

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月23日現在

機関番号：15401
 研究種目：挑戦的萌芽研究
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23651149
 研究課題名（和文） プラズモニク・グラフェン

研究課題名（英文） Plasmonic Graphene

研究代表者

西田 宗弘 (NISHIDA MUNEHIRO)
 広島大学・大学院先端物質科学研究科・准教授
 研究者番号：10329112

研究成果の概要（和文）：直径数百ナノメートルの穴の列（ナノホール列）を形成した金属薄膜における電磁波モード、及び、光の反射・透過スペクトルを評価するシミュレーション・ソフトウェアを開発した。これを用いて、三角格子状ナノホール列に対する反射スペクトルに現れるディップの起源を明らかにした。また、蜂の巣状ナノホール列において、グラフェン中の電子と同様のバンド構造が得られることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：We have developed a simulation software which calculates the modes of electromagnetic waves and the spectra of light reflection and transmission for the metal film where an array of holes with a few hundred nanometer (nanohole array) is created. We revealed the origin of the dips in the reflection spectra for triangle nanohole arrays. We also showed that honeycomb arrays of nanoholes can have plasmonic band structure similar to the electronic band structure in graphene.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,100,000	930,000	4,030,000

研究分野：物性物理学

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：ナノ光デバイス, プラズモニクス, グラフェン

1. 研究開始当初の背景

(1) 金属表面に励起される表面プラズモンとの共鳴により、光の透過・反射スペクトルには急峻なピーク構造が生じる。ピーク位置は表面に吸着した物質の誘電率に応じて敏感に変化するため、非標識でリアルタイムなバイオ・センサーの開発が可能と考えられ、盛んに研究されている。特に、金属薄膜上のナノホール列系は、光ナノインプリント法により容易に作成出来ること、簡便な光学配置で高感度な測定が可能であることから注目されている。

(2) グラフェンは蜂の巣構造の単一原子層からなる炭素結晶であり、伝導帯と荷電子帯が

点接触する形の π 電子バンド構造を有する事が知られている。この接触点(ディラック点)付近の電子状態は、相対論的な質量ゼロの量子力学的粒子に対するディラック方程式で記述される。ディラック点の存在は、ブロッホ波動関数の逆格子空間でのトポロジーに由来しており、格子の歪みに依らず安定に維持される。さらに、系の端には、局在したトポロジカルに安定なエッジ状態が形成されることが分かっている。これらの物理はトポロジカル絶縁体や異方的超流動・超伝導系などでも見出され、急速に研究が進展している。

(3) 研究代表者は相対論的量子力学が関与す

る超流動・超伝導現象の研究を行って来ている。その研究の中から、直径数百ナノメートルの穴の周期的な列(ナノホール列)を蜂の巣状に形成した金属薄膜(図1)が上記二つの系の特徴を併せ持つと予想し、本研究の着想が生まれた。

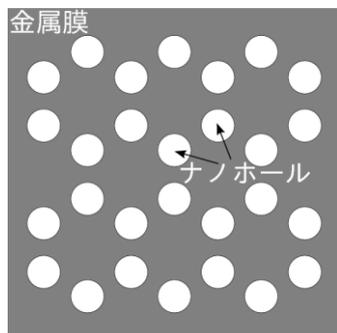


図1 蜂の巣状ナノホール列

2. 研究の目的

蜂の巣状ナノホール列を形成した金属薄膜の表面には、ブロッホ波表面プラズモン・ポラリトン(BW-SPP)という電磁波モードが存在する。穴の配置を蜂の巣構造にすることにより、ナノホール列中のBW-SPPは、グラフェン中の π 電子系と同様に逆格子空間のK点に接触点(ディラック点)があるバンド構造を持つと考えられ、また、端のあるナノホール列では、端に局在したトポジカルに安定なエッジ状態が形成されると考えられる。

本研究の目的は、このバンド構造とエッジ状態の存在を理論的に明らかにすると共に、この系に入射した光の透過・反射スペクトルを、数値シミュレーションを用いて検証する事により、BW-SPPエッジ状態と光の共鳴現象を用いた新しいバイオ・センサーの可能性を探る事である。

3. 研究の方法

本研究では、(1)有限差分時間領域法(FDTD法)と(2)平面波展開法という2つの手法を用いて、ナノホール列系の電磁場シミュレーションを行った。

(1) FDTD法

ナノホール列が形成された金属薄膜に垂直に光が入射した際の透過・反射スペクトルの評価を、FDTD法による数値シミュレーションを用いて行った。FDTD法は、離散的な格子点上のみで定義された電磁場を、一定の時間ステップで時間発展させる方法である。本研究では、MITで開発されたオープン・ソース・ソフトウェアであるMeepを用いた。

Meepはフォトニック・バンドの多くの研究に使用されているが、金属の誘電率の代表的

なモデルであるドルーデ・モデルが用意されておらず、金属を含んだ系に対する検証が十分には行われていなかった(2012年7月にリリースされた最新版では用意されている)。

そこで、筑波大学の実験グループとの共同研究において、三角格子ナノホール列系に対する実験結果の検証をMeepを用いて行うことにより、計算結果の妥当性を確認すると共に、反射スペクトルに現れるディップの起源について検証を行った。

FDTD法を用いて得られた結果と比較することにより、(2)で述べる平面波展開法を用いて開発したソフトウェアの動作検証を行う事が出来る。

(2) 平面波展開法

蜂の巣状ナノホール列系におけるBW-SPPバンド構造の評価には、フォトニック・バンドや回折格子の計算に良く用いられている平面波展開法を用いた。

本研究で注目するナノホール列系は、金属薄膜が上下の空気層で挟まれた3層構造になっている。各層の面内方向にブロッホ周期境界条件を用いると、電場に対する固有値方程式が導出でき、これを数値的に解くことにより各層に対する固有モードが求まる。得られた固有モードを用いて、層間での多重散乱を考慮した散乱行列を構成する。散乱行列の逆行列に対するゼロ固有値から、金属膜中に局在した電磁波モードが求まる。各結晶波数に対する局在モードを求めることにより、プラズモン・バンド構造が得られる。さらに、散乱行列の要素の内、空気層での伝搬モードに対応する要素を抜き出すことにより、透過・反射スペクトルが得られる。

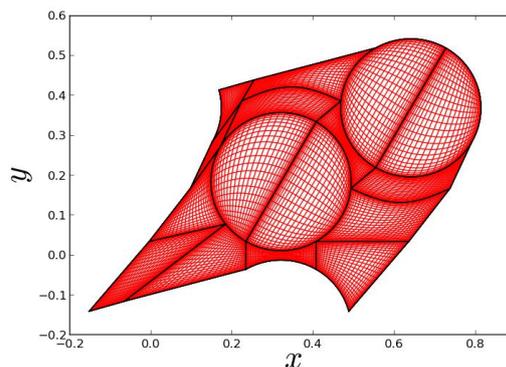


図2 座標格子の設定

金属と誘電体が接したナノ構造に対して平面波展開法を用いる場合、金属-誘電体界面での誘電率の不連続性の強さから、計算の収束性が非常に悪くなり不安定化することが知られている。これを回避する為に、ナノホールの界面が矩形に変換される様な座標変換を考案し、変換後の新座標系において、

Lifeng Li によって開発された因子分解則 (L. Li, J. Opt. Soc. Am. A 13, 1870 (1996)) を用いることにより、不安定化を回避した。実際に座標変換に用いた座標格子を図 2 に示す。赤実線で描かれた格子の領域は、蜂の巣格子の単位胞となっている。

4. 研究成果

(1) 三角格子ナノホール列

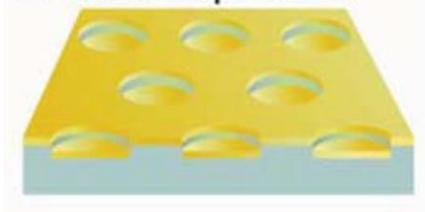


図 3 三角格子ナノホール列

図 3 に示した三角格子ナノホール列に垂直入射する光に対する透過・反射・吸収スペクトルを FDTD 法により求めた。反射スペクトルの計算結果は共同研究者の実験結果の振る舞いを良く再現した。さらに、実験では得られていない透過・吸収スペクトルを調べることにより、スペクトルに現れるディップ構造の起源を推定する事が可能となった。

