

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 19 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540333

研究課題名(和文)有機色素ナノファイバーによる励起子ポラリトンの室温ボーズ・アインシュタイン凝縮

研究課題名(英文) Room-temperature Bose-Einstein condensation of exciton polaritons in an organic dye nanofiber

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：励起子ポラリトンを伝搬する有機色素ナノファイバーを用いて、ポラリトンの室温ボーズ凝縮の実現を試みた。初めに基板上的ナノファイバーを自在に操作可能な技術を確立し、一本のナノファイバーの両端を接続することで、ポラリトンを閉じ込めるリング共振器(Q値4,000以上)の作製に成功した。リング共振器をレーザーで強励起することで凝縮状態の検出を試みたが、現時点では成功していない。一方で、新規ナノフォトニクス技術の開発に資する多くの新現象を発見した。

研究成果の概要(英文)：We attempted to realize Bose condensation of exciton polaritons using organic dye nanofibers that propagate exciton polaritons. First, we developed a technique to micromanipulate nanofibers on a substrate. Using the technique, we constructed a ring resonator ($Q > 4,000$) by jointing the both tips of a nanofiber. To observe Bose condensation, we excited the ring resonator with an intense pulsed laser beam. Although we have not succeeded in observing the condensation till now, we found several new phenomena concerning propagation of exciton polaritons along the nanofibers. These findings will lead to novel nanophotonics technologies.

研究分野：光物性

キーワード：ボーズ凝縮 励起子ポラリトン ナノファイバー 有機色素 光共振器 レーザー分光

1. 研究開始当初の背景

ボーズ粒子の集団がある温度以下で最低準位に落ち込むボーズ・アインシュタイン凝縮 (BEC) は、極低温の原子気体で初めて実現された。以来より高温で BEC を実現する試みが活発に行われ、近年固体中の励起子ポラリトン (EP) が注目を集めている。これは、励起子と光子の混成ボーズ粒子である EP は有効質量が非常に小さいため、原子系より遥かに高温で BEC を生じる可能性があるためである。このため、無機半導体を光共振器に埋め込んだ試料を用いて BEC を実現する試みが盛んに行われている [1]。しかし、EP の不安定性が主な原因となり、室温 BEC の実現は依然として非常に困難である。室温 BEC は、基礎物理学上の重要性に加えて、革新光源や量子計算器などへのデバイス応用が期待できるため、物質科学における重要目標の一つとなっている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、有機色素ナノファイバー中に光励起で生成した EP の高い安定性を利用して、室温で BEC を実現することである。我々は最近、有機色素チアシアニン (以下 TC、図 1a) の自己組織化により合成したナノファイバーが、光励起で生じた EP を室温でミリメートルに亘って伝搬する新現象を発見した [2]。ナノファイバーの一点をレーザー光 (波長 405 nm) で励起すると、ファイバー端に強い発光が観測される (図 1b)。これは、レーザー励起で生じた蛍光が励起子と結合して EP (下枝 EP) が生成し、ファイバー内に閉じ込められて端まで伝搬し、光となって端面から放出されるためである。色素ナノファイバー中の EP が、無機半導体試料では困難な室温長距離伝搬を示すのは、ナノファイバー中 EP の高い安定性のためである。EP の室温における安定条件は、縦横励起子分裂エネルギー ($\Delta E_{L,T}$) および励起子の束縛エネルギー (E_{ex}) が、室温の熱エネルギー ($kT_r \approx 30$ meV) より大きいことである。一般に無機半導体では、 $\Delta E_{L,T}$ 、 E_{ex} 共に meV オーダーであり、安定条件を満たさない。一方、TC ナノファイバーでは、有機色素の非常に大きな振動子強度のため、 $\Delta E_{L,T}$ は数百 meV にも達する。加えて、有機色素中のフレンケル型励起子は、無機半導体のワニア励起子と異なり、eV オー

