

# 超短パルスレーザーによるガラス内部の構造変化形成における

## 入射パルスのパラメータの影響

Dependencies of modification inside bulk glasses induced by ultrafast laser pulses on incident laser pulse parameters

山中 雄介 (M1), 廣澤 賢一 (助教), 佐藤 琢也(B4)

Yusuke Yamanaka, Kenichi Hirose, Takuya Sato

### Abstract

We report dependence of modification in a Pr:ZBLAN on fabrication laser pulse parameters. With high repetition rate laser pulses, heat accumulation effect is observed and the modified region is expanded. These measurements will help in selection of fabrication laser parameters to realize a directly written Pr:ZBLAN waveguide laser pumped by diode lasers

波路を直接描画することで、可視域で発振する導波路レーザーを作製することが可能である。我々は Pr<sup>3+</sup>ドープ ZBLAN ガラス(以下 Pr:ZBLAN)において、加工に用いるレーザービームのパラメータ(特に繰り返し周波数、パルス幅、ショット数)に対する構造変化依存性を確認した。入射パルスのパラメータの影響を調査することにより、最も適した加工用レーザーを選択する際の助けになることが期待される。

### 1. はじめに

近年、フェムト秒レーザーによるバルク材料内部への導波路直接描画技術が注目を集めている[1]。本手法による光導波路作成は、従来のリソグラフィ技術によるものと比較して材料内部に作製可能、構造自由度が高く 3D 化も可能、特殊な実験環境を必要としないなどのメリットがあり、将来的には導波路型レーザーやフォトニック回路などの新規デバイス作製への応用が期待される。フェムト秒レーザーパルスによる材料内部の局所的な構造変化は照射するレーザーパルスのパラメータと材料に大きく依存することが知られている。その影響の詳細を調査することは、本技術を用いたより高性能なデバイスを実現するためには必要不可欠であり、これまで様々な研究が進められている[2]。

Pr:ZBLAN は近年高出力化が進んでいる InGaN-LD ( $\lambda=442$  nm)で励起され、可視域に多くの遷移スペクトルをもつ。したがって、Pr:ZBLAN 内部に導

### 2. 実験セットアップ

加工用のレーザーには中心波長 1030 nm、最大出力 1 mJ の超短パルスレーザー(PHAROS-SP, Light Conversion Ltd.)を用いた。繰り返し周波数は最大 500 kHz でチョッパーにより 10 kHz まで下げることが可能である。パルス幅は最短 180 fs(FWHM) で、二次分散を付加することによって最長 10 ps まで伸ばすことが可能である。また、入射パルスは 20 倍の対物レンズ(NA=0.4)によって材料内部(深さ 300  $\mu\text{m}$ )に集光される。本実験においては、以下のパラメータで静止露光による加工を行った。

繰り返し周波数 : 500, 250, 100, 50, 25, 10 kHz

パルス幅 : 190 fs, 2, 5, 10 ps

パルスエネルギー : 0.5, 1, 2, 5  $\mu\text{J}$

ショット数 :  $10^2$ ,  $10^3$ ,  $10^4$ ,  $10^5$  shots

### 3. 屈折率変化測定法

まず、材料内部に引き起こされた屈折率変化を測定するための観測系を構築した。一般に、z 軸方向に伝播するコヒーレントな光の強度分布の変化は以下の式で表される。

$$\left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)\frac{\partial I(\vec{r})}{\partial z} = -\nabla \cdot (I(\vec{r})\nabla\phi(\vec{r}))$$

ここで、Iは断面方向の強度分布、 $\phi$ は位相分布である。これを変形して、

$$\phi(\vec{r}_\perp, 0) = -\bar{k}\nabla_\perp^{-2} \left\{ \nabla_\perp \cdot \left[ \frac{1}{I(\vec{r}_\perp, 0)} \nabla_\perp \nabla_\perp^{-2} \frac{\partial I(\vec{r}_\perp, 0)}{\partial z} \right] \right\} \quad (1)$$

と表すことが出来る。一方でピントを $\pm\Delta z$  だけずらした位置における強度分布をテイラー展開すると、

$$I(\vec{r}, \pm\Delta z) = I(\vec{r}, 0) + \Delta z \frac{\partial I(\vec{r}, 0)}{\partial z} \pm \frac{1}{2} \Delta z^2 \frac{\partial^2 I(\vec{r}, 0)}{\partial z^2} + \dots$$

