

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 17 日現在

機関番号：14101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26390082

研究課題名(和文) GaNの光学異方性を用いた金属ワイヤーグリッド伝搬型表面プラズモンセンサー

研究課題名(英文) The metal wire grid surface plasmon sensor by using the optical anisotropy of GaN

研究代表者

元垣内 敦司 (Motogaito, Atsushi)

三重大学・工学研究科・准教授

研究者番号：00303751

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)：本研究では、光学異方性を有するGaNと金属ワイヤーグリッドを用いて屈折率が1.5以上の高屈折率媒質の高感度検出が可能な伝搬型表面プラズモンセンサーの実現を目指すための基礎検討として、GaP基板上のAu薄膜及びガラス基板上のAu1次元回折格子を用いた表面プラズモンセンサーの作製と特性評価を行った。

ガラス基板上のAu1次元回折格子を用いた表面プラズモンセンサーを用いることで、屈折率が1.700までの媒質の検出ができることを明らかにした。更に感度とFOM値の改善を図ることで、耐薬品性に優れたGaN基板を用いた表面プラズモンセンサーの実現が可能になることを示す。

研究成果の概要(英文)：In this study, as a basic study aiming at realization of a propagation type surface plasmon sensor capable of high sensitivity detection of high refractive index medium with a refractive index of 1.5 or more by using optical anisotropic GaN and metal wire grid structure, We fabricated and characterized the surface plasmon sensor using the Au thin film on the GaP substrate and the Au one dimensional diffraction grating on the glass substrate.

It was clarified that the medium with the refractive index up to 1.700 can be detected by using the surface plasmon sensor using Au one dimensional diffraction grating on the glass substrate. We also show that by improving sensitivity and FOM value, it becomes possible to realize a surface plasmon sensor using a GaN substrate excellent in chemical resistance.

研究分野：ナノ光学、照明工学、半導体工学

キーワード：表面プラズモン ワイヤグリッド構造 表面プラズモンセンサー 光学異方性

1. 研究開始当初の背景

(1) 伝搬型表面プラズモンセンサーの必要性
地球上で重金属化合物、毒劇物、放射線性物質などによる大気・土壌・水質汚染や健康被害は絶えず発生している。有害物質による公害・健康被害のない社会を築くためには、有害物質の有無、排出量を計測し、日常生活にフィードバックすることが必要である。有害物質の計測には、有害物質を少量の試料で安全に計測できる、耐久性に優れたセンサーを用いること、ppm オーダーの微量な有害物質の検出を可能にすることが要求される。本研究課題では、金属表面での電子の疎密波が共鳴することで発現される表面プラズモン共鳴を検出原理とする伝搬型表面プラズモンセンサーでこれらの問題を解決する。

(2) 伝搬型表面プラズモンセンサーの特徴と課題

表面プラズモンセンサーが利用される理由は、被測定媒質の濃度に依存して、金属薄膜周辺で屈折率変化が生じるためである。また、従来の生化学的検査方法に比べ、少ない試薬量で、標準試料を用いないで、簡便に高感度測定が可能なセンサーである。典型的な伝搬型表面プラズモンセンサーはクレッチマン配置を利用し、レーザー光を照射し、金属薄膜周辺で生じる屈折率変化をプラズマ振動の共鳴角変化として測定する。しかし、一般にはガラスプリズム(屈折率 1.5)を利用しているため、屈折率が 1.5 を超える毒性を含んだ重金属やハロゲン化合物などを検出できないことが問題である。

(3) GaN 基板を用いた新規伝搬型表面プラズモンセンサーの課題

本研究では、伝搬型表面プラズモンを利用して、屈折率が 1.5 以上の媒質を容易に検出するために、新たに GaP(屈折率 3.3)や GaN(屈折率 2.4)などの半導体材料を利用して伝搬型表面プラズモンセンサーを実現する。

GaN は GaP より堅牢で、化学的に安定なので、センサーの耐久性向上が期待できる。しかも GaN は、結晶の歪みに伴う結晶内部の圧電分極や自発分極により、面方位による光学異方性があるので、GaN の面方位で、接触している金属のプラズマ振動の制御が可能であると考えられる。これは等方的である GaP やガラスにはない GaN 独特の特性である。そこで本研究では、図 2 に示す面方位の異なる GaN 基板上に金属ワイヤーグリッドを作製し、GaN の光学異方性と GaN の面方位にあわせて金属ワイヤーグリッドを面内回転させて、電子のプラズマ振動を詳細に制御し、最も強く SPP が励起できる条件を調べて、センサーの高感度化を実現する。これにより、光学異方性がない GaP を用いたセンサーよりも更なる高感度化が期待できる。しかし、GaN の光学異方性及び金属ワイヤーグリッ

ドの面内方向と SPP 励起の関係については、学術的に明らかにされていないので、これを明らかにすることは、新規性があり、学術的に研究する価値がある。

(4) 本研究に関する国内外の研究の現状
金属回折格子を用いた表面プラズモンセンサーは Homola らによる報告がある(Sens. Actuators B (2005))。また、金属回折格子の面内回転による高次の回折を利用し、表面プラズモン共鳴信号が得られることを原口らが明らかにした(2013年春応物学会)。さらに GaN の光学異方性については、川上らが、LED 発光強度の面方位依存性を報告している(JJAP(2005))。しかし、GaN を利用した SPP の励起に関する研究は、岡本らによる LED の発光増強(Nat. Mat. (2004))があるだけで、GaN 表面プラズモンセンサーへの応用は、研究代表者が世界で初めての試みである。

2. 研究の目的

本研究では、光学異方性を有する GaN と金属ワイヤーグリッドを用いて屈折率が 1.5 以上の高屈折率媒質の高感度検出が可能な伝搬型表面プラズモンセンサーの実現を目指し、次のことを目的に研究を行う。

1. GaN と金属薄膜による伝搬型表面プラズモンセンサーを作製し、GaN の面方位と SPP 励起の関係について調べる。
2. GaN 基板上に金属ワイヤーグリッドを用いた伝搬型表面プラズモンセンサーを作製し、GaN の面方位と金属ワイヤーグリッドの方向が SPP 励起に及ぼす効果を明らかにする。
3. GaN と金属ワイヤーグリッドによる伝搬型表面プラズモンセンサーで、屈折率が 1.5 より大きい被測定媒質(目標濃度は 1%以下)に対して、センシングできることを実証する。

3. 研究の方法

上記目的を達成するために、本研究では次のことを行い、GaN 基板上に金属ワイヤーグリッド構造を用いた表面プラズモンセンサーを実現するための基礎的検討を行った。

1. GaP 基板に Au 薄膜を堆積させた表面プラズモンセンサーを作製し、これを用いて屈折率が 1.5 を超える媒質の検出ができることを確かめる。
2. ガラス基板上に Au で 1 次元回折格子を作製し、これを用いて屈折率が 1.5 を超える媒質の検出ができることを確かめる。

4. 研究成果

(1) GaP 基板と Au 薄膜を用いた表面プラズモンセンサー

GaP 表面に Au を堆積させ、Au 表面に C₂H₅OH(エタノール、屈折率 1.36)、

C₇H₆Cl₂(2,4-ジクロロトルエン、屈折率 1.55)、2つの溶液の希釈溶液を接触させた GaP/Au/希釈溶液の3層構造で、波長 635nm の赤色レーザー光による TM 波の反射率の入射角度依存性を厳密波結合解析法(RCWA 法)から計算し、実際に測定を行った。図 1 に反射率の RCWA 法による入射角度依存性の計算結果を示す。C₂H₅OH の場合、GaP 内部の入射角度が 26.5° のとき、C₇H₆Cl₂ の場合、31.6° で反射率が極小になった。図 2 に実験結果を示す。C₂H₅OH の場合、26.5° のとき、C₇H₆Cl₂ の場合、31.1° で反射率が極小になり、計算結果とほぼ一致した。GaP と Au の界面で全反射したときに発生するエバネッセント波が表面プラズモンとカップリングしたことにより、反射光の強度が減少し、この角度で伝搬型 SPP が励起していると考えられる。また、Au 表面に接触している媒質の屈折率が高くなるほど、SPP 励起角は高角度側にシフトすると考えられる。この系において、屈折率が 1.62 までの媒質の検出を確認できた。

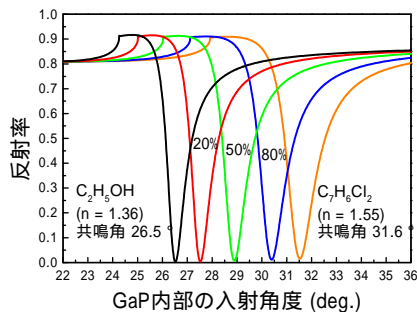


図 1 反射率の入射角度依存性 (シミュレーション)

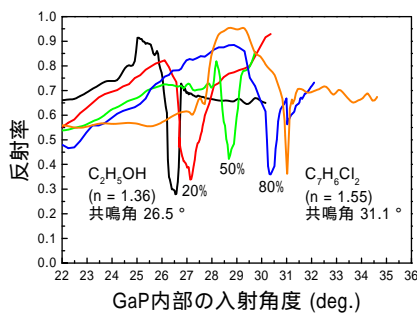


図 2 反射率の入射角度依存性(実験結果)

(2) ガラス基板上 1 次元 Au 回折格子を用いた表面プラズモンセンサー

試料に用いる 1 次元金属回折格子は、金属に膜厚 40nm の Au を使用し、周期は 600nm、Duty 比は 0.5 とした。光源には、TM 波に偏光した波長 635nm の赤色レーザー光を用い

た。RCWA 法を用いて、複数の媒質(屈折率:n=1.660-1.700)に対する反射の入射角度依存性の計算を行い、同じ条件下で、実際に反射率の入射角度依存性を測定した。媒質の屈折率が n=1.700 のときの計算及び実際の実験結果を図 3 に示す。実験と計算のどちらも、ほぼ同じ入射角度(実験:25.6°、計算:26.2°)で反射率の急激な低下が見られた。この結果から屈折率 1.7 までの媒質を初めて確認できた。図 4 に、反射・透過率の入射角

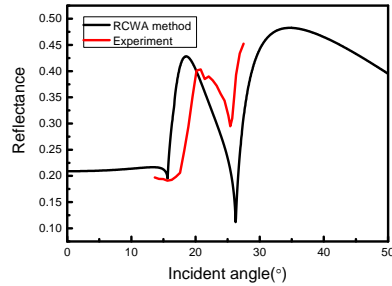


図 3. 反射率の入射角度依存性(屈折率 n=1.700)

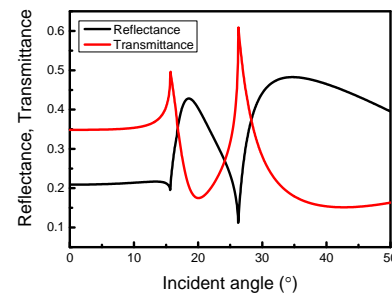


図 4. 反射・透過率の入射角度依存性(屈折率 n=1.700)

度依存性の計算結果を示す。反射率が低下する角度で透過率が急激に増加していることと、磁場分布のシミュレーションから、この角度で磁界が Au と媒質の界面に集中していることが分かった。これらのことから、この角度において表面プラズモン共鳴による異常透過現象が起きていると考えられる。さらに図 5 に示す透過率マッピングによる考察か

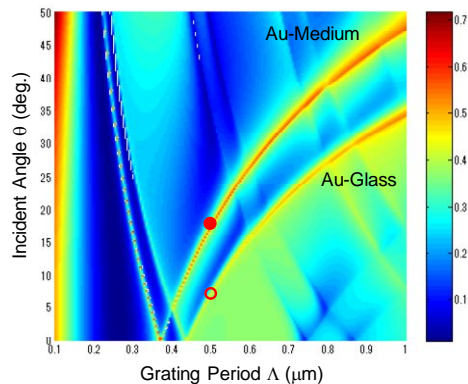


図 5.RCWA 法から求めた透過率のマッピング(屈折率 n=1.700)

ら、SPP は Au と空気の界面及び Au と媒質の界面の 2 か所で発生するが、屈折率変化による透過率のピーク変化は後者の界面での SPP によるもので発生することがわかった。

次に、センサー性能を示す感度と、FOM(Figure of Merit)の値の計算を行った。周期 500nm の 1 次元 Au 回折格子からなる表面プラズモンセンサーの場合、感度は 40.5 deg/RIU であった。また FOM 値の屈折率依存性を図 6 に示す。屈折率が 1.7 の場合 FOM 値は 10 程度で、他のセンサーと比べてもまだ低い。しかしシミュレーションではあるが、周期を 300nm まで狭くすると 35 程度まで改善できることが予測できた。

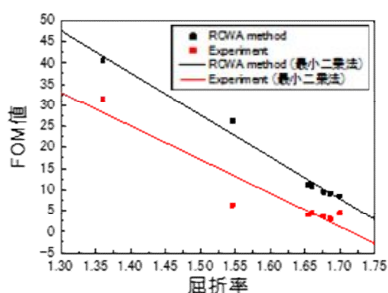


図 6 FOM 値と屈折率の関係

以上の結果より、本研究において、屈折率が 1.7 までの媒質を表面プラズモンセンサーを用いて初めて検出することができた。今後は周期を 500nm より狭くした構造を作製し、FOM 値の改善を図ること、試薬に対する耐久性の観点から GaN を用いたセンサーを実現することが課題となる。

5. 主な発表文等

(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 14 件)

伊藤優佑、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表面プラズモンセンサーの周期及び入射角度依存性と感度特性”、電子情報通信学会技術研究報告(電磁界理論) 116, pp.13-18 (2017) (査読なし)

中嶋智康、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“表面プラズモンを用いたワイヤーグリッド偏光子の作製と偏光特性に関する研究”、電子情報通信学会技術研究報告(電磁界理論) 116, pp.19-22 (2017)(査読なし)

山田泰士、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“Au2次元回折格子構造における光学素子の作製と光学的特性評価”、電子情報通信学会技術研究報告(電磁界理論) 116, pp.269-272 (2017) (査読なし)

Atsushi Motogaito, Shinya Mito, Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, “Detecting High-refractive-index ($n > 1.5$) Media using Surface Plasmon Sensor with One-Dimensional Au

Diffraction Grating on Glass Substrate”, Technical Dogest on Light, Energy and the Enviroment Congress, JW4A.42, (2016) (査読あり)

<https://doi.org/10.1364/FTS.2016.JW4A.42>

T. Nakajima, A. Motogaito, H. Miyake, K. Hiramatsu, “Relationship between space control and optical properties of a double-layer surface plasmon wire grid polarizer”, Abstract of the 14th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques, p.227 (2016) (査読あり)

Atsushi Motogaito, Shinya Mito, Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, “Detecting High-refractive-index Media using Surface Plasmon Sensor with One-Dimensional Metal Diffraction Grating”, Optics and Photonics Journal, 6, pp.164-170 (2016) (査読あり)

<http://dx.doi.org/10.4236/opj.2016.67018>

Atsushi Motogaito, Masanori Kito, Hideto Miyake and Kazumasa Hiramatsu, “Fabrication and optical characterization of a 2D metal periodic grating structure for cold filter application”, Proc.of SPIE Micro+Nano Materials, Devices, and Systems, 9668, pp. 96681Q1-96681Q6 (2015) (査読あり)

<http://dx.doi.org/10.1117/12.2201116>

S. Mito, A. Motogaito, H. Miyake and K. Hiramatsu, “Detection of High-Refractive Index Media by a Surface Plasmon Sensor Using a One-Dimensional Metal Diffraction Grating”, Technical Digest on 20th Microoptics Conference (MOC'15), pp.126-127 (2015) (査読あり)

Atsushi Motogaito, Yuuta Morishita, Hideto Miyake and Kazumasa Hiramatsu, “Extraordinary Optical Transmission Exhibited by Surface Plasmon Polaritons in a Double-Layer Wire Grid Polarizer”, Plasmonics, 10, pp.1657-1662 (2015) (査読あり)

<http://dx.doi.org/10.1007/s11468-015-9980-8>

Atsushi Motogaito, Shohei Nakamura, Jyunn Miyazaki, Hideto Miyake and Kazumasa Hiramatsu, “Using Surface-Plasmon Polariton at the GaP-Au Interface in order to Detect Chemical Species in High Refractive-Index Media”, Optics Communications, 341, pp.64-68 (2015) (査読あり)

<http://dx.doi.org/10.1016/j.optcom.2014.12.006>

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”、電子情報通信学会技術研究報告 (光エレクトロニクス) 114, pp.11-14 (2014) (査読なし)

Atsushi Motogaito, Yuuta Morishita, Hideto Miyake and Kazumasa Hiramatsu, “Polarization Property of a Double-layer Wire Grid Polarizer and the Mechanism of Transmission”, Proceedings of ECIO-MOC 2014, P034 (2014) (査読有り)

Atsushi Motogaito, Shohei Nakamura, Jyunn Miyazaki, Hideto Miyake and Kazumasa Hiramatsu, “Excitation of Surface Plasmon Polariton at the GaP-Au Interface in a High-Refractive-Index Medium”, Proceedings of ECIO-MOC 2014, P035 (2014) (査読有り)

[学会発表](計 3 3 件)

伊藤優佑、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表面プラズモンセンサーの光学特性及び感度評価”、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年 03 月 14 日~2017 年 03 月 17 日、パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)

渡邊直哉、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“Ag を用いた二層型ワイヤーグリッド構造の入射角度依存性”、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年 03 月 14 日~2017 年 03 月 17 日、パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)

伊藤優佑、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表面プラズモンセンサーの周期及び入射角度依存性と感度特性”、電子情報通信学会光エレクトロニクス研究会、2017 年 01 月 18 日~2017 年 01 月 19 日、伊勢市観光文化会館(三重県・伊勢市)

中嶋智康、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“表面プラズモンを用いたワイヤーグリッド偏光子の作製と偏光特性に関する研究”、電子情報通信学会光エレクトロニクス研究会、2017 年 01 月 18 日~2017 年 01 月 19 日、伊勢市観光文化会館(三重県・伊勢市)

伊藤優佑、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表面プラズモンセンサーの光学特性評価”、日本光学会ナノオプティクス研究グループ第 23 回研究討論会、2016 年 11 月 28 日~2016 年 11 月 29 日、大阪大学吹田キャンパス(大阪府・吹田市)

渡邊直哉、元垣内敦司、三宅秀人、平松

和政、“Ag を用いた二層型ワイヤーグリッド構造の光学特性評価”、日本光学会ナノオプティクス研究グループ 第 23 回研究討論会、2016 年 11 月 28 日~2016 年 11 月 29 日、大阪大学吹田キャンパス(大阪府・吹田市)

Atsushi Motogaito, Shinya Mito, Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, “Detecting High-refractive-index ($n > 1.5$) Media using Surface Plasmon Sensor with One-Dimensional Au Diffraction Grating on Glass Substrate”, Light, Energy and the Environment Congress, 2016 年 11 月 14 日~2016 年 11 月 17 日、Leipzig (Germany)

中嶋智康、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“ワイヤーグリッド構造における表面プラズモン分散曲線と透過率マッピング”、日本光学会年次学術講演会、2016 年 10 月 31 日~2016 年 11 月 02 日、筑波大学東京キャンパス(東京都・文京区) 山田泰士、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“Au2 次元回折格子における光学ミラーの作製と光学的特性評価”、日本光学会年次学術講演会、2016 年 10 月 31 日~2016 年 11 月 02 日、筑波大学東京キャンパス(東京都・文京区)

Atsushi Motogaito, Masanori Kito, Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, “The controlling of transmittance and reflectance of a 2D metal periodic grating structure for cold filter application”, JSAP-OSA Joint Symposia 2016, 2016 年 09 月 13 日~2016 年 09 月 16 日、朱鷺メッセ(新潟県・新潟市)

伊藤優佑、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表面プラズモンセンサーの周期及び入射角度依存性”、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、2016 年 09 月 13 日~2016 年 09 月 16 日、朱鷺メッセ(新潟県・新潟市) T. Nakajima, A. Motogaito, H. Miyake, K. Hiramatsu, Relationship between space control and optical properties of a double-layer surface plasmon wire grid polarizer, The 14th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques, 2016 年 09 月 04 日~2016 年 09 月 08 日、アクトシティ浜松コンgresセンター(静岡県・浜松市)

中嶋智康、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、“2 層型ワイヤーグリッド偏光子の空間制御と光学特性評価”、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、2016 年 03 月 19 日~2016 年 03 月 22 日、東京工業大学 大岡山キャンパス(東京都・目黒区) Atsushi Motogaito, Masanori Kito,

Hideto Miyake and Kazumasa Hiramatsu, "Fabrication and optical characterization of a 2D metal periodic grating structure for cold filter, application", SPIE Micro+Nano Materials, Devices, and Systems, 2015年12月06日~2015年12月09日, Sydney (Australia)

辻村一希、元垣内敦司、三宅秀人、平松和政、"Ag 細線構造を用いた二層型ワイヤグリッド偏光子の光学特性", 日本光学学会年次学術講演会、2015年10月28日~2015年10月30日、筑波大学東京キャンパス(東京都・文京区)

S. Mito, A. Motogaito, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Detection of High-Refractive Index Media by a Surface Plasmon Sensor Using a One-Dimensional Metal Diffraction Grating", The 20th Microoptics Conference, 2015年10月25日~2015年10月28日、福岡国際会議場(福岡県・福岡市)

Atsushi Motogaito, Yuuta Morishita, Hideto Miyake and Kazumasa Hiramatsu, Transmission of the Double-layer Wire Grid Polarizer and its Dependence on the Incident Angle and the Periodical Structures, JSAP-OSA Joint Symposia 2015, 2015年09月13日~2015年09月16日、名古屋国際会議場(愛知県・名古屋市)

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76回応用物理学学会秋季学術講演会、2015年09月13日~2015年09月16日、名古屋国際会議場(愛知県・名古屋市)

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回応用物理学学会春季学術講演会、2015年03月11日~2015年03月14日、東海大学湘南キャンパス(神奈川県・平塚市)

元垣内敦司、"電子線リソグラフィによるナノ光学素子の作製とLED照明応用", 応用物理学学会ナノインプリント技術研究会 2014年度第3回ナノインプリント技術研究会(招待講演)2015年02月20日、味覚糖 UHA 館(東京都・港区)

〔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:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等
三重大学 大学院工学研究科 電気電子工学
専攻オプトエレクトロニクス研究室
<http://www.opt.elec.mie-u.ac.jp>
三重大学教員紹介
<http://kyoin.mie-u.ac.jp/profile/1905.html>
三重大学全学シーズ集
<http://www.crc.mie-u.ac.jp/seeds/contents/detail.php?mid=20091217-114805&t=r&rl=>
三重大学 オプトエレクトロニクス研究室光
制御・LED照明グループ Facebook ページ
<https://www.facebook.com/mie.optics.lighting/>

6. 研究組織

(1)研究代表者
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

(2)研究分担者
()

研究者番号:
(3)連携研究者
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

(4)研究協力者
中村 将平(NAKAMURA, Shohei)
宮崎 潤(MIYAZAKI, Jyun)
森下 雄太(MORISHITA, Yuuta)
鬼頭 壮宣(KITO, Masanori)
水戸 晋也(MITO, Shinya)
辻村 一希(TSUJIMURA, Kazuki)
中嶋 智康(NAKAJIMA, Tomoyasu)
山田 泰士(YAMADA, Taishi)
伊藤 優佑(ITO, Yusuke)
渡邊 直哉(WATANABE, Naoya)