

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2013

課題番号：25600109

研究課題名(和文)三回回転対称金属ナノネット構造による高効率非線形波長変換

研究課題名(英文)High-efficiency wavelength-conversion in metal nano-net structures with threefold rotational symmetry

研究代表者

小西 邦昭(Kuniaki, Konishi)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：60543072

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円、(間接経費) 840,000円

研究成果の概要(和文)：微細加工技術の進歩により、光の波長以下のサイズの人工構造を用いて非線形光学効果を増強する技術が、非線形メタマテリアルとして注目されている。波長変換技術として重要な第二高調波発生(SHG)において偏光を制御するためには、構造の回転対称性が重要である。本研究では、金属二次元ナノネット構造に三回回転対称性を導入することで、偏光制御可能な高効率SHG素子への応用を試みた。今回我々は、このような金属ナノ構造に対して円偏光励起を行った場合、円偏光の左右のヘリシティが変換されたSHGが生じることを実証した。この新規素子は、通常非線形結晶が利用できない極短波長域で有効な技術となると期待できる。

研究成果の概要(英文)：Nonlinear metamaterials which consist of sub-wavelength artificial structures created by state-of-the-arts nanofabrication technology have been attracting attentions as new class of materials which enhance nonlinear optical responses. Symmetry of structures is critical for polarization control in nonlinear optical processes, such as second-harmonic generation (SHG), which is important as a wavelength-conversion technique. In this study, we aimed to fabricate high-efficiency and polarization-controllable SHG device using metal nano-net structures with threefold rotational symmetry. We demonstrate that, in achiral metal nanostructures with threefold rotational symmetries, a circularly polarized fundamental beam produces a countercircularly polarized second-harmonic beam. These presented results are of practical importance for developing ultra-small circularly polarized light emitter and wavelength-conversion devices by using conventional semiconductor and/or metallic materials.

研究分野：総合理工

科研費の分科・細目：応用物理学、光工学・光量子科学

キーワード：メタマテリアル 非線形光学効果 偏光 波長変換

### 1. 研究開始当初の背景

非線形光学効果はレーザーの黎明期から注目された現象であるが、新規材料開発やデバイス開発など現在も活発な研究が続いている。微細加工技術の進歩により、光の波長以下のサイズの人工構造を用いて非線形光学効果を増強する技術が注目されている。例えば、金属薄膜にナノ構造を導入し、表面プラズモンを効果的に励起することによって局所電場を増強し、非線形光学効果を劇的に増強する技術が検討されている。通常、反転対称を有する物質では第二次高調波発生(SHG)は生じないが、波長オーダーで形状制御された金属ナノ粒子や、ダイマー化した金属ナノ粒子からは、非局所効果による多重極モーメントの誘起を通じて SHG が生じることが知られている。しかしこの効果は微細な構造揺らぎや欠陥に敏感で、再現性の良い作製は困難である。また SHG は非常に微弱である。代表者はこれまでに、金属・半導体などの薄膜にキラリナノ構造体が周期的に配置する構造によって、非局所応答に起因する旋光性が巨大化することを見だしている。また、ユニットが連結構造をとる金属ナノ周期構造体(ナノネット構造)では伝搬プラズモン共鳴が顕著となり、この増強効果を再現性よく設計できることを示した。一方、三回回転対称構造において、二次の非線形光学過程が特異な偏光選択則を示す研究に参加している。これらを基に、金属二次元ナノネット構造に三回回転対称性を導入することで、偏光制御可能な高効率 SHG 素子へ応用できると着想した。この新規素子は、通常非線形結晶が利用できない極短波長域で有効な技術となると期待できる。

### 2. 研究の目的

光の波長以下の単位構造からなる三回回転対称周期構造を有する金属ナノネット構造を作製し、そこからの SHG の偏光特性を測定することによって、マクロな三回回転対称に起因する現象が発現しているかどうかを明らかにする。構造パラメータ(構造の大きさ及び周期)を系統的に変化させ、プラズモン共鳴バンド構造と、入射波長と SHG 波長の関係を考慮し構造を最適化する。集束イオンビーム法を活用した高スループットの実験と数値計算を組み合わせ、最適構造の設計手法を確立する。さらに、物質の多重極光学遷移共鳴による増大を付与したさらなる高効率化について検討し、実験的に検証を行う。

### 3. 研究の方法

まず、三回回転対称金属ナノネット構造の作製技術を確立する。本研究では、波長以下のスケールの金属微細構造を簡便に作製するために、集束イオンビーム(FIB)を用いて試料を作製する。この手法は、リソグラフィーに比べて加工プロセスが少なく、また、より微細な構造作製に適している。これと同時に、

SHG を観測するための光学系の構築を進める。本研究においては、光源としてフェムト秒パルスレーザーを用いるが、高繰返し率のオシレーターと、波長チューニングが可能な光パラメトリック増幅器(OPA)とを併用する。サンプルにダメージの生じる恐れが少ないオシレーター光源で最初に SH 光の検出を確認した後、OPA を光源として用いる実験系に移行する。SHG の検出器には液体窒素冷却型 CCD アレイを用い、微弱な SHG でも高感度に検出可能な環境を整える。

三回回転対称を有する系からの SHG は、円偏光励起の場合、ヘリシティー(円偏光の右回り・左回り)の反転した SH 光が放射されることが、Bloembergen らによって結晶系において実証されている[H. J. Simon et al, Phys. Rev. (1968)]。これと同様の偏光変換が、人工ナノ構造の系でも生じることを、SHG 偏光特性の解析によって明らかにする。

この結果を踏まえて、三回回転対称金属ナノネット構造からの SHG 特性を明らかにしていく。三角形の金属ナノ構造における多重極共鳴波長と、入射光・出射光の波長の関係を明らかにしていく。これに加えて、本研究で用いる試料では、構造の周期も光学応答を決める重要なパラメータとなる。これらのパラメータを系統的に変化させた試料を作製し、それらの試料からの SHG の入射波長依存性を、偏光依存性も含めて詳細に測定を行う。これらの測定によって、効率的な SHG を実現するために最適な構造パラメータと波長の関係を明らかにする。

### 4. 研究成果

試料は、サファイア基板の厚さ 50nm の金薄膜に対し、収束イオンビームを用いて周期的な空孔を作製することを試みた。条件の最適化によって、数 10 ミクロン四方のエリア内に、数百ナノメートル周期の人工金属構造を作製することに成功した。一辺 700nm の三角形のアレイ構造の電子顕微鏡画像を図 1 に示す。

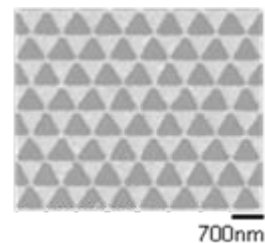


図 1. 三回回転対称金属周期構の SEM 画像

この構造に対して、基板垂直方向より左回り円偏光の励起光を入射し、基板裏面から垂直方向に放射される SHG の左右円偏光成分を測定した。この結果、三回回転対称構造の効果によって、励起光の円偏光を逆のヘリシティーの円偏光 SHG が観測されることが明らかになった(図 2)。

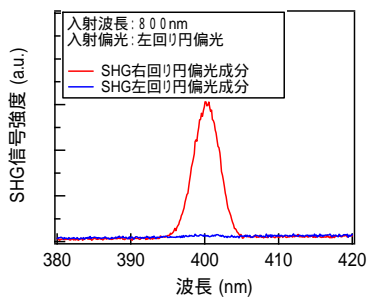


図 2. 三回回転対称金属周期構における SHG 強度の円偏光依存性

また、ナノ構造が L 字型の場合は、片方の円偏光で励起した場合、SHG には両方の円偏光成分が観測され、型の場合にはそもそも基板垂直方向への SHG は観測されないことが明らかになった(図 3)。

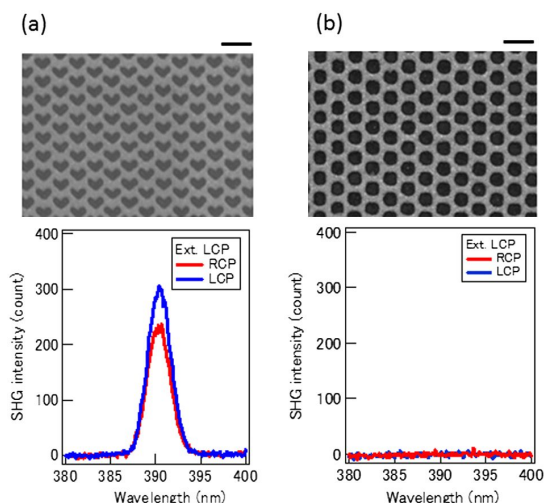


図 3. SHG 強度の円偏光依存性  
(a)孔の構造が一回回転対称の場合  
(b)孔の構造が連続回転対称の場合

一方、直線偏光で励起を行った場合の、励起光の偏光角  $\theta_\omega$  と SH 光の偏光角  $\theta_{2\omega}$  の関係を測定した(図 4(a))。この結果、直線偏光の偏光角を  $\theta$  だけ回転させると、SH 光の偏光角は逆方向に  $2\theta$  回転するというシンプルな関係が成り立っていることが明らかになった(図 4(b))。

実験結果で示されているように、SHG における偏光選択則と構造の対称性は重要な関連性を持っている。このような偏光選択則と対称性の関係の一般則を、ノイマンの原理に従って導くことに成功した。さらに、特に構造が三回回転対称性を有している場合の、励起光と SH 光の偏光状態の関係を記述する簡便な式を導くことができた。

さらに、励起波長、構造の周期、SHG 強度には密接な関連があり、構造周期を最適化することによって、SHG 強度の数桁の増大が可能であることがわかった。SHG 増大のための詳細なメカニズム探索を、現在進めている。

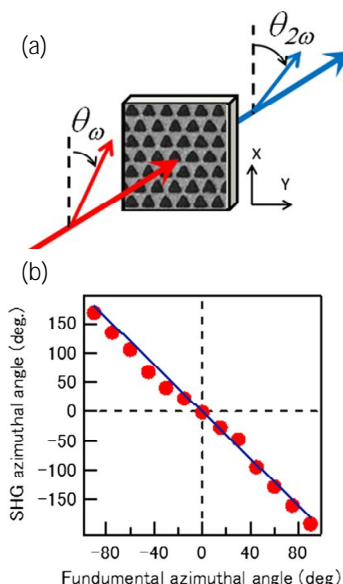


図 4. 直線偏光励起による SHG の偏光測定  
(a)測定した偏光角 (b)励起光の偏光角と SHG 光の偏光角の関係

これらの結果は、これまでに結晶で知られていた SHG における偏光選択則と回転対称性との関係が、人工ナノ周期構造でも成立することを意味しており、非線形メタマテリアルの新たな設計指針を与えるものであると考えられる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

Kuniaki Konishi, Takuya Higuchi, Jia Li, Jakob Larsson, Shuntaro Ishii, and Makoto Kuwata-Gonokami, “Polarization-controlled circular second-harmonic generation from metal hole arrays with threefold rotational symmetry” *Physical Review Letters*, **112**, 135502 (2014) (査読有).  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.135502

〔学会発表〕(計 4 件)

Kuniaki Konishi, Makoto Kuwata-Gonokami “Controlling circularly-polarized emission and second-harmonic generation with artificial nanostructures”  
The 6th IEEE International Nanoelectronics Conference 2014 (IEEE INEC2014), Sapporo, Japan ( July, 2014) (Invited)

石井俊太郎、樋口卓也、Jia Li, Jakob Larsson、小西邦昭、五神真

“三回回転対称性を有する人工ナノ構造を利用した波長変換技術の開拓”

公開シンポジウム「ナノ量子情報エレクトロニクスの新展開」、東京大学、2014年5月20日

小西邦昭

“構造の三回回転対称性を活用した波長変換技術とその応用”

レーザー学会第 34 回年次大会、北九州国際会議場、2014 年 1 月 22 日(招待講演)

小西邦昭

“三回回転金属ナノ周期構造からの円偏光第二次高調波発生”

FIRST 量子情報プロジェクト全体会議、東京大学、2013 年 12 月 9 日

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

小西 邦昭 ( KONISHI, Kuniaki )

東京大学・大学院工学系研究科・特任助教

研究者番号：60543072