# フジテレビジョン賞

# ナノスリットからの光の回折: ナノ光学が拓く回折レンズ

パデュー大学電気情報工学専攻 PhD コース4年 (4th year PhD student, School of Electrical and Computer Engineering, Purdue University)

石井 智

### 1. 緒 言

20世紀はエレクトロニクスが進歩し、今世紀は光デバイスや光通信のさらなる発展が見込 まれている。その進展を支えているのがナノテクノロジーであり、ナノ光学は光の新たな性 質や可能性を我々に示してくれる。だが、光はなかなか理解しがたい。20世紀を代表する物 理学者アルバート・アインシュタインは光に関する革新的な論文をいくつも発表したが、そ んな彼でも光を一言で言い表すことができなかった[1]。光がとらえにくい存在である理由 の一つは、光はある時は粒子のようにふるまい、時に量子性を示し、そして波動性も併せ持 つ。粒子性と量子性が主に特殊な実験室の環境でのみ観測できる性質であるのに対して、波 動性は簡単な方法で確かめることができる。

光の波動性を証明した最も初期の実験の一つが、トーマス・ヤングの行った光の回折の実 験である [2]。ヤングは窓の日よけの穴から部屋に入ってくる日光を厚紙によって二つに分 け、壁に映った回折光の干渉縞を観察し、光が波の性質を持つことを証明した。よく教科書 に載っている二重スリットを使った回折実験でも同様の干渉縞が得られ、こちらのほうが良 く知られているだろう。光の二重スリットからの回折および干渉パターンは、高校の物理程 度の知識でも正確に表すことができ、古典的な現象として扱われてきた(図1(a) 参照)。

こうした現状の中で、本論文では光デバイスへの応用を見据えて、光の最も基本的な性質 である波動性に立ち返り、ナノスリットからの回折を研究する。近年のナノテクノロジーの 急速な進歩により、ナノメートルのオーダーで微細加工することが可能になってきた。光の 波長は 400nm から 700nm なので、例えば 10nm は光の波長にとって十分小さい。しかし、

図1 (a) 古典的な二重スリットの回折と干渉。(b, c) ナノ光学による光の回折の概念図。スリットの幅を ナノスケールで変えると回折光の位相( $\Delta \phi$ )を制御でき(b)、実効誘電率が極端に強い異方性媒質中( $\epsilon_x < 0 < \epsilon_z$ )では光は広がらずにビーム状に伝搬する(c)。

(hyperbolic metamaterial)

光の伝搬はナノ構造に影響される。例えば、ナノメートルの精度で幅を制御した金属スリットからの回折光は図1(b)に示す幅に依存した位相の遅れを生じ、それによって干渉の仕方 も変わってくる[3, 4]。またこれまで暗黙の了解のもと、光の回折および干渉は大気中すな わち等方的で誘電率が1の空間で起こることを仮定していた。ナノスケールの微細加工によ り、異方性の極端に強い人工的な媒質(ハイパボリックメタマテリアル)を作ることができ、 図1(c)のようにその中で回折した光は広がらずにビームのように直進する[5, 6]。本研究で 明らかになったナノ光学による回折を使うと、平坦で非常に薄くかつコンパクトな光集光デ バイスができ、将来の光情報通信や光デバイスへの応用が期待できる。

本論文の構成は次のとおりである。個々の原理を簡単に説明しながら、開発した3つのナノ回折レンズを順に紹介する。偏光依存性ナノスリットレンズは、入射偏光によって凸レンズから凹レンズになる[4]。可変ナノスリットレンズは集光強度が温度により2.5倍変化する [7]。その後極端に強い異方性媒質について概説し[6]、異方性媒質中で波長限界以下の干渉 縞ができることを発表する[8]。最後に我々が開発したデバイスの有用性と今後の展望について述べる。

#### 2. 偏光依存性ナノスリットレンズ

回折現象を用いた集光素子として代表的なものはフレネルレンズであり、紫外線やX線 など高エネルギーの電磁波を扱う光学機器等においては現在も使われている。

光の回折による集光素子に金属を用いると、その特性をさらに広げることができる。金属 の誘電率は可視光領域では有限の負の値(負の一桁から二桁の値)をとり、これが鍵となる。



