

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：15301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17455

研究課題名(和文) 金属ナノ粒子装荷型グラフェンメタマテリアルにおける2次元プラズモンの動的制御

研究課題名(英文) Graphene metamaterials for 2D plasmon manipulation

研究代表者

石川 篤 (Ishikawa, Atsushi)

岡山大学・自然科学研究科・助教

研究者番号：90585994

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：グラフェンメタ表面を用いた新規な波面制御デバイスを提案し、その電磁波解析を行った。動的プラズモンによってメタ表面内に誘起された位相勾配を反映して、THz波が異常反射される新原理を見出し、周波数5THzにおける最大反射角53度および最低反射率60%の波面制御を数値解析により実証した。また、このようなメタ表面の作製技術の確立に加え、光学的にプラズモンを動的制御する手法として、デジタルマイクロミラーデバイスを用いて任意波長・任意形状の2次元光パターンを試料表面に照射できる装置を新たに開発した。

研究成果の概要(英文)：A tunable graphene metasurface is proposed and numerically demonstrated to control the wavefront of THz waves. In the FDTD simulation, anomalous THz wave reflection is clearly observed depending on the phase gradient induced by tunable plasmon, and wide-angle beam steering up to 53 degree with a high reflection efficiency of 60% is achieved at 5 THz. For the dynamic optical control of such a metasurface, we newly develop a system to irradiate an arbitrary two-dimensional optical pattern onto the device using a digital micro-mirror device.

研究分野：電磁波工学

キーワード：メタマテリアル グラフェン プラズモン THz波

1. 研究開始当初の背景

電波由来の高い透過性と光由来の高い指向性を併せ持つテラヘルツ (THz) 領域は、非破壊検査や生化学センシング、高速無線通信などへの応用展開があり、その実現には高性能な THz 制御技術が望まれる。近年、高強度・高品質な THz 波の発生技術が確立される一方で、そこから得られる THz 波の制御技術は未発達であり、上述の応用実現には、振幅や位相の空間分布を高速に動的制御できる技術が不可欠である。

ところが、物質を透過し易く、波長が長い THz 波は、物質との相互作用が小さいため、コンパクトかつ高効率な THz 制御デバイスの実現が本質的に難しい。これまでに、半導体量子構造や液晶を用いた THz 変調器が提案されているが、動作温度が極めて低い、変調周波数が低いなどの課題があり、実用化には至っていない。一方、光の波長よりも小さな金属構造体でできた人工光学材料“メタマテリアル”を用いた THz 制御デバイスが近年注目されている。中でも、半導体構造を組み込んだ電圧制御可能な THz メタマテリアルが盛んに研究され、その室温動作・固体 THz 変調器への応用が期待されている。

今後、さらにコンパクトかつ高効率な THz 制御デバイスを実現するためのアプローチの一つとして、THz 領域のプラズモン共鳴を積極的に利用することが考えられる。自由電子の集団的振動と光とが結合したプラズモンを用いると、ナノ領域における電場増強効果に基づく強い光-物質相互作用が期待できる。これまでのプラズモニクス研究では、可視光領域において吸収損失が小さい金や銀などの貴金属が主に用いられてきたが、THz 領域においては、これら貴金属は完全導体として振る舞うために、可視光領域と同じような電場増強効果が期待できない。また、貴金属では当然ながら、チューナブル特性が得られないため、本研究が対象とする THz 制御デバイスへの応用には不向きな材料と考えられる。

一方、貴金属に代わるプラズモニクス材料の一つとして、炭素原子の 2 次元シートであるグラフェンが挙げられる。グラフェンは、円錐形をした価電子帯と伝導帯がディラック点と呼ばれる 1 点で接した特徴的なバンド構造を有し、これ起因する高い電子移動度や原子一層にも関わらず強い光吸収を示すなど、高性能・高機能な電子光デバイスへの応用が期待されている。また、電圧印加によ

るチューナブル特性や高い電子移動度に伴う低損失特性といった特徴も有し、高性能なプラズモニクス材料としても早くから関心を集めてきた。さらにグラフェンは、原子一層という特殊な形状とその誘電分散により、THz から赤外領域において強い光閉じ込めと電場増強効果を示すことが、我々のこれまでの研究報告でも明らかとなっている。

2. 研究の目的

以上の観点から、グラフェンあるいはグラフェンと金属ナノ構造とのハイブリッド構造における THz プラズモン応答の探索は、当該分野における課題解決と広範囲な応用展開に大きく寄与するものと考えられる。そこで本研究では、グラフェンに励起される THz プラズモンを用いたデバイス開発を目的に、THz 波の振幅や位相の空間分布を高速制御できる波面制御デバイスを新たに提案し、その電磁波解析を行なった。本デバイスは、グラフェンに発現する特異な THz プラズモン応答を応用した波面制御の画期的なアイデアであり、従来では困難であった種々の THz ビームパターン生成や超広角なビーム高速走査を可能にする。

