

Oral presentation 3 Optics and Photonics : 3.11 Nanoscale optical science and near-field optics

 Thu. Sep 19, 2024 1:30 PM - 6:30 PM JST | Thu. Sep 19, 2024 4:30 AM - 9:30 AM UTC
  A33 (TOKI MESSE 3F)

[19p-A33-1~18] 3.11 Nanoscale optical science and near-field optics

Koichi Okamoto(Osaka Metropolitan Univ.), Miyata Masashi(NTT), Mitsuharu Uemoto(Kobe Univ.)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

1:30 PM - 1:45 PM JST | 4:30 AM - 4:45 AM UTC

[19p-A33-1]

Control of Emission Directionality of monolayer MoS₂ by Mie Resonant Nanoparticles

○(M2)Keisuke Ozawa¹, Daisuke Shima¹, Hiroshi Sugimoto¹, Soren Raza², Keisuke Imaeda³, Kosei Ueno³, Mrak L Brongersma⁴, Minoru Fujii¹ (1.Kobe Univ., 2.Tech Univ. of Denmark, 3.Hokkaido Univ., 4.Stanford Univ.)

1:45 PM - 2:00 PM JST | 4:45 AM - 5:00 AM UTC

[19p-A33-2]

Prediction of nonlinear optical response in silicon nanostructures by first-principles calculations

○Gosuke Matsuura¹, Shunsuke Yamada², Tomohito Otobe², Mitsuharu Uemoto¹ (1.Kobe Univ., 2.QST)

2:00 PM - 2:15 PM JST | 5:00 AM - 5:15 AM UTC

[19p-A33-3]

【Absence】 Control of electric and magnetic dipole emission by toroidal dipole resonance of silicon metasurface

○Daiki Yabuguchi¹, Keisuke Moriasa¹, Hiroshi Sugimoto¹, Fujii Minoru¹ (1.Kobe Univ.)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

2:15 PM - 2:30 PM JST | 5:15 AM - 5:30 AM UTC

[19p-A33-4]

Spectral properties and ultrafast dynamics of the strong coupling systems between exciton and optical cavity modes

○(DC)Hiroki Takeuchi¹, Keisuke Imaeda², Sou Ryuzaki², Kosei Ueno² (1.Grad. Sch. Chem. Sci. and Eng., Hokkaido Univ., 2.Dept. Chem., Fac. Sci., Hokkaido Univ.)

2:30 PM - 2:45 PM JST | 5:30 AM - 5:45 AM UTC

[19p-A33-5]

Anti-reflective InP metasurfaces operating at telecom wavelengths

○Masashi Miyata¹, Ikue Hiraoka^{1,2}, Yuki Yamada^{1,2}, Fumito Nakajima^{1,2}, Toshikazu Hashimoto¹ (1.NTT Device Technology Labs., 2.NTT Device Innovation Center)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

2:45 PM - 3:00 PM JST | 5:45 AM - 6:00 AM UTC

[19p-A33-6]

Highly responsive photo-excited metamaterials for dynamic structural change

○(M2)Ryuji Kawabata¹, Atsushi Sanada¹, Yosuke Nakata¹ (1.Osaka Univ.)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

3:15 PM - 3:30 PM JST | 6:15 AM - 6:30 AM UTC

[19p-A33-7]

Design of nanopillar-based metasurfaces for circularly polarized emitters

○Yohei Yo Taguchi¹, Murata Yuki¹, Toda Shintaro³, Ichikawa Shuhei^{1,2}, Kojima Kazunobu¹
(1.Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ., 2.Research Center for UHVEM, Osaka Univ., 3.ULVAC Inc.)

3:30 PM - 3:45 PM JST | 6:30 AM - 6:45 AM UTC

[19p-A33-8]

Chirality Transfer in Mie Resonant Silicon Nanoparticle-Chiral Molecule Composites

○HIROKI KASAI¹, HIROAKI HASEBE¹, HIROSHI SUGIMOTO¹, TANIYUKI FURUYAMA², MINORU FUJII¹ (1.Kobe Univ., 2.Kanazawa Univ.)

3:45 PM - 4:00 PM JST | 6:45 AM - 7:00 AM UTC

[19p-A33-9]

Fabrication of Chiral Ag Metasurface by Circularly Polarized Light

○Takuya Ishida¹, Shuki Kuroki¹, Tetsu Tatsuma¹ (1.IIS, the Univ. of Tokyo)

4:00 PM - 4:15 PM JST | 7:00 AM - 7:15 AM UTC

[19p-A33-10]

Nonreciprocal transmission by a metamolecule with spiral magnetic texture

○Hiroyuki Kurosawa¹, Tetusya Ueda¹ (1.KIT)

4:15 PM - 4:30 PM JST | 7:15 AM - 7:30 AM UTC

[19p-A33-11]

Generation of chiral near-field associated with the excitation of rotating plasmon modes

○Naoki Ichiji¹, Takuya Ishida¹, Ikki Morichika¹, Tetsu Tatsuma¹, Satoshi Ashihara¹ (1.Tokyo Univ. IIS)

4:30 PM - 4:45 PM JST | 7:30 AM - 7:45 AM UTC

[19p-A33-12]

Effects of Particle Morphology on Colloidal Synthesis of Chiral Plasmonic Nanoparticles by Circularly Polarized Light

○Koichiro saito¹, Yoshie Ishikawa¹ (1.AIST)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

5:00 PM - 5:15 PM JST | 8:00 AM - 8:15 AM UTC

[19p-A33-13]

Emission enhancement of ZnO thin films in ultraviolet wavelength region using Mirror on Nano-Hemisphere structures

○Shogo Tokimori¹, Kai Funato¹, Tetsuya Matsuyama¹, Kenji Wada², Koichi Okamoto¹ (1.Osaka Metro. Univ., 2.OMU-ESCARI)

5:15 PM - 5:30 PM JST | 8:15 AM - 8:30 AM UTC

[19p-A33-14]

Circular Dichroic Second Harmonic Generation in Plasmonic Au Nanorod-Nanoprism Dimer Structures

○Keito Kono¹, Masayoshi Kamiya¹, Kei Hosomi¹, Atsushi Sugita¹ (1.Shizuoka Univ.)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award ◆ English Presentation

5:30 PM - 5:45 PM JST | 8:30 AM - 8:45 AM UTC

[19p-A33-15]

SEIRA control using of mid-infrared metasurfaces with multiple wavelength resonances

○(DC)Tang Dang¹, Jiaqi Yang¹, Yan Ding¹, Shuting Ma¹, Hitoshi Tabata¹, Hiroaki Matsui¹ (1.Univ. of Tokyo)

◆ English Presentation

5:45 PM - 6:00 PM JST | 8:45 AM - 9:00 AM UTC

[19p-A33-16]

Plasmonic nano-vortex field excited by a circularly-polarized plane wave

○Pin Christophe¹, Keiji Sasaki² (1.OIST, 2.RIES, Hokkaido Univ.)

6:00 PM - 6:15 PM JST | 9:00 AM - 9:15 AM UTC

[19p-A33-17]

Nonlinear Molecular-Plasmon Interaction in NLO Polymer/Au Nanoparticle Hybrid System.

○kazuki Kuroyanagi¹, Masayoshi Kamiya¹, Kei Hosomi¹, Kohei Satou¹, Atsushi Sugita¹
(1.Shizuoka Univ.)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

6:15 PM - 6:30 PM JST | 9:15 AM - 9:30 AM UTC

[19p-A33-18]

Enhancement of Red and Green Emission from CdSe/ZnS Quantum Dots through Surface Plasmon Resonance

○Tomohiko Niwa¹, Haruki Hirauchi¹, Tetsuya Matsuyama¹, Kenji Wada², Koichi Okamoto¹
(1.Osaka Metro. Univ., 2.OMU-ESCARI)

Mie 共鳴ナノ粒子による単層 MoS₂ の発光指向性制御

Control of Emission Directionality of monolayer MoS₂ by Mie Resonant Nanoparticles

神戸大院工¹, デンマーク工科大学², 北大院理³, スタンフォード大学⁴,

Kobe Univ.¹, Tech Univ. of Denmark², Hokkaido Univ.³, Stanford Univ.⁴,

○(M2) 大沢 慶祐¹, 志摩 大輔¹, 杉本 泰¹,

Søren Raza², 今枝 佳祐³, 上野 貢生³, Mark L Brongersma⁴, 藤井 稔¹

°Keisuke Ozawa¹, Daisuke Shima¹, Hiroshi Sugimoto¹,

Søren Raza², Keisuke Imaeda³, Kosei Ueno³, Mark L Brongersma⁴, Minoru Fujii¹,

E-mail: sugimoto@eedept.kobe-u.ac.jp

単層遷移金属ダイカルコゲナイド (1L-TMDC) は室温で安定な励起子発光を示すため、新たな発光デバイスへの応用が期待されている。近年、ナノアンテナを用いて 1L-TMDC の発光特性を制御する研究が精力的に進められている。当グループではこれまでに、球状シリコンナノ粒子(Si NS)の電氣的・磁氣的な Mie 共鳴を利用した局在場による励起増強や、パーセル効果による発光レート増大について報告している[1]。本発表では、Si NS の電氣的・磁氣的 Mie 共鳴モードの干渉を利用した 1L-TMDC の発光の指向性制御について報告する。

図 1(a)のように電気双極子発光は対称的な輻射パターンを示す。一方、電気双極子近傍に Si NS を配置した系(図 1(b))では、磁気双極子(MD)および電気双極子(ED)Mie 共鳴モードとの干渉により、図上側への指向性の高い発光が得られる。発光の指向性制御を実験的に明らかにするため、Si NS 直下にのみ 1L-MoS₂が存在する複合構造(Si/MoS₂)を基板上に作製し(図 2(a))、上方向(Top)と下方向(Bottom)で測定した発光強度の比(Top-to-bottom ratio: T/B ratio)を評価した。図 2(b,c)に粒径 213 nm の Si/MoS₂ の散乱スペクトルおよび T/B ratio を示す。散乱スペクトルから、MD および ED 共鳴モードが確認できる。図 2(c)の T/B ratio は波長 700 nm で約 7 となり、Si ナノ粒子が無い場合(紫点線)に比べて大幅に増大している。これにより、Si NS により 1L-MoS₂ の発光を上方へ取り出すことができる。講演では、発光指向性の起源についてシミュレーション結果を用いて詳細に議論する。

[1] H. Shinomiya, H. Sugimoto, T. Hinamoto, Y. J. Lee, M. Brongersma, M. Fujii, *ACS Photonics* 2022, 9, 1741

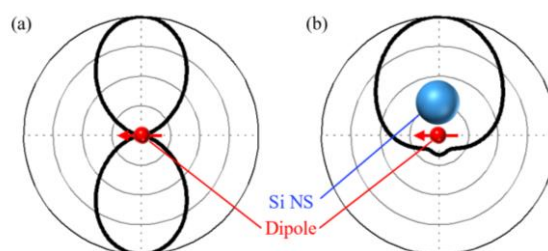


Figure 1. Radiation patterns of a dipole (a) without and (b) with a Si NS. The diameter of a Si NS is 196 nm and the wavelength is 675 nm.

