

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 22 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21510136

研究課題名（和文） ポラリトン伝播分子ファイバーによる極微小光デバイス

研究課題名（英文） Miniaturized photonic devices constructed from exciton polariton waveguides of organic dye nanofibers

研究代表者

高澤 健 (TAKAZAWA KEN)

独立行政法人物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・主幹研究員

研究者番号：10354317

研究成果の概要(和文):有機色素チアシアニンの自己組織化により合成したナノファイバーは、光励起で生じた自身の蛍光をファイバー端まで伝播させる。この現象を顕微分光法により詳細に調べ、光伝播の機構が励起子ポラリトンの伝播であることを明らかにした。ポラリトン伝播では、ファイバーをミクロンの曲率で曲げてもほとんど減衰が生じない。この特性を利用して、極微小光デバイスを作製した。マニピュレータによるファイバー操作で製作した微小リングは、リング共振器として機能することを示した。

研究成果の概要(英文): We have investigated optical properties of self-assembled nanofibers of thiacyanine dye that exhibit an active waveguiding behavior. We have revealed that the mechanism of the waveguiding is the propagation of exciton polaritons along the nanofibers. Using a capability of the nanofibers to manipulate the polaritons at a micron scale, we have constructed miniaturized photonic circuit components such as micro ring resonators by means of micromanipulation.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

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：ナノ光デバイス、有機色素、ナノファイバー、自己組織化、励起子ポラリトン、共振器、光物性

## 1. 研究開始当初の背景

光回路は電気回路を超える高速・低損失な集積回路の構築が原理的に可能なため、マイクロプロセッサや通信機器への応用が期待されている。光集積回路の実現には、光をナノからミクロンの領域で伝播・操作する技術の開発が不可欠である。このため、フォトニック結晶や半導体ナノワイヤを用いた微小

領域での光操作技術の開発が盛んに行われている。

我々は有機色素チアシアニン（以下 TC、図 1a）を水溶液中で自己組織化させることで、特異な光学特性を示すナノファイバーを合成することに成功した。このナノファイバーの一点をレーザー光（405 nm）で励起するとファイバー端に強い蛍光が観測される（図

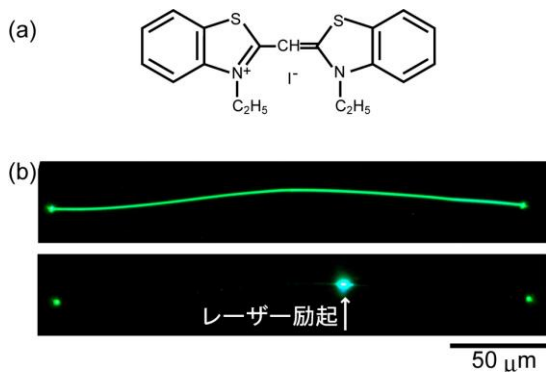


図1 (a)チアシアニン (b)ナノファイバーの蛍光顕微画像

1b)。このことから、ナノファイバーは、自身の蛍光をファイバーの全長に亘って数百ミクロン伝播する光導波路として機能すると考えられる。しかし、ナノファイバーの光伝播特性を詳しく調べたところ、単純な光導波路機構では説明困難な現象が見出された。例えば、数ミクロンの曲率半径で曲がったナノファイバーでも、ほぼ無欠損で光を伝播する。一般に有機物の屈折率は1.5程度であるため、ミクロンの曲率半径で曲がった光導波路では、大きな曲げ欠損が生じる。従って、ナノファイバーの光伝播は、通常的光導波路とは異なる機構により生じていると考えられる。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は以下の3点である。

- (1) ナノファイバーの光伝播機構を解明する。
- (2) ナノファイバーの小さな曲げ欠損を利用して、極微小光デバイスを開発する。
- (3) 有機半導体分子を用いてナノファイバーを合成し、電気的励起（キャリア注入）により発光させ、光伝播を生じさせる。

## 3. 研究の方法

### (1) ナノファイバーの光伝播機構の解明

ガラス基板上に分散したナノファイバーにレーザー顕微分光法を適用し、ファイバー端発光のスペクトルを計測する。さらに、伝播光の減衰を波長ごとに精密に測定する。測定結果を解析して、ファイバーの屈折率（誘電関数）の実部と虚部を決定し、光伝播機構を明らかにする。

### (2) ナノファイバーによる極微小光デバイスの開発

ガラス基板上に分散したナノファイバーを操作して、極微小光学素子を作製する。ナノファイバーの操作は、マイクロマニピュレーターに取り付けたガラス針を用い、顕微鏡観察下で行う。

### (3) 有機半導体ナノファイバーの合成とキ

## キャリア注入発光

有機半導体材料としてよく知られた多環芳香族分子を種々の条件下で自己組織化させ、光伝播を示すナノファイバーの合成を試みる。合成したナノファイバーに真空蒸着により金属電極を付加し、キャリア注入により発光させる。

## 4. 研究成果

### (1) ナノファイバーの光伝播機構の解明

ガラス基板上的単一ナノファイバーの一点を、回折限界まで絞ったレーザー光（波長405 nm）で励起し、ファイバー端発光のスペクトルを測定した（図2a）。スペクトルには、伝播光のファイバー端面での反射に起因した、ファイブリー・ペローモードが明瞭に観測された。ファイブリー・ペローモードを解析することで、ナノファイバーの屈折率の実部  $n$  を決定した（図2b■）。 $n$  はエネルギーの増加に伴って発散的に増大し、ナノファイバーの吸収帯近傍では10を超える非常に大きな値であることがわかった。また、レーザーの照射位置をファイバーに沿って移動させながら、ファイバー端発光のスペクトルを測定した。スペクトル解析により、伝播光の減衰曲線を波長ごとに精密に求め、屈折率の虚部  $k$  を決定した。 $k$  も吸収帯に近づくにつ

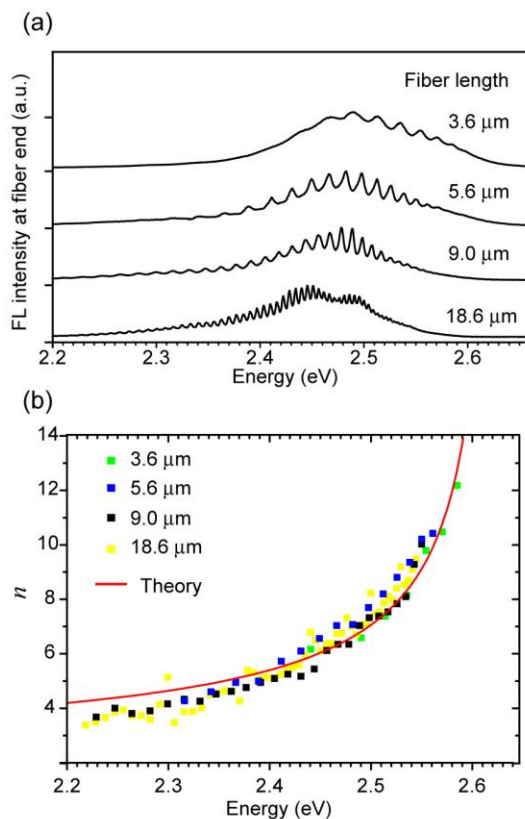


図2 (a)異なる長さのナノファイバーのファイバー端発光スペクトル (b) 屈折率の実測値 (■) と理論計算値 (実線)

れ、発散的に増大することがわかった。

観測された  $n$  及び  $k$  の特異な挙動は、ナノファイバーの光伝播が単純な導波路機構によるものではないことを示している。我々は、励起子ポラリトンモデルを用いることで観測された  $n$ 、 $k$  の挙動を完全に説明することができた (図 2b 実線)。つまり、ナノファイバーの光伝播は、光励起により生じた蛍光が、励起子と結合して励起子ポラリトンを形成し、ファイバー中を伝播することにより生じることが明らかになった。励起子ポラリトンが物質中を数百マイクロメートルに亘って室温で伝播する現象はこれまでほとんど観測されていない新現象である。ナノファイバー中の励起子の高い安定性が、励起子ポラリトンの長距離伝播を可能にしていると結論した。

## (2) ナノファイバーによる極微小光デバイスの開発

(1) の研究により、ナノファイバーの極めて小さい曲げ欠損は、励起子ポラリトン効果による屈折率の増大の結果であることがわかった。曲げ欠損の小ささを利用すれば、マイクロメートル領域で光信号 (ポラリトン) を操作することができ、ポラリトン伝播を利用した極微小光デバイスの開発が可能になる。

初めに、長さ約  $100 \mu\text{m}$  のナノファイバーを操作して、両端を接触させたリング構造を作製した (図 3a)。リングの一点をレーザー励起し、ファイバーのつなぎ目からの漏れ光のスペクトルを測定したところ (図 3b)、鋭い共鳴線がスペクトルの全域に多数観測された (図 3c)。スペクトル解析の結果、これらの共鳴線は、励起子ポラリトンがリング内を周回して定在波が生じることによる、リングモードであることがわかった。より小さなリング構造を製作しスペクトル測定を行ったところ、半径約  $3 \mu\text{m}$  のリングでも、共鳴線が明瞭に観測され、ナノファイバーのリング構造が極微小のポラリトン共振器として機能することがわかった。

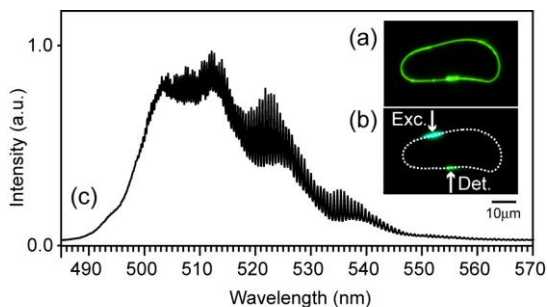


図3 (a) ナノファイバーリングの蛍光顕微画像 (b) レーザー励起による蛍光顕微画像 (c) 漏れ光のスペクトル

さらに、微小リング (半径約  $3 \mu\text{m}$ ) に近接してナノファイバーを配置することで、極微

小波長フィルターの製作を試みた (図 4a)。ナノファイバーの左端をレーザー励起して、デバイスにポラリトンを入力し、ファイバー右端の発光を出力信号として検出する (図 4b)。入力されたポラリトンはナノファイバー中を伝播し、その一部がリングに入力され、リング内を周回する。ファイバーを伝播するポラリトンとリングを周回するポラリトンとの干渉により、出力信号にはリングモードの波長位置に信号強度の減衰が観測される。図 4c に出力信号のスペクトルを dB 単位で示す。リングモードの波長位置で  $3\text{--}5 \text{ dB}$  の信号強度減衰が観測され、このデバイスが極微小波長フィルターとして機能することを確認した。

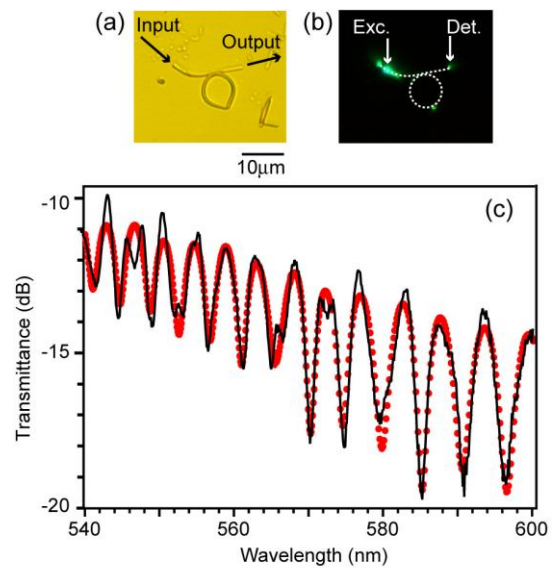
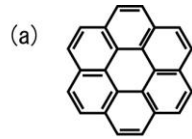


図4 (a) 波長フィルターデバイスの顕微鏡画像 (b) レーザー励起による蛍光顕微画像 (c) 出力光のスペクトル (実線) と計算値 (破線)

## (3) 有機半導体ナノファイバーの合成とキャリア注入発光

多環芳香族コロネン (図 5a) のクロロホルム溶液を基板上に滴下し、蒸気圧を制御して緩やかに蒸発させると、長さ数十マイクロメートルのナノファイバーが自己組織化されることを見出した。このナノファイバーをレーザー励起 ( $405 \text{ nm}$ ) すると、ファイバー端から強い発光が観測された (図 5b)。このナノファイバーに、真空蒸着により、金、アルミニウム等の金属電極を付加し、キャリア注入により発光させることを試みたが、発光を確認することができなかった。ナノファイバー—電極間のキャリア移動が阻害されているためだと考えられる。従って、ナノファイバー—電極間にキャリア移動・注入を担う適当な有機層を挿入することが必要であると結論した。



(b)

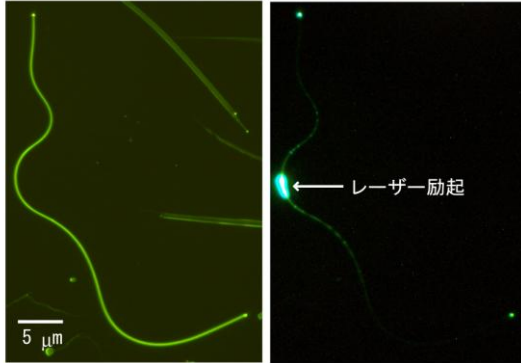


図5 (a) コロネン (b) コロネンナノファイバーの蛍光画像 (左) とレーザー励起蛍光顕微画像 (右)

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

- ① Ken Takazawa, Kazutaka Mitsuishi, Jun-ichi Inoue. “Direct Electron Beam Writing of Bragg Gratings in Exciton Polariton Waveguides of Organic Dye Nanofibers”, Applied Physics Letters, Vol. 99, pp. 253302-1~4, 2011, 査読有
- ② Ken Takazawa, Jun-ichi Inoue, Kazutaka Mitsuishi, Tadashi Takamasu, “Micron-Scale Photonic Circuit Components Based on Propagation of Exciton Polaritons in Organic Dye Nanofibers”, Advanced Materials, Vol. 23, Issue 32, pp. 3659~3663, 2011, 査読有
- ③ Ken Takazawa, Jun-ichi Inoue, Kazutaka Mitsuishi, Tadashi Takamasu, “Fraction of a Millimeter Propagation of Exciton Polaritons in Photoexcited Nanofibers of Organic Dye”, Physical Review Letters, Vol. 105, No. 6, pp. 067401-1~4, 2010, 査読有

[学会発表] (計3件)

- ① Ken Takazawa, “Exciton polariton photonic circuits from organic dye nanofibers”, Pacificchem 2010, 2010/12/15-2010/12/20, Convention Center, Honolulu.
- ② Ken Takazawa, Jun-ichi Inoue, Kazutaka Mitsuishi, Tadashi Takamasu,

“Exciton Polariton Photonic Circuits from Organic Dye Nanofibers”, The international conference on nanophotonics 2010, 2010/5/30-2010/6/3, EPOCHAL Tsukuba.

③ K. Takazawa, J.C. Gielen, I.O. Shklyarevskiy, G. Portale, W. Bras, J.C. Maan, P.C.M. Christianen, “Tuning the Flexibility of Thiocyanine Fibers with a Magnetic Field”, International Conference on Magneto Science 2009, 2009/10/26-2009/10/29, High Field Magnet Laboratory, Radboud University Nijmegen, Netherlands.

[その他]

<http://www.nims.go.jp/units/apm/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

高澤 健 (TAKAZAWA KEN)

独立行政法人物質・材料研究機構・先端フ  
ォトニクス材料ユニット・主幹研究員

研究者番号：10354317

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし