

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月17日現在

機関番号：14303

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K04978

研究課題名(和文) ナノ微細加工を応用した紫外域用プラズモニックレンズの研究

研究課題名(英文) Research on plasmonic lens for ultraviolet wavelength applying nano-fabrication

研究代表者

武田 実 (Takeda, Minoru)

京都工芸繊維大学・電気電子工学系・教授

研究者番号：90510686

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：表面プラズモン応用ナノ光学デバイスとして、超小型でシンプルな構造ながらファールフィールド領域でサブ波長サイズの集光ビームを生成する、紫外波長域(375nm)プラズモニックレンズの研究を行った。電磁場シミュレーションによる構造最適化と、Al薄膜のFIB加工により実際に作製したレンズの近接場光学顕微鏡による測定により、約5ミクロン直径のレンズにおいて、焦点距離4.4ミクロンでサブ波長サイズの集光スポットを達成した。ナノインプリント技術を適用したプラズモニックレンズの実用的作製検討を行い、UV光ナノインプリントとリフトオフを組合せたプロセスにより、高集積化レンズアレイのパターン形成に目途を付けた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、超小型で高い集光特性を有する紫外波長域用マイクロレンズを実現するための有効な構造設計、及び実際の作製手法を明らかにした。またその実用化のために、ナノインプリント技術を適用した高集積化レンズアレイの作製方法を提案した。この新規光学デバイスは、半導体レーザーとの組み合わせにより、紫外波長域で極めて微小な集光スポットを生成することが可能であり、また小型で使い勝手の良い構造であることから、超微細加工の他、超高密度光記録、超高解像度顕微鏡、高感度バイオケミカル分析などを含む、広範な応用分野への適用可能性を有し、これらの研究分野の進展を促進できる意義は大きいと考えられる。

研究成果の概要(英文)：We researched on the plasmonic lens for ultraviolet wavelength (375 nm) generating sub-wavelength sized focused beam in far field region, as an ultra compact and simple structured micro lens utilizing surface plasmon excited by metal nanostructure. A subwavelength focused spot with a focal length of 4 $\mu$ m was achieved with a plasmonic lens of about 5 $\mu$ m diameter by structure optimization using electromagnetic field simulation. We confirmed the subwavelength focused spot by measurement of the plasmonic lens actually fabricated by FIB processing on Al thin film, using a near-field optical microscope. We studied practical fabrication of plasmonic lenses applying nanoimprint technology, and we aimed to form patterns of highly integrated lens arrays by a process combining UV light nanoimprinting and Al lift-off process.

研究分野：ナノフォトニクス

キーワード：表面プラズモン マイクロレンズ 紫外波長 ナノインプリント

## 1. 研究開発当初の背景

金、銀などの金属ナノ構造に可視光を照射すると、電磁波が金属中の自由電子と相互作用することで、表面近傍に局在したエヴァネセント波の一種である表面プラズモンが励起される。表面プラズモンは、そのナノスケール局在性、電磁場増強作用、特定波長での共鳴性などを有効に利用することにより、様々なナノフォトニック・デバイスへの応用が考案され、近年非常に注目された分野として研究開発が活発に行われている。

表面プラズモン応用光学デバイスとして、光学レンズとしては数 $\mu\text{m}$  サイズと超小型ながら、光の波長より十分小さいスポットの集光ビームを生成可能なプラズモニックレンズが提案されている。実際には単一または複数のリング状スリットを金属薄膜上に開口した構造に可視波長のレーザーを照射し、金属表面に励起された表面プラズモンをリング中心に集め、サブ波長サイズの集光スポットを生成する平面型マイクロレンズであり、金属材料としては Au、Ag、Ti など、光波長は 633nm、532 nm などが適用されてきた。単一リング構造では光増強スポットは一般的にリング中心の表面近傍に限定されるが、複数のリングスリットから成る構造では、これらのスリットを透過した表面プラズモン波が回折され、表面から数 $\mu\text{m}$  程度離れた位置で光増強スポットが生成し、この集光スポットをプラズモニックレンズの焦点とみなすことが出来る。これは従来の近接場光利用でサブ波長の光スポットを生成する、ファイバー型近接場プローブや SIL (Solid Immersion Lens) 等では、集光スポットがファイバー開口部やレンズ先端部から数 10nm 程度までに限定され、それより離れると急激な光強度減衰が生じる事と比較すると、集光スポットを利用してナノスケールの加工、記録、操作等を行う光学デバイスとしては、対象サンプルから十分な作動距離を取ることが可能な、極めて取扱い易いデバイスであることを意味する。

