

平成 30 年 6 月 18 日現在

機関番号：12301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04731

研究課題名(和文)プロトンビーム直接描画を用いたフレキシブル光集積デバイスの実現

研究課題名(英文)Realization of flexible Integrated optical device by proton beam writing

研究代表者

花泉 修 (Hanaizumi, Osamu)

群馬大学・大学院理工学府・教授

研究者番号：80183911

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：多様な周辺環境への近接が可能となる高分子薄膜内に光集積素子を内包させたフレキシブル光導波路を形成する微細加工技術を開発した。集束陽子線による微細加工(PBW)法により、厚さ数十 μm 程度の自立高分子薄膜にマッハツェンダー(MZ)型光導波路を形成した。ブラッグピーク近傍の高密度エネルギー付与を利用し、薄膜深部だけに局所的屈折率変化を誘発した。微細加工部をコア部、周辺領域をクラッド部とすることで、継ぎ目ない薄膜に光導波路が実装された。MZ導波路の一部に電極を付与し、熱光学効果による光スイッチング機能についても確認した。本技術により、任意の機能性高分子内部に光伝送路実装が実現できる。

研究成果の概要(英文)：We have developed a flexible optical wave guide that enables close proximity to various peripheral environments by incorporating an optical integrated device in a polymer thin film. A Mach-Zehnder (MZ) optical wave guide was embedded by focused proton beam (Proton Beam Writing; PBW) in a freestanding polymer thin film with a thickness of about several tens of micrometers. A local refractive index change was induced in the deep part of the thin film by utilizing high density energy around the Bragg peak of focused proton with energy from 0.5-3 MeV. An optical wave guide was mounted on a seamless thin film by setting the micro fabricated part as the core and cladding part of surrounding parts. Electrodes were applied to a part of the MZ wave guide, and the optical switching function by thermo-optic effect was also confirmed. According to the present technology development, it is possible to realize optical wave guide mounting inside arbitrary functional polymers.

研究分野：量子ビーム科学

キーワード：光導波路 集束イオンビーム PBW フレキシブル光回路 PDMS PMMA ポリイミド MED-610

1. 研究開始当初の背景

光インターコネクションなど中短距離の配線に用いられる光素子には、空間的制約のため、小型化や柔軟性、さらには大量生産に優れた平面光導波路構造が広く用いられている。平面光導波路の材料としては、石英、半導体のほか高分子材料を用いることができる。熱、光、電気刺激による屈折率の変化と導波路構造とを組み合わせた形態で容易に動作するデバイスの観点から基板材料には現状広く石英が用いられる[1]。しかしながら石英基板での光導波路には十分な柔軟性は期待できない。反面、高分子材料の中には、室温での処理が容易で、機械的柔軟性が高く、石英に比べて熱光学効果が大きいものがあり、今後のフレキシブル光素子の構造材料として期待されている。しかしながら、現在の技術水準では、フレキシブル光伝送路自体に光スイッチング機能を実装するには至っていない。

この1つの要因は、ポリマー薄膜内部の光伝搬効率である。光導波路部と周辺部との間に生じる接合部等が、基板内での光導波路やその制御を妨げている。これを解決できる高分子薄膜の内部に高密度に光通信素子を継ぎ目なく実装する技術に潜在的なニーズが存在すると考えられる。特に、光導波路ならびに光スイッチング素子構造を自立可能なフレキシブル高分子薄膜の内部に完全に埋め込むことができれば、目的とするフレキシブル光信号処理回路が実現できる。

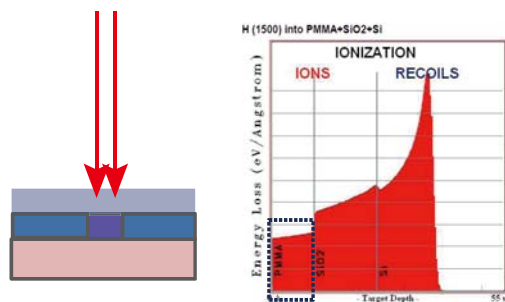
一般的な紫外線や電子線を用いたリソグラフィ技術では、高分子薄膜材料に光導波路構造を形成する後に光伝送路(コア)に発生する接合部等における界面の位置)部分を積層的に形成する必要がある、信号伝送損失となりうる継ぎ目が導波路構造周辺に生じてしまう。これに対して、申請者らがこれまで開発してきたイオンビームを用いた微細加工(Proton Beam Writing: PBW)技術では、特徴的な特定の深さ(Bragg Peak)にエネルギー付与が集中するという原理的に既存の紫外線や電子線を用いた微細加工技術にない特性を有している。しかしながらこれまでのPBWを用いた光導波路の開発では、光導波路の伝送路(コア部)を照射により形成した後クラッド層を追加形成するという紫外線他の既存技術加工と同様のプロセスを利用していた[2,3]。この点を改良し、特定のエネルギーを持つ陽子ビームを一枚の高分子膜内部で止まるようにエネルギー条件を設定することで、継ぎ目のない高分子材料内部に導波路を形成できるという着想に至った[4]。

2. 研究の目的

イオンビームを用いた材料改質や微細加工では、非熱平衡過程による特異な材料機能発現や構造発現が可能である。これを最大限に活用すべく、本研究課題では、PBWの照射条件を最適化し、図1に示すように、Bragg

Peakを材料内部とすることで、より強大な屈折率変化を誘発し、この領域を導波路コアとする。

a) 従来のリソグラフィ、PBWでの積層型の形成方法



b) 今回のPBWでの継ぎ目のない形成方法

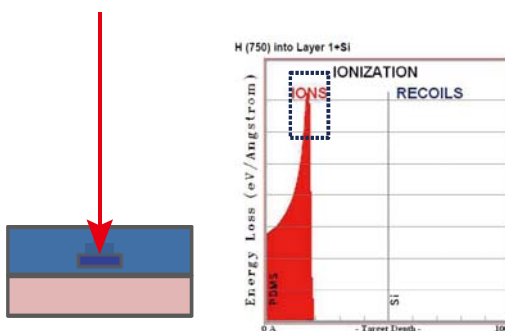


図1. (上段)従来のリソグラフィ技術や旧来のPBW法による微細加工後に積層で上部クラッドを形成する方法と(下段)今回試行した荷電粒子Bragg Peakを利用した継ぎ目のない導波路コアの形成概念図。

これを活用することで、本研究では、1)柔軟性の高い高分子内部への光導波路の埋め込み形成技術の確立、2)埋め込み型光導波路を利用した光スイッチデバイスのプロトタイプ開発することを目標とした。特に中距離及び近距離の光通信機器に必要な光配線実装技術の基礎技術を確立するため、中心波長 $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$ の赤外光のシングルモード光伝送を可能とするMach-Zehnder (MZ)型光導波路及びこれに電極を付与して熱光学効果によるスイッチングを可能とするMach-Zehnder Interferometer (MZI)のデザインについて、PBWを利用して各種ポリマー薄膜内部に実装した。次いで、高分子薄膜フレキシブル光導波路に熱光学効果を誘起するための電気配線を実装することにより、電気信号による基本的な光信号制御を試みた。また、光導波路に外部機械刺激や周辺環境湿度などを変更することでデバイスの挙動外乱の影響を確認した。本研究により、継ぎ目のないフレキシブルな光導波路とこれを利用した光スイッチの基礎が開発された。今後本成果を基板に、超短距離間の光伝送・光信号処理を可能とする集積型光素子の開発や液相中への光センサ導入を可能とする新たな光導波路の利用用途展開が期待できる。

