

指向性高 Q 値光源の開発

京都大学 大学院工学研究科 村井俊介

Directional High- Q Light Sources

Shunsuke Murai

Graduate School of Engineering, Kyoto University

金属ナノ粒子アレイ(=プラズモニックアレイ)と微小球レーザーを組み合わせることで、微小球の対称性を大きく崩し、かつ Whispering Gallery Mode (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して研究を行った。微小球をアルミニウムナノ粒子アレイの上に置き励起したところ、励起する場所によってレーザー発振挙動の違いが見られた。特にアレイを通過する周回面に沿ってWGMを励起した場合、新しいレーザー発振のピークが見られることが分かった。このピークはアレイとの接触によって微小球の対称性が破れたことを示唆し、微小球レーザーの変調にアレイが有効であることが示された。

By combining a metal nanoparticle array (= plasmonic array) and a microsphere laser, we tried to break the symmetry of the microsphere and direct the output of the microsphere laser to a specific direction by resonating the Whispering Gallery Mode (WGM) with light diffraction. When the microspheres were placed on the aluminum nanoparticle array and excited, the laser oscillation behavior was different depending on the location of the excitation spot. In particular, when the WGM is excited along the orbital plane passing through the array, a new laser oscillation peak was found. This peak suggested that the microsphere symmetry was broken by the array, demonstrating that the array was effective for modulating the microsphere laser.

1. はじめに

申請者は、金属ナノ粒子の周期アレイ構造(プラズモニックアレイ)による発光制御を開拓してきた。個々のナノ粒子に励起される表面プラズモン(=自由電子のプラズマ振動と光の共鳴)とアレイ面内への光回折の2つの光学共鳴を同時利用することで、金属の光損失を避けつつ面内に光を強力に閉じ込めることができる。研究代表者らはアレイを発光体と組み合わせ、60倍の発光強度の増強と発光方向の狭角化に成功した(Lozano, SM et al., Light: Sci. Appl. 2, e66 2013)。他方、透明な微小球体は、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 Whispering Gallery Mode (WGM)という共振光が生じる。現在広く用いられているファブリペロー型光共振器に比べて、WGMは極めて高い光閉じ込め効率(Q 値:Quality factor)を持つ、優れた共振器である。したがって、発光中心を含む微小球は現在広く普及しているファブリペロー型レーザーを補完するようなレー

ザーとなることが期待され、実際、低閾値発振が達成されている。しかしながら、発振の無指向性が応用・機能化に向けた大きな課題である：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。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、一定の成果を挙げている。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、研究分担者は、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。

本研究では、プラズモニック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ことを目的とする。アレイの光回折とナノ粒子の表面プラズモン、さらに微小球のWGMの3つの共鳴を同時利用することで、光学設計の自由度を格段に上げることができる。特に、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、WGM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。特定方向への発振の集中は必要な方向に光エネルギーを集中できることを意味し、応用の観点からインパクトがある。具体的には、高感度環境センサ(温度・湿度・化学物質)や透明異方性ディスプレイ・表示素子の開発が期待できる。

2. 実験

- A) ガラス微小球の作製: レーザー局所加熱法、および多孔質援用蒸気浮上溶融法を用い、微小球を作製した。レーザー局所加熱法は希土類イオンを含むガラス片にレーザーを照射し希土類イオンの光吸収を利用しガラス片を融点以上に加熱し、表面張力により微小球を得る手法である。Nd³⁺を含むテルライトガラスを溶融急冷法で作製したのち粉碎し、得られたガラス微粉末に対して波長 800 nm の CW レーザーを照射することで直径 20 μm 程度の Nd³⁺ ドープテルライトガラス微小球を得た。また多孔質援用蒸気浮上溶融法は試料を載せた基板からガスを放出することで試料を浮上させた上で溶融し微小球を得る手法で、レーザー局所加熱法に比べ高融点のガラスの微小球化が可能、高い真球度、高い歩留まりなどの利点がある。本実験では多孔質援用ガス浮上溶融法を用い直径 20 μm 程度の Eu³⁺ ドープテルライトガラス微小球を得た。
- B) アレイの作製: 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直径 200 nm、高さ 150 nm のアルミニウムナノ粒子が周期 500 から 560 nm で正方格子状に周期配列したアレイを作製した。
- C) 光学測定: アレイの透過率を UV-VIS-NIR 分光光度計で測定した。アレイ上に微小球を載せた後、得られた微小球を顕微鏡下のステージに設置し、CW レーザーにて励起し、反射配置の発光を検出した。

