

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 26 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656053

研究課題名(和文)酸化亜鉛ナノシートを用いたランダムレーザチップの実現

研究課題名(英文)Realization of Random Laser Chip Using ZnO Nano-Sheet

研究代表者

岡田 龍雄 (OKADA, TATSUO)

九州大学・システム情報科学研究科(研究院・教授)

研究者番号：90127994

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ微粒子支援レーザー堆積法を用いてZnOナノウォールを合成し、このナノウォールを基板から取り出すことでZnOナノシートを作製する技術を確立した。Gaイオンビームおよびシリカマイクロ球を利用した紫外レーザー加工により、作製したZnOナノウォールの表面に微細構造を作製することに成功した。また、不定形なZnOナノシートを利用すればランダム構造を同様に導入できるとの着想を得た。実際に、不定形なZnOナノシートでしきい値150 kW/cm²の低しきい値ランダムレーザ発振を実現することに成功した。

研究成果の概要(英文)：The fabrication method of the ZnO nanosheets has been established, where the ZnO nanowalls are synthesized by nanoparticles-assisted pulsed laser deposition and then the nanowalls are lifted off by laser irradiation from a substrate. Nano-structuring of the nanosheets has been achieved by Ga ion beam and laser processing using silica micro lens. It is also proposed that an irregular-shaped ZnO nanosheet acts as a random laser chip. Based on this idea, the random lasing in a single irregular-shaped ZnO nanosheet with a low threshold power of 150 kW/cm² is successfully demonstrated.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用光学・量子光工学

キーワード：ランダムレーザー ナノシート ZnO レーザ加工 イオンビーム加工

1. 研究開始当初の背景

ZnO ナノワイヤをレーザ素子のビルディングブロックにするための研究が主に欧米を中心に行われている。その際研究の動向としては、(1) 単一のナノワイヤ自体をレーザ発振素子として使用するものと、(2) 多数のナノワイヤ間での光閉じ込め効果を利用するランダムレーザに関するもの、に大別できる。

我々は当時単一 **ZnO** ナノシートでのレーザ発振を初めて確認し、その光閉じ込め機構を解明した (*Optics Express* 19(2011)20389)。実験に使用したナノシートは、典型的な横方向寸法 15-20 μm 程度の単一結晶である。ナノシートの寸法は、多数のナノ結晶間での光閉じ込め効果を利用するランダムレーザで光閉じ込めに必要な寸法と同程度あり、厚さは導波路として光閉じ込めが可能である。そこで、このナノシートにランダム構造を導入することで、新しい構造のランダムレーザを実現できるのではないかとこの着想を得た。

2. 研究の目的

酸化亜鉛 (**ZnO**) ナノシート結晶上にランダムな微細構造を導入し、1枚の **ZnO** ナノシート自体がランダムレーザ動作をするランダムレーザチップを初めて実現するとともに、その動作特性を解明することである。

3. 研究の方法

本研究の課題は、(1) **ZnO** ナノシートの作製方法の確立、(2) 作製したナノシートへの微細構造の導入、(3) 微細構造を導入したナノシートのレーザ動作特性の解明である。(1) のナノシートの作製には研究室で開発したナノ微粒子支援レーザ堆積法 (NAPLD) によりナノウォールを作製し、これを取り出してナノシートとした。ナノシートの加工には、**Ga** イオンビームとレーザ加工を用いた。加工した試料の形状を **SEM** で、発光特性は顕微分光法により発光強度と発光スペクトル

を評価した。

4. 研究成果

(1) **ZnO** ナノウォールの作製

試料となる **ZnO** ナノウォールは、NAPLD により作製した。まず、サファイア基板にレーザ堆積法により **ZnO** バッファ層を堆積する。このバッファ層を、2 光束干渉法によりストライプ状にパターニングし、この基板に NAPLD により **ZnO** ナノウォールを作製する。作製した **ZnO** ナノウォールの SEM 画像例を図 1 に示す。このように、予めパターニングしたバッファ層を用いるとナノウォールを配列成長可能なことが分かった。

