

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 30 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23310095

研究課題名(和文) プラズモニック八木宇田アンテナを用いたナノエミッターの光インターコネクション

研究課題名(英文) Optical interconnection of nano-emitters using plasmonic Yagi-Uda antennas

研究代表者

角屋 豊 (Yutaka, Kadoya)

広島大学・先端物質科学研究科・教授

研究者番号：90263730

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,700,000円、(間接経費) 4,410,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ八木宇田アンテナによる光インターコネクションを目指して研究を行った。(1)均質媒質中での光八木宇田アンテナ放射パターンの観測を実現し、指向性ゲインや放射半値角の定量的評価に成功した。(2)平面光回路への展開として誘電体導波路へのアンテナの埋め込みを行い、5素子アンテナにおいて放射・受光ともに約4倍のゲインがあること、放射と受光の両方に5素子アンテナを用いたインターコネクションにおいて約15倍のゲインが得られることを実証した。(3)光八木宇田アンテナによる量子ドット発光制御のための金パターン上への量子ドット固定の手法を確立し、100 nm角領域への選択的な固定に成功した。

研究成果の概要(英文)：We performed the research aiming at the realization of optical interconnection using Yagi-Uda antennas. (1)We realized a measurement of radiation pattern from optical Yagi-Uda antennas in a homogeneous medium using liquid immersion method and succeeded in a quantitative evaluation of the fundamental parameters such as the directional gain and half-angle radiation, for the first time. (2)We embedded optical Yagi-Uda antennas in a planar dielectric waveguide as an approach to planar optical circuit technology. It was found that the radiation and reception gain of 5-element antenna is about 4. In addition, a gain as high as 15 was demonstrated in the interconnection between the Yagi-Uda antennas in the waveguide. (3)Toward the control of spontaneous emission from quantum dots by Yagi-Uda antennas, a method of immobilize quantum dots on a gold pattern was established. The quantum dots were successfully immobilized on a 100 nm square region.

研究分野：光物性・デバイス

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・マイクロ・ナノデバイス

キーワード：プラズモニクス 八木宇田アンテナ 量子ドット

1. 研究開始当初の背景

量子ドットや分子などのナノスケール発光体の物性と応用に関する研究は 1980 年代から行われ、生体分子の動きを捕えるためのマーカーとして既に広く用いられている他、近接場結合した量子ドット配列による光演算や単一光子光源などの研究も進められている。単一ナノエミッターにおける難点の1つに、波長限界で決まる集光スポットサイズとのスケール不整合があげられる。プローブを用いた単一ナノエミッター計測の研究は大きく進展したが、プローブ法は実デバイスにおけるインターフェースとしては適当ではない。一方、近年リソグラフィ等によって形成された金属ナノパターンをダイポールアンテナとして用い、ナノ発光体の光学応答を制御する研究が国内外で進められている。本研究の代表者は、金属ナノロッドの局在プラズモン共鳴を利用して、可視光に対する八木宇田アンテナ設計論を提案し、その実証に成功した。

2. 研究の目的

ナノエミッターを用いた光機能デバイスの実現に向けて、ナノエミッターと外界とのインターフェースは工学としても、また応用上も極めて重要である。本研究では、八木宇田アンテナによるナノエミッター光インターコネクションを実現することを目指し、次の3点を目的として研究を進めた。

- (1) 光八木宇田アンテナの基本特性の精密な検証と高性能化：光八木宇田アンテナの特性を詳細に調べ、また指向性をさらに高める。
- (2) 誘電体導波路埋め込み光八木宇田アンテナ：アンテナを誘電体光導波路と組み合わせ、等方的な指向性を有するナノエミッターからの放射を導波路に強く結合させる。
- (3) 光八木宇田アンテナによる量子ドット発光の制御：アンテナのフィードエレメントにナノエミッターとして量子ドットを固定し、その発光の指向性を制御する。