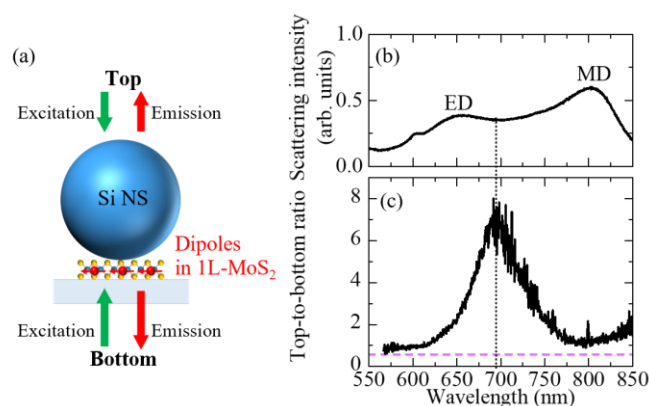


Figure 2. (a) Schematic of the experimental setup. (b) Scattering spectrum and (c) T/B ratio of Si/MoS₂ with the diameter of 213 nm.

第一原理計算によるシリコンナノ構造の非線形光学応答予測

Prediction of nonlinear optical response in silicon nanostructures by first-principles calculations

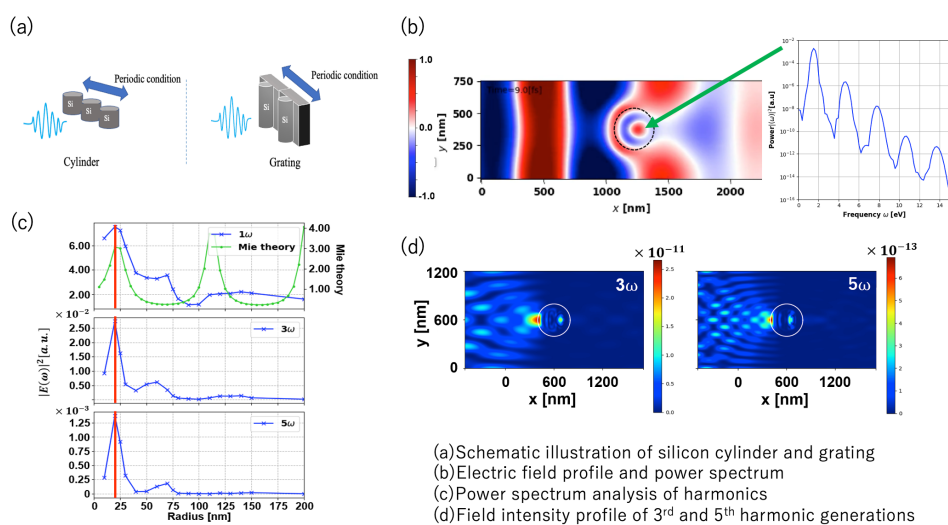
神戸大工¹, 量研² ○(M2) 松浦 豪介¹, 山田 俊介², 乙部 智仁², 植本 光治¹

Kobe Univ.¹, QST² ○(M2) Gosuke Matsuura¹, Shunsuke Yamada², Tomohito Otohe², Mitsuharu Uemoto¹

E-mail: 237t254t@stu.kobe-u.ac.jp

高強度レーザーパルス下での非線形光学効果を利用したナノ光デバイスは、高効率な光波長変換や波形整形を可能にすると期待されている。電磁界解析による光応答のシミュレーションは、ナノオプティクスなどの分野におけるデバイス解析や設計に広く用いられている。しかし、従来の電磁場解析には、強電場下において非線形応答が困難であること、誘電率などの経験的パラメータが必要であることなどの弱点があった。このような弱点を克服するために、我々は有限差分時間領域 (FDTD) 電磁界計算と電子ダイナミクス計算を組み合わせたマルチスケール法を開発している[1]。量子力学計算では、レーザーと物質の相互作用の解析に時間依存密度汎関数法 (TDDFT) が用いられてきたが、TDDFT 計算には多くの計算コストがかかる[2]。そこで我々は半導体ブロッホ方程式(SBE)を用いたマルチスケール法の計算を開発している (Maxwell + SBE)。

本研究では Maxwell + SBE を用いて高強度レーザーパルス下におけるシリコンナノ円柱構造およびグレーティング構造の光励起、散乱特性をシミュレーションした[図(a)]。その結果、円柱による Mie 共鳴とレンズ効果による集光により、高調波成分が増大することがわかった。また電界のパワースペクトル解析から、高次高調波成分の存在が確認された[図(b)]。ナノ構造物のサイズによる高調波発生の強度依存性を調べたところ、円柱の半径が 25nm のとき最大の強度が得られた。これは Mie 共鳴条件と一致している[図(c)]。また周波数分解による各次数の高調波発生の電場空間分布を調べた[図(d)]。これらの解析からナノ光デバイスの設計と最適化に関する洞察を与える。



[1] K. Yabana *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 045134 (2012) [2] S. Yamada *et al.*, Phys. Rev. B **107**, 035132 (2023)

謝辞: 文部科学省「富岳」成果創出加速プログラム、科研費基盤(C)24K06992、基盤(B)24K01224、また本計算の一部は筑波大学計算科学研究センターの学際共同利用(Wisteria-O)を用いている

シリコンメタサーフェスのトロイダル双極子共鳴による電気・磁気双極子発光制御

Control of electric and magnetic dipole emission by toroidal dipole resonance of silicon metasurface

神戸大院工¹ ○(M) 藪口 大輝¹, 森朝 啓介¹, 杉本 泰¹, 藤井 稔¹Kobe Univ.¹, °Daiki Yabuguchi¹, Keisuke Moriasa¹, Hiroshi Sugimoto¹, Minoru Fujii¹E-mail: sugimoto@eedept.kobe-u.ac.jp, fujii@eedept.kobe-u.ac.jp

誘電体メタサーフェスによる蛍光体の発光増強に関する研究において、蛍光体の電気双極子(ED)遷移のみならず磁気双極子(MD)遷移の増強が可能である事が示されている。我々のグループは、非常に薄いシリコンナノディスクを二次元に配列したメタサーフェスがトロイダル双極子(TD)共鳴により高い電場・磁場増強効果を有する事を見出し、特にその磁場増強効果の応用について研究を行っている[1, 2]。本研究では、ED遷移とMD遷移の寄与がほぼ等しいエルビウムイオン (Er^{3+}) の近赤外発光 ($1.5\ \mu\text{m}$) をプローブとし、シリコンナノディスクアレーのTD共鳴がそれぞれの遷移の発光効率と指向性に及ぼす影響について計算と実験の両面から研究を行った。

図1(a)に、構造の模式図を示す。シリコンナノディスクの六方格子アレー上に発光層として Er^{3+} をドーピングしたシリカ薄膜を配置した構造を考える。発光層内において、ランダムに配向したED、MDエミッターが均一に分布していると仮定する。この構造に対して入射角 (θ) を 0° から 180° に変化させて平面波を入射ときの発光層内の電場、磁場増強度の体積平均が、それぞれのエミッターからの θ 方向への発光強度に対応する(Reciprocity)。図1(b)は、TD共鳴波長が $1.5\ \mu\text{m}$ に来るように調整した構造の、ED、MDエミッターからの放射パターンの計算結果である(赤)。青線は平坦なシリカ基板上に配置した発光層の放射パターンを表す。放射パターンから、ED、MDエミッターのパーセルファクター(発光層をナノディスク上とシリカ上に配置したときの発光強度の積分値の比)を見積もったところ、それぞれ0.572、1.334となり、MDエミッターからの発光のみが増強されている事が明らかになった。また、 $\text{N.A.}=0.242$ の場合の発光の検出効率(全発光強度に対する検出角内の強度の割合)の増強度は、それぞれ1.69、4.43となった。以上より、シリコンナノディスクアレーのTDモードは、MD遷移により大きい影響を及ぼすことがわかる。講演では、実験結果を示し、シリコンナノディスクアレーによる Er^{3+} の発光増強について議論する。

[1] H. Hasebe, et al., Adv. Optical Mater. 2020, 20, 2001148. [2] H. Hasebe, et al., Small. 2023, 19, 230519.

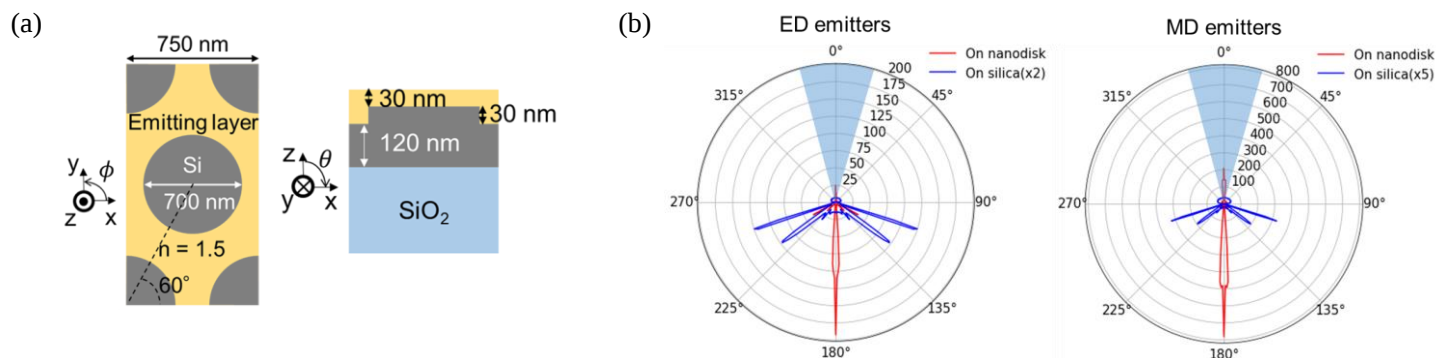


Fig1. (a) Schematic illustrations of Silicon nanodisk array. ED and MD emitters are average isotropically oriented and homogeneously distributed within the emitting layer. (b) Radiation patterns of ED and MD emitters corresponding to TD resonance wavelength on nanodisks (red) and on silica (blue), when ϕ is 0° . Light blue shaded area is the detection angle ($\text{N.A.}=0.242$).

励起子-光共振器強結合系の分光特性と超高速ダイナミクス



Spectral Properties and Ultrafast Dynamics of the Strong Coupling

Systems between Exciton and Optical Cavity Modes

北大院総化¹, 北大院理² ○(DC) 武内浩輝¹, 今枝佳祐², 龍崎 奏², 上野貢生²

Grad. Sch. Chem. Sci. and Eng., Hokkaido Univ.¹, Dept. Chem., Fac. Sci., Hokkaido Univ.²

○Hiroki Takeuchi¹, Keisuke Imaeda², Sou Ryuzaki², Kosei Ueno²

E-mail: takeuchi.hiroki.d1@elms.hokudai.ac.jp

我々は、励起子-光共振器強結合系の分光特性に関する研究を進めている。これまでの研究でテトラフェニルポルフィリン誘導体の J 会合体とプラズモンとの強結合状態における近接場励起分光特性や位相緩和ダイナミクスについて明らかにしてきた。その結果、近接場励起スペクトルにおいて上枝ポラリトンと下枝ポラリトン準位の形成を確認し、位相緩和時間は励起子との結合により長寿命化することが明らかになった。しかし、近接場励起スペクトルを用いた分散曲線では、結合調和振動子モデルによる解析が困難であった。また、前回の報告で、フェムト秒レーザーの 800 nm に光吸収を有するテトラチエニルポルフィリンスルホン酸 (TSThP) を合成して定量的な位相緩和時間の測定を可能としたが、励起子から金への電荷移動等により本質的に位相緩和時間の長寿命化が誘起されているか否かが結論できなかった。そこで、本研究では、金への電子移動の抑制や励起スペクトル測定へのアクセスが容易な Fabry-Pérot 共振器を用いて励起子と光共振器との強結合系における分光特性と超高速ダイナミクスを明らかにすることを目的とした。

励起子には、テトラフェニルポルフィリンスルホン酸 (TPPS) と TSThP の J 会合体を用いた。ガラス基板上に厚さ 30 nm の金薄膜をスパッタリングにより成膜し、TPPS または TSThP を任意の濃度で溶解したポリビニルアルコール (PVA) 溶液をスピコートした後、金を 30 nm 成膜することにより Fabry-Pérot 共振器-励起子ハイブリッド構造を作製した。分光特性は、既報の顕微分光測定システムにより評価した。位相緩和時間は、フェムト秒レーザー (λ : 800 nm, τ : 17 fs, f: 82 MHz) を光源とした干渉型ポンププローブ測定により見積もった。

Figure 1 に、TPPS の J 会合体 (TPPS-J) を用いて様々な膜厚 (120 nm~230 nm) の光共振器を構築し、測定した透過スペクトルを示す。いずれも 2 つのピークが観測され、短波長側のピークの長波長シフトにตอบสนองして、長波長側のピークも長波長シフトを示した。重要なのは、短波長側のピークと長波長側のピークの強度比が膜厚の増加とともに入れ替わっており、強結合に特有の遠方場分光特性が得られた。時間領域差分法による電磁界解析では分光特性を再現し、位相緩和時間の長寿命化が示唆された。発表では、励起スペクトルや超高速ダイナミクスに関する結果についても述べる。

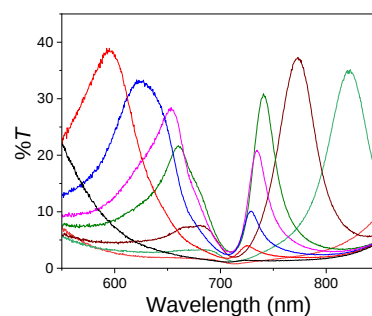


Figure 1. Transmission spectra of the hybrid system between TPPS-J and Fabry-Pérot optical cavity mode.

光通信波長帯 InP メタサーフェスにおける反射防止層の検討

Anti-reflective InP metasurfaces operating at telecom wavelengths

NTT 先端集積デバイス研¹, NTT デバイスイノベーションセンタ²

○宮田 将司¹, 平岡 郁恵^{1,2}, 山田 友輝^{1,2}, 中島 史人^{1,2}, 橋本 俊和¹

NTT Device Technology Labs¹, NTT Device Innovation Center²

○Masashi Miyata, Ikue Hiraoka, Yuki Yamada, Fumito Nakajima, Toshikazu Hashimoto

E-mail: masashi.miyata@ntt.com

光波面制御機能をもつ光メタサーフェスは、イメージングへの応用を中心に発展してきたが、近年になって光通信への応用が試みられている[1]. このとき、光通信デバイスとの集積を念頭に置くと、光メタサーフェスは半導体基板上に直接形成されることが望ましい. 一方、半導体は高い屈折率をもつため、空間 (Air 等) との屈折率差に起因する強い光反射が懸念となる. 光反射の抑制方法として、メタ原子の凸面に反射防止 (AR) 層を備えた構成が報告されている[2, 3]. しかしこの方法は、メタ原子-空間での反射抑制効果が期待できるものの、基板-空間での反射抑制効果がない. そこで我々は、構造パターン全面での反射抑制のため、メタ原子の凸面に加えて基板面にも AR 層を備えた構成を提案する. 今回、シミュレーションによりその効果を検証したので報告する.

Fig. 1(a)は、検証した光メタサーフェスの概略である. 基板はIII-V族半導体である InP とし、基板のエッチングによるメタ原子 (ナノポスト) の形成を想定した. ナノポストの高さ h は 1500 nm, 周期 p は 450 nm とし、入射光の波長は 1550 nm とした. なお、光は空間側から入射するものとする. AR 層は SiO₂ とし、AR 層がない構成, AR 層をナノポスト上面に備えた構成, ナノポスト上面と基板に備えた構成において、光透過特性を計算した. なお AR 層の厚み t は、各構成のナノポスト直径範囲において、平均透過率が最大となる厚みを用いた.

Fig. 1(b)は、各構成におけるナノポスト直径に対する透過率である. 提案構成では、ほぼすべての直径において従来より高い透過率を示す. Fig. 1(c)は、Fig. 1(b)に対応する位相遅延量を示す. どの構成においても、直径に応じた位相変化を示し、その変化量は $0-2\pi$ を超えていることから十分な光波面制御性を有している. Fig. 2 は、従来構成 (AR 層なし) と提案構成へ

それぞれ光を入射した際の電場振幅を示す. 従来構成では空間側に明瞭な定在波が存在しているが、提案構成では定在波がほとんどみられず反射光が抑制されていることがわかる.

以上より、提案構成では反射抑制が期待でき、InP 等の半導体を用いても高効率な光メタサーフェスを実現できる. 本発表では、提案構成で素子を構築した際の効果についても議論する.

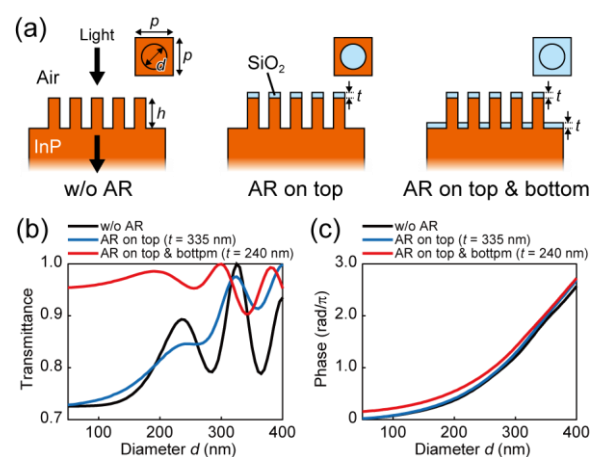


Fig. 1. (a) Schematics of InP metasurfaces without and with anti-reflective (AR) layers. (b, c) Simulated (b) transmittance and (c) phase at $\lambda = 1550$ nm as a function of nanopost diameter d without and with AR layers.

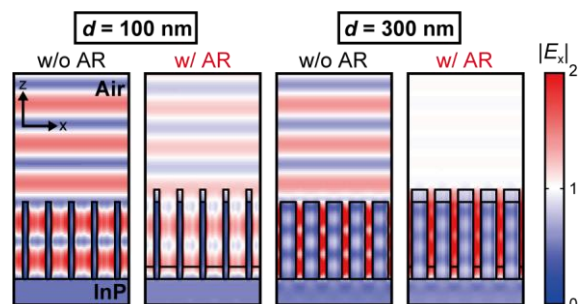


Fig. 2. Electric field above InP metasurfaces without and with AR layers under light illumination ($\lambda = 1550$ nm).

References

1. G. Soma *et al.*, Optica **10**, 604-611 (2023).
2. M. Sun *et al.*, Appl. Phys. Lett. **124**, 031701 (2024).
3. O. Koksall *et al.*, Laser Photonics Rev. **18**, 2300656 (2024).

動的構造変化に向けた高応答光励起メタマテリアル

Highly responsive photo-excited metamaterials for dynamic structural change

阪大院基礎工, ○(M2) 川端 竜司, 真田 篤志, 中田 陽介

Osaka Univ., ○Ryuji Kawabata, Atsushi Sanada, Yosuke Nakata

E-mail: u022157e@ecs.osaka-u.ac.jp

メタマテリアル構造を非常に高い自由度で変形させるために、半導体の光キャリア注入を利用した外部制御手法がある。これまでに光励起構造体を用いてワイヤグリッド [1] やカイラル構造 [2] が実現されているが、これらの手法では励起キャリア密度が低いため、高い変調を実現できない。本研究では、光応答性を高めるために、半導体表面にナノメートルオーダーの金属構造を施したメタマテリアルを設計した。この金属構造は、任意の領域で光キャリア励起を起こすことにより、高自由度かつ高応答特性を持つ光励起構造体の動的変化を可能にする。

メタマテリアルの設計では、有限要素法電磁界シミュレーションによる反射率評価を行い、最適な金属構造を得た。図1にメタマテリアルの全体図と拡大・断面図を示す。中央には20×20のAuパッチを並べ、光励起時の抵抗値を測定するためのチタン電極を左右に配置した。

図2に作製したメタマテリアルのSEM像を示す。電子ビーム露光、電子ビーム蒸着を用いたリフトオフにより、厚さ525 μmのシリコン基板上に $w = 420$ nm, $g = 60$ nm, $d = 110$ nmのAuパッチの周期パターンを作製した。Auパッチの厚みによる光学特性を比較するために、 $d = 140, 155, 170$ nmのサンプルも作製した。

図3に325 THzから500 THzの範囲におけるメタマテリアルの反射率を示す。反射率が特定の周波数で極小を持つ結果を得た。また、Auパッチ膜厚の増大に伴い、極小となる周波数が低周波側にシフトする結果を得た。

今後、反射率の減少と光キャリア励起増強の関係性を調べるとともに、光キャリア励起領域の制御実験を進める。

参考文献

- [1] T. Okada *et al.*, Opt. Lett. **35**, 1719 (2010).
- [2] N. Kanda *et al.*, Opt. Lett. **39**, 3274 (2014).

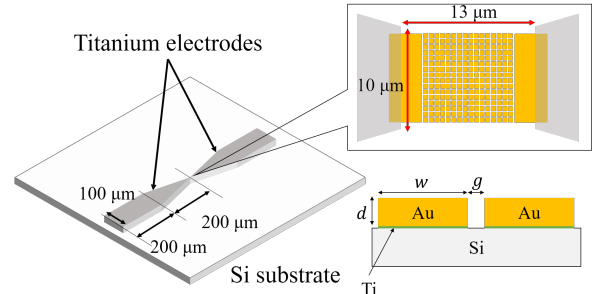


Fig 1: Highly responsive photo-excited metamaterial.