3. 結果と考察

3.1 Eu^{3+} ドープテルライトガラス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の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。励起光強度を変化させたがスペクトル形状は変化せず強度が上がるのみで、レーザー発振は確認できなかった。赤色スペクトルは、下側からナノシリンドアレイ基板を押し付けたスペクトルである。励起位置はほぼ同じ場所であるが、スペクトルの形状が変化していることがわかる。緑色のスペクトルは、励起位置を変えた、直交する赤道面を励起した場合に得られたものである。赤色と比べてさらに形状が変化している。ナノ回折格子との接触により球の共振モードを大きく変えられることがわかる。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度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、ナノシリンド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。ナノシリンドアレイがあると、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。

Fig.1の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。励起光強度を変化させたがスペクトル形状は変化せず強度が上がるのみで、レーザー発振は確認できなかった。赤色スペクトルは、下側からナノシリンドアレイ基板を押し付けたスペクトルである。励起位置はほぼ同じ場所であるが、スペクトルの形状が変化していることがわかる。緑色のスペクトルは、励起位置を変えた、直交する赤道面を励起した場合に得られたものである。赤色と比べてさらに形状が変化している。ナノ回折格子との接触により球の共振モードを大きく変えられることがわかる。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度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、ナノシリンド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。ナノシリンドアレイがあると、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。

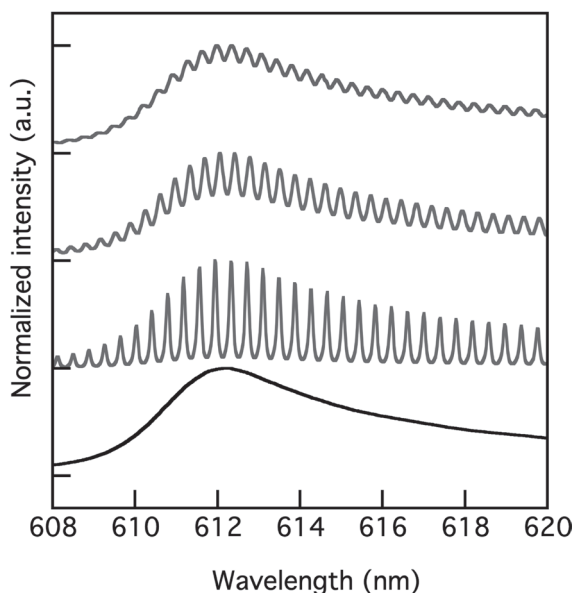


Fig. 1 Eu^{3+} 含有微小球ガラスからの発光スペクトル：(緑)微小球をナノシリンドアレイに接触させて測定した発光スペクトル。(赤)励起箇所を 90° 移動し、緑の励起と直交する赤道面を励起して得られた発光スペクトル。(青)微小球をナノシリンドアレイに接触させず、空中に保持した得られた発光スペクトル。(黒)微小球化前のガラス微粉末の発光スペクトル。

3.2 Nd³⁺ ドープテルライトガラス微小球とアレイの組み合わせ：実験に使用した Al ナノ粒子アレイの SEM 像および光透過スペクトルを図 2 に示す。Al ナノ粒子が周期的に並ぶ、設計通りの構造が作製できていることが分かる。光透過率は波長 800nm 付近に大きなディップを示す。これはアレイ周期を反映した光回折と Al ナノ粒子の局在表面プラズモンが同時励起されたことに起因するディップである。この波長は Nd³⁺ の吸収波長に対応することから、アレイと微小球を組み合わせることで発振特性を変調できる可能性が示唆される。

