

機関番号：14303

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21750192

研究課題名(和文) 光照射自己形成プロセスによる固体有機レーザの作製と導波路集積型光デバイスへの応用

研究課題名(英文) Solid-state organic laser fabricated with light-induced self-formation process and application to integrated waveguide devices

研究代表者

山下 兼一 (YAMASHITA KENICHI)

京都工芸繊維大学・工芸科学研究科・助教

研究者番号：00346115

研究成果の概要(和文)：本研究は固体型有機レーザ素子の新規開発に関するものである。このレーザ素子は光照射による光導波路の自己形成技術によって作製され、レーザ発振に必要な共振器構造も簡便に作りこむことができる。また、周辺の光導波路ポートとの本質的に結合されているため、光導波回路中の集積型レーザ光源素子としての応用が期待できる。研究期間内では、これまでに開発してきたレーザ素子の発振低閾値化と発振波長制御、及び多機能集積型ポリマー光アクティブデバイス一括作製技術の開発を行った。

研究成果の概要(英文)：A solid-state organic laser device was developed in this study. This laser device consists of an organic dye-doped plastic waveguide, which could be fabricated with a self-formation process induced by laser light irradiation. Furthermore, a cavity structure for lasing oscillation could also be easily fabricated. Since this waveguide device is essentially coupled with input and output waveguide ports, application to an integrated light source component in a lightwave circuit can be expected.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2010年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：光エレクトロニクス

科研費の分科・細目：材料化学 ・ 機能材料・デバイス

キーワード：光導波路、レーザ素子、有機光デバイス、光集積デバイス

1. 研究開始当初の背景

近年、比較的簡便・安価な手法で作製が可能であるといわれる有機材料による光デバイスが、より柔軟性を求められる次世代光エレクトロニクス技術における一つの要素技術として注目を集めている。実際に有機 EL ディスプレイなどが実用化されており、さらに現在では有機固体レーザや有機太陽電池などを新たな研究ターゲットとして、高い機能性を持った新規材料開発を主眼とした研

究アプローチが盛んに行われている。もちろんこのような材料研究は非常に重要な課題であるが、例えば光導波型デバイスなどを作製する際に、ドライエッチングなどといった無機材料系デバイスの場合と同様なプロセスが必要となってしまうと、簡便性・安価性といった有機材料を用いるそもそもの利点が損なわれることになる。そこで申請者は、有機光デバイスの優位性をよりアピールするためには、有機材料を用いるからこそ可能

となる斬新な作製技術の開発、あるいは有機材料であるからこそ可能となるデバイスアーキテクチャーの創出が、新規材料開発と平行して行われるべき重要な相補的研究課題であると考えていた。

2. 研究の目的

本研究は、光照射自己形成プロセスという全く新しい技術による固体色素レーザーの作製と、導波路集積型ポリマー光アクティブデバイスへの応用を目的として開始された。材料形状の任意性、加工の容易性といった有機材料の優位性を存分に活かし、無機材料では実現できない独創的な光増幅構造やレーザー構造の作製を目指した。

本研究の技術により作製される導波路集積型ポリマー光アクティブデバイスの最終的な概念の一例を図1に示す。これは、色素ドープ導波路の光誘起による自己形成技術〔自己形成活性導波路：Self-Written Active (SWA) 導波路〕で作製されるレーザー素子や光増幅素子などの機能性素子、及び通常の光伝送を担うポリマー導波路がシリアルに結合された光機能性モジュールであり、光硬化性モノマーなどの感光性媒質中での照射光自己束縛現象を利用して一括で作製される。本研究の開始前までには入出力ポート結合型光増幅構造とファブリペロー (FP) 型有機固体レーザー構造の作製に成功しており、本研究課題のベース技術とした。本研究期間内では、①レーザー素子発振特性の低閾値化と発振波長制御、②多機能集積型ポリマー光アクティブデバイス一括作製の実現を具体的な目的とした。

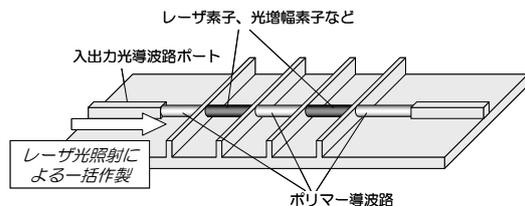


図1 光照射自己形成プロセスにより作製される導波路集積型ポリマー光アクティブデバイスの概念図

3. 研究の方法

本研究は2年計画で実施され、まず初年度では、照射光自己束縛現象により作製されるSWA 導波路レーザー単体の作製及び評価に重点を置いた研究を実施した。それまでに達成していたレーザー発振動作の閾値を大きく低減させることを目的とし、DBR 型の共振器構造を有するSWA 導波路レーザーの作製とその動作特性評価を行った。具体的な作製手順を、図2を用いて説明する。

