

# 光デバイスへ向けた紫外線硬化樹脂と 磁性体の三次元光造形

東京工業大学 雨宮 智宏・Zhichen Gu・庄司 雄哉  
水本 哲弥・荒井 滋久  
(国研)理化学研究所 田中 拓男  
岡山大学 石川 篤

## 1. はじめに

1990年代に入って目覚ましい発展を遂げたTi:Sapphireレーザーを代表とする固体フェムト秒レーザー技術であるが、その主な利用先は、“分光”と“加工”に大別されるのではないかと思う。“分光”とは、フェムト秒パルスによる「超高速計測<sup>(1)</sup>」や高い光子密度を利用した「非線形分光<sup>(2)(3)</sup>」などを指すが、まさに本領域の花形といったところである。一方の“加工”については、光の回折限界を超える高い分解能を達成すると同時に三次元加工をも可能にする「多光子吸収光造形<sup>(4)(5)</sup>」がその代表格である。

多光子吸収は非線形現象の一種であり、高いピーク出力を有するフェムト秒レーザーを微小空間に絞り込むことによって、時空間的に密度が極めて高いフォトンと物質とが相互作用することで発現する。上記現象は古くから研究されており、可視・近赤外波長域のフェムト秒レーザービームを各種透明材料中（シリカガラス・ダイヤモンド・紫外線硬化樹脂など）に集光照射し、焦点付近に多光子吸収を誘起させることで、様々な三次元構造が作製可能であることが報告されている<sup>(6)~(8)</sup>。

本稿では、これらの“加工”技術を実際に実用デバイスに応用することを念頭に、当グループが行った研究を紹介する。具体的には、加工材料として紫外線硬化樹脂と透明磁性体の二種類に着目し、フェムト秒レーザー照射による三次元造形およびそれらの光デバイス応用について言及する。

## 2. 紫外線硬化樹脂の 三次元加工と光デバイス応用

多光子吸収光造形による紫外線硬化樹脂（フォトポリマー）の三次元ナノ・マイクロ加工は1990年代後半より行われているが<sup>(9)(10)</sup>、これが実際に、光デバイスに対する実用技術となり得ることが認知されたのは、2012年とつい最近の話である<sup>(11)</sup>。前述したように、多光子吸収光造形を用いれば、フェムト秒レーザーを掃引するだけで、三次元のポリマー構造を直接的に形成可能となる。この特長を活かすことで、後工程で各種光デバイスを三次元ポリマーでフレキシブルに接続し、光モジュール化に伴う精細なレンズ設計・配置工程を省くことが可能となる。シリコン光回路のへきかい面に三次元ポリマー細線やポリマーレンズを造形することで、他のチップや光ファイバとの接続が実証されており、既に実用段階に入っている<sup>(12)(13)</sup>。また、本研究を足掛かりとして、多光子吸収レーザーリソグラフィを主力とするNanoscribe GmbH（カールスルーエ工科大学のスピンオフ）も立ち上がっており<sup>(14)</sup>、産学両面から実用体制が整いつつある。

当グループでは、上記技術を用いて光源（半導体レーザー）とシリコン光回路を接続することを考えている。通常、光源には直接遷移半導体であるⅢ-V族半導体（InP、GaAsなど）が要求されるため、材料系の異なるシリコン（Si）光回路に光を導入することは容易ではない。最も一般的なのは、個々の素子をディスクリートにレンズおよびファイバを介して繋ぐ手法であるが、近年、各種接合技術を用いて、化合物半導体を対象チップに貼り付けることで、光を直接導入することも試みられている（ハイブリッド集積）<sup>(15)</sup>。本節では、

フェムト秒レーザーによる多光子吸収光造形が、それらに対して優れた手法であることを示す。

本研究では、Ⅲ-V族半導体光源および受光器チップ間を、多光子吸収光造形により形成した三次元ポリマー細線で直接接続することを考える (図1(a)参照)<sup>(16)(17)</sup>。本研究で用いた光源は、極低消費電力動作を目的として当グループで開発された特別な半導体レーザーであり<sup>(18)~(20)</sup>、コア層の上下を低屈折率な誘電体で挟み込むことで、光閉じ込め係数を従来の素子に比べて約3倍程度に高めている。

この時に重要な要素の一つは、光源と三次元ポリマー細線との結合効率である。そこで、まず結合効率を算出することで、三次元ポリマー細線の形状設計を行った。計算モデルを図1(b)に示す。まず、紫外線硬化樹脂としてSU-8 (MicroChem社) を選択した。また、光源の構造としては、参考文献(18)と同一とした (活性層は、上下を100 nmのi-InPで挟まれた5層のu-GaInAsP歪補償量子井戸層、横方向電流注入のために、左右はp-InP、n-InPの埋め込み)。

解析手順としては、はじめに有限要素法 (Finite Element Method : FEM) を用いて光源およびポリマー細線のモード解析を行い、その後、それらの重なり積分を計算することで結合効率を算出した。本研究では、ポリマー細線の断面アスペクト比は1 : 1に固定し、通信帯域である波長1,550 nmの光に対して解析を行った。

図2(a)と2(b)に計算されたモード特性および各モードへの結合効率の細線径依存性を示す。ポリマー細線径が1.25  $\mu\text{m}$ 以下であれば、高次モードへの結合を起すことなく完全なシングルモード伝送を得ることが可能になる。また、ポリマー細線径が1.25  $\mu\text{m}$ から2.5  $\mu\text{m}$ の場合も、高次モードへの結合効率は10%以下に抑えられる。何れの場合も、基本モードであるHE<sub>11</sub>モードへの結合効率は50%以上 (結合損損失

3dB以下) となっており、ポリマー細線径が1.0  $\mu\text{m}$ から2.5  $\mu\text{m}$ の範囲では、比較的効率の良い結合が得られることが予想される。

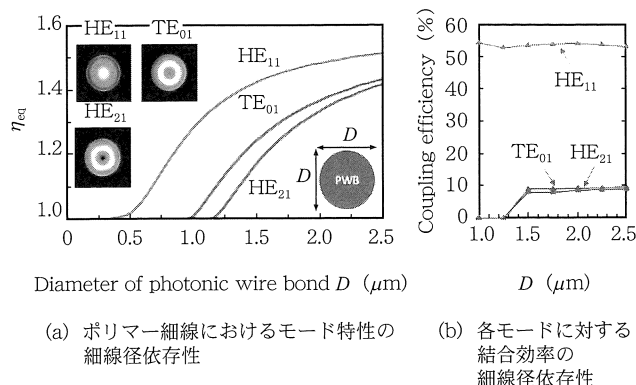


図2

実験では、光源と受光器のチップとして、当グループで開発された薄膜素子<sup>(18)~(20)</sup>を使用した。まず、Si基板上にスピコートによってベンゾシクロブテン (Benzocyclobutene : BCB) を塗布した後、各チップを貼り付け、ベーキングしてBCBを固化させた。その後、約200  $\mu\text{m}$ のSU-8を基板全体に塗布し、この基板に対してTi:Sapphireレーザー (波長800 nm、パルス幅80 fs、繰り返し周波数82 MHz) を対物レンズ (開口数 : 0.95) で集光照射し、速度10  $\mu\text{m}/\text{s}$ で掃引を行った。最後にSU-8 developerにより現像を行い、露光領域以外を除去した。

前述したように、ポリマー細線の単一モード伝送、かつ理想的な結合効率を実現するために、適切なポリマー細線の形状を得る必要がある。そのため、本研究ではまず多光子吸収プロセスにおいて、Ti:Sapphire

