

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月 28日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2010～2012

課題番号：22686068

研究課題名（和文）粒子アセンブリ法によるフォトニック結晶テラヘルツレーザの創製

研究課題名（英文） Fabrication of terahertz photonic crystal laser by particle assembly

研究代表者

高木 健太（TAKAGI KENTA）

独立行政法人産業技術総合研究所・サステナブルマテリアル研究部門・主任研究員

研究者番号：00400284

研究成果の概要（和文）：本研究では、コヒーレントなテラヘルツ（ 10^{12} Hz）電磁波の発振素子の創製に向けて、GaP 結晶内包型フォトニック結晶の作製技術の開発を行った。GaP のテラヘルツ波発振特性および光学バンドギャップ解析結果より、 $200\ \mu\text{m}$ 以下の粒子からなるフォトニック結晶の構築が必要であることが判明した。そこで、既存配列技術に基づいて、小径粒子配列のためのアセンブリシステムを構築した。本装置を用いて、既存技術では困難な $200\ \mu\text{m}$ 粒子の粒子間接合が可能であることを実証し、GaP 結晶内包型フォトニック結晶作製の可能性を示すことができた。

研究成果の概要（英文）：We conducted the development for the technique capable of fabricating GaP-crystal-embedded terahertz photonic crystals that can oscillate coherent terahertz electromagnetic wave. From the oscillation characteristic of GaP crystal and numerical analysis for the photonic band gap, the objective photonic crystals required to be comprised of the monosized particles with the diameters smaller than $200\ \mu\text{m}$. Hence, based on our conventional particle assembly system, we constructed the new system to assemble the small particles. This system was demonstrated to be able to connect the $200\text{-}\mu\text{m}$ particles which were hardly connected by the conventional system. This result provided the possibility to create the GaP-crystal-embedded terahertz photonic crystals.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	7,400,000	2,220,000	9,620,000
2011年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2012年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
総計	1,140,000	3,420,000	14,820,000

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：フォトニック結晶、テラヘルツ材料・素子、粒子アセンブリ

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ波（ 10^{12} Hz 帯電磁波）は、通信はもとより、その分子固有振動数との一致を活かした新しい医療、化学技術を生み出すと

期待されている。これまでに、差周波法などのテラヘルツ波発振方法が発見され、これらを用いた新しい分光・イメージング技術が生み出されてきた。そして、テラヘルツ波技術

の次なるフェーズへの発展の鍵を握るのは、高効率でコヒーレントな発振、つまりレーザーの実現である。レーザー発振の実現は、選択的化学反应誘起による新化合物の合成や、フィルターレス化による超多重高速通信などの革新分野を草創できると予見されている。しかし、現在のところテラヘルツ波のレーザー発振に成功した例は世界的にみても皆無である。

レーザー発振を目指すアプローチには、従来の固体結晶を用いる方法の他に、フォトニック結晶の利用が提案されている。フォトニック結晶とは、内部に周期的な屈折率分布をもつ人工結晶であり、特定波長域の電磁波の存在そのものを許さない光学バンドギャップを有することを特長とする。それゆえに、発振子をフォトニック結晶内に埋込むと、発振した電磁波のうちバンドギャップに対応する波長は結晶内に強く閉じ込められ、微小領域での共振モードを発現する。これにより、極めて大きな局所状態密度が得られるので、結果的にレーザー発振するとされている。このようなフォトニック結晶レーザーは、最近になって赤外領域で可能性が実証された一方で、テラヘルツ波領域になると、フォトニック結晶作製技術の未発達や発振方法の複雑さゆえに、構想に留まっているのが現状である。

一方で、研究代表者らは本研究開始時までに、粒径が $400\ \mu\text{m}$ で均一サイズの球形粒子(単分散粒子)の作製し、それらを3次元周期構造にアSEMBルする技術を独自に開発し、3次元テラヘルツ波フォトニック結晶の作製に成功している。従って、これら独自技術をさらに発展させ、フォトニック結晶中にテラヘルツ波発振素子となる粒子を埋め込むことができれば、テラヘルツ波のレーザー発振が実現できると考えられる。

2. 研究の目的

本研究では、球状格子フォトニック結晶内の点欠陥にテラヘルツ波発振子であるGaP固体結晶粒子が埋込まれた構造を作製する。そして、周期構造の間隙からポンプ光(赤外光)を照射することでGaP結晶にテラヘルツ波を発振させ、フォトニック結晶によるテラヘルツレーザー発振の可能性を実証することを目指す。

