

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390099

研究課題名(和文) 金属ナノスリット・アレイによる入射角度および偏光に無依存な光学フィルタ

研究課題名(英文) Incident-angle-insensitive and polarization independent wavelength filter consisting of a metal nano-slit array

研究代表者

菊田 久雄(Kikuta, Hisao)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10214743

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)：金属ナノスリット・アレイによる入射角度に依存しない光学フィルタを開発した。フィルタ設計においては、厳密光波結合解析法を使って金属微細構造がフィルタとして振る舞うための基本パラメータを算出することで、ピーク透過率やフィルタ半値幅を効率的に設定する方法を確立した。フィルタの製作においては、エポキシ系樹脂のナノインプリントと無電解銅メッキ法によりナノスリット構造を作製し、スリット内での光共鳴による反射光の吸収スペクトルピークが得られることを実験により示した。  
その他、金属層をもつ周期構造による高感度屈折率センサや金属スリットを効率的に形成するレーザ加工法について提案を行った。

研究成果の概要(英文)：Optical filter with a metal nano-slit array has been developed. Optical properties of the filter are insensitive to angle of incidence and polarization of light. The metal slit structure was designed from the basic parameters determined from the rigorous coupled-wave analysis. The filter was fabricated with techniques of acrylic-resin nano-imprint and electroless copper plating. The reflection spectrum of the fabricated filter has an absorption peak due to the optical resonance in the metal slits.  
The periodic structure with a metal layer was developed for a highly-sensitive refractive-index sensor as an application of the metal nano-slits array. Moreover, a method of laser processing with polarized light was proposed for making metal slits.

研究分野：応用光学

キーワード：金属ナノスリット 光学フィルタ 光共鳴 メタマテリアル ナノインプリント

1. 研究開始当初の背景

誘電体多層膜の光学フィルタは、ピークの鋭い波長選択特性をもたせることができ、光を使う科学機器で広く用いられている。しかし、その選択波長はフィルタへの光の入射角度に依存し、選択波長幅が狭いほど角度依存が強くなる。一方、金属薄膜に周期的に微細孔が配列された金属ナノホールアレイでは、表面プラズモン共鳴によって特定の波長の光の透過率が上昇する異常透過現象が見られ、これを使った狭帯域の波長選択フィルタが考えられているが、原理的にその透過波長は入射角度により強く依存する。

これらに対して、波長程度の厚さのある金属ナノスリット・アレイを用いて、透過特性が入射角度に依存しにくい光学フィルタが提案されていた。スリットアレイを2次元直交格子にすれば、入射偏光にも依存しない波長選択フィルタができる。このような性質をもつ光学フィルタが実現できれば、高NAの赤外線光学系における波長選択フィルタとして利用が期待される。さらに、この原理共鳴現象を利用した高感度な屈折率センサへの応用も考えられる。

金属ナノスリット・アレイによる光学フィルタの研究は、数値計算に留まっており、実際に素子を作製して実証するに至っていない。スリット開口幅が100nm以下で光の波長程度のスリット厚さをもつ構造の作製が難しい。一方、金属ナノスリット・アレイのフィルタ設計においても、その設計理論は確立されておらず、解析数値シミュレータを使って目的の選択波長と半値幅が得られるまで解析を繰り返すことがなされている。そのため、目的とする波長半値幅の設計が達成される保証がないまま計算を繰り返すことになっている。

以上のように、金属ナノスリット・アレイによる光学フィルタについては、製作方法とともに設計方法においても課題を抱えていた。

2. 研究の目的

無電解メッキ法を使って、1次元および2次元配列の金属ナノスリット・アレイを作製する技術を確立し、試作したフィルタの透過率が入射角度および偏光に依存しないことを実証する。一方、設計手法の確立においては、スリット内を伝搬する固有モード波の形状からスリット上下の開口部における反射係数を理論的に求める方法を考案し、電磁場解析数値シミュレーションによって検証を行う。

3. 研究の方法

設計手法については、スリット内での固有モードと伝搬定数、および金属スリットアレイと誘電体層での振幅反射係数を厳密結合波解析理論によって算出することで、共鳴周波数と半値幅を見積もる。これによって求め