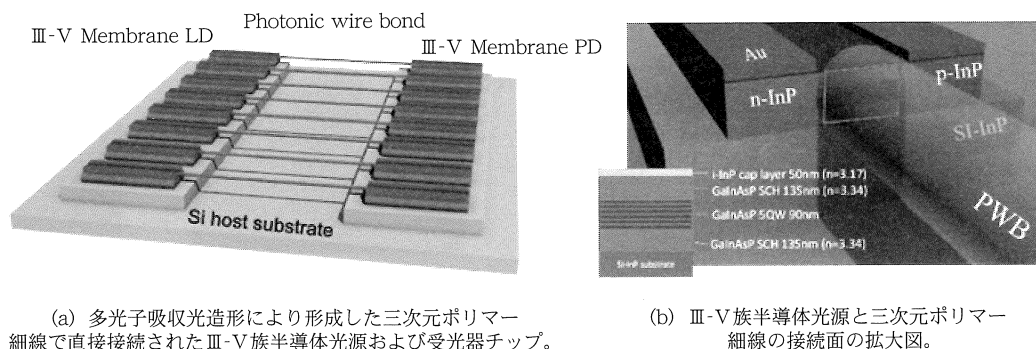


図1

レーザー出力をパラメータとして、ポリマー細線の形状の検討を行った。図3に、 $10\ \mu\text{m/s}$ の掃引速度下において作製されたポリマー細線径のレーザー出力依存性を示す(点線は各々、フェムト秒レーザーのビームウェストが $0.5\ \mu\text{m}$ 、 $0.7\ \mu\text{m}$ と仮定したときの理想線である)。レーザー出力が $56\sim 88\ \text{mW}$ の範囲で、多光子吸収に基づく明瞭な露光が確認でき、ポリマー細線径が $1.5\ \mu\text{m}$ から $2.5\ \mu\text{m}$ まで調整可能であることが分かった。

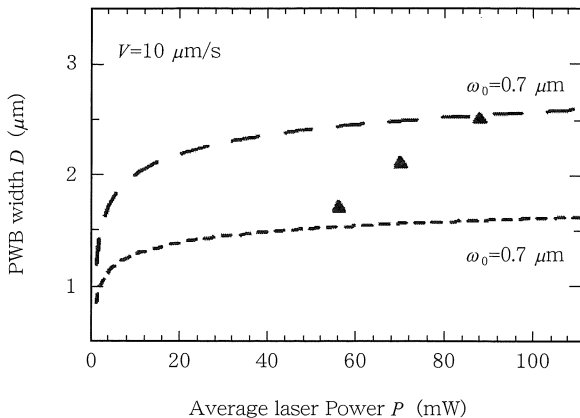


図3  $10\ \mu\text{m/s}$ の掃引速度下において作製されたポリマー細線径のレーザー出力依存性  
点線は各々、フェムト秒レーザーのビームウェストが $0.5\ \mu\text{m}$ 、 $0.7\ \mu\text{m}$ と仮定したときの理想線である。

図4(a)(b)に光源-受光器間を三次元ポリマー細線で接続したチップの概要図および光学顕微鏡画像を記載する。このとき、光源からの光が受光器に直接入ることがないように、光源チップと受光器チップの導波路中心を横方向に $40\ \mu\text{m}$ 程度ずらして、Si基板上に実装(BCB接合)し、それらの間をポリマー細線によって

接続した。本素子における三次元ポリマー細線の走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)画像を合わせて図4(c)に示す。幅 $2\ \mu\text{m}$ 程度のポリマー細線が、位置ずれ数 $100\ \text{nm}$ の範囲内で高精度で作製可能であることが分かった。ここで、ポリマー細線を各素子の端面に固定するため、素子上にもレーザーを $20\ \mu\text{m}$ 程度掃引している。

図5(a)に、ポリマー細線で接続した光源・受光器のペアと、接続していない光源・受光器のペアの特性を比較した実験結果を示す。光源への注入電流が $30\ \text{mA}$ 時において、ポリマー細線で接続していない受光器では $220\ \text{nA}$ 程度の電流値であるのに対して、ポリマー細線を接続した受光器においては $3.0\ \mu\text{A}$ 以上の出力が得られた。また、図5(b)には、光源の出力特性(図4(a)の $P_1$ )と受光器で観測された電流量(図4(a)の $I_{pd}$ )の関係を示したものであり、閾値の一致から鑑みても、光源からの出射光が受光器に適切に伝送していると結論付けられる。最終的に、図5(b)の結果と、光源および受光器単体の性能から、接続損失はおよそ $10\ \text{dB}$ であることが見積もられた<sup>(17)</sup>。