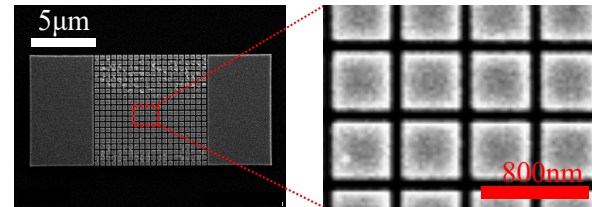


Fig 2: SEM image of the metamaterial.

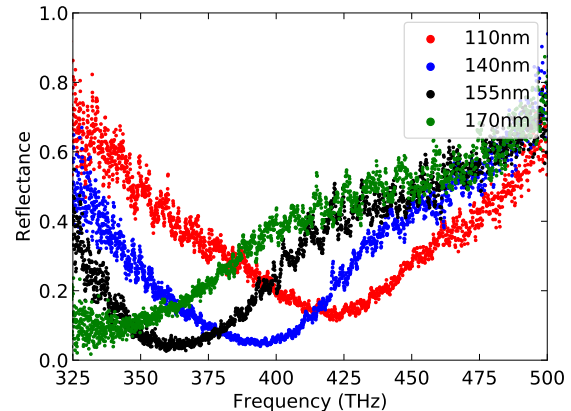


Fig 3: Reflectance of the metamaterial.

【謝辞】

本研究は、JST、さががけ、JPMJPR20L6、および、JSPS 科研費 JP24H02232 の支援を受けたものである。本研究の一部は、文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ事業の支援を受けて、大阪大学マテリアル先端リサーチインフラ設備供用拠点で実施された。(課題番号：JP-MXP1223OS1012)

円偏光選択性ナノピラー対メタサーフェスの最適構造設計

Design of nanopillar-based metasurfaces for circularly polarized emitters

阪大院工¹, 阪大電顕センター², アルバック協働研³

○田口 遥平¹, 村田 雄生¹, 戸田 晋太郎³, 市川 修平^{1,2}, 小島 一信¹

Grad. Sch. Eng., Osaka Univ.¹, Research Center for UHVEM, Osaka Univ.², ULVAC Inc.³,

°Yohei Taguchi¹, Yuki Murata¹, Shintaro Toda^{1,3}, Shuhei Ichikawa^{1,2}, and Kazunobu Kojima¹

E-mail: yohei.taguchi@sfm.eei.eng.osaka-u.ac.jp

円偏光デバイスは、情報多重化や偏光イメージングなどの様々な応用が提案されている。しかしながら、電流駆動の単一円偏光素子については、外部量子効率(EQE)の低さや円偏光度(P_{CP})の低さにより未だ実用化には至っていない。我々はこれまでに、高い外部量子効率と長い素子寿命を持つ InGaN 発光ダイオード(LED)と、円偏光を選択的に透過させるナノピラー型メタサーフェスを組み合わせた円偏光発光素子を提案してきた[1]。Fig. 1 に示す構造を単位構造として、可視光透過性の高い直方体 GaN ナノピラー対構造を周期的に作製することで、高効率円偏光デバイスの実現が可能である。円偏光成分を選択的に透過するナノピラー対メタサーフェスは、以下のジョーンズ行列を満たすように設計することで得られる[2]。

$$J = \frac{1}{2} R\left(\psi - \frac{\pi}{4}\right) \begin{bmatrix} i & 0 \\ 0 & -i \end{bmatrix} R\left(\frac{\pi}{4} - \psi\right) + \frac{1}{2} R(\psi) \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} R(-\psi)$$

上式の第 1 項と第 2 項は、それぞれ 2 種類のナノピラー移相子対を示しているが、ナノピラー間の距離 d は、上式からは一意には決まらず、設計には自由度が存在する。本研究では、ナノピラー間距離を変化させた際の最適なナノピラーの配置に関する検討を行ったので報告する。

時間領域差分法に基づくシミュレーションにより、GaN ナノピラー対メタサーフェス中の光伝搬計算を行った。この際、LED 基板を想定して基板側からの無偏光入射(波長 405 nm)を仮定した。ナノピラー間距離 d を変化させ、メタサーフェスを透過して上面から射出される光の円偏光度と透過率を評価した。Fig. 2 に、 P_{CP} と透過率のナノピラー間距離依存性を示す。 P_{CP} と透過率の積が円偏光選択性能(右回り・左回り円偏光の規格化差分強度)を示すことを考慮すると、 $d \sim 250$ nm において円偏光選択性能が最大となることが明らかになった。ナノピラー対の中間高さ($h = 350$ nm)において得られる、ポインティングベクトルの分布一例($d = 240$ nm)を Fig. 3 に示す。図より、ナノピラー間で近接場モードの干渉が生じており、ナノピラー間距離はこの干渉現象に大きな影響を与えられ考える。これらの結果は、高効率円偏光 InGaN 素子実現に向けた重要な指針を与えるものである。

【謝辞】本研究の一部は、池谷科学技術振興財団 No.0361019-A の助成を受けたものです。

[1] 鈴木恭平 他, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会, 15p-B401-7, (2023).

[2] S. Wang *et al.*, *Light Sci. Appl.* **10**, 24 (2021).

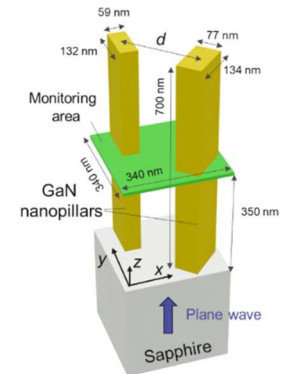


Fig. 1 Schematic image of a unit cell of nanopillar metasurface.

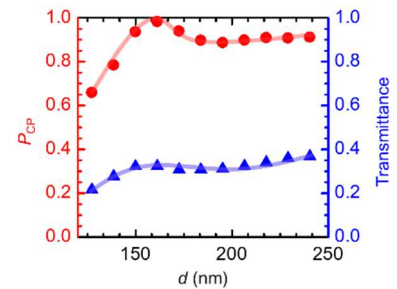


Fig. 2 P_{CP} and transmittance as a function of interpillar distance.

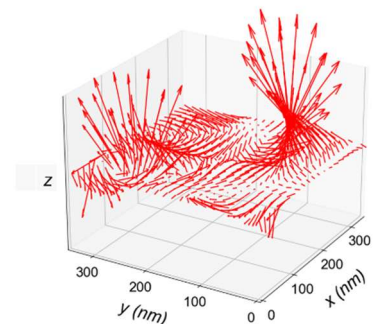


Fig. 3 Poynting vector on the monitoring area shown in Fig. 1.

シリコンナノ粒子-キラル分子複合体におけるキラリティトランスファー

Chirality Transfer in Mie Resonant Silicon Nanoparticle-Chiral Molecule Composites

神戸大院工¹, 金沢大² ○笠井 大幹¹, 長谷部 宏明¹, 杉本 泰¹, 古山 溪行², 藤井 稔¹Kobe Univ.¹, Kanazawa Univ.²,○Hiroki Kasai¹, Hiroaki Hasebe¹, Hiroshi Sugimoto¹, Taniyuki Furuyama², Minoru Fujii¹E-mail: sugimoto@eedept.kobe-u.ac.jp

キラル分子は鏡像異性体間で生理活性が大きく異なるため、鏡像異性体の高感度な検出技術は医薬品の開発等で非常に重要である。円偏光二色性(CD)分光法は、分子と円偏光の相互作用が小さいため、ごく微量な検体の分析が困難である。そこで近年、光を局在するナノアンテナにより、光キラリティ増強やキラリティトランスファーといった機構を用いて CD 信号を増強する方法が注目されている。我々の研究グループでは、磁気的な Mie 共鳴モードを持つシリコン(Si)ナノ粒子を用いてキラル分子の円偏光選択的な光学応答を増強する技術に関する研究を行っている[1]。本研究では Si ナノ粒子-キラル分子間のキラリティトランスファーについて検証する。

キラル媒質で構成されるシェルをもつ、コアシェルシリコンナノ粒子の CD スペクトルを解析的な理論[2]を用いて計算した。シェルにはモデル分子として PMMA 中に埋め込まれた S 体ビナフチル誘導サブフタロシアニン(B-subPc, 共鳴波長 585 nm)を用いた。図 1 (a,b)の上段にコア半径(r)が 80 nm, 110 nm の Si ナノ粒子の消光スペクトル、そして下段に Si ナノ粒子-キラル分子シェル(厚さ t :10 nm)複合体の CD スペクトル(差分消光スペクトル)を示す。コアが Si の場合(赤線)、コアが空気の場合(緑線)より大きな CD 信号が磁気双極子(MD)共鳴の共鳴波長にみられる。これはキラル分子シェルから Si ナノ粒子へのキラリティトランスファーによるものであると考えられる。図 1(b)では磁気四重極子(MQ)共鳴波長でシャープな CD ピークを確認できる。講演では、これらのキラリティトランスファーによる CD 信号の変調メカニズムと実験結果について議論する。

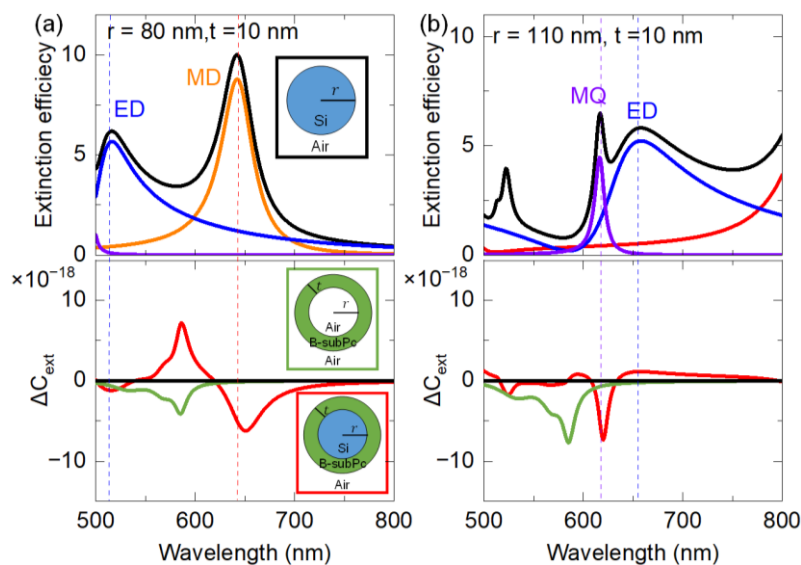


Figure 1 Top: Extinction spectra of bare Si nanoparticles (NP) with radii of (a) 80 nm and (b) 110 nm. Bottom: CD (differential extinction) spectra of a Si NP covered by the shell of B-subPc embedded in PMMA with the thickness of 10 nm. (t) (red). CD spectra of B-subPc hollow-shell are also shown as green line.

[1] J. Olmos-Trigo, H. Sugimoto, and M. Fujii, *Laser Photonics Rev.* **18**, 1 (2024).[2] T. Kim and Q.H. Park, *Nanophotonics* **11**, 1897 (2022).

キラル Ag メタサーフェスの円偏光による作製

Fabrication of Chiral Ag Metasurface by Circularly Polarized Light

東大生研¹ ○石田拓也¹, 黒木秀起¹, 立間 徹¹

IIS, the Univ. of Tokyo¹, °Takuya Ishida¹, Shuki Kuroki¹, Tetsu Tatsuma¹

E-mail: tatsuma@iis.u-tokyo.ac.jp

自身の鏡像と重ならない三次元キラルナノ構造は、左右どちらかの円偏光とより強く相互作用し、円偏光二色性 (CD) を示す。一方で、平面内において鏡像が重ならない二次元キラル構造は、観察方向によってその「二次元掌性」が反転し、その中でも二回回転対称以下のナノ構造は、円偏光に対し、その入射方向に依存した非対称な透過を示す。自然界の物質では二次元的なキラル光学効果は極めて弱く、観測はほぼ不可能である。

そこで本研究では、光と強く相互作用し、かつ分子よりも光の波長スケールに近いことで光の捻じれを感じやすいキラルなプラズモニックナノ構造体からなるメタサーフェスをボトムアップ法で作製した。具体的には、ナノスフィアリソグラフィー法を用いて、ガラス基板の上にアキラルな三角 Ag ナノ粒子アレイを作製し、この基板を、Ag⁺と電子ドナーであるクエン酸を含む水溶液に浸した状態で、左または右の円偏光を1時間照射し、Ag を還元析出させた (Fig. 1a) [1]。

Ag の還元析出によりナノ粒子アレイの局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) に起因した吸収は増大し、そのピークは長波長シフトした。また、左右の円偏光の Extinction 差である CD (= [Ext_L - Ext_R]) も観測され、Ag ナノ粒子がキラル形状化したことがわかった。Ag 析出の際の円偏光の回転方向に応じて CD シグナルが反転したため、キラル源が円偏光であることもわかった。CD を Extinction で規格化した非対称因子 g のスペクトル (Fig. 1b) は、測定光入射方向を変えると、双極子モードの波長 698 nm 付近で差 (Δg) が生じた (Fig. 1c)。これは、

$$\Delta g = g_F - g_B = \frac{(\text{Ext}_{L,F} - \text{Ext}_{L,B})}{\text{Ext}} = - \frac{(\text{Ext}_{R,F} - \text{Ext}_{R,B})}{\text{Ext}}$$

となり (下付きの F と B は入射方向の forward と backward)、キラル Ag ナノ粒子アレイはそのキラル性に依存して、左右の円偏光に対する非対称透過を示すことがわかった。我々の知る限り、可視域において円偏光に対する非対称透過を示すメタサーフェスのボトムアップ作製は、今回が初めてである。

[1] T. Ishida, A. Isawa, S. Kuroki, Y. Kameoka, T. Tatsuma, *Appl. Phys. Lett.* **123**, 061111 (2023).

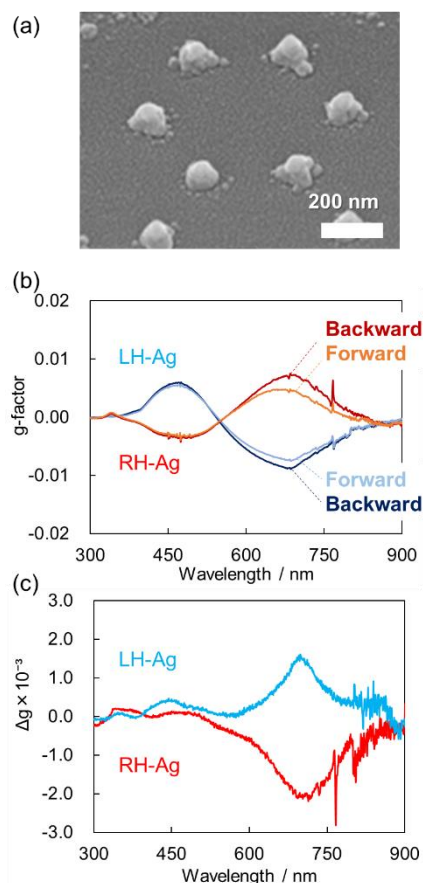


Fig. 1. (a) SEM image of chiral Ag nanoparticles. Spectra of (b) g - and (c) Δg -factor of left or right handed (LH- or RH-) Ag nanoparticles.

螺旋磁気テクスチャを有するメタ分子による非相反伝送特性

Nonreciprocal transmission by a metamolecule with spiral magnetic texture

京都工繊大¹

○黒澤 裕之¹, 上田 哲也¹

Kyoto Inst. Tech.¹

○Hiroyuki Kurosawa¹ and Tetsuya Ueda¹

E-mail: kurosawa-hiroyuki@kit.ac.jp

時間および空間反転対称性の破れにより多彩な物理現象が創発される。磁性とカイラリティが同時に存在することで時間および空間対称性が破れ、それらの結合により磁気カイラル (magnetochiral, 以下 MCh) 効果が発現する。MCh 効果とは、無偏波の電磁波に対する方向依存複屈折現象である。我々はこれまでに、メタ分子により巨大な MCh 効果が発現することを実験と数値計算の両面から確かめた[1]。更に、自発磁化をもつフェライトを用いることで外部静磁場を印加しなくても巨大な MCh 効果が発現可能であることを示した[2]。これまでのメタ分子では、カイラリティを導入するために金属や誘電体共振器の螺旋構造をメタ原子に用いた。今回、磁化の配置を螺旋構造にすることで MCh 効果と同様の非相反伝送特性を得たので、それについて報告する。

図 1 に今回提案するメタ分子の模式図を示す。自発磁化をもつフェライトディスクが 3 つ積層した構造をもち、磁化方向がそれぞれ xyz 方向を向いている。このメタ分子を導波管(WR-62)に挿入し、Port1 および 2 からの透過係数(S_{21}, S_{12})を数値計算により求めた。

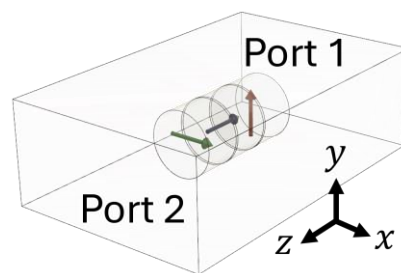


図 1: 導波管中に配置されたメタ分子の模式図。青、青、緑の矢印は磁化方向を示す。

図 2 に左軸および右軸に透過係数の位相および透過率の差分を示したスペクトルを示す。周波数 12.6 GHz 近傍において、位相差が 200° 、強度透過率の差分で 0.6 程度の巨大な非相反性を示した。透過率は $|S_{21}|^2 \approx 0.6, |S_{12}|^2 \approx 0.05$ であった。このメタ分子が一方にのみマイクロ波の伝送を許容することを示しており、アイソレータとして動作していることが分かる。

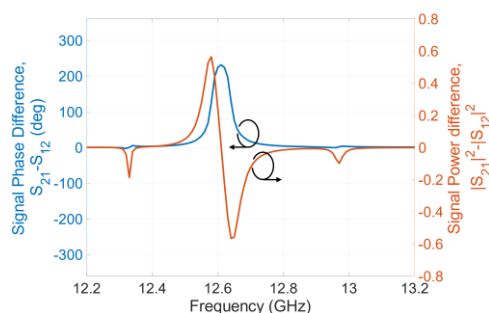


図 2: 透過係数の位相およびパワー差分スペクトルの計算結果。

当日は、実験結果も交えながら螺旋磁気テクスチャを有するメタ分子により非相反伝送特性が発現する物理的メカニズムについて議論する予定である。

[1]: H. Kurosawa *et al.* Opt. Express **30**, 37066-37075 (2022). [2]: 黒澤ほか 第 69 回応物春季学術講演会 (24p-E303-2). 謝辞：本研究は NEDO 官民による若手研究者発掘支援事業(22101009-0)および科研費(23K04567)の支援を受けました。

周回プラズモンモード励起に伴うキラリティを有した近接場の生成

Generation of chiral near-field associated with the excitation of rotating plasmon modes

東大生研¹, [○]伊知地直樹¹, 石田拓也¹, 森近一貴¹, 立間徹¹, 芦原聡¹

IIS, Univ. of Tokyo¹, [○]N. Ichiji¹, T. Ishida¹, I. Morichika¹, T. Tatsuma¹, S. Ashihara¹

E-mail: ichiji@iis.u-tokyo.ac.jp

【Introduction】 スピン角運動量(SAM)を有する光と物質の相互作用は古くから研究されており、特に鏡像が自身と一致しない性質を有するキラル物質と円偏光の相互作用は幅広い分野で活用されている[1]。近年、自由空間中の伝搬光だけでなく金属平面上における電子の集団運動、表面プラズモンポラリトン(SPP)にもSAMが付随することが示され、ナノ構造との相互作用が報告された[2]ことからキラルセンシングなどへの活用の可能性が期待された。しかし、SPPの持つ伝搬軸と直交するSAM(t -SAM)は伝搬光の伝搬軸と平行なSAM(l -SAM)とは大きく性質が異なり、理想的な平面上を伝搬するSPPでは電場の回転平面と磁場の振動平面が直交する(図1. (a))[3]。この時、キラル物質と電磁場の相互作用を特徴づける物理量、Optical chirality($C = \text{Im}(\mathbf{E} \cdot \mathbf{H}^*)$)は値を持たず[4]、結果として、SPPに付随する t -SAMと物質間の相互作用の実験的観測はほぼ報告されていない。本研究では、プラズモン増強場における t -SAMを有した近接場と物質間の相互作用の観測を目的とし、 t -SAMに起因した有限のOptical chiralityを持つ増強近接場が励起可能なプラズモニック構造の設計及び評価を有限要素シミュレーションによって行った。

【FEM simulation】 SPPに付随する t -SAMはPoynting vectorのrotationに比例し、界面から指数関数的にエバネッセント場が減衰するSPPではSAMの方向は伝搬方向より一意に定まる[4]。本研究では、円形hole構造に円偏光を照射することで内径方向に向けてPoynting vectorが減衰する周回plasmonモードを励起し、入射円偏光のSAMと同じ向きに t -SAMが固定される近接場を生成した。周回plasmonモードにおいてもplasmonの周回軌道が理想的な二次元平面状である場合にはOptical chiralityは値を持つことができないが、有限の厚みを持つ構造を一方向から励起する場合には入射方向に沿ったエネルギーの流れが存在するためにoptical chiralityが値を持ちうる。図1. (b)に示すように、厚み50 nmのAl層に半径50 nmのhole構造を六方格子状に配列した周期構造を $\lambda = 400$ nmの円偏光で励起し、底面における電磁場空間分布を取得した。

【Results】 得られた電磁場分布より算出したSAMの z 方向成分 S_z 及び C の空間分布を図1. (c)に示す。各値はAl構造を絶縁体構造に置換した参照モデルでの計算値で規格化した。 S_z と C はともに入射波の偏光を反映した符号を示し、空間的に良く対応した空間分布を示した。円周近傍において、 S_z は約25倍、 C は約5倍の増強が認められた。図1. (d)に円構造内壁部におけるPoynting vectorの空間分布を示す。励起された近接場のPoynting vectorは平面的な回転運動ではなく入射光の伝搬軸に沿った螺旋状の分布を示しており、電磁場分布自身が三次元的にキラルな空間構造を有していることが確認できる。

これらの結果はプラズモニック構造の構造設計によって一様なOptical chiralityを有するプラズモンモードが励起可能なことを示しており、プラズモンに付随する t -SAMとキラル物質間の相互作用の観測可能性を示唆している。

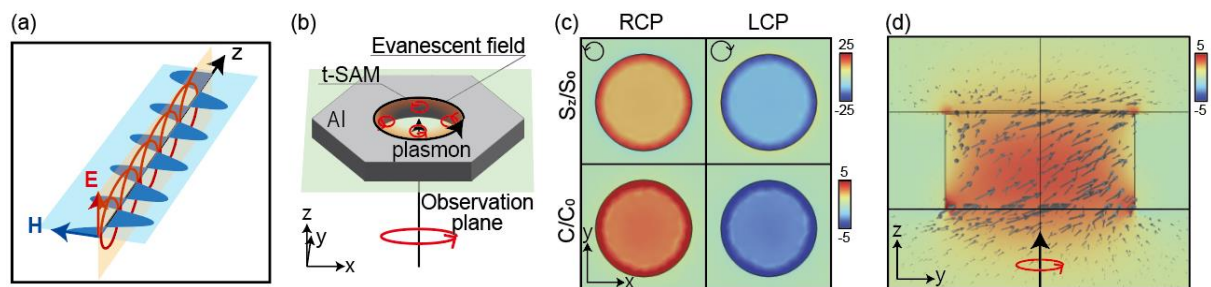


Figure 1 (a) Schematic diagram of the relationship between the electric and magnetic fields of SPP. (b) Schematic of the FDTD simulation model. (c) Calculated the z -component of the spin angular momentum (S_z) and optical chirality (C). (d) Three-dimensional view of the pointing vector. Color map represents C .

[1] B. Ranjbar, & P. Gill, Chem. Biol. Drug Des. 74, 101–120 (2009). [2] O'Connor, et al., Nat Commun 5, 5327 (2014). [3] K. Bliokh & F. Nori, Physics reports, 592, 26 1-38 (2015) [4] K. Y. Bliokh & F. Nori, Phys. Rev. A 85, 061801 (2012)

円偏光を用いたキラルプラズモニックナノ粒子の コロイド合成における粒子形態の影響

Effects of Particle Morphology on Colloidal Synthesis of Chiral Plasmonic Nanoparticles by Circularly Polarized Light

産総研¹, °斎藤 滉一郎¹, 石川 善恵¹

AIST¹, °K. Saito¹, Y. Ishikawa

E-mail: koichiro.saito@aist.go.jp

【緒言】キラルな幾何学構造をもつプラズモニックナノ粒子は高感度キラルセンシングなどへの応用が期待されている[1]。これまでに様々な合成手法が報告されているが、円偏光を用いる手法はキラル分子を必要としないことから注目を集めている[2]。しかし、ほとんどの場合、粒子が固体基板上に固定されている必要があった[3,4]。本研究では、溶液中に分散した金ナノ粒子の表面に、円偏光によって銀を析出させることでキラルプラズモニックナノ粒子のコロイド合成に成功した。さらに、元の金ナノ粒子の形態に応じて異なる円偏光二色性(CD)が表れることも見出した。

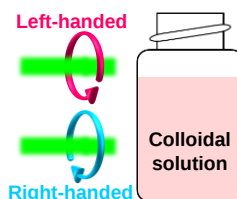


Figure 1. Colloidal synthesis of chiral plasmonic nanoparticles by circularly polarized light.

【実験】金ナノロッド(AuNRs)、金ナノスフィア(AuNSs)、金ナノトライアングル(AuNTs)をそれぞれ合成し、分散液を得た。各分散液から前駆体溶液を調整し、左右の円偏光(緑色LED)を照射することでナノ粒子表面上に銀を析出させた(Figure 1)。反応後のナノ粒子は遠心分離し、純水に再分散させた。分散液のCDスペクトル測定には円二色分散計を用いた。

【結果と考察】Figure 2aに示されるように、銀析出金ナノロッド(AuNR@Ag)は、円偏光の左右に応じて反転したCDスペクトルを示した。一方で、銀析出金ナノスフィア(AuNS@Ag)は明確なCDを示さなかった(Figure 2b)。また、銀析出金ナノトライアングル(AuNT@Ag)においてもCDが観測された(Figure 2c)。本結果から、溶液中に分散した状態であっても円偏光をキラル源としたキラルプラズモニックナノ粒子合成が可能であることが示された。さらに、元の金ナノ粒子の形態に応じてキラル光学特性が大きく異なることも見出された。AuNS@Agが明確なCD信号を示さなかった原因については、粒子形態が等方的であったことが考えられる。Govorovらは溶液中に分散した金ナノ粒子に円偏光を照射した場合に、粒子表面上で化学反応が駆動されやすい部位にキラルな偏りが生じる可能性を数値計算により示している[5]。ただし、キラルな偏りは形状異方的な金ナノ直方体で表れ、等方的な金ナノスフィアでは表れないと報告されている。つまり、本研究の実験結果は既報の数値計算による予想と合致するものであった。

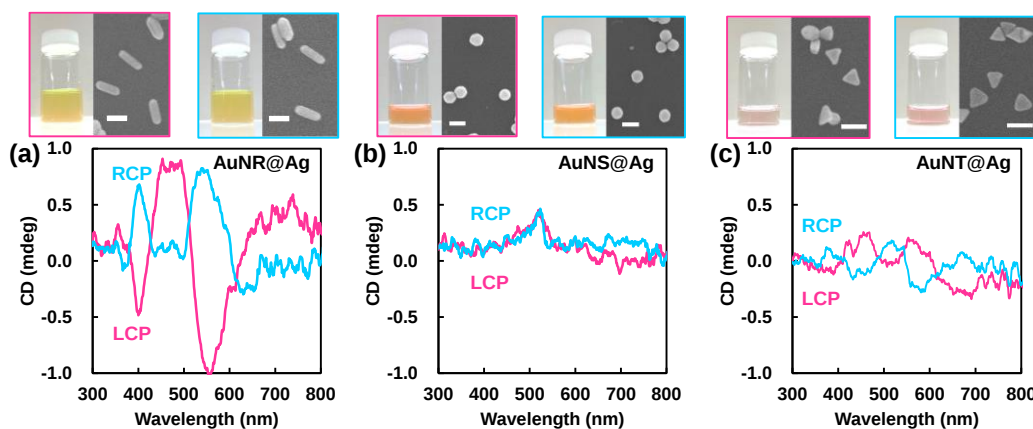


Figure 2. (a, b, c) Circular dichroism spectra of colloidal AuNR@Ag, AuNS@Ag, AuNT@Ag grown by left-handed circularly polarized (LCP) or right-handed circularly polarized (RCP) light. Scale bars, 100 nm.

References [1] R. M. Kim *et al.*, *Nature*, **612**, 470 (2022). [2] K. Saito and T. Tatsuma, *Nano Lett.*, **18**, 3209 (2018). [3] K. Morisawa *et al.*, *ACS Nano*, **14**, 3603 (2020). [4] K. Shimomura *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **122**, 151109 (2023). [5] A. Movsesyan *et al.*, *Adv. Opt. Mater.* 2300013 (2023).

Mirror on Nano-Hemisphere 構造による ZnO 薄膜の紫外域発光増強

Emission enhancement of ZnO thin films in ultraviolet wavelength region

using Mirror on Nano-Hemisphere structures

阪公大工¹, 阪公大研究推進² (M2)時盛 将吾¹, 船戸 魁¹, 松山 哲也¹, 和田 健司², 岡本 晃一¹
Osaka Metro. Univ.¹, OMU-ESCARP², S. Tokimori¹, K. Funato¹, T. Matsuyama¹, K. Wada², and K. Okamoto¹
E-mail: si23244y@st.omu.ac.jp

1. はじめに

我々は, Au ナノ半球を Al 基板上に作製した Nano-Hemisphere on Mirror (NHoM)構造を作製することで, 紫外波長域の局在型表面プラズモン共鳴を発生・制御することができ, ZnO 薄膜からの波長 380 nm の発光を大きく増強させられることを報告した[1]. NHoM 構造では, Fig. 1(a)に示すように構造の上に発光層を積層することで, 発光増強効果を得ていたが, ZnO 薄膜から発光を得るには, 高温の熱処理による結晶性の改善が必要である. そのため, 作製した NHoM 構造の上に ZnO 薄膜を積層した場合, 構造が破壊されない程度までしか加熱温度を上げられず, ZnO 薄膜本来の発光強度が得られないという問題があった. そこで, Fig. 1(b)のような, NHoM 構造とは逆の手順で作製する Mirror on Nano-Hemisphere (MoNH)構造[2]を作製したところ, ZnO 薄膜を 900 °C という高温で熱処理することができ, NHoM 構造上に載せた ZnO 薄膜より強い PL 強度を得ることができた.

2. 実験方法

NHoM 構造は, サファイア基板上に Al を高真空抵抗加熱蒸着で 80 nm 蒸着, Al₂O₃ 層を原子層堆積装置(ALD)で 13 nm 堆積し, その上に蒸着した厚さ 6 nm の Au 薄膜を 630 °C で加熱することで作製した. NHoM 構造の上に RF スパッタにより ZnO 薄膜を 10 nm 製膜したのち 630 °C で 30 分加熱した. MoNH 構造の作製では, 最初にサファイア基板上に ZnO 薄膜を製膜し, 900 °C で 30 分加熱した. その上に 6 nm の Au 薄膜を蒸着し, 630 °C 10 分で加熱した. さらにその上に ALD で Al₂O₃ 層を 13 nm, 蒸着によって Al を 80 nm 製膜し, MoNH 構造を作製した. 発光スペクトルは波長 325 nm の He-Cd レーザー光によって励起し, マルチチャンネル分光器で測定した.

3. 結果と考察

ZnO 薄膜をサファイア基板上に製膜し 630 °C または 900 °C 30 分で加熱した試料と, NHoM 構造上に製膜し 630 °C 30 分で加熱した試料, 900 °C 30 分で加熱した ZnO 薄膜上に MoNH 構造を作製した試料の PL スペクトルを Fig. 2 に示した. 実線のスペクトルは試料の構造を作製した側(表側)に, 破線のスペクトルは試料の基板側(裏側)に励起光を照射して試料を発光させ, その強度を測定した結果を示している. 900 °C に加熱した ZnO 薄膜

の試料の裏励起の PL 強度に対し, MoNH 構造では 4.6 倍の発光増強を得ることに成功した. これに対し NHoM 構造を用いた場合は, 630 °C に加熱した ZnO 薄膜の試料の表励起の PL 強度に対し 24 倍の増強が得られた. よって増強度で見ると MoNH 構造はそれより低いが, PL 強度で比べると, NHoM 構造よりもさらに 1.3 倍強くなった. MoNH 構造では, ZnO 薄膜を 900 °C で加熱することが可能なため, 630 °C で加熱するよりも ZnO 薄膜の結晶性をより改善できるためである. NHoM 構造と異なり, MoNH 構造では発光層の上に構造を作製することができるため, 量子井戸構造のような発光層に対しても発光増強効果が得られることが期待される.

- [1] 時盛ら, レーザー学会学術講演会第44回年次大会, P01-19p-P-29 (2024)
[2] K. Shimanoe, et al. Appl. Phys. Lett. **14**, 042007 (2021)

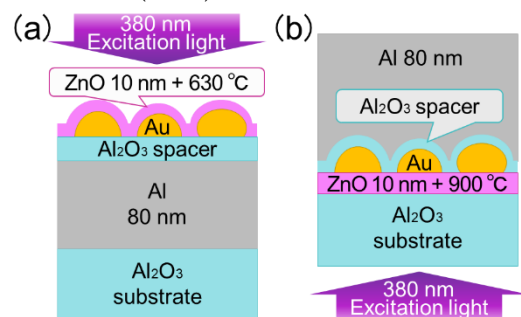


Fig. 1 Schematic diagrams of NHoM structures (a) and MoNH structures (b) with ZnO films.

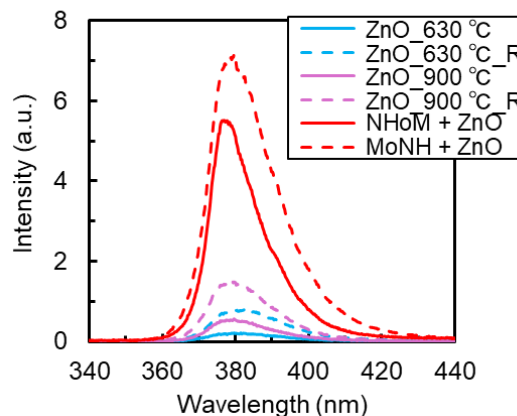


Fig. 2 PL intensities of ZnO film on NHoM structures, on Al₂O₃ substrate, and ZnO film located under MoNH structures.

プラズモニック金ナノロッド-ナノプリズム二量体構造の 円二色性第二高調波現象

Circular Dichroic Second Harmonic Generation

in Plasmonic Au Nanorod-Nanoprism Dimer Structures

静大 [○](M2)河野 敬斗, 神谷 真好, 細見 圭, 杉田 篤史

Shizuoka Univ., [○]Keito Kono, Masayoshi Kamiya, Kei Hosomi, Atsushi Sugita

E-mail: kono.keito.19@shizuoka.ac.jp

本発表では、長方形形状の金ナノロッド (AuNR) と二等辺三角柱形状の金ナノプリズム (AuNP) からなる二量体構造の円二色性第二高調波発生 (SHG) 現象について報告する。検討した二量体構造は、AuNRとAuNPの長軸が互いに垂直となるように配列した構造である。AuNRとAuNPの位置関係によってキラリティを制御できる点がこの構造の特徴である。

Fig. 1(a)、(b)にそれぞれアキラル型、キラル型二量体構造の吸収およびSHG励起スペクトルを示す。測定は右回り偏光 (RCP) および左回り偏光 (LCP) の光に対して実施した。アキラル型、キラル型二量体構造ともに波長 $\lambda=680$ 、800 nm付近に二つの吸収ピークを示した。これ

らの吸収ピークは、 $\lambda=680$ nmではAuNR、AuNPにおけるそれぞれの短軸方向、 $\lambda=800$ nmではAuNR、AuNPにおけるそれぞれの長軸方向に振動する表面プラズモン (SP) モードによるものである。アキラル型構造の吸収強度はキラル型構造のそれよりも高く、前者の方が後者よりも二つの粒子間に強い近接場相互作用が働いていることが分かる。また、キラル型構造では、RCP光に対する吸収応答とLCP光に対するそれでは異なり、円二色性を示すことを確認し、その大きさは0.05であった。

アキラル型、キラル型構造ともに800 nm付近のSP共鳴ピーク波長で強いSHG信号のピークを示した。アキラル型構造の場合、LCP光とRCP光に対するSHG信号量はほぼ等しかったが、キラル型構造の場合では、RCP光励起の場合の方がLCP励起の場合よりも大きかった。キラル型構造におけるSHG信号の円二色性を求めたところ、0.8と大きな値が得られた。

キラル型構造では、吸収、SHG信号ともに円二色性を示したが、SHG信号の円二色性は吸収の円二色性に比べて約16倍も大きな値であった。数値シミュレーションより、円偏光の回転方向により明確な近接場分布の違いが見られた。このキラル光学応答は、遠方場のSHG信号においてより強調された形で観測されることを確認した。

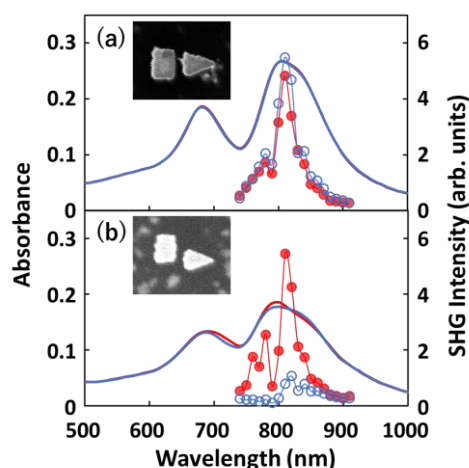


Fig. 1 Absorption (solid lines) and SHG excitation spectrum (circles) of (a) achiral and (b) chiral AuNR-AuNP dimer structures against RCP (red) and LCP (blue) light. Inset is the SEM image of corresponding structures.

多波長共鳴を持つ中赤外メタサーフェスによる SEIRA 制御

SEIRA control using of mid-infrared metasurfaces with multiple wavelength resonances

°(D)党 棠¹、楊 佳麒¹、丁 彦¹、馬 姝婷¹、田畑 仁^{1,2}、松井 裕章^{*1,2}°Tang Dang¹, Jiaqi Yang¹, Yan Ding¹, Shuting Ma¹, Hitoshi Tabata^{1,2}, and Hiroaki Matsui^{*1,2}¹ Department of Bioengineering, The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan² Department of Electric Engineering and Information Systems, The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

E-mail: dangtang@g.ecc.u-tokyo.ac.jp and hmhiroma@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

Mid-infrared (IR) spectroscopy is a powerful tool for identifying molecules through their unique absorption fingerprints, providing detailed information about molecular composition, chemical bonds, and structures. However, IR light absorption is weak due to the size mismatch between IR wavelengths and molecules. Surface-enhanced infrared absorption (SEIRA) spectroscopy has advanced using plasmonic nanostructures and microstructures, which effectively confine IR light and amplify light-matter interactions. By positioning target molecules near these concentrated electric fields, SEIRA significantly boosts molecular vibrational absorptions. This enhancement allows for highly specific and detailed structural information about molecular vibrations to be obtained in a nondestructive manner.

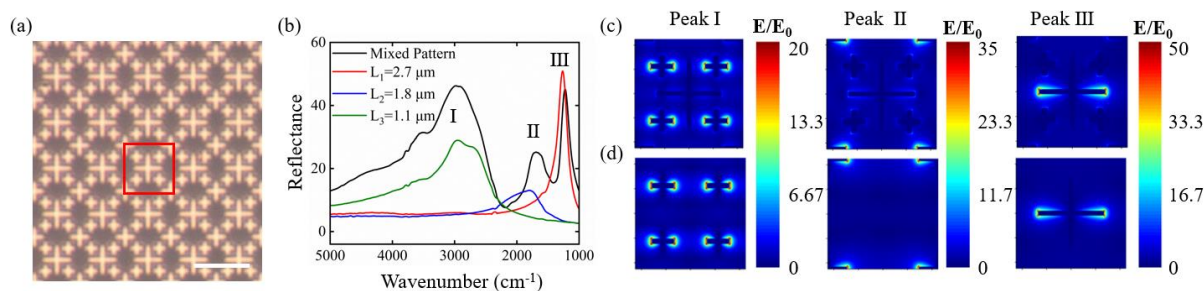


Figure 1 (a) Microscope results of color mixing patterns: the white scale bar is 5 μm , and the red frame represents one periodic structure. (b) Reflectance spectra of the mixed pattern and single structure. (c) Vibration modes of the mixed pattern at different peaks. (d) Vibration modes of individual patterns at different peaks.

Current SEIRA devices based on plasmonic metasurfaces mainly utilize single nanostructures with a single resonance. However, their narrow resonant bandwidth limits the effective detection of molecular fingerprints for precise identification. For instance, when detecting changes in lipids through methyl absorption, it's challenging to precisely identify whether they involve phospholipids, cholesterol, or fatty acids. In the previous report, we report IR metasurfaces with dual resonances for monitoring biological interactions. This cleared the dynamic analysis of the biological interactions under the molecular recognition. In this presentation, we introduce SEIRA devices with multiple resonances that are placed in the wavenumbers corresponding to the methyl, amide and PO_4 related vibrations. In this study, we achieved a metasurface with three distinct resonance peaks using three different sizes of nanocross structures (**Fig. 1a**). The reflectance spectra, shown in **Fig. 2b**, display resonance peaks at 3000 cm^{-1} , 1750 cm^{-1} and 1200 cm^{-1} . These peaks can respectively enhance the absorption of methyl, amide bands, and phosphate bands, enabling more precise detection of biomolecular subtypes. The electric field distributions at peak resonances corresponding to peaks I ~ III is interpreted as follows. Peak I is primarily due to the small cross bars, whereas peaks II and III predominantly arise from the medium and large cross structures, respectively. Additionally, the resonance modes of the mixed pattern are consistent with those of the individual corresponding cross patterns (**Fig. 1c, d**). We could confirm multiple resonances in the mid-IR range by size control of a nanocross-bar. Further details will be introduced on the day.

円偏光平面波によるプラズモニックナノ渦電場形成

Plasmonic nano-vortex field excited by a circularly-polarized plane wave

沖縄科技大¹, 北大 電子研² °パン クリストフ¹, 笹木 敬司²OIST¹, RIES Hokkaido Univ.², °Christophe Pin¹, Keiji Sasaki²E-mail: christophe.pin@oist.jp, sasaki@es.hokudai.ac.jp

The study of phase singularities in the electromagnetic field is of prime importance to expand the range of light-matter interactions. Among many other applications, optical vortex beams (such as Laguerre-Gauss beams) have been used to manipulate micro- and nanoparticles, shape materials, [1] excite exciton-polariton vortices and dipole-forbidden electronic transitions, [2] and generate a superfluid flow. [3] However, free-space propagating vortex beams can be focused only down to the microscale (at visible and near-infrared wavelengths) due to the diffraction limit. To maximize the effects of the phase singularity on nanomaterials, it is necessary to confine the singular electromagnetic field on a nanoscale. In a previous report, it was shown that an intense, localized electric field with a phase singularity is generated in the nanogap of a plasmonic multimer antenna irradiated by a vortex beam, provided that the number of metal nanoparticles composing the multimer antenna is large-enough. [4]

In this work, we show that optical nanovortices can be directly generated by using an incident circularly polarized plane wave to excite two interlocked multimer antennas with a pi-phase-shifted temporal response. Whereas a non-resonant nanovortex antenna is formed by simply combining two multimer antenna with red-shifted and blue-shifted dipole resonances, respectively, a 3D assembly of dipole resonators is needed to design a resonant nanovortex antenna. To avoid complex fabrication methods necessary to fabricate such 3D assembly of nanoparticles, a 2D resonant nanovortex antenna may alternatively be designed by combining dipole and longitudinal quadrupole resonators (see Figure 1).

