

平成21年5月1日現在

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18360344
 研究課題名（和文）単分散金属粒子を用いた高精度人工結晶の作製とテラヘルツ波フォトニック結晶への応用
 研究課題名（英文）Fabrication of artificial crystal structures using monosized particles and application for THz wave photonic crystals
 研究代表者
 川崎 亮 (KAWASAKI AKIRA)
 東北大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号：50177664

研究成果の概要：球形単分散微金属粒子をテラヘルツ波長に対応する格子周期で複雑な3次元構造にも配列できる革新的方法の研究を行った。従来の粒子配列法では、大きく分けて粒度分布と粒子配列精度とに起因して粒子中心点が配列すべき格子点座標からずれを生じ、これが周期性など配列格子精度に大きく影響を及ぼす。本研究では配列する粒子の中心点を格子点座標に一致させ、この影響を限りなく排除することができる新技術を確立した。その結果、作製した3次元人工結晶は非常に精度よく作製されていることが実証され、0.203～0.215THzにおいて、ほぼ完全なフォトニックバンドギャップが形成されていることを明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	9,200,000	2,760,000	11,960,000
2007年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
2008年度	2,900,000	870,000	3,770,000
年度			
年度			
総計	15,500,000	4,650,000	20,150,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学 ・ 材料加工・処理

キーワード：粉末冶金、単分散粒子、粒子配列、フォトニック結晶、テラヘルツ波

1. 研究開始当初の背景

フォトニック結晶は、誘電体を周期的に配列した人工結晶であり、格子定数に等しい波長の電磁波に対して電磁波禁制帯（フォトニックバンドギャップ）を形成し、特定の電磁波を全反射する。この性質を利用することで、特定の電磁波の閉じ込め、局在、抽出などが可能となる。フォトニック結晶においては格子定数と波長の間に完全なスケール則が成り立つことから、目的の波長に対応した格子周期を持つフォトニック結晶を作製することで、あらゆる電磁波の制御が可能となる。

現在、フォトニック結晶は様々な作製方法が考案されているが、ミリ波に対してはMEMS技術や光造形法、可視光の場合はフォトリソグラフィ法を用いるのが一般的である。しかし、その中間極限領域にあたる数10 μm ～数100 μm オーダーの格子周期を持つフォトニック結晶の作製においては技術的な空白領域にあたり、加工精度、加工速度などの観点から見ても非常に作製が困難である。また、理想的人工結晶となる球状格子に対する研究例は世界的に見て皆無である。

一方、数10 μm ～数100 μm の周期に対応す

る電磁波は約 0.1THz ($\lambda=3\text{mm}$) \sim 10THz ($\lambda=30\mu\text{m}$)の領域にあたり、テラヘルツ波と呼ばれ、電波から見れば短波長端、光波から見れば長波長端にあたり、現在未踏光学領域と呼ばれている。0.5 \sim 3THz の領域には、ほとんどの分子の固有振動数が存在していることから、ガン治療や生体イメージングなど医療分野への応用が考えられており、また超多重光通信による大容量通信や半導体に対する内部の非破壊検査など、テラヘルツ波は非常に多くの分野への展開が期待されている。しかし、現状ではこの領域の電磁波はフェムト秒レーザーにより発振することは可能となったが、実用的に応用するにはまだ多くの技術的な問題を抱えている。特に低損失な伝送や変調に対する技術に関しては未発達であり、上述した様々な応用技術の実現にはこれらのデバイスの開発が必要不可欠である。この制御技術としてはフォトニック結晶が最も有力とされているが、現在研究されているほとんどのテラヘルツ波フォトニック結晶は十分なものではなく、先に述べたように技術的空白領域となっている。したがって、全方位に渡る完全なバンドギャップを持つ3次元テラヘルツ波フォトニック人工結晶の作製を可能とすることは、この技術的空白領域を埋める基盤技術を確立することになり、学術的に重要であるばかりでなく新規産業の創出や社会生活の持続的向上に対して計り知れない貢献度を持つものと考えられる。

このような背景の中で、研究代表者は、研究代表者が発明・開発したパルス圧力付加オリフィス噴射法 (POEM と略) による球形単分散粒子が数 $10\mu\text{m}$ \sim 数 $100\mu\text{m}$ のサイズで極めて均一な粒子であり、テラヘルツ波格子周期に一致することから、これらの粒子を精確に三次元的に配列することによって、テラヘルツ波長に対応したフォトニック結晶の作製が可能との考えから研究を進めてきた。一例として自己配列法により単分散粒子を配列させ、焼結を行うことで得た f. c. c. 構造配列体をテンプレートとした樹脂反転型人工結晶を作製した。