3. 研究の方法

アンテナの各素子の特性やアンテナの設計および結果の解析には、結合ダイポールモデルおよび有限差分時間領域(FDTD)シミュレーションを用いた。ナノアンテナパターンは、電子線露光と真空蒸着した金薄膜のリフトオフにより作製した。また金膜への量子ドットの固定にはチオール分子をもつ自己組織化膜を用いた。以下項目ごとの研究方法を詳しく述べる。

(1) 光八木宇田アンテナの基本特性の精密な検証と高性能化

一般にナノアンテナはガラス等の基板の上に作製されるため、その放射パターンは基板と空気の屈折率差に強く影響され、性能の定量的な議論が困難である。本研究では、基板上に作製したアンテナを屈折率制御したオ

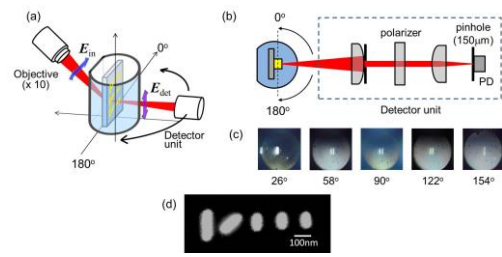


図 3-1 液浸放射パターン測定系の概要；(a) 全体、(b)検出部、(c)検出部回転時の検出面画像、(d)八木宇田アンテナの SEM 像。

イル中に浸すことで屈折率差をなくし、アンテナ本来の放射指向性を測定した。図 3-1 に開発した液浸放射パターン測定系の概要を示す。この測定において最も重要な点は角度精度であり、そのためには素子とオイル容器および検出器回転の中心を精密に合わせることが必須である。本研究では(c)に示すように、回転時の素子画像を取得して調整を行った。素子画像における素子位置のずれが最大でも 50 μm 程度であることから、角度の精度が 0.1° であり、本測定における分解能 2° と比べて十分であることが確認された。

図 3-1(d)に測定に用いた 5 エレメント八木宇田アンテナの走査電子顕微鏡(SEM)像を示す。八木宇田アンテナはフィードエレメントのみが励起されることが前提となっているため、フィードエレメントのみを 45° 傾け、アンテナ軸にそった偏光で励起する。フィードエレメントでは、励起光と垂直な偏光成分が発生しアンテナによって放射される。測定ではこの偏光成分を検出する。

(2) 誘電体導波路埋め込み光八木宇田アンテナ

作製した素子の概念図を図 3-2(a)に示す。スパッタ法で成膜した屈折率 $n=1.6$ の SiON 膜をコア、石英基板および空気をクラッドとする誘電体スラブ導波路の中に、アンテナと励起および光取出し用のグレーティングカップラを配置した。図 3-2(b)に作製した光八木宇田アンテナの電子顕微鏡像の例を示す。

図 3-2(c)に測定系の構成を示す。アンテナからの放射を調べる際には励起光(波長可変チタンサファイアレーザー)をアンテナに照射し、アンテナから放射され導波路に結合した光をカップラで取り出す。アンテナの受光特

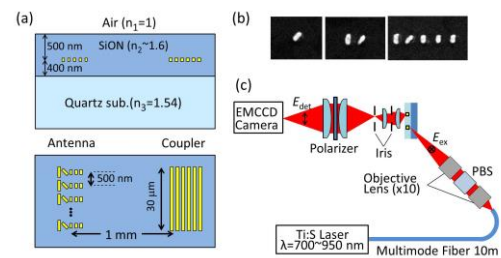


図 3-2 (a)素子の構成、(b)八木宇田アンテナの SEM 画像、(c)測定系の構成

性を調べるさいは、逆にカップラーを通して導波路に光を入射し、アンテナで受光された光がアンテナのフィード素子から再放射する光を観測する。また、アンテナ間での放射・受光の実験においては、図中のグレーティングカップラをアンテナで置き換えた素子を用いた。いずれの場合も観測には電子増倍 CCD カメラを用い、アンテナの励起およびアンテナからの再放射を観測する際には、フィードエレメントのみが応答する、アンテナ軸と平行な偏光成分を用いた。

