

平成21年 4月20日 現在

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18360314
 研究課題名（和文）干渉したフェムト秒光パルスで創る透明材料のサブミクロン加工と
 デバイスの開発
 研究課題名（英文）Femtosecond Laser Interferometric Processing of Transparent Materials
 and Development of an Optical Device
 研究代表者
 黒堀 利夫（KUROBORI TOSHIO）
 金沢大学・人間科学系・教授
 研究者番号：90153428

研究成果の概要：フェムト秒（fs）パルスの際立った二つの特徴を最大限に活用した「単一パルス干渉露光法」を用いて、透明材料であるフッ化リチウム（LiF）結晶へのサブミクロン間隔のグレーティングの直接書き込みと同時に同じ材料中に形成されるレーザー利得を有するカラーセンターからのルミネッセンスとを併用した室温での二波長（緑、赤色）可視域、パルス動作分布帰還型（DFB）カラーセンターレーザーを実現した。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	6,700,000	2,010,000	8,710,000
2007年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
2008年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
年度			
年度			
総計	13,700,000	4,110,000	17,810,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・無機材料・物性

キーワード：フェムト秒レーザー、分布帰還型、点欠陥、フッ化リチウム、レーザープロセッシング

1. 研究開始当初の背景

これまでイオン結晶への各種点欠陥（カラーセンター）の導入法として、X線、γ線、電子線等の放射線照射が一般的に用いられてきた。特に本研究で用いたLiF材料は、イオン結晶の着色法で良く用いられる付加着色（母結晶とアルカリ金属を封入し、アルカリ金属の蒸気圧を制御して融点直下付近の高温で加熱することによる着色法）の適用は困

難であり、さらに、唯一着色可能な放射線照射では一様な着色は可能でも、その欠陥に様々な機能を任意の場所に付加することは困難である。また、このLiF材料は他のアルカリハライド材料に比較して、～14 eVと格段に広いバンドギャップのため、この材料に通常の光源を用いて各種機能を付加した新たなデバイスの開発は皆無であった。

このような状況のもと、本研究の初期の着想は、東工大・応用セラミックス研究所(細野秀雄教授)との共同研究によるものである。筆者はそれまで超短パルスカラーセンターレーザー(CCL)の開発に従事してきており、細野グループで開発されていたfs光パルスによる「単一パルス干渉露光法」による微細加工をCCLに導入することにより、小型で新規なレーザー開発に繋がらないかという着想から共同研究を開始した。

2. 研究の目的

本研究では、近赤外で発振するfsレーザーからの干渉した光パルスを用いて典型的な透明材料であるバルクLiF結晶中にレーザー活性なカラーセンターを創出させると同時に、その欠陥に種々の機能的付加価値を持たせ、新たな光電子デバイスを開発することを目的とした。

3. 研究の方法

バルクLiFの F_3^+ センターに基づく緑色スペクトル領域ならびに F_2 センターに基づく赤色スペクトル領域でのDFB CCLの室温同時発振の開発を最終目標として研究を進めてきた。そのため、DFBレーザーで必要となるピッチの広い F_2 センターに基づく赤色スペクトル領域での発振を2006年度に、さらに F_3^+ センターに基づく緑色スペクトル領域での発振を2007年度に終了し、最終年度には、これまで別々の工程で実現してきた二波長領域でのDFB発振を一連の工程で実現する新たな方法の提案と実証を試みた。具体的な工程および研究方法は以下の通りである。

干渉したfsレーザーからの基本波(780 nm)および第2高調波(390 nm)、パルス幅130 fsのパルスをそれぞれの波長領域でブラッグ条件を満たす間隔の周期構造をLiF(大きさ $15 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$)の結晶表面下100 μm 、長さ15 mmに亘り書き込んだ。

大阪府立大学・放射線総合科学研究センタ

ーの協力の下、上記手法で書き込んだ周期構造を有するサンプルを200 Kに冷却しながらエネルギー500 keVの電子線照射を行い、レーザー発振に十分な濃度 10^{17} 個/ cm^3 程度の F_3^+ センターだけを、競合する F_2 センターを抑圧しながら形成した。

緑色スペクトル領域で発振する F_3^+ センターDFBレーザー発振はこのままの状態での工程を実施した。一方、赤色スペクトル領域で発振する F_2 センターDFBレーザー発振は、引き続き473 Kで30分間の異なる熱処理を経て F_3^+ から F_2 センターへのセンター変換を行った。

OPO(Optical Parametric Oscillator)レーザーからのナノ秒パルス(波長460 nm、繰り返し周波数1 Hz、エネルギー1 mJ程度)で両者のサンプルを横励起配置で線状に集光してレーザー発振を実現した。

4. 研究成果

干渉したfsパルスを用いて透明材料のLiF結晶にサブミクロン間隔の周期構造を書き込むと同時にカラーセンターからのルミネッセンスを併用することで緑、赤色可視領域で狭帯域なDFBカラーセンターレーザー発振を世界で初めて実現できた。

干渉したfsパルス照射によりLiF結晶中に周期構造と同時にレーザー活性な F_3^+ センターの導入は可能であるが、その照射だけではレーザー発振に必要な高濃度のカラーセンター導入は不可能であった。そのため、 F_3^+ センターに基づく緑色領域でのDFBレーザー発振では干渉fsパルスで適当な間隔の周期構造を書き込んだ後、さらに低温での電子線照射が必要であった。

F_2 センターに基づく赤色領域でのDFBレーザー発振は、本稿で述べた作製手順以外に、周期構造を書き込んだ試料に室温で線、X線

などを照射することで高い濃度の F_2 センターを形成できる。そして、この試料を 445 nm 光で励起することで容易にDFBレーザー発振が得られる。

室温でLiF結晶にfsパルス照射で形成されたカラーセンターと低温 (~ 200 K) の電子線照射で導入されたカラーセンターは共に F_3^+ センターであった。このことは室温でのfsパルス照射と低温での電子線照射において同様な形成機構でカラーセンターの導入が起っていることを示している。

ここで用いたLiF結晶中の F_3^+ や F_2 センターは他のアルカリハライド材料のカラーセンターに比較すれば室温で熱的、光学的に安定なカラーセンターであるが、長時間安定なレーザー発振は困難であった。今後、本研究で確立した干渉fsパルスによる三次元サブミクロン間隔グレーティング書き込み手法を希土類添加ファイバーに適用することにより、コンパクトで高効率、高性能な新たな可視光ファイバーレーザーの実現を目指している。

以上の結果をまとめると、下記の性能を有するDFBカラーセンターレーザーが実現できた。 F_2 センターに基づく二種類の間隔 ~ 502, 510 nm の周期構造を書き込んだサンプルからの赤色DFBレーザー発振(発振波長 698.0, 710.6 nm, スペクトル幅 ~ 0.1 nm)と一種類の間隔 ~ 380 nm の周期構造を書き込んだサンプルからの F_3^+ センターに基づく緑色DFBレーザー発振(発振波長 536.6 nm, スペクトル幅 ~ 0.5 nm)の室温DFB発振を実現した[図1参照]。傾斜効率は赤色発振で ~ 10%, 緑色で ~ 4%, β - Δ 発散角 ~ 20 mradが得られた。励起閾値エネルギーは緑、赤色領域のDFBレーザー発振においてほぼ同じ 0.8 mJであった[図2参照]。

DFB output spectra based on the F_3^+ , F_2 CCs in bulk LiF, transversely excited with a pulsed OPO laser

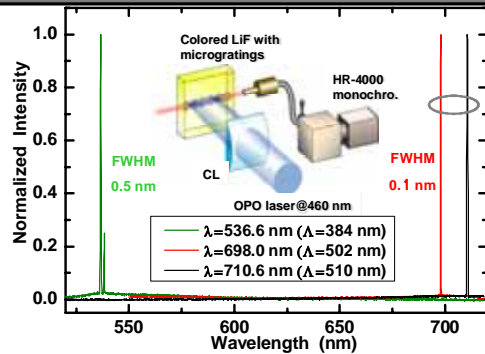


図1 二波長 DFB レーザー発振のスペクトル。

Photographs of the DFB laser oscillation at RT in the green and red spectral regions

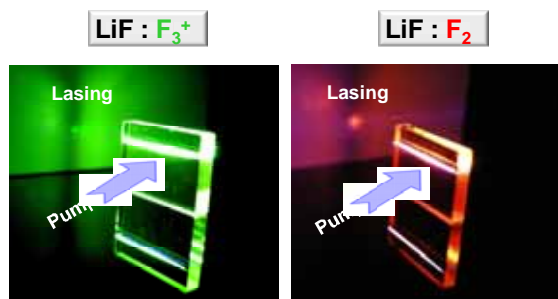


図2 二波長 DFB レーザー発振の写真。

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 6 件)

黒堀利夫, 酒井利明, 青島紳一郎: “透明材料のフェムト秒レーザー干渉加工とその可視域レーザーへの応用”, **37 巻, 7 号**, 掲載確定, 2009, 査読有。

Y.Obayashi, T.Kurobori, Y.Hirose, T.Sakai, S.Aoshima: “Red and Green Distributed Feedback LiF Color Center Lasers Fabricated by Interference of Femtosecond Laser Pulses”, *Rev. of Laser Eng., Suppl. Volume 2008*, 1226-1229, 2008, 査読有。

T.Kurobori, Y.Obayashi, T.Kurashima, Y. Hirose, T. Sakai, S. Aoshima, T. Kojima, S.

Okuda: "An Optoelectronic Device in Bulk LiF with Sub-micron Periodic Gratings Fabricated by Interference of 400 nm Femtosecond Laser Pulses", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B **266**, No. 12-13, 2762-2765, 2008, 査読有.

T.Kurobori, Y.Obayashi, K.Suzuki, Y.Hirose, T.Sakai, S.Aoshima: "Fabrication of Optoelectronic Devices in Lithium Fluoride Crystals by Interfering Femtosecond Laser Pulses", "Nano Electronic Materials", Jpn. J. Appl. Phys. **47**, No. 1B, 685-688, 2008, 査読有.

T.Kurobori, T.Sakai, S. Aoshima: "A narrow band, green-red colour centre laser in LiF fabricated by femtosecond laser pulses", Physica Status Solidi (a) **204**, No. 3, 699-705, 2007, 査読有.

K.Kawamura, T.Kurobori, M.Hirano, H.Hosono: "Femtosecond-laser-encoded distributed feedback Colour Centre Laser in Lithium Fluoride Single Crystal", Proceedings of SPIE, **6400**, 1-9, 2006, 査読有.

[学会発表](計 15 件)

黒堀利夫, 奥田修一, 小嶋崇夫, 岡 喬: "電子線照射による透明材料中の生成とその光電子デバイスへの応用", 大阪府立大学産官学連携機構・共同利用研究会, 2008 年 12 月 15 日

黒堀利夫, 酒井利明, 青島紳一郎: "超短パルスレーザー干渉加工とそのレーザー光源への応用", 第71回レーザー加工学会講演会, 東京大学生産技術研究所, 2008 年 12 月 8 日 (pp85-90, 8B2, 2008, 査読有(招待講演))

鄭望, 黒堀利夫, 酒井利明, 青島紳一郎: "干渉フェムト秒レーザー加工で創るLiF緑色発振分布帰還型レーザー", 平成20年度応用物理学学会・信越支部学術講演会, 金沢工業大学,

2008 年 11 月 21 日

T.Kurobori, W. Zheng, Y. Hirose, T. Sakai, S. Aoshima: "Femtosecond laser encoded dual beam distributed feedback colour centre laser in bulk LiF", in Proceedings of 15th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL 08), We-P-155, 2008.7.7-11, Lyon(pp.573, 査読有)

黒堀利夫, 大林祥宏, 酒井利明, 青島紳一郎: "フェムト秒レーザーによるLiF結晶の微細加工とそのレーザー発振への応用", 2008 春季応用物理学学会 第 55 回学術講演会, 日本大学理工学部, 2008 年 3 月 30 日

大林祥宏, 黒堀利夫, 酒井利明, 青島紳一郎: "フェムト秒レーザーで創る可視域分布帰還型LiFカラーセンターレーザーの開発", レーザー学会学術講演会第28回年次大会, 名古屋国際会議場, 2008 年 1 月 30 日

T.Kurobori, Y.Obayashi, Y.Hirose, T.Sakai, S.Aoshima: "Red and Green Distributed Feedback LiF Color Center Lasers Fabricated by Interference of Femtosecond Laser Pulses", in Proceedings of 6th Asia Pacific Laser Symposium (APLS2008), 2008.1.30-2.1, Field D, Nagoya, p.133, 2008, 査読有.

鈴木健二, 大林祥宏, 黒堀利夫, 酒井利明, 青島紳一郎: "干渉したフェムト秒レーザーで創る可視域分布帰還型LiFカラーセンターレーザー", 平成19年度応用物理学学会・信越支部学術講演会, 富山大学, 2007.11.30, 2F-01, 2007. 2008.

大林祥宏, 鈴木健二, 黒堀利夫, 酒井利明, 青島紳一郎, 岡 喬, 小嶋 崇夫, 奥田 修一: "フッ化リチウム結晶への超短光パルス効果とその光電子素子への応用", 2007 年秋季第 68 回応用物理学学会学術講演会, 北海道工業大学, 5a-ZD-2, 2007 年 9 月 5 日

T.Kurobori, Y.Obayashi, T.Kurashima, K.

Suzuki, T.Sakai, S.Aoshima: "A Distributed Feedback LiF Colour Centre Laser Fabricated by Interfering Femtosecond and Nanosecond Laser Pulses", in Proceedings of 14th International Conference on Radiation Effects in Insulators, 2007.8.28-9.1, Caen, France, A-2, 2007, 査読有.

黒堀利夫: "透明材料のフェムト秒レーザー微細加工と放射線マイクロイメージングへの応用", 大阪府立大学産官学連携機構・放射線研究センター講堂、大阪府立大学産官学連携機構・放射線研究センター平成 18 年度共同利用報告会特別公演. 2007 年 6 月 27 日

T.Kurobori, Y.Obayashi, K.Suzuki, T.Sakai, S.Aoshima: "Fabrication of Optoelectronic Devices in Lithium Fluoride Crystals by Interfering Femtosecond and Nanosecond Laser Pulses", in Proceedings of International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies, 2007.6.19-22, Nagano, 1A-15, 2007, 査読有.

K.Kawamura, T.Kurobori, M.Hirano, H. Hosono: "Femtosecond laser encoded Distributedfeedback Colour Centre Laser in Lithium Fluoride Single Crystal", in Proceedings of 3rd SPIE European Symposium on Optics/Photonics in Security and Defense , 2006.9.11-16, Stockholm, Sweden, Vol. 6400-19 , 2006, 査読有(Invited Paper).

瀧川明生, 黒堀利夫, 酒井利明, 青島紳一郎: "フェムト秒レーザーを用いたフッ化リチウム単結晶への微細加工と広帯域発振への試み", 2006 年秋季第 67 回応用物理学会学術講演会, 立命館大学, 1p-R-3, 2006 年 9 月 1 日

⑮ T.Kurobori, T.Sakai, S. Aoshima: "A Narrow Band, Green-Red Colour Centre Laser in LiF fabricated by Femtosecond Laser Pulses", in Proceedings of 10 th Europhysical conference on

Defects in Insulating Materials, Eurodim2006, 2006.7.10-14, Milano, University of Milano-Bicocca, KWeA,6(査読有 (Keynote Lectures))

[図書](計 1 件)

黒堀利夫:エレクトロニクス材料・技術シリーズ(監修:細野秀雄,平野正浩), "透明酸化物機能材料とその応用", シーエムシー出版 (2006) 340 頁.

6. 研究組織

(1)研究代表者

黒堀 利夫 (KUROBORI TOSHIO)
金沢大学・人間科学系・教授
研究者番号:90153428

(2)研究分担者

青島 紳一郎 (AOSHIMA SHIN-ICHIRO)
浜松ホトニクス・中央研究所・室長
研究者番号:70393931