この人工結晶は、樹脂による格子で構成されていることから、樹脂の変更や誘電性粉末の混合により、多様な特性を意図的に与えることができる。テラヘルツ時間領域分光法により結晶全方位の透過特性を測定した結果、 $\langle 111 \rangle$ 方向では 0.5THz 付近にフォトニックバンドギャップの発現を確認した。

しかし、自己配列法では f. c. c. 構造しか作製することができないこと、計算上デバイス化に必須となる完全フォトニックバンドギャップの発現には格子誘電率が 9 以上必要であることから、既存の方法では完全フォトニックバンドギャップの発現に至っていない。従来の研究から完全フォトニックバンドギ

ャップを発現するためにはダイヤモンド結晶構造にする必要がある。

現在、解決すべき課題をまとめると、自己配列法では、

- (1) 粒子配列体は f. c. c. 型しか作製することができない。
- (2) 粒子配列精度は用いた粒子の粒度分布や粒子中心点の微小なずれに大きく影響され、意図するものとは大きく異なる構造になる。
- (3) 格子欠陥の位置を自在に制御することは容易ではなく、任意の位置に欠陥を導入した導波路などは極めて作製困難である。

以上のように多様なデバイス化には問題点が存在している。

研究代表者が提案する新技術は、これらの課題を根本的に解決しテラヘルツ波フォトニック結晶を現実的にするためのもので、いかなる複雑な 3 次元結晶構造にも粒子を配列できる新規技術であり、格子となる粒子のばらつきに影響されない精確な人工結晶、特にダイヤモンド結晶構造を容易に作製できる方法である。また、研究者らの方法は含浸溶解法により、高誘電率が格子ではなく格子間隙である反転型結晶作製方法であるため格子材料選択の自由度が高いことから、作製されたダイヤモンド配列体は、あらゆる要求のテラヘルツ波制御デバイスに対応でき、工業的観点からも非常に波及効果が高い。

2. 研究の目的

球形単分散微金属粒子 (各々数 $10\mu\text{m}$ \sim 数 $100\mu\text{m}$) を、テラヘルツ波長に対応する格子周期 (数 $10\mu\text{m}$ \sim 数 $100\mu\text{m}$) で複雑な 3 次元構造にも配列できる新技術を確立する。これに樹脂を含浸し除去することにより、完全フォトニックバンドギャップを持つ反転ダイヤモンド構造のフォトニック人工結晶が作製できることから、テラヘルツ波制御用の要求を満たすデバイスの作製が可能となる。テラヘルツ波は、ガン治療や生体イメージングなどの医療分野、細菌検知などの社会安全システム、超多重光通信など多くの分野への展開が期待されているが、低損失伝送や変調に対する技術は依然として未発達であり、当該新技術はその制御デバイス化を実現する基盤研究・技術として期待される。これまでに研究代表者が発明・開発したパルス圧力付加オリフィス噴射法 (POEM と略) による球形単分散錫 (Sn) 粒子は、数 $10\mu\text{m}$ \sim 数 $100\mu\text{m}$ のサイズで均一な粒子であり、テラヘルツ波格子周期に一致する。したがって、これらの粒子を精確に三次元的に配列し、テラヘルツ波長に対応したフォトニック結晶の研究を進めてきた。シミュレーションにより人工結晶の設計の妥当性および単分散粒子の均一性 (バラツキ)・配列精度はバンドギャップの発現に

支障のないことを明らかにし、デバイス化の可能性を示した。

そこで、本研究では複雑な3次元結晶構造にも粒子を配列できる新規技術、すなわち球形単分散微粒子のばらつきに影響されない人工結晶、特にダイヤモンド結晶構造を作製できる方法を確立することを目的としている。

3. 研究の方法

(1) 微焦点ファイバーレーザーによる多点同時溶解と粒子中心位置の補正；結晶構造にもよるが配列粒子の最近接粒子数は最大で6個である。単に配列するとズレ（格子のひずみ）を生じるので、接触粒子の多点を同時に瞬時（ms）に溶解し、それが凝固する前に粒子中心位置が格子点座標と一致するように微動・補正する技術を研究・開発した。

(2) 高精度微粒子配列装置によるダイヤモンド型人工結晶の作製；例えば肝臓癌では約1THz~1.8THzに固有周波数が存在し、これに対応したテラヘルツ波フォトニック結晶フィルターの作製を試みた。

テラヘルツ時間領域分光法により作製した人工結晶の全方位の透過特性を測定し、1THz近傍に完全フォトニックバンドギャップが発現することを実験的に確認し、1THzフォトニック結晶フィルターとして動作することを実証する。さらに、平面波展開法によるシミュレーション結果と比較検討することにより、テラヘルツ波フォトニック結晶の設計の妥当性、製作精度およびデバイスとしての性能について検証する。

4. 研究成果

(1) 結晶構造とレーザー照射方法

結晶構造にもよるが被配列粒子の最近接粒子は最大で6個である。これらの接点に微焦点ファイバーレーザーを同時に照射するためには、レーザービームがマニピュレータの爪や既配列粒子に当たることなく、接点に対して接線方向から入射させる必要がある。かつ、焦点距離と一致しなければならない。さらに、各レーザー射口の位置が互いに干渉しないことが要求される。これらの要件が現実的に可能かどうか明らかにした。3次元CADを用いて結晶構造を描画し、慎重かつ精密に検討した。その結果、いずれの結晶構造においても全ての接点にファイバーレーザーを同時に照射することが可能であり、すべての結晶構造を作製するためには6本のファイバーレーザーが必要であることがわかった。また、図1に示すようにレーザー射口位置を回転角と仰角で決定し、接点を中心とした焦点距離を半径とする球面上に設置することができることを確認した。6台のレーザー射口を干渉することなく配置できることも確認した。

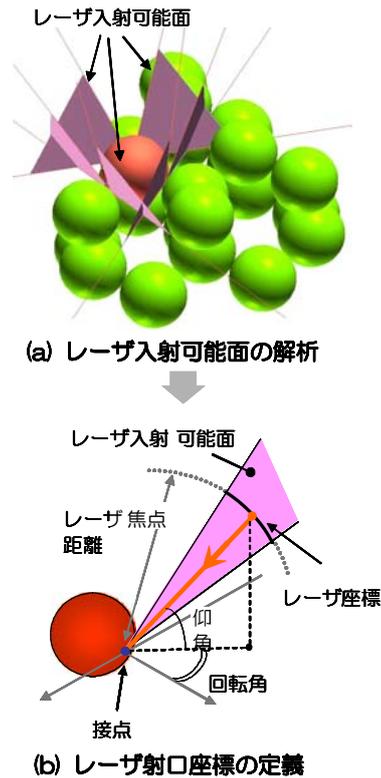


図1 3D-CADによるレーザー射口座標の決定(例：ダイヤモンド構造)

(2) 高精度微粒子配列システム

研究者が新技術として開発した高精度粒子配列法の概要を図2に示す。単分散球形粒子をマニピュレーターにより配列座標に搬送し、隣接する複数の既配列粒子との接点のみをファイバーレーザーを用いて多点同時に局所加熱することで融解・連結し、これを繰り返すことで配列体を構築した。フォトニック結晶の作製を考えると単純立方(SC)、体心立方(BCC)、面心立方(FCC)、ダイヤモンド構造などの人工結晶の配列が不可欠である。ここで極めて重要で新規性の高い技術として、個々の粒子は搬送時にCCDカメラによって粒子形状や直径などの固有データを採取しておき、粒子を単に配列するとズレ（格子のひずみ）を生じるので接触粒子の多点を同時に瞬時に溶解し、それが凝固する前に粒子中心位置が格子点と一致するように微動・補正することである。これらの工程により、如何なる複雑な構造であっても極めて高精度で配列が可能になると考えられ、次節において確認した結果を示す。これまでの粒子配列法では、大きく分けて粒度分布と粒子配列精度とに起因して粒子中心点が配列すべき格子点座標からズレを生じ、これが周期性など配列格子精度に大きく影響を及ぼす。新技術では配列する粒子の中心点の格子点座標か

らのずれを補正することにより、この影響を限りなく排除することができる。すなわち常に理想的な球形微小粒子配列格子を作製することが可能であることを意味している。

粒子供給部は、配列に供される粒子を蓄積し、かつ配列の間合いに応じて1個ずつ粒子を受け渡す機能を果たす。粒子供給の失敗を極力回避するため、自動Zステージが搭載されたバキュームニードルが粒子バケット底部から1個の粒子をバキュームチャックしながらマニピュレータに受け渡し機構とした。また、バキュームチャックされた粒子はCCDカメラを介した画像処理によって粒径測定が行われ、粒子配列部に位置補正情報を提供するとともに受け渡し高さの制御情報を粒子配列部に提供する。

マニピュレータは粒子供給部から粒子配列部まで配列の間合いに応じて1個ずつ粒子を移送する機能を果たす。移送のための粒子の把持手段としては、2箇所固定爪と圧電素子によって精密に動作する1箇所の可動爪から構成されるマニピュレータを選択した。これはレーザーによる粒子間連結時に起こりうる粒子座標のずれを粒子の確実な把持によって回避するためである。また、マニピュレータ全体は分解能 $0.01\mu\text{m}$ 以下の自動X軸DCモータステージに搭載される。これにより粒子は制御部からの信号に従って粒子供給座標と配列座標の間を正確に往復することができる。

粒子配列は、マニピュレータに把持された新規粒子座標にすでに配列された配列体を載せたステージが移動し、隣接粒子と連結される。配列過程の終始において新規粒子座標およびレーザー焦点座標は固定されるため、配列体の配列精度はこのステージには動作精度で決定される。そこで本装置では位置精度 $0.01\mu\text{m}$ (対象粒子径 $200\mu\text{m}$ の $5\times 10^{-5}\%$)で可動範囲 15mm の自動精密XYZ軸DCモータステージを用いることとした。またこのXYZ軸ステージは制御部から受取る信号に従って動作するものである。

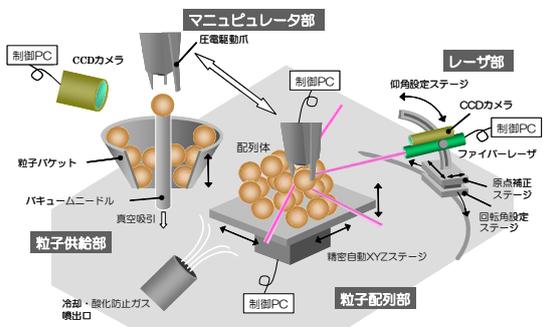


図2 その場配列の概略図

装置に設置されるファイバーレーザーは全6基であり、図3に示すように各基とも対象粒子の中心を中心とした円周ルール上に配置された可動ステージ(回転角設定ステージ)上に設置した。それぞれのステージは図2で決められた回転角範囲を独立して可動できるものとした。円周ルール半径はいずれの角度においてもレーザー射口と粒子の距離が 50mm となるように設定した。回転角設定ステージはレーザー座標設定に重要な役割を果たすため、移動分解能は $1/1024$ 回転とし回転角はデジタル表示とした。また、回転角設定ステージとファイバーレーザーの間にはXYZステージおよび円周ルール・ステージを挿入した。XYZステージは回転角設定ステージ上に設置され、対象粒子の中心点と接点の座標差を補正する役割を有する(原点補正ステージ)。原点補正ステージに関しても高い位置精度が要求されることから分解能は $1\mu\text{m}$ とした。円周ルール・ステージは回転角設定ステージに直角に設置され(仰角設定ステージ)、その半径はレーザー射口と粒子の距離が 50mm となるように設定した。仰角設定ステージについても分解能は $1/1024$ 回転とし仰角はデジタル表示である。加えて、レーザー照射点の設定位置を確認するためにファイバーレーザーにはレーザー光に平行となるようにCCDカメラを設置した。

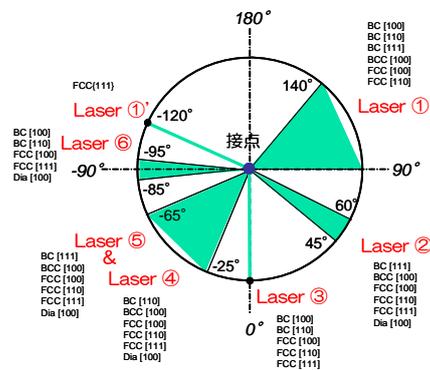


図3 全結晶構造が配列可能となるレーザー回転角

(3) 配列精度の確認およびダイヤモンド型人工結晶の試作

平均粒径 $396\mu\text{m}$ 標準偏差 $4.3\mu\text{m}$ の球形粒子を用いてダイヤモンド型人工結晶の作製を試みた。粒子はポリエチレン/40vol% ZrO_2 混合体で誘電率6であり理論上完全なフォトリックバンドギャップを形成できる。

まず、 $\{111\}$ 面の第1層をポリエチレン平板上に配列 $\langle 111 \rangle$ 方向に粒子配列エピタキシャル成長させることによって行った。

基本的に4本のファイバーレーザーを使用した。スポットサイズは $30\mu\text{m}$ で出力 0.12J

で0.1秒間照射した。

図4に作製したダイヤモンド型人工結晶の例を示す。粒子間距離は $380\mu\text{m}$ にセットされている。平均粒径 $396\mu\text{m}$ より小さい理由は方法のところすでに述べた。ユニットセルの大きさは、 $4/\sqrt{3} \times 1$ から $880\mu\text{m}$ となる。これから充填密度は0.379である。図4(b)からネックサイズは $100\sim 150\mu\text{m}$ であることがわかった。図に示すように正確に配列された3次元人工結晶が作製できることが確認された。

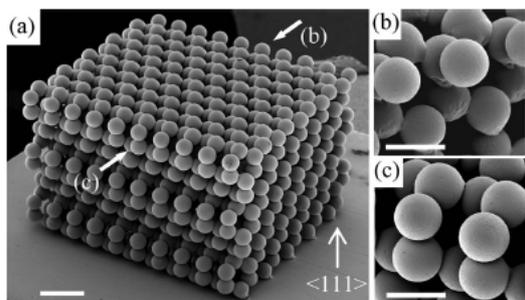


図4 ダイヤモンド型人工結晶作製例

図5に<111>方向の透過スペクトルの測定結果を示す。比較のために時間領域差分法によるシミュレーション結果も示されている。測定結果はシミュレーション結果とよく一致しており、 $0.171\sim 0.224\text{THz}$ に明確なフォトニックバンドギャップが出現していることがわかる。これらの結果から作製した3次元人工結晶は非常に精度よく作製されていることが実証され、 $0.203\sim 0.215\text{THz}$ において、ほぼ完全なフォトニックバンドギャップが形成されていると考えられる。また、シミュレーションでは単一粒径の球体を仮定していることから、粒度分布の影響が小さく、配列された粒子の中心座標の正確さが最も重要であることが明らかになった。

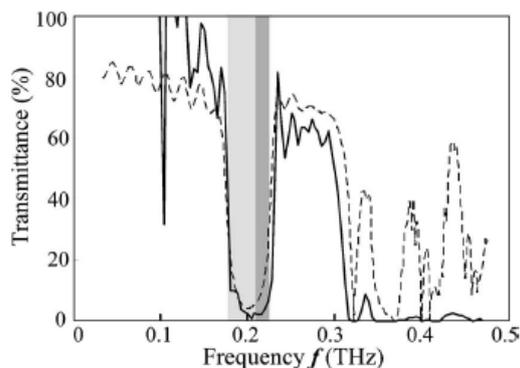


図5 フォトニックバンドギャップに対する実験結果とシミュレーションの比較

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4件)

- ① Kenta Takagi and Akira Kawasaki, Fabrication of three-dimensional terahertz photonic crystals with diamond structure by particle manipulation assembly, Applied Physics Letters, 94, 021110, (2009), 査読有
- ② Satoshi Masuda, Kenta Takagi, Wei Dong, Kenta Yamanaka and Akira Kawasaki, Solidification behavior of falling germanium droplets produced by pulsed orifice ejection method, Journal of Crystal Growth, 310(11), 2915-2922, (2008), 査読有
- ③ W. Dong, S. Masuda, K. Takagi and A. Kawasaki, The Development of Monosized Micro Silicon Particles for Spherical Solar Cells by Pulsated Orifice Ejection Method, Materials Science Forum, 534-536, 149-152, (2007), 査読有
- ④ Satoshi Masuda, Kenta Takagi, Wei Dong and Akira Kawasaki, Preparation and Characterization of Monosized Germanium Micro Particles by Pulsated Orifice Ejection Method, Materials Science Forum, 534-536, 113-116, (2007), 査読有

[学会発表] (計3件)

- ① Kenta Takagi, Microassembly of Artificial Crystals by Inter-Particle Laser Welding and Optical Characterization, The 10th International Symposium on Multiscale, Multifunctional and Functionally Graded Materials, 2008年9月23日, 仙台市 (仙台国際センター)
- ② 高木健太, 球形格子 3次元ダイヤモンド THz帯フォトニック結晶の作製, 2008年秋季応用物理学会学術講演会, 2008年9月4日, 春日井市 (中部大学)
- ③ 高木健太, 微焦点レーザーによる粒子マイクロ接合と3次元人工結晶への応用, 日本金属学会2007年秋期大会, 2007年9月19日, 岐阜市 (岐阜大学)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川崎 亮 (KAWASAKI AKIRA)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 50177664

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

高木 健太 (TAKAGI KENTA)
東北大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号：00400284