筆者は集束イオンビーム (FIB) 加工装置を利用し、金属材料として Au、Ag 等を用い、直径 3~10 $\mu\text{m}$ 、リングスリット幅 100~200nm 程度のプラズモニックレンズの作製評価を行ってきた。また電磁場解析用 FDTD シミュレーションにより、レンズ表面近傍の電磁場分布、集光スポット強度等を計算することでレンズ構造設計の最適化を進めてきた。初期の研究成果として、Ag 薄膜を微細加工した直径 4 $\mu\text{m}$  の単一リングスリット構造で、532 nm 波長レーザーを用い、サブ波長サイズの集光スポットがレンズ表面から 2 $\mu\text{m}$  離れた位置で生成可能なことを実験的に示した。最近の検討においては、光利用効率向上のため同直径内に幅の異なる 3 本のスリットを設置し、スリット内部に励起される表面プラズモンの実効波長を各スリット幅で調整することで各スリットを透過する光の位相を補正し、その焦点位置で強め合う干渉を生じる構造を設計し、実際に作製した。光源にはより短波長の 405nm 波長レーザーを用い、半波長サイズ(約 200nm)の集光スポット生成をレンズ表面から 1.3 $\mu\text{m}$  離れた位置において、近接場光学顕微鏡による測定で確認した。

## 2. 研究の目的

本研究においては、金属ナノ構造に励起される表面プラズモンを応用する新規ナノ構造光学デバイスとして、数ミクロンサイズと超小型でシンプルな構造ながら、ファーフールド領域においてサブ波長サイズの集光ビームを生成可能であり、また従来に比べ短波長で光子エネルギーの高い紫外光を集光可能な、紫外波長域用プラズモニック・マイクロレンズの実現を目指した。

先ず FIB 加工を用いたナノスケール・パターン形成技術を適用し、また紫外域表面プラズモン励起に適した金属材料として Al 薄膜を用い、それにマルチ (多重) リングスリット構造を微細加工形成したプラズモニックレンズの作製技術を確立する。またその実用化検討を、ナノインプリント技術を適用して推進し、ナノスケールの光加工、光記録、光トラッピングやバイオケミカル分析用などの広範な応用分野の開拓へ展開することを本研究の目的とした。

## 3. 研究の方法

新規ナノ構造光学デバイスとして、紫外域レーザー光 (波長 375nm) をサブ波長サイズのスポットに集光可能な超小型のプラズモニック・マイクロレンズを研究開発し、FDTD 電磁場シミュレーション解析を援用した構造設計、及び実際に作製されたレンズの近接場光学顕微鏡による測定結果との比較検討を通して、その集光特性 (集光ビーム径、焦点距離、

焦点深度、光強度分布等)を最大限に高めるようにした。それと同時並行して、ナノインプリント技術を適用し、実用的なプラズモニックレンズ作製方式の検討を推進した。このナノインプリント技術の適用による、サブ波長サイズのマルチビームを生成可能な超小型高集積ナノ光学デバイスの実現を目指して、プラズモニックレンズが 10000 個程度に高集積化されたナノインプリント・レジストパターンを形成、及びそこからリフトオフ・プロセスによりマルチレンズ構造を作製する方式を検討した。

また構造設計については、各スリットの幅、半径位置を主要なパラメータとして、集光スポットをサブ波長サイズに保ちつつ、その焦点距離、及び焦点深度を出来るだけ長くする方向に進めた。レンズのサイズ、リングスリットの本数を増加させ狭幅スリットを用いれば、より長焦点距離化することも出来るが、一方でスリットの加工精度などの問題点も生じる。これらのレンズの実際の作製精度の SEM 観察等による評価、および近接場光学顕微鏡による集光特性の測定結果を踏まえ、レンズ単体のサイズを  $5\mu\text{m}$  程度に抑えながら、サブ波長サイズの集光スポットを、より長い焦点距離 ( $\sim 5\mu\text{m}$ ) において達成する構造設計、作製プロセスを検討した。

#### 4. 研究成果

プラズモニックレンズの構造設計については、Al 薄膜 (約  $150\text{nm}$  厚) に 3 本の同心円状スリットを配置する構造で、波長  $375\text{nm}$  の半導体レーザーを集光した時の焦点近傍の光強度分布を FDTD 方式の電磁場シミュレーション解析で検証した。図 1 にプラズモニックレンズの構造 (断面) と、レーザー光が石英 (ガラス) 基板側から入射した時、Al 薄膜 ( $150\text{nm}$  膜厚) に形成された各スリット内部 (幅  $100\sim 200\text{nm}$ ) を表面プラズモンとして伝搬し、それらが空気側から出射した後、サブ波長の集光スポットを形成する様子を示す。

