

令和元年9月10日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K19176

研究課題名(和文)協同的プラズモニクモードによる微小球レーザーの低対称化と異方的発振

研究課題名(英文) Anisotropic oscillation of microsphere laser via symmetry breaking by collective plasmonic mode

研究代表者

村井 俊介 (Murai, Shunsuke)

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：20378805

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：真球度の高いEu³⁺添加ガラス微小球の作製を行うとともに、得られた微小球をアルミニウムナノシリンドラーアレイ上に固定し、光学顕微鏡下で励起し発光スペクトルを観察した。ウィスパーリングギャラリーモード(WGM)のモード間隔がアレイによって変化することを見出した。1年半の研究を通じ、最終目標とする指向性ある微小球レーザーの作製には至らなかったものの、真球度の高い微小球の作製及びアレイ基板の作製と、最終目標に必要な要素の研究を行うとともに、両者を組み合わせた際のモード変調を観察することができた。今後研究を継続することで目標達成を試みる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

学術的には、微小球に励起されるウィスパーリングギャラリーモードと金属ナノ粒子の周期アレイ構造(プラズモニクアレイ)の相互作用を確認することができた。これは今後の指向性微小球レーザー開発につながる基礎的・萌芽的な成果である。社会的には、次世代レーザー光源の開発につながる重要な成果を挙げた。今後詳細な実験を行うことで、さらに大きな学術的・社会的なインパクトのある成果が挙げられると考えている

研究成果の概要(英文)：We produced the Eu³⁺-doped glass microspheres having high sphericity, and obtained the PL spectra from microspheres fixed on an aluminum nanocylinder array. We found that the whispering gallery mode (WGM) mode spacing varies with the array. The shift indicated that the eigenmode in the spheres can be controlled by the array. Although we did not reach the final goal of making a directional microsphere laser through one and a half years of research, we succeeded in making elements that are prerequisites for the final goal; preparation of microspheres with high sphericity and array substrate. We will continue the research to achieve the goal in the future.

研究分野：プラズモニクス

キーワード：プラズモニクアレイ 微小球レーザー 蛍光ガラス ガラス微小球

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

アレイと発光層の組み合わせで指向性発振を得るために、金属ナノ粒子の形状を円柱から円錐にするなど、面外非対称にする設計が行われている。しかしながら、現状の微細加工技術において、面外に異方的な形状を制御してエッチングすることが難しく、実験的な報告は限られる。また、金属ナノ粒子の構造制御だけで全波長領域をカバーしう設計は現在のところ不可能である。したがって、現状で広帯域の発光を 100% 特定方向に配向することはできない。他方、微小球レーザーは高効率のレーザーとして研究が進んでいるが、全方向に出射することが応用を妨げている。対称性を崩し、異方的な発振を得るために、散乱体や回折格子を組み込む研究が進んでおり、一定の成果を上げている。代表者はプラズモニックアレイの上に発光層を堆積させ、発光挙動を調べる中で、発光層の表面(空気側)と裏面で発光強度が大きく異なる現象を見出した。アレイの存在が発光層の面外の対称性を破ったことが発光非対称性化の原因である。多くの応用において特定の方向への発光のみが有用であるにも関わらず、ファブリペローレーザーを除くすべての光源が全方位に光を放つため、その他の方向へ進む光はミラーで反射させるか、フィルターでカットしている。もし 100% 必要な方向に発光を向けることができれば、多くの分野でインパクトがある。他方、分担者は、高 Q 値の微小球に、テラス構造や気泡など、意図的に対称性を破る構造を導入することで、低閾値発振を実証してきた。

2. 研究の目的

本研究では、微小球をプラズモニックアレイと組み合わせることで、対称性を大きく崩し、かつ WGM を特定の方向への光回折と共鳴させることで、100% の指向性ある低閾値発振を得ることを最終目的とする。透明な微小球は、内部で発生した光が球の界面で全反射を繰り返しながら周回し閉じ込められるため、極めて低閾値のレーザーとなる。しかし、微小球はその非常に高い対称性ゆえに、全方向に発振が起こる。そのため、使い勝手の悪い光源にとどまっている。本申請では、金属ナノ粒子周期アレイと微小球レーザーを組み合わせることで、発光方向を制御したレーザー発振を実現する。アレイとの接触によって微小球の対称性を異方的に破り、微小球内の共振を面外特定方向への光回折と共鳴させることで、指向性あるレーザー発振を起こすことが目標である。

