慶應義塾大学学術情報リポジトリ
Keio Associated Repository of Academic resouces

Title	超高Q値微小光共振器を用いた二次元材料の非線形光学効果の発現
Sub Title	Emergent nonlinear optical effects in two-dimensional materials using ultrahigh-Q optical microcavities
Author	藤井, 瞬(Fujii, Shun)
Publisher	
Publication year	2024
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2023.)
JaLC DOI	
Abstract	原子層二次元材料を高Q値シリカ微小光共振器に転写したハイブリッドデバイスを用いて，高効率な二次非線形光学効果の発現を確認した．層数依存性や励起強度依存性を評価することで，界面での強い光と物質の相互作用によって二次元材料の強い非線形性が微小光共振器によって増強された結果であると確かめた．シリカは本来二次非線形光学効果を示さないが，原子レベルの厚みをもつ半導体二次元材料を転写することで，高いQ値を維持したまま微小光共振器の非線形光学特性を劇的に変化させる手法を確立した． High-efficiency second-order nonlinear optical processes have been demonstrated by using a hybrid device, where an atomically-thin two-dimensional material is integrated into a high-Q silica optical microcavity. By performing the layer-dependence and excitation power dependence measurements, it is confirmed that the strong nonlinearity was enhanced by a microcavity via strong light-matter interaction at the surface. Although silica does not inherently show second-order nonlinearities, this approach provides a method to drastically alter the nonlinear properties of high-Q optical microcavities by functionalizing with semiconductor two-dimensional materials without significant losses.
Notes	研究種目：若手研究 研究期間：2022～2023 課題番号：22K14625 研究分野：量子光エレクトロニクス
Genre	Research Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_22K14625seika

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the KeiO Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　６ 年　 ６ 月　 ７ 日現在

機関番号：３２６１２
研究種目：若手研究
研究期間：2022～2023
課題番号：２２Ｋ１４６２５

研究課題名（和文）超高Q値微小光共振器を用いた二次元材料の非線形光学効果の発現

研究課題名（英文）Emergent nonlinear optical effects in two-dimensional materials using ultrahigh-Q optical microcavities

研究代表者

藤井　瞬（Fujii, Shun）

慶應義塾大学・理工学部（矢上）・助教

研究者番号：８０８９７９５０

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）：原子層二次元材料を高Q値シリカ微小光共振器に転写したハイブリッドデバイスを用いて，高効率な二次非線形光学効果の発現を確認した．層数依存性や励起強度依存性を評価することで，界面での強い光と物質の相互作用によって二次元材料の強い非線形性が微小光共振器によって増強された結果であると確かめた．シリカは本来二次非線形光学効果を示さないが，原子レベルの厚みをもつ半導体二次元材料を転写することで，高いQ値を維持したまま微小光共振器の非線形光学特性を劇的に変化させる手法を確立した．

研究成果の学術的意義や社会的意義
高Q値微小光共振器の非線形光学特性を，原子層二次元材料の転写というプロセスで自由に制御できる可能性を示した．特に，連続光レーザー励起で高効率な非線形光学効果の観測に成功したことは，微小光共振器と二次元材料の親和性の高さを証明する重要な結果である．また，本手法を適用することで将来的なナノフォトニクスデバイスの設計の自由度を飛躍的に高めることが期待される．

研究成果の概要（英文）：High-efficiency second-order nonlinear optical processes have been demonstrated by using a hybrid device, where an atomically-thin two-dimensional material is integrated into a high-Q silica optical microcavity. By performing the layer-dependence and excitation power dependence measurements, it is confirmed that the strong nonlinearity was enhanced by a microcavity via strong light-matter interaction at the surface. Although silica does not inherently show second-order nonlinearities, this approach provides a method to drastically alter the nonlinear properties of high-Q optical microcavities by functionalizing with semiconductor two-dimensional materials without significant losses.

研究分野：量子光エレクトロニクス

キーワード：微小光共振器　二次元材料　非線形光学効果

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様　式　C－１９、F－１９－１（共通）

１．研究開始当初の背景

高 Q 値微小光共振器（マイクロ共振器）は，高い光の閉じ込め性能（高 Q 値）を有する微小デバイスであり，共振器内部での光電場密度を劇的に高めることができるため，数mW 程度の弱い光励起でも種々の非線形光学過程を発現できることが知られている．一方，遷移金属カルコゲナイドに代表される二次元材料は原子一層程度の薄さしかない層状材料で，三次元材料にはないユニークな物性を示すことから電子デバイスや高感度センサー，エネルギー分野にわたって近年注目を集める物質である．特にナノフォトニクス分野での応用に親和性が高く，特にその非線形光物性の解明には大きな期待がされている．そこで二次元材料を高効率に超高 Q 値共振器に結合させることで，これまで観測されてこなかった物理現象の発現の可能性に着眼し，本研究を実施した．

