

平成 21 年 5 月 29 日現在

研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19560036
 研究課題名（和文） 金属／誘電体サブ波長格子によるスラブ導波路型高分散プリズムの試作
 研究課題名（英文） Design and fabrication of a highly dispersive optical prism with metal-and-dielectric subwavelength structure
 研究代表者
 菊田 久雄（KIKUTA HISAO）
 大阪府立大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号：10214743

研究成果の概要：

本研究では、金属と誘電体からなるサブ波長周期格子を用いたスラブ導波路型の高分散分光プリズムの設計と試作に取り組んだ。素子設計においては、波長分散能に対するプリズム設計方法を確立するとともに、集光機能を持った分光プリズムを提案した。素子作製方法の開発では、開口 100nm の深溝にスパッタリングによって金属薄膜を設けた後に銅電解メッキで溝部に金属充填を行う方法、および、テトラクロロ金(III)酸を用いた前処理後に無電解メッキを施す方法について、プロセスを確立した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2008 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 応用光学・量子光工学

キーワード：微小光学，金属誘電体多層膜，分光プリズム

1. 研究開始当初の背景

フォトニック結晶やサブ波長周期構造の光学素子は、誘電体を材料とする新しい光学デバイスとして多くの研究がなされている。申請者もサブ波長構造をもつ光学素子の研究に携わり、高機能な共鳴反射フィルタの試作、反射防止構造の作製技術開発などに取り組んできた。一方、金属格子は光を透過させないものの強い波長分散特性や高い導電性を有することから、表面プラズモン共鳴素子や微小金属環による負屈折率媒質素子として盛んに研究が行われている。本研究では、金属と誘電体からなるサブ波長周期の格子

構造に着目し、新しい光学デバイスとしての可能性を検討する。

光の波長より短い周期をもつ金属／誘電体格子は、磁場が層に平行な光波に対して高い透過率をもつことから、ワイヤーグリッド偏光子として利用されてきた。しかし、厚みある周期構造物を実際に作製することが容易でないこと、構造中での光波特性が十分に理解されていなかったことなどの理由から、他の応用については、ほとんど検討されてこなかった。研究代表者は理論計算によって、金属／誘電体サブ波長格子の実効屈折率が構造中の誘電体の屈折率より高いこと、およ

び、分散面が単純な円筒形状になり、フォトニック結晶をはじめとする誘電体周期構造のものとは全く異なっていることを示していた。高い実効屈折率を利用すると、格子構造をスラブ導波路として機能させることができるとともに、分散面が円筒形状になることから、通常とは異なる回折現象を示す。これらの性質を用いると、高分散分光プリズムや狭帯域波長選択フィルタ、アクロマチック導波路レンズなど、新しい光学デバイスが実現できる可能性がある。

2. 研究の目的

本研究では、高分散分光プリズムや狭帯域波長選択フィルタ、アクロマチック導波路レンズなど、新しい光学デバイスの実現を目指して、金属と誘電体からなるサブ波長周期格子を用いたスラブ導波路型の高分散分光プリズムの設計と試作を行う。とくに、サブ波長周期の誘電体基板に金属メッキを施す方法で金属/誘電体格子を作製する方法確立するとともに、導波路型分光プリズムを試作する。

誘電体周期構造を基本とするフォトニック結晶では、複雑な分散特性を作りだすことができ、多くの新規デバイスの提案がある。しかし、複雑な分散面を利用するために、その光学特性は製作誤差に強く依存する。これに対し、金属/誘電体サブ波長格子は、分散面制御の自由度は少ないものの、製作誤差に鈍感な光学的性質を持つ。また、円筒状の分散面は、通常の誘電体周期構造で実現できない特殊な形である。

3. 研究の方法

近赤外線の波長領域を対象として、図1に示すような金属/誘電体サブ波長格子のスラブ導波路型プリズムを設計・試作する。ここでは、分光プリズムの光学性能の設計方法を確立するとともに、レンズによる集光機能を併せもつための構造の提案と素子設計を行う。一方、素子作製では、精密メッキ法によって100nmの開口をもつ深溝構造に金属を埋め込む技術を確認し、素子を試作する。