3. 研究の方法

目的達成のため、以下の 3 サブテーマを並行して研究した。

- A) [気中溶融法による $Tb_2O_3-Al_2O_3$ ガラス微小球の作製と磁気・光学特性の評価] 気中溶融法を用い、これまでガラス化が困難であった $Tb_2O_3-Al_2O_3$ ガラス微小球を作製した。ガラス中に Tb^{3+} を大量に含有させることで、4f スピンに起因する高い磁気光学効果を示すガラス作製を試みた。
- B) [微小球とアレイの組み合わせ] 共用施設である、京都大学および物質・材料研究機構(NIMS)の微細加工プラットフォームを利用し、ガラスおよびサファイア基板上にナノインプリントリソグラフィと反応性イオンエッチングを用いたプロセスによりナノ粒子アレイを作製した。ガラス微小球は分担者が開発した、蒸気浮上法で作製した。この手法は高い真球度と高い歩留まりが大きな利点である。微小球に添加する発光中心は波長 600 nm 付近に発光のピークがある Eu^{3+} イオンを選択した。ホストガラスは高屈折率で高 Q 値微小球の作製実績があるテルライト(TeO_2)系ガラスとした。母ガラスを多孔性基板上に静置し、CW レーザーを集光照射することで、真球度の高いガラス微小球を作製した。得られた微小球を XYZ 自動ステージに固定し、顕微鏡に設置し、CW レーザーにて Eu^{3+} を励起し、反射配置の発光を検出した。
- C) [アレイ上に塗布した発光層の厚みが発光増強に及ぼす影響の調査] Al ナノシリンダーアレイに発光層を蒸着し、膜厚による発光増強度を調べた。(B) で作製したアレイに真空蒸着により Eu^{3+} 錯体発光層を堆積させた。白色光源と分光器を組み合わせた系において可視領域の透過率測定を行った。試料を波長 325nm の He-Cd レーザーで励起し、発光スペクトルを取得した。時間相関フォトンカウンティング (Quantaurus-Tau (小型蛍光寿命測定装置)) により蛍光寿命を測定した。

4. 研究成果

1年半の研究で以下の成果を得た。

- A. [気中溶融法による $Tb_2O_3-Al_2O_3$ ガラス微小球の作製と磁気・光学特性の評価] 気中溶融法によりこれまでガラス化が困難であった $Tb_2O_3-Al_2O_3$ ガラス微小球を作製し、 Tb^{3+} の 4f スピンに起因する磁気光学効果を測定した。大量の Tb^{3+} イオンを導入できたことで、大きな磁気光学効果を示すガラスが作製できた。(論文 2)
- B. [微小球とアレイの組み合わせ] Eu^{3+} 添加ガラス微小球の作製を行うとともに、得られた微小

球を光学顕微鏡下で励起し、発光スペクトルを観察した。ウィスパーリングギャラリーモード (WGM) の観察できる、真球度の高い微小球の作製に成功した。Fig.1 黒線は粉碎したガラスの発光スペクトルで、 Eu^{3+} の特徴的な赤色発光が見られる。青線は多孔質基板を用いた蒸気浮上法で作製したガラス微小球の発光スペクトルである。ポリスチレン基板に静電気で付着させ、10 倍の対物レンズを通して励起光をポリスチレン側から入射させ、同じ対物レンズで集光して発光スペクトルを測定した。 Eu^{3+} の発光が、鋭いスパイク状のピークが等間隔に並んでいることがわかる。

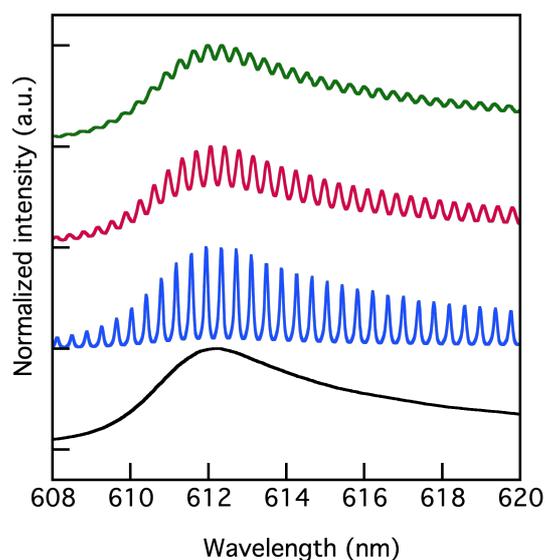


Fig. 1 Eu^{3+} 含有微小球ガラスからの発光スペクトル: (緑)微小球をナノシリンダーアレイに接触させて測定した発光スペクトル。(赤)励起箇所を 90° 移動し、緑の励起と直交する赤道面を励起して得られた発光スペクトル。(青)微小球をナノシリンダーアレイに接触させず、空中に保持した得られた発光スペクトル。(黒)微小球化前のガラス微粉末の発光スペクトル。

また、ナノ回折格子が三角格子であるので、赤色と緑色のスペクトルで励起方向を 90° 変化させると励起方向によってスペクトル形状が変化した事実は、異なる相互作用を引き出せる可能性を示唆している。モードスペーシングは、ナノシリンダーアレイがないときに 10.3cm^{-1} で、これは相対屈折率 2.0 の理論値 10.5cm^{-1} に近い。ナノシリンダーアレイがあると、励起方向にかかわらずモードスペーシングは 9.6cm^{-1} と小さくなっている。WGM (Whispering Gallery Mode) でモードスペーシングが小さくなるということは、光路長が長くなったということであり、球の直径が大きくなるか、相対屈折率が高くなる必要がある。しかしながら、前者は $20\ \mu\text{m}$ 直径が大きくなる必要があり、後者は屈折率が 2.0 から 2.3 に増加しなければならない。前者は光学顕微鏡像から変化していないことを確認しており、後者はナノ回折格子の屈折率が 1 以下である必要があり、現実的ではない。したがって、ナノ回折格子との接触による WGM のモードスペーシングの変化は、WGM 光共振器とナノ回折格子の協奏的モードが新たに形成されたことによるものと示唆される。

- C. [アレイ上に塗布した発光層の厚みが発光増強に及ぼす影響の調査] Al アレイ上の発光増強に関して、膜厚を系統的に変化させ膜厚が発光増強に及ぼす影響を調査した。金属へのエネルギー移動が起こらず、Outcoupling による発光増強がみられる、最適な発光層厚さがあることが分かった。研究費は、光学測定のための消耗品購入に使用した。(論文 1)
1 年半の研究を通じ、最終目標とする指向性ある微小球レーザーの作製には至らなかったものの、微小球レーザーの作製及びアレイ基板の作製と、最終目標に必要な要素の研究を行うことができた。今後研究を継続し、目標達成を試みる。

5. 主な発表論文等
〔雑誌論文〕(計 2 件)

1. Kawachiya Yuki, Murai Shunsuke, Saito Motoharu, Fujita Koji, Tanaka Katsuhisa, Photoluminescence decay rate of an emitter layer on an Al nanocylinder array: effect of layer thickness, *J. Opt. Soc. Am. B* **36**, (2019) E1-E8
2. Kishi Tetsuo, On-chip fabrication of micrometer-size super-hemispherical and spherical optical devices from molten glass droplets, *Journal of the Ceramic Society of Japan* **126**, (2018) 495-503

〔学会発表〕(計 3 件)

1. Masakazu Aoyagi, Tetsuo Kishi, Nobuhiro Matsushita, Tetsuji Yano, Preparation of Highly

Terbium-oxide-containing Aluminate Glass Microspheres by the In-Flight Melting Method and their Magnetic Properties, ICG annual meeting (国際学会) (2018年)

2. ○河内谷 佑季・村井 俊介・藤田 晃司・田中 勝久, ナノシリンドーアレイを用いた紫外領域での協同プラズモンモードの励起と希土類錯体の発光増強効果, 平成 30 年度 第 4 回半導体エレクトロニクス部門委員会 第 2 回研究会 平成 30 年度 第 2 回ナノ材料部門委員会 第 1 回研究会 (国際学会) (2018 年)
3. 河内谷 佑季・村井 俊介・藤田 晃司・田中 勝久, ナノシリンドーアレイによる紫外領域での協同プラズモンモードの励起と希土類錯体の発光増強効果, 第 16 回京都大学 福井謙一記念研究センターシンポジウム (2018 年)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等:京都大学田中勝久研究室 <http://dipole7.kuic.kyoto-u.ac.jp/contents/publication.html>
(研究室主宰研究者 (田中勝久) の研究室 HP)

文部科学省「平成 30 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰」若手研究者賞を受賞しました。「プラズモン構造による次世代光源の創成に関する研究」

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：岸 哲生

ローマ字氏名：Kishi Tetsuo

所属研究機関名：東京工業大学

部局名：物質理工学院

職名：助教

研究者番号 (8 桁) : 90453828

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。