REFERENCES:

- [1] T. Omatsu et al., *Adv. Opt. Mater.* **7**, 1801672 (2019)
- [2] G. F. Quinteiro Rosen et al., *Rev. Mod. Phys.* **94**, 035003 (2022)
- [3] A. Ramanathan et al., *Phys. Rev. Lett.* **106**, 130401 (2011)
- [4] Y. Sunaba et al., *Nanophotonics* **12**, 2499–2506 (2023)

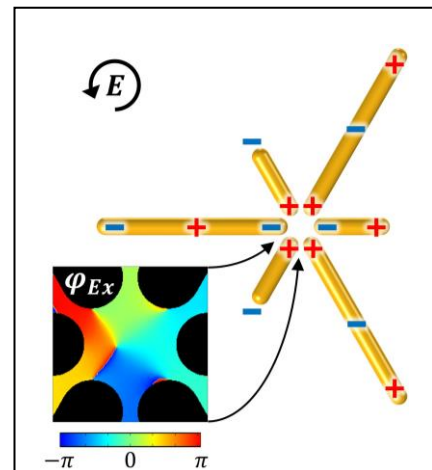


Fig. 1 Design of a 2D nanovortex antenna composed of two interlocked trimer antennas respectively supporting. The resonant excitation of both dipole and quadrupole modes results in the presence of a phase singularity of the electric field localized in the nanogap.

NLOポリマー/金ナノ粒子複合構造における 非線形分子-プラズモン相互作用に関する研究

Nonlinear Molecular-Plasmon Interaction in

NLO Polymer/Au Nanoparticle Hybrid System.

静岡大,[○]黒柳 和希, 神谷 真好, 細見 圭, 佐藤 浩平, 杉田 篤史

Shizuoka Univ., K. Kuroyanagi, M. Kamiya, K. Hosomi K. Satou, A. Sugita

E-mail: kuroyanagi.kazuki.19@shizuoka.ac.jp

我々はこれまでにAuナノ粒子 (AuNP) と非線形 (NLO) ポリマーを融合したハイブリッド型非線形ナノ構造の第二高調波発生 (SHG) 現象について報告した[1]。NLO感受率の大きなNLOポリマーとの融合化により表面プラズモン (SP) 共鳴励起条件におけるAuNPのSHG変換効率を二桁も増大化できることを見出した。本発表ではSHG信号量のNLOポリマー膜厚に対する依存性からこの増大効果を決定する分子-プラズモン相互作用について議論する。

Fig. 1(a)にNLOポリマー/AuNP複合構造の構成を示す。AuNPは正三角プリズム形状としSiO₂基板上に成長した(Fig. 1(b))。NLOポリマーはゲスト色素とホストポリマーからなり、ゲスト色素を極性配向するための分極処理を施した[2]。比較のため、AuNPの表面にホストポリマーであるポリメチルメタクリレート (PMMA) のみを成長したPMMA/AuNP構造及びNLOポリマー薄膜のみを成長した構造も用意した。

Fig. 1(c)にNLOポリマー/AuNP構造のポリマー膜厚に対する依存性を示す。励起光は基板表面に対して垂直入射した。PMMA/AuNP構造及びNLOポリマー薄膜の基板の結果も示す。NLOポリマー薄膜の変換するSHG信号は膜厚が厚くなるのに対して単調に増大した。これに対してNLOポリマー/AuNP構造の変換するSHG信号は膜厚が100 nmよりも薄い場合は単調に増加するものの、100 nmよりも厚くなると

ほとんど膜厚に依存しなかった。これはSP増強電場がAuNP表面のみに局在し、NLOポリマーとの相互作用がAuNP表面近傍で局所的に生じたことによるものである。

NLOポリマーの膜厚が薄い場合、AuNP表面にNLOポリマー薄膜が不均一に覆われ、効果的に色素分子の分極処理ができなかったものと考えられる。数値シミュレーションの結果、SP増強光電場の拡がり10 nm程度と見積もられており、実際のNLO相互作用はAuNPの最表面のみで生じていると考察した。

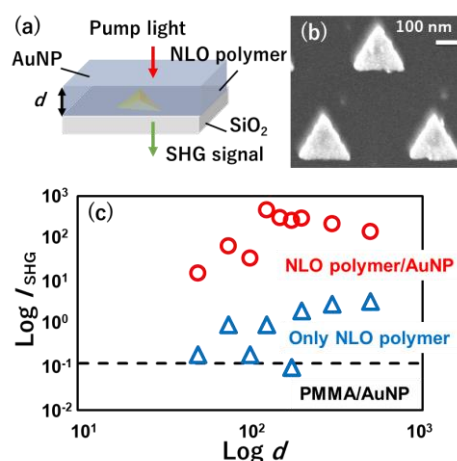


Fig. 1(a) Schematics of NLO polymer/AuNP hybrid structure. (b) SEM image of AuNPs. (c) SHG intensity against polymer thickness for NLO polymer/AuNP (circles) and bare NLO polymer film (triangles). The dashed line indicates the SHG intensity from PMMA/AuNP hybrid structure.

[1] 黒柳ら,第71回応用物理学会, 24P-11F-3.

[2] A. Sugita et al., J. Photochem. Photobio. A, **340**, 35 (2017).

表面プラズモン共鳴による CdSe/ZnS 量子ドットの赤色・緑色発光増強

Enhancement of Red and Green Emission from CdSe/ZnS Quantum Dots

through Surface Plasmon Resonance

阪公大工¹, 阪公大研究推進²

○(M1)丹羽 智彦¹, (B)平内 陽喜¹, 松山 哲也¹, 和田 健司², 岡本 晃一¹

Osaka Metro. Univ.¹, OMU-ESCARI²,

○Tomohiko Niwa¹, Haruki Hirauchi¹, Tetsuya Matsuyama¹, Kenji Wada² and Koichi Okamoto¹

E-mail: sk24251q@st.omu.ac.jp

1. はじめに

表面プラズモン共鳴(SPR)を利用した量子ドット(QDs)の発光(PL)増強は注目され、多く報告されている。本研究グループはこれまでに、Ag 蒸着膜と QDs の距離制御を行い、伝搬型 SPR による QDs の PL 増強について報告してきた[1]。さらなる増強・高効率化を目指して、Nano Hemisphere on Mirror (NHoM) 構造[2]を用いた局在型 SPR (LSPR)による PL 増強を試みたが、現在のところ期待していた程の増強は得られていない。そこで本研究では、加熱処理により作製した増強に適した新たな構造を用いて、CdSe/ZnS QDs のさらなる PL 増強・高効率化を試みた。

2. 実験

ガラス基板上に Ag を 100 nm 抵抗加熱蒸着により堆積させ、続いて大気下または窒素雰囲気下で、200 °C、15 min 電気炉により加熱処理した。その上にスペーサー層として Al₂O₃ を 10 nm 原子層堆積法(ALD)により堆積させ、ポリメタクリル酸メチル(PMMA)に分散させた発光波長 $\lambda=630$ nm の CdSe/ZnS QDs をスピコートにより堆積させた。作製した試料に対して、落射蛍光顕微鏡により PL スペクトルおよび、原子間力顕微鏡(AFM)により表面形状を測定し、加熱処理を加えていない参照試料と、ガラス基板上に QDs を堆積させただけの参照試料との比較を行った。

3. 結果・考察

Fig. 1 に、作製した試料と参照試料の PL スペクトルを示した。大気下、窒素雰囲気下で加熱処理を加えた試料では、加熱処理を加えていない参照試料のそれぞれ 4.6, 3.8 倍、ガラス基板上に QDs を堆積させただけの参照試料と比べるとそれぞれ 47, 40 倍もの PL 増強を得ることができた。これらの結果を考察するために、スピコート前の表面形状の比較を行ったところ、加熱処理によって、Fig. 2(a) に示した蒸着した Ag 膜の構造が変化し、Fig. 2(b), (c)に示したような粒径の大きな特殊なナノ構造が出現していることがわかった。そこで、SPR を誘起し、表面プラズモンからの光放出が可能な適切なグレインサイズを計算すると、214 nm から 669 nm 程度が適切なグレインサイズであると算出された。よって、加熱処理により適切なサイズのグレインが形成され、内部量子効率および光取り出し効率の向上が示唆された。当日は、PL 強度の温度依存性測定および時間分解測定の結果を用いて、増強機構について議論する。加えて、QLED (QD light-emitting diode)応用についても議論する。

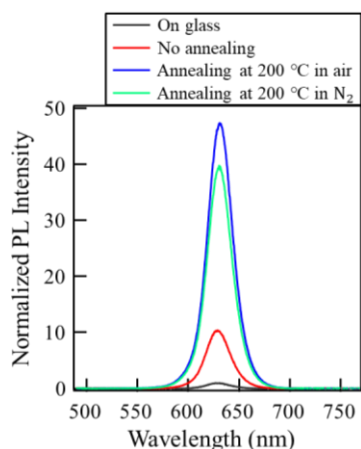


Fig. 1 PL spectra for the fabricated and reference samples.

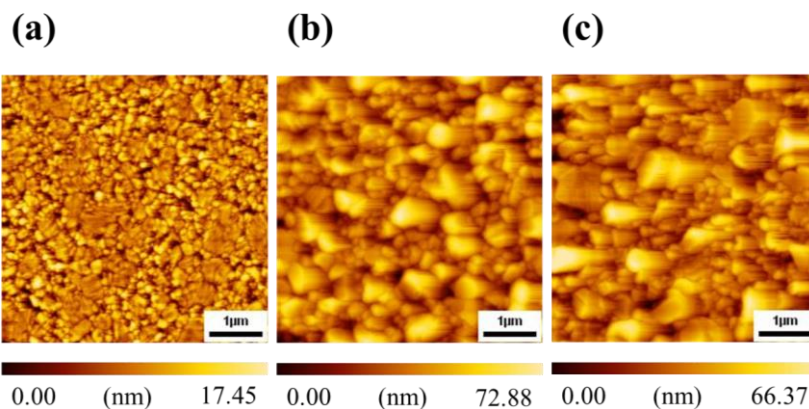


Fig. 2 AFM images for the no annealing reference sample (a), the sample annealing at 200 °C in air (b) and the sample annealing at 200 °C in N₂ (c).

[1] T. Tanoue, T. Niwa, T. Matsuyama, K. Wada and K. Okamoto, *Optics & Photonics Japan* 2023, 28pP4.

[2] S. Maeda, N. Osaka, R. Niguma, T. Matsuyama, K. Wada and K. Okamoto, *Nanomaterials*, **13**, 1650 (2023).