

国際科学技術基盤整備事業（日本－台湾 研究交流）

1. 研究課題名：「Au-in-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> エンドウ豆型ナノデバイスの作製とプラズモニクスへの展開」
2. 研究期間：平成 22 年 1 月～平成 25 年 3 月
3. 支援額： 総額 14,290,000 円
4. 主な参加研究者名：

日本側（研究代表者を含め 6 名までを記載）

	氏名	所属	役職
研究代表者	鈴木基史	京都大学	准教授
研究者	原英貴	京都大学	修士学生
研究者	南竹春彦	京都大学	修士学生
研究者	名村今日子	京都大学	博士学生
参加研究者 のべ			4名

相手側（研究代表者を含め 6 名までを記載）

	氏名	所属	役職
研究代表者	周立人	国立清華大学	教授
研究者	許家璋	国立清華大学	大学院生
研究者	陳智彦	国立清華大学	大学院生
研究者	吳宜蔡	国立清華大学	博士研究員
参加研究者 のべ			4名

5. 研究・交流の目的

この共同研究では台湾の国立清華大学と日本の京都大学の優れた研究チームが共同し、ナノデバイスの分野で世界を代表する研究成果を創出するパートナーシップを構築することが目的である。

6. 研究・交流の成果

6-1 研究の成果

**共同の研究成果**

日本側の独自技術の高温斜め蒸着 (HT-GLAD) 法を用いると、様々な金属のナノワイヤが成長することが分かっていたがその成長メカニズムは分かっていなかった。そこで日本側と台湾側が協力し、まず HT-GLAD 法によるナノワイヤ成長の本質を明らかにすることにした。基本的な成長メカニズムが比較的よくわかっている Ge ナノワイヤの VLS 成長に、HT-GLAD 法を適用すると、従来の方法ではナノワイヤが全く成長しないような温度、少量の蒸着でも効率よく Ge ナノワイヤが成長することが分かった。成長様式を詳細に調べた結果、1) Ge ナノワイヤの成長においてはナノワイヤの側面に供給された原子が拡散によってナノワイヤの先端に到達してナノワイヤに取り込まれること、2) HT-GLAD 法ではナノワイヤの側面に積極的に原子が供給されるために従来の方法に比べてきわめて効率よくナノワイヤが成長することが明らかになった。この成果は **共著論文** : M. Suzuki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **99**, 223107 (2011) として発表した。また、HT-GLAD 法による Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ナノワイヤの成長を検討する際の重要な手がかりを与えることになった。

次に、Au-in-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> エンドウ豆型ナノワイヤを HT-GLAD 法を用いて作製することを試みた。Au-in-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> エンドウ豆型ナノワイヤは Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ナノワイヤの中に Au ナノ粒子がエンドウ豆のように埋め込まれた複合ナノワイヤであり、台湾側が本計画開始の少し前に世界で初めて合成に成功していたが、大面積化と再現性に課題があった。HT-GLAD 法は作製条件を精密に制御できるため、うまくいけば再現よく大面積にナノワイヤを作製できる可能性があっ

たが、元々エンドウ豆型ナノワイヤのプロセスウィンドウがきわめて狭いことが分かっており、この課題はきわめて挑戦的であることを覚悟していた。結論から言えば、HT-GLADによって、Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ナノワイヤの成長には成功したが、Au-in-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> エンドウ豆型ナノワイヤの成長条件を見つけることはできなかった。しかしながらこの課題推進の過程において、基板温度によってGaOが低温では非晶質のナノコラム、高温ではβ-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>単結晶ナノワイヤ、そして中間の温度領域ではβ-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>単結晶枝分かれナノワイヤが成長するというきわめて興味深い発見をした。β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>単結晶枝分かれナノワイヤは高感度の紫外線センサなどへ応用できる可能性があり、有用性という観点からも期待できる。現在、台湾側の協力でTEMによる構造解析を進めており、近日中に論文誌に投稿するべく準備を進めている。

さらに両研究チームは共同でAu-in-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> エンドウ豆型ナノワイヤの表面増強ラマン散乱分光(SERS)への応用の可能性を検討した。エンドウ豆型ナノワイヤではAuナノ粒子が極薄のGa<sub>2</sub>O<sub>3</sub>で被覆されているため、安定性の高いSERSセンサに応用できる可能性がある。日本側は本計画開始前からSERSセンサ開発に取り組んでいたこともあり、台湾側が作製したエンドウ豆型ナノワイヤのSERS特性を日本で評価した。その結果、Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に埋め込まれたAuナノ粒子に起因するSERSスペクトルに加え、高空間分解能ラマン顕微鏡を用いることで、埋め込まれたAuナノ粒子からのSERSをイメージングすることにも成功した。Au-in-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> エンドウ豆型ナノワイヤを大面積に再現よく作製することができるようになれば、安定でイメージングにも有用なSERSセンサを実現できる可能性がある。

