



# フォトニック結晶工学

吉野勝美\*

## Photonic Crystal Engineering

**Key Words** : photonic crystal, synthetic opal, opal, laser, photonic band gap

### 1. はじめに

フォトニック結晶(photonic crystal)とは、エレクトロニクスにおいてSi等の半導体中の電子の振る舞いを制御しているように、光を自由自在に制御する事ができる新しい概念の光、電磁波の波長程度の長さの周期構造を持った物質、素子、デバイスであり多様な画期的な機能が予測され、このフォトニック結晶に基盤をおいたフォトニック結晶工学とも呼びうる科学技術が二十一世紀の社会を支える基盤技術となるものと考えられる。勿論、その実現には既存の考え方の枠を越えた新しい発想が必要であるが、その研究開発により、またその研究開発過程において、従来の常識を越えた新しい物理的な概念、現象が発現するものと期待される。

今世紀(二十世紀)の社会を支えた基盤技術は、勿論、半導体エレクトロニクスであり、レーザーの発明に端を発するオプトエレクトロニクスと併せて極めて有効な技術として活用されているが、二十一世紀の社会的要請に応えるには単に

これらの延長線上の技術では限界があり、新しい概念の科学技術が不可欠である。

エレクトロニクスが電子の振る舞いを制御する事によって成り立っているのに対し、オプトエレクトロニクスは光を利用しているわけであり、情報通信関連分野ではかなりの進展が見られ、更に大きな期待も寄せられているが、現在の所、半導体中の電子のように光を自由自在に制御できてはいない。例えば、電子はそれをある状態に任意に保持し、局在化させ留めて置くことができるので多様で高度な機能の発現が可能となるが、これに対し光は常に通過する存在であり、局在化させ留め置く事は出来ない。

所が、このフォトニック結晶では光(フォトン)と粒子場との相互作用により光を局在化させ、長い時間留め置くことが可能となり、光の制御性が飛躍的に高くなる。従って、このフォトニック結晶を用いる新しい光技術は既存の概念を越えたまったく新しい可能性をもたらし、しかもその活用範囲は極めて幅広く、これが実用化され十分に使いこなされる時が来ればその応用分野は爆発的な広がりを見せ、まさに新しい時代を支える基盤技術となるものと考えられる。

所で、このフォトニック結晶なる新しい概念は1987年に始めてS. JohnとE. Yablonovitchにより理論的に提唱されたものであり<sup>1)2)</sup>、実験的には今、その研究の端緒が開かれた所と云って良い。このフォトニック結晶のサイエンスと技術を確立し、広い分野での活用を実現するためにはエレクトロニクス、光技術、物理学、化学、材料科学技術など様々な分野の研究者、技

\*Katsumi YOSHINO  
1941年12月10日生  
昭和39年大阪大学工学部電気工学科卒業  
現在、大阪大学大学院工学研究科  
電子工学専攻、教授、工学博士、  
電子工学、電子物理、電気電子材  
料、デバイス  
TEL 06-879-7757  
FAX 06-877-3542  
E-Mail yoshino@ele.eng.  
osaka-u.ac.jp



術者の力の結集が不可欠である。

大阪大学における筆者のグループはこのフォトニック結晶の実現に資するため、ナノスケールの周期構造の作製とその性質の解明と機能、デバイスの可能性の探求を行っているが、特に1997年度からはNEDOの支援のもと国際共同研究として組織的な研究展開を始めた。

本稿ではフォトニック結晶がどのようなものであるかの一般的な説明と、筆者らの行っている研究の一端を紹介し、更にどのような可能性が秘められているかについて若干の私見を述べることにする。

## 2. フォトニック結晶とは

フォトニック結晶は光の波長程度の長さの周期構造を有しており、その中ではある波長範囲の光の存在が許されないフォトニックバンドギャップ(photoic band gap)が現れる。これは、原子が規則正しく配列している固体結晶で、電子を波と見た場合の、即ち、ドブロイ波の波長が数オングストロームで丁度原子間隔程度の大きさであるため電子に対する禁止帯、バンドギャップが現れるのと同じ様に説明する事ができる。

