

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：93901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25790046

研究課題名(和文) ナノ構造を有する金属/誘電体積層膜を用いた増強場の誘電体層への局在化に関する研究

研究課題名(英文) Localization of electromagnetic field in dielectric layer using metal/dielectric nano structures

研究代表者

松井 崇行 (Matsui, Takayuki)

株式会社豊田中央研究所・先端研究センター 戦略先端研究部門 デバイスフィジックスプログラム・研究員

研究者番号：10418452

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,800,000円

研究成果の概要(和文)：薄膜シートに太陽光・面発光レーザー等の垂直入射光を効率よく閉じ込め利用する技術の開発を行った。本研究では、金属誘電体薄膜にナノ構造を付与し、表面プラズモンによる局所増強電場を、近接する誘電体層に効率的に局在化させる手法について検討した。構造の特徴は積層膜垂直方向への非対称な膜組成と二次元周期構造である。まず効率的に周期構造の光学特性を計算するFourier Modal Methodの実装に取り組み、収束の難しかった金属二次元周期構造の収束性向上を実現した。同計算手法を用い金属ナノホール構造表面に異方性材料を装荷した際に特異な透過現象が発現することを見出した。

研究成果の概要(英文)：Localization of plasmon-mediated electromagnetic field in dielectric layer has been investigated. The structure consists of metal-dielectric layers with nano-hole arrays, and the layers have been set as those thickness and permittivity were asymmetric in surface normal direction. Fourier factorization rule of Fourier modal method was implemented for efficient calculation of two-dimensional periodic structures. We demonstrated a unique transmission phenomenon of metal-dielectric hole arrays with anisotropic dielectric layer. The structure with anisotropic layer achieves narrow and tunable 0th-order transmission, which is specific to a structure containing sub-wavelength anisotropic layer sandwiched between metal-hole arrays and low-refractive-index cover layer.

研究分野：ナノフォトニクス

キーワード：プラズモン Fourier Modal Method ナノホール 液晶

### 1. 研究開始当初の背景

金属中の自由電子の集団振動と入射光電場が結合した表面プラズモンポラリトン(SPP)は、金属界面付近に局所的に増強された電場をもたらす。この局所電場増強は太陽電池の効率向上、低閾値での非線形光学応答などの応用を念頭に様々に研究されている。局所増強電場を有効的に活用するためには、機能層となる誘電体層に効率的に局在させるかが重要である。我々はこれまでに、金属誘電体積層ナノホールを用いた透過素子の研究において、積層膜垂直方向に非対称な構造を導入することで、増強電場の局在位置を制御できる可能性を見出していた。そこで本研究では、まず金属誘電体二次元周期構造の素子設計を効率的に行う計算手法の実装と、金属構造近傍に配置した機能層となる誘電体層に、効率的に増強電場を局在化させる素子構造の提案を行う。

### 2. 研究の目的

本研究の第一の目的は、金属誘電体二次元周期構造の特性を効率的に計算可能な手法の実装を行うことである。機能層となる誘電体層にSPP由来の増強電場を局在可能な構造を見出すためにも、低計算資源で高速に計算可能な手法の導入は重要である。本研究においては、周期構造の電磁場をモードの足し合わせで表現するFourier Modal Method(FMM法)を用いた。FMM法を金属二次元周期構造に適用するためには、実装に工夫が必要であり、本研究ではまずその実装方法の確立に取り組む。

本研究の第二の目的は、機能層となる誘電体層中に増強電場を効率的に局在化させる素子構造を計算により見出すことである。この際、SPPは金属表面から波長程度の厚みに増強電場を形成することから、金属近傍に存在するサブ波長厚の機能層に増強電場が局在化する素子構造の実現に取り組む。最後に計算により見積もった構造の特性を実験的に検証する。

### 3. 研究の方法

ナノ構造を有する金属誘電体積層膜において、SPPに由来する増強電場を機能層に局在化させる素子構造を実現するために、次の2つの課題に分けて取り組んだ。

#### (1)低計算資源で金属誘電体二次元周期構造の特性を計算可能な手法の実装

研究の目的の中でも述べたように、本研究では金属誘電体二次元周期構造の光学特性を計算するためにFMM法を用いた。FMM法は周期構造の光学特性を、フーリエ展開と簡単な行列演算により解析可能な手法である。こ