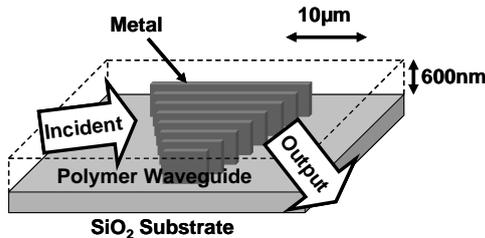


図1. スラブ導波路を用いた金属/誘電体サブ波長構造を持つ三角プリズムの概略図

4. 研究成果

(1) プリズムの設計

本研究では、三角形プリズムとバームクーヘン状の局面プリズムについて、適当な波長分散能を得るための設計方法を明らかにした。図2は三角形プリズムの数値シミュレーション例である。金属/誘電体サブ波長構造の実効屈折率を n_{eff} 、頂角を 2α 、水平軸に対する入射角度と射出角度をそれぞれ θ_{in} と θ_{out} とすると、それらには

$$\sin(\theta_{out} + 2\alpha) = 2 \frac{n_{eff}}{n} \sin 2\alpha + \sin(\theta_{in} - 2\alpha) - \frac{\lambda}{\Lambda} \frac{\cos 2\alpha}{n} \quad (1)$$

の関係が成立する。また、実効屈折率は

$$n_{eff} = \beta_y \frac{c}{\omega} \quad (2)$$

で定義され、 β_y は次の(3)、(4)式を同時に満足する値である。ただし、 a 、 b は金属層と誘電体層の厚さであり、 n_1 、 n_2 はそれぞれの屈折率である。

$$\cos(\beta_x \Lambda) = \cos(k_{1x} a) \cos(k_{2x} b) - \frac{1}{2} \left(\frac{n_1^2 k_{2x}}{n_2^2 k_{1x}} + \frac{n_2^2 k_{1x}}{n_1^2 k_{2x}} \right) \sin(k_{1x} a) \sin(k_{2x} b) \quad (3)$$

$$k_{1x} = \sqrt{\left(\frac{n_1 \omega}{c} \right)^2 - \beta_y^2} \quad k_{2x} = \sqrt{\left(\frac{n_2 \omega}{c} \right)^2 - \beta_y^2} \quad (4)$$

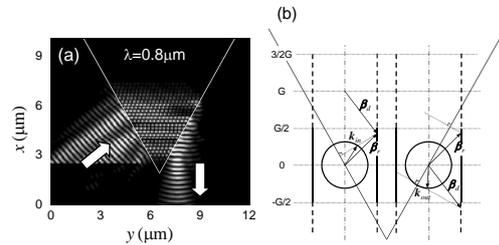


図2. 三角プリズムの電磁波解析例(a)と分散面による光波挙動の説明図(b). 格子周期200nm, 波長0.8 μ m

図3はバームクーヘン状の局面プリズムの数値シミュレーション例である。局面プリズムにおける入射角度 θ_{in} と射出角度 θ_{out} の関係は

$$\sin(\theta_{out} - \alpha) = -\frac{n_{eff}}{n} \tan(\theta_{in} - \alpha + \tan^{-1} 2\alpha) + m \frac{\lambda}{n\Lambda} \quad (5)$$

になる。ただし、 θ_{ri} は

$$\tan \theta_{ri} = \frac{n_{eff} \sin \alpha - n \sin(\theta_{in} - \alpha) \cos \alpha}{n_{eff} \cos \alpha - n \sin(\theta_{in} - \alpha) \sin \alpha} \quad (6)$$

を満たす。

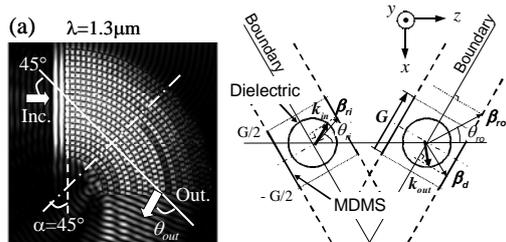


図3. 曲面プリズムの電磁波解析例(a)と分散面による光波挙動の説明図(b). 格子周期 200nm, 波長 1.3 μm

何れの数値シミュレーションにおいても, 射出角度は式(1)および式(5)から得られる角度と良い一致を示している. 射出角度 θ_{out} を波長 λ で微分することで, 波長分散能が得られる. 図4は, 波長分散能を波長で規格化したものである. 格子周期 Λ が 1.0 μm のときの