となり、3次以降の項を無視すると

$$\frac{\partial I(\vec{r}, 0)}{\partial z} \approx \frac{1}{2\Delta z} [I(\vec{r}, +\Delta z) - I(\vec{r}, -\Delta z)] \quad (2)$$

と表すことが出来る。したがって式(1),(2)から、任意の位置での位相分布は、その位置における透過光強度分布と z 軸方向の前後にピントをずらした位置における強度分布の計 3 枚の明視野像から算出可能であることがわかる。

本実験では正立顕微鏡(BX51, Olympus)及び 50 倍の対物レンズを用いて画像を取得し屈折率分布の算出を行った。材料の移動には電動三軸ステージを用いた。また、差分画像を用いていることや加工領

域が極めて小さいことから、ステージのわずかな振動が最終的に得られる画像において大きなノイズとなって現れてしまう。そのため各画像について 30 枚ずつ取得し、その平均を用いることで振動の影響を小さくしている。Fig.1 に簡単な概念図と測定結果のサンプルを示す。測定結果において明るい箇所では正の屈折率変化、暗いところでは負の屈折率変化が引き起こされている。

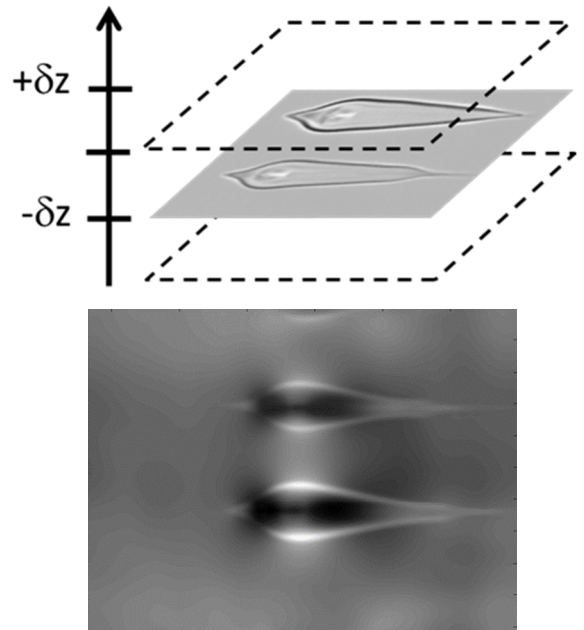


Fig.1 (a) Schematic of measurement system of refractive index distribution. (b) Measured refractive index distribution.

### 4. 実験結果

#### A. 繰り返し周波数による影響

Fig.2 に 10kHz の場合と 500kHz の場合の加工の結果を示す。このとき、両者共にパルス幅は 190 fs、パルスエネルギーは 2 μJ、パルス数は上から順に 10<sup>4</sup>, 10<sup>5</sup> shots である。この結果を見ると 500kHz のほうでは入射パルスのスポット径よりも大きな領域が加工されている、パルス数が増えるにつれて加工範囲が広がっていることがわかる。一方 10kHz の

場合はスポット径とほぼ同じサイズでパルス数による影響は小さい。

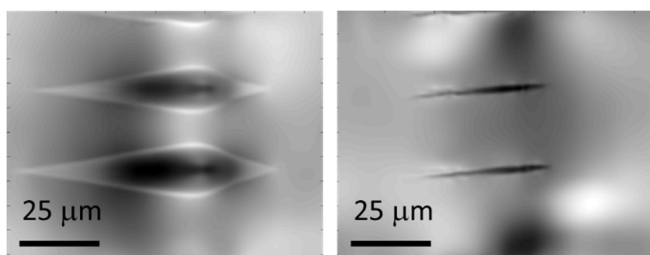


Fig.2 A result of processing with (Left) high repetition rate and (Right) low repetition rate laser pulses.