#### 双方が独自に取り組んだ研究成果

両研究チームは独自にAuナノ粒子のプラズモン特性の応用に関する研究も行った。台湾側の成果としては、Au-in-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ナノワイヤを利用した両極性抵抗スイッチングデバイスの作製に成功した。従来のナノワイヤを用いたスイッチングデバイスでは、セット・リセット電圧が電極の間隔に強く依存するという大きな欠点があったが、Au-in-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ナノワイヤを利用すれば、コアの部分の抵抗が低いため、セット・リセット電圧が電極の間隔によらずほぼ一定に保つことに成功した。このデバイスは将来のメモリデバイスへの応用が期待できる。この研究成果は、C.-W. Hsu, and L.-J. Chou, *Nano Lett.* **12**, 4247 (2012)に掲載され高い評価を受けた。

また、日本側は、Au-in-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> エンドウ豆型ナノワイヤの構造にヒントを得て酸化物ナノ構造とAuナノ粒子の複合構造を斜め蒸着法で形成し、プラズモン特性を利用したナノヒータを実現した。このナノヒータは時間的・空間的に温度制御が可能であり、この特性を利用した超音波発生、流体駆動が期待できる。このヒータの光音響特性をまとめた論文はK. Namura *et al.*, *Opt. Express* **21**, 8689 (2013)に掲載され高い評価を得た。

以上のように、双方の独自の技術を組み合わせることで、独創的な研究を短期間で実施して成果をあげることに成功した。これらの研究成果は今後、新しく発見された単結晶枝分かれナノワイヤの応用探索や、企業との共同研究によるERS、抵抗スイッチングデバイス、ナノヒータは次世代ナノデバイスの実用性の検討へと展開していく予定である。

#### 6-2 人的交流の成果

日台双方の研究チームは上述の共同研究を推進するためお互いを訪問するだけでなく、様々な機会を利用して人的交流や人材育成に尽力した。

研究機関の3年間では毎年1回、大きな国際会議の一つのシンポジウムを日台双方の研究代表者が共同でオーガナイズし、若手研究者や学生が世界の第1線の研究者とふれあう機会を創出した。また、本事業の別の研究チームと合同でワークショップを開催した。これらの機会を通じて期間中に複数回接触した学生たちはお互いを理解し、研究だけでなく私的な交流も始めており、両国の若い研究者の育成に多少なりとも貢献することができた。

一方研究交流という観点では、本研究計画を通じて10名近くの台湾の研究者と特に親しくなり、そのうち何名かとは具体的な共同研究に着手することができた。今後も台湾の研

究者とは継続して交流を続けていく予定ある。

7. 主な論文発表・特許等（5件以内）

相手側との共著論文については、その旨を備考欄にご記載ください。

論文 or 特許	・論文の場合： 著者名、タイトル、掲載誌名、巻、号、ページ、発行年 ・特許の場合： 知的財産権の種類、発明等の名称、出願国、出願日、 出願番号、出願人、発明者等	備考
論文	M. Suzuki, K. Hamachi, H. Hara, K. Nakajima, K. Kimura, C.-W. Hsu, and L.-J. Chou, "Vapor-liquid-solid growth of Ge nanowhiskers enhanced by high-temperature glancing angle deposition," Appl. Phys. Lett. 99 (22), 223107-223103 (2011).	共著
論文	C.-W. Hsu and L.-J. Chou, "Bipolar Resistive Switching of Single Gold-in-Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Nanowire," Nano Lett. 12 (8), 4247-4253 (2012).	(台湾側単著)
論文	M. Suzuki, K. Hamachi, K. Nagai, R. Kita, K. Nakajima, and K. Kimura, "Growth of Nanowhiskers of Al, Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, Cu, Ag and Au by High-Temperature Glancing Angle Deposition," ECS Transactions 33 (9), 41-48 (2010).	(日本側単著)
論文	K. Namura, M. Suzuki, K. Nakajima, and K. Kimura, "Heat-generating property of a local plasmon resonator under illumination," Opt. Lett. 36 (18), 3533-3535 (2011).	(日本側単著)
論文	K. Namura, M. Suzuki, K. Nakajima, and K. Kimura, "Photoacoustic emission from Au nanoparticles arrayed on thermal insulation layer," Opt. Express 21 (7), 8689-8700 (2013).	(日本側単著)