

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 5 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26390013

研究課題名(和文) グラフェン・プラズモンを用いた単層原子膜での光制御

研究課題名(英文) Control of radiation in one-monolayer-thick atomic membrane using graphene plasmon

研究代表者

落合 哲行(Ochiai, Tetsuyuki)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・主任研究員

研究者番号：80399386

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,000,000円

研究成果の概要(和文)：グラフェンにおけるドーブした電子の集団運動であるプラズモンを用い、回折格子状の基板を用いることにより光と電子の相互作用を強め、原子一層でTHz帯の光を制御するスキームを確立した。特に回折格子の構造を選ぶことにより、グラフェンプラズモンのバンドギャップ構造が形成され、それによって非線形光学応答が数千倍にまで増強することを理論的に明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have established a scheme to control THz lights via graphene plasmon, a collective excitation of doped electrons in graphene. By placing the graphene sheet on a diffraction grating, a plasmonic band gap structure is formed, giving rise to a strong enhancement of the second-order optical nonlinearity in the THz region.

研究分野：ナノフォトニクス

キーワード：グラフェン プラズモン 非線形光学

## 1. 研究開始当初の背景

グラフェンはその特異な電子バンド構造により、数々の興味深い物性をもつ。そのひとつ、ドーピングしたグラフェンの光学特性を利用した応用が近年注目されている。ドーピングしたグラフェンは、 $\sqrt{q}$  ( $q$  は運動量) に比例した広帯域のプラズモン分散をもち、それが光学特性に大きな影響を与える。これを利用すると、グラフェンのパターンニングによって、原子一層の薄さであるにもかかわらず入射した光が完全に吸収されたり (バルクの系ではバンド間遷移の閾値以上での吸収率は 2.3%) [Thongrattanasiri et al, PRL 2012]、disk 状の共振器構造をつくることにより、吸着された分子との間に強い相互作用 (真空ラビ分裂) が生じる [Koppens et al, Nano Lett. (2011)]、などといった性質が理論的に予言されている。

従来このような光の制御は、周期加工された絶縁体、半導体によるフォトニックバンド、あるいは微細加工された金属のプラズモンを用いて行われ、それぞれフォトニック結晶やプラズモニクスという大きな研究分野を形成してきた。グラフェンによる光の制御は、いわばプラズモニクスの究極形であり、近年グラフェン・プラズモニクスとしてヨーロッパを中心に盛んになっている。本研究はこのような状況を更に進めるべく、申請者が従来型の系で研究してきた 2 つのテーマ、非相反性と光非線形性、をグラフェン・プラズモニクスにおいて模索し、グラフェンの更なる応用の可能性をさぐるものである。

光の非相反性、すなわち光の伝播が逆方向への伝播と本質的に異なるという性質は、磁気光学効果を用い、これまで Faraday 配置 (磁場と光の伝播方向が平行) での光アイソレータなどに応用されてきた。しかし、Faraday 配置はどうしてもサイズが大きくなるという欠点がある。これに対し、Voigt 配置 (磁場と光の伝播方向が直交) はデバイスのコンパクト化が可能で、また磁場中 2 次元電子系 (量子ホール系) の物理と密接にかかわる。

またグラフェンの大きな光学非線形性は、グラフェンが線形の電子バンド構造をもつことに由来しており [Mikhailov, EPL (2007)]、実験的にも確認されている [Hendry et al, PRL (2010)]。しかしそれを用いた光デバイスという観点からの研究はあまりなされていない。特にパターンニングによるプラズモン・ポラリトンの変調と光学非線形性の融合はまだ手つかずの問題とあってよい。

## 2. 研究の目的

グラフェンにおける電子の集団運動であるプラズモンを用い、基板に回折格子やフォトニック結晶構造を用いることにより光と電子の

相互作用を強めることで、原子一層での光の制御をめざす。特に非線形光学効果の増強とプラズモン伝播の非相反性を理論的に実現させる。これにより、究極の薄さをもつ高機能光集積回路へとつなげる。

従来、グラフェンにおける光と電子の相互作用を強める枠組みとして、グラフェンを切り刻んで island 状や stripe 状にして周期的に並べたり、wash board 状に波うたせた geometry が理論的に提案されてきた。しかし、このような加工は高い精度で実現することが大変難しい。これに対して、基板に回折格子やフォトニック結晶構造を用いる方法は、高精度かつ大面積の作成が可能で、グラフェン自体の微細加工が不要なため、実装が容易であると考えられる。この特性を生かし、現実的な方法でグラフェンプラズモンを用いた応用を探るのが本研究の目指すところである。

## 3. 研究の方法

ドーピングしたグラフェンと光との相互作用を理論的に調べるため、グラフェンを無限小の厚さをもった 2 次元電子系とみなす。外部の電磁場があるときの電子系の応答は久保公式や半古典論で求めることができる。特に 2 次の非線形光学応答は半古典論をもちいることにより、単純な表式が得られ、第 2 高調波発生やフォンドラッグ効果 (AC 電場による DC 電流の生成) が簡便に記述できる。

この応答を Maxwell 方程式の境界条件に組込む。回折格子基板における光の伝播を記述する Rigorous coupled wave analysis (RCWA) 法と融合させることで、回折格子基板上にあるグラフェンと光との相互作用が定量的に記述できる。以下の研究成果はそのような数値計算法によって得られたものである。

## 4. 研究成果

- (1) グラフェンプラズモンの電子線による励起特性 (論文 7)

回折格子基板上のグラフェンに限らず、微細加工したグラフェンにおいては、プラズモンはサブ波長のスケールで変化する非自明な空間配位をもつ。そのようなプラズモンを効率的に励起するには、ピンポイントで励起できる電子線の利用が最も適している。その first step として、加工されていないグラフェンの場合に、様々な角度や速度をもった電子線がどのようにプラズモンを励起するのか詳細に調べた。

電子線のエネルギーはプラズモンを励起することによって一部損失する。またその運動量も反跳によって変化する。よって電子エネルギー損失スペクトルを角度分解 (運動量分

解) することでプラズモン励起の特徴を調べることができる。

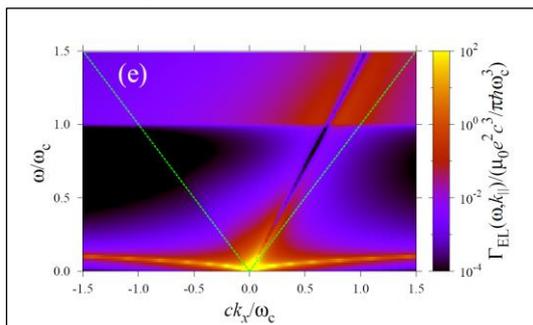


図 1-1: 運動量分解電子エネルギー損失スペクトル。電子の入射角は 45 度、速度は 0.99c を仮定した。グラフェンのフェルミ準位は 0.4 [eV] とした。

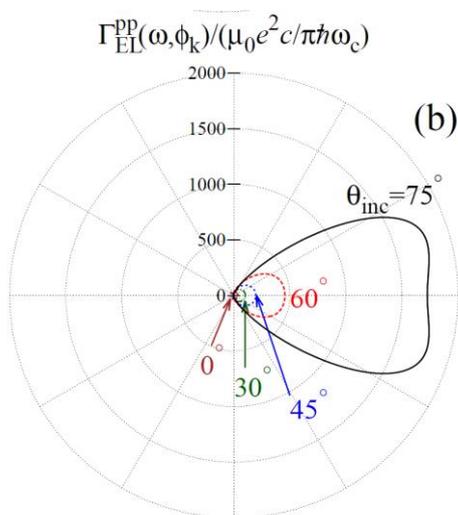


図 1-2: 電子線により励起されるプラズモンの角度分布。電子線の速度は 0.1c に固定。入射角をふつた場合の角度分布の変化。

(2) 回折格子上のグラフェンにおける光学伝導度の空間変調とプラズモニックバンド構造 (論文 5)

グラフェンを回折格子におくと、2つのことがおこる。1つ目は回折格子という特殊な静電環境 (誘電率の周期的変化) によりグラフェン内の電荷分布が空間変調をうけ、DCの電気伝導度も同様に空間変調をおこすこと。2つ目は、プラズモンのエヴァネッセント波が回折格子により変調をうけバンド構造が形成されることである。回折格子の構造によってはプラズモニックバンドギャップが生じる。その場合、フォトニック結晶でよく知られた群速度の遅延効果やフォトンの状態密度の強い変調などがグラフェンのプラズモンに対してもおこり、様々な光学応答の増強を引き起こす。

この性質を数値的に解析し、三角格子ロッド型の2次元回折格子を基板に用いた場合のプラズモンのバンドギャップ構造と、ロッドの半径を変化させた場合のギャップマップを導出した。

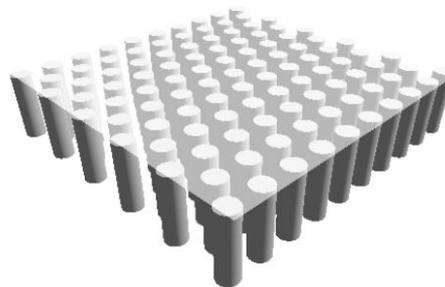


図 2-1: 誘電体円柱からなる2次元回折格子上に置かれたグラフェン

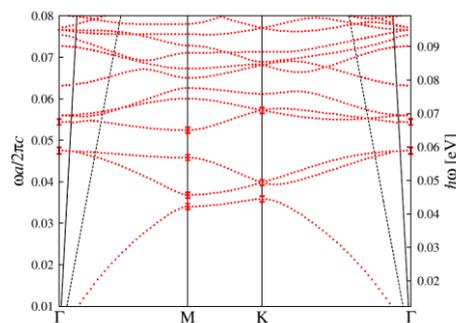


図 2-2: グラフェンプラズモンのバンド構造。フェルミ準位は 0.4[eV]、回折格子の周期は 1[micron] にとっている。

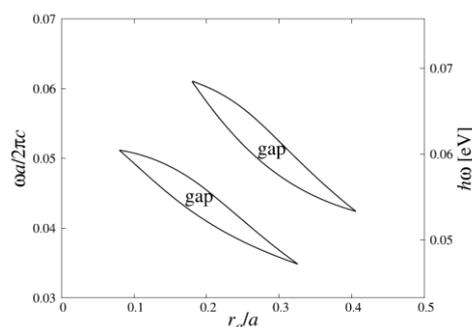


図 2-3: 回折格子における円柱の半径を変えた場合のバンドギャップマップ。

(3) 回折格子基板上的グラフェンにおける第2高調波発生とフォンドラッグ効果の増強 (論文 1)

上記 (2) の構造の応用として、非線形光学応答の増強を解析した。外部からグラフェンプラズモンの周波数帯もった電磁波が入射した場合に、特定の周波数近傍で強く変調されたグラフェンのプラズモンが励起される。その

結果、第2高調波発生とフォトンドラッグ効果が基板のない場合と比べて数千倍にまで増強することを示した。またフォトンドラッグ効果による電流は励起されるモードの性質を反映して、入射方向に対して正にも負にもなることを明らかにした。これはフォトンドラッグ効果が光圧のいわゆる散乱力と密接に関係することからである性質である。

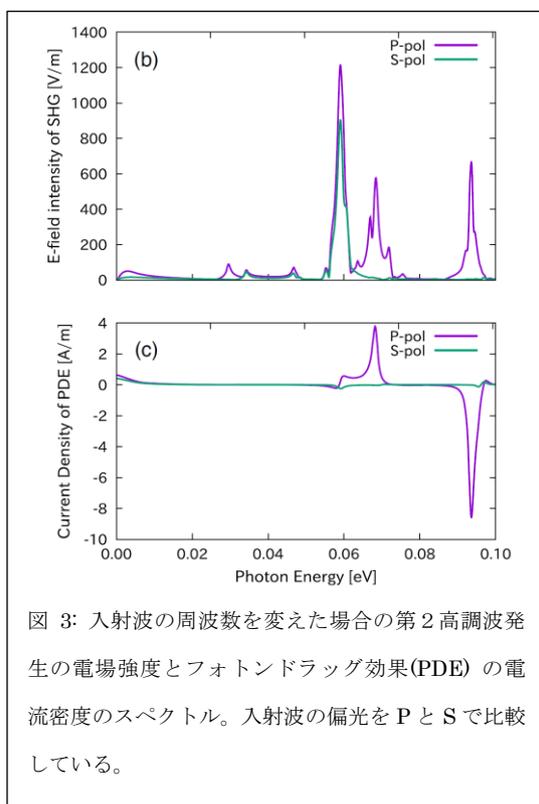


図 3: 入射波の周波数を変えた場合の第2高調波発生とフォトンドラッグ効果(PDE)の電流密度のスペクトル。入射波の偏光をPとSで比較している。

以上のように計画年度内にグラフェンの非線形性についての具体的な成果が得られたものの、非相反性の成果については論文にまとめるまでには至らなかった。しかしグラフェンをヒントとした関連する別の系で非相反性についての理解が進んだため、いくつかの論文(論文2, 3, 4, 6, 8)にまとめた。

#### 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8件)

- ① T. Ochiai, “Enhanced second-harmonic generation and photon drag effect in a doped graphene placed on a two-dimensional diffraction grating,” *J. Opt. Soc. Am. B* 34, 740-749 (2017), 査読有, [DOI:10.1364/JOSAB.34.000740](https://doi.org/10.1364/JOSAB.34.000740)

- ② T. Ochiai, “Synthetic gauge field and pseudospin-orbit interaction in a stacked two-dimensional ring-network lattice,” *J. Phys.: Condens. Matter* 29, 045501/1-21 (2017), 査読有, [DOI:10.1088/1361-648X/29/4/045501](https://doi.org/10.1088/1361-648X/29/4/045501)
- ③ T. Ochiai, “Floquet-Weyl and Floquet-topological-insulator phases in a stacked two-dimensional ring-network lattice,” *J. Phys.: Condens. Matter* 28, 425501/1-12 (2016), 査読有, [DOI:10.1088/0953-8984/28/42/425501](https://doi.org/10.1088/0953-8984/28/42/425501)
- ④ T. Ochiai, “Non-reciprocity and topology in optics: one-way road for light via surface magnon polariton,” *Sci. Tech. Adv. Mat.* 16, 014401/1-7 (2015), 査読有, [DOI:10.1088/1468-6996/16/1/014401](https://doi.org/10.1088/1468-6996/16/1/014401)
- ⑤ T. Ochiai, “Spatially periodic modulation of optical conductivity in doped graphene by two-dimensional diffraction grating,” *J. Opt. Soc. Am. B.* 32, 701-707 (2015), 査読有, [DOI:10.1364/JOSAB.32.000701](https://doi.org/10.1364/JOSAB.32.000701)
- ⑥ T. Ochiai, “Time-Reversal-Violating Photonic Topological Insulators with Helical Edge States,” *J. Phys. Soc. Jpn.* 84, 054401/1-9 (2015), 査読有, [DOI:10.7566/JPSJ.84.054401](https://doi.org/10.7566/JPSJ.84.054401)
- ⑦ T. Ochiai, “Efficiency and Angular Distribution of Graphene-Plasmon Excitation by Electron Beam,” *J. Phys. Soc. Jpn.* 83, 054705/1-11 (2014), 査読有, [DOI:10.7566/JPSJ.83.054705](https://doi.org/10.7566/JPSJ.83.054705)
- ⑧ T. Ochiai, “Broken Symmetry and Topology in Photonic Analog of Graphene,” *Int. J. Mod. Phys. B* 28, 1441004/1-22 (2014), 査読有, [DOI:10.7566/JPSJ.83.054705](https://doi.org/10.7566/JPSJ.83.054705)

[学会発表] (計2件)

- ① T. Ochiai, “Enhanced second-order optical nonlinearity in a doped graphene on a two-dimensional diffraction grating,” *Frontiers in Optics, Rochester (USA)*, 2016. 10. 21
- ② T. Ochiai, “Photonic analog of graphene: novel functions inspired by condensed matter physics,” *SPIE Optics + Photonics, San Diego (USA)*, 2014. 8. 21

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

落合 哲行 (Tetsuyuki Ochiai)  
物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・  
主任研究員  
研究者番号：80399386

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：

### (4) 研究協力者

( )