3. 研究の方法

3.1 高分子材料の選択と光導波路のデザイン

MZ型光導波路/MZIをPBW微細加工により描画処理するためのデザインをこれまでの研究成果を基盤に作成した[3]。中心波長 $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$ の赤外光のシングルモード光伝送に必要な光路幅は約 $8 \mu\text{m}$ として算出された値を用いた。Y分岐構造を二つ重ね合わせるようにしてMZ構造を形成した。Y分岐後の直線までの移行部分は正弦波状の構造で構成し、分岐角を約 2° とし緩やかな曲がりによる導波路を形成した。分岐後に並行する2本の導波路間の距離は $300 \mu\text{m}$ 程度とした。詳細なデザインを図2に示す。

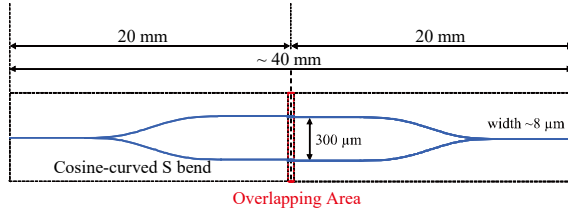


図2. PBW微細加工に利用したMZ型光導波路のデザイン例。 $1.55 \mu\text{m}$ の赤外光のシングルモード光伝送を目的として幅 $8 \mu\text{m}$ の光伝搬路部分をPBWで描画。 $40 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ の大型のデザインのため、複数に入力を分割し、重ね合わせ領域を設けながら描画。

PBW微細加工の対象として、柔軟性の高い高分子材料のうち、一般的に汎用性の高い高分子材料であるエポキシ樹脂、ポリイミド (Polyimide) 及び PDMS (Poly-dimethylsiloxane) を選択した。PDMSについては市販のモールド材料である東レ・ダウコーニング SYLGARD®184 SILICONE ELASTOMER KIT を、ポリイミドについては電子回路基板への実装可能性を探索するために、銅電極膜が付帯したポリイミド製フレキシブルポジ感光基板 (NZ-M1K、サンハヤト) をそれぞれ利用した。さらに PMMA 材料のうち生体親和性高分子材料として開発された MED-610 (Stratasys, biocompatible photopolymer)[6] についても同様のサイズで試料を作成し PBW微細加工に供した。モンテカルロシミュレーションである SRIM コード[5]を用いて、各材料内部への荷電粒子侵入長を見積もった。

3.2 イオンビーム微細加工技術

高分子薄膜材料を利用したポリマー型フレキシブルMZ光導波路、MZIの実現には比較的長大な領域に走査範囲にわたり微細構造を有する任意形状の微細加工が必要である。本研究では、量研機構高崎研イオン照射研究施設 (TIARA) に設置された 3 MV シングルエンド加速器を利用し、集束陽子ビームを用いた各材料への微細加工を目的として、図3に示すような体系を構築して利用した[7]。とりわけ MeV 級の加速エネルギーを有する集束陽子ビームを用いた PBW 微細加工技術では、マスクを必要とせず、数 μm 程度の空

間分解能とイオン侵入深さ $100 \mu\text{m}$ 程度の高アスペクト比を有する微細加工が実現している[8]。

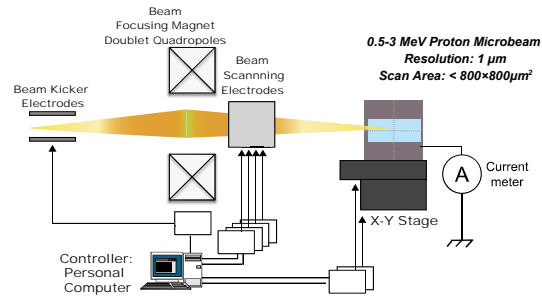


図3. PBW微細加工装置における光導波路形成の概念図。

$0.5\text{-}3 \text{ MeV}$ 程度の陽子ビームを平均径 約 $1 \mu\text{m}$ まで集束させ、2連の四重極電磁石において最大範囲 $800 \times 800 \mu\text{m}^2$ 内を任意形状で走査可能とした。中心波長 $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$ の赤外光のシングルモード光伝送に必要な光路幅は約 $8 \mu\text{m}$ と集束イオンビーム径約 $1 \mu\text{m}$ に対して十分大きい。他方で光路全長は 40 mm 程度と長大なため、ビーム走査に真空内2次元ステージの走査を併用することで、位置精度 10 nm 、最大駆動範囲 $40 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ に及ぶ比較的大規模な領域を加工可能とした。照射前後における正確な電流量は試料後方に配置されたファラデーカップで計測した。照射中は試料保持基板であるアルミニウム板を経由して照射中の電流量を計測し、照射中の電流量の揺らぎを評価した。

3.3 荷電粒子照射後の近視野像観察

PBW微細加工が施された試料は、端面の切り出し程度の小規模な加工を施せば特段の前処理なく光導波の確認が可能である。本薄膜デバイス内部の光導波路の評価では、導波路部分にファイバレーザ (SANTEC, ECL-210) により中心波長 $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$ の光を導入し、赤外光スポットは IR ビジコンカメラ (Hamamatsu Photonics Ltd., C2741-03) を用いて近視野像 (Near Field Pattern: NFP) を観察した。NFP の評価を行うことで、シングルモードでの光伝送や、外部電極制御による光スイッチング機能といった基礎特性が確認できる[2]。シングルモードでの光伝送確認後に、PBWにより形成されたMZ導波路の片側分岐路上に図4に示す形状で電極配線を形成することで、光導波の状態制御を誘発する配線構造を形成した。電極配線構造を有したシャドウマスクを使用し、簡易マグネトロンスパッタリング装置によりスパッタリング法による Ti/Al 薄膜電極を形成した。電子回路基板材料であるポリイミド製フレキシブルポジ感光基板については、PBW微細加工前後において現像プロセスにより基板に付帯する銅薄膜電極構造を形成した。次いで電極配線に外部電源を接続し、電圧印加の有無による赤外光信号制御を確認した。

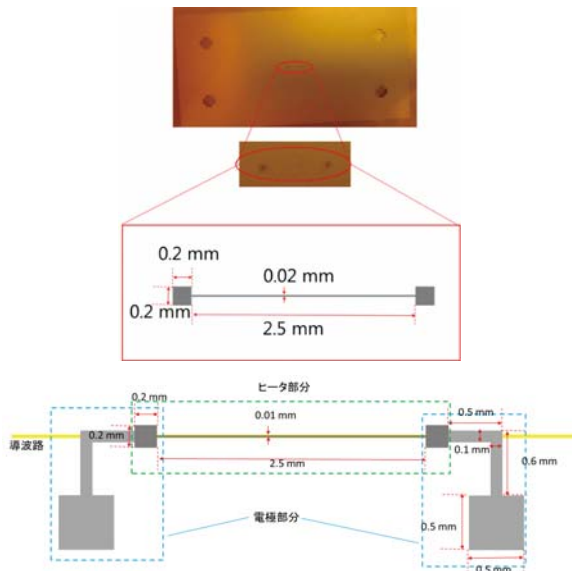


図 4. (上段)熱光学効果誘発を目的に光導波路分岐部片端に形成する加熱電極構造とそのマスク作成例 (下段)全体の電極構造

4. 研究成果

4.1 高分子材料内への光導波路の埋込形成

各高分子薄膜内部に埋込型光導波路を形成した。各高分子薄膜内部にコア径 $8 \mu\text{m}$ の埋込型光導波路の形成を行った場合、材料ごとに光導波路の形成に必要な照射量に変化することが確認された。図 5 において PDMS 薄膜試料中に形成した MZ 型光導波路構造の光学観察像を示す。また、照射部と周辺非照射部を顕微ラマン分光分析した例を示す。特に PDMS では、他高分子材料と比較し、シロキサン系の結合変化がより微弱な照射量 ($10 - 100 \text{ nC/mm}^2$) から生じることが確認された。これにより目的とする MZ 型光導波路形成が低照射量から確認できた。同様の照射は PMMA 試料でも可能であり、約 $200 - 500 \text{ nC/mm}^2$ 近傍で光導波路を確認した。他方でポリイミドは熱を含めた外部刺激耐性が高く、照射量の増大が想定された。予想に反せず、ポリイミドで光導波路を確認するにはより高い照射量 ($400 - 1000 \text{ nC/mm}^2$) が必要であった。

4.2 埋め込み型光導波路の観察

集束イオンビームの特徴の一つに Bragg Peak 近傍に高密度な反応領域形成が挙げられる。本加工では、 $0.75, 1 \text{ MeV}$ の陽子線において単一 PDMS 高分子薄膜表面層に、 1.75 MeV の陽子線においてフレキシブル電気回路基板であるポリイミド薄膜に $18, 25$, ならびに $40 \mu\text{m}$ の深さにブラッグピークが存在するような条件下で照射・観察を行った。図 6 に中心波長 $\lambda = 1510 - 1590 \text{ nm}$ を用いた NFP 観察において、ポリイミド基材フレキシブル MZ 導波路におけるシングルモードでの光伝播例を SRIM 計算結果と共に示す。NFP 像において、照射量を調整することで光屈折率変化により Bragg Peak 近傍にコア形成を誘発可能であることが確認できた。

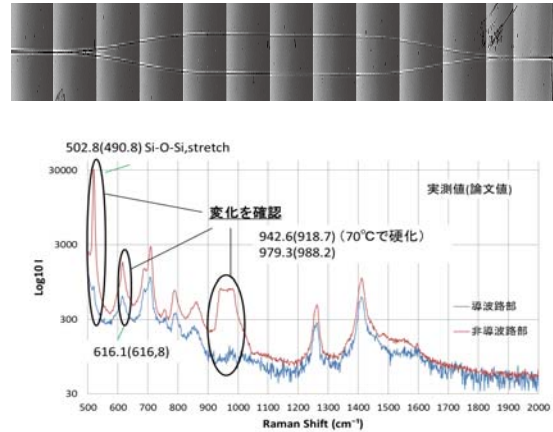


図 5. (上段) PDMS に形成された MZ 光導波路観察例 (下段) コア部分とその周辺の顕微ラマン測定例

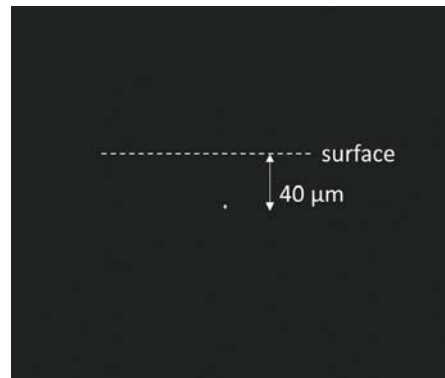
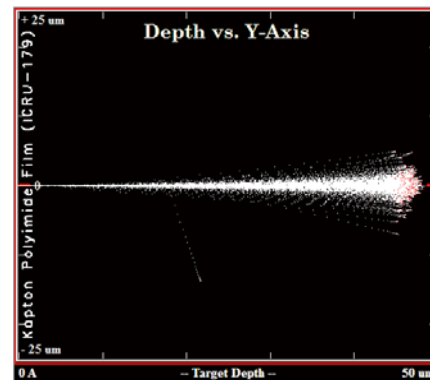


図 6. (上段)SRIM 計算による陽子侵入長計算例 (下段)NFP による光スポット観察例。

また、コア上方に顕著な光漏れがないことから、Bragg Peak 以前のエネルギー付与領域の屈折率変化は限定的であり、粒子のエネルギーを選択的に調整することで本微細加工の狙いである継ぎ目のない微細加工が可能となることが確認された。

4.3 光スイッチング特性の観察

各材料の中で最も良好な特性を示した PDMS 光導波路を中心に、光スイッチングや折り曲げ時の試験を行った。Ti 電極による熱光学効果を片側の光導波路に与えた例を図 7 に示す。やや埋め込み電極が表面より奥まった位置に形成されたため、印加電圧が高く想定よりも消費電力の点で課題が残ったが、完全な光消光動作が 150 V 以上から確認された。

また印加電圧の除去により元の光スポットに戻ることも複数回の印加電圧サイクルにより確認できた。

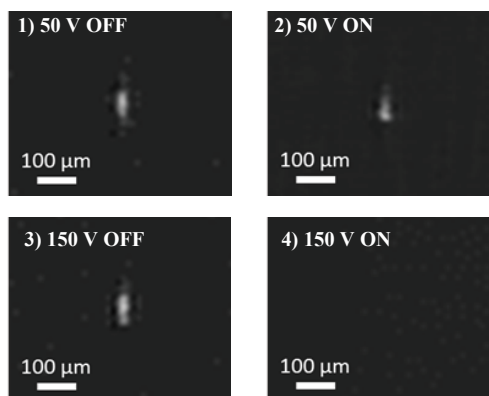


図 7. PDMS を基板としたフレキシブル光導波路の上段) 50V 印加電圧の印加前後での光スポットの変動例 (下段) 50V スwitchング後に 150V を印加して NFP による光スポットの消光を観察した例。

4.4 機械的外部刺激影響下での光導波の観察

機械的な特性にも優れた PDMS 光導波路を中心に外部の折り曲げや、水溶液中などに浸しての動作試験を行った。図 8 は折り曲げ中での光導波の確認の様子、図 9 はこの体系下で取得された NFP の例である。本体系での光伝送効率の損失をまとめたものが表 1 である。約 1 桁程度の損失で伝送が維持される結果となった。

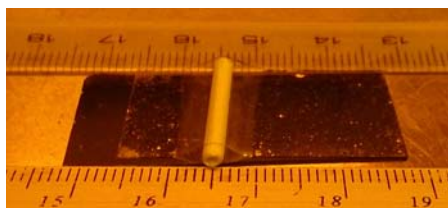


図 8. PDMS を基板としたフレキシブル光導波路の折り曲げの例。



図 9. PDMS フレキシブル光導波路の折曲時と通常時の NFP 観察例。極めて小さな曲率半径においても通常時と同等の光導波を確認。

表 1. 折曲時と通常時の NFP 光強度比。折曲時 1 桁程度の強度減衰のみで光伝送を確認。

Sample Number	Normal PDMS (uw)	Bended PDMS (wire)	Bended PDMS (bud)
1	10.99	3.73	1.288
2	11.48	3.53	1.308
3	12.6	3.05	1.544
4	12.7	2.29	1.72
5	13.18	1.66	2.03
Average	12.19	2.852	1.578
Std. Dev	0.915478017	0.866960207	0.309283042
Max	13.18	3.73	2.03
Min	10.99	1.66	1.288

4.5 多様材料でのフレキシブル光導波路

PDMS 以外の材料においてもフレキシブルな構造材料内部に MZ 型光導波路の実装やその導波確認を行うことができた。図 11 ならびに図 12 では、それぞれポリイミドならびに MED-610 [6] における MZ 型光導波路の PBW 微細加工とその加工後の折り曲げ、さらにはその後の出射光を確認した。各材料ごとに最適な照射フルエンスは異なるがおおよそどの材料においても近視野像での単一光スポット出力を確認することができた。

a) PBW 処理後の電極付帯 c) ポリイミド内部の導波路からの出射光

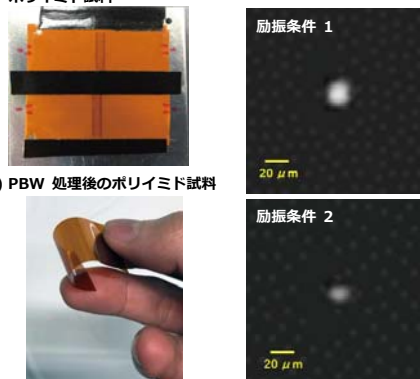


図 11. ポリイミド材料への PBW による光導波路形成例。a) 電極薄膜構造を付帯試料への PBW 微細加工の例、b) ポリイミド薄膜単体試料の PBW 微細加工後の折曲例、c) 薄膜単体試料からの出射光の近視野像観察例