実際のレンズ作製と測定評価においては、まず焦点距離  $3.2\mu\text{m}$ 、集光スポット径  $270\text{nm}$  のシミュレーション結果に対応した構造のレンズを Al 薄膜の FIB 加工により作製し、近接場光学顕微鏡による測定において集光スポット径約  $300\text{nm}$  を得た。図 2 は実際に作製されたプラズモニックレンズの SEM 観察イメージ (真上観察) であり、同心円状スリットが良好な形状で形成されている。またレンズのサイズは最外周の直径で  $5\mu\text{m}$  である。図 3 はこのレンズにより波長  $375\text{nm}$  のレーザー光を集光し、その集光スポットの焦点位置 (レンズ表面から  $3.2\mu\text{m}$  の高さ位置) において、近接場光学顕微鏡により 2 次元光強度分布を測定した結果である。このように焦点距離を  $3\mu\text{m}$  程度に設定した構造設計においては、実際のプラズモニックレンズの作製評価においても、シミュレーション結果とほぼ同等の優れた集光特性を達成し、直径  $5\mu\text{m}$  以下のマイクロレンズにより、紫外波長域においてサブ波長サイズの集光スポット径を実現した。

さらにこの構造においてプラズモニックレンズの長焦点距離化の検討を行った。同様に各スリットの半径位置、幅の設計最適化を進め、電磁場シミュレーション解析で検証した結果として、レンズ直径  $5.6\mu\text{m}$ 、焦点距離  $4.4\mu\text{m}$  で、集光スポット約  $300\text{nm}$  (半値幅) とサブ波長サイズの集光ビーム特性を得ることが出来た。このように構造設計においては当初の目標に近い特性を達成した。実際のレンズ作製においては、Al 成膜の方式の検討、Al 膜質等の改善を進めることにより、集光スポットの実測においては、焦点距離  $4.2\mu\text{m}$  でサブ波長サイズの半値幅  $340\text{nm}$  を達成し、当初の目標値にかなり近い特性を実現した。

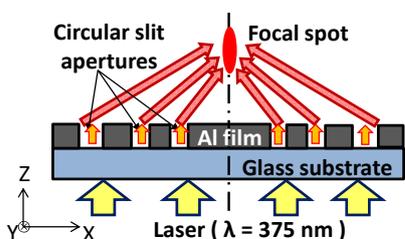


図1 プラズモニックレンズの構造

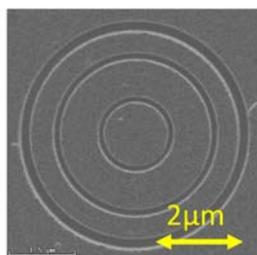


図2 SEM観察イメージ

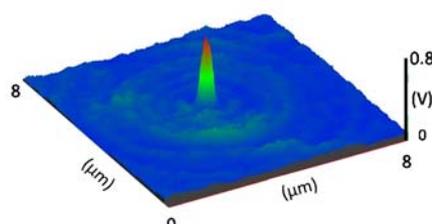


図3 集光スポットの光強度分布

次にナノインプリント技術の適用検討については、幾つかのプロセス方式を比較検討した結果、本研究のプラズモニックレンズ作製に好適な方式として、ナノインプリント用レジストパターンからの Al 薄膜のリフトオフにより、プラズモニックレンズを作製する方式を選定した。図 4 に全体のプロセスフローを示す。先ずナノインプリント用 molds (マスター原版) については、電子ビーム描画方式によるレジストパターン形成とそれをマスクとするドライエッチング (RIE) により作製される石英製 molds を用いた。この mold パターン (凹タイプ) を、石英基板上にスピコートした UV 硬化レジスト (UV resin) に UV 光ナノインプリント方式により転写する。最後にリフトオフ・プロセスとして、このレジストパターン (凸タイプ) が転写形成された石英基板上に、Al 薄膜をスパッタ成膜し、その後基板全体を有機溶剤浸漬してレジストの除去を行い、Al 薄膜中に 10000 (100x100) 個程度のプラズモニックレンズを形成する。