たスリット形状をもとに、厳密な電場解析によって、スリット形状の最適化を図る。

素子作製においては、シリコン基板表面に微細周期の溝構造を作製し、これをナノインプリント用のモールドとする。基板シリコン基板を使って表面に溝構造を作製し、無電解銅メッキによって溝に銅を充填し、表面を研磨することで金属ナノスリット・アレイを作製する。

4. 研究成果

(1)素子設計：図1に示すように、金属スリットアレイをファブリペロ共振器モデルにおく。上面/下面での反射係数 $\rho_{21}$  ( $=\rho_{12}$ )、 $\rho_{23}$  ( $=\rho_{32}$ )、および、層内での伝搬定数は、スリット層が厳密結合波解析理論で求めた。また、スリット層での反射では、反射係数 $\rho_{21}$ 、 $\rho_{23}$  加えてエバネッセント波による位相シフトの影響が加わるので、これについても厳密結合波解析理論によって求める。これらのパラメータを使って、多重干渉理論によって透過率と反射率を概算する。従来、共鳴波長はスリット深さで調整できたが、半値幅の設定が難しかった。半無限の周期構造に対して厳密結合波解析理論を適用することで、フィルタ半値幅の設定が容易になった。

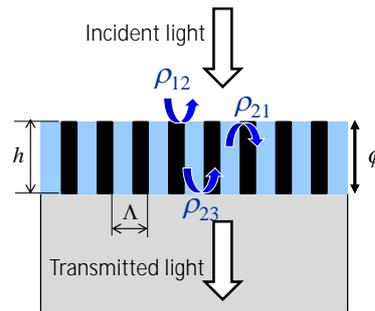


図1 フィルタ設計のためのパラメータ

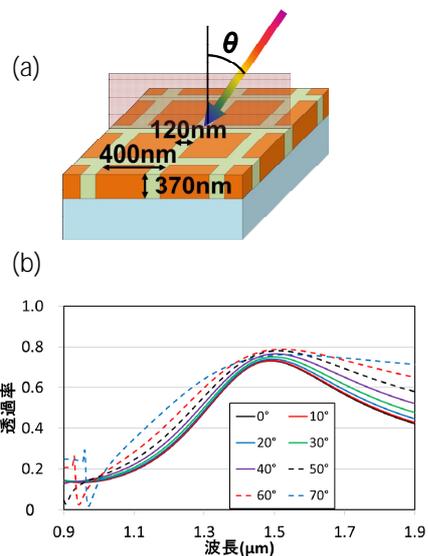


図2 金属ナノスリットの設計値と入射角度に対する透過率の計算値

上記の手順で金属ナノスリットの形状を設定し、電磁場数値解析の結果からスリット構造に調整を加えた結果を図2(a)に、透過スペクトルの計算値を図2(b)に示す。光の入射角度が変化しても、透過スペクトルの共鳴波長は変化しない。ただし、入射角度が45°以上になると波長半値幅が広がる。これは、共鳴条件が変化するためでなく、スリット上部での光の直接反射が強く現れるためである。

その他、スリット構造表面の振幅反射係数の大きさを厳密結合波解析理論を使って評価することで、図2のような単純なスリット構造では、より狭い半値幅をもつフィルタが得られないことを明らかにした。金属スリットの断面構造にくびれをつければ、フィルタ半値幅を狭くすることは可能であるが、くびれのあるスリット構造は作製がより難しい。

(2) 作製評価 : 紫外線干渉露光を用いてシリコン基板表面にレジストパターンを作製し、反応性イオンエッチングによって基板に溝を設ける。このシリコン基板をインプリント用モールドとして、石英基板に塗布したアクリル系紫外線硬化樹脂(日本化薬 : SU8)をナノインプリントすることで、図3(a)に示す金属充填するための溝構造を作製した。SU8は、後の無電解メッキの行程で利用するアルカリ溶液に耐性がある。この基板に無電解銅メッキを施した結果を図3(b)に示す。(c)は素子の全体写真であり、約5mmの範囲に構造が作製されている。石英基板側から光を入射して、その反射光スペクトルを測定した結果を図4に示す。吸収ピークの波長が、断面構造の形状から数値計算で求めた共鳴波長とよく一致している。

