

機関番号：31303

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20560298

研究課題名(和文) プラズモン・アシスト磁気光学効果の解明とデバイス応用に関する研究

研究課題名(英文) Studies on Plasmon-assisted magneto-optical effects and device application

研究代表者

内田 裕久 (UCHIDA HIRONAGA)

東北工業大学・工学部・教授

研究者番号：30271000

研究成果の概要(和文)：

表面プラズモン共鳴によって磁気光学効果を増大させることができる構造体について研究を行った。Au成膜と加熱を繰り返してサイズと密度を変えたAuナノ粒子の上に、磁性ガーネットを堆積させた複合膜では、プラズモン共鳴波長でファラデー回転角を約20倍高めることができた。Ag-Au合金ナノ粒子を用いた複合膜では、プラズモン共鳴波長を短波長側へシフトさせ、その共鳴波長でファラデー回転を大きくすることができた。またナノスケールで構造と光情報を測定するために近接場光学顕微鏡を開発した。

研究成果の概要(英文)：

We investigated composite structures for enhancement of magneto-optical effects assisted with surface plasmon resonance. In composite films of magnetic garnet with Au nanoparticles formed by a repetitive formation method that changes size and number density, Faraday rotation angle was enhanced 20 times larger than that of the native garnet film at wavelength of exciting surface plasmon resonance. In composite films with Ag-Au alloy nanoparticles, enhanced Faraday rotations were obtained at the short wavelength side. A scanning near-field optical microscope was developed to obtain structural and optical information in nano-scale.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：磁気光学，磁性材料，表面

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：磁気光学効果，プラズモン共鳴，ナノ粒子，周期構造

1. 研究開始当初の背景

光の波長オーダーで周期構造体を形成したフォトニック結晶では、フォトニックバンド構造を利用した光の制御が試みられている。このフォトニック結晶に透明な磁性体である希土類鉄ガーネット(Bi:YIG)を導入した磁性フォトニック結晶では、磁気光学効果を

著しく増大させることできる。近年、金(Au)などの貴金属の微細構造体で励起される局在型表面プラズモン共鳴に関心が集まり、プラズモン共鳴発生時の強い電界を利用したセンサへの応用が検討されている。このプラズモンと磁気光学効果については、これまでに磁性金属と貴金属との積層膜でバルク

ラズマに起因するカー回転角の増加[T. Katayama et al., J. Phys. Soc. Jpn. 55, 2539 (1986)], そしてナノオニオン構造[M. Abe et al., J. Appl. Phys. 97, 10M514 (2005)]など報告されてきた。

我々は, Au ナノ粒子に光が照射されたときに発生する強い近接場によっても磁気光学効果が影響を受ける可能性があると考えて研究を開始し, Au 薄膜を加熱して形成したナノ粒子と磁性ガーネットとの複合膜において, プラズモン共鳴波長で磁気光学効果が増大することを確認した[大久保年永他, 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-06-167, 1-4 (2006)].

2. 研究の目的

本研究は, ナノスケールで構造を制御したプラズモン・アシスト磁性構造体を開発し, その材料・構造・スピン依存性について光学および磁気光学特性から総合的に解明することを目的とする. そしてスピン制御が可能な新規の光・電子材料を創製し, マイクロ光磁気デバイスおよび電子デバイスへの応用の可能性を探求するものである.

3. 研究の方法

以下の内容について研究を進める.

