博士学位論文

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

松 井　崇 行

2014年7月

大阪大学大学院工学研究科

目次

内容概要

金属誘電体積層ナノホール構造 (SHA, Stacked metal-dielectric Hole Array) 上にサブ波長厚の液晶層を装荷し，その透過特性について研究を行った．

本論文は全 5 章で構成され，各章は次のような内容により構成される．

第 1 章　序論

本章では，研究の背景について記述をおこなった後に，SHA 構造の透過に関与する Surface Plasmon Polariton(SPP) の一般的な説明を行った．ここではまず SPP は周期構造により励振可能であることを示した．次に，液晶材料等の一軸異方性材料と金属界面での SPP の分散関係は，異方性材料の比誘電率において金属面に垂直方向の成分に依存することを示した．

第 2 章　金属誘電体積層ナノホール構造の設計

本章では本論文で検討を行う SHA 構造の基礎特性を, モデル化，数値計算による予測，実験による検証により示し，後の章での議論の基礎的材料を提供する．まず素子の応答モデルである周期構造と SPP の結合という解釈に用いる分散関係を示した．SPP と周期構造との相互作用が生じる周波数は分散関係を用いて大まかに予測可能である．つづいて相互作用が予想される周波数における SHA 構造の透過特性を数値計算により検討した．その後，素子の作製方法，評価方法について検討を行った．最後に SHA 構造の透過特性に関し，計算および実験により得られた結果をまとめた．

第 3 章　形状遷移金属誘電体積層ナノホール構造

本章では，面内でナノホール形状が徐々に変化する金属誘電体積層ナノホール構造の透過特性について検討を行った．形状が徐々に変化する SHA 構造の設計には，SHA 構造の透過特性がナノホール形状に依存する事を用いた．本章では入射直線偏光の電場方向に同一穴形状を有し，電場方向と直交する方向に穴形状を徐々に変化させた長方形穴 SHA を用いた素子の検討を行った．設計した素子は, 数値計算による検証の後，前章で導入した干渉顕微鏡，及び遠視野観察によりその透過特性を検討した．

第 4 章 液晶装荷金属誘電体積層ナノホール構造

本章では，SHA 構造の動的変調の為の基礎検討として，液晶材料の装荷にとりくみ，一軸異方性液晶を用いた SHA 構造の透過現象の基礎的なメカニズムを計算と実験により検証した．液晶と金属界面の SPP は液晶の比誘電率のうち，金属面に垂直方向の比誘電率

に主として影響を受けることから, 液晶が垂直配向した素子構成に関し SHA の透過特性の検討を行った．まず数値計算によりサブ波長厚の液晶層を用いた SHA 構造の透過メカニズムを明らかにし，続いて実験による検証をおこなった．

第 5 章　結論

本章では，第 2 章から第 4 章まででで得られた SHA 構造, およびサブ波長厚の液晶材料を装荷した SHA 構造による透過素子についての研究成果を総括し，本論文の結論とした．

第 1 章

序論

1.1 研究の背景

近年，カメラや光通信といった従来からある光学素子の適用先に加え，小型化や実装技術の向上により, 家電や自動車といった分野にまで光学素子が利用されている．自動車分野においては，前方の障害物や歩行者を検出する為のレーザーレーダー，夜間における人の視野を赤外画像認識により補うナイトビューなど，特に安全分野において適用が進んでおり，ますます重要性が高まっている．

自動車分野への光学素子の適用は，まず第一に信頼性が求められることから, 実績のあるバルク素子，すなわちレンズやミラー，偏光子等の比較的サイズの大きな光学素子より適用が進んでいる．しかし，バルク素子の実装は部品点数の増大，実装コストの増加をまねき，光学素子を用いた自動車用安全装置は, 比較的価格の高い高級車より開始されている．

廉価帯，普及車クラスにまで光学式の安全装置を適用する為には，部品点数の減少や実装コストの低下が必要不可欠である．その為，半導体プロセス等の微細加工技術により，平面基板もしくはその上に数層の積層膜からなる薄膜型の光学素子の実現が期待される．現在，こういった薄膜型光学素子の研究は盛んに行われている．それらの対象波長域の多くは可視光から近赤外光の領域であり，作製する構造がサブ波長構造であることから，研究分野はナノフォトニクスと呼ばれる．ナノフォトニクスの研究は，用いる材料特性により大きく二つに分けられる．一つは近赤外領域より透明材料となるシリコンなどの比誘電率の高い材料を用いた研究であり [1,2]，もう一つは金，銀，アルミといった比較的損失の小さな金属材料を用いた研究である．前者の誘電体材料を用いた薄膜型の光学素子としては，周期構造の周期や充填率を少しずつ変化させることで実現したレンズ構造 [1,3,4]，一次元周期構造を用いた広帯域ミラー [5,6] などが上げられる．また金属材料を用いた例としては，本研究においてもとりあげる金属フィルムに周期的なサブ波長開口を設けた金

属ナノホール構造により，特異的に一部の周波数帯のみ透過させる光学フィルタ [7–9] がある．

上記光学素子の特徴として挙げられるのが，その薄さである．先に述べた研究例における素子の厚みはどれも対象波長を λ とすると，λ 未満である．この薄さで，様々な機能を実現できるのは，機能発現において共鳴が関係している為である．誘電体材料の場合には，薄膜中を導波する導波モードもしくは漏洩モードに結合した後に伝搬光に結合する導波モード共鳴 [10, 11] が，金属材料の場合には金属誘電体界面を伝搬する表面プラズモンポラリトン (SPP, Surface Plasmon Polariton) [12, 13] が関与している．これらの共鳴が関与した透過は，構造パラメータの変化に対して，敏感にその透過特性を変化させることから [14]，強度変調素子や位相変調素子として用いることが可能になる．

本研究においては，特に金属材料を用いた薄型光素子について取り上げた．誘電体材料と金属材料を比較すると，短期的には微細加工プロセスが確立し, 光学損失が小さい誘電体材料に分がある．しかし，素子の動的駆動という観点では，金属材料の方に将来性がある．その理由は，誘電体材料を用いた薄型光素子の物理現象は，主として 2 種の構成材料の比誘電率差にその機能発現をゆだねている為である．素子の動的駆動の際には，シリコン等の高比誘電率材料の間隙に比誘電率変調材料を導入する必要が生じる．しかしこれは比誘電率差の減少をもたらし，共鳴が弱まり，顕著な特性変化が得られなくなる．一方金属材料は，本質的に損失という問題があるものの，金属ナノ構造間に比誘電率変調材料を導入しても共鳴現象は生じ，さらには境界条件の変化を誘起することで，素子の動的変調が可能となる．本研究においては，将来的な動的駆動の可能性を見据え，金属材料を用いた平面型の光素子, 特に特異的な透過現象が注目されている金属ナノホール構造について議論を行う．

現在，このようなナノフォトニクスの分野の研究は加速度的に進んでいる．その背景には, ナノ構造の光学応答を予測可能な計算ソフトウェアの進化，計算で導かれた構造を実際に作製するナノ加工技術の進歩が上げられる．これらの設計，加工技術の進歩なしに，現在のナノフォトニクスの隆盛は語れない．ここでは本節の最後に，これらの技術について簡単に紹介する．

ナノフォトニクスの数値計算による解析は，マクスウェル方程式を時間領域もしくは周波数領域で適切な境界条件のもと解くことで実現される．ナノフォトニクスの分野で主として用いられているのは，時間領域での波形発展を離散的な空間格子 (Yee 格子) に対して求める時間領域差分 (FDTD，Finite Differential Time Domain) 法 [11, 15, 16] や，対象となる微分方程式を直接解く代わりにその系に対する汎関数に変分原理を適用して問題を解く有限要素法 (FEM, Finite Element Method) [17]，周期構造の場と比誘電率分布をフーリエ級数で表現し有限な展開次数のもと厳密に解く厳密結合波解析法 (RCWA: Rigorous Coupled Wave Analysis, FMM: Fourier Modal Method) [18–20] などが用い

られている．どの手法もそれぞれ一長一短があり，対象を金属ナノ構造とすると，市販ソフトウェアで収束性に実績があるのは限られている．本研究では，このうち FEM 法と FMM 法を用いてナノ構造の設計を行う．

ナノフォトニクスにおける素子の作製には，一般に可視光や紫外光の回折限界より小さな分解能が求められることから，構造のパターニングには電子ビームやイオンビームが線源として用いられる．前者は電子線描画 (EB, Electron beam lithography) 法とよばれ，後者は収束イオンビーム (FIB, Focused ion beam) 法と呼ばれる．本研究では，装置の高性能化が進み, 高い加速電圧を用いて比較的大面積のパターンを作製可能な EB 法を用いて，ナノ構造のレジストパターンを形成した．作製したレジストパターンは適切なエッチングガスを選択のもと，ドライエッチング法により金属膜に転写される．本研究においては既存の微細加工プロセスにおいて，良好なドライエッチングが可能であることが判明しているアルミを金属として用い，研究を進める．

1.2　既存技術および先行研究

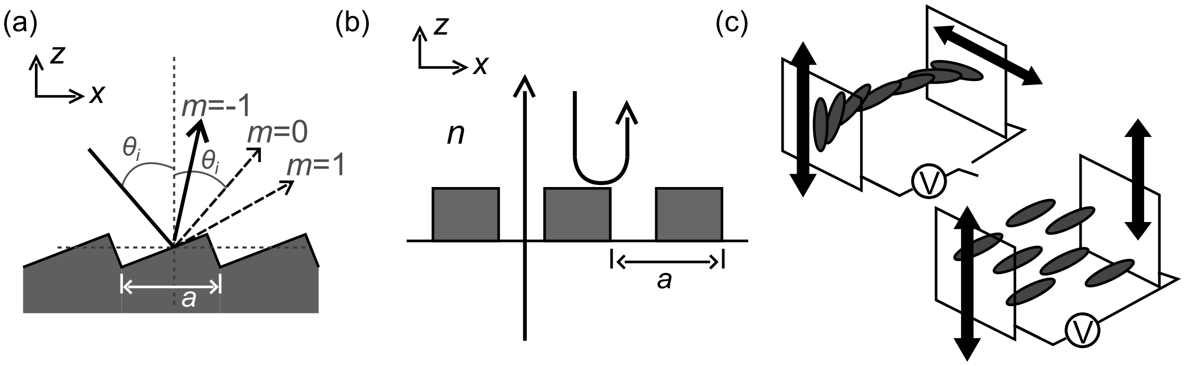

図 1.1　(a) 反射型ブレーズドグレーティング, (b) 誘電体グレーティング, (c) ねじれネマチック素子

本研究では金属薄膜に周期穴を持つ金属ナノホール構造と，液晶を用いた透過素子の基礎的な検討を行う．それに先立ち，ここで本研究では取り扱わないが，既に実用化や十分な特性が報告されている既存技術，先行研究について言及する．誘電体や金属の周期構造からなるグレーティング構造は，盛んに研究および実用化が進んでいる．例えば図 1.1(a) に示すような，1 周期内に非対称な構造を有する反射型ブレーズドグレーティングは特定の回折次数の効率を高める事が可能である．図で入射角を θ_i とし，各回折光の回折角を θ_r^m とすると，反射回折光には次の関係が成立する [21].

$$\sin\theta_r^m = \sin\theta_i + m\frac{\lambda}{a} \tag{1.1}$$

ここで，m は回折次数を，λ は出射光の波長を，a は周期を表す．1.1 式である特定の回折次数に注目すると出射角 θ_r は波長に依存する事がわかる．この構造に由来する波長依存性と回折効率の高さから，ブレーズドグレーティングは分光器の波長分離等に用いられている．

また図 1.1(b) に示すグレーティング構造では，格子周期を a，出射媒体の屈折率を n とした際に，$\lambda > na$ を満たす波長 λ を選択すると，垂直入射光に対して多次の回折光が発生せず，0 次の透過光もしくは反射光のみが出射する．このような素子構成で，グレーティングのリッジ構造を高屈折率材料とし，透過位相を大きく変化させる素子が報告されている [1]. この多次の回折光が発生しないグレーティングのユニットセル構造を用い，同一面内で構造を徐々に変化させることで平面レンズが [1], 1 周期内に複数のリッジ構造を導入する事で，構造高さが均一でブレーズドグレーティングと同等の機能を発現する構造が実現されている [22].

図 1.1(c) には液晶ディスプレイの制御にも用いられているねじれネマチック液晶素子を示す．液晶セルの対向基板面を適切に表面処理することで，液晶の分極方向であるダイレクタをねじるように配向させることができる．入射した直線偏光はねじれのピッチ p と液晶の複屈折 Δn, 入射光の波長 λ との間に以下の関係が成り立つときには，ダイレクタの回転方向に沿って電場方向を回転させながら伝搬する [23].

$$\lambda \ll \Delta n p \tag{1.2}$$

また図に示すように，ねじれ配向を電場印加により解消した場合には電場方向の回転は生じない．液晶ディスプレ等ではこのセルの前後に偏光子と検光子を配置し，透過光のオン，オフを実現する．

ここで取り上げた以外にもグレーティング構造や，液晶構造は様々な応用が行われている．例えば前者は光集積回路の光導波路への結合器 [24] や広帯域グレーティングミラー [5] があり, 後者には偏光回転を行う液晶リターダ [25] や画素ごとに反射光の位相を変調する LCOS(Liquid Crystal On Silicon) [26], Fabry-Perot 共振と液晶材料を組み合わせ狭帯域かつ可変の波長選択を実現する素子 [27] 等がある．液晶とグレーティングを組み合わせた素子についても, 様々に検討が行われており [28–30]，今後とも更に研究，実用化が進むものと考えられる．

液晶を用いた素子の厚みは，もちろん動作原理や構成にもよるが 1.2 式のところでも述べたように，波長と比して厚くなる傾向がある．次節以降では微細構造と液晶を組み合わせ，サブ波長厚の素子実現を目標に, SPP を利用した金属ナノ構造について検討を行う．SPP は金属と誘電体界面に局在する波であり，表面の比誘電率変化に敏感となることから，金属上の液晶により特性を変化できる可能性を有する．その為，本研究では，金属ナノ構造を用いた素子の設計手法，評価手法の確立を行い，金属ナノ構造と液晶を組み合わ

せた透過光制御素子実現の可能性を検討する．

1.3　表面プラズモンポラリトン

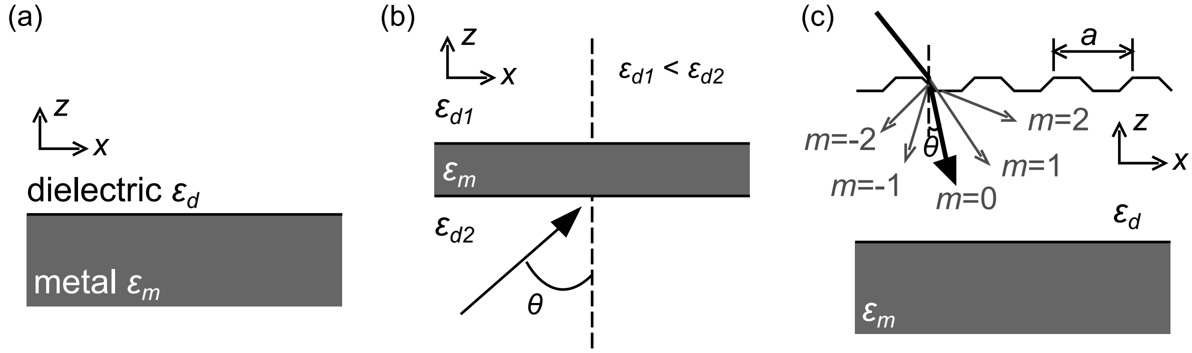

図 1.2　(a) 金属誘電体単一界面の構成, (b) 高比誘電率媒体を用いた SPP の励振方法, (c) 周期構造を用いた SPP の励振方法

本論文では金属ナノ構造，特に金属フィルムに周期的なナノホールを有するナノホールアレイ構造について研究を行った．金属ナノ構造と光の相互作用としては，入射電磁波が金属の自由電子の集団振動と相互作用を生じ結合した表面プラズモンポラリトン (SPP) が重要な役割を担う．

まず，SPP が入射電磁波により励振される条件について，図 1.2(a) に示すような単純な金属誘電体界面の SPP を通してみていく．ここで SPP は図中 x 方向に伝搬し，直線偏光のうち y 方向にのみ磁場の振動方向をもつ TM 偏光により励振されるものとする．x 方向に伝搬する SPP の波数 $k_{sp,x}$ と入射電磁波の角周波数 ω の関係は分散関係と呼ばれ，次式の関係が成立する (導出については**付録 A** を参照).

$$k_{sp,x} = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon_m}{\epsilon_m + \epsilon_d}} \tag{1.3}$$

ここで c は光速を，ϵ_m および ϵ_d は，それぞれ金属と誘電体の比誘電率を示す．横軸を SPP の波数とし，縦軸を角周波数とした ω-k ダイアグラムを図 1.3 に示す．ただし，入射電磁波の角周波数は光子エネルギーに変換して表示を行った．

本論文においては光の周波数を適宜，角周波数 ω(rad/s), 真空中の波長 λ(m), 光子エネルギー E (eV) を用い表す．

$$\omega = \frac{2\pi c}{\lambda} \tag{1.4}$$

$$E = \frac{hc}{e\lambda} \tag{1.5}$$

ここで h はプランク定数, e は電気素量である.

SPP の性質説明には，多くの書籍の導入部において [12, 13, 31] 金属の比誘電率を無損失のドルーデモデルとして扱っている (**付録 A** 参照)．本論文でも，本章においては金属の比誘電率を**付録 B** 式 B.10 の無損失のドルーデモデルで表現する．ここで ω_p の値は文献 [13] を参考に, 金のプラズマ周波数に相当する格子エネルギー 9.03 eV とした．誘電体の比誘電率 ϵ_d は空気と溶融石英 (SiO_2) を考え, それぞれ $\epsilon_{\mathrm{Air}} = 1.0$, $\epsilon_{\mathrm{SiO_2}} = 2.10$ として計算を行った．図で実線で示される曲線が，金属誘電体単一界面の SPP の分散関係を,

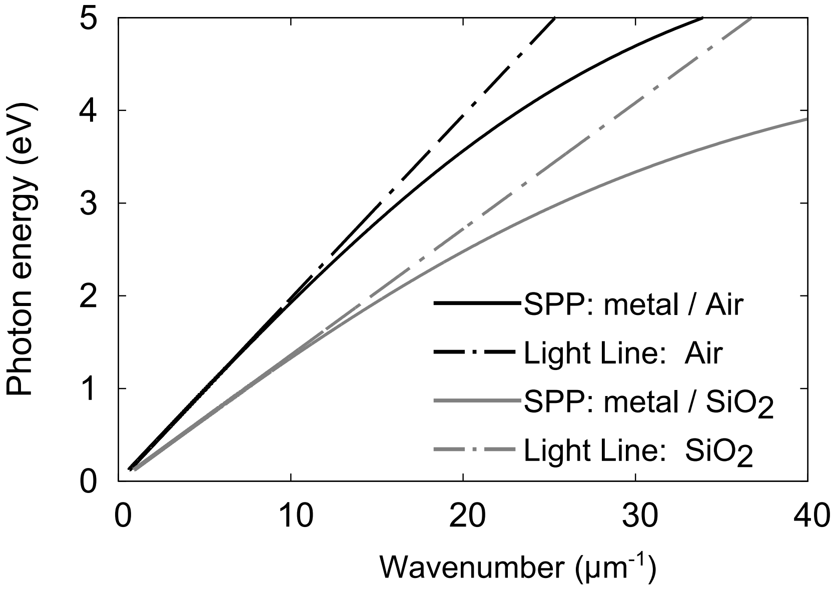

図 1.3　金属誘電体単一界面における SPP の分散関係.

一点鎖線がライトラインと呼ばれる $\mathbf{k} = n\omega/c$ で表される均一媒質内での x 方向の最大波数を表す．ここで n は均一媒質の屈折率である．表面プラズモンを入射光により励振する為には，金属誘電体界面方向の表面プラズモンの波数と，入斜光に由来する波数を等しくする必要がある．図より金属誘電体単一界面を伝搬する SPP の波数は，接触する誘電体において伝搬する波数より常に大きくなる．よって金属誘電体界面に単純に光を照射しても，x 方向の波数が整合せず SPP は励振することはできない．その為，一般には SPP の励振は図 1.2(b) に示すように高比誘電率側の媒体から，光を斜め入射させることで,

$$k_{sp,x} = \sqrt{\epsilon_{d2}}k_0 \sin\theta \tag{1.6}$$

とし，波数を整合させ励振させる方法がとられる [13]．ここで ϵ_{d2} は光を入射させる側の誘電体の比誘電率を, k_0 は真空中における波数を, θ は入射角をあらわす.

また，図 1.2(c) に示すように SPP は回折格子のような周期構造によっても励振可能であり，格子周期を a，回折光の回折次数を m として，次式で表される関係が成立するとき

に SPP と回折光の波数が整合し，SPP を励振可能となる [13].

$$k_{sp,x} = \sqrt{\epsilon_d} k_0 \sin\theta + m\frac{2\pi}{a} \tag{1.7}$$

本研究では, この周期構造による SPP と入射光の波数の整合を用い, ナノホールアレイの透過現象の検討を行った.

1.4　表面プラズモンポラリトンと液晶材料

SPP は金属誘電体界面に局在した波であり, 図 1.2(a) で z 方向には指数関数的に強度が減衰する．磁場の y 方向成分が任意定数 A を用いて $Ae^{ik_x x}e^{-k_z z}$ で表されるとすると，誘電体内で振幅が $1/e$ になる金属面に垂直方向の距離は $1/k_z$ で表される．これは波長を 1500 nm とし, 金属として金を想定し (比誘電率は**付録 B** に記載の振動子モデルであらわされるとする), 誘電体の比誘電率を 2.10 とした時にはおよそ 1050 nm となる．つまり, SPP の電磁場は金属表面からサブ波長の領域に局在しており, 表面の比誘電率変化に非常に敏感となる．そのため，SPP はセンシング用途として広く用いられている [13, 32, 33].

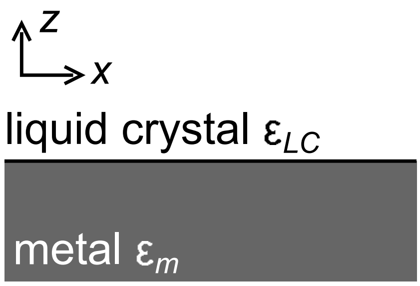

図 1.4　金属液晶単一界面の構成

本研究では金属誘電体積層ナノホール構造と, ネマチック相を示す液晶（ネマチック液晶）を組み合わせ透過素子について検討する．ネマチック液晶の分子の多くは細長い分子構造を持ち，長軸方向に分極を有する．ネマチック相においては分子の位置関係は結晶のように周期的ではなくランダムであるが, 平均的な配向方向つまりダイレクタは大まかに揃っている [23]．本研究では主にダイレクタの方向を z 方向とし, 液晶の比誘電率 ϵ_{LC} は, 比誘電率テンソルの対角成分によって表される, つまり次式のように表されるとして進める.

$$\epsilon_{LC} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \tag{1.8}$$

本節では, 液晶の比誘電率テンソルのうちどの成分が SPP に主として影響を及ぼすかを, 金属液晶界面の SPP の分散関係の式から確認する.

図 1.4 に示す金属液晶界面での SPP の分散関係は次式の通りである (導出については**付録 A** 参照).

$$k_{sp,x} = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\epsilon_{zz}\epsilon_m(\epsilon_m - \epsilon_{xx})}{(\epsilon_m^2 - \epsilon_{xx}\epsilon_{zz})}} \tag{1.9}$$

ここで低周波数域で金属の比誘電率 ϵ_m 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小量の一次までとると，

$$k_{sp,x} = \frac{\omega}{c}\sqrt{\epsilon_{zz}}\left(1 - \frac{1}{2}\frac{\epsilon_{xx}}{\epsilon_m}\right) \tag{1.10}$$

と近似され，金属と一軸異方性液晶界面の SPP の波数は，液晶の比誘電率の対角成分のうち z 成分の比誘電率に強く依存することがわかる．図 1.5 に，金属として前節と同様に金を採用し，ϵ_{xx}, ϵ_{zz} を 2.31 もしくは 2.82 とした時の式 1.9 を用いた分散関係のプロットと, 式 1.3 で ϵ_d を 2.82 とした時の分散関係のプロットを示す.

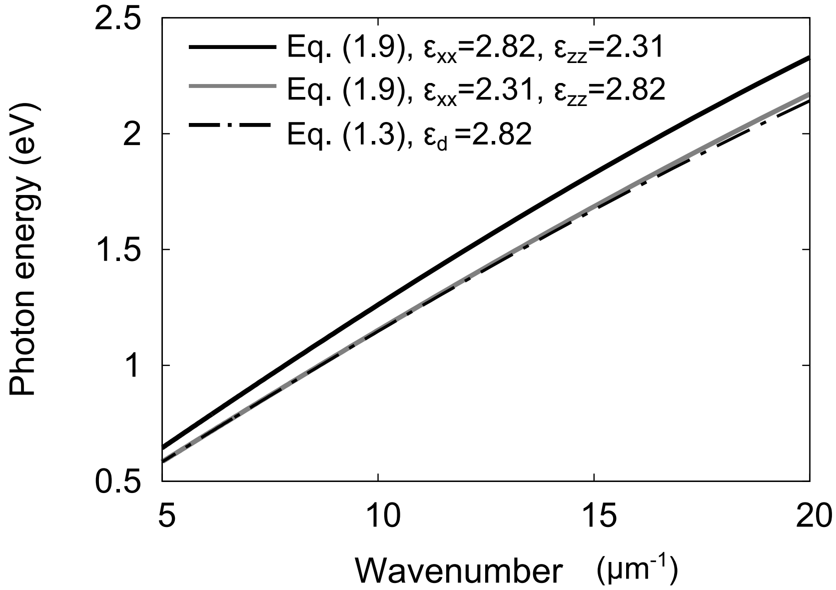

図 1.5 金属液晶単一界面の SPP の分散関係

図で灰色の実線で示される曲線は $\epsilon_{xx} = 2.31$, $\epsilon_{zz} = 2.82$ とした際の分散関係であり，正の誘電異方性をもつ液晶では液晶のダイレクタ方向が z 方向の場合にあたる．一方，図で黒色の実線で示される曲線は $\epsilon_{xx} = 2.82$, $\epsilon_{zz} = 2.31$ とした分散関係であり，同じく正の誘電異方性をもつ液晶では液晶のダイレクタ方向が x 方向の場合にあたる．灰色実線で示した曲線と，黒色実線で示した曲線の関係より，液晶の配向状態により分散関係が影響を受ける事がわかる．また, 上に述べた灰色の実線で示す分散関係と, 式 1.3 において誘電体の比誘電率を等方性とし ϵ_d= 2.82 とした黒色の一点鎖点で示す分散関係は低エネルギー側でほぼ一致する．このことから金属と一軸異方性液晶界面の SPP の波数は, プラ

ズマ周波数と比較して十分に低エネルギー側（低周波数, 長波長側）では液晶の比誘電率テンソルの金属面に垂直方向の成分に依存する事が分散関係のプロットより示された．第 4 章では金属界面に垂直方向の比誘電率に注目して金属誘電体積層ナノホール構造の透過特性と素子構造について検討を行う．

1.5　本研究で検討を行う構造

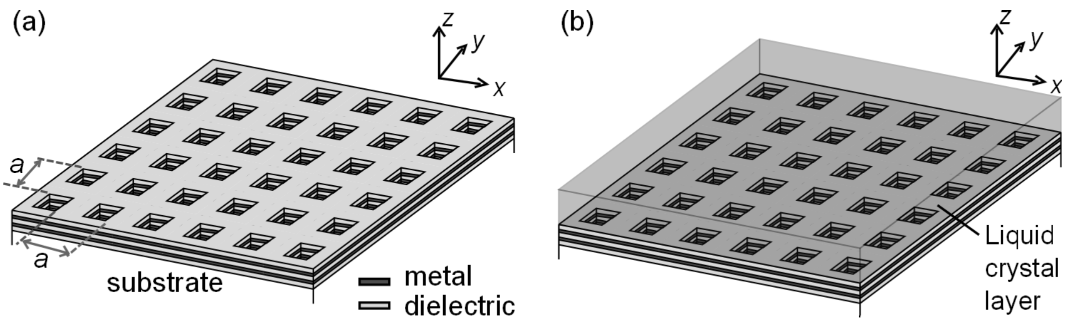

図 1.6　本研究で検討を行う構造．(a) SHA 構造．(b) 液晶装荷 SHA 構造．

図 1.6 に本研究で検討を行う構造を示す．構造は基板上に積層した金属および誘電体膜に x, y 方向に周期 a でナノホールが配列した構造からなる (図 1.6(a))．本研究ではこの構造を SHA(Stacked metal-dielectric Hole Array) と表記する．ここで周期 a は，対象とする波長を λ とした時に $a < \lambda$ である．本研究では，対象波長 λ は近赤外光とし，特に実験的には $\lambda = 1000$ nm - 1700 nm の波長域を検討する．特に断りがない限り，SHA 構造に入射する光は直線偏光であり，基板側からの垂直入射とし，伝搬方向を z 方向とする．

ナノホールアレイを有する金属フィルムを特異的に透過する現象である異常光透過 (EOT: Extraordinary Optical Transmission) は Ebbesen らにより報告されて以降 [7], 盛んに研究されてきた [8, 34]．その透過には，入射直線偏光の電場方向を x 方向とすると，金属と誘電体界面を x 方向に伝搬する SPP が関与している．SHA を構成する金属と誘電体の積層構造を考えると，**1.3** 節でも述べたように周期構造を用いることで，SPP の波数と回折光の波数が整合し SPP を励振可能となる．そのため，SHA 構造は SPP を介して入射光と相互作用を生じる．また **1.4** 節でも述べたように x 方向に伝搬する SPP は，z 方向には指数関数的に振幅が減衰し，その分散関係は金属に接する媒体の比誘電率の z 成分に依存する．その為，SHA 構造の透過現象は SHA 構造上の波長厚程度の領域の比誘電率に依存すると考えられる．本研究では SHA 構造上にサブ波長厚の液晶を装荷し (図 1.6(b))，その透過特性を検討する．

1.6　本研究の目的と構成

本研究では，金属ホールアレイ上にサブ波長厚の液晶材料を装荷し，その透過特性を外場により制御可能とする素子構成のコンセプトを提案する事を目的としている．本論文は全 5 章で構成され，各章は次のような内容により構成される．

第 1 章　序論では，研究の背景について記述をおこなった後に，SPP の一般的な説明を行った．ここではまず SPP は周期構造により励振可能であることを示した．次に，液晶材料等の一軸異方性材料と金属界面での SPP の分散関係は，異方性材料の比誘電率において金属面に垂直方向の成分に依存することを示した．

第 2 章　金属誘電体積層ナノホール構造の設計では本論文で検討を行う SHA 構造の基礎特性を, モデル化，数値計算による予測，実験による検証により示し，後の章での議論の基礎的材料を提供する．まず素子の応答モデルである周期構造と SPP の結合という解釈に用いる分散関係を示した．SPP と周期構造との相互作用が生じる周波数は分散関係を用いて大まかに予測可能である．つづいて相互作用が予想される周波数における SHA 構造の透過特性を数値計算により検討した．その後，素子の作製方法，評価方法について検討を行った．最後に SHA 構造の透過特性に関し，計算および実験により得られた結果をまとめた．

第 3 章　形状遷移金属誘電体積層ナノホール構造では，前章で得られた結果を踏まえ，面内でナノホール形状が徐々に変化する金属誘電体積層ナノホール構造の透過特性について検討を行った．形状が徐々に変化する SHA 構造の設計には，SHA 構造の透過特性がナノホール形状に依存する事を用いた．本章では入射直線偏光の電場方向に同一穴形状を有し，電場方向と直交する方向に穴形状を徐々に変化させた長方形穴 SHA を用いた素子の検討を行った．設計した素子は, 数値計算による検証の後，前章で導入した干渉顕微鏡，及び遠視野観察によりその透過特性を検討した．

第 4 章 液晶装荷金属誘電体積層ナノホール構造では，SHA 構造の動的変調の為の基礎検討として，液晶材料の装荷にとりくみ，一軸異方性液晶を用いた SHA 構造の透過現象の基礎的なメカニズムを計算と実験により検証した．液晶と金属界面の SPP は液晶の比誘電率のうち，金属面に垂直方向の比誘電率に主として影響を受けることから, 液晶が垂直配向した素子構成に関し SHA の透過特性の検討を行った．まず数値計算によりサブ波長厚の液晶層を用いた SHA 構造の透過メカニズムを明らかにし，続いて実験による検証をおこなった．

第 5 章　結論では，第 2 章から第 4 章までで得られた SHA 構造, およびサブ波長厚の液晶材料を装荷した SHA 構造による透過素子についての研究成果を総括し，本研究の結論とした．

参考文献

[1] D. Fattal, J. Li, Z. Peng, M. Fiorentino, and R. G. Beausoleil, "Flat dielectric grating reflectors with focusing abilities," Nature Photonics **4**, 466–470 (2010).

[2] P. Spinelli, M. Verschuuren, and A. Polman, "Broadband omnidirectional antireflection coating based on subwavelength surface mie resonators," Nature Communications **3**, 692 (2012).

[3] F. Lu, F. G. Sedgwick, V. Karagodsky, C. Chase, and C. J. Chang-Hasnain, "Planar high-numerical-aperture low-loss focusing reflectors and lenses using subwavelength high contrast gratings," Optics Express **18**, 12606–12614 (2010).

[4] A. B. Klemm, D. Stellinga, E. R. Martins, L. Lewis, G. Huyet, L. O' Faolain, and T. F. Krauss, "Experimental high numerical aperture focusing with high contrast gratings," Optics Letters **38**, 3410–3413 (2013).

[5] C. F. Mateus, M. C. Huang, Y. Deng, A. R. Neureuther, and C. J. Chang-Hasnain, "Ultrabroadband mirror using low-index cladded subwavelength grating," IEEE Photonics Technology Letters **16**, 518–520 (2004).

[6] C. Chase, Y. Rao, W. Hofmann, and C. J. Chang-Hasnain, "1550 nm high contrast grating VCSEL," Optics Express **18**, 15461–15466 (2010).

[7] T. Ebbesen, H. Lezec, H. Ghaemi, T. Thio, and P. Wolff, "Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays," Nature **391**, 667–669 (1998).

[8] C. Genet and T. Ebbesen, "Light in tiny holes," Nature **445**, 39–46 (2007).

[9] D. Inoue, A. Miura, T. Nomura, H. Fujikawa, K. Sato, N. Ikeda, D. Tsuya, Y. Sugimoto, and Y. Koide, "Polarization independent visible color filter comprising an aluminum film with surface-plasmon enhanced transmission through a subwavelength array of holes," Applied Physics Letters **98**, 093113 (2011).

[10] S. Wang and R. Magnusson, "Theory and applications of guided-mode resonance filters," Applied Optics **32**, 2606–2613 (1993).

[11] J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, and R. D. Meade, *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light* (Princeton university press, 2011).

[12] S. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications* (Springer Verlag, 2007).

[13] 岡本隆之，梶川浩太郎, **プラズモニクス　基礎と応用**(講談社, 2010).

[14] S. Fan and J. Joannopoulos, "Analysis of guided resonances in photonic crystal slabs," Physical Review B **65**, 235112 (2002).

[15] K. S. Yee, "Numerical solution of initial boundary value problems involving

maxwell’s equations,” IEEE Transactions on Antennas and Propagation **14**, 302–307 (1966).

[16] D. F. Kelley and R. J. Luebbers, “Piecewise linear recursive convolution for dispersive media using FDTD,” IEEE Transactions on Antennas and Propagation **44**, 792–797 (1996).

[17] 小柴正則, 光 · 波動のための有限要素法の基礎 (森北出版, 1990).

[18] M. Moharam and T. Gaylord, “Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating diffraction,” Journal of Optical Society of America **71**, 811–818 (1981).

[19] L. Li, “Use of Fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures,” Journal of Optical Society of America A **13**, 1870–1876 (1996).

[20] M. Moharam, E. B. Grann, D. A. Pommet, and T. Gaylord, “Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings,” Journal of Optical Society of America A **12**, 1068–1076 (1995).

[21] H. A. Haus, *Waves and Fields in Optoelectronics* (Prentice-Hall Englewood Cliffs, NJ, 1984).

[22] Z. Peng, D. A. Fattal, A. Faraon, M. Fiorentino, J. Li, and R. G. Beausoleil, “Reflective silicon binary diffraction grating for visible wavelengths,” Optics letters **36**, 1515–1517 (2011).

[23] 吉野勝美, 尾崎雅則, 液晶とディスプレイ応用の基礎 (コロナ社, 1994).

[24] 西原浩，春名正光，栖原敏明，光集積回路 (オーム社，1993).

[25] P. Yeh and C. Gu, *Optics of Liquid Cyrstal Displays* (Wiley, 2010).

[26] N. Matsumoto, T. Ando, T. Inoue, Y. Ohtake, N. Fukuchi, T. Hara, “Generation of high-quality higher-order Laguerre-Gaussian beams using liquid-crystal-on-silicon spatial light modulators,” Journal of Optical Society of America A **25**, 1642–1651 (2008).

[27] E.-A. Dorjgotov, A. K. Bhowmik, and P. J. Bos, “Switchable polarization-independent liquid-crystal Fabry-Perot filter,” Applied Optics **48**, 74–79 (2009).

[28] M. L. Jepsen and H. J. Gerritsen, “Liquid-crystal-filled gratings with high diffraction efficiency,” Optics Letters **21**, 1081–1083 (1996).

[29] X. Wang, D. Wilson, R. Muller, P. Maker, and D. Psaltis, “Liquid-crystal blazed-grating beam deflector,” Applied Optics **39**, 6545–6555 (2000).

[30] A. S. P. Chang, H. Tan, S. Bai, W. Wu, Z. Yu, and S. Y. Chou, “Tunable external cavity laser with a liquid-crystal subwavelength resonant grating filter as wavelength-selective mirror,” IEEE Photonics Technology Letters **19**, 1099–1101 (2007).

[31] 福井萬壽夫, 大津元一, 光ナノテクノロジーの基礎 (オーム社, 2003).

[32] J. Homola, S. S. Yee, and G. Gauglitz, “Surface plasmon resonance sensors: review,” Sensors and Actuators B: Chemical **54**, 3–15 (1999).

[33] J. Homola, “Surface plasmon resonance sensors for detection of chemical and biological species,” Chemical Reviews **108**, 462–493 (2008).

[34] L. Martín-Moreno, F. García-Vidal, H. Lezec, K. Pellerin, T. Thio, J. Pendry, and T. Ebbesen, “Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays,” Physical Review Letters **86**, 1114–1117 (2001).

第 2 章

金属誘電体積層ナノホール構造の設計

2.1 はじめに

ナノサイズの周期孔 (ナノホールアレイ) を有する金属フィルムを特異的に透過する現象である異常光透過 (EOT: Extraordinary Optical Transmission) が Ebbesen らにより報告されて以降 [1], この特異な透過現象は盛んに研究されてきた [2,3]. 光が金属孔を透過する為には一般にその直径 d と入射波長 λ との間に $d > \lambda/2$ の関係が必要であり，d が $\lambda/2$ より小さい時には入射光は透過しない. EOT においてはナノホールアレイの各孔の直径は半波長 $\lambda/2$ より小さく, その特異的な透過メカニズムの起源が盛んに議論されてきた.

まず最初に考えられたのが, 周期構造と金属面に沿って伝搬する表面プラズモンポラリトン (SPP: Surface Plasmon Polariton) との結合である [4]. 入射光が, 周期構造由来の波数ベクトルにより, 金属誘電体界面に沿って伝搬する SPP と結合し，その後再結合することで，金属ナノホールアレイを透過するというものである. この入射光と金属誘電体面を伝搬する SPP の結合という考え方は, 現象の大まかな共鳴周波数を特定可能であったが [5], その透過スペクトルのピークの位置を正確に表現することはできていなかった [6]. EOT のメカニズムに関しては金属誘電体界面を伝搬する SPP とは別に，個々の穴を透過する現象の寄与が明示的に議論されてきた [6–8]. その結果現在では，EOT 現象は周期構造による金属面を伝搬する SPP との結合に加え，個々の穴を透過する波との複合的な現象として考えられている [9].

EOT がナノホールアレイを有する単一金属フィルムの透過現象であるのに対し，EOT の研究と同時期に, EOT と類似する構造であるフィッシュネット構造が注目されてきた. この構造は複数の金属ホールアレイが積層された構造であり，波長より小さな構造を用い

て人工的に自然界には存在しない物性を実現させるというメタマテリアルと呼ばれる分野で議論されてきた．この考え方によれば，フィッシュネット構造により有効的な比透磁率と比誘電率を負とすることが可能となり，負の屈折率を実現できるというものであった [10–12]．その動作メカニズムは負の比透磁率が, 金属プレート間に発生する磁場応答により，負の比誘電率が金属ワイヤ構造部が希薄なドルーデ金属として振る舞うことにより発生するという解釈であった．この解釈においてはフィッシュネット構造は, 個々のユニットセル構造があたかも一つの材料であるメタ分子として取り扱われ [13, 14]，その有効屈折率はパラメータリトリーバル法 [15, 16] で求められるというものであった．しかし，フィッシュネット構造のユニットセルの周期は入射波長を λ とした時にせいぜい $\lambda/2$ 程度であり [14]，フィッシュネット構造の動作起源をメタ分子として表現するには議論の飛躍を含んでいた．

その為，負の屈折率の起源として異なる考え方が提起され議論された．それが SPP のうち金属ギャップ間に電磁場が局在するモードの関与である [17–20]．以降，本論文では SPP のモードのうち対向する金属間に電磁場が局在するモードを gap-SPP と略して表記する．この gap-SPP と周期構造とのカップリングという考え方は, 金属誘電体界面を伝搬する SPP と周期穴による入射光の結合という意味で，単一金属フィルムの EOT と複数積層金属フィルムの現象であるフィッシュネット構造の間に統一的な解釈を与えるものであった．本研究ではこの考えに基づき金属ナノホールアレイを取り扱い，以後，単一/複数積層ホールアレイフィルムをまとめて SHA(<u>S</u>tacked <u>H</u>ole <u>A</u>rray) と省略して表現する．

SHA の動作メカニズムにおいて，周期構造に由来して金属誘電体界面を伝搬する SPP とのカップリングに加え，その 2 次元周期構造の穴の形状も特性に大きな影響を及ぼす．SHA 構造の穴の形状に関しては様々な研究が行われ，例えば単一金属フィルムの EOT においては，入射直線偏光の電場の振動方向に同一の幅を持つ方形穴と円形穴を比較した際に，方形穴のほうが透過率が高くなることが示された．これは方形穴が円形穴と比較して穴による局所的な共鳴が強いことに由来すると説明された [21]．一方, フィッシュネット構造においても方形穴は円形穴と比較して，フィッシュネット構造の有効性を示す性能指数である FOM(Figure of merit) が大きくなることが示されている [22]．両者に共通するのは，円形穴を有する SHA の透過特性は周期穴と SPP の結合が支配的な因子であるのに対し，方形穴においては周期穴と SPP の結合に加えて個々の穴の透過共鳴の寄与が大きいということである．本章においては SHA の透過特性に対する周期と穴の形状の影響を明確にすることを目的に，正方形穴と円形穴を有する SHA を設計，作製，評価し，その透過特性について議論を行う．

2.2　ユニットセル構造

この章において議論を行う SHA 構造のユニットセル構造を図 2.1 に示す．ユニットセル構造は石英 (SiO_2) 基板上に, 金属としてアルミ (Al) を 5 層と, 誘電体として SiO_2 を 6 層交互に積層した構造からなる．各構造は周期長を a とした際に一辺 $a/2$ の正方形もしくは直径 $a/2$ の円形穴を有する正方格子により構成される．Al, SiO_2 各層の厚みはそれぞれ 20 nm, 80 nm とした．格子周期は 900 nm と 1000 nm の 2 種類の構造を作製した．後述するがこれは実験的な理由によるものであり，測定に用いる波長可変レーザーの波長可変範囲 (λ = 1470 - 1545 nm) で SHA の透過帯において重要な特性を示す波長域をカバーする為である．

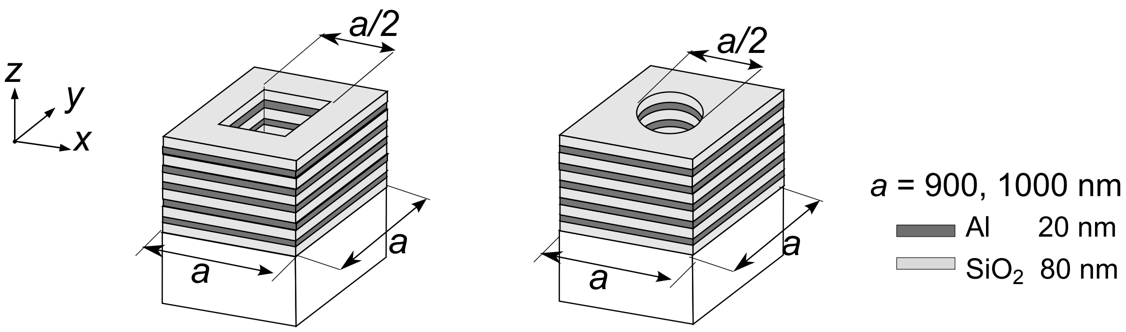

図 2.1　正方形穴と円形穴を有する SHA 構造のユニットセル構造

2.3　分散関係

この章において議論を行う SHA 構造は多数の金属誘電体界面を持つ．隣接する界面が十分離れている場合にはそれぞれの界面に SPP が独立に存在する．しかし, 界面間の距離が近くなるとそれぞれの SPP 間に相互作用が生じ, その結果 SPP のモードは界面の数だけ生じる [23,24]．本章では, 議論を行う SPP のモードとして参考文献 [18] のモデル化に従い，大きく二つに近似し検討を行った．つまり金属と外側半無限領域誘電体との単一界面の境界を伝搬するモード (以後，外側誘電体との単一界面とし ext-SPP と省略して表記する) と, 金属間に電磁場が集中するモード (gap-SPP) である [25–27]．ここで二つのモードの SPP の金属界面に沿って進む波数ベクトル k_{sp} と入射光の角周波数 ω の間の分散関係に関し議論する．金属もしくは誘電体面に垂直方向に z 方向をとり，SPP の伝搬方向を x 方向とし，x 方向に伝搬する SPP の波数を $k_{sp,x}$ として表記する．分散関係は対象となる層構造に対し，SPP が存在する条件である TM モードでの電磁場の境界条件から求まる．ext-SPP の分散関係は金属と誘電体の単一界面への境界条件より次のよう

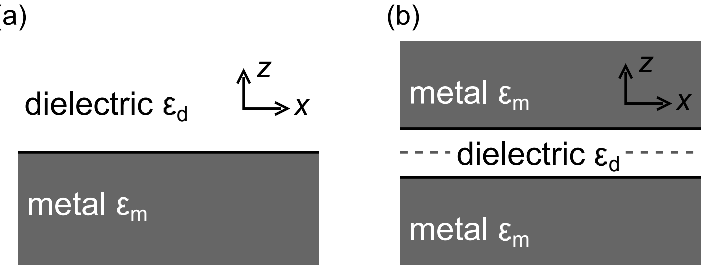

図 2.2　SPP の分散関係の検討をおこなう層構造 (a) 金属誘電体単一界面, (b)MIM (metal-insulator-metal) 構造

に求まる (導出は**付録 A** を参照).

$$k_{sp,x} = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon_m}{\epsilon_m + \epsilon_d}} \tag{2.1}$$

ここで ω は角周波数，c は光速，ϵ_d は誘電体の比誘電率，ϵ_m は金属の比誘電率を表す．金属の比誘電率は周波数依存性を持つことから，後述する振動子モデルにより比誘電率の表現を行った [28]．式 2.1 において，金属，誘電体の比誘電率は既知であることから, ある ω での $k_{sp,x}$ は一意に定まる．

これに対し gap-SPP の分散関係は半無限厚の金属に挟まれた誘電体という三層構造に対し，TM モードにおける電磁場の境界条件から求まる [25, 27]．今回対象とする周波数は金属のプラズマ周波数より十分低いことから，求めるモードは結合性モードとなる xz 平面で $z = 0$ に対して y 方向の磁場 (H_y) が対称となるモードである [29]．誘電体層の z 方向の波数 $k_{z,d}$, 金属層の z 方向の波数 $k_{z,m}$ を用いて次のように表せる (導出は**付録 A** を参照のこと).

$$\frac{k_{z,d}}{\epsilon_d}\{1 - \exp(-2k_{z,d}d)\} + \frac{k_{z,m}}{\epsilon_m}\{1 + \exp(-2k_{z,d}d)\} = 0 \tag{2.2}$$

ここで $2d$ は中心の誘電体層の厚みを表し，誘電体層の z 方向の波数 $k_{z,d}$, 金属層の z 方向の波数 $k_{z,m}$ は，$k_{sp,x}$ を用いて $k_{z,m}^2 = k_{sp,x}^2 - \epsilon_m k_0^2$, $k_{z,d}^2 = k_{sp,x}^2 - \epsilon_d k_0^2$ と表される．k_0 は真空中の波数である．

ext-SPP と gap-SPP の分散関係をプロットした結果を図 2.3 に示す．式 2.1 はある ω に対して $k_{sp,x}$ が一意に定まるのに対し，式 2.2 は関数中に複素指数関数を含み超越関数となり，解析的には求まらない．超越方程式の解を求める為には，ニュートン法等で近似値を求める方法が用いられ，本研究においては Nelder-Mead 法により近似値を求め分散関係のプロットを行った．

分散関係のプロットの際には, 誘電体 SiO_2 の比誘電率を 2.10 とし，金属の比誘電率を振動子モデルで表現した．金属の比誘電率は一般に周波数依存性を持つことから，計算の

際には実験から求められた比誘電率の値 [30] から対象波長の比誘電率を内挿する方法か，ドルーデモデルもしくはローレンツモデル [31] を単一もしくは組み合わせて [28] 誘電関数を表現した振動子モデルによって比誘電率の波長依存性を表現する手法がとられる．本研究においては参考文献 [28] におけるドルーデ · ローレンツモデルにより Al の比誘電率の表現をおこなった．以後，本論文で扱う Al の比誘電率はすべてこのモデル化によるものである (振動子モデルによる誘電関数についての詳細は**付録 B** を参照のこと).

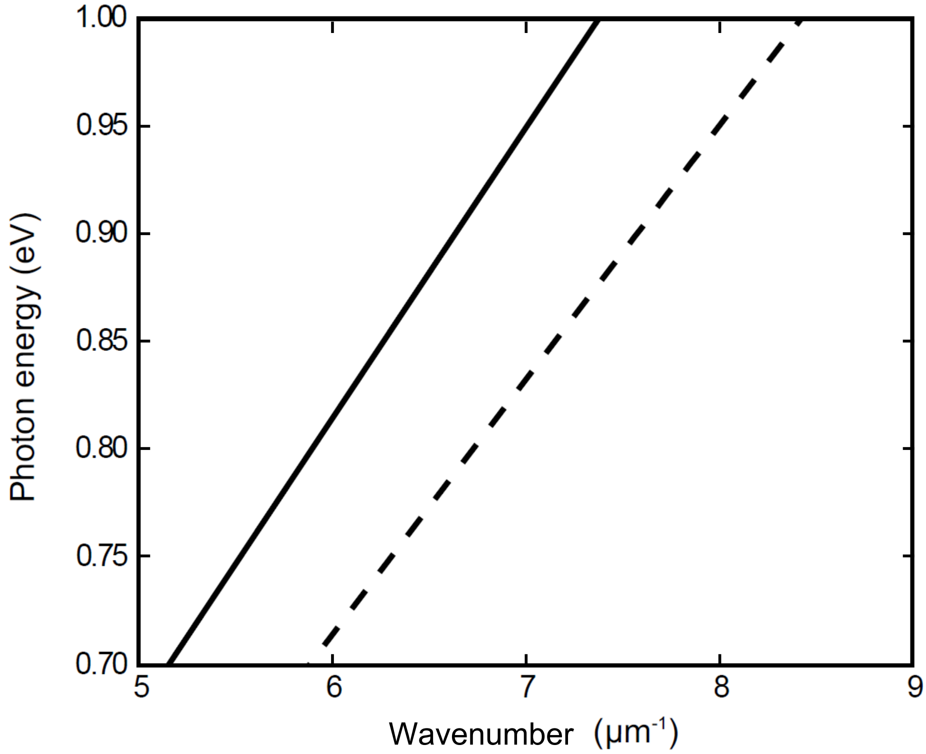

図 2.3　ext-SPP と gap-SPP の分散関係. 実線が ext-SPP を，破線が gap-SPP の分散関係.

図 2.3 は，横軸が表面プラズモンの波数 $k_{sp,x}$ を，縦軸が角周波数から算出した光子エネルギーを表す．図において実線が ext-SPP の分散図を，破線が gap-SPP の分散関係を示す．ここで求めた分散関係を用いて，次節において周期構造と SPP が相互作用する周波数を抽出し，抽出した周波数における SHA の透過特性を数値計算結果と比較することで，SHA の透過特性に関し議論を行う．

2.4　数値計算による解析

2.4.1　数値計算手法

本章および第 3 章においては，SHA 構造の数値解析を市販ソフトウェア Comsol Multiphysics ® (version3.5) を用い有限要素法により行った．計算の際には，SiO_2 の比誘電率は 2.10 として，Al の比誘電率は振動子モデルにより表現した (**付録 B** を参照).

有限要素法による SHA 構造の数値解析

SHA 構造は二次元周期構造であり，比誘電率分布は周期的となる．二次元周期構造の単位格子の基本ベクトルを $\mathbf{a_i}, (i = 1, 2)$ として，並進ベクトルを $\mathbf{R} = p_1\mathbf{a_1} + p_2\mathbf{a_2}$ とすると (p_1, p_2 は整数)，比誘電率は $\epsilon(\mathbf{r} + \mathbf{R}) = \epsilon(\mathbf{r})$ となる．ここで $\mathbf{r}$ は位置ベクトルである．この時，ブロッホの定理より [32, 33]，周期関数 $u(\mathbf{r} + \mathbf{R}) = u(\mathbf{r})$ を用いて，電場もしくは磁場 $\mathbf{A}$ は $\mathbf{A}(\mathbf{r}) = \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})u(\mathbf{r})$ と表される．ここで $\mathbf{k}$ は周期構造を伝搬する固有モードの波数ベクトルである．この時

$$\mathbf{A}(\mathbf{r} + \mathbf{R}) = \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R})\mathbf{A}(\mathbf{r}) \tag{2.3}$$

である.

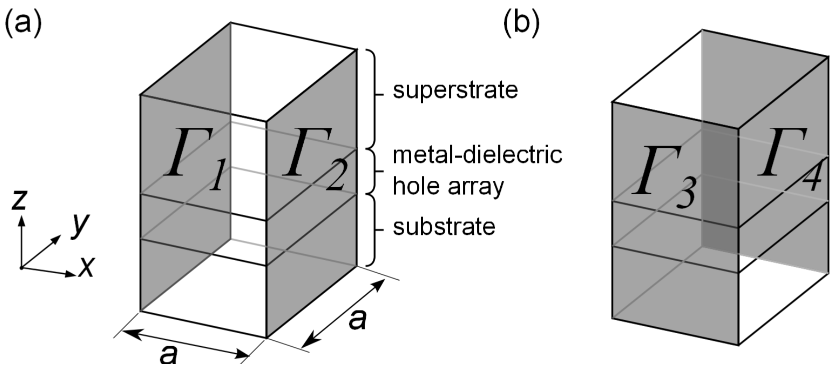

図 2.4　二次元周期構造における周期境界条件．(a)x 方向，(b)y 方向.

本研究においては，二次元周期構造は正方格子であり，図 2.4(a) に示すように x 軸方向の対向する 2 面 Γ_1, Γ_2 における周期境界条件は次式のように表される．ここで A_α は電場もしくは磁場を表し，添え字 α によりその成分を表す ($\alpha = x, y, z$).

$$A_\alpha(x_{\Gamma 2}, y, z) = \exp(ik_x a)A_\alpha(x_{\Gamma 1}, y, z) \tag{2.4}$$

ここで $x_{\Gamma 2} = x_{\Gamma 1} + a$ である.

同様に図 2.4(b) において y 軸方向の対向する 2 面 Γ_3, Γ_4 における周期境界条件は

$$A_\alpha(x, y_{\Gamma 4}, z) = \exp(ik_y a) A_\alpha(x, y_{\Gamma 3}, z) \tag{2.5}$$

として，SHA 構造のユニットセル構造の数値計算を行った．また $y_{\Gamma 4} = y_{\Gamma 3} + a$ である．k_x, k_y は二次元周期構造を伝搬する固有モードの波数ベクトルの x，y 成分である．固有モードの波数 (k_x, k_y) は高次のモードまで考えるとそれぞれ複数存在するが，数値計算の境界条件の設定の際には，最低次のモードで設定すればよく，k_x, k_y はそれぞれ入射光の x, y 方向の波数 $k_{inc,x}, k_{inc,y}$ であらわすことができる．本章においては垂直入射としたことから共に 0 である．

Comsol Multiphysics® を用いた計算においては，直線偏光のうち x もしくは y 方向のみに電場の振動方向をもつとして, 入射電場を 1 としておいた際，反射振幅および透過振幅が散乱パラメータ (S パラメータ) の形で求まる．透過率 T および反射率 R は，それぞれ S パラメータを用いて $|\mathrm{S}_{21}|^2$,$|\mathrm{S}_{11}|^2$ を計算することで求めた．同ソフトにおいては Maxwell 方程式の時間依存性が $\exp(i\omega t)$ で表現されることから，計算の際は比誘電率 ϵ はその実部 ϵ' と虚部 ϵ'' を用いて $\epsilon = \epsilon' - i\epsilon''$ として用いた．また式 2.3 中の $\mathbf{k}$ は $-\mathbf{k}$ で置き換えた．ただし，本論文全体においては, 時間依存性を光学で一般に用いられている $\exp(-i\omega t)$ で扱い，透過位相の表示の際には同形式に修正して表示した．

2.4.2　数値計算による動作メカニズムの解析

この節においては **2.3 節**において導いた分散関係を元に, 周期構造である SHA との相互作用周波数を抽出し，その周波数近傍における SHA の透過特性を数値計算結果と比較することで議論を行う．

SPP と周期構造との相互作用は, 表面プラズモンの波数と周期構造由来の波数が整合する際に生じる．本章では特に断りの無い限り，入射直線偏光は基板側からの垂直入射とし，電場方向を x 方向とする．この際，SPP の伝搬方向は x 方向であり，入射光に由来する回折波と SPP と相互作用を生じる周波数は分散図において SPP 由来の分散曲線と，回折波に由来する波数が交わるところで生じ，その関係は次式のように表される．

$$k_{sp,x} = k_{inc,x} + sG_x \tag{2.6}$$

ここで $k_{sp,x}$ は SPP の x 方向の波数を，s は任意整数を，G_x は周期構造に由来する波数を表す．正方格子において G_x は $2\pi/a$ で表される．$k_{inc,x}$ は入射光の x 方向の波数をあらわし，本章では垂直入射の為 0 である．**第 1 章序論**においては，金属の比誘電率を無損失として扱ったことから，SPP の波数と回折光の波数の間には式 1.7 で等号が成立した．しかし，実際の金属材料は損失を有し，比誘電率は複素数となる．そのため，式 2.6 の $k_{sp,x}$ は複素数となり等号は成立しない．ただし，本研究でとりあげるような金属のプ

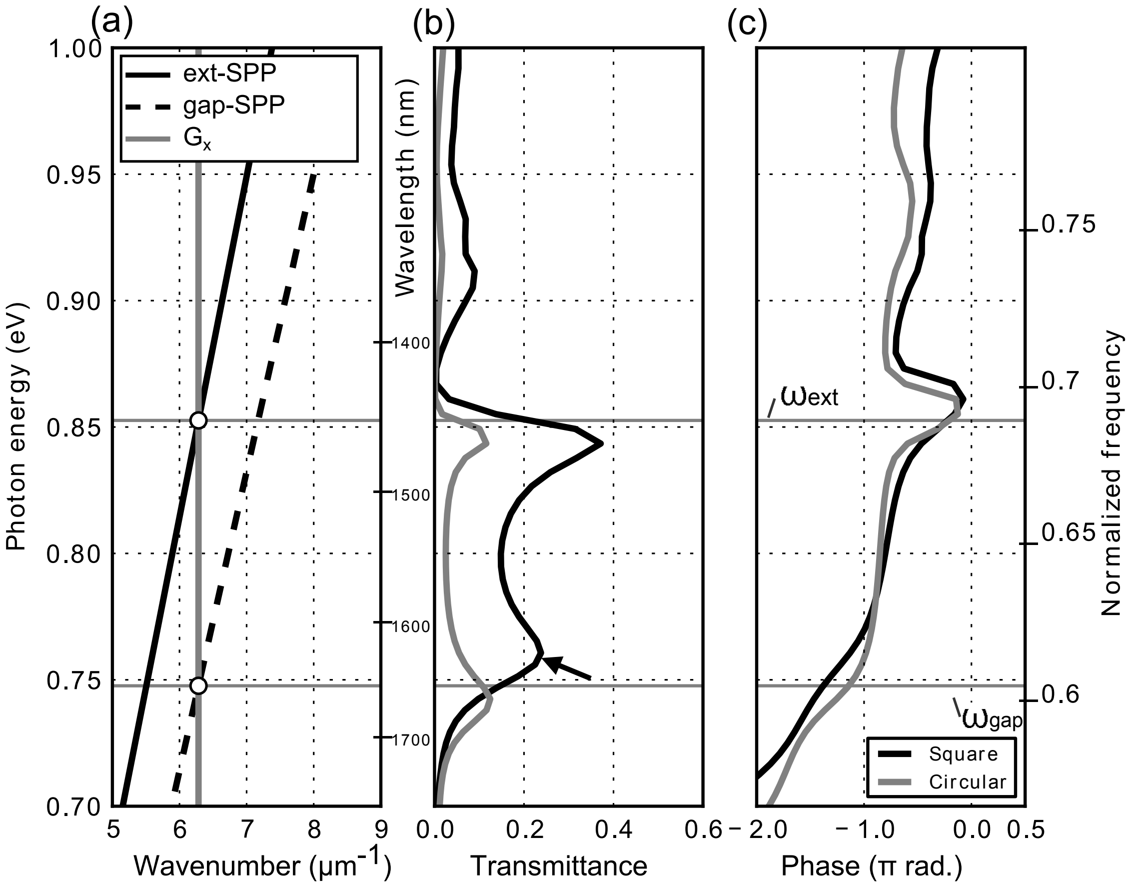

図 2.5　(a) ext-SPP と gap-SPP の分散関係．灰色の縦線は周期構造由来の波数を表す.(b) SHA 構造の数値計算結果 (透過率)．格子周期 a は 1000 nm．ナノホールの側壁傾斜は垂直として計算を行った．(c) SHA 構造を透過した透過位相の数値計算結果．位相は同じ厚みの空気層との差で表示．(a) から (c) にわたる灰色の水平線は，分散関係から導いた周期構造と SPP の相互作用が予想される周波数を表す (ω_{ext} , ω_{gap})．右側の軸表示は規格化周波数 a/λ 図中 (b) は gap-SPP 由来の透過に由来する透過の極値であり，実験の考察の際に用いる

ラズマ周波数より低周波数側では，SPP の波数の実部はその虚部よりも十分大きい．そのため，本研究においては SPP の波数と回折光の波数の整合はその実部の整合により取り扱い，式 2.6 のように表記する．

入射直線偏光の電場方向を x 方向とし, 入射光を基板に対して垂直入射とすると, $s = 1$ に相当する回折波は SPP と図 2.5(a) 中で白抜き丸印で示すように，0.85 eV 付近において ext-SPP と, 0.75 eV 付近において gap-SPP と相互作用を生じる．

図 2.5(b) は図 2.1 で示した SHA 構造に対して垂直入射条件で, 入射直線偏光の電場方向を x 方向とした時の, 数値計算により得られた透過スペクトルを示す．数値計算におい

ては格子周期 a を 1000 nm として計算を行った．分散図より見積もった相互作用周波数を光子エネルギーに換算した 0.85 eV 付近と 0.75 eV 付近におけるスペクトルを観察すると，前者にて透過ピークが, 後者において透過の肩がみられ, 相互作用が予測される周波数において透過率が極大値を示した．これ以降，本章においては 2 つの共鳴周波数を格子周期 a で無次元化した a/λ を用いて, それぞれ $a/\lambda = 0.68$, $a/\lambda = 0.60$ で表現することとし, それぞれ $\omega_{ext}, \omega_{gap}$ とする．高周波数側の透過ピーク ω_{ext} が ext-SPP 由来の透過を示し，低周波数側の透過肩 ω_{gap} が gap-SPP 由来の透過である．相互作用周波数は，以下の理由で規格化周波数 a/λ により表した．実験的に測定したい周波数帯は ω_{ext} 付近と，ω_{gap} 付近である．一方，実験に用いる波長可変レーザの範囲は 1470 nm から 1545 nm であり，一つの素子の測定では上記二周波数帯をカバーできない．SHA 構造の透過特性は規格化周波数 a/λ に依存する為，同一基板上に作製した格子周期の異なるサンプルを用いて，ω_{ext} 付近と ω_{gap} 付近の測定が可能となる．以上の理由から，本章では格子周期の異なる $a = 900$ nm と $a = 1000$ nm の二素子の作製を行い測定を行う．前者を ω_{gap} 付近の特性測定に，後者を ω_{ext} 付近の特性測定に用いた．

数値計算より得られた SHA を透過した位相を図 2.5(c) に示す．本研究では透過位相は SHA と同一の厚みを持つ空気層を透過した位相との差で表す．光波の時間依存性は $\exp(-i\omega t)$ を採用することから，透過位相が（空気層と比較して）負となるとは, 構造の有効屈折率が空気より小さい事を示す．この定義に従い図 2.5(c) を考察する．周波数変化に対する透過位相の変化，つまり分散を考える．先の透過率の時と同様に，二つの共鳴周波数付近で分散が大きくなった．このように共鳴周波数付近で透過率が極大値を示し, 分散が大きくなる事から, SHA の透過素子への適用を検討する．

ここまで周期構造と金属界面に沿って進む SPP の相互作用 (周波数) を中心に見てきたが，もう一つの観点，つまり個々のナノホール形状も SHA の透過特性に影響を及ぼす．図 2.5(b), および (c) において黒色と灰色の実線はそれぞれ正方形穴および円形穴の SHA の透過率と透過位相を示す．高周波数側の共鳴周波数 ω_{ext} 付近をみると，丸穴の SHA の透過位相の周波数変化に対する位相変化の大きさ, つまり分散は正方形穴の SHA の分散よりも大きいことがみてとれる．つまり同一の周期をもつ SHA において，分散は穴の形状に依存することを示している．

上記の結果より SHA の透過特性は，次の二つの事項に依存する．つまり (i)SHA の共鳴周波数は大まかにはホールアレイの周期に依存する．(ii) 入射光の周波数変化に伴う透過位相の変化の大きさ (分散) は個々のナノホール形状に依存する．

2.5　素子の作製と評価方法

2.5.1　作製方法

SHA 構造は多層膜の積層，電子線描画に対するナノ構造レジストパターンの形成，ドライエッチングによるナノホール構造の作製の手順で行った．以下にプロセスの詳細を記述する．

1. Al と SiO_2 の積層膜は石英基板上にマグネトロンスパッタリング装置 (ULVAC, JSP-8000) を用い, SiO_2 は RF 出力 450 W で, Al は RF 出力 300 W で積層を行った．製膜時のキャリアガスにはアルゴンを流量 20sccm で用いた．合計 11 層の Al と SiO_2 の累積厚みは 580 nm である．
2. 電子線描画用のレジストとして, 描画された領域のレジストパターンが現像時に溶解されるポジ型レジスト (日本ゼオン社製，ZEP-520A [34]) を用い，回転数 3000rpm, 30 秒の条件でスピンコートによる製膜後, 180 度のホットプレートで露光前ベークを行い電子線描画レジスト 1 層の積層を行った．この後行うドライエッチング時の耐性の問題から電子線描画レジストの製膜は 2 度行い，トータル 900 nm のレジスト層を形成した．
3. 電子線描画装置 (エリオニクス社，ELS-7000, 加速電圧:100 kV) を用い，ナノホールパターンの描画を行った．電子線描画の露光条件は 80.0 μC/cm^2, 240.0 μC/cm^2, 400.0 μC/cm^2 で行い，得られたレジスト形状を比較した．露光条件によるレジストパターンの形成結果についてはすぐ後に述べる．
4. 電子線レジストの現像にはキシレンを用い，同溶媒中に 2 分浸し現像した後，イソプロピルアルコールで洗浄後，窒素ブローにより乾燥処理を行った．
5. 現像後のレジストは 140°C のホットプレート上で 3 分間ポストベークを行った．
6. レジストパターンの積層膜への転写はドライエッチングにより行った [35]．ここでナノホール壁面の垂直性を向上させる為に SiO_2 のドライエッチングは平行平板型の反応性イオンエッチング (RIE, Reactive Ion Etching) により，Al は誘導結合型反応性イオンエッチング (ICP, Inductively Coupled Plasma) によりエッチングを行った．使用した装置はそれぞれ SiO_2 が Samco 社製 RIE-200NL, ICP が同 RIE-101iPH である．Al 20 nm のエッチングはエッチングガスとして塩素を用い, RF ICP 出力 50 W, RF バイアス出力 150 W で 30 秒間エッチングを行った．SiO_2 のドライエッチング条件についてはすぐ後で言及する．

電子線描画レジストの露光条件

ここでは電子線レジストの露光条件によるナノパターンの形成結果について議論する．積層膜上に ZEP-520A を厚さ 900 nm となるように製膜し，電子線描画の露光条件を変え，レジストパターンの形状を比較した．図 2.6 に露光条件と形成したレジストパターンの断面 SEM 像 (SEM: Scanning Electron Microscopy) を示す．図で縦の列は左から周期 a = 500 nm, 丸穴直径 d = 250 nm の縮小ホールアレイパターンを，真ん中の列は a = 1000 nm, d = 500 nm の基準ホールアレイパターンを，右側の列は a = 2000 nm, d = 1000 nm の拡大ホールアレイパターンを形成したものである．横の行は上から露光条件 80.0 μC/cm^2, 240.0 μC/cm^2, 400.0 μC/cm^2 である．図より 80.0 μC/cm^2 ではレジスト厚 900 nm の下までパターンを形成できず，露光条件 400.0 μC/cm^2 ではレジスト断面形状が逆テーパーとなる事が判明した．その為，本研究では電子線描画時の露光条件として，側壁が垂直に近い矩形状のレジストパターンが形成できる 240.0 μC/cm^2 を採用した．

石英層のドライエッチング条件の最適化

ここでは SiO_2 のドライエッチング条件による，電子線レジストパタンの転写能について述べる．積層膜上に電子線レジストパターンとして円形穴を持つナノホールパターン (a = 1000 nm, d = 500 nm) を形成後, SiO_2 のエッチング時に，エッチングガスとして三フッ化メタン (CHF_3) を用い，チャンバー内のガス圧力を調整し条件の最適化を行った．図 2.7 に積層膜を 6 層 (SiO_2 が 3 層, Al が 3 層) ドライエッチング後の断面 SEM 像を示す．図で左からチャンバー内の圧力は 1.5 Pa, 1.0 Pa, 0.5 Pa, 0.1 Pa である．ガス圧力を上げる程エッチング時のメカニズムは化学反応性に，反対に下げるほどに物理的となる．評価尺度として側壁の傾斜を計測した．パターンが垂直に切れたときを 90 度とすると, それぞれ側壁傾斜は，70 度以下, 78 度, 84 度, 83 度となった．またガス圧力 1.5 Pa 時には副生成物の堆積が観察された．観察結果よりチャンバー内ガス圧力は 0.5 Pa, もしくは 0.1 Pa が適している事が判明し，残存するレジスト厚が厚い 0.5 Pa の条件で以降 SiO_2 のエッチングを行った．

2.5.2　作製構造の評価

前記プロセスで作製した SHA の上面，および断面 SEM 写真を図 2.8 に示す．格子周期は a = 1000 nm のサンプルであり，上面 SEM 写真より正方形穴 SHA，丸穴 SHA ともにほぼ設計に即した構造が作製された．ただし，断面の SEM 観察結果より, ナノホールの側壁の傾斜として側壁傾斜 80 度が観察された．これは SiO_2 の異方性エッチングが

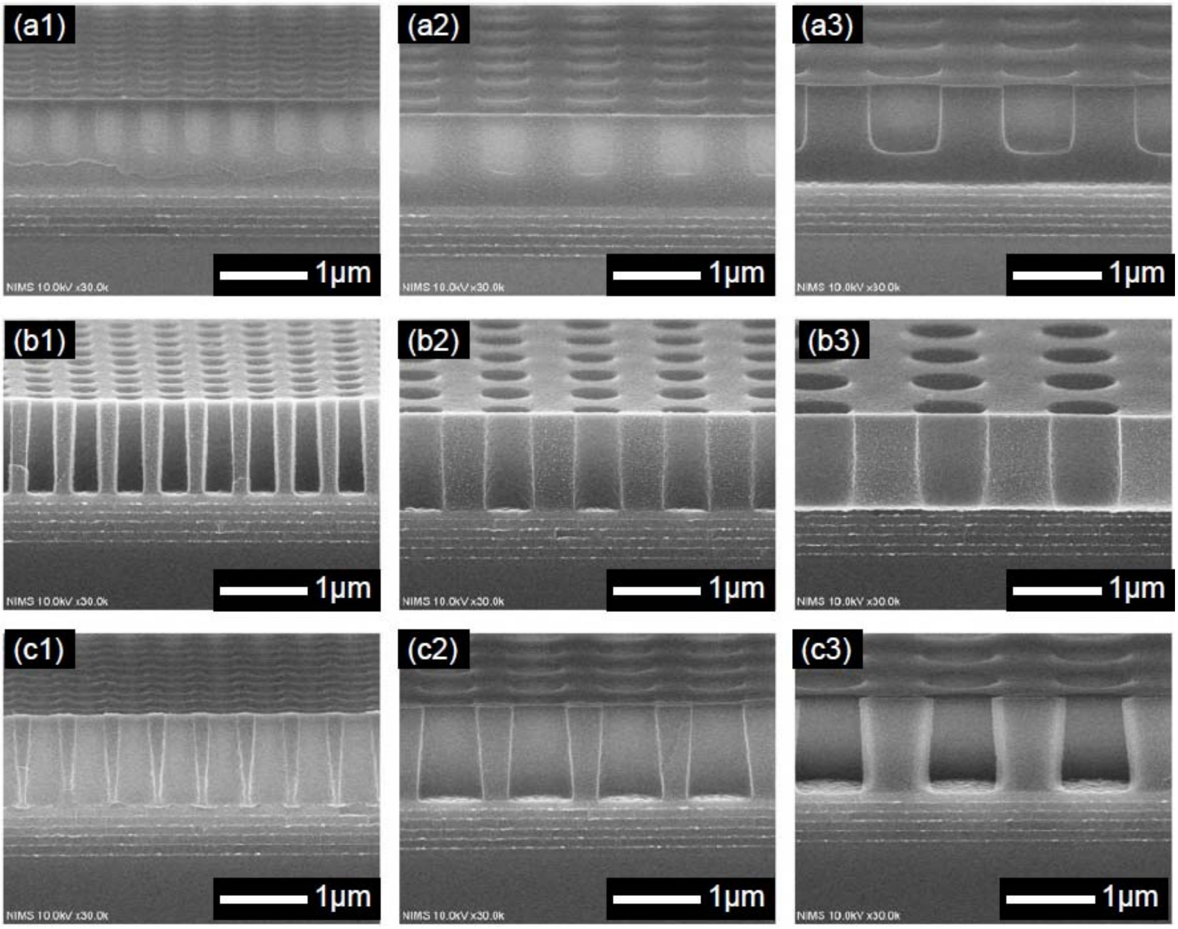

図 2.6　電子線描画法時の露光条件によるレジストパターンの形状結果の比較 (a1)-(a3) 80.0 μC/cm^2, (b1)-(b3) 240.0 μC/cm^2, (c1)-(c3) 400.0 μC/cm^2

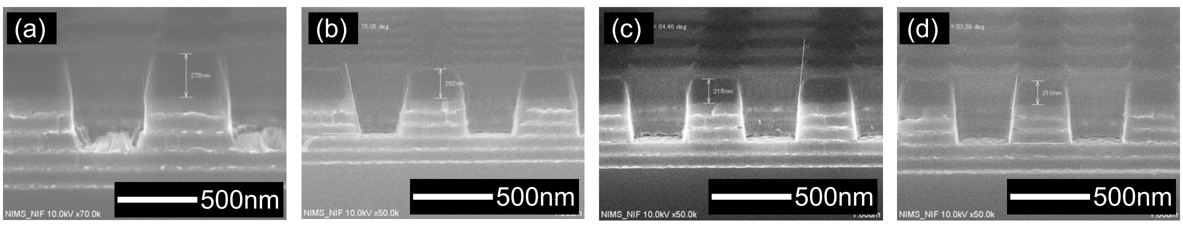

図 2.7　石英層のドライエッチング条件によるナノパターンの形状比較.　(a) チャンバ内ガス圧力 1.5 Pa, (b) 1.0 Pa, (c) 0.5 Pa, (d) 0.1 Pa.

難しく，サイドエッチングが進行した為と考えられる．またレジスト側面が上面および側面から少しずつエッチングされた事で，レジストパターンマスクのサイズがドライエッチング時に変化した事も原因として考えられる．

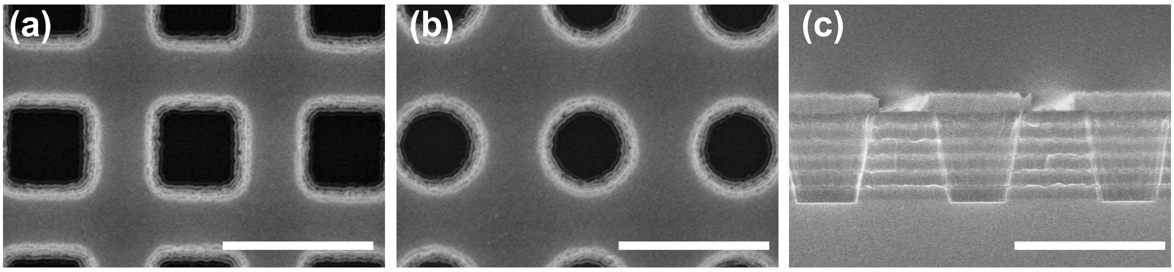

図 2.8　作製を行った SHA 構造の走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真．　(格子周期は 1000 nm)．(a) 正方形穴を持つ SHA 構造 (上面図），(b) 円形穴を持つ SHA 構造 (上面図）(c) 断面 SEM 写真．構造最上部はドライエッチング後のレジスト残査 (光学測定前にウェットエッチングにより除去)．全スケールバーは 1 μm.

2.5.3　光学評価手法

本研究で検討を行った SHA 素子の動作波長は $\lambda = 1.5$ μm 帯の近赤外領域であり，素子の加工エリアは 150 μm 角と微小である．その為，作製した素子の光学評価は, 近赤外領域に最適化されたされた顕微鏡システム (Olympus, BX-51IR) をベースに, 光学系を追加し行った．図 2.9 に透過率測定の為の顕微分光の光学系と，透過位相測定の為の Mach-Zehnder 型の干渉光学系を組み込んだ二光束干渉顕微鏡の光学系を示す．

顕微分光による透過率評価

SHA 素子の透過率測定は顕微分光により行った．図 2.9 でハロゲン光源 X より出射された白色光をコレクターレンズにより NA(開口数) を低下させせた．その後コア径 600 μm NA=0.22 の光ファイバにより導き，光ファイバ端面から焦点距離分はなれた平凸レンズにより平行光に近づけた後，可視光カットフィルター F，偏光子 PL を透過後ミラーを介してサンプル S に基板側より垂直入射させせた．サンプル透過後の光は対物レンズ OL, 検光子 AL，結像レンズ IL により集光され, サンプル位置と共役位置に設置した光ファイバ (コア径 400 μm, NA = 0.22) を導波後，分光器 (Lambda Vision, TFCAM-7000F/NIR) に導き分光測定を行った．

なお，分光器内にはピンホールが配置され，光ファイバのクラッドモードは除去されるため，サンプル面における分光領域は光ファイバ径 400 μm を対物レンズの倍率で除した領域となる．つまり 50 倍の対物レンズを用いた際の観察領域は直径 8 μm となる．サン

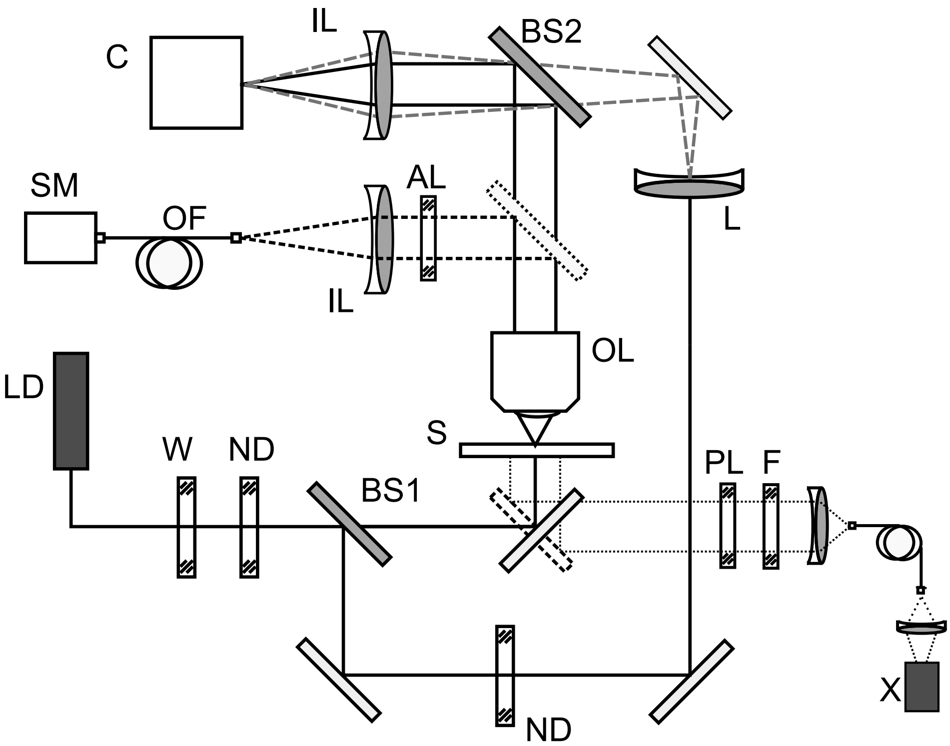

図 2.9　近赤外顕微鏡 (Olympus BX-51IR) をベースとした光学系．LD, 外部共振型波長可変レーザー (New Focus Velocity TLB-6326, $\lambda = 1470 - 1545$ nm); W, アクロマティック 1/2 波長板; ND, ND フィルター; BS1, BS2, ビームスプリッター; S, サンプル; OL, 対物レンズ (Olympus LMPlanIR, 10X, 20X, 50X); L, アクロマティックレンズ (f = 40.0 mm, f: focal length); IL, 結像レンズ (f = 180.0 mm); C, 近赤外カメラ (Hamamatsu Photonics, C10633-13, $\lambda = 900 - 1700$ nm); X, ハロゲンランプ; PL, 偏光子; AL, 検光子; F, 可視光カットフィルタ; OF, 光ファイバ (NA = 0.2, diameter: 400 μm); SM, 分光器 (Lambda Vision, TFCAM-7000F/NIR, $\lambda = 900 - 1700$ nm).

プル面における観察領域は分光器の位置に適当な光源を設置し，その明光パターンを共役位置にあたるサンプル面に投射することで確認を行った．

二光束干渉顕微鏡による透過位相の評価

SHA 構造を透過する光の位相の入射波長依存性を測定する為に, 波長可変レーザ (New Focus, Velocity, TLB-6326, λ = 1470 - 1545 nm) と近赤外顕微鏡システム (Olympus, BX-51IR) に Mach-Zehnder 光学系による二光束干渉顕微鏡光学系を組み，測定を行った．波長可変レーザから出力された光はアクロマティック $\lambda/2$ 波長板により直線偏光の電場方向を調整後，ビームスプリッタにより二つの光路に分割した．一方はサンプルを通り対物レンズ，結像レンズを介し近赤外カメラ (Hamamatsu Photonics, C10633-13, λ = 900 - 1700 nm) 上に実像を形成する観察光路であり，他方は波面曲率調整用のアクロ

マティックレンズを透過後，結像レンズを透過し近赤外カメラに至る参照光路である．

この際，二つに分けた光路を再び合流させ干渉縞を形成する為には，二つの光路差が可干渉距離より短い事が必要である．可干渉距離 Δl は次式

$$\Delta l \fallingdotseq c/\Delta\nu \tag{2.7}$$

で示される．ここで c は光速であり，$\Delta\nu$ は周波数表記によるライン幅である．本研究で使用した波長可変レーザーの $\Delta\nu$ は 300 kHz 未満であり，可干渉距離を算出すると Δl は 1000 m 以上となり，実験室レベルの光学系で干渉現象が観察可能である．

また干渉縞の位置関係から透過位相を求める為には，干渉縞はフラットなものとなることが望ましい [36]．その為には，ビームスプリッタ (図 2.9 中 BS1) による分割後，観察光路を経た光と参照光路を経た光が，結像レンズの後ろ側焦点面つまり近赤外カメラ (図 2.9 内 C) 上で同一の波面曲率となる必要がある．これが満たされなかった場合には，干渉縞は同心円状の明暗パターンとなる [36]．本研究では，図 2.9 内 L で示したアクロマティックレンズの光軸方向への前後移動により，観察光路の波面曲率と，参照光路の波面曲率の整合を行った．半導体レーザーから出射された光軸に対して強度分布がガウス分布となるビームの特性は，複素数である q パラメータにより表現できる．光軸を z 方向にとり，ある光軸上の点 z の q パラメータの逆数とガウス分布ビームの波面曲率半径 R とビーム半径 W の間には次の関係が成り立つ [37,38]．

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i\frac{\lambda}{\pi W^2(z)} \tag{2.8}$$

ビームスプリッタ分割後における q パラメータ q_1 と，参照光路を経てカメラにいたる，カメラ上の q パラメータ q_2 は，近軸近似の元で光学系の特性を表す ABCD 行列と呼ばれる 2×2 の正方行列を用いて関連付けることが可能である．ここで ABCD 行列の要素を次のように決めると

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \tag{2.9}$$

q_1 と q_2 の間には次の関係が成り立つ [38].

$$q_2 = \frac{Aq_1 + B}{Cq_1 + D} \tag{2.10}$$

この複素パラメータ q_2 と式 2.8 より，参照光路を経た光の近赤外カメラ C における波面曲率半径を近似的に見積もることが可能となる．これを用い，光学系においてレンズ L を設置する位置を概算し，光軸上での位置を調整することにより，図 2.10(b) に示すように実像上に重畳したフラットな干渉縞を得た．図 2.10(a) は観察光路と参照光路を経た光の波面曲率が整合していない際の，同心円状の干渉縞をあらわす．本研究では図 2.10(b) に

示すようなフラットな干渉縞を用い，SHA 構造の透過位相を求める．隣接する干渉縞の明線間隔もしくは暗線間隔が位相差 2π を表し，既知の媒体を透過する透過位相を基準として，干渉縞のシフト量から SHA の透過位相を求めることが可能となる．

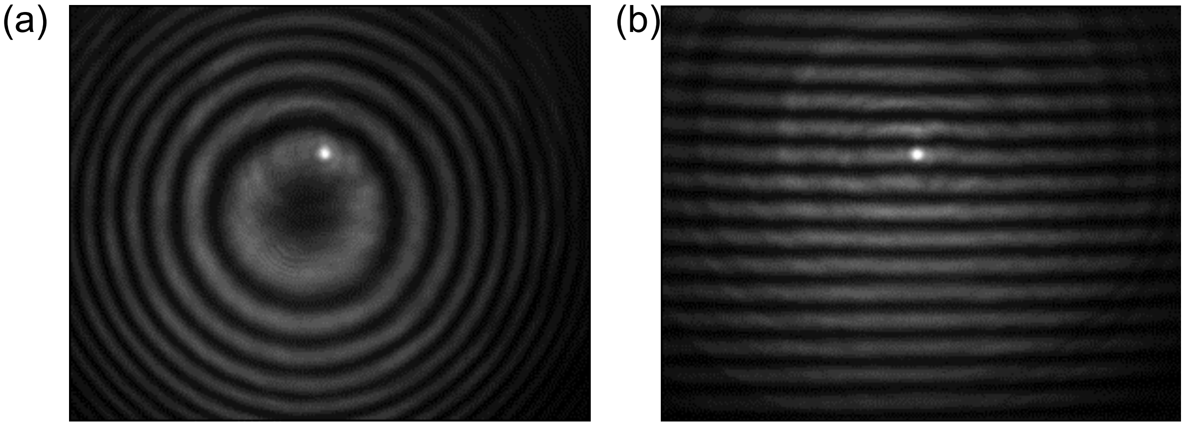

図 2.10　干渉顕微鏡により取得した干渉縞画像. (a) 波面曲率未整合時の同心円状干渉縞パターン. (b) 波面曲率整合後のフラットな干渉縞パターン.

