

令和元年6月4日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03835

研究課題名(和文) 指向性可変プラズモニック八木・宇田アンテナ

研究課題名(英文) Directivity variable plasmonic Yagi-Uda antenna

研究代表者

鈴木 哲 (Suzuki, Satoru)

兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・教授

研究者番号：00393744

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,100,000円

研究成果の概要(和文)：テラヘルツ帯プラズモン共振器として動作するリボンアレイを作製し、またプラズモンの共鳴周波数をイオンゲルゲートによって大きく制御することができた。同様に、相補的スプリットリング共振器を作製し、その共鳴周波数の変調に成功した。またグラフェンをパタン化する代わりにグラフェンに対してホールをドーピングする自己組織化単分子膜をパタニングした後CVDグラフェンを転写する方法も検討した。その結果キャリア濃度の濃淡の境目でプラズモンが反射され、それぞれのパタンに異なる周波数の共鳴プラズモンが発生することが明らかとなった。これらのプラズモン周波数のバックゲート電圧による制御も可能であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

グラフェンの電気的、光学的特性は電界効果(ゲート電圧の印加)により大きく変調することができる。我々はこれに着目し、グラフェンを用いた特性可変のテラヘルツ帯指向性アンテナやメタマテリアル応用を目指している。グラフェンパタン中に発生するプラズモンによるテラヘルツ光の吸収をゲート電圧で制御することができた。今後これらのデバイスの積層化により指向性を持たせたり指向性を制御することが可能になると考えられる。

研究成果の概要(英文)：A ribbon array operating as a terahertz band plasmon resonator was fabricated, and the resonance frequency of the plasmon could be largely controlled by the ion gel gate. Similarly, a complementary split ring resonator was fabricated and its resonant frequency was successfully modulated. We also examined a method of transferring CVD graphene after patterning a self-assembled monolayer that holes are doped to graphene instead of patterning graphene. As a result, it was revealed that plasmons were reflected at the boundary of the self-assembled monolayer pattern, and resonance plasmons of different frequencies were generated in each pattern. Control of these plasmon frequencies by back gate voltage was also possible.

研究分野：ナノ構造科学

キーワード：グラフェン プラズモン テラヘルツ

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

グラフェンパタンの共鳴周波数はパタンのサイズやキャリア濃度に依存するが、グラフェンのキャリア濃度はゲート電圧により変調できるため、その共鳴周波数も制御できる。これは長いキャリア寿命とともにアンテナ応用上、大きな利点である。しかしながらグラフェンのアンテナ応用の研究は、理論的には高いポテンシャルがあるにも関わらず、実験的にはほとんど進展していなかった。我々は本研究提案までに 0.1 波長程度の間隔で積層したグラフェンパタンに物理的非対称性を導入する構造を提案し、これがテラヘルツ光に対して大きな指向性（光学的異方性）を示すことをシミュレーションで明らかにしてきた。この著しい効果は各層のプラズモンが発生する電磁波が八木アンテナのような干渉効果を起こすことによって得られる。更に我々は、グラフェンパタンの積層間隔の保持と、グラフェンへのゲート電圧印加の両方をイオンゲル層を用いて実現するアイデアを思いつき、本提案に至った。

2. 研究の目的

グラフェンは高い移動度とゲート電圧による特性可変性という大きな特徴を有する。これらの特徴を活かすべく、本研究では非対称グラフェン積層パタンの導入による、①高い空間的指向性を有するテラヘルツ用プラズモンニックアンテナの実現を目指す。更に上下のグラフェンパタンをゲート電圧で個別に制御することによって、②指向性の大きさや方向、共鳴周波数などの特性が可変のアンテナを実現する。またグラフェンと金属パタンのハイブリッド構造を積層することによって、③特性可変アンテナの共鳴周波数をテラヘルツ領域から赤外、可視光にまで拡大する。

将来の特性可変フレキシブルアンテナや特性可変プリンタブルプラズモンニックデバイス、更には特性可変能動的メタマテリアルなどへの発展を視野に入れ、これらの基本となる動作原理の実証、ならびにプロセス技術を含めた要素技術の確立を目指す。

3. 研究の方法

(1) イオンゲルゲートによる共鳴周波数可変デバイスの作製

SiC 基板上に形成した 2 層グラフェンをアレイ状にパタン化し、更にこのパタンにイオンゲルによりゲート電圧を印加できるデバイスを作製する。イオンゲルゲートによりグラフェンパタン中のプラズモンの共鳴周波数を変調し、これをテラヘルツ分光スペクトル測定により観測する。

(2) 自己組織化膜によるキャリア濃度変調デバイスの作製

SiO₂/Si 基板上に自己組織化単分子膜をパタン化してこの上にグラフェンを転写することにより、グラフェンのキャリア濃度に濃淡を形成する。伝導度の高いキャリア濃度の大きな部分に優先的にプラズモンを形成することを狙う。更にバックゲートの印加により共鳴周波数を変調し、これをテラヘルツ分光スペクトル測定により観測する。

(3) グラフェンデバイスの高品質化に向けた六方晶窒化ホウ素の合成

我々は安全で簡便な六方晶窒化ホウ素の合成法として、拡散・析出法を提案してきた。六方晶窒化ホウ素を基板に用いることによってグラフェンプラズモンデバイスの更なる性能向上が期待される。六方晶窒化ホウ素の品質向上に向けて成長初期過程と成長メカニズムの解明に取り組む。

(4) 単原子層六方晶窒化ホウ素の放射光分析

本研究は当初の予定には無かったが、研究代表者の所属の異動に伴って可能となった。拡散・析出法で形成した六方晶窒化ホウ素と基板の Ni との化学結合の有無について放射光を用いた X 線吸収分光、X 線発光分光により分析を行う。なお、単原子層六方晶窒化ホウ素の X 線発光スペクトルの放出角度依存性の観測を初めて試みた。

4. 研究成果

(1) イオンゲルゲートによる共鳴周波数可変デバイスの作製

SiC 基板上に 2 層グラフェンから成るリボンパタンを形成し、更にイオンゲルゲートによりグラフェンのキャリア濃度を大幅に変調できるデバイスを作製した。またこのデバイスのテラヘルツ帯の透過および反射スペクトルを測定し、吸収スペクトルも導出した。共鳴周波数のゲートによる変調を確認した。

更にグラフェンのメタマテリアル応用を指向した相補的スプリットリング共振器アレイ構造の作製も行った（図 1）。電磁界シミュレーションにより予測された偏光方向に強く依存するテラヘルツ吸収スペクトルが観測された。また共鳴周波数のイオンゲルゲートによる変

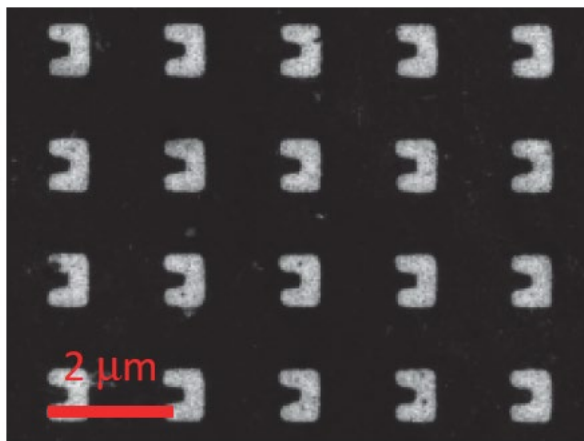


図 1 グラフェンで作製した相補的スプリットリング共振器。

調を確認した。

(2) 自己組織化膜によるキャリア濃度変調デバイスの作製

SiO₂ 基板にグラフェンに対してホールをドープする作用のある自己組織化単分子膜をリボン状にパタニングして形成した。これにグラフェンを転写することにより、ドープされたグラフェンとノンドープグラフェンのパタンが交互に形成される。このデバイスのテラヘルツスペクトルには2つの共鳴吸収が観測され、それぞれドープグラフェンパタン、ノンドープグラフェンパタンのプラズモン共鳴と考えられる。つまりプラズモンはキャリア濃度の濃淡の境で反射され、ほぼそれぞれのパタンに閉じ込められていることが明らかとなった。またバックゲート電圧の印加によりそれぞれのパタンの共鳴周波数を変調できることが明らかとなった。

(3) グラフェンデバイスの高品質化に向けた六方晶窒化ホウ素の合成

我々が開発を進めている拡散・析出法は、固相反応のみを用いて Ni 基板の裏面に B, N を含む固体原料を塗布し、高温で Ni 中を B, N 原子が拡散して表面で六方晶窒化ホウ素として析出させるものである。これは安全性の高い簡便な成長法であるが、成長のメカニズムは明らかとなっていない。今回我々は、Ni 箔上の成長初期段階の六方晶窒化ホウ素を走査電子顕微鏡やオージェ分光などで分析した。その結果、まず Ni (1 1 1) 面から縞状に成長が起こること (図 2)、六方晶窒化ホウ素ドメインの形状は Ni の面指数により異なり、よく知られた正三角形ドメインの他に、歪んだ二等辺三角形形状のドメインが形成される場合があることなどが明らかとなった。また Ni (111) 面上では、六方晶窒化ホウ素の前駆体と考えられるホウ素の縞状成長も観測された。このホウ素薄膜が後に窒化されることにより六方晶窒化ホウ素が形成されると考えられる。基板の Ni 中にホウ素は高温でわずかに固溶するが窒素は固溶しない。これらのことから、窒素は高温で形成される Ni 粒界を拡散して表面に到達するものと考えられる。

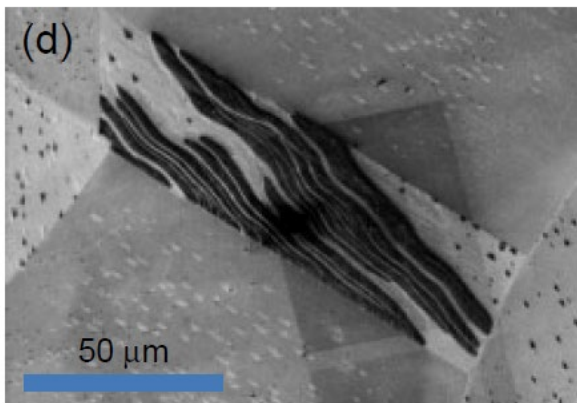


図 2 Ni(111)上での六方晶窒化ホウ素の縞状成長。

(4) 単原子層六方晶窒化ホウ素の放射光分析

これまでの Ni (1 1 1) 上の単原子層六方晶窒化ホウ素の X 線吸収分光や X 線発光分光による研究から Ni3d 軌道と六方晶窒化ホウ素の π 軌道の間には強い混成があり、六方晶窒化ホウ素は Ni 基板に化学吸着していることが明らかとなっている。しかし、拡散・析出法で作製した Ni 上単原子層六方晶窒化ホウ素の X 線吸収分光と X 線発光分光の結果は、六方晶窒化ホウ素が擬似的フリースタANDING状態にあることを示していた。我々の試料の Ni には (1 1 1) 面が含まれていなかったことから、Ni3d と六方晶窒化ホウ素の π 軌道間の混成は、対称性や格子定数が一致する Ni (1 1 1) 面に特徴的な現象であることが明らかとなった。また、単原子層六方晶窒化ホウ素の B-K および N-K (図 3) X 線発光スペクトルの放出角度依存性の観測は世界で初めてである。NewSUBARU のアンジュレータービームライン BL9A からの高強度軟 X 線と高性能 X 線検出器の利用により観測が可能となった。

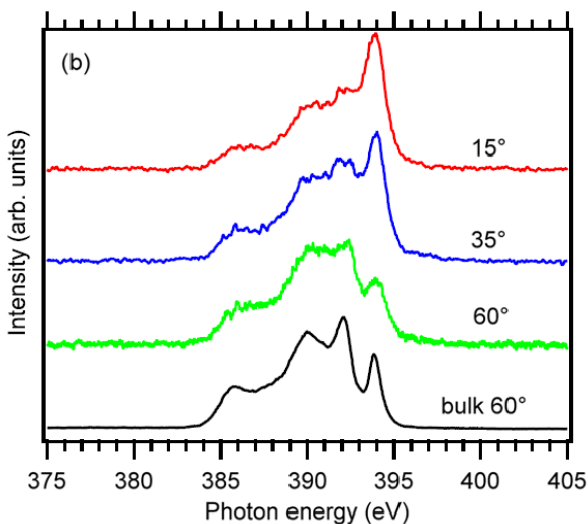


図 3 単原子層六方晶窒化ホウ素の N-K 発光スペクトル。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

1. Satoru Suzuki, Yuichi Haruyama, Masahito Niibe, Takashi Tokushima, Akinobu Yamaguchi, Yuichi Utsumi, Atsushi Ito, Ryo Kadowaki, Akane Maruta and Tadashi Abukawa,

“Quasi-free-standing monolayer hexagonal boron nitride on Ni”, Mater. Res. Express **6**, 016304-1-8 (2019).査読あり

2. Ngoc Han Tu, Makoto Takamura, Yui Ogawa, Satoru Suzuki, and Norio Kumada, “Plasmon confinement by carrier density modulation in graphene”, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 110307 (2018).査読あり
3. Satoru Suzuki, Yoshiaki Sekine, Kazuhide Kumakura, “Terahertz spectroscopy of graphene complementary split ring resonators with gate tenability”, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 095102-1-5 (2017).査読あり
4. Satoru Suzuki, Yui Ogawa, Shengnan Wang, Kazuhide Kumakura, “Initial stage of hexagonal boron nitride growth in diffusion and precipitation method”, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 06GE06-1-5 (2017).査読あり
5. Satoru Suzuki, Makoto Takamura and Hideki Yamamoto, “Transmission, reflection, and absorption spectroscopy of graphene microribbons in the terahertz region” , Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 06GF08-1-5 (2016).査読あり

〔学会発表〕（計 5 件）

門脇 良, 丸田 茜, 蛇川 匡司, 鈴木 哲、「拡散・析出法による h-BN 成長のその場光電子顕微鏡観察」、2017 年春応用物理学会。

鈴木 哲, 春山 雄一、「拡散・析出法により形成した h-BN/Ni の軟 X 線吸収分光」、2018 年春応用物理学会。

鈴木 哲, 新部 正人, 徳島 高, 春山 雄一, 山口 明啓, 内海 裕一, 伊東 篤志、「拡散・析出法により形成した h-BN/Ni の X 線発光分光」、2018 年秋応用物理学会。

新部正人、鈴木哲、徳島高、「微量ホウ素含有 HOPG および単原子層窒化ホウ素薄膜の軟 X 線発光分光」、2019 年ホウ素・ホウ化物研究会。

新部 正人・鈴木 哲・本多 信一、「単層グラフェンおよび h-BN シートの軟 X 線吸収・発光スペクトル測定」、2018 年 X 線分析討論会。

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：関根 佳明

ローマ字氏名：Sekine Yoshiaki

所属研究機関名：NTT 物性科学基礎研究所

部局名：機能物質科学研究部

職名：主任研究員

研究者番号（8桁）：70393783

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。