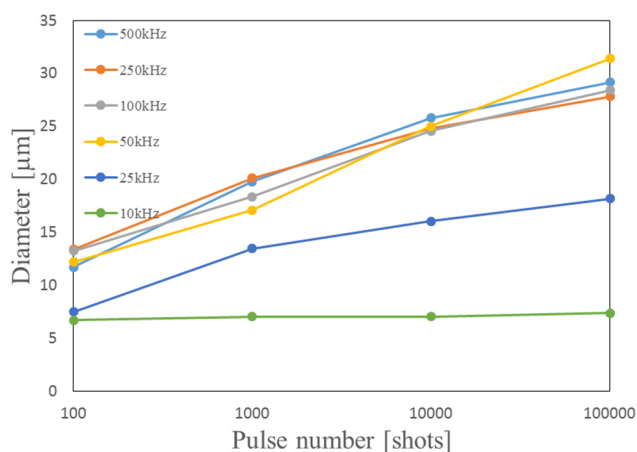


Fig.3 Dependence of modified size on repetition rate and pulse number

繰り返し周波数が高くパルスとパルスの間隔が短い場合、前のパルスによって生じた熱が完全に緩和される前に次のパルスが入射される。その結果熱が蓄積され、集光点が点熱源のように振る舞い、放射状に加工領域が広がっていく。この現象は高いパルスエネルギーと高い繰り返し周波数との両立によってはじめて実現され、100kHz~数 MHz のレーザーの高出力化に伴い、現在までにあらゆる材料において報告されている[3]。また、加工条件によってはパルス照射が終わった瞬間に加工領域が急激に冷却されることで、中心方向に応力波が発生し、集光点において正の屈折率変化が誘起されるケースも

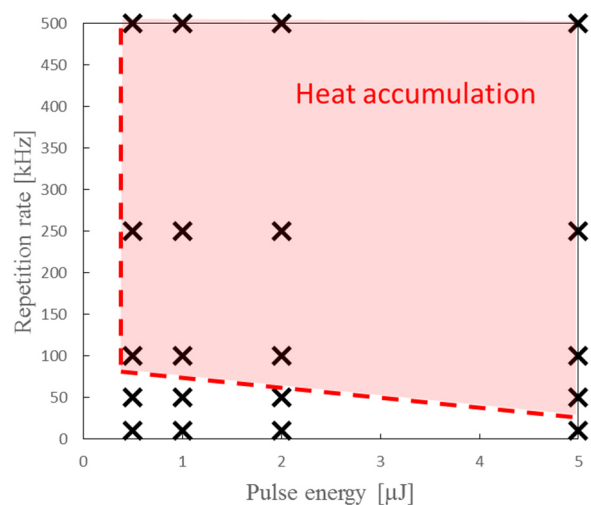


Fig.4 Conditions of pulse energy and repetition rate that heat accumulation occurred

報告されているが、本実験においては正の屈折率変化は確認されなかった。

Fig.3 に繰り返し周波数及びパルス数と加工範囲の大きさとの関係を示す。このとき、パルスエネルギーは  $5 \mu\text{J}$ 、パルス幅は  $190 \text{ fs}$  である。また、Fig.4 に本実験において熱蓄積効果、つまりショット数増加に伴う加工領域の拡大が確認された条件を示す。これらの結果を見ても、熱蓄積には高いパルスエネルギーと高い繰り返し周波数との両立が必要であることがわかる。

## B.パルス幅による影響

続いて、入射するパルスに二次分散を加えることでパルス幅を伸ばして実験を行った。Fig.5 にパルス幅  $190 \text{ fs}$  と  $10 \text{ ps}$  で加工を行った結果を示す。このとき繰り返し周波数は  $500 \text{ kHz}$ 、パルスエネルギーは  $5 \mu\text{J}$ 、パルス数は上から順に  $10^4, 10^5 \text{ shots}$  である。

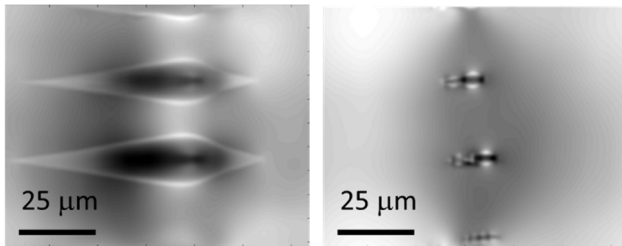


Fig.5 A result of processing with (Left) pulse duration of 190 fs and (Right) pulse duration of 10 ps

この結果を見ると、パルス幅が長い場合には熱蓄積効果が見られないことがわかる。これは、ロングパルス化したことによってピークパワーが下がったため、吸収されるエネルギーが小さくなったことが原因であると考えられる。しかしながら、パルス幅が 2 ps の場合には、Fig.6 に示す爆発のような現象が見られた (ただし、Fig.6 は加工範囲が大きく我々の手法では、空間窓内に収まらなかったため位相差顕微鏡によって観測した結果である。位相差顕微鏡の場合、負の屈折率変化が起きている領域は明るく、正の屈折率変化は暗くなるので注意が必要である)。これは吸収されたエネルギーが大きすぎたために生じた現象だと考えられ、パルス幅を伸ばした場合にのみ観察された。したがって、パルス幅を伸ばした場合のほうが、吸収されたエネルギーが大きいと考えられる。

