

研究成果

ナノメートルサイズで制御された構造を基盤とする新規光デバイスの構築

研究代表者 堤直人
大学院 工芸科学研究科
高分子機能工学部門 教授

【研究目的】

フェムト秒レーザーを励起源とする研究はここ十数年で大きく発展しており、分光的研究の励起源から光通信の信号源さらには材料加工の励起源へとその応用範囲は大きく広がってきている。

本研究では、ナノメートルサイズで制御された構造を基盤とする新規な光デバイスの構築を目指して、フェムト秒レーザーのポテンシャルを活かした以下の研究テーマを検討した。

【研究成果】

1. フェムト秒レーザー励起の分布帰還(DFB)有機レーザー発振素子の構築

次世代の光通信および信号処理システムでは 100 Gb s^{-1} を越えるバンド幅が要求されている。しかしながら、現存のオプトエレクトロニクスやエレクトロニクスデバイスおよび集積回路は 100 Gb s^{-1} を越えるビット速度で機能させることはできない [1]。超高速オールオプティカルデバイス、光源およびスイッチ素子が超高速光通信および信号処理に実現に向けて要求されている [1]。そこで、1テラバイト (1テラ = 10^{12}) / 秒を越えるバンド幅の応答に対応できるフェムト秒レーザーパルス応答を検討した。具体的には、フェムト秒レーザー励起の分布帰還 (DFB) 有機レーザー発振を検討した [2]。

DFB レーザー発振では、光導波路内に誘起されたピッチ間隔が数百ナノメートルの周期構造 (Λ_{th}) をもつマイクロ共振器中で利得変調あるいは屈折率変調のレーザー増幅が選択的おき、(1)式に従って光導波モードのレーザー発振が起こる。

$$\lambda_L = \frac{2n_{eff}\Lambda_{th}}{m} = \frac{n_{eff}\lambda_p}{m \sin \theta} \quad (1)$$

ここで、 λ_L : 発振波長、 Λ_{th} : ピッチ間隔、 n_{eff} : 導波層の実効屈折率、および m : グレーティング (格子) モード数 ($m = 1, 2, 3, \dots$) である。

以下に DFB 有機レーザー素子の製作工程を示す。光感光性ポリマーである SU-8[®] を基板上にスピコーティングする。SU-8[®] 表面上に Nd:YAG レーザーの第3次高調波 355 nm を用いたロイドミラー法による干渉露光により、連続した周期的な凹凸構造を有するクラッド層を作製する。露光後、連続した周期的な凹凸構造は、ベーキング、現像処理ならびハードベーキング処理を施した。周期的な凹凸構造の上に 4-(Dicyanomethylene)-2-methyl-6-(4-dimethylaminostyryl)-4H-pyran (DCM) / ポリビニルカルバザール (PVCz) / Tris(8-quinolinolato)aluminum (Alq) 薄膜あるいは DCM / ポリスチレン (PS) / Alq 薄膜をスピコーティングして、レーザー活性光導波層を作り上げた。周期的な凹凸構造は、走査型プローブ顕微鏡である原子間力顕微鏡 (AFM) を用いて、定量的に評価した。表1に、それぞれのモード m に対して、ロイドミラーの入射角を変えて照射して作製した周期構造のピッチ間隔 Λ_{th} 、実効屈折率 n_{eff} 、ならびに発振波長 λ_L をまとめる。レーザー発振の可変波長範囲は $m = 1$ のときが最大で、PVCz 導波層で 599~646 nm であり、PS 導波層で 586~642 nm であった。発振の閾値は ASE 発光の中心付近でのレーザー発振で極小をとった高次モードになるに従って、可変波長範囲は狭くなった。レー

レーザー発振の閾値は PVC z 導波層で $m = 1$ に対して、 $0.106 \text{ mJcm}^{-2} \text{ pulse}^{-1}$ であった。

図 1 に示すように、Ti-sapphire フェムト秒レーザーの半値幅は 14 nm であるのに対して、DFB レーザー発振の半値幅は 0.15 nm であり、線幅の狭線化が確認された。