ダーの E_{ex} を持つ。このため、 $\Delta E_{L,T}$ 、 $E_{ex} \gg kT_r$ が達成され、色素ナノファイバー中の EP は室温でも非常に安定である。また、ナノファイバー中の EP はファイバーに垂直な面内に閉じ込められて伝搬するため、分散曲線の波数 $k=0$ の点に、導波路の Cut off エネルギーに対応する最低準位が生じる。従って、この最低準位に EP を溜めることで BEC 状態を生成することが可能である。

3. 研究の方法

(1) ナノファイバー EP 共振器の作成

EP の BEC は、光励起で生じた EP が下枝 EP の分散曲線に沿って緩和 (冷却) し、最低準位 ($k=0$ の点) に溜まることによって生じる。しかし、ナノファイバーの光励起により生じた EP は、速やかにファイバー端に到達し、光となって端面から放出されてしまう。EP の BEC を実現するには、光励起後 EP が最低準位に緩和するまでの間、EP をファイバー中に閉じ込めておく共振器構造を作製する必要がある。

二つの方法により共振器作製を試みた。第一の方法は、基板上的ナノファイバーをマイクロマニピュレーターで直接操作して両端を接触させ、ナノファイバリング共振器を作製する。第二の方法は、電子線描画により EP を反射する一対のブラッグミラーをナノファイバー中に作り込み、ファブリー・ペロ型共振器を作製する。

(2) BEC の実現・検出

レーザー光 (405 nm) で、ナノファイバーにより作製した共振器を光励起し、共振器内に EP を生成させる。生じた EP は共振器に閉じ込められ、下枝 EP の分散曲線に沿って、最低準位 ($k=0$ 領域) まで緩和する。その後、発光して基底状態へと脱励起する。この発光を顕微分光法によりスペクトル計測する。励起レーザー光強度を増していくと、最低準位への EP 供給が発光による減少を上回る。さらに、EP の密度が上昇して BEC 状態への転移温度が室温に到達すると BEC が生じ、発光スペクトルが著しい狭幅化を示す。これを観測することで BEC 状態の生成を確認する。

4. 研究成果

(1) ナノファイバリング共振器

ナノファイバーを分散したガラス基板を試料とした。試料を顕微鏡に設置し、目視観察しながらガラスチップを取り付けたマイクロマニピュレーターを操作することで、ナノファイバーを自在に操作する技術を確立した。そこで、一本のナノファイバーを操作して両端を接続し、リング構造を作製した (図 2a)。リングの発光スペクトルには鋭い共鳴線が明瞭に観測され、生じた EP がリング内を周回して強く閉じ込められていることを示している (図 2b)。共振器の閉じ込め能力を示す Q 値は 4,000 以上に達した。

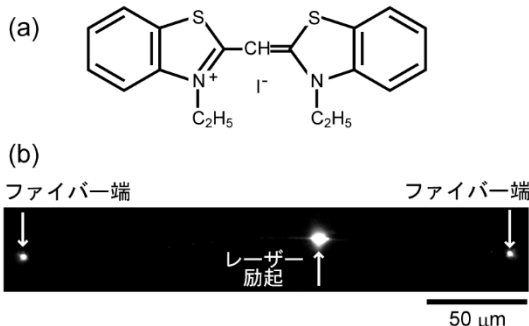


図 1 (a) TC 分子。(b) TC ナノファイバーの蛍光顕微鏡画像。

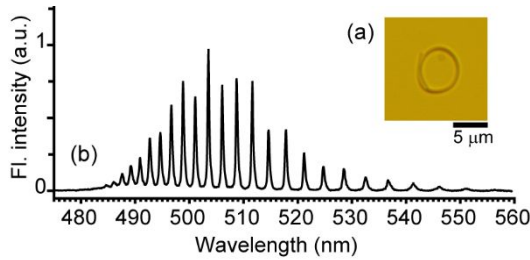


図2 (a) リング共振器の顕微鏡画像。(b) リング共振器の発光スペクトル。

また、ナノファイバーを自在に操作する技術を確立したことで、従来の光導波路技術では実現困難な、様々な極微小・高性能光学素子を作製することに成功した[3, 4]。図3aは2本のナノファイバーを操作することで作製した極微小のマッハ・ツェンダー型干渉計である。素子サイズは僅か10ミクロン四方ほどしかないが、干渉計としての機能はほぼ完全である(図3b)。

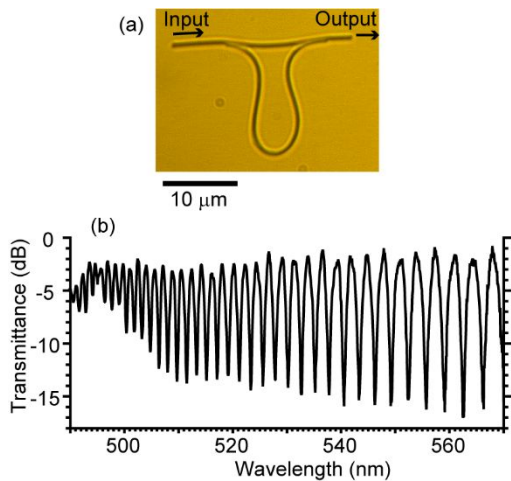


図3 (a) マッハ・ツェンダー干渉計の顕微鏡画像。(b) Input端を光励起しOutput端から放出された光のスペクトル。

(2) ナノファイバーファブリー・ペロー共振器

電子線描画による、ファブリー・ペロー共振器の作製を試みた。原理を述べる。EP伝搬に対するナノファイバーの実効的な屈折率 n は、励起子光相互作用のため、相互作用の無い場合に比べて非常に大きな値となっている。従って、電子線照射により色素分子を変成させて分子の光学活性を低下させれば、相互作用が弱まり、電子線を照射した部分の n が低下する(Electron beam bleaching)。この原理に基づいて、走査電子線により、周期 $\Lambda = \lambda_B/2n$ 、周期数 $N \approx 100$ 程度の屈折率変化をナノファイバーに描き込めば、波長 λ_B のEPを選択的に反射するブラッグミラーを作成できる。ナノファイバー中に一對のブラッグミラーを $m(\lambda_B/2n)$ (m : 整数) の間隔で作製すれば、波長 λ_B のEPを閉じ込める共振器となる。

図4にナノファイバーに作り込んだ $\Lambda = 150$ nm、 $N = 40$ のブラッグミラーの反射/透過

スペクトルを示す。反射スペクトルにはピーク、透過スペクトルにはディップが明瞭に観測されミラー作成に成功した。反射率は約70%であった[5]。しかし、ミラーの反射波長は同じ条件の電子線を使用しても、僅かずつ異なる。このため、共振器となる条件 $m(\lambda_B/2n)$ を満たすように2つのミラーを作り込むことは非常に困難であり、十分な性能を持つ共振器の作製には至っていない。

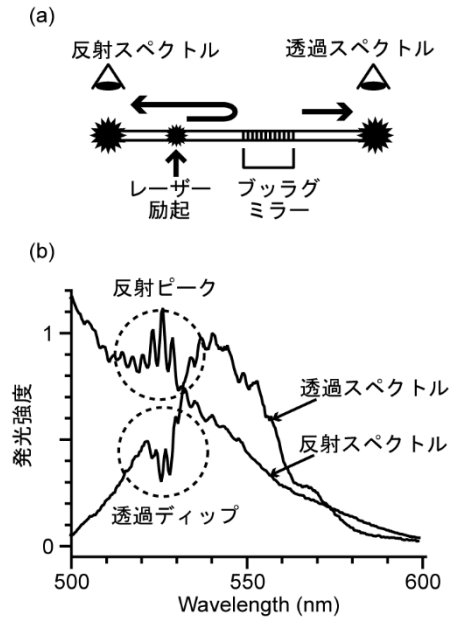


図4 (a) ミラーの反射/透過スペクトル測定。(b) 試作したミラーの反射/透過スペクトル。

(3) BECの実現・検出

高い共振器性能が得られたナノファイバーリング共振器を用いて、BECの実現・検出を試みた。リング共振器をパルスレーザー光で強励起し、リングからの発光スペクトルを計測した。レーザー強度とレーザーパルス幅(ps ~ ms)を広い範囲で変化させながら実験を行ったが、BEC状態の生成を確認することはできなかった。

BEC状態の実現が困難である原因の一つは、強励起により分子の劣化が速やかに起こるためである。そこで、より分子劣化が生じにくい冷却下でBEC状態を実現することを手始めに試みた。冷却ステージを分光装置に組み込み、液体窒素温度までの試料冷却が可能な顕微分光装置を製作した。冷却下では分子の光劣化が著しく軽減されることを確認した。冷却した試料を強励起し、BEC状態の実現を目指した実験を継続している。

また、低温での顕微分光測定が可能になったことで、ナノファイバー中のEP伝搬について新たな発見があった。冷却によりポラリトンの分散曲線が顕著に変化し、液体窒素温度では幅100nm程度の極めて細い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を見出した[6]。これは、ナノファイバーを用いた新規なナノスケール光操作が液

体色素温度程度の実用温度領域で可能なことを示している。

<引用文献>

- [1] H. Deng et al., *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1489 (2010)
[2] K. Takazawa et al., *Phys. Rev. Lett.* **105**, 067401 (2010)
[3] K. Takazawa et al., *Adv. Funct. Mater.*, **23**, 839 (2013)
[4] K. Takazawa et al., *ACS Appl. Mater. & Interfaces*, **5**, 6182 (2013)
[5] K. Takazawa et al., *Appl. Phys. Lett.*, **99**, 253302 (2011)
[6] K. Takazawa et al., 投稿準備中

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

Ken Takazawa, Jun-ichi Inoue, Kazutaka Mitsuishi, “Self-Assembled Coronene Nanofibers: Optical Waveguide Effect and Magnetic Alignment”, *Nanoscale*, Vol. 6, Issue 8, P. 4174-4181 (2014)
doi: 10.1039/C3NR06760B

Ken Takazawa, Jun-ichi Inoue, Kazutaka Mitsuishi, “Optical Microring Resonators Constructed from Organic Dye Nanofibers and Their Application to Miniaturized Channel Drop/Add Filters”, *ACS Applied Materials & Interfaces*, Vol. 5, Issue 13, P. 6182–6188 (2013)
doi: 10.1021/am4011379

Ken Takazawa, Jun-ichi Inoue, Kazutaka Mitsuishi, Takashi Kuroda, “Ultracompact Asymmetric Mach-Zehnder Interferometers with High Visibility Constructed from Exciton Polariton Waveguides of Organic Dye Nanofibers”, *Advanced Functional Materials*, Vol. 23, Issue 9, P. 839–845, 2013
doi: 10.1002/adfm.201202108

Ken Takazawa, Jun-ichi Inoue, Kazutaka Mitsuishi, “Ultra-Compact Photonic Circuit Components based on Propagation of Exciton Polaritons in Organic Dye Nanofibers”, *ECS Transactions*, Vol. 50, Issue 6, p. 123–128, 2013
doi:10.1149/05006.0123ecst

〔学会発表〕(計 2 件)

高澤健、「有機色素ナノファイバーによる超低曲げ損失光伝搬と極微小光学素子への応用」、SAT テクノロジー・ショーケース、2015年1月21日、つくば国際会議場(つくば市)

高澤健、「ポラリトンナノファイバーによる極微小光デバイス」、第14回NIMSフォーラム、2014年10月9日、東京国際フォー

ラム(東京)

〔図書〕(計 1 件)

Ken Takazawa, Jun-ichi Inoue, Kazutaka Mitsuishi, “Miniaturized Photonic Circuit Components Constructed from Organic Dye Nanofiber Waveguides”, in *Organic Nanophotonics: Fundamentals and Applications*, ed. Y. S. Zhao, p. 119-139, Springer, 2014,

〔その他〕

ホームページ等

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

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