# 科学研究費補助金研究成果報告書

平成21年5月28日現在

研究種目:基盤研究(B) 研究期間:2007〜2008 課題番号:19350102 研究課題名(和文) ガラス中のレーザー誘起衝撃波の3次元制御と3次元光デバイスの創成 研究課題名(英文) Three-dimensional synthesis of laser-induced shockwave in glass and a development of three-dimensional optical devices 研究代表者 早崎 芳夫 (HAYASAKI YOSH10)

早崎 方天 (HAYASAKI YUSHIU) 宇都宮大学・オプティクス教育研究センター・准教授 研究者番号:10271537

研究成果の概要:

本研究では、ホログラムを用いたガラスのフェムト秒レーザー加工において、レーザー照射 において起こる高速な現象の動的な変化をポンプ・プローブ干渉顕微鏡により観測した.特に、 レーザーパルスを同時並列に照射した時に起こる特有な現象として、マイクロプラズマの衝突 や衝撃波の合波・反射を発見できた.さらに、ライン状に成形したパルスによる回折格子の作 製や計算機ホログラムの2光子吸収最適化法の開発に成功した.

#### 交付額

(金額単位:円)

	直接経費	間接経費	合 計
19年度	10,000,000	3,000,000	13,000,000
20年度	4,400,000	1,320,000	5,720,000
年度			
年度			
年度			
総計	14,000,000	4,320,000	18,720.000

研究分野: 化学

科研費の分科・細目: 材料化学・無機工業材料

キーワード: ガラス、レーザー加工、干渉顕微鏡、計算機ホログラム、3次元光デバイス

1. 研究開始当初の背景

(1)ガラスにおけるフェムト秒レーザー誘起現 象の解明

ガラスは、多種多様であり、高い光透過性、 耐熱性、化学的安定性、電気絶縁性など優れ た特性を有し、さらに、ドーピングによって 色々な機能を付加される.ガラスをはじめと する透明材料内部は、フェムト秒レーザーパ ルスを集光照射すると、多光子吸収、プラズ マ発光、衝撃波、微小爆発などの多様な物理 現象を介して、屈折率変化や空洞を形成され る.従って、ガラス有する高機能性と内部加 工との相乗効果により、新しいデバイスの創 成が可能となる.しかしながら,透明材料へのフェムト秒レーザー照射において,次々と新しい現象が発表されており,レーザー照射から改質や構造変化までの多光子吸収や格子振動,衝撃波,熱拡散など一連の物理現象において未解明な点が多い.

(2)フェムト秒レーザー加工の高スループット 化のためのホログラフィック加工

既存のフェムト秒レーザー加工は,対象内 部に構造を形成するために,対象を自動スー ジで移動し,1点づつの逐次的加工のため, 加工スループットや光利用効率が極めて低い. フェムト秒レーザー加工をナノメートルスケ ールの加工技術として産業化する上で、並列 化による高スループット化と高光利用効率化 は必要不可欠である.申請者らは、空間光変 調素子に表示されたホログラムを用いてフェ ムト秒レーザーパルスを空間的に成形して同 時並列に複数点の加工を行うホログラフィッ クフェムト秒レーザー加工を提案・実証した.

# (3) ガラス加工におけるホログラフィックフ ェムト秒レーザー加工の課題

逐次加工と並列加工とではエネルギーを同 ーに照射しても、レーザー照射によって誘起 される現象の相互作用によって、最終的に形 成される構造が異なる.ホログラフィックフ ェムト秒レーザー加工のような並列レーザー 加工において、加工形状に強く関連するレー ザー誘起現象の解明は、ほとんど行われてい ない.

(4)レーザー誘起衝撃波の制御

レーザー誘起衝撃波はガラス内部に形成さ れる屈折率変化や空洞形成に強く関係してい る.ガラス内部にレーザーを並列に照射して 誘起される衝撃波の観測に加えて,並列に照 射するレーザーの位置や時間を調整してレー ザー誘起衝撃波の制御した新しい加工法の開 発を期待できる

# (5)まとめ

ホログラフィックフェムト秒レーザー加工 技術を使うことによって、複数点の加工を同 時に行うという量的変化だけではなく、レー ザー誘起現象間の非線形な相互作用を介して、 材料の光制御や光加工に高品質化や省エネル ギー化などの質的変化をもたらす.

2. 研究の目的

#### 研究目的の概要

本研究は、ホログラフィによりフェムト秒 レーザーの強度分布を3次元的に制御し、ガ ラス内部に屈折率変化や空洞を形成する技術 において、加工形状に強く影響する衝撃波の 動的変化を解明し、レーザーパルスを時間 的・空間的に制御することで、3次元光ガラ スデバイスの高速・高効率・高品質な製造技 術の開発を目指す.具体的には、以下の通り である.

