

平成 30 年 9 月 7 日現在

機関番号：32690

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04735

研究課題名(和文) フェムト秒、短波長レーザーによる深堀・穿孔加工と光ファイバセンサプローブの開発

研究課題名(英文) An optical fiber sensing probe developed by deep hole drilling using a short wavelength femto second laser

研究代表者

渡辺 一弘 (WATANABE, Kazuhiro)

創価大学・理工学部・教授

研究者番号：40240478

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：フェムト秒レーザーの第2高調波400nmを用いて、掘削メカニズムを、深堀・穿孔の直径、深さ、形状(直円筒、コーン型)、内面仕上げ精度との関連について実験を実施する。成果として、(1)フェムト秒第2高調波(波長:400 nm、パルスエネルギー: 30 μ J、繰返し周波数:1 kHz)にて、パルス総数300(レーザー照射時間:0.3 秒)で貫通穿孔構造を石英系光ファイバに効率的に構築できた。(2)構築した穿孔構造内部に金ナノ粒子分散溶液を注入し、金ナノ粒子を用いたナノ粒子固有の光吸収スペクトルの測定をおこない、金ナノ粒子固有の光吸収スペクトル(吸収ピーク波長:518 nm)の取得に成功した。

研究成果の概要(英文)：This work has developed a micro probe cell for spectroscopic analysis which is built in an fiber optic line by means of Ti-Sapphire 400-nm femto second laser processing. Laser operation has been successfully tuned to produce a required through-deep hole with a small diameter of a few micrometer, perpendicular to the optical axis of fiber line. The laser processing was made with changing exposure time, pulse frequency, pulse energy, focal position and numerical aperture condition to obtain a required hole shape conditions such as depth, diameter, shapes(straight or cone), and inner surface roughness in the deep hole. As the result of this work, efficient deep hole drilling has been successfully established with a 400-nm laser energy of 30 μ J, pulse frequency of 1kHz, and exposure time of 0.3 second (300 total pulses) to make the micro probe cell on the fiber line. Gold nano particles were introduced into the probe in the form of solvent, with resulting the gold LSPR spectrum.

研究分野：光電子工学、レーザー工学、光ファイバセンサ

キーワード：量子ビーム フェムト秒レーザー レーザ穿孔加工 光ファイバセンサ

1. 研究開始当初の背景

申請者は、これまでコア径の異なる二つのファイバを融着した構造を持ち、中心部より意図的にコア内伝送光を外部へ漏洩させる、ヘテロコア光ファイバを提案し開発を行ってきた()。一方、フェムト秒レーザーは 10^{-15} 秒オーダーという極短パルス幅の超高強度の光パルスを発振することが可能なレーザーであり、周囲への熱拡散が極端に小さくなり非熱的加工と言われ()、これまでの熱溶融によるレーザー加工とは一線を画した加工が実現されてきている。ヘテロコア技術で獲得したセンシング原理を非接触で実現すべく、申請者もこれまで、800nm 近赤外線フェムト秒レーザーによりガラスファイバ内部に数 μm の空洞加工を生成し、曲げ方向が検知できる光ファイバセンサを開発した()。また近年、海外でもガラス・光ファイバの加工により光ファイバに各種のセンシング機能を付与する研究が行われてきている()。これらの海外の研究過程を見ると、現状では 800nm, 1030nm といった近赤外線での加工が主流で紫外線領域の研究はまだ端緒に着いた現状といえる。フェムト秒領域の短パルスでのガラス加工では、ガラス構造を一瞬で昇華するが、この光の吸収過程は多光子が同時に寄与する多光子吸収が支配的であり、1つの光子エネルギーの小さい近赤外線では多くの光子が同時に作用する必要がある、非熱加工とはいっても短波長(光子エネルギーが大きい)場合に比べ熱的效果が大きい。これまで申請者は、波長 400nm を用いて穿孔加工()を行ってきた結果、短波長ではドロス、デブリがなく、極めて短い時間(1秒)で穿孔ができることがわかった。光ファイバ直径(125 μm)を貫通するような深堀・穿孔加工において、内面精度を望ましい状態に制御するための条件出しを行い、センシング機能の向上と拡張するためには更なる研究が必要となった。