表 1. それぞれのモード m に対して様々なピッチ間隔 Λ_{th} をもつ PVCz および PS 導波路系でのレーザー発振のピーク波長 λ_L 、実効屈折率 n_{eff} 。 n_{eff} は、 λ_L と Λ_{th} を使って式 (1) より計算した。

m	SU-8 2002		PVCz		PS	
	Incidence angle ($^\circ$)	Λ_{th} (nm)	λ_L (nm)	n_{eff}	λ_L (nm)	n_{eff}
1	72.9	185.7	598.9	1.6124	586.0	1.5777
1	67.6	192.0	610.6	1.5902	604.3	1.5738
1	65.7	194.8	-	-	608.5	1.5622
1	61.6	201.8	638.3	1.5816	633.6	1.5700
1	60.0	204.9	646.3	1.5766	641.5	1.5650
2	28.6	371.0	592.6	1.5981	585.2	1.5782
2	27.6	383.1	609.8	1.5916	602.4	1.5723
2	27.1	389.7	-	-	607.5	1.5591
2	26.8	393.5	618.9	1.5721	619.8	1.5743
2	26.1	402.9	634.1	1.5716	633.7	1.5706
3	18.0	574.4	609.9	1.5927	607.1	1.5853
3	17.8	580.7	-	-	609.5	1.5745
3	17.1	602.3	631.3	1.5686	630.8	1.5674
3	16.9	610.6	638.3	1.5680	636.5	1.5636

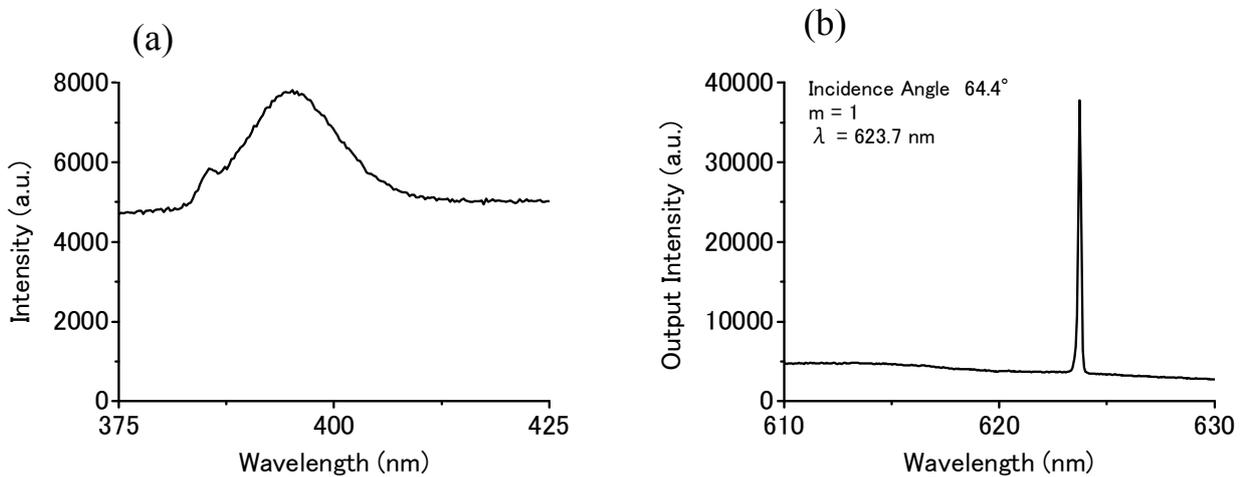


図 1. フェムト秒レーザーのパルス波形とフェムト秒レーザー励起の DFB レーザー発振のパルス波形の線幅の比較。(a) Ti-Sapphire フェムト秒レーザー、(b) DFB レーザー

2. フェムト秒レーザー照射による金属イオンの還元とナノ細線配線

フェムト秒レーザーは単位時間あたりに非常に大きなエネルギーを注入でき、それを用いて容易に2光子励起を起こさせることができる。フェムト秒レーザー照射により、銀イオン (Ag^+) から銀粒子を析出させ (銀イオンの還元)、ナノ細線への応用を試みた。 Ag^+ イオン源として硝酸銀を、マトリックスとして polyvinylpyrrolidone (PVP) を、2光子吸収増感剤として水溶性の色素 saffloamin A を用いた。これらを溶解させた水溶液 (硝酸銀/saffloamin/PVP/ H_2O = 0.34g/0.02g/0.01g/9.00g) から溶液キャスト法でガラス基板の上に薄膜試料を作製した。フィルム作製後、ガラス基板を上にして Ti:Sapphire レーザー光 (パルス幅: 100 fs, 発振波長: 800 nm, 繰返し周波数: 80MHz) を適切なエネルギーにコントロールして油浸対物レンズ (100×, NA=1.30) を用いて薄膜試料に集光照射した。図2にレーザー照射エネルギーを 3 mW, 5 mW および 10 mW にして誘起させた銀粒子構造を示す。ステージ走査速度 0.3 $\mu\text{m/s}$, レーザー照射エネルギー 5mW のときに銀イオンを銀粒子に還元できており、線幅が 200 nm ほどのナノ細線を描けることが示された。

