



# HOKKAIDO UNIVERSITY

|                     |                                                                                                 |
|---------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Title               | Gigahertz acoustic modulation of plasmonic nanostructures                                       |
| Author(s)           | 今出, 悠太                                                                                          |
| Degree Grantor      | 北海道大学                                                                                           |
| Degree Name         | 博士(工学)                                                                                          |
| Dissertation Number | 甲第13706号                                                                                        |
| Issue Date          | 2019-06-28                                                                                      |
| DOI                 | <a href="https://doi.org/10.14943/doctoral.k13706">https://doi.org/10.14943/doctoral.k13706</a> |
| Doc URL             | <a href="https://hdl.handle.net/2115/74968">https://hdl.handle.net/2115/74968</a>               |
| Type                | doctoral thesis                                                                                 |
| File Information    | Yuta_Imade.pdf                                                                                  |



博士論文

Gigahertz acoustic modulation of plasmonic  
nanostructures

北海道大学大学院工学院

応用物理学専攻

量子機能工学研究室

今出 悠太

2019 年 5 月 9 日



# 概要

光科学の中でも 2000 年頃から盛んに研究が行われている分野がプラズモニクスである。プラズモニクスは表面プラズモンを応用した光科学技術であり、既知の光学の常識にとらわれない現象が確認されている。表面プラズモンの効果によって、その光学的特性を発現させている金属構造をプラズモニック構造といい、可視～近赤外光の範囲の光波に対して機能するプラズモニック構造は数百 nm オーダーの単位構造から構成されている。プラズモニック構造では可視光や電波は透過し、近赤外光は反射するといった人間にとって都合のいい光学特性を作り出せるため、光学材料として応用が期待されている。こうしたプラズモニック構造の光学特性の自由度の高さは、プラズモニック構造を構成する単位構造の形状やサイズ、周期といった構造のパラメータや、周囲の環境 (eg. 屈折率) に光学特性が依存することに起因する。そのため、このアクティブ・プラズモニクス分野における研究では、外的制御の方法として MEMS や相変化材料、液晶といった方法が利用されているが、音響波や音響振動といった音響現象を利用した例は少なく、また複雑な金属ナノ構造中の音響現象が表面プラズモンに与える影響の定性的な理解はまだ得られていない。

本論文では基板上の様々なプラズモニック構造におけるギガヘルツ周波数帯での音響現象による光学特性の変調に関する研究を、ピコ秒音響法と数値シミュレーションを用いて行った。具体的には異常光透過を呈する金ナノ周期構造、金スプリットリング共振器構造、金ナノロッド一次元鎖構造でギガヘルツ音響変調を行った。共通して用いたピコ秒音響法は超短光パルスを用いたポンププローブ法に基づく実験法で、ポンプ光によりナノ構造中に音響現象を励起し、プローブ光の過渡的光反射 (透過) 率の変化によって構造の振動を観測する方法である。特に、金ナノスプリットリング構造は一般にメタマテリアルと呼ばれる。メタマテリアルにおける音響現象による光学特性の変調を世界で初めて行った。これらの研究の結果はアクティブ・プラズモニクスの分野における音響現象の応用へ向けた基礎研究として有意義なものであった。



# 目次

|                                           |    |
|-------------------------------------------|----|
| 概要                                        | i  |
| 第 1 章 序論                                  | 1  |
| 1.1 はじめに                                  | 1  |
| 1.2 表面プラズモン                               | 2  |
| 1.3 プラズモニクス                               | 3  |
| 1.4 プラズモニック構造                             | 4  |
| 1.5 メタマテリアル                               | 5  |
| 1.6 ピコ秒音響法                                | 6  |
| 1.7 背景・過去の研究                              | 7  |
| 1.8 本論文の目的                                | 12 |
| 1.9 本論文の構成                                | 14 |
| 第 2 章 原理                                  | 15 |
| 2.1 金属構造における振動励起機構                        | 15 |
| 2.2 ブリルアン振動                               | 15 |
| 2.3 変形による光反射率 (透過率) 変化                    | 17 |
| 2.4 光弾性効果による光反射率 (透過率) 変化                 | 17 |
| 2.5 プラズモニック共鳴のシフトによる光反射率 (透過率) 変化         | 19 |
| 第 3 章 EOT 構造におけるギガヘルツ音響変調                 | 21 |
| 3.1 Extraordinary optical transmission 現象 | 21 |
| 3.2 試料                                    | 23 |
| 3.3 EOT 構造の光学スペクトラム                       | 23 |
| 3.4 ピコ秒音響法によるギガヘルツ音響変調                    | 25 |
| 3.5 ピコ秒音響法による実験結果と解析                      | 26 |
| 3.6 数値シミュレーションの条件                         | 29 |
| 3.7 実験結果と数値シミュレーションの比較                    | 30 |
| 3.8 まとめ                                   | 32 |

|       |                                |    |
|-------|--------------------------------|----|
| 第 4 章 | 金 SRR 周期構造のギガヘルツ機械振動モードによる光学変調 | 35 |
| 4.1   | スプリットリング共振器 . . . . .          | 35 |
| 4.2   | 試料 . . . . .                   | 35 |
| 4.3   | SRR 構造の光学スペクトラム . . . . .      | 36 |
| 4.4   | ピコ秒音響法によるギガヘルツ音響光学変調 . . . . . | 37 |
| 4.5   | ピコ秒音響法による実験結果と原理 . . . . .     | 40 |
| 4.6   | 数値シミュレーションの条件 . . . . .        | 45 |
| 4.7   | 実験結果と数値シミュレーションの比較 . . . . .   | 48 |
| 4.8   | まとめ . . . . .                  | 52 |
| 第 5 章 | ナノスケールプラズモニック表面弾性波トランスデューサー    | 53 |
| 5.1   | 超音波トランスデューサー . . . . .         | 53 |
| 5.2   | 試料 . . . . .                   | 54 |
| 5.3   | ナノロッドの光学スペクトラム . . . . .       | 56 |
| 5.4   | ピコ秒音響法による表面弾性波の輸送実験 . . . . .  | 58 |
| 5.5   | ピコ秒音響法による実験結果と解析 . . . . .     | 59 |
| 5.6   | まとめ . . . . .                  | 62 |
| 第 6 章 | 総括                             | 63 |
| 付録 A  | レーザーの揺らぎの軽減                    | 65 |
| 付録 B  | ポンプ光パルスによる温度上昇                 | 67 |
| B.1   | 瞬間的な温度上昇 . . . . .             | 67 |
| B.2   | 定常状態における温度上昇 . . . . .         | 68 |
| 付録 C  | ピコ秒音響法に使用する光学素子                | 69 |
| 付録 D  | SRR のプラズモニック共鳴モード              | 71 |
| 参考文献  |                                | 73 |
| 謝辞    |                                | 89 |

# 第 1 章

## 序論

### 1.1 はじめに

人類が光を利用してきた歴史は長い。最も原始的な鏡である水鏡。新石器時代の遺跡であるチャタル・ヒュックから発掘された黒曜石を磨いた円鏡、現存する最古の金属鏡として知られるエジプト第 6 王朝（紀元前 2800 年）の時代の金属鏡。今日、一般に使われるガラス鏡は西暦 1317 年にイタリア・ヴェネチアのガラス職人により生み出され、西暦 1835 年にドイツの科学者である J. von Liebig による銀鏡反応の発見を経て工業的に生産されるようになった。同じく古くから利用されてきたものとしてレンズが挙げられる。レンズにまつわる最も古い記述は西暦 60 年頃、ローマ帝国の哲学者であるルキウス・アンナエウス・セネカによる「水晶玉で文字が拡大して見える」と記した記録であり、また同時期にはローマ帝国第 5 皇帝ネロ・クラウディウスがエメラルドのレンズを用いて闘技場で剣闘士たちを観戦していたという逸話が残っている。また西暦 1590 年にはオランダの H. Janssen と S. Janssen の父子により顕微鏡が、同 1600 年頃には望遠鏡が発明された<sup>\*1</sup>。これらは当時の生物学や医学、天文学の発展を促し、また腕木通信や旗振り通信といった古典的な遠距離通信手段を生み出す土壌となった。そして現代においては、1960 年の T. H. Maiman によるレーザー発振器の開発をきっかけに、情報通信から医療に至る多くの産業分野において技術的革命を引き起こしてきた。

21 世紀の今日においても、光は学術的にも産業的にも大きな興味の対象である。光に関する学術領域は幾何光学や波動光学といった古典的な光学から、量子光学やホログラフィーを始めとする現代光学まで非常に多岐にわたる。その中でも最近のナノテクノロジーや計算機技術の進展により、注目されている分野が表面プラズモン共鳴を利用した光技術のプラズモニクスである。

本章ではプラズモニクスとギガヘルツ帯の音響現象の融合による新たな光技術の創成の礎となるべく行った研究について総説する。

---

<sup>\*1</sup> 諸説あり、発明者不明



## 1.2 表面プラズモン

プラズモン (plasmon) とはプラズマ中の自由電子やイオンの集団的振動を指す言葉である。自由電子の存在により金属は一種のプラズマ状態にあるとみなすことができるため、金属中の自由電子の集団振動もプラズモンと呼ばれる。バルク金属中のプラズモンは自由電子の疎密波 (縦波) であるため、横波しか存在しない電磁波とエネルギーを授受 (結合) することはない。しかし金属と誘電体の界面、すなわち金属の表面においてプラズモンが存在するときには、誘電体側に電場の染み出しが生じる。この染み出した電場は横波の成分を持っているため、金属表面においては横波である電磁波と結合する振動モードが存在でき、この振動モードを表面プラズモンポラリトン (surface plasmon polariton, SPP) と呼ぶ。<sup>\*2</sup>慣例的には単に表面プラズモンあるいは更に省略してプラズモン、SPP などと呼ばれることが多く、本論文においてもそれに従う。

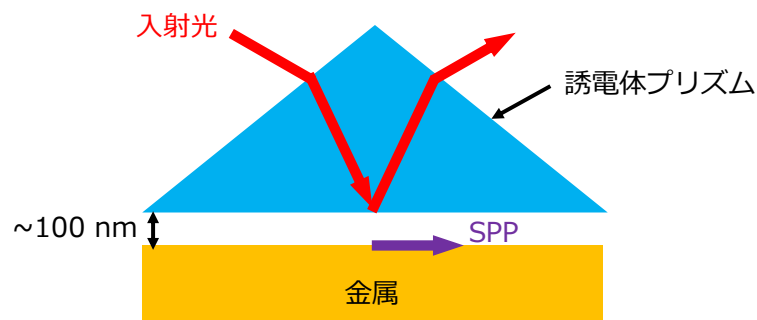


図 1.1 Otto 配置の模式図

表面プラズモンは金属表面における電磁波と表面プラズモンが結合したモードであるため、その励起にはそれぞれの位相速度を一致させる必要があるが、単に金属表面に電磁波を照射しても両者の分散曲線は交点を持たない (=エネルギーの授受ができない)、そのため伝搬型プラズモンの励起には特別な方法を用いる必要がある。1968 年、A. Otto は図 1.1 のような金属と誘電体プリズムを組み合わせた構造 (Otto 配置) を用いることで伝搬型プラズモンを励起できることを示した [1]。また図 1.2 のような金属プリズムに数十 nm 程度の金属薄膜を蒸着しただけのより簡単な構造 (Kretschmann 配置) でも表面プラズモンが励起できる [2, 3]。これらは金属と誘電体の界面に生じるエバネッセント波を利用した方法であるが、この場合では電磁波とプラズモンの面内方向の位相速度を一致させるため、電磁波の入射角度に制限が生じる。そのため近年では、金属表面に作製された入

<sup>\*2</sup> プラズモン、フォノン、マグノンといった素励起と電磁波が結合した系をポラリトンと呼ぶ。したがって表面プラズモンポラリトンとは金属表面におけるプラズモン-ポラリトン。

