

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400314

研究課題名(和文)有機半導体マイクロリング結晶における高Q値リング共振器の研究

研究課題名(英文) Study of organic crystalline microring resonators with high quality factors

研究代表者

阪東 一毅 (Bando, Kazuki)

静岡大学・理学部・准教授

研究者番号：50344867

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：自己組織的に形成される有機マイクロリング結晶の光学応答について調べた。有機結晶として共役系有機半導体として高い光・電子特性を有する(チオフェン/フェニレン)コオリゴマーを対象とした。二つのマイクロリング結晶について弱励起下で空間分解発光スペクトルを調べたところ、発光帯域全体にわたって極めてシャープなピークシリーズが現れた。これはリング共振器内に形成されるウィスパリングギャラリーモードであり、リング共振器として機能していることを示している。

研究成果の概要(英文)：Optical response for self-assembled organic microring crystals has been studied. A thiophene/phenylene co-oligomer was chosen as the organic semiconducting crystals from among pi-conjugated semiconducting materials. Spectra of two microring crystals have been measured using spatially resolved photoluminescence microscopy under weak light excitation. A series of sharp peaks were observed in the spectra over their entire energy range. The peaks can be attributed to the whispering gallery modes. This fact indicates that the microring crystals work as the ring resonators with high performance.

研究分野：光物性

キーワード：有機半導体結晶 リング共振器 ウィスパリングギャラリーモード

## 1. 研究開始当初の背景

近年、有機半導体材料は光学デバイスへの応用が期待され基礎から実用的研究まで広く活発に取り上げられている。なかでもπ共役系有機半導体材料である、(チオフェン/フェニレン)コオリゴマー(TPCO)結晶は、自然放射増幅光の発生や自己導波路効果などの性質を持つことが報告され、次世代光電子デバイスへの応用に向けて注目を集めている。以前から光導波路として機能する自己組織化により自然形成される半導体一次元状ナノ構造が研究されており、光導波路構造やレーザー発振デバイスなどの観点から研究が進められている。最近では光閉じ込め構造としてリング型共振器についての研究も多数報告されており、リング構造内のウィスパリング・ギャラリー・モード(WGM)の発生が報告されている。

## 2. 研究の目的

これまで代表者はTPCO材料の気相成長によって自己組織的にリング結晶が作製できることを見出した。この手法を用いて作製したTPCOリング結晶は極めて高いQ値とフィネスを示すWGM発光を生じることを明らかにした。これはリング共振器として機能することを示しているが、本研究ではこれが極めて優れたフォトニックネットワークデバイスとして機能することを示すことを目的として研究を行った。

## 3. 研究の方法

オリゴフェニレンのニードル結晶は、Mikamiらによってホットウォール法でKCl結晶の(001)面にエピタキシャル成長できることが報告されている[引用文献]。さらに代表者は、より簡易的な気相成長法によりKCl結晶基板にBP1Tニードル結晶及びリング結晶を作製できることを報告した[引用文献]。本研究でもこの方法でBP1Tリング結晶を作製した。

気相成長ではガラスアンブル内に1気圧の窒素ガス、BP1T粉末、KCl結晶基板を封入し電気炉で加熱する。この際アンブル内で温度勾配がつけられ、アンブル内は常に1気圧で維持されるよう工夫されている。BP1T粉末付近を235℃、KCl基板付近を150℃に設定し数時間加熱させた。その後、KCl基板を取り出し顕微鏡で観察すると格子状に成長したBP1Tニードル結晶及びリング結晶が確認できた。Mikamiらはニードル結晶はKCl基板表面上の原子ステップに沿って分子が吸着することによって形成されることを報告している[引用文献]。さらに興味深いことにこの報告でKCl表面上に存在する約

1μm径の円盤状原子ステップ構造の周囲にリング状に分子が吸着することを示している。この事実から本研究で得られたリング状の結晶はこのようなKCl結晶表面上に自然に存在する円盤状原子ステップ構造の周囲に形成されると考えられる。

光学測定では406nmのcw-半導体レーザーを励起光源として使用し、弱励起下(励起密度 $\sim 1\text{W}/\text{cm}^2$ )での発光スペクトルを測定した。試料からの発光は50倍の無限補正系対物レンズを用いて単一のリング結晶に分解し検出した。発光スペクトルは高感度冷却CCD検出装置と結合した分光器で測定した。

## 4. 研究成果

これまでKCl結晶基板にTPCOをエピタキシャル成長させると基板上的原子ステップに沿って一次元状のニードル結晶が形成することが知られている。本研究に先立ちこれらのニードル結晶が内部で発生する発光を効率よく閉じ込め、光導波路として機能することを明らかにしてきた。さらにTPCO結晶自身の高い屈折率のため、ニードル結晶の両端面がミラーとして機能し、単一のニードル結晶がファブリーペロー共振器として動作することも示した。その一方でKCl結晶