以上の結果から、高繰り返しレーザーの場合、吸収されるエネルギーが大きくなるに従って、無熱蓄積→熱蓄積→爆発というように起こる現象が変化すると考えられる。本実験では確認できなかったが、パルスエネルギーをより細かく調整することでロングパルスにおいても熱蓄積効果が観察されると考えられる。

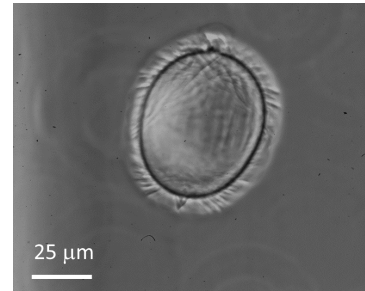


Fig.6 A burst-like structure induced by long duration laser pulses (500kHz, 2 ps, 5 μJ, 10<sup>4</sup>shots). This image was captured by phase contrast microscopy.

### C.屈折率変化に対する影響

本実験において屈折率変化の値に関しては、パルスエネルギーが大きくなると屈折率変化が大きくなった。また、繰り返し周波数 50, 10 kHz におけるパルス幅と屈折率変化の関係を Fig.7 に示す。この結果からロングパルス化による効率的なエネルギーの吸収が、大きな屈折率変化につながることを示唆される。この屈折率変化は導波路 NA に換算すると NA=0.08 程度に相当する。しかしながら、レーザー書き込みではステップ状の屈折率変化が引き起こされるわけではないため、実際に作製される導波路の NA はこの値よりも 20~40%程度小さくなることに注意が必要である。

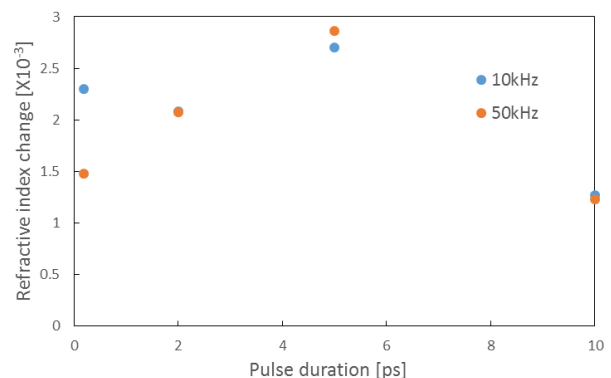


Fig.7 Dependence of refractive index change on pulse duration.

本実験では繰り返し周波数と集光点における負の屈折率変化の値の間に相関は見られなかったものの、Fig.2 のとおり、負の屈折率変化領域の外側に正の屈折率変化が起きている領域がある。これは圧力によって密度が高まったことに起因するものであると考えられるが、正の屈折率変化の値は加工サイズにほぼ比例し、最大で  $5 \times 10^{-4}$  程度であった。さらに、熱蓄積による熱的加工は加工領域を滑らかにする効果があり、これは導波路作製においては損失の軽減につながる。

以上の結果を踏まえると熱蓄積効果をうまく利用することは、LD の光を閉じ込めるために必要な 0.05 以上の導波路 NA の実現に大きく貢献することが期待される。また、低損失化により発振閾値の低下にもつながることが予想される。

## 5. まとめ

我々は超短パルスレーザーによる Pr:ZBLAN 内部の構造変化の繰り返し周波数依存性、パルス幅依存性を調査した。高繰り返し、高パルスエネルギーのレーザーパルス列を入射した場合には熱蓄積効果が観測され、長いパルス幅のレーザーパルスを入射した場合には効率的なエネルギーの吸収が見られた。つまり、高繰り返し(> 25 kHz)かつロングパルス(数 ps)のレーザー照射によって、より大きな導波路 NA 及び低損失な光導波路の実現が期待される。

## References

- [1] R. R. Gattass and E. Mazur, "Femtosecond laser micromachining in transparent materials," *Nature Photon.* 2, 219-225 (2008)
- [2] J.-P. Bérubé, M. Bernier, and R. Vallée, "Femtosecond laser-induced refractive index modifications in fluoride glass," *Opt. Mater. Express* 3, 598-611 (2013)
- [3] Shane Eaton, Haibin Zhang, Peter Herman, Fumiyo Yoshino, Lawrence Shah, James Bovatsek, and Alan Arai, "Heat accumulation effects in femtosecond laser-written waveguides with variable repetition rate," *Opt. Express* 13, 4708-4716 (2005)