

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04705

研究課題名(和文)有機色素ナノファイバーによる新規ナノフォトニクス技術の開発

研究課題名(英文) Novel nanophotonics technology using organic dye nanofibers

研究代表者

高澤 健 (TAKAZAWA, Ken)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・主幹研究員

研究者番号：10354317

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：有機色素(チアシアニン)の単結晶ナノファイバーは光励起で生成した励起子ポラリトン室温で安定に伝搬する。本研究では、冷却によりポラリトンの分散曲線を変調することで、光の波長より遥かに細い、幅約90 nmのナノファイバーが高効率にポラリトンを伝搬することを明らかにした。さらに、ラマン散乱を利用してナノファイバーに近赤外光を入力する技術を開発し、その伝搬特性を明らかにする実験を行った。その結果、波長1ミクロン領域の光に対しても、ナノファイバーが高い伝搬効率を示すことを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Single crystalline nanofibers constructed from organic dye thiocyanine propagate exciton polaritons generated by optical excitation. In this project, we demonstrated that a 90-nm-wide-nanofiber, which is much narrower than the wavelength of light, efficiently propagates exciton polaritons by tuning the dispersion curves of the polaritons by cooling. Moreover, we developed a technique to coupling near infrared light into nanofibers using the Raman scattering and investigated the propagation properties for the wavelength range. We found that thiocyanine nanofibers efficiently propagate near infrared light.

研究分野：有機ナノ構造の分光学的研究

キーワード：ナノフォトニクス 励起子ポラリトン 有機色素 ナノファイバー 有機結晶 光物性

1. 研究開始当初の背景

光集積回路は電気回路を超える高速化・低消費電力化が原理的に可能ため、通信機器やマイクロプロセッサへの応用が期待されている。高度に集積化した光回路の実現には、細く、なおかつ低曲げ損失な光導波路の開発が必要である。しかし、従来の光導波路では、回折限界により光の波長程度より微小な領域で光を伝搬・操作することは困難である。このため、フォトニック結晶やプラズモニクにより、回折限界を超えた光操作を行う試みが、活発に行われている。

我々は近年、有機色素(チアシアニン)の自己組織化で合成した単結晶ナノファイバーが、光励起で生成した励起ポラリトンを室温で安定に伝搬する現象を発見した [1]。ポラリトン効果によりナノファイバーの実効的な屈折率が増大するため、ポラリトン伝搬では通常的光伝搬では困難なミクロンスケールでの光操作が可能になる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、我々が発見したチアシアニンナノファイバー中を励起子ポラリトンが伝搬する現象を基にして、既存光導波路技術を凌ぐナノフォトニクス技術を開発することである。具体的には、ポラリトンの分散曲線を冷却で変調することにより、伝搬光波長より遥かに細いナノファイバーを用いて、ミリメートルに亘るポラリトン伝搬を可能にする。また、ポラリトンをナノの曲率半径で曲げたナノファイバー中を伝搬させ、ナノスケールでの光操作を実現する。さらに、基板上的ナノファイバーをマイクロマニピュレーターを用いて操作して、極微小のリング共振器やマッハ・ツェンダー干渉計などの光回路素子を製作し、低温で動作させ、その機能を評価する。また、ナノファイバー光回路素子の実用化の可能性を検証するために、通信波長帯(近赤外領域)における、ナノファイバーの光(ポラリトン)伝搬特性を評価する。

3. 研究の方法

試料作製: チアシアニンを温水(約 50 度)に溶解した後、室温まで冷却すると、自己組織により溶液中にナノファイバーが生成される。この時、冷却速度を制御することでナノファイバーの幅を数 10nm(冷却速度大)から数 μm (冷却速度小)の間で制御して合成することができる。ナノファイバーを含む水溶液をガラス基板上に滴下し、溶媒(水)を蒸発させることで、試料を得る。

低温分光測定: 試料を顕微鏡に取り付けた光学窓付き液体窒素フロー型冷却ステージに設置する。半導体レーザーの出射光(波長 405 nm)を顕微鏡に導入し、対物レンズを通してナノファイバーに照射する。ナノファイバーからの発光を同じ対物レンズで集めて、イメ