詳細は割愛するが、各エレメントの透過スペクトルを別途測定した。この結果、フィード、反射、および導波の各エレメントの共鳴波長は、それぞれ 725 nm, 730 nm, および 650 nm であった。シミュレーションにおいては、これらのスペクトルを再現するように決めた各エレメントのモデルを用いた。

(3) 光八木宇田アンテナによる量子ドット発光の制御

使用した量子ドットは、直径約 10 nm で水に分散している市販のものである。コアがセレン化カドミウム、周囲を硫化亜鉛で覆われ、さらにその上にカルボキシル基を持っている。この量子ドットを固定するために、金原子に選択的に結合するためのチオール基と量子ドットと結合させるアミノ基を有するアミノデカンチオール自己組織化膜を利用した。アミノデカンチオールの 0.1 mM アルコール溶液内に金基板を 24 時間 (37°C) 浸漬した。一方、量子ドット表面のカルボキシル基を活性化するために、量子ドット分散液にカルボジイミドを混合し、その分散液内に自己組織化膜を形成した金基板を浸漬することで、金基板上のアミノ基と量子ドット表面のカルボキシル基の間のアミド結合で量子ドットを固定化した (図 3-3)。

光八木宇田アンテナに量子ドットを固定するためには、金基板上の微小な領域にだけに量子ドットを固定する技術を確認する必要がある。このための実験として、金表面上に電子線レジストパターンを形成し、上記の方法で量子ドットを固定した。(図 3-4)。固定部位以外に残存する量子ドットは、レジスト除去段階でリフトオフされる。その際、量

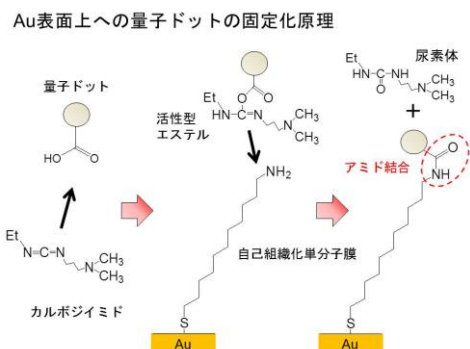


図 3-3 金基板上への量子ドットの固定方法。

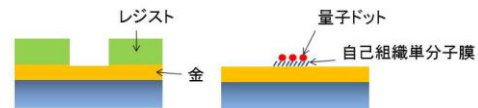


図 3-4 リフトオフによる量子ドット固定パターンの作製。

子ドットの再付着を防ぐために、複数回に分けて溶剤と超音波洗浄によるレジスト除去を実施した。

自己組織化膜は、X 線光電子分光 (XPS) によってその形成を確認した。固定された量子ドットは、蛍光を落射蛍光顕微鏡を通した電子増倍 CCD カメラを用いて光学的に観察をおこなった。また、個々の量子ドットを観察するために原子間力顕微鏡 (AFM) も用いた。

4. 研究成果

(1) 光八木宇田アンテナの基本特性の精密な検証と高性能化

測定系の検証を兼ね、種々の屈折率のオイルを用いた場合の、単一エレメントからの放射指向性の測定結果を図 4-1 に示す。実験結果は相反定理に基づく理論予測と極めて良い一致を示し、単一 Au ナノパターンからの放射が電気双極子放射と見なせること、オイルの屈折率を 1.523 とすると、基板との屈折率差が無視でき均質媒質と見なせる等方的な放射が得られること、さらに屈折率の僅かな差 (0.001) が放射パターンに影響すること等が明らかになった。

図 4-2 に 1 (単一)、2 および 5 エレメントからなる八木宇田アンテナの放射パターンを示す。均質と見なせる環境 ($n=1.523$) の場合に、八木宇田アンテナ本来の放射パターンが観測され、数値シミュレーションとよい一致を示すことが明らかになった。また、屈折率差を 0.002 とすると放射パターンがゆが

