

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 13 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04650

研究課題名(和文) 異方性結晶を対象とする可視～真空紫外域連続偏光発光・励起分光測定系の開発

研究課題名(英文) Development of visible to vacuum ultraviolet region continuous polarized emission-excitation spectroscopic measurement system for anisotropic crystals

研究代表者

福井 一俊 (Fukui, Kazutoshi)

福井大学・学術研究院工学系部門・教授

研究者番号：80156752

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：今日、紫外線(UV)の領域でもLEDなど半導体素子への期待は大きい。しかし、UVで使う材料の光学的な性質を知るには、よりエネルギーの高い真空紫外光(VUV)まで調べることが必要である。そこで発光がVUVでも偏光特性も含めて測定ができる分光器系を構築し、理想的な紫外光源であるシンクロトロン放射光の施設で運用することを目標にした。その結果、分光器の構築にほぼ目処を付けることが出来るところまで達した。

研究成果の概要(英文)：Semiconductor devices such as LED's are promising ones for not only visible but also ultraviolet (UV) region. However, in order to know the optical properties of the material used in UV, it is necessary to investigate even higher energy region, vacuum ultraviolet light (VUV). Then, we construct a spectrometer system that can measure light including polarization characteristics even at VUV, and aimed using this system at the synchrotron radiation facility which is the ideal ultraviolet light source. As a result, the construction of the spectrometer has been reached nearly complete.

研究分野：真空紫外光学

キーワード：真空紫外光 発光分光 放射光

1. 研究開始当初の背景

ワイドバンドギャップ半導体の内、特にこれからの紫外発光デバイスに重要なⅢ-V窒化物半導体の混晶である AlN-GaN 混晶 (AlGaN) の光物性を調べようとする場合、バンド間遷移 (価電子帯から伝導帯への遷移) 領域が 6 eV を越える真空紫外 (VUV) 光領域まで続くため、可視 (VIS) から VUV までの連続光源が必要となる。そのため、シンクロトロン放射 (SR) 光が必要となる。そのため報告者は SR 光を励起光源として主に AlGaN の発光特性を測定してきた。

結晶構造がウルツ鉱構造であることに由来して AlGaN には c 軸に垂直な方向と平行な方向での誘電率の違い (一軸異方性) が生じる (これは誘電率 (屈折率) に異方性があるので複屈折と呼ばれる)。一方、 Γ 点にある基礎吸収端近傍では、結晶場とスピン-格子相互作用によって状態が 3 つに分裂する。この 3 つの状態からの光学遷移は、励起光の電場ベクトル (E) が $E \perp c$ か $E \parallel c$ かで選択則が異なり、光吸収や発光に異方性を持たせる原因となる (二色性)。近年、AlGaN 薄膜の結晶育成技術の発展に伴い、良質な薄膜結晶が安定して作製されるようになり、また c 面成長薄膜試料だけでなく、 a 面成長なども作製されるようになった。つまり、本来複屈折と二色性という二つの偏光性を考慮する必要があった AlGaN の光物性研究は、異方性を真正面に考慮することが求められる段階に到達した。

ところが、光学的測定として基礎的な発光分光においても、VUV 領域は真空を必要とするため一般的ではなく、加えて偏光も扱う場合市販の装置はない。また SR 光施設での使用を前提とすると、それなりの準備だてが必要である。

2. 研究の目的

本研究の第一の目的は上記背景から SR という理想的な VIS ~ VUV 連続励起光源と、VIS ~ VUV 発光用の偏光分光系を組み合わせる発光用偏光分光システムを作り上げることである。次に第二として、AlGaN の励起子発光を偏光込みで捉えることを目的とし、最後の第三として、今後発展が期待されているダイヤモンドなどの他のワイドバンドギャップ物質にこの測定系はそのまま使えるため、全国共同ビームラインで共同利用出来ることを目指し、VIS ~ VUV 発光の分野へ貢献することである。

3. 研究の方法

上述の第一の目的を実現する場合の最大の難題は、VUV 領域での偏光の取り出しである。そこで、本課題申請時は、SR 光施設を分子科学研究所 UVSOR BL7B に定め、実現難易度から以下の 3 段階でシステムをアップグレードしていくことを計画した。(1) 超高真空と低真空の分離を兼ねた LiF レン

ズ系 (含グラントムソンプリズム (GTP) 型偏光子) を自作し、市販の VUV 分光器と組合せた VIS ~ VUV 発光用分光器 でシステムを構成、(2) 市販 GTP 型偏光子を自作の反射型回転偏光子に交換することで市販 GTP では測定不可能の VUV 領域に対応、(3) LiF レンズ系をミラー集光系に交換することで、分光系全体を VUV 領域に対応させる。そして本申請では (1) の実現と (2) のための自作の反射型回転偏光子の設計製作までを計画した。しかし、主に資金的な問題から市販の分光器の購入が不可能となったため、第一の目的を実現する方法をかねてより構想のみ行っていた超高真空フランジに作り付けた VIS ~ VUV 分光器の自作に計画を変更した。この構想は本目的に適していたが設計は全く行っていなかったため、(1) BL7B の真空槽内に組み込み可能な光学系を光源追跡法のシミュレーションによって検討 (基本設計)。(2) ミラーや回折格子のハウジング、調整機能や架台、CCD 検出器を含んでも真空槽内の限られた空間に設置可能かを CAD 上で検討 (実装設計) (3) 検討した分光系に合わせた反射型回転偏光子の設計 (と試作) に変更した。

人員体制としては平成 27 年度は B4 1 名 (A)、平成 28 年度は M1 (A), B4 (B)、29 年度は M2 (A), M1 (B), B4 (C) と協力して行ったが、超高真空中での回転や摺動など設計にノウハウが必要なため、分子科学研究所 UVSOR 施設、及び福井大学先端科学技術育成センターの技術職員の多大な協力を頂いた。

4. 研究成果

4-1. 分光器の基本設計 (平成 27 年度)

VUV は大気中を伝播しないため、試料が装着される真空槽 (試料槽) 内は超高真空となっている。また、VUV では透過型の光学素子が使えないため、必然的に試料槽内で分光を行う反射型分光器となる。本分光器設置の対象となる BL7B の試料槽は、ICF253 六面体構造であるため、設計する分光器は ICF253 規格の超高真空フランジに取り付けられ、かつフランジとともに真空槽に挿入できる構成にする必要がある。そこで、H27 年度は以下に示す主な仕様を設定し、これら仕様を満たす分光系が設計可能かを検討することにした。

主な仕様は (1) 波長掃引範囲 150 ~ 800 nm (2) F 値 3.4 以下 (3) 分解能 2.5 nm 以下 (4) 市販の回折格子が利用出来ること (5) 真空対応 CCD を用いたマルチチャンネル分光測定が可能なること (6) 購入予定のオーダーメイドの研磨鏡の曲率精度は実現可能な 1 % と仮定する (7) 超高真空仕様 (但しペーキング温度は摂氏 50 度以下) (8) 最終的に直径 200 mm × 長さ 250 mm の円筒内に収まること (9) ICF253 フランジに分光器全体が取り付けられていること (10) 本分光

器にとって発光点である試料を取り付ける BL7B の標準液体 He フロータイプクライオスタットと干渉しないこととした。本分光器の光学配置を設計する際、取り込み角が大きくなり近軸近似ができないため、設計手段としては光線追跡法を用いた。光線追跡法とは、設定した光源から幾何光学の法則にしたがう多数の光線を飛ばし、その光線が光学素子によって反射していく様子をコンピュータプログラムで計算することにより、最終的な検出面での光線分布を求め光学系の評価・改良を行う設計手法である。本設計では光線追跡プログラム SHADOW3 を使用した。

その結果、発光点（試料の発光点）を入口スリットに集光する前置集光系を設置する空間は確保できないこと、また F 値の制約から反射率による損失を抑えるため光学素子を少なくする必要があることから、試料の発光点を入口スリットとみなすことで、分解能より明るさを優先した入口スリットなしの光学系を採用した。また、VUV 領域をカバーし光学素子が少なく駆動機構の簡単な分光器としては瀬谷・波岡型が最もよい光学系であるが、原理上必要な偏角約 64 度のため空間的制約を満たせない結果となった。そのため、VUV 領域での反射率を落とすことになるが、可視分光器でよく使われる直入射型の Czerny-Turner 型を採用することで円筒状の空間制約を満足させた。しかし、それでも空間制約から分解能を犠牲にして異なる曲率半径を持つ球面鏡 2 枚を用いた変則型の配置を採用した。但し、Czerny-Turner 型は平面回折格子を使用するため、市販の回折格子の選定は容易となった。光学配置を図

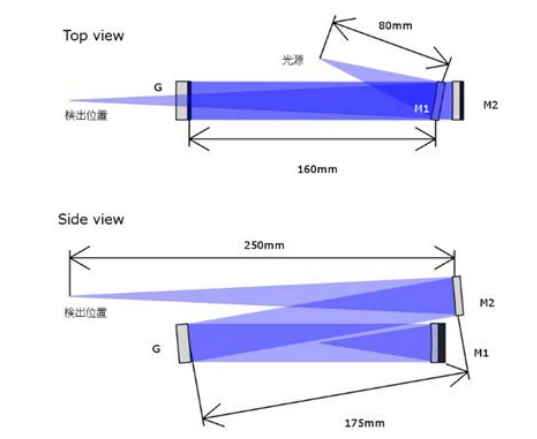


図 1 分光器の光学配置

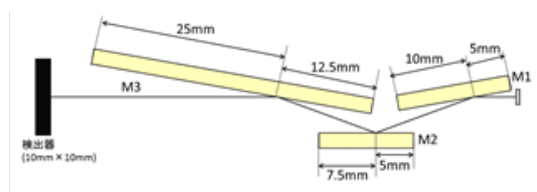


図 2 3 回反射型偏光子の光学配置

1 に示す。図中の青い部分は光の発散・集光の様子を示している。光源は試料槽の中心（試料設置位置）とし、放射光の入射方向に光学素子を配置する構成とした。M1, M2 は球面鏡、G は平面回折格子である。なお、この段階では基本設計だが、回折格子だけは資金の問題で特注は不可能なため、特定の市販品を前提にした。なお、3 つの光学素子は全て同一面上に配置されている。また、検出位置には CCD を直接設置するが、前置光学系を省略したことで、偏光子を入口側に設置できなくなったため、偏光測定の場合は検出位置に出口スリット、偏光子および半導体フォトダイオード検出器を一体とした偏光検出ユニットを設置できる構成にすることとした。

4-2. 反射型偏光子の基本設計 (H28 年度)

以上より出口スリット位置におけるビーム強度分布がわかったため、まず偏光検出ユニットの基本設計を行った。

VUV 領域では光は物質を透過することができないため、透過型の偏光板や偏光子を使うことができない。そのため、物質の境界面に光が斜めに入射される場合の光の偏光成分による反射率の違いを利用した反射型の偏光子を用いることになる。しかし、反射鏡 1 枚だけでは偏光別の反射率の差が十分でないこと、また偏光子は光軸周りに回転することになるので、出射光が回転とともに動かないよう入射光軸と出射光軸を同一にしなければならない。そのため、反射鏡は 3 枚もしくは 4 枚必要である。そこで、(1) 偏光度は ~9 eV の範囲で 0.9 以上、~23 eV の範囲で 0.7 以上 (2) 半導体検出器位置でのビームの大きさは 10 mm × 10 mm 以下であること (使用するフォトダイオードの受光面の大きさ) (3) 最終的な大きさが光軸に垂直断面で 70 mmφ を越えないこと (ICF114 単管内部に収納可能なこと) の条件を満たす光学設計を光源追跡法を用いて行った。図 2 に最終的な光学配置とミラー形状を示す。斜入射であるほど偏光特性は高くなり、反射率も上がり、また垂直断面の大きさも小さくできる。しかし、この偏光子の入口 (図 2 右端) が出口スリット (集光) 位置であり、光は左に進むにつれ広がることから、斜入射にする

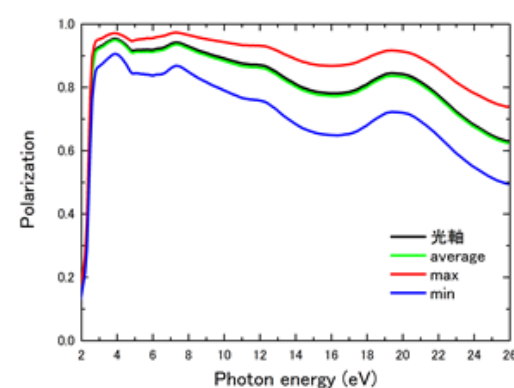


図 3 3 回反射型偏光子の偏光特性

と必要なミラーの大きさが光軸方向に長くなる→光路長が長くなり光がより広がる→後続のミラーがより長くなる という結果になり、斜入射になればなるほど実現不可能の大きさになってしまう。ただし、原理上 M1, M2 の入射角のみ浅くした 80, 70, 80 度の 3 枚構成の偏光子とした。この構成での偏光度は図 3 に示すように上述の設計仕様を満たしており、また、ビームの大きさは 9 mm × 9 mm、全体の高さも回転機構なしで 30 mmφ 以内に収めることができた。なお、ミラーのコーティングは VUV で反射率が高い Au としている。

4-3. 分光器の実装 (H28-H29 年度)

H27 年度の分光器の基本設計を受けて、図 1 の M1, M2 及び G をホールドし、必要な光軸調整が可能なミラーマウントや波長掃引システム、それらを支える架台などを含めた具体的な実装設計を行った。その結果、M1 と M2 のミラーマウント間に干渉が避けら

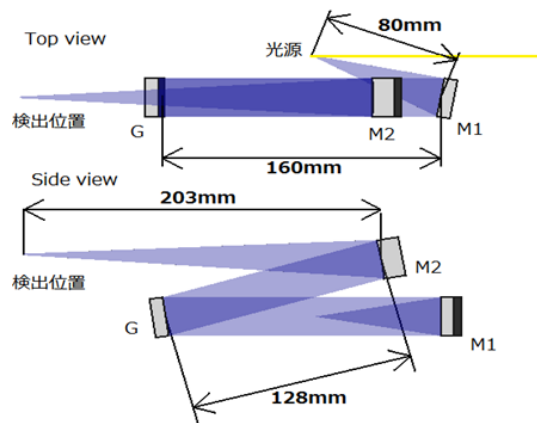


図 4 分光器の最終光学配置

表 1 光学素子パラメータ

	入射角 (deg)	曲率半径 (mm)	大きさ (mm)	刻線数 (/mm)
M1	10	160	25×25	
G	18(偏角)	∞(平面)	25×25	1200
M2	9	408	25×25	

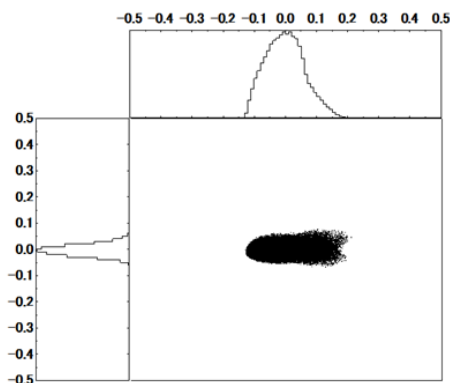


図 5 受光面上での強度分布(200 nm の場合)

れないことが判明した。そこで、再度の光源追跡シミュレーションを行い、M2 を下流側に移動させた新たな光学配置で初期の仕様を満たしつつ、実装も可能であることを確認した。最終的な光学配置と各光学素子のパラメータ、CCD 受光面での単一波長 (200 nm)

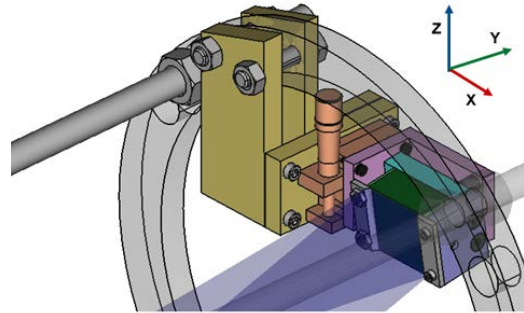


図 6 M2 付近の外観

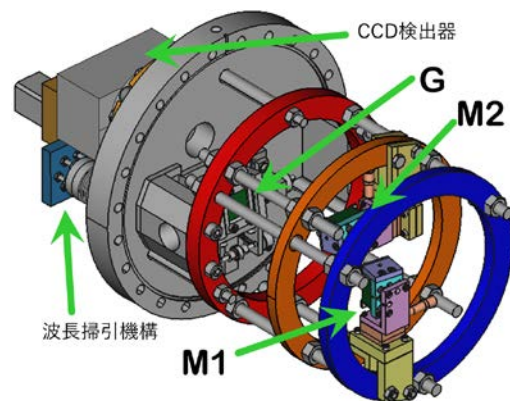


図 7 分光系全体のイメージ



図 8 組立後の分光系(真空側)

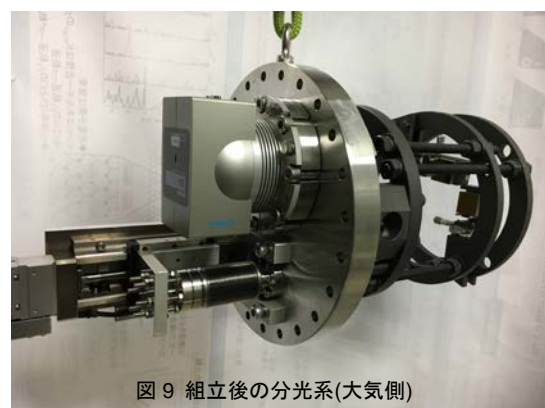


図 9 組立後の分光系(大気側)

の強度分布を図4、表1、図5に示す。前述したようにGは特定の市販品を前提に設計したが、M1、M2の2つの球面ミラーは特注した。但し、指定の曲率は研磨・検証とも容易である。また、100～800nmの波長で図5と同様な計算を行った結果、単一波長の受光面での波長広がりほどの波長においても2.3nm以下となった。

図6に球面鏡(M2)付近の外観を示す。色のついた部分がミラーマウントで、球面鏡に対しY軸回りの回転を除いた5軸で調整が可能となっている。Z軸、X軸回りの回転角、移動量はそれぞれ20, 15度, ±12, ±3mmである。2つの球面鏡M1とM2にそれぞれ±1%の曲率半径誤差があった場合を想定し光線追跡を行った結果、全ての誤差の組合せの場合においても、M2の位置を光軸方向に約±6.5mm移動、入射角を約±0.14度修正することによってミラーマウントの可動範囲内で誤差に対応することができる。波長掃引は、回折格子の回転運動であるが、その機構が複雑になるため、直線運動を回転運動に変換する単純なサインバー機構を採用した。直線移動距離22mmで回折格子の回転角30度を実現しており、波長範囲としては-10～800nmを機械的な分解能0.07nmで掃引可能となった。

BL7Bの試料槽に挿入された本分光系全体のイメージを図7に示す。ICF253フランジ(図左側の銀色の円盤状の部分)から立ち上がった3本の支柱で支えられる赤色リングを分光系のベースとしている。G及びサインバー機構はこのリングに直接固定されており、ICF253フランジとは独立している。M1、M2はそれぞれ青色と橙色のリングにミラーマウントごと固定されている。2つのリングはそれぞれ独立に赤色リングから支持されており、これにより独立に光学調整が可能になっている。実際に組上げた分光器の写真を図8, 9に示す。ステンレス支柱以外の部分はほぼアルミ製だが、散乱光防止のため可能な限りグラファイト粉末で黒く塗布している。図8は都合上、図7の反対側面側から撮影しているが、M1(左)とG(中央)が見えている。一方、図9は大気側の部分を撮影しており、ICF114ポートに取り付けられたCCD検出器と、ICF34ポートに取り付けられたベローとステッピングモーター駆動の1軸リニアステージから構成された波長掃引機構、及びM1、M2のミラー面が見れる。

以上、分光器の組立及び粗い調整は完了しているが、SR施設でのビームタイムには間に合わなかったため、次年度で分光器の最終調整と発光測定を行う予定である。これにより、修正後の計画の大部分を達成することになる。

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 1 件)

- ① N. Tatemizo, Y. Miura, K. Nishio, S. Hirata, F. Sawa, K. Fukui, T. Isshiki and S. Imada, Band structure and photoconductivity of blue-green light absorbing AlTiN films, J. Mater. Chem. A, 査読有、5、2017、20824. (DOI:10.1039/C7TA03936K)

[学会発表] (計 1 件)

- ① 福井一俊、那須勇樹、藤井佑輔、山本晃司、齋藤輝文、可視-真空紫外エリプソメータによるシンクロトロン放射光ビームラインのストークス・パラメータ測定発、第64回応用物理学会春季学術講演会、2017年

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等 なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福井 一俊 (FUKUI, Kazutoshi)

福井大学・学術研究院工学系部門・教授

研究者番号： 80156752