ージング分光器を通して液体窒素冷却 CCD カメラで計測する。

ナノファイバー光回路素子の製作: 顕微鏡のステージに試料を設置し、マイクロマニピュレーターに装着したガラス針を用いてナノファイバーを操作して素子製作を行う。

ナノファイバーの近赤外領域における光伝搬特性の計測: 顕微鏡に設置した試料に、半導体レーザーの出射光(波長 795 nm)を赤外光用対物レンズで絞りナノファイバーの一点に照射する。試料からの発光(散乱光)を同じ対物レンズで集め、イメージング分光器を通して CCD カメラにより計測する。照射位置で発生したラマン散乱光がナノファイバー中を伝搬すると、ファイバー端からラマン光が射出される。

4. 研究成果

(1) 極細ナノファイバー中のポラリトン伝搬

はじめに、冷却によりポラリトンの分散曲線を変調することで、どれほど細いナノファイバーでポラリトン伝搬が生じるかを明らかにした。レーザー光(405 nm)をナノファイバーの一点に照射して蛍光画像を測定した。ポラリトン伝搬が生じると、ファイバーの両端に強い発光が観測される。様々な幅のファイバーに対して計測を行い、ポラリトン伝搬が生じる極限のファイバー幅を探索した。ファイバーの幅の測定は、光学測定完了後に走査型電子顕微鏡を用いて行った。その結果、室温でポラリトン伝搬が生じるためには 200-300 nm 程度のファイバー幅が必要であるのに対し、液体窒素温度(83 K)では、幅 100 nm を切るナノファイバーでも高効率なポラリトン伝搬が生じることが明らかになった(図 1)。

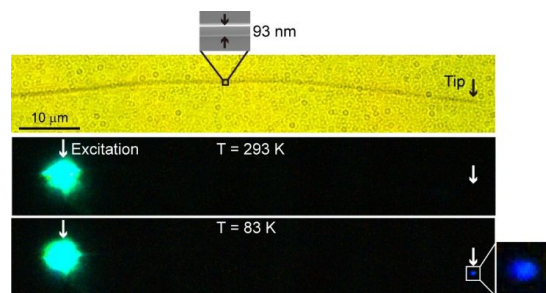


図 1 上段: 幅 93 nm のナノファイバーの光学顕微鏡画像(拡大図は電子顕微鏡画像)。中段: 室温でファイバーの一点を光励起して測定した蛍光顕微鏡画像。ファイバー端発光は観測されない。下段: 83 K で同様に測定した画像。ファイバー端発光が観測された。

幅 400 nm のナノファイバーに対して、レーザー励起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。スペクトルを解析することで、各波長におけるポラリトン伝搬の損失を見積もった。さらに、温度を変えながらスペクトルを測定することで、冷却によるポラリトン伝搬損失の変化を見積もった(図2)。その結果、室温では波長 500 nm 以下の領域で損失が大きくなるが、83 K では 470 nm に至る発光スペクトルの全領域で、損失がほぼ 0 となることがわかった。

冷却によるポラリトン伝搬特性変化のメカニズムを解明するために、ナノファイバーの長軸方向の群屈折率 n および消衰係数 k の実測を行った。その結果、冷却によってポラリトンの分散曲線が変調されるために、 n が非常に大きく、 k がほぼ 0 となる波長領域が生じるため、低温では極細ナノファイバーでのポラリトン伝搬が可能になることが明らかになった。

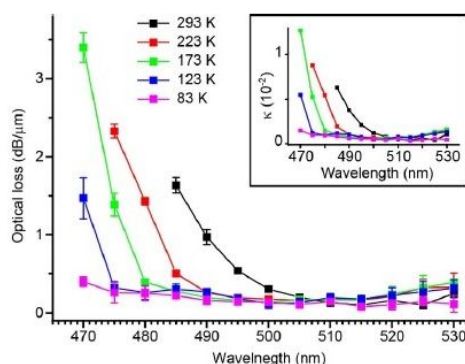


図2 ポラリトン伝搬における損失の温度依存性。

(2) ナノファイバーによる極微小光回路素子の作製

我々はこれまでに、幅 500 nm 程度のナノファイバーをマイクロマニピュレーターで操作して、直径数 μm のリング共振器や 20 μm 四方程度の占有面積しかないマッハ・ツェンダー干渉計を作製し、室温で動作することを実証してきた[2-4]。液体窒素温度では幅 100 nm を切る極細ナノファイバーでも高効率なポラリトン伝搬が生じることが明らかになったため、極細ナノファイバーを用いてナノスケール光回路素子を製作することを試みた。マイクロマニピュレーターを用いて、極細ナノファイバーの操作を行ったところ、幅 500 nm 程度のナノファイバーの操作では問題にならなかったガラス針先端の微小な振動により、ファイバー操作が困難であることが明らかになった。マニピュレーターや顕微鏡ステージに対して除振対策を行った結果、ガラス針の振動を低減することができたが、ナノスケールの操作を行うことは依然困難であった。今後、顕微鏡を含む装置全体を除振台上に設置するなど、徹底した対策を行うこ

とでナノスケールのナノファイバー操作を目指す。

(3) 近赤外領域におけるチアシアニンナノファイバーの伝搬特性

ナノファイバー光回路素子の実用化の可能性を検証するために、近赤外領域(通信帯波長)における、ナノファイバーの光(ポラリトン)伝搬特性の評価を行った。この目的のためには、近赤外光をナノファイバーに導入する必要があるが、外部光源からの光をナノファイバーに導入することは、一般に困難である。そこで新たに、ラマン散乱を利用して近赤外光をナノファイバーに導入する手法を開発した。波長 795 nm のレーザー光をナノファイバーの一点に照射する。これにより、照射点で生じたラマン光(近赤外領域)の一部がファイバーに導入される。

幅約 500 nm のナノファイバーに上記手法を適用したところ、波長 800 nm から 910 nm のラマン散乱光がファイバーの両端から検出された。これにより、チアシアニンナノファイバーが近赤外領域の光に対しても導波路として機能することが明らかになった。

<引用文献>

- [1] K. Takazawa, et al., "Fraction of a Millimeter Propagation of Exciton Polaritons in Photoexcited Nanofibers of Organic Dye", Phys. Rev. Lett., 105, 2010, 067401.
- [2] K. Takazawa, et al., "Micrometer-Scale Photonic Circuit Components Based on Propagation of Exciton Polaritons in Organic Dye Nanofibers", Adv. Mater., 32, 2011, 3659.
- [3] K. Takazawa, et al., Adv. Func. Mater., "Ultracompact Asymmetric MachZehnder Interferometers with High Visibility Constructed from Exciton Polariton Waveguides of Organic Dye Nanofibers", 23, 2013, 839-845.
- [4] K. Takazawa, et al., "Optical Microring Resonators Constructed from Organic Dye Nanofibers and Their Application to Miniaturized Channel Drop/Add Filters", ACS Appl. Mater. Interfaces, 5, 2013, 6182-6188.

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3件)

K. Takazawa, "Coupling light into organic nanofibers via Raman scattering: waveguiding properties for near-infrared light", Micro & Nano Letters, 12, 123-127 (2017) 査読あり.
Doi: 10.1049/mnl.2016.0448

K. Takazawa, “Understanding the emission pattern produced by focused laser beam excitation of perylene square single crystals”, Chemical Physics Letters, 667, 284-289 (2017) 査読あり.

Doi: 10.1016/j.cplett.2016.10.083

K. Takazawa, J. Inoue, K. Mitsuishi, “Optical waveguiding along a sub-100-nm-width organic nanofiber: a significant effect of cooling on waveguiding properties”, Journal of Physical Chemistry C, 120, 1186-1192 (2016) 査読あり.

Doi: 10.1021/acs.jpcc.5b10125

〔学会発表〕(計0件)

〔図書〕(計1件)

K. Takazawa, H. Takeda, K. Sakoda, “Extremely Small Bending Loss of Organic Polaritonic Fibers” in *Micro-and Nanophotonic Technologies*, Wiley-VCH, 65-80, 2016.

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等
<http://www.nims.go.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高澤健 (TAKAZAWA, Ken)
国立研究開発法人物質・材料研究機構・主幹研究員
研究者番号：10354317

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者 ()

研究者番号：

(4) 研究協力者 ()