

非回折領域かつ垂直入射における 金属グレーティングの光整流効果

黒澤 裕之¹, 畑野 敬史¹, 池田 直樹², 津谷 大樹², 落合 雅幸², 杉本 喜正², 石原 照也^{1*}

¹ 東北大学大学院理学研究科物理学専攻

² 物質・材料研究機構 ナノテクノロジー融合センター

Optical rectification effect in metallic grating slabs

at normal incidence in non-diffraction regime

H. Kurosawa¹, T. Hatano¹, N. Ikeda², D. Tsuya², M. Ochiai²,

Y. Sugimoto² and T. Ishihara^{1*}

¹Department of Physics, Graduate School of Science, Tohoku University

²Nanotechnology Innovation Center, National Institute for Materials Science (NIMS)

Abstract

We investigated optical rectification effect at normal incidence in non-diffraction regime where rectification is not expected from simple momentum conservation between light and free carriers in 1D grating slab. Two 1D grating slabs were prepared: One has the inversion symmetry (symmetric grating slab), the other lacks the inversion symmetry (asymmetric grating slab). At normal incidence in non-diffraction regime, no optical rectification signal was observed in symmetric grating slab, while it was observed in asymmetric grating slab. It is clarified that the optical rectification signal is due to the asymmetric excitation of surface plasmon polariton.

1. はじめに

金属のような自由キャリアを持つ媒質に光を照射すると、光の持つ並進運動量が自由キャリアに受渡され起電力(光誘起起電力: Photo-Induced Voltage 以下 PIV)が発生するが、そのような効果は一般的には小さい。しかし、金属に光の波長スケールの周期的微細加工を施すことによって、表面プラズモンポラリトン (Surface Plasmon Polariton: 以下 SPP) 励起や回折光の出射に依存した応答が系に現れて、大きな起電力応答が得られることが分かった。このような効果はフォンドラッグ [1] として知られているが、 $\omega \rightarrow \omega = 0(DC)$ の過程 (光整流効果) で DC 起電力が発生したと考えることもできる。畑野らは非対称構造グレーティングスラブに垂直入射で (鉛直方向に沿って) 光を照射した際に、水平方向に PIV が生じることを数値的、実験的に示した [2]。これは構造を非対称化したことによって回折効率が水平方向で対称性が破れたことが PIV の

起源であり、畑野らが数値的に PIV を評価する際に使った式を見ると分かり易い。畑野らは入射光の水平方向並進運動量が、反射、透過、回折そしてサンプル中の自由キャリアに受渡されるとして、以下のように PIV を見積もった:

$$V(\lambda) = C \left[A(\lambda) \sin \theta - \frac{\lambda}{\Lambda} \sum_g D_g(\lambda) g \right], \quad (1)$$

ここで、それぞれ C は構造及び物質パラメータに依存する定数であり、 $A(\lambda)$ は吸収スペクトル、 θ は入射角、 λ は入射波長、 Λ は周期、 D_g は g 次の回折スペクトルである。式 (1) から垂直入射であっても ($\sin \theta = 0$)、 g 次の回折効率の対称性が破れることで PIV が発生することが分かる。しかし、光整流効果は系の反転対称性の破れを要求するだけであり、たとえ回折効率の対称性の破れがなくとも生じるはずである。そこで本研究は非回折領域かつ垂直入射における PIV の発生を実験的、数値的に示し、その発生

メカニズムを明らかにすると共に、式(1)の適用限界を示すことを目指した。

2. サンプルと実験配置

電子線描画とドライエッチングを用いて、我々はアルミニウムからなる対称、非対称単位胞を持つ金属周期構造を作製した(図1のSEM画像)。エッチングを行う前のアルミニウム膜の膜厚は50nmであり、アルミニウムの酸化を防ぐためにSiO₂膜(約120nm)で保護してある。対称、非対称構造ともに周期は700nmである。構造(a)では周期的な方向に沿って対称性を保持している一方、構造(b)では周期的な方向に沿って非対称が導入されている。

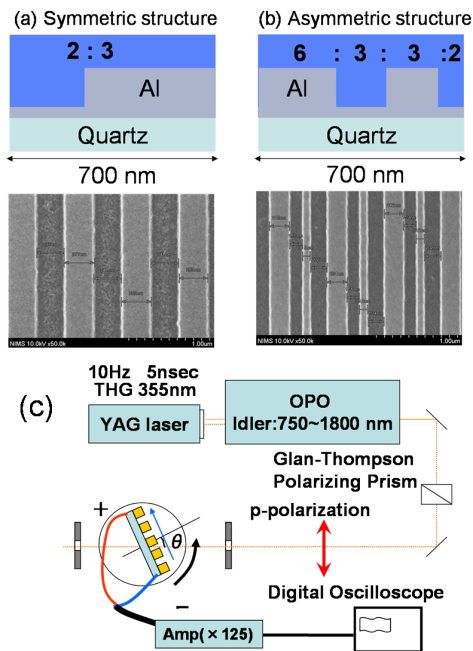


図1: Al薄膜上に作製された(a):対称構造及び(b):非対称構造の断面プロファイルと周期構造のSEM画像。(c):実験配置の模式図

実験配置を図1(c)に示す。Nd:YAGレーザー(パルス幅5ns、繰り返し10Hz)の三倍波により励起された光パラメトリック発振器(Optical Parametric Oscillator:OPO)からのアイドラー光をサンプルに入射させる。SPPが励起されるように、偏光はp偏光を選択した。実際の起電力信号は微弱であるので、高速前置増幅器(125倍)で信号を増幅してオシロスコープ(Tektronix TDS3012B)で信号を観測、記録した。

3. 実験結果と考察

PIVの実験結果の説明に移る前に、本研究で用いたサンプルの線形光学応答を見ていく。サンプルは周期700nmの金属微細構造を有しており、SPP励起が光学応答に支配的な影響を与えることが予想される。図2(a)に横軸を波長として入射角に対してオフセットをつけた透過スペクトルの測定結果を示す。また、図2(b)に数値計算結果を示す。数値計算は散乱行列法[3]を用い、本研究で独自に開発したコードを使用した。

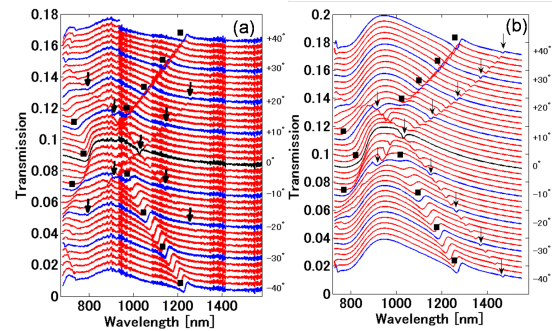


図2: 角度分解透過スペクトル。(a):実験結果、(b):数値計算結果。正方形及び矢印で図示されているモードがそれぞれSiO₂保護膜/AlモードとAl/基板モードである。

図2より、入射角に対してシフトしていくスペクトル構造が存在していることが分かる。このモードがSPPモードである。SPPは金属/誘電体界面に局在して伝搬する電磁モードであるが、今SiO₂保護膜/Al界面とAl/基板界面との2つの界面が存在しており、それに伴って2つのSPPモードが励起される。正方形及び矢印で図示されているモードがそれぞれSiO₂保護膜/AlモードとAl/基板モードである。図2(a)を見ると、Al/基板モードは Γ 点(垂直入射)でクロスするのに対して、SiO₂保護膜/Alモードは Γ 点でクロスせず、ギャップが開いている(Plasmonic bandgap)[4]。本研究で注目する Γ 点においては、1040nm付近と800nm付近でSPPモードが励起されることが分かる。

次に、非対称構造に対する垂直入射におけるPIVの実験結果を図3(a)に示す。回折領域と非回折領域の境界を破線で示すが、非回折領域において式(1)からは予想されない有意な信号が測定された。また、対称構造では有意な信号は測定されなかった。ま

ず、回折領域における PIV の起源を従来の運動量保存則を用いて説明する。回折領域では式 (1) から回折効率の非対称性が起源となるはずである。図 3(b) に回折次数別回折スペクトルを示す。図 3(b) から基板側に出射される回折の内 1 次の回折効率の対称性が破れていることが分かる。-1 次の回折効率の方が大きく、運動量を補償するために Al 中のキャリア (ホール) は + 方向に運動量を受け取らなければならない。この結果、起電力が正となるのである。次に、1040 nm 付近での有意な PIV 信号に注目する。図 3(c) に垂直入射における吸収スペクトルを示すが、図 3(c) から 1040 nm 付近では吸収スペクトルがピーク構造を有しており、SPP 励起に対応している。したがって、この信号の起源に SPP が関与していると考えられる。また、回折領域においても、長波長側から 850 nm 付近に近づくにつれて回折効率の対称性の破れは小さくなっているのに PIV は増大している。さらには、800 nm 付近では回折効率が 1 次で対称性が破れておらず、PIV が負に転じることは説明できない。800 nm 付近でもまた SPP が励起されており、以上から式 (1) は SPP ような局所電磁場による効果を正しく取り入れることができず、回折光のように非対称性の起源が外部の光学応答に顕著に現れる場合でのみ有効であることが分かった。

まず、式 (1) との不整合の原因が SPP という局所電磁場による効果であることを明らかにするために、SPP によって生じる光整流効果を数値計算に取り込むことを試みる。一般的に電磁場による運動量輸送現象は Maxwell 応力テンソルを用いて記述される。いま、自由キャリアガスが真空中に置かれ、入射光と金属微細構造によって生じる電磁場により運動量移行が行われるというモデルを考えると Maxwell 応力テンソルの DC 成分は以下の式で記述される。

$$T_{ij}^{DC} = \frac{1}{8\pi} \text{Re} [E_i E_j^* + H_i H_j^* - \frac{1}{2} (E^2 + H^2) \delta_{ij}]. \quad (2)$$

上式をサンプル中の金属部分表面全体に渡って積分することで金属微細構造中の電子が受ける光の輻射力が求まる (F^{DC} とする)。

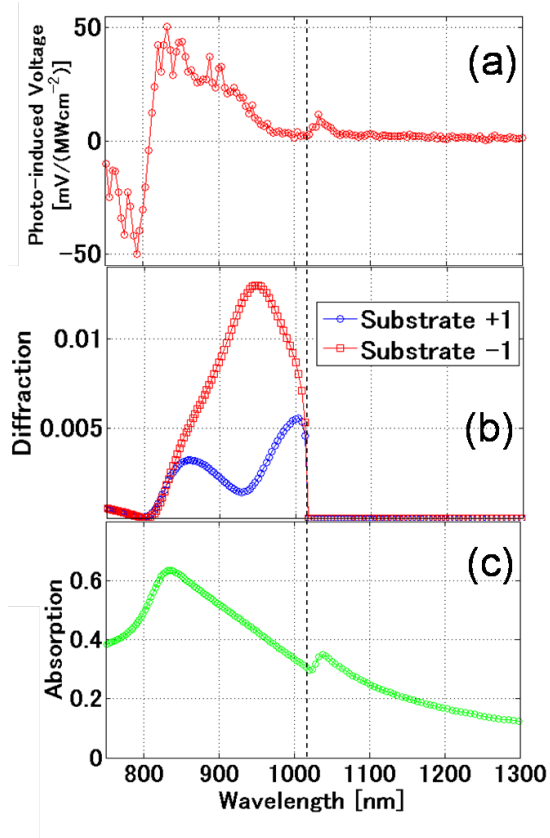


図 3: 図 3(a):垂直入射における PIV スペクトルの測定結果。図 3(b):回折次数別回折スペクトル。図 3(c):垂直入射における吸収スペクトル。以上はすべて非対称構造に対する結果である。また、回折領域と非回折領域の境界が破線で示されている。

いま、測定は開回路測定であるので、光の輻射力と自由電子キャリアが受ける電場の釣り合いが成り立っている：

$$F_x^{DC} + nqvE_x^{DC} = 0. \quad (3)$$

ここで、 n はキャリア密度、 q はキャリアの電荷、 v は金属部分の体積である。 E_x^{DC} をサンプルの長さ (0.9 mm) だけ積分することで、PIV を計算した。計算結果を図 4 に示す。

図 4 を見ると、式 (1) では再現できない 800 nm 付近及び 1040 nm 付近の詳細な PIV スペクトル構造を再現しており、PIV が Maxwell 応力で良く記述できることが分かった。次に、Maxwell 応力のうち、圧力 (T_{xx}) とせん断応力 (T_{xz}) のどちらが PIV の発生を担っているのかを理解するために、図 5 にそれぞれスペクトルを示す。