3. 研究の方法

本研究で目指すGaP結晶内包フォトニック結晶は、図1に示すように、誘電体材料からなる球状粒子がダイヤモンド格子に配列された結晶の内部に点欠陥(誘電体粒子の欠落領域)が導入されており、その点欠陥にテラヘルツ波を発振するためのGaP結晶が埋込まれた構造である。従って、フォトニック結晶を作製するにあたっては、格子および発振

素子となる単分散球形粒子の作製と、それらをダイヤモンド格子に配列するための3次元粒子アSEMBリを行った。それらのプロセスの概要を以下に示す。

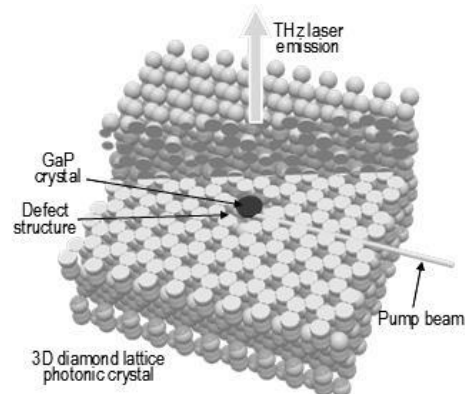


図1 GaP結晶内包フォトニック結晶のイメージ

(1) 単分散球形粒子の作製

単分散球形粒子の作製法として、オイルバス法およびパルス圧力付加オリフィス噴射法(POEM法)を用いた。前者は球形粒子作製が容易であるが単分散粒子を得るには分級処理を必要とする。また、低融点材料にしか適用できない。後者は、研究代表者らが開発した手法であり、分級工程なしで単分散球形粒子を直接作製できる。

① オイルバス法による単分散球形粒子の作製

粒子作製にあたり、原料となるジルコニア/ポリエチレン複合体を作製した。ヒータで溶融したポリエチレンにジルコニア粉末を混合し、真空脱泡した後に、冷却固化することで原料インゴットとした。本原料の組成は40vol.%ジルコニア/ポリエチレンである。これを適度に粉砕した後に、シリコンオイルで満たしたガラス管の中に投入した。シリコンオイルはガラス管上部のみが加熱されており、原料は重力沈降中に加熱領域で異端溶解することで球形化し、低温領域で再び凝固して球形粒子となる。球形粒子はヘキサンの十分に洗浄した後、双軸ロール法によって目的粒径に分級した。

② POEM法による単分散球形粒子の作製

POEM法は、底面に数 $100\ \mu\text{m}$ 径のオリフィスが設けられたるつぼ中で原料を溶解し、この融体に数10Hzのパルス振動を与えて、オリフィスから一定体積の融滴を噴射させる方法である。本研究では、ジルコニア/ポリエチレン原料およびGaP素子原料の両方の球形化を試みた。前者にはステンレス製るつぼ、後者には窒化ホウ素製るつぼを用いた。また、るつぼは高周波法により加熱し、作製雰囲気

は Ar とした。

(2) 3次元粒子アセンブリ法

粒子アセンブリシステムの概念図を図3に示す。本システムによるフォトニック結晶の作製は以下の過程を経て行われる。

- ①画像解析で、原料単分散粒子に存在する粒径ずれを精密測定する。
- ②粒子をマニピュレータによりダイヤモンド結晶格子点座標に搬送する。
- ③微焦点赤外レーザーによって、隣接する既配列粒子との接点を多点同時に局所加熱することでマイクロ溶接する。この時、画像解析により得られた粒径ずれを、粒子間オーバーラップにより相殺する。
- ④①～③を繰り返すことによりフォトニック結晶を作製する。

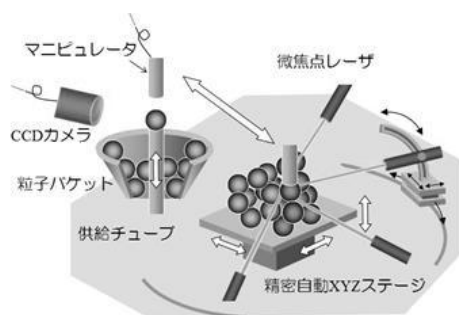


図2 3次元粒子アセンブリシステムの概念図

4. 研究成果

(1) フォトニック結晶の設計

オイルバス法を用いて直径 $400 \pm 10 \mu\text{m}$ 粒子を作製し、既存のアセンブリシステムを持ってダイヤモンド格子フォトニック結晶にアセンブリを行った。その結果、従来の欠陥のない完全結晶はもとより、図3に示すようにフォトニック結晶の内部に任意の欠陥が導入できることを確認できた。

一方で、GaP 結晶のテラヘルツ発振特性を確認したところ、その発振下限周波数は 0.3THz であることが分かった。しかし、 $400 \mu\text{m}$ 粒子の場合、フォトニックバンドギャップは 0.25THz 付近に発現し、GaP 発振素子の発振下限周波数より低い。従ってバンドギャップの高周波数化が必要であることが判明した。平面波展開法および時間領域有限差分法を用いて数値解析を行ったところ、発振下限周波数を満たすには $200 \mu\text{m}$ 以下の小径粒子のアセンブリが必要であることが分かった。

一方で、ポリエチレン粒子をアセンブリした結晶をスリップキャストによりセラミック反転結晶とする技術も付加的に開発し、結晶格子の高誘電率化の可能性も見出した。

(2) 単分散粒子の作製

①格子用単分散粒子の作製

まず、POEM法を用いて、粒径 $200 \mu\text{m}$ 以下のジルコニア/ポリエチレン単分散粒子の作

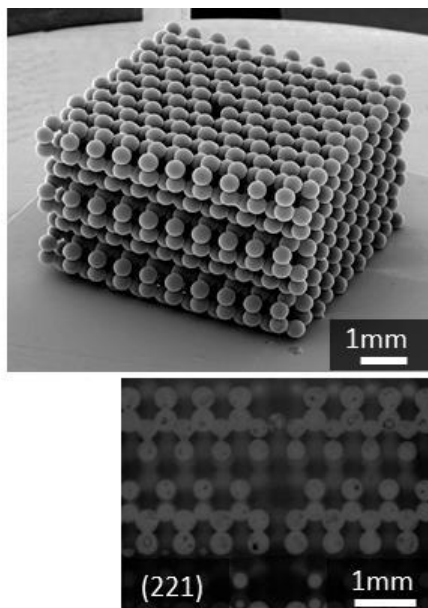


図3 欠陥が導入されたフォトニック結晶。用いた単分散粒子の粒径は $400 \mu\text{m}$ 。(上図)外観SEM写真(下図)断面SEM写真。

製を目指した。しかし、液相であるポリエチレンの表面張力が低いため、機械的振動によって融滴の分裂を起こすことができなかった。オリフィスの材質を検討することで融滴分裂が可能と考えられるが、検討が長期化する恐れがあることから、本研究ではオイルバス法による粒子作製に変更した。作製工程は複雑ではあるものの、従来の半分の粒径である $200 \mu\text{m}$ の単分散粒子を作製することができた。

② GaP 結晶単分散粒子の作製

POEM法を用いたGaP単分散粒子の作製を試みた。ろつぼ材質としては窒化ホウ素を選択した。結果として、球形粒子は形成されたが、その組成は大幅なGaリッチであり、発振素子として用いることは困難であった。これは、POEM法におけるGaPの溶解時にPが大量に揮発したためである。従って、POEM法によるGaP粒子の作製には B_2O_3 を使用した液体封止法を利用するなどの対策が必要であることが分かった。

(3) フォトニック結晶の作製

作製した粒径 $200 \mu\text{m}$ のジルコニア/ポリエチレン単分散粒子を、既存システム法を用いてフォトニック結晶の作製を試みた。アセンブリに先立ち、アセンブリの要となる粒子間接合の接合テストを行った。その結果、従来のアセンブリに対して粒径が半分になったことより、接合条件の許容範囲が非常に狭くなることが分かった。これはレーザーの焦点径

が $42\mu\text{m}$ と大きいため、僅かな誤差で粒子に過剰の熱エネルギーが投入されやすくなったためである。既存システムによって作製したフォトニック結晶を図4に示す。 $200\mu\text{m}$ の粒子から作製した結晶は、従来の $400\mu\text{m}$ の粒子からなる結晶に比べ非常に微小構造であることが分かる。また、図のような小規模な結晶は作製できたものの、前述の理由によってアセンブリ中に粒子の過剰溶解による大変形や座標ずれが発生し、内包型フォトニック結晶に必要な大規模な結晶作製は困難であることが判明した。