- (1) Au ナノ粒子/Bi:YIG 複合膜のプラズモン・アシスト磁気光学効果
- (2) Ag および Ag-Au 合金と Bi:YIG との複合膜の磁気光学効果
- (3) 貴金属/磁気光学材料による 2 次元柱状構造体の形成と磁気光学特性の解明
- (4) 回折格子を利用したプラズモン・アシスト磁気光学効果
- (5) 局在プラズモン・アシスト・トンネルデバイスの開発
- (6) 近接場光学顕微鏡の開発とナノ領域での光学情報の観察

4. 研究成果

- (1) 繰返し形成法で作製した Au ナノ粒子と Bi:YIG との複合膜の磁気光学効果

薄膜を加熱して作製した Au ナノ粒子は, 加熱温度によってサイズや粒径分布が変わるが, 1 回の形成プロセスで大きく変えることはできない. そのため Au ナノ粒子の上に Au を成膜してから加熱して粒子化する, 繰返し形成法 (図 1) を用いて, 平均粒径と分布を変えた試料を作製した. 図 2 に, 5nm の Au 薄膜を用いて作製した Au ナノ粒子の SEM 像と粒径分布を示す. 繰返し回数が増えると分布が変化するが, 8 回では粒子のサイズが大小 2 つに分離しているのが分かる. 大きなサイズの粒子は, すでに存在している粒子の上に Au が繰返して堆積したために粒径が増加したもの, 小さいサイズの粒子は, 存在して

いた粒子の間に残された Au の断片によって新しく形成されたものである.

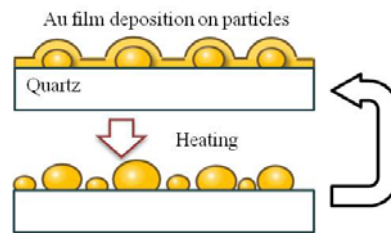


図 1 繰返し形成法による Au ナノ粒子の作製プロセス

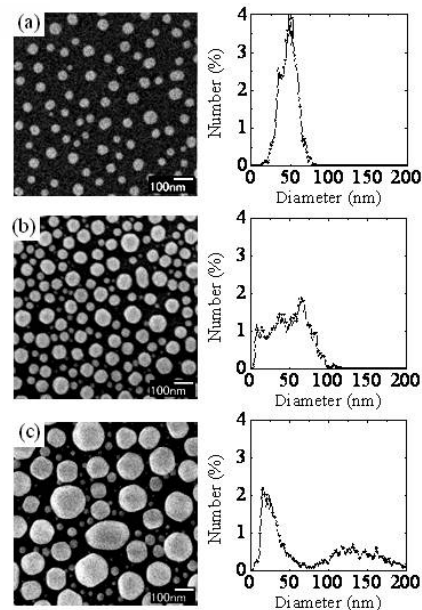


図 2 繰返し形成法で作製した Au ナノ粒子の SEM 像と粒径分布. 5nm の薄膜を使用. 繰返し回数: (a) 1 回, (b) 4 回, (c) 8 回

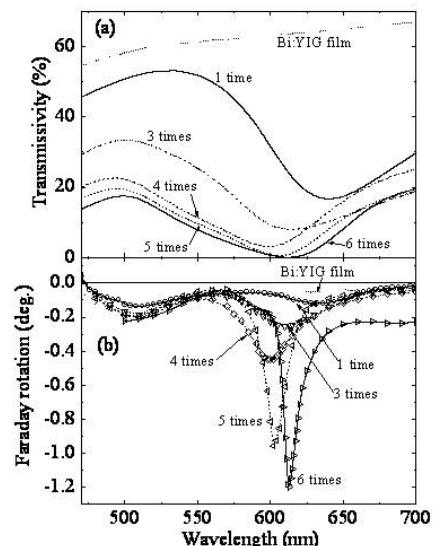


図 3 繰返し形成法によって作製した Au ナノ粒子と Bi:YIG との複合膜の (a) 透過率および (b) ファラデー回転角スペクトル

繰返し形成法によって作製した Au ナノ粒

子の上に Bi:YIG を 60 nm 成膜した試料の透過率とファラデー回転角スペクトルを図 3(a) (b)に示す. 同じ厚さの Bi:YIG 薄膜と比較すると, プラズモン共鳴波長の 600nm 付近においてファラデー回転角が増加し, 繰返し回数が 6 回するときファラデー回転角は -1.2° になった. これは Bi:YIG 薄膜の 20 倍の大きさである. しかし, この試料の透過率は 0.06% と小さくなってしまふ. プラズモン共鳴による光吸収バンドの半値幅とファラデー回転増大のバンドの半値幅には大きな差があり, ファラデー回転に寄与しているのは一部のサイズの Au ナノ粒子であると考えられる. この試料では, 粒子のサイズと密度が最適化されていないが, 構造を検討することによってさらに大きな回転角と, より大きな透過率が得られる試料が得られると考えられる.