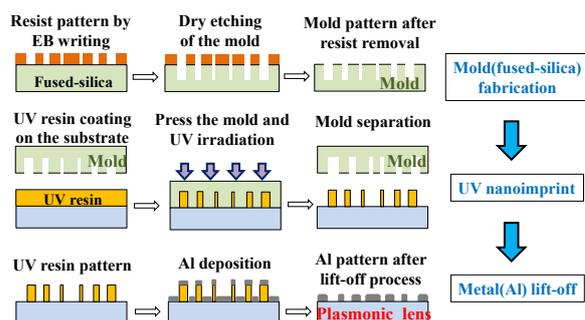


図4 プラズモニックレンズ作製のプロセスフロー

UV 光ナノインプリントについては、ナノインプリント後のレジストパターンの残膜処理などの改善により、安定してレジストパターンが形成出来るようになった。また設計値に近いレジストパターン (リング幅 100~200nm) が作製可能になってきた。図 5 に UV 光ナノインプリントにより形成された UV 硬化レジストのパターンの、SEM 観察イメージを示す。直径  $5\mu\text{m}$  のプラズモニックレンズの多重同心円状パターンが、間隔  $10\mu\text{m}$  でマトリックス的に配置されている。その後の Al 薄膜を用いたリフトオフ・プロセスについては、Al 成膜後のレジストのベーク条件、及びレジスト除去用のアセトン超音波溶液処理の条件などを適切に設定することにより、プラズモニックレンズの Al 薄膜パターンの形成を確認した。図 6 にその SEM 観察イメージを示す。ただし約 10000 個のレンズを集積したレンズアレイにおいて、パターンが正常に出来ているのは未だ部分的であり、その再現性もあまり高くないので、今後の課題として検討を継続する。

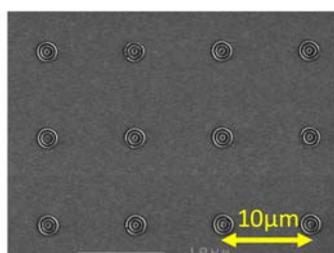


図5 ナノインプリントで作製された集積化プラズモニックレンズのSEM観察イメージ

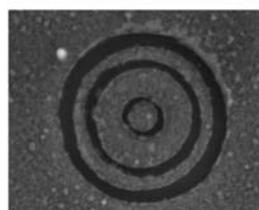


図6 Alリフトオフで作製されたプラズモニックレンズのSEM観察イメージ

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① M. Takeda, A. Tsuchiyama, M. Okada, S. Matsui, T. Inoue, K. Aizawa, Improvement of focusing characteristics of a surface plasmonic lens for UV wavelength, 査読有, Jpn. J. Appl. Phys., 56, 2017, 09NC02
- ② M. Takeda, T. Tanimoto, T. Inoue, K. Aizawa, Plasmonic Lens for Ultraviolet Wavelength, 査読有, Jpn. J. Appl. Phys., 55, 09SD03

[学会発表] (計5件)

- ① M. Takeda, Y. Miura, T. Inoue, and K. Aizawa, UV light focusing by a surface plasmonic lens and the fabrication of an integrated lens array applying nanoimprint process, International Symposium on Imaging, Sensing and Optical Memory, 2018
- ② 三浦 祐介, 土山 晃裕, 久保雄季, 武田 実, 井上 勉, 會澤 見斗, 紫外域サブ波長ビーム集光用プラズモニックレンズの特性改善, 応用物理学会 (春季), 2018
- ③ Y. Miura, A. Tsuchiyama, M. Takeda, M. Okada, S. Matsui, T. Inoue, and K. Aizawa, Subwavelength UV Light Focusing by a Surface Plasmonic Lens with Extended Focal Length, International Symposium on Imaging, Sensing and Optical Memory, 2017
- ④ 土山 晃裕, 三浦 祐介, 武田 実, 井上 勉, 會澤 見斗, 紫外域サブ波長ビーム集光用プラズモニックレンズの評価, 応用物理学会 (春季), 2017
- ⑤ A. Tsuchiyama, M. Takeda, T. Inoue, K. Aizawa, Improvement of Focusing Characteristics of a Plasmonic Lens for UV Wavelength, International Symposium on Optical Memory, 2016

#### 6. 研究組織

研究分担者: 松井 真二 (Matsui Shinji)

所属研究機関名: 兵庫県立大学

部局名: 高度産業科学技術研究所

職名: 特任教授

研究者番号: 00312306

研究分担者: 岡田 真 (Okada Makoto)

所属研究機関名: 兵庫県立大学

部局名: 高度産業科学技術研究所

職名: 助教

研究者番号: 60637065