

# プラズモン時空間制御に用いる微細加工ナノ構造試料の設計、作製

## Manufacturing and design of nano-samples for spatiotemporal control of plasmons

原田卓弥(D3)

T. Harada

### Abstract

Well designed nanostructures must be prepared to demonstrate spatiotemporal control of local plasmon or surface-plasmon polariton (SPP) by shaped femtosecond laser pulses. We design Au nanocrosses to demonstrate polarization dependent local plasmon resonance, which could be measured by SNOM or dark-field microscopy. E-beam lithography is employed for these nano-fabrication. We also propose a new functional plasmon enhancement structure, Bull's eyes..

### 1. はじめに

近年、近接場光学、プラズモニクスやナノフォトニクスといった回折限界以下の寸法領域で光を扱う分野が注目されている。我々は広帯域の超短パルスレーザを用いたプラズモンの時空間制御を目的に幾つかの手法を用い研究を行っている。群速度分散を乗せた超広帯域フェムト秒レーザパルスとアスペクト比の異なる金ナノロッドの組み合わせにより、ナノ領域での時空間制御が可能であることは計算により示した[1]。これらを実験的に証明するためには作り込まれたナノ構造を設計し作製することが不可欠である。

測定試料としてガラス基板平面に設計されたナノ構造を配置されたものを用いることは我々の研究の原理実証に非常に有用である。そこで、シミュレーションによって構造による特性を計算し、それに基づき設計した構造を微細加工法を用い測定試料の作製を試みた。

### 2. 微細構造設計および作製

現在学術および産業の分野の研究、開発において CAE (Computer Aided Engineering)は無くしてはならないものと言っても過言でない。CAE で解析される領域は電磁波のみならず力学、熱と多岐に渡り、それぞれ単

独での解析のみならず、複合的な解析も可能となってきた。CAEにより設計、試作、評価という流れから改めて設計にフィードバックするというループのプロセスを大幅に短縮することができ、時間と費用を劇的に圧縮することが可能となる。今回、微細構造試料作製にあたり FDTD(Finite Define Time Domain)法を用いた電磁波解析ソフトにより微細構造の設計および評価を行った。

従来、我々は粒径が異なる銀ナノ粒子やアスペクト比の揃った金ナノロッドをガラス基板にスピコート法により塗布した試料を使用していたが、原理実証のためには微細加工により作り込まれた形状の測定が不可欠である。Fig.1 に設計した微細構造を示す。金ナノロッドはそのアスペクト比を変化させることにより局在プラズモンの共鳴波長が異なることがよく知られている[2]。Fig.1(a)は金ナノロッドを基に設計した長軸長が異なる十字型の金ナノクロス構造で、偏光方向を変化させることにより、異なる長軸方向の共鳴波長でプラズモン共鳴が起こる構造となっている。

Fig.1(a)の構造を作製するにあたり、微細加工を請け負ってもらえるメーカー (NTT-ATN) に発注した。先方の加工機器の仕様の都合により、加工方法は電子線描画(EB: Electron Beam)リソグラフィーを用いたリフトオフ加工で、最小線幅 50 nm、側面テーパ角が 45°~60° という条件である。ロッドは短軸長が 50 nm、高さ 20 nm とし、長軸長をパラメータとして 120 nm – 180 nm の範囲で変化させている。計算に用いられた入射パルスの光源は中心波長 800 nm、半値全幅 400 nm、で 84 fs<sup>2</sup> の群速度分散を持つパルスを設定した。これは実際に実験で用いられる VENTEON の波長帯域である 600~1100nm を想定して作製した入射光源である。計算結果よりこれらのアスペクト比の組み合わせで構造を作製すれば使用レーザの波長帯域内で共鳴が起きることが確認できた。

Fig.1(b)は実際に作製された金ナノクロス構造を近接場光学顕微鏡(SNOM: Scanning Near-field Optical Microscope)で観察したものである。設計・作製した金

ナノクロス構造は近接場光学顕微鏡のプロープの分解能よりも小さいため、クロス形状を観察することは出来ないが、設計した寸法で構造が二つ並んで配置されていることが確認できた。計測結果の詳細は本集の松井氏らのレポートに譲る。

