

論文の内容の要旨

論文題目 擬二次元人工キラル構造における旋光性

氏名 小西 邦昭

1. 研究の背景

近年の微細加工技術の進歩は、金属に代表される **Conventional** な物質を、光の波長以下のスケールに加工することを可能にした。これによって作製される微小人工構造では、これまでは物質に固有と考えられてきた光学定数の設計、制御が実現されつつある。これは、負の屈折率を有する人工物質など、元来自然界には存在しない新しい光学応答特性を持った物質(メタマテリアル)につながり、回折限界を超えた結像を可能にするスーパーレンズや、透明マントといった様々な興味深い応用が検討されている。

さて、物質の光学応答は、その空間上の位置座標の情報のみで決まる局所的光学応答と、その近傍の情報にも依存する非局所的光学応答の二種類がある。非局所的光学応答は、キラリティー構造を有する物質において発現し、入射偏光に依存しない偏光回転、すなわち旋光性など特有の現象を引き起こすが、自然界に存在する物質ではその大きさは非常に小さい。人工構造を用いた光学応答の研究では、物質の局所的光学応答の制御についての研究がほとんどであり、非局所的光学応答の制御については未だほとんど検討されていない。光の偏光操作技術は、量子情報処理、次世代高速光通信などを実現する上で重要な基盤技術であり、最先端の微細加工技術によって作製可能な擬二次元人工構造を用いることによって、このような非局所的応答を制御、巨大化することができれば、非常に価値のあるものであるといえる。また、長波長近似の成り立たない波長と同程度の構造を有する物質と光との非局所的相互作用を記述する物理モデルは確立してはおらず、その探求は学理的にも意義がある。

旋光性の発現する人工構造についての報告例の一つとして、Kuwata-Gonokami らによる、人工キラルナノ格子の巨大旋光性の研究がある(Phys. Rev. Lett. **95**, 227401 (2005))。この報告では、鏡面对称性を有しない光の波長程度の大きさの卍型の二次元アレイを金薄膜に対する電子線リソグラフィーで作製し、そのゼロ次透過光の偏光回転の大きさを測定したところ、 10^4deg./mm に達する巨大な旋光能が観測された。しかしながら、その物理的メカニズム等は未だ未解明である。

2. 研究のねらいと目的

本研究の最終的なねらいは、新たな光波制御デバイス実現に向けて、微細加工技術を用いて作製した人工構造の光との局所的応答、非局所的応答をコントロールし、誘電率、透磁率の自在な設計を可能にすることである。

特に博士課程においては、

- ①擬二次元人工キラルナノ構造における巨大旋光性の発現機構の解明
- ②擬二次元人工キラルナノ構造における巨大旋光性の制御と応用（巨大化、波長制御、金属以外の物質への展開）

を目的として研究を進めた。

3. 研究の成果

3-1. 金属擬二次元キラル構造における巨大旋光性の発現機構の解明

擬二次元キラル構造における巨大旋光性を引き起こす要因として、表面プラズモン共鳴の効果が予想されるが、それを実験的に示した例はこれまで報告されていない。本研究では、図 1 に示す擬二次元人工キラルナノ構造を作製し、そのゼロ次透過光の透過率と旋光性の入射角依存性を測定した。図 2(a)に示す透過率の入射角依存性のふるまいには、表面プラズモン共鳴の分散関係が反映される。これと、図 2(b)に示す旋光性の入射角依存性を比較すると、両者の入射角依存性が、同様のふるまいを示しており、そこから求まる共鳴波長は、垂直入射において巨大旋光性が観測されている共鳴波長と一致する。これらの結果は、金属擬二次元キラル構造における巨大旋光性が、表面プラズモン共鳴によるものであることを示している。

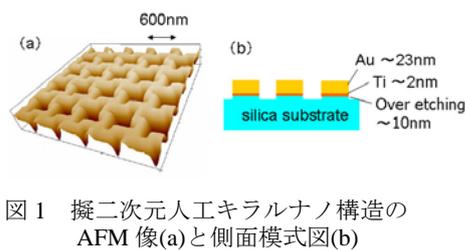


図 1 擬二次元人工キラルナノ構造の AFM 像(a)と側面模式図(b)

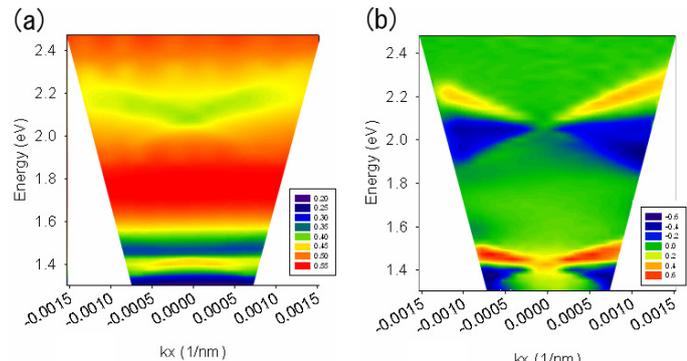


図 2 擬二次元人工キラルナノ構造の透過率スペクトル(a)および旋光性スペクトル(b)の入射角依存性

次に、巨大旋光性発現の微視的メカニズムを探るため、擬二次元人工キラルナノ構造の空気-金属界面と金属-基板界面に光によって誘起される局所電場分布を数値計算によって求めた。数値計算には Fourier Module Method を用いた。図 3 に示された計算結果によると、両界面において、電場ベクトルの向きと大きさが異なっていることがわかる。光と物質の非局所的相互作用エネルギー U_{non} の大きさは、

$$U_{NON}(r) \propto \int_0^D \langle (\mathbf{E} \cdot [\nabla \times \mathbf{E}]) \rangle dz = f(d, \delta) (\mathbf{n} \cdot \langle [\mathbf{E}_{air}(r) \times \mathbf{E}_{sub}(r)] \rangle)$$

と表される。ここで、 D は金属膜厚、 \mathbf{n} は基板に対する法線ベクトル、 \mathbf{E}_{air} 、 \mathbf{E}_{sub} はそれぞれ空気-金属界面、金属-基板界面の電場ベクトルである。これは、両界面における電場ベクトルの“ねじれ”の大きさが、非局所的相互作用に相当することを意味する。この、 U_{non} の値の面内分布を、構造がキラルな場合とアキラルな場合のそれぞれについてプロットしたものが図 4 である。どちらの場合も、部分的には U_{non} は有限の値を持つことがわかる。しかしながら、アキラルな構造の場合は、その構造の対称性が高いため、面内の積分をとると、 U_{non} の値は打ち消しあってゼロになることがわかった。一方、キラルな構造の場合は、面内の積分をとっても、 U_{non} はゼロにはならない。これによって、キラル構造の場合にのみ旋光性が発現するということが明らかになった。

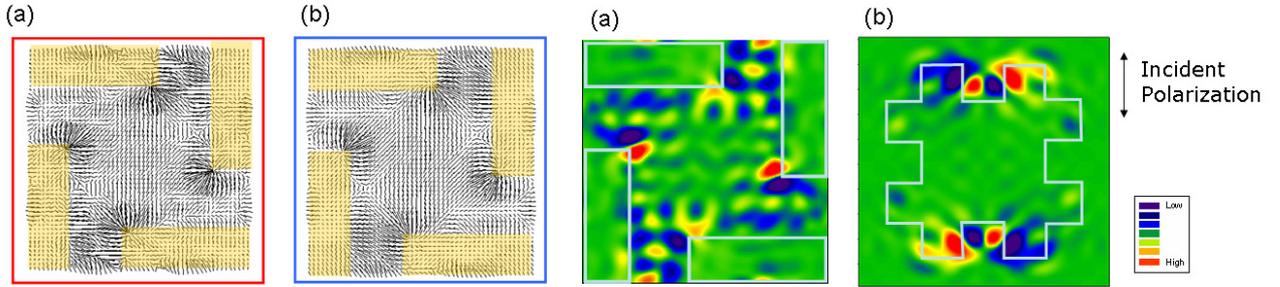


図3 光入射時における電場分布
(a)空気-金属界面 (b)金属-基板界面
入射波長は 870nm 橙色部は金属部分

図4 光入射時における非局所的相互作用エネルギーの面内分布 (a)キラル構造の場合 (b)アキラル構造の場合 入射波長は 870nm

3-2. 誘電体フォトニック結晶における巨大旋光性

これまでに報告されている、旋光性を有する擬二次元キラル構造に関する研究はそのほとんどが金属を用いて構造を作製している。しかしながら、旋光能の更なる増大や、透過率の上昇など、課題も多い。本研究では、特性向上を目指して、金属以外の物質を用いた旋光性を有する擬二次元キラルナノ構造の実現を試みた。具体的には、可視光域で透明であり屈折率の大きな誘電体 TiO_2 を用いた。誘電体の場合、金属の場合の表面プラズモン共鳴に相当するような、光と物質の相互作用を高める現象が起こりにくい。そこで、誘電体擬二次元人工キラルナノ構造(誘電体フォトニック結晶)を、導波路層上に作製し、導波路共鳴の効果を用いることによって、巨大旋光性を発現させることを試みた。作製した試料の構造を図5に示す。垂直入射における、ゼロ次透過光の透過率スペクトル、旋光性スペクトルを図6に示す。構造のカイラリティによって、透過率スペクトルは変化しないが、偏光回転スペクトルは反転するという旋光性の特徴が観測された。また、複屈折は金属の場合と同程度であること、光学応答が光の入射方向に依存しない相反性を有していることも確認した。この試料で観測された偏光回転の大きさは、最大638nmで26.5度に達した。これは、これまで金属の擬二次元人工キラルナノ構造で観測されていた値の10倍以上の大きさである。また、金属擬二次元キラルナノ構造の場合と同様に、スペクトルの入射角依存性を測定することにより、巨大旋光性は、フォトニック結晶構造の導波路共鳴及びファブリーペロー共鳴によって生じていることを明らかにした。この結果は数値計算によっても良く再現できた。

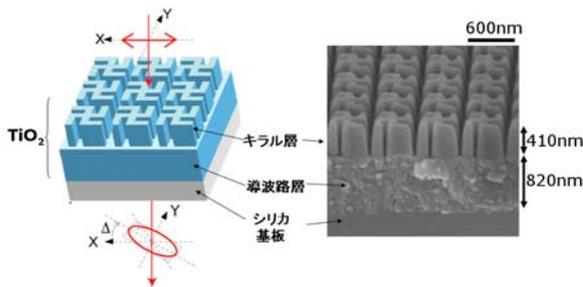


図5 作製した誘電体キラルフォトニック結晶の模式図(右)とSEM画像(左)

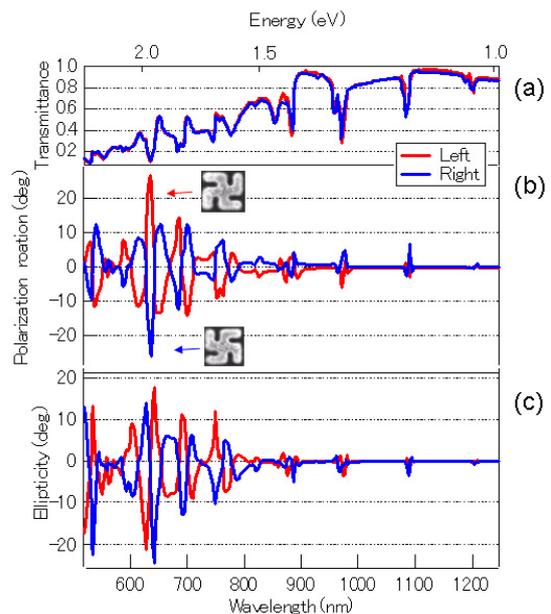


図6 誘電体キラルフォトニック結晶のゼロ次透過光の透過率スペクトル(a)、偏光回転スペクトル(b)、楕円率角スペクトル(c)

3-3. 相補的二層構造を用いた人工キラル構造によるTHz領域における旋光性

人工構造による光学応答の制御は、その構造スケールを変えることで、応答波長を自在に制御できるといふ利点がある。この特性を利用すれば、近年注目されながらも未だ光学素子の少ないTHz領域において、人工構造を用いたTHz波制御素子を作製できる可能性がある。本研究では、金属擬二次元キラル構造の周期をTHz領域に相当する大きさに拡大し、旋光性の観測を試みた。この場合、金の膜厚を大きくすることは困難であるため、THzの波長に比べて非常に薄い金属薄膜との非局所的相互作用を増大させる手法が必要となる。そこで、ネガとポジのパターンが積層した、相補的二層構造を作製した。相補的な構造では、バビネの定理により、共鳴波長は一致する。また、構造のエッジ部分も光の進行方向に対して重なっているため、周波数領域、空間領域の両方で共鳴が一致し、同じパターンを二層化した場合と同様の増大効果が予想される。しかも、この構造は、同じパターンの二層構造に比べて、試料の作製がはるかに容易であるという利点がある。作製した試料構造を図7に示す。また、クロスニコル法で測定したTHz電場時間波形を図8(a)に示す。ここで観測される電場は、偏光回転成分に相当するが、キラル構造の場合に大きな電場成分が観測され、その符号はカイラリティーに依存するという旋光性を観測できていることがわかる。図8(b)(c)はフーリエ変換スペクトルであり、偏光回転の大きさは約1度程度であることがわかる。

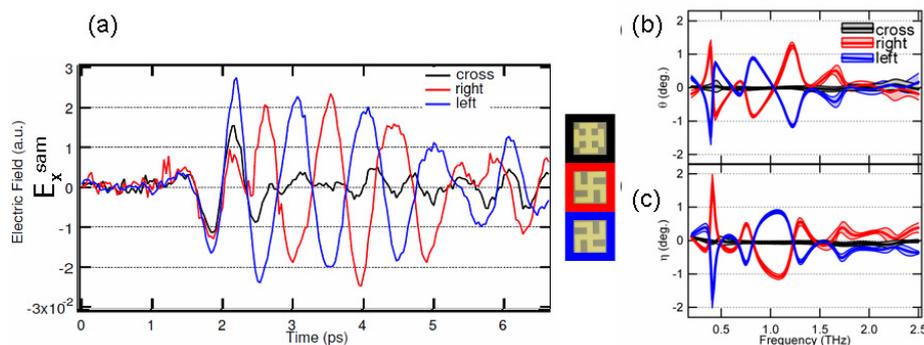
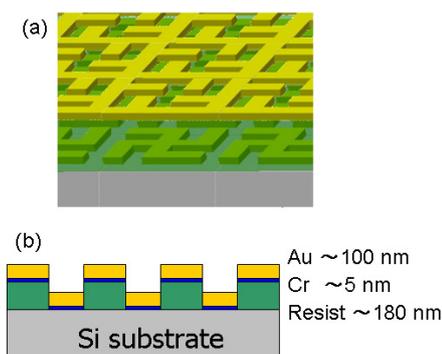


図7 作製したTHz領域擬二次元人工キラル構造の模式図(a)と側面図(b)

図8 THz領域擬二次元人工キラル構造のTHz波透過時間波形(a)、偏光回転スペクトル(b)、楕円率角スペクトル(c)

4. まとめ

擬二次元キラル構造における巨大旋光性の発現機構について、分散関係との対応、偏光回転スペクトルの角度依存性の測定、局所電場分布の数値計算より、金属表面プラズモン共鳴による局在電場増強が巨大旋光性の発現の要因となっていることを明らかにした。また、旋光性の起源となる非局所的相互作用の大きさは、金属両界面の電場のねじれで表され、構造がカイラリティーを有する場合にのみ、構造全体の積分値を考えた場合にその効果が有限の値になり、旋光性が発現するというメカニズムを明らかにした。

擬二次元キラル構造による巨大旋光性の制御と応用について、非局所的相互作用を増大するための導波路を有する誘電体カイラルフォトニック結晶によって、最大25.6度に達する旋光性を実現することに成功した。また、旋光性増大の手法として相補的擬二次元構造を考案し、この構造を用いてTHz領域における擬二次元人工キラル構造による旋光性の発現が可能であることを実証した。