のFMM法を金属周期構造に適用する為には、比誘電率分布を表現するToeplitz行列の実装に工夫が必要であることが知られている。一次元周期構造に対してはその実装方法がよく知られておりFourier Factorization Rule(FFR)と呼ばれている。近年では、このFFRは二次元周期構造にも適用報告がされているが、その詳細な実装方法については報告されておらず、本研究ではまず二次元周期構造へのFFR実装を行った。実装を行った計算コードは、すでに文献等で報告されている計算値と比較することで実装の妥当性の検証を行った。

#### (2)機能層となる誘電体層に効率的に増強電場を局在化させる新規な構造の提案

上記に述べたFMM法により、金属誘電体二次元周期構造の計算を行い、機能層となる誘電体層に効率的に増強電場を局在化させる新規な素子構造の検討を行った。今回、機能層としては比誘電率に異方性をもつネマチック液晶層を選択し、液晶層の比誘電率異方性に由来した特異な透過現象が得られることを見出した。

### 4. 研究成果

#### (1)低計算資源で金属誘電体二次元周期構造の特性を計算可能な手法の実装

FFRの適用は、一次元周期のグレーティングを例にすると次のように行われる。周期構造の比誘電率分布がグレーティングリッジの境界で不連続となり、さらに入射電場が構造境界で不連続となるTMモードに対しては、比誘電率分布を表すToeplitz行列に逆行列処理(Inverse Rule)を行う。一方、周期構造の比誘電率分布は不連続点を持つが、入射電場が連続となるTEモードに対してはToeplitz行列に逆行列処理を行わない(Lorentz Rule)。

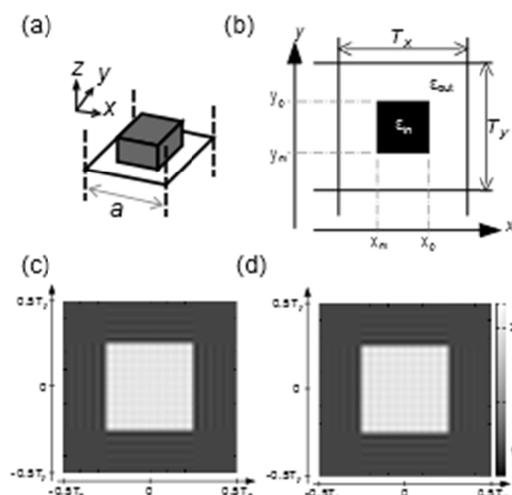


図1 FMMの実装方法を説明するための(a)単位セル構造、(b)xy面における比誘電率分布、(c)FFR無しでの比誘電率分布、(d)本研究で実装を行った

FFR による比誘電率分布 .

しかし, この FFR の二次元周期構造への適用は, 例えば図 1(a)に示すような長方形リッジを持つ正方格子では, 構造の比誘電率の  $x$  成分  $\epsilon_{xx}$  を表現する Toeplitz 行列に対しては次のように適用する必要がある. Toeplitz 行列の要素である Fourier 係数のうち  $x$  方向に依存する成分に対しては Inverse Rule を適用し,  $y$  方向に由来する成分には Lorentz Rule を適用するというものである. しかし, 本来二次元周期構造の比誘電率分布を表現する Toeplitz 行列の要素は,  $x$  方向,  $y$  方向両者の情報を含んでいる. その為, 本研究ではまず, Toeplitz 行列を  $x$  方向,  $y$  方向それぞれの Fourier 係数で構成される 2 つの Toeplitz 行列で表現し, その後, 片軸方向に由来する Toeplitz 行列のみに Inverse Rule を適用後, 両者の要素毎の積をとることで最終的な Toeplitz 行列を得た. 本研究で行った実装の検証のため, 文献[T. Schuster et al., *J. Opt. Soc. Am. A* 24, 2880 (2007)]にて回折効率の収束値が示されている構造に対して計算を行った. 計算結果を図 2 に示す. 計算を行った構造は  $x, y$  方向の周期が 1000 nm の正方格子であり, 周期の半分の一辺の長さを持つ正方形の穴構造を持つ. 穴の部分は空気であり, 周囲は複素屈折率  $1.75+1.5i$  である. 周期構造層の厚みは 50nm である. 下部基板は屈折率 1.5 であり, 上部は空気である. 波長 500nm の入射直線偏光の電場方向を  $x$  とし, 空気側からの垂直入射の条件で, 0 次の反射効率を計算している.

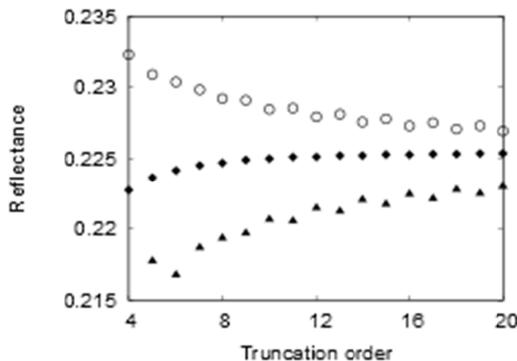


図 2 実装を行った FMM の収束性の確認 .

図で黒色菱形プロットが本研究で実装に工夫を行った Toeplitz 行列を用いた計算結果である. 図中で白抜き丸プロットと黒色三角プロットは比較のために, それぞれ Toeplitz 行列の実装の際に  $x, y$  両軸方向に逆行列処理を行わなかったときと, 行ったときの計算結果に相当する. 本研究で実装を行った黒色菱形プロットのみで, 展開次数の増大とともに 0 次の反射効率は 0.225 付近に収束した. この値は文献の結果と完全に一致し, 本実装方法により FMM 法の収束性が向上することが確かめられた. 今回実装を行った FMM 法の計算コードを用い, 各種文献の周期構造に対して回折効率の計算結果が一致することを確

認している .

本研究で実装を行った FMM 法のコードを用いて, 本報告書で示す構造以外に誘電体擬似周期構造からなる平面レンズの計算を行い, 論文を投稿している .[T. Matsui et al., *Opt. Lett.* 40, 25 (2015)].

(2)機能層となる誘電体層に効率的に増強電場を局在化させる新規な構造の提案

研究の方法でも述べたように, 本研究では機能層となる誘電体層にネマチック液晶を用いた. ネマチック液晶は比誘電率に一軸異方性を持ち, ネマチック液晶層と金属界面に生じる SPP は液晶配向により影響を受ける. そこで, 本研究ではまず金属と一軸異方性誘電体界面における SPP の分散関係から, 液晶層が SPP に及ぼす影響を検討した. 液晶金属界面に垂直方向を  $z$  方向とし, SPP の伝搬方向を  $x$  方向, 液晶の比誘電率が二階のテンソルの対角成分で表されるとすると金属液晶界面における SPP の波数  $k_{sp}$  は次のように表される .

$$k_{sp} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_{zz}\epsilon_m(\epsilon_m - \epsilon_{xx})}{(\epsilon_m^2 - \epsilon_{xx}\epsilon_{zz})}}$$

金属の比誘電率の実部が負で, その絶対値が  $\epsilon_{xx}, \epsilon_{zz}$  より十分に大きいとして微量の一次までとると

$$k_{sp} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_{zz}} \left( 1 - \frac{1}{2} \frac{\epsilon_{xx}}{\epsilon_m} \right)$$

となる. つまり, 金属一軸異方性液晶界面における SPP の分散関係は, 液晶の比誘電率のうち金属面に垂直方向の成分に影響を受けることがわかる. そのため, 液晶層の配向制御により SPP に由来する透過現象を制御できる可能性を有する. 本研究では, この SPP を介した透過現象が液晶配向とくに金属面に垂直方向の成分に影響を受けることと, 研究成果(1)で実装を行った FMM 法を用いて図 3 に示す単位セルを持つ二次元周期構造により特異な透過現象が得られることを見出した .

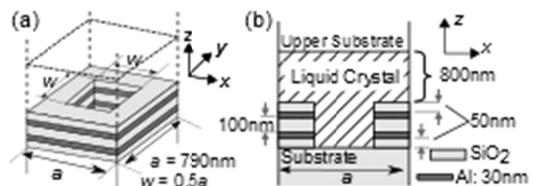


図 3 液晶装荷金属誘電体積層ナノホール構造の (a)単位セル構造と(b)断面模式図 .