次に、どのような機構で銀イオンが還元されたかを検証する必要がある。Saffloamin A はレーザー発振波長 800 nm の倍波である 400 nm を中心にブロードな吸収をもっているが、マトリックスの PVP および硝酸銀水溶液は 400 nm 近傍に吸収はない。従って、800 nm のフェムト秒レーザーにより Saffloamin A の2光子励起が可能であり、2光子吸収に基づくフォトンモードの銀イオンの還元が考えられる。また、DSC 測定よりこの試料は 210°C にシャープな発熱ピークが観測され、このピークは銀イオンの銀粒子への還元に基づくものと推定された。この薄膜試料を 250°C まで融点測定器上で観察したところ、210°C 付近で銀粒子の析出が確認でき、フォノンモードの銀イオンの還元も示された。従って、フェムト秒レーザー照射による銀イオンの還元は、2光子励起によるフォトンモードあるいはフォノンモードによって起こると推測された。

3. 今後の展開

2光子励起による銀イオンの還元の研究成果は、3次元の立体的な配線への応用を可能とする。多光子励起を応用した新規なトップダウン型の3次元ナノ細線配線は、次世代の集積回路の新規なアーキテクチャーに対する1つの指針を示すと考えられ、今後この分野への応用が期待される。

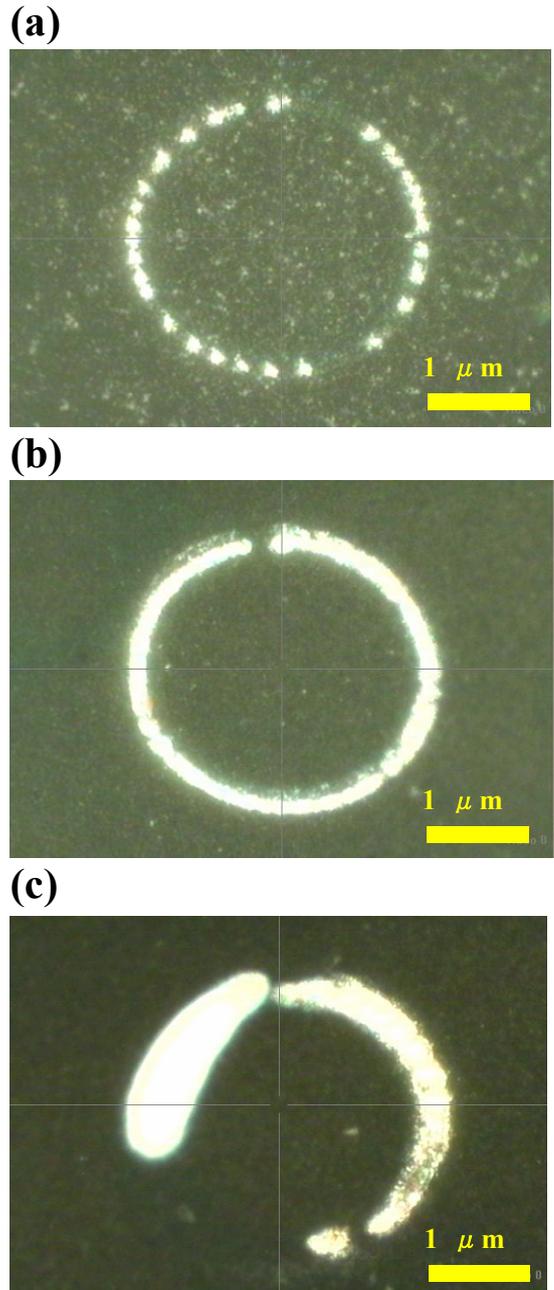


図2

- (a) レーザー照射出力: 3 mW
ステージ走査速度: 0.1 $\mu\text{m/s}$
- (b) レーザー照射出力: 5 mW
ステージ走査速度: 0.3 $\mu\text{m/s}$
- (c) レーザー照射出力: 10 mW
ステージ走査速度: 0.3 $\mu\text{m/s}$

参考文献

- 1) Wada, O. "Femtosecond all-optical devices for ultrafast communication and signal processing". *New J. Phys.* **6**, 183 (2004).
- 2) N. Tsutsumi and M. Takeuchi, "Ti-Sapphire Femtosecond Pulse Pumped Laser Emission from All-Plastic Organic Waveguide with Distributed Feedback Resonator" *Optis Commun.* **281**, 2179 (2008)