波の波長 $\lambda$ と結晶の周期長 $L$ が同じ程度である場合、例えば、 $\lambda=2L$ の場合、波はブラッグ反射により反射されるが、反射により逆方向に進もうとした波はまた反射を受け、結局、どちらにも進めないことになる。従って、三次元的な周期構造である場合はX、Y、Z軸いずれの方向にも波は進めない事になり、その結果がバンドギャップをもたらしていると解釈される。 $\lambda$ が光の波長程度であれば光に対するバンドギャップ、フォトニックバンドギャップが現れる。

真空中で波長 $\lambda$ の光は屈折率が $n$ 、周期が $L$ の物質中では実質的に $\lambda/n$ の波長の波と見なされるから、次の条件を満たす時

$$\frac{\lambda}{n} = 2L \quad (1)$$

即ち、次の波数 $k$ の時ブラッグ反射を起こすことになる。

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{\pi}{nL} \quad (2)$$

実際には真にフォトニックバンドギャップが

現れるためには屈折率 $n_1$ 、 $n_2$ の二つの物質が周期構造を形成している時、次の条件を満たす場合となる。

$$\frac{n_1}{n_2} > 2 \quad (3)$$

また、占有率、即ち周期 $L$ と一方の物質の占める長さ $a$ の比 $a/L$ にも真のフォトニックバンドギャップが現れるためには条件がつく。これらはブラッグ反射だけでなく、同時にミー散乱も共鳴的に起こるときの条件である。

更に、興味深いのは完全な周期構造のフォトニック結晶に欠陥が導入された場合であり、固体結晶に欠陥が入った場合の電子に対するバンド構造の変化と同様の事が生ずる。即ち、フォトニック結晶の場合も欠陥の導入によりバンド端がフォトニックバンドギャップ中に裾をひき、バンド端近傍に局在状態が出現する。従って、電子が局在状態に捕獲、トラップされるのと同様、光が局在状態にトラップされることとなる。これは光が局在してある所に留まる事を意味する。勿論、この様な状態が実際に観測されるのには光の吸収が抑えられなければならない。

以上のことから、どの様な欠陥を、どれだけ、どの様な形態で導入するかによってフォトニック結晶に様々な可能性をもたらすことができることがわかる。従って、フォトニック結晶実現のためには、まず第一ステップとして規則的な周期構造を形成する方法を確立し、ついで制御された欠陥を導入する技術を開発することである。

## 3. フォトニック結晶の作製

三次元的周期構造のフォトニック結晶を作成する方法としては、半導体素子、デバイス作製のため開発された微細加工技術、積層技術など様々な方法がある。

微細加工技術を用いる方法としては、例えば、まず平板上に屈折率 $n_1$ の突起または屈折率 $n_1$ の物質の薄い層に孔を光の波長程度の周期で形成する。突起の高さ、孔の深さはやはり光の波長程度である。ついで屈折率 $n_2$ の物質を光の波長程度の厚さに積層してコーティングし、その表面を平面状に成型する。再びその上に屈折

率  $n_1$  の物質の突起を形成または  $n_1$  の物質を積層し孔を形成し、それをまた  $n_2$  の物質でコーティングし加工するという過程を繰り返す方法である。

また、平板上に屈折率  $n_1$  の突起または孔を周期的に形成し、その上にやはり光の波長程度の厚さで屈折率  $n_2$  の物質を積層する。この場合、堆積条件をうまく設定すれば下の形状をそのまま保った形で次の層が形成されるので、これを繰り返し三次元周期構造を形成する事が可能である。

突起の形成は、半導体デバイス作製に用いられるリソグラフィ、選択成長など様々な方法が適用でき、穿孔も電気化学的或いは化学的エッチング法更には電子ビームやイオンビーム照射などの方法が適用できる。