図 4 に計算結果を示す。青色の反射スペクトルには、Dip1, Dip2 の二つのディップが現れる。これはナノホール列の何らかの固有モードが共鳴的に励起されている事を示唆している。Dip1 の現れる入射波長が、BW-SPP との共鳴から期待される波長と良く一致する事、及び、Dip1 で透過率が極小になり、逆に吸収率が極大になっている事から、Dip1 は、金属膜表面の BW-SPP 励起によって、金属中でエネルギーが消費されることによって起こっている事が推定された。

一方、Dip2 においては、透過率が極大になっており、入射光の大部分が透過している事がわかった。また、Dip2 の入射波長は、ナノホールを導波路と見なした場合に期待される HE₁₁ モードの遮断波長に近い値となっている事がわかった。図 3 の様に、試料中のナノホールの下部には、金の円盤が配置されているが、これを取り除いてシミュレーションを行うと、三角格子の格子間隔を大きくしていった極限で遮断波長に一致する事が見出された。この事から、Dip2 は、ナノホールの遮断波長において共鳴的に導波が起こる事によって生じていると推定された。

上記の推定は、図 5 に示した共鳴波長での電場強度分布からも妥当であることがわかる。波長 695nm の Dip1 においては、電場強度は金膜の上面に強く分布し、上面の BW-SPP を励起している様子が見られ、また、波長 845nm の Dip2 においては、ナノホール

と金円盤が協同的に導波している様子が見て取れる。

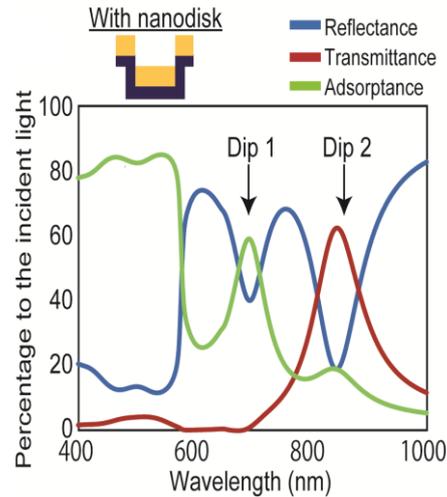


図 4 三角格子ナノホール列の反射・透過・吸収スペクトル

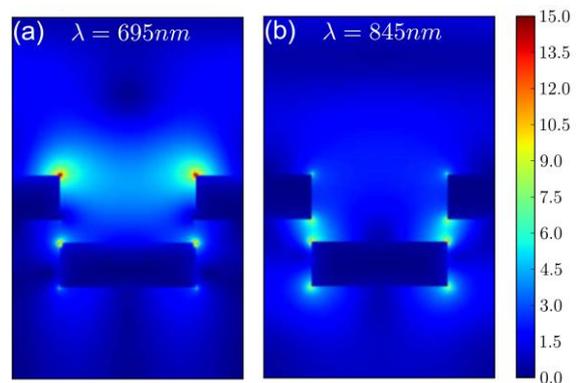


図 5 共鳴波長における電場強度分布

(2) 蜂の巣状ナノホール列

図 1 に示した蜂の巣状ナノホール列に垂直入射する光に対する反射スペクトルを、FDTD 法、平面波展解法を用いて計算したところ、ほぼ完全に同じ結果が得られた。これは、独自開発した平面波展解法のシミュレーションが正しく動作している事を示している。

計算結果から、三角格子の場合と同様に、下記①②の 2 種類の共鳴が起こっている様子が確認された。

①BW-SPP 共鳴

図 6 に空格子近似により解析的に求めた BW-SPP のバンド構造を示す。当初の予想通り、K 点においてバンドが点接触している事が確認できる。

図 7 にナノホールの半径 100nm、ホール間距離 577nm の場合の反射スペクトルを示す。図 6 のバンドとほぼ同じ位置で反射率が極小

になっている事が見取れる。また、K 点の入射波長 770nm 付近でバンドが交差し、バンドが点接触している事が拡大図 8 より確認出来た。

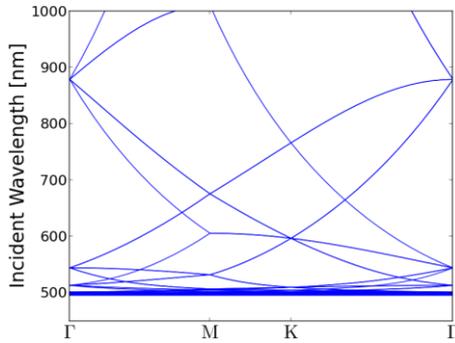


図 6 空格子近似でのバンド構造

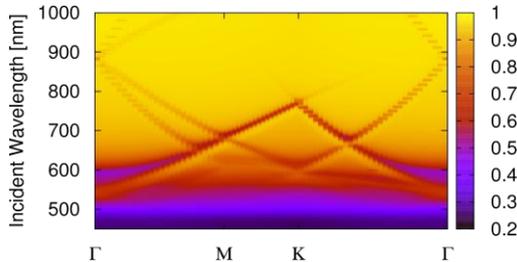


図 7 反射スペクトル

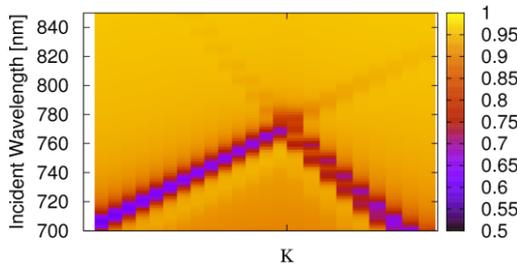


図 8 反射スペクトル (K 点付近拡大)

② ナノホール中の局在モードとの共鳴

ナノホールの半径が大きくなると、もう一つ別の種類の共鳴が生じることが分かった。この共鳴の起源を明らかにする為に、散乱行列の逆数のゼロ固有値を探索することにより、金属膜中に局在した固有モードのバンド構造を評価した。

計算結果を図 9 に示す。共鳴波長は、三角格子の Dip2 と同様に、ナノホールの HE11 モード遮断波長と近い値となり、さらに、バンド構造は、グラフェン中の電子のバンド構造と良く似た点接触型の構造になることが分かった。遮断波長において伝搬定数がゼロになることから、このモードは導波モードというより、穴に局在した振動モードであると言える。

ただし、この局在モードとの共鳴はかなりブロードな共鳴になってしまうため、反射スペクトル中にバンド構造を確認することは出来なかった。今後、このナノホールの下部にディスクを導入するなど、共鳴をシャープにする工夫を行う予定である。

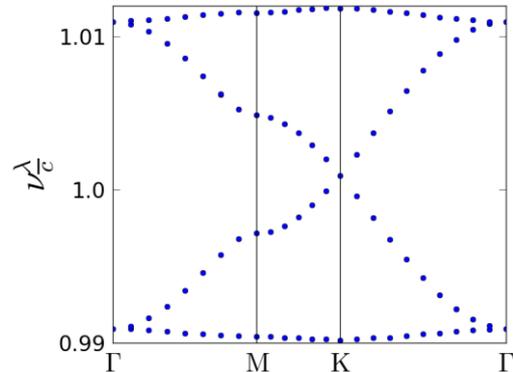


図 9 局在モードのバンド構造

以上の結果より、蜂の巣状ナノホール列中には、2 種類の固有モードが存在し、いずれも共鳴的に励起され得ることが明らかとなった。これらのモードのバンド構造はグラフェン中の炭素原子と同等に、点接触型になり、グラフェンと同様の特異な光学特性を発現する可能性が示された。

残念ながら、金属・誘電体ナノ構造での計算不安定化への対処で非常に多くの時間がかかり、本研究期間中には、予定していたエッジ状態の確認までは至らなかった。しかし、ここで開発したソフトウェアは様々なナノ構造に対応する事が可能なため、エッジの導入やナノホールの構造の調整は容易で、今後、ナノフォトニクスにおける「人工原子」としてのナノホールの特性の解明に貢献できると考えている。

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 1 件)

1. Kohei Nakamoto, Ryoji Kurita, Osamu Niwa, Toshiyuki Fujii, Munehiro Nishida, Development of a mass-producible on-chip plasmonic nanohole array biosensor, Nanoscale, 査読有, Vol. 3, Issue 12, 2011, pp5067-5075

[学会発表] (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

西田 宗弘 (NISHIDA MUNEHIRO)
広島大学・大学院先端物質科学研究科・准教授
研究者番号：10329112

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：