2. 研究の目的

フェムト秒・短波長レーザーを利用してガラス材料への深堀・穿孔(穴)内面加工を行うための照射条件を実験的に明らかにし、微小な光ファイバセンサプローブの作り込みを行うことを目的とする。具体的には、400nm フェムト秒レーザーのもつ、効率の良い、熱とけ込みの少ない掘削加工能力を発揮するための条件として、加工時間、パルス繰返し周波数、パルスエネルギー、集光位置、集光度(開口数)を調整し、深堀穴形状、内表面状態を制御する。それにより粘性の高い液体、気体、コロイド金属を導

入しやすい微小体積(10^{-12} リッター)セルをもつ分光分析用微小プローブを試作する。従来の近赤外域レーザーに比べ、加工速度が極めて早く、試料導入に適した内表面が実現できる。本研究では、照射レーザー波長を近赤外線域から、近紫外・紫外線域にシフトして多光子吸収支配を強める。具体的には Ti-Sapphire フェムト秒レーザーの第2高調波 400nm を用いて、ガラス・光ファイバに短時間の内に必要とする加工精度を達成できるような、効率的な加工を確立する。次数の低い多光子吸収(少ない光子数)における掘削メカニズムを、レーザー照射の条件を変化させ、深堀・穿孔の直径、深さ、形状(直円筒、コーン型)特に内面仕上げ精度との関連について実験的な研究を実施する。照射条件として、加工時間、パルス繰返し周波数、パルスエネルギー、集光位置、集光度(開口数)を調整し、深堀穴形状、内表面状態を制御する。

最終的に図1に示す単数もしくは複数の貫通穿孔を微小体積(10^{-12} リッター)セルとする分光分析用微小プローブを開発する。この微小セルの内表面状態は、粘性の異なる各種液体の導入、金属薄膜の蒸着、コロイド金属の保持といったセンシング機能の拡張性にどのような利便性があるか検討する。

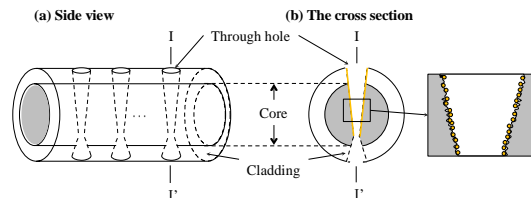


図1 穿孔加工による微小体積分析プローブ(複数貫通穿孔の場合)

3. 研究の方法

本研究では、400nm もしくは 266nm はフェムト秒加工によるガラス・光ファイバへの照射条件と深堀・穿孔の形状、内部表面仕上げ精度の関連の解明、ガラス・光ファイバへの深堀・穿孔(貫通穴)の形状、配置、内部修飾による微小体積(10^{-12} リッター)セルをもつ分光分析用微小プローブを試作、について実施する。では通信用ガラス・光ファイバの光軸にそって、単一もしくは必要に応じて複数の深堀・穿孔を色々な形状で配置して、微小分光分析セルを形成し、特性評価を行う。

照射条件と深堀・穿孔加工

フェムト秒レーザー装置の波長を波長変換装置により第2高調波の 400nm とし、1パルスあたりのエネルギー、パルス繰返し周波数、照射時間(=総パルス数)の組み合わせを調整し、また集光用光学系を制御して、集光位置、集光度(開口数)を変化させて、深堀・穿孔加工特性を穿孔のアスペクト比(深さ/直径)形状(直円筒、コーン型)を整える方式を確立する。また、特に内面仕上げ精度

との関連について実験的な研究を実施する。深掘・穿孔をコア内に配置すると散乱により挿入損失が生じる。挿入損失と表面精度の関連も明らかにする。内表面状態はSEM（走査電顕）を用いる。使用ファイバとしては主に、多波長計測を想定し、マルチモード（MM）ファイバを用いる。

貫通穿孔加工と微小体積セル作成

深掘・穿孔の条件出しをもとに、貫通した穿孔を光ファイバ光軸と直交方向に作成する手法を確立する。貫通穿孔を分光分析用微小プローブとして利用する。そのうえで、まず、粒界状表面(granules)の粗さと散乱挿入損失を検討し、金属コロイドの表面への固定化を含めた導入を試みる。これにより局在プラズモン共鳴現象と液相、気相（水素）検出の可能性を検証する。微小体積（ 10^{-12} リッター）セルをもつ分光分析用微小プローブの特性評価を実施する。SEM 観察のために加工済みファイバを穿孔の内表面が露出するように切断する必要があるが、切断し損なう可能性も多々あるので、成功の歩留まりをあげるように治具などで工夫する。

4. 研究成果

これまで、波長:400 nm、パルスエネルギー $20 \mu\text{J}$ 、繰り返し周波数 1 kHz、総パルス数 100 パルス、集光位置：材料表面から $50 \mu\text{m}$ 、開口数：0.65 の集光条件を見出し、加工された穿孔として、全体の長さ： $60 \mu\text{m}$ 、穿孔開口部の直径 $22 \mu\text{m}$ 、穿孔構造入り口からの深さ $23 \mu\text{m}$ まで：コーン状、 $23 \mu\text{m}$ から最深部径 $3 \mu\text{m}$ 、 $23 \mu\text{m}$ から最深部まで：比較的滑らかな内表面となることが SEM 観測で明らかになった。図 2 の(a) 入口近傍、(b) 中間部、(c) 先端部では内部表面に粒界部、平坦部の違いがある。光ファイバの両側面から穿孔加工を行い、図 3 の貫通穴を成功裏に形成し、微小体積分光セルを作り込んだ。この内表面に金属コロイドの固定化を試みた。現状では密度の高い固定化が困難であることから、金コロイドを混入した溶液を貫通穴に導入したところ、局在プラズモン共鳴を観測することができた。

最終の研究成果としては、(1)光ファイバへの深掘・穿孔加工について、貫通する穴あけ構造構築のためのレーザー照射条件を最適化した。第 2 高調波フェムト秒パルスの(波長:400 nm、パルスエネルギー:30 μJ 、繰り返し周波数:1 kHz)において、照射パルス総数 300、(レーザー照射時間:0.3 秒)で貫通穿孔構造を石英系光ファイバに効率的に構築することができた。(2)構築した穿孔構造内部に金ナノ粒子分散溶液を注入し、金ナノ粒子を用いた ナノ粒子固

有の光吸収スペクトルの測定をおこない、図 4 に示す金ナノ粒子固有の光吸収スペクトル(吸収ピーク波長:518 nm)の取得に成功した。金コロイドの表面への高密度の固定化にはさらなる検討が必要である。第 3 高調波(波長:266 nm)のエネルギーが小さく加工の閾値を超えることができなかったが、400nm の実験を通じて 3 年間全体としては当初の目的を達成できたと考える。

図 2 穿孔内部の表面 SEM 写真

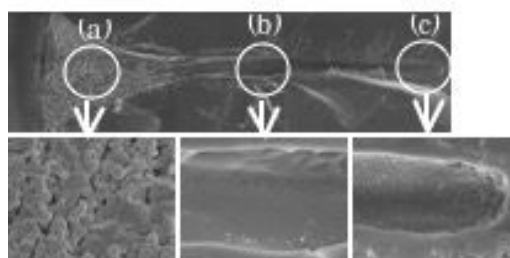


図 3 貫通穿孔：微小体積分光セルの SEM 写真

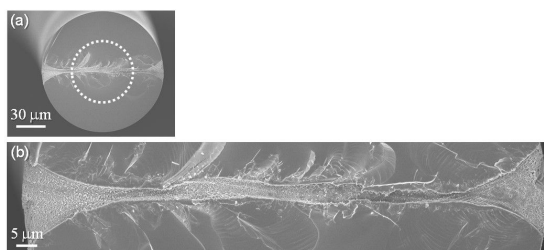
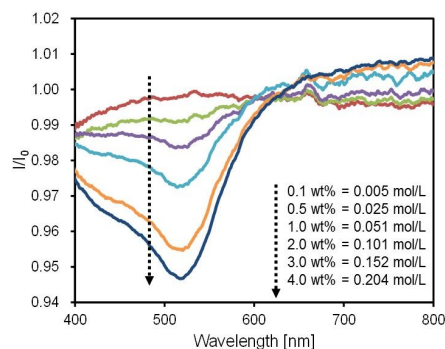


図 4 金コロイド溶液濃度による局在プラズモン共鳴スペクトル



引用文献

- K. Watanabe et al. IEICE TRANS. ELECTRON. 2000; E83: 309-314
- M. Iga, A. Seki, K. Watanabe. Sensor and Actuators B. 2005;106:363-368
- C. Mommaa et al. Optics Communications 1996;129:134-142
- 合谷, 渡辺. The Review of Laser Engineering 2013; 41:718-721