### 3. 透明磁性体の三次元加工と光デバイス応用

前節では、多光子吸収光造形を用いたチップ間の光伝送技術について解説したが、非線形光吸収に基づく本手法は、チップ内に三次元光回路を作り上げることも可能にする。光回路を構成するチップに、特定の透明固体材料を選べば、材料中の屈折率を局所的に変化させた三次元構造を作り上げることが可能となる。透明材料の中でも、シリカガラスについては1990年代後半より研究が始まり<sup>(21)</sup>、現在までに、数多くの光通信用途の三次元伝送路が報告されている<sup>(22)</sup>。

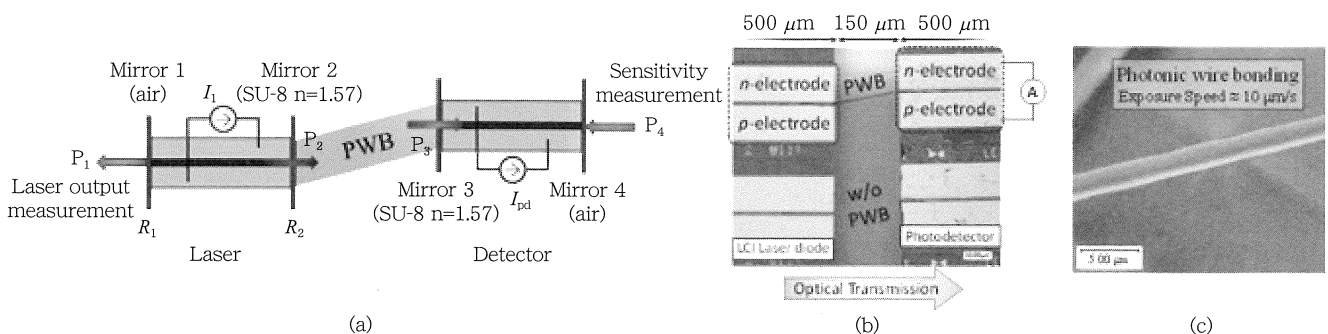
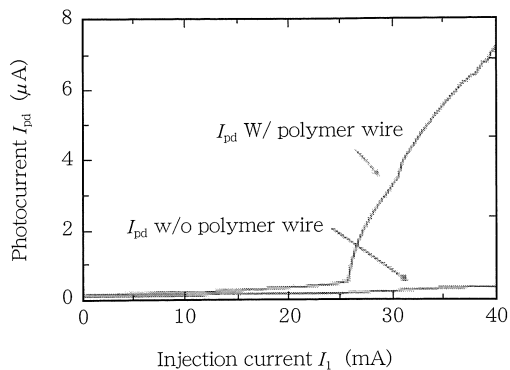
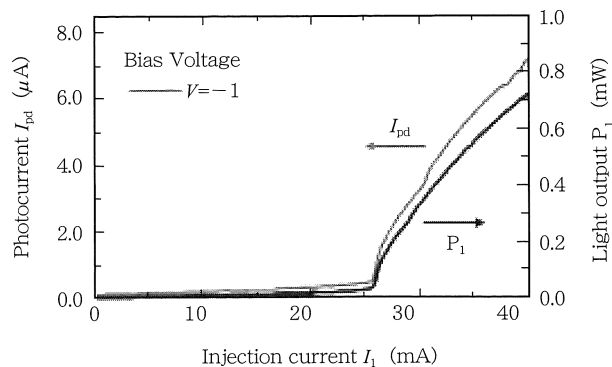


図4 (a)、(b) 光源-受光器間を三次元ポリマー細線で接続したチップの概要図および光学顕微鏡画像、(c) 三次元ポリマー細線の走査型電子顕微鏡画像



(a) ポリマー細線で接続時・非接続時における、光源に注入した電流量と受光器で観測された電流量の関係



(b) 光源の出力特性と受光器で観測された電流量の関係

図 5

当グループでは、透明固体材料としてフェリ磁性体であるイットリウム鉄ガーネット (YIG) に着目している。YIGはガーネット系フェライトの一種であり、広く実用化された材料である。特に、イットリウムの一部をセリウム (Ce) で置換したCe:YIGは、赤外領域まで透明であり大きな磁気光学効果を有するという特性を示す。これらの利点を生かして、現在、ファラデー回転子、非線形光学素子として広く用いられているとともに、Si光回路内にCe:YIGをハイブリッド集積することで、戻り光を効率的に遮断し、回路内の安定化を図る研究等も進められている<sup>(23)~(25)</sup>。上記も含めたCe:YIGを用いたデバイス全般にいえることであるが、Ce:YIG自体は加工せずにバルク結晶として利用する傾向にある。これは、加工プロセス上の問題点からCe:YIG自体にデバイス機能を持たせることが非常に困難なためである。