また、このようなチューナブル特性を有するメタ表面の実現方法として、金属ナノ粒子を装荷したグラフェンメタ表面を考案し、そのデバイス作製技術の確立に取り組んだ。ここでは、金属ナノ粒子からグラフェンへの光励起ホットキャリア注入を用いて、グラフェン上の 2 次元プラズモンを動的に制御できる新手法の開発を目指した。金属ナノ粒子に光を照射すると、局在プラズモンが励起され、光放射による輻射減衰に加え、ホットエレクトロン生成を伴う非輻射減衰を経て失活する。生成されたホットエレクトロンは、金属-グラフェン界面のオーミック接触を介してグラフェン中に高効率に注入される。つまり、金属ナノ粒子における局在プラズモンの励起光の照射条件 (空間分布や波長、強度) を制御することで、グラフェンの任意領域に任意量の動的局所ドーピングができる。その結果、キャリアの注入量や空間分布に応じて、グラフェンに励起される 2 次元プラズモンの動的制御ができる。本研究では、以上の原理に基づく動的制御を実現するために、デジタルマイクロミラーデバイス (DMD 素子) を用いて、任意波長・任意形状の 2 次元光パターンを試料表面に照射できる装置を新たに開発した。

3. 研究の方法

(1) グラフェンメタ表面を用いたTHz波面制御デバイスの電磁波解析

解析モデルには、マイクロサイズ幅の短冊形状を有するグラフェンリボO₂層を介して銀ミラー上に1次元配列されたデバイス構造を検討した。特徴的なのは、各グラフェンリボンが、対象とするTHz波の波長よりも小さいために、デバイス全体の巨視的応答が、各グラフェンリボンのTHz応答の平均によって決まる点である。すなわち本デバイスは、グラフェンメタ表面として動作し、その表面に励起される局在プラズモンが誘起する位相不連続性を原理として、THz波の異常反射を実現する。解析ではまず、グラフェンリボンのプラズモン応答を、線形応答理論（久保公式）から導かれる実効誘電率を用いてモデル化した。次に、様々なフェルミレベル分布を有するグラフェンメタ表面のTHz応答を時間領域有限差分法（FDTD法）によって数値解析した。特筆すべき点として、グラフェンリボンのプラズモン共鳴とSiO₂層のファブリーペロー共鳴との干渉効果を利用することで、従来では困難であった最大2πの位相変化を達成できる新原理を見出した。最後に、周波数5THzにおける波面制御について、最大反射角、最低反射率および応答時間を評価した。

(2) DMD素子を用いた2次元光パターン照射装置の開発

装置開発では、任意波長・任意形状の2次元光パターンを試料表面に連続照射できる仕様を満たすため、光パターン生成部分にDMD素子を利用した。本研究で用いたDMD素子は、1枚あたり9.8μm四方の面積を有するマイクロミラーが、縦横間隔1μmで1024×768枚配列された表示素子である。DMD素子は、制御用PCからの映像信号に応じて各ミラーを約±12度傾けることで、明暗に対応するオン・オフを表現し、任意波長・任意形状の2次元光パターンを瞬時に生成できる。本研究では、最終的な試料面積や空間分解能の観点から、DMD素子で生成した光パターンを結像および対物レンズからなる20倍の縮小光学系を介して試料表面に結像することとした。装置開発にあたりまず、試料表面での2次元光パターン生成について、結像光学に基づく理論解析を行った。理論解析において、光学系の空間分解能や焦点深度などを確認したのち、高圧水銀ランプを光源とするDMD素子、結像および

対物レンズ、xy自動ステージ、CMOSカメラ等を用いて装置を構築した。また、明瞭な2次元光パターン生成に重要となる光照射中のピンツずれに対応するため、コントラスト法に基づくオートフォーカス機構を備えたz自動ステージを導入した。最後に、g線フォトリジストを用いた露光実験を行うことで、構築した装置の光照射性能を評価した。