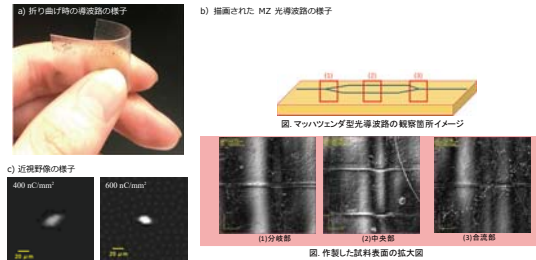


図 12. PMMA 系生体親和性材料 MED-610 への光導波路形成例。A) 折り曲げ可能な導波路形成後の MED-610 の様子、b) 光導波路部分拡大観察例、ならびに c) 近視野像観察例

4.6 総括

PBW 技術を応用し、PDMS、ポリイミドなどのフレキシブルな高分子薄膜内部に MZ 型光導波路を実装した。これに表面電極等の構造付与を行うことで MZI を実現した。赤外光近視野像・伝搬特性評価から、構造最適化の余地はあるものの、光導波・光スイッチングの原理が実証された。照射条件を変更することで、多様な材料内部に光伝送路が実現された。今後、電極形状や光導波路の加工深度などの最適化を経ることで、より実用的な高分子によるフレキシブル光スイッチング素子の実現が期待される。さらにおいて、生体親和性材料内部に光配線が実装可能となったため、従来光スイッチング素子との近接の機会がないバイオセンシング用途への展開に本研究成果は活用可能であると考えられる。

[引用文献]

- [1] 平谷雄二ら、電子情報通信学会技術研究報告 OPE2004-220, pp. 13-18 (2005).
- [2] K. Miura, et al, Key Engineering Materials, 534 (2013) 158.
- [3] K. Miura, et al, Key Engineering Materials, 596 (2014) 134.
- [4] W. Kada et al., Nucl. Instr. and Meth. Sec. B. 348, pp.218-222 (2015).
- [5] J. F. Ziegler et al., Nucl. Instr. and Meth. Sec. B. 268, pp. 1818-1823 (2010).
- [6] MED-610 biocompatible photopolymer, Additive Manufacturing LLC (<https://additivemanufacturingllc.com/wp-content/uploads/2015/04/MED-610.pdf>, access date 2018/06/01)
- [7] W. Kada et al., Jpn. J. Appl. Phys., 51 p. 06FB07, (2012).
- [8] N. Uchiya et al., Nucl. Instr. and Meth. Sec. B. 260, pp.405-408 (2007).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

1. R. K. Parajuli, R. Saruya, N. Akutzu, S. Miura, W. Kada, S. Kawabata, Y. Matsubara, T. Satoh, M. Koka, N. Yamada, T. Kamiya, K. Miura, and O. Hanaizumi, Fabrication and evaluation of flexible Mach-Zehnder waveguide structure embedded in a polydimethylsiloxane thin film using a proton microbeam, Japanese Journal of Applied Physics 55, 6S1, 06GD01 (2016) (査読有).

