

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 19 日現在

機関番号：14101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600090

研究課題名(和文) 深紫外領域における窒化物半導体上の局在表面プラズモン共鳴現象に関する研究

研究課題名(英文) Study on localized surface plasmon resonance on III-nitride semiconductors in deep-UV region

研究代表者

平松 和政 (Hiramatsu, Kazumasa)

三重大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：50165205

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、窒化物半導体と表面プラズモン共鳴現象とを融合し、深紫外領域における新規の光物性を見出し、光デバイスを開拓することである。この目的に対し、可視領域での表面プラズモン共鳴の検討を行い、深紫外領域での表面プラズモン共鳴に関する知見を得ると共に、基板となるAlN結晶作製を行った。

GaP基板とAuを組み合わせた表面プラズモンセンサーを作製し、屈折率が1.55の2,4-ジクロロトルエンの検出に成功した。また、2層型ワイヤーグリッド偏光子において、表面プラズモン共鳴による異常透過現象を見いだした。更に、溝加工を施したAlN基板にHVPE法で結晶成長を行い、高品質なAlN層を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：In this study, discovering new optical properties in deep-UV region and creating new optical devices are realizing by combination of III-nitride semiconductors and surface plasmon resonance. For this purpose, the study of surface plasmon resonance in visible region and fabricating high quality AlN substrate are carried out.

The surface plasmon sensors by using GaP substrate and Au thin film are fabricated and can detect 2,4-dichlorotoluene ($n=1.55$). Also the extraordinary transmission due to surface plasmon resonance is discovered in the double-layer wire grid polarizers.

Furthermore, the high quality AlN layer can be obtained by HVPE method using trench patterned substrate. From these results, the knowledges and techniques on surface plasmon resonance in deep-UV region can be obtained.

研究分野：半導体工学、結晶成長、オプトエレクトロニクス

キーワード：窒化物半導体 深紫外領域 表面プラズモン 表面プラズモンセンサー 2層型ワイヤーグリッド偏光子
窒化アルミニウム

1. 研究開始当初の背景

<窒化物半導体の特長> 紫外から可視、赤外の発光材料で、照明用 LED、高精細ディスプレイ用のキー半導体材料である。さらにここ数年、紫外発光領域への高効率発光デバイスへの開発が活発に進められている。

<局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) の特長> ナノ金属粒子表面の微小空間に増強された電磁波を閉じ込めることができるため、太陽電池や発光素子の高効率化、蛍光増強、増強ラマンセンサに活用できる。さらに、ナノ金属粒子の形態でプラズマ振動数を制御できるため、高感度バイオセンサに活用できる。

<研究の萌芽的ビジョン> そこで、両者の特長を融合し、優れた発光特性を有する窒化物半導体上で、深紫外領域において LSPR を新たに確認し、新規光物性、その応用光デバイスを目指す。

<研究動向> 紫外領域での LSPR の発露には、数 10nm 以下の Al 粒子の形成と配列制御が必要不可欠であることが指摘された (2012 応物秋、阪大河田等)。しかし深紫外領域において窒化物半導体上で LSPR を確認した例は、国内外において未だない。

<当研究グループの特長> 窒化物半導体の結晶成長に関して 20 数年の豊富な技術と知的財産を有する。窒化物半導体の結晶成長過程を精密に制御することにより、困難とされるナノ金属粒子の配列構造を実現し、局在表面プラズモン共鳴現象を確認する。

2. 研究の目的

本研究は、紫外、可視、赤外で優れた発光材料の窒化物半導体と、ナノ金属粒子表面の微小空間内に増強電磁波を閉じ込め可能な局在表面プラズモン共鳴現象 (LSPR) とを融合し、深紫外領域における新規の光物性を見出し、及び光デバイスを開拓することである。本研究の目的は、

AlN ステップ制御エピタキシーによりステップ端に 10 - 30 nm の Al 粒子を形成すること、

窒化物半導体上で深紫外光 (波長 250nm 以下) の LSPR をはじめて実証すること、

深紫外領域での新規光デバイスの可能性を探索し、次期の開発研究につなげることである。

本研究で実施される、深紫外領域でのプラズモン共鳴現象の発露は学問的に画期的であること、さらにこの成果は窒化物半導体光デバイスの機能を格段に向上させることが期待できる。

3. 研究の方法

上記目的に対して、本研究では可視領域における表面プラズモン共鳴の検討を行い、深紫外領域における共鳴プラズモン共鳴に関する知見を得ると共に、基板となる高品質 AlN 結晶作製を行った。

4. 研究成果

<可視領域における表面プラズモンセンサー>

可視光領域 (波長 635nm) での表面プラズモン現象を確かめるため、GaP 基板上に堆積した Au 表面に付着した媒質を検出する表面プラズモンセンサーと、金属ナノスリットによる異常透過現象を利用した 2 層型ワイヤーグリッド偏光子の作製と評価を行なった。GaP 基板上に堆積した Au 薄膜による表面プラズモンセンサーの作製に関しては、図 1 に示すように従来からあるガラスプリズムによるクレッチマン配置では測定が困難であった屈折率 1.55 の 2,4-ジクロロトルエンの検出に成功した。

次に 1 次元回折格子構造を用いて表面プラズモンセンサーを作製し、図 2 に示すように屈折率が 1.65 の 1-プロモナフタレンが検出できることを明らかにした。

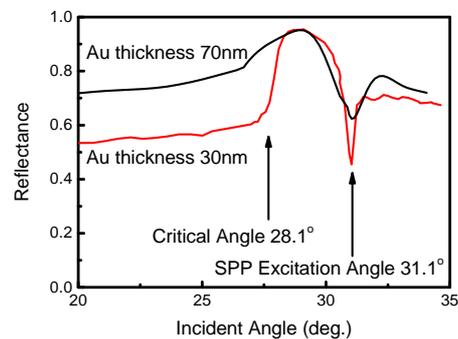


図 1 GaP と Au を用いた表面プラズモンセンサーによる 2,4-ジクロロトルエンの検出

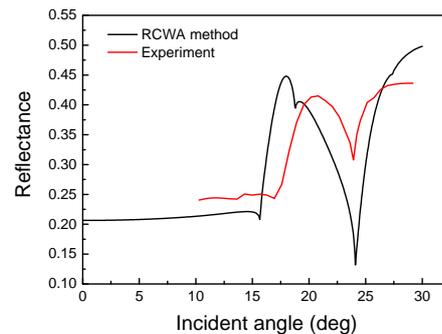


図 2 ガラス基板と Au 回折格子を用いた表面プラズモンセンサーによる 1-プロモナフタレンの検出

<2 層型ワイヤーグリッド偏光子における表面プラズモン共鳴による異常透過現象>

2 層型ワイヤーグリッド偏光子の作製において、図 3 に示すように周期を変えると TM 偏光の透過率のピークが変化することが明らかになった。このことについてシミュレーションを行ったところ、図 4 に示すように適切な周期、レジスト膜厚、Au 膜厚を設計することによりワイヤーグリッド側面から入った光による表面プラズモン共鳴により、ある

特定の角度で異常透過現象が発生し、TM 偏光の透過率が高くなり、消光比 30dB 程度の偏光特性を得ることができた。

次にこの2層型ワイヤーグリッド構造を応用し、2次元金属回折格子構造を作製し、構造によって反射率を制御できることを明らかにした。

以上の結果を踏まえ、将来 Ag, Al, In 等の金属を用いることで紫外線領域での表面のプラズモン共鳴を用いた光学デバイス作製の指針を得ることができた。

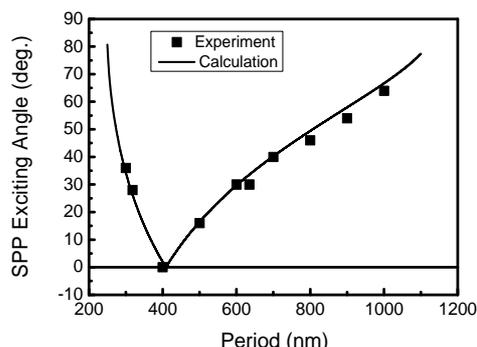


図3 2層型ワイヤーグリッド偏光子における周期とTM偏光透過率のピーク角度（表面プラズモン共鳴角度）の関係

<高品質AIN結晶の作製>

昇華法 AIN ウエハを<1-100>方向にテラス幅約 5 μ m、溝幅約 5 μ m、溝深さ約 10 μ m で周期溝加工を施した基板を用いて、HVPE 法により AIN 成長を行った。合体後膜厚は約 6 μ m で、テラス部の横方向成長によりポイドが形成されていた。また、溝加工を施したことによりクラックフリーな AIN 膜を得ることができた。AFM 像から表面平坦性が良好な原子ステップが観測され、転位密度の低減が示唆される。図5に低温 CL 波長分布像と CL スペクトル

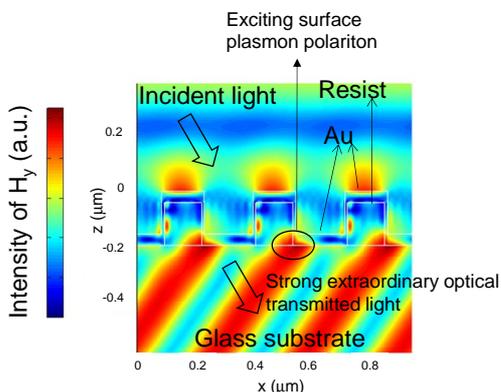


図4 2層型ワイヤーグリッド偏光子における磁界分布と異常透過に関する考察

ルを示す。断面 CL 測定(10K)から、206.9nm のバンド端付近での発光が支配的で HVPE 層では均一な発光であった。

この結果より、深紫外領域でのプラズモン結晶を作製するための高品質基板を得る見通しをえることができた。

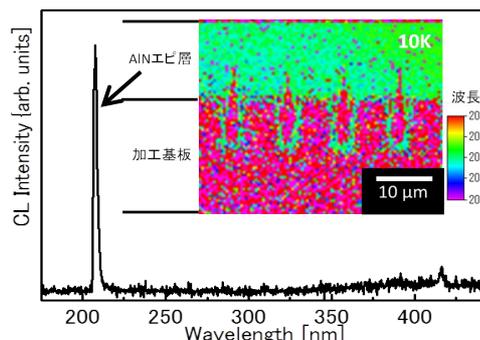


図5 CL 波長分布像と CL スペクトル

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 8 件)

A. Motogaito, S. Nakamura, J. Miyazaki, H. Miyake and K. Hiramatsu, “Using surface-plasmon polariton at the GaP-Au interface in order to detect chemical species in highrefractive-index media”, Optics Communications, Vol.341, pp.64-68 (2015) 査読あり.
DOI: 10.1016/j.optcom.2014.12.006

A. Motogaito, Y. Morishita, H. Miyake and K. Hiramatsu, “Polarization Property of a Double-layer Wire Grid Polarizer and the Mechanism of Transmission”, Proceedings of ECIO-MOC 2014, P034 (2014) 査読あり.
DOI: なし

A. Motogaito, S. Nakamura, J. Miyazaki, H. Miyake and K. Hiramatsu, “Excitation of Surface Plasmon Polariton at the GaP – Au Interface in a High-Refractive-Index Medium”, Proceedings of ECIO-MOC 2014, P035 (2014) 査読あり.
DOI: なし

M. Katagiri, H. Fang, H. Miyake, K. Hiramatsu, H. Oku, H. Asanuma and K. Kawamura, “MOVPE growth of GaN on Si substrate with 3C-SiC buffer layer”, Japanese Journal of

Applied Physics, 53, 05FL09 (2014) 査読あり.
DOI: 10.7567/JJAP.53.05FL09

S. Kitagawa, H. Miyake and K. Hiramatsu, “High-quality AlN growth on 6H-SiC substrate using three dimensional nucleation by low-pressure hydride vapor phase epitaxy”, Japanese Journal of Applied Physics, 53, 05FL03 (2014) 査読あり.
DOI: 10.7567/JJAP.53.05FL03

S. Nakamura, A. Motogaito, H. Miyake and K. Hiramatsu, “Study on the Chemical Sensor Using Excitation of the Surface Plasmon Polariton with the GaP-Au Contact”, Proc. JSAP-OSA Symposia 2013, JSAP-OSA-036 (2013) 査読あり.
DOI: なし

S. Nakamura, A. Motogaito, H. Miyake, and K. Hiramatsu, “The Excitation of the Surface Plasmon Polariton with the GaP-Au Contact and Application to Chemical Sensors”, Technical digest on 2013 Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim, TuPI-14 (2013) 査読あり.
DOI: 10.1109/CLEOPR.2013.6600399

N. Goriki, H. Miyake, K. Hiramatsu, T. Akiyama, T. Ito, and O. Eryu, “AlN Grown on a- and n-Plane Sapphire Substrates: by Low-Pressure Hydride Vapor Phase Epitaxy”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol.52, No.08, 08JB31 (2013) 査読あり.
DOI: 10.7567/JJAP.52.08JB31

〔学会発表〕(計 31 件)

水戸慎也、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“一次元金属回折格子を用いた伝搬型表面プラズモンセンサーによる高屈折率媒質の検出”, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会、平成 27 年 3 月 13 日、東海大学湘南キャンパス(神奈川県平塚市)

鈴木周平、林家弘、三宅秀人、平松和政、福山博之、“MOVPE 法による AlN 成長における c 面サファイア微傾斜角度の影響”, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会、平成 27 年 3 月 12 日、東海大学湘南キャンパス(神奈川県平塚市)

鬼頭壮宜、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“光学フィルタへの応用に向けた金属 2 次元回折格子構造の作製と光学特性