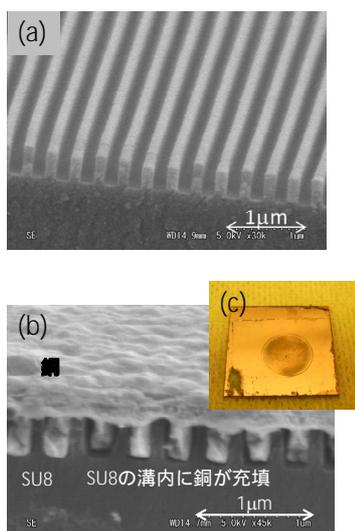


図3 作製した金属スリットの断面。(a)ナノインプリントされたSU8の断面、(b)銅メッキ後のスリット断面、(c)素子の全体写真。

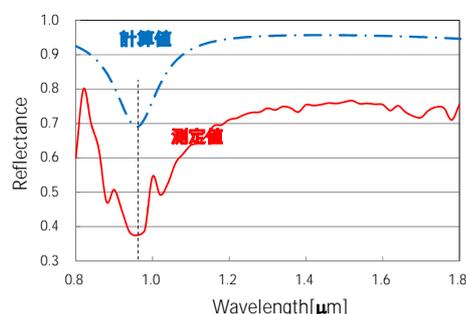


図4 作製した金属ナノスリットの反射率特性

CMP 研磨によって構造表面を覆う銅層を除去した。一部分では金属ナノスリットが形成されたが、SU8が柔らかいため多くの場所で研磨が進み過ぎてスリット構造が得られなかった。金属ナノスリットが形成された領域は光学特性を評価できるほどの広さをもたなかった。

研磨行程を容易にする目的で、より硬いインプリント材料である有機/無機ハイブリッド材料(マイクロレジストテクノロジー社 : Ormostamp)を用いて素子を作製することを試みた。ナノインプリントによって図3(a)と同様の表面構造が容易に作成できた。一方、この材料は強い撥水性をもち、メッキで析出された銅との密着性が低く、研磨によって銅がはがれ落ちる欠点があった。樹脂と銅の密着性を向上させることが今後の課題である。

(3) センサ応用 : 図5(a)に示すような三角格子構造に金属薄膜を蒸着することで高感度な屈折率センサが実現できることを提案した。有機/無機ハイブリッド材料を使ってナノインプリントにより三角格子構造を作製し、金薄膜を厚さ50nm程度蒸着する。下地の金メッシュ膜、および突起上部の金ドット膜がそれぞれ半透鏡の役割を果たし、突起部の中に入り込んだ溶液の屈折率によって透過、または反射スペクトルが変化する。図5(b)は、溶液の屈折率に対する透過スペクトルの変化の様子を測定したものである。495nm/RIUの屈折率感度が得られている。また、波長半値幅は約100nmであった。高感度屈折率センサとして広く用いられる表面プラズモン型の屈折率センサと比較すると、同程度の波長半値幅で、より高い屈折率感度が実現された。

この原理による屈折率センサは、光ファイバ先端で機能するセンサに適している。ナノインプリントにより作製が容易であるとともに、光の共鳴方向が基板に垂直であるため、光ファイバの狭いコア面積でも共振器として機能する。光ファイバ端面で機能する高感度屈折率センサは、カテーテルとして用いるタンパク質センサとしての利用が期待される。

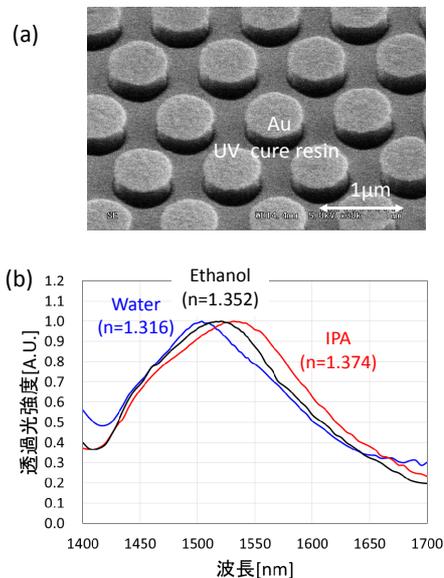


図5 金属ナノ構造を利用した高感度屈折率センサ (a)三角格子構造をもつセンサ表面、(b) 溶液屈折率に対する透過スペクトル

(4) スリット作製のためのレーザー加工：本研究では、メッキによって誘電体の溝に銅を埋め込む方法で金属ナノスリットを作製した。メッキを用いない直接的な作製方法として、特殊な偏光ビームを使ったレーザー加工によって細線スリットを作製する方法を考えた。図6 (a)に示すような直線偏光の方向がビームの中で異なっているレーザービームを考える。図中の矢印は直線偏光の方向、 $\pm\pi/2$ などは位相を表している。このような偏光分布をもつレーザービームは、円偏光のレーザービームを分割型1/4波長板に通すことによって容易に実現できる。