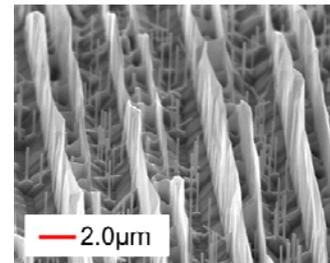


図 1 **ZnO** ナノウォールの SEM 画像例。

(2) **ZnO** ナノシートの作製

次に、作製したナノウォールからレーザ発振のための **ZnO** ナノシートを取り出した。取り出しは、**ZnO** ナノウォールを成長したサファイア基板の裏側より、波長 254 nm の **KrF** レーザ光を照射してリフトオフし、対向する基板に取り出した。このようにして取り出した **ZnO** ナノシートの SEM 画像例を図 2 に示す。

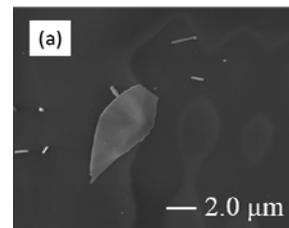


図 2 **ZnO** ナノシートの SEM 画像例

(3) **ZnO** ナノシートの微細加工

ナノシートにランダムな微細構造を導入

する方法として、(1) Ga イオンビームによりシート表面に微細構造を直接導入する、(2) 微小球のレンズ効果を利用してシート表面を微細加工する、(3) シートの表面は加工せず外周形状が不規則なものを作製する、の 3 種類を試みた。

図 3 は、Ga イオンビームで ZnO ナノシートに周期構造を作製した際の SEM 画像である。100 nm オーダーの微細構造を容易に作製できることが確認された。しかし、Ga イオンビームによる加工では、加工部以外にも観察のためのイオンビームが照射されており、照射による結晶のダメージのために ZnO の発光特性が消失することが明らかになった。そこで、イオンビーム加工後の試料を電気炉 650 度で 3 時間アニールすることで、発光特性が回復することが確認できたが、同時に微細構造自体も薄くなることが分かった。図 4 に図 3 の試料をアニール後の SEM 画像を示す。このように、微細構造の定着と発光特性の回復がトレードオフの関係にあり、レーザ応用のためにはこの点をさらに最適化する必要がある。

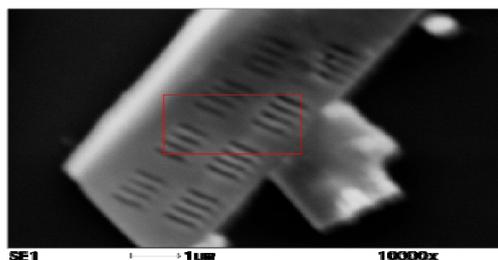


図 3 Ga イオンビームにより加工された ZnO ナノシートの SEM 画像。

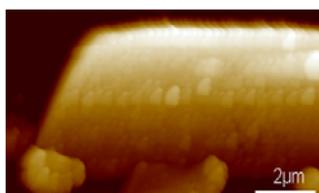


図 4 図 3 の試料をアニール後の AFM 像。

イオンビームによる結晶のダメージを避けるため、ZnO ナノシートにシリカ微小ビーズを散布し、これを通して ArF レーザを照射

することで、ビーズのマイクロレンズ効果を利用して ZnO シートに微細加工する方法を試みた。図 5 は、直径 1 μm のビーズ上に配置した ZnO ナノシートの AFM 像である。単層ビーズ上にナノシートが配置されているのが分かる。これに、ビーズを通してフルエンス 500 mJ/cm² で ArF レーザを照射した後の ZnO シートの SEM 画像を図 6 に示す。ZnO ナノシート上に微細構造の形成を確認することができた。

この手法は、単一のナノシートをビーズ上に配置するためのハンドリングが難しく、レーザ発振に適したナノシートサンプルの加工には至っていない。今後、所望のナノシートをビーズ上に配置できる簡便な技術確立する必要がある。