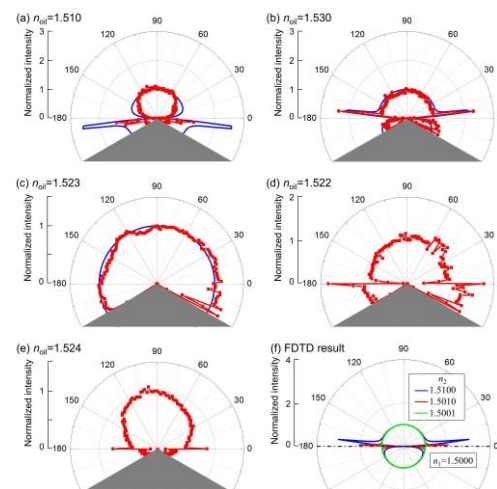


図 4-1 単一エレメントからの放射パターン；(a)-(e)放射パターンの測定結果 (赤●) と理論予測 (青線)，(f)僅かな屈折率差がある場合の放射パターンの理論予測。

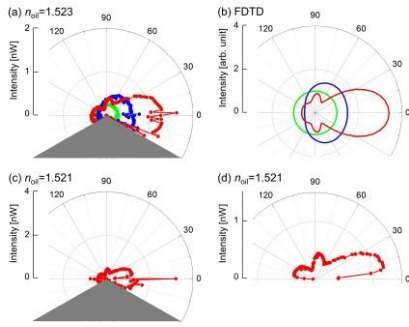


図 4-2 八木宇田アンテナからの放射パターン；(a)測定結果（赤：5素子，青：2素子，緑：1素子アンテナ），(b)各アンテナの数値シミュレーション結果，(c)屈折率差 0.002 の場合の 5 素子アンテナの放射パターン，(d)(c)の拡大図。

むこと，またその際も低屈折率側では均質媒質と類似のパターンが得られることが明らかになった。測定された放射パターンから，2 エレメント，5 エレメントの場合に指向性ゲインがそれぞれ 2.2 および 4.7，放射半値各がそれぞれ 104° ， 38° であることが見積もられた。これらの値は数値シミュレーションの結果にほぼ対応していることが示された。以上のように，液浸法を用いることで，光八木宇田アンテナの基本特性の精密な測定に成功した。

(2) 誘電体導波路埋め込み光八木宇田アンテナ

観測されたカメラ画像の例を図 4-3 に示す。いずれの場合も，単一ダイポール（フィードのみ），2 エレメント，5 エレメントの順に強度が強くなっており，八木宇田アンテナを用いることで，ダイポールと誘電体導波路との結合が増強されることがわかる。

カメラ画像から光強度を求め，単一ダイポール（フィードのみ）を基準とする相対強度をアンテナゲインと定義した。図 4-4 に放射，受光ゲインの波長依存性を示す。図中には FDTD シミュレーションの結果も示している。実験結果に乱れはあるものの，実験結果とシミュレーションの結果は良く対応し，放

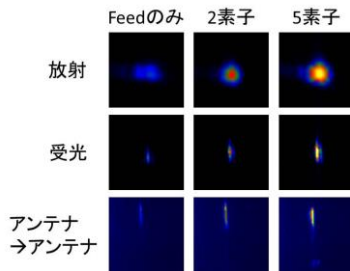


図 4-3 観測されたカメラ画像の例。アンテナからの放射の場合はグレーティングカップラ部分，アンテナでの受光の場合はアンテナ部分，アンテナ間の放射・受光の場合は受光側アンテナ部分の拡大画像を示した。

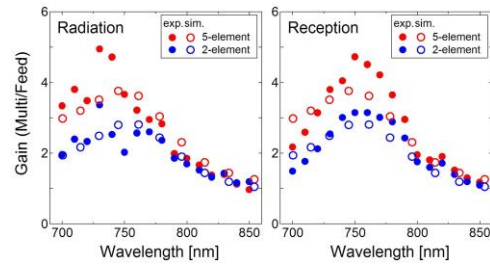


図 4-4 放射・受光ゲインの波長依存性

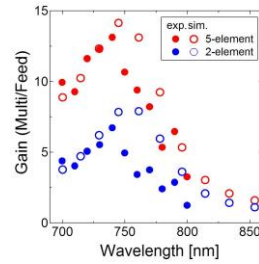


図 4-5 アンテナ間放射・受光におけるゲインの波長依存性

射・受光ともに 4 倍程度のゲインが得られることが明らかになった。なお，放射と受光の特性が同様になることは，アンテナの一般論として知られていることであるが，これが光八木宇田アンテナにおいても成り立っていることも確認された。また，詳細は割愛するが，これらの最大ゲインの値は，アンテナを均質媒質中に置いた場合の指向性ゲインとほぼ同じ値になることも，シミュレーションによって確認している。

図 4-5 に放射と受光の両方に八木宇田アンテナを用いた場合のゲインを波長の関数としめた。この場合のゲインはそれぞれのゲインの積と考えられることから，シミュレーション結果としては放射ゲインの 2 乗とした。実験結果はシミュレーションと良く対応しており，15 倍(12dB)程度のゲインがあることが明らかになった。この実験では外部励起光によるアンテナの駆動となっているが，ナノエミッターをフィードエレメントで模擬した，光八木宇田アンテナ間のインターコネクションとも言えるものである。

(3) 光八木宇田アンテナによる量子ドット発光の制御

自己組織化単分子膜に金表面に固定した量子ドットを蛍光顕微鏡によって観察した結果を図 4-6 に示す。単分子膜とカルボジイミドを加えた場合に蛍光量が最も多くなり，最も多くの量子ドットが固定されていることを示している。単分子膜またはカルボジイミドの片方がない場合には，蛍光量が半減しており，量子ドットの固定量が減っていることを示唆している。この結果は，量子ドットが吸着によっても，ある程度表面に固定されるが，アミド結合を形成させた場合に最も多くの量を固定されることを示している。

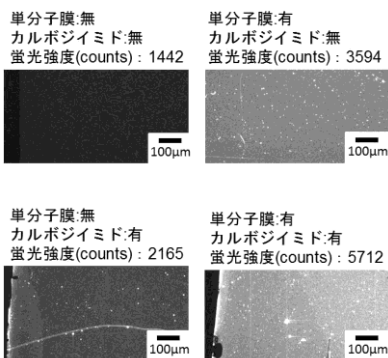


図 4-6 量子ドット固定表面の蛍光顕微鏡像。

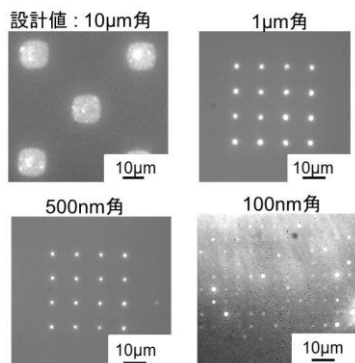


図 4-7 基板上パターンに固定された量子ド

電子線レジストパターンを用いた部分的量子ドット固定の結果(蛍光顕微鏡による観察像)を図 4-7 に示す. $10\ \mu\text{m}$ 角のパターンでは, 作製したパターン通りの蛍光が観察され, 設計通りに量子ドットが固定されていることがわかる. $100\ \text{nm}$ 角のパターンにおいても, 対応した領域からの蛍光が観察されており, 領域を限定して量子ドットが固定できていることを示している. $10\ \mu\text{m}$ 角の蛍光顕微鏡像では, 領域内に蛍光のムラが観察されており, これは固定された量子ドットの密度にムラが存在したためであると考えられる.

固定された量子ドットの AFM 像を図 4-8 に示す. $10\ \mu\text{m}$ 角, $1\ \mu\text{m}$ 角, および $500\ \text{nm}$ 角のパターンにおいて, 領域内に量子ドットが固定されている様子が観察できた. AFM 像において, 量子ドットに対応する明るい粒子の高さは一様ではなく, 一部の領域では 7 倍程度の高さの差が存在している. これは, 量子ドットが凝集して固定されていることを示している. この凝集は反応溶液条件などを制御することで低減できると考えられる.