(1) 光ファイバ用のマイクロキャピラリや V

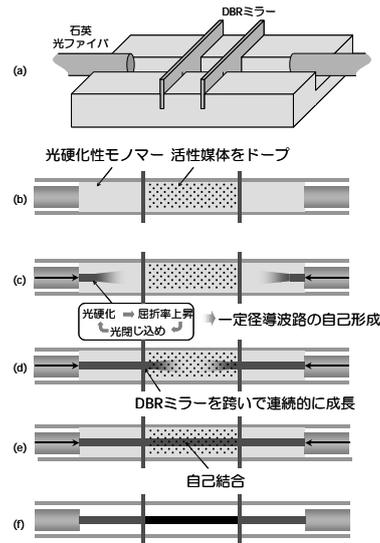


図2 DBR型SWAレーザーの作製方法

溝付石英基板に幅 $100\ \mu\text{m}$ 程度の微細溝を設け、誘電体多層膜ミラー (DBR ミラー) を立てて固定する。

- (2) 各スロットに、活性媒体を混合した光硬化性モノマーあるいは光硬化性モノマーのみを満たす。
- (3) 405nm ダイオードレーザー光を双方のファイバ端から照射し、モノマーの光硬化→屈折率上昇→照射光の光閉じ込めという3つの現象を連鎖的に発生させ、一定径の導波路構造を自己形成させる。
- (4) 露光波長が誘電体多層膜ミラーの反射波長帯に重ならないように設定し、ミラーを介して導波路を作製させる。
- (5) 双方向から成長した SWA 導波路は中央で自己結合する。
- (6) 未硬化部のモノマーを取りのぞき、SWA 導波路レーザーを完成させる。

導波路材料としては、母材となる光硬化性モノマーにはベンジルアクリレートやモノメチルメタクリレート、活性媒体には近赤外有機色素 Styryl 11 を用いた。この色素は従来のファブリペロー型レーザー素子でも使用していたものであり、DBR 共振器付与による効果を確認するため同じとした。作製したサンプルに溶液攪拌型色素パルスレーザーにて光励起を行い、CCD 分光計にて出力スペクトルを測定し、レーザー発振閾値を評価した。次年度は異なる機能性を持った SWA 導波路を直列接続させて作製することを検討した。

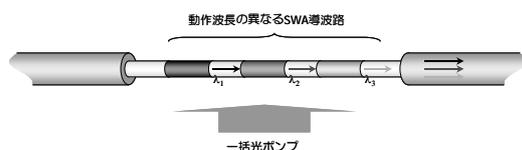


図3 異種波長集積型レーザーデバイス

ここでは、異なった可視領域波長で発光する導波路を結合して、集積型の白色光源とすることを考えた。図3に作製した素子の概念図を示す。ドープされた有機色素の HOMO-LUMO ギャップが小さい順に左側から並べることにより、ファイバに結合されたマルチカラーレーザ発振を右側ファイバから得るものである。このような構造を得るためには、異なった種類の混合液を隔離して充填するためのスロットが必要となる。そのため、厚膜レジストである SU-8 をパターンニングしてデバイス作製のためのプラットフォームとした。

4. 研究成果

まず、レーザ発振閾値低減の結果について述べる。反射波長帯 (反射率 99%以上) が 750~850nm の誘電体多層膜を共振器ミラーとして、赤外有機色素 Styryl 11 を活性媒体として 0.3wt% 含んだ DBR 型 SWA 導波路レーザを作製した。この光励起下における発振スペクトル及び出力強度の励起強度依存性を図4に示す。750nm 辺りに線幅の狭い複数のピークが観測されている。また、出力強度は励起強度に対して明らかな閾値を持って増加しており、この発光が FP 型のレーザ発振であることが分かる。閾値はおおよそ 0.2 mJ/cm^2 であり、Al 膜を真空蒸着したタイプの共振器 (反射率~20%) 構造の結果よりもおよそ 3 分の 1 にまで低減されていることが分かった。

今回作製した DBR 型素子における閾値低減効果をより詳しく調べるために、様々な共振器長を持つデバイスを作製し、発振閾値を同じように測定した。その結果を図5に示す。図中▲は Al 蒸着膜ミラーによる過去の結果である。●は今回の DBR 型素子の結果であり、どのような共振器長でも閾値低減効果が確認できた。また、従来型の素子では共振器長が短くなるに従って閾値は増大していたが、DBR 型素子ではそのような傾向が見られなかった。これは FP 型のレーザ発振の表式 $g_{th} = \alpha - (\ln R) / L$ より容易に理解できる。ここで、

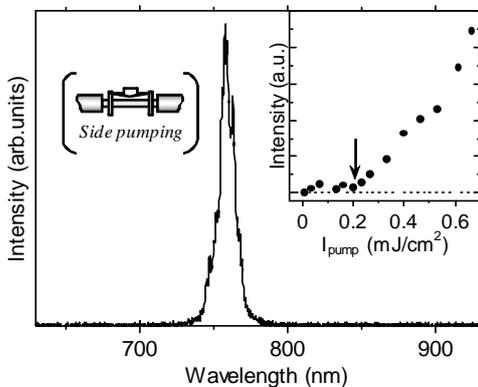


図4 DBR型SWAレーザの発振スペクトルと出力強度の励起強度依存性

g_{th} は閾値での利得係数、 α は導波損失、 R はミラー反射率、 L は共振器長である。つまり、DBR 型素子では R が 1 に極めて近いので、レーザ発振に必要な導波路利得が L に依存しにくくなる。この結果は、光回路内での微細な集積型光源としては有利な特性と言える。さらに発振閾値の低減を目指して、ドープする色素濃度を増加することを検討した。その結果を図5に○でプロットした。閾値はさらに大きく低減しており、最も良い場合で $22.3 \mu\text{J/cm}^2$ であった。以上より、本研究では、従来型の素子よりも式糸をおよそ 30 分の 1 に低減することに成功した。

光励起の手法が発振の閾値に与える影響についても調べた。図6は、励起光を導波路の側面から照射した場合 (●) と入力ポートを通じて導波路の端面から照射した場合 (○) の、出力光強度の違いを示している。レーザ発振の閾値は明らかに端面ポンプの方が優れていることが分かる。励起波長についても最適化を図った結果、最終的に 48nJ 程度のポンプ光でレーザ発振させることに成功した。この導波型の励起手法は、励起光波長で透過性を確保することのできる DBR 型素子により初めて適用可能となった。

次に、次年度に実施したポリマー導波路直

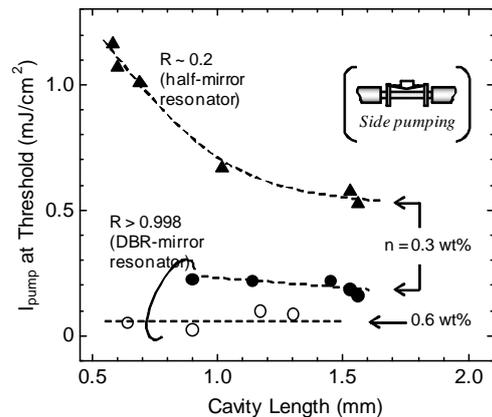


図5 発振閾値の共振器長依存性

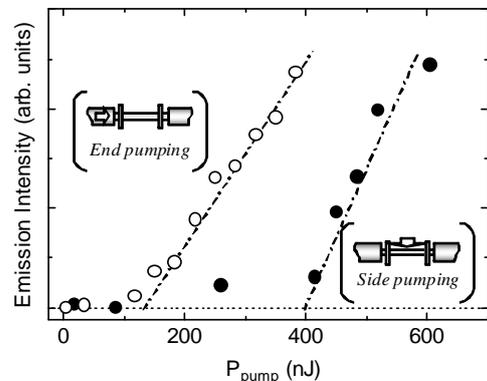


図6 光励起方法の違いによる発振閾値の変化

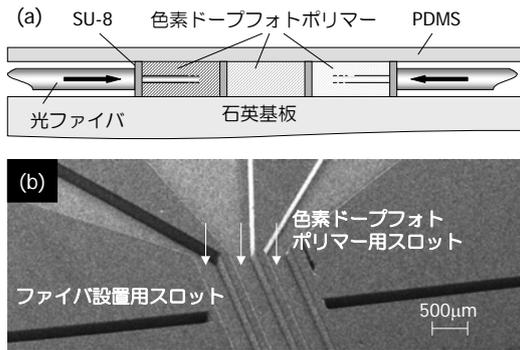


図7 (a) SWA 導波路による集積型白色光源と (b) それに使用する SU-8 プラットフォーム

列接続型の白色光源素子の結果について述べる。図3に示したような異なった可視領域波長で発光する SWA 導波路作製のために、活性材料としては Rhodamine 640、Coumarin 153、Coumarin 120 を使用することにした。まず、厚膜レジスト SU-8 を使った流路型のデバイス作製用プラットフォームを作製した。その SEM 画像を図7に示す。写真中央に幅・深さともに $100\ \mu\text{m}$ のフォトポリマー用流路が3つ並んでおり、それぞれのスロットは幅 $20\ \mu\text{m}$ の壁で仕切られている。それと直角にファイバ設置用のスロットが配置されている。このプラットフォームを用いて導波路直列接続型の光源素子を作製した。まず、ファイバをスロットに配置して、厚さ $100\ \mu\text{m}$ 程度のポリジメチルシロキサンシートで封止した。その後、毛細管現象により3種類の色素ドープフォトポリマーを充填した。そして光ファイバ端より、波長 375nm の紫外レーザ光を導入した。SWA 導波路が作製できていることを確認して露光を止め、未硬化部のフォトポリマーを洗浄除去した。このようにして作製した素子の顕微鏡写真を図8に示す。サンプルには紫外線照射を行っている。ここで使用した光ファイバは直径が $50\ \mu\text{m}$ の導波コアを持っており、ほぼその大きさで均一の太さをした SWA 導波路が作製されていることが分かる。出来上がったサンプルをブラックライト光源の上に載せ、出力光のスペクトルを観測した(図9)。Rhodamine 640 の赤色帯、Coumarin 153 の緑色帯、そして Coumarin 120 の青色帯のブロードな発光ピークが同時に観測されており、連続した広帯域光源が簡単に得られていることが分かる。通常、このよ



図8 3つの波長帯で発光する SWA 導波路の直列接続構造

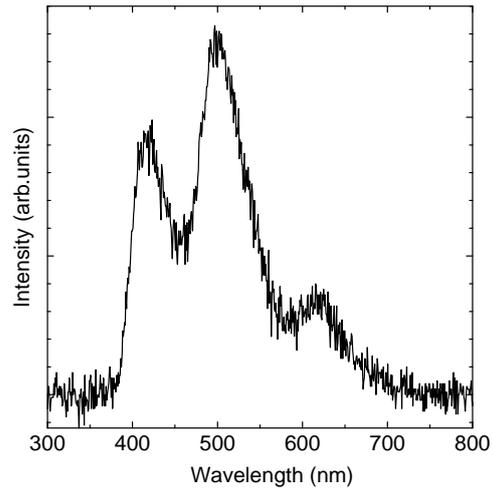


図9 SWA 導波路による集積型白色光源の出力スペクトルの一例

うなインコヒーレントな光源は、収差の影響があるため微細な導波路に結合することが難しいが、この手法であれば、原理的には任意のコア幅で白色光源を作製することが可能である。

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10件)

- ① K. Yamashita, M. Ito, S. Sugimoto, T. Morishita, and K. Oe, "Optically end-pumped plastic waveguide laser with in-line Fabry-Pérot resonator", *Optics Express*, Vol. 18, 2010, 24092-24110 (査読あり).
- ② K. Yamashita, E. Fukuzawa, H. Okada, and K. Oe, "Fiber-to-fiber optical gain of polymer-based amplifier with self-written active waveguide", *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 48, 2009, 102406 (査読あり).
- ③ K. Yamashita, M. Ito, E. Fukuzawa, H. Okada, and K. Oe, "Device parameter analyses of solid-state organic laser made by self-written active waveguide technique", *IEEE Journal of Lightwave Technology*, Vol. 27, 2009, 4570-4574 (査読あり).

[学会発表] (計17件)

- ① K. Yamashita, M. Ito, S. Sugimoto, T. Morishita, and K. Oe, "Dye-doped polymer laser in self-formed waveguide with highly efficient Fabry-Perot cavity", *EOS Annual*

Meeting 2010, Topical Meeting on Organic Photonics, 26, October, 2010, Paris, France.

- ② K. Yamashita, T. Kimura, N. Takeuchi, K. Oe, and H. Yanagi, “Organic Distribute-Feedback Laser with Simultaneous Three-Colour (R, G, & B) Operations”, CLEO/Europe-EQEC Conference 2009, 17, June, 2009, Munich, Germany.

[その他]

ホームページ等

<http://www.cis.kit.ac.jp/~yamasita/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山下 兼一 (YAMASHITA KENICHI)

京都工芸繊維大学・工芸科学研究科・助教

研究者番号：00346115

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：