一方、光の波長程度の大きさの粒子を構造単位として、これを積み上げる方法がある。この粒子の大きさや形状、積み上げ方、また単一の種類の粒子とするか複数の種類の粒子とするかによって様々なタイプのフォトニック結晶が可能である。

ここで、筆者ら自身を取り扱っているこの最後の構造単位を積み上げる方法による三次元結晶の例を次に示す。

シリカ  $\text{SiO}_2$  のナノスケールの微粒子を作製する。現在実験を行っているのは  $100\text{ nm} \sim 1\ \mu\text{m}$  の範囲の物である。重要なのは単一分散とすること、即ち、同一径の粒子を作製することである。この微粒子を積み上げて結晶を形成し、これを熱処理することなどによって粒子間を接着或いは融着させる。次に、更に高温で熱処理をすることによって機械的に強固なものとする。

図1は、このようにして作製された径  $250\text{ nm}$  の  $\text{SiO}_2$  微粒子から形成された結晶の例であるが、規則的な周期構造が形成されていることがわかる<sup>3)</sup>。

この様な周期構造の結果、この結晶は角度によって色が微妙に変化する非常に美しい虹色を呈することになる。その為、これは人工オパールとも呼ばれ得る。また、この規則正しい周期性を反映して、図2に示すように反射スペクトルにシャープな回折ピークが現れる。この回折

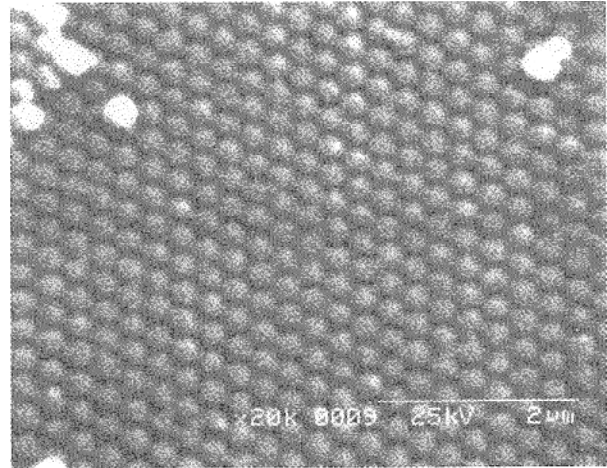


図1 シリカ  $\text{SiO}_2$  球形微粒子(径:  $250\text{ nm}$ )を積み上げて作製されたフォトニック結晶, 人工オパールの走査電子顕微鏡写真

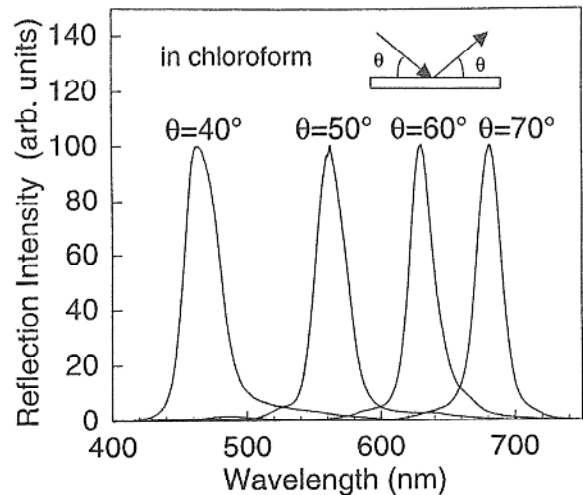


図2 シリカ  $\text{SiO}_2$  球形微粒子(径:  $250\text{ nm}$ )を積み上げて作製されたフォトニック結晶, 人工オパールの反射スペクトル

ピークの波長から評価した周期を用いて逆算した粒子径は走査電子顕微鏡での実測値と極めて良い一致を示す<sup>3)</sup>。

図3は径  $160\text{ nm}$  及び  $210\text{ nm}$  の  $\text{SiO}_2$  を用いて同様な手法で作製された試料の回折ピークであり、やはり走査電子顕微鏡から得られる周期構造と極めて良好な対応を示す。尚、 $250\text{ nm}$ ,  $210\text{ nm}$ ,  $160\text{ nm}$  の粒子から作成された試料は、その色合いから赤色オパール、緑色オパール、紫色オパールと呼ぶこともできる。

