

平成21年6月26日現在

研究種目：基盤研究 (B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19310092
 研究課題名 (和文) フォトニックワイヤ内部を伝播する光の二探針近接場光学顕微鏡による観察
 研究課題名 (英文) Observation of propagation light within photonic wire by a dual probe near-field scanning microscope
 研究代表者
 三井 正 (MITSUI TADASHI)
 独立行政法人物質・材料研究機構・量子ドットセンター・主任研究員
 研究者番号：90343863

研究成果の概要：直径数 μm の微小球をコロイド溶液中で自己組織化的手法によりワイヤ状に配列し、その内部を伝播する光の特性を、近接場光学顕微鏡を用いて観察した。光伝播の空間分布、伝播係数、スペクトルについて多くの知見が得られ、さらに、より複雑な構造として直角曲げ構造を作製し、観察を行った。その結果、共振モードや偏光特性により分岐部への伝播特性が異なることがわかり、マイクロ光分波器としての応用可能性を見出した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	7,900,000	2,370,000	10,270,000
2008年度	7,200,000	2,160,000	9,360,000
年度			
年度			
年度			
総計	15,100,000	4,530,000	19,630,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学 ・ マイクロ・ナノデバイス

キーワード：マイクロ光デバイス

1. 研究開始当初の背景

直径が数 μm 程度の透明な誘電体微小球は小さな体積に光を長時間閉じ込める究極の光共振器として作用する。このような共振器は、閾値のないレーザーやフォトンレベルで動作する光双安定素子、さらには量子情報技術で重要な単一光子発生器に利用できると期待されている。微小球による光の閉じ込めや、微小球共振器との光の出し入れについては、東京大学の五神教授らにより実験と計算の両面から精力的に研究されており、微小球の直径を100nmまで縮小しても高い閉じ込

め効果が維持できることが示されていた。

また、この微小球共振器をユニットとして連結させ、その連結構造に沿って光を任意に導く方法についても提案されていた。実際に半導体のV溝構造に微小球2～4個を正確に配列させ、一次元連結微小球の蛍光スペクトルの測定とそのフォトニックバンドの計算が行われ、それらは互いによく一致し、物理的に明解な説明が行われた。

一方、研究代表者は研究開始当初の段階で、ポリスチレン微小球を含んだコロイド溶液中で、自己組織化現象を用いることにより、

フォトニック構造を内部に有する最大で数mmの長さのワイヤを作製することに成功していた。

さらに、研究代表者は直線偏光保持型光ファイバーを用いた近接場光学顕微鏡プローブの開発を完了しており、これを用いて有機光導波路内部を伝播する光を、光の波長以下の空間分解能で直接的に観察し、さらに光の直線偏光成分を分離して観察することで、微小な欠陥や微弱な歪が伝播光に与える影響について鮮明に観察する技術を確立していた。

2. 研究の目的

研究代表者が開発した、フォトニック構造を持つ一次元微小球ワイヤ内部を伝播する光の特性を、系統的に調べることを主目的とした。

これを実現するために、上記フォトニックワイヤの作製技術を確立すること、を第1の目標とした。

第2に、フォトニックワイヤ内部の特定部位間を伝播する光を、光の波長以下の空間分解能で直接的に観察するため、2本の光ファイバープローブを有する導波路-集光モード近接場光学顕微鏡の開発を行うこと、を目標とした。

3. 研究の方法

(1) フォトニックワイヤ作製技術の確立

微小球を任意の形状のワイヤに配列する技術を確立するため、基板に対して加工を行い、それを足掛かりに配列を行う2種類の方法を検討した。具体的には、①親水性の制御、と、②パターニング基板による物理的拘束、の2種類を検討した。

①は、基板を疎水化させた上で、その直上に親水性のガラス細片を配置し、その間隙に生じる毛細管現象を利用してコロイド溶液を誘導、保持する方法である。この状態でコロイド溶液の溶媒を徐々に排水すると、疎水基板上での水切れ過程により、コロイド溶液の存在する領域が狭められ、さらに、微小球

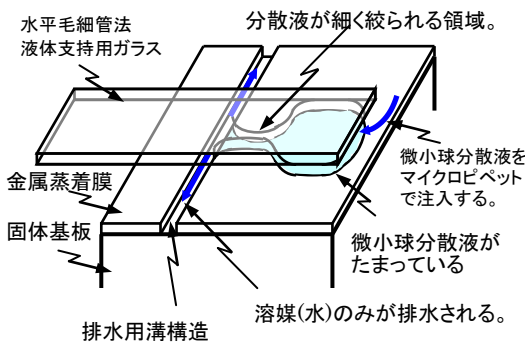


図1 水切れ過程を利用した微小球フォトニックワイヤ作製法の概念図

が濃縮されることで、ワイヤ上のフォトニック構造を作製することが可能である (図1)。

②は、シリコン基板の(001)面に電子線リソグラフィ法を用いて精密なパターニングを行った後に、選択エッチング液を用いて基板の一部を溶解することで、逆ピラミッド型の凹部を形成し、微小球を捕らえるための鑄型とする方法である。選択エッチング液はシリコンの(111)面でのエッチング速度が極めて遅くなる溶液で、その結果として、高さ、位置等がナノスケールの精度で制御された凹部が形成される。この基板の上に①と同様に親水性のカバーガラスを配置し、徐々に排水することで微小球を凹部に補足し、配列を行う (図2)。

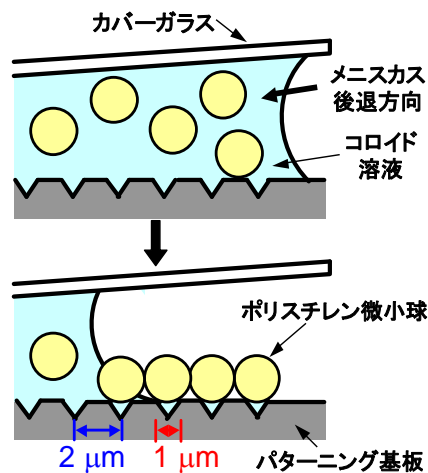


図2 パターニング基板を鑄型に用いた微小球配列法の概念図

フォトニックワイヤ内部を伝播する光の観察には、近接場光学顕微鏡を用いた。光源としては、同一の粒径を持つ蛍光色素がドーブされたポリスチレン微小球をあらかじめ混入しておき、その蛍光を光源として用いた。これは、フォトニックワイヤ内部に光が効率的に伝播するように、正確な光学的カップリングを行う必要があるためである。この蛍光微小球に対して、対物レンズを用いて励起光を外側から照射し、蛍光を発生させる。

伝播した光は近接場光学顕微鏡の光ファイバープローブで集光され、分光器を通して光電子増倍管で検出される。

(2) 二探針近接場光学顕微鏡の開発

既に研究代表者が所有していた、既存の近接場光学顕微鏡を改良する形で二探針近接場光学顕微鏡の開発を行った。

2007年度に2本のプローブを独立して制御するためのピエゾ素子コントローラを導入し、その動作試験を行った。

2008年度は二つの探針で伝播光を観察するための Dual 光学顕微鏡ユニット上で動作

試験を行った。その際に、2本の探針の走査、および走査に影響を与える外部からの振動等についても試験を行い、開発にフィードバックした。

4. 研究成果

(1) フォトニックワイヤを伝播する光の特性

2007年度に、図1に示した方法を用いてフォトニックワイヤを作製し、近接場光学顕微鏡を用いて、ワイヤ内部を伝播する光の観察を行った。その結果、①光伝播の空間分布、②伝播係数、③スペクトル、について多くの知見が得られた。

①光伝播の空間分布

ピラミッド状の断面を持つ、微小球が3層に積み重なったフォトニックワイヤの走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を図3 (a)に示す。これとほぼ同じ領域で、同じ構造を持つフォトニックワイヤの光学顕微鏡像を図3 (b)と3 (c)に示す。図3 (b)と図3 (c)は、それぞれ光学顕微鏡の照明光がある場合とない場合を示している。