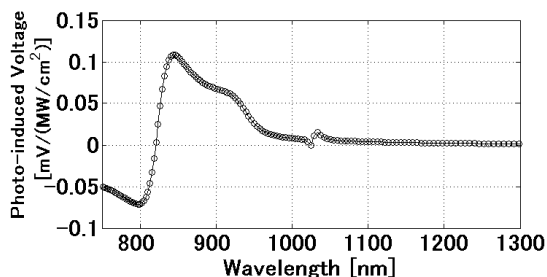


図 4: Maxwell 応力テンソルを使った非対称構造に対する PIV スペクトルの計算結果。入射角：垂直入射。

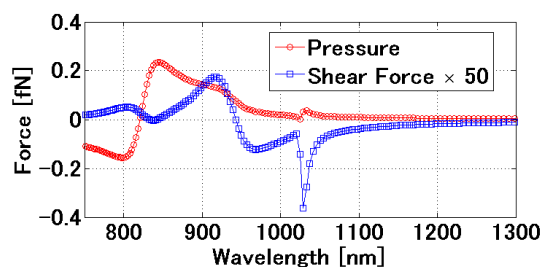


図 5: Maxwell 応力テンソルから計算した非対称構造に対する圧力とせん断応力スペクトル。入射角：垂直入射。

図 5 より PIV のスペクトル形状をよく再現しているのが圧力の方であり、大きさも圧力の方がせん断応力よりも 2 桁近く大きいことが分かる。

最後に、PIV と SPP との関係を定性的に議論する。図 6(a),(b),(c) はそれぞれ入射波長が SPP 励起、すなわち 1033 nm, 850 nm, 800 nm に対応する磁場強度分布であるが、(a) と (b) は細い金属線部分に磁場が集中しているのに対して (c) は太い金属線部分に磁場集中が見られる。一方、PIV の符号は (a),(b) で正であり、(c) のみ負である。以上のように、磁場の局在さらには電磁エネルギーの局在が左右で反転し、構造に発

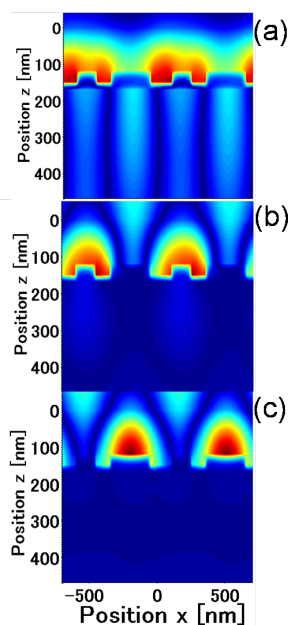


図 6: 磁場強度分布。波長はそれぞれ (a):1033 nm,(b):850 nm,(c):800 nm

生ずる非線形分極が反転することが符号反転の定性的理由であると考えられる。現在のところエネルギーが偏在する部分とそれに伴って発生する非線形分極および PIV の向きとの関係は解明できておらず、今後の課題であるといえる。

4. 結論

本研究では対称、及び非対称構造金属グレーティングにおける PIV を実験的及び数値的に調べた。非回折領域かつ垂直入射では非対称構造に対してのみ有意な起電力信号が観測され、対称構造では観測されなかった。畑野らの研究 [2] とは異なり、その PIV 信号は光から金属中の自由キャリアへの運動量移行を考えるだけでは理解することはできない。それは SPP が電磁場を増強する役割を果たすだけでなく、それ自身が光整流過程に寄与し自由キャリアと運動量をやり取りするためであると言える。式 (1) には SPP の効果を取り入れることはできておらず、局所電磁場の効果を自然と取り込むことができる Maxwell 応力テンソルを使うことで数値的に再現することに成功した。また、Maxwell 応力テンソルの成分解析から、SPP がせん断応力ではなく、圧力を構造内部に発生させることが分かった。さらに、構造に生じるエネルギー分布の左右反転によって PIV の向きが反転することが電磁場解析から示唆された。

References

- [1] 応用物理, 第 44 巻 第 8 号 838-851 (1975)
- [2] Takafumi Hatano, Baku Nishikawa, Masanobu Iwanaga and Teruya Ishihara, Optical rectification effect in 1D metallic photonic crystal slabs with asymmetric unit cell, *Optics Express*, **16**, 8236 (2008)
- [3] S. G. Tikhodeev, A. L. Yablonskii, E. A. Muljanov, N. A. Gippius, and Teruya Ishihara, Quasiguidded modes and optical properties of photonic crystal slabs, *Physical Review B*, **66**, 045012 (2002)
- [4] W. L. Barnes, T. W. Preist, S. C. Kitson, and J. R. Sambles, Physical origin of photonic energy bandgaps in the propagation of surface plasmons on gratings, *Physical Review B*, **54**, 9 (1996)