4. 研究成果

(1) グラフェンメタ表面を用いたTHz波面制御デバイスの電磁波解析

解析ではまず、グラフェンを厚み0.34nmの極薄膜導体でモデル化し、その実効誘電率を求めることでプラズモン応答を明らかにした。本モデリング手法は、グラフェン厚みを0とした極限での収束性がよく、THz領域の実験結果をよく説明できることが我々のこれまでの研究報告でも明らかとなっている。実効誘電率は、線形応答理論（久保公式）から導くことができ、グラフェンのバンド内およびバンド間遷移の影響によってその値が決まる。本研究で扱う室温動作・高濃度ドーピングのグラフェンの場合、バンド内遷移の影響が支配的となり、その実効誘電率は単純なドルーデモデルで記述できることがわかった。実験的に実現可能なグラフェンのキャリア緩和時間に10⁻¹²sおよびフェルミレベルに0.2~0.8eVを仮定した場合、THz領域において実効誘電率の実部の値が負となる典型的なドルーデ応答が見られ、グラフェンのプラズモン共鳴がTHz領域に現れることが示唆された。

次に、上述の誘電応答を有するグラフェンでできたメタ表面のTHz応答を、FDTD法を用いて数値解析した。具体的な解析モデルは、幅2.9μmのグラフェンリボンが、厚み8μmのSiO₂層を介して銀ミラー上に積層した周期5μmのユニットセル構造である。数値解析では、TM偏光のガウシアンパルスを垂直入射させ、様々なフェルミレベルを有するグラフェンメタ表面からの反射スペクトル（振幅・位相）を解析した。フェルミレベルを0.2から0.8eVへと増加させると、反射スペクトルにおけるディップ周波数、すなわちグラフェンプラズモンの共振周波数が高周波数側にシフトする様子が見られた。特に0.6eVの場合について着目すると、グラフェンプラズモンとSiO₂層のファブリーペロー共鳴との干渉効果によって、任意の波面形成に必要な2πの位相

変化が 6 THz 付近に得られることがわかった。また、この干渉効果によってプラズモン共鳴のスペクトル形状が大きく変化し、共鳴条件にも関わらず、広帯域に 60% 以上の高い反射率が得られることが明らかとなった。

最後に、グラフェンメタ表面を用いた THz 波面制御デバイスの設計およびその特性解析を行った。設計ではまず、明瞭な波面形成の条件、すなわち、メタ表面を形成する各グラフェンリボンの位相シフト間隔および反射振幅が等しくなるように、そのフェルミレベル分布を選択した。本研究では、60% 以上の反射率を確保し、近接するグラフェンリボンの位相シフト間隔が全て 72 度となるフェルミレベル分布を選択することで、全て同じリボン幅および周期を有するグラフェンリボンで構成されるメタ表面構造を決定した。次に、設計したメタ表面を用いたビームステアリング動作について、FDTD法を用いた数値解析を行った。周波数 5 THz において、全てのグラフェンリボンのフェルミレベルが同じ場合、すなわちメタ表面の位相勾配がない場合、入射波が正反射される様子が見られた。次に、反射角度を制御するため、フェルミレベルの分布周期を変化させた場合、メタ表面の位相勾配を反映して、垂直入射の THz 波が異常反射される様子が見られた。これらの数値解析の結果、周波数 5 THz における最大反射角 53 度および最低反射率 60% の波面制御が達成できることが明らかとなった。

さらに、グラフェンメタ表面の時間応答特性を検証するために、THz 波を入射させた後から波面が形成されるまでの応答時間を FDTD 解析により見積もった。その結果、メタ表面に対して THz 波が垂直入射した後、約 0.3 ps 後から一部の波面が形成され始め、約 0.6 ps 後には、明瞭な波面形成が完了する様子が見られた。周波数 5 THz の時間サイクルが 0.2 ps に相当することを考慮すると、グラフェンメタ表面の時間応答特性は、高速ビームステアリングに応用できる性能を有していることが明らかとなった。また、これらの応答時間は、グラフェンプラズモンや SiO₂ 層のファブリーペロー共鳴の寿命にも大きく依存していると考えられ、デバイス構造の最適化により、さらなる高速性が期待できることが示唆された。

(2) DMD 素子を用いた 2 次元光パターン照射装置の開発

理論解析ではまず、構築する光学系に対する点像分布関数を明らかにした。解析モデルにおける光学系の NA には、0.06、0.4 および 0.9 の 3 種類を、光源の波長には 436 nm および 785 nm の 2 種類を検討した。いずれの場合にも、ベッセル関数に従う典型的な回折パターンが見られ、NA が大きく波長が短いほど、試料表面での光パターンの空間分解能が向上し、焦点深度が浅くなる傾向が見られた。次に、DMD 素子によって生成される 2 次元光パターンと点像分布関数との畳み込み積分を行うことで、試料表面での結像特性について評価した。実際の装置構築に使用したレンズの特性から、光学系の NA が 0.06、光源の波長が 436 nm の場合について、DMD 素子 1 ピクセル (9.8 μm 四方) が試料表面に作り出す光パターンは、約 600 nm 四方となることが明らかとなった。