微小球をアレイ上に乗せ、2つの異なる箇所を励起した(図 3)。場所 1 は微小球の赤道面を周回する WGM を励起するため、アレイの影響を受けない。励起強度を一定以上に上げると波長 1065nm 付近に発光の明瞭なスパイクが立ち上がり、レーザー発振を示す。これに対し励起場所 2 は微小球の子午線方向を周回する WGM が励起されるため、アレイの影響を受ける。閾値以上の発光スペクトルは赤道面励起のスペクトルと同じ位置にスパイクを示すが、1065nm 付近の一つ、図中の点線で示す位置に新たなスパイクがみられる。これはアレイの影響で生じたピークだと考えられる。アレイの影響で WGM の光路が変化していることを示唆している。励起スペクトルおよびレーザー発振閾値にもアレイの影響がみられる結果が得られた。

4. 結論

微小球とナノ粒子アレイを組み合わせ、微小球レーザーの発振特性を制御することを試みた。アレイにより WGM モードが変調を受けていることが分かった。今後はシミュレーションを援用した結果の解析と物理現象の理解を通じ、最終目標とする指向性ある微小球レーザーの設計と作製に取り組む。

5. 謝辞

本研究は日本板硝子材料工学助成会の助成を受け実施しました。記してここに感謝します。

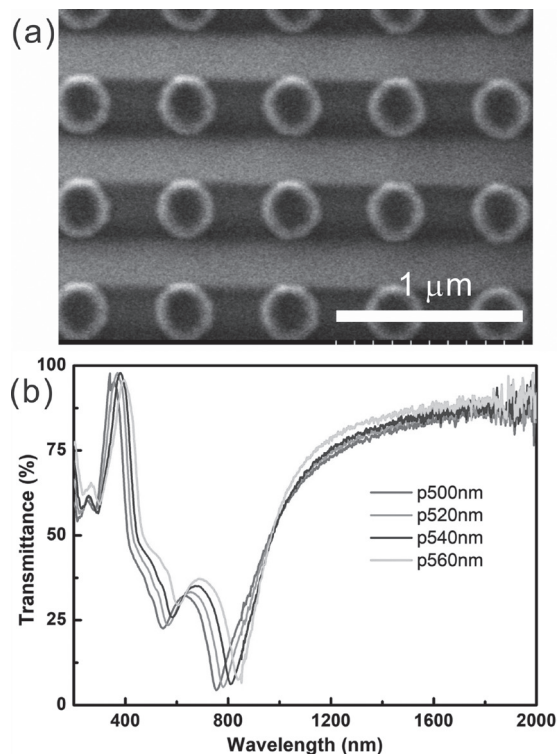


Fig. 2 微小球と組み合わせた Al ナノ粒子アレイ。(a) Top-view SEM 像。周期 = 560 nm (b) 透過率スペクトル。周期 (P) = 500~560 nm。

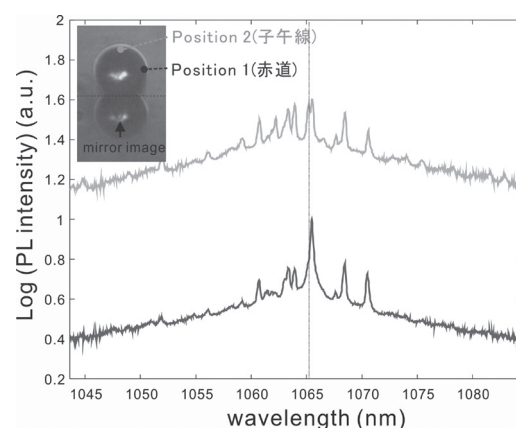


Fig. 3 Al ナノ粒子アレイ上に置いた微小球からのレーザー発振。励起波長 800nm。挿入図はアレイ上の微小球のデジカメ写真。写真上部が微小球の実像で、下半分に映るのはアレイに映った鏡像。図中の点は励起レーザーの入射位置を表す

6. 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, ナノシリンダーアレイを用いた紫外領域での協同プラズモンニック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, ナノシリンダーアレイによる紫外領域での協同プラズモンニック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)