

Title	貴金属ナノ構造の非線形光学効果
Author(s)	岩井, 哲也
Citation	
Issue Date	2005-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2176
Rights	
Description	Supervisor:水谷 五郎, 材料科学研究科, 博士

博士論文概要

貴金属ナノ構造の非線形光学効果

岩井 哲也

現在我々は、資源の枯渇、産業の停滞といった従来技術のみで解決することが困難な様々な問題を抱えている。これらの問題を打破するための有力なブレークスルーとして期待されているのがナノテクノロジーである。ナノテクノロジーとは、運動領域を制限された電子が形成する、バルク状態とは異なる電子状態を利用して、物質に新しい機能や特性を付与する技術のことをいう。本研究では、ナノテクノロジーがもたらす新物性のうち特に 2 次の非線形光学効果に着目し、運動領域が制限された電子が形成する新しい電子状態およびその電子状態と光第 2 高調波発生(Optical Second Harmonic Generation: SHG)の相関を基礎物性光学的な観点から追及する。本研究では、電子の運動が格子構造によって制限された系として Au 再構成表面を、微細構造によって制限された系として Pt ナノワイヤを選定した。

Au 再構成表面の非線形光学応答の研究では、表面再構成に伴う表面第 1 層におけるわずかな原子配列の変化がどのような電子状態を形成し、それがどのように SH 応答に反映されるのかを明らかにすることを目的として、Au(100)5 × 20 再構成構造および Au(111)√3 × 23 再構成表面の SH 光強度スペクトル測定を行った。その結果、Pin/Pout(*p*-偏光入射 / *s*-偏光出射)の偏光配置では六方構造の格子が形成する電子状態に起因した $2\hbar\omega = 2.8\text{eV}$ 付近の SH 光強度ピークが Au(100)、(111)いずれの再構成表面でも観測されたが、4 回対称構造の格子が形成する電子状態に起因した $2\hbar\omega = 3.2\text{eV}$ 付近の SH 光強度ピークは Au(100)再構成表面でのみ観測された。Au(100)1 × 1 表面には六方構造の格子は存在せず、それは表面再構成によってはじめてその表面第 1 層に形成される。このため、Au(100)再構成表面において六方構造の格子が形成する電子状態に起因した SH 光強度ピークが観測されたという結果は、表面再構成に伴わずに数%の原子配列の変化によってその配列に特有な電子状態が形成されるということを示す。また、Au(100)再構成表面にのみ存在する 4 回対称構造の格子が形成する電子状態に起因した SH 光強度ピークが Au(100)再構成表面でのみ観測されたことと併せると、再構成表面にはその表面近傍に存在する格子構造に強く依存した電子状態が形成されるということが出来る。Sin/Pout の偏光配置では、Au(100)再構成表面において $2\hbar\omega = 3.0\text{eV}$ よりも高エネルギー側に SH 光強度の増大が観測された。この SH 光強度の増大は試料を 90° 回転させた測定配置では観測されなかった。この結果から、再構成表面第 1 層においては、互いに 90° ずれた配置を持つ 2 種類の等価な 5 × 20 再構成ドメインの形成に不均衡が生じているということが出来る。

Pt ナノワイヤの非線形光学応答の研究では、微細構造に特有な電子状態の発現、およびその電子状態に起因した新規な SH 応答の発現を目指して、1 次元的な形状異方性を持つ Pt ナノワイヤを作製し、その光学特性を測定した。本研究では、NaCl マクロステップ基板への金属フラックス斜め蒸着法により平均線幅が 9nm、平均周期間隔が 17nm の Pt ナノワイヤを作製した。作製したワイヤの SH 光強度方位角パターンを測定した結果、Pt ナノワイヤはその 1 次元的な形状異方性を強く反映した異方的な SH 応答をすることがわかった。また、観測した SH 光強度方位角パターンの理論解析を行った結果、Pin/Pout の偏光配置における異方的な SH 応答の起源は、ワイヤ列に垂直な方向に振動する電場によって誘起されたワイヤ列に垂直な方向の非線形分極(ワイヤに垂直な方向を 2 軸方向と定義すれば、2 次の非線形感受率 $\chi_{222}^{(2)}$ による非線形分極)であることがわかった。さらに、このワイヤと Pt フィルムの SH 光強度スペクトルおよび線形反射率スペクトルを測定した結果、ワイヤの SH 光強度スペクトルには $2\hbar\omega = 4.2\text{eV}$ 付近を頂点とする SH 光強度ピークが、またワイヤの線形反射スペクトルには 4.2eV 付近における線形反射率の極小が観測された。このことから、ナノワイヤには占有準位と非占有準位のエネルギー差が約 4.2eV の、フィルムにはない微細構造に特有な電子準位が形成されており、ナノワイヤにおける $\chi_{222}^{(2)}$ が支配的な異方的な SH 応答の起源はこの電子準位と SH 光の共鳴増強であることがわかった。

本研究で運動領域を制限された電子を含む 2 つの系の SH 特性を研究した結果、Au 再構成表面では再構成に伴うわずかな原子配列の変化によって形成された表面 1 原子層に局在した電子状態を、Pt ナノワイヤでは構造の微細化により形成された電子状態を明らかにした。本研究の最大の成果は、実験的に観測することが極めて困難である金属微細構造に特有な電子状態を、その非線形光学特性を介して明確に示すことができた点にある。本研究で明らかにした微細構造における電子状態の知見をナノ微細構造構築技術にフィードバックすることで、今後のナノテクノロジーやナノサイエンスの発展に大きな前進を与えるものと期待する。