(2) Ag および Ag-Au 合金と Bi:YIG との複合膜の磁気光学効果

Ag は Au よりも短波長側でプラズモン共鳴が起こる材料である. この Ag ナノ粒子との複合膜では, Bi:YIG 結晶化のために必要な 750°C の加熱によって, Ag と Bi:YIG 界面に電気抵抗が大きな化合物が形成され, プラズモン共鳴の影響を Bi:YIG に及ぼすことができなくなり, ファラデー回転は変化しないことが分かった.

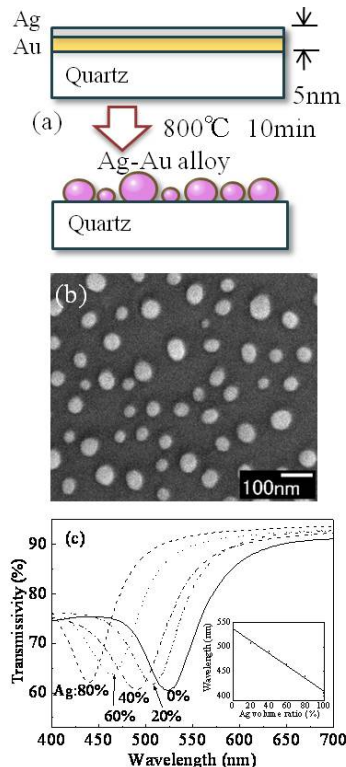


図 4 (a)Ag-Au 合金ナノ粒子の形成. (b)Ag-Au 合金ナノ粒子の SEM 像. Ag : 60%. (c)Ag 体積比による透過率スペクトルの変化. 挿入図: Ag 体積比とプラズモン共鳴波長の関係

したがって貴金属粒子の反応性を低下させ, かつプラズモン共鳴波長を変えるために, Ag-Au 合金ナノ粒子と Bi:YIG との複合膜を作製した. 図 4(a)に示すように, Au/Ag 膜を合計 5 nm にし, 800°C で加熱することで合金ナノ粒子を作製した (図 4(b)). 図 4(c)は Ag 比を変えて作製した合金ナノ粒子の透過率スペクトルの変化を示す. 共鳴波長は Ag の割合によって線形に比例することが分かる.

この Ag-Au 合金ナノ粒子の上に 75nm の Bi:YIG 膜を堆積させ, 750°C で加熱した複合膜の透過率とファラデー回転角スペクトルを図 5 に示す. Ag の割合が増えることでプラズモン共鳴波長が短波長側にシフトし, その波長でファラデー回転が増大している. しかし, プラズモン共鳴の吸収バンドの底の透過率は, Ag が増えるにつれて高くなっている. これは Ag-Au 合金ナノ粒子界面に化合物が形成されているのが原因であり, 金属コアのサイズが小さくなることでプラズモン共鳴の励起も減少していると考えられる. Ag の割合が少ないときに, 共鳴波長を変え, かつファラデー回転角を増大させることができると言える.

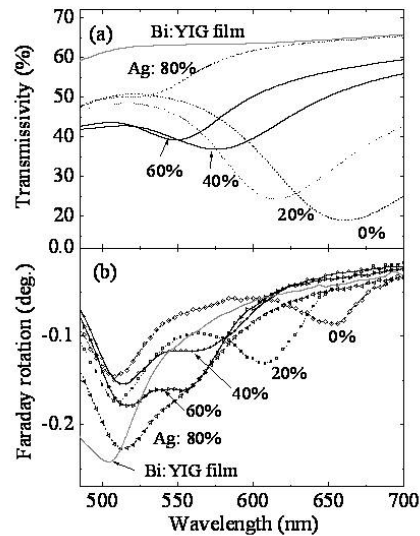


図 5 Ag-Au 合金ナノ粒子と Bi:YIG との複合膜の (a)透過率および (b)ファラデー回転角スペクトル

(3) 貴金属/磁気光学材料による 2 次元柱状構造体の形成

周期的に配列した微小孔に磁性体を充填した金属薄膜では, ファラデー効果が増大するという計算結果が得られている. 本研究では, 実験で示すため, 類似した構造である Au ナノロッドの作製を試みた. 始めに, 石英基板上に電極用の Au 薄膜 20nm とポーラスアルミナ形成用の Al 薄膜 1000nm を成膜し, 陽極酸化によって周期が 400nm の三角格子状に微小孔が配列したポーラスアルミナを作製し

た. 次に, NaOH でエッチングすることで孔の底を貫通させ, 電極用の Au を露出させた. 電気メッキ法により孔に Au を堆積してナノロッドを形成し, 周囲のアルミナを NaOH により溶解させた. この方法で, 図 6 に示すような石英基板上に配列した直径約 200nm, 高さ約 1 μ m, 周期 400nm の Au ナノロッドの 2 次元配列構造体を作製した.

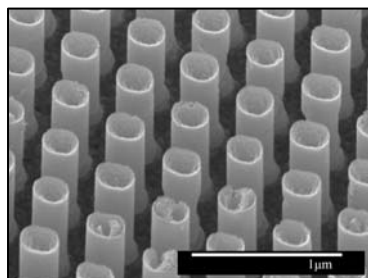


図 6 Au ナノロッドの SEM 像. 高さ 1 μ m, 周期 400nm

この Au ナノロッドの透過率スペクトルを図 7 に示す. 表面プラズモン共鳴による光吸収が 600nm 付近に生じている. この方法により, 金属の周期的配列ロッドの作製に用いることができる技術が得られた. 今後, 磁気光学材料との複合化を行い, 磁気光学効果を明らかにする.

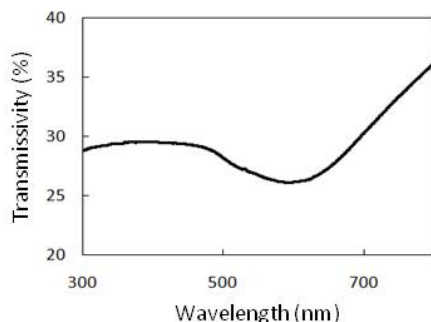


図 7 ナノロッドの透過率スペクトル

(4) 回折格子を利用したプラズモン・アシスト磁気光学効果

Ni ドット周期構造体では, 伝播型プラズモン共鳴が励起される. 図 8(a) に高さ 80nm, 直径 230nm の円柱状 Ni が周期 430nm で三角格子状に配列した構造の試料を示す. 図 8(b) は, 入射角 30° のときの反射率とカー回転角のスペクトルである. プラズモン共鳴が起きている 680nm 付近で光の吸収が大きくなり, カー回転角が増加していることが分かる. 方位角を変化させることで共鳴ピークを 2 つにすることもできるが, カー回転角が最も大きくなるのは吸収バンドを同一波長に合わせた場合 (図 8(b)) である.

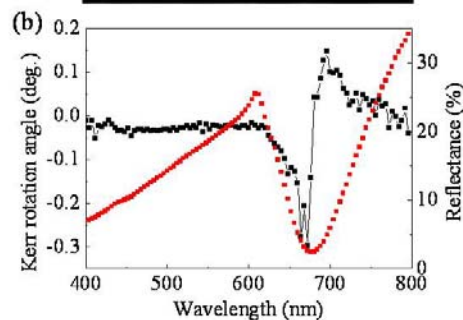
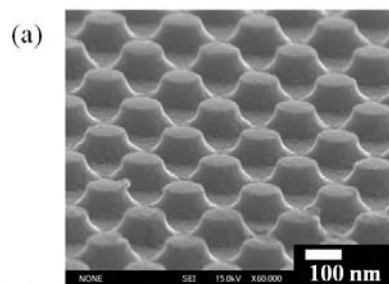


図 8 (a)Ni ドット構造体の SEM 像. (b)反射率と透過率スペクトル

(5) 近接場光学顕微鏡の開発

ナノスケールで構造と光学情報を測定するため, 小型の近接場光学顕微鏡 (SNOM) を企業と共同開発した. 先端に 100nm ほどの微小な開口を持つ光ファイバーをプローブとして用い, 近接場光と呼ばれる微小領域に留まり, 離れるに従って減衰する光を検出する. この SNOM により, 通常の光学顕微鏡では観察することができない光の波長以下の領域を観察することができるようになる. 図 9 は開発した SNOM の観察ユニットである. これにコントローラおよびソフト, ロックインアンプ, レーザを加えて測定を行う.

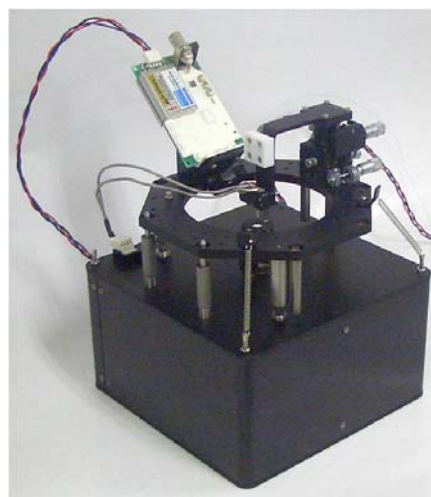


図 9 開発した SNOM の観察ユニット

この SNOM を用いて観察した例を図 10 に示す. 上は周期的な Ni ライン構造のトポグラフ (高低差) 像である. 下は, CD の Al 反射膜のトポグラフ (左) と光情報の像 (右) で

ある。Al のピット (反転したドット) である。変形して見えるのは、光ファイバプローブ先端の構造が反映されたためである。これは SPM 一般に起こる現象で、プローブ先端の形の変形、またはプローブへの微小なゴミの付着によって、観察している物体の構造が変化して見える。同時に測定した光情報の像では、Al ドットに対応する位置で光強度が強くなることが示されている。今後、SN 比を大きくして明瞭な光の像を得るために、光検出の感度を上げると共に、周辺から暗箱へ漏れ入る光を減らすことが必要となる。SNOM としての基本機能を備えていることが分かったため、今後 Au ナノ粒子の光情報の測定を行う予定である。

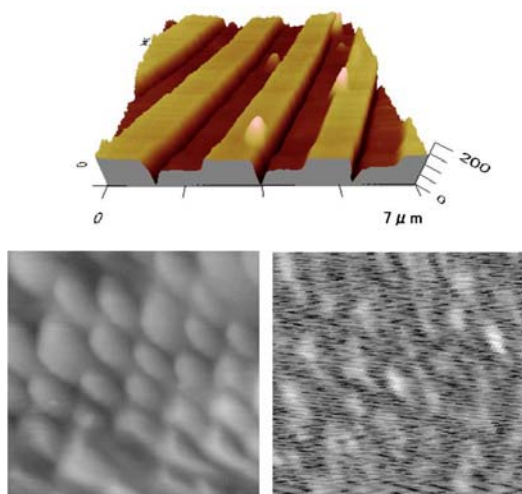


図 10 SNOM による観察例。(上) Ni ライン構造体。(下左) CD の Al 反射膜のトポグラフィ像および(下右)近接場光像

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 14 件)

- 1) H. Uchida, Y. Mizutani, Y. Nakai, A. A. Fedyanin and M. Inoue, "Garnet composite films with Au particles fabricated by repetitive formation for enhancement of Faraday effect", J. Phys. D: Appl. Phys. vol. 44, 064014-1-7 (2011) 査読有。
- 2) V. E. Zubov, A. D. Kudakov, M. Inoue and H. Uchida, "Anomalous high surface deceleration of the domain wall and magnetic stray field micro-distribution over a surface of amorphous ferromagnet", Journal of Magnetism and Magnetic Materials vol. 322, 7-11 (2010) 査読有。
- 3) 中居悠, 太田祐介, 内田裕久, 水谷祐介, 井上光輝, "磁気光学効果測定装置の開発とプラズモニク磁気光学材料の評価", 電気

学会マグネティクス研究会資料, MAG-10-071, 1-6 (2010) 査読無。

4) H. Uchida, Y. Masuda, R. Fujikawa, A. V. Baryshev, and M. Inoue, "Large Enhancement of Faraday Rotation by Localized Surface Plasmon Resonance in Au Nanoparticles Embedded in Bi:YIG Film", J. Mag. Mag. Mat. 321, 843-845 (2009) 査読有。

5) R. Fujikawa, A. V. Baryshev, A. B. Khanikaev, J. Kim, H. Uchida and M. Inoue, "Enhancement of Faraday rotation in 3D/Bi:YIG/1D photonic heterostructures", Journal of Materials Science: Materials in Electronics (Springer), 20, 493-497 (2009) 査読有。

6) A. Baryshev, A. B. Khanikaev, R. Fujikawa, H. Uchida, M. Inoue, "Diffraction processes in 3D photonic crystals based on thin opal films", Journal of Materials Science: Materials in Electronics (Springer), 20, Supplement 1, 416-420 (2009) 査読有。

7) Y. Mizutani, H. Uchida, Y. Masuda, A. V. Baryshev and M. Inoue, "Magneto-optical plasmonic Bi:YIG composite films with Ag and Au-Ag alloy particles", Journal of the Magnetism Society of Japan 33, 481-484 (2009) 査読有。

8) 水谷祐介, 内田裕久, 増田佑介, Alexander Baryshev, 井上光輝, "AuおよびAg粒子, Au-Ag合金粒子と複合化した磁性ガーネット薄膜の磁気光学効果", 電子情報通信学会技術研究報告 109, 35-40 (2009) 査読無。

9) 水谷祐介, 内田裕久, Baryshev Alexander, 井上光輝, "電子線露光法で作製した周期配列Auナノ粒子による磁性ガーネットの磁気光学効果の増大", 電気学会マグネティクス研究会資料, MAG-09-187, 93-98 (2009) 査読無。

10) R. Fujikawa, A. V. Baryshev, J. Kim, H. Uchida, and M. Inoue, "Contribution of the Surface Plasmon Resonance to Optical and Magneto-Optical Properties of a Bi:YIG-Au Nanostructure", J. Appl. Phys. 103, 07D301 (2008) 査読有。

11) H. Uchida, H. Fumoto, A. Baryshev, J. Kim, and M. Inoue, "Optical and Electrical Properties of Tunnel Junctions with Au Nano-Particles Utilizing Localized Surface Plasmon Resonance", IEEE Transactions on Electrical and Electronic Engineering 3, 660-663 (2008) 査読有。

12) A. B. Khanikaev, A. B. Baryshev, P. B. Lim, H. Uchida, and M. Inoue, A. G. Zhdanov, A. A. Fedyanin, A. I. Maydykovskiy, and O. A. Aktsipetrov, "Nonlinear Verdet law in magnetophotonic crystals: interrelation between Faraday and Borrmann effects", Physical Review B 78, 193102-1-4 (2008) 査読有.

13) 増田佑介, 富士川凛太郎, 内田裕久, 金周映, Alexander Baryshev, 井上光輝, "Au ナノ粒子を用いた磁性ガーネット薄膜の磁気光学効果のエンハンスメント", マグネテック研究会資料, MAG-08-103, 23-26 (2008) 査読無.