以上の解析結果を基に、高圧水銀ランプを光源とする DMD 素子、結像および対物レンズを用いて装置を構築した。また、試料表面からの反射像は、結像レンズと対物レンズとの間に配置されたダイクロイックミラー (カットオフ波長 450 nm) を介して CMOS カメラ上で再度結像し、制御用 PC により観察した。試料が配置された x y z ステージは、連続的に生成される光照射パターンに同期して自動制御を行った。さらに、ステージ移動や試料の傾きなどに伴うピントずれに対応するため、CMOS カメラ像のコントラスト値を基に z ステージを自動制御する、いわゆるコントラスト法によるオートフォーカス機構を独自の制御用プログラム開発により達成した。また装置全体は、ステンレス製の専用筐体に光学系全体を納めることで、高い防振性と可動性を実現した。

本装置の光照射性能を実験的に評価するため、g 線フォトレジストを用いた露光実験を行った。実験では、ガラス基板に成膜した厚み 1 μm の g 線フォトレジストに対して、波長 436 nm の様々な 2 次元光パターンを照射し、現像を行った後の残レジストパターンを光学顕微鏡により観察した。その結果、500 μm 四方の面積に対して、各部に様々なサイズ・形状を有する任意の 2 次元光パターンの光照射ができることを確認した。これらの実験結果は、理論解析で得られた予測値ともよく一致し、グラフェンメタマテリアルにおける光励起ホットキャリア注入実験に対する有用な知見を得た。

今後、本装置を用いた 2 次元プラズモンの

動的制御実験に取り組むとともに、グラフェンメタ表面を用いたTHz波面制御デバイスを検証したいと考える。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

① 石川篤, “屈折率,” ぶんせき, 9(501), 364 (2016).、査読有

② A. Ishikawa, T. Yatooshi, T. Tanaka, and K. Tsuruta, “Graphene plasmonics,” OPTRONICS, 34, 75 (2015).、査読有

③ T. Yatooshi, A. Ishikawa, and K. Tsuruta, “Terahertz wavefront control by tunable metasurface made of graphene ribbons,” Applied Physics Letters, 107, 053105 (2015).、査読有

[学会発表] (計8件)

① 須一貴啓, 石川篤, 林靖彦, 鶴田健二, “金属-誘電体多層膜の構造最適化による高効率放射冷却”, 第64回応用物理学会春季学術講演会, (パシフィコ横浜, 14th-17th March, 2017).

② 須一貴啓, 石川篤, 鶴田健二, “誘電体多層膜の構造最適化による日中放射冷却デバイスの設計”, 第18回IEEE広島支部学生シンポジウム, (山口大学, 19th-20th November, 2016).

③ 須一貴啓, 鶴田健二, 石川篤, “太陽光照射下における高効率放射冷却デバイスの設計”, 日本機械学会・第29回計算力学講演会, (名古屋大学, 22nd-24th September, 2016).

④ 須一貴啓, 石川篤, 鶴田健二, “モンテカルロ法を用いた日中放射冷却デバイスの構造最適化”, 2016年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会, (岡山大学, 31st July, 2016).

⑤ 矢通拓実, 石川篤, 鶴田健二, “テラヘルツ周波数帯におけるグラフェンメタ表面の設計”, 第17回IEEE広島支部学生シンポジウム, (岡山大学, 21st-22nd November, 2015).

⑥ 小林直寛, 石川篤, 鶴田健二, “デジタルマイクロミラーデバイスを用いたマスクレス露光装置の構築と光メタマテリアルへの

応用”, 第17回IEEE広島支部学生シンポジウム, (岡山大学, 21st-22nd November, 2015).

⑦ 石川篤, “グラフェンメタ表面を用いたテラヘルツ波面制御”, テラヘルツ科学の最前線II, (作並温泉岩松旅館, 19th-20th November, 2015).

⑧ 小林直寛, 石川篤, 鶴田健二, “デジタルマイクロミラーデバイスを用いたマスクレス露光装置の構築と光メタマテリアル作製への応用”, 2015年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会, (徳島大学, 1st August, 2015).

[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]

○受賞 (計1件)

優秀研究賞, 2015年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会, (徳島大学, 1st August, 2015).

ホームページ等

研究者 web ページ

<http://www.ec.okayama-u.ac.jp/~mdd/ishikawa/>

所属研究機関 web ページ

<http://soran.cc.okayama-u.ac.jp/view?l=ja&u=578916f7a015498474506e4da22f6611>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石川 篤 (ISHIKAWA ATSUSHI)

岡山大学・大学院自然科学研究科・助教

研究者番号: 90585994

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし