

令和 4 年 6 月 26 日現在

機関番号：57501

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K15467

研究課題名（和文）ベクトルビーム励起型ナノドットレーザの開発

研究課題名（英文）Development of a nanodot laser using vector beam excitation

研究代表者

田中 大輔（Tanaka, Daisuke）

大分工業高等専門学校・電気電子工学科・准教授

研究者番号：20643729

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,700,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題では、非対称なサブシェル構造にベクトルビームの一種である光渦を入射することで、多重極子型プラズモン共鳴を効率的に励起し、さらにサブシェル粒子の非対称性による指向性をもった発光特性を有するナノ光源が実現できるか、離散双極子近似シミュレーションによって検討した。その結果、(1)光渦の偏光と渦値の和である全角運動量から多重極子モードの次数を選択できること、(2)四重極子共鳴の励起効率がスカラービーム励起と比べて約10倍に向上すること、(3)構造の非対称性に由来した発光特性を持ったナノ光源を設計が可能であること、が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

レーザは、通信、加工、記録、計測、検出など、世の中で広く利用されているが、回折限界のために μm オーダー以上のサイズを有することが一般的である。ナノレーザ光源が実現すれば、量子回路やナノプロセッサといったナノ回路内での超高速動作や極狭領域での高感度センシング、などが実現可能となる。本研究で明らかにした、「光渦による高効率な多重極子型プラズモン共鳴の励起」はドット型ナノレーザの要素技術となるだけでなく、所望する共鳴次数を励起源によって選択制御できる技術であり、学術的意義は小さくない。応用例であるナノレーザはSDGsの3、9、12を実現するためのセンサ開発などに有用であり、社会的意義は大きい。

研究成果の概要（英文）：The feasibility of both an efficient excitation of multipolar localized plasmon resonance by an optical vortex and directional emission due to the asymmetry of the sub-shell particle was investigated for construction of a true nano-laser by discrete dipole approximation simulation. These study indicated the following. (1) The order of the multipole resonance mode can be selected from the total angular momentum, which is the sum of the spin angular momentum and the orbital angular momentum of the optical vortex. (2) The excitation efficiency of the quadrupole LPR mode can be improved about 10 times by the optical vortex. And (3) the directional emission derived from the structural asymmetry of nanoparticles may be possible.

研究分野：プラズモニクス

キーワード：ナノレーザ 局在プラズモン共鳴 光渦 離散双極子近似計算

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

局在プラズモン共鳴(LPR)を応用したナノレーザに関するいくつかの研究結果が報告されていた。実験的に成功したプラズモニックナノレーザはワイヤや薄膜が構造内に組み込まれているため、3次元方向の内の1次元はナノオーダーではない。基礎研究に目を向けると、複雑なナノ構造で実現されるプラズモンハイブリダイゼーションなどのモード結合由来の特異な光学特性が注目を集めていた。LPRはモード次数ごとに放射効率やエネルギー変換効率が異なるため、用途に応じた共鳴モードの励起を実現することが重要である。微細加工技術により金属ナノ構造を作製する場合、先鋭な角をもつ構造が作製できず、所望する光学特性を示さないことがある。

本申請で提案するベクトルビームを光源とした非対称ナノ構造のLPR励起が成功すれば、複雑なモード励起は光源の特殊性で発現するため、シンプルな構造でも種々の光学モードが励起可能となる。

2. 研究の目的

本研究では、離散双極子近似(DDA)法をベースにベクトルビーム励起に対応した光学シミュレーション法を開発すると同時に、その計算手法に基づいたベクトルビーム励起型ナノレーザの開発を目的としている。本研究では、ベクトルビームを非対称金属ナノ構造に照射することでレーズングを試みるが、その非対称金属ナノ構造としてコア粒子表面の上部を金属コーティングした構造(サブシェル構造)を採用した。

本研究を通じ、サブシェル構造における独創的な新規光学物性の発現や特定共鳴モードの選択的励起などを評価し、ベクトルビーム応用光学の学理構築を目指した。

3. 研究の方法

光渦をはじめとするベクトルビームの光学シミュレーション法を確立し、サブシェル粒子の光渦励起LPRに由来した光学特性を調査し、ナノ光源の可能性について検討した。これらのために以下の研究項目を遂行した。

- (1) ベクトルビームに関する数値シミュレーション法の確立
- (2) サブシェル粒子の光渦励起プラズモン共鳴特性の調査(計算)
- (3) サブシェル粒子の構造と放射パターンの調査とナノ光源の検討(計算)
- (4) スペーサー層を有するサブシェル粒子の作製手法の確立と光学特性調査(実験)

4. 研究成果

(1) ベクトルビームに関する数値シミュレーション法の確立

本研究項目ではDDSCATを拡張し、ベクトルビーム励起LPRに由来する光学特性(スペクトル、励起効率)および放射パターンの計算手法を確立した。

DDSCATの計算コード内で入射光はJones行列形式で記述されているため、たとえばトポロジカルチャージ $l=+1$ の左円偏光(LCP、 $\sigma=+1$)光渦を入射光とする場合、直角座標系の各電場成分を式(1)のように書き換えた。

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = e^{il\phi} \begin{pmatrix} 1 \\ i \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1)$$

ここで、 ϕ は xy 平面の振動電場の方位角、 l は光渦のトポロジカルチャージ(負の場合には l の符号はマイナス)、である。右円偏光(RCP、 $\sigma=-1$)光渦を設定する場合は E_y にマイナスをつけた。

拡張したDDSCATによる光学シミュレーションの妥当性を評価するため、金、銀、アルミのナノディスクについてDDAシミュレーションを実施し、金ナノディスクについては過去の研究報告と比較した。図1に、 $l=-2$ の直線偏光光渦を入射した際の金属ナノディスクの光学スペクトルと各ピーク波長における電場分布図のシミュレーション結果を示す。金ナノディスクの光学スペクトル、電場増強度、共鳴モードはそれぞれ過去の報告と良く一致したため、この計算は妥当であると判断した。

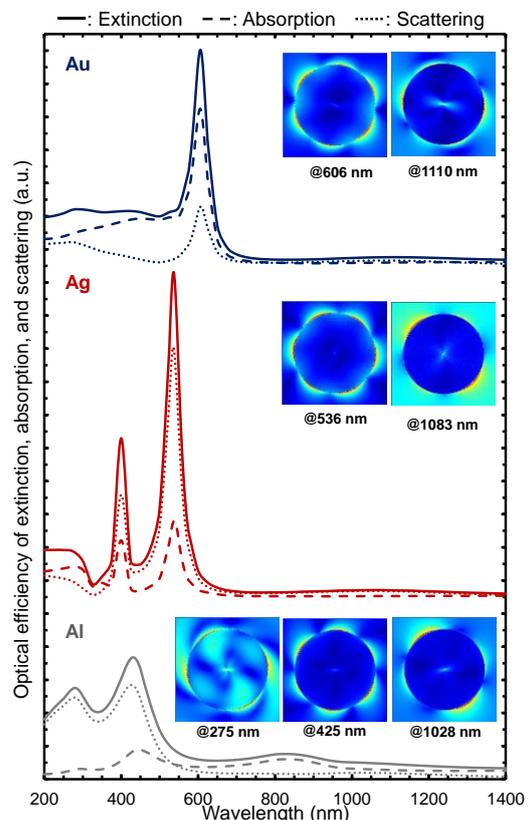


図1. 金属ナノディスクの光学スペクトルと共鳴電場

この計算より、直線偏光光渦を入射した際には、短波長側と長波長側にそれぞれ右円偏光光渦と左円偏光光渦によって励起された疑似 LPR 由来の消光ピークが出現することがわかった。また、金属種による違いは、スカラービーム励起 LPR 由来の特性と類似した傾向を示す、という新たな知見を得るに至った(日本シミュレーション学会論文誌, 12 巻, 1 号, pp.21-27 (2020))。

(2) サブシェル粒子の光渦励起プラズモン共鳴特性の調査(計算)

本研究項目では、厚さ 10 nm の金ナノ薄膜で直径 200 nm のシリカナノ球の表面を半分だけ覆ったサブシェル構造についての DDA 計算を実施した。

図 2A に計算モデルと計算条件, 図 2B に光学スペクトルとピーク波長における電場分布図を、それぞれ示す。これらの計算から以下のことが明らかとなった。

①偏光度 σ とトポロジカルチャージ(渦価) l から求められる全角運動量によって選択的に共鳴モード次数が決定すること

②消光効率が最大となる共鳴ピーク波長は、共鳴次数が大きくなるほど短波長側になる

③複数の消光ピークが出現する場合、どのピーク波長でも同じ共鳴モードが励起される

④ 4 重極子共鳴の励起効率が最も高く、スカラービーム励起時の約 10 倍になる

⑤共鳴電場は経時的に回転し、その回転周波数は共鳴波長、 σ 、 l 、によって決定している

⑥ l と σ の符号による光学特性は対称性がある。例えば、 $l=+1$ の RCP を入射した場合と $l=-1$ の LCP を入射した場合の光学スペクトルや共鳴モードは一致する。ただし、共鳴モードの経時的な回転方向は逆になる。

⑦光渦の入射方向が図 2A と 90° ずれた条件では非対称な共鳴モードが励起され、その増強電場はシェル表面に帯状に分布する

更に③の特性については、同じ次数の LPR でも波長によって吸収と散乱の比率が異なることがわかっており、スカラービーム励起 LPR では困難と思われる「同じ共鳴モード」を複数の波長において励起しながら、波長ごとで異なる光学特性を実現することができる、ことが示唆された。これは、ベクトルビーム励起による疑似的な LPR 特有の性質である。また④の特性は、光励起・光放射素子を検討する場合、非輻射性の多重極子型モードの励起効率を飛躍的に向上させられること、その際に複雑なナノ構造を必要としないこと、を示している (*Proc. SPIE 11701, Complex Light and Optical Forces XV, 117010Y (5 March 2021); doi: 10.1117/12.2583976.*)

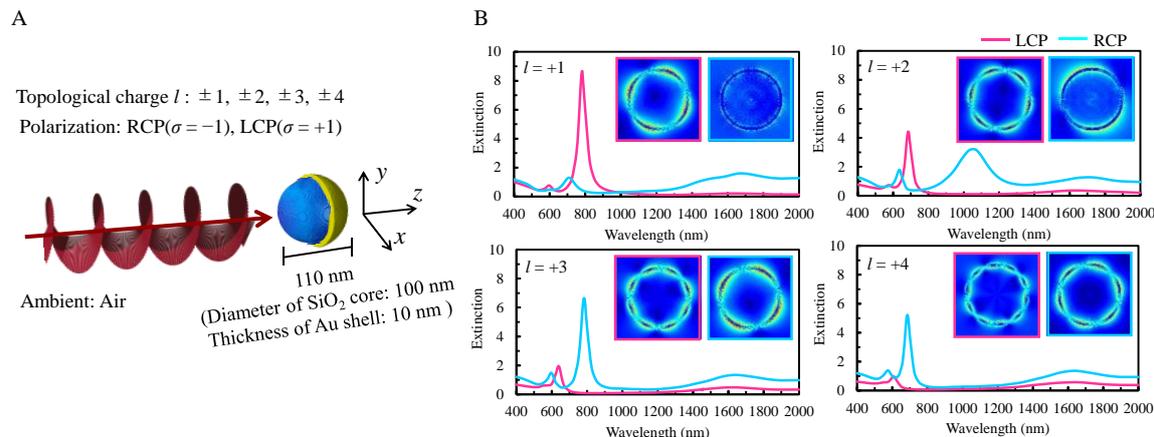


図 2. A 計算モデルと条件, B. 各入射条件でのサブシェル粒子の消光スペクトルとピーク波長での電場分布図

(3) サブシェル粒子の構造と放射パターンの調査とナノ光源の検討(計算)

本研究項目では、DDSCAT によってミューラー行列の各要素について計算し、サブシェル粒子の放射特性と構造パラメータの関係について調査を実施した。

図 3 に y - z 平面に対する f_{11} 、 f_{12} 、およびその和のポーラープロットを示す。サブシェル粒子にスカラービームを入射すると、図 3 に示すような金属シェル部分に増強電場が分布した奇数極子型(実際は 4 重極子型の重ね合わせ)の共鳴モードが現れる。ミューラー行列の各成分は、LPR 増強電場の分布をトレースするような角度依存性を示しているが、申請時に予想したような指向性を有する放射特性を示しているとは言い難い。材料や構造パラメータによって共鳴波長や電場増強度、放射強度は変化することは明らかとなったが、ミューラー行列から予想される放射パターンはいずれの場合も類似しており、指向性を有する構造についての再検討が必要である。

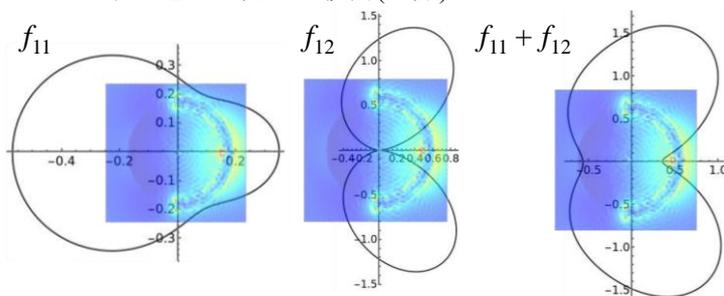


図 3. x - y 平面での各ミューラー行列成分のポーラープロット

(4) サブシェル粒子の作製手法の確立と光学特性調査(実験)

これまでに計算モデルに採用してきてサブシェル粒子をナノ光源に応用する場合、発光層であるコア粒子と LPR 励起のための金属シェルの間には、クエンチングを防ぐためのスペーサー層を導入する必要があるが、そのような複雑な多層ナノ構造を簡単に作製する手法については報告がなかった。そこで本研究項目では、サブシェル粒子のナノ光源への応用のために必要な、スペーサー層を有するサブシェル粒子の物理成膜法による簡単な作製スキームと、作製サブシェル粒子の光学スペクトル調査を実施した。

図 4(a), (b), (c)に作製したナノ構造の走査電子顕微鏡(SEM)像、透過電子顕微鏡(TEM)像、透過吸収スペクトル、をそれぞれ示す。また、図 4(d), (e), (f)に計算モデル、DDA シミュレーションによる光学スペクトル、各ピーク波長での LPR 電場分布図、をそれぞれ示す。多層積層サブシェル構造が作製できているかについて光学特性から調査するために、本実験ではポリスチレン(PS)コア粒子と MgF_2 スペーサー層の間に更に金薄膜層を導入し、プラズモンハイブリダイゼーション由来の光学特性から積層構造が作製できているかについて判断した。測定結果と計算結果を比較することで、金属層間のプラズモンハイブリダイゼーションに由来した光学特性をしていることがわかったため、固体基板表面に孤立ナノ球を固定化し、RF スパッタリングを繰り返すことで金属と絶縁体の多層積層膜が体積したサブシェル構造が作製できることが明らかとなった。また、超音波を利用することで基板から作製したサブシェル粒子だけを溶液中に分散させられることも明らかとなった(*Applied Physics Express*, **13**, 122004 (2020).)。

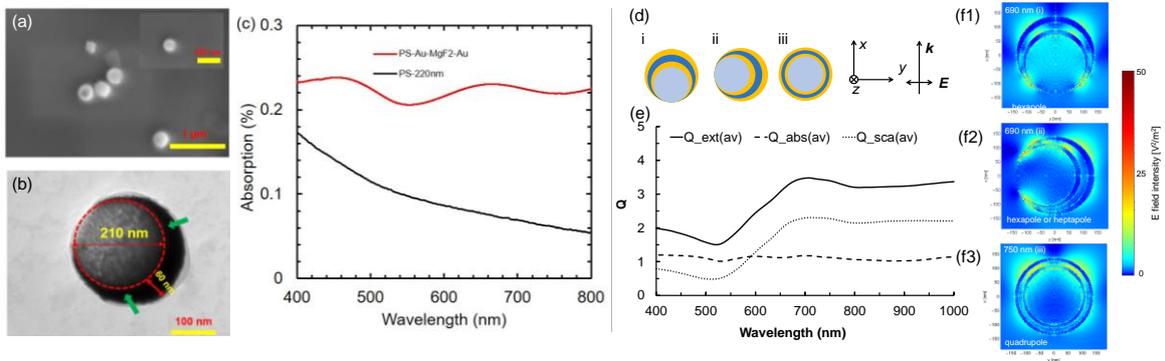


図 4. Au/MgF₂/Au/PS サブシェル粒子の(a)SEM 像, (b)TEM 像, (c)透過吸収スペクトルの測定結果, (d)計算モデル, (e)DDA 計算による光学スペクトル, (f)各ピーク波長での増強電場分布図

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Tien Thanh Pham, Dinh Dat Pham, Thi An Hang Nguyen, Minh Thong Vu, Lien Ha Thi Nghiem, Tien Van Nguyen, Daisuke Tanaka, and Duc Cuong Nguyen,	4. 巻 13
2. 論文標題 Synthesis and optical characterization of asymmetric multilayer metal insulator nanocrescent in aqueous solutions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 122004
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/abc8ac	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Daisuke Tanaka, Shungo Harajiri, David L. Andrews, Kayn A. Forbes	4. 巻 11701
2. 論文標題 Discrete dipole approximation simulation of optical vortex excited plasmonic properties of a partially capped core-shell nanostructure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proc. SPIE 11701, Complex Light and Optical Forces XV	6. 最初と最後の頁 117010Y
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1117/12.2583976	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Shungo Harajiri, Daisuke Tanaka	4. 巻 1
2. 論文標題 DDA simulation of localized plasmon resonance of a gold nanodisk excited by an optical vortex	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 JSST2019 The 38th JSST Annual International Conference on Simulation Technology, Conference Proceedings(Student Session)	6. 最初と最後の頁 87, 90
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Saito Noboru, Ryuzaki Sou, Tsuji Yuta, Noguchi Yutaka, Matsuda Rintaro, Wang Pangpang, Tanaka Daisuke, Arima Yusuke, Okamoto Koichi, Yoshizawa Kazunari, Tamada Kaoru	4. 巻 2
2. 論文標題 Effect of chemically induced permittivity changes on the plasmonic properties of metal nanoparticles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Communications Materials	6. 最初と最後の頁 1~8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s43246-021-00159-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 原尻 駿吾、田中 大輔	4. 巻 12
2. 論文標題 光渦励起による単一金属ナノディスクのLPR特性の離散双極子近似シミュレーション	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本シミュレーション学会論文誌	6. 最初と最後の頁 21~27
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11308/tjsst.12.21	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tanaka Daisuke, Jiang Haisong, Hamamoto Kiichi	4. 巻 1
2. 論文標題 Proposal of the all-optical memory using the pseudo-localized plasmon resonance excited by an optical vortex beam	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 2021 26th Microoptics Conference (MOC), Proceedings	6. 最初と最後の頁 1~2
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.23919/moc52031.2021.9598033	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計9件(うち招待講演 0件/うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Daisuke Tanaka, Shungo Harajiri, David L. Andrews, Kayn A. Forbes
2. 発表標題 Discrete dipole approximation simulation of optical vortex excited plasmonic properties of a partially capped core-shell nanostructure
3. 学会等名 SPIE Photonics West (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中 大輔, 原尻 駿吾
2. 発表標題 DDA法によるコアシェル構造の光渦励起LPRの特性調査
3. 学会等名 第17回プラズモニクスシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中 大輔, 原尻 駿吾
2. 発表標題 サブシェル構造の光渦励起LPRモードの次数変遷
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shungo Harajiri, Daisuke Tanaka
2. 発表標題 DDA simulation of localized plasmon resonance of a gold nanodisk excited by an optical vortex
3. 学会等名 JSST2019 The 38th JSST Annual International Conference on Simulation Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 原尻 駿吾, 田中 大輔
2. 発表標題 光渦励起による金ナノディスクのLPR特性のDDAシミュレーション
3. 学会等名 第16回プラズモニクスシンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 原尻駿吾, 田中大輔
2. 発表標題 単一金ナノディスクの光渦励起LPR特性のDDAシミュレーション
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田中 大輔, 浜本 貴一, 姜 海松
2. 発表標題 光渦励起SLPR を利用したディスク型光ナノメモリの提案
3. 学会等名 第18回プラズモニクスシンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Daisuke Tanaka, Haisong Jiang, Kiichi Hamamoto
2. 発表標題 Proposal of the all-optical memory using the pseudo-localized plasmon resonance excited by an optical vortex beam
3. 学会等名 26th Microoptics Conference (MOC2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中 大輔, 原尻 駿吾
2. 発表標題 サブシェル構造の光渦励起LPRモードの次数変遷
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	梶川 浩太郎 (Kajikawa Kotaro)		

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	ティエン タイン ファン (Tien Thanh Phan)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ベトナム	日越大学			