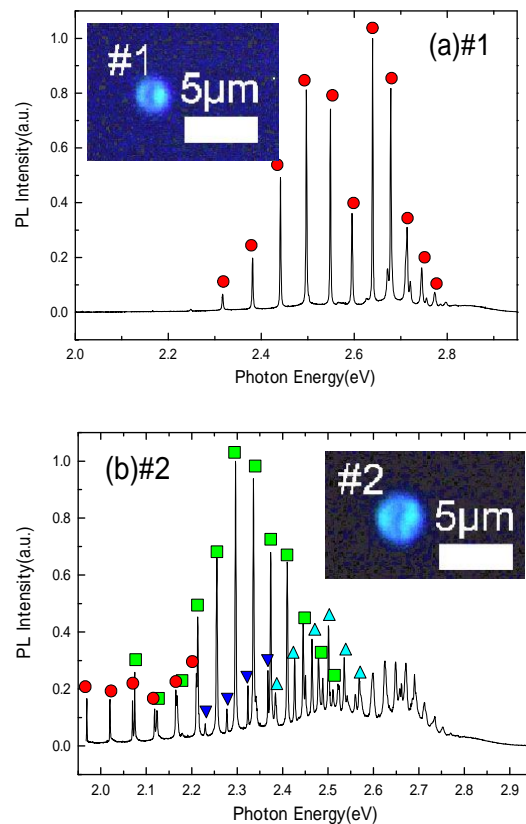


図 (a)リング#1 の発光画像と発光スペクトル。(b)リング#2 の発光画像と発光スペクトル。

基板を詳細に観察してみるとマイクロサイズのリング状構造がまれに形成されていることがわかった。このため本研究ではこのマイクロリング結晶の発光特性を調べることとした。これまでの試料作製の結果から、マイクロリング結晶もニードル結晶と同様に基板上の原子ステップに沿って形成されていると考えられる。本研究では数マイクロンの直径を持つマイクロリング結晶について光弱励起下における空間分解発光顕微分光によってそれらの発光スペクトルを調べた(図)。

その結果、発光スペクトルには発光波長全域にわたって極めて鋭いピークからなるシリーズの構造が観測された。それらのピークはマイクロリング結晶がリング共振器として機能し、発光がリング内に閉じ込められWGMを形成したものであると考えられる。このリング結晶の直径は約  $4\mu\text{m}$  であったがスペクトルのピーク線幅から見積もった円周長と一致していることが確認された。またこのマイクロリング結晶は発光の線幅から共振器  $Q$  値が約 1000、フィネスが 10 を超えるものであった。この数値は他グループから報告されている有機マイクロリング構造に比べて極めて大きく優れた共振器であることがわかった。他グループによる報告は複数あるが、それらは結晶性のものではなく  $Q$  値もかなり低い。今回得られた TPCO マイクロリング構造は結晶であることが高い  $Q$  値を実現し優れたリング共振器として機能することを示していると考えられる。

さらにリング共振器の波長フィルタとしての性能を検討するために TPCO マイクロリング共振器の  $Q$  値とフィネスの円周長依存性及び光子エネルギー依存性を調べた。通常、リングの曲率半径が小さくなると共振器損失が増え  $Q$  値が下がる。リング半径が  $2\mu\text{m}$  程度以下のものについて共振器  $Q$  値とフィネスの光子エネルギー依存性を調べた結果、最大で  $Q$  値が約 2000、フィネスが 50 程度の値が観測された。このようにきわめて小さい  $2\mu\text{m}$  程度以下のリング半径であるにもかかわらず 2000 程度の  $Q$  値が得られたことは結晶性のリング共振器が有用な系であることを示しており、高性能な波長フィルタとして機能させることができると考えられる。

#### 引用文献

- T. Mikami, et al, Appl. Phys. Lett. **73**, 563 (1998).  
K. Bando, et al., Appl. Phys. Lett. **103**, 023304 (2013).