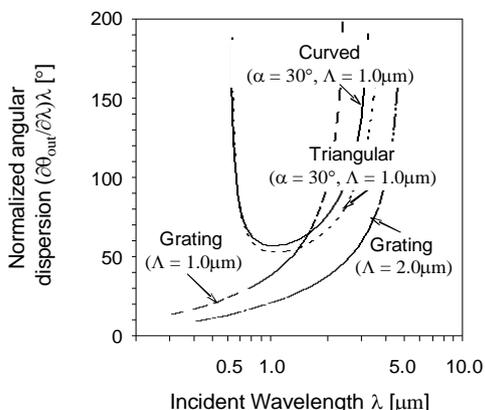


図4. 金属/誘電体サブ波長構造を持つ三角プリズムと曲面プリズムの波長分散能. 格子周期 1.0 μm , 頂角 $2\alpha : 60^\circ$.

三角プリズム, 曲面プリズム, および通常の回折格子の波長に対する角度の変化率である. 金属誘電体格子で構成された分光プリズムは, 通常の回折格子型の分散素子に比べて広い範囲で強い波長分散能が得られることがわかる. 分解可能な波長範囲は格子周期によって設定でき, 波長分散能(感度)はプリズム頂角によって設定できる.

(2)金属誘電体格子レンズの設計

本研究では2種類の集光レンズを考案した. 一つは, 図5に示す片側に楕円曲線をもつ金属/誘電体サブ波長構造である. 光波は誘電体より少し高い実効屈折率をもつ構造内を, 格子層に沿って伝搬する. 光の入射位置によって素子内での伝搬長が異なるので, このような形状を持つ素子は位相素子として機能する. 入射面を楕円曲線状に設定すると, 射出面で等位相面が円になる. 図5は, 格子周期 400nm, 波長 1.5 μm の光に対して, FDTD による光波シミュレーションの結果で

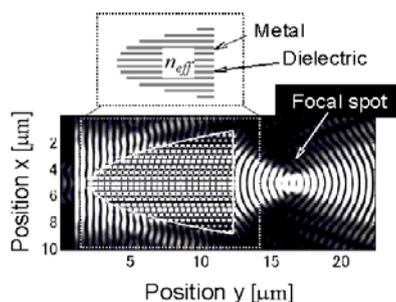


図5. 金属/誘電体サブ波長構造レンズにおける電場エネルギー密度分布. 入射光波長 1.5 μm , 構造周期 0.4 μm , 金属の割合 0.3, 楕円率 0.35.

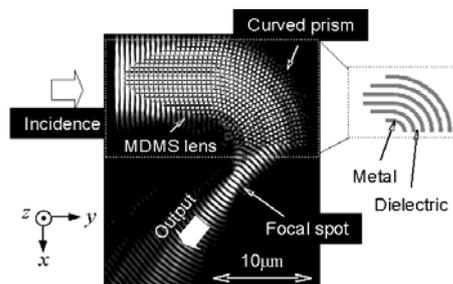


図6. レンズ付き曲面プリズムにおける光波の電場エネルギー密度分布.

ある. レンズ右面から 9 μm の位置に焦点をもち, 集光の半値幅は 1.16 μm であった. なお, レンズの平面側から逆方向に光波を入射すると, 良好な集光が得られない. 楕円の射出面で, 光波の一部が回折するとともに, 屈折により等位相面が円にならないためである. 図5のレンズを図3の曲面プリズムに組み合わせて光波挙動を調べた結果を図6に示す. 集光機能を併せ持つことが分かる.

もう一つのレンズとして, 格子周期を場所を変化させた矩形形状の集光レンズを考案した. その様子を図7に示す. 格子周期が短くなるほど, 実効屈折率が高くなる. したがって, 中心軸上の周期を短くし, 端になるほど格子周期を長くすることで屈折率分布型の集光レンズが実現できる. 図7の例では, 中心付近で約 300nm, 端では約 550nm の周期を

