

# カーボンナノチューブとフォトニック結晶共振器の光結合 (102103001)

## Optical coupling of carbon nanotubes to photonic crystal cavities

### 研究代表者

加藤 雄一郎 東京大学 大学院工学系研究科 総合研究機構

Yuichiro Kato Institute of Engineering Innovation, The University of Tokyo

研究期間 平成 22 年度～平成 24 年度

### 概要

カーボンナノチューブはフォトルミネッセンスや電界発光を示し、よく光るナノ材料として知られており、電気駆動のデバイスが作製可能な材料でもある。一方、フォトニック結晶による微小光共振器はモード体積が小さく、共鳴波長が制御可能であり、ナノ材料との相性がよい。そこで、本研究では単層カーボンナノチューブとフォトニック結晶共振器を光結合させて発光増強を実現し、カーボンナノチューブ光素子とフォトニック結晶光回路を組み合わせたナノスケール光集積回路への第一歩とした。

### 1. まえがき

単層カーボンナノチューブは、よく光るナノ材料である。グラフェンを筒にした構造を持つカーボンナノチューブは、円周に相当するベクトルを指定する整数(n,m)の組み合わせ(カイラリティ)により電子構造が大きく変わり、金属にも半導体にもなりうるということが知られている。このうち、半導体カーボンナノチューブは直接バンドギャップを持ち、室温で発光する。また、バンドギャップのエネルギーはカイラリティに依存するため、通信波長帯(1.3~1.6  $\mu\text{m}$ )で発光する種類が多数存在する。さらに、長さはミリメートル程にも成長できるため、作製に高度な技術とノウハウを要するナノギャップを用いずとも、ミクロン程度の長さスケールで電極を付けられ、容易に電界制御が可能である。

一方、フォトニック結晶は誘電率を周期的に変化させることにより光を制御することのできる光構造である。光共振器内でナノ材料と光を相互作用させるとき、モード体積の小さいフォトニック結晶共振器は極めて魅力的である。モード体積が小さい共振器では光のエネルギーがその狭い空間に集中し、電場強度も大きくなって相互作用が強くなるからである。また、結晶構造と欠陥構造によって共鳴波長と偏光特性が制御可能である点もメリットである。さらに、フォトニック結晶を用いれば導波路構造も作製可能であり、光集積回路への展開が考えやすい。

そこで、カーボンナノチューブ素子とフォトニック結晶光回路を組み合わせたナノスケール光集積回路への第一歩として、本研究では単層カーボンナノチューブとフォトニック結晶共振器の光結合に取り組んだ。

### 2. 研究開発内容及び成果

#### 2.1. 六角格子フォトニック結晶共振器によるミセル化カーボンナノチューブの発光増強

フォトニック結晶は誘電率が周期的に変化する構造を持たせた人工結晶であり、光に対するバンドギャップを持たせて光が進入できないようにすることが可能である。そこに、その周期性を乱す「欠陥」を導入すると、光を閉じ込める共振器を実現できる。この欠陥の形状・大きさや、元となるフォトニック結晶の周期性により共振器の共鳴波長と偏光特性が決定されるため、所望の共鳴波長を持つ共振器の設計が可能となる。本研究ではシリコン・オン・インシュレーター(SOI: silicon on insulator)基板に周期的な穴を開けてフォトニック結晶とした(図1)。

この共振器上に、ミセル化したカーボンナノチューブを

塗布し、フォトルミネッセンス測定を行った。カーボンナノチューブ同士が束になった状態や基板に接触した状態では光らないため、これを回避するために界面活性剤によりミセル化する方法を用いた。1250 nmより長波長の領域ではSiは発光しないため、この波長領域で共振器モードにおける発光が確認できれば、カーボンナノチューブとフォトニック結晶共振器が光結合しているという直接的な証拠となる。そこで、共振器の基底モードが約1400 nmとなるように格子定数  $a = 380 \text{ nm}$ 、穴の半径  $r = 100 \text{ nm}$  という設計を選んだ。作製後のフォトニック結晶にナノチューブ溶液を滴下し、スピコートを行うことで表面に塗布した。

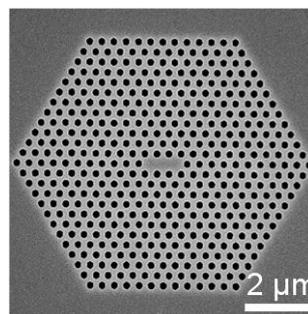


図1: フォトニック結晶共振器の電子顕微鏡像。

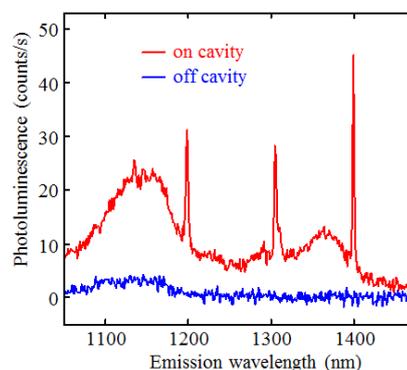


図2: 共振器部分と未加工部分におけるフォトルミネッセンススペクトル。

発光スペクトルを図2に示す。共振器上で取得したスペクトルには、設計どおり 1400 nm 付近に共振器の基底モードのピークが観測され、ナノチューブと共振器が相互作用していることを示すデータとなった。未加工部分の発光と比較し、少なくとも 50 倍程度発光が増強されていると見積もることができている。

## 2. 2. シリコン微小ディスク共振器と単一カーボンナノチューブの光結合

カーボンナノチューブの溶液を塗布する方式では、多数のナノチューブとフォトニック結晶が結合してしまう。また、ミセル化ナノチューブの発光効率は、宙に浮いている架橋カーボンナノチューブと比べるとかなり低い。そこで、単一の架橋カーボンナノチューブとフォトニック結晶共振器の光結合への前段階として、より作製の容易なシリコン微小ディスク共振器との光結合に取り組んだ。

デバイス作製では、まず電子線描画およびドライエッチングにより SOI にドーナツ状の溝を加工し、シリコン微小ディスクを形成する。次にフッ酸によるウェットエッチで埋め込み酸化膜層をアンダーカットして SiO<sub>2</sub> 支持ポストとする。次に、作製した微小ディスク共振器にカーボンナノチューブを架橋させる。再度電子線リソグラフィによりドーナツ状の溝の外側に触媒領域を描画し、スピコートおよびリフトオフにより触媒を配置した上で化学気相成長法によって単層カーボンナノチューブを合成する。実際に微小ディスク共振器に架橋したカーボンナノチューブが図3の電子顕微鏡像で確認できる。

カーボンナノチューブからの発光が、微小ディスクの周を伝搬するウィスパーリングギャラリーモード(WGM: whispering gallery mode)に結合していることを端的に示す測定はフォトルミネッセンスイメージングである。WGM に対応する波長におけるフォトルミネッセンス像が図4である。カーボンナノチューブからの発光が共振器内を周回し、その端部から漏れてくる光がリング状に見える。このカーボンナノチューブの発光は微小ディスク共振器と結合しているため、レーザーをカーボンナノチューブから数ミクロン離れたディスクの周に照射した場合でも、カーボンナノチューブ由来のフォトルミネッセンスが観測できるのである。このように単一の架橋カーボンナノチューブが微小ディスク共振器と光結合したことを示し、シリコンフォトニクスにおけるナノ発光素子としての可能性を明らかにすることができた。

## 3. 今後の研究開発成果の展開及び波及効果創出への取り組み

本研究では、ミセル化単層カーボンナノチューブのフォトニック結晶共振器による発光増強に加え、単一のナノチューブとシリコン微小ディスク共振器の光結合にも成功し、ナノスケール光集積回路への重要な一歩とすることができた。光構造との結合が確認できた今、次に目指すべきは具体的な機能を持ったナノスケール光デバイスであり、本研究の成果を踏まえて単一光子源やレーザーなどに組み込みたい。また、カーボンナノチューブの偏光特性を利用した偏光変換素子や電気駆動デバイスへも研究を展開させたい。

## 4. むすび

本研究により、単層カーボンナノチューブとフォトニック結晶共振器の光結合が可能であることを示し、シリコン上の光回路と集積可能なカーボンナノチューブ光デバイスの基礎を築くことができた。今後の集積フォトニクスの更なる微細化への貢献が期待される。

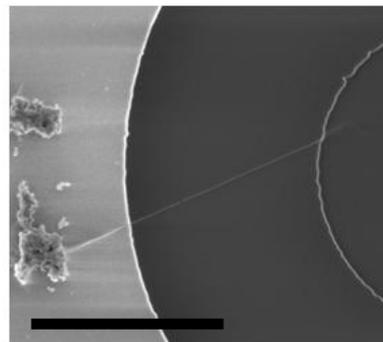


図3:微小ディスク共振器に架橋したカーボンナノチューブの電子顕微鏡像。

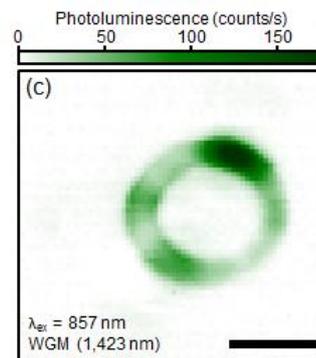


図4:微小ディスク共振器の WGM 波長におけるフォトルミネッセンスイメージ。

### 【誌上发表リスト】

- [1] S. Yasukochi, T. Murai, S. Moritsubo, T. Shimada, S. Chiashi, S. Maruyama, Y. K. Kato, "Gate-induced blueshift and quenching of photoluminescence in suspended single-walled carbon nanotubes", *Phys. Rev. B* **84**, 121409(R) (2011).
- [2] R. Watahiki, T. Shimada, P. Zhao, S. Chiashi, S. Iwamoto, Y. Arakawa, S. Maruyama, Y. K. Kato, "Enhancement of carbon nanotube photoluminescence by photonic crystal nanocavities", *Appl. Phys. Lett.* **101**, 141124 (2012).
- [3] S. Imamura, R. Watahiki, R. Miura, T. Shimada, Y. K. Kato, "Enhancement of carbon nanotube photoluminescence by photonic crystal nanocavities", *Appl. Phys. Lett.* **102**, 161102 (2013).

### 【本研究開発課題を掲載したホームページ】

<http://ykkato.t.u-tokyo.ac.jp/>