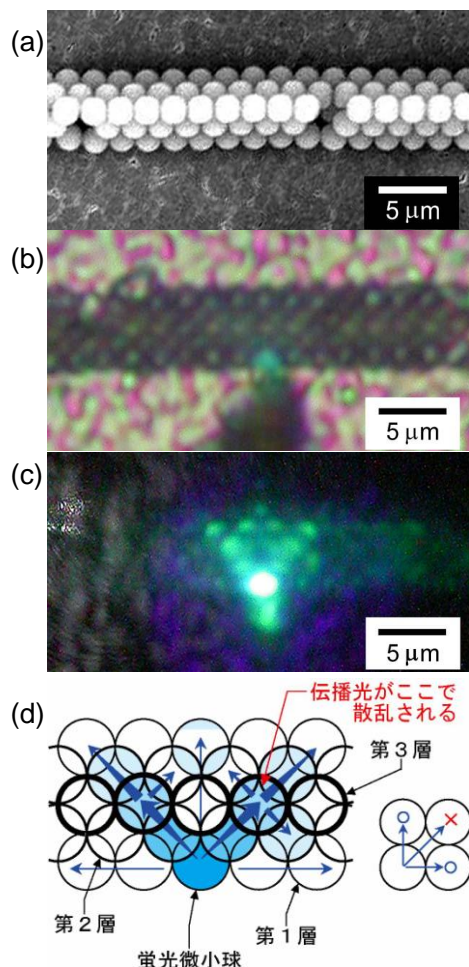


図3 (a) フォトニックワイヤの SEM 像。(b)(c) 光学顕微鏡像 (照明あり(b)、なし(c))。(d) 蛍光微小球からの光伝播の模式図。

図3 (b)と図3 (c)の中で、ワイヤ断面のピラミッド構造の底面に当たる第1層の外側に蛍光微小球があり、この部分に近接場光学顕微鏡の光ファイバプローブを接近させ、波長 405nm の紫色の励起光を照射して、蛍光を発生させる。図3 (b)の下側に見える三角形の部分のが光ファイバプローブである (図中では焦点がずれている)。図3 (d)は蛍光の伝播の模式図である。

図3 (c)では、蛍光が第1層 (水平方向) 以外に、上層に向かって2つの方向に強く伝播していることがわかる。この方向は微小球が直線的に並んでいる方向である。

一方で、水平方向の伝播に注目してみると、蛍光はワイヤの長手方向と横断方向には伝播しているが、斜め方向には伝播していない。このことから、フォトニックワイヤ内では微小球同士が接触していることが重要であることがわかる。

最後に、第2層について注目すると、光は蛍光微小球のある側と反対側にも伝播していることがわかる。この位置に直線的に光が伝播することは構造的に考えにくいので、この位置に伝播している光は、一度、第3層まで届き、そこで反射、散乱、もしくは周回型の共鳴伝播により、「ピラミッドを下って」伝播していると考えられる。

②フォトニックワイヤの光伝播係数

次に、このフォトニックワイヤ内部を伝播する光の伝播係数を調べた。光学顕微鏡で撮影した画像のデジタルデータを基に、各微小球に伝播している光の強度を測定した。その結果を図4に示す。図4 (a)は微小球が2層