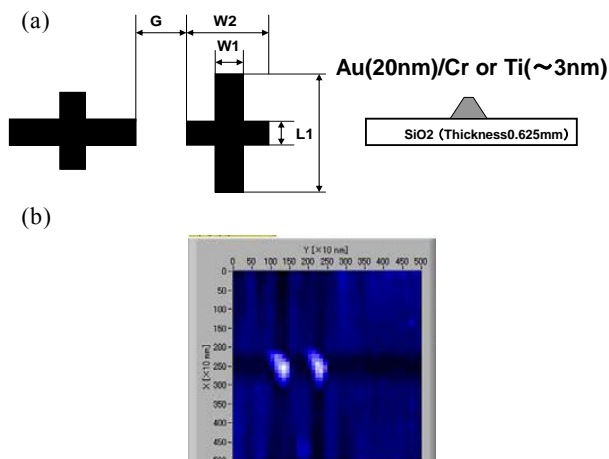


Fig.1 (a) Schematics of designed Au nanocrosses (b) topography mapping view nanocrosses.

### 3 Bull's eye デバイス

クロス構造以外にも広帯域フェムト秒レーザとの組み合わせにより従来には無かった特性を示すことができるプラズモニック構造の例を計算で示す。Fig.2(a)は Bull's eye 型プラズモン増強構造である[3]。我々の計算では中心の穴のみ基板まで抜いており、周囲に

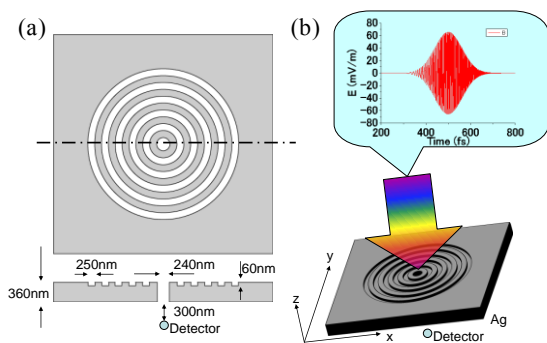


Fig.2 (a) Basic model of Bull's eye plasmon enhance device and (b) simulation condition using chirped ultra broadband fs laser pulses

数 100 nm の同心円状の溝をもつ Bull's eye 構造に鉛直方向から中心は超 800nm で  $84\text{fs}^2$  の群速度分散をもつ

広帯域 fs レーザパルスを照射し、穴の裏側直下 300nm の位置での透過電界を検出する計算モデルによりシミュレーションを行った。ブルズアイ構造に関しては構造設計と微細加工法との都合上、実際に作製するまでには至らなかった。

Fig.3 (a)は異なる溝ピッチを持つ2つの Bull's eye 構造を4分割し、x及びy軸対象に配置した構造である。図と同じ条件で偏光方向をyで入射したときの時間波形の出力を Fig.3 (b)に、xで入射したときの結果を Fig.3 (c)に示す。この構造では溝ピッチにより共鳴、透過波長が決定されるため、x偏光での入射は 350 nm ピッチの溝と共鳴を起こすため、y偏光での 250 nm 間隔の溝との共鳴よりも長波長の要素が共鳴する。入射波長に正の二次分散を乗せているため、Fig.3 (b)に比べ Fig.3 (c)の方が共鳴が早いタイミングで起こっていることが見て取れる。この構造では溝間隔の共鳴波長の違いを利用し、偏光方向を変化させることにより透過波長をスイッチングさせることが可能である。

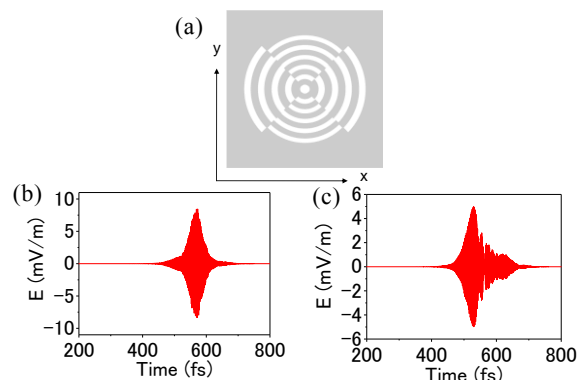


Fig.3 (a) Simulation model of the divided bull's eye structure. Detected time histories irradiated by (b) y polarization and (c) x polarization

さらにこの構造は対称性を必要としない。Fig.4 (a)のようにy軸対象に片側半面に 250 nm、もう半面に 350 nm ピッチの溝を刻み、入射光の偏光をx方向にし、Fig.2 (b)と同条件で計算するとそれぞれを単独で計算したときの波形を足し合わせた Fig.4 (b)に示す波形が測定された。

Fig.4 (d)はFig.3 (a)の4分割構造の境界に水平方向に入射したとき(Fig.4 (c))の計算結果である。構造の境目に沿って入射してもそれぞれの構造で入射したときの結果を足し合わせた Fig.4 (b)の結果と同様の結果を得ることが出来た。

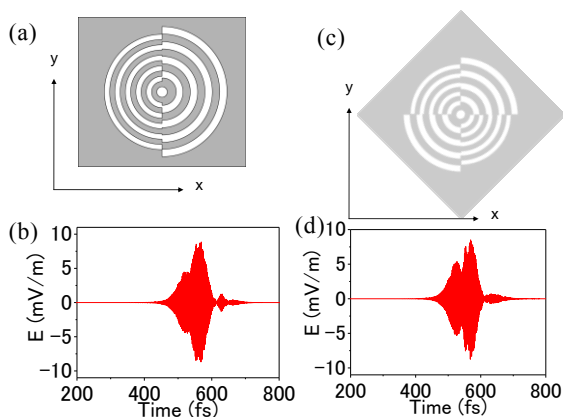


Fig.4 Calculation model of various Bull's eye enhance devices irradiated by chirped fs laser pulse with x polarization. (a) Hybrid bull's eye structure divided by y axis. (b) Time history of the structure Fig.4 (a). (c) 45 degree rotated structure of Fig.3 (a), (d) Time history of the Fig.4 (c)

これらの計算結果からさらに新しい Bull's eye 構造を提案することが可能である。Fig.5 に示すのが提案の一例である。円の中の色違いの扇状の領域 a、b、c および d は溝間隔の異なる Bull's eye 構造を分割したものである。Fig.5 (a)では Fig.3 (a)の 4 分割の分割数を増やし 6 分割にした構造である。x 偏光では領域 a による共鳴波長のピーク a が、偏光方向を x 偏光から 60 度、120 度と回すことにより共鳴ピーク b、c を検出することができる。

Fig.5 (b)は Fig.4 (a)、(c)を基に考案した全ての領域での溝間隔が異なるブルズアイ構造である。非対称構造では対になる構造による波形を足し合わせたピークが検出することが可能であることから x 偏光では共鳴ピーク a と b、y 偏光では共鳴ピーク c と d を検出できる。さらに境界に沿った入射では境界に接した領域の構造全ての共鳴を使用できることから、偏光方向を 45 度で入射することにより共鳴ピーク a、b、c および d を検出することが可能である。

これらの構造と広帯域フェムト秒レーザを使用することにより微細領域でプラズモン増強された任意の波長帯域のみを使用することが可能となる。

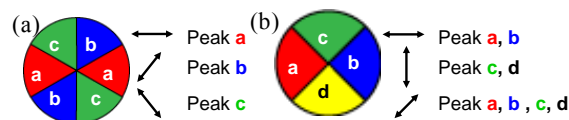


Fig.5 Ideas of the bull's eye structures and combination of polarization and detected enhanced peaks of wavelength, (a) divided bull's eyes in six pieces and (b) asymmetric divided bull's eye.

## 4. 結論

特性を FDTD 法によって計算し、設計した金ナノクロス構造を e-beam リソグラフィを用いた方法によりガラス基板上に作製することができた。構造は近接場光学顕微鏡および暗視野の測定において観察することができた。

Bull's eye 型プラズモン増強構造を基にし、広帯域フェムト秒レーザと組み合わせて使用することにより新たな機能を持つ形状を提案し計算した。この構造を作製できれば新たなナノ光源を実現することが可能となる。

## References

- [1] T. Harada, K. Matsuishi, 神成研究室 Annual Report (2010).
- [2] S. Link, and M. A. El-Sayed, J. Phys. Chem. B, **103**, 8410 (1999)
- [3] T. W. Ebbesen et. al., Nature, **391**, 667, (1998)