Y Wang, et al. Opt. Lett. 2009;34 : 3280-3330, R. Buividas, et.al, Nanoengineering: Fabrication, Properties, Optics, and Devices IX, Proc. of SPIE 2012;8463:84630T 1-10
M.Hamasaki, K.Goya, K.Watanabe. Proceedings of SPIE 2012; Vol.8677 46:86770-Q1-Q5

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計3件)

Masahiko SHIRAIISHI, Michiko NISHIYAMA, Shoichi KUBODERA, and Kazuhiro WATANABE, Femtosecond laser microhole drilling inside a fused silica optical fiber with optical inner surface quality, 査読有, Applied Physics A, Vol.122, pp.825-828, 2016.

Masahiko SHIRAIISHI, Michiko NISHIYAMA, Kazuhiro WATANABE, and Shoichi KUBODERA, Absorption spectra of localized surface plasmon resonance observed in an in-line/picometer spectrometer cell fabricated by a ultraviolet femtosecond laser, 査読有, Optics Communications, vol.410, pp.8-12, 2018.

Masahiko SHIRAIISHI, Kazuhiro WATANABE, and Shoichi KUBODERA, Observation of inner surface roughness in fused silica microholes with varying the number of femtosecond laser pulses, 査読有, Proceeding of HPLS & A 2016, SPIE, (International Symposium on High Power Laser System and Applications) : Vol.10254, pp.10254191-194-55, 2016.

[学会発表](計6件)

Masahiko SHIRAIISHI, Kenji GOYA, Atsushi SEKI and Kazuhiro WATANABE, Immobilization of gold nanoparticles into micro-holes fabricated by femtosecond laser for fiber optic sensor based on LSPR, The 2015 International Symposium on Advanced Engineering, Oct.22-24, 2015, Busan, South Korea, Proceedings of ISAE 2015 :pp.109-112.

Masahiko SHIRAIISHI, Kenji GOYA, and Atsushi SEKI, and Kazuhiro WATANABE, An LSPR fiber optic

sensor based on in-line micro-holes fabricated by a second harmonic 400-nm femtosecond laser, SPIE Photonics West OPTO 2016, Feb.2016, California, US, Proceedings of SPIE Photonics West OPTO, 9750-55.

白石 正彦, 合谷 賢治, 関 篤志, 渡辺 一弘. “穿孔加工を施した光ファイバへの金ナノ粒子修飾手法の検討”, 電子情報通信学会 2015 年ソサイエティ大会, 2015 年 9 月, 宮城, 同大会講演論文集, B-13-7 : p.285 .

白石 正彦, 合谷 賢治, 窪寺 昌一, 渡辺 一弘, “近紫外フェムト秒レーザーによる溶融石英穿孔構造の内表面粗さ評価,” 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 2016 年 9 月, 新潟市, 同講演会予稿集, 13a-C31-3 : P.03-016.

白石正彦, 渡辺一弘, 窪寺昌一, “近紫外フェムト秒レーザーによる石英系光ファイバ穿孔加工の繰返し周波数・照射パルス数特性,” 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 2017 年 9 月, 福岡, 同講演会予稿集, 7p-S45-10 : p. 03-479 .

白石正彦, 西山道子, 渡辺一弘, 窪寺昌一, “ピコリットル容積の光ファイバ型分光セルを用いた金ナノ粒子による光吸収スペクトルの取得,” 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018 年 3 月, 東京, 公演番号, 17a-A402-11 .

[産業財産権]

出願状況(計1件)

名称: 光ファイバ水素センサ及びその製造方法
発明者: 渡辺一弘, 西山道子, 細木藍, 窪寺昌一, 白石正彦

権利者: 創価大学

種類: 特許

番号: 特願 2017-153126

出願年月日: H29, 2017 年 8 月 8 日

国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ等

<http://www.t.soka.ac.jp/~watanabe/>

<http://www.soka-span-project.jp/modules/whatnew/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

渡辺一弘 (WATANABE Kazuhiro)

研究者番号: 40240478

(2) 所属機関

創価大学

(3) 部局

理工学部

(3) 職

教授