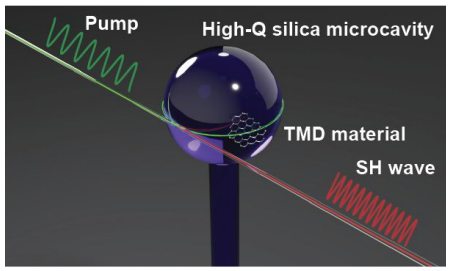

図１：遷移金属カルコゲナイドを転写した高 Q 値シリカ微小光共振器の模式図と本研究の狙い．

２．研究の目的

超高 Q 値シリカ微小光共振器と二次元材料の融合によるナノスケール非線形フォトニクスの開拓を目的とした．具体的には，原子レベルの薄さをもつ単層二次元材料とシリカ微小共振器を用いて光共振器の光電場増強を最大限に利用するようなハイブリッドデバイスの作製を行い，二次元材料の非線形光学効果の発現と増強の観測を狙った（図１）．

３．研究の方法

光ファイバーの先端にアーク放電によって超高 Q 値シリカ微小光共振器を形成し，その共振器表面に機械的剥離法によって得られた遷移金属カルコゲナイド二次元材料（二セレン化タングステン）を顕微鏡観察を行いながら転写することでハイブリッドデバイスの作製を行った．転写前後の Q 値（光学損失）を透過スペクトル測定によって実験的に評価することで，二次元材料の転写 Q 値の変化を確認した．また，透過光を分光測定する必要があるため，ツェルニ・ターナー型分光器と冷却 CCD 検出器からなる高感度検出システムを利用した．

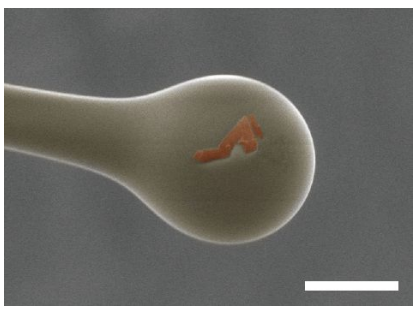

図２：二セレン化タングステン（赤）を転写したシリカ微小球共振器（黄）の着色電子顕微鏡写真．スケールバーは 50 μm．

通信波長帯の波長可変レーザーで共鳴励起することで，単層二次元材料由来の強い非線形光学効果の観測を行った．また，顕微鏡観察による層数同定法およびフォトルミネッセンス分光によって単層から三層までの均一な二次元材料を同定し，これらを積載したデバイスを作製することで，対照実験を行った．さらに，発現した非線形

光学効果の励起パワー依存性を測定することで，非線形特性を評価した．

４．研究成果

単層二セレン化タングステンを積載したシリカ微小光共振器の Q 値を統計的に調査することで，Q 値 10^{7}~ 10^{8} から 10^{6}~ 10^{7} への変化を確認した．この変化は共振器表面の散乱損失が増加したためであると考えられるが，それでも光増強に十分な非常に高い Q 値を維持できていることが確認できた．作製したデバイスの走査電子顕微鏡写真を撮影することで，共振器表面への転写を確認した（図２）．次に，作製したハイブリッドデバイスの光励起を行った．共鳴線幅より狭い線幅をもつ通信波長帯波長可変レーザーで共鳴励起をすることで，共振器内部の光電場を劇的に高めることができる．光モードは共振器表面に漏れ出しているため，表面での漏れ出し光と二次元材料が結合することが期待される．

透過スペクトルを観測しながら連続光レーザーの波長を調整することで，光モードへの高い光結合を実現した．このとき，透過光を可視光帯に高い感度もつ冷却 CCD 検出器を用いて分光測定をすることで励起波長のちょうど半分の波長をもつ鋭いピークを観測した（図３）．これは二次非線形光学効果のひとつである第二次高調波発生によるものである．シリカは本来二次非線形性を示さないため，この効果は単層の二セレン化タングステン由来のものであると考えられる．異なる二つのレーザーを用いて二波長励起を行った場合には，和周波発生とよばれる非線形光学効果の観測にも成功した（図３）．

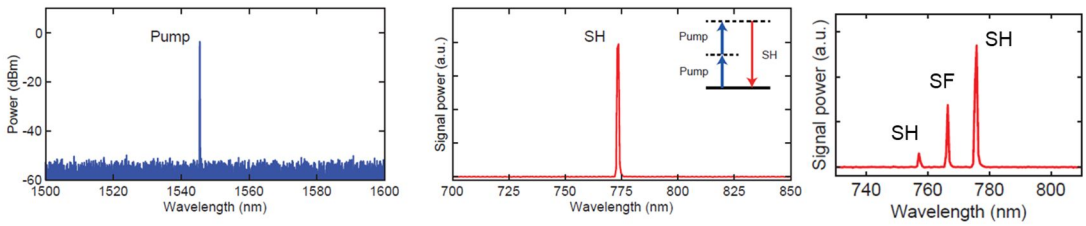

図３：励起光スペクトルと観測した第二次高調波の光スペクトル．二波長励起時には，第二次高調波発生と和周波発生が同時に発生している．

さらに二層および三層の二次元材料を積載したデバイスを作製して対照実験を行った(図４)．単層，三層の場合のみ第二次高調波発生が観測された一方，シリカ単体および二層デバイスにおいては有意な信号を観測出来なかった．これは遷移金属カルコゲナイド材料の空間反転対称性が奇数層においてのみ発現するという特性と一致する結果であり，確かに二次元材料由来の信号であることが確認できた．

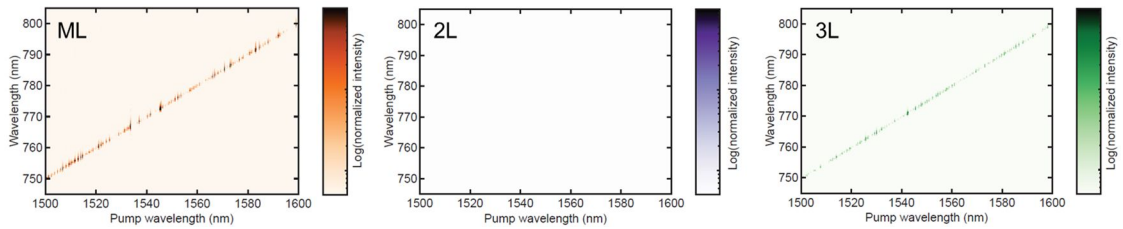

図４：単層(ML)，二層(2L)，三層(3L)の二セレン化タングステンを転写したデバイスによる対照実験の結果．励起波長を掃引したとき，単層と三層でのみ第二次高調波発生が観測されていることが分かる．

励起強度依存性を測定することで，変換効率の定量的な評価を行った．この測定により変換効率には双共鳴条件が深く関わっていることが分かり，特定の条件下で急激な変換効率の上昇が起こることを確認した（図５）．

上記の結果より，二次元材料を積載した高 Q 値微小光共振器を用いて微弱連続光レーザーによる光励起によって高効率な非線形波長変換を実証できた．この手法を用いることで，将来的にナノフォトニクスデバイスの設計の自由度を飛躍的に高めることが期待される．

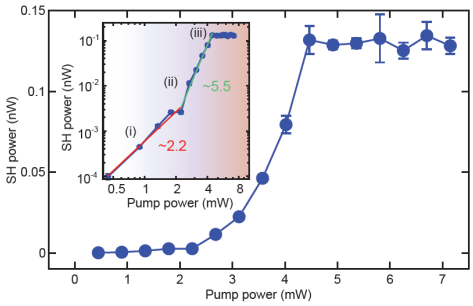

図５：第二次高調波の励起強度依存性の測定結果．

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕　計9件（うち査読付論文　9件／うち国際共著　1件／うちオープンアクセス　8件）

１．著者名 Fujii Shun、Wada Koshiro、Kogure Soma、Kumazaki Hajime、Tanabe Takasumi	４．巻 2301329
２．論文標題 Mechanically Actuated Kerr Soliton Microcombs	５．発行年 2024年
３．雑誌名 Laser & Photonics Reviews	６．最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/lpor.202301329	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

１．著者名 Shibata Riku、Fujii Shun、Watanabe Shinichi	４．巻 32
２．論文標題 Integer-locking condition for stable dual-comb interferometry in situations with fluctuating frequency-comb repetition rates	５．発行年 2024年
３．雑誌名 Optics Express	６．最初と最後の頁 17373～17373
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.521465	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

１．著者名 Fang N.、Chang Y. R.、Fujii S.、Yamashita D.、Maruyama M.、Gao Y.、Fong C. F.、Kozawa D.、Otsuka K.、Nagashio K.、Okada S.、Kato Y. K.	４．巻 15
２．論文標題 Room-temperature quantum emission from interface excitons in mixed-dimensional heterostructures	５．発行年 2024年
３．雑誌名 Nature Communications	６．最初と最後の頁 2871
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-024-47099-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

１．著者名 Fujii Shun、Fang Nan、Yamashita Daiki、Kozawa Daichi、Fong Chee Fai、Kato Yuichiro K.	４．巻 24
２．論文標題 van der Waals Decoration of Ultra-High-Q Silica Microcavities for χ(2)-χ(3) Hybrid Nonlinear Photonics	５．発行年 2024年
３．雑誌名 Nano Letters	６．最初と最後の頁 4209～4216
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.nanolett.4c00273	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

1．著者名 Moreno David、Fujii Shun、Nakashima Ayata、Lemcke Deniz、Uchida Atsushi、Sanchis Pablo、Tanabe Takasumi	4．巻 32
2．論文標題 Synchronization of two chaotic microresonator frequency combs	5．発行年 2024年
3．雑誌名 Optics Express	6．最初と最後の頁 2460～2460
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.511097	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1．著者名 Fang N.、Chang Y. R.、Yamashita D.、Fujii S.、Maruyama M.、Gao Y.、Fong C. F.、Otsuka K.、Nagashio K.、Okada S.、Kato Y. K.	4．巻 14
2．論文標題 Resonant exciton transfer in mixed-dimensional heterostructures for overcoming dimensional restrictions in optical processes	5．発行年 2023年
3．雑誌名 Nature Communications	6．最初と最後の頁 8152
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-023-43928-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

1．著者名 Sugawara Shuto、Fujii Shun、Kawanishi Satoki、Tanabe Takasumi	4．巻 2
2．論文標題 Stability and mutual coherence of Raman combs in high-Q silica microresonators	5．発行年 2023年
3．雑誌名 Optics Continuum	6．最初と最後の頁 1588～1588
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OPTCON.493749	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

1．著者名 Yu Boda、Naka Sadahito、Aoki Haruka、Kato Koichiro、Yamashita Daiki、Fujii Shun、Kato Yuichiro K.、Fujigaya Tsuyohiko、Shiraki Tomohiro	4．巻 16
2．論文標題 ortho-Substituted Aryldiazonium Design for the Defect Configuration-Controlled Photoluminescent Functionalization of Chiral Single-Walled Carbon Nanotubes	5．発行年 2022年
3．雑誌名 ACS Nano	6．最初と最後の頁 21452～21461
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsnano.2c09897	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 Fujii Shun、Wada Koshiro、Sugano Ryo、Kumazaki Hajime、Kogure Soma、Kato Yuichiro K.、Tanabe Takasumi	４．巻 6
２．論文標題 Versatile tuning of Kerr soliton microcombs in crystalline microresonators	５．発行年 2023年
３．雑誌名 Communications Physics	６．最初と最後の頁 1
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s42005-022-01118-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

〔学会発表〕　計6件（うち招待講演　1件／うち国際学会　3件）

１．発表者名 S. Fujii
２．発表標題 Nonlinear optics and soliton frequency combs in ultrahigh-Q microresonators
３．学会等名 International Conference on Nano-photonics and Nano-optoelectronics (ICNN2024)（招待講演）（国際学会）
４．発表年 2024年

１．発表者名 Fujii Shun, Fang Nan, Yamashita Daiki, Kozawa Daichi, Fong Chee Fai, Kato K. Yuichiro
２．発表標題 Emerging second-order nonlinearity in two-dimensional material functionalized silica microcavities
３．学会等名 The American Physical Society's March Meeting 2024 (APS March Meeting 2024)（国際学会）
４．発表年 2024年

１．発表者名 S.Fujii, K. Wada, H. Kumazaki, S. Kogure, and T. Tanabe,
２．発表標題 Extending Spectral Tunability of Soliton Microcombs in Ultrahigh-Q Microresonators
３．学会等名 Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS2023)
４．発表年 2023年

１．発表者名 藤井瞬，和田幸四郎，木暮蒼真，田邉孝純
２．発表標題 超高Q値微小光共振器を用いた機械駆動型ソリトンマイクロコム
３．学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演会
４．発表年 2023年

１．発表者名 S. Fujii, N. Fang, D. Yamashita, and Y. K. Kato
２．発表標題 Nonlinear frequency conversion in two-dimensional material integrated high-Q silica optical microresonators
３．学会等名 The 10th RAP Symposium - The New Optical Science in Post-Corona Era（国際学会）
４．発表年 2022年

１．発表者名 藤井瞬，和田幸四郎，菅野凌，熊崎基，木暮蒼真，加藤雄一郎，田邉孝純
２．発表標題 ソリトンマイクロコムの広範囲精密チューニング
３．学会等名 第70回応用物理学春季学術講演会
４．発表年 2023年

〔図書〕　計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

―

６．研究組織

	氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考

７．科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕　計0件

８．本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関