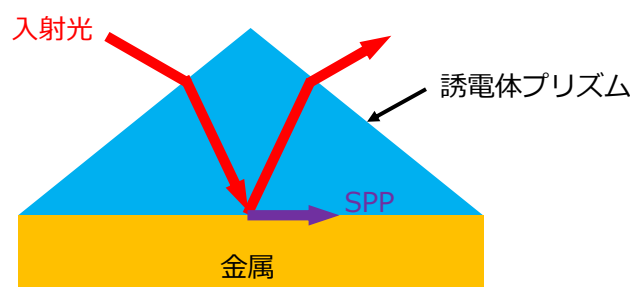


図 1.2 Kretschmann 配置の模式図

射波の波長程度のスケールの周期構造や単スリットによる回折光を用いて表面プラズモンを励起させるケースが多い。

ここまで紹介してきた金属と誘電体の界面を伝搬する伝搬型の表面プラズモンの他に、ナノスケールの微小な金属構造の表面に局在する局在型表面プラズモンも存在する。局在型の表面プラズモン (以下、局在プラズモン) を呈する単純な構造には微小な金属球や金属ロッドがある。金属球に電場を印加すると電気分極を生じる。また印加する電場の向きを変えると分極もそれに応じて向きを変える。印加する変動電場 (= 入射する電磁波) が金属球のサイズと誘電率、周囲の誘電率で決まる共鳴条件を満たすとき、誘起される分極は非常に強力になり、結果として表面プラズモン共鳴 (surface plasmon resonance, SPR) が生じる。例えば金ナノ粒子やナノ構造では可視-近赤外域で表面プラズモン共鳴を呈する。表面プラズモン共鳴中の金属球は自身の近傍に強い近接場光を伴うほか、入射した電磁波の周波数で分極が振動するため無限遠まで到達する伝搬光を放射する。

伝搬型、局在型のどちらにおいても表面プラズモンの特徴としては、入射した電磁波の回折限界を超えて微小な領域に電場を局在させることができる閉じ込め効果、電磁波の群速度が低下し局所的に電場が著しく増強される電場増強効果、さらに周囲の環境 (屈折率、形状など) に非常に敏感で共鳴条件がシフトする (= 共鳴波長が変化する) 等が挙げられる。

## 1.3 プラズモニクス

電子のエレクトロニクス、光のフォトニクスのように、プラズモニクスは表面プラズモンを利用した科学技術分野である。1.2 節で述べたように通常の光 (= 電磁波) にはない特徴を持ち、また光-表面プラズモン間で相互にエネルギーのやり取りができる。例えば光入射側 (光 → 表面プラズモン) の構造と光出射側 (表面プラズモン → 光) の間をナノワイヤ上を伝搬する表面プラズモンとして伝送することで極めて省スケールな光回路を実現でき

うる。また電場増強効果と閉じ込め効果を使えば、鏡や光ファイバーで構成された一般的な光共振器よりも省スケールかつ高効率な光共振器として用いることができる。電場増強効果を用いた表面増強ラマン散乱 (surface enhanced Raman scattering, SERS) ベースのバイオ・センシングはすでに商業レベルに達している。またより日常生活に近いところでは表面プラズモン共鳴の波長選択性を利用したフィルターとしての応用がある。一例として富士フィルム株式会社から販売されている遮熱フィルム (MF-400) は誘電体フィルム中の銀ナノ平板粒子のサイズをコントロールすることで可視光や電波に対しては高い透過率を持ち、近赤外光 (=熱) は反射させるといったスペクトル特性を実現している [4]。

近年になり、ようやくこの分野が台頭してきたのには2つの理由がある。一つには微細加工技術の発展。電子線露光装置や収束イオンビーム加工装置の進展により、微細加工を専門としない研究者でも 10 nm オーダーの微細加工が比較的容易に行えるようになったこと。もう一つは計算機の性能向上と低価格化である。ここ数年は発展に陰りが見えてつつあるが、個人向けのパーソナルコンピュータでも有限要素法 (finite elements method, FEM) や時間領域差分 (finite difference time domain, FDTD) 法などを用いた計算が実用レベルで可能になったこと、さらにそれに伴うパッケージのシミュレーションソフトウェアの普及も要因の一つと言える。これらの要因によって研究への参入障壁が下がったため、研究者人口が増えるようになった。

いくつかの産業分野においては上述したようにプラズモニクスを商業ベースに乗せることに成功している他、応用ベースでの研究も成熟しつつある。しかしながら、エレクトロニクスやフォトニクスに比べるとまだ手を付けられていない領域や発展途上な領域も多い。

## 1.4 プラズモニック構造

本論文においては、表面プラズモンポラリトンや表面プラズモン共鳴により何らかの光学特性や機能を発現させた金属微細構造全般をプラズモニック構造と定義する。すなわち表面プラズモン共鳴を持つ金属粒子 (eg. ナノスフィア、ナノロッド etc.) や波長程度のスケールを持つ周期的金属構造 (プラズモニック結晶)、表面プラズモンを利用しているメタマテリアル (Metamaterial)<sup>\*3</sup>などの総称として用いる。

プラズモニック構造は表面プラズモンの効果による特殊な光学特性を目的とする他、その光学特性が周囲の環境に極めて敏感なため、バイオセンシングやガスセンシングを始め、さまざまな高感度検出への応用を秘めている。

---

<sup>\*3</sup> 1.5 節を参照

## 1.5 メタマテリアル

メタマテリアルは、負の屈折率に代表される自然界ではありえない光学特性を持つ、入射する電磁波の波長よりも十分小さいスケールの単位構造を集積させた人工媒質である。初めてメタマテリアルが実証されたのは 2000 年であるが、その発端は 1967 年まで遡る。1967 年、旧ソ連の物理学者 V. G. Veselago は誘電率  $\varepsilon$  と透磁率  $\mu$  が同時に負の値をとる物質の電磁場応答について考察した論文を発表した (英訳は 1968 年) [5]。この論文では、 $\varepsilon$  と  $\mu$  が同時に負の値をとる物質は電磁波に対して負の屈折率を持つことが理論的に示された。この後数年の間、“ $\varepsilon$ ” と “ $\mu$ ” が同時に負となる物質の探求が行われたがそのような物質が見つけれられることはなく、次第に Veselago の研究は忘れられていった。しかし、1990 年代後半になって英国の物理学者 J. B. Pendry によって細い銅線の配列がマイクロ波領域で負の誘電率を示すことが示された [6]。また Pendry は同時に銅線の配列やサイズを変えることで誘電率を操作できることも示している [6]。その後、Pendry は磁気応答する人工構造の研究を行い、1999 年に金属製の分割リング構造がマイクロ波領域で磁気応答を示し負の透磁率を持つことを発見し、その理論を示した [7]。金属製の分割リング (Split-Ring) は電磁場中で共振器 (Resonator) としてふるまうので、後にこの構造は SRR (Split-Ring Resonator)\*4 と名付けられた。そして 2000 年には米国の物理学者 D. R. Smith らによって細い銅線と SRR の配列を組み合わせることでマイクロ波の周波数帯で  $\varepsilon$  と  $\mu$  が同時に負の値を持つ媒質が作製可能であることがシミュレーションと実験の双方で確認され [8]、2001 年にはガラスファイバー製の回路基板上に印刷された銅 SRR と銅ワイヤからできた図 1.3 に示す構造を用いて、10.2~10.8 GHz のマイクロ波に対して負の屈折率を持つ、世界初のメタマテリアルの作製に成功した [9]。

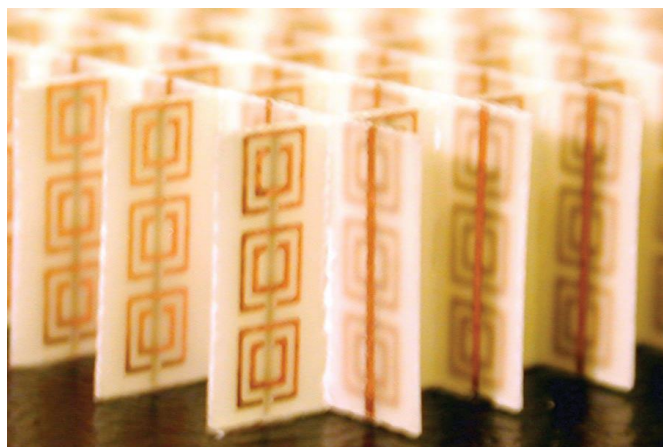


図 1.3 R. A. Shelby らによって作製された世界初のメタマテリアル。周波数 10.2~10.8 GHz において負の屈折率を持つ [9]。

\*4 SRR については 4.1 節を参照

メタマテリアルに関する研究はマイクロ波～可視光のあらゆる領域において、ここ20年近くの間非常に活発に行われており、物理学者のみならず化学や情報通信、エネルギーといった広い分野の研究者や企業によって学術的な研究から製品開発まで横断的に行われており [10]、非常にユニークな物性を持つメタマテリアルが多数創り出されている。一例を挙げると、図 1.4 に示す Si 基板上に金 SRR にを 3 次元的に自立させたメタマテリアルでは 32.8 GHz のテラヘルツ光に対して真空より低い屈折率 ( $n=0.35$ ) を示す [11]。

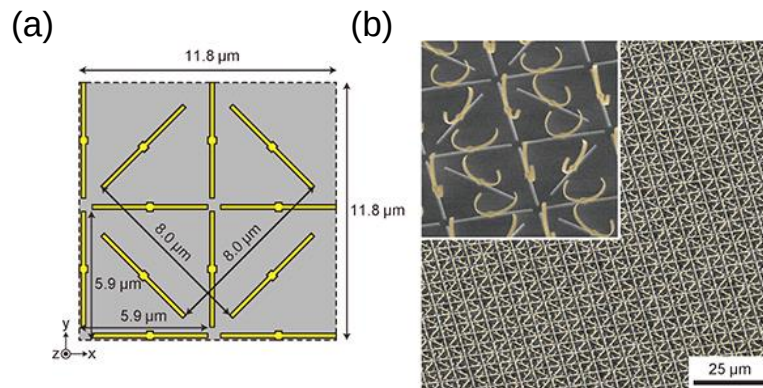


図 1.4 Chen らによって作製されたテラヘルツ光 ( $f=32.8$  THz) で屈折率 0.35 のメタマテリアル。(a) 試料の模式図。実際には黄色の Au の部分が Z 軸方向にめくれ上がる。(b) 試料の顕微鏡写真 [11]。

メタマテリアルはその動作周波数帯、材料、形状、機能といった個々のメタマテリアルを決定づけるパラメータが複雑かつ大量に存在するため、メタマテリアルの特性をすべてを記述できるような関係式は存在していない。しかし事実として可視-近赤外光に対して動作するメタマテリアルはその光学特性の発現に表面プラズモンが寄与しているものが多い [12-32]。そのため本研究ではメタマテリアルをプラズモニック構造の一種として扱う。

## 1.6 ピコ秒音響法

ピコ秒音響法はポンプ・プローブ法に基づいた測定法である [33]。ポンプ・プローブ法とは、ピコ秒～フェムト秒パルスレーザーから射出された超短光パルスを 2 つの光パルスに分けて、まずポンプ光によって試料に光学的変化を励起し、プローブ光の吸収、反射、透過、あるいは偏光面の回転を測定する光学的測定法である。プローブ光の試料へ到着するタイミングは、ポンプ光に対して相対的に可変とすることで、相対的な遅延時間として光学変調を追うことができる。最大の特徴は測定可能周波数が光検出器などの測定機器の応答時間に左右されず、光源からの光パルスの時間幅に依存する点である。そのためポンプ・プローブ法は、ピコ秒～フェムト秒の時間分解能を有する超高速分光法であると言える。

ポンプ・プローブ法を用いたピコ秒音響法（ピコ秒超音波法、ピコ秒レーザー音響法な

どとも言う)は1986年にC. Thomsenらによって初めて行われた[34]。これは一種の弾性的物性検出方法の一種である。金属や半導体の薄膜を持つ試料にフェムト秒時間幅のポンプ光を照射すると、その光の侵入長程度の空間幅を持つ超音波パルスが励起される。その超音波パルスが薄膜内を伝搬し、基板との界面で反射して、表面に戻ってくる。それをプローブ光の反射率変化として検出するという手法である。Thomsenらはこの表面に戻ってきた超音波パルスの到着時間から薄膜の膜厚を決定した。その後、本手法を用いて金属[34-36]や半導体[34]、誘電体[37]の単層膜・多層膜、量子井戸[38,39]における縦波音響波の伝搬測定が行われている。また縦波のみならず、横波音響波の検出も確認されている[40,41]。また、プローブ光の集光位置を2次元的に走査することで等方性や異方性の材料[42,43]、またフォノン結晶[44,45]や音響メタマテリアル[46]といった表面に音響波のサブ波長～波長スケールの構造を有する人工媒質上を伝搬する表面弾性波(SAW)のイメージング(可視化)も行われている。また固体中を伝搬する音響波のみならず、マイクロ～ナノ構造の振動モードの励起・検出にもピコ秒音響法は用いられている。ピコ秒音響法と振動モードについては1.7.1で紹介する。

本論文で紹介する研究では、プラズモニック構造を構成する単位構造のGHz周波数帯の機械的固有振動や同周波数帯の表面弾性波(surface acoustic wave, SAW)の励起、及びプラズモニック共鳴シフトを利用したそれらの音響現象の高感度検出のためにピコ秒音響法を用いた。

## 1.7 背景・過去の研究

本論文ではGHz周波数帯の音響現象によるプラズモニック構造におけるプラズモニック共鳴シフト、およびプラズモニック共鳴シフトを利用した音響現象の高感度検出のデモンストレーションという観点から3つの研究を紹介する。この節ではそれらのモチベーションとなった研究背景を紹介する。

### 1.7.1 ナノ構造の振動モード解析

フォトリソグラフィーや電子線リソグラフィーなどを用いてナノメートルスケールの構造を作成する技術が発達し、様々な分野でナノ構造を用いた研究や技術開発が盛んに行われている。ナノ構造の特性としては、マクロスケールの同じ形状をした構造物に比べてその光学的、機械的、電磁氣的、熱的特性が変化することや、物理的性質がそのサイズのみならず構造や形状に依存することがあげられる。先に挙げたプラズモニクスもナノ構造における光学的、電磁氣的な性質によるものである。そしてナノ構造における弾性的、機械的研究として、1990年代以降ナノスケールの構造物に対する振動研究が盛んに行われている。小さなスケールの音響振動という物理現象は、フィルターやセンサーなどにおいて非常に有効なツールである。よってナノスケールの物質や系の振動形態を理解することはそのような分野への応用における小型化、高振動化、高感度化といった課題に対して非常



に重要である。

表 1.1 機械的振動の測定方法

| 測定法        | 対応周波数帯            | 測定分類       |
|------------|-------------------|------------|
| 機械による励起・検出 | ～1 GHz 程度まで       | 時間/周波数領域測定 |
| ピコ秒音響法     | ～10 THz 程度まで      | 時間領域測定     |
| ラマン分光法     | 100 GHz～10 PHz 以上 | 周波数領域測定    |
| ブリルアン散乱分光法 | 1～1000 GHz 程度     | 周波数領域測定    |

実験的事実としてマイクロ–数十ナノメートル程度の金属構造の機械的な固有振動モードの周波数帯は 100 MHz–100 GHz オーダーである。この領域の機械振動を励起・検出する方法はこれまでいくつか提案されている。代表的なものとしては、ピエゾ（圧電）素子などを用いた機械的に振動を励起する方法 [47]、ラマン分光法 [48]、ブリルアン散乱分光法 [49]、そして 1.6 節で紹介したピコ秒音響法が挙げられる。これらの特徴を表 1.1 にまとめる。特に測定可能周波数について見ていただきたいが、ナノスケールの音響振動の固有振動数である GHz 域を最も広くカバーしているのがピコ秒音響法である。

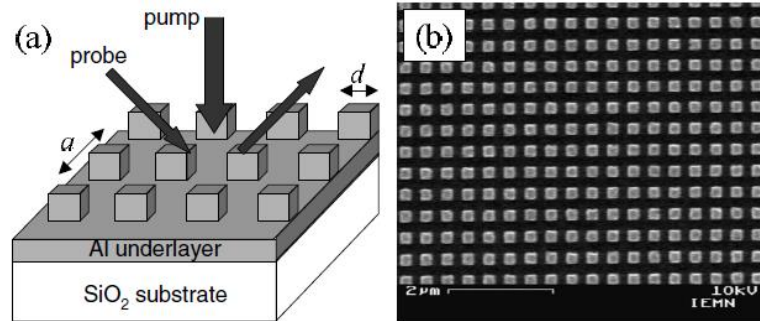


図 1.5 Robillard らによって研究された Al ナノキューブ周期構造。(a) 試料模式図、(b) 真上からの SEM 写真 [50]。

ピコ秒音響法による機械的固有振動モードの研究は 1993 年の Lin らの研究 [52] から始まり、図 1.5 の Al ナノキューブ [50] や図 1.6 の GaAs [51] のように、非常に多岐にわたる形状の金属や半導体ナノ構造における振動モードの性質が明らかにされてきた [50, 51, 53–69]。振動モードの解析やそこから得られる形状をはじめとする構造因子についての説明は参考文献に譲るとして、本研究におけるこの手法の利点はプラズモニック構造に振動を励起するにあたり、振動を起こすための機構を新たに組み込む必要がないことである。ピコ秒音響法による振動励起機構は詳しくは 2.1 節に後述するが、金属の光吸収を利用している。そのため金属ナノ構造であるプラズモニック構造であれば最初から音響振動を励起するための条件が満たされているため、所望の光学特性を持つプラズモニッ

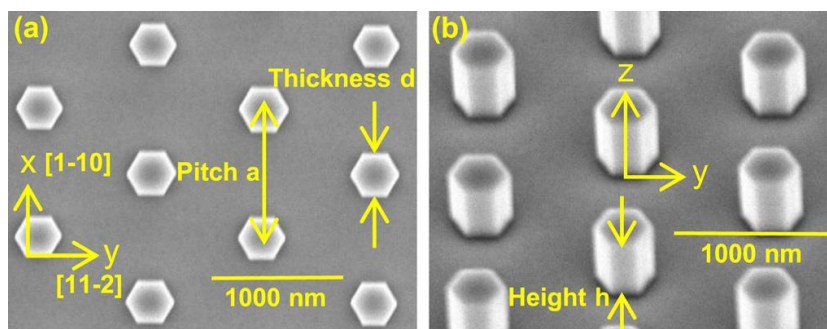


図 1.6 Sakuma らによって研究された GaAs 周期構造。(a) 真上からの SEM 写真、(b) 斜め上からの SEM 写真 [51]。

ク構造をそのまま利用可能である。例えば、多くのプラズモニック構造と同じ、基板上に作製された金のナノ構造における振動モードの研究として、参考文献 [67] では T. A. Kelf らによって図 1.7 のようなガラス基板上に作製された金ナノリングにおいてその振動モードの励起・検出が行われている。

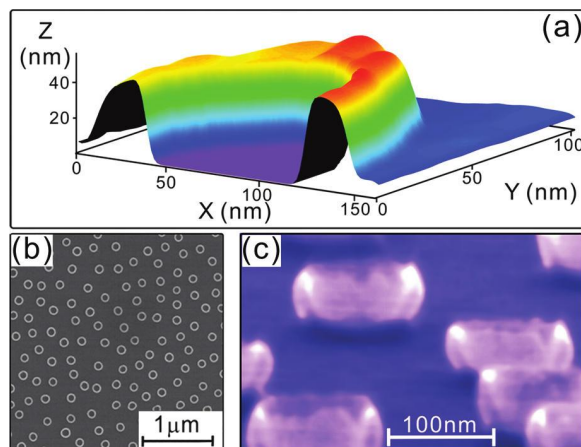


図 1.7 Kelf らによって研究された金ナノリング構造。(a) AFM 写真、(b) 真上からの SEM 写真、(c) 斜め上からの SEM 写真 [67]。

### 1.7.2 プラズモニック構造における振動モード解析/GHz 音響変調

ナノ構造の研究で最も重要なことの 하나가、その物質・構造の物性が振動モードやサイズにどのように依存するかを解明することである [70]。表面プラズモン共鳴による局所的な電場増強や特異な光学スペクトラムを持つプラズモニック構造においても、ピコ秒音響法を用いて変形・サイズに依存するダイナミクスを解明しようという研究が行われている [58, 61, 66, 71]。これらの研究では実験的に観測された微弱な反射・透過・吸収率の



変化とシミュレーションから得られた振動モードに基づく定量的理解にとどまっていた。2017 年になりようやく金属球やロッドといった最も単純な構造についての定性的研究が発表された [72] が、やはり複雑な振動モード形状を持つ 3 次元的な構造に対しては定量的な解釈しかできていない。そのため観測された現象に対する理解はやはり実験的事実に対する解釈の域を出ない。

また、プラズモニック構造内の音響振動や音響波はプラズモニック共鳴の変調を引き起こすため、ナノ光回路やセンシングへの応用を秘めている。詳しくは後述するが、様々な方法でプラズモニック構造のもつ光学的性質を変化させる研究が現在、盛んに行われている。他の手法に比べて、ピコ秒音響法で励起される音響振動や音響波がプラズモニック構造に与える形状変化や物性変化といった物理的影響は極めて小さい。

しかし、そういった微小な変化でもプラズモニック構造の光学特性は変調される。例えば、L. Guyader らは図 1.8 のようなガーネット基板に蒸着された金薄膜に円形開口が正方格子に配列された EOT 構造<sup>\*5</sup>においてピコ秒音響法を用いて励起した定在波の SAW によって EOT の光透過強度を GHz 周波数で変調した [73]。

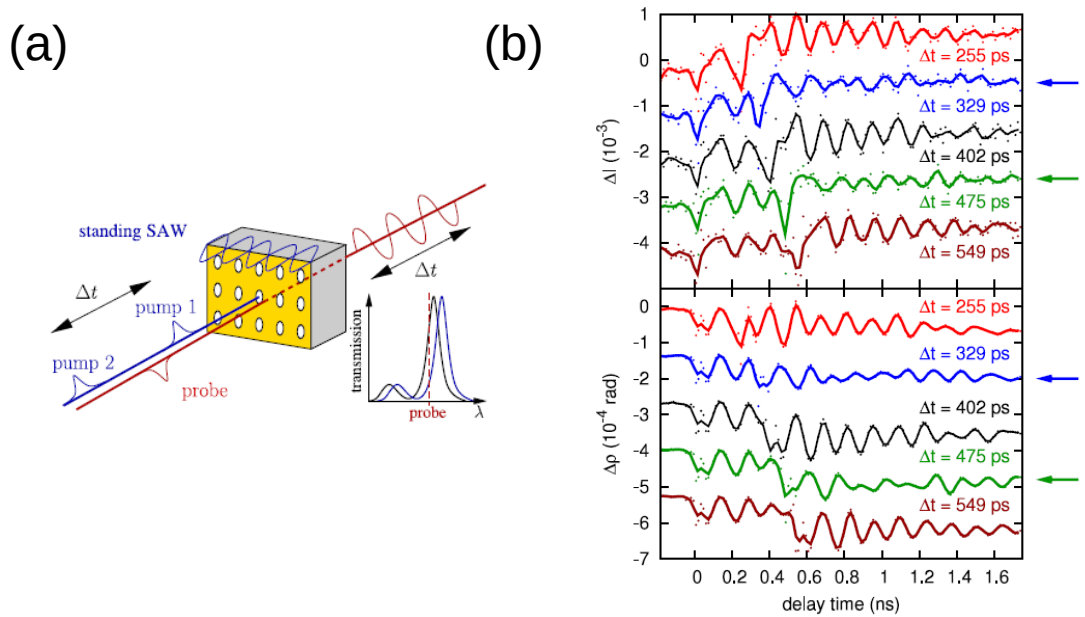


図 1.8 Guyader らによる二次元 EOT 構造の光透過強度の GHz 音響変調の研究。構造中に立たせた弾性波の定在波によって起こる EOT 構造の光透過強度の変化をピコ秒音響法で確認した。特定の時間差  $\Delta t$  をつけた 2 つのポンプ光によって定在波を生み出し、(b) のようにある特定の時間差の時のみ光透過強度変化  $\Delta I$  を変調させた。(a) 試料、実験の模式図 (b) ピコ秒音響法による光透過強度の時間発展 [73]。

また振動モードと SPP モードがカップリングする場合では、ピコ秒音響法における通常の振動モードによる音響変調よりも何倍も強く光反射率や光透過率が変調されることが確認されている。例えば、B. Dong らは図 1.9 のような SRR と同じアナロジーを持つ、

<sup>\*5</sup> EOT については 3.1 節を参照

断面が U 字型の金ワイヤを回折格子様に配列したプラズモニック構造と、同じ幅、周期の金回折格子とで振動モードによる光透過率変化の振幅を比較する研究を行った。B. Dong らはプラズモニック構造の SPP モードを引き起こすプローブ光を用いた場合には 100 倍以上強く光透過率が変調されることを確認した [74]。

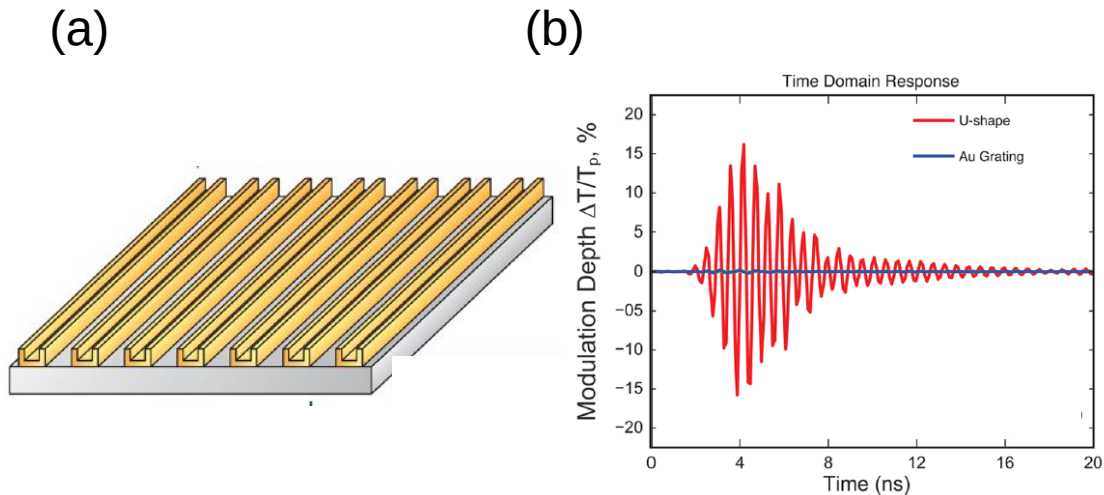


図 1.9 B. Dong らによる金 U 字断面ナノワイヤアレイ型プラズモニック構造の光透過率の GHz 音響変調の研究。ピコ秒音響法を用いてプラズモニック構造に励起した振動モードが SPP モードを変調することにより、同幅・同周期の金ナノワイヤ回折格子よりも 100 倍以上強く光透過率を変調できることを示した。(a) プラズモニック構造の模式図 (b) ピコ秒音響法による光透過率変化の時間発展 [74]。

### 1.7.3 アクティブ・プラズモニクス

アクティブ・プラズモニクスはプラズモニック構造の持つ光学特性や伝搬する表面プラズモンを外部から制御することを目的としたプラズモニクスの一領域である [75, 76]。外部から特性を制御する方法が確立されれば、現在の主な応用である金属ベースの光学材料や光吸収体のほかに、表面プラズモンを動力源とした電子回路や電子デバイス、つまりプラズモン回路やプラズモニックデバイスへの道が拓ける。例えば、ディスプレイであれば電源のオン・オフ、明るさや色の調整が可能である。これはそれらの特性が内部の電子回路とそこに流れる電流によって決まっており、ディスプレイのスイッチや設定ソフトにより電流値や回路内のパラメーターを能動的に制御できるからだ。

プラズモニクスの要である表面プラズモンは周囲の環境 (eg. 屈折率、形状など) に敏感であるため、それらの変化させることで表面プラズモンを変調することが可能である。プラズモン制御のための方法は大きく 2 種類ある。一つは、プラズモニック構造に相変化材料 (phase change material, PCM) などを取り入れ、プラズモニック構造の周辺の

屈折率や導電率の分布、すなわち周囲の環境を変化させる方法 [19, 29, 77–102]。例えば、C. H. Kodama らは温度によって結晶相とアモルファス相の 2 つの相を持つ、カルコゲナイド系の相変化材料の GeTe と SRR を組み合わせることでアクティブ制御が可能なプラズモニック構造を実現した [80]。C. H. Kodama らは図 1.10 のように金 SRR のギャップ部分に GeTe を埋め込んだ構造において、加熱により GeTe の相変化させることで元の SRR の持つ 0.8 THz と 2.2 THz のプラズモニック共鳴を可逆的に消失させることに成功した。

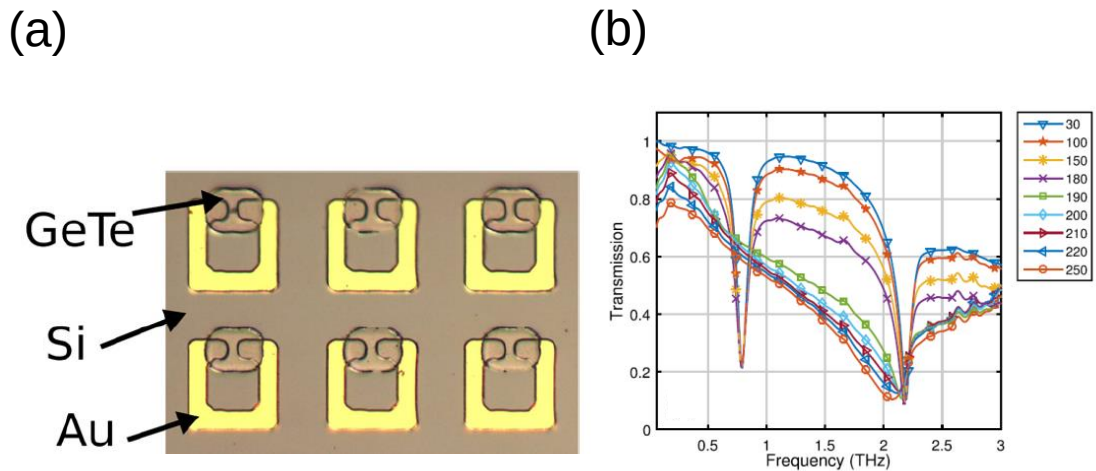


図 1.10 Kodama らによる THz 帯で動作する SRR と相変化材料の GeTe からなるプラズモニック構造において GeTe の相変化でプラズモニック共鳴を可逆的に消失させた研究。(a) 試料の顕微鏡写真。SRR のギャップ部分に GeTe が埋め込まれている。(b) 試料を加熱していった際の光透過率。温度が 180 °C までと 190 °C 以上とで透過率スペクトラムが大きく変化している。[80]

もう一つは MEMS(micro electro mechanical systems) を取り入れるなど、プラズモニック構造の形状を変化させる方法である [12, 22, 103–135]。例えば、I. M. Pryce らは図 1.11 のような、基板にシリコーンゴムの一種である PDMS(ジメチルポリシロキサン)を用いることで、アクチュエーターで簡単に伸び縮みさせることができるプラズモニック構造を考案した [122]。I. M. Pryce らの研究では、1 mm 厚の PDMS 基板を伸縮させることで、SRR とナノバー、SRR 同士の間隔を最大で 50 % も増減させることが可能で、元のプラズモニック共鳴波長から 10 % 以上も共鳴波長をシフトさせている。

## 1.8 本論文の目的

メタマテリアルを含むプラズモニック構造の ActiveControl は産業的な応用を主な目的として数多く行われており、効率の良い構造や変調方式についての知見が溜まっている。しかし、GHz 帯の音響波や音響振動による ActiveControl に関してはほとんど研究

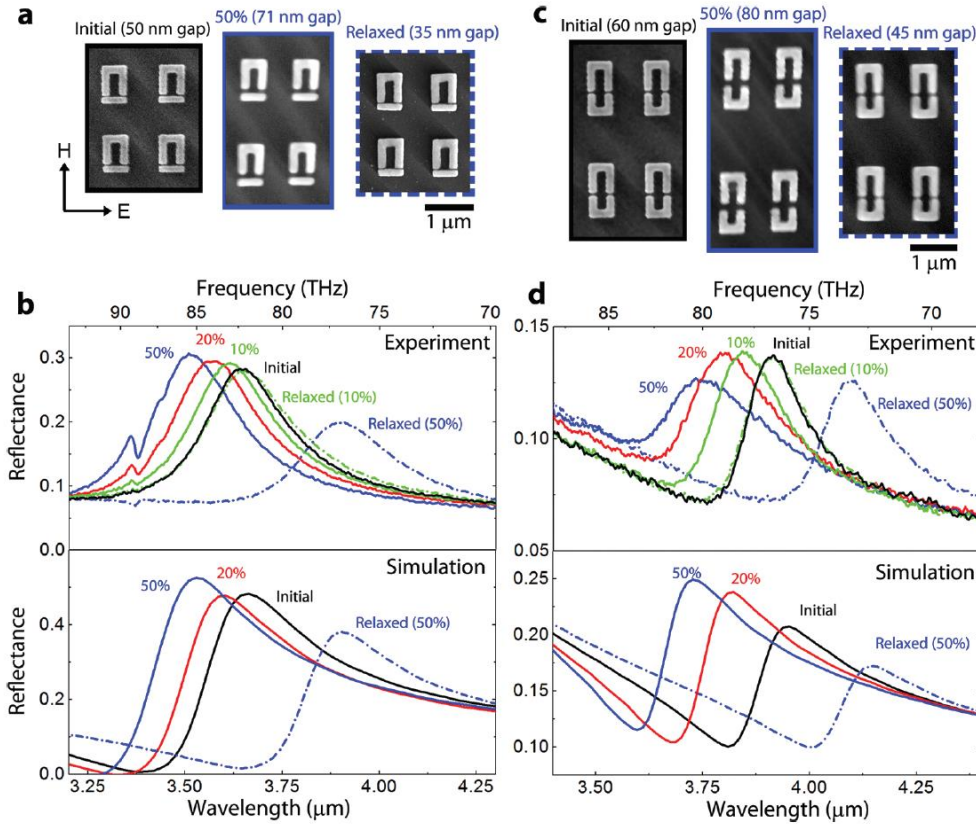


図 1.11 Pryce らによる PDMS 基板の可塑性変形を利用したプラズモニック構造の光反射率のアクティブ制御の研究。(a)、(b) 試料の平衡状態と基板を伸び縮みさせたときの SEM 写真。(c)、(d) PDMS 基板を伸び縮みさせたときの試料の光反射率 [122]。

が行われていなく、定量的な議論などを行うに足る、基礎的な実験結果すら乏しい状況にある。また、革新的研究開発推進プログラム ImPACT に採択されていたように光超音波は医療や産業において多大な価値を持つ。そのため光超音波とプラズモニック構造の相互作用はより大きな価値を生むと考えられる。そこで本研究では光超音波とプラズモニック構造の組み合わせの可能性を探るべく、単純な構造のプラズモニック構造において光音響変調を行う。本研究においては他の ActiveControl に関する研究のように即効的な成果を求めず、基礎的な学術的探求として以下の 3 つの研究を行う。

- I. EOT 構造における振動モードを利用した光透過率の GHz 音響変調
- II. SRR 構造における振動モードを利用した光反射率の GHz 音響変調
- III. ナノロッドによる GHz 表面弾性波のプラズモニック検出

I. ではガラス基板上的金薄膜に正方格子状の周期的正方開口を有する構造を用いる。この試料は EOT 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よりも多くの光が透過する現象である。この構造の GHz 周波数帯の振動モードを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、振動モードの変形を取得した。GHz 周波数帯の振動モードは変形とひずみの双方により EOT 構造のプラズモニック共鳴を変調するが、EOT の GHz 音響変調においては構造の変形が支配的な役割を果たすことを明らかにした。

II. ではガラス基板の上に SRR と呼ばれる U の字型の金構造をガラス基板の上に正方格子の上に配列した構造を試料として用いる。この試料中の SRR は顕著な偏光依存性を示す構造であり、本試料は一般にメタマテリアルに分類される。ピコ秒音響法を用いて GHz 振動モードを励起して、SRR 構造の光反射率を GHz 音響変調した。本研究は GHz 振動モードによってメタマテリアルの光学特性を変調した世界初の研究である。また数値シミュレーションと実験の比較から取得した振動モードの変形から、SRR のギャップが開け閉めする変形モードが強く SRR のプラズモニック共鳴を変調させていることを解明した。

III. ではガラス基板の上に間隔をあけて作製した単一の金ナノワイヤと金ナノロッド一次元鎖を試料として用いた。本構造は表面弾性波をナノワイヤ上で励起 → ガラス基板上を伝搬 → ナノロッド一次元鎖上で検出する、表面弾性波トランスデューサ構造である。金ナノロッドのプラズモニック共鳴を利用することで伝搬してきた表面弾性波の高感度検出に成功した。本研究はナノスケールの表面弾性波トランスデューサーとして世界で初めて周期構造を用いずに表面弾性波の送受信に成功した。

## 1.9 本論文の構成

本論文は全 6 章から構成される。以下、第 2~6 章の要旨をまとめる。

第 2 章では続く第 3~5 章で共通する、ピコ秒音響法における金属中で音響波や音響振動の励起機構、ピコ秒音響法によって検出されるブリルアン振動、変形、ひずみによる光弾性効果、プラズモニック共鳴シフトによる光反射率 (透過率) の変調機構についてまとめた。

第 3~5 章では実施した実験、数値シミュレーションの結果、考察についてまとめる。第 3 章ではガラス基板上的金薄膜に開口が正方格子の上に配列された EOT 構造における光透過率の GHz 音響変調について紹介する。第 4 章ではガラス基板の上に U の字型の金構造を正方格子の上に配列した SRR 構造における光反射率の GHz 音響変調について紹介する。第 5 章ではガラス基板の上に作製した金ナノワイヤと金ナノロッド一次元鎖からなる表面弾性波トランスデューサにおける GHz 周波数帯の表面弾性波の輸送実験について紹介する。

最後に第 6 章において本論文の総括を行う。

## 第 2 章

# 原理

本章では、音響波や音響振動といった音響現象を光励起する仕組みや励起された音響現象が光学特性を変調する仕組みを紹介する。

### 2.1 金属構造における振動励起機構

超短光パルスを用いることでナノ構造において GHz 帯の振動モードを励起できる。これはレーザーを用いて音響波を励起する光音響効果に応用したものである。光音響効果はレーザーの強度により、2 つの音響波励起機構を持つ。1 つ目は高エネルギーの場合のレーザーアブレーションによるもの、2 つ目は低エネルギーの場合の電子-格子相互作用による機構である [34, 136–138]。ここでは本研究で用いた後者の機構の内、特に金属の振動励起に関する理論について簡単に述べる。

金属などの不透明物質に対して超短光パルスを照射すると、光のエネルギーは電子により吸収される。この電子は光のエネルギーを吸収することで電子温度が上昇し、電子-電子間の散乱により、500 fs 程度で熱平衡状態となる。その後そのエネルギーが電子-格子間の散乱により電子系から格子系へと移り、格子系の熱エネルギーが上昇し、格子が膨張しようとして応力パルスが発生する。この応力パルスの空間幅は、電子-格子相互作用の強い Cr や Ni といったいくつかの遷移金属では光の侵入長と同じ程度、相互作用の弱い Au や Ag といった貴金属では遷移金属と比べ 10 倍程度空間幅が大きくなる [35, 36, 139]。レーザーパルスによって瞬間的に発生する応力パルスは様々な周波数の応力を含むため、構造体の形状や大きさに応じた固有振動を励起することが出来る。これが金属の場合の主たる振動の励起機構となっている。また励起された振動のエネルギーは基板をはじめとする周りの環境へと拡散する。

### 2.2 ブリルアン振動

本研究では、ピコ秒音響法によって試料における音響振動に起因する反射率変化、あるいは透過率変化を測定する。ナノ構造が振動すると光反射率変化や透過率変化もその振動



数で変化する。しかし、この時にナノ構造の音響振動とは別に基板内を伝わる縦波音響パルスのブリルアン散乱による周期的光反射、透過率変化も特定の振動数をもつ振動として検出される。この現象をブリルアン振動 (Brillouin Oscillation) と呼ぶ。この節ではこの現象の概説と振動数の導出を行う。

初めに概要について述べる。ポンプ光が試料に照射されることにより表面近傍が温められる。これにより、縦波音響パルスが発生し試料内を伝搬する [33, 34, 58, 140, 141]。プローブ光の試料表面での反射光と、上記の試料内を伝わっていく縦波音響パルスによる反射光（ブリルアン散乱光）とによって干渉が起こる。この干渉によって起こる光反射率あるいは光透過率の時間変化がブリルアン振動である。このブリルアン振動に関する研究は、音速、弾性定数、薄膜の膜厚、減衰係数などの測定を目的として盛んに行われている [142–144]。

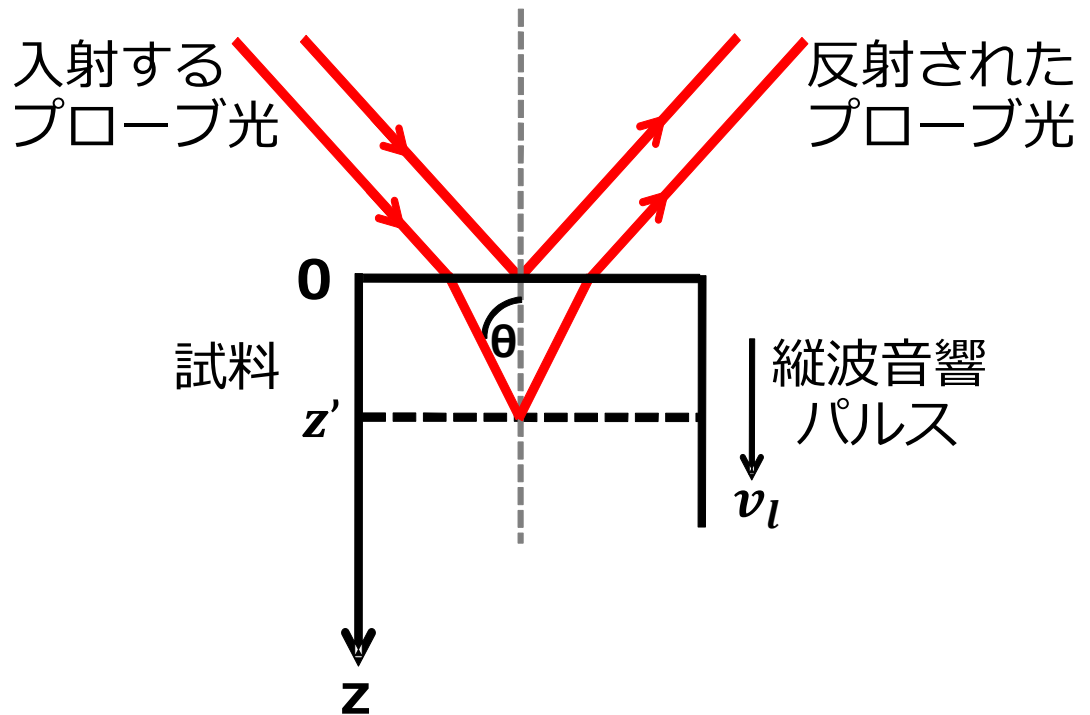


図 2.1 ブリルアン散乱の概念図

次にブリルアン振動による振動数を導出する。図 2.1 のように透明物質中を平面波状の音響パルスが  $z$  方向に、音速  $v_l$  で伝搬している状況を考える。このとき平面波状の波長  $\lambda$  のプローブ光を  $-z$  方向から媒質内の入射角  $\theta$  で入射すると、その反射強度は、 $z = 0$  の表面あるいは他の物質との界面で反射した光と、ひずみパルスで反射した光との干渉に

よって決定される。強めあう条件は縦波音響パルスの中心を  $z = z'$  とすると、

$$2z' \cos \theta = \frac{\lambda}{n} \quad (2.1)$$

となる。 $n$  は試料 (基板、透明膜など) のプローブ光の波長に対する屈折率である。縦波音響パルスの中心  $z = z'$  は縦波の音速  $v_l$  で伝搬している、プローブ光の反射強度は次の周期  $T$ 、周波数  $f$  で強弱を繰り返すことがわかる。

$$T = \frac{1}{2v_l \cos \theta} \frac{\lambda}{n} \quad (2.2)$$

$$f = \frac{1}{T} = 2v_l \cos \theta \frac{n}{\lambda} \quad (2.3)$$

本研究論文においては、いずれの場合もプローブ光は試料に対して垂直入射されるので 2.3 式は次のように書き下せる。

$$f = \frac{1}{T} = \frac{2v_l n}{\lambda} \quad (2.4)$$

2.4 式に従って、本研究で用いる近赤外域のプローブ光の波長 (ex.  $\lambda = 800$  nm) とガラス基板の屈折率 (ex.  $n = 1.5$ )、縦波の音速 (ex.  $v_l = 6000$  m/s) からブリルアン散乱の周波数を見積もると、 $f_{\text{Brillouin}} = 22.5$  GHz 程度の周波数で基板内を伝播する縦波音響波により試料の光反射率が変調される。

## 2.3 変形による光反射率 (透過率) 変化

試料が構造を有しているとき、構造の変形によって試料の光反射率は直接的に変化する。本研究で用いる試料と同様に、透明基板上に金属構造が存在する場合の変形による反射率変化の概念図を図 2.2 に示す。簡単のため、図中には単位構造のみを示し、基板の反射率を 0、構造の反射率を 1 とした。

図 2.2 にあるように単位構造に照射されるプローブ光の内、基板と構造に照射される光量の割合が構造の変形前後で変化する。この照射面積に占める基板部分と構造部分の比率の変化は対物レンズへと戻る光量を直接的に変化させる。これにより結果的に試料全体の光反射率が音響振動によって変調される。

また基板と構造の面積比の変化以外にも、構造表面の角度変化なども変形による音響変調へと寄与する。

## 2.4 光弾性効果による光反射率 (透過率) 変化

構造が振動することで生じるひずみもまた音響変調における光反射率変化の要因の一つである。ひずみが屈折率 (正確には誘電率) を変化させる光弾性効果と呼ばれる現象により反射率が変調される。光学の教科書にあるフレネルの式のように、反射率や透過率は屈折率の影響を直接的に受け、変化する。



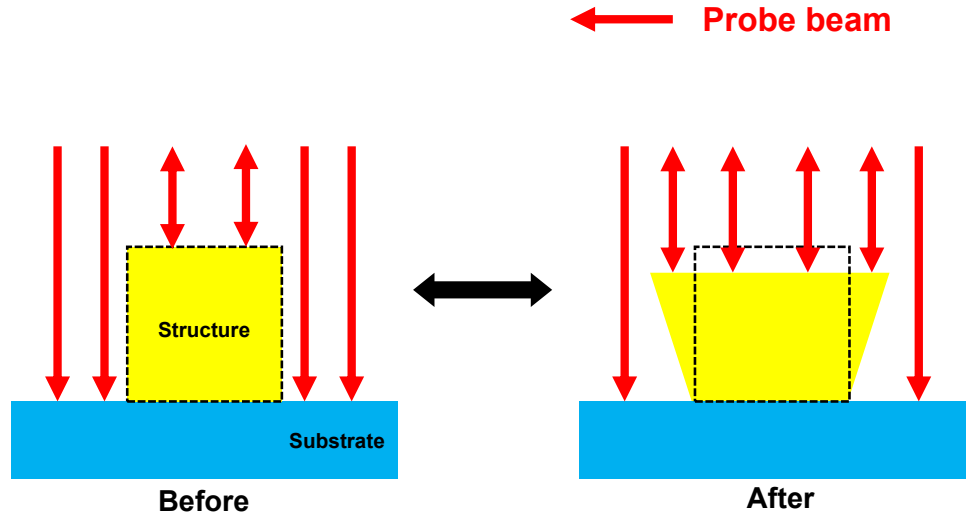


図 2.2 構造の変形による反射率変化の概念図。簡単のため、基板の反射率を 0、構造の反射率を 1 と扱っている。

光弾性効果について説明する [33, 145, 146]。媒質の光学特性は、電気的な逆誘電率テンソル  $\boldsymbol{\eta} = \epsilon_0 \boldsymbol{\epsilon}^{-1}$  によって完全に記述される。 $\boldsymbol{\eta}$  が与えられると屈折率楕円体を決定できる。したがって任意の方向に任意の偏光で進む光波に対する屈折率が決定できる。ひずみ  $s_{kl}$  が存在すると、逆誘電率テンソルはひずみの関数  $\eta_{ij} = \eta_{ij}(s_{kl})$  となる。この依存性が光弾性効果である。9 つある  $\eta_{ij}(s_{kl})$  のそれぞれは  $s_{kl}$  を変数としてテイラー級数に展開される。線形項のみ残すと、

$$\eta_{ij}(s_{kl}) = \eta_{ij}(0) + \sum_{kl} P_{ijkl} s_{kl} \quad i, j, k, l = 1, 2, 3 \quad (2.5)$$

ここで  $P_{ijkl} = \partial \eta_{ij} / \partial s_{kl}$  はひずみ光学テンソル (strain-optic tensor) と呼ばれる四階のテンソルである。一般的に、このテンソルの  $(i, j)$  と  $(k, l)$  はそれぞれ一つの指数  $I = 1, 2, \dots, 6$  と  $K = 1, 2, \dots, 6$  でまとめ、 $6 \times 6$  の行列  $P_{IK}$  として描写される。(1 =  $xx$ , 2 =  $yy$ , 3 =  $zz$ , 4 =  $yz = zy$ , 5 =  $zx = xz$ , 6 =  $xy = yx$ )。この行列を指して光弾性テンソルと呼ぶ。等方的な媒質において光弾性テンソルは、

$$P_{ik} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & P_{12} & 0 & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{11} & P_{12} & 0 & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{12} & P_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & P_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & P_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & P_{44} \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

と書ける。ここで  $P_{44} = (P_{11} + P_{12})/2$  である。光弾性テンソルを用いて、誘電率の変化

量  $\Delta\epsilon_I$  は、

$$\begin{pmatrix} \Delta\epsilon_1 \\ \Delta\epsilon_2 \\ \Delta\epsilon_3 \\ \Delta\epsilon_4 \\ \Delta\epsilon_5 \\ \Delta\epsilon_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & P_{12} & 0 & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{11} & P_{12} & 0 & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{12} & P_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & P_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & P_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & P_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \eta_1 \\ \eta_2 \\ \eta_3 \\ \eta_4 \\ \eta_5 \\ \eta_6 \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

光弾性テンソルの各成分を光弾性定数といい、本研究で用いる物質はガラスと金のみで、どちらも等方性として扱えるので  $P_{11}$  と  $P_{12}$  のみで光弾性効果を記述できる。

## 2.5 プラズモニック共鳴のシフトによる光反射率 (透過率) 変化

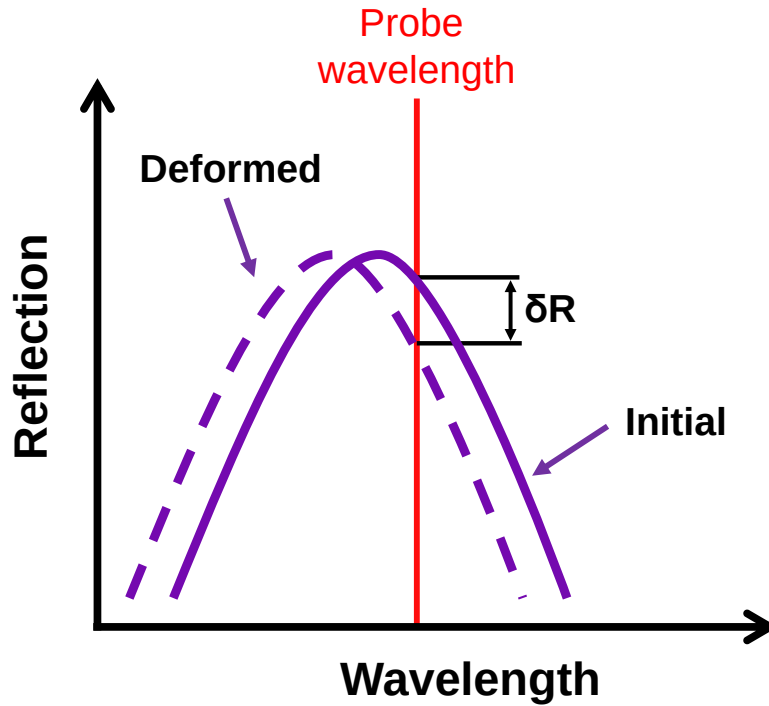


図 2.3 プラズモニック共鳴のシフトによる光反射率変化の概念図。

プラズモニック構造の持つ光学スペクトルはプラズモニック共鳴波長付近でピークやディップを持つ。そのためこの共鳴波長がシフトしたり、共鳴の  $Q$  値が変化するとそれに伴って光反射率が変化する。構造の持つプラズモニック共鳴波長は材料の屈折率や形状により決定されるので、ピコ秒音響法で励起される変形やひずみによってプラズモニック共鳴のシフトが発生し、光反射率を変調する。ただし、ピコ秒音響法で励起される変形や

ひずみ分布は複数の振動モードが同時に励起されるため、参考文献 [122] に代表されるような電動ステージなどで機械的な力を直接与えたものと比較して非常に煩雑なものとなる。そのため複雑な3次元形状における音響振動とプラズモニック共鳴との関係を解析的に説明できる理論は2019年現在では存在しておらず、球のような単純な形状について定量的な議論を行った研究が報告されているのみである [72]。参考文献 [72] によると音響振動におけるプラズモニック共鳴の変調は、形状の変化、膨張・収縮といった体積変化に伴う電子密度の変化、変形ポテンシャルの複合によって引き起こされている。

本研究では観測されたプラズモニック構造での光反射率変化が  $\sim 10^{-4}$  と非常に小さいため、光反射率変化はプローブ光波長におけるプラズモニック構造の光学スペクトルの傾きとひずみ、変形の大きさ対して線形に変化すると仮定した。つまり、次の関係式を用いる。

$$\frac{\delta R}{R} \sim \frac{dR_{\text{Spectrum}}}{d\lambda} \quad (2.8)$$

ここで  $\frac{\delta R}{R}$  はピコ秒音響法で観測される相対的反射率変化、 $R_{\text{Spectrum}}$  はプラズモニック構造の光反射率、 $\lambda$  は光波長である。プローブ光の光波長における光学スペクトルの傾きが大きいほど微細なひずみや変形でも高感度に検出できることが分かる。

音響振動によるプラズモニック共鳴のシフトと光反射率変化について図 2.3 を用いて簡単に示す。図中の紫の実線が反射率スペクトルの平衡位置で、点線が振動によって変形したときの反射スペクトルである。プローブ光の波長は振動の影響を受けず一定であるので、プラズモニック共鳴波長の長波長側と短波長側とで振動の影響により反射率が増減することが分かる。

## 第 3 章

# EOT 構造におけるギガヘルツ音響変調

本章では、Extraordinary optical transmission (EOT) 構造の機械的固有振動モードを利用した機械的光学変調の研究について述べる。

### 3.1 Extraordinary optical transmission 現象

電子レンジのガラス窓にある金網は可視光は透過するがマイクロ波 (電子レンジの電磁波の波長は約 12 cm) は遮蔽する。このように金属の開口を電磁波が透過できるかどうかは電磁波の波長と開口のサイズによって決まることはよく知られている。1944 年に H. Bethe に示された透過理論によると、完全導体における波長よりも十分に小さい円形開口における電磁波の透過率  $T$  は、

$$T \sim (r/\lambda)^4 \quad (3.1)$$

となる。ここで  $r$  は円形開口の半径である [147]。

しかし 1998 年、T. W. Ebbesen らは、光を遮蔽するのに十分な厚み ( $\geq 200$  nm) の銀薄膜にサブ波長スケールの開口を周期的に開けることで強い共鳴ピークが観測されることを実験的に観測した [148]。図 3.1 に銀薄膜の膜厚  $t=200$  nm、開口直径  $d=150$  nm、格子定数  $a_0=0.9$   $\mu\text{m}$  (正方格子) の構造における光透過率スペクトルを示す。波長 326 nm のピークは膜厚を増やすと消える銀のバルクプラズモンピークである。波長 1370 nm で透過率が 4 % を超えていることが分かる。

Bethe の理論式 (式 3.1) から予測される Ebbesen の構造の光透過率は波長 1370 nm で  $\sim 0.1$  % である。このような開口面積から予測される透過率を超えて光が透過する現象は Extraordinary optical transmission (EOT、異常光透過) 現象と呼ばれている。また単一の開口でも開口周辺に周期構造 (開口ではない) を作ることで透過率が増強されたり [149]、透過したビームの整形が可能である [150]。

こうした EOT の性質が科学的な関心を沸き起こし、学術的な興味にとどまらずパネルディスプレイや増強分光、近接場顕微鏡、イメージングといった応用面へも影響を及ぼし

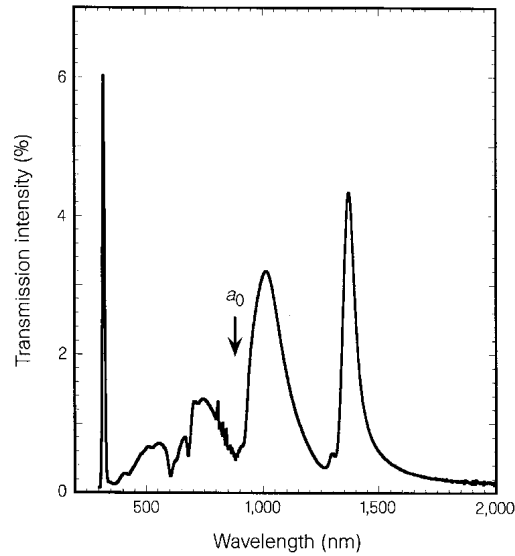


図 3.1 銀薄膜の膜厚  $t=200$  nm、開口直径  $d=150$  nm、格子定数  $a_0=0.9$   $\mu\text{m}$  (正方格子) の構造における光透過率スペクトル。波長 1370 nm で透過率  $T \geq 4$  %。[148]

た [10]。

今日、2次元の周期開口における EOT が生じるメカニズムについては研究が進み、EOT の本質的な部分は表面プラズモンポラリトンによるものと解明されている [150–158]。簡単に説明すると、金などの金属でできた周期構造に光を入射するとき、その周期構造によって金属表面に表面プラズモンが励起される。この表面プラズモンが開口を透過し、反対側での表面プラズモンを励起する。さらに周期構造によって伝搬光と結合する。開口部において電場増強されているため、透過率が増強される。

## 3.2 試料

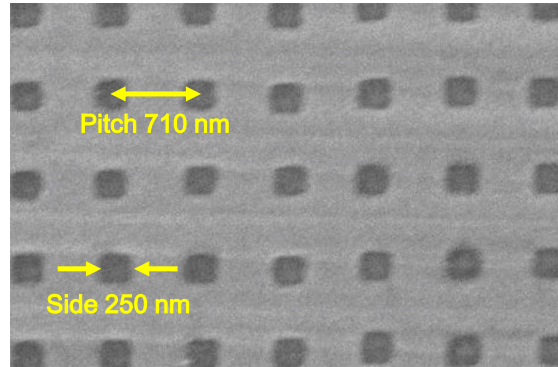


図 3.2 EOT 構造の SEM 写真。ガラス基板上的金薄膜 (厚み 40 nm) に一辺 250 nm の正方形の開口が周期 710 nm で正方格子状に空いている。

本研究では、試料として図 3.2 に示す SEM 写真のようなガラス基板上的金薄膜上に周期的開口を有する EOT 構造を用いる。この試料は、開口の幅 250 nm の正方開口を、周期 710 nm で正方格子状に配置されており、金薄膜の厚さは 40 nm である。幅、周期のサイズは異なるエリアで取られた図 5-2 のような複数の SEM 写真から見積もった。試料作製は当研究室の佐久間洋字が電子ビームリソグラフィにより行った。

## 3.3 EOT 構造の光学スペクトラム

本節では実験的に取得した EOT 構造の透過率スペクトラムとこれに用いた光学系について紹介する。

まず光学系を図 3.3 に光学系を示した。光源には Supercontinuum(SC) 光を出射できる Fianium 社の Whitelaser micro を用いた。SC 光は超短レーザーパルスをもとにフォトニック結晶ファイバーによる非線形光学効果により生成される広帯域・同位相の白色レーザー光である。光源から出射した白色光はまず偏光子によって EOT 構造の矩形開口と垂直の直線偏光のみが取り出される。次にレンズペア、対物レンズを通して試料に集光される。ここでレンズペアは集光時のビーム径をより小さくするために用いた。白色光を用いているため試料上で色収差を避けるために広帯域（波長 480 nm~1800 nm）で色補正されているミットヨ社の無限補正対物レンズ M Plan Apo NIR 20× を試料前の対物レンズとして使用した。試料を透過した白色光は試料後部のレンズにより平行光に復元され、対物レンズ、光ファイバーを通して分光器に集め、光学スペクトルを取得する。分光器には Ocean optics 社の USB 2000+ を用いた。これはグレーティングと 2048 素子リニアシリコン CCD アレイを内蔵したファイバマルチチャンネル分光器で、パソコンと

USB 接続することでデータを取得できる。

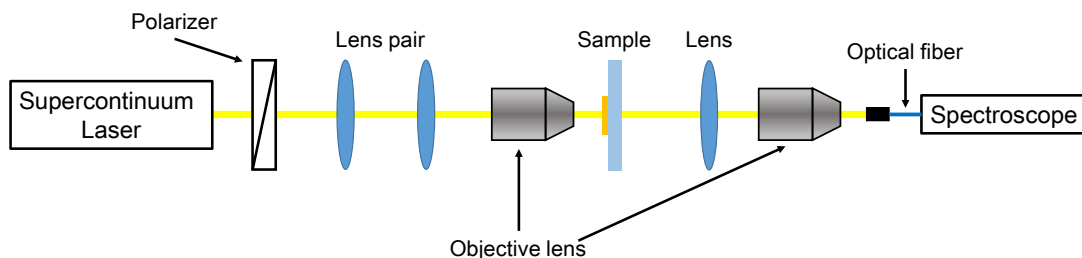


図 3.3 EOT 構造の透過スペクトル取得に用いた光学系。光源には Supercontinuum (SC) 光 (ファイバーレーザー) を使用。光源から出た白色光を対物レンズで試料表面に集光し、試料後部のレンズで平行光に復元し、光ファイバーを用いて分光器 (Spectroscope) に入射する。色収差を避けるために試料前の対物レンズには波長 480 nm~1800 nm の範囲で色補正されているミットヨ社の無限補正対物レンズ M Plan Apo NIR 20× を用いた。分光器にはパソコンと USB 接続できる Ocean Optics 社の USB2000+ を用いた。

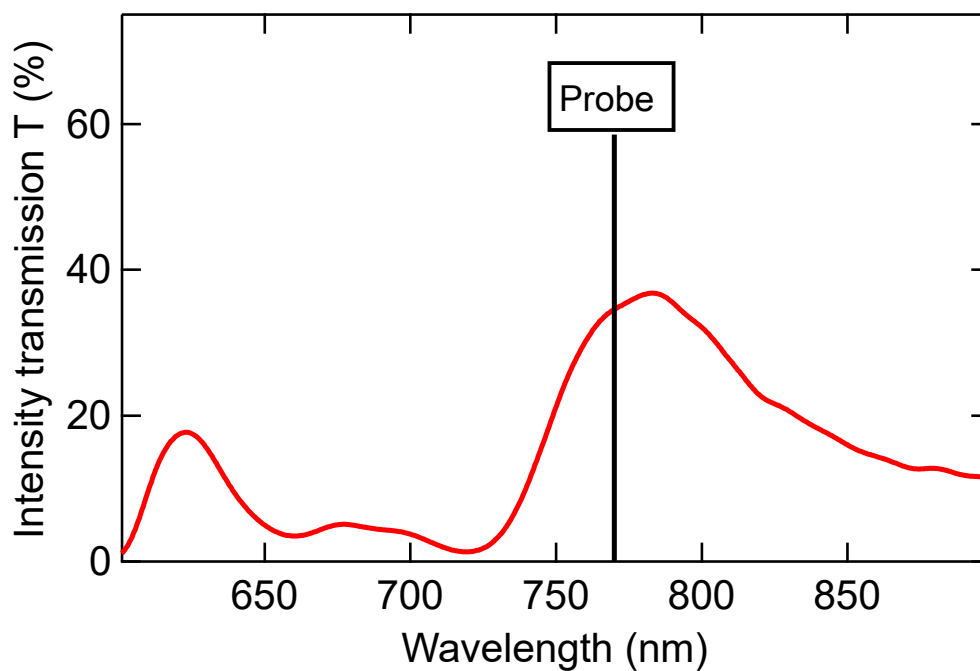


図 3.4 EOT の光透過率スペクトラム。縦軸は光強度透過率、横軸は光波長。EOT の透過ピークが波長 783 nm に現れており、その透過率は ~37 %。グラフ内の黒の実線は 4.4 節のプローブ光の波長 ( $\lambda=800$  nm) を示す。

取得された光透過率スペクトルを図 3.4 に示す。EOT の透過ピークは波長 783 nm に現れており、透過率  $T \sim 37\%$  である。図 3.4 中には後述するピコ秒音響法で用いたプローブ光の光波長 770 nm を位置を黒実線で示している。

### 3.4 ピコ秒音響法によるギガヘルツ音響変調

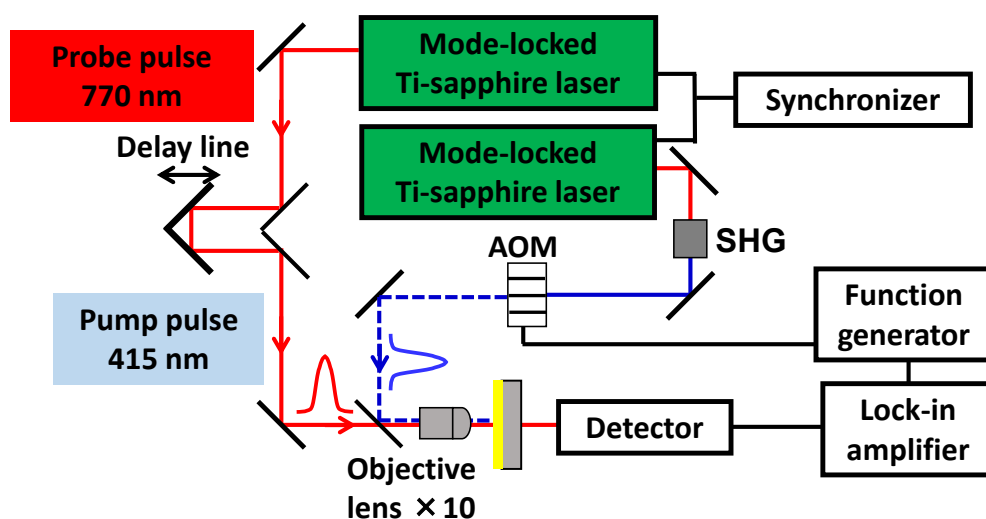


図 3.5 音響光学変調に用いた光学系。プローブ光の波長は 770 nm、ポンプ光の波長は 415 nm。SHG: Second Harmonic Generation, AOM: Acousto-Optic Modulator

本節では測定に用いた光学実験系について説明する。図 3.5 に本実験系を示す。本実験系ではポンプ光とプローブ光についてそれぞれ別の Ti:Sapphire レーザーを光源としている。それぞれのレーザーは Spectra Physics 社製の Lock-to-clock という繰り返し周波数同調機（図中では Synchronizer）を用いて、ポンプ光用のレーザーの繰り返し周波数を参照周波数として、プローブ光のレーザーの繰り返し周波数を同調させている。ポンプ光の光源には中心波長 830 nm、パルス幅 200 fs、繰り返し周波数 81.8 MHz (12.5 ns 周期) の Ti:Sapphire レーザー（図中では 2 つあるうち下のレーザー）を用いた。SHG 結晶によって、中心波長 415 nm の第二高調波を発生させ、これをポンプ光として用いる。ポンプ光は 10 倍の対物レンズにより直径  $\sim 5 \mu\text{m}$  (FWHM) に集光して試料に照射する。熱弾性的にひずみが生成され、試料に GHz 帯の音響振動が励起される。ポンプ光は試料に入射時、図 3.2 の横方向の偏光を持って垂直に入射している。プローブ光の光源には中心波長 770 nm、パルス幅 1 ps の Ti:Sapphire レーザーを用いた。前述したとおり、繰り返し周波数はポンプ光のレーザーに同調されている。そしてポンプ光と同程度の大きさに同

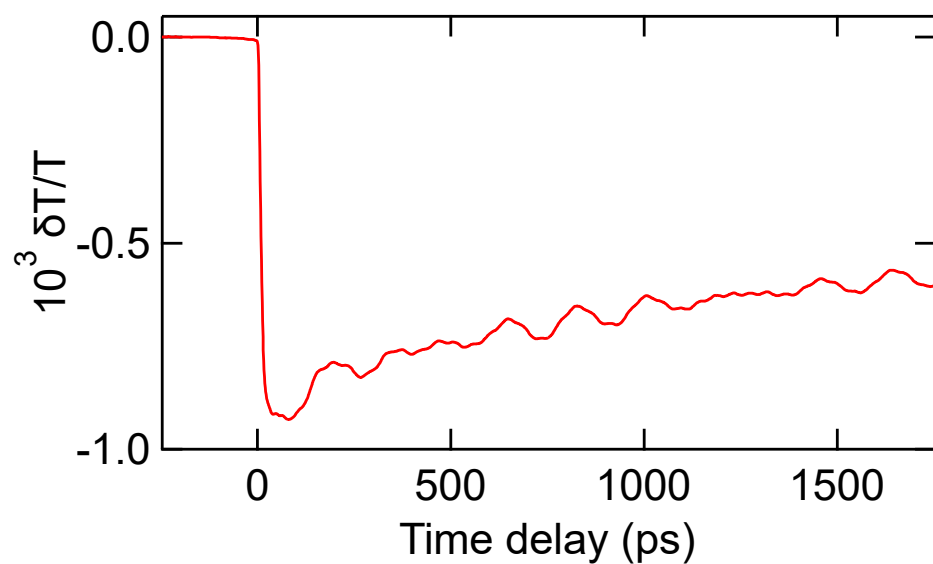


対物レンズを用いて集光されたプローブ光を試料に垂直に照射し、透過光強度を測定する。この時およそ試料上の 40 個程度の開口にプローブ光を照射している。遅延光路を動かしプローブ光が試料に照射されるタイミングを変化させることにより試料の振動をパルス幅と同程度の時間分解能を持ちながら過渡的光透過率変化として検出する。ポンプ光一発あたりのエネルギーはおよそ 40 pJ であり、光照射部分の定常的な温度上昇は  $\sim 30$  K、励起される熱ひずみが  $\sim 10^{-4}$  である。本実験で用いるフォトディテクターは 2 つのチャンネル A、B があり、チャンネル A には試料から反射したプローブ光を、チャンネル B には参照光を入射させる。2 つのパルス光の強度の差  $A - B$  を電圧信号としてロックインアンプに出力する。この差を取ることはレーザーの揺らぎによるノイズを抑える効果がある。

### 3.5 ピコ秒音響法による実験結果と解析

図 3.6 に取得された過渡的な光透過率変化を示す。横軸はポンプ光とプローブ光の相対的時間差 (=遅延時間)、縦軸は相対的な光透過率変化である。試料の透過率変化の絶対値は  $\sim 10^{-5}$  である。時系列に沿って実験結果を説明する。図 3.6 中、遅延時間 0 ps においてポンプ光が試料に到達し、キャリア励起に起因する急峻な光反射率変化が発生している。その後に観測された光反射率変化には指数関数上に変化する成分と周期的に振動する成分が含まれている。前者は励起されたキャリアのエネルギーの内、熱として拡散していく分によって生じた過渡的熱緩和による光反射率変化で、後者はキャリアのエネルギーが弾性波や弾性振動と化して光弾性効果や幾何光学的に光反射率変化を生じさせている。本研究で目的としている音響光学変調は後者に相当する。

