

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656385

研究課題名(和文)表面プラズモンの誘導放出による次世代型ナノ情報発生源の開発

研究課題名(英文)Development of coherent light source at subwavelength scale using spaser

研究代表者

藤田 晃司 (FUJITA, Koji)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50314240

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：数値計算の手法を用いて、利得をもつ半径100ナノメートルのシリカ粒子に10ナノメートル厚のAgキャップを被せた構造に対して光を入射し、入射方向をさまざまに変えたときのプラズモンの挙動を解析した結果、(1) 電気四極子のプラズモン共鳴モードが指向性をもつスペーザーをもたらすこと、(2) 入射光の方向に依存せず、金属キャップの軸方向に沿って電磁波が放出されること、(3) 球状の誘電体ナノ粒子のまわりを完全に金属で覆った構造に比べて、金属キャップの構造の方が放出される電磁波の強度が高いことなどが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：In this research, we numerically examine an asymmetric spaser; a resonant system comprising a dielectric core capped by a metal semishell. The proposed spaser emits unidirectionally along the axis of the semishell; this directionality depends neither on the incident polarization nor on the incident angle of the pump. The spasing efficiency of the semishell-capped resonator is one order of magnitude higher than that in the closed core-shell counterpart. Our calculations indicate that symmetry breaking can serve as a route to create unidirectional, highly intense, single-particle, coherent light sources at subwavelength scale.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・無機材料・物性

キーワード：表面プラズモン ナノレーザー

1. 研究開始当初の背景

1960年に発明されたレーザーは、光通信や光記録用光源として現代社会の高度情報化の一翼を担うと同時に、精度の良い計測、金属やセラミックスの加工、レーザーメスなど、さまざまな分野で実用化されている。太陽光や電灯の光などの自然光とは異なり、レーザー光は指向性・単色性・干渉性に優れた高いエネルギー密度をもっている。レーザー光を作り出すためには、光を発生する利得媒質とそれを閉じ込める共振器を必要とし、共振器の大きさは数十から数百マイクロメートルのサイズになる。光共振器をさらに小型化することはできるが、光の回折限界により1マイクロメートルより小さくすることは困難であり、ナノメートルサイズに微細化された電子回路内では用いることができなかった。

一方で、近年、金属ナノ構造の近傍に量子ドットや色素分子などの利得媒質を配置した複合ナノ構造体において、ナノメートルサイズのレーザー(スペーザー)が報告され注目を集めている。このような複合構造体では、金属ナノ構造の表面プラズモン共鳴により光がナノ領域に閉じ込められ、利得媒質によりプラズモンのエネルギー損失が補填される。表面プラズモンの中でも多重極子のプラズモンを利用すると、外部へのエネルギー散逸が抑制されるため、さらに効率よく光をナノ領域に閉じ込めることができるが、この効果を最大限に引き出すためには、最適なナノ構造体を設計する必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、多重極子プラズモン共鳴に基づくナノ共振器の創製のため、数値計算の手法を用いて利得媒質を含む金属-誘電体複合ナノ構造体を設計することを目的とする。

3. 研究の方法

スペーザーを達成するため、利得媒質を金属ナノ構造の近傍に配置し、エネルギー移動によりプラズモンのエネルギー損失を補填する(図1)。このため、利得をもつ誘電体と金属の複合ナノ構造体を中心に、ナノ構造の

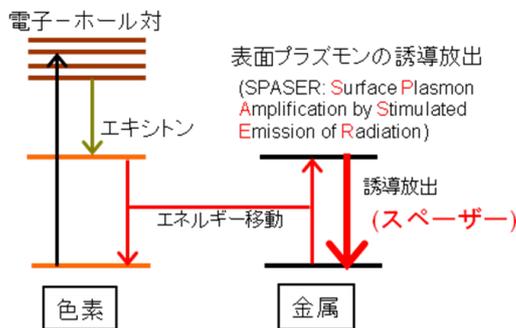


図1: ナノレーザーの模式図。利得媒質から金属ナノ構造へのエネルギー移動により、表面プラズモンの誘導放出(スペーザー)が誘起される。

形状とサイズ、金属と誘電体の種類、利得媒質の光学特性をパラメーターとして、電磁波計算を行った。計算にはCOMSOLマルチフィジックスソフトウェアを用いた。

4. 研究成果

利得をもつ球状の誘電体ナノ粒子に金属キャップを被せたコア-シェル構造(図2)におけるプラズモン共鳴を数値計算の手法で解析し、電気四極子共鳴モード(図3)が指向性をもつ発光をもたらすことが明らかになった。具体的には、利得をもつ半径が100ナノメートルのシリカ(SiO₂)粒子に10ナノメートル厚の銀(Ag)キャップを被せた構造に対して光を入射し、入射方向をさまざまに変えたときのプラズモンの挙動を調べた。その結果、電気四極子モードに基づく表面プラズモンの増幅が起こり、かつ、入射光の方向に依存せず、金属キャップの軸方向に沿って電磁波が放出される現象を見出した(図4と図5)。また、金属ナノキャップから放出される電磁波の強度は、球状の誘電体ナノ粒子のまわりを完全に金属で覆った構造よりも高いことがわかった(図5)。

指向性の電磁波の放出をもたらす非対称構造は、球のまわりを半分だけ金属で覆う単純なものであり、また、誘電体や金属の種類や大きさを変えることによってさまざまな光共振器を作製すれば、発光波長の制御が可能となることから、ナノ領域での光制御技術が発展し、情報通信からバイオまでさまざまな分野の研究が加速すると予想される。今後

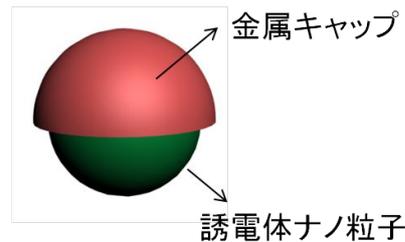


図2: 球状の誘電体ナノ粒子に金属キャップを被せたコア-シェル構造。計算では誘電体に利得媒質の存在が考慮されている。

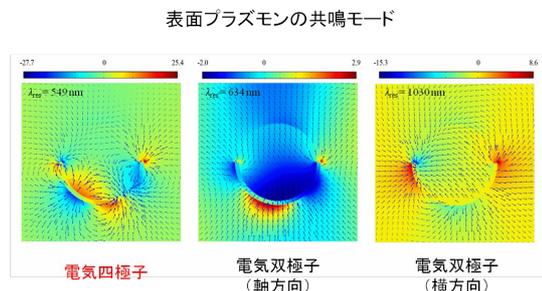


図3: 金属ナノキャップにおける表面プラズモン共鳴モード。電気四極子モードが指向性をもつ電磁波の放出をもたらす。

は、このナノ構造を実際に作製し、発光特性を評価してナノレーザーの実証に向けた取り組みを行う。100 ナノメートルサイズの誘電体ナノ粒子を得るための合成技術は確立されており、そのような粒子に金属キャップを被せることも原理的には可能であるため、指向性をもったナノレーザーの実現が大いに期待される。

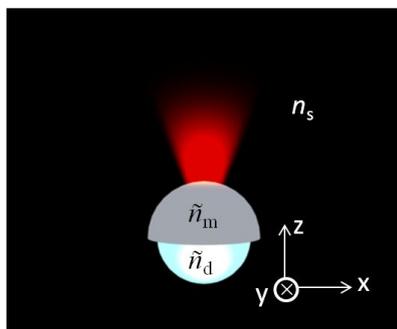


図 4: 金属ナノキャップにおける電気四極子モードの表面プラズモンの増幅により、キャップの軸方向に沿って指向性をもつ電磁波が放出される様子。

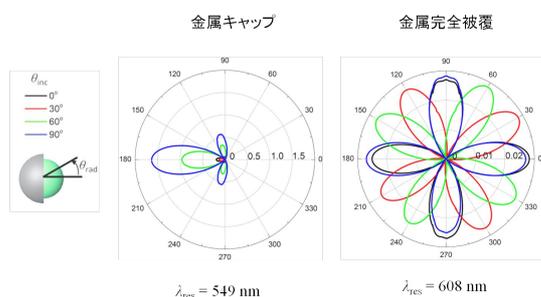


図 5: コア - シェル構造に対して、入射光の方向 (θ_{inc}) をさまざまに変化させたときの電磁波の放出方向 (θ_{rad}) と強度 (円の半径の長さ) を表す極座標。金属ナノキャップの場合 (左図)、金属で完全に被覆された構造 (右図) と比べて、指向性をもつ電磁波が放出され、また、その電磁波の強度は高くなる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 5 件)

S. Murai, T. Matoba, C. T. Nelson, T. Komine, K. Fujita, X. Pan, and K. Tanaka, “Anisotropic Growth of Zinc Oxide Pillars on Silver Nanoparticles By Oblique Angle Deposition”, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **121** (2013) 710-713 [査読有]. DOI: 10.2109/jcersj2.121.710

X. Meng, K. Fujita, Y. Moriguchi, Y. Zong, and K. Tanaka, “Metal–Dielectric Core–Shell

Nanoparticles: Advanced Plasmonic Architectures Towards Multiple Control of Random Lasers”, *Adv. Opt. Mater.* **1** (2013) 573-580 [査読有].

DOI: 10.1002/adom.201300153

X. Meng, A. V. Kildishev, K. Fujita, K. Tanaka, and V. M. Shalaev, “Wavelength-Tunable Spasing in the Visible”, *Nano Lett.* **13** (2013) 4106-4112 [査読有].

DOI: 10.1021/nl4015827

A. Kawashima, T. Nakanishi, T. Shibayama, S. Watanabe, K. Fujita, K. Tanaka, H. Koizumi, K. Fushimi, and Y. Hasegawa, “Enhanced Magneto-Optical Properties of Semiconductor EuS Nanocrystals Assisted by Surface Plasmon Resonance of Gold Nanoparticles”, *Chem. Eur. J.* **19** (2013) 14438-14445 [査読有].

DOI: 10.1002/chem.201302259

藤田晃司, 村井俊介「貴金属を補完するプラズモニクス材料 - ナノフォトニクス材料としての導電性セラミックス - 」, *セラミックス Vol. 49, No.6* (2014) pp.508-514 [査読有].

〔学会発表〕(計 6 件)

S. Murai, K. Fujita, R. Yasuhara, and K. Tanaka, “High-Quality Conductive Oxide Thin Films as Alternative Plasmonic Materials to Noble Metals”, 6th International conference on Surface Plasmon Photonics (SPP6) (2013/05/26-05/31, Ottawa, Canada).

村井俊介, 藤田晃司, 田中勝久, J. Gomez Rivas, 「ナノアンテナによる蛍光材料の発光強度増強と発光指向性の付与」, 第 349 回蛍光体同学会講演会 (2013/08/02, 科学会館ホール, 東京都).

S. Murai, K. Fujita, R. Yasuhara, Y. Daido, and K. Tanaka, “Transparent Conductive Oxide Thin Films as Plasmonic Materials in the Infrared Region”, The 2013 JSAP-MRS Joint Symposia (2013/08/16-08/20, Doshisya University, Kyoto).

村井俊介, J. Gomez Rivas, 藤田晃司, 田中勝久, 「ナノインプリント法によるナノアンテナの作製と蛍光材料の発光挙動制御」, 第 57 回日本学術会議材料工学連合講演会 (2013/11/25-11/26, 京都テルサ, 京都府).

鎌倉涼介, 藤田晃司, 村井俊介, 田中勝久, 「近赤外領域における ITO 薄膜のプラズミック特性の評価」, 日本セラミックス協会 2014 年年会 (2014/03/17-03/19, 慶応大学日吉キャンパス, 神奈川県).

山中康輔, 村井俊介, 藤田晃司, 田中勝久, 「導波路と局在表面プラズモンの複合モー

ド励起による Ce^{3+} ドープ $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 薄膜の発
光制御」, 日本セラミックス協会 2014 年年会
(2014/03/17-03/19, 慶応大学日吉キャンパス,
神奈川県).

〔その他〕

ホームページ等

<http://dipole7.kuic.kyoto-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤田晃司 (FUJITA, Koji)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号: 50314240