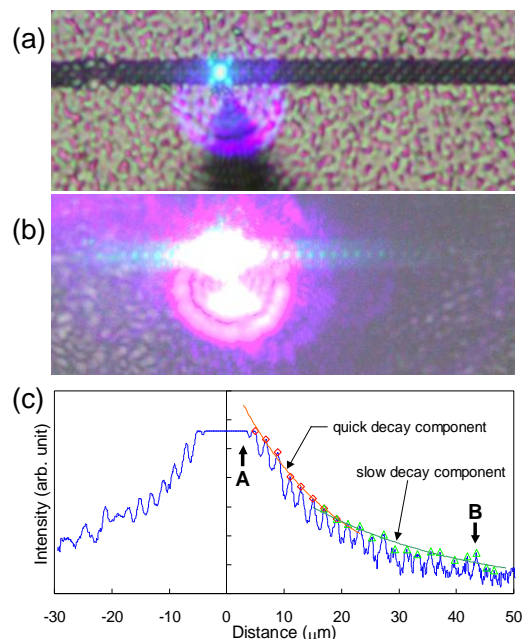


図4 (a)(b) フォトニックワイヤの光学顕微鏡像 (照明あり(a)、なし(b))。(c) 最上層に沿った伝播光強度のラインプロファイル。

に積み重なり、約 $100\ \mu\text{m}$ にわたって直線に並んでいる箇所、光学顕微鏡像である。この図から、最上層に一個だけ蛍光微小球があることがわかる。図 3 (b) と同様に、この微小球に光ファイバプローブを接近させ、蛍光を発生させている。図 4 (b) は、同じ領域を光学顕微鏡の照明光を消して撮影した光学顕微鏡像である。蛍光微小球から出た光はフォトニックワイヤに沿って伝播し、その一部が各微小球で散乱され、光学顕微鏡により観察される。

この像を基にして、最上層の微小球列を伝播している光の強度ラインプロファイルを求めた。その結果を図 4 (c) に示す。その結果、蛍光は 22 個、 $44\ \mu\text{m}$ の位置まで伝播しており、最大で $2.0\ (\text{dB}/10\ \mu\text{m})$ であった。この値は、同様にナノスケール光導波路として研究されている、CdSe ナノワイヤ ($1.0\ \text{dB}/10\ \mu\text{m}$) と InGaAs 系光導波路 ($2.3\ \text{dB}/10\ \mu\text{m}$) の中間であり、同程度の伝播係数を有していることが明らかになった。多数の微小球を連結して作るという複雑な構造でありながら、このような高い伝播係数を持つ原因として、ポリスチレンの微小球自体が透明な、良い光学材料であることが大きな要因であると考えられる。これまで、数百個並べることが困難であったため、観察・評価を行うことができなかったが、今回、実際に作製し、立証した点で、本研究分野に一定のインパクトを与えたものと考えている。

③伝播光のスペクトル

伝播している光がどのような性質のものであるかを詳しく調べるため、伝播光のスペクトルを測定した。その結果を図 5 に示す。本実験では、図 3、図 4 とは逆に、光ファイバプローブをフォトニックワイヤ中の測定したい位置に接近させ、そこから伝播光を集光することでスペクトルを測定した。蛍光微小球は、光学顕微鏡のデジタルカメラ用のポートからレーザーを照射し、蛍光を発生させた。

図 5 (a) で、青で示されたものがフォトニックワイヤ内部を伝播した光のスペクトル、赤が比較のために示した蛍光色素の蛍光スペクトルである。この図から、伝播光は蛍光色素の蛍光そのものではなく、いくつかのピークを持った独特のスペクトルを持っていることがわかる。図 5 (b) は、Mie 理論で計算した微小球内の各共振モードとスペクトルである。図 5 (a) と図 5 (b) を比較すると、伝播光のスペクトルのピークが計算結果とよく一致していることがわかる。

このことから、フォトニックワイヤ内部の伝播光には微小球内部を周回するモードの成分が含まれており、屈曲部（具体的には図 3 (d) の第 3 層の微小球）においても光が伝