全体の固定密度を AFM 像から求めたところ, 約 $10\ \text{個}/(100 \times 100\ \text{nm}^2)$ であった. 即ち, 金露出領域を光八木宇田アンテナのフィードエレメント ($100 \times 50\ \text{nm}^2$) に対応する $30\ \text{nm}$ 角程度に制限できれば, 単一の量子ドットを固定できる可能性があることを示している.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

- ① T. Sugita, K. Yanazawa, S. Maeda, H. F. Hofmann, Y. Kadoya, Radiation pattern of plasmonic nano-antennas in a homogeneous medium, *Optics Express*, Vol. 22, No. 11, pp. 13263-13268, DOI:10.1364/OE.22.013263, 査読有, 2014 年 5 月

〔学会発表〕(計 10 件)

- ① 飯尾敦, 徳原克俊, 角屋豊, 坂上弘之, 萩萩隆行, 鈴木仁, 自己組織化単分子膜を用いた微小領域への量子ドットの固定化, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 20 日, 青山学院大学

- ② 角屋豊, 光のアンテナ, 文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業 微細加工プラットフォーム 広島大学・山口大学・香川大学・FAIS 合同シンポジウム, 2013 年 11 月 20 日, 広島大学(基調講演)

- ③ K. Yanazawa, Y. Tobisu, S. Maeda, H. Hofmann, Y. Kadoya, Radiation and Receiving Gain of Nano-optical Yagi-Uda Antenna Embedded in Slab Dielectric Waveguide, Conference on Laser and Electro-Optics, 2013 年 6 月 14 日, San Jose, USA

- ④ T. Sugita, S. Maeda, H. Hofmann, Y. Kadoya, Radiation Pattern of Plasmonic Yagi-Uda Antennas in a Homogeneous Medium Realized by Liquid-Immersion Method, Conference on Laser and Electro-Optics, 2013 年 6 月 14 日, San Jose, USA

- ⑤ Y. Kadoya, Y. Tobisu, S. Maeda, K. Yanazawa, T. Sugita, H. Hofmann, Receiving gain of optical Yagi-Uda antenna embedded in dielectric slab waveguide, The 6th International Conference on Surface Plasmon Photonics, 2013 年 5 月 30 日, Ottawa, Canada

- ⑥ 飛子雄介, 柳澤佳織, 前田智志, 梶田孝史, 角屋豊, H. F. Hofmann, 誘電体導波路中に埋め込んだ光アンテナの受光特性, 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 14 日, 愛媛大学

- ⑦ 柳澤佳織, 飛子雄介, 角屋豊, H. F. Hofmann, 誘電体導波路中に埋め込んだ光八木宇田アンテナの数値解析, 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 14 日, 愛媛大学

- ⑧ 梶田孝史, 吉田晃, 前田智志, 角屋豊, H. F. Hofmann, 誘電体界面におけるダイポール放射の液浸法による指向性測定, 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 14 日, 愛媛大学

- ⑨ 前田智志, 飛子雄介, 吉田晃, ホフマンホルガ, 角屋豊, 光ナノ八木宇田アンテナの設計, 応用物理学会中国四国支部 2011 年度支部学術講演会, 2011 年 7 月 30 日, 鳥取大学

⑩飛子雄介, 前田智志, 吉田晃, ホフマンホルガ, 角屋豊, 誘電体導波路中に埋め込んだ光八木宇田アンテナの放射指向性, 応用物理学会中国四国支部 2011 年度支部学術講演会, 2011 年 7 月 30 日, 鳥取大学

[その他]

<http://home.hiroshima-u.ac.jp/hikari/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

角屋 豊 (KADOYA, Yutaka)
広島大学・大学院先端物質科学研究科・教授

研究者番号：90263730

(2) 研究分担者

鈴木 仁 (SUZUKI, Hitoshi)
広島大学・大学院先端物質科学研究科・准教授

研究者番号：60359099

ホフマン ホルガ (HOFMANN, Holger)
広島大学・大学院先端物質科学研究科・准教授

研究者番号：90379909