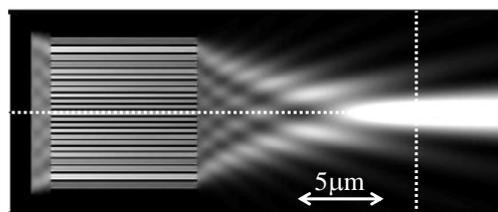


図7. 周期変調型の矩形レンズにおける電場エネルギー密度分布. 入射光波長 1.5 μm , 構造周期 0.4 μm , 金属の割合 0.3

持つ。集光スポットは射出面より $11.0\mu\text{m}$ の位置にあり、スポットの半値幅は $1.4\mu\text{m}$ であった。このレンズでは、光波に対して斜めになる境界面を持たないので、強い反射や回折が発生しない利点がある。曲面プリズムにおいて、格子周期を調整することで、レンズ機能を併せもった分光プリズムが実現できる。

(3) 金属／誘電体格子のズラブ導波路特性

実際の金属／誘電体サブ波長構造は図 1 のように低屈折率の基板の上にスラブ導波路型の平面素子として作製する。たとえば、 $0.6\mu\text{m}$ の厚さの導波路に、 $10\mu\text{m}$ 程度の三角プリズムを作製する。本研究では、金属層に銅を利用する。素子作製を考慮すると、基板を誘電体または金属にする場合、素子上面を空気または金属で覆う場合などの場合が考えられる。導波モード計算および FDTD 法により、それぞれのクラッド層の組み合わせにおける伝搬距離を見積もった。

図 8 (a),(b)は、上下のクラッド層が空気の場合の導波路内の伝搬方向に対する断面、および伝搬方向に垂直な断面での電場の 2 乗分布のシミュレーション例である。数 μm の距離では金属層による強い減衰を伴わずに伝搬することが分かる。図 8 (c)は、金属誘電体格子の層を実効屈折率をもつスラブ導波路と見なして、上下のクラッド層を空気と石英基板、銅と石英基板、および両方を銅にした場合の伝搬距離（強度が半減する距離）の

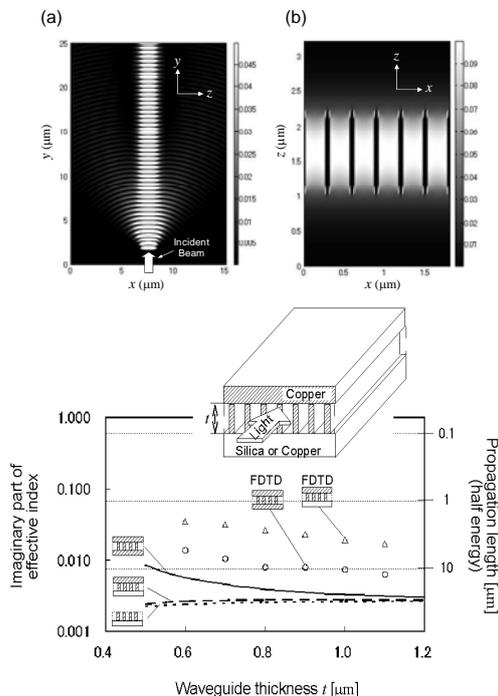


図 8. 金属／誘電体サブ波長構造によるスラブ導波路での伝搬距離。(a), (b) 上下空気層の場合のスラブ導波路内での電場分布。(c) 伝搬距離。○と△は FDTD による結果。入射光波長 $1.5\mu\text{m}$ 、構造周期 $0.4\mu\text{m}$ 、金属の割合 0.3。

計算値である。3次元 FDTD 法によって求めた伝搬距離の方が短い、数 μm の距離なら十分に構造体を透過することが分かる。

(4) 素子作製の手法について

本研究では、金属／誘電体サブ波長構造を実現するために、様々な超精密メッキ法を試みた。なかでも精密電解メッキ法、および無電解メッキ法によって樹脂のサブ波長周期構造に銅を埋め込むことを可能にした。ここではサブ波長構造をもつ誘電体基板として、電子線描画によってパターンニング・現像することで、石英基板上に電子線レジスト樹脂の誘電体サブ波長構造を作製した。次にこの誘電体構造の表面に処理を施した後、電解メッキまたは無電解メッキによって金属を充填する。上部の金属層は必要によって研磨除去する。

電解メッキを行う方法では、予め真空蒸着法によって基板構造に約 50nm 厚の銅を成膜し、これを電極として硫酸銅による電解メッキを行った。図 9 に結果の一例を示す。電解メッキによって、深溝内部に銅が充填されているのが分かる。ただし、銅のメッキが厚くなると、メッキ層の内部応力により樹脂の格子が基板から剥離する問題が発生した。メッキの時間を必要最小限に設定することで構造の薄利が生じないようにできる。