本節ではフェムト秒レーザーを用いることで、Ce:YIG内に光学特性かつ磁気特性を三次元的に同時に変化させる技術<sup>(26)(27)</sup>について解説する。この技術を用いれば、Ce:YIG内部に任意のデバイス機能を持たせることが可能となる。

本研究ではガーネット (SGGG) 基板上にスパッタエピタキシーにより堆積したCe:YIGを使用した (図 6 (a)参照)。この基板に対して、Ti:Sapphireレーザー (波長800 nm、パルス幅80 fs、繰り返し周波数82 MHz) を対物レンズ (開口数: 0.9) で集光照射し、速度100  $\mu\text{m/s}$ で二次元掃引を行った。図 6 (b)には、レーザー出力を変化させながら露光した領域の位相差顕微鏡像を示す。実験では、レーザー出力を徐々に変化させながら1ラインずつ照射を行った (図 6 (a)~(e))。また合わせて適当な出力で20回掃引を行った領域も準備した (図 6 (f))。レーザー出力が48 mW付近

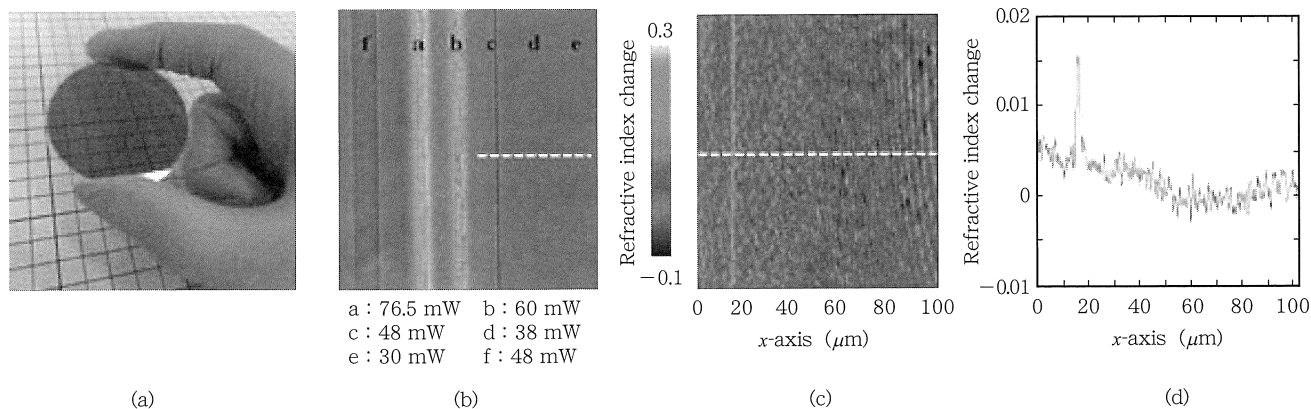


図 6

- (a) ガーネット (SGGG) 基板上にスパッタエピタキシーにより堆積したCe:YIGウェーハ  
 (b) レーザー出力を変化させながら露光した領域の位相差顕微鏡像  
 (c) (d) 定量位相差顕微鏡によって測定された屈折率変化分布 (図 6 (b)の点線部)