**図2** (a) ナノスリットを透過した光の位相のスリット幅依存性。オレンジ色が TM 偏光でのプラズモニックモードを表し、緑色が TE 偏光でのフォトニックモードを表す。(b) TM レンズと TE レンズの概念図。(c-f) TM レンズと TE レンズの入射偏光による集光・発散特性。

金の薄膜にナノスケールの直線状のスリットを刻み、そのスリットを透過する線形偏光を考 えよう。この際、スリットは一次元の導波路とみなすことができる。電場の向きがスリット に直行する TM 偏光の場合、光は表面プラズモンに由来するプラズモニックモードとして スリットを透過する。他方、電場の向きがスリットに平行な TE 偏光の場合、光はフォトニッ クモードとしてスリットを透過する。スリット透過後の光はどちらのモードもスリット幅に 依存する。興味深いことに、分散関係の違いによりプラズモニックモードの場合はスリット 幅が広がるほど位相が速くなり、フォトニックモードの場合は真逆のスリット幅依存性をも つ(図2(a) 参照)。

これら二つのモードの位相のスリット幅依存性を利用して、図2(b)に示すように TM 偏 光を集光する TM レンズと TE 偏光を集光する TE レンズを設計することができる。TM レ ンズは中心に最も幅の狭いスリットをおき、外側のスリットほど幅が広げる。TE レンズは その逆で、中心に幅の広いスリットをおき、外側のスリットほど幅を狭める。すると、TM レンズに入射する TM 偏光も TE レンズに入射する TE 偏光もレンズの中心部を通る光の 位相がレンズの外側を通る光より遅れるため、入射光は凸レンズのように集光される(図2(c) と 2(e)参照)。それとは逆に、TE 偏光が TM レンズを、TM 偏光が TE レンズを透過すると、 レンズの中心部を通る光の位相がレンズの外側を通る光の位相よりも早くなるため、どちら の場合も透過光は凹レンズのように発散する(図2(d) と 2(f) 参照)。すなわち、これらのナ ノスリットレンズは偏光によって凸レンズ或いは凹レンズとして働くのである。

実験では、ナノスリットレンズのデザインを決めるために、グリーン関数を用いた解析的 なモデルを構築し、TM レンズも TE レンズも集光点が 15µm になるようにスリット幅お よびスリットの位置をきめた。実験では、ガラス基板上に 600nm の金の膜を蒸着し、上記 のモデルに基づくスリットは集束イオンビームを利用して形成した。得られた TM レンズ



図3 (a, b) TM レンズ(a)と TE レンズ(b)の走査型電子顕微鏡写真。(c) 透過光測定装置の概念図。

と TE レンズの走査型電子顕微鏡写真をそれぞれ図3 (a) と 3 (b) に示す。スリットレンズの 透過特性を評価するための光学系の概念図を図3(c)に示す。直線偏光した波長531nm のレー ザー光をガラス基盤側から照射し、透過光は光学顕微鏡に取り付けた CCD カメラで記録し た。測定結果の検証のために、有限要素法を用いた数値計算も行った。

実験結果と数値計算の結果は図4のとおりである。図4から、TM レンズも TE レンズも共 に図2の通り、TM レンズは TM 偏光を集光して TE 偏光を発散し、TE レンズはその反対 の偏光依存性を示した。さらに TM レンズも TE レンズも設計通り集光距離が 15 µ m になっ ている。測定結果と数値計算結果との一致も非常によい。

本研究では、ナノスケールで幅の異なる複数のスリットからなるナノスリットレンズ(TM レンズと TE レンズ)をデザインし作製した。どちらのレンズも非常に強い直線偏光依存性 を持ち、偏光面を 90度変えることでレンズの特性が凸レンズか凹レンズに変わる。



**図4** TM レンズ(左側)とTE レンズ(右側)の偏光依存性。上段は実験結果、下段は数値計算結果。(a), (c), (e), (g)はTM 偏光、(b), (d), (f), (h)はTE 偏光。カラースケールはそれぞれの図に関して最大値が 1になるように規格化してある。

#### 3. 集光強度可変ナノスリットレンズ

スリットレンズの透過率を外的に制御するために、続いての研究では5CBという液晶を 使用した。この液晶は、ネマチック相から等方的な相になる相転移に伴って、0.1の位で屈 折率変化を起こす[9]。相転移温度は35℃と室温に近く、相転移を起こすことが容易である。 また表面エネルギーの関係から、室温の液晶は金の表面に垂直に配行する(図5(a))。異方性 物質の分散関係式を解くと、ネマチック相から等方的な相になる際の屈折率変化により、プ ラズモニックモードもフォトニックモードも金属スリット内の伝搬効率が上がる[7]。その ため液晶の屈折率変化に伴って、TM レンズと TE レンズの集光強度を可変にすることがで きる。

実験では前述の手順で TM レンズを作製し、スリットを液晶で満たした。今回はより短 い集光距離のナノスリットレンズが作成できることを示すために、集光距離が 5µm になる ように構造の設計をした。作製した TM レンズの走査型電子顕微鏡写真をそれぞれ図5(c) と5(d) に示す。測定は 22℃の室温と液晶の相転移温度より高い 42℃の両方で行った。TM レンズの実験結果及び有限要素法による数値計算結果をそれぞれ図6に示す。図6から明らか なように、仮説のとおりどちらのレンズも温度が高いときのほうが室温のときより透過光 は強くなり、約2.7倍集光強度が上がった。また、集光距離は設計通り 5µm になっている。 実験結果は数値計算結果と定量的に良く一致した。



図5 (a, b) 金のナノスリット中の液晶の配向の様子。緑色の線が液晶分子 (LCs) を表す。室温 (RT) で液 晶分子が金表面に垂直に並んでいて (a)、高温 (HT) で液晶分子がランダムな等方的な相になっている (b)。 (c) TM レンズの走査型電子顕微鏡写真。

以上より、液晶の相転移を用いてスリットレンズの透過率を外的にコントロールできることを実験で示すことに成功した。液晶の相変化による強度変化は TE レンズでも TM レンズと同様に行うことができる [7]。



図6 TM レンズの温 度による集光強度変化。 (a) と(b) は実験結果、 (c) と(d) は数値計算 結果。(a) と(c) は室温 (RT)の場合、(b) と(d) は高温(HT)の場合であ る。カラースケールは 高温のときに規格化し てある。

#### 4. 極端に異方性の強い物質中での回折限界以下の干渉縞

波長より十分小さいナノ構造に光が入射すると、光はナノ構造を構成する個々の物質の誘 電特性ではなく、ナノ構造に由来する実効的な誘電率や透磁率を持つ物質を透過したような 応答をする。このため、メタマテリアルはデザイン次第で任意の誘電率と透磁率をもつこと が可能である。メタマテリアルの代表的な応用例は、負の屈折率をもつ物質や映画に出てく るような透明マントである。この10年余りにわたる目覚しいメタマテリアルの研究の中で 様々なメタマテリアルが研究されてきたが、その中でも実効誘電率テンソルの成分のひとつ が負で残りが正である極端に異方的なものはハイパボリックメタマテリアル(HMM)と呼ば れる。実効誘電率テンソルを $\varepsilon = (\varepsilon_x, \varepsilon_y, \varepsilon_z)$ とあらわすとき、HMMでは $\varepsilon_x = \varepsilon_y$ であり、0 >  $\varepsilon_x \varepsilon_z$ となる。

2次元の kx-k2 平面で表した k 空間上での分散曲線は、

$$\frac{k_{\rm x}^2}{\varepsilon_{\rm z}} + \frac{k_{\rm z}^2}{\varepsilon_{\rm x}} = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \tag{1}$$

を用いて描くことができる。比較のために、まず代表的な等方的誘電体であるシリカガラス (SiO<sub>2</sub>)を考えよう。周波数 $\omega$ を固定してガラスの分散曲線を k 空間に表すと、 $0 < \varepsilon_x = \varepsilon_z の$ ため閉じた円となる (図7 (a))。分散曲線は閉じているため、進行する k ベクトルの大きさは有限で、回折限界が存在することがわかる。光の進行方向を示すポインティングベクトル (S)は、分散曲線上に垂直に表せる。このことから、異なる k ベクトルに対して光の進行方向も異なってくる。