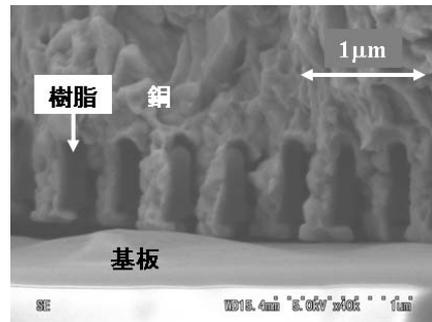
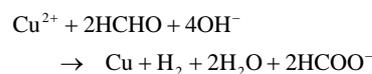


図 9. 200nm の開口を持つ深溝構造に析出した銅の断面像。硫酸銅めっき 20mA , 20min 。

先の電解メッキ法では厳密な時間制御が必要になるなど、再現性を得るためには精密なプロセス管理が必要なる。そこで、内部応力が小さい無電解メッキ法による金属を充填することを試みた。無電解メッキは外部電源を必要とせず、還元剤の還元作用により金属イオンを還元してメッキ反応を行わせる手法である。還元剤にホルマリンを選択した場合の化学反応式は、



である。メッキ反応では、表面だけで還元反応を起こし、析出した全ての銅を基板に付着させたい。そのためにメッキ液は金属の錯化

剤を添加して反応しにくくするために、形成された錯体が比較的安定になるように pH を調整しておく。表面が触媒特性を持つ金属板をメッキ液に入れると、金属表面だけで還元反応が起こり、構造に密着したメッキ膜を得ることができる。したがって、メッキの触媒特性を持つ金属をサブ波長構造の表面に付ける必要がある。銅メッキでは金が触媒特性をもつので、メッキの前処理として、構造表面に金を付着させる。

図 1 0 に無電解銅メッキのプロセスの概要を示す。前処理として、ジアミノエタンにサブ波長構造をもつ基板を 2 時間浸漬し、樹脂表面をアミノ化する(b)。次に、エタノールでリンスした後、テトラクロロ金(III)酸に 2 時間浸漬して樹脂表面に金を付着させる(c)。純水リンスを行い、水素化ホウ素ナトリウムに 120 秒浸漬し、室内乾燥する。この前処理の後、試料をめっき液に浸漬することでメッキ反応が開始する(d)。メッキ浴の組成は、純水 25ml, 硫酸銅 0.75g, 水酸化ナトリウム 1.0g, 酒石酸カリウムナトリウム 3.5g, 37%ホルムアルデヒド 2.5ml である。

上記の手順で微細構造部への金属充填が

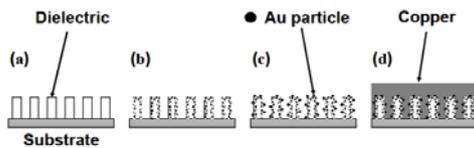


図 1 0. 無電解銅メッキによる深溝充填のプロセス。表面をアミノ化した後にテトラクロロ金(III)酸によって触媒になる金粒子を表面に付着させる。

可能になるが、銅の還元反応時に発生する水素泡が樹脂と銅膜の間に蓄積し、銅の析出を妨げるとともに、形成された銅膜が剥離する問題が生じた。そこで、基板をメッキ浴と純水にそれぞれ 30 秒と 10 秒で交互に浸漬することで、水素をこまめに除去しながら無電解メッキを行うことで、水素泡による銅膜の剥離をなくすことができた。

銅を充填した基板の断面 SEM 像を図 1 2 (a)に示す。銅の粒径が少し表れていること、およびメッキ層の表面が荒れていることが分かる。

上述の無電解銅メッキのプロセスでは、前処理段階で長時間試薬に浸漬するために、微細構造の樹脂が基板から剥離しやすくなる。そこで、(b),(c)の行程を、プラズマを用いた金スパッタに置き換えて無電解メッキを行うことを試みた。金スパッタによって付けられた構造表面の金粒子または金薄膜が種となってメッキが開始される。メッキの結果を図 1 1 (b)に示す。薬品を用いる前処理での結果に比べて、金スパッタによる方法では銅の結