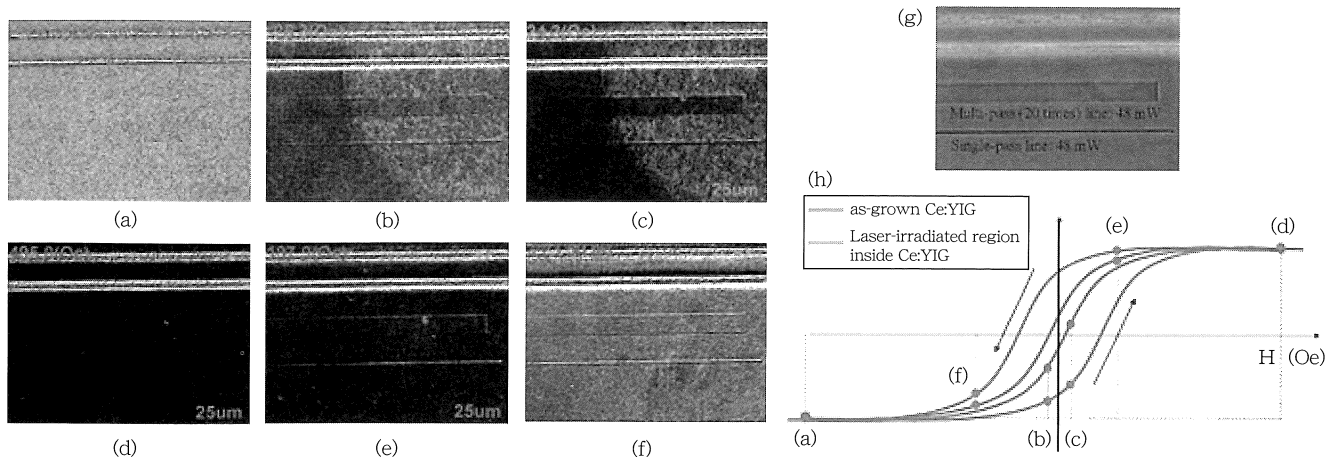


図7

(a)~(f) 図6(b)のf周辺におけるKerr効果磁区観察顕微鏡画像  
 (g) 同一領域における位相差顕微鏡画像  
 (h) Kerr効果磁区観察顕微鏡画像から推定されるM-Hカーブ

では、多光子吸収に基づく明瞭な屈折率変化が確認できたのに対し、60 mW以上では、激しい熱損傷が見られた。レーザー出力が48 mWの条件下における屈折率変化を定量的に評価するために定量位相差顕微鏡 (Quantitative Phase Imaging : QPI)<sup>(28)</sup>による測定を行った。図6(c)に図6(b)のc-e周辺における屈折率変化分布を示す。レーザー照射領域において屈折率が0.013~0.015程度 (YIGの屈折率2.2に対して0.7%)増加しており、従来のガラスに対する研究と比べても遜色ない値が得られている。

最後に、レーザー照射による磁気特性の変化について言及する。図7に図6(b)のf周辺におけるKerr効果磁区観察顕微鏡 (Magneto-Optical Kerr Effect microscope : MOKE) 画像を示す (比較のために同一領域における位相差顕微鏡画像も記載する)。はじめに、-500 Oeの外部磁場により面内同一方向にCe:YIGを磁化させた後、+500 Oeまで外部磁場を変化させることで観測を行った (図7において、黒色になるに従って初期状態から逆方向に磁化していることを意味する)。一般的なCe:YIGの飽和磁場 (25~30 Oe程度) 付近におけるMOKE画像から、レーザー照射を行った領域の保磁力が減少していることが見て取れる (M-Hカーブがハードからソフトに移行)。これにより、同じ外部磁場を加えても、磁化の向きを任意にコントロールすることが可能となった。

本手法を用いると、フェライト中の光学 (屈折率)・磁気特性 (保磁力) を三次元的に制御できることから、これを応用した新規な光磁気デバイスが実現できると期待される。

## 4. おわりに

本稿をとおして、フェムト秒レーザーの“加工”技術を実際に光通信用途で利用することを念頭に、当グループが行った研究を紹介してきた。具体的には、加工材料として“紫外線硬化樹脂”と“透明磁性体”の二種類に着目し、フェムト秒レーザー照射による三次元造形について言及してきたが、著者らの意図するところをお伝えできたとすれば幸いです。

フェムト秒レーザーを用いた加工技術は、ガラス材料・ポリマー材料への適応を代表例として、徐々に光通信モジュールに取り入れられつつある。実際に、本稿で紹介した研究以外にも様々な研究機関から多くの実証例が報告されており、今後も目が離せない分野であるといえるだろう。

### 謝辞

本研究は、JST-CREST (JPMJCR 15N6)「新たな光機能や光物性の発現・利活用を基軸とする次世代フォトニクス of 基盤技術」、およびJSPS科研費 (#15H-05763, #16H06082, #16J11581) の支援によって行われた。

### 参考文献

- (1) I. Coddington, N. Newbury and W. Swann : “Dual-comb spectroscopy”, *Optica* 3, 414 (2016)
- (2) B. G. Saar, C. W. Freudiger, J. Reichman, C. M. Stanley, G. R. Holtom and X. S. Xie : “Video-rate molecular imaging in vivo with stimulated raman scattering”, *Science* 330, 1368 (2010)

- (3) Y. Wakisaka, Y. Suzuki, O. Iwata, A. Nakashima, T. Ito, M. Hirose, R. Domon, M. Sugawara, N. Tsumura, H. Watarai, T. Shimobaba, K. Suzuki, K. Goda and Y. Ozeki : "Probing the metabolic heterogeneity of *Euglena gracilis* with stimulated Raman scattering microscopy", *Nature Microbiology* **1**, 16124 (2016)
- (4) S. Maruo, O. Nakamura and S. Kawata : "Three-dimensional microfabrication with two-photon-absorbed photopolymerization", *Optics Lett.* **22**, 132 (1997)
- (5) S. Kawata, H.-B. Sun, T. Tanaka and K. Takada : "Finer features for functional microdevices", *Nature* **412**, 697 (2001)
- (6) C. B. Schaffer, A. Brodeur, J. F. Garcia and E. Mazur : "Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy", *Optics Lett.* **26**, 93 (2001)
- (7) S. Nolte, M. Will, J. Burghoff and A. Tuennermann : "Femtosecond waveguide writing: a new avenue to three-dimensional integrated optics", *Appl. Phys. A* **77**, 109 (2003)
- (8) S. L. Chin, S. A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Théberge, N. Aközbeke, A. Becker, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva and H. Schroeder : "The propagation of powerful femtosecond laser pulses in optical media: physics, applications, and new challenges", *Can. J. Phys.* **83**, 863 (2005)
- (9) E.-S. Wu, J. H. Strickler, W. R. Harrell and W. W. Webb : "Two-photon lithography for microelectronic application", *Optical/Laser Microlithography V*, pp.776-782 (1992)
- (10) G. Witzgall, R. Vrijen, E. Yablonovitch, V. Doan and B. J. Schwartz : "Single-shot two-photon exposure of commercial photoresist for the production of three-dimensional structures", *Optics Lett.* **23**, 1745 (1998)
- (11) N. Lindenmann, G. Balthasar, D. Hillerkuss, R. Schmogrow, M. Jordan, J. Leuthold, W. Freude and C. Koos : "Photonic wire bonding: a novel concept for chip-scale interconnects", *Opt. Express* **20**, 17667 (2012)
- (12) N. Lindenmann, S. Dottermusch, M. -L. Goedecke, T. Hoose, M. -R. Billah, T. -P. Onanuga, A. Hofmann, W. Freude and C. Koos : "Connecting silicon photonic circuits to multicore fibers by photonic wire bonding", *J. Lightwave Technol.* **33**, 755 (2015)
- (13) T. Hoos, M. Billah, M. Blaicher, P. Marin, P. -I. Dietrich, A. Hofmann, U. Troppenz, M. Moehle, N. Lindenmann, M. Thiel, P. Simon, J. Hoffmann, M. -L. Goedecke, W. Freude and C. Koos : "Multi-Chip Integration by Photonic Wire Bonding: Connecting Surface and Edge Emitting Lasers to Silicon Chips", *Optical Fiber Communication Conference (OFC' 16)*, M2L7 (2016)
- (14) www.nanoscribe.de
- (15) G. Roelkens, L. Liu, D. Liang, R. Jones, A. Fang, B. Koch and J. Bowers : "III-V/silicon photonics for on-chip and intra-chip optical interconnects", *Laser Photon. Rev.* **4**, pp.751-779 (2010)
- (16) Z. Gu, T. Amemiya, A. Ishikawa, J. Kang, T. Hiratani, Y. Hayashi, J. Suzuki, N. Nishiyama, T. Tanaka and S. Arai : "Investigation of Optical Interconnection by using Photonic wire bonding", *J. Laser Micro/Nanoengineering* **10**, 148 (2015)
- (17) Z. Gu, T. Amemiya, A. Ishikawa, T. Hiratani, J. Suzuki, N. Nishiyama, T. Tanaka and S. Arai : "Optical transmission between III-V chips on Si using photonic wire bonding", *Opt. Express* **23**, 22394 (2015)
- (18) D. Inoue, J. Lee, T. Hiratani, Y. Atsugi, T. Amemiya, N. Nishiyama and S. Arai : "Sub-milliamper Threshold Operation of Butt-jointed Built-in Membrane DFB Laser Bonded on Si Substrate", *Optics Express* **23**, 7771 (2015)
- (19) T. Hiratani, D. Inoue, T. Tomiyasu, K. Fukuda, T. Amemiya, N. Nishiyama and S. Arai : "90 °C continuous-wave operation of GaInAsP/InP membrane distributed-reflector laser on Si substrate", *Appl. Phys. Express* **10**, 032702 (2017)
- (20) T. Tomiyasu, T. Hiratani, D. Inoue, N. Nakamura, K. Fukuda, T. Uryu, T. Amemiya, N. Nishiyama and S. Arai : "High differential quantum efficiency operation of GaInAsP/InP membrane distributed-reflector laser on Si", *Appl. Phys. Express* **10**, 062702 (2017)
- (21) K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto and K. Hirao : "Writing waveguides in glass with a femtosecond laser", *Optics Lett.* **21**, 1729 (1996)
- (22) S. J. Ben Yoo, B. Guan and R. P. Scott : "Heterogeneous 2D/3D photonic integrated microsystems", *Microsystems & Nanoengineering* **2**, 16030 (2016)
- (23) M.-C. Tien, T. Mizumoto, P. Pintus, H. Kromer and J. E. Bowers : "Silicon ring isolators with bonded nonreciprocal magneto-optical garnets", *Opt. Express* **19**, 11740 (2011)
- (24) L. Bi, J. Hu, P. Jiang, D. H. Kim, G. F. Dionne, L. C. Kimerling and C. A. Ross : "On-chip optical isolation in monolithically integrated non-reciprocal optical resonators", *Nature Photon.* **5**, 758 (2011).
- (25) Y. Shoji, A. Fujie and T. Mizumoto : "Silicon waveguide optical isolator operating for TE mode input light", *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **22**, 4403307 (2016)
- (26) T. Amemiya, A. Ishikawa, Y. Shoji, P. N. Hai, M. Tanaka, T. Mizumoto, T. Tanaka and S. Arai : "Three-dimensional nanostructuring in YIG ferrite with femtosecond laser", *Optics Lett.* **39**, 212 (2014)
- (27) T. Tanaka, A. Ishikawa, T. Amemiya : "Three-dimensional two-photon laser fabrication for metals, polymers, and magneto-optical materials", *Proc. of SPIE* **9353**, 93530M (2015)
- (28) H. Iwai, C. Fang-Yen, G. Popescu, A. Wax, K. Badizadegan, R. R. Dasari and M. S. Feld : "Quantitative phase imaging using actively stabilized phase shifting low-coherence interferometry", *Optics Lett.* **29**, 2399 (2004)

## 【筆者紹介】

### 雨宮智宏

東京工業大学 科学技術創成研究院 未来産業技術研究所 助教

### Zhichen Gu

東京工業大学 工学院電気電子系 荒井・西山研究室 博士後期課程3年

### 庄司雄哉

東京工業大学 科学技術創成研究院 未来産業技術研究所 准教授

### 水本哲弥

東京工業大学 工学院電気電子系 教授

### 荒井滋久

東京工業大学 未来産業技術研究所 教授

### 田中拓男

(国研)理化学研究所 田中メタマテリアル研究室 主任研究員

### 石川 篤

岡山大学 大学院 自然科学研究科 産業創成工学専攻 助教