評価”, 電子情報通信学会光エレクトロニクス研究会、平成 26 年 12 月 18 日、機械振興会館(東京都港区)

鬼頭壮宜、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“光学フィルタへの応用に向けた金属 2 次元回折格子構造の作製と可視光及び赤外光の透過・反射制御”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、平成 26 年 9 月 18 日、北海道大学(北海道札幌市)

元垣内敦司、森下雄太、三宅秀人、平松和政、“2 層型ワイヤグリッド偏光子の偏光特性と表面プラズモン共鳴”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、平成 26 年 9 月 18 日、北海道大学(北海道札幌市)

鈴木周平、三宅秀人、平松和政、福山博之、“サファイア上 AlN 緩衝層の N₂-CO アニールと MOVPE 法による高温成長”, 第 6 回窒化物半導体結晶成長講演会、平成 26 年 7 月 26 日、名城大学(愛知県名古屋市)

A. Motogaito, S. Nakamura, J. Miyazaki, H. Miyake and K. Hiramatsu, “Excitation of Surface Plasmon Polariton at the GaP-Au Interface in a High-Refractive-Index Medium”, 17th European Conference on Integrated Optics and 20th Microoptics Conference, 平成 26 年 6 月 25 日、Nice (France)

A. Motogaito, Y. Morishita, H. Miyake and K. Hiramatsu, “Polarization Property of a Double-layer Wire Grid Polarizer and the Mechanism of Transmission”, 17th European Conference on Integrated Optics and 20th Microoptics Conference, 平成 26 年 6 月 25 日、Nice (France)

渡邊祥順、三宅秀人、平松和政、岩崎洋介、“AlN 基板の表面処理とホモエピタキシャル成長”, 電子情報通信学会電子デバイス研究会、平成 26 年 5 月 29 日、名古屋大学(愛知県名古屋市)

Y. Watanabe, H. Miyake, K. Hiramatsu, Y. Iwasaki and S. Nagata, “HVPE Homoepitaxy on Freestanding AlN Substrate with Trench Pattern”, 5th International Symposium on Growth of III-Nitrides, 平成 26 年 5 月 19 日、Atlanta (USA)

元垣内敦司、中村将平、宮崎 潤、三宅秀人、平松和政、“GaPとAuの接触を用いた伝搬型表面プラズモンセンサーによる高屈折率液体媒質の検出”、第61回応用物理学会春季学術講演会、平成26年3月17日、青山学院大学淵野辺キャンパス（神奈川県相模原市）

森下 雄太、元垣内 敦司、三宅 秀人、平松和政、“二層型ワイヤグリッド偏光子の特性周期及び高さ依存性”、日本光学会年次学術講演会、平成25年11月14日、奈良県新公会堂（奈良県奈良市）

S. Nakamura, A. Motogaito, H. Miyake and K. Hiramatsu, “Study on the Chemical Sensor Using Excitation of the Surface Plasmon Polariton with the GaP-Au Contact”, JSAP-OSA Symposia 2013, 平成25年9月18日、同志社大学京田辺キャンパス（京都府京田辺市）

S. Nakamura, A. Motogaito, H. Miyake, and K. Hiramatsu, “The Excitation of the Surface Plasmon Polariton with the GaP-Au Contact and Application to Chemical Sensors”, 2013 Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim, 平成25年7月2日、国立京都国際会館（京都府京都市）

西尾剛、三宅秀人、平松和政、徳本有紀、米永一郎、“AINのMOVPE成長におけるSi取り込み量の転位密度依存性”、第5回窒化物半導体結晶成長講演会、平成6月21日、大阪大学吹田キャンパス（大阪府吹田市）

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1件)

名称：光学装置の製造方法及び光学装置
発明者：元垣内敦司、平松和政、森下雄太
権利者：国立大学法人三重大学
種類：特許
番号：特願 2014-024746
出願年月日：2014年02月12日
国内外の別：国内

取得状況(計 0件)

〔その他〕

ホームページ等
三重大学大学院工学研究科オプトエレクト

ロニクス研究室

<http://www.opt.elec.mie-u.ac.jp/>

三重大学全学シーズ集

<http://www.crc.mie-u.ac.jp/seeds/contents/detail.php?mid=20100108-113310&t=r&rl=>

三重大学極限ナノエレクトロニクスセンター

<http://www.cute.rc.mie-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

平松 和政 (HIRAMATSU, Kazumasa)
三重大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：50165205

(2) 研究分担者

三宅 秀人 (MIYAKE, Hideto)
三重大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：70209881

元垣内 敦司 (MOTOGAITO, Atsushi)
三重大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：00303751

(3) 連携研究者

()

研究者番号：