

学位論文題名

超短光パルスを用いた周期的ナノ構造における
GHz振動モード解析(GHz vibrations of periodic nanostructures studied with
ultrashort optical pulses)

学位論文内容の要旨

物体がどのように振動するのか、という興味は昔から尽きない。古くは振り子やバネ、弦の振動といったものの振動が詳しく研究され、例えば時計、楽器、地震計、重力測定などに応用されてきた。そして 1990 年代以降ナノメートルスケールの物質、構造物に対する振動研究が盛んに行われている。これには超短光パルスを用いたポンププローブ法に基づくピコ秒音響法という方法が用いられている。この方法は 2 つの超短光パルスを用いて、一つの光パルスでナノ構造の振動を励起し、もう一つの光パルスで過渡的光反射率や透過率の変化によって振動を検出する方法である。この方法によりナノマテリアルの振動共鳴の領域である時間的にはピコ秒領域、周波数的には 1 GHz～数 THz 程度の領域の現象が観測されている。このスケールでの興味としては、基礎物理学的な興味だけでなく応用に対する興味が挙げられる。基礎的な興味としては、サイズが減少するにつれて弾性率(ヤング率)が減少するという研究結果があることや、ナノメートルサイズになるとマクロなサイズと比べて体積-表面積の比率が劇的に変わってくることにより減衰機構が変化してくるといったことが挙げられる。応用に関して言えばナノスケールの振動を理解することはこれまでの水晶振動子などのスケールの時と同様多くの応用を生み出すことが期待される。特にフィルタリングやセンシングなどの分野において、小型化、高感度化、高周波数化が望まれる。従来の研究ではキューブ型、ロッド型、リング型など比較的単純な形状の物質、構造物の振動が対象とされてきた。しかしセンシングなどへの応用においては、目的のナノ構造が基板に接着されており、また、信号強度を上げるためにナノ構造が周期的に配置されるなど複雑な構造が用いられる。このような付加的な構造がナノ構造の振動モードに及ぼす影響については、系統的な研究は少なく、未解決の問題が多い。

本研究では基板上的の様々な周期的ナノ構造における振動モードに関する研究をピコ秒音響法と数値シミュレーションを用いて行なった。具体的には GaAs ナノビラー、金ナノディッシュ構造、金ナノ周期開口構造の振動モード解析を行なった。特に金で作製されたナノ構造はプラズモニクスと呼ばれる特異な光学特性を持つ物理現象に関する分野とのつながりが深く、その音響振動との関わりは未開拓の研究分野として残っていた。

本論文は全六章より構成されている。以下各章の要旨をまとめる。

第 1 章では本研究の導入として研究の背景となる事柄について簡単に述べ、過去に行われてきたナノ構造における振動モードに関する研究について触れながら本研究の目的をま

とめた。

第2章では後の3つの章に対する共通する2つの事項についてまとめた。一つは超短光パルスを用いてナノ構造に振動を励起する際の熱弾性的機構と変位励起機構と呼ばれる2つの機構について、もう一つはピコ秒音響法による観測においてナノ構造の振動と同時に検出されるブリルアン振動と呼ばれる現象についてである。

以下第3～5章では行なった3つの研究についてそれぞれ解説する。

第3章では、GaAs(111)B面基板に有機金属気相選択成長法を用いて作製された異方性を有する六角柱型 GaAs ナノピラーにおいて超短光パルスを用いたピコ秒音響法によって振動モード解析を行なった。この試料は三角格子状に周期的に配列されている。得られた実験結果を有限要素法に基づいた数値シミュレーションと比べることで、振動モードの周波数、形状、減衰を確認した。加えてシミュレーション上でナノピラーの幅、高さ、周期を独立で変化させた結果を比較することで集団的な振動モードと固有の振動モードを区別することに成功した。

第4章では、金薄膜に球状のくぼみが三角格子状に周期的に空いた試料に関する振動モードを取り扱う。この試料はプラズニック特性とフォノニック特性の両方を持つ。この周期構造での GHz 帯の振動モードとプラズモニック特性の相互作用を理解するために、試料上に起きる振動モードを検出する。ここで振動モードの振動状態を、ピコ秒音響法を用いて励起し、そして反射率の過渡的变化を2次元空間、かつピコ秒時間分解において測定した。それによってプラズモニック・フォノニック結晶における反応をくぼみの中心で励起し、フォノニック共鳴による光反射率変化の上昇を初めて例証した。入射する光は試料に局在するプラズモニックモードと強く結合する。この機構を通じて、球状のくぼみの中心において非常に高い反射率変化が観測された。さらに振動イメージングと数値シミュレーションを比較することによって球状のくぼみの Breathing モードとその振動モード形状を明らかにした。

第5章では、ガラス基板上的金薄膜上に正方格子状の周期的正方開口を有する構造の振動を取り扱う。この試料は Extraordinary optical transmission と呼ばれる光の異常透過現象を発現する。この現象は表面プラズモンの効果で開口面積に入射する光の強度よりも多くの光が透過する現象である。この構造の振動についてピコ秒音響法と数値シミュレーションを比較することにより、振動数、振動モードの形状、減衰を取得した。支配的な振動モードは開口が収縮、膨張を繰り返す Breathing モードであった。また実験において入射検出光を様々な波長を選択することで表面プラズモンの効果による振動の初期位相の変化を確認した。

第6章では本論文の総括をする。

学位論文審査の要旨

主 査	教 授	Wright Oliver Bernard
副 査	教 授	森 田 隆 二
副 査	教 授	西 口 規 彦

学 位 論 文 題 名

超短光パルスを用いた周期的ナノ構造における GHz振動モード解析

(GHz vibrations of periodic nanostructures studied with
ultrashort optical pulses)

近年ナノメートルサイズの構造の音響的振動が注目されている。物質がナノメートルサイズになると、その弾性的性質がマクロなサイズのものから乖離することが知られている。また構造が微小化すると表面の影響が相対的に大きくなり、例えば振動の減衰機構などに大きな変化が生じる。このような変化が振動に及ぼす影響の探索は基礎物理学的見地から興味深い。またナノメートルサイズの構造の振動は、信号フィルター素子やセンサーなどへの応用においても極めて重要である。これらの応用においては、複雑なナノスケール構造の振動の詳細な理解が不可欠である。

ナノメートルサイズ構造の振動の振動数は GHz から THz の領域にある。このような高い周波数の振動を研究するために有効な方法として、ピコ秒レーザー音響法がある。この方法は超短光パルスを用いたポンププローブ法的一种で、ポンプ光パルスの照射によって試料中に振動を励起し、その振動による試料の光学的性質の過渡的な変化を遅延されたプローブ光パルスによって検出する。この方法の時間分解能は使用する光パルスの時間幅のみに依存しており、ピコ秒程度の時間分解能が容易に得られる。

本研究では、ナノメートルサイズの構造の振動解析法の確立を目的に、ピコ秒レーザー音響法を用いてナノメートルサイズの構造の振動を観測し、数値モデル計算を援用してその解析を行った。また、高周波数の振動と光との相互作用を利用した機能素子への応用を見据えて、金属ナノ構造中に励起されるプラズモン (光の電磁場と金属中電子の集団励起が結合した素励起) と音響的振動との相互作用にも注目して研究を進めた。具体的には GaAs ナノピラー、金ナノディッシュ構造、金ナノ周期開口構造の振動モード解析を行った。金で作製されたナノ構造はプラズモンが関与するいわゆるプラズモニクスの典型的な舞台である。

本論文の第 1 章では本研究の導入として研究の背景となる事柄について述べ、本研究の目的をまとめた。

第 2 章では後の章に対する共通する 2 つの事項についてまとめた。一つは超短光パルスを用いてナノ構造に振動を励起する際の熱弾性的機構と変位励起機構と呼ばれる 2 つの

機構について、もう一つはピコ秒音響法による観測においてナノ構造の振動と同時に検出されるブリルアン振動と呼ばれる現象についてである。

第3章では、GaAs(111)B 面基板に有機金属気相選択成長法を用いて作製された異方性を有する六角柱型 GaAs ナノピラーにおいてピコ秒レーザー音響法によって振動モード解析を行なった。ナノピラーは三角格子状に周期的に配列されている。得られた実験結果を有限要素法に基づいた数値シミュレーションと比べることで、振動モードの周波数、形状、減衰を確認した。加えてシミュレーション上でナノピラーの幅、高さ、周期を独立で変化させた結果を比較することで集団的な振動モードと局在振動モードを区別した。

第4章では、金薄膜に球状のくぼみが三角格子状に周期的に空いた試料に関する振動モードを取り扱う。この試料はプラズモニック特性とフォノンニック特性の両方を持つ。ピコ秒レーザー音響法を用いて試料の各部における GHz 音響波の励起と検出を行い、振動強度の2次元マップを得た。これにより、くぼみ中心部の振動励起・検出において、プラズモニック共鳴による振動の励起・検出効率の上昇を初めて検出した。さらに振動強度の2次元マップと数値シミュレーションを比較することによって、この共鳴的な励起・検出効率の上昇が球状のくぼみの Breathing 振動モードと関連していることを明らかにした。

第5章では、ガラス基板上の金薄膜上に正方格子状の周期的正方開口を有する構造の振動を取り扱う。この試料は Extraordinary optical transmission と呼ばれる光の異常透過現象を発現する。この現象は表面プラズモンの効果で開口面積に入射する光の強度よりも多くの光が透過する現象である。この構造の振動についてピコ秒レーザー音響法と数値シミュレーションを比較することにより、振動数、振動モードの形状、減衰を取得した。支配的な振動モードは開口が収縮、膨張を繰り返す Breathing モードであった。また実験において入射検出光の波長を変化させることで表面プラズモンの効果による振動の初期位相の変化を確認した。

これを要するに、著者はナノメートル構造の GHz-THz 周波数領域の音響振動の観測・解析に有効な一般的手法を開発し、また音響振動とプラズモンの相互作用を明らかにし、さらにそれを用いた音響振動による光伝播制御の基礎を築いたものであり、応用物理学に対して貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。