14) 増田佑介, 富士川凛太郎, 加藤武紀, A. Baryshev, 内田裕久, 井上光輝, "貴金属 (Au, Ag, Pt) ナノ粒子を埋め込んだ磁性ガーネット薄膜の局在表面プラズモン共鳴と磁気光学応答", 電子情報通信学会技術研究報告 108, 43-47 (2008) 査読無.

[学会発表] (計 7 件)

1) H. Uchida, Y. Mizutani and M. Inoue, "Optical and Magneto-Optical Responses of Plasmonic Composite Structures with Gold Particles and Garnet Thin Film", RIAO-OPTILAS 2010, Lima, Peru, (2010/09/24).

2) H. Uchida, Y. Mizutani and M. Inoue, "Enhanced Faraday rotation in composite films with magnetic garnet and periodically arranged Au particles fabricated by electron beam lithography", International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications (ISAMMA 2010), Sendai International Center, Sendai, EY-06 (2010/7/15), 招待講演.

3) 内田裕久, 水谷祐介, 中居悠, 井上光輝, "磁性ガーネットと周期配列 Au 粒子の複合膜における磁気光学効果", 第 34 回日本磁気学会学術講演会概要集, 6pE-13, p. 300, つくば国際会議場 (つくば市) (2010/9/6)

4) 内田裕久, 井上光輝, "金ナノ粒子と磁性ガーネット複合膜における磁気光学効果の増大", 東北大学スピニクス研究会, 東北大学電気通信研究所 (2010/6/11), 依頼講演.

5) H. Uchida, Y. Mizutani, Y. Masuda, A. Baryshev, M. Inoue, "Enhancement of Magneto-optical Effects of Au Particles and Bi:YIG Composite films", Progress in Electromagnetics Research Symposium (PIERS 2009), Moscow state Institute of radio Engineering, Electronics and

Automation (モスクワ), 4A3 (2009/8/20), 招待講演.

6) H. Uchida, Y. Tsunoda, M. Koga, A. Fedyanin, Y. Masuda, R. Fujikawa, A. Baryshev, J. Kim, and M. Inoue, "Magneto-optical Effects Enhanced by Surface Plasmon Resonance in Nano Structures", Moscow International Symposium on Magnetism (MISM-2008), Moscow, Russia (2008/6/23).

7) H. Uchida, M. Inoue, "Magnetophotonic materials and their application in photonic information systems (I)", MmdE 2008 (Materials for Electrical Engineering), Bucharest, Romania, University Politehnica of Bucharest (2008/06/17).

[図書] (計 1 件)

1) 内田裕久, 井上光輝, "2.2 ナノ構造磁性体の光との相互作用について", ナノ構造磁性体, ナノスケール磁性体の機能調査専門委員会著, 電気学会編, 共立出版 54-76 (2010/6/25).

[その他]

1) 製品発表および展示会

内田裕久, (株) 片山電子, "簡易型近接場光学顕微鏡 (SNOM)", 豊橋サイエンスコア, 産業活性化フォーラム豊橋・新農業クラスタープロジェクト植物工場セミナー (2011/2/16).

2) ホームページ

http://www.tohtech.ac.jp/~elecs/ca/uchidalab_hp/index.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者 内田裕久 (UCHIDA HIRONAGA)
東北工業大学・工学部・教授

研究者番号: 30271000

(2) 研究分担者 井上光輝 (INOUE MITSUTERU)
豊橋技術科学大学・工学部・教授

研究者番号: 90159997

研究分担者 バリシェフ アレキサンダ
(Baryshev Alexander)

豊橋技術科学大学・工学部・特任准教授
研究者番号: 70402667

研究分担者 金周映 (KIM JOOYOUNG)

豊橋技術科学大学・学内共同利用施設等・助教

研究者番号: 20409048