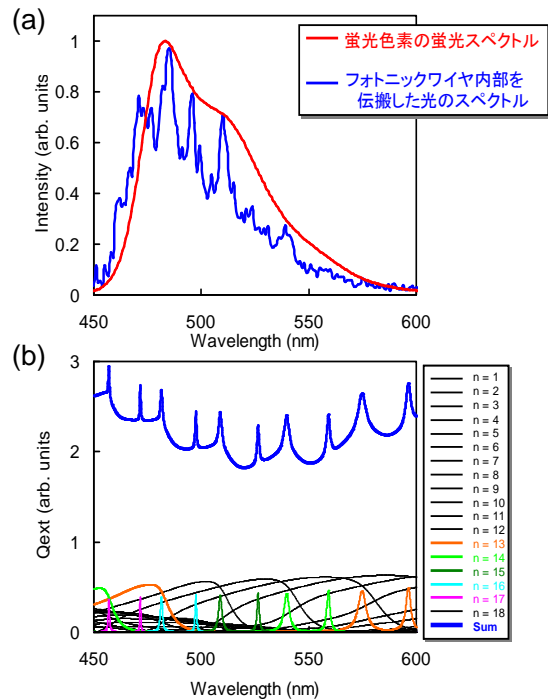


図 5 (a) フォトニックワイヤを伝播した光のスペクトル。(b) Mie 理論で計算した微小球内の各共振モードとスペクトル。

播することを説明することができた。

このように、フォトニックワイヤ内部の光伝播についての系統的な研究の大半が研究初年度にほぼ完了した（発表論文③）。

(2) パターニング基板を用いた直角曲がり部を持つ微小球連鎖構造の作製

2007 年度の研究により、フォトニックワイヤの伝播係数が光導波路として十分大きいことがわかったが、一方で直線状のワイヤしか作りにくいことも判明した。そこで 2008 年度に、3 節 (1) 項に示した②の方法を用いて、微小球連鎖構造を作製し、その内部伝播光のスペクトルを、近接場光学顕微鏡を用いて観察した。

本研究では正方格子状のパターンを配列したシリコン基板に微小球の配列を行った。そして、端の部分に蛍光微小球がある連鎖構造について観察を行った。その模式図を図 6 (a) に、その光学顕微鏡像とスペクトル測定位置を図 6 (b) に示す。そして、図 6 (b) 中の Point A と Point B で測定したスペクトルを図 6 (c) に示す。Point A で測定されたスペクトルには 2 本の共振ピークが観察されるが、Point B で測定されたスペクトルではそのうち短波長側 ($\text{TM}_{16,1}$) のピークの強度が弱いことがわかる。この原因として、分岐部において、長波長側 ($\text{TM}_{15,1}$) のピークの光は直角方向位置の微小球に対して共鳴し、伝播してゆくのにに対し、短波長側のピークの光は共鳴できないため、と考えられる (図 6 (d))。

この現象は、微小球連鎖構造自身が多重化された複数の波長の光から、任意の光を選出す分波機能を持っていることを示している。そして、このことは、微小球連鎖構造を将来の光集積回路に応用する上で、単に[1]自在な設計の光導波路を作ることができる、というだけでなく、[2]波長選別機能を光導波路自体に持たせる、「マイクロ光分波器」として応用できる、可能性を持っていることが明らかになった。

これについては発表論文①に加えて、さら

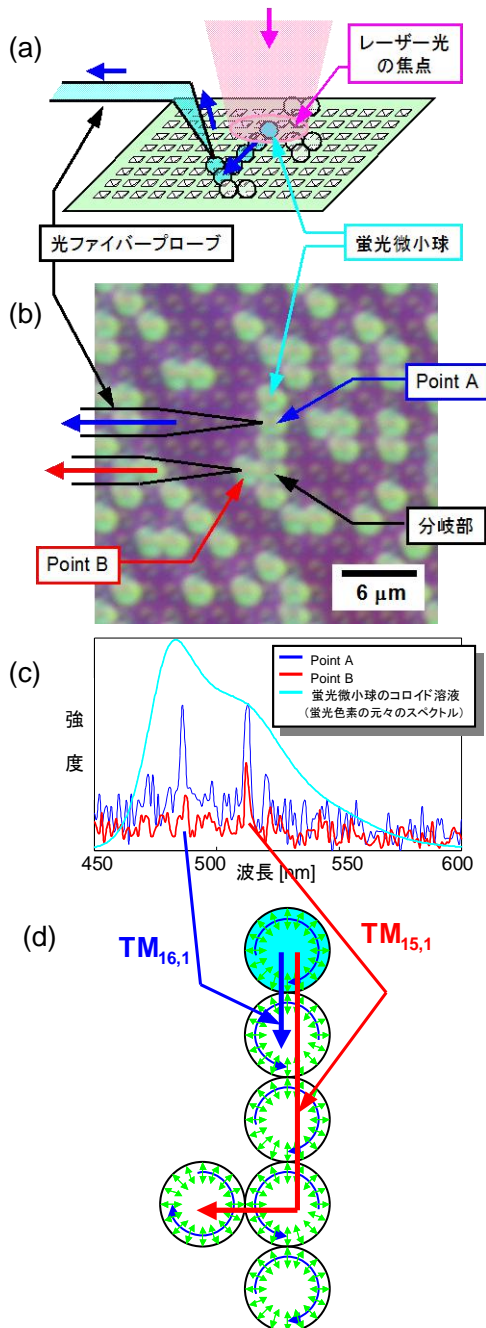


図6 (a) パターン加工を行ったシリコン基板と近接場光学顕微鏡法の模式図。(b) 分岐部を持つ微小球連鎖構造の光学顕微鏡像。(c) 各点で測定した伝播光のスペクトル。(d) 共振モードによる光の分波、波長選択の模式図。

に新聞発表も行い、また、当機構の広報誌でもその内容を広く社会に公開した。

今後の課題として、光集積回路を作製する段階で必要になる、30°分岐や60°分岐等により複雑な構造について、その分波機能の詳細を調べてゆくことが挙げられる。これについては既に、文部科学省の支援を受けた、当機構ナノテクノロジー融合センターの協力を受けて、実際に光集積回路で使われる要素を持った基板を試作し、研究を行っている。本研究については今後も継続して研究を行ってゆく予定である。

(3) 二探針近接場光学顕微鏡の開発

上記(1)(2)の実験において、光源である蛍光色素は劣化の速度が大きく、実験に大きな制約を与えることが明らかになった。

そこで、当初の計画通り、一方のプロブから光を導入し、もう一方から集光するという、蛍光色素に頼らない方法の重要性が明らかになった。

2007年度の予備的実験において、2本のプロブを独立して懸架する場合、外部からの振動の影響を特に受けやすいことが明らかになった。そこで、当初想定していたとおり、2008年度に除振台を導入し、解決を図った。その結果、外部からの振動を、測定に影響が出ない程度にまで排除できることがわかった。今後は、2本のプロブの効率の制御、同時に接触させたときの相互作用について、検討を行い、開発を継続してゆく予定である。

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4件)

- ① 三井正、若山裕、小野寺恒信、高谷洋輔、及川英俊、「微小球共振器を用いたマイクロ光配線技術の可能性と将来展望」、月刊「機能材料」、Vol. 28, No. 11, pp. 52-58、(2008)、査読有り、依頼原稿。
- ② Tadashi Mitsui、Yutaka Wakayama、Tsunenobu Onodera、Yosuke Takaya、Hidetoshi Oikawa、“Observation of light propagation across a 90° corner in chains of microspheres on a patterned substrate”, Optics Letters, Vol. 33, No. 11, pp. 1189-1191, (2008)、査読有り。
http://www.opticsinfobase.org/DirectPDFAccess/A7BEC060-BDB9-137E-CF13889949B23B91_160581.pdf?da=1&id=160581&seq=0&CFID=27082144&CFTOKEN=57513074
- ③ Tadashi Mitsui、Yutaka Wakayama、Tsunenobu Onodera、Yosuke Takaya、Hidetoshi Oikawa、“Light Propagation

within Colloidal Crystal Wire Fabricated by a Dewetting Process”, Nano Letters, Vol. 8, No. 3, pp. 853-858, (2008)、査読有り。

<http://pubs.acs.org/doi/full/10.1021/nl073006w>

- ④ Tsunenobu Onodera、Yosuke Takaya、Tadashi Mitsui、Yutaka Wakayama、Hidetoshi Oikawa、“Ordered Array of Polymer Microspheres on Patterned Silicon Substrate Fabricated Using Step-by-Step Deposition Method”、Japanese Journal of Applied Physics、Vol. 47, No. 2, pp. 1404-1407, (2008)、査読有り。

<http://jjap.ipap.jp/link?JJAP/47/1404>

[学会発表] (計7件)

- ① 三井正、「Si パターニング基板上の微小球連鎖構造における光伝播特性」、日本表面科学会 第 28 回表面科学講演大会、2008 年 11 月 15 日、早稲田大学総合学術情報センター (国際会議場)、東京都
- ② 三井正、「パターニング基板上の微小球連鎖構造における光伝播特性」、日本光学会 ナノオプティクス研究グループ 第 17 回研究討論会、2008 年 6 月 27 日、つくば国際会議場 (エポカルつくば)、つくば市
- ③ 三井正、「パターニング基板上に作製した連結微小球光導波路の直角曲がり部における光伝播特性」、応用物理学会 2008 年春季 第 55 回応用物理学関係連合講演会、2008 年 3 月 27 日、日本大学理工学部船橋キャンパス、船橋市
- ④ 三井正、「自己組織化コロイド結晶ワイヤの作製と光学特性の評価」、日本表面科学会 第 27 回表面科学講演大会、2007 年 11 月 3 日、東京大学生産技術研究所 (駒場) コンベンションセンター、東京都
- ⑤ 三井正、「パターン基板上の 1 次元状コロイド結晶内部における光伝播の観察」、日本物理学会 第 62 回年次大会、2007 年 9 月 23 日、北海道大学 札幌キャンパス、札幌市
- ⑥ 三井正、「自己組織化コロイド結晶ワイヤの開発とその光伝播特性の観察」、日本光学会 ナノオプティクス研究グループ 第 16 回研究討論会、2007 年 7 月 13 日、神戸大学瀧川記念学術交流会館、神戸市
- ⑦ Tadashi Mitsui、“Development of 1D Photonic Wire Composed of Hundreds of Micro-spheres Fabricated by Self-organization Process”、2007 Materials Research Society Spring Meeting、2007 年 4 月 11 日、MOSCONE WEST、サンフランシスコ、アメリカ合衆国

[その他]

○報道関連情報 (プレスリリース)

「微小球を並べて作るマイクロ分波器」

<http://www.nims.go.jp/news/press/2008/05/vk3rak000000gt5.html>

2008 年 6 月 2 日：日経産業新聞 9 面、
化学工業日報 11 面

2008 年 6 月 7 日：日刊工業新聞 13 面

○ホームページ

(物質・材料研究機構広報誌 NIMS NOW 掲載記事「微小球を並べて作るマイクロ分波器 — 自己組織化プロセスを用いた光配線 —」 Vol. 8, No. 9, pp. 6, (2008)。

<http://www.nims.go.jp/publicity/nimsnow/vol08/vk3rak000000ryy-att/NIMSNOWVol8No9.pdf>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三井 正 (MITSUI TADASHI)

独立行政法人物質・材料研究機構

・量子ドットセンター・主任研究員

研究者番号：9 0 3 4 3 8 6 3

(2) 研究分担者

なし。

(3) 連携研究者

なし。

(4) 研究協力者

小野寺 恒信 (ONODERA TSUNENOBU)

国立大学法人東北大学

・多元物質科学研究所・特任助教

研究者番号：1 0 5 3 3 4 6 6

及川 英俊 (OIKAWA HIDETOSHI)

国立大学法人東北大学

・多元物質科学研究所・教授

研究者番号：6 0 1 3 4 0 6 1

若山 裕 (WAKAYAMA YUTAKA)

独立行政法人物質・材料研究機構

・半導体材料センター・主席研究員

研究者番号：0 0 3 5 4 3 3 2