所で、自然界には、ここで紹介した微粒子からなる人工結晶が示すのと同様な極めて美しい

多彩な色を呈する物質が色々あり、またそのような生物もいる。勿論、オパールそのものは、

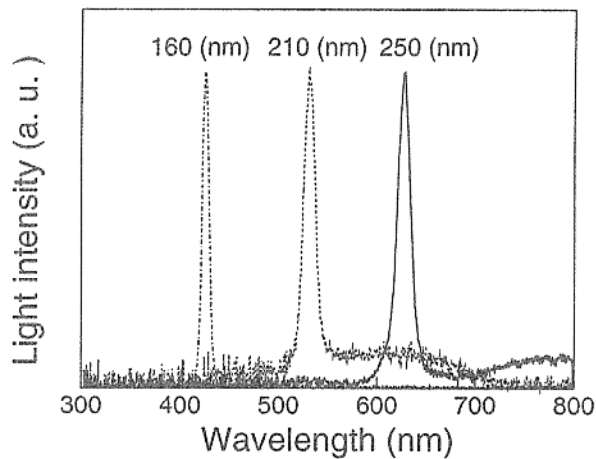


図3 径：160 nm, 210 nm 及び 250 nm の  $\text{SiO}_2$  微粒子を用いて作製されたフォトニック結晶、人工オパールの反射スペクトル

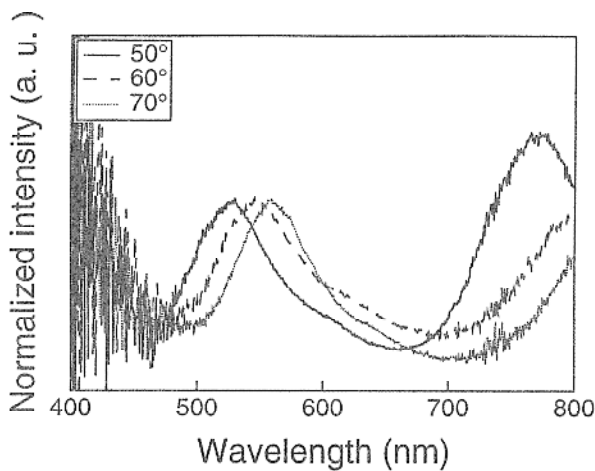


図4 鮑貝の内表面の反射スペクトル

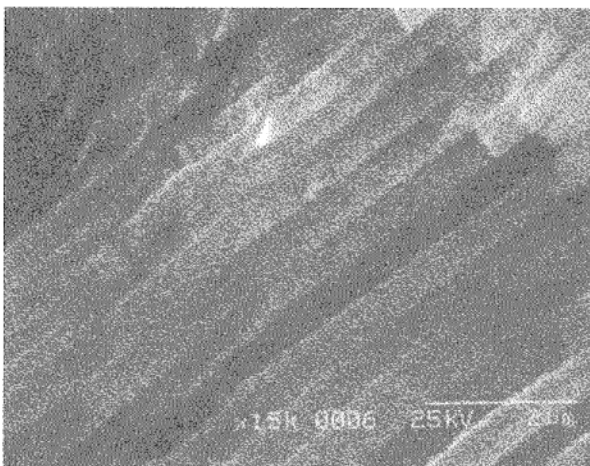


図5 鮑貝の内表面の走査電子顕微鏡写真

ここで述べた人工オパールと同様の美しさを呈するが、鮑(あわび)を始めとする各種の貝、玉虫、蝶の羽根など様々な生物も美しい色を呈する。これらはいずれも直感的に干渉、回折などに起因する美しい色であることがわかる。

例えば、図4は鮑貝の反射スペクトルであるがシャープなピークが現れ、回折、干渉のからだ物であることが予想される。実際、例えば、この鮑貝の走査電子顕微鏡写真を撮ってみると、図5の様に平板が層状に積み重なった構造をとっていることが明らかである。各層の厚さは約400 nmで回折スペクトルの解析結果と一致している。即ち、鮑貝の美しい色はある特定の波長の光が干渉していることによるとして解釈される。

#### 4. フォトニック結晶の応用

フォトニック結晶はこれまで述べてきた様に、規則正しい周期構造を有しており、フォトニックバンドギャップが現れ、特定の波長範囲の光の存在が禁止され、また、これに制御された欠陥を導入する事によって局在状態などが形成される。この為、フォトニック結晶中では光は単に通過する存在ではなく、局所に閉じこめること、導波することが可能となり、その結果光と粒子、原子、分子との相互作用に全く新しい側面が現れ、従来の常識を越えた多様な機能発現が可能となると考えられる。

一方、フォトニック結晶のうち粒子を積み重ねる方法で形成されたものは、逆にナノスケールの規則的に配列された空隙が存在することから、フォトニック結晶としての特徴の応用のみならずナノスケール空間を生かした新しい応用も可能となる。

図6にフォトニック結晶の様々な応用の例を示すが、広い応用範囲があることがわかる。即ち、フォトニック結晶は単に一つの結晶と云うよりも、その影響の広がりにはフォトニック結晶工学とも呼べるサイエンスとテクノロジー分野を開くことを示すものである。

この図には、また、このフォトニック結晶工学を実現する上では、様々な分野の科学技術の結集がその基盤となることを示している。

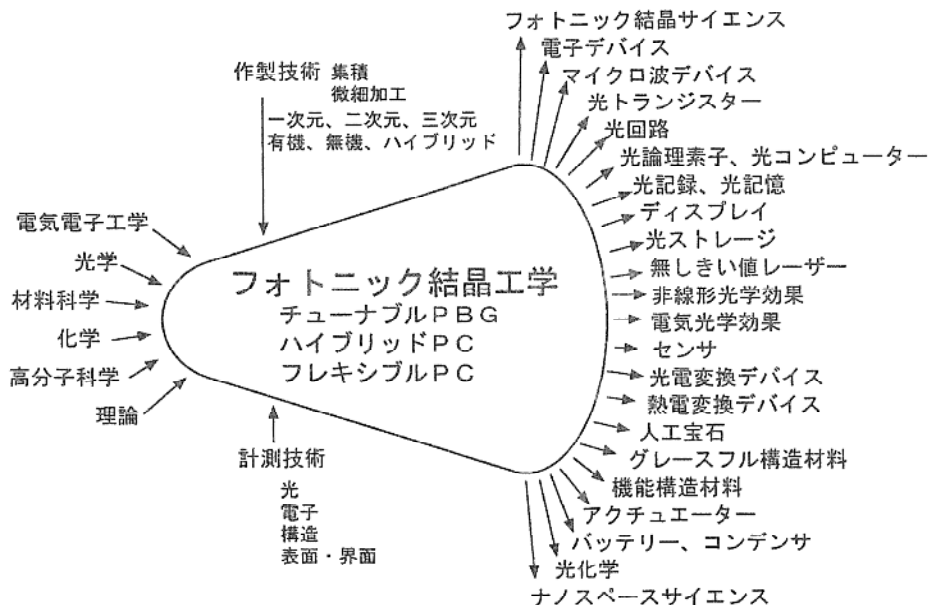


図6 フォトニック結晶の様々な応用例

さて、この図に示した多様な応用の中からいくつかを選んでもう少しだけ詳しく述べる。

(a) 無しきい値レーザー

レーザー発振は励起によりいわゆる逆転分布が達成された時に起こるが、一般には励起状態の寿命が比較的短いため、十分な逆転分布を達成するには、あるしきい値以上の強い励起が必要である。所が、フォトニック結晶中に発光に関与する原子、分子が導入されている場合、励起状態からの自然放出による発光が、フォトニックバンドギャップ内の波長に相当する光である場合、その様な光の存在は許されないで、結果的に自然放出が出来なくなり励起状態の寿命は極めて長くなる。即ち、自然放出の時定数が極めて長くなるので、容易に逆転分布が生じレーザー発振が非常に低い励起強度或いは無しきい値で起こる事になる。

我々はSiO<sub>2</sub>粒子からなるフォトニック結晶、合成オパールのナノスペースに各種の蛍光性色素や導電性高分子を導入して光励起によるレーザー発振の実験を行った。

例えば、図7は色素としてローダミン6Gを用いた場合の励起光(YAGレーザーの二倍高調波)強度を強くした場合の蛍光スペクトルであるが、線幅が急激に鋭くなりその強度も急激に強くなることを示す実験例である<sup>4)</sup>。他の色素、

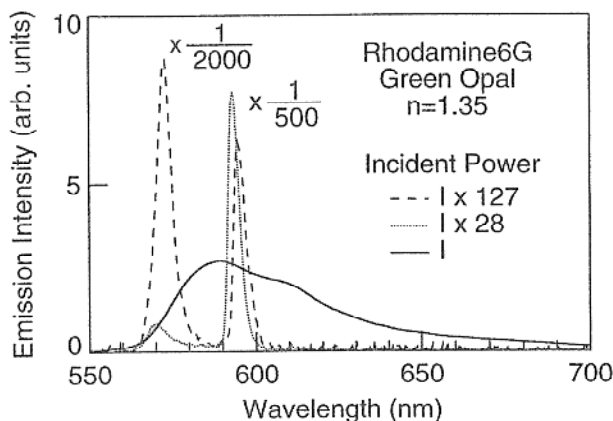


図7 ローダミン6Gを導入したフォトニック結晶、人工オパール(210nm SiO<sub>2</sub>球から作製)からの蛍光の励起光強度依存性：spectral narrowing

導電性高分子などでも同様の結果を得ている。これが真にフォトニック結晶としての特性として現れているのかどうかの判断は必ずしも容易でない。というのは、ある適当なサイズの乱れがある場合には光の多重散乱によりランダムレーザーの可能性もあるからである。いずれにしても、この系は非常に興味深い系であることがわかる。

(b) 高効率太陽電池

フォトニック結晶中に光電変換材料を導入した場合、光により生成された励起子の寿命は、それからの発光波長がフォトニックバンドギャップ内にある場合、極めて長くなり、結果的に効

率よく P/N 接合部或いは D/A 界面まで拡散，到達し効果的に解離して電荷分離が起こり，太陽電池としての効率が大幅に向上する可能性がある．我々はこの様な概念に基づく D/A 型高効率光電変換素子の提案を行っている<sup>9)</sup>．

#### (c) 非線形光学効果

フォトニック結晶の場合には種々の非線形光学効果にもとづく現象が顕著となり，弱い光においても非線形光学現象の利用が可能となる．

また，励起光強度と逆転分布などの非線形の関係などにしきい値特性を持たせることが出来て，パッシブからアクティブの状態へ転移させることが出来るので，これを利用する光トランジスタが可能となる<sup>6)</sup>．

#### (d) 光回路

フォトニック結晶に制御された欠陥連鎖を導入すれば光を導波する事もできるのでマイクロ光コネクタや光分波器等様々な光回路が可能となる．

#### (e) 光記録

フォトニック結晶の場合で光を局在化させることができる事を利用して，様々なタイプの光記録，光記憶素子が可能となる．

また，ナノスケールの微小空間を有する人工オパールでは異なったタイプの記録素子も可能となる．例えば，この空間内にフォトクロミック色素を導入した系では図8に示すようにフォトクロミック色素分子と空隙の内壁との相互作用

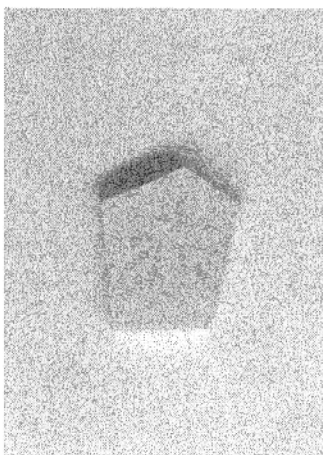


図8 フォトクロミック色素 CMTE を導入したフォトニック結晶，人工オパールの光照射による光記録の例

用により安定なフォトクロミック効果による光記録，表示が可能である．

#### (f) 光化学

ナノスケールの微細空隙を持ちそれが互いに連結されているフォトニック結晶内の空隙には様々な物質が挿入でき，そこでは光照射により形成された励起状態は長い寿命を持つため，様々な光化学反応が極めて高い効率で起こる．これにより光化学の分野に画期的な進展がもたらされる可能性がある．

#### (g) その他

ナノスケールの微細空隙の存在は，フォトニック結晶にバッテリー，コンデンサを始め様々な，まさにナノスペースサイエンス，ナノスペーステクノロジーと呼ぶにふさわしい新しい分野の創生をもたらす．

また，フォトニック結晶の美しさは，人工宝石は勿論，構造材料，機能材料に於いても，優雅な，美的感覚にすぐれた材料を生み出す事となる．

### 6. チューナブルフォトニック結晶

平成九年度から，NEDO 国際共同研究として，チューナブルフォトニック結晶の研究がスタートした．筆者，吉野勝美が研究代表者であり，チームメンバーとして，S. John, R. Baughman, A. Zakhidov, V. Vardeny, R. McCulloughらが名を連ねているが，このうちS. Johnはフォトニック結晶そのものの最初の提唱者である．

このチューナブルフォトニック結晶というのは，フォトニック結晶の構造周期，結晶構造，次元性，充填率，屈折率等の動的な制御により，フォトニックバンドギャップをダイナミックに制御，スイッチしようとするもので，これにより，前節で述べた応用が更に多様化，高度化すると共に，光スイッチ，ディスプレイなど種々の新しい応用の可能性が生まれてくる．

具体的にチューナブルフォトニック結晶を実現する方法としては色々な方法があるが，例えば，導電性高分子をフォトニック結晶の微細空隙に導入し，これにドーピングを行い電子状態を可逆的に変化させる，フォトクロミック色素



等を導入し、これを光照射により可逆的に変化させる、液晶を導入する方法等の研究を進めている。

筆者は特に液晶を導入する場合には異方性フォトニック結晶という新しい概念を生み出すことができることに思い至った。現在、S. Johnにこの異方性フォトニック結晶の理論的検討を依頼し行って貰っているところである。

フォトニック結晶のナノスペースに液晶を導入することは、液晶の研究という立場から見ても新しい課題を提供するものである。例えば、フォトニック結晶中にネマチック液晶を導入した場合、液晶の誘電特性等その物性が変化する事を見出した<sup>7)</sup>。

一方、フォトニック結晶のナノスペースにKをドーブしたC<sub>60</sub>等、種に超伝導体を導入した

ものの研究も進めている。

また、SiO<sub>2</sub>からなるフォトニック結晶のナノスペースに第二の物質を充填した後、SiO<sub>2</sub>をふっ酸などで溶解して取り除くと、レプリカが作成できる<sup>8)</sup>。このレプリカも図9の電子顕微鏡像からも明らかなように周期構造をなし、光回折ピークも明瞭に現れる(図10)。従って、これが新たなフォトニック結晶ともなり新しい可能性が生まれる。このレプリカ自体をSiで作製する或いはプラスチックレプリカ中にSiを導入するなどにより極めて良い特性のフォトニック結晶が表現できると考えている。

## 7. おわりに

ここでは、フォトニック結晶の概念と性質、その作成方法、その様々な応用の可能性を、筆者らの行っている研究の例を引き合いに出しながら述べた。以上の説明でわかる様にフォトニック結晶はまさにフォトニック結晶工学、サイエンスと呼ぶにふさわしい新しい分野をもたらす非常に魅力あふれた物であり、二十一世紀における基盤技術になることは間違いないと考えている。

しかし、実験的にはまだまだ未熟な段階にある。これを真に有効なものとするためには、電気電子工学、光学、材料科学、化学、高分子科学を始めとする様々な分野の研究者、技術者の協力が極めて重要で、それなくしてはむしろ不可能といっても良く、関連する分野の方々の、ご支援と御協力を賜りたいと思っている。

## 8. 謝 辞

ここで紹介した筆者らの研究の一部はNEDO国際共同研究の支援のもとに行っているものであることを記し、謝意を表したい。また共同研究者である大阪大学 尾崎雅則助教授、大阪大学大学院学生 立原 聡氏、川岸義明氏、中山敬三氏、ウズベク科学アカデミー A. A. Zakhidov 教授、ユタ大学 V. Vardeny 教授、トロント大学 S. John 教授、アライドシグナル R. Baughman 博士に謝意を表したい。

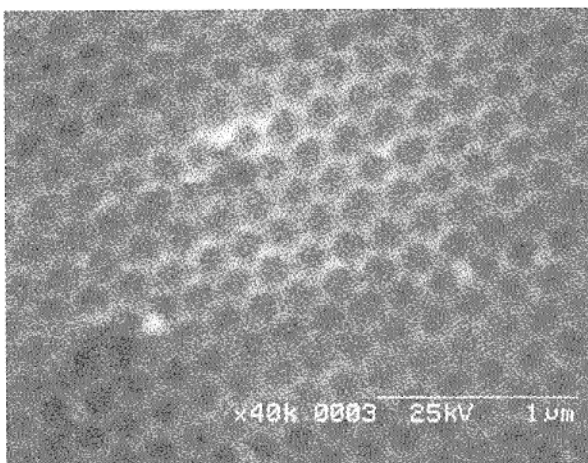


図9 人工オパールを鋳型として作製されたフェノール樹脂レプリカの走査電子顕微鏡写真

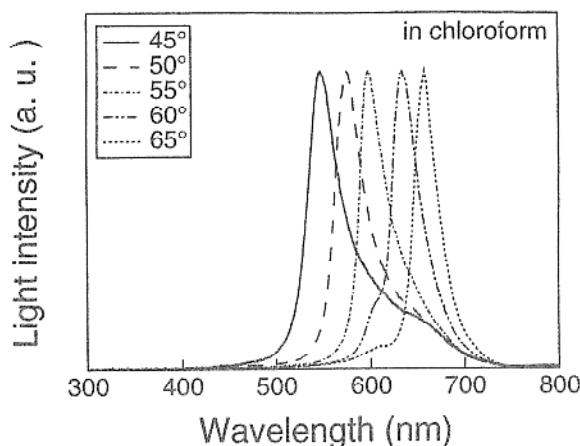


図10 人工オパールを鋳型として作製されたフェノール樹脂レプリカの反射スペクトル

参 考 文 献

- 1) S. John ; Phys. Rev. Lett. 58 (1987) 2486
- 2) E. Yablonovitch ; Phys. Rev. Lett. 58 (1987) 2059
- 3) K. Yoshino, K. Tada, M. Ozaki, A. A. Zakhidov and R. H. Baughman ; Jpn. J. Appl. Phys. 36 (1997) L714
- 4) K. Yoshino, S. Tatsuhara, M. Ozaki, V. Vardeny and A. A. Zakhidov ; to be published
- 5) K. Yoshino and A. A. Zakhidov ; to be published
- 6) S. John and T. Quang; Phys. Rev. Lett. 78 (1997) 1888
- 7) K. Yoshino, K. Nakayama, Y. Kawagishi, M. Ozaki and A. A. Zakhidov ; to be published
- 8) A. A. Zakhidov, R. H. Baughman, Y. Kawagishi, M. Ozaki and K. Yoshino ; to be published