一方、HMM の分散曲線は0 > ε<sub>x</sub>ε<sub>z</sub>から双曲線関数となる(図7(b))。この特異な分散関係 により HMM は数々のユニークな特性を持つ。双曲線関数は閉じていないため、HMM 中で は絶対値の大きな k ベクトルも存在できる。それにより回折限界以下の波数成分を伝搬す ることができるため、ハイパーレンズと呼ばれる回折限界以下の像を得ることができる[10]。 光の屈折に注目すると、光が空気中から HMM 内に入るとその屈折角は負になる。また絶 対値の大きな k ベクトルに対しては、進行波の方向は平行になる。



**図7** (a, b) ガラス (a) と銀 / シリカ HMM (b) の分散関係。オレンジ色の矢印は k ベクトルを示し、赤色の 矢印はポインティングベクトル (S)の方向を示す。

HMM の構造自体は、実は単純である。ひとつの方法は、波長より十分薄い金属膜と誘電 体膜の周期的な多層膜を作ることである。今回は銀とシリカの極薄の膜からなる多層膜の HMM を扱い、波長465nm では銀 / シリカ (Ag/SiO<sub>2</sub>) HMM の実効誘電率テンソル成分は  $\varepsilon_x < 0 < \varepsilon_z$ となる。

続いて、一重スリットからの回折光が銀 / シリカ HMM 中とシリカ)中をどのように進 行していくのか見てみよう。幅50nm のクロムのスリットに波長465nm の TM 偏光した光 が入射する場合を有限要素法で計算し、結果を図8 (a, b) に示す。銀とシリカの膜厚はそれ ぞれ 2nm として計算した。回折光は銀 / シリカ HMM 中を 2つの対称なビームとなって進 行する。このビームの進行は図7(b)中の赤色の矢印で示したポインティングベクトルに対 応する。図8(b)のシリカ中の回折光を見てみると、広がりながら進行していく様子がわかる。 回折光の広がりが小さいのは、計算している範囲が 200nm とスリットから近いためである。 スリットがもう一つあると回折光同士は干渉する。スリット間隔が 300nm になるように二 つのスリットを置き、一重スリットの場合と同様に行った数値計算結果を図8(c.d)に示す。 今回は後述する作製した試料と同じ条件にするために、銀/シリカ HMM とシリカの後に フォトレジストがある場合を計算している。図8 (c) に示すように、銀 / シリカ HMM 中で はスリットから 110nm 離れたところで二つのビームが干渉し、レンズのように集光する。 干渉縞は1つしかできず、干渉縞の半値幅は波長の約十分の一である。これは HMM 内では 絶対値の大きなkベクトルが存在できるためで、回折限界以下の干渉縞を得ることができる。 回折光がシリカ中で干渉する場合、図8(d)に示すように514nmと波長より大きな半値幅を 持つ干渉縞が得られる。二つのスリットが十分離れていると、図1(a)に示すような干渉パター ンが遠方に得られる。



図8 有限要素法により得られたスリットからの回折。入射光は TM 偏光した波長465nm の光。(a, b) 一 重スリットが銀 / シリカ HMM と組み合わさっている場合 (a) とバルクのシリカと組み合わさっている場合 (b)。(c, d) 二重スリットが銀 / シリカ HMM と組み合わさっている場合(c) とバルクのシリカと組み合わさっ ている場合(d)。

図8に示した二重スリットからの回折の計算結果を実証するために行った実験手順を図10 に示す。ガラス基板上に蒸着したクロムの薄膜を集束イオンビームで加工することにより二 重スリットを作製した。作製した二重スリットの電子顕微鏡写真は図9(b)である。その上に 5倍に希釈した PMMA をスピンコートすることにより、スリットを埋めて 18nm の PMMA 膜をクロム薄膜上につくった。その上にそれぞれ 15nm の膜厚の銀とシリカの薄膜を交互に 蒸着した。別のガラス基盤を用意し、その上にポジのフォトレジストをスピンコートした。 そして多層膜の試料とフォトレジストに接触させ、波長465nm の TM 偏光したレーザー光 を照射して、フォトレジストを感光させた(図9(e))。干渉ピーク幅を見積もるために、フォ トレジストを現像し表面の形状を原子間力顕微鏡で観察した。対照実験として、銀とシリカ の多層膜をシリカ単層の膜で置き換えた試料も用意し、同様に感光・現像・表面観察を行っ た(図9(f))。銀 / シリカ HMM とシリカの試料を通して感光されたフォトレジストの表面形 状をそれぞれ図9(g, h) に示す。図9(g) では細い溝ができているのに対し、図9(h) では溝の 幅が広いことがわかる。

図9 (g) と (h) の結果をまとめたものを図10 (a) に示す。銀 / シリカ HMM によって感光さ れたフォトレジストの半値幅は 83nm と入射した波長の約六分の一になっている。他方、シ リカによって感光されたフォトレジストの半値幅は 542nm と入射した波長よりも大きい。 図10 (b) には図8 (c) と 8 (d) より得られた試料とフォトレジスト界面での光強度分布を示す。 図10 (a) と 10 (b)を比べると、両者は良く一致しており実験結果の妥当性が証明された。



**図9** 実験手順。(a) ガラス基板の クロム薄膜に作製した二重スリッ トの模式図。(b)集束イオンビー ムにより作製した二重スリットの 電子顕微鏡写真。(c) 銀とシリカ の多層膜を二重スリット上に作製 した試料の模式図。(d) ガラス基 板上にスピンコートしたフォトレ ジストの模式図。(e) 銀―シリカ ハイパボリックメタマテリアルに よるフォトレジストの感光の様子。 (f) シリカ単層の試料を用いての フォトレジスト感光の様子。(g.h) 原子間力顕微鏡によって得られた 現像後のフォトレジストの表面形 状。(g)は銀 / シリカ HMM による もので、(h)はシリカによるもの。

以上をまとめると、本研究では極端に異方性の強い HMM 中では回折光はビーム上になっ て進むことを、分散曲線および数値計算によって示した。二重スリットからの回折光は、ビー ム上の回折光が干渉することにより、回折限界以下の干渉縞をたった一つ形成する。このた め二重スリットと HMM の組み合わせは集光レンズのような働きをする。二重スリットに よる回折限界以下の干渉縞は実験によっても示された。HMM の構造及び作製がシンプルで あることは特筆すべきである。



図10 (a) 原子間力顕微鏡によって得られた現像 後のフォトレジストの表面形状。(b) 数値計算に よって得られた試料とフォトレジストの界面での 光強度分布。

### 5. ナノ回折レンズの特徴と今後の展望

ここまで三種類の回折レンズを取り上げてきた。まず一つの大きな特徴は、三つのレンズ はどれも平坦で薄いことである。これは立体形状を持つ典型的な誘電体のレンズより作製の 面で有利で、既存の光学系への組み込みを考えたときに都合がよい。

ナノスリットレンズに関しては、数µmの短い焦点距離のレンズを作ることができ、レ ンズの厚さは1µm以下にできる。石英等でできたマイクロレンズが出回っているが、それ らはそもそもレンズの厚さだけで10µm以上ある。非常に強い直線偏光依存性は、例えば 偏光により切り替わるスイッチ等に応用できる。我々の研究で実証したように、スリットを 液晶で満たすことによって集光強度可変なレンズを作ることも可能である。レンズ自身に強 度可変の機能があると入射光は強度一定にした状態で集光強度を変えることができ、コンパ クトかつ安定した光学系を組むことができる。

極端に異方性の強い HMM 中での一重スリットから回折光は広がらずに伝搬するため、 HMM は導波路のような役目をしているとみなせる。これを直接応用して、オンチップ上に 一重スリットと HMM を作製すると、図11のように Y 字の光スプリッタとして使用できる。 そして HMM 中での二重スリットから回折は、回折限界以下の干渉縞を作る。今回作製し たデバイスは、実験で示したように通常のフォトリソグラフィーの手順で回折限界以下のパ ターンを露光できる。これまでは波長より小さなパターンを描くときは電子リドグラフィー やステッパーを用いていたが、どちらも非常に高価な装置だ。今回のデバイスは構造が単純 で既存のフォトリソグラフィーに組み込めるため、費用を抑えることができる。また近接場 光学顕微鏡等のナノプローブとしても利用できる。

しかし、これらのデバイスの実用化には解決しなければならない問題がある。一つは光の 損失である。デバイス作製上どうしても誘電率が負である金属が必要であるが、損失の小さ な金や銀を使っても光の吸収は起こり、誘電体を使った光素子に効率の面では劣る。また損 失の小さいという理由で金や銀を選んで使用したが、安価なデバイス作製にはこれらの貴金 属は不向きである。これら二つの問題を解決するカギが使用する材料の見直しである。最近 の我々の研究で、通信で使われる近赤外光に対して透明導電性酸化物が負の誘電率を示し、



図 11 オンチップ上に作製した一重スリッ トと HMM の組み合わせからなる Y 字の光 スプリッタの概念図。

その損失が金や銀より小さいことがわかってきた[11]。開発したデバイスに使用した金や銀 を透明導電性酸化物に置き換えることで、前述の二つの問題を同時に解決できる可能性があ る。これらの透明導電性酸化物のナノ光学応用の研究は始まったばかりだが、今後の研究に 期待していただきたい。

#### 謝辞

本研究を進めるに当たり、ご指導してくださったシャラエフ特別教授、キルディシェフ准 教授、ドラチェフ准教授に厚く感謝の意を表したい。また頻繁に議論してくださったノルマ ノフ准教授、ボルタセーバ助教の助言や提案は大変有益であった。本研究は全てアメリカ合 衆国にあるパデュー大学で行われたものであり、留学中は文部科学省の長期海外留学支援プ ログラムによる奨学金、n-ask Inc. という民間企業からの奨学金、シャラエフ特別教授から のリサーチアシスタントシップにより経済的支援をいただいた。この場を借りて厚くお礼申 し上げたい。

## 参考文献

- [1] Raymond W. Lam, "「Seasonal Affective Disorder and Beyond (1998)」中のアイン シュタインの発言の引用: All the fifty years of conscious brooding have brought me no closer to answer the question, "What are light quanta?" Of course today every rascal thinks he knows the answer, but he is deluding himself.," (1951).
- [2] T. Young, "The Bakerian Lecture: Experiments and Calculations Relative to Physical Optics," Philos. *T. Roy. Lond.* **94**, 1-16 (1804).
- [3] H. Shi, C. Wang, C. Du, X. Luo, X. Dong, and H. Gao, "Beam manipulating by metallic nano-slits with variant widths," *Opt. Express* 13, 6815-6820 (2005).
- [4] S. Ishii, A. V. Kildishev, V. M. Shalaev, K. P. Chen, and V. P. Drachev, "Metal nanoslit lenses with polarization-selective design," *Opt. Lett.* **36**, 451-453 (2011).
- [5] S. Thongrattanasiri and V. A. Podolskiy, "Hypergratings: nanophotonics in planar anisotropic metamaterials," *Opt. Lett.* **34**, 890-892 (2009).

- [6] S. Ishii, V. P. Drachev, and A. V. Kildishev, "Diffractive nanoslit lenses for subwavelength focusing " *Opt. Commun.* **285**, 3368-3372 (2012).
- [7] S. Ishii, A. V. Kildishev, V. M. Shalaev, and V. P. Drachev, "Controlling the wave focal structure of metallic nanoslit lenses with liquid crystals," *Laser Phys. Lett.* 8, 828-832 (2011).
- [8] S. Ishii, A. V. Kildishev, E. Narimanov, V. M. Shalaev, and V. P. Drachev, "Subwavelength interference pattern from volume plasmon polaritons in a hyperbolic medium," *Laser Photonics Rev.* 7, 265-271 (2013).
- [9] I. C. Khoo and S. T. Wu, Optics and nonlinear optics of liquid crystals (World Scientific Pub Co Inc, 1993), Vol. 1.
- [10] Z. Jacob, L. V. Alekseyev, and E. Narimanov, "Optical Hyperlens: Far-field imaging beyond the diffraction limit," *Opt. Express* 14, 8247-8256 (2006).
- [11] P. R. West, S. Ishii, G. V. Naik, N. K. Emani, V. M. Shalaev, and A. Boltasseva, "Searching for better plasmonic materials," *Laser Photonics Rev.* 4, 795-808 (2010).