#### 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1件)

Yuta Tsuchimoto, Hikaru Nagai, Masamitsu Amano, Kazuki Bando, and Hisao Kondo, "Cavity polaritons in an organic single-crystalline rubrene microcavity", Applied Physics Letters, 査読有, **104**, 233307/1-4 (2014). doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4883485>

[学会発表](計16件)

鳥井 一輝, 樋口哲也, 阪東 一毅, 佐々木 史雄, 柳 久雄, "エピタキシャル成長させた BP2T マイクロニードル結晶の光励起レーザー特性", 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 2017 年 3 月 14 - 17 日, パシフィコ横浜(神奈川県横浜市)  
外山直希, 大塚和仁, 阪東 一毅, 近藤久雄, "有機微小共振器における振電結合発光の解釈", 第 27 回光物性研究会, 2016 年 12 月 2-3 日, 神戸大学(兵庫県神戸市)  
吉田明弘, 朝日敏夫, 古川雅文, 近藤久雄, 阪東 一毅, "有機無機層状ペロブスカイト型化合物を活性層とする微小共振器の作成とその光学応答", 第 27 回光物性研究会, 2016 年 12 月 2-3 日, 神戸大学(兵庫県神戸市)

古川雅文, 吉田明弘, 野島尚人, 近藤久雄, 阪東 一毅, "単結晶微小共振器におけるポラリトン発光", 第 27 回光物性研究会, 2016 年 12 月 2-3 日, 神戸大学(兵庫県神戸市)

鳥井 一輝, 水野 圭, 阪東 一毅, 佐々木 史雄, 柳 久雄, "エピタキシャル成長させた TPCO 単一ニードル結晶からの光励起レーザー発振", 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 2016 年 3 月 19 - 22 日, 東京工業大学大岡山キャンパス(東京都目黒区)

朝日敏夫, 古川雅文, 吉田明弘, 河瀬広樹, 阪東 一毅, 近藤久雄, "有機無機層状ペロブスカイト型半導体微小共振器の作成とその光学特性", 第 26 回光物性研究会, 2015 年 12 月 11-12 日, 神戸大学(兵庫県神戸市)

大塚和仁, 外山直希, 阪東 一毅, 近藤久雄, "有機結晶微小共振器における活性層厚の単分子層揺らぎの観測", 第 26 回光物性研究会, 2015 年 12 月 11-12 日, 神戸大学(兵庫県神戸市)

藤原 徹, 井手悠輔, 山内 豪, 朝日敏夫, 近藤久雄, 阪東 一毅, "キャビティポラリトンによるパルス伝搬の変化", 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 21-24 日, 早稲田大学(東京都新宿区)  
阪東 一毅, "有機単結晶微小共振器の作製と室温ポラリトン発光観測", 情報科学用有機材料第 142 委員会「有機光エレクトロニクス部会 第 63 回研究会」, 2015

年1月21日, 招待講演, 東京理科大学森戸記念館第一フォーラム(東京都新宿区) 水野 圭, 藤井穂菜美, 成島魁至, 伊佐治優介, 阪東一毅, 佐々木史雄, 堀田 収, “自己組織化有機マイクロリング結晶のリング共振器特性”, 第25回光物性研究会, 2014年12月12-13日, 神戸大学(兵庫県神戸市)

大塚和仁, 天野真光, 土本悠太, 阪東一毅, 近藤久雄, “有機半導体単結晶微小共振器におけるポラリトン発光特性”, 第25回光物性研究会, 2014年12月12-13日, 神戸大学(兵庫県神戸市)

天野真光, 大塚和仁, 阪東一毅, 藤原 徹, 近藤久雄, “共振器ポラリトンの位相シフトを反映した透過光の量子干渉”, 第25回光物性研究会, 2014年12月12-13日, 神戸大学(兵庫県神戸市)

藤原 徹, 井手悠輔, 山内 豪, 朝日敏夫, 近藤久雄, 阪東一毅, “微小共振器によるパルス伝搬速度の遅延”, 第25回光物性研究会, 2014年12月12-13日, 神戸大学(兵庫県神戸市)

山内 豪, 朝日敏夫, 井手悠輔, 藤原 徹, 近藤久雄, 阪東一毅, “溶液浸透法による(C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>NH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>PbI<sub>4</sub> 薄膜結晶の作成”, 第25回光物性研究会, 2014年12月12-13日, 神戸大学(兵庫県神戸市)

Kazuki Bando, “Single-crystalline organic semiconductor microcavities”, The 16th Takayanagi Kenjiro Memorial Symposium, 招待講演, 2014年11月11-12日, 静岡大学浜松キャンパス(静岡県浜松市)

大塚和仁, 土本悠太, 永井輝, 天野真光, 阪東一毅, 近藤久雄, “ルブレ単結晶微小共振器における共振器ポラリトン”, 日本物理学会2014年秋季大会, 2014年9月7-10日, 中部大学春日井キャンパス(愛知県春日井市)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計1件)

名称: 厚み測定装置

発明者: 阪東一毅, 大塚和仁

権利者: 国立大学法人静岡大学

種類: 特許

番号: 特許願 2015-239239

出願年月日: 平成27年12月8日

国内外の別: 国内

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.ipc.shizuoka.ac.jp/~skbando/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

阪東 一毅 (BANDO, Kazuki)

静岡大学・理学部・准教授

研究者番号: 50344867

(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

( )