構造は石英基板上的金属誘電体積層ナノホール構造と, その上のサブ波長厚の液晶層と上部封止基板からなる. 今回, 液晶層の厚みはサブ波長厚とした. これは次の二つの理由による. (i)SPP の電磁場は金属垂直方向に指数関数的に減衰し, その振幅が  $1/e$  になる距

離は $1/k_z$ で表され、SPP に本質的に影響を及ぼす誘電体層の厚みはせいぜい波長程度の厚みである。(ii)液晶層の厚みをサブ波長とすることで、不要な Fabry-Perot 干渉の影響を除くことが可能である。以上のような背景、および数値計算の結果より図4に示すような透過スペクトルを得ることが出来た。計算および実験をおこなった構造のパラメータは、格子周期 790nm の正方格子であり、金属層の厚みは 30nm、金属層に挟まれた石英層の厚みは 100nm、正方形穴の一辺は 395nm である。液晶層はネマチック液晶 5CB で構成され、その厚みは 800nm である。また上部封止基板は光学ガラス BK7 よりなる。

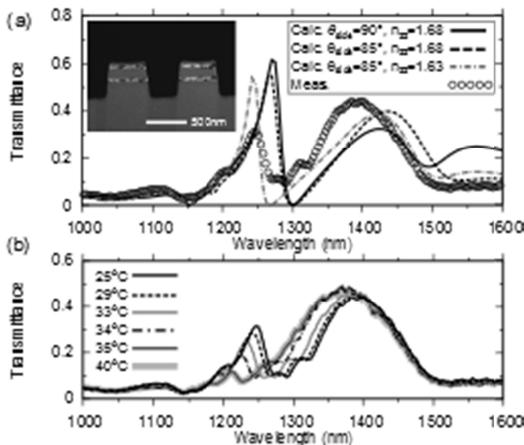


図4 液晶装荷金属誘電体積層ナノホール構造の (a)透過スペクトルの計算値と実測値の比較。(b)環境温度変化による液晶配向制御による透過スペクトルの制御に関する測定結果。

図4に示す本研究から得られた透過スペクトルの特徴は二つある。一つ目は液晶配向による透過ディップの位置制御である。この制御可能な透過ディップは図で波長 1300nm 付近のディップであり、液晶の比誘電率の  $\epsilon_z$  成分に依存する。二つ目はこの制御可能な透過ディップと、石英基板に由来する波長 1050nm の透過ディップに挟まれた透過スペクトルが狭帯域かつ高透過率の透過ピークをもつことである。これは上部封止基板の屈折率を下部石英基板以上とし、かつ液晶の比誘電率の  $\epsilon_z$  成分より小さくする事で、多次の回折光を抑制し、0次光にSPPを介して効率的に入射光を結合させることにより実現される。この透過ピークにおいて、数値計算より波長 1275nm 付近では液晶層中で、入射電場に比して5倍程度の電場増強が得られた。この値は文献[Opt. Lett. 6, 122 (1981).]で示されるSPPによる電場増強度の理論値と概ね一致し、本研究で示した構造により機能層中に増強電場を局在し、かつ特異的な透過現象が得られることが明らかになった。

## 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 T. Matsui, H. Yoshida, A. Miura, J. Kobashi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, and M. Ozaki, "Tunable enhanced 0<sup>th</sup>-order transmission in a metal-dielectric hole array covered with a subwavelength liquid crystal layer," Opt. Lett. (査読有) 39, 1262-1265 (2014).

2 T. Matsui, S. Yamashita, H. Wado, H. Fujikawa, and H. Iizuka, "Flat grating lens utilizing widely variable transmission-phase via guided-mode," Opt. Lett. (査読有) 40, 25-28 (2015).

〔学会発表〕(計 1 件)

1 T. Matsui, H. Yoshida, A. Miura, J. Kobashi, and M. Ozaki, "Sub-wavelength anisotropic layer on metal nano hole arrays and its role in surface plasmon enhanced transmission," Metamaterials 2014 (査読有) 2014年8月25日, Technical University of Denmark, Copenhagen, Denmark.

〔その他〕

1 松井崇行, "液晶装荷金属誘電体積層ナノホール構造による透過光制御に関する研究," 博士学位論文, 大阪大学大学院, 2014.

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

松井崇行 (MATSUI TAKAYUKI)

株式会社豊田中央研究所・先端研究センター・戦略先端研究部門・デバイスフィジックスプログラム・研究員

研究者番号：10418452

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし