

氏名・(本籍)	はた の たか ふみ 畑 野 敬 史
学位の種類	博 士 (理 学)
学位記番号	理博第2548号
学位授与年月日	平成22年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科, 専攻	東北大学大学院理学研究科(博士課程)物理学専攻
学位論文題目	金属フォトリック結晶スラブにおける光誘起起電力
論文審査委員	(主査) 教授 有馬孝尚 教授 平山祥郎, 川勝年洋 教授 岩井伸一郎, 石原照也

論 文 目 次

1章 序論

1. 1. はじめに
1. 2. 金属によるフォトリック結晶
1. 3. 高次の光応答
1. 4. 一次元フォトリック結晶スラブにおける光整流効果
1. 5. 本論文の構成と目的

2章 サンプル作製

2. 1. サンプル作製の流れ
2. 2. 基板の選択と洗浄
2. 3. 金属蒸着
2. 4. レジスト塗布
2. 5. 電子線描画
2. 6. ドライエッチング
2. 7. レジスト除去
2. 8. サンプル評価

3章 横方向光誘起起電力現象の発見

3. 1. 周期=1200 nm サンプルの起電力測定
3. 2. 分散関係との比較
3. 3. 励起強度依存性
3. 4. 結論
3. 5. 補足: 表面誘起磁化測定を試み

4章 光誘起起電力現象の起源の探究

4. 1. 実験に用いたサンプル

4. 2. 測定結果

4. 3. 起電力の発生原理

4. 4. 結論

5章 数値計算

5. 1. 多重極展開法を適用した境界要素法について

5. 2. 計算する構造と条件

5. 3. 直線偏光入射に対する内部電場分布と起電力スペクトル

5. 4. 円偏光入射に対する内部電場分布と起電力スペクトル

5. 5. 円偏光、45°直線偏光入射における信号の振る舞い

5. 6. 結論

6章 総括

補遺

参考文献

研究業績

謝辞

論文内容要旨

1. 概要

光波長程度の大きさのユニットセルをもつ人工周期構造体をフォトニック結晶という。本博士論文では、自由電子を豊富に持つ金属を材料としてフォトニック結晶を作製し、そこに光を照射したとき試料の両端に起電力が生じる現象（光誘起起電力：Photo-induced voltage：PIV）を研究した。作製した試料は2次元系のフォトニック結晶スラブである。ここに円偏光の光を照射したとき、入射面と垂直な方向に円偏光のヘリシティの反転に伴い、極性反転する起電力信号が生じることを世界に先駆けて発見した。これを横方向光誘起起電力と称し、試料の持つ対称性を利用した議論から、信号発生の原理に迫った。

2. 背景

フォトニック結晶に光が照射されるとき、内部には構造が持つ対称性に起因する電磁場が周期的に励起される。この電磁場は、角振動数 ω の光の入射に対し、 ω で応答する。しかし、入射光の電場によって誘起された電荷と電流は、電場および磁場とそれぞれ相互作用するため、試料中の自由電子には、直流成分をもつ電磁気力が印可されることになる。この直流成分により、試料中の自由電子は光が照射されている間中、一方向に駆動され、試料両端にPIVを生成する。このようなコンセプトのもと、修士論文における研究では、1次元のフォトニック結晶スラブにおけるPIVを議論した。測定は、透過光、反射光、回折

光がすべて同一平面内に入る配置で行った。その結果、1) フォトニック構造に非対称性を導入する、もしくは2) 光を斜入射することにより、入射面方向に対称性を崩し、人工構造によって発生する PIV の観測に成功した。本現象は「2 次の非線形光学効果の一種である光整流を、光波長スケールの構造体で実現した現象」と捉えることもできる。2 次の非線形光学効果には、対象となる構造に反転対称性の破れが必要であるが、上述の1)、2) によって対称性を破り、その方向に光整流信号を発生させたと理解できた。

本博士論文においては、偏光の自由度を利用する PIV について研究した。入射光の偏光状態は、人工構造体内部の電磁場分布に大きな影響を及ぼす。そのため、2 次元構造を利用することで、円偏光の入射に対し、入射面内方向だけでなく、入射面と垂直な方向に、円偏光の左右によって変化する特徴的な起電力の生成が可能であると考えたのである。円偏光とは、電場の振動方向が、光の進行方向と垂直な面内で、時間的に左右に回転している偏光状態のことである。すなわち、円偏光は、光の進行方向と垂直な方向に、電場の回転方向によって対称性を破っているのである。これを利用すれば、偏光の自由度を利用した光整流現象を誘起できるはずである。

このような考察から、本博士論文の目的は以下の2点とした。

- ① 金属を材料とした2次元フォトニック結晶スラブを作製する。
- ② ①の系に円偏光の光を斜入射し、入射面と垂直な方向に生じる起電力を探索するとともに、これまでの議論に偏光の自由度を加味し、PIV と内部電磁場対称性についての知見を得ることを目指す。

2. 試料と実験配置

石英基板上に金を40 nm厚で蒸着した薄膜に対し、電子線リソグラフィを用いて2次元構造を作製した。原子間力顕微鏡 (AFM) による試料表面の観察の結果、直径240 nmの円孔が周期500 nmで正方格子状に分布させたサンプルが作製できていることが分かった。試料の大きさは0.6 mm角である。ここに、以下の議論で用いる座標の定義を行う。正方格子の基本単位格子ベクトルの方向を、 x 、 y とし、それらと垂直な方向を z とする。光は xz 平面内において入射角度 θ で試料に入射するとする。すなわち、 y 軸方向に対し、反転対称性をもつ実験配置である。光源は波長可変光源からのナノ秒パルスレーザーであり、波長を720~1600 nmまで変えて発振可能である。光の強度はおよそ1 MW/cm²、パルス幅は5 nsec、繰返し周期は10 Hzの光源となっている。本試料は2次元構造であるため、入射面内方向、つまり x 軸方向だけでなく、入射面と垂直な方向 (y 軸方向) にも起電力の測定配置が考えられる。前者を縦方向光起電力 (LPIV)、後者を横方向光起電力 (TPIV) と呼称する。ただし、起電力測定のために試料の周辺を切断し、四辺を電氣的に独立させることが必要である。パルス光が試料に照射されたとき、試料両端に生じる起電力をデジタルオシロスコープで測定した。

3. 測定結果

今回は、入射角 $\theta = 27^\circ$ において、測定波長範囲 $\lambda = 720 \sim 1200$ nmとして実験を行った。はじめに、同入射角における透過スペクトルを調べた。p偏光入射に対する透過スペクトルを見ると、 $\lambda = 990$ nmにおいてディップが生じている。これは金属-基板境界に励起される表面プラズモンポラリトン (surface plasmon polariton : SPP) モードの励起によるものである。これを踏まえ、以下にLPIV、TPIV各配置に対する起電力測定の結果を列挙する。

LPIV : x 方向 (入射面内方向) への起電力測定

[L-1] p偏光入射に対し、990 nmにおいてピーク構造が現れることがわかった。最も強いところで1

MW/cm²あたり 0.05 mV の起電力が観測された。SPP 励起のない s 偏光入射では特徴的な起電力は生じていない。すなわちピーク構造は SPP 励起に起因する PIV 信号である。

[L-2]円偏光入射においては、s 偏光入射時と p 偏光入射時の LPIV スペクトルを平均した振る舞いを示すことが分かった。

TPIV：y 方向（入射面と垂直方向）への起電力測定

[T-1] s、p 偏光入射に対しては有意な信号は確認されなかった。これらの偏光は一切対称性を崩さないためである。

[T-2]しかし、円偏光入射の場合には有意な起電力信号が確認された。左円偏光入射に対し、信号強度は 960 nm で 0.1 mV/MWcm⁻² であり、SPP 励起波長付近で一度ゼロとなる。その後 1050 nm において負の最大値 -0.05 mV/MWcm⁻² となることが分かった。すなわち、SPP 共鳴波長において分散型の信号挙動を示している。

[T-3]そして、円偏光の左右を反転させると、すべての波長領域において信号の符号も反転した。

最後に、実験結果について以下の点を確認する。

①本測定は抵抗 14 Ω の試料に生じた起電力を 50 Ω の終端抵抗で測定している。この終端抵抗を 1 MΩ に変えても、測定される起電力は同程度であった。つまり本測定は開回路的な測定であり、サンプル両端に生じた「起電力」を観測している。

②これらの PIV はすべて励起光強度に比例する信号であり、入射電場の 2 乗に比例するため、2 次の非線形光学効果の一種であることが確認できた。

4. 考察

光照射によって構造の内部に生じる電磁場は、入射光および構造自体の空間対称性に依存する。ここで、s 偏光入射時及び、p 偏光入射時における内部電場分布を $E_s(\mathbf{r})$ 、 $E_p(\mathbf{r})$ とすると、左右円偏光入射時の内部電場分布は p、s 偏光入射成分を位相を $\pi/2$ だけ違えて足し合わせた $E_p(\mathbf{r}) \pm iE_s(\mathbf{r})$ で表される。このような電磁場分布によって自由電子は電磁気力を受け、運動する。その中で、PIV の起源となる成分は「電磁場中において自由電子が受ける電磁気力の整流成分」であり、先行研究によって二つの項からなることが知られている。すなわち $\nabla|E|^2$ に比例する項と、 $\text{Im}[E, \nabla E]$ に比例する項である。式中の E に前述の $E_s(\mathbf{r})$ 、 $E_p(\mathbf{r})$ を $E_p(\mathbf{r}) \pm iE_s(\mathbf{r})$ を代入せば、それぞれの入射偏光に対する整流成分を得ることができる。

しかし、3. に述べたとおり、本測定は開回路的であり、定常状態において試料中の自由電子は静止している描像である。すなわち光照射後、十分な時間の後には、電磁気力の整流成分と試料内の自由電子の再配置による静電力が釣り合いを形成していることが予想される。そのような仮定を認め、起電力の定量的見積もりを行うと、起電力は上述の整流成分をユニットセル内で体積積分し、適当な係数をかければ良いということが分かった。ここで、試料は x y 平面内に置かれており、構造は正方格子状である。ここに x z 平面から光が斜入射されている。つまり、内部に生じる電場分布 $E_s(\mathbf{r})$ 、 $E_p(\mathbf{r})$ の各成分は、y 軸の反転に対して even もしくは odd の対称性を持っている。これを利用すると、円偏光入射に対し、整流成分のどの成分が起電力に寄与する成分かを特定することができる。LPIV には E_p と E_p 、 E_s と E_s のように、同種の電場成分を二つ含む項が残り、TPIV には E_p と E_s のように、異種の電場成分の積からなる項が残ることが明らかとなった。これらの結果から、例えば TPIV が円偏光の左右で信号が逆転することや、LPIV は s 偏光と p 偏光に対する信号の平均として振る舞うことを説明できた。

5. 総括

金属二次元フォトリック結晶スラブを作製し、ここに生じる PIV 現象を探索した。その結果、円偏光入射に対し、一見対称性が破れていないかに見える配置である入射面と垂直な方向に、偏光のヘリシティに依存して反転する起電力 TPIV を発見した。また、その起源が内部に生じる電場分布 E_s と E_p の干渉成分にあることを対称性の議論から導くことができた。このような成分を有意な値として取り出すことができたのは、1) 円偏光が s 偏光成分と p 偏光成分を併せ持ち、さらに 2) 2次元の構造によって E_s と E_p の内積がノンゼロな成分を持つためである。

ただし、SPP 励起波長において LPIV がピーク構造をとること、TPIV が分散構造を取ることなどの具体的な信号挙動については、内部電磁場分布を得る必要があり、定性的議論のみではその振る舞いを説明するには限界があった。これに関しては、京都大学情報科学研究科 西村研究室との共同研究による境界要素法を用いた数値計算によって、起電力スペクトルの形状および強度について再現することができた。本現象は、入射光の偏光状態、波長、入射角等の光学的な情報と起電力信号を対応づける現象であり、ナノスケール構造体における光学とエレクトロニクスをつなぐ基盤技術となる可能性がある。

論文審査の結果の要旨

金属は多くの伝導電子をもち、光と相互作用する。その結果、赤外領域から可視領域にかけての光はほぼ完全に反射されるといった単調な光学応答を示す。しかし、微細加工によって波長スケールの周期構造を持たせると、系は入射角度と波長によって変化に富んだ応答を示すようになる。近年の微細加工技術の発達、フォトニック結晶、メタマテリアルなどの新概念の提出、数値計算能力の増大により、この分野の研究は急速に拡がりをみせている。

本論文は、このような系における光整流効果に注目し、新しい現象を発見、解析した。厚さ 40nm の金の薄膜に電子線リソグラフィーで円孔を正方格子状に周期的に配置させた試料を作製した。ここにパルスレーザー光を入射させることで試料に生じる起電力を測定し、入射偏光、入射角、および入射波長に依存した起電力が入射面に対して平行方向のみならず垂直方向にも発生する現象を見出した。入射面に対して垂直な横方向の起電力は、入射光が円偏光あるいは 45 度直線偏光の場合に観測された。円偏光入射の場合はそのヘリシティを反転させることで、また、45 度直線偏光の場合は偏光方向を 90 度変えることで、それぞれの横起電力は符号反転を示した。これらの現象は入射光の偏光の対称性の破れがこの現象に深くかかわっていることを示す。入射波長に関しては、表面プラズモンポラリトンの共鳴波長で入射面に平行な縦方向の起電力の強度はピークになり、横方向の起電力は分散的になることを発見した。45 度直線偏光入射の場合は、縦起電力、横起電力とも共鳴波長でピークを示した。

申請者はこの起電力が金属フォトニック結晶内の電磁場が伝導電子に及ぼす力によってもたらされていると考え、この力の直流成分を解析した。まず、対称性の考察によって、横方向の起電力は S 偏光と P 偏光の励起で生じる電磁場の干渉項に起因することを示した。さらに、このような効果を数値的に計算し、完全ではないが実験結果と対応するような結果も得ている。

本研究は光整流現象において、円偏光によってもたらされる対称性の破れが入射面に垂直な横起電力を生じることを示した世界初の研究である。申請者がこの先駆的な研究を遂行したことは、自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有していることを示している。従って畑野敬史提出の論文は博士（理学）の学位論文として合格と認める。