[学会発表] (計 8 件)

1. W. Kada, T. Satoh, S. Kawabata, M. Haruyama, Y. Suda, S. Miura, K. Kasuya, R. Saruya, M. Koka, N. Yamada, K. Miura, S. Onoda, H. Kraus, G. Astakhov, T. Kurobori, T. Ohshima, T. Kamiya, and O. Hanaizumi, Focused microbeam irradiation technique for the fabrication of micro-meter scale optical structures, 24th International Scientific Meeting on Vacuum Science and Technique, Split, Croatia, 17th May (2017) (招待講演)
2. 粕谷建太, 三浦聡, 王酉申, 海野陽平, 鈴木孝明, 加田渉, 三浦健太, 花泉修, 佐藤隆博, 江夏昌志, 山田 高, ホリマー材料を用いたマッハツェンダー型光スイッチの作製に関する研究, 電気学会バイオ・マイクロシステム研究会「バイオ・マイクロシステムとそのプロセス技術および一般」、桐生市市民文化会館スカイホール, 群馬, 2017年10月04日, (2017).
3. 加田渉, 三浦聡, 猿谷良太, 佐藤隆博, KUMAR Parajuli Raj, 川端駿介, 三浦健太, 江夏昌志, 神谷富裕, 花泉修, 集束陽子線微細加工技術による高分子薄膜内包型 Mach - Zehnder 光導波路・光スイッチの開発, 第 59 回放射線化学討論会, 国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所, 群馬, 2016年9月20-22日, (2016).
4. 高橋龍平, 三浦聡, 猿谷良太, 川端駿介, 三浦健太, 加田渉, 江夏昌志, 佐藤隆博, 神谷富裕, 花泉修, 集束陽子線微細加工技術によるフレキシブル電子回路基板内部への光導波路構造の埋込形成, 第 77 回

応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, 新潟, 2016年9月13-16日, (2016).

5. 三浦聡, 猿谷良太, 川端駿介, 三浦健太, 加田渉, 江夏昌志, 佐藤隆博, 神谷富裕, Parajuli Raj Kumar, 花泉修, 集束陽子マイクロビームにより PDMS 薄膜内部に埋め込み加工された Mach-Zehnder 導波路型光スイッチング素子の開発, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, 新潟, 2016年9月13-16日, (2016).
6. W. Kada, Fabrication and in situ evaluation of integrated micro-optical devices by a focused proton microbeam technique, 第 25 回日本 MRS 年次大会 International Symposium E-1 (Innovative Material Technologies Utilizing Ion Beams) (、2015年12月08日-09日、横浜産業貿易センタービル, 神奈川, 日本(2015). (招待講演)
7. R. Saruya, H. Kato, S. Kawabata, K. Miura, W. Kada, Y. Matsubara, A. Yokoyama, M. Koka, T. Satoh, P. R. Kumar, Y. Ishii, T. Kamiya, H. Nishikawa, and O. Hanaizumi, Fabrication of Flexible Mach-Zehnder Waveguide in PDMS Film using Focused Proton Microbeam, The 11th International Workshop on Radiation Effects on Semiconductor Devices for Space Applications (11th RASEDA) and the 7th International Conference on Advanced Micro-Device Engineering (7th AMDE), Kiryu, Japan, 11th-13th November (2015).
8. R. K. Parajuli, R. Saruya, K. Miura, W. Kada, S. Kawabata, Y. Matsubara, H. Kato, A. Yokoyama, M. Koka, T. Satoh, Y. Ishii, T. Kamiya, H. Nishikawa, and O. Hanaizumi, Fabrication and in-Situ Evaluation of Completely-Flexible MZ Waveguide Structure Embedded in PDMS Thin Film Using Focused Proton Microbeam, 28th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2015) Toyama, Japan, 10th-13th November (2015).

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

該当なし

[その他]

ホームページ等

<http://www.el.gunma-u.ac.jp/~hana/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

花泉修 (HANAIZUMI, Osamu)
群馬大学・大学院理工学府・教授
研究者番号 : 80183911

(2)研究分担者

三浦健太 (MIURA, Kenta)
群馬大学・大学院理工学府・准教授
研究者番号 : 40396651

加田渉 (KADA, Wataru)
群馬大学・大学院理工学府・助教
研究者番号 : 60589117