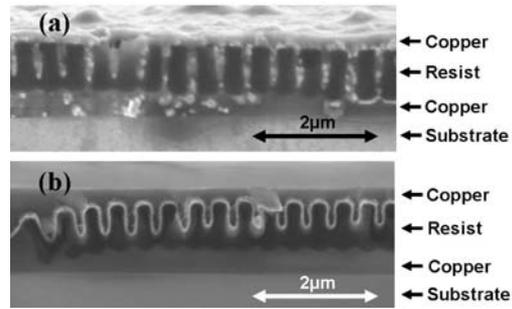


図 1 1. 周期 400[nm], 溝幅 100[nm]の微細構造に無電解めっきを行った基板の断面 SEM 像。(a)前処理後無電解めっき。(b)スパッタリング後無電解メッキ

晶粒界が見られず、メッキ表面も滑らかである。また、樹脂構造も基板から剥がれ難くなった。

その他、銀の無電解メッキによる方法も試みた。図 1 2 は、開口 500nm の溝に銀鏡反応をによって銀を埋め込んだ例である。この例では溝部に銀を充填できているが、より開口の狭い構造では、銀を充填することができなかった。図 1 2 に見られるように、約 150nm の銀の結晶粒が観察されており、これが狭い深溝構造への金属充填を妨げている原因である。

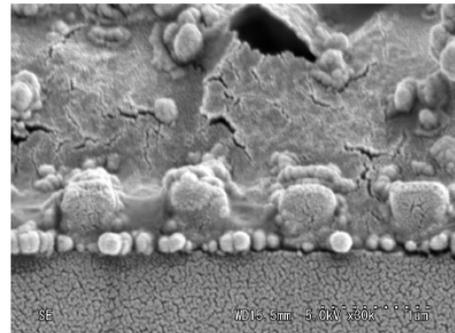


図 1 2. 無電解銀メッキ(銀鏡反応)による 500nm 開口の溝への銀の充填結果

(4)成果のまとめ

今回の研究では高い波長分散能を持つ金属誘電体サブ波長構造プリズムの設計方法を提案し、数値シミュレーションを交えて光学性能を予測することができた。一方、素子作製においては、電解メッキ法および無電解メッキ法によって、サブ波長の深溝構造に金属を充填する手法を確立することができた。しかし、プリズムの分光特性を観察するに至らなかった。平成 22 年 5 月現在、引き続き、金属誘電体プリズムの作製・評価に取り組んでいる。

なお、三角プリズムを基本とする金属/誘電体サブ波長構造の原理については論文済みである。また、レンズを含めた金属/誘電

体サブ波長構造プリズムの設計方法については、現在、論文発表の準備を行っている。また、深溝構造への金属充填法は、消光比の高いワイヤーグリッド偏光子の作製など、新たな光学素子の作成技術として利用できる。

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 2 件)

- ① S. Kameda, Y. Ohta and H. Kikuta, “Refraction and Diffraction by a Metal and Dielectric Multilayered Prism”, Journal of the Optical Society of America A, Vol.25, 903-910 (2008). 査読有り
- ② H. Kikuta, “Technical Strategy for advanced micro and nano-structured optical elements”, Proc. SPIE, Vol. 6834, 683404 (2008). 査読なし

[学会発表] (計 4 件)

- ① 亀田信治, 水谷彰夫, 菊田久雄 「金属／誘電体多層構造を用いた導波形レンズ」第 69 回応用物理学学会学術講演会 2008.9.2. 春日市.
- ② S. Kameda, A. Mizutani and H. Kikuta, “Numerical study on a slab microlens with metal-and-dielectric multilayered structure”, International Commission for Optics ICO-21 2008 Congress, 2008.7.9. Autraria.
- ③ S. Kameda and H. Kikuta, “Design of highly dispersive optical prism of metal-and-dielectric multilayered structure”, EOS Topical Meeting on Diffractive Optics 2007, 2007.11.21. Spain.
- ④ 亀田信治, 菊田久雄, 「金属／誘電体多層構造プリズムのための金属クラッド光導波路の設計」, 第 68 回応用物理学学会学術講演会 2007.9.7. 札幌.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

菊田 久雄 (KIKUTA HISAO)
大阪府立大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：10214743