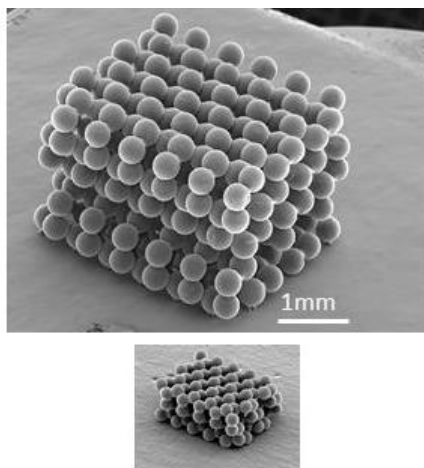


図4 粒径 $400\mu\text{m}$ (上図)と粒径 $200\mu\text{m}$ (下図)から作製されたダイヤモンド構造の比較。倍率は同じ。

(4) アセンブリシステム的设计・製作

(3)の結果を受けて、内包型フォトニック結晶作製のためのアセンブリシステムの再設計を行った。最も重要であるのは、粒子間接合に用いられる微小点ファイバーレーザーの焦点径である。そこで、既存システムの約半分となる $20\mu\text{m}$ の焦点径のレーザーを発振できるファイバーレーザーを導入することとした。ここで、レーザーの波長から考えて、ファイバーレーザーにおける理論上焦点径は約 $20\mu\text{m}$ であることから、導入したレーザーの焦点径はほぼ限界まで小さくされている。また、格子粒子およびGaP結晶の異種粒子のアセンブリが必要となることから、粒子供給用のバケツは2基導入することとした。さらに、XYZステージやマニピュレータステージは動作速度を改善する目的として、既存のピエゾモータからステップモータに変更した。ステップモータはピエゾモータに比べて位置決め精度は劣るものの、粒径の0.5%以下の精度を有することから、機能としては十分と判断した。マニピュレータや画像解析装置、モニタリングカメラなどの他の機能については、既存システムを踏襲することとした。図5に、新たに設計・製作したアセ

ンブリシステムの外観を示す。



図5 本研究で開発した3次元粒子アセンブリシステム。上図は全体像、下図は配列部のみ。

(5) 新システムによる粒子アセンブリ

フォトニック結晶を作製するうえで最も鍵となるのは、微小点レーザーによる粒子間接合であるため、新システムを用いて粒子間接合を実施した。従来システムに比べて焦点径が約半分となったため、レーザーによるエネルギー投入量に大きな誤差が生じなくなり、結果として、安定的な粒子間接合が可能となった。粒子間接合の例を図6に示す。図に示すように、接合条件を変えることにより、粒径の25~75%の範囲で制御して接合することができた。

従って、本研究で新たに構築したアセンブリシステムを用いることにより、小径粒子に

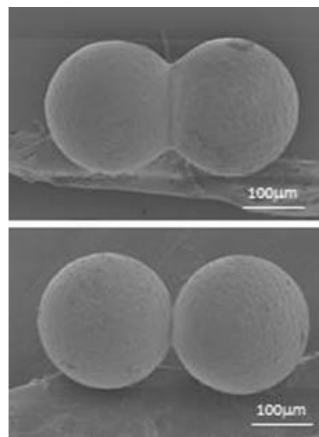


図6 新規システムで接合された $200\mu\text{m}$ 径の粒子。接合条件は上図が $100\text{msec} \times 680\text{mA}$ 、下図は $100\text{msec} \times 450\text{mA}$ 。

よるダイヤモンド格子が配列でき、それにより GaP 結晶内包フォトニック結晶が作製できると期待される。

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 2 件)

- ① 高木健太、尾崎公洋、小林慶三、Effect of heat diffusion in interparticle micro-welding for 3-D particle assembly、Proceedings of TMS2011 Annual Meeting、査読有り、2011、pp. 547-552
DOI: なし
- ② 菊池圭子、池田和正、岡安林、高木健太、川崎 亮、Structural dependency of three-dimensionally periodic porous materials on elastic properties、Materials Science and Engineering A、査読有り、Vol. 528、2011、pp. 8292-8298
DOI: 10.1016/j.msea.2011.08.0001

[学会発表] (計 1 件)

- ① 高木健太、尾崎公洋、小林慶三、Effect of heat diffusion in interparticle micro-welding for 3-D particle assembly、TMS2011 Annual Meeting、2011 年 3 月 2 日、San Diego Convention Center (米国サンディエゴ)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高木 健太 (TAKAGI KENTA)

独立行政法人産業技術総合研究所・サステナブルマテリアル研究部門・主任研究員

研究者番号：00400284