2.6　結果と考察

2.6.1　透過率測定

顕微分光により，作製した SHA 構造の透過率測定を行った．図 2.11 に計算値の実線と実験値のプロットを示す．計算および実験における入射光は垂直入射であり, 直線偏光の電場方向は x 方向である．横軸が透過率を縦軸が規格化周波数 a/λ を表す．計算値として側壁傾斜 80 度を仮定した計算データを用いた．数値計算においては $a = 1000$ nm および $a = 900$ nm の 2 通りの計算を行ったが，a/λ で規格化した際の両計算スペクトルは良く一致していることから，図 2.11 においては $a = 1000$ nm の計算データを用いた．

ただし $a = 1000$ nm および $a = 900$ nm の計算値は a/λ で規格化した際には，厳密には同一とはならない. それは以下の二つの要因による (i) 積層膜の各層の厚みは $a = 1000$ nm および $a = 900$ nm で同一の条件を採用しており，積層膜の厚みは規格化の倍率になっていない．(ii)Al の比誘電率は a/λ ではなく λ に依存しており，両者の条件で a/λ における比誘電率の値は異なる．しかし，透過スペクトルの特徴的なスペクトル形状は a/λ の規格化に対して, スペクトルの特徴がほぼ一致することから， 本章では透過特性に関し，a/λ を用いて議論する．

図 2.11 の計算により得られたスペクトルと，図 2.5(b) のスペクトルを比較する事でナノホールの側壁傾斜の影響を議論する事が可能となる．正方形穴の SHA において矢

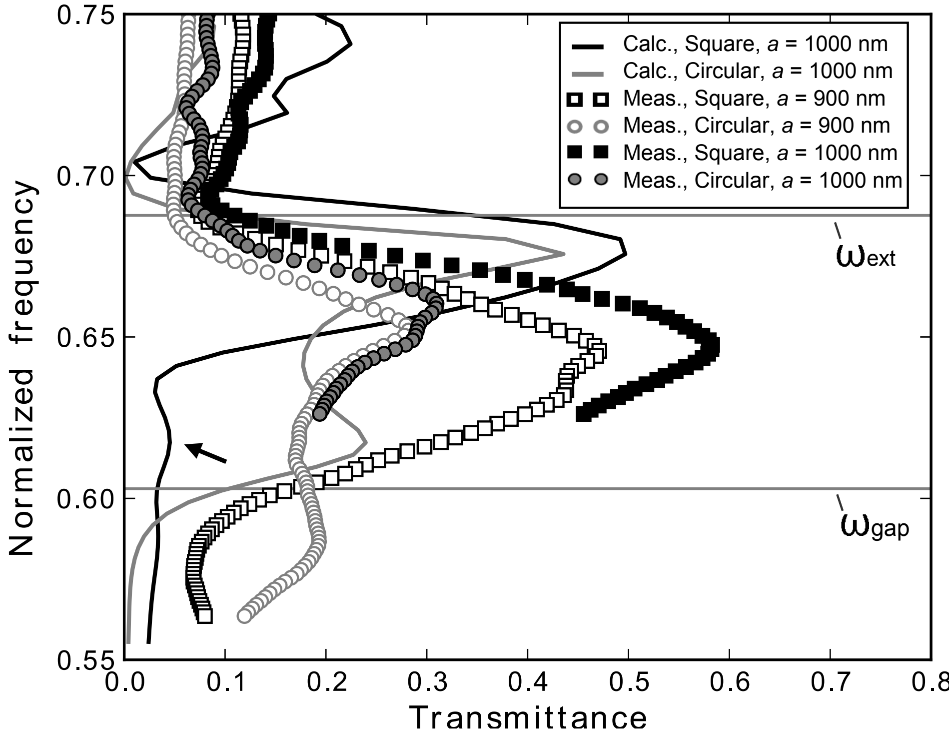

図 2.11　SHA 構造の透過測定結果 (計算値 (calc.) と 測定値 (meas.)) プロットと実線がそれぞれ実験値と計算値を示す．分散図より相互作用が予想される周波数をグレーの横線で表示 (ω_{ext} ,ω_{gap})．図中の矢印は ω_{gap} に由来する透過の極大値．

印で示される ω_{gap} 付近の透過肩は，側壁傾斜が有るときには明らかに消滅している．他方，丸穴の SHA においては ω_{gap} 付近の透過肩は増大している．この差は方形穴を有する SHA の透過は穴による局所共鳴の影響を強く受けるという過去の報告例 [21, 22] と整合がとれている．

図 2.11 の実験値と計算値を比較すると, スペクトル形状の細部に違いが有るものの，傾向はうまくとらえており SHA の透過スペクトルが a/λ により支配的に決定される事を実験的に確認する事が出来た．スペクトル形状の細部における実験値と計算値の乖離は ω_{ext} よりも ω_{gap} 付近で顕著である．これは透過スペクトルの形状が ω_{ext} 付近では，$a/\lambda = 0.70$ 付近のディップで決まるのに対し，ω_{gap} 付近の透過スペクトルは gap-SPP つまり，金属間に電磁場が集中するモードが関与することから，各層の厳密な厚み，比誘電率，側壁傾斜に影響を受ける為であると考えられる．

図 2.12, 2.13 に格子周期 a=700, 800, 900, 1000 nm の条件で作製した構造の，a/λ で規格化した透過測定結果を示す．実験において入射光は垂直入射であり, 直線偏光の電場方向は x 方向とした．先に述べたように，スペクトルのディップ位置，ピーク位置等の特徴は a/λ で規格化する事で，ほぼ同じ位置にきており, SHA の透過スペクトルの透過ディップおよび透過ピーク位置は規格化周波数に依存する事が確かめられた．他方，透過

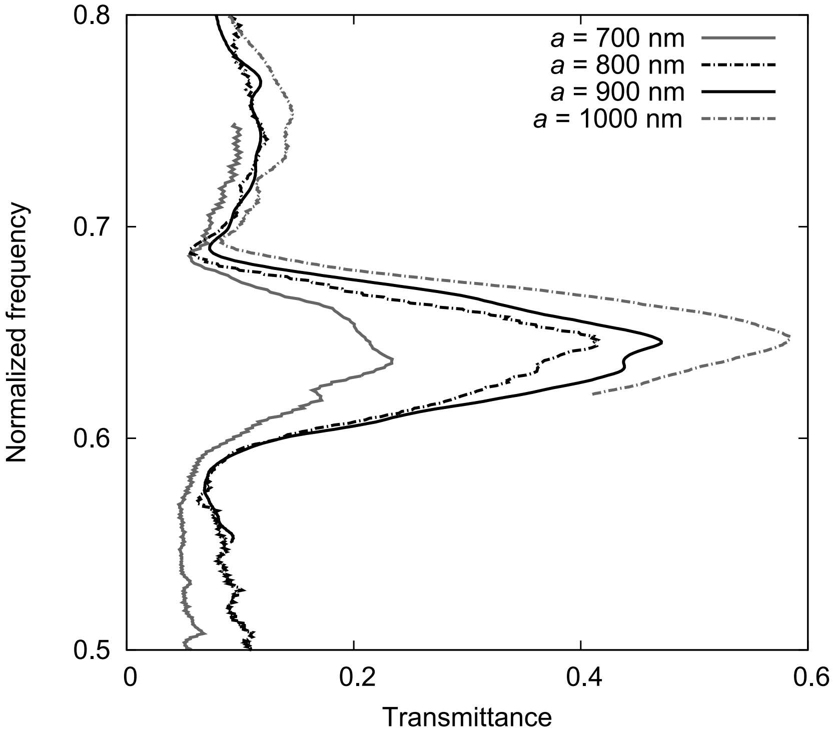

図 2.12 様々な格子周期で作製したサンプルの透過スペクトル (正方形穴 SHA 構造). 縦軸は格子周期 a で規格化した規格化周波数 a/λ

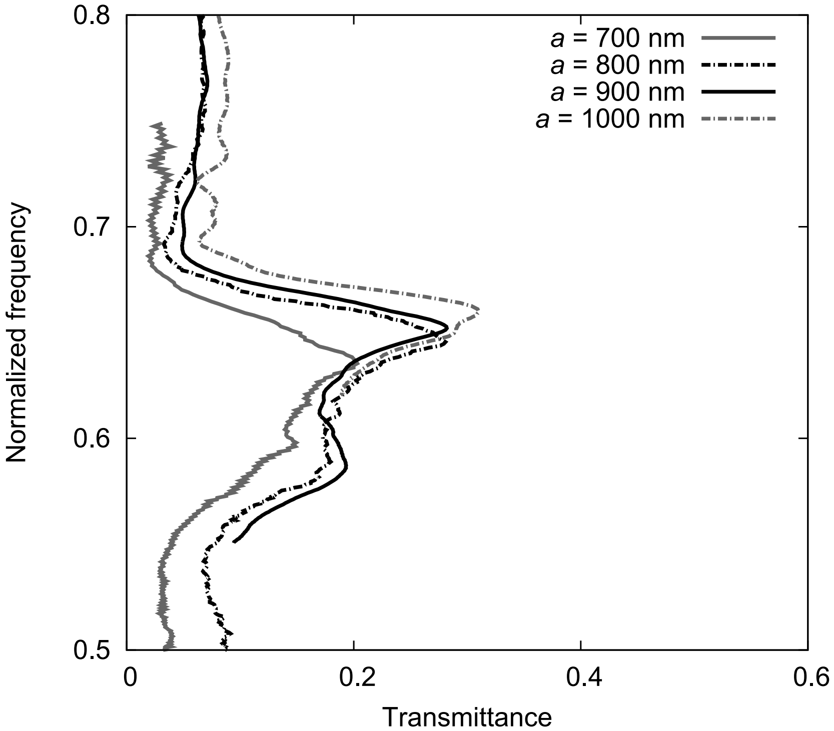

図 2.13 様々な格子周期で作製したサンプルの透過スペクトル (円形穴 SHA 構造). 縦軸は格子周期 a で規格化した規格化周波数 a/λ

率の絶対値は格子周期の減少に伴い，減少している．これは先に述べたように, 各金属層もしくは誘電体層の厚さが a/λ の規格化になっておらず，周期 a が小さいほど最下面での穴の大きさがより格子周期に比して小さくなる事に起因していると考えられる．しかし，$a = 900$ nm と $a = 1000$ nm の両者のスペクトルは比較的に格子周期が近い事から，影響が少なく良い一致が得られており，今後とも本章においては a/λ を用いて議論を行う．

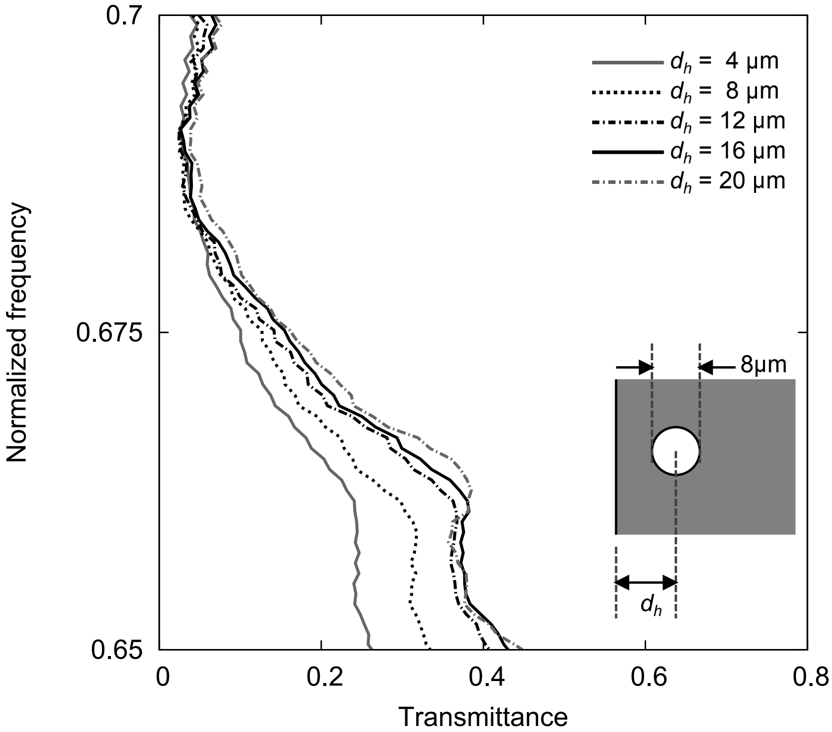

図 2.14　周期構造の打ち切りの影響を検証するために測定した透過スペクトル．挿入図は周期構造の端部と測定箇所 (白抜き円領域) の関係を示す．電場の振動方向は挿入図で水平方向である．

上記の結果に加え SHA の透過測定に関し, 後の章で必要となる情報を引き出す為に，入射偏光の電場方向と測定位置に関する結果を示す．今回作製を行った素子は電子線描画法の描画エリアの関係で 150 μm 角の領域である．上に述べた透過率の測定はこの 150 μm 角のエリアの中心における顕微分光の結果を示し，数値計算結果と比較することで議論を行ってきた．

数値計算はユニットセル構造が無限に周期的に配列するとして計算を行うが，実際に作製した構造には構造の打ち切りが存在する．そこで，この構造の打ち切りと電場方向の関係を測定する為に，150 μm 角のエリアの端部において，電場方向と平行方向および垂直方向に顕微分光の測定箇所をずらす事で測定を行った．ここで顕微分光に用いた対物レンズの倍率は 50 倍であることから，測定エリアは直径 8 μm の円形領域である．図 2.14 に観測エリアを電場方向と平行方向に 4 μm ずつ中心方向にシフトさせたときの観察結果を

示す．図より観察点が中心に近づくにつれ透過率が上昇し，端部から 12 μm あたりから一定値を示した．次に図 2.15 に観測エリアを電場方向と垂直方向に 4 μm ずつ中心方向

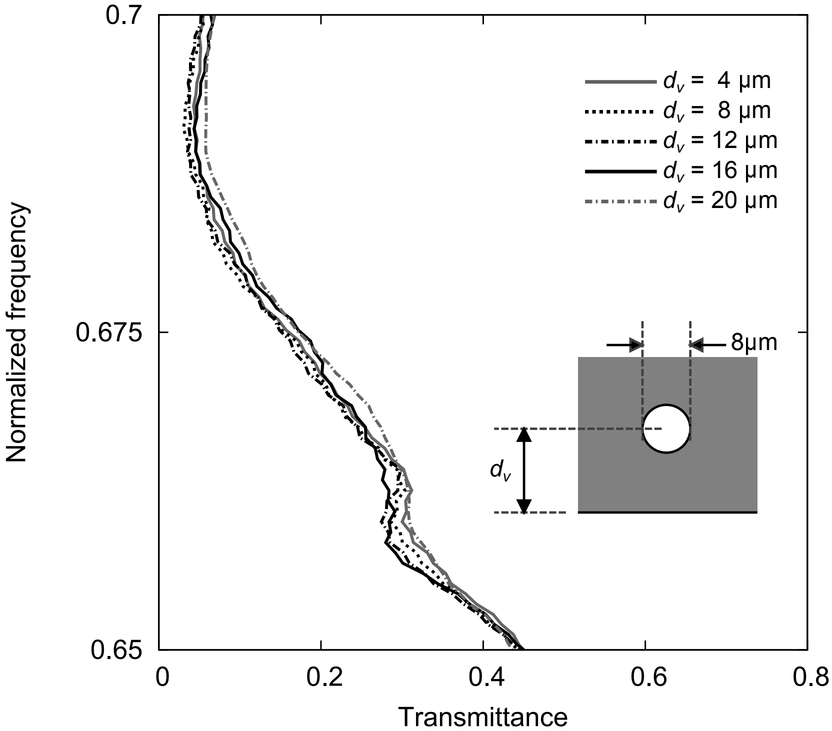

図 2.15　周期構造の打ち切りの影響を検証するために測定した透過スペクトル．挿入図は周期構造の端部と測定箇所 (白抜き円領域) の関係を示す．電場の振動方向は挿入図で水平方向である．

にシフトさせたときの観察結果を示す．図より透過率は観測場所によらず一定の値を示した．このことから電場方向に沿って十分な周期構造が存在する条件であれば，たとえ構造の端部であっても十分な透過率が得られることが示された．この結果は参考文献 [39] において言及されている EOT の透過に必要な要素は，入射直線偏光の電場方向のナノホールの一次元鎖であるというモデルとも整合する．

2.6.2　透過位相測定

SHA の透過位相を干渉顕微鏡の干渉縞から測定する為には，既知の透過位相，つまり観察エリア内に，SHA と近接させて既知の屈折率を持つ媒質を透過する領域を配置する必要がある．その為，図 2.16 に示す方法で作製済みの SHA 構造を FIB 法 (FIB, Focused Ion Beam) で加工する事で SHA 構造近傍に石英基板がむき出しとなる領域を形成した．

FIB の加工エリアを SHA 領域と重畳する形で設定したことから，図 2.16 に示すように三つのエリアが形成された．これは SHA 領域と未加工の積層膜領域の FIB の加工レー

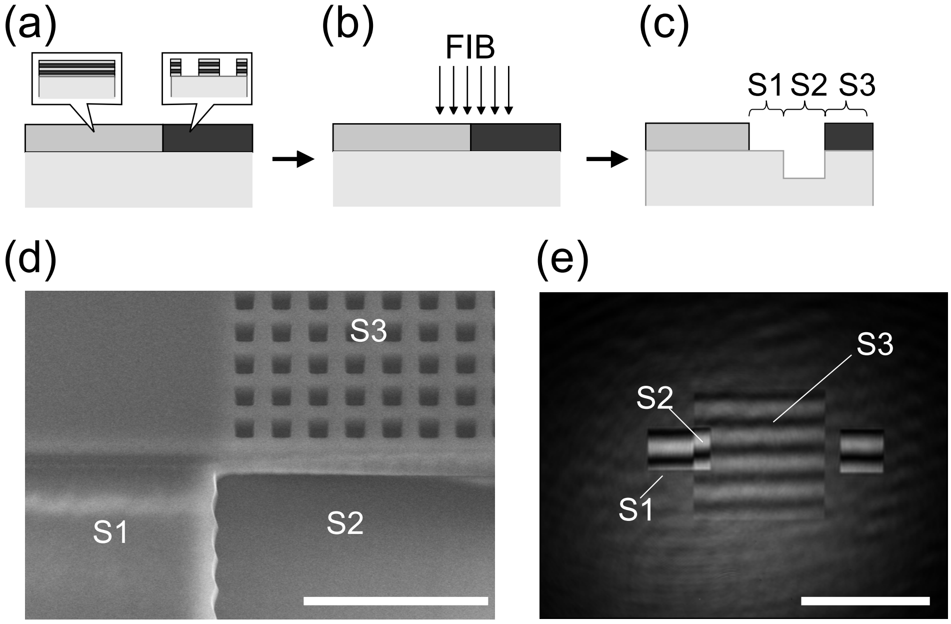

図 2.16　FIB 法による追加工プロセスと観察結果. (a) - (c) FIB 追加工プロセス. (a) 左側, Al/SiO_2 積層膜; 右側 SHA 構造. (b) FIB 加工エリアのイメージ. 構造境界部を重畳して加工. (c) 左側 S1, 基板領域; 中央 S2, オーバーエッチングされた領域; 右側 S3, SHA 構造. (d) 追加工後の SEM イメージ. スケールバーは 5 μm. (e) 典型的な干渉画像例. (a = 1000 nm, 測定波長 λ = 1530 nm. スケールバーは 150 μm.)

トを比較すると SHA 領域のエッチングスピードが速い為である．FIB による追加工により形成された三つのエリアとは，石英がむき出しになった領域 (S1)，石英が FIB により掘られた領域 (S2)，SHA 領域 (S3) の三つである．図で S1 領域の深さはおよそ 580 nm であり，積層膜の厚みに相当する事から石英基板がむき出しになっているといえる．S2 領域は S1 領域と比較して 700 nm 深い．図 2.16(e) は典型的な干渉画像を示しており，通常の光学顕微鏡像上に明暗の干渉縞が重畳されている事がわかる．隣接する明線 (暗線) 間の間隔は位相差 2π を表す．干渉縞が，異なるパターン間で変位していることは，両領域間に位相差が存在する事を示している．隣接する S_j 領域と S_i 領域の間の位相差 ϕ_{ij} は次式で表される．

$$\phi_{ij} = 2\pi\Delta m_{ij} + 2\pi q_{ij} \tag{2.11}$$

ここで Δm_{ij} は干渉縞の縞間隔 (2π) に対する変位量の比を，q_{ij} は整数を表す．

まず S2 領域と S1 領域の間の位相差について考える．S2 領域は S1 領域に比較して石英が 700 nm 掘られている事から，両者の位相差は同じ厚みの空気層と石英間の位相差である．光路長と媒質の屈折率が既知であることから，両者で形成される位相差を計算することができる．また q_{12} は 0 である事がわかる．これより，干渉画像における干渉縞の変位方向は上方向が有効屈折率で低い，つまり位相速度が速い事がわかる．

同様の手順で S3 領域と S1 領域間の位相差 ϕ_{31} を解析する事で，SHA により形成される位相差が求まる．以上の方法で波長可変レーザーの入射波長 (λ = 1470 - 1545 nm) を掃引し, 5 nm 刻みで SHA の透過位相を測定した．図 2.17-2.20 にかけて，格子周期 a が 1000 nm および 900 nm における正方形穴もしくは丸穴の SHA の干渉画像を示す．基準となる石英基板がむき出しになった領域の干渉縞と SHA 領域の干渉縞の位置関係より, 透過位相の波長依存性と穴形状による位相変化の大きさが読み取れる．ほぼすべての画像より，規格化周波数 a/λ が低くなるほど，S1 領域と比較した S3 領域の干渉縞は上方向にシフトしていくことがわかる．つまり，規格化周波数が小さくなるほど，有効的な屈折率が低くなる事がわかる．また穴形状による差を見ると，干渉縞の波長掃引によるシフトの大きさは，正方形穴よりも丸穴 SHA のほうが大きいことがわかる．

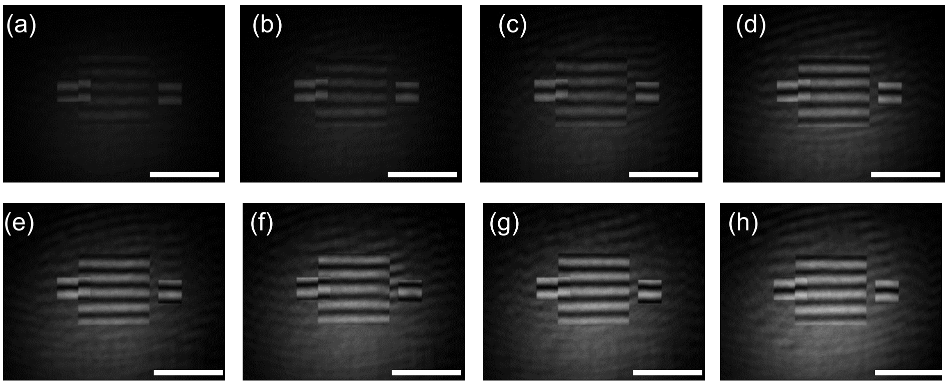

図 2.17　干渉観察結果 (正方形穴 SHA, a = 1000 nm). (a) a/λ = 0.6803, (b) 0.6757, (c) 0.6711, (d) 0.6667, (e) 0.6623, (f) 0.6579, (g) 0.6536, (h) 0.6494. スケールバーは 150 μm.

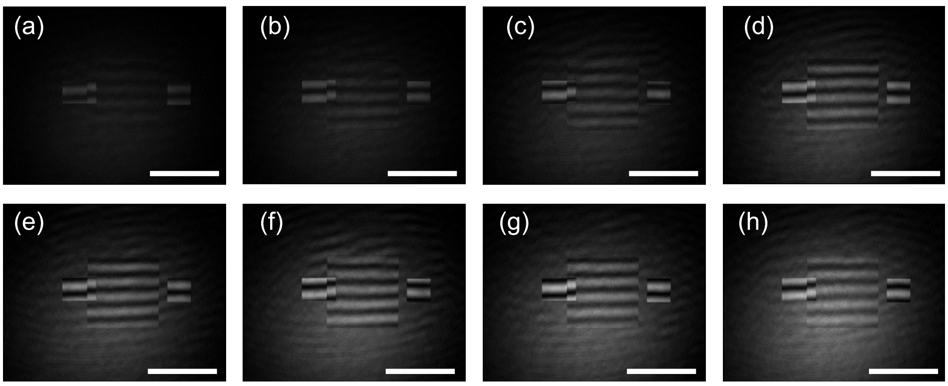

図 2.18　干渉観察結果 (円形穴 SHA, a = 1000 nm). (a) a/λ = 0.6803, (b) 0.6757, (c) 0.6711, (d) 0.6667, (e) 0.6623, (f) 0.6579, (g) 0.6536, (h) 0.6494. スケールバーは 150 μm.

図 2.21 は，透過位相の計算値と実験値の比較を示す．計算による実線は格子周期 a =

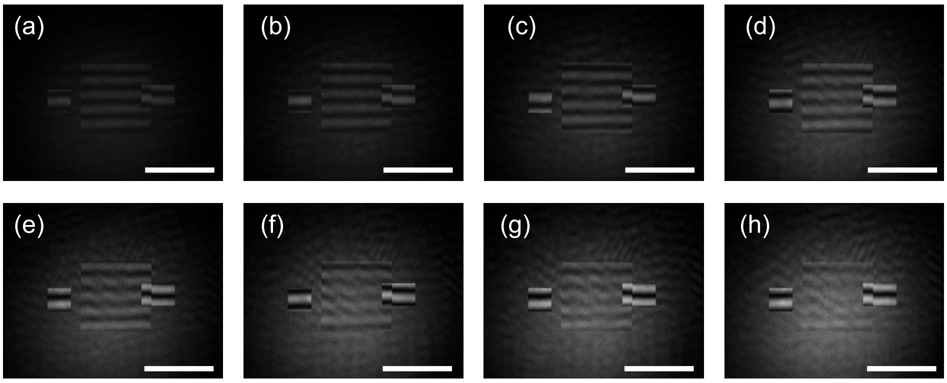

図 2.19　干渉観察結果 (正方形穴 SHA, a = 900 nm). (a) $a/\lambda = 0.6122$, (b) 0.6081, (c) 0.6040, (d) 0.6000, (e) 0.5960, (f) 0.5921, (g) 0.5882, (h) 0.5844. スケールバーは 150 μm.

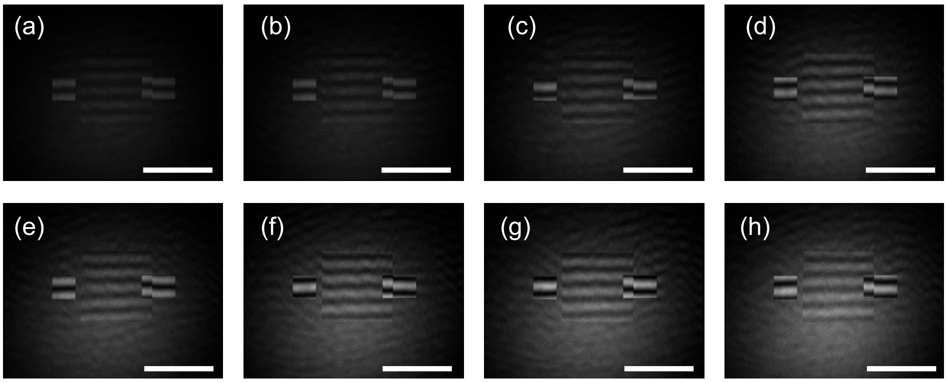

図 2.20　干渉観察結果 (円形穴 SHA, a = 900 nm). (a) $a/\lambda = 0.6122$, (b) 0.6081, (c) 0.6040, (d) 0.6000, (e) 0.5960, (f) 0.5921, (g) 0.5882, (h) 0.5844. スケールバーは 150 μm.

1000 nm のものである．透過スペクトルのときと同様に，ω_{ext} に起因する透過位相は側壁傾斜の影響が小さく，ω_{gap} に起因する透過位相は側壁傾斜の影響を受けた．詳細に見て行くと $a/\lambda = 0.65 - 0.68$ の ω_{ext} の領域では計算値と実験値は良い一致をみた．正方形穴と丸穴 SHA の透過位相は a/λ=0.68 付近でほぼ等位相を示した．規格化周波数が小さくなるとともに丸穴 SHA の透過位相は大きくシフトし， 正方形穴 SHA と丸穴 SHA の間の位相差は拡大していった．つまり透過位相の分散は穴の形状に依存する事が明らかになった．

ω_{gap} の領域の透過位相は計算値と実験値の間で大きな乖離が見られた．これは gap-SPP が関与する SHA の透過は, 素子の微妙な形状変化，各層の厚み, 金属の比誘電率に大きな影響を受ける為であり，設計値にあわせた素子の作製が難しい事を示している．

SHA 構造に関しては，ある周波数領域において，有効的な屈折率が負になることが報

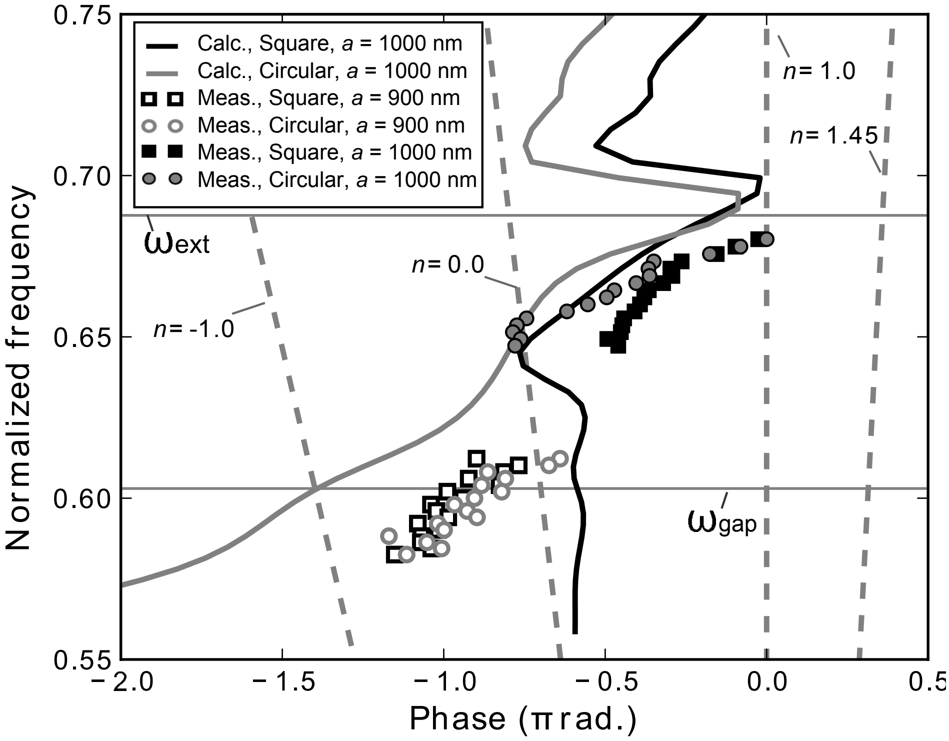

図 2.21　透過位相観察結果　(Calculated (calc.) and measured (meas.)) プロットと実線がそれぞれ実験値と計算値を示す．分散図より相互作用が予想される周波数をグレーの横線で表示 (ω_{ext} ,ω_{gap}).

告されている [10,11]．ここで SHA を有効的な媒体とし, 実験的に測定した透過位相から見積もった有効屈折率について述べる．図 2.21 中で破線で示した直線は，ある有効屈折率 n を仮定したときの透過位相を表す．実験的に得られた透過位相のプロットは全周波数領域で $n = 1.0$ の破線より低い屈折率領域に存在する．つまり，本章で検討を行った SHA 素子は空気より低い有効屈折率を持つと言える．また $a/\lambda = 0.62$ を境に，有効屈折率が負となっていることが測定結果より示唆された.

SHA の有効屈折率が負となることは，現象としてみた場合には非常に魅力的だが，本研究ではこれ以上の検討は行わない．なぜなら本来，有効屈折率を示す為には，透過と反射両方の振幅と位相情報が必要となるからである．また今回得られたサンプルの計算値と実験値には乖離が見られることから，これに基づき屈折率の正負を議論するのは妥当性に欠ける為である.

本節では，異なる穴形状を持つ SHA において，周波数変化に対する透過位相の変化の大きさ，つまりは分散が穴形状に依存する事を数値計算および実験的に確認する事ができた.

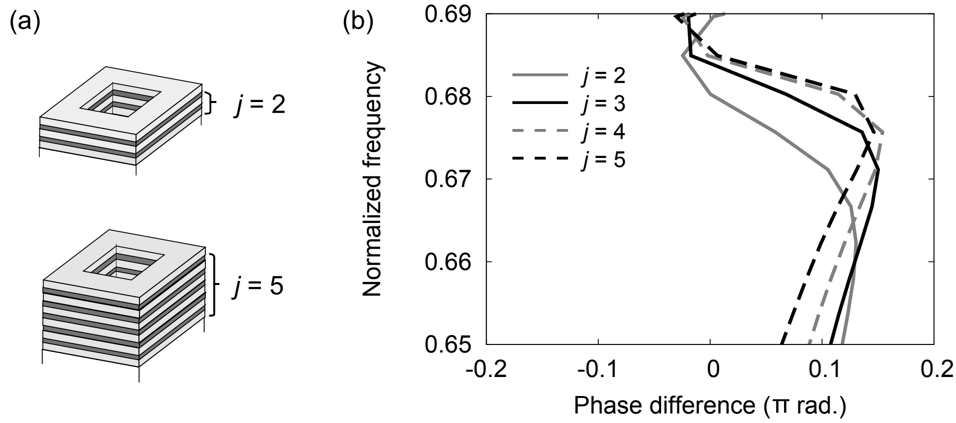

図 2.22　(a) 金属ナノホールと誘電体ナノホールを一組とした際の組数の表記例 (表示は穴形状が正方形穴のとき). (b) 組数の異なる丸穴 SHA と正方形穴 SHA 間の位相差の数値計算結果.

ここで分散を数値で示すことを検討する．分散の表現方法としては，たとえば屈折率が波長変化に対して線形に変化する媒質等に対しては，基準となる 2 波長の屈折率差の値で表現が行われることがある．しかし，SHA の分散値を, 基準となる 2 波長間における有効屈折率の差として表現を行うことは，SHA の有効屈折率が構造の厚みの選び方に大きく影響を受けその値が変化することから問題がある [16]．そのため，この方法では後の章で構造の厚みが変化すると，単純に比較ができないという問題が生じる．そこで本研究では後の章との比較に用いることを考え，分散の値を a/λ が 0.01 変化したときの，SHA 構造の空気と比較した位相差の変化量として表す．すなわち図 2.21 内で実験的に得られた，規格化周波数の変化に対する位相変化量に相当する．(計算と実験が比較的良く一致している ω_{ext} の領域に適用する．)　以上の定義より，図 2.21 内で a/λ が 0.680 から 0.648 の範囲で，分散の値は円形穴 SHA で -0.237π, 正方形穴 SHA で -0.132π であった．次章においてはこの分散がナノホール形状により異なることを用い，同一面内でナノホール形状を緩やかに変化させることで，構造に入射した平面波の透過位相分布を局所的に変化させる素子について検討を行う．

次章の検討の前に，異なる穴形状をもつ SHA 間の位相差が，金属誘電体積層ナノホール構造の層数に対して，どのように変化するかについて数値計算結果を用い言及する．図 2.22(a) に示すように金属 (Al) と誘電体 (SiO_2) 各一層を一組とする．最上部の誘電体層は Al が直接空気と触れるのを避ける為の層である．組数 (j) を変化させた際の円形穴 SHA と正方形穴 SHA 間の位相差を図 2.22(b) に示す．位相は円形穴を基準とした位相差である．ここで格子周期 a は 1000 nm であり，穴形状，各層の厚みと材質は図 2.1 に準ずる．入射直線偏光は垂直入射で，電場方向を x 方向とする．図 2.22(b) より組数が 2 から 5 の素子で，規格化周波数 a/λ がおよそ 0.68 から 0.69 において，円形穴 SHA と正

方形穴 SHA の透過位相は等しく，それよりも低周波数側において，位相差は極大値を示した．最大で得られる位相差は 0.12π から 0.15π であり，計算を行った組数の範囲では，組数によって大きく，少なくとも組数に比例して増加する事は無かった．本章で行ったサンプルの加工では，金属と誘電体の組数は 5 であった．この SHA 素子のエッチング後のレジスト残厚は 100 nm 未満となり，加工時の微妙な条件変化によりサンプルの形状が設計値から大きくずれ，歩留まりが悪いという問題があった．そこで図 2.22(b) の結果より，異なる穴形状を持つ SHA 間の位相差の組数に対する依存性は小さいことから，次章では組数 2 の素子について検討を行う．

2.7　まとめ

本章においては, 金属誘電体積層ナノホール (SHA) 構造の基礎特性を把握する事を目的に，分散関係より特性変化が生じる周波数の抽出，数値計算による特性解析，評価のための光学観察手法の確立に取り組み．得られた結果の議論を行った．この章における結果を以下にまとめる．

1) 入射光と SHA 構造が相互作用を生じる周波数を，SHA 構造を構成する積層膜において金属誘電体界面を伝搬する表面プラズモンポラリトン (SPP) の分散関係より見積もった．SPP と周期構造との相互作用は，SPP の波数ベクトルと周期構造由来の波数ベクトルが整合する周波数において生じる．相互作用が生じる周波数は大きく 2 種類あり，高周波数側は金属と外側半無限厚誘電体との界面に電磁場が局在する SPP モード (ext-SPP) に起因し，低周波数側は金属間に電磁場が局在する SPP モード (gap-SPP) に起因する．

2) SHA 構造に対して周期構造解析による数値計算を行い，分散関係より見積もった相互作用が予測される周波数近傍で，透過率が極大値を示し，透過位相の変化が大きくなることを確認した．

3) 数値計算を行った SHA 構造を，電子線描画法とドライエッチング法により作製した．作製した構造はドライエッチング時に誘電体として用いた石英層のエッチング特性により，ナノホール側壁に傾斜が生じ，作製したサンプルの側壁傾斜は垂直を 90 度とすると 80 度程度となった．この側壁傾斜により gap-SPP に由来する SHA 構造の透過が影響を受けることが，数値計算と実験結果を比較することで確認された．

4) SHA 構造の透過位相を評価するために，波長可変レーザーと，顕微鏡，Mach-Zehnder 干渉計を組み合わせ，波長 1.5μm 帯の二光束干渉光学顕微鏡を構築した．干渉顕微鏡の二つの光路の結像面での波面曲率を一致させることで，既知光学特性媒質と SHA 構造の干渉縞の比較から，SHA 構造の透過位相を評価することが可能になった．

5) 干渉顕微鏡による位相観察と数値計算結果より，SHA 構造の入射波長変化に対する透過位相の変化の大きさ，つまりは分散が穴形状に依存することが確かめられた．穴形状と

しては格子周期 (格子は正方格子) の半分の直径を持つ円形穴と，格子周期の半分の一辺を持つ正方形穴の SHA 構造を検討し，前者の方が後者よりも分散が大きいことが確かめられた．

6) SHA 構造を構成する格子周期とナノホールサイズの比が同一の条件で，格子周期を変化させせた SHA 構造の透過率測定より，透過のディップや極大値の位置は格子周期を測定波長で規格化した規格化周波数 a/λ で同一位置となることが確認された．

7) 周期構造が打ち切りとなる構造の端部から測定点位置を変化させ，顕微分光による透過率測定を，2 種の入射直線偏光条件で行った．これより，SHA 構造の透過率は電場方向に十分な周期構造が配列することで，一定値となることが確認された．

参考文献

[1] T. Ebbesen, H. Lezec, H. Ghaemi, T. Thio, and P. Wolff, “Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays,” Nature **391**, 667–669 (1998).

[2] L. Martin-Moreno, F. Garcia-Vidal, H. Lezec, K. Pellerin, T. Thio, J. Pendry, and T. Ebbesen, “Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays,” Physical Review Letters **86**, 1114–1117 (2001).

[3] C. Genet and T. Ebbesen, “Light in tiny holes,” Nature **445**, 39–46 (2007).

[4] S. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications* (Springer Verlag, 2007).

[5] H. Ghaemi, T. Thio, D. Grupp, T. Ebbesen, and H. Lezec, “Surface plasmons enhance optical transmission through subwavelength holes,” Physical Review B **58**, 6779 (1998).

[6] P. Lalanne, J. Rodier, and J. Hugonin, “Surface plasmons of metallic surfaces perforated by nanohole arrays,” Journal of Optics A: Pure and Applied Optics **7**, 422 (2005).

[7] F. Garcia-Vidal, E. Moreno, J. Porto, and L. Martin-Moreno, “Transmission of light through a single rectangular hole,” Physical Review Letters **95**, 103901 (2005).

[8] Z. Ruan and M. Qiu, “Enhanced transmission through periodic arrays of subwavelength holes: the role of localized waveguide resonances,” Physical Review Letters **96**, 233901 (2006).

[9] H. Liu and P. Lalanne, “Microscopic theory of the extraordinary optical transmission,” Nature **452**, 728–731 (2008).

[10] S. Zhang, W. Fan, N. Panoiu, K. Malloy, R. Osgood, and S. Brueck, “Experimental demonstration of near-infrared negative-index metamaterials,” Physical

Review Letters **95**, 137404 (2005).

[11] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, C. Soukoulis, and S. Linden, "Simultaneous negative phase and group velocity of light in a metamaterial," Science **312**, 892–894 (2006).

[12] J. Valentine, S. Zhang, T. Zentgraf, E. Ulin-Avila, D. Genov, G. Bartal, and X. Zhang, "Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index," Nature **455**, 376–379 (2008).

[13] S. Zhang, W. Fan, K. Malloy, S. Brueck, N. Panoiu, and R. Osgood, "Near-infrared double negative metamaterials," Optics Express **13**, 4922–4930 (2005).

[14] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, C. Soukoulis, and S. Linden, "Low-loss negative-index metamaterial at telecommunication wavelengths," Optics Letters **31**, 1800–1802 (2006).

[15] X. Chen, T. Grzegorczyk, B. Wu, J. Pacheco Jr, and J. Kong, "Robust method to retrieve the constitutive effective parameters of metamaterials," Physical Review E **70**, 016608 (2004).

[16] D. Smith, D. Vier, T. Koschny, and C. Soukoulis, "Electromagnetic parameter retrieval from inhomogeneous metamaterials," Physical Review E **71**, 036617 (2005).

[17] A. Mary, S. Rodrigo, F. Garcia-Vidal, and L. Martin-Moreno, "Theory of negative-refractive-index response of double-fishnet structures," Physical Review Letters **101**, 103902 (2008).

[18] R. Ortuno, C. Garcia-Meca, F. Rodriguez-Fortuno, J. Marti, and A. Martínez, "Role of surface plasmon polaritons on optical transmission through double layer metallic hole arrays," Physical Review B **79**, 075425 (2009).

[19] J. Yang, C. Sauvan, H. Liu, and P. Lalanne, "Theory of fishnet negative-index optical metamaterials," Physical Review Letters **107**, 43903 (2011).

[20] M. Iwanaga, "In-plane plasmonic modes of negative group velocity in perforated waveguides," Optics Letters **36**, 2504–2506 (2011).

[21] K. Koerkamp, S. Enoch, F. Segerink, N. Van Hulst, and L. Kuipers, "Strong influence of hole shape on extraordinary transmission through periodic arrays of subwavelength holes," Physical Review Letters **92**, 183901 (2004).

[22] G. Dolling, M. Wegener, C. Soukoulis, and S. Linden, "Design-related losses of double-fishnet negative-index photonic metamaterials," Optics Express **15**, 536–11 (2007).

[23] E. Economou, "Surface plasmons in thin films," Physical Review **182**, 539 (1969).

[24] 岡本隆之，梶川浩太郎, プラズモニクス　基礎と応用(講談社, 2010).

[25] J. Dionne, L. Sweatlock, H. Atwater, and A. Polman, "Plasmon slot waveguides: Towards chip-scale propagation with subwavelength-scale localization," Physical Review B **73**, 035407 (2006).

[26] H. Miyazaki and Y. Kurokawa, "Squeezing visible light waves into a 3-nm-thick and 55-nm-long plasmon cavity," Physical Review Letters **96**, 97401 (2006).

[27] Y. Kurokawa and H. Miyazaki, "Metal-insulator-metal plasmon nanocavities: Analysis of optical properties," Physical Review B **75**, 035411 (2007).

[28] A. Rakic, A. Djurišic, J. Elazar, and M. Majewski, "Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices," Applied Optics **37**, 5271–5283 (1998).

[29] L. Solymar and E. Shamonina, *Waves in Metamaterials* (Oxford University Press, 2009).

[30] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic press, 1998).

[31] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics* (Cambridge university press, 2012).

[32] 迫田和彰, フォトニック結晶入門 (森北出版, 2004).

[33] 吉野勝美, 竹田寛之, フォトニック結晶の基礎と応用 (コロナ社, 2004).

[34] T. Nishida, M. Notomi, R. Iga, and T. Tamamura, "Quantum wire fabrication by e-beam elithography using high-resolution and high-sensitivity e-beam resist zep-520," Japanese Journal of Applied Physics **31**, 4508 (1992).

[35] N. Ikeda, Y. Sugimoto, Y. Watanabe, N. Ozaki, Y. Takata, Y. Tanaka, K. Inoue, and K. Asakawa, "Precise control of dry etching for nanometer scale air-hole arrays in two-dimensional GaAs/AlGaAs photonic crystal slabs," Optics Communications **275**, 257–267 (2007).

[36] M. Sinclair, M. de Boer, and A. Corwin, "Long-working-distance incoherent-light interference microscope," Applied Optics **44**, 7714–7721 (2005).

[37] B. E. A. Saleh, *Fundamentals of Photonics, Second Edition* (WileyPrentice-Hall Englewood Cliffs, NJ, 2007).

[38] H. A. Haus, *Waves and Fields in Optoelectronics* (Prentice-Hall Englewood Cliffs, NJ, 1984).

[39] J. Bravo-Abad, F. García-Vidal, and L. Martín-Moreno, "Resonant transmission of light through finite chains of subwavelength holes in a metallic film," Physical Review Letters **93**, 227401 (2004).

第 3 章

形状遷移金属誘電体積層ナノホール構造

3.1　はじめに

前章において金属誘電体積層ナノホール構造について, 特に透過現象について基礎的な検討を行った．その透過メカニズムは周期構造に由来する回折波と金属誘電体界面を伝搬する SPP との相互作用に加え，個々の穴を直接透過する波との複合的な現象として解釈することができる [1]．周期構造による回折波と SPP の結合については二つの SPP モードを見てきた．一つは金属と外側半無限誘電体領域との界面に電磁波が局在する ext-SPP であり，もう一つは金属に挟まれた誘電体中に電磁波が局在する gap-SPP であった．また，SHA の透過はナノ加工時に発生する穴壁面の傾斜により，gap-SPP に由来する透過が影響を受け，透過率が低下する事が明らかになった．前章において確認された結果の一つが，入射波長に応じた透過位相の変化，つまり分散が SHA のナノホール形状に依存するということであった．本章においては，穴形状を同一面内で徐々に変化させることで，透過光の等位相面が傾斜する素子への応用可能性を検討する．

応用という観点での SHA は, 現在まで素子を透過する光のカラーフィルタ [2,3] や，センシング [4,5] ，gap-SPP 由来の負屈折率実証の為のプリズム構造が報告されてきた [6,7]．特にプリズム構造は現象の特異性を実証するという目的から検討されてきた．しかし応用という面では，SHA 構造をプリズム形状に加工する事は現実的ではなく，集積化が可能でコヒーレントな光源を提供する面発光レーザー等への適用を考えると, 平面型の素子が望ましい．本章においては面内でナノホール形状を徐々に変化させる事で，透過波面を局所的に変化させる平面素子の検討を行う．

サブ波長の金属ナノホールの透過現象に関して，周期構造ではない単一のナノホール形状について，幾つか研究が行われている [8–10]．金属ナノホールを導波管とのアナロ

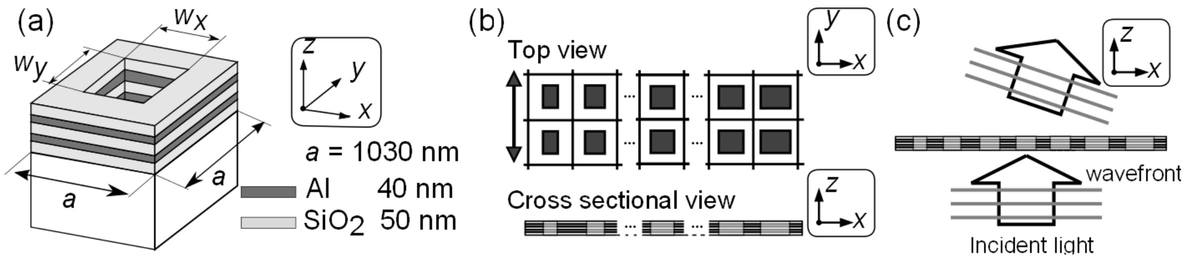

図 3.1 (a) 検討を行う SHA 構造のユニットセル構造．(b) 形状遷移 SHA 構造の構成．両端矢印は入射直線偏光の電場方向をあらわす．(c) 形状遷移 SHA 構造透過時の動作イメージ．

ジーで考えた時，カットオフとなる穴の直径 $\lambda/2$ より小さな穴を光が透過する現象に対し，Collin らは金属の表皮厚の効果も考え，単一ナノホールの透過現象の議論を行っている [10]．彼らはその論文において, 形状が長方形の単一金属ナノホールを透過する光の伝搬定数に対し簡単な解析式を与えている．それによれば単一金属ナノホールの伝搬定数は, 電場の方向に直交する長方形穴の幅に依存するとの結論を得ている．本章においては SHA の穴形状として長方形穴を採用し，２次元周期構造において入射直線偏光の電場方向に直交する方向の長方形穴の幅を徐々に変化させることで，透過波面を変化させる素子の検討を行う．

3.2 ユニットセル構造

図 3.1(a) に, 本章で議論を行うユニットセル構造を示す．ユニットセル構造は石英基板上に，金属として Al を, 誘電体として SiO_2 を逐次積層した構造からなり，それぞれの層数は 2 層と 3 層の計 5 層からなる (図 3.1(a))．前章では金属と誘電体の層を一組とした時に五組となる素子を検討したが，**2.6.2 透過位相測定**のおわりの部分でも触れたように，異なる穴形状をもつ SHA 間の位相差の積層数に対する依存性は少ないことから，本章ではより作製が容易になる二組の素子の作製を行った．積層膜には長方形の周期穴が貫通し，その辺の長さを w_x，w_y とする．本章においては入射直線偏光を垂直入射とし，電場方向を y 方向とする．一方の穴の幅 w_y を格子周期 a の半分 $a/2$ で一定とし, w_x を変化させる．また前章に引き続き，実験には波長可変レーザー (λ = 1470 - 1545 nm) を用いる．レーザーの可変波長内に ext-SPP 由来の SHA の透過帯がくるように，格子周期 a は 1030 nm とした．

3.2.1　形状遷移金属誘電体積層ナノホール構造の構成

図 3.1(b) に本章で検討を行う素子の模式図を示す．電場方向である y 方向には同一の穴形状が周期的に配列し，直交方向の x 方向には, ユニットセルごとに穴の幅 w_x を徐々に変化させることとした．以後，穴形状が徐々に変化する素子を形状遷移 SHA と呼ぶこととする．図 3.1(c) に形状遷移 SHA 構造透過時の動作イメージを示す．基板側より入射した垂直入射光は，形状遷移 SHA 構造により透過位相に面内で差が生じ，透過等位相面の傾斜が入射波長にあわせて変化する．

形状遷移 SHA 構造の設計のため，まず前章と同様に図 3.1(a) に示した同種の穴形状をもつ SHA の計算，および実験を行い，必要なパラメータ抽出を行う．その後，得られたパラメータを元に形状遷移 SHA 構造を設計し，透過特性を数値計算および実験的に検証する．以後，本章においては形状遷移 SHA とは区別し，同種の穴が配列した素子を均一穴 SHA と呼ぶこととする．

3.3　分散関係

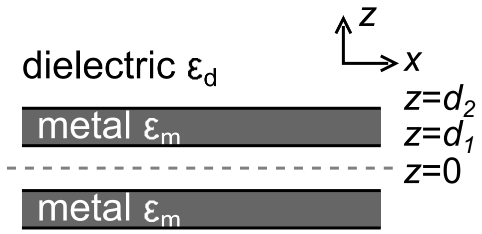

図 3.2　分散関係を検討した IMIMI 構造 (Insulator-metal-insulator-metal-insulator).

まず前章と同様に周期構造と SHA 構造が相互作用を生じる大まかな周波数を，金属誘電体界面を伝搬する SPP の分散関係を用いて求める．本章で取り扱う SHA 構造の積層膜の金属層は二層と前章に比較して単純である事から，ext-SPP と gap-SPP の分散関係は，より積層膜構成に即した IMIMI(insulator-metal-insulator-metal-insulator) 構造に対し, TM モードでの境界条件を適用することで求めた．IMIMI 積層膜は中心の誘電体層に対して対称的な構造とし, 分散関係は次の行列式を 0 とする条件で表される (導出については付録 **A** を参照).

$$\det(\mathbf{M}) = 0 \tag{3.1}$$

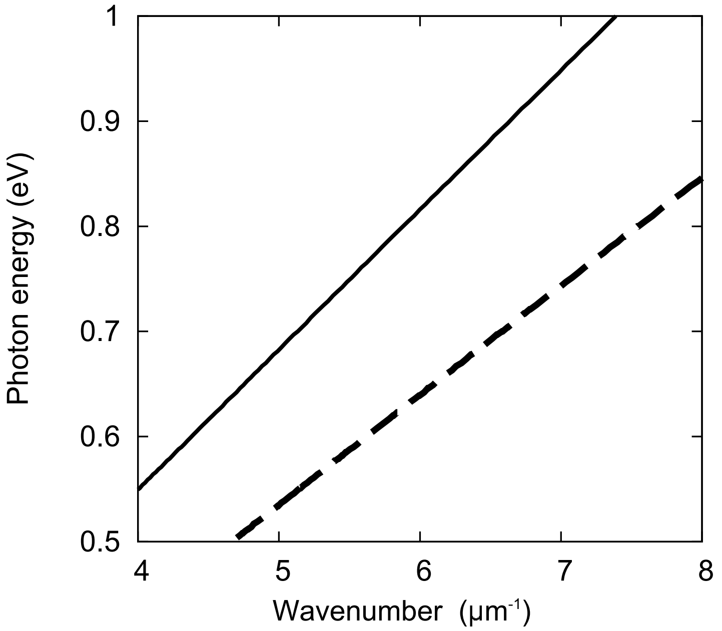

図 3.3　IMIMI 構造の分散関係. ext-SPP (黒色実線), gap-SPP (破線).

ここで行列 $\mathbf{M}$ は以下のように表される.

$$\begin{pmatrix} 1 & -1 & -e^{-k_{z,m}(d_2-d_1)} & 0 \\ \frac{k_{z,d}}{\epsilon_d} & \frac{k_{z,m}}{\epsilon_m} & -\frac{k_{z,m}}{\epsilon_m}e^{-k_{z,m}(d_2-d_1)} & 0 \\ 0 & e^{k_{z,m}(d_1-d_2)} & 1 & -\left(1 \pm e^{-2k_{z,d}d_1}\right) \\ 0 & -\frac{k_{z,m}}{\epsilon_m}e^{k_{z,m}(d_1-d_2)} & \frac{k_{z,m}}{\epsilon_m} & -\frac{k_{z,d}}{\epsilon_d}\left(-1 \pm e^{-2k_{z,d}d_1}\right) \end{pmatrix} \tag{3.2}$$

ここで d_1,d_2 は，$(d_2 - d_1)$ が金属層の厚みを，$2d_1$ が中央の誘電体層の厚みを表す．誘電体層の z 方向の波数 $k_{z,d}$, 金属層の z 方向の波数 $k_{z,m}$ は，図 3.2 で x 方向に伝搬する SPP の波数 $k_{sp,x}$ を用いて $k_{z,d}^2 = k_{sp,x}^2 - \epsilon_d k_0^2$, $k_{z,m}^2 = k_{sp,x}^2 - \epsilon_m k_0^2$ である．ϵ_{m}, ϵ_{d} は金属，誘電体それぞれの比誘電率であり，k_0 は真空中の波数である．

対象波長は 1.5μm 付近の近赤外領域であり, 数ある SPP モードのうち対象となるモードは結合性の二つのモードとなる [11]．ここで前章において ext-SPP と呼んでいた，金属と外側半無限厚領域誘電体界面に電磁場が局在するモードは, xz 平面において y 方向の磁場 (H_y) が $z = 0$ に対して反対称なモードであり，gap-SPP モードは xz 平面において y 方向の磁場 (H_y) が $z = 0$ に対して対称となるモードとなる [11]．図 3.3 に分散図を示す．図中で黒の実線が ext-SPP の分散曲線を，破線が gap-SPP の分散曲線を表す．

横軸が表面プラズモンの波数を，縦軸が光子エネルギーを表す．この分散関係を用い，次節において周期構造と SPP が相互作用する周波数を抽出し，抽出した周波数における SHA の透過特性を電磁場の数値計算結果と比較することで，形状遷移 SHA 構造設計に必要となるパラメータを抽出する．

3.4　数値計算による解析

3.4.1　長方形穴金属誘電体積層ナノホール構造の解析

前章と同様に SHA 構造と入射光との相互作用が生じる周波数は，周期構造由来の波数と SPP の波数が整合する条件より求まる．本章では，図 3.1(b) の形状遷移 SHA において同一ナノホール形状が y 方向に並ぶとし，電場方向を y 方向としたことから，SPP は y 方向に伝搬する．SPP の波数 $k_{sp,y}$ と，入射光の y 方向の波数 $k_{y,inc}$，任意整数 t の間に次の関係が成立するときに，周期構造に由来した回折波と SPP の相互作用が生じる．ただし本章では入射光を垂直入射としていることから $k_{inc,y}$ は 0 である．

$$k_{sp,y} = k_{inc,y} + tG_y \tag{3.3}$$

t=1 に相当する回折波は SPP と図 3.4(a) 中で交点となる光子エネルギー 0.83 eV 付近において ext-SPP と，0.65 eV 付近において gap-SPP と相互作用を生じる．

図 3.4(b) に数値計算より得られた透過スペクトルを示す．数値計算は前章に引き続き FEM 法により行った．計算を行った構造は図 3.1(a) で示した構造であり，長方形穴として w_x が $0.4a$ と $0.6a$ の 2 種類のナノホール形状の SHA 構造の計算を行った．ここで a は格子周期である．入射直線偏光は垂直入射で，電場の振動方向を y 方向とした．分散関係より見積もった相互作用が予測される光子エネルギー換算で 0.83 eV 付近および 0.65 eV 付近におけるスペクトルをみると, 前者にて透過ピークが後者において透過の肩が確認された．また $w_x = 0.4a$, $w_x = 0.6a$ の SHA 構造両者を比較すると，透過ディップの位置はどちらも 0.84 eV 付近で同じであり．どちらも低エネルギー側にかけて透過率が増大していく．その後は w_x が $0.4a$ の構造ではすぐに透過率が減少し，w_x が $0.6a$ の構造では広範な周波数にわたって高い透過率が確認された．

数値計算より得られた SHA の透過位相を図 3.4(c) に示す．前章に引き続き透過位相は SHA と同一の厚みを持つ空気層を透過した際の計算結果との差で表す．穴形状による透過位相への影響をみると, 前章における円形穴と正方形穴の時と同様に，波長変化に対する透過位相変化，つまり分散に差が生じ，ext-SPP 由来の 0.83eV 付近では, 穴幅の狭い $w_x = 0.4a$ の SHA の方が, 穴幅の広い $w_x = 0.6a$ と比較して分散が大きい事が計算結果より示された．以降の節では長方形穴の幅 w_x を徐々に変化させる事で，入射波長に応じて透過波面を局所的に傾斜させる素子の検討を行う．

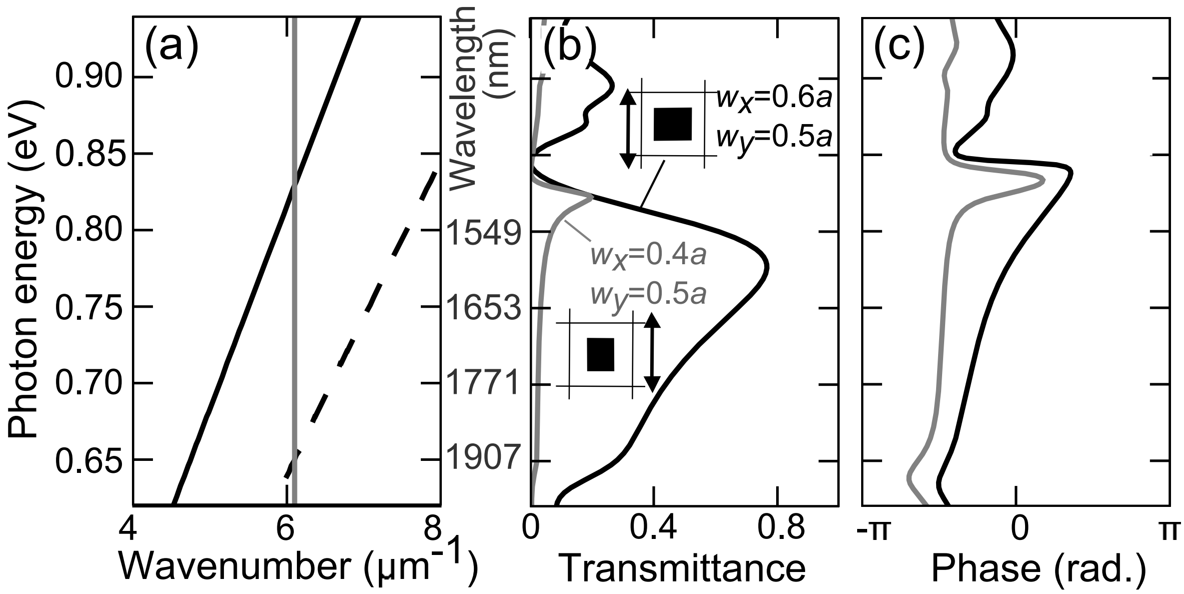

図 3.4　(a) IMIMI 構造の分散関係．ext-SPP (黒色実線), gap-SPP (破線)．灰色の縦線が周期構造由来の端数ベクトルを表す．　(b) 数値計算より得られた透過スペクトル．挿入図は検討を行った SHA 構造の穴形状をあらわす．両端矢印は入射直線偏光の電場方向．(c) 数値計算より得られた透過位相．(透過位相は SHA 構造と同じ厚みをもつ空気層との比較で表示)

3.4.2　形状遷移金属誘電体積層ナノホール構造の数値解析

この節においては，長方形穴を有する SHA を用いた形状遷移 SHA 構造について構造の提案を行い，数値計算により透過特性の検討を行う．垂直入射光の等位相面を形状遷移 SHA 構造透過後に，ある範囲にわたって傾斜させる為には，出射光の波面の位相を緩やかに線形的に変化させる必要がある．前節において, 穴の幅 w_x により SHA 構造を透過した際の分散が変化する事を見てきた．図 3.5 に w_x を変化させた際の, 各穴形状毎の透過位相を示す．図より w_x を線形的，つまり $w_x = 0.4a$, $0.45a$, $0.5a$, $0.55a$, $0.6a$ と変化させても，ある特定の周波数における位相差 (図中両端矢印) の幅は等しくなく，透過位相の差は線形に変化しない事がわかる．そこで線形に変化する透過波面を得る為に，計算結果を元に穴の幅 w_x の抽出を行った．最終的な形状遷移 SHA の穴の幅 w_x の設定値は図 3.6 のキャプションに示す通りである．

ここで電場方向に同種の穴を有する SHA を配置した理由について振り返る．前章図 2.14，2.15 において見てきたように，SHA 構造の透過率は入射直線偏光の電場方向に十分な周期構造を有することで一定の値となる．その為, 本章においては電場方向である y 方向には同種の穴形状配列とした．

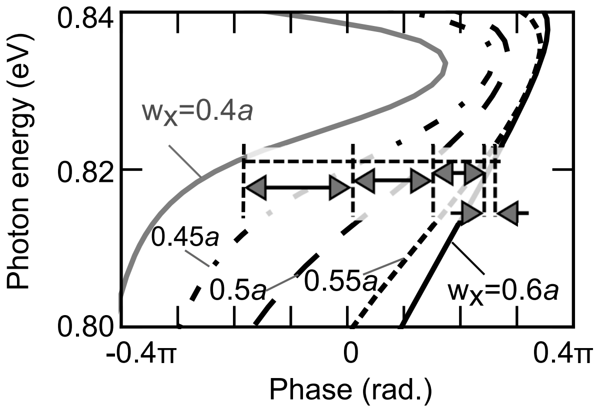

図 3.5　様々な w_x の条件で数値計算を行った透過位相の 0.83 eV 付近の拡大図.

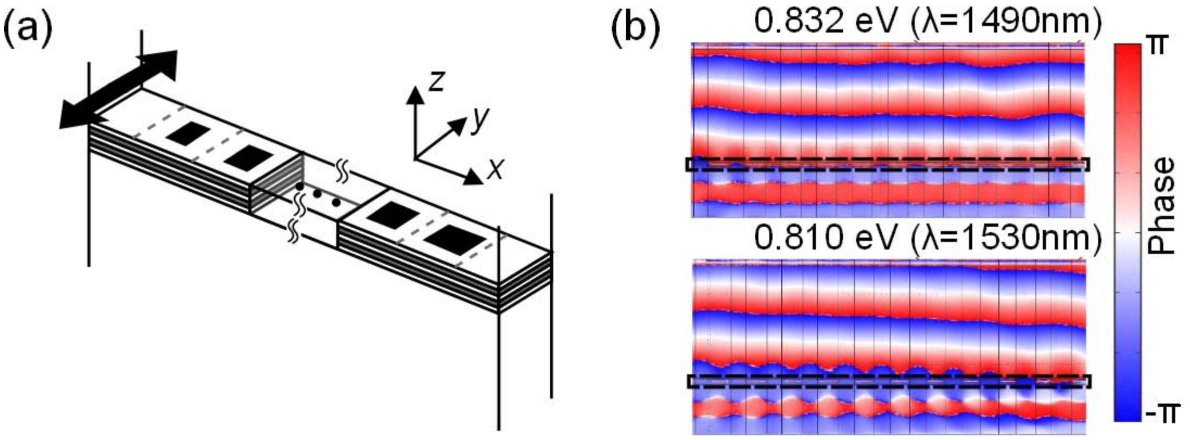

図 3.6　(a) 形状遷移 SHA 構造. 穴の幅 w_x は左側より $0.4a$, $0.408a$, $0.415a$, $0.425a$, $0.435a$, $0.45a$, $0.465a$, $0.485a$, $0.51a$, $0.55a$, and $0.6a$. (b) 形状遷移 SHA 構造の数値計算結果.(表示は y 方向の電場 Ey の位相)

実験による検証に先立ち，形状遷移 SHA の数値計算を行った．数値計算の際には現実的な計算資源で計算できるように x 方向に徐々に穴幅が変化する SHA ユニットセルを 11 周期配置し, y 方向には周期境界条件を適用した．入射直線偏光の電場方向を y 方向として，垂直入射した光の透過位相の数値解析を行った．図 3.6(b) に計算結果を示す．図で表示の濃淡は Ey の位相を表現しており，図で破線で囲まれた領域に 11 ユニットセルで構成される形状遷移 SHA が存在する．図 3.6(b) より，0.832 eV のほぼ平坦な状態から，0.810 eV の傾斜した状態へと本章で提案した構造により等位相面が変化している．このように，入射直線偏光の電場方向と直交する方向に SHA 構造の長方形穴の幅を徐々に変化させた形状遷移 SHA を用い, 分散の穴形状依存性を利用し，等位相面をある範囲にわたって局所的に傾斜できることが示された．

3.5　素子の作製と評価方法

前節で提案を行った形状遷移 SHA の作製は，以下に述べる方法により行った．作製方法は前章と同様のプロセスであり，積層膜の積層と電子線描画法によるレジストパターンの作製，ドライエッチングによるレジストパターンの転写により行った．図 3.7(b)-(d) に作製した構造の SEM 写真を示す．図 3.7(a) に示すように，比較対象として同種の穴が配列した $w_x = 0.4a$ と $0.6a$ の均一穴 SHA を, 形状遷移 SHA の両サイドに作製した．これは干渉顕微鏡の干渉縞から等位相面の傾斜を示す為である．また均一穴 SHA の両サイドには，透過率と透過位相の基準用に石英基板がむき出しとなった thorough-hole 領域を設けた．

図 3.7(b) に示すように，入射直線偏光の電場方向である y 方向には同一の穴形状が配列し，x 方向には穴の幅 w_x が徐々に変化する形状遷移 SHA 構造を作製した．穴のサイズ等はほぼ設計通りであり，良好にサンプルの作製ができた．ただし，均一穴 SHA の個々の穴形状を拡大した図 3.7(c),(d) の観察結果より，2 次電子の散乱により白く見える領域が黒く見える領域を挟んで重なっている．これはナノホールの側壁に傾斜が生じていることを示している．前章の結果より，今回検討をおこなう形状遷移 SHA 構造は対象の周波数帯において，側壁傾斜の影響は小さいと考えられる．これは周期構造に由来した回折波と SPP の相互作用において，側壁傾斜の影響が大きな gap-SPP ではなく，ext-SPP が関与する周波数帯を用いているためである．

3.6　実験結果と考察

均一穴形状を有する金属誘電体積層ナノホール構造の透過率測定

形状遷移 SHA の光学評価を行うのに先立ち，均一穴 SHA 構造の透過特性の実験結果と計算結果の比較をおこなった．透過率の評価は顕微分光により行い，測定手法は前章に準ずる．図 3.8 は w_x を $0.4a$, $0.6a$ とした均一穴 SHA の実験結果のプロットと計算結果の実線を示す．横軸が透過率を, 縦軸が光子エネルギーを表す．図より 0.84 eV 付近に $w_x = 0.6a$, $0.4a$ の両者で透過ディップが観察された．0.84 eV の透過ディップより低エネルギー側の形状遷移 SHA の検証を行う周波数帯において，測定値と計算値は良く一致した．

均一穴形状を有する金属誘電体積層ナノホール構造の透過位相測定

図 3.9 に透過位相の実験結果と計算結果を示す．測定は前章と同様に干渉顕微鏡により行った．横軸は SHA 構造と同じ厚みを持つ空気層と比較した際の透過位相を，縦軸は光

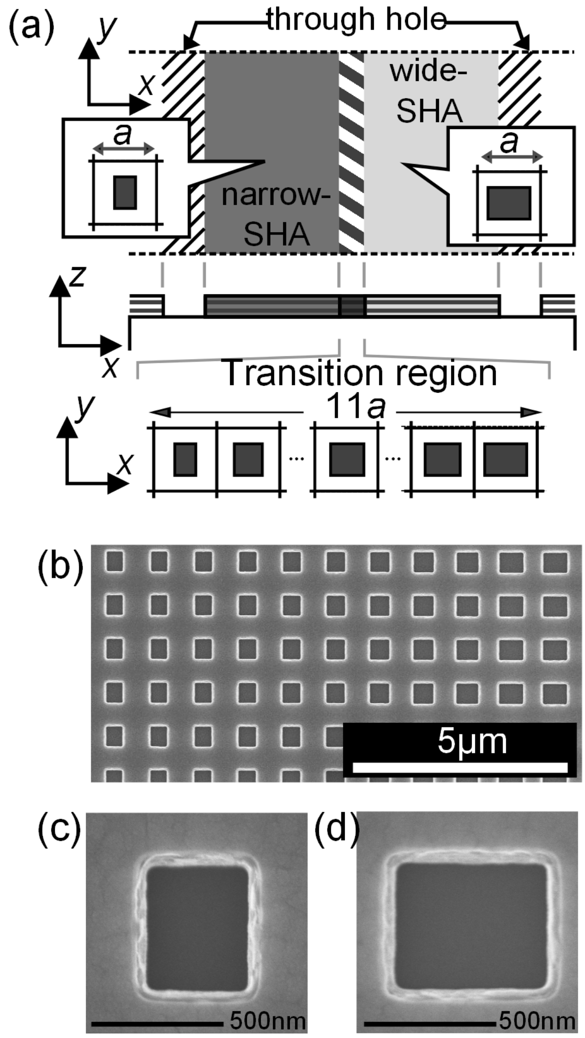

図 3.7　(a) 作製を行った構造の配置図 (b)-(d) 作製した構造の SEM 観察像. (b) 長方形穴の幅 w_x が徐々に変化する形状遷移 SHA. (c) 幅の狭い長方形穴 ($w_x = 0.4a$)SHA 構造. (d) 幅の広い長方形穴 ($w_x = 0.6a$)SHA 構造.

子エネルギーを表す. 図 3.9 に示すように，測定を行った 0.8 から 0.83 eV にかけて実験値と計算値はよく一致した．0.83 eV において穴の幅の異なる二つの均一穴 SHA はほぼ等しい透過位相を示し，低周波数つまり光子エネルギー換算で低エネルギー側に移行するとともに両者の位相差は拡大していった．つまり幅の狭い長方形穴を有する SHA は，幅の広い長方形穴 SHA より周波数変化に対する透過位相変化の大きさ，つまり分散が大きい事が実験的に確認された．分散の大きさを **2.6.2** 節で定義したように数値化すると，幅の狭い長方形穴 SHA では，規格化周波数 (a/λ) 0.01 あたりの位相変化量は，-0.334π であり，幅の広い長方形穴 SHA では -0.153π であった．これは前章における円形穴 SHA の-0.237π, 正方形穴 SHA の-0.132π と比較すると差が拡大しており，本章で検討している長方形穴 SHA により，分散のより大きな SHA 構造と分散のより小さな SHA 構造間

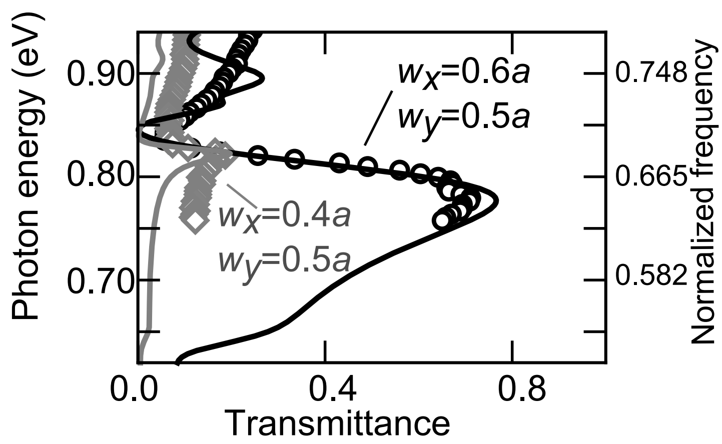

図 3.8　(a) 幅の狭い長方形穴 ($w_x = 0.4a$), 幅の広い長方形穴 ($w_x = 0.6a$) をもつ SHA 構造の透過率の測定値．プロットは測定値，実線は計算値．

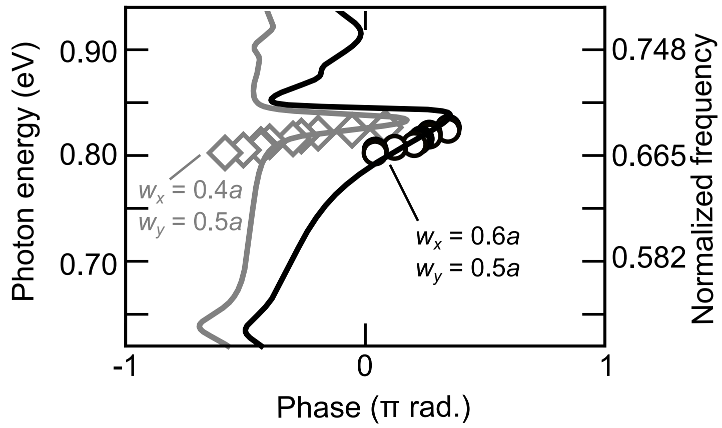

図 3.9　(a) 幅の狭い長方形穴 ($w_x = 0.4a$), 幅の広い長方形穴 ($w_x = 0.6a$) をもつ SHA 構造の透過位相の測定値 (measured, symbols) と計算値 (calculated (lines)

での位相差が拡大していることが確かめられた．均一穴 SHA の透過測定より, 形状遷移 SHA の測定を行う周波数帯において計算値と実験値が一致したことから, 次節では長方形穴形状を除々に変化させた図 3.7(b) に示す形状遷移 SHA の測定を行う．

3.7　形状遷移金属誘電体積層ナノホール構造の測定

本節では，図 3.7(b) で示した構造を用い，形状遷移 SHA 構造の透過特性を実験的に検討する．

二光束干渉顕微鏡による評価

等位相面の観察には前章で導入した干渉顕微鏡を用いた．これにより干渉顕微鏡の干渉縞の傾斜から, 形状遷移 SHA 構造を出射した等位相面の傾斜を示すことができる．入射直線偏光は基板側からの垂直入射であり, 電場方向は y 方向である．波長を 1500 nm (0.827 eV) から 1540 nm (0.805 eV) まで 5 nm 刻みで変化させ測定を行った．図 3.10(a), (b) に測定した干渉縞の典型例を示す．測定した周波数は光子エネルギー換算でそれぞれ 0.827 eV と 0.810 eV である．形状遷移 SHA が存在する中心部の領域において，0.827 eV でほぼ平坦であった波面が 0.810 eV で，傾斜している事が見て取れる．これはつまり，垂直入射した光が 0.827 eV では，そのまままっすぐ出射しているのに対し，0.810 eV の時には形状遷移 SHA により面内で位相差が発生し，出射光の等位相面が傾斜している事を示している．図 3.10(d) のグラフは，取得した干渉画像を画像解析し，左側の幅の狭い長方形穴をもつ均一穴 SHA の透過位相を基準に位相差をプロットした結果を示す．これより幅の狭い均一穴 SHA においても, 幅の広い均一穴 SHA においても干渉縞がフラットになっているのに対し，穴の幅を徐々に変化させた形状遷移領域においては，位相差が徐々に変化し，等位相面が傾斜している事がわかる．この等位相面の傾斜は 0.827 eV(1500 nm) から 0.810 eV(1535 nm) まで, 入射波長を変化させた際に面内位相差が増加し, 等位相面の傾斜もそれにあわせて急になっていった．実験的に得られた最大位相差は 0.6π であった．この差は図 3.9(b) で観察された幅の狭い均一穴 SHA と, 幅の広い均一穴 SHA の間の最大位相差 0.62π とよく一致した．

ナノホール形状の遷移にともなう出射等位相面の局所的な傾斜を，出射角度に換算する．等位相面の傾斜から予測される出射角度 θ は次の 3.4 式で表される．

$$\theta = \mathrm{asin}\frac{\Delta\phi\lambda}{2\pi D_x} \tag{3.4}$$

ここで $\Delta\phi$ は面内位相差を，D_x は形状遷移 SHA の幅で 11.3μm である．等位相面の傾斜から換算される出射角度は，波長 1510 nm(0.821eV) では 1.53 度であり，波長 1540 nm(0.805 eV) では 2.34 度であった．波長変化 30 nm に対して，出射角変化は 0.81 度であった．

遠視野測定による評価

構造を徐々に変化させた形状遷移 SHA に対して，位相観察から見積もられる局所的な等位相面傾斜をみてきた．位相観察に加え，遠視野測定を行うことは出射光の質を評価するうえで重要な意味をもつ [6, 12, 13] ことから，つづいて形状遷移 SHA の遠視野測定について実験的検証を行う．ただし，本研究で作製した形状遷移 SHA で現在得られる位相差は 0.6π である．任意の出射角方向や大面積化を形状遷移 SHA 構造により実現する為

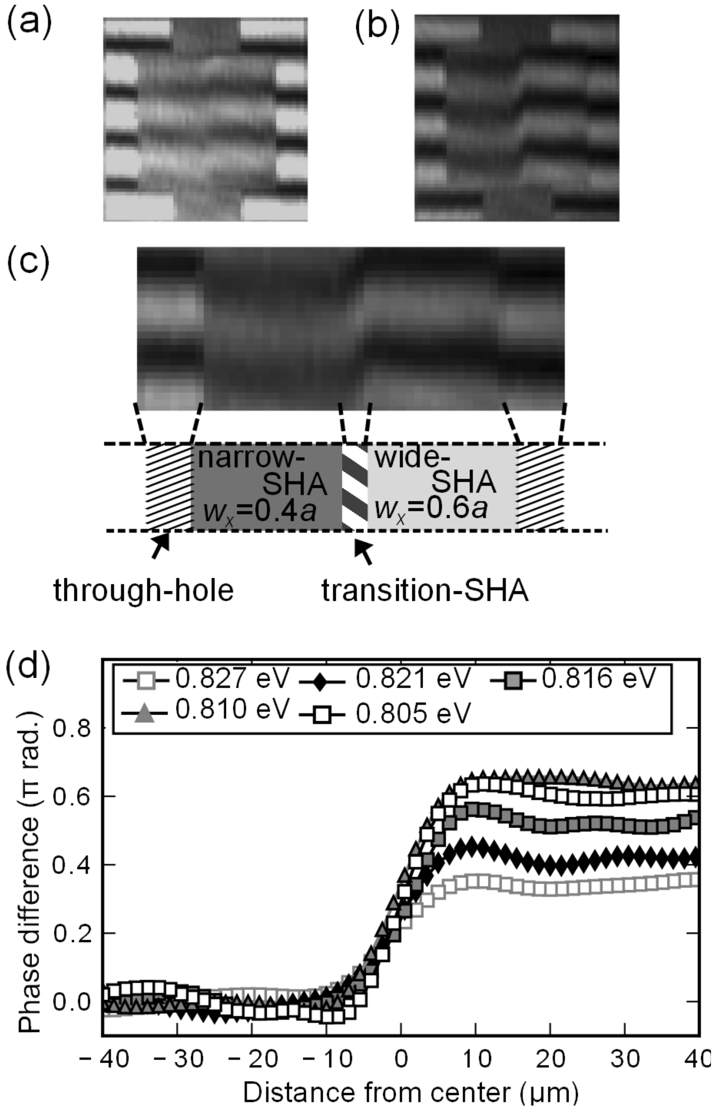

図 3.10　(a) 干渉観察結果 (0.827 eV). (b) 干渉観察結果　(0.810 eV). (c) 干渉観察結果 (b) の拡大図. 下のイメージは対応する構造模式図. (d) 干渉画像から解析した透過位相の分布. 横軸は形状遷移 SHA の中心からの距離.

には，ナノホール形状の異なる領域間で位相差が 2π 以上必要である．その為，本章で検討してきた形状遷移 SHA 構造では，そのような透過素子を作製する事は出来ない．その為，微小な限定された領域の遠視野測定を行う為に, 図 3.11 に示すような光学系を用い測定を行った．光学系は文献 [14] を参考に構築した.

この光学系は顕微鏡において，波数空間イメージを取得するコノスコープ観察光学系に，サンプルの限定領域を観察する為のピンホールを組み合わせたものである．本光学系は大きく二つの光学システムを組み合わせており，お互いの光学系はいくつかの光学部品を共有している．一方は通常の顕微鏡にみられるように微小なサンプルの実像を, 対物レ

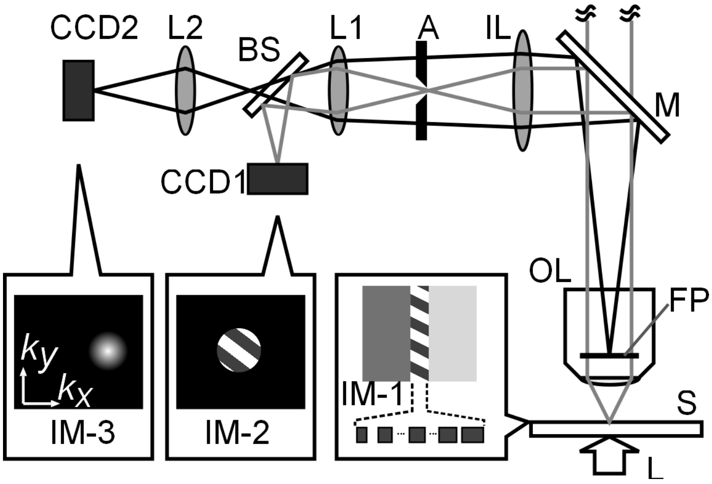

図 3.11 遠視野観察の為の近赤外顕微鏡 (Olympus, BX-51IR) をベースとした光学系．L, 波長可変レーザ ($\lambda = 1470 - 1545$ nm); S, サンプル; OL, 対物レンズ (Olympus LMPlanIR, 50X); FP, 対物レンズ後ろ側焦点面; M, 反射鏡; IL, 結像レンズ; A, 可変ピンホール; L1, L2 近赤外アクロマティックレンズ; BS, ビームスプリッタ; CCD1, 可視 USB カメラ; CCD2, 近赤外カメラ; IM-1, サンプル内配置図; IM-2, CCD1 で観察される実像イメージ; IM-3, CCD2 で観測される波数空間強度イメージ.

ンズ-結像レンズを介して撮像素子に導くものである (図中で灰色実線の光路に相当)．他方は図で黒色実線で示された波数空間イメージを取得する光学系である．この黒色の光路では撮像素子には, 瞳面と呼ばれる対物レンズの後ろ側焦点面の像が結像される．これによりサンプルを透過した光の波数空間 (k_x, k_y) における強度分布の情報が取得可能となる．ただし，本研究で作製した形状遷移 SHA の大きさは微小であり，瞳面における像を撮像素子に結像させただけでは, 形状遷移 SHA 以外の部分を透過した光の情報も取得してしまう．そこで結像レンズの後ろ側，サンプルとの共役位置にピンホールを配置し，観察エリアの限定化を行った．これにより形状遷移 SHA のみを透過した光の波数空間情報が取得可能になる．本実験では，ピンホールとして直径 0.4 mm のピンホールを用いた．これは対物レンズの倍率が 50 倍であることから，形状遷移 SHA の直径 8.0 μm の領域を観察することに相当する．

図 3.12 に本光学系を用いて取得した形状遷移 SHA 透過後の波数空間における強度分布の, x 方向に対する強度分布を示す．横軸は真空中の波数で規格化した規格化波数 k_x/k_0 を示す．微小領域の観察の為，波数空間における強度分布は回折による広がりを有している．ここで，ピーク位置に注目すると光子エネルギーの減少と共に k_x/k_0 が正の方向にシフトする事が観察された．ピーク位置を出射角度に置き換えると，波長 1510 nm(0.821eV) では 0.92 度であり，波長 1540 nm(0.805 eV) では 2.75 度であった．波長変化 30 nm に対して，出射角変化は 1.83 度であった．先の二光速干渉顕微鏡による評価

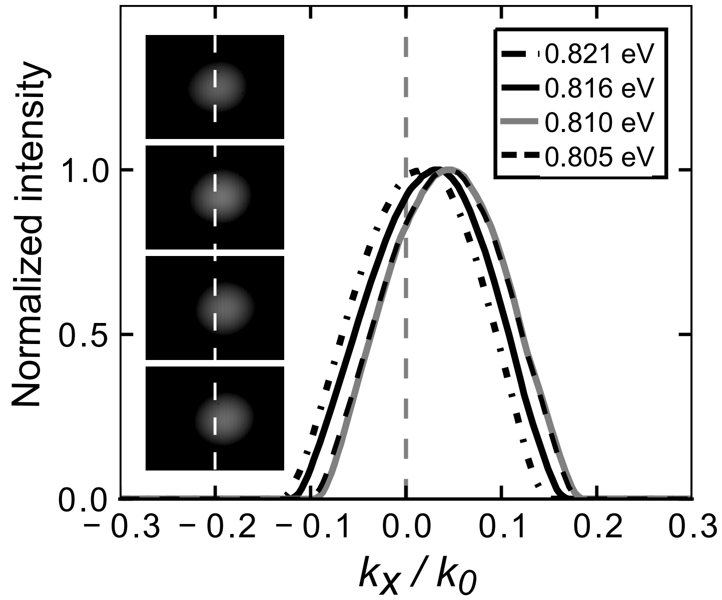

図 3.12　波数空間イメージの強度プロット．挿入図は上から 0.821 eV, 0.816 eV, 0.810 eV and 0.805 eV に相当する波数空間強度分布．白色破線は $k_x/k_0 = 0$ に相当．

の結果である波長変化 30 nm に対して 0.81 度よりも大きな差となっているが，これは遠視野測定による評価の際にはピンホールを用いて，中心の 8 μm の領域の変化を見ていることが影響しているものと考えられる．

続いて図 3.12 における k_x/k_0 の広がりについて議論する．図より何れの測定プロットでも k_x/k_0 は 0.25 から 0.30 程度広がっている．これは拡がり角で 14.3 度から 17.3 度に相当する．微小開口の x 方向の幅を D とし，遠視野測定において測定点までの距離と比較して D が十分小さいとする．すると遠視野測定における微小開口からの拡がり角は，フラウンホーファー回折を仮定して次の簡単な式により表される [15,16]．

$$\theta = \frac{\lambda}{D} \tag{3.5}$$

ここで θ は回折光の拡がり角である．この式より波長 1530 nm において, 8.0 μm 開口からの回折光の拡がり角を計算すると 11.0 度となり．式 3.5 から得られた拡がり角 11.0 度は，実験結果の拡がり角 14.3 度から 17.3 度と厳密には一致しなかった．これは式 3.5 は，その定義から開口における透過率を均一に 1.0 としていることも影響していると考えられる．より厳密には，開口の透過関数を開口内の場所ごとに設定し，計算する必要がある [16]．拡がり角は実験値と計算値で一致しなかったが，オーダーは一致しており，図 3.12 における拡がり角は，主として限定開口からの回折に由来する事が示唆される．

以上のように，限定開口からの出射光は回折によりビームが拡がり, ビーム品質が低下する．よってビーム拡がりを抑えるためには，開口を大きくする必要がある．しかし，面

内で得られる位相差が 2π より小さいときには，開口を大きくすることで出射角度は小さくなる．(2π より大きな位相差が得られる際には，2π より大きな位相差は 2π で位相を折り返すことで表現可能である．)

そのため，本章で検討を行ってきたナノホール形状を徐々に変化させた長方形穴 SHA では，ビーム拡がりを抑制し出射角を変化させる透過素子を実現することはできず，限定開口からの出射波面を局所的に傾斜させるのみとなる．また本章で検討を行った構造では，透過位相を変化させ透過振幅が等しくなるように，およそ 0.80 eV から 0.83 eV の範囲の透過率で 0.2 程度の透過光を用いた．そのため，角度拡がりが大きく透過率が低いことを考えると，本章で検討を行った構成では**序言 1.2 既存技術と先行研究**で取り上げたブレーズドグレーティング等の直接的代替とするのは難しい．本章においては同一面内での位相差を，ナノホール形状に依存する分散の差により得ている．主たる課題は大きな分散を得ようとすると，透過率が低下する事にある．現在まで数値計算により様々な穴形状の検討を行ったが，現実的に作製可能な素子構造で透過率が高く分散の大きなナノホール形状は得られていない．

本章で取り組んだ同一周期を持つ周期構造の形状を少しずつ変化させるというコンセプトは，対象波長において適した材料を用いることで高効率な素子を実現でき, 最近の研究成果として，金属を完全導体で扱えるマイクロ波帯において，本章で取り組んだ構造と類似の構造によりビームの高効率な偏向が報告されている [17]．今後, 周期構造の形状を徐々に変化させたパッシブな素子は，対象波長に適した材料を用いることで研究が加速することが期待される．

3.8　まとめ

本章においては，前章で得られた SHA 構造の分散がナノホール形状に依存するという結果を用いて，同一面内でナノホール形状が徐々に変化する構造により，構造部を透過した光の等位相面を傾斜させる素子の検討を行った．既存素子の置き換えとなるような透過素子は実現できなかったが，ナノホール形状を徐々に変化させることで，透過位相を徐々に変化させるというコンセプトを確認することができた．本章における主な結論は次の通りである．

1) ナノホール形状として長方形穴を採用し，前章と同様に同一穴形状に対する数値計算と，顕微分光による透過率測定，干渉顕微鏡による透過位相測定をおこなった．これより，長方形穴を持つ SHA 構造の分散は，入射直線偏向の電場方向に直行する方向の穴幅に依存することが確認された．この電場方向に直行する方向の長方形穴の幅として，正方格子の格子周期を a としたときに $0.4a$, $0.6a$ の 2 種類の長方形穴 SHA 構造を評価し，分散の大きさは前者の穴幅が狭いほうが，より大きくなることが確認された．

2) 入射直線偏向の電場方向には同一形状の長方形穴のナノホールが配列し，電場方向と直交方向には長方形穴の形状が徐々に変化する形状遷移 SHA 構造を設計し，数値計算と干渉顕微鏡を用いた位相観察より，構造を透過した光の透過位相評価を行った．位相観察より，入射光の波長を変化させることで，構造が徐々に変化する SHA 構造部を透過する光において，面内位相差による等位相面傾斜が生じた．波面の傾斜は波長を長波長側に変化させることで大きくなり，傾斜にともなう面内位相差は最大 0.6π となった．
3) 上記のナノホール形状を徐々に変化させた形状遷移 SHA 構造の遠視野観察を行った．遠視野観察より，構造を透過した光の波数空間における強度分布は入射波長に応じて変化し，拡がり角を持った強度分布のピーク位置のシフトは，角度に置き換えると最大 2.75 度であった．これは上記の位相観察における面内位相差 0.6π と開口幅，入射波長を用いて計算した局所的な波面傾斜から予測される出射角度 2.32 度と合理的に一致した．
4) 遠視野測定から明らかになった拡がり角は，開口幅が小さく回折が生じる為である．回折による拡がりが生じることなく，つまり大開口で，さらに入射光の出射角を偏向させるためには，面内で形成する位相差は最低 2π が必要である．その為，本章で検討を行った構成では，拡がり角を抑えて出射角を偏向させることは難しい．

参考文献

[1] H. Liu and P. Lalanne, “Microscopic theory of the extraordinary optical transmission,” Nature **452**, 728–731 (2008).

[2] D. Inoue, A. Miura, T. Nomura, H. Fujikawa, K. Sato, N. Ikeda, D. Tsuya, Y. Sugimoto, and Y. Koide, “Polarization independent visible color filter comprising an aluminum film with surface-plasmon enhanced transmission through a subwavelength array of holes,” Applied Physics Letters **98**, 093113 (2011).

[3] S. Yokogawa, S. Burgos, and H. Atwater, “Plasmonic color filters for CMOS image sensor applications,” Nano Letters **12**, 4349–4354 (2012).

[4] J. Homola, “Surface plasmon resonance sensors for detection of chemical and biological species,” Chemical Reviews **108**, 462–493 (2008).

[5] 岡本隆之，梶川浩太郎, **プラズモニクス　基礎と応用**(講談社, 2010).

[6] J. Valentine, S. Zhang, T. Zentgraf, E. Ulin-Avila, D. Genov, G. Bartal, and X. Zhang, “Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index,” Nature **455**, 376–379 (2008).

[7] A. Rottler, M. Harland, M. Bröll, S. Schwaiger, D. Stickler, A. Stemmann, C. Heyn, D. Heitmann, and S. Mendach, “Rolled-up nanotechnology for the fabrication of three-dimensional fishnet-type GaAs-metal metamaterials with nega-

tive refractive index at near-infrared frequencies," Applied Physics Letters **100**, 151104 (2012).

[8] R. Gordon and A. Brolo, "Increased cut-off wavelength for a subwavelength hole in a real metal," Optics Express **13**, 1933–1938 (2005).

[9] F. García-Vidal, L. Martín-Moreno, E. Moreno, L. Kumar, and R. Gordon, "Transmission of light through a single rectangular hole in a real metal," Physical Review B **74**, 153411 (2006).

[10] S. Collin, F. Pardo, and J. Pelouard, "Waveguiding in nanoscale metallic apertures," Optics Express **15**, 4310–4320 (2007).

[11] L. Solymar and E. Shamonina, *Waves in Metamaterials* (Oxford University Press, 2009).

[12] N. Yu, P. Genevet, M. Kats, F. Aieta, J. Tetienne, F. Capasso, and Z. Gaburro, "Light propagation with phase discontinuities: generalized laws of reflection and refraction," Science **334**, 333–337 (2011).

[13] J. Sun, E. Timurdogan, A. Yaacobi, E. S. Hosseini, and M. R. Watts, "Large-scale nanophotonic phased array," Nature **493**, 195–199 (2013).

[14] H. T. Miyazaki, H. Miyazaki, Y. Jimba, Y. Kurokawa, N. Shinya, and K. Miyano, "Light diffraction from a bilayer lattice of microspheres enhanced by specular resonance," Journal of Applied Physics **95**, 793–805 (2004).

[15] 富田康生, 光波エレクトロニクス (培風館, 1997).

[16] J. W. Goodman and S. C. Gustafson, *Introduction to Fourier Optics,* (Roberts & Company, 2004).

[17] Z. Wei, Y. Gao, X. Su, Z. Gong, Y. Long, and H. Li, "Highly efficient beam steering with a transparent metasurface," Optics Express **21**, 10739–10745 (2013).

第 4 章

液晶装荷金属誘電体積層ナノホール構造

4.1　はじめに

前章まで, 金属誘電体積層ナノホール構造 (SHA 構造) を用いた透過素子について検討を行い，ナノホール形状により入射波長に応じた透過位相の変化の大きさ, つまりは分散が変化することをみてきた．しかし，実際の応用を考えると特定の穴形状をもつ SHA 構造に対し, 入射波長を変化させることは現実的ではなく，単一波長の入射光の透過特性を何らかの手法で動的に変化させる事が望ましい．透過特性を変化させる為には，形状を変化させ分散およびその差を利用する以外に，金属に接する媒体の比誘電率を変化させ SPP の分散関係を変化させることも有効であると考えられる．これは前章までにみてきた SPP の波数と周期構造由来の波数との整合条件を変えることに相当する．入射光が SPP と相互作用する周波数近傍では，SHA 構造の透過特性が大きく変化する為，SHA 構造に接する媒体を外場応答性の液晶材料とし，液晶材料の配向を局所的に変化させる事で，透過特性を局所的に変化できる可能性がある．そこで本章では SHA 構造を用い，液晶の比誘電率異方性制御により透過特性を変化させる為の基礎的な検討を行った．

液晶材料を用い，周期構造の光学特性を制御する試みは，幾つか報告されている．代表的なところでは，誘電体グレーティングへの適用 [1], フォトニック結晶への適用 [2], 金属ナノ構造等のプラズモン構造への適用 [3,4] があげられる．こういった周期構造の液晶を用いた特性制御の機能発現には，大きく二つのメカニズムがある．一つは周期構造を構成する誘電体材料と液晶材料との比誘電率差を用いるもの，もう一つは金属と液晶の境界条件の変化を用いるものである．前者は誘電体グレーティングやフォトニック結晶等の特性制御に用いられ，後者はプラズモニック構造や，金属を用いたメタマテリアル等の制御に使われる．本研究で対象としている SHA は，その動作メカニズムに金属誘電体界面の

SPP を利用している事から，後者のメカニズムが適用される．SHA 構造の穴中への液晶充填や，配向制御は表面の化学処理により行うことができる [5].

SHA への液晶適用はいくつか報告されており，例えば液晶材料をナノホール中のみに充填した研究例 [6], ナノホール中への充填および上層に入射光の波長より十分厚い液晶材料を適用した研究例 [7,8], もしくは著者らが過去に報告しているナノホール中および上層にサブ波長厚の液晶材料を適用した例がある [5]．SHA の透過メカニズムには SPP が関与しており，序論でも述べたように SPP は金属表面から波長オーダーで減衰する波である．その為，液晶材料と組み合わせた際に SHA の透過特性に強く影響を及ぼすのは，金属表面からサブ波長の領域にある液晶の比誘電率であると考えられる．

そこで本章においては，金属表面からサブ波長領域に存在する液晶材料が透過特性に及ぼす影響，およびサブ波長厚液晶材料の上層の封止基板の屈折率が透過特性に及ぼす影響に関し検討を行う．

4.2　ユニットセル構造

図 4.1 に本章で検討を行うユニットセル構造を示す．前章に引き続き, SHA 構造は石英基板上に SiO_2 と Al がそれぞれ交互に 3 層と 2 層積層された計 5 層の積層膜からなる．積層膜を貫通する形で正方形穴を有し，穴の一辺の長さは格子周期 a の半分 $a/2$ である．格子周期 a は，後に行う実験の際に，スペクトルの重要な部分が分光器の測定可能範囲 λ = 900 - 1700 nm に収まるように a = 790 nm とした．積層膜における SiO_2 と Al の厚さは，基板側からそれぞれ 50, 30, 100, 30, 50 nm である．図 4.1 に示すように，ナノ

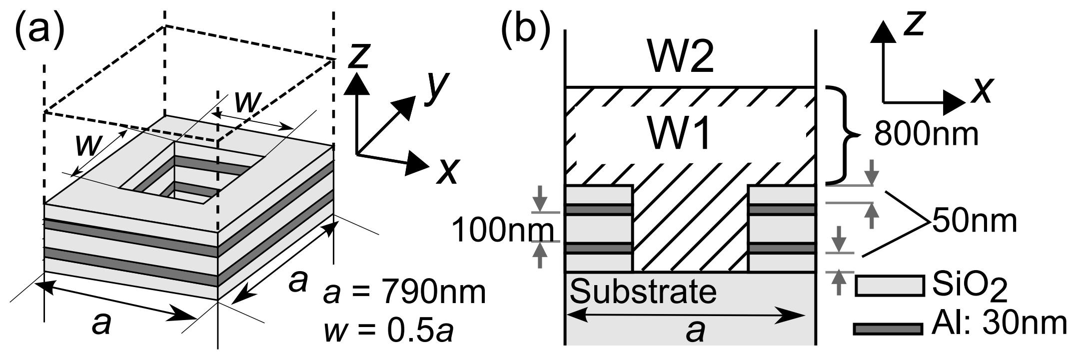

図 4.1　(a) 液晶装荷 SHA 構造のユニットセル構造．(b) 断面模式図．積層膜の材質と膜厚はそれぞれ下から SiO_2 (50 nm), Al (30 nm), SiO_2 (100 nm), Al (30 nm), SiO_2 (50 nm), and W1 (800 nm).

ホール内および SHA 上 800 nm 厚の領域 W1 と，上部基板領域 W2 を設けた．W1 領域のうち積層膜と上部基板に挟まれた部位の厚みは, 該周波数において Fabry-Perot 共振に

伴う透過ディップが生じない程度に薄く，SPP に影響を及ぼす程度に厚くなるように決定した．

数値計算に際しては W1 領域の比誘電率テンソルと，W2 領域の比誘電率を幾つかの条件で変更しサブ波長厚液晶と上部基板の役割を示していく．なお，数値計算の際に W1 領域を等方性材料とした時には，比誘電率テンソルの対角成分は $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{zz}$ である．数値計算の後に示す実験では，W1 領域にネマチック液晶材料 5CB(Merch, 4-pentyl-4’-cyanobiphenyl) を用い，上部基板 W2 として Schott 社製光学ガラス BK7 を用いる．

4.3 数値計算による液晶装荷金属誘電体積層ナノホールの透過メカニズム解析

4.3.1 数値計算手法

第 2 章，**第 3 章**では有限要素法により SHA 構造の数値計算を行ったが，本章ではより効率的に異方性材料の周期構造に対する計算が可能な Fourier Modal Method (FMM) を用い数値計算を行った．

FMM は別名, 厳密結合波解析法 (RCWA, Rigorous Coupled Wave Analysis) とも呼ばれ，周期構造の光学特性を，フーリエ展開と行列演算により解析可能な手法であり，盛んに研究されてきた [9–15]．その原理と実装方法については既に文献，書籍等にて報告されている [13, 16–18]．本研究では，参考文献 [18] に従い計算コードを実装し，回折効率の計算をおこなった．実装した計算コードは文献 [19–27] に記載の構造に対して計算を実施し，回折効率が一致する事を確認した．実装の際に行った数値計算における処理の工夫については**付録 C** にて述べる．

サブ波長の液晶層および上部基板の影響を明らかにする為に, 次の四条件で計算を行った．(i) まず W1, W2 領域が空気である時を検討し，0 次透過回折光の透過率ディップの要因を明らかにする．(ii) 次に，W1 および W2 領域が等方性で，空気と比較して高い比誘電率を持つときの計算結果から，先に求めた 0 次透過回折光の透過率ディップの要因を追認する．(iii) 更に W1 領域を異方性材料とした計算結果と (ii) の結果を比較する事で，W1 領域の比誘電率の金属面に垂直方向成分 (z 方向成分) の影響を確認する．(iv) 最後に W1 領域を異方性とし，W2 領域の比誘電率を適切に選択する事で，多次の透過回折光が抑制でき，相対的に 0 次透過回折光の透過率が高められることを示す．

以降，**4.3.2** 節から **4.3.5** 節における計算条件は次の通りである．入射直線偏光は基板側からの垂直入射とし，電場方向は x 方向とする．各層の厚み，および W1, W2 以外の各層の材質は図 4.1 に準ずる．W1 および W2 の比誘電率は各節で記述する．前章まで

と同様に Al の比誘電率を**付録 B** における振動子モデルで，SiO_2 の比誘電率を 2.10 として計算に用いた．液晶として 5CB を想定し，文献 [28] の分散式の外挿値から常光屈折率 n_o を 1.52，異常光屈折率 n_e を 1.68 として計算に用いた．液晶材料の比誘電率は，一軸異方性液晶のダイレクタ方向が x, y, z 軸のいずれかに一致しているとし，二階の比誘電率テンソルの対角成分によって表現した．一軸異方性液晶のダイレクタが z 方向に向いた垂直配向では，液晶材料の常光屈折率 n_o と異常光屈折率 n_e を用いて，次のように表現される．

$$\epsilon_{LC} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \tag{4.1}$$

$$= \begin{pmatrix} n_o^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_o^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_e^2 \end{pmatrix} \tag{4.2}$$

以降のグラフにおいて, 回折次数に応じた透過率 T，反射率 R は, 下付き文字を用いて表現した．例えば x 方向へ 1 次，y 方向へ 0 次の反射率は $R_{(1,0)}$ と表現する．本章では主に x 方向の回折次数に注目し，y 方向の回折次数は 0 次のみを取り扱っているが，その他の y 方向の高次の回折効率は無視できるほど小さいことを数値計算より確認している．

4.3.2　空気装荷金属誘電体積層ナノホール構造

W1 および W2 領域の役割を明確にする為に，まず最初に W1 領域と W2 領域が空気となっている状態を考える．つまり図 4.1 で W1 領域の比誘電率 ϵ_{W1} と上部基板領域 W2 の比誘電率 ϵ_{W2} は, それぞれ等方性で屈折率 $n_{Air} = 1.0$ を用いて $\epsilon_{W1} = \epsilon_{W2} = n_{Air}^2$ である．図 4.2 に各回折次数における透過率，および反射率を示す．グラフにおいて，電場方向である x 方向への回折次数，+1 次，-1 次，および 0 次，また y 方向へは 0 次の回折次数の透過率，反射率を表示した．つまり，$R_{(-1,0)}, R_{(0,0)}, R_{(1,0)}, T_{(-1,0)}, T_{(0,0)}, T_{(1,0)}$ の六種類の透過率と反射率である．ただし，本章では積層膜に対して垂直入射とし，構造が $x = 0$ で yz 平面に対して対称構造であることから，$R_{(-1,0)} = R_{(1,0)}$, $T_{(-1,0)} = T_{(1,0)}$ である．その他の回折次数，たとえば x 方向へ +1 次，y 方向へ +1 次の透過率 $T_{(1,1)}$ 等は十分に透過率が小さいことを数値計算から確認しており，グラフでは表示していない．この表記に関しては以降の **4.3.3** 節から **4.3.5** 節においても共通である．

図 4.2 において 0 次透過回折光の透過率 $T_{(0,0)}$ に注目すると，1150 nm 付近に透過率のディップが，1200 nm 付近に透過ピークが，1350 nm 付近に透過の肩が存在する．グラフより 1200 nm 付近の透過ピークと 1350 nm 付近の透過肩は，前章までで議論を行った SPP 由来の透過でありそれぞれ ext-SPP, gap-SPP に由来する．また，1150 nm 付近の透過率ディップは ±1 次の反射率 $(R_{(-1,0)}, R_{(1,0)})$ がその波長より長波長で，0 となる

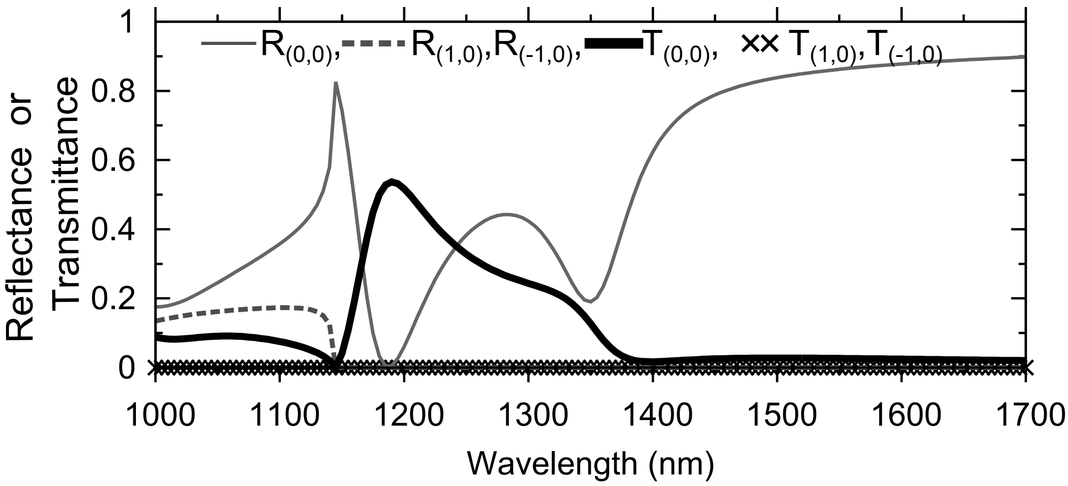

図 4.2　各回折次数における透過率と反射率の計算結果．W2 領域の比誘電率，および W1 領域の比誘電率を等方性の 1.0 とした．

波長に相当する．

この非 0 次の透過波，反射波が伝搬光として存在する，つまり遠方における透過率，反射率が 0 より大きくなる条件は次の簡単な式により表現することが出来る．

$$\left|\mathbf{k}_{inc//} + s\mathbf{G_x} + t\mathbf{G_y}\right| < k_0 n \tag{4.3}$$

ここで $\mathbf{k}_{inc//}$ は入射光の金属誘電体界面方向の波数ベクトルを，s および t はそれぞれ x 方向および y 方向の回折次数を，$\mathbf{G_x}$ と $\mathbf{G_y}$ は周期構造の逆格子ベクトルを，k_0 は真空中の波数を，n は反射もしくは透過した側の媒体の屈折率を表す．正方格子において $\mathbf{G_x}$ と $\mathbf{G_y}$ の絶対値は格子周期 a を用いて $2\pi/a$ で表される．また $\mathbf{k}_{inc//}$ は，本章では垂直入射と設定しているため 0 である．本章では x 方向の回折次数のみを考え，y 方向へは 0 次のみを考えるので，t は 0 とする．x 方向への回折次数 s が式 4.3 を満たす回折波は，基板もしくは上部基板への回折波が減衰性ではなく，伝搬性であることを意味し，回折効率が計算される．以上より前記 1150 nm の透過率ディップは基板側への (s,t) = (1,0), および (s,t) = (-1,0) の反射回折光が伝搬性から減衰性に変化する波長に相当する．

4.3.3　高比誘電率等方性誘電体装荷金属誘電体積層ナノホール構造

次に図 4.1 で W1 および W2 の領域が等方性で, 屈折率 n_H=1.68 を用いて，$\epsilon_{W1} = \epsilon_{W2} = n_H^2$ で表される状況を考える． 図 4.3 に透過率および反射率のグラフを示す．式 4.3 より，SHA 上部媒体の比誘電率が変化することは 0 次透過回折光の透過率 $T_{(0,0)}$ に新たなディップが生じる事が予想される．図 4.3 に示すように，$T_{(0,0)}$ は新たに 1330 nm 付近に透過率のディップを生じている．この透過率ディップは, n_H を持つ上部媒体

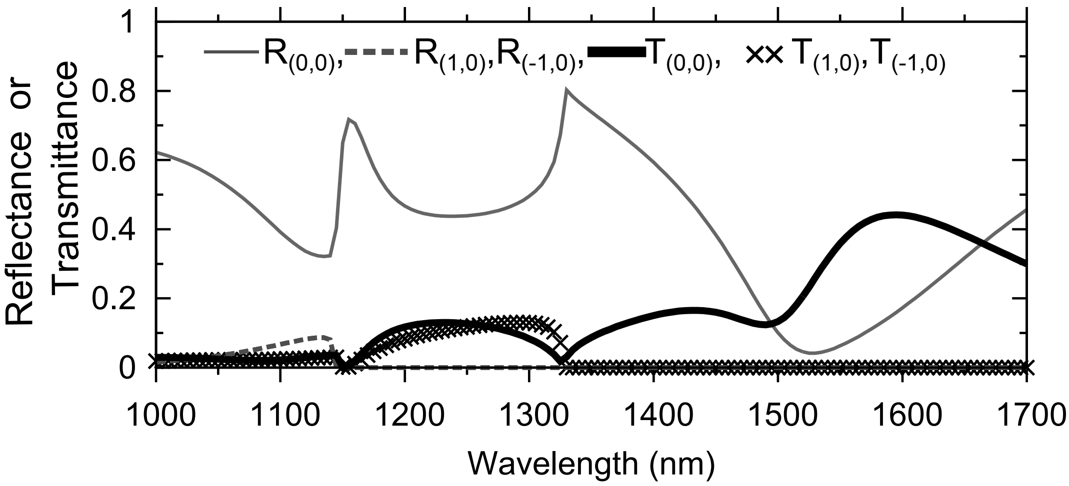

図 4.3 各回折次数における透過率と反射率の計算結果. W2 領域と W1 領域の比誘電率は等方性とし $n_H = 1.68$ を用いて，$\epsilon_{W1} = \epsilon_{W2} = n_H^2$ に設定.

への (s,t) = (1,0), および (s,t) = (-1,0) で表される透過回折光が伝搬性から減衰性と変化する波長に相当する．この結果より SHA に接する媒体の比誘電率を変化させる事で，多次の回折光が伝搬性から減衰性となる条件件が変化し，0 次透過回折光の透過ディップ波長に変化が生じることが確認された.

4.3.4 一軸異方性液晶装荷金属誘電体積層ナノホール構造

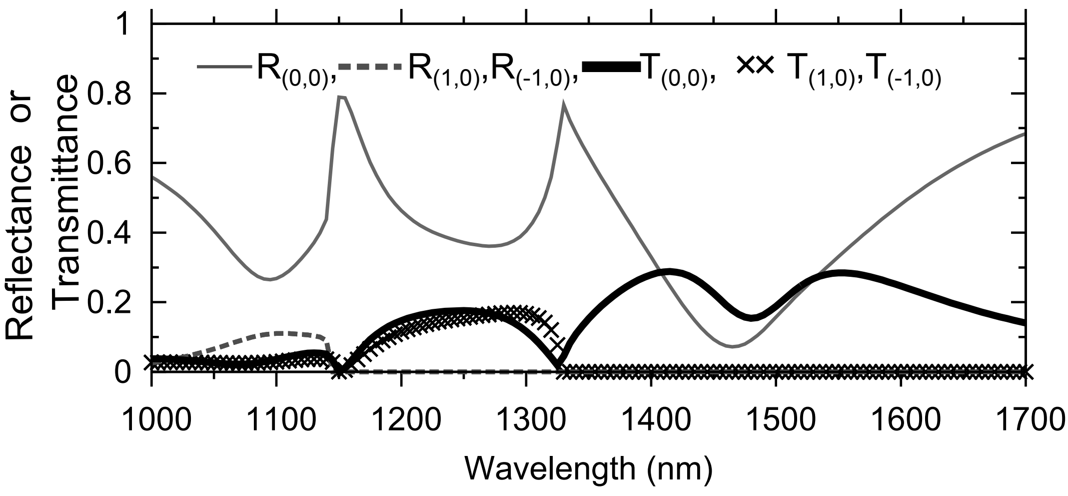

図 4.4 各回折次数における透過率と反射率の計算結果. W2 領域の比誘電率は等方性で n_H^2. W1 領域は比誘電率テンソルの対角成分を次のように設定 $(\epsilon_{\rm xx}, \epsilon_{\rm yy}, \epsilon_{\rm zz}) = (1.52^2, 1.52^2, 1.68^2)$.

ここまで図 4.1 で W1, W2 領域を等方性とし計算を行ってきたが，実際の液晶材料は

比誘電率に異方性をもつことから，W1 領域を異方性材料とし，透過特性を検討する．**1.4 表面プラズモンポラリトンと液晶材料**においてみてきたように，SPP の伝搬に強く影響を及ぼす比誘電率の成分は，界面に垂直方向の成分である．図 4.4 には W1 領域の比誘電率テンソルが

$$\epsilon_{W1} = \begin{pmatrix} 1.52^2 & 0 & 0 \\ 0 & 1.52^2 & 0 \\ 0 & 0 & 1.68^2 \end{pmatrix} \tag{4.4}$$

で表され，W2 領域の屈折率が n_H=1.68 であるときの，各回折次数の透過率および反射率のグラフを示す．図 4.4 のグラフは，0 次の透過率 $T_{(0,0)}$ において，1150 nm 付近と 1330 nm 付近に透過率のディップが生じた．1330 nm の透過率のディップは +1 次の透過率 $T_{(1,0)}$ および，-1 次の透過率 $T_{(-1,0)}$ が 1330 nm より長波長で 0 となり，該当する透過回折波が伝搬性から減衰性に変化する波長に相当する．これは図 4.3 で示した透過ディップに関する特徴を再現している．つまり，SHA に接する媒体の z 方向の比誘電率成分が透過，特に透過ディップが生じる波長に影響している事が確認できる．

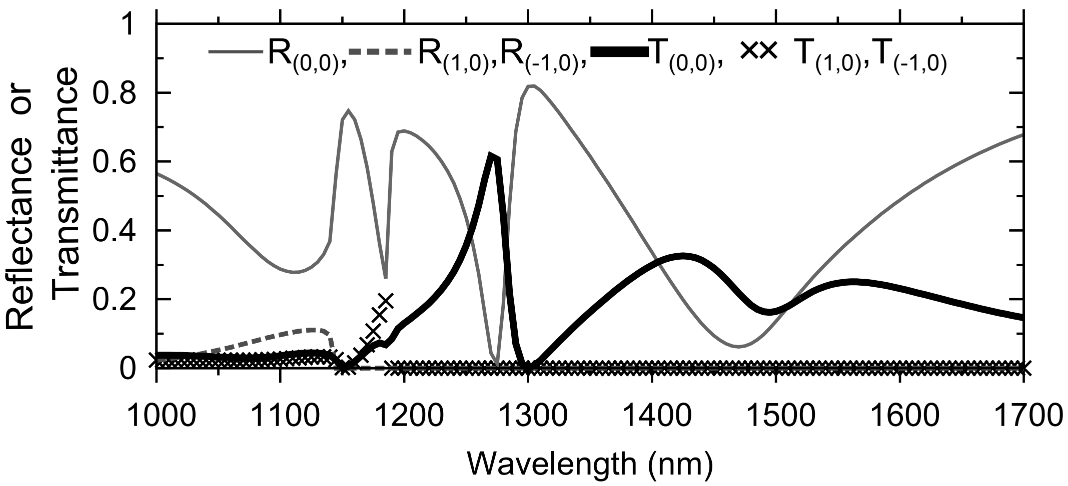

図 4.5　各回折次数における透過率と反射率の計算結果．W2 領域の比誘電率は等方性で，n_L=1.50 を用いて $\epsilon_{W2} = n_L^2$．W1 領域は比誘電率テンソルの対角成分を次のように設定　$(\epsilon_{\mathrm{xx}}, \epsilon_{\mathrm{yy}}, \epsilon_{\mathrm{zz}}) = (1.52^2, 1.52^2, 1.68^2)$.

4.3.5　上部基板を用いた多次回折光の抑制

SHA に接する媒体の比誘電率の z 方向成分に $T_{(0,0)}$ の透過率ディップが依存する事は，外場応答性の液晶材料を用いて透過ディップの位置を調整できる可能性を示している．しかし，図 4.3, 4.4 において 1150 nm から 1330 nm にかけて (s,t) = (1,0), および (s,t) = (-1,0) で表される透過回折光が伝搬性となる事は，その波長において $T_{(0,0)}$ を用いた透過素子を実現するためには，$T_{(0,0)}$ の透過率の減少につながってしまう．本節では上部基

板の比誘電率 (屈折率) を適切に選択する事により，多次の伝搬性透過光の発生を抑制可能である事を, さらには多次の透過回折光が抑制される事で 0 次の透過率 $T_{(0,0)}$ が，該当波長域で図 4.3, 図 4.4 と比較して高くなる事を示す.

図 4.5 は SHA 上部 W1 領域に垂直配向した液晶層が式 4.4 で表される比誘電率で存在し，そして上部基板 W2 領域は, 液晶材料と比較して低屈折率の基板 ($n_L = 1.5$) が選択されたときの，各回折光の透過率および反射率の計算結果を示す．グラフより $T_{(1,0)}$ および $T_{(-1,0)}$ で表される透過率が 1185 nm 付近より長波長で 0 となり，透過回折波が伝搬性から減衰性へと変化していることがわかる．また 1275 nm 付近で $T_{(0,0)}$ が 0.6 となり，図 4.3, 4.4 の同波長の $T_{(0,0)}$ のおよそ 4 倍となっている．この $T_{(0,0)}$ の透過率が大きくなることは，液晶層がサブ波長である為，透過光の回折条件が上部基板の影響を受ける為と考えられる．実際に，1185 nm という波長は，式 4.3 を用いて，$n_L = 1.5$ で屈折率が表される媒体に対して (s,t) = (1,0), および (s,t) = (-1,0) で表される透過回折光が伝搬性の条件を満たさなくなり，減衰性となる条件に相当する．結果として，(s,t) = (1,0), および (s,t) = (-1,0) で表される透過回折光は上部基板により抑制され，0 次の透過率が高まった事が確かめられた.

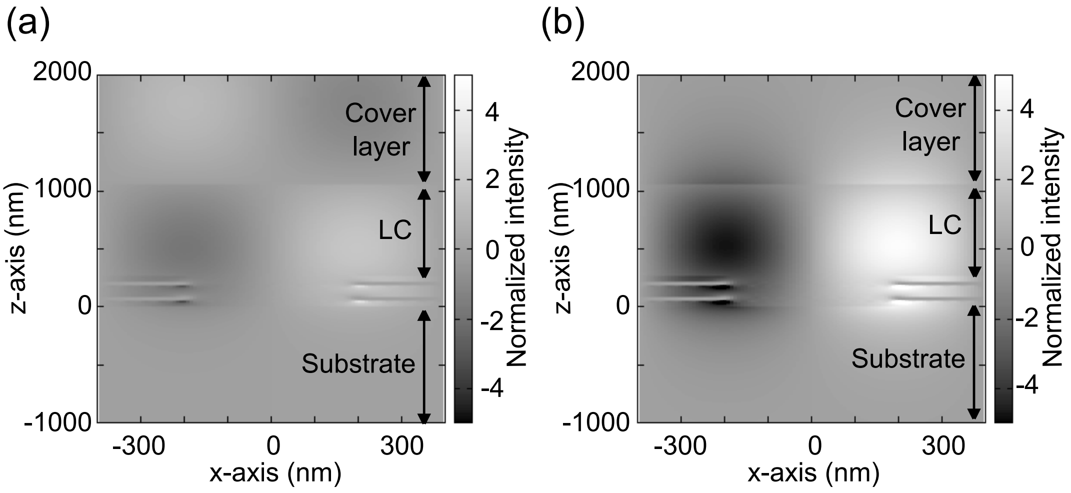

図 4.6 $y = 0$, における xz 平面の電場の z 成分 (入射電場と比較した増強度で表示). 計算波長は 1275 nm. (a), (b) はそれぞれ図 4.3 , 図 4.5 に相当.

図 4.6 は図 4.3, 4.5 の素子構成で $\lambda = 1275$ nm における，電場の z 成分 E_z の $y = 0$ における xz 平面での分布を示している．これより，多次の透過回折光が生じている図 4.6(a) においては顕著な増強は起きていないことがわかる．一方，多次の透過回折光が抑制され 0 次の透過光に効率的に結合した図 4.6(b) においては入射光の電場を 1 とした時に，約 5 倍の電場増強が起きている事が見て取れる．この金属に近接する誘電体層における電場増強には SPP が関与している事が予想される．SPP による電場増強度に関し

ては参考文献 [29] において議論され，増強度は次式で表現される．

$$\left|\frac{E_{SP}}{E_0}\right|^2 = \frac{2\epsilon_2'^2 A}{\epsilon_1^{1/2}\epsilon_2''(-\epsilon_2' - \epsilon_1)^{1/2}}, \tag{4.5}$$

ここで ϵ_1 は金属に接する誘電体の比誘電率を，$\epsilon_2 = \epsilon_2' + i\epsilon_2''$ は金属の比誘電率を表す．A は数値計算からもとまるナノ構造による吸収を表す．各回折次数の反射率の合計値 R と，透過率の合計値 T よりキルヒホッフの熱輻射則を用い $A = 1 - R - T$ で表される [30]．図 4.5 における $\lambda = 1275$ nm で数値計算から求めた A と，Al の比誘電率 (**付録 B** 参照) を用いて，式 4.5 から増強度 $|E_{SP}/E_0|$ を計算すると 5.18 となる．この値は先ほど図 4.6(b) で E_z の増強度で示した値 (約 5) と良い一致を得ている．以上の議論より，W1 領域に正の誘電異方性をもつ一軸異方性液晶を適用し，ダイレクタ方向を金属面と垂直方向とし，上部基板 (W2 領域) の比誘電率を，液晶の金属面に垂直方向の比誘電率よりも小さくする事で，多次の回折光を抑制し，0 次光に効率的に入射光を結合させうる波長領域を設けられることが明らかになった．

4.4　素子の作製と評価方法

本節においては，前節において計算で示した SHA の透過特性を実験的に示す．前節において, 多次の透過回折光を抑制し，0 次透過光の効率を高めた素子の構成は，SHA 上に垂直配向の液晶層を設け，その上部に屈折率の低い基板を設置するものであった。ここで先の節で設定した上部基板の屈折率 1.5 という値は，代表的な光学ガラスである Schott 社製の BK7 の屈折率に相当する．よって前節において計算で示した特性は，実験的に再現する事が可能である．本節においては，SHA 上部に垂直配向液晶層を設け，BK7 光学ガラスで封止した構造を作製し，環境温度を変化させ顕微分光による光学測定を行った．

本節で検証する構造，つまり図 4.1 で示した素子は，前章までのプロセスと同様の手順により作製した．ここでは SHA 素子の作製については簡単に記述し，垂直配向液晶層の形成と上部低屈折率基板による封止に関して詳細に記述する．SHA 構造は積層膜の形成，電子線描画法によるナノパターンの形成，ドライエッチングによるレジストパターンの転写の手順で行った．積層膜はスパッタ法により SiO_2 と Al を交互にそれぞれ 3 層および 2 層積層し，それぞれの膜厚は基板側から 50, 30, 100, 30, 50 nm のトータル 260 nm である．電子線描画レジストに格子周期 $a = 790$nm, 一辺 $a/2$ の正方形穴のパターンを形成し，ドライエッチング法により積層膜にナノホールパターンを形成した．

液晶層の配向は，下地の基板の表面処理や凹凸形状により配向が影響を受けることが知られている [31]．そこで本研究では SHA 表面と，上部基板の液晶に接する側に適切な表面処理を施すことで，液晶相の垂直配向を実現させた．まず SHA の表面処理について記

述する．方法は文献 [5] に従い，フッ素系シランカップリング剤による疎水処理を適用した．以下に手順を示す．

1. SHA の最表面は SiO_2 もしくは Al の自然酸化膜である．シランカップリング処理により表面にシランカップリング剤を結合させる為に，紫外線オゾン処理により表面の親水化を行った．
2. 窒素雰囲気下のドライボックス中に, ホットプレートを設置し SHA 素子を乗せ，150°C に保った．
3. ドライボックス中で，ホットプレートから離れた位置のシャーレ中にフッ素系シランカップリング剤 (1H,1H,2H,2H-Perfluoro decyltrichlorosilane) を滴下し，気相に蒸発したシランカップリング剤により SHA 素子の表面処理を行った．シランカップリング剤の Si-Cl 結合と, SHA 表面の水酸基の間で脱水反応が生じ，シランカップリング剤は SHA 表面に化学結合する．ここでドライボックス中を窒素雰囲気に保つ理由は，反応性の高いシランカップリング剤が空気中の水分と反応，脱水縮合により高分子化し，コンタミネーションするのを防ぐ為である．
4. 一定時間経過後，表面処理を行った SHA 素子はドライボックス中でトルエンで洗浄した後，窒素ブローによる乾燥処理を行い．空気中に取り出した．

対向する上部基板の垂直配向処理は，市販のポリイミド系垂直配向材 (JSR 社製，JALS-2012-R2) 溶液を用い，スピンコート法により適用した．

SHA 素子と上部基板を近接させたセル構造の作製は，形成する液晶層の厚みが 800 nm と非常に薄いことからスペーサを使用せず、直接 SHA 素子と上部基板を押し付けた後，紫外線硬化型の接着剤により固定を行った．作製したセル間隔は，基板がむき出しになった領域を用い，透過スペクトルを測定することで求めた．これは既知の屈折率を持つ石英基板と上部基板 (BK7) で挟まれた空気層のスペクトルを測定することになり，その透過ピーク及びディップ位置から空気層の厚みが求まる．実験および計算から得られたスペクトルによりフィッティングを行った基板間の距離は 1040 nm であった．ここから積層膜の厚み 260 nm を減ずると，SHA 構造と上部基板間の液晶層の厚みは 780 nm となり，ほぼ設計通りの構造が作製された．

作製したセル構造をホットプレート上で 40°C で保ち，セル側部よりネマチック液晶 (Merch 社製 5CB, 4-pentyl-4'-cyanobiphenyl) を毛細管現象を利用し行き渡らせ，その後徐々に降温することで測定用の素子を作製した．

作製した光学セルの液晶配向は，温度調整機能を設けた光学ステージを有する顕微鏡を用い確認した．ステージ温度を 25°C で保持し，SHA の透過光を観察し，液晶の垂直配向を次の 2 種類の観察結果より確認した [5]．(i) 偏光子と検光子を直交配置したクロスニコル配置における透過光の消失，(ii) 透過光のコノスコープ観察より十字暗線 (アイソジャ

イア) を観察し，十字線の交点は瞳面の中心に位置することを確認した [32, 33]．ここで 25°C という温度は，使用した液晶の液晶相から等方相への相転移温度 35°C よりも低い温度であり，液晶材料 5CB はネマチック相を示す．

4.5　実験結果と考察

本節においては，作製したセル構造を用い，顕微分光により透過スペクトルを測定し，前節で得られた計算値との比較を行った．

透過スペクトルの結果を示す前に，実際に作製した SHA 構造の断面の透過型電子顕微鏡 (TEM) 写真を示す (図 4.7)．断面 TEM は，作製した構造にタングステンを充填後，FIB で切り出し観察を行った．その為，図で黒色領域はタングステンが充填された領域に相当し，電子が透過しない領域にあたる．断面観察より，作製した構造は石英基板部分が余分にエッチングされていることがわかる．素子の作製と評価の際に，危惧されるのは，交互に行う SiO_2 と Al のエッチングの際に，Al のエッチングが不十分で，金属ナノホールが貫通されないことである．その為，本素子においては金属層のエッチング時間を長めに取り，十分に金属ナノホールが形成されるように配慮した．そのため石英基板のオーバーエッチングが生じたものである．なお，石英基板のオーバーエッチングが，素子の透過特性にほとんど影響を及ぼさないことは，事前に数値計算にて確認済みである．

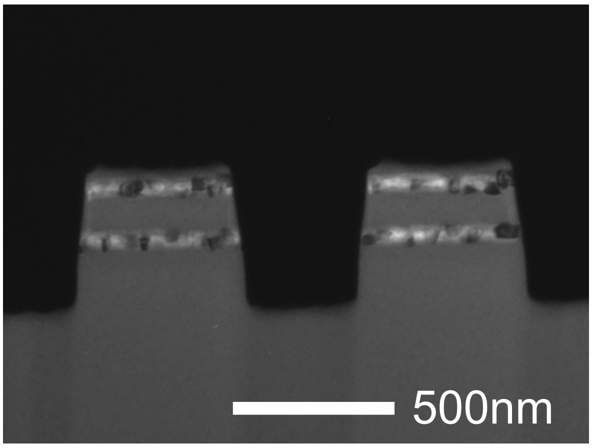

図 4.7　作製した SHA 構造の液晶導入前の TEM 写真

図 4.8(a) に, 液晶を導入した構造の 25°C における 0 次透過光のスペクトルを示す．プロットは実験結果を，実線はナノホールの側壁傾斜が垂直であると仮定した際の，計算による 0 次の透過スペクトルを示す．計算と実験結果は波長 1500 nm 以下の波長で，スペクトルの特徴に関し良い一致を見ており，1150 nm と 1280 nm のディップ，および二つのディップに挟まれた透過ピークも観察された．

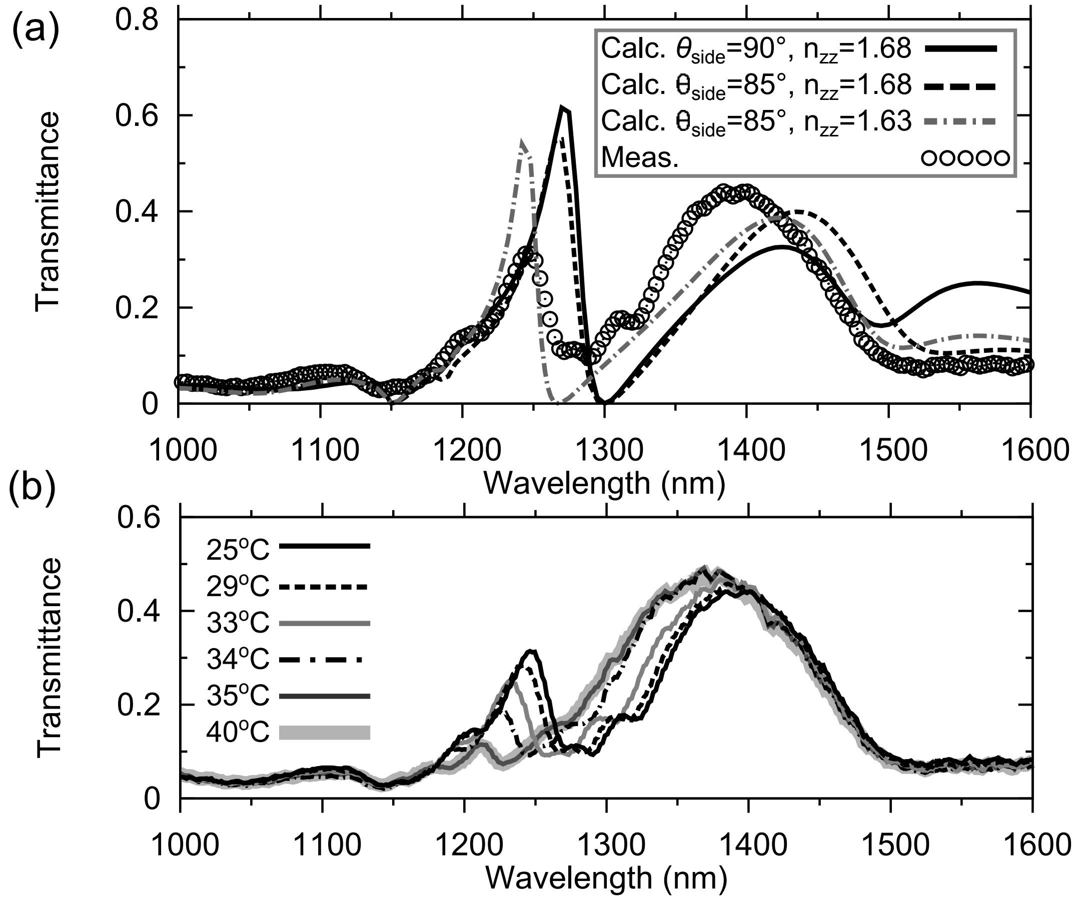

図 4.8 液晶装荷 SHA 構造の透過率の実測値 (meas.) と計算値 (calc.). 測定温度は 25°C. (b) 様々な温度での液晶装荷 SHA 構造の透過スペクトル.

実験と計算において 1300 nm 付近のディップ位置のずれは，主に液晶の局所配向の影響であると考えられる．今回，計算には液晶の垂直配向を仮定し，x, y, z それぞれの方向の比誘電率を n_o^2, n_o^2, n_e^2 と設定した．しかし，参考文献 [31] に見られるように，液晶の配向は下地の形状に強く影響を受ける．さらには参考文献 [34] で議論されているように，微細構造が数 μm より微細である場合には，液晶の配向は周囲の微細構造の影響を強く受けるようになる．そのため，偏光顕微鏡によるマクロな観察では，垂直配向しているように見えた今回の素子も，実際にはナノホール近傍で配向乱れが予想され，その影響がスペクトルのずれとして観察されたものと考えられる．

また，実験と計算の乖離はおよそ波長 1500 nm 以上の領域において顕著に観察された．実験においては波長 1500 nm 以上で，透過率はフラットになりほとんど透過していない，しかし側壁傾斜が垂直と仮定した計算結果では，波長 1500 nm 以上で透過率は極大値を持つ．この透過の極大値は gap-SPP 由来の透過と考えられ，**第 2 章**で検討したように，ナノホールの側壁傾斜に強く影響を受けるはずである．実際に側壁傾斜として図 4.7 から

得られる 85 度を仮定した計算結果を破線としてグラフに重畳すると，そのスペクトルは波長 1500 nm 近傍より長波長において，フラットに低い透過率を示している．このことから波長 1500 nm より長波長の実験と計算のずれはナノホール構造の側壁傾斜に由来していることが示唆される．

図 4.8(a) の一点鎖線は液晶の局所配向の乱れにより金属面に垂直方向の比誘電率が低下したと仮定し，更に側壁の傾斜を仮定した際の 0 次の透過効率の計算値を示す．計算値は実験値とよく一致している．1250 nm 付近の透過ピークが計算値ほど実験値が大きくない理由については，液晶の局所配向がどのようになっているかを計算等により詳細に検討する必要がある [35].

次に図 4.8(b) に, 温度調整ステージにより液晶の温度を調整し, 測定した 0 次の透過スペクトルを示す．測定は 25°C から温度調整ステージの温度を 40°C まで，相転移温度である 35°C を挟んで昇温させ行った．液晶の屈折率は相転移温度に近づくにつれ，常光屈折率 n_o と異常光屈折率 n_e の差が小さくなり，最終的に両者が等方相の屈折率と等しくなる [32]．その為，昇温とともに屈折率 (比誘電率) の異方性が減少し，z 方向の比誘電率が減少し，波長 1300 nm 近傍にあった透過ディップが短波長側にシフトすることが予想される．実際に実験により得られた透過スペクトルを見ると，透過ディップは短波長側にシフトし，二つの透過ディップに挟まれた透過ピークの極大値は小さくなっていくことが観察された．

以上より次の二つのことが言える．(i) 液晶の相転移温度付近での温度変化により，液晶の比誘電率異方性が変化し，それに由来し透過ディップのシフトが生じる．(ii) 基板の比誘電率とサブ波長厚液晶の比誘電率の z 方向成分に起因する二つの透過ディップに挟まれた狭い透過スペクトルの極大値は，常光屈折率と異常光屈折率の差が大きな液晶材料を用いることで高透過率となる．

ここまで垂直配向した液晶層と，上部低屈折率基板を用いて，多次回折光を抑制し 0 次光に効率よく結合できることをみてきた．サンプル温度を液晶材料の相転移点を挟んで変化させることで，液晶材料の比誘電率異方性が変化しスペクトルの透過ディップ位置のシフトという形で，スペクトル形状を変化させることが可能となる．比較的狭帯域の透過スペクトルが得られることから，可変のスペクトルフィルタとしての応用が考えられる．しかし，単純に可変の狭帯域透過フィルタというのであれば，液晶材料と Fabry-Perot 共鳴を利用した干渉フィルタ [36] の方が, より狭帯域かつ高透過率のフィルタを実現できる．その為，今回検討したサブ波長厚の液晶と SHA 構造を組み合わせた構造は，新規な素子構造を提案できたものの，特性としては既存の素子の置き換えとなるようなものは実現できていない．特に図 4.5 のスペクトルにおいて，数値計算から予測される透過率の最大値が 0.6 程度では既存の素子の置き換えは難しい．

ここまで実際の作製を考慮し，現在の加工プロセスで十分に作製可能な材料，素子構成

での検討結果を示してきた．透過率の最大値が 0.6 程度にとどまっている要因は，金属の損失に起因する．今回金属としては Al を用いた，これは一般的にプラズモニクス材料として用いられる金や銀よりも，積層ナノホール構造の加工が容易な為である．本章で検討した構造において, Al を銀に置き換えると, 数値計算から示される透過率の最大値は 0.7 程度となる．上記既存素子 [36] は透過率で 0.9 以上が得られていることから, たとえ本研究の素子に銀を用いたとしても透過率ではかなわない．現在，赤外領域のプラズモニクス材料としては，近赤外領域では透明金属酸化物もしくは窒化物材料 [37]，中赤外領域ではグラフェン等の二次元材料の探索が行われており [38], 今後の材料探索により低損失な金属材料が得られれば, 本研究で検討を行った素子構造により高透過率な素子が実現できる可能性がある．

4.6　既存研究との比較

本章においては，金属ナノホール構造とサブ波長厚の液晶を組み合わせ，液晶上部基板の比誘電率を適切に選択することで，垂直入射光が 0 次透過光に効率的に結合する素子の提案を行ってきた．

金属ナノホールの透過現象には SPP が関与しており，SPP に由来する電磁場は金属表面から指数関数的に減衰する．よって金属ナノホール構造上部に液晶材料を装荷した際，比誘電率もしくは比誘電率異方性の変化で重要な意味を持つのは，金属表面からサブ波長の領域である．そのため，本章で提案を行った素子は，金属ナノホール構造と液晶を組み合わせた既存の研究，つまり金属ナノホール上部に入射光の波長より十分厚い液晶層を設けた研究例 [7,8] や，液晶材料を金属ナノホール構造の穴内部のみに充填した研究例 [6] と比較して，金属ナノホール構造の透過原理をより有効に活用した素子構成であるといえる．

また応用展開として液晶分子配列の電場制御を考えた場合，液晶層の厚みをサブ波長程度と薄く出来ることは，駆動電圧の低下，応答速度の向上につながる．垂直配向液晶の電圧印加による立下り時間 t_{decay}, 立上がり時間 t_{rise} は次のように表される [39].

$$t_{decay} = \frac{\gamma}{k_{eff}} \left(\frac{d}{\pi} \right)^2 \tag{4.6}$$

$$t_{rise} = \frac{\gamma d^2}{\Delta\epsilon \left(V - V_{c3} \right)^2} \tag{4.7}$$

ここで γ は回転に関する粘性係数を，d は対向する電極に挟まれた液晶層の厚みを，k_{eff} は実効的な弾性定数を，$\Delta\epsilon$ は誘電率異方性を, V は印加電圧を，V_{c3} は垂直配向液晶の閾値電圧を表す．立下り，立上がり時間共に電極間距離 d の二乗に比例することから，液晶層を薄くできることは素子の高速駆動につながる．

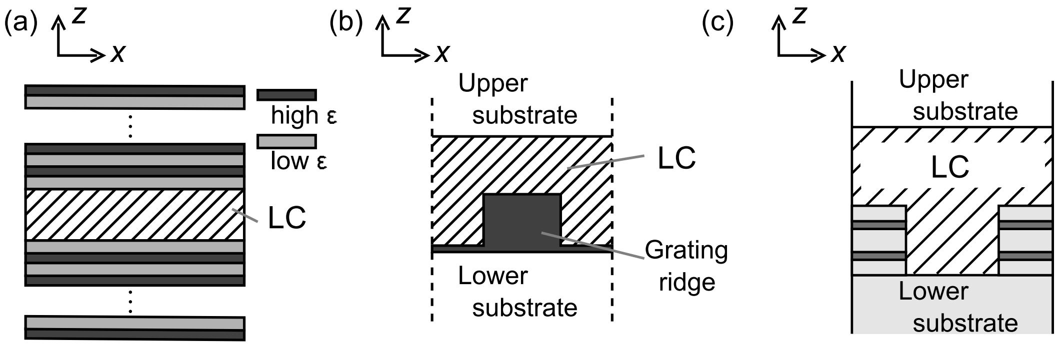

図 4.9　(a) 液晶を用いた Fabry-Perot 干渉フィルタの模式図, (b) 液晶とグレーティングを組み合わせた素子の一周期分の模式図, (c) 本章で提案した構造の模式図 (図 4.1(b) に同じ).

次に金属ナノホール構造以外の素子構造と液晶を組み合わせた研究との比較を行う．液晶と微細構造，もしくはサブ波長積層膜を組み合わせた高透過率もしくは高反射率な波長選択素子の研究としては，たとえば図 4.9 に示すように，Fabry-Perot 干渉を用いた素子 (図 4.9(a)) や [36, 40]，誘電体グレーティングと組み合わせた研究 (図 4.9(b)) [1, 41] がある．どちらも 0.9 以上の透過率を有し, 本研究で検討した液晶装荷 SHA 構造より透過率に優れる．

Fabry-Perot 干渉を用いた液晶のスペクトルフィルタは，図 4.9(a) で濃い灰色で示した高誘電率の誘電体層と，薄い灰色で示した低誘電率の誘電体層を交互に積層した構造により液晶層を挟んだ構造からなる．高誘電率層を H, 低誘電率層を L と表記し，液晶層を C で表すと積層膜の構成は $(HL)_pC(LH)_q$ と表記される．p, q は繰り返しの数を表す．H 層，L 層の各層の厚みは光学長で $\lambda/4$ である．液晶とグレーティングを組み合わせた構造は，図 4.9(b) に示すように，下部基板上に高誘電率誘電体の周期リッジが存在し，そのリッジ間および上部基板との間に液晶層が存在する．

素子の高速駆動という観点から，液晶層の厚みについて比較を行う．文献中に記載の液晶層の厚み d_{LC} を対象波長で規格化した d_{LC}/λ は, それぞれ Fabry-Perot 干渉フィルタで $d_{LC}/\lambda = 818$ [36], $d_{LC}/\lambda = 7.3$ [40], グレーティング構造において $d_{LC}/\lambda = 7.91$ [41], $d_{LC}/\lambda = 4.16$ [1] である．

本研究で用いた素子の液晶層の厚みは，設計波長を 1275 nm とすると，$d_{LC}/\lambda = 0.63$ となり，上記の構成と比較するとおよそ六分の一以下となる．つまり電場を用いた液晶駆動において, 立上がり，立下りの応答速度が式 4.6, 4.7 より, 36 倍以上速くできることになる．もちろん素子の応答速度は, 使用する液晶材料の特性, 印加電圧, 電極配置等に依存し, 一概に液晶層の厚みのみから, 定量的に応答速度を示すことはできない．しかし, 本研究で提案した金属ナノホール構造とサブ波長厚の液晶層を組み合わせた透過素子は, 液晶

層の厚みを既存素子と比較して大幅に薄く出来ることから, 高速な透過制御素子を実現できる可能性がある.

4.7　まとめ

本章においては，サブ波長厚の液晶と SHA 構造を組み合わせた素子の透過メカニズムを明らかにし，新規な素子構造の提案を行った．本章における結果をまとめると以下の通りである

1) 0 次の透過率のディップは，多次特に本章では x 方向に ± 1 次の透過もしくは反射回折波が伝搬性から減衰性に変化する波長に相当し，それは SHA 構造に接する媒体の金属面に垂直方向の比誘電率に依存する．

2) サブ波長厚液晶として正の誘電異方性をもつ一軸異方性液晶を適用し，金属面に垂直方向 (本研究では z 方向) にダイレクタ方向をとり，上部等方性封止基板の比誘電率を液晶の z 方向の比誘電率より小さくする事で，多次光を抑制し，0 次透過光に効率的に入射光を結合させうる波長域を設定する事が可能となる．

3) サブ波長厚液晶と上部低比誘電率封止基板をもつ SHA 構造のサンプル温度を液晶の相転移温度を挟み，温度変化させることで，液晶の金属面に垂直方向の比誘電率を減少させ，液晶に由来する透過ディップ波長のシフトを実験的に確認した．

4) 既存素子と比較して液晶層の厚みを対象波長比で薄く出来ることから, 素子を電場により駆動する際の立上がり時間, 立下り時間を高速化できる可能性がある．

参考文献

[1] M. L. Jepsen and H. J. Gerritsen, “Liquid-crystal-filled gratings with high diffraction efficiency,” Optics Letters **21**, 1081–1083 (1996).

[2] M. Ozaki, Y. Shimoda, M. Kasano, and K. Yoshino, “Electric field tuning of the stop band in a liquid-crystal-infiltrated polymer inverse opal,” Advanced Materials **14**, 514–518 (2002).

[3] S. Xiao, U. K. Chettiar, A. V. Kildishev, V. Drachev, I. Khoo, and V. M. Shalaev, “Tunable magnetic response of metamaterials,” Applied Physics Letters **95**, 033115 (2009).

[4] M. Decker, C. Kremers, A. Minovich, I. Staude, A. E. Miroshnichenko, D. Chigrin, D. N. Neshev, C. Jagadish, and Y. S. Kivshar, “Electro-optical switching by liquid-crystal controlled metasurfaces,” Optics Express **21**, 8879–8885 (2013).

[5] H. Yoshida, T. Matsui, A. Miura, N. Ikeda, M. Ochiai, Y. Sugimoto, H. Fujikawa,

and M. Ozaki, "Uniform liquid crystal alignment on metallic nanohole arrays by vapor-phase deposition of silane coupling agent," Optical Materials Express **2**, 893–899 (2012).

[6] A. Minovich, D. N. Neshev, D. A. Powell, I. V. Shadrivov, and Y. S. Kivshar, "Tunable fishnet metamaterials infiltrated by liquid crystals," Applied Physics Letters **96**, 193103 (2010).

[7] T. J. Kim, T. Thio, T. W. Ebbesen, D. Grupp, and H. J. Lezec, "Control of optical transmission through metals perforated with subwavelength hole arrays," Optics Letters **24**, 256–258 (1999).

[8] W. Dickson, G. A. Wurtz, P. R. Evans, R. J. Pollard, and A. V. Zayats, "Electronically controlled surface plasmon dispersion and optical transmission through metallic hole arrays using liquid crystal," Nano Letters **8**, 281–286 (2008).

[9] M. Moharam and T. Gaylord, "Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating diffraction," Journal of Optical Society of America **71**, 811–818 (1981).

[10] M. Moharam and T. K. Gaylord, "Diffraction analysis of dielectric surface-relief gratings," Journal of Optical Society of America A **72**, 1385–1392 (1982).

[11] P. Lalanne and G. M. Morris, "Highly improved convergence of the coupled-wave method for TM polarization," Journal of Optical Society of America A **13**, 779–784 (1996).

[12] L. Li, "Use of Fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures," Journal of Optical Society of America A **13**, 1870–1876 (1996).

[13] M. Moharam, E. B. Grann, D. A. Pommet, and T. Gaylord, "Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings," Journal of Optical Society of America A **12**, 1068–1076 (1995).

[14] L. Li, "Fourier modal method for crossed anisotropic gratings with arbitrary permittivity and permeability tensors," Journal of Optics A: Pure and Applied Optics **5**, 345 (2003).

[15] T. Weiss, N. Gippius, S. Tikhodeev, G. Granet, and H. Giessen, "Efficient calculation of the optical properties of stacked metamaterials with a Fourier modal method," Journal of Optics A: Pure and Applied Optics **11**, 114019 (2009).

[16] M. Nevière and E. Popov, *Light Propagation in Periodic Media: Differential Theory and Design* (CRC Press, 2002).

[17] M. Moharam and A. B. Greenwell, "Efficient rigorous calculations of power flow in grating coupled surface-emitting devices," in "Photonics Europe," (International Society for Optics and Photonics, 2004), pp. 57–67.

[18] H. Kim, B. Lee, and J. Park, *Fourier Modal Method and Its Applications in Computational Nanophotonics* (CRC Press, 2012).

[19] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, C. Soukoulis, and S. Linden, "Low-loss negative-index metamaterial at telecommunication wavelengths," Optics Letters **31**, 1800–1802 (2006).

[20] P. Bouchon, F. Pardo, B. Portier, L. Ferlazzo, P. Ghenuche, G. Dagher, C. Dupuis, N. Bardou, R. Haïdar, and J.-L. Pelouard, "Total funneling of light in high aspect ratio plasmonic nanoresonators," Applied Physics Letters **98**, 191109 (2011).

[21] P. Bouchon, C. Koechlin, F. Pardo, R. Haïdar, and J.-L. Pelouard, "Wideband omnidirectional infrared absorber with a patchwork of plasmonic nanoantennas," Optics Letters **37**, 1038–1040 (2012).

[22] X. Wang, D. Wilson, R. Muller, P. Maker, and D. Psaltis, "Liquid-crystal blazed-grating beam deflector," Applied Optics **39**, 6545–6555 (2000).

[23] C. F. Mateus, M. C. Huang, Y. Deng, A. R. Neureuther, and C. J. Chang-Hasnain, "Ultrabroadband mirror using low-index cladded subwavelength grating," IEEE Photonics Technology Letters **16**, 518–520 (2004).

[24] P. Lalanne, J. P. Hugonin, and P. Chavel, "Optical properties of deep lamellar gratings: a coupled bloch-mode insight," Journal of Lightwave Technology **24**, 2442 (2006).

[25] T. Schuster, J. Ruoff, N. Kerwien, S. Rafler, and W. Osten, "Normal vector method for convergence improvement using the RCWA for crossed gratings," Journal of Optical Society of America A **24**, 2880–2890 (2007).

[26] S. Fan and J. Joannopoulos, "Analysis of guided resonances in photonic crystal slabs," Physical Review B **65**, 235112 (2002).

[27] H. Iizuka, N. Engheta, H. Fujikawa, K. Sato, and Y. Takeda, "Role of propagating modes in a double-groove grating with a +1st-order diffraction angle larger than the substrate–air critical angle," Optics Letters **35**, 3973–3975 (2010).

[28] J. Li and S.-T. Wu, "Extended cauchy equations for the refractive indices of liquid crystals," Journal of Applied Physics **95**, 896–901 (2004).

[29] W. H. Weber and G. Ford, "Optical electric-field enhancement at a metal surface arising from surface-plasmon excitation," Optics Letters **6**, 122–124 (1981).

[30] Max Born and Emil Wolf, 草川徹 (訳), **光学の原理** *III* **第** *7* **版** (東海大学出版会, 2007).

[31] D. W. Berreman, "Solid surface shape and the alignment of an adjacent nematic

liquid crystal," Physical Review Letters **28**, 1683–1686 (1972).

[32] 吉野勝美, 尾崎雅則, **液晶とディスプレイ応用の基礎** (コロナ社, 1994).

[33] 日本液晶学会, **液晶科学実験入門** (シグマ出版, 2007).

[34] P. J. Vanbrabant, J. Beeckman, K. Neyts, E. Willman, and F. A. Fernandez, "Diffraction and fringing field effects in small pixel liquid crystal devices with homeotropic alignment," Journal of Applied Physics **108**, 083104 (2010).

[35] G.-D. Lee, J. Anderson, and P. J. Bos, "Fast Q-tensor method for modeling liquid crystal director configurations with defects," Applied Physics Letters **81**, 3951–3953 (2002).

[36] E.-A. Dorjgotov, A. K. Bhowmik, and P. J. Bos, "Switchable polarization-independent liquid-crystal Fabry-Perot filter," Applied Optics **48**, 74–79 (2009).

[37] P. R. West, S. Ishii, G. V. Naik, N. K. Emani, V. M. Shalaev, and A. Boltasseva, "Searching for better plasmonic materials," Laser & Photonics Reviews **4**, 795–808 (2010).

[38] H. Yan, T. Low, W. Zhu, Y. Wu, M. Feitag, X. Li, F. Guinea, P. Avouris, and F. Xia, "Damping pathways of mid-infrared plasmons in graphene nanostructures," Nature Photonics **7**, 394–399 (2013).

[39] P. Yeh and C. Gu, *Optics of Liquid Cyrstal Displays* (Wiley, 2010).

[40] J. S. Patel, M. A. Saifi, D. W. Berreman, C. Lin, N. Andreadakis, and S. D. Lee, "Electrically tunable optical filter for infrared wavelength using liquid crystals in a Fabry–Perot etalon" Applied physics letters **57**, 1718–1720 (1990).

[41] A. S. P. Chang, H. Tan, S. Bai, W. Wu, Z. Yu, and S. Y. Chou, "Tunable external cavity laser with a liquid-crystal subwavelength resonant grating filter as wavelength-selective mirror," IEEE Photonics Technology Letters **19**, 1099–1101 (2007).

第 5 章

結論

本論文では，特異的な透過現象が注目されている金属と誘電体の積層膜に周期的なナノホールが貫通した金属誘電体積層ナノホール (SHA, Stacked metal-dielectric Hole Array) 構造を対象としてその透過特性，特に SHA 構造上に液晶材料を装荷した素子の透過特性について検討を行った．

本論文で行った提案のうち，特に重要なものをまとめると次の通りとなる．

SHA 構造上にサブ波長厚の液晶材料を装荷した透過制御素子のコンセプトを提案した．SHA 構造の透過には表面プラズモンポラリトンが関与しており，その特性は金属から波長厚程度の領域の比誘電率に影響を受ける．本研究では，SHA 構造上にサブ波長厚の液晶層を装荷した際の，透過特性への影響を検討した．提案を行った素子構造は，SHA 構造と上部封止基板に挟まれたサブ波長厚の液晶層からなる．上部封止基板の比誘電率と，液晶の金属面に垂直方向の比誘電率を適切に選択することで, 0 次の透過光に効率的に入射光を結合可能な波長域が選択できることを明らかにした．また液晶層の厚みをサブ波長程度と薄く出来ることから, 素子を電場により制御する際の高速応答が期待できる．今後，電極パターンによる液晶材料の局所配向制御，液晶材料および金属材料の最適化，更には応用に適した対象波長の検討により，サブ波長厚液晶と SHA 構造を組み合わせた素子の研究および応用検討が加速する事が期待される．

以下に各章の総括をまとめる．

第 1 章　序論では，研究の背景を述べた後，SHA 構造の透過に重要な表面プラズモンポラリトン (SPP) の基本的な特性について記述した．まず SPP が周期構造により励振可能となることを確認した．この周期構造による SPP の励振を用いて，次章以降において SHA 構造と入射光の相互作用周波数を抽出する．続いて，SPP と一軸異方性液晶との相互作用について記述した．ここでは SPP の分散関係が液晶の比誘電率のうち金属面に垂直方向の成分に依存する事が確認された．この SPP の特性に液晶の金属面に垂直方向の

比誘電率成分が影響を及ぼすということを用いて，**第 4 章**では SHA 構造上にサブ波長液晶層を設けた素子の透過メカニズムについて検討をおこなった．

第 2 章　金属誘電体積層ナノホールの設計では SHA 構造の解析, 加工, 評価に必要となる手法の確立を行った．まず SHA 構造の透過特性に変化が生じる波長ないし周波数を, SHA 構造を構成するレイヤー構造において, 金属誘電体界面を伝搬する表面プラズモンポラリトン (SPP) の分散関係より見積もった．次に分散関係より予測した SHA 構造と入射光が相互作用を生じると予想される周波数近傍での透過特性を, 数値計算によりみてきた．計算を行った構造は, 電子線描画法とドライエッチング法により作製を行った．第 2 章では，SHA 構造の入射波長変化に対する透過位相の変化の大きさ，つまりは分散が穴形状に依存することを確かめた．穴形状としては格子周期 (格子は正方格子) の半分の直径を持つ円形穴と，格子周期の半分の一辺を持つ正方形穴の SHA 構造を検討し，円形穴をもつ SHA のほうが，より分散が大きいことが確かめられた．分散の測定，つまり透過位相の波長 (周波数) 依存性の評価には，波長可変レーザーと Mach-Zehnder 干渉計を組み合わせた二光束干渉顕微鏡を構築し用いた．また周期構造が打ち切りとなる構造の端部から，測定位置を変化させた透過率測定より，SHA 構造の透過率は電場方向に十分な周期構造が配列することで，一定値となることが確認された．

第 3 章　形状遷移金属誘電体積層ナノホール構造では特異的な透過現象が注目されている SHA 構造の局所位相変調素子への応用可能性を検討した．本章では前章で得られた，SHA 構造の透過特性の分散はナノホール形状に依存するという結果を用いて，同一面内でナノホール形状が徐々に変化する構造により，構造部を透過した光の波面を傾斜させる素子の検討を行った．まずナノホール形状として長方形穴を採用し，長方形穴を持つ SHA 構造の分散は，入射直線偏向の電場方向に直行する方向の穴幅に依存することを確認した．この長方形穴を持つ SHA 構造を用い，入射直線偏向の電場方向には同一形状の長方形穴のナノホールが配列し，電場方向と直交方向には長方形穴の形状が徐々に変化する形状遷移 SHA 構造を設計し，数値計算と干渉顕微鏡を用いた位相観察による評価を行った．入射光の波長に応じて，形状遷移 SHA 構造を透過する光の面内位相差が変化し，位相観察より等位相面の傾斜変化として確認された．等位相面の傾斜は長波長側で大きくなり，波長 1535nm で位相差は最大 0.6π となった．形状遷移 SHA の遠視野観察を行い波数空間における強度分布のピーク位置シフトを確認した．ピーク位置シフトを角度変化に置き換えると最大 2.75 度であった．これは上記の位相観察における面内位相差 0.6π と開口幅，入射波長を用いて計算した出射角度 2.32 度と比較的良い一致をみた．遠視野測定から明らかになった透過光の拡がり角は，開口幅が小さく回折が生じる為である．回折による拡がりが生じることなく，つまり大開口で，さらに入射光の出射角を偏向させるためには，面内で形成する位相差は最低 2π が必要である．その為，本章で検討を行った構成では，任意のサイズの開口を持ち，拡がり角を抑えて出射角を偏向させることは出来

ず，現在の素子構成では既存技術の対抗となるような透過制御素子の実現は難しいことが明らかになった.

第 4 章　液晶装荷金属誘電体積層ナノホール構造では，SHA 構造の上にサブ波長厚の液晶層と，その上部に封止基板層を設け，SHA 構造の透過特性を数値計算と実験により検討した．SHA 構造上およびナノホール内のサブ波長厚液晶として正の誘電異方性をもつ一軸異方性液晶を適用し，金属面に垂直方向 (本研究では z 方向) にダイレクタ方向をとり，上部封止基板の比誘電率を液晶の z 方向の比誘電率より小さくする事で，多次光を抑制し，0 次透過光に効率的に入射光を結合させる波長域を設定できることが確認された．また，サブ波長厚液晶と上部低比誘電率封止基板をもつ SHA 構造のサンプル温度を液晶の相転移温度を挟み温度変化させることで，液晶の金属面に垂直方向の比誘電率が変化し，液晶に由来する透過ディップがシフトすることを実験的に確認した．また既存素子と比較して液晶層の厚みを対象波長比で薄く出来ることから, 素子を電場により駆動する際の立上がり時間 , 立下り時間を高速化できる可能性について言及した.

謝辞

本論文を結ぶにあたり，終始御親切な御指導と御鞭撻を賜りました大阪大学の尾﨑雅則教授に深甚なる感謝の意とお礼の言葉を申し上げます．

本論文の作成にあたり，御親切な御助言を頂きました大阪大学の栖原敏明教授，大阪大学の故萩行正憲教授に深甚なる感謝の意とお礼の言葉を申し上げます．また著者が大阪大学大学院工学研究科に在学中に御親切な御指導を賜りました，大阪大学の伊藤利道教授，

森勇介教授，片山光浩教授，近藤正彦教授，大森裕教授，八木哲也教授に深甚なる感謝の意とお礼の言葉を申し上げます．

本研究の遂行及び本論文の作成にあたり，終始直接の御親切な御指導と御教示を賜りました大阪大学の藤井彰彦准教授，吉田浩之助教に深甚なる感謝の意とお礼の言葉を申し上げます．

本研究を遂行するにあたり，御親切な御指導と御教示を賜りました物質材料研究機構の宮崎英樹博士に深甚なる感謝の意とお礼の言葉を申し上げます．

本研究を遂行するにあたり，的確な御指導，御助言，御協力を頂きました物質材料研究機構の杉本喜正博士，池田直樹博士，津谷大樹博士，落合雅幸氏，筑波大学の浅川潔教授，(株) 豊田中央研究所の佐藤和夫博士，藤川久喜博士，三浦篤志氏，飯塚英男博士，野村壮史博士，大阪大学大学院後期博士後期課程の小橋淳二氏に深く感謝の意とお礼の言葉を申し上げます．

著者が研究活動を遂行するにあたり，数々の御指導を頂き，また研究生活を過ごす上で大変お世話になりました東北大学の戒能俊邦名誉教授，宇都宮大学の杉原興浩教授，仙台高等専門学校の小松京嗣教授，(株) 豊田中央研究所の各務学博士，伊藤博博士，山下達弥博士，土森正昭氏，竹田康彦博士，森朋彦博士，中尾朱里氏，米村正寿氏，田中宏哉博士，伊藤晃太氏, 大阪大学大学院博士後期過程の東卓也氏，尾﨑研究室秘書の西川千恵子氏，松本光子氏, その他御協力頂きました皆様に深く感謝の意を表します．

最後に，著者の研究活動に惜しむことなく協力してくれた妻 瑞木，娘 陽香に深く感謝の意を表します．

業績

本研究に関連する学術論文

- T. Matsui, H. Yoshida, A. Miura, J. Kobashi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, and M. Ozaki, "Tunable enhanced 0th order transmission in a metal-dielectric hole array coverd with a sub-wavelength liquid crystal layer," *Opt. Lett.* **39,** 1262-1265 (2014).
- T. Matsui, T. Nomura, A. Miura, H. Fujikawa, N. Ikeda, D. Tsuya, H. T. Miyazeki, Y. Sugimoto, M. Ozaki, M. Hangyo, and K. Asakawa, "Wavefront control by stacked metal-dielectric hole array with variable hole shapes," *Opt. Express* **21,** 6153-6161 (2013).
- T. Matsui, H. T. Miyazeki, A. Miura, T. Nomura, H. Fujikawa, K. Sato, N. Ikeda, D. Tsuya, M. Ochiai, Y. Sugimoto, M. Ozaki, M. Hangyo, and K. Asakawa, "Transmission phase control by stacked metal-dielectric hole array with two-dimensional geometric design," *Opt. Express* **20,** 16092-16103 (2012).
- J. Kobashi, H. Yoshida, T. Matsui, A. Miura, N. Ikeda, Y. Sugimoto, H. Fujikawa, and M. Ozaki, "Optical tuning of extraordinary optical transmission through a metallic hole array using azobenzene dye-doped nematic liquid crystal," *Jpn. J. Appl. Phys.* **53,** 01AE02 (2014).
- H. Yoshida, T. Matsui, A. Miura, N. Ikeda, M. Ochiai, Y. Sugimoto, H. Fujikawa, and M. Ozaki, "Uniform liquid crystal alignment on metallic nanohole arrays by vapor-phase deposition of silane coupling agent," *Opt. Mater. Express.* **7,** 893-899 (2012).

その他の学術論文

- T. Matsui, S. Yamashita, H. Fujikawa, H. Wado, and H. Iizuka, "Flat grating lens utilizing widely variable transmission-phase via guided-modes," *Opt. Lett.* **40,** 25–28 (2015).
- T. Matsui, A. Miura, N. Ikeda, H. Fujikawa, Y. Sugimoto, N. Engheta, and H. Iizuka, "Experimental investigation of double-groove grating satisfying total internal reflection condition," *Opt. Express* **22,** 25362 (2014).
- K. Ito, T. Matsui, and H. Iizuka, "Thermal emission control by evanescent wave coupling between guided mode of resonant grating and surface phonon polariton on silicon carbide plate," *Appl. Phys. Lett.* **104,** 051127 (2014).
- K. Asakawa, Y. Sugimoto, N. Ikeda, D. Tsuya, Y. Koide, Y. Watanabe, N. Ozaki, S. Ohkouchi, T. Nomura, D. Inoue, T. Matsui, A. Miura, H. Fujikawa, and K. Sato, "Nanophotonics Based on Semiconductor-Photonic Crystal/Quantum Dot and Metal-/Semiconductor-Plasmonics," *IEICE Trans. Electron.* **E95,** 178-187 (2012).
- B. Cai, K. Komatsu, O. Sugihara, M. Kagami, M. Tsuchimori, T. Matsui, and T. Kaino "A three-dimensional polymeric optical circuit fabrication using a femtosecond laser-assisted self-written waveguide technique," *Appl. Phys. Lett.* **92,** 253302 (2008).
- M. Kagami, T. Yamashita, M. Yonemura, and T. Matsui, "Light-induced self-written optical waveguide," *IEICE Trans. Electron.* **E90C,** 1061-1070 (2007).
- T. Matsui, T. Yamashita, and M. Kagami, "Improvement in positioning accuracy of light-induced self-written polymeric optical waveguide using an optical solder effect," *Jpn. J. Appl. Phys.* **45,** L1033-L1035 (2006).
- T. Matsui, K. Komatsu, O. Sugihara, and T. Kaino, "Simple process for fabricating a monolithic polymer optical waveguide," *Opt. Lett.* **30,** 970-972 (2005).
- T. Matsui, K. Komatsu, O. Sugihara, and T. Kaino, "A Novel Serially Grafted Polymer Optical Waveguide," *Nonlinear Optics. Quantum Optics* **34,** 83-86 (2005).

本研究に関連する国際学会発表

- 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*, Poster session I (63), Copenhagen, Denmark (Aug. 2014).
- J. Kobashi, H. Yoshida, T. Matsui, A. Miura, N. Ikeda, Y. Sugimoto, H. Fujikawa, and M. Ozaki, "Optical tuning of extraordinary optical transmission in a nematic liquid crystal-infiltrated metallic hole array," 25^{th} *International Liquid Crystal Conference*, 240, Dublin, Ireland (Jun. 2014).
- J. Kobashi, H. Yoshida, T. Matsui, N. Ikeda, Y. Sugimoto, and M. Ozaki, "Photo-tunable extraordinary optical transmission in a liquid crystal-infiltrated metallic nanohole array," 7^{th} *International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics*, C-P9, Fukuoka, Japan (Nov. 2013).
- T. Matsui, A. Miura, T. Nomura, H. Fujikawa, K. Sato, N. Ikeda, D. Tsuya, M. Ochiai, H. T. Miyazaki, and Y. Sugimoto, "Formation of inclined wavefront through planar stacked hole array," *EOS Annual Meeting 2012*, TOM3_5903_033, Aberdeen, Scotland, UK (Sep. 2012).
- T. Matsui, A. Miura, T. Nomura, H. Fujikawa, K. Sato, N. Ikeda, D. Tsuya, M. Ochiai, Y. Sugimoto, H. T. Miyazaki, M. Ozaki, M. Hangyo, and K. Asakawa, "Phase measurement interferometric microscopy of stacked fishnet metamaterials", *Proc. SPIE 8269, Photonic and Photonic Properties of Engineered Nanostructures II,* 82692P, San Francisco, USA (Jan. 2012)
- H. Yoshida, T. Matsui, A. Miura, H. Fujikawa, and M. Ozaki, "Uniform homeotropic alignment of liquid crystals on metallic nanohole arrays by vapor-phase deposition on a fluorosilane monolayer," *IUMRS-International Conference on Electronic Materials*, B-9-P24-005, Yokohama, Japan (Sep. 2012).
- T. Matsui, A. Miura, T. Nomura, H. Fujikawa, K. Sato, N. Ikeda, D. Tsuya, Y. Sugimoto, H. T. Miyazaki, K. Asakawa, M. Ozaki, and M. Hangyo, "Beam steering devices with Nanohole Antennas", *2010 MRS Fall Meeting*, M10.15, Boston, USA (Nov. 2010).

その他の国際学会発表

- K. Ito, T. Matsui, and H. Iizuka, “Resonant and non-resonant operations in double-groove gratings,” *Laser Science*, JW3A.11, Tucson, Arizona, United States (Oct. 2014).
- M. Ohkado, T. Nomura, A. Miura, T. Matsui, H. Fujikawa, N. Ikeda, M. Ochiai, and Y. Sugimoto, “Structural optimization of metallic infrared filter using extraordinary optical transmission phenomenon,” *IUMRS-International Conference on Electronic Materials*, B-9-P24-010, Yokohama, Japan (Sep. 2012).
- B. Cai, K. Komatsu, O. Sugihara, M. Kagami, M. Tsuchimori, T. Matsui, T. Kaino, “Fabrication of fs laser assisted optical self-writing waveguide,” *Proc. SPIE 6890, Optical Components and Materials V,* 68901B, San Francisco, USA (Feb. 2008).
- M. Kagami, T. Yamashita, M. Yonemura, A. Kawasaki, M. Tsuchimori, and T. Matsui, “Light-induced self-written three-dimensional polymer optical waveguide for module fabrication and iterconnection,” *Optical Fiber Communication Conference*, OThH4, Anaheim, USA (Mar. 2007).
- T. Matsui, T. Yamashita, and M. Kagami, ”Precisely Positioned light-induced Self-written(LISW) Polymeric Optical Waveguide for Optical Transceiver Module Fabrication”, *Proc. SPIE 6389, Active and Passive Optical Components for Communication IV, Proc. SPIE* 63890A, Boston, USA (Oct. 2006)

国内学会研究会等の発表

- T. Matsui, H. Yoshida, J. Kobashi, and M. Ozaki,“Transmission control by metal-dielectric hole aray with a sub-λ LC layer,” UK-Japan Workshop on Nanophotonics, Metamaterials and Plasmonics at Handai, P-18, Osaka, Japan (Mar. 2014).
- 小橋淳二, 吉田浩之, 松井崇行, 三浦篤志, 池田直樹, 杉本喜正, 藤川久喜, 尾﨑雅則, “有限要素法による液晶充填金属ナノホールアレイの光学特性解析” 2013 年日本液晶学会討論会, PA27，松江 (2013 年 9 月).
- 松井崇行, 三浦篤志, 藤川久喜, 池田直樹, 宮崎英樹, 杉本喜正 “金属誘電体積層ナノホールの透過位相制御,” 2013 年度春季応用物理学会講演会, 28a-A1-10，厚木

(2013 年 3 月).

- 小橋淳二, 吉田浩之, 松井崇行, 三浦篤志, 池田直樹, 落合雅幸，杉本喜正, 藤川久喜, 尾崎雅則, “アゾベンゼン混合液晶充填金属ナノホールアレイの光学特性スイッチング,” 2013 年度春季応用物理学会講演会, 29a-PA3-14，厚木 (2013 年 3 月).
- 吉田浩之, 小橋淳二, 松井崇行, 三浦篤志, 池田直樹, 落合雅幸, 杉本喜正, 藤川久喜, 尾崎雅則, “シランカップリング剤による金属ナノホールアレイ上の液晶配向制御と光学特性チューニング” 2012 年日本液晶学会討論会, 2a07，千葉 (2012 年 9 月).
- 三浦篤志, 松井崇行, 池田直樹, 津谷大樹, 落合雅幸，杉本喜正, 宮崎英樹, 尾崎雅則, 萩行正憲, 淺川潔 “積層型ホールアレイアンテナを用いたビーム走査デバイス,” 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 13a-PA4-14，松江 (2012 年 9 月).
- 松井崇行, 三浦篤志, 野村壮史, 藤川久喜, 佐藤和夫, 池田直樹, 津谷大樹, 杉本喜正, 宮崎英樹, 尾崎雅則, 萩行正憲, 淺川潔 “二光束干渉顕微鏡によるフィッシュネット構造の評価,” 2011 年秋季第 72 回応用物理学会学術講演会, 30p-P13-8，山形 (2011 年 9 月).
- 松井崇行, 三浦篤志, 野村壮史, 藤川久喜, 佐藤和夫, 池田直樹, 津谷大樹, 杉本喜正, 宮崎英樹, 淺川潔, 尾崎雅則, 萩行正憲 “ナノホールアレイを有する金属/誘電体積層構造の作製と透過特性,” 日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2010, 9pG4，千代田区神田 (2010 年 11 月).
- 松井崇行, 三浦篤志, 野村壮史, 藤川久喜, 佐藤和夫, 池田直樹, 津谷大樹, 杉本喜正, 宮崎英樹, 淺川潔, 尾崎雅則, 萩行正憲 “ナノホールアレイを用いた負屈折平面プリズムのナノ加工,” 電子情報通信学会 2010 ソサイエティ大会, C-3-69，堺 (2010 年 9 月).
- 松井崇行, 米村正寿, 森朋彦 “交互積層膜を用いた表面プラズモン共鳴式アルコールセンサ (II),” 2010 年春季第 57 回応用物理学関係連合講演会, 19p-ZF-15，平塚 (2010 年 3 月).
- 松井崇行, 米村正寿, 森朋彦 “交互積層膜を用いた表面プラズモン共鳴式アルコールセンサ,” 2009 秋季第 70 回応用物理学会学術講演会, 11p-ZK-1，富山 (2009 年 9 月).
- 松井崇行, 河崎朱里, 米村正寿, 山下達也, 土森正昭, 各務学 “大口径マルチモード光ファイバ用自己形成光導波路モジュールの作製,” 2007 年秋季第 68 回応用物理学会学術講演会, 4a-P1-2，札幌 (2007 年 9 月).
- 松井崇行, 河崎朱里, 米村正寿, 山下達也, 土森正昭, 各務学 “GI-POF を用いた自己形成光導波路,” 2006 年春季第 53 回応用物理学関係連合講演会, 26a-Y-1, 世田谷区玉堤 (2006 年 3 月).

受賞

- 電子情報通信学会論文賞 (論文誌 EC 19・5) 各務学, 山下達弥, 米村正寿, 松井崇行, "Light-Induced Self-Written Optical Waveguides"

付録 A

表面プラズモンポラリトンの分散関係の導出

本章では各章で用いた分散関係の導出を行う．線形材質を仮定し磁束密度 $\mathbf{B}$ と電束密度 $\mathbf{D}$ の構成方程式を $\mathbf{D} = \epsilon\mathbf{E}$, $\mathbf{B} = \mu\mathbf{H}$ とする．ここで μ は真空の透磁率 μ_0 と比透磁率 μ_r を用い $\mu = \mu_0\mu_r$ で表され, ϵ は真空の誘電率 ϵ_0 と比誘電率 ϵ_r を用い $\epsilon = \epsilon_0\epsilon_r$ で表される．すると電磁場は次の Maxwell 方程式で表される [1].

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu\frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \tag{A.1}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon\frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mathbf{J} \tag{A.2}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \tag{A.3}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \tag{A.4}$$

時間依存性が $\exp(-i\omega t)$ で表され, 電荷 ρ と定常電流 $\mathbf{J}$ が存在しないとすると上式は次のように表される．

$$\nabla \times \mathbf{E} = i\mu\omega\mathbf{H} \tag{A.5}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = -i\epsilon\omega\mathbf{E} \tag{A.6}$$

式 A.6 の両辺の回転をとり, 式 A.5 を代入すると以下の波動方程式が導かれる．

$$\nabla^2\mathbf{H} = -\mu\epsilon\omega^2\mathbf{H} \tag{A.7}$$

以降で求める表面プラズモンポラリトンの分散関係においては, 直線偏光のうち磁場の振動方向が y 成分のみとなる TM モードを取り扱う．SPP は金属誘電体界面に沿って x 方向に伝搬し, z 方向には指数関数的に減衰する波として扱う．そのため複素振幅 A を用い

て磁場 **H** は次のように表される．

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} 0 \\ A \\ 0 \end{pmatrix} e^{(ik_x x - k_z z)} \tag{A.8}$$

これを式 A.7 に代入すると k_x と k_z の関係が次のようにもとまる．

$$-k_x^2 + k_z^2 = -\epsilon_r k_0^2 \tag{A.9}$$

ここで k_0 は真空中の波数であり，比透磁率 μ_r は 1 とした．なお，本文中においては，金属誘電体界面を伝搬する SPP の波数を $k_{sp,x}$，$k_{sp,y}$ と必要に応じて表記したが，本付録 A 中を通して SPP は x 方向に伝搬するとして取り扱うことから，k_x と表記する．

A.1　一軸異方性液晶と金属界面の表面プラズモンポラリトンの分散関係

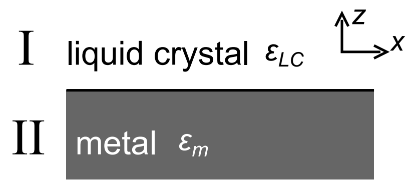

図 A.1　金属液晶単一界面の構成

図 A.1 に示されるような金属液晶単一界面の分散関係を求める [2]．液晶の比誘電率が 2 階のテンソルの対角成分であらわされるとすると, 式 A.6 は次のように表される．

$$\nabla \times \mathbf{H} = -i\omega\underline{\underline{\epsilon}}\mathbf{E} = -i\omega\epsilon_0 \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \mathbf{E} \tag{A.10}$$

表面プラズモンポラリトン (SPP) が直線偏光のうち磁場方向を y 方向とした TM 波によって励振されるとする．その際, 参考文献 [3] に倣い，SPP が x 方向に伝搬定数 k_x で伝搬し, z 方向に波数 k_z をもち減衰していくとすると媒質 I および II での磁場 $\mathbf{H}_{\mathrm{I}}$, $\mathbf{H}_{\mathrm{II}}$ は複素振幅 A, B を用いて次のようにあらわされる．

$$\mathbf{H_I} = \begin{pmatrix} 0 \\ A \\ 0 \end{pmatrix} e^{(ik_x x - k_{1z} z)}, z > 0 \tag{A.11}$$

$$\mathbf{H_{II}} = \begin{pmatrix} 0 \\ B \\ 0 \end{pmatrix} e^{(ik_x x + k_{2z} z)}, z < 0 \tag{A.12}$$

ここで式 A.10 を用いて媒質 I, II における電場を求めると

$$\mathbf{E_I} = \begin{pmatrix} \frac{k_{1z}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_{xx}} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_{zz}} \end{pmatrix} Ae^{(ik_x x - k_{1z} z)} \tag{A.13}$$

$$\mathbf{E_{II}} = \begin{pmatrix} \frac{-k_{2z}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_m} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_m} \end{pmatrix} Be^{(ik_x x + k_{2z} z)} \tag{A.14}$$

となる．

電磁場 **E**,**H** の境界面に平行な成分が連続になるという境界条件より z=0 において以下の行列形式の式が成り立つ

$$\begin{pmatrix} 1 & -1 \\ \frac{k_{1z}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_{xx}} & \frac{k_{2z}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_m} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} = 0 \tag{A.15}$$

この式が自明な解 ($A = 0$, $B = 0$) 以外の解を持つ為には行列式が 0 とならなければいけないので、

$$\frac{k_{1z}}{\epsilon_{xx}} + \frac{k_{2z}}{\epsilon_m} = 0 \tag{A.16}$$

が、成立する．ここで一軸異方性液晶の分散関係 $k_{1z}^2 = (\epsilon_{xx}k_x^2 - \epsilon_{xx}\epsilon_{zz}k_0^2)/\epsilon_{zz}$ [1] と式 A.9 で求めた $k_{2z}^2 = k_x^2 - \epsilon_m k_0^2$ を代入して整理すると，

$$k_x = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\epsilon_{zz}\epsilon_m(\epsilon_m - \epsilon_{xx})}{(\epsilon_m^2 - \epsilon_{xx}\epsilon_{zz})}} \tag{A.17}$$

となり第 1 章序言で用いた分散関係が導出される．

A.2　等方性媒質と金属界面の表面プラズモンポラリトンの分散関係と一般的性質

前節で金属に接する誘電体を一軸異方性の液晶としたが，誘電体を等方性とすることで一般的に良く知られた分散関係が得られ，そこから SPP の一般的性質が説明されることからここに示す．

式 A.17 において $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{zz} = \epsilon_d$ とすることで，比誘電率が ϵ_d である等方性媒質と金属界面における分散関係が容易にもとまり，以下に示すように多くの教科書で見られる SPP の分散式が得られる．

$$k_x = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\epsilon_d\epsilon_m}{\epsilon_m + \epsilon_d}} \tag{A.18}$$

金属の誘電率は複素数であることから，k_x も複素数となる．その実部を k'_x, 虚部を k''_x とし $k_x = k'_x + ik''_x$ を式 A.8 に代入すると, 式 A.8 で表される磁場の y 成分は

$$H_y = Ae^{ik'_x x}e^{(-k''_x x - k_z z)} \tag{A.19}$$

となり実部 k'_x が位相の進行を決定し，虚部 k''_x により SPP の x 方向への減衰が決まる [4] ことがわかる．本文中にも記載を行ったが，SPP と入射光に由来する回折波との相互作用は，金属誘電体界面方向の両者の波数が整合する際に生じる．上で記述したように金属の損失を考慮したときには SPP の波数は複素数となる．その為，金属の損失を考慮したときには第 1 章式 1.6, 1.7, 第 2 章式 2.6 の等号は成立しない．本研究ではこの分野の多くの教科書，文献に従い次のように取り扱った．SPP の一般的性質を説明する第 1 章においては金属の比誘電率を無損失のドルーデモデルとして取り扱った．また金属の損失を考慮した第 2 章以降においては，対象周波数帯において SPP の波数の実部は虚部より十分大きいことから，波数の実部が等しくなる条件を相互作用が生じる条件とした．

A.3　MIM 構造の表面プラズモンの分散関係

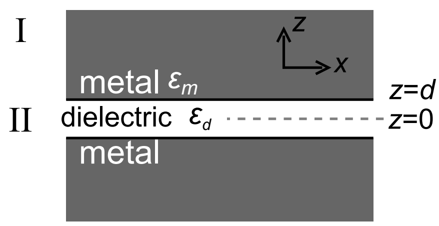

図 A.2　MIM(metal-insulator-metal) 構造の構成

A.1 節と同様にして, 図 A.2 に示されるような MIM 構造の分散関係を求める [5,7,9,10]．ここで構造は z=0 に対して対称構造とする．金属層 I の比誘電率と前節と同様に z 方向の波数をそれぞれ ϵ_m, $k_{z,m}$ とし，誘電体層 I の比誘電率と z 方向の波数をそれぞれ ϵ_d, $k_{z,d}$ とすると，各媒質 I, II における磁場 $\mathbf{H}_\mathrm{I}$, $\mathbf{H}_\mathrm{II}$ は, 複素振幅 A, B を用いて次式のように表される．

$\mathrm{z} \geq d$ において，

$$\mathbf{H_I} = \begin{pmatrix} 0 \\ A \\ 0 \end{pmatrix} e^{\{ik_x x - k_{z,m}(z-d)\}} \tag{A.20}$$

$0 \leq \mathrm{z} < d$ において，

$$\mathbf{H_{II}} = \begin{pmatrix} 0 \\ B \\ 0 \end{pmatrix} e^{ik_x x}\left(e^{k_{z,d}(z-d)} \pm e^{-k_{z,d}(z+d)}\right) \tag{A.21}$$

ここで符号 $\pm$ は上の符号を用いた際が磁場に対して対称モードを, 下の符号を用いた際は反対称モードを意味する．式 A.6 を用いてそれぞれの媒質における電場 $\mathbf{E}_\mathrm{I}$, $\mathbf{E}_\mathrm{II}$ は次のように表される．

$$\mathbf{E_I} = \begin{pmatrix} \frac{k_{z,m}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_m} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_m} \end{pmatrix} Ae^{(ik_x x - k_{z,m}(z-d))} \tag{A.22}$$

$$\mathbf{E_{II}} = \begin{pmatrix} \frac{-k_{z,d}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \end{pmatrix} Be^{(ik_x x + k_{z,d}(z-d))} \pm \begin{pmatrix} \frac{k_{z,d}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \end{pmatrix} Be^{(ik_x x - k_{z,d}(z+d))} \tag{A.23}$$

z $= d$ において磁場の y 成分と, 電場の x 成分がそれぞれ等しいことより

$$A = (1 \pm e^{-2k_{z,d}d})B \tag{A.24}$$

$$\frac{k_{z,m}}{\epsilon_m}A = \frac{k_{z,d}}{\epsilon_d}(-1 \pm e^{-2k_{z,d}d})B \tag{A.25}$$

行列形式で書くと

$$\begin{pmatrix} 1 & -1 \mp \exp(-2k_{z,d}d) \\ \frac{k_{z,m}}{\epsilon_m} & \frac{k_{z,d}}{\epsilon_d}\{1 \mp \exp(-2k_{z,d}d)\} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \tag{A.26}$$

この式が自明な解 ($A = 0$, $B = 0$) 以外の解を持つ為には，行列式が 0 となればよいので求める分散式は

$$\frac{k_{z,d}}{\epsilon_d}\{1 \mp \exp(-2k_{z,d}d)\} + \frac{k_{z,m}}{\epsilon_m}\{1 \pm \exp(-2k_{z,d}d)\} = 0 \tag{A.27}$$

となり, 第 2 章で用いた分散関係が導かれる．ここで $k_{z,m}^2 = k_x^2 - \epsilon_m k_0^2$, $k_{z,d}^2 = k_x^2 - \epsilon_d k_0^2$ である．

A.4　IMIMI 構造の表面プラズモンの分散関係

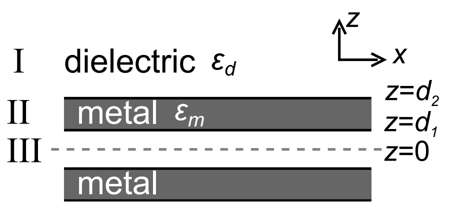

図 A.3　IMIMI(insulator-metal-insulator-metal-insulator) 構造の構成

MIM 構造のときと同様にして, IMIMI 構造の分散関係を求める [5, 11]．ここで構造は z=0 に対して対称構造とする．ここでも同様に誘電体層 I, III の比誘電率と z 方向の波数

をそれぞれ ϵ_d, $k_{z,d}$ とし，金属層 II の比誘電率と z 方向の波数をそれぞれ ϵ_m, $k_{z,m}$ とすると，各媒質 I, II, III における磁場 $\mathbf{H}_{\mathrm{I}}$, $\mathbf{H}_{\mathrm{II}}$, $\mathbf{H}_{\mathrm{III}}$ は, 複素振幅 A, B, C, D を用いて,

z $\geq d_2$ において,

$$\mathbf{H_I} = \begin{pmatrix} 0 \\ A \\ 0 \end{pmatrix} e^{\{ik_x x - k_{z,d}(z-d_2)\}} \tag{A.28}$$

$d_1 \leq$ z $< d_2$ において,

$$\mathbf{H_{II}} = \begin{pmatrix} 0 \\ B \\ 0 \end{pmatrix} e^{\{ik_x x + k_{z,m}(z-d_2)\}} \tag{A.29}$$

$$+ \begin{pmatrix} 0 \\ C \\ 0 \end{pmatrix} e^{\{ik_x x - k_{z,m}(z-d_1)\}} \tag{A.30}$$

$0 \leq$ z $< d_1$ において,

$$\mathbf{H_{III}} = \begin{pmatrix} 0 \\ D \\ 0 \end{pmatrix} e^{ik_x x} \left\{ e^{k_{z,d}(z-d_1)} \pm e^{-k_{z,d}(z+d_1)} \right\} \tag{A.31}$$

の形で表される．ここで符号 $\pm$ は上の符号を用いた際が磁場に対して対称モードを, 下の符号を用いた際は反対称モードを意味する．式 A.6 を用いてそれぞれの媒質における電場 $\mathbf{E}_{\mathrm{I}}$, $\mathbf{E}_{\mathrm{II}}$, $\mathbf{E}_{\mathrm{III}}$ は次のように表される．

$$\mathbf{E_I} = \begin{pmatrix} \frac{k_{z,d}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \end{pmatrix} A e^{\{ik_x x - k_{z,d}(z-d_2)\}} \tag{A.32}$$

$$\mathbf{E_{II}} = \begin{pmatrix} \frac{-k_{z,m}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_m} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_m} \end{pmatrix} B e^{\{ik_x x + k_{z,m}(z-d_2)\}} + \begin{pmatrix} \frac{k_{z,m}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_m} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_m} \end{pmatrix} C e^{\{ik_x x - k_{z,m}(z-d_1)\}} \tag{A.33}$$

$$\mathbf{E_{III}} = D e^{ik_x x} \left[\begin{pmatrix} \frac{-k_{z,d}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \end{pmatrix} e^{k_{z,d}(z-d_1)} + \begin{pmatrix} \frac{k_{z,d}}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \\ 0 \\ \frac{ik_x}{-i\omega\epsilon_0\epsilon_d} \end{pmatrix} e^{-k_{z,d}(z+d_1)} \right] \tag{A.34}$$

z $= d_2$ において磁場の y 成分と, 電場の x 成分がそれぞれ等しいことより,

$$A = B + Ce^{-k_{z,m}(d_2-d_1)} \tag{A.35}$$

$$\frac{k_{z,d}}{\epsilon_d} A = \frac{-k_{z,m}}{\epsilon_m} B + \frac{k_{z,m}}{\epsilon_m} C e^{-k_{z,m}(d_2-d_1)} \tag{A.36}$$

z $= d_1$ において磁場の y 成分と, 電場の x 成分がそれぞれ等しいことより,

$$Be^{k_{z,m}(d_1-d_2)} + C = D\left\{1 \pm e^{-2k_{z,d}d_1}\right\} \tag{A.37}$$

$$\frac{-k_{z,m}}{\epsilon_m} Be^{k_{z,m}(d_1-d_2)} + \frac{k_{z,m}}{\epsilon_m} C = \frac{k_{z,d}}{\epsilon_d} D\left\{-1 \pm e^{-2k_{z,d}d_1}\right\} \tag{A.38}$$

上式を行列形式でまとめると

$$\mathbf{M}\begin{pmatrix} A \\ B \\ C \\ D \end{pmatrix} = 0 \tag{A.39}$$

ここで行列 $\mathbf{M}$ は以下のように表される．

$$\begin{pmatrix} 1 & -1 & -e^{-k_{z,m}(d_2-d_1)} & 0 \\ \frac{k_{z,d}}{\epsilon_d} & \frac{k_{z,m}}{\epsilon_m} & -\frac{k_{z,m}}{\epsilon_m}e^{-k_{z,m}(d_2-d_1)} & 0 \\ 0 & e^{k_{z,m}(d_1-d_2)} & 1 & -\left(1 \pm e^{-2k_{z,d}d_1}\right) \\ 0 & -\frac{k_{z,m}}{\epsilon_m}e^{k_{z,m}(d_1-d_2)} & \frac{k_{z,m}}{\epsilon_m} & -\frac{k_{z,d}}{\epsilon_d}\left(-1 \pm e^{-2k_{z,d}d_1}\right) \end{pmatrix} \tag{A.40}$$

この式が自明な解 (A, B, C, D が何れも 0) 以外の解を持つ為には，行列式が 0 となればよいので求める分散式は

$$\det(\mathbf{M}) = 0 \tag{A.41}$$

となる．

参考文献

[1] H. A. Haus, *Waves and fields in optoelectronics* (Prentice-Hall Englewood Cliffs, NJ, 1984).

[2] R. Warmbier, G. S. Manyali, and A. Quandt, "Surface plasmon polaritons in lossy uniaxial anisotropic materials," Physical Review B **85**, 085442 (2012).

[3] 福井萬壽夫, 大津元一, 光ナノテクノロジーの基礎 (オーム社, 2003).

[4] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics* (Cambridge university press, 2012).

[5] 岡本隆之, 梶川浩太郎, プラズモニクス　基礎と応用 (講談社, 2010).

[6] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic press, 1998).

[7] S. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications* (Springer Verlag, 2007).

[8] C. Genet and T. Ebbesen, "Light in tiny holes," Nature **445**, 39–46 (2007).

[9] J. Dionne, L. Sweatlock, H. Atwater, and A. Polman, "Plasmon slot waveguides: Towards chip-scale propagation with subwavelength-scale localization," Physical Review B **73**, 035407 (2006).

[10] Y. Kurokawa and H. Miyazaki, "Metal-insulator-metal plasmon nanocavities: Analysis of optical properties," Physical Review B **75**, 035411 (2007).

[11] D. Woolf, M. Loncar, and F. Capasso, "The forces from coupled surface plasmon polaritons in planar waveguides," Optics Express **17**, 19996–20011 (2009).

付録 B

振動子モデルによる誘電関数の表現

本章においては，振動子モデルにより特に金属材料の周波数に依存した比誘電率を表現する誘電関数を求める [1,2]．物質に光が入射し，電場 $\mathbf{E}$ が加わることで物質内の電子，もしくはイオンは変位し分極 $\mathbf{P}$ が生じる．分極 $\mathbf{P}$ は電束密度 $\mathbf{D}$ と電場 $\mathbf{E}$ に対して次の関係がある．

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \tag{B.1}$$

ここで ϵ_0 は真空の誘電率であり，分極 $\mathbf{P}$ は分極率 χ を用いて次のように表される．

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E} \tag{B.2}$$

上の二つの式より

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \left(1 + \chi\right) \mathbf{E} \tag{B.3}$$

と表現できることから，比誘電率 ϵ_r は分極率 χ を用いて $\epsilon_r = 1 + \chi$ と表すことができる．　よって適切な振動子モデルを用いて分極 $\mathbf{P}$ を表現する事で比誘電率の波長依存性を表す式が求められる．

ここで個別の振動子の平行位置からのずれを $\mathbf{r}$ とし，電荷を e とすると，個々の振動子によって生じる双極子モーメント $\boldsymbol{\mu}$ は, $\boldsymbol{\mu} = e\mathbf{r}$ と表され，このような振動子が単位体積中に N_0 個あれば，分極 $\mathbf{P}$ は

$$\mathbf{P} = N_0 \boldsymbol{\mu} = N_0 e \mathbf{r} \tag{B.4}$$

と表すことができる．

B.1　ドルーデモデル

ここではまず自由電子に対する分極を求める．自由電子の運動方程式は次式のように表される．

$$m_e \frac{\partial^2 \mathbf{r}}{\partial t^2} + m_e \Gamma \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} = e\mathbf{E}e^{-i\omega t} \tag{B.5}$$

上式で m_e は電子の有効質量を，Γ は陽イオンや他の電子との散乱に由来する減衰定数を表す．式 B.4 を用い $\mathbf{r}$ を分極 $\mathbf{P}$ で置き換え，$\mathbf{r}(t) = \mathbf{r_0}e^{-i\omega t}$ の時間依存性を持つとすると，式 B.4 および式 B.11 より分極 $\mathbf{P}$ は次のように表される．

$$\mathbf{P} = \frac{N_0 e^2}{m_e}\frac{1}{(-\omega^2 - i\Gamma\omega)}\mathbf{E} \tag{B.6}$$

よって式 B.2 より分極率 χ は

$$\chi = \frac{N_0 e^2}{\epsilon_0 m_e}\frac{1}{(-\omega^2 - i\Gamma\omega)} \tag{B.7}$$

と表され，プラズマ周波数 ω_p が

$$\omega_p = \sqrt{\frac{N_0 e^2}{\epsilon_0 m_e}} \tag{B.8}$$

と表されるので，周波数に依存した比誘電率 $\epsilon_r = 1 + \chi$ は, 次のドルーデモデルにより表現する事が可能である．

$$\epsilon_r = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega} \tag{B.9}$$

なお表面プラズモンポラリトンの性質をモデルとして説明する際には，自由電子の振動の際に減衰が生じないとし，式 B.11 で Γ を 0 とした無損失のドルーデモデルが用いられ [3]，その際の誘電関数は次式のように表される．

$$\epsilon_r = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \tag{B.10}$$

B.2　ローレンツモデル

自由電子を仮定したドルーデモデルは低周波数側では金属等の導電性媒質の比誘電率を比較的正確に表現可能である．しかし，高周波数付近では，例えば貴金属原子の d 軌道から sp 軌道にかけての遷移等のバンド間遷移を考慮する必要があり，核による復元力が無視できなくなる．その為，束縛をうける電子の運動方程式は次の形式で表現される．

$$m\frac{\partial^2 \mathbf{r}}{\partial t^2} + m\Gamma\frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} + m\omega_j^2\mathbf{r} = e\mathbf{E}e^{-i\omega t} \tag{B.11}$$

ここで m は振動子の実効的な質量を，ω_j は特定の遷移に対応する固有振動数を表す．ドルーデモデルの時と同様に分極 $\mathbf{P}$ を求めると次式のように表現される．

$$\mathbf{P} = \frac{N_0 e^2}{m}\frac{1}{\left(\omega_j^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega\right)}\mathbf{E} \tag{B.12}$$

束縛を受けた振動子には様々な遷移の状態がありうることから，それぞれの遷移の強度を f_j とし比誘電率は次のように表現される．

$$\epsilon_r = 1 + \sum_j \frac{\omega_p^2 f_j}{\omega_j^2 - \omega^2 - i\Gamma_j\omega} \tag{B.13}$$

B.3　ドルーデ・ローレンツモデル

実際の材料の比誘電率のモデル化の際は，自由電子をモデル化したドルーデモデルに加え，特定の固有振動の影響をローレンツモデルで補うことにより実験的に得られた比誘電率の値をモデル化可能である．本研究では参考文献 [4] のモデル化とそこで用いられた係数により誘電関数の表現を行い，誘電関数を次の形式で表現した．ただし電場および磁場の時間依存性は $\exp(-i\omega t)$ としている．

$$\epsilon_r = \epsilon_{\mathrm{D}} + \epsilon_{\mathrm{L}} \tag{B.14}$$

$$\epsilon_{\mathrm{D}} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega} \tag{B.15}$$

$$\epsilon_{\mathrm{L}} = \sum_j \frac{\omega_p^2 f_j}{\omega_j^2 - \omega^2 - i\Gamma_j\omega} \tag{B.16}$$

上式の誘電関数を用い，金，銀，アルミの比誘電率をプロットした結果を図 B.1, B.2, B.3 に示す．図中のプロットは参考文献 [5] に記載の測定値を表し，実線は式 B.16 による計算値を表す．金と銀の比誘電率で同じ波長において異なる値が存在するのは，参考文献 [5] が利用している測定値データが同一波長で複数種類あるためである．計算に用いた ω_p, ω_j, f_i, Γ_j 等のパラメータは参考文献 [4] 中の Table 1. および Table 2. に記載の値を用いた．

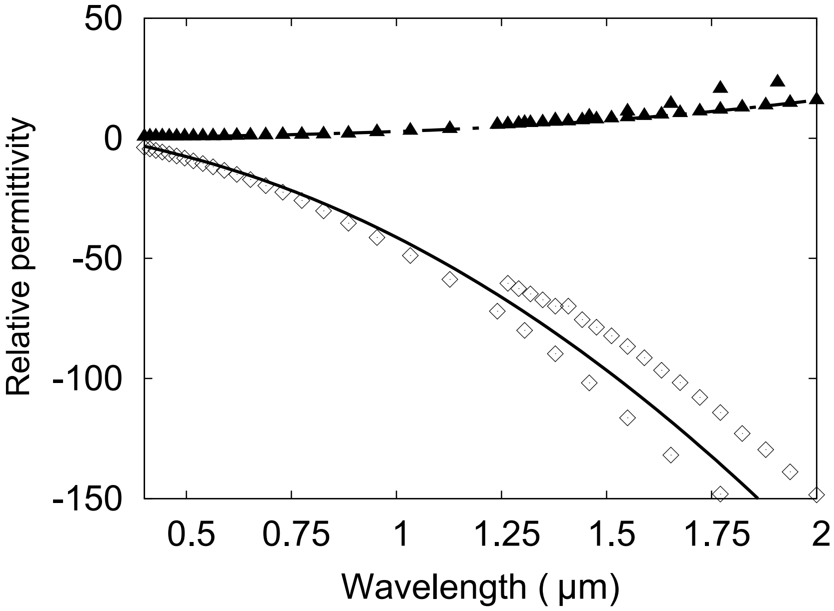

図 B.1　振動子モデルによる銀の比誘電率．黒色実線：比誘電率実部（計算値），黒色一点鎖線：比誘電率虚部（計算値），白抜き菱形プロット：比誘電率実部（文献値），黒色三角プロット：比誘電率虚部（文献値）

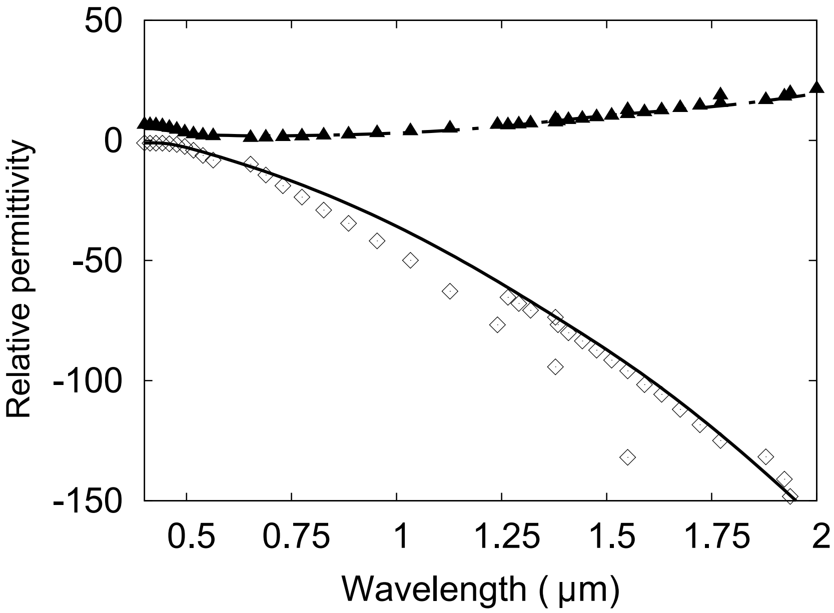

図 B.2　振動子モデルによる金の比誘電率．黒色実線：比誘電率実部（計算値），黒色一点鎖線：比誘電率虚部（計算値），白抜き菱形プロット：比誘電率実部（文献値），黒色三角プロット：比誘電率虚部（文献値）

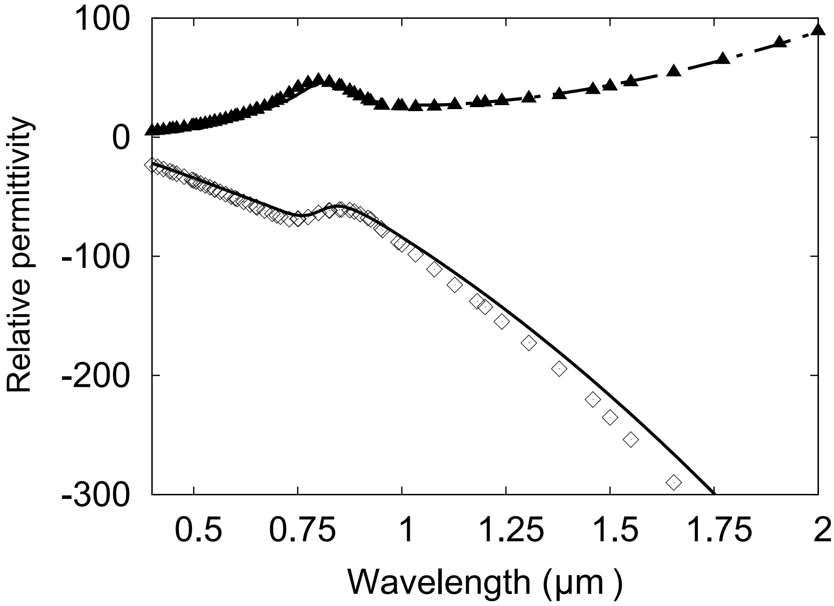

図 B.3　振動子モデルによるアルミニウムの比誘電率．黒色実線：比誘電率実部（計算値），黒色一点鎖線：比誘電率虚部（計算値），白抜き菱形プロット：比誘電率実部（文献値），黒色三角プロット：比誘電率虚部（文献値）

参考文献

[1] 江馬一弘, 光物理学の基礎 (朝倉書店, 2010).

[2] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics* (Cambridge university press, 2012).

[3] EN. Economou, "Surface plasmons in thin films," Physical Review **182**, 539–554 (1969).

[4] A. Rakic, A. Djurišic, J. Elazar, and M. Majewski, "Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices," Applied Optics **37**, 5271–5283 (1998).

[5] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic press, 1998).

付録 C

Fourier Modal Method の実装上の工夫

本研究では参考文献 [1] に従い，FMM の実装を行った．収束性を向上させるために周期構造の比誘電率分布を表現する Toeplitz 行列の実装を本付録に述べる手法により行った．本付録ではまず実装の工夫を行った Toeplitz 行列に関連する固有値解析について簡単に説明し，その後本研究で行った数値計算上の実装の工夫について述べる．なお，本付録 C 中における表記は参考文献 [1] に従っている．

C.1 計算方法の概略

FMM は大きく二つの計算から構成される．まず周期構造内の固有モードを求める固有値解析であり，次に各層毎に境界条件を逐次適用し，回折次数毎の反射振幅と透過振幅を求める散乱行列法である．本付録では固有値解析のための式の導出と，本研究で工夫を行った Toeplitz 行列の実装について記述する．

図 C.1(a) に示すユニットセル構造で表される周期構造において，光の伝搬方向を z 方向とし, I, II, III の三つの領域に分かれているものとする．$z < z_m$ および $z \geq z_p$ は半無限厚の誘電体媒質であり，それぞれ比誘電率を等方性とし ϵ_I, ϵ_{III} とする．$z_m \leq z < z_p$ は周期構造層である．各層において比誘電率の分布は z 方向には変化しないとする．本研究においては周期構造内の比誘電率は二階のテンソルの対角成分により表す．格子周期は x 方向に T_x, y 方向に T_y である．各領域の電場および磁場は，領域 I, III 内は平面波の足し合わせで，領域 II 内は次節で述べる固有値解析の結果求まる固有モードの足し合わせで表現される．平面波の x 方向の回折次数 m, y 方向の回折次数 n を有限の数で打ち切り，$m = -M, -M+1, \cdots, 0, M-1, M$, および $n = -N, -N+1, \cdots, 0, N-1, N$ で表す．$k_{x,m}$ は x 方向の波数であり入射波の x 方向の波数と y 方向の波数を $k_{inc,x}, k_{inc,y}$

として，

$$k_{x,m} = k_{inc,x} + 2\pi m/T_x \tag{C.1}$$
$$k_{y,n} = k_{inc,y} + 2\pi n/T_y \tag{C.2}$$

と表される．この時，領域 I, III における z 方向の波数 $k_{z,m,n}$ は媒体の比誘電率 ϵ を用いて $k_{z,m,n} = \sqrt{\epsilon k_0^2 - k_{x,m}^2 - k_{y,n}^2}$ である．

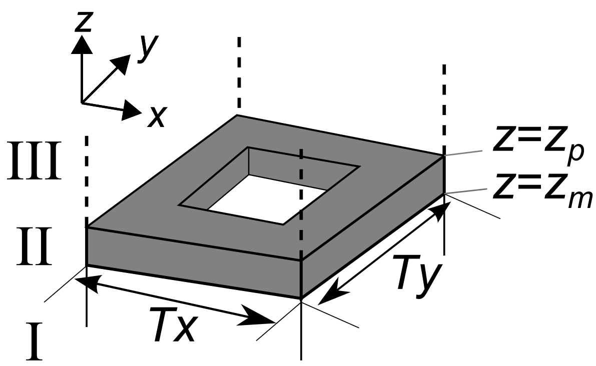

図 C.1　モデル二次元周期構造のユニットセル構造.

C.2　固有値解析

周期構造内での固有モードの伝搬定数と各回折次数の振幅を求める為に固有値方程式を導く．周期構造層 II 内での電場及び磁場の固有モードは x 方向と y 方向へのフーリエ級数展開を用いて次のように表される．ここで各固有モードの z 方向への伝搬定数を k_z とする．

$$\begin{aligned}\mathbf{E} &= \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \\ &= e^{i(k_{x,inc}x + k_{y,inc}y + k_z z)} \sum_{m=-M}^{M} \sum_{n=-N}^{N} \begin{pmatrix} E_{x,m,n} \\ E_{y,m,n} \\ E_{z,m,n} \end{pmatrix} e^{i\left(\frac{2\pi m}{T_x}x + \frac{2\pi n}{T_y}y\right)}\end{aligned} \tag{C.3}$$

$$\begin{aligned}\mathbf{H} &= \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \\ H_z \end{pmatrix} \\ &= e^{i(k_{x,inc}x + k_{y,inc}y + k_z z)} \sum_{m=-M}^{M} \sum_{n=-N}^{N} \begin{pmatrix} H_{x,m,n} \\ H_{y,m,n} \\ H_{z,m,n} \end{pmatrix} e^{i\left(\frac{2\pi m}{T_x}x + \frac{2\pi n}{T_y}y\right)}\end{aligned} \tag{C.4}$$

ここで表記は文献 [1] にならい，たとえば回折次数で x 方向に m 次，y 方向に n 次の電場の x 成分の複素振幅を $E_{x,m,n}$ とした．

また周期構造の比誘電率分布は二重フーリエ級数により次のように表される．

$$\epsilon(x,y) = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx}(x,y) \\ \epsilon_{yy}(x,y) \\ \epsilon_{zz}(x,y) \end{pmatrix} = \sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N} \begin{pmatrix} \epsilon_{xx,m,n} \\ \epsilon_{yy,m,n} \\ \epsilon_{zz,m,n} \end{pmatrix} e^{i\left(\frac{2\pi mx}{T_x}+\frac{2\pi ny}{T_y}\right)} \tag{C.5}$$

$\epsilon_{xx,m,n}, \epsilon_{yy,m,n}, \epsilon_{zz,m,n}$ は対応するフーリエ係数である．

式 A.6 より磁場と電場の x 成分の関係は次のように表される．

$$\frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} = -ik_0\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\epsilon_{xx}E_x \tag{C.6}$$

式 C.6 に式 C.3, 式 C.4, 式 C.5 を代入することで以下の式が得られる．

$$\begin{aligned} &ik_{y,n}\left[\sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N} H_{z,m,n}e^{i(k_{x,m}x+k_{y,n}y+k_z z)}\right] - \\ &ik_z\left[\sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N} H_{y,m,n}e^{i(k_{x,m}x+k_{y,n}y+k_z z)}\right] = \\ &-ik_0\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N}\epsilon_{xx,m,n}e^{i\left(\frac{2\pi mx}{T_x}+\frac{2\pi ny}{T_y}\right)}\left[\sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N}E_{x,m,n}e^{i(k_{x,m}x+k_{y,n}y+k_z z)}\right] \end{aligned} \tag{C.7}$$

右辺に関しコーシー積の関係を用いて整理することにより次式が得られる．

$$\begin{aligned} &\sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N}\left[k_{y,n}H_{z,m,n}e^{i(k_{x,m}x+k_{y,n}y+k_z z)} - k_z H_{y,m,n}e^{i(k_{x,m}x+k_{y,n}y+k_z z)}\right] = \\ &\sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N}\left[-k_0\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}e^{i(k_{x,m}x+k_{y,n}y+k_z z)}\sum_{m'=-M}^{M}\sum_{n'=-N}^{N}\epsilon_{xx,m-m',n-n'}E_{x,m',n'}\right] \end{aligned} \tag{C.8}$$

両辺で共通する指数関数部を除去し，各回折次数 (m,n) に関しまとめると次のようになる．

$$\frac{k_{y,n}}{k_0}H_{z,m,n} - \frac{k_z}{k_0}H_{y,m,n} = -\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\sum_{m'=-M}^{M}\sum_{n'=-N}^{N}\epsilon_{xx,m-m',n-n'}E_{x,m',n'}$$

同様にして電場と磁場の各成分の関係として以下が導かれる．

$$\frac{k_z}{k_0}H_{x,m,n}-\frac{k_{x,m}}{k_0}H_{z,m,n}=-\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\sum_{m'=-M}^{M}\sum_{n'=-N}^{N}\epsilon_{yy,m-m',n-n'}E_{y,m',n'}$$
$$\frac{k_{x,m}}{k_0}H_{y,m,n}-\frac{k_{y,n}}{k_0}H_{x,m,n}=-\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\sum_{m'=-M}^{M}\sum_{n'=-N}^{N}\epsilon_{zz,m-m',n-n'}E_{z,m',n'}$$
$$\frac{k_{y,n}}{k_0}E_{z,m,n}-\frac{k_z}{k_0}E_{y,m,n}=\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}\sum_{m'=-M}^{M}\sum_{n'=-N}^{N}\mu_{xx,m-m',n-n'}H_{x,m',n'}$$
$$\frac{k_z}{k_0}E_{x,m,n}-\frac{k_{x,m}}{k_0}E_{z,m,n}=\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}\sum_{m'=-M}^{M}\sum_{n'=-N}^{N}\mu_{yy,m-m',n-n'}H_{y,m',n'}$$
$$\frac{k_{x,m}}{k_0}E_{y,m,n}-\frac{k_{y,n}}{k_0}E_{x,m,n}=\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}\sum_{m'=-M}^{M}\sum_{n'=-N}^{N}\mu_{zz,m-m',n-n'}H_{z,m',n'}$$

各々の展開次数の電場 $(E_{\alpha,m,n})$ 及び磁場 $(H_{\alpha,m,n})$ を次のように列ベクトルでまとめる (次式では電場の x 成分で表記する)．上付き添え字の T は転置を表す．

$$\mathbf{E}_x=[E_{x,-M,-N},E_{x,-M,-N+1},\cdots,E_{x,M,N-1},E_{x,M,N}]^T \tag{C.9}$$

列ベクトルの s 番目の要素の展開次数 m, n は $(s-1)/(2N+1)$ で表される整数の除算において，商を A, 余りを B とすると次のように表される．

$$m=A-M \tag{C.10}$$
$$n=B-N \tag{C.11}$$

上記で定義した列ベクトルを用いて先ほどの式は次のように表される．

$$\mathbf{k}_\mathrm{y}\mathbf{H}_\mathrm{z}-\frac{k_z}{k_0}\mathbf{H}_\mathrm{y}=-\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}[\![\epsilon_{xx}]\!]\mathbf{E}_\mathrm{x} \tag{C.12}$$
$$\frac{k_z}{k_0}\mathbf{H}_\mathrm{x}-\mathbf{k}_\mathrm{x}\mathbf{H}_\mathrm{z}=-\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}[\![\epsilon_{yy}]\!]\mathbf{E}_\mathrm{y} \tag{C.13}$$
$$\mathbf{k}_\mathrm{x}\mathbf{H}_\mathrm{y}-\mathbf{k}_\mathrm{y}\mathbf{H}_\mathrm{x}=-\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}[\![\epsilon_{zz}]\!]\mathbf{E}_\mathrm{z} \tag{C.14}$$
$$\mathbf{k}_\mathrm{y}\mathbf{E}_\mathrm{z}-\frac{k_z}{k_0}\mathbf{E}_\mathrm{y}=\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}[\![\mu_{xx}]\!]\mathbf{H}_\mathrm{x} \tag{C.15}$$
$$\frac{k_z}{k_0}\mathbf{E}_\mathrm{x}-\mathbf{k}_\mathrm{x}\mathbf{E}_\mathrm{z}=\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}[\![\mu_{yy}]\!]\mathbf{H}_\mathrm{y} \tag{C.16}$$
$$\mathbf{k}_\mathrm{x}\mathbf{E}_\mathrm{y}-\mathbf{k}_\mathrm{y}\mathbf{E}_\mathrm{x}=\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}[\![\mu_{zz}]\!]\mathbf{H}_\mathrm{z} \tag{C.17}$$

ここで $\mathbf{k}_\alpha$，$(\alpha = x, y)$ は $(2M+1)(2N+1)$ 行 $(2M+1)(2N+1)$ 列の正方対角行列であり，s 行 s 列目の要素は, 式 C.1，C.2，C.10，C.11 の関係を用いて $k_{x,m}/k_0$ もしくは $k_{y,n}/k_0$ で表される．また $[\![\epsilon_{\alpha\alpha}]\!]$, は次式 C.18 で表されるブロック Toeplitz 行列である．

$$[\![\epsilon_{\alpha\alpha}]\!] = \begin{pmatrix} \mathbf{T}_{\alpha\alpha,0} & \mathbf{T}_{\alpha\alpha,-1} & \cdots & \mathbf{T}_{\alpha\alpha,-2M} \\ \mathbf{T}_{\alpha\alpha,1} & \mathbf{T}_{\alpha\alpha,0} & \cdots & \mathbf{T}_{\alpha\alpha,-2M+1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \mathbf{T}_{\alpha\alpha,2M} & \mathbf{T}_{\alpha\alpha,2M-1} & \cdots & \mathbf{T}_{\alpha\alpha,0} \end{pmatrix} \tag{C.18}$$

個々の Toeplitz 行列 $\mathbf{T}_{\alpha\alpha,m}$ は次のように表される．

$$\mathbf{T}_{\alpha\alpha,m} = \begin{pmatrix} \epsilon_{\alpha\alpha,m,0} & \epsilon_{\alpha\alpha,m,-1} & \cdots & \epsilon_{\alpha\alpha,m,-2N} \\ \epsilon_{\alpha\alpha,m,1} & \epsilon_{\alpha\alpha,m,0} & \cdots & \epsilon_{\alpha\alpha,m,-2N+1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \epsilon_{\alpha\alpha,m,2N} & \epsilon_{\alpha\alpha,m,2N-1} & \cdots & \epsilon_{\alpha\alpha,m,0} \end{pmatrix} \tag{C.19}$$

比透磁率は等方性で 1.0 とし，$[\![\mu_{\alpha\alpha}]\!]$ は (2M+1)(2N+1) 行 (2M+1)(2N+1) 列の単位行列となる．式 C.12 から式 C.17 より $\mathbf{E}_z$, $\mathbf{H}_z$ を消去し次式が得られる．

$$\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}(\mathbf{k}_\mathrm{y}[\![\epsilon_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{y} - [\![\mu_{xx}]\!])\mathbf{H}_\mathrm{x} - \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}\mathbf{k}_\mathrm{y}[\![\epsilon_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{x}\mathbf{H}_\mathrm{y} = \frac{k_z}{k_0}\mathbf{E}_\mathrm{y} \tag{C.20}$$

$$\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}\mathbf{k}_\mathrm{x}[\![\epsilon_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{y}\mathbf{H}_\mathrm{x} - \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}(\mathbf{k}_\mathrm{x}[\![\epsilon_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{x} - [\![\mu_{yy}]\!])\mathbf{H}_\mathrm{y} = \frac{k_z}{k_0}\mathbf{E}_\mathrm{x} \tag{C.21}$$

$$\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}([\![\epsilon_{11}]\!] - \mathbf{k}_\mathrm{y}[\![\mu_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{y})\mathbf{E}_\mathrm{x} + \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\mathbf{k}_\mathrm{y}[\![\mu_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{x}\mathbf{E}_\mathrm{y} = \frac{k_z}{k_0}\mathbf{H}_\mathrm{y} \tag{C.22}$$

$$-\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\mathbf{k}_\mathrm{x}[\![\mu_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{y}\mathbf{E}_\mathrm{x} + \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}(\mathbf{k}_\mathrm{x}[\![\mu_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{x} - [\![\epsilon_{yy}]\!])\mathbf{E}_\mathrm{y} = \frac{k_z}{k_0}\mathbf{H}_\mathrm{x} \tag{C.23}$$

上式をまとめることで次式が得られる．

$$\Omega \begin{pmatrix} \mathbf{E}_\mathrm{y} \\ \mathbf{E}_\mathrm{x} \\ \mathbf{H}_\mathrm{y} \\ \mathbf{H}_\mathrm{x} \end{pmatrix} = \left(\frac{k_z}{k_0}\right) \begin{pmatrix} \mathbf{E}_\mathrm{y} \\ \mathbf{E}_\mathrm{x} \\ \mathbf{H}_\mathrm{y} \\ \mathbf{H}_\mathrm{x} \end{pmatrix} \tag{C.24}$$

ここで Ω は

$$\begin{pmatrix} \begin{matrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{matrix} & \mathbf{\Omega_1} \\ \mathbf{\Omega_2} & \begin{matrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{matrix} \end{pmatrix} \tag{C.25}$$

であり，小行列 Ω_1 は

$$\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \begin{pmatrix} -\mathbf{k}_\mathrm{y}[\![\epsilon_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{x} & (\mathbf{k}_\mathrm{y}[\![\epsilon_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{y} - [\![\mu_{xx}]\!]) \\ -(\mathbf{k}_\mathrm{x}[\![\epsilon_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{x} - [\![\mu_{yy}]\!]) & \mathbf{k}_\mathrm{x}[\![\epsilon_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{y} \end{pmatrix} \tag{C.26}$$

小行列 Ω_2 は

$$\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\begin{pmatrix} \mathbf{k}_\mathrm{y}[\![\mu_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{x} & ([\![\epsilon_{11}]\!]-\mathbf{k}_\mathrm{y}[\![\mu_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{y}) \\ (\mathbf{k}_\mathrm{x}[\![\mu_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{x}-[\![\epsilon_{yy}]\!]) & -\mathbf{k}_\mathrm{x}[\![\mu_{zz}]\!]^{-1}\mathbf{k}_\mathrm{y} \end{pmatrix} \tag{C.27}$$

である．式 C.24 は更に簡単にでき次式となる．

$$k_0^2\Omega_1\Omega_2\begin{pmatrix}\mathbf{E}_\mathrm{y}\\ \mathbf{E}_\mathrm{x}\end{pmatrix}=k_z^2\begin{pmatrix}\mathbf{E}_\mathrm{y}\\ \mathbf{E}_\mathrm{x}\end{pmatrix} \tag{C.28}$$

これが求める固有値方程式である．式 C.28 を数値演算により求めることで，2(2M+1)(2N+1) 個の固有値と対応する固有ベクトルが求まる．固有値から各固有モードの k_z が求まり，固有ベクトルの要素から式 C.3 の係数 $E_{x,m,n}$ および $E_{y,m,n}$ が求まる．

C.3　ブロック Toeplitz 行列の実装

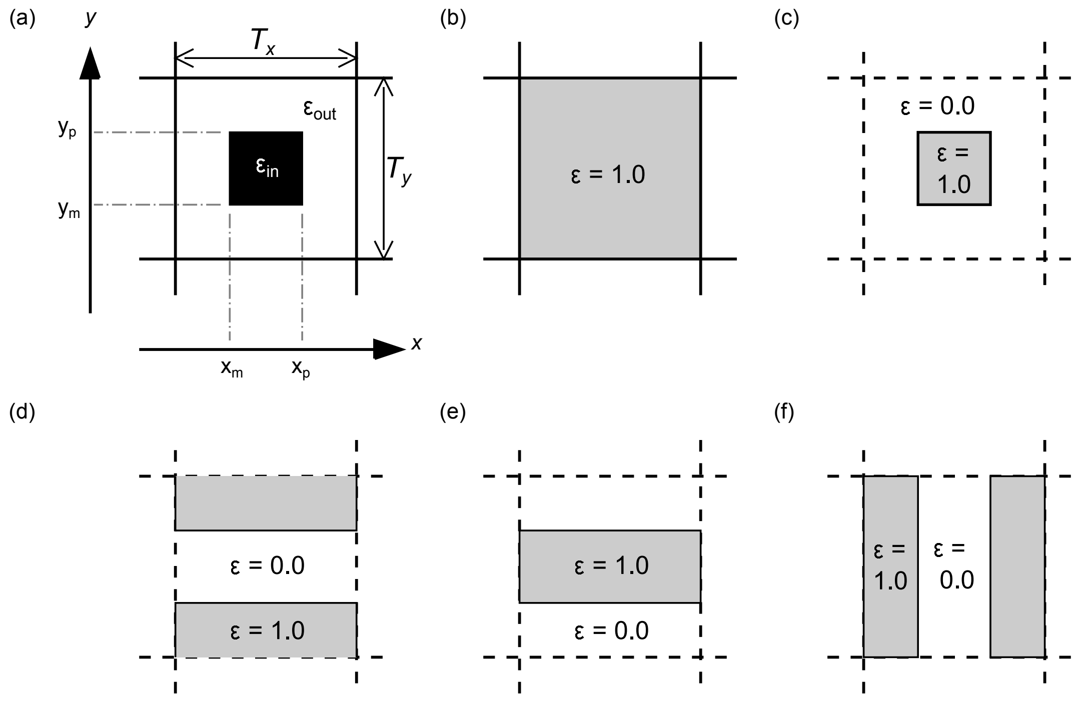

図 C.2　(a) 検討を行う二次元周期構造のユニットセルの比誘電率分布, (b) 対応するフーリエ係数が式 C.29 となる比誘電率分布． (c) 同式 C.30, (d) 同式 C.33, (e) 同式 C.34, (f) 同式 C.49

式 C.18 で表されるブロック Toeplitz 行列の実装方法について記述する．まず参考文献 [1] を参考にした実装方法について方法 1 として記述し，続いて同様の結果が他に二通りの方法で実装できることを示す．

方法 1

参考文献 [1] 中に記載のコードより，図 C.2(a) で表される二次元周期構造の比誘電率分布を表すブロック Toeplitz 行列は次の 2 つの Fourier 係数から構成されるブロック Toeplitz 行列 $[\![A]\!], [\![B]\!]$ を用いて実装することができる．まず図 C.2(b) で表されるユニットセル全体の比誘電率が 1.0 である構造の回折次数 m,n に対応する Fourier 係数 $A_{m,n}$ は次のように表される．

$$A_{m,n} = \frac{1}{T_x T_y} \int_{-0.5T_x}^{0.5T_x} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}} dx \int_{-0.5T_y}^{0.5T_y} e^{-\frac{i2n\pi y}{T_y}} dy \tag{C.29}$$

次に図 C.2(a) において比誘電率が ϵ_{in} で表される領域の比誘電率が 1.0 である構造 (図 C.2(c)) の回折次数 m,n に対応する Fourier 係数 $B_{m,n}$ は次式のようになる．

$$B_{m,n} = \frac{1}{T_x T_y} \int_{x_m}^{x_p} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}} dx \int_{y_m}^{y_p} e^{-\frac{i2n\pi y}{T_y}} dy \tag{C.30}$$

図 C.2(a) で表される二次元周期構造の比誘電率分布を表すブロック Toeplitz 行列は, それぞれ $A_{m,n}, B_{m,n}$ を要素とするブロック Toeplitz 行列 $[\![A]\!], [\![B]\!]$ を用いて次のように表すことができる．

$$[\![\epsilon]\!] = \epsilon_{out}([\![A]\!] - [\![B]\!]) + \epsilon_{in}[\![B]\!] \tag{C.31}$$

方法 2

式 C.31 で表した方法以外に図 C.2(a) で表す構造の比誘電率分布は図 C.2(c), (d), (e) で表される構造に対応するフーリエ係数 $B_{m,n}, C_{m,n}, D_{m,n}$ と，そこから作られるブロック Toeplitz 行列 $[\![B]\!], [\![C]\!], [\![D]\!]$ を用いて次のようにも表すことが出来る．

$$[\![\epsilon]\!] = \epsilon_{out}[\![C]\!] + \epsilon_{out}([\![D]\!] - [\![B]\!]) + \epsilon_{in}[\![B]\!] \tag{C.32}$$

ここで $C_{m,n}, D_{m,n}$ は次の通りである．

$$C_{m,n} = \frac{1}{T_x T_y} \int_{-0.5T_x}^{0.5T_x} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}} dx \int_{y_p}^{y_m+T_y} e^{-\frac{i2n\pi y}{T_y}} dy \tag{C.33}$$

$$D_{m,n} = \frac{1}{T_x T_y} \int_{-0.5T_x}^{0.5T_x} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}} dx \int_{y_m}^{y_p} e^{-\frac{i2n\pi y}{T_y}} dy \tag{C.34}$$

方法 3

C.32 の中で

$$\epsilon_{out}([\![D]\!] - [\![B]\!]) + \epsilon_{in}[\![B]\!] \tag{C.35}$$

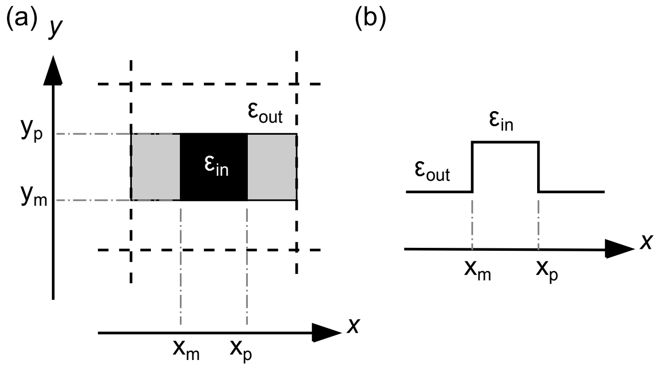

図 C.3　(a) 図 C.2(a) から切り出した，x 軸方向に比誘電率の不連続点を有する領域，(b) 本図 (a) の比誘電率分布を x 軸に投影した比誘電率分布

で表される図 C.3(a) に示す構造を，更に別の方法で表現する事を考える．図 C.3(b) で表される図 C.3(a) 構造の x 軸に投影した一次元周期構造の比誘電率分布を表すフーリエ係数 F_m は次のように表すことができる．

$$F_m = \frac{\epsilon_{out}}{T_x}\int_{x_p}^{x_m+T_x} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}}dx + \frac{\epsilon_{in}}{T_x}\int_{x_m}^{x_p} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}}dx \tag{C.36}$$

F_m を用いて表される一次元周期構造の比誘電率分布を表す Toeplitz 行列 $\mathbf{M_1}$ は $(2M+1)$ 行 $(2M+1)$ 列のサイズであり，次のように表される．

$$\mathbf{M_1} = \begin{pmatrix} F_0 & F_{-1} & \dots & F_{-2M} \\ F_1 & F_0 & \dots & F_{-2M+1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ F_{2M} & F_{2M-1} & \dots & F_0 \end{pmatrix} \tag{C.37}$$

次に図 C.3(a) の構造を y 軸に投影し，構造がある部分を 1.0, 無い部分を 0.0 とした比誘電率分布を表すフーリエ係数 G_n は次のように表される．

$$G_n = \frac{1}{T_y}\int_{y_m}^{y_p} e^{-\frac{i2n\pi y}{T_y}}dy \tag{C.38}$$

G_n から作られる一次元周期構造の Toeplitz 行列 $\mathbf{M_2}$ は次のように表現される．$\mathbf{M_2}$ の行列サイズは $(2N+1)$ 行 $(2N+1)$ 列である．

$$\mathbf{M_2} = \begin{pmatrix} G_0 & G_{-1} & \dots & G_{-2N} \\ G_1 & G_0 & \dots & G_{-2N+1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ G_{2N} & G_{2N-1} & \dots & G_0 \end{pmatrix} \tag{C.39}$$

先に Eq. C.18 で表した比誘電率分布を表すブロック Toeplitz 行列のサイズは $(2M+1)(2N+1)$ 行 $(2M+1)(2N+1)$ 列であり，対応する回折次数とその要素の位置は

明らかになっている．そこで $\mathbf{M_1}, \mathbf{M_2}$ を元に，行列サイズを $(2M+1)(2N+1)$ 行 $(2M+1)(2N+1)$ 列と拡大した行列 $\mathbf{M_3}, \mathbf{M_4}$ を用い，その要素ごとの積をとった行列 **M5** を用いる事で図 C.3(a) で示した構造の比誘電率分布を表すブロック Toeplitz 行列を作ることができる．

ここで $\mathbf{M_3}$ は **M1** を元に作成した行列であり，$m_1 = 1, 2, \ldots, 2M, 2M+1$，$m_2 = 1, 2, \ldots, 2M, 2M+1$ とした時に，その行要素で $(m_1-1)(2N+1)+1$ 行から $m_1(2N+1)$ 行，列要素で $(m_2-1)(2N+1)+1$ 列から $m_2(2N+1)$ 列までの小行列の $(2N+1)(2N+1)$ 個の要素全ては，**M1** の m_1 行 m_2 列の要素に等しく，一方，$\mathbf{M_4}$ は $\mathbf{M_2}$ を元に作製した行列であり，その行要素で $(m_1-1)(2N+1)+1$ 行から $m_1(2N+1)$ 行，列要素で $(m_2-1)(2N+1)+1$ 列から $m_2(2N+1)$ 列までの小行列は $\mathbf{M_2}$ に等しい．

これにより図 C.2(a) で示す比誘電率分布を持つブロック Toeplitz 行列は次のように表される．

$$[\![\epsilon]\!] = \epsilon_{out}[\![C]\!] + \mathbf{M5} \tag{C.40}$$

実装の確認

式 C.31，C.32，C.40 により作成したブロック Toeplitz 行列は何れの方法をとっても最終的には同一となり，ブロック Toeplitz 行列が表す比誘電率分布 $\epsilon(x, y)$ はブロック Toeplitz 行列の要素であるフーリエ係数 $\epsilon_{\alpha\alpha,m,n}$ を用いて式 C.5 で表される．ここで $\epsilon_{out} = 1.0, \epsilon_{in} = 2.0$ とし，C.31, C.32, C.40 を元に作成したブロック Toeplitz 行列から，プロットした比誘電率分布を図 C.4 に示す．最大展開次数 M, N をそれぞれ 20 とした．内部の正方形形状の一辺の長さは周期の半分である．比誘電率分布のプロット結果からも方法 1,2,3 何れの方法からも目的とするブロック Toeplitz 行列が作成できることが確認できる．

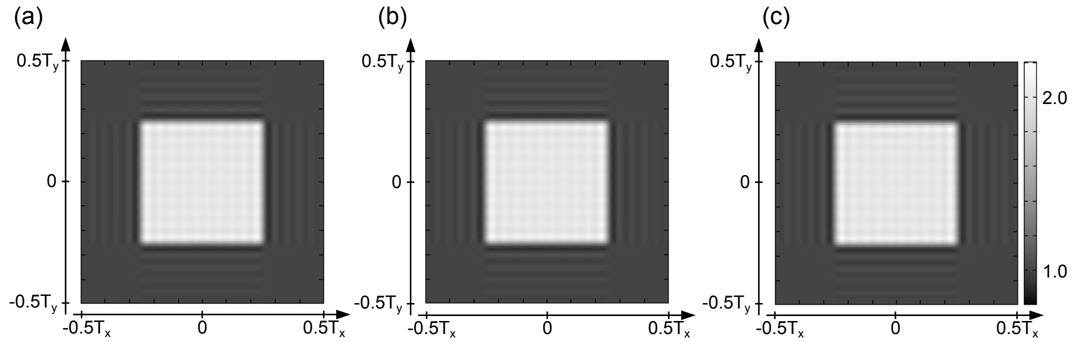

図 C.4 (a) 式 C.31 から構成されるブロック Toeplitz 行列の要素のフーリエ係数から作成した比誘電率分布, (b) 同式 C.32 に対応する比誘電率分布, (c) 同式 C.40 に対応する比誘電率分布

C.4　ブロック Toeplitz 行列実装上の工夫とその背景

本研究で行った実装上の工夫について述べる前に，まず FMM の収束性向上の為に報告されている Fourier Factorization Rule と呼ばれる手法とその背景について紹介する．

C.4.1　収束性とその背景

FMM 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り，盛んに研究されてきた．当初 1 次元周期のグレーティング構造に対し，TM モードの条件で収束性に問題があったが，Li [2] の研究により TM モードの計算に対する収束性が大幅に改善された．Li が提案した収束性向上手法は文献中で Fourier Factorization Rule と呼ばれ，現在用いられている．これは一次元周期構造に対して，周期構造の比誘電率分布が構造の境界で不連続となり，さらに入射電場が構造境界において不連続となる TM モードでは，構造の比誘電率分布を表現する Toeplitz 行列をまず比誘電率の逆数に対する分布で表し，つづいて Toeplitz 行列に逆行列処理 (Inverse rule) を行うというものであった．一方，周期構造の比誘電率分布が不連続点を持つが，入射電場が連続となる TE モードの時は Toeplitz 行列は比誘電率の分布で表し逆行列処理は行わない．(Lorents rule と呼ばれる)．文献でも述べられているが [2]，展開実数を十分大きくまでとった際に，比誘電率の逆数の分布から作成した Toeplitz 行列が，通常の方法で作成した Toeplits 行列と要素が一致する事を仮定している．この Fourier factorization rule は 2 次元に拡張され，その収束性が向上することが報告されている [3–5].

しかし，図 C.1(a) に示すような 2 次元周期構造への Li の提唱したところの Fourier factorization rule の適用は，式 C.28 中で $[\![\epsilon_{xx}]\!]$ に対しては x 方向には Inverse rule を y 方向には Lorents rule を適用する必要があり，また $[\![\epsilon_{yy}]\!]$ に対しては y 方向には Inverse rule を x 方向には Lorents rule を適用する必要がある．x,y 両方向の軸の比誘電率分布の情報を含む Toeplitz 行列に，このような処理を行う詳細な実装方法については文献 [3–5] でも詳細には述べられていない．本研究では，Fourier factorization rule の適用を前節手法 3 のブロック Toeplitz 行列の実装方法を元に行った．ただし文献 [3] の記述にもあるが，二次元周期構造への Fourier Factorization Rule の軸毎への適用は数学的に示されている訳ではないため，実装上の工夫として適用し，得られたブロック Toepliz 行列の要素から比誘電率分布を表示することでその実装の確認とする．

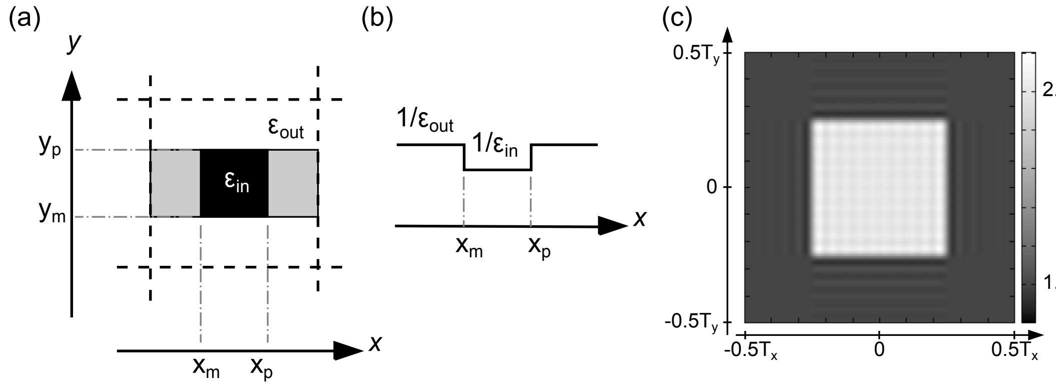

図 C.5　(a) x 方向に比誘電率の不連続点を含む比誘電率分布, (b) x 軸に対する比誘電率の逆数の分布, (c) 式 C.43 から構成されるブロック Toeplitz 行列の要素のフーリエ係数から作成した比誘電率分布

C.4.2　本研究における実装上の工夫

図 C.3(a) と同様に，図 C.5(a) に示すように構造境界を含む比誘電率分布を用い，$[\![\epsilon_{xx}]\!]$ の実装について記述する．構造の分布を x 軸に投影し比誘電率の逆数で表記すると図 C.5(b) のようになる．式 C.36 と同様に一次元周期構造の比誘電率分布を表現するフーリエ係数 H_m は次のようになる．

$$H_m = \frac{1}{\epsilon_{out}T_x}\int_{x_p}^{x_m+T_x} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}}dx + \frac{1}{\epsilon_{in}T_x}\int_{x_m}^{x_p} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}}dx \tag{C.41}$$

H_m を用いて表される一次元周期構造の比誘電率分布を表す Toeplitz 行列 $\mathbf{M_6}$ は $(2M+1)$ 行 $(2M+1)$ 列のサイズであり，次のように表される．

$$\mathbf{M_6} = \begin{pmatrix} H_0 & H_{-1} & \dots & H_{-2M} \\ H_1 & H_0 & \dots & H_{-2M+1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ H_{2M} & H_{2M-1} & \dots & H_0 \end{pmatrix} \tag{C.42}$$

$\mathbf{M_6}$ の逆行列をとった $\mathbf{M_6}^{-1}$ を元に $\mathbf{M_3}$ のときと同様に $(2M+1)(2N+1)\times(2M+1)(2N+1)$ の行列に拡張した $\mathbf{M_7}$ と $\mathbf{M_4}$ の要素ごとの積をとったブロック Toeplitz 行列 $\mathbf{M_8}$ により，図 C.5(a) であらわされる比誘電率分布が表現でき，最終的に図 C.2(a) に示される比誘電率分布を表すブロック Toeplitz 行列は次式のように表される．

$$[\![\epsilon]\!] = \epsilon_{out}([\![A]\!]-[\![D]\!]) + \mathbf{M_8} \tag{C.43}$$

図 C.4 のときと同様に式 C.43 で比誘電率分布をプロットした結果を図 C.5(c) に示す．図より，比誘電率分布は図 C.4 に示す分布と等しくなり，本手法により x 方向にのみ逆行列処理を施したブロック Toeplitz 行列の実装を確認した．

同様にして $[\![\epsilon_{yy}]\!]$ も次のように実装可能である．図 C.6(a) で表される誘電率分布を y

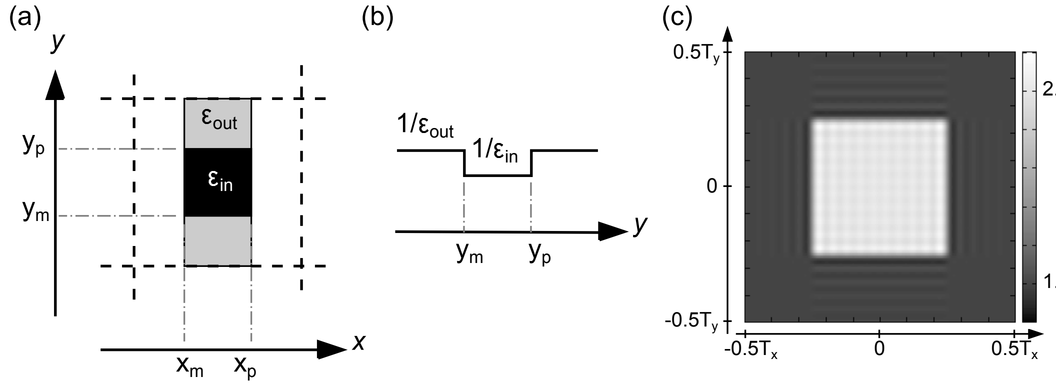

図 C.6 (a) y 方向に比誘電率の不連続点を含む比誘電率分布, (b) y 軸に対する比誘電率の逆数の分布, (c) 式 C.48 から構成されるブロック Toeplitz 行列の要素のフーリエ係数から作成した比誘電率分布

軸に投影し，比誘電率の逆数で表記すると図 C.6(b) のようになる．式 C.41 にならいフーリエ係数 I_n は次のようになる．

$$I_n = \frac{1}{\epsilon_{out} T_y} \int_{y_p}^{y_m+T_y} e^{-\frac{i2n\pi y}{T_y}} dy + \frac{1}{\epsilon_{in} T_y} \int_{y_m}^{y_p} e^{-\frac{i2n\pi y}{T_y}} dy \tag{C.44}$$

I_n を用いて表される一次元周期構造の比誘電率分布を表す Toeplitz 行列 $\mathbf{M_9}$ は $(2N+1)$ 行 $(2N+1)$ 列のサイズであり次のように表される．

$$\mathbf{M_9} = \begin{pmatrix} I_0 & I_{-1} & \dots & I_{-2N} \\ I_1 & I_0 & \dots & I_{-2N+1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ I_{2N} & I_{2N-1} & \dots & I_0 \end{pmatrix} \tag{C.45}$$

次に，図 C.6(a) の構造を x 軸に投影し，構造がある部分を 1.0, 無い部分を 0.0 とした比誘電率分布を表すフーリエ係数 J_m は次のように表される．

$$J_m = \frac{1}{T_x} \int_{x_m}^{x_p} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}} dx \tag{C.46}$$

J_m から作られる一次元周期構造の Toeplitz 行列 $\mathbf{M_{10}}$ は次のように表現される．$\mathbf{M_{10}}$ は $(2M+1)$ 行 $(2M+1)$ 列の行列である．

$$\mathbf{M_{10}} = \begin{pmatrix} J_0 & J_{-1} & \dots & J_{-2M} \\ J_1 & J_0 & \dots & J_{-2M+1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ J_{2M} & J_{2M-1} & \dots & J_0 \end{pmatrix} \tag{C.47}$$

$\mathbf{M_9}$ の逆行列をとった $\mathbf{M_9^{-1}}$ を元に $\mathbf{M_4}$ のときと同様に $(2M+1)(2N+1)$ 行 $(2M+1)(2N+1)$ 列の行列に拡張した $\mathbf{M_{11}}$ と，$\mathbf{M_{10}}$ を元に $\mathbf{M_3}$ のときと同様に $(2M+1)(2N+1)$ 行 $(2M+1)(2N+1)$ 列の行列に拡張した $\mathbf{M_{12}}$ の要素ごとの積をとったブロック Toeplitz 行列 $\mathbf{M_{13}}$ により，図 C.6(a) であらわされる比誘電率分布が表現でき，最終的に図 C.2(a) に示される比誘電率分布を表すブロック Toeplitz 行列は次式のように表される．

$$[\![\epsilon]\!] = \epsilon_{out}[\![K]\!] + \mathbf{M_{13}} \tag{C.48}$$

ここで $[\![K]\!]$ は，図 C.2(f) の比誘電率分布を表すブロック Toeplitz 行列であり，その要素のフーリエ係数 $K_{m,n}$ は次式で表される．

$$K_{m,n} = \frac{1}{T_x T_y}\int_{x_p}^{x_m+T_x} e^{-\frac{i2m\pi x}{T_x}}dx \int_{-0.5T_y}^{0.5T_y} e^{-\frac{i2n\pi y}{T_y}}dy \tag{C.49}$$

図 C.6(c) に式 C.48 により比誘電率分布をプロットした結果を示す．図より，比誘電率分布は図 C.4 C.5(c) に示す分布と等しくなり，本手法により y 方向にのみ逆行列処理を施したブロック Toeplitz 行列の実装を確認した．

C.5　各領域における電場の表記

以後の境界条件の適用，散乱行列法等については文献や書籍等で扱われていることから [1, 6–8]，以下に各領域における電場の表記のみ記述し省略する．本研究における，計算手法，プログラムへの実装方法については文献 [1] にしたがっている．

領域 II 内の電場

前述したように式 C.28 より 2(2M+1)(2N+1) 個の固有値と固有ベクトルが求まる．文献 [1] にならいモード番号を上付きの g で表現すると, 図 C.1 内，領域 II の電場はプラス方向に伝播する波とマイナス方向に伝播する波の各モードの足しあわせとして, 次のように記述できる．

$$\begin{aligned}
\mathbf{E} &= \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \\
&= \sum_{g=1}^{2(2M+1)(2N+1)} \left[C_p^g e^{ik_z^g(z-z_m)} \sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N} \begin{pmatrix} E_{x,m,n}^g \\ E_{y,m,n}^g \\ E_{z,m,n}^{g+} \end{pmatrix} e^{i(k_{x,m}x+k_{y,n}y)} \right. \\
&\left. + C_m^g e^{-ik_z^g(z-z_p)} \sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N} \begin{pmatrix} E_{x,m,n}^g \\ E_{y,m,n}^g \\ E_{z,m,n}^{g-} \end{pmatrix} e^{i(k_{x,m}x+k_{y,n}y)} \right]
\end{aligned} \tag{C.50}$$

ここで k_z^g および $E^g_{x,m,n}, E^g_{y,m,n}$ は, それぞれ式 C.28 から求めた固有値および固有ベクトルの要素から求まる．$E^{g+}_{z,m,n}$ もしくは $E^{g-}_{z,m,n}$ は次のように求めることができる．ここでは $E^{g+}_{z,m,n}$ について記述する．式 C.24 は次の二つの式に展開できる．

$$\mathbf{\Omega_1}\begin{pmatrix}\mathbf{H}_\mathrm{y}\\ \mathbf{H}_\mathrm{x}\end{pmatrix} = \frac{k_z}{k_0}\begin{pmatrix}\mathbf{E}_\mathrm{y}\\ \mathbf{E}_\mathrm{x}\end{pmatrix} \tag{C.51}$$

$$\mathbf{\Omega_2}\begin{pmatrix}\mathbf{E}_\mathrm{y}\\ \mathbf{E}_\mathrm{x}\end{pmatrix} = \frac{k_z}{k_0}\begin{pmatrix}\mathbf{H}_\mathrm{y}\\ \mathbf{H}_\mathrm{x}\end{pmatrix} \tag{C.52}$$

各モードの $\mathbf{E}^g_x, \mathbf{E}^g_y$ および k^g_z を, 式 C.51 もしくは式 C.52 に代入する事で, $\mathbf{H}_x, \mathbf{H}_y$ が求まる．得られた $\mathbf{H}_x, \mathbf{H}_y$ および式 A.6 を用いて

$$\mathbf{E}_\mathrm{z} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}[\![\epsilon_{zz}]\!]^{-1}\Big[\mathbf{k}_\mathrm{y}\mathbf{H}_\mathrm{x} - \mathbf{k}_\mathrm{x}\mathbf{H}_\mathrm{y}\Big] \tag{C.53}$$

より $E^{g+}_{z,m,n}$ を要素にもつ $\mathbf{E}_z$ が求まる．$E^{g-}_{z,m,n}$ は, k^g_z をマイナス方向への伝搬定数 $-k^g_z$ とし, 同様に計算する事で求まる．C^g_p, C^g_m は境界条件適用の結果求まる各モード毎のプラス方向, マイナス方向への結合係数である．

領域 I 内の電場

領域 I 内の入射波は, 各回折次数に対応する振幅を $E_{i,\alpha,m,n}$ として次のように記述できる．

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{in} &= \begin{pmatrix}E_{i,x}\\ E_{i,y}\\ E_{i,z}\end{pmatrix}\\ &= \sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N}\begin{pmatrix}E_{i,x,m,n}\\ E_{i,y,m,n}\\ E_{i,z,m,n}\end{pmatrix}e^{i\{k_{x,m}x+k_{y,n}y+k^{\mathrm{I}}_{z,m,n}(z-z_m)\}}\end{aligned} \tag{C.54}$$

係数 $E_{i,x,m,n}, E_{i,y,m,n}, E_{i,z,m,n}$ は入射条件により決まり，入射直線偏向の電場方向を x とした時には $E_{i,x,m,n}$ において $m=0, n=0$ の係数のみが値を持ち，その他の m, n に関する係数および全ての $E_{i,y,m,n}$ は 0 となる．対応する $E_{i,z,m,n}$ および磁場は, 式 A.5, A.6 から求まる．

領域 I 内の反射波は, 各回折次数に対応する振幅を $E_{r,\alpha,m,n}$ として次のように記述される．

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{ref} &= \begin{pmatrix}E_{r,x}\\ E_{r,y}\\ E_{r,z}\end{pmatrix}\\ &= \sum_{m=-M}^{M}\sum_{n=-N}^{N}\begin{pmatrix}E_{r,x,m,n}\\ E_{r,y,m,n}\\ E_{r,z,m,n}\end{pmatrix}e^{i\{k_{x,m}x+k_{y,n}y-k^{\mathrm{I}}_{z,m,n}(z-z_m)\}}\end{aligned} \tag{C.55}$$

領域 III 内の電場

領域 III 内の透過波は, 各回折次数に対応する振幅を $E_{t,\alpha,m,n}$ として次のように記述される.

$$
\begin{aligned}
\mathbf{E}_{tra} &= \begin{pmatrix} E_{t,x} \\ E_{t,y} \\ E_{t,z} \end{pmatrix} \\
&= \sum_{m=-M}^{M} \sum_{n=-N}^{N} \begin{pmatrix} E_{t,x,m,n} \\ E_{t,y,m,n} \\ E_{t,z,m,n} \end{pmatrix} e^{i\{k_{x,m}x+k_{y,n}y+k^{\mathrm{III}}_{z,m,n}(z-z_p)\}}
\end{aligned} \tag{C.56}
$$

領域 I, および III 内の z 方向の波数 $k^{I}_{z,m,n}, k^{III}_{z,m,n}$ は次の通りである. 領域 I, III の等方性媒質の比誘電率をそれぞれ $\epsilon_I, \epsilon_{III}$ とする.

$$
k^{\mathrm{I}}_{z,m,n} = \sqrt{\epsilon_{\mathrm{I}} k_0^2 - k_{x,m}^2 - k_{y,n}^2} \tag{C.57}
$$

$$
k^{\mathrm{III}}_{z,m,n} = \sqrt{\epsilon_{\mathrm{III}} k_0^2 - k_{x,m}^2 - k_{y,n}^2} \tag{C.58}
$$

各領域の電場および, 磁場の x, y 成分に関し $z = z_m$ および $z = z_p$ で境界条件を適用することで，各回折次数に応じた反射振幅および透過振幅が求まる．透過率，反射率の計算は，例えば入射光の電場振動方向が x 方向で振幅を 1 とし, 偏光の回転が生じない場合，回折次数が x 方向に m 次，および y 方向に n 次の電場 x 成分の反射振幅 $E_{r,x,m,n}$ に対応する反射率は $|E_{r,x,m,n}|^2 Re(k^{\mathrm{I}}_{z,m,n}/k^{\mathrm{I}}_{z,0,0})$ で表される．同様に透過率は $|E_{t,x,m,n}|^2 Re(k^{\mathrm{III}}_{z,m,n}/k^{\mathrm{I}}_{z,0,0})$ で表される．ここで Re は実部を表す．

図 C.1 では周期構造層を一層としたが，周期構造層が多層の際にはそれぞれの層において固有値解析を行い，各層ごとに逐次境界条件を適用し，各層における各回折次数に対応した反射振幅と透過振幅を求める．その後, 散乱行列法 [1, 8–10] により，最終的に入射側等方性媒体と出射側等方性媒体における各回折次数に対応した反射振幅と透過振幅が求まり，透過率と反射率の計算が可能となる．

C.6　実装の検証

実装の検証を行うために，文献 [11] 内 Fig. 12(b) にて回折効率の収束値が示されている構造を用いて計算を行った．

計算を行った構造は x, y 方向の周期は 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 50 nm である．下部基板は屈折率 1.5 で表現されるガラスであり，上部は空気である．波長 500 nm 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とした時の 0 次の反射効率をプロットした結果を図 C.7 に示す.

図で黒色菱形プロットが本研究で実装に工夫を行ったブロック Toeplitz 行列を用いた計算結果であり，式 C.28 中で $[\![\epsilon_{xx}]\!]$ に対しては x 方向のみに逆行列処理を，$[\![\epsilon_{yy}]\!]$ に対しては y 方向のみに逆行列処理を行った．図中で白抜き丸プロットと黒色三角プロットは比較の為にそれぞれ，ブロック Toeplitz 行列に対して x, y 両軸方向に逆行列処理を行わなかったときと，逆行列処理を行った際の計算結果に相当する．本付録で記述した片軸のみに逆行列処理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 [11] の結果と完全に一致し，本方法で FMM の収束性が向上する事が確かめられた．今回実装を行った FMM は，本文中にも記載したが，各種文献の周期構造に対しても回折効率の計算結果が一致することを確認している．

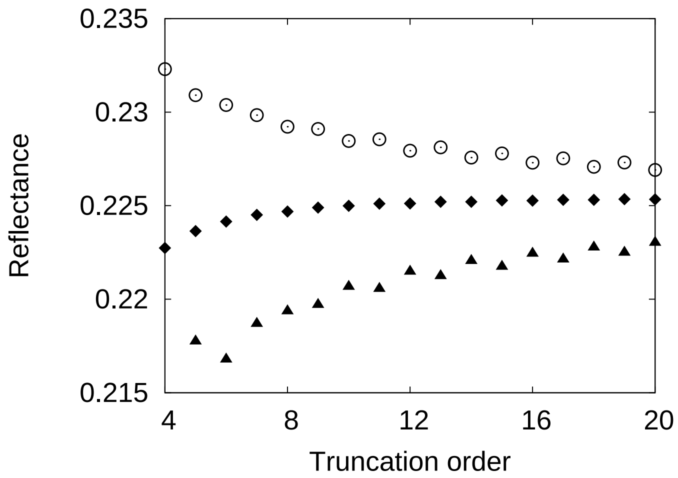

図 C.7　実装を行った FMM の収束性の確認．比較対象として文献 [11], Fib. 12(b) に記載の構造に対して計算を実施.

参考文献

[1] H. Kim, B. Lee, and J. Park, *Fourier Modal Method and Its Applications in Computational Nanophotonics* (CRC Press, 2012).

[2] L. Li, “Use of fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures,” Journal of Optical Society of America A **13**, 1870–1876 (1996).

[3] G. Granet and J.-P. Plumey, “Parametric formulation of the Fourier modal method for crossed surface-relief gratings,” Journal of Optics A: Pure and Applied Optics **4**, S145 (2002).

[4] L. Li, "Fourier modal method for crossed anisotropic gratings with arbitrary permittivity and permeability tensors," Journal of Optics A: Pure and Applied Optics **5**, 345 (2003).

[5] T. Weiss, N. Gippius, S. Tikhodeev, G. Granet, and H. Giessen, "Efficient calculation of the optical properties of stacked metamaterials with a fourier modal method," Journal of Optics A: Pure and Applied Optics **11**, 114019 (2009).

[6] M. Moharam, E. B. Grann, D. A. Pommet, and T. Gaylord, "Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings," Journal of Optical Society of America A **12**, 1068–1076 (1995).

[7] M. Nevière and E. Popov, *Light Propagation in Periodic Media: Differential Theory and Design* (CRC Press, 2002).

[8] 岡本隆之，梶川浩太郎, プラズモニクス　基礎と応用(講談社, 2010).

[9] L. Li, "Formulation and comparison of two recursive matrix algorithms for modeling layered diffraction gratings," Journal of Optical Society of America A **13**, 1024–1035 (1996).

[10] M. Moharam and A. B. Greenwell, "Efficient rigorous calculations of power flow in grating coupled surface-emitting devices," in "Photonics Europe," (International Society for Optics and Photonics, 2004), pp. 57–67.

[11] T. Schuster, J. Ruoff, N. Kerwien, S. Rafler, and W. Osten, "Normal vector method for convergence improvement using the rcwa for crossed gratings," Journal of Optical Society of America A **24**, 2880–2890 (2007).