(2)フェムト秒レーザーパルスをホログラムに より空間的に多数に分割して同時並列に照射 した時の位相変化をポンプ・プローブ干渉顕 微鏡により測定し、レーザー誘起現象をフェ ムト秒からマイクロ秒の時間オーダーで解明 する.

(2)ホログラフィック加工法における高性能な ホログラムの最適化法を開発する.

(3)並列パルス照射における諸現象の解明を通 して,高精度に3次元ガラスデバイスの加工 を行うためのレーザー照射条件を探索する.

# 3. 研究の方法

(1) 研究方法の概要

はじめに、ポンプ・プローブ干渉顕微鏡の 構築を行った.次に、その装置を用いてガラ ス中のレーザー照射のエネルギーやパターン をパラメータとして誘起現象の時間分解測定 を行った.それと同時に、ホログラフィック フェムト秒レーザー加工における新しいホロ グラムの設計法の開発やホログラフィックフ ェムト秒レーザー加工を用いたガラス光デバ イスの作製を行った.

#### (2) ポンプ・プローブ干渉顕微鏡

ガラス内部にフェムト秒レーザーを照射に より生じるレーザー誘起現象を観測するため に、ポンプ・プローブ法に基づく時間分解顕 微観測を実施する.研究開始当初、透過明視 野像を用いて、レーザー誘起現象を観測して いたが、ガラスの密度変化を定量的に観測す るために、図1に示すポンプ・プローブ干渉 顕微鏡を構築した.

ポンプ光は、再生増幅型チタンサファイア レーザー(λ=800nm)であり、プローブ光はその 第2高調波(λ=400nm)であった.ポンプ光は、 ビームスプリッタで分岐されガラス内部に照 射された.その時、第2高調波がガラスの加 工部位に光学ディレイを与えて照射され、そ の透過光を拡大光学系と干渉光学系で CCD イメージセンサー上に干渉像が形成された. 干渉像からコンピュータでフーリエ変換法を 用いて位相像が計算された.光学ディレイを 変化させながら、干渉像を記録し、加工部周 辺の時間変化が観測された.



(3)透明材料中のレーザー誘起現象の観測

ポンプ・プローブ干渉顕微鏡を用いて,ガ ラス内部にフェムト秒レーザー誘起現象が観 測された.顕微鏡用カバーガラス(ソーダ石 灰ガラス)がサンプルとして用いられた.ま た,ホログラフィックフェムト秒レーザー加 工の生体材料への適用を想定していたので, 水もサンプルとして用いられた.

# (4)フェムト秒レーザーの照射パターンに対す るレーザー誘起現象の生成

2次元的な照射パターンに対する衝撃波パ ターンを観測と解析を行った.本研究では, 主に単一照射と並列2点照射の比較を通して, 誘起現象間の相互作用を観測した.また,線 状照射や円形照射によって,衝撃波の重ね合 わせを観測した.

(5)新しいホログラムの設計法の開発

設計したホログラムを計算機の中で再生した場合,ピーク強度のバラツキは,最高 0.1% 程度まで抑えることに成功したが,加工光学系で再生すると,光強度分布のバラツキや空間光変調素子の空間応答特性や入出力特性の 空間的なバラツキ等により数%以上のエラーとなってしまう.光強度分布や空間応答特性 を考慮してホログラムの設計を行っているが 十分ではない.そこで,ホログラムの回折パ ターンを観測しながら,その結果をもとにホ ログラムを設計する手法が開発された.

# (6)ガラス内3次元構造光デバイスの作製

ホログラフィックフェムト秒レーザー加工 のデモンストレーションのために,回折格子 が作製された.

4. 研究成果

#### (1)研究成果の概要

主な研究成果は、「フェムト秒レーザー誘起 現象観測するためのポンプ・プローブ干渉顕 微鏡の構築」、「ガラス材料中でのレーザー誘 起現象の観測」、「衝撃波パターンの生成」、「新 しいホログラム設計法の開発」、「光デバイス の作製」である.

# (2) ポンプ・プローブ干渉顕微鏡の構築

図 2(a)は、サンプル面で 50nJ のポンプパル スを NA=1.25 の対物レンズでカバーガラス中 に集光後 500ps でプローブ光を照射したとき の干渉像である.写真の実サイズは 17.5µm である.図 2(b)は、その干渉像から得られた 位相像である.位相は明るさで示されている. 明点は、ポンプパルスを集光した位置であり、 周辺よりも位相が進んでいるため,周辺より も低い屈折率を有していおり.マイクロプラ ズマからキャビテーションバブルに変化して いる状態であった.暗の同心円は,マイクロ プラズマの膨張によって形成された衝撃波が, マイクロプラズマから切り離された後に周辺 に伝搬している様子である.このように,ポ ンプ・プローブ干渉顕微鏡と干渉縞の計算機 処理を行う計測システムを構築できた.



図 2 (a) ポンプ・プローブ干渉顕微鏡で得られ たレーザー照射後 500psの干渉像. (b) 干渉像 からフーリエ変換法によって得られた位相像.

(3) ガラス中でのレーザー誘起現象の観測

ポンプ・プローブ干渉顕微鏡を用いて、照 射エネルギー,光学ディレイ,照射パターン (単一照射,並列2パルス照射)を変えて, レーザー誘起現象に伴う位相像を観測した. サンプルには、カバーガラスを用いた. 図 3 は単一パルス照射における誘起現象の位相分 布の時間変化を示す.ディレイ時間 Tは、そ れぞれ, (a) 0, (b) 10, (c) 120, (d) 500 ps であ った. パルスエネルギーは 25 nJ であった. T=10 psの時, 集光点で位相が正に変化した. これは多光子吸収によるマイクロプラズマの 生成により,屈折率が低下したためである. 屈折率変化の生じた領域の直径は約 400nm であった. T=120 ps の時, プラズマ周囲の負 の位相変化が、プラズマの膨張によるガラス の圧縮により,屈折率が上昇したためである. T=500 ps では、プラズマの膨張速度が衝撃波 の伝搬速度よりも低くなったため、衝撃波が 切り離され、時間経過とともに外側へ伝播し た.この衝撃波の伝播速度は5300m/sであり、 ガラス中の音速 5400m/s とほぼ一致した.

図4は、照射エネルギーを変化させたときの屈折率変化を示す.集光点での正の位相変化は、照射エネルギー25nJ前後から35nJ程度まで急激に増大し、それ以降150nJまでは、大きな変化はなかった.位相変化は、屈折率の変化とその屈折率変化領域の大きさによって決まるので、その急激な増加は、照射エネルギーの増大に伴って、励起された径方向の領域の拡大によるものである.それ以降のエ

ネルギーでは、位相がほぼ一定であることか ら、径がほぼ一定となっていたことが予想さ れる.一方、衝撃波による負の位相変化は、 エネルギー増加に伴って増加しているため、 長さ方向に増加していることが予想される.



図3 単一パルス照射の位相分布の時間変化. (a) *T*=0, (b) 10, (c) 120, (d) 500 ps.



フェムト秒レーザーパルスをガラス中に並 列照射した時の位相の時間変化を図5に示す. ディレイ時間 Tは, それぞれ, (a) 0, (b) 10, (c) 120, (d) 500 ps であった. パルスエネルギー はそれぞれ 25 と 27 nJ であった. 照射間隔は 1.0µm であった. 集光点におけるプラズマ生 成による正の位相変化と衝撃波により負の位 相変化は、単一パルス照射のときと同様であ った. 並列照射の場合, パルス照射位置の間 に単一照射で観測された衝撃波の位相変化に 比べて大きな負の位相変化が観測された.こ れは2つのプラズマの膨張により圧縮された ためである.2 つの集光点から発生された衝 撃波は、合波され、1つのオーバル型の衝撃 波に変化した. これは, パルス照射点の調整 により多様な形状の衝撃波を生成できること 示唆している.



図5 並列パルス照射の位相分布の時間変化. (a) *T*=0, (b) 10, (c) 120, (d) 500 ps.

(3)衝撃波パターンの生成

衝撃波パターンの合成実験は、衝撃波によ る屈折率変化が大きい水を用いて行った.上 記の2点照射に加えて、線形照射や円形照射 により衝撃波が合成できることを実証した.

(4) ホログラムの2光子吸収最適化法の開発 フェムト秒レーザー加工では,多光子吸収 過程が支配的であることから,2光子カメラ を用いて回折ビームを評価し,ホログラムを 再計算する2光子吸収最適化法を提案・実施 した.図6は,それぞれ,計算機内で光強度 で最適化されたホログラムと2光子吸収最適 化法により設計されたホログラム,それぞれ の2光子吸収カメラ得られた回折像である. それぞれの回折光の均一性は,0.76と0.95で あった.図7は,2光子最適化時の回折ピー クの均一性の変化である.2光子吸収最適化 法を用いて均一な並列回折ビームの生成に成 功した.



図 6(a)計算機で最適化されたホログラムと回 折の2光子吸収像.(b)2光子吸収最適化法で 設計されたホログラムと回折の2光子吸収像.



図7適応的最適化における2光子吸収像における回折ピークの均一性の変化.

(5) 光デバイスの作製(回折格子の作製)

レーザーパルスをホログラムによりライン 状に成形し、単一ショットで、 ライン状の構 造を作製した.図 8(a)は矩形窓の回折型円筒 レンズを用いて作製した回折格子で、照射エ ネルギーは 4μJ であった. ラインビームのエ ッジでビーム強度が変化し、作製されたライ ン構造が乱れていた.これを解決するために, 赤池窓という窓関数を用いて回折型円筒レン スを成形した.図 8(b)に示すように、赤池窓 により補正された回折型円筒レンズを用いて 照射エネルギーは 4uJ で作製された回折格子 が作製された. それは、矩形窓と同程度の幅 と高い均一性を有していた. その長さは44µm であった. これらは, 開口数 0.85 の 60 倍対 物レンズを用いて作製した. 開口数 0.40 の 20 倍対物レンズを使用することによって、最大 の長さ130µmのラインを作製できた.

QuickTimeý C² êLí£ÉvÉcÉOÉâÉÄ C™C±CÃÉsÉNÉ`ÉÉC¾©CÈCŽC½C...CÕĭKóvC-CÁE

(a)

QuickTimeý C² ≜Lí£¢E¢EOEâÉĀ C™C±CĂÉsÉNÉ`ÉÉC%å©ČÉCZC%C...CÕĭKóvC-CÅB

(b) 図 8 (a)矩形窓, (b)赤池窓で設計された回折型 円筒レンズを用いて作製された格子.

- 5. 主な発表論文等
- 〔雑誌論文〕(計11件)
- Masaki Yamamoto, Hirotsugu Yamamoto and <u>Yoshio Hayasaki</u>, Photon-counting digital holography under ultraweak illumination, Optics Letters Vol. 34, No. 1, pp. 1081-1083 (2009). 査読有
- ② Masaya Miyazaki and <u>Yoshio Hayasaki</u>, Motion control of low-index microspheres in liquid based on optical repulsive force of focused beam array, Optics Letters Vol. 34, No. 6, pp. 821-823 (2009). 査読有
- ③ Satoshi Hasegawa and <u>Yoshio Hayasaki</u>, Adaptive optimization of hologram in holographic femtosecond laser processing system, Optics Letters Vol. 34, No. 1, pp. 22-24 (2009). 査読有
- ④ Shingo Tamano, Mistue Otaka, <u>Yoshio</u> <u>Hayasaki</u>, Phase-shifting digital holography using two low-coherence light sources with different wavelength, Japanese Journal of Applied Physics Vol. 47, pp.8844-8847 (2008). 査読有
- ⑤ Hidetomo Takahashi, Satoshi Hasegawa, <u>Akihiro Takita</u>, <u>Yoshio Hayasaki</u>, Sparseexposure technique in holographic two-photon polymerization, Optics Express Vol. 16, No. 21, pp. 16592-16599 (2008). 査 読有
- ⑥ Keiji Fujita, <u>Akihiro Takita</u>, Kan Nagao, Tetsuo Ichikawa, <u>Yoshio Hayasaki</u>, Data recording on dental prostheses for personal identification, Japanese Journal of Applied Physics Vol. 47, No. 9, pp.7190-7194 (2008). 査読有
- ⑦ <u>Yoshio Hayasaki</u>, Holographic femtosecond laser processing and three-dimensional recording in biological tissues, Progress In Electromagnetics Research Letters, Vol. 2, pp. 115-123, (2008). 査読有
- ⑧ Kouta Chaen, Hidetomo Takahashi, Satoshi Hasegawa and <u>Yoshio Hayasaki</u>, Display method with compensation of the spatial frequency response of a liquid crystal spatial light modulator for holographic femtosecond laser processing, Optics Communications Vol. 280, No. 1, pp. 165-172 (2007). 査読有
- ④ Hidetomo Takahashi, Satoshi Hasegawa and <u>Yoshio Hayasaki</u>, Holographic femtosecond laser processing using optimal-rotation-angle method with compensation of spatial frequency response of liquid crystal spatial light modulator, Applied Optics Vol. 46, No. 23, pp. 5917-5923 (2007). 査読有
- ① Satoshi Hasegawa and <u>Yoshio Hayasaki</u>, Holographic femtosecond laser processing

with multiplexed phase Fresnel lenses displayed on the liquid crystal spatial light modulator, Optical Review Vol. 14, No. 4, pp. 208-213 (2007). 査読有

 Yoshio Hayasaki and Daiki Kawamura, High-density bump formation on a glass surface using femtosecond laser processing in water, Applied Physics A, Vol. 87, No. 4, 691-695 (2007). 査読有

〔学会発表〕(計100件)

(招待・依頼講演)

- ① <u>早崎芳夫</u>,長谷川智士,<u>田北啓洋</u>,ホログ ラムを用いたフェムト秒レーザープロセ ッシング,電子情報通信学会,2009 年総 合大会,愛媛大学,2009 年 3 月 20 日
- ② <u>早崎芳夫</u>,空間光波面制御技術とその応用,光通信フォーラム 2009,学士会館, 東京,神田,2009年3月10日.
- ③ <u>Y. Hayasaki</u>, Holography in femtosecond laser processing, International Topical Meeting on Information Photonics 2008, (Awaji, Nov. 16-20, 2008).
- ④ <u>早崎芳夫</u>, フォトンカウンティングデジ タルホログラフィ, Optics and Photonics Japan 2008, つくば, 2008 年 11 月 4-6 日.
- ⑤ <u>早崎芳夫</u>,液晶空間光変調素子の使い方と空間波面制御技術の今後の展開,第69回応用物理学会学術講演会,シンポジウム「新分野を切拓く空間光波面制御技術」,中部大学,2008年9月3日.
- ⑥ <u>早崎芳夫</u>,空間光変調素子を用いた並列 フェムト秒レーザー加工,財団法人 光産 業技術振興協会,多元技術融合光プロセ ス研究会 第2回研究交流会,機械振興会 館,東京,2008年8月27日.
- ⑦ Yoshio Hayasaki, Holographic femtosecond laser processing, Optical Society of Korea, Summer Meeting 2008, (Pheonix Park, Korea, July 10-11,2008).
- (8) <u>Yoshio Hayasaki</u>, Holographic femtosecond laser processing and three-dimensional recording in biological tissues, Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIE RS 2008), (Hangzhou, China, Mar. 28, 2008).
- ⑨ <u>早崎芳夫</u>, 生体情報メディア 爪と歯科 補綴物への光記録-, Information Photonics 2008 (IP2008) プレミーティング 2007, 淡 路, 2007 年 12 月 20-21 日.
- ① <u>早崎芳夫</u>,フェムト秒レーザーを用いた 高速・高精度な加工技術,高分子学会第16 回ポリマー材料フォーラム,東京,2007年 11月29日.
- ⑪ <u>早崎芳夫</u>, フォトンカウンティングディ

ジタルホログラフィー,応用光学懇談会 第135回講演会,大阪,2007年11月22日.

① Yoshio Hayasaki, Holographic femtsecond laser processing by use of a liquid crystal spatial light modulator, SPIE/COS Photonic Asia 2007(Beijing, China, Nov. 11-15, 2007).

上記の招待・依頼講演に加えて,国際会議発表14件,国内会議発表74件.

〔図書〕(計2件)

- 早崎芳夫、エレクトロニクスにおけるガラ スの超精密加工、第4章、第2節、ホログ ラフィックフェムト秒レーザーによるガ ラスの加工、pp.243-256(技術情報協会、 2008.3).
- ② H. Yamamoto, Y. Hayasaki, N. Nishida, "Chapter 10: Large Stereoscopic LED Display by Use of a Parallax Barrier," in Three-dimensional Imaging, Visualization, and Display (B. Javidi, F. Okano, and J.-Y. Son, ed., Springer), pp. 183-206 (2009).

〔産業財産権〕 ○取得状況(計1件)

- 名称:爪の加工方法 発明者:早崎芳夫,山本裕紹 権利者:株式会社テクノネットワーク四国 種類:特許 番号:第4103986 取得年月日:2008年4月4日 国内外の別:国内
- [その他]
- EnCollege 物理7月号(Benesse 進研ゼミ高校講座)"18歳のきみへ、科学者たちのメッセージ「個人情報など大切なデータを爪に記録!」"(2007) (2008).
- ② ワクワク発見ブック、チャレンジ4年生 (進研ゼミ小学講座)10月号、「情報はつ めに記録される」(2008)

6. 研究組織

(1)研究代表者
早崎 芳夫(HAYASAKI YOSHIO)
宇都宮大学・オプティクス教育研究センター・准教授
研究者番号:10271537
(2)研究分担者
田北 啓洋(TAKITA AKIHIRO)
宇都宮大学・オプティクス教育研究センター・特任研究員

研究者番号:20432768

(3)連携研究者 なし