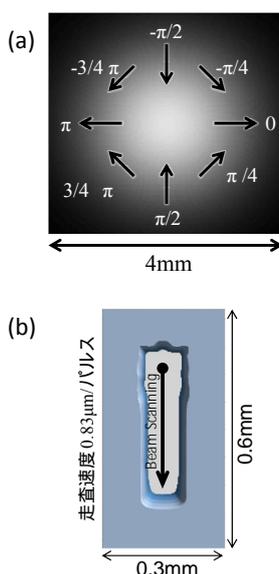


図6 偏光レーザービームによるスリット加工 (a)非対称クロス偏光ビーム、(b)スリット加工のシミュレーション例

この偏光ビームをレンズで絞って金属薄膜に照射すると深い四角の穴が形成されることを数値シミュレーションで示した。偏光方向による吸収係数の差を利用することで四角穴が形成される。また、その穴の大きさは回折限界であるエアリーディスクの直径と同程度であり、強度分布を四角に配置する方法に比べて小さく深い穴を開けることができる。更にこのビームを移動させながら加工を行うと、図6 (b)に示すような角のあるスリット構造を容易に形成できる。このシミュレーション例は、焦点距離300mmの集光レンズを用いて厚さ0.1mmの金属板に加工を行ったものである。より焦点距離の短い集光レンズを用いることで、金属薄膜を直接加工して金属ナノスリット構造を作製できる可能性がある。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計3件)

H. Kikuchi, A. Mizutani, H. Kikuta, Fourfold rotationally symmetrically polarized beam for drilling a square hole, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, 55, 2016, 42701, DOI:10.7567/JJAP.55.042701

A. Mizutani, S. Urakawa, H. Kikuta, Highly sensitive refractive index sensor using a resonant grating waveguide on a metal substrate, Applied Optics, 査読有, 54, 2015, 4161-4166, DOI:10.364/AO.54.004161

N. Ueda, M. Sasago, H. Kikuta, H. Kawata, Y. Hirai, Built-in mask lithography (challenge for high-definition less-less lithography) Journal of Vacuum Science & Technology B, 査読有, 32, 2014, 06F702, DOI:10.1116/1.4900604

〔学会発表〕(計6件)

山下大輔、水谷彰夫、菊田久雄、二層の金属三角格子構造を用いた垂直共鳴屈折率センサ、Optics & Photonics Japan 2015、2015年10月(筑波大学東京キャンパス文京校舎、文京区、東京)

H. Kikuchi, A. Mizutani, H. Kikuta, Hole shape control by a non-axisymmetrically polarized beam, The 7th International Congress on Laser Advance Material Processing, 2015年5月(Kitakyushu International Conference Center, Kitakyushu, Fukuoka)

山下大輔、水谷彰夫、菊田久雄、平井義彦、川田博昭、偏光無依存な垂直共鳴型屈折率センサ、第62回応用物理学会春期講演会、2015年3月(東海大学湘南キャンパス、神奈川県平塚市)

上田直樹、笹子勝、菊田久雄、川田博昭、  
平井義彦、ビルトインレンズマスクリソ  
グラフィによる3次元露光の検討、第75  
回応用物理学会講演会、2014年9月(北  
海道大学札幌キャンパス、北海道札幌市)  
水谷彰夫、菊田久雄、金属微細周期構造  
の近接鳩内部反射光の位相シフトを考慮  
した有効媒質モデルのためのパラメータ  
抽出法、第61回応用物理学会春期講演会、  
2014年3月(青山学院大学相模原キャン  
パス、神奈川県相模原市)

E. Arakane, A. Mizutani, H. Kikuta,  
Double layered wire-grid structure for  
a refractive index sensor, 9th  
International Conference on  
Optics-photonics Design & Fabrication,  
2014.2 (Itabashi Culture Center,  
Itabashi, Tokyo)

〔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〕

なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

菊田 久雄 (KIKUTA, Hisao)

大阪府立大学・工学研究科・教授

研究者番号：10214743