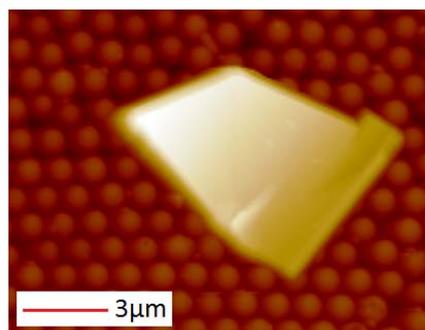


図 5 単層シリカナノビーズ上に配置された ZnO ナノシートの AFM 像。

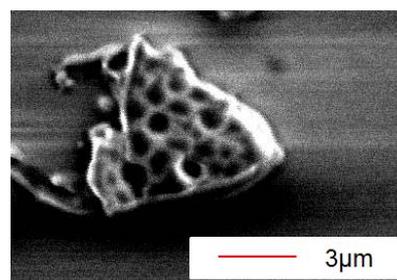


図 6 加工後の ZnO ナノシートの SEM 像。

このような過程の中で、ZnO ナノシートの表面に微細構造を作る代わりに、ZnO ナノシートの形状自体を不定形にすることでランダムレーザを構成できるのではないかとこの着想を得た。すなわち、ZnO ナノシートの外形が不定形であれば、幾何光学イメージで図 7 に示すように、ナノシートの外縁で光はランダムに反射・散乱され、これを複数回繰り返す

返すことで、たまたま閉ループが形成される可能性がある。これは、まさにランダムレーザである。しかも、この場合、ナノシートが平面導波路として機能するため、閉じ込め効率は通常の微小結晶間の多重散乱を利用するランダムレーザより効率が良いことが期待される。

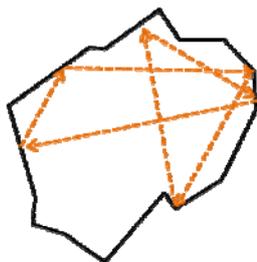


図 7 不定形ナノシートによるランダムレーザのイメージ。

図 8 に示すような ZnO ナノシートの発振特性を調べた。図 8(a) は試料の SEM 画像、同 (b) は発振中の CCD 画像である。試料の長て方向の両端から強い散乱光が見られるが、この部分での反射・散乱の方向はその形状から場所により一定しておらず、その一部でたまたま閉ループが形成される事が期待される。

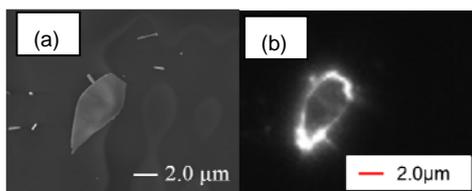


図 8 試料の SEM 像 (a), 発振中の CCD 像 (b)。

図 9 は、発振中の発振スペクトルの励起パワー依存性を示す。多数のモードが同時に発振しており、モード間隔も不規則であり、ランダムレーザとして動作していると考えられる。一方、図 10 は、図 8 でもっとも強いモードの入出力特性である。約 150 kW/cm² の発振しきい値が明確に認められた。この値は ZnO ナノ結晶のランダムレーザで通常報告されているしきい値よりも小さな値である。

以上より、不定形な ZnO ナノシートを用い

ることで、ナノシートの導波閉じ込め効果を利用して、効率の良いランダムレーザ発振を実現できることが初めて示された。

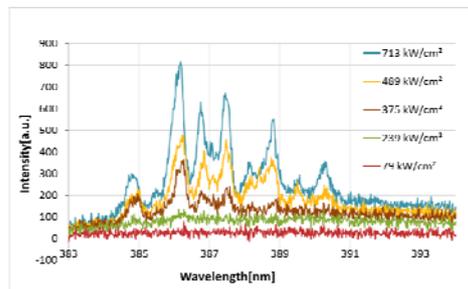


図 9 発振スペクトルの励起パワー依存性。

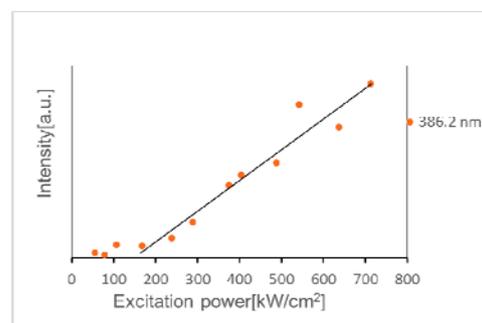


図 10 図 9 の波長 386.2 nm のモードにおける発振強度の励起パワー依存性。

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 3 件)

- ① Kota Okazaki, Tetsuya Shimogaki, Koshi Fusazaki, Mitsuhiro Higashihata, Daisuke Nakamura, Naoto Koshizaki, Tatsuo Okada, "Lasing characteristics of optically-pumped single ZnO micro/nanocrystal", Proc. SPIE, 8626, 86260W (2013.3).
- ② Kota Okazaki, Tetsuya Shimogaki, Daisuke Nakamura, Mitsuhiro Higashihata, Tatsuo Okada, "Lasing of ZnO Micro / Nanocrystals by Ultraviolet Laser Excitation and Atmospheric Alignment with Laser-induced Motions and Electrical Field", Journal of Laser Micro/Nanoengineering, 7, 264-268 (2012.11).
- ③ K. Okazaki, T. Shimogaki, M. Higashihata, D. Nakamura, T. Okada, "Synthesis and Nano-Processing of ZnO Nano-Crystals for Controlled Laser Action", MRS Proc., 1439, 121-126 (2012.4).

[学会発表] (計 7 件)

- ① 原田浩輔, 村岡佑樹, 中尾しほみ, 東島三洋, 池上浩, 中村大輔, 中田芳樹, 岡田龍雄, "ZnO ナノウォールの作製とレー

- ザー発振特性評価”，第 60 回応用物理学
会春季学術講演会 (2014. 3)相模原.
- ② 原田浩輔，村岡佑樹，中尾しほみ，東島
三洋，池上浩，中村大輔，中田芳樹，岡
田龍雄，“ZnO ナノウォールのパターン成
長と紫外レーザー発振特性”，レーザ
ー学会学術講演会第 34 回年次大会
(2014. 1)北九州.
- ③ 高橋将大，村岡佑樹，原田浩輔，中尾し
ほみ，東島三洋，池上浩，中村大輔，岡
田龍雄，“垂直配向 ZnO ナノ構造体のパタ
ーン成長とレーザー発振特性”，応用物
理学会九州支部学術講演会 (2013. 12)長
崎.
- ④ 原田浩輔，村岡佑樹，中尾しほみ，東島
三洋，中村大輔，池上浩，中田芳樹，岡
田龍雄，“ZnO ナノウォールのパターン成
長と ZnO ナノウォールのレーザ発振特性
”，第 66 回電気関係学会九州支部連合大
会 (2013. 9)熊本.
- ⑤ K. Okazaki, T. Shimogaki, M. Higashihata,
D. Nakamura, T. Okada, "Synthesis and
Nano-Processing of ZnO Nano-Crystals for
Controlled Laser Action", Materials
Research Society Spring Meeting (2012.5)
サンフランシスコ.
- ⑥ 岡崎功太，下垣哲也，房崎晃士，東島三
洋，中村大輔，越崎直人，岡田達雄，“
酸化亜鉛マイクロ・ナノ結晶体を用いた
紫外レーザー発振特性評価と応用”，レ
ーザー学会第 431 回研究会 (2012. 9)大
分.
- ⑦ 間部秀毅，岡崎功太，東島三洋，中村大
輔，岡田龍雄，“ランダムレージングを目
指したマイクロビーズによる ZnO ナノシ
ートの紫外レーザー微細加工”，レー
ザー学会九州支部学生講演会 (2012. 9)大
分.

〔図書〕(計 0 件)
なし

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

なし

○取得状況 (計 0 件)

なし

〔その他〕

ホームページ:

<http://laserlab.ees.kyushu-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡田龍雄 (OKADA, Tatsuo)

九州大学・大学院システム情報科学研究院・

教授

研究者番号 : 90127994

(2) 研究分担者

なし

研究者番号 :

(3) 連携研究者

なし