}^{-1}$  バンドのピーク位置の分布、(b) 屈折率の分布

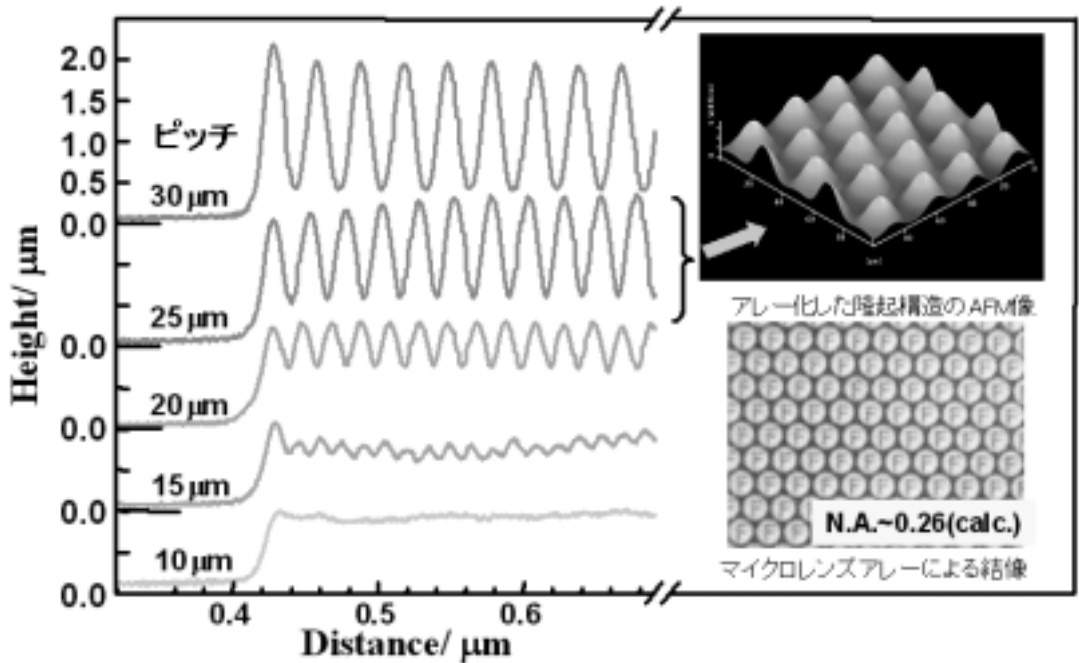


図4 種々のピッチでCOレーザー照射(ビーム径約  $40\text{ }\mu\text{m}$ )された3.5%高密度化シリカガラスの表面隆起構造。  
挿入図は  $25\text{ }\mu\text{m}$  ピッチで形成された隆起構造のAFM像とそれによる結像の様子

起の断面形状はガウス関数型となる[1]。隆起高さは先ずガラスの初期密度に依存する。1万気圧の熱間等方加圧装置を用いればシリカガラスは約4%の密度上昇が生じる。このガラスの場合、CO<sub>2</sub>レーザー照射(ビーム径約  $200\text{ }\mu\text{m}$ )では表面から約  $50\text{ }\mu\text{m}$  の深さ領域が構造緩和に供し、隆起高さは約  $2\text{ }\mu\text{m}$  となった。これに対して、COレーザー照射(ビーム径約  $40\text{ }\mu\text{m}$

m)では表面から約  $50\text{ }\mu\text{m}$  の領域が緩和して、 $3\sim 4\text{ }\mu\text{m}$  の隆起が形成された。これの数値を見てもわかるように、基板法線方向への単純な体積膨張ではこの現象は理解できない。より高温になる照射領域中心部分への流動が隆起の増大を引き起こしていると解釈される。更に、図3(a)のラマン散乱スペクトルにおける  $440\text{ cm}^{-1}$  バンドのピーク位置の深さ方向の分布、図3

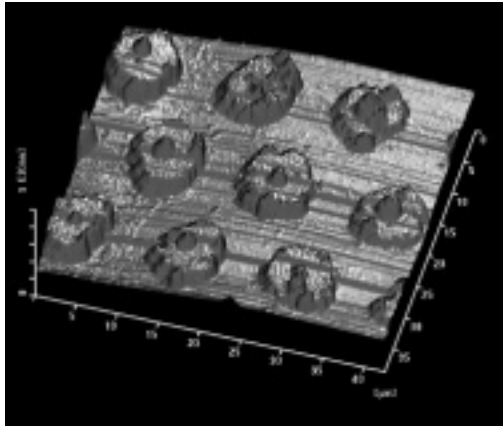


図5 穴径約 $8\mu\text{m}$ の金蒸着膜マスク上からCOレーザー照射することによって形成された微細隆起構造（金マスク除去後）のAFM像

(b)の屈折率の深さ方向の分布に見られるように、基板表面近傍で異常な構造緩和（屈折率変化）が観察された[4]。この現象も大きな隆起形成の原因の一つと考えられる。表面での屈折率減少は基板の屈折率の1.5%以上に及ぶ。この異常な屈折率低下についてはArndtらの報告[5]にも類似の指摘があり学術的に興味深い。COレーザーで形成される隆起構造は図4に示すように、凸型マイクロレンズ（NAは

0.26程度と計算される）として機能した。隆起のテール部分はレンズとして機能していないことから、レーザー照射のエリアを接近させて実質的に充填率を向上させることができる。マイクロレンズとしては $20\mu\text{m}$ ピッチ（周期構造としては $15\mu\text{m}$ ）までアレー化することができた[4,6]。レーザービーム集光照射ではビームプロファイルや熱拡散による加熱領域の縮小化に限界があることから、金属マスクによる改質領域の微細化を試みた。金属マスクは直径 $8\mu\text{m}$ （ピッチ $14\mu\text{m}$ の細密充填配置）のパターンをフォトリソグラフィーで作製した。レーザー照射後に金属マスクを除去した後の表面形状のAFM像を図5に示す。改質領域の深さは約 $2\mu\text{m}$ と浅くなったが、直径 $8\mu\text{m}$ の隆起構造が形成されることがわかった。

レーザーによる直接的なレンズ製造は、微小光学素子の製造プロセスとして興味深い。たとえば、図6は面発光レーザー（VCSEL）上へのマイクロレンズ作製の方法を示している。面発光レーザー（VCSEL）上に高密度化シリカガラスを設置し、そこへレーザー光のアライメント・照射させることにより、発光部分の直上

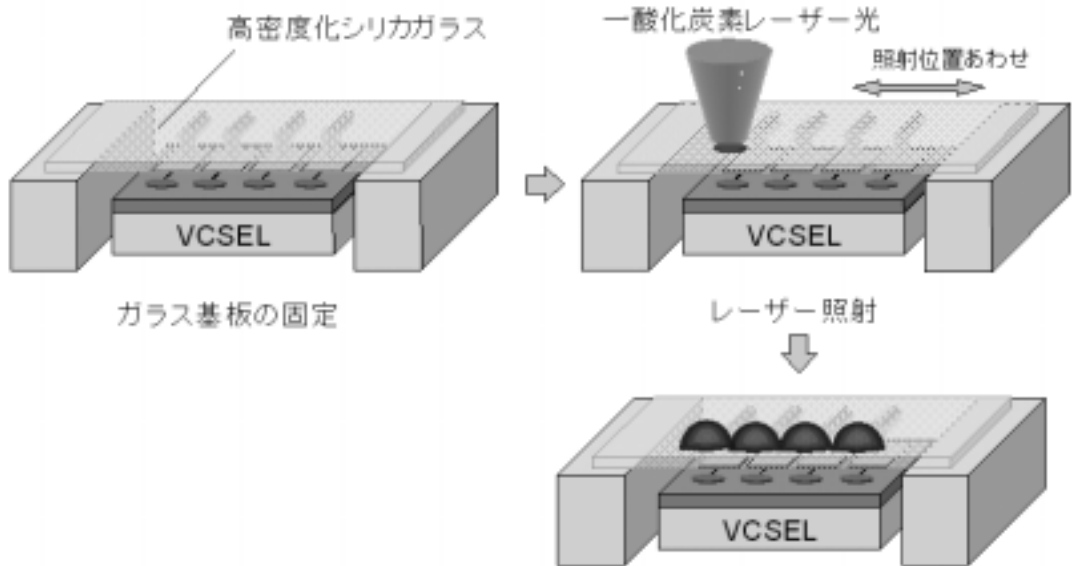


図6 VCSEL上にレーザー照射を利用してマイクロレンズを直接作製する手法の例

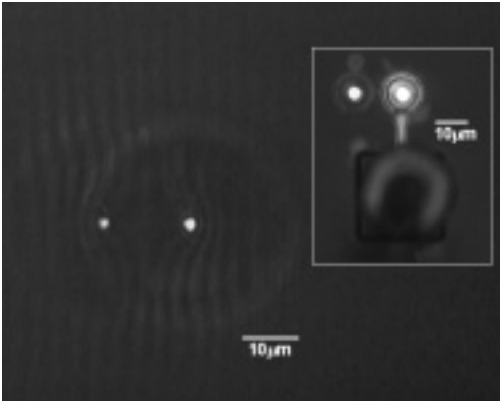


図7 VCSEL上にレーザー照射によって直接製造されたマイクロレンズによる結像の様子。挿入図はVCSELの発行点の様子

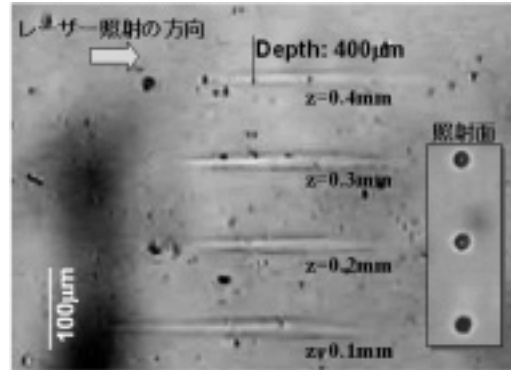


図9 Er:Cr:YSGGレーザー照射によって高密度化シリカガラス(直接法合成シリカガラス, 3.5%高密度化)中に形成された屈折率変化領域(照射痕)の側面からの様子。挿入図は照射方向からの様子。zはビームウエスト位置の基板表面からの深さを表す

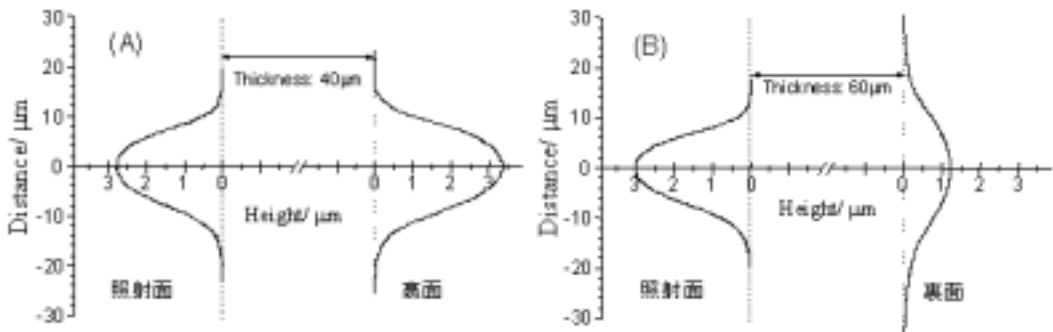


図8 薄板基板の1方向からCOレーザー照射を照射して形成された基板両面の隆起構造。(A)基板厚さ40 μm:照射条件0.6 W-20 ms (B)基板厚さ60 μm:照射条件0.6 W-20 ms

にレンズが作製できる。レーザー光はガラス基板の裏面にまで到達しないことから、VCSEL素子への影響はない。図7はVCSEL発光点とCOレーザーで作製したNA約0.26のレンズによるその結像(レンズ表面から300 μm)の様子である。マイクロレンズの性能については、ビームプロファイルの調整による改善の必要性は残されているが、所望の特性を持ったマイクロレンズを適宜作製できる利点がある。さらに、COレーザーでは100 μm程度まで光が届くことを利用して両凸マイクロレンズを作製することができる。図8は100 μmより薄いガラス基板にCOレーザー光を照射した後の、照射面および裏面の形状を示している。厚さ40 μmの基板では、レーザー光が基盤裏面まで到達

することで、さらに、深さ方向の熱拡散がなくなることで、ほぼ同様の熱分布が裏面でも発生し、照射面と同等の隆起構造が形成されることがわかった。基板両面へのレンズ加工は切削加工などでは難しいが、一方向からのレーザー照射のみで両凸レンズの形成が可能になったことは大変興味深い。

### 3-2 Er:Cr:YSGGレーザーによる内部および表面の微細加工

Er:Cr:YSGGレーザーの波長(2.79 μm)でのシリカガラスの吸収係数は $10 \text{ cm}^{-1}$ 程度である。ガラスの高密度化とともにガラス中のOH基の水素結合が強くなり、振動モードのピークは2.74 μmから長波長シフトする。4%

の密度上昇で3割程度の吸収係数の増加が見られる。吸収係数がCOレーザー波長の場合の10分の1程度に小さいことから、表面から内部深部での構造緩和が誘起される。ガラス内部に形成された改質の様子の一例を図9に示す[7]。レーザー光の透過部分に長細い屈折率変化(照射痕と呼ぶ)が形成されている。ビームの集光位置をガラス表面近傍にした場合でも、ガラス表面には照射痕が形成されず、数100 $\mu\text{m}$ 内部にしか形成されないことから、熱レンズ効果によるエネルギー集中が照射痕の形成に関与していると考えられる。つまり、ガラス表面ではレーザーのエネルギー密度が足りず、構造緩和による隆起構造が形成される温度上昇が生じないことを意味する。表面隆起を形成させるために、①基板加熱により熱アシストを行い、小さなレーザーエネルギー吸収でも緩和温度まで上昇させる方法、②レーザーをより高NAのレンズで集光しエネルギー密度を上げる方法、③ガラスの吸収係数を上昇させる方法を取った。基板加熱では照射痕がガラス基板表面まで到達し、直径約10 $\mu\text{m}$ の隆起構造が形成された。焦点距離25.4mmのレンズで集光照射を行った場合は、ガラス表面に直径10 $\mu\text{m}$ 以下で高さ10nm程度の隆起構造を形成することができた。さらに、超高压装置により10%の高密度化を施したシリカガラスでは、4%高密度化ガラスの10分の1程度にあたる3~4mJの照射エネルギーで、表面近傍の構造緩和(微小隆起構造の形成)が可能となり、その領域の直径も波長程度となった。

#### 4. おわりに

赤外線レーザーを用いた熱的改質ではシステム自身が簡便かつ安価であることが魅力であるが、その一方で改質領域のサイズに限界がある。一つはレーザー光の回折限界であり、もう一つは熱拡散がその限界を支配している。波長程度サイズの金属マスクを施したガラス基板に対して行った照射実験を紹介したが、レーザー

出力が十分であれば、レーザー光が金属マスクの間隙を通してガラス表面に浸透し、加熱が可能であることを意味している。また、金属マスクは基板表面からの熱拡散を促進し、レーザー照射領域以外の改質を抑制していることにもなる。改質サイズの下限は不明であるが、ガラス自身の構造変化に要する活性化エネルギーの調整、改質領域以外の熱の散逸方法など技術的な面から更なる微細化が狙えることを期待している。

#### 謝辞

本研究は〈ナノテクノロジープログラム〉ナノマテリアル・プロセス技術ナノガラス技術プロジェクトの一環としてNEDOから委託を受けて実施されました。研究を推進するに当たり協力いただいた大阪電気通信大学工学部大野宣人教授、関西大学工学部幸塚広光教授ならびに両大学の学生諸氏には研究においてご協力を頂きました。ここに感謝の意を表します。

#### 参考文献

- [1] 北村直之, NEW GLASS, Vol. 20, No. 2(2005) 49.
- [2] N. Kitamura, H. Yamashita, "HOT ISOSTATIC PRESSING '93", Eds. L. Delaey and H. Tas, Elsevier, Amsterdam, 1994, pp. 471.
- [3] 北村, 福味, 西井, 「機能性ナノガラスの最新技術とその応用」, 第7章, CMC出版, pp. 82.
- [4] N. Kitamura, K. Fukumi, J. Nishii, Jpn. J. Appl. Phys. 45 (2006) 1725.
- [5] J. Arndt, J. Non-Cryst. Solids, 131-133 (1991) 1206.
- [6] N. Kitamura, K. Fukumi, J. Nishii, Proc. IQEC/CLEO-PR 2005, p. 1625.
- [7] N. Kitamura, K. Fukumi, J. Nishii, S. Yasuda, H. Horiguchi, H. Kozuka, Proc. 6th Conference on Ceramics and Glass Technology, in press.