(a)



(b)

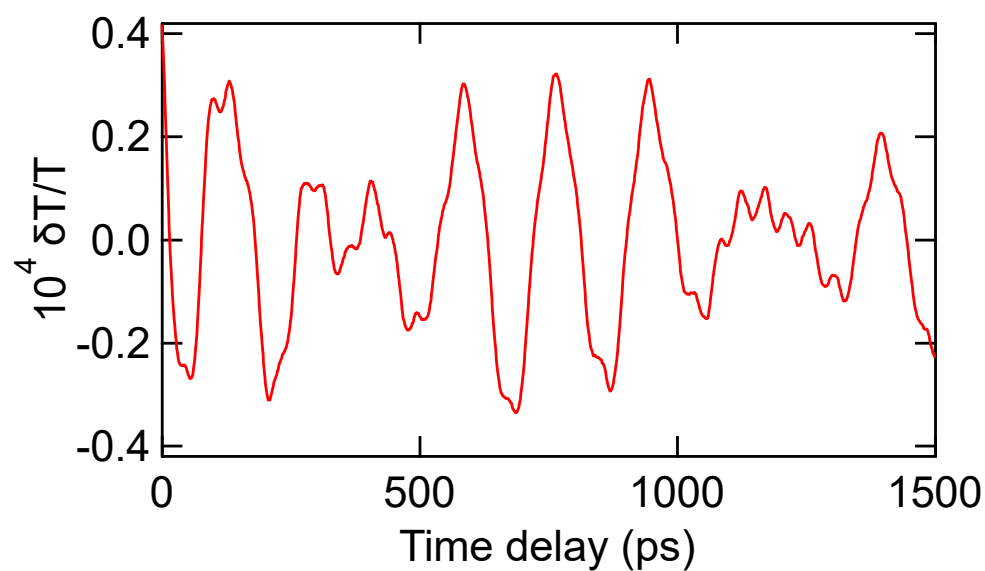


図 3.6 測定された過渡的光透過率変化。横軸は遅延時間、縦軸は校正された相対的透過率変化である。(a) キャリア励起、過渡的熱緩和現象といった背景信号を含む測定値。(b) (a) のデータから背景信号を除去した EOT の振動モードに起因する過渡的光反射率変化。

音響変調を引き起こしている振動モードの固有周波数を同定するために図 3.6(b) のデータについて時間フーリエ変換を行った。図 3.7 に得られたフーリエスペクトルを示す。フーリエスペクトルからは 5 GHz と 6.5 GHz、9.0 GHz、および 10 GHz 以上の周波数領域においていくつかの小さなピークを観測した。また 22 GHz 付近にブリルアン散乱と思われるピークが確認できる。

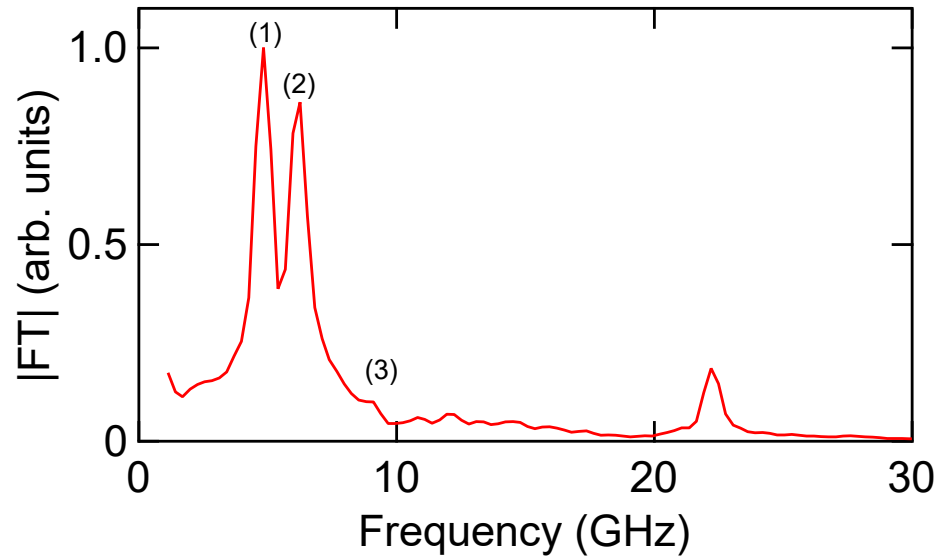


図 3.7 EOT 構造における過渡的光透過率変化をフーリエ変換したフーリエ振幅。縦軸はフーリエ振幅、横軸は周波数。

各ピークの生じる要因を同定するために、本実験における光透過率変化の音響変調の要因を挙げる。

#### ○ブリルアン散乱による光反射率変化

ブリルアン散乱は 2.2 節で説明した試料表面と試料内部の音響波、それぞれから反射される光の干渉により光反射率が周期的に変化する現象である。今回の場合では金の薄膜部分で生成された縦波超音波パルスの一部がガラス基板に透過し (音響的透過)、その影響により光透過率変化が生じる。2.2 節で紹介したように、プローブ光を試料に垂直入射したときのブリルアン散乱の周波数は、

$$f = \frac{1}{T} = \frac{2v_l n}{\lambda} \quad (2.4)$$

で表される。ここで  $v_l$  はガラス (d263t) 基板内を伝播する縦波の音響波の音速 (5710 m/s) [159]、 $n$  はガラス基板のプローブ光の波長に対する屈折率 (1.52) [159]、 $\lambda$  はプローブ光の波長である。

ブ光の光波長 (770 nm) で、 $f_{\text{Brillouin}} = 22.5 \text{ GHz}$  と見積もられる。これは実験的に観測された 22 GHz のピークに相当する。

○構造の振動モードの変形により光検出器に戻るプローブ光の光量が直接的に変化することで起こる光透過率変化

EOT 構造が振動によって変形する場合、後の数値シミュレーションによって推測される振動モードにより、開口の大きさが拡大、収縮を繰り返すため、それは直接的に透過率を変調する。

○光弾性効果による光透過率変化

本実験の場合、光検出器に到達するプローブ光は必ず開口部のガラスを通過する。そのため光弾性効果によってガラス基板開口部のひずみが光透過率を変調する。

○プラズモニック共鳴のシフトによる光透過率変化

3.1 節で紹介したように EOT の発現には金属表面の SPP モードが重要な役目を果たす。金属構造表面に存在する SPP モードは構造の振動モードによって変調される [58]。また開口のサイズや形状を変化させると共鳴ピークがシフトすることは過去の研究からも示されている。

構造の変形、光弾性効果、プラズモニック共鳴シフトによる光透過率変化はそれぞれ複合的に結びついているため単純化は不可能である。特に今回のような 3 次元構造の振動モードで起こる変形の形状やひずみの分布は複雑となる。それらを考慮してプラズモニック共鳴を解析的に説明できる理論は 2019 年現在、まだ存在していない。

実験から得られた事実をまとめる。ピコ秒音響法における測定結果からは振動モードの変形形状、ひずみの分布を明らかにすることはできないため EOT 構造の振動モードの解析するため数値シミュレーションを行う必要がある。

## 3.6 数値シミュレーションの条件

EOT 構造の振動モードの数値シミュレーションを行なった。この節では、そのシミュレーションで設定された各条件について記述する。本研究では有限要素法 (Finite Element Method, FEM) ベースの圧電解析シミュレーションソフト、PZFlex (Weidlinger Associates, Inc.) を音響振動モードの解析に用いる。一般に構造の振動を含めた物理現象の多くは偏微分方程式によって記述される。しかし任意の変形に対してこれらの偏微分方程式を古典的な解析手段で解くことはほぼ不可能である。有限要素法の基本的な概念は、解析的に解くことが困難な対象物に対して、単純な変形・性質の有限要素に分割し、その 1 つ 1 つの要素の特性を、この単純な方程式を組み合わせ、すべての方程式が成立する近似解を求めることによって、全体の挙動を予測しようとするものである [160]。

まず EOT 構造のサイズは実験と同じで開口は正方開口で一辺が 250 nm、金の厚さが 40 nm、開口の周期は間隔が 710 nm で正方格子状に配列されている。FEM シミュレーションに要する時間は計算要素の増加に従って爆発的に増加する。そのため EOT 構造の

幾何学的対称性を生かして、対称境界条件を使うことで計算モデルを EOT 構造の単位構造 1 つとした。計算に用いた単位構造のモデルを図 3.8 に示す。メッシュは  $4\text{ nm}^3$  の立方体、シミュレーション時間は  $12\text{ ns}$  で、時間ステップは  $0.52\text{ ps}$ 。このシミュレーションは時間領域で計算を行い、初期応力として  $50\text{ ps}$  の半周期のサイン波の応力を金の最上面に様に Z 軸のマイナス方向にかけた。振動モードを計算するにあたり、材料の物性値には縦波と横波の音速、および質量密度を用いた。ここでは金の縦波音速が  $3240\text{ m/s}$ 、横波音速が  $1200\text{ m/s}$ 、質量密度が  $19300\text{ kg/m}^3$  [161]。ガラス (d263t) の縦波音速が  $5710\text{ m/s}$ 、横波音速が  $3467\text{ m/s}$ 、質量密度が  $2510\text{ kg/m}^3$  [159]。金、ガラス共に等方性であるとして扱っている。

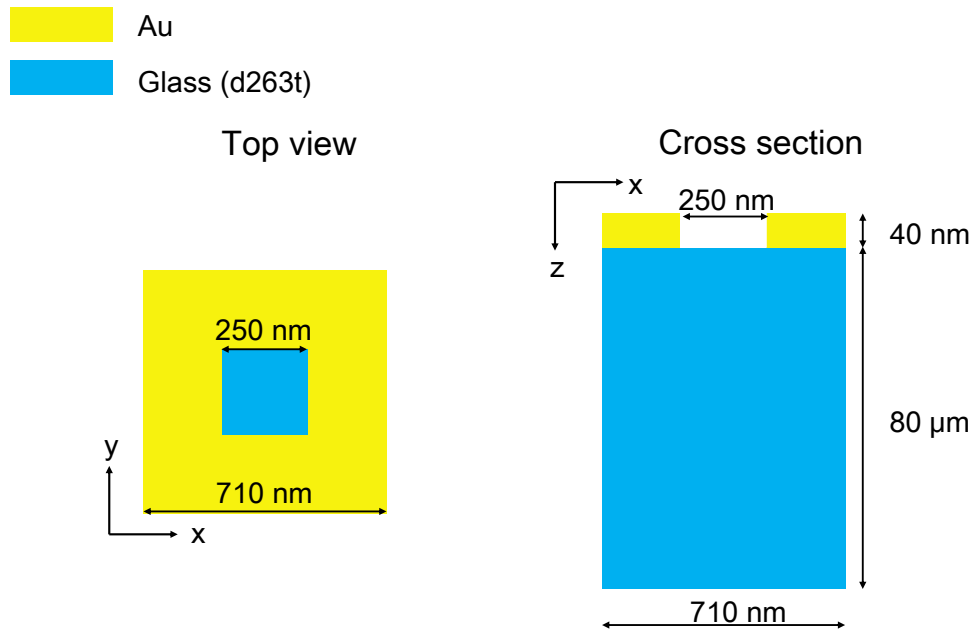


図 3.8 シミュレーション条件。左図: モデルを上から見た図。金、ガラス共に最上面は自由境界条件。右図: モデルの断面図。側面には対称境界条件を用いることで単位構造が無限に広がっている場合と同様の条件で計算している。底面には吸収境界条件を用いている。

### 3.7 実験結果と数値シミュレーションの比較

結果の考察においては各振動モードにおける開口部のガラス最表面の体積ひずみと開口面積の相対的变化とに着目する。ただし、有限要素法の計算には実験上存在する誤差が含まれていないため、モード周波数は必ずしも一致しない。

実験で得られたフーリエスペクトルとシミュレーションから得られた開口部のガラス最表面の体積ひずみ、開口面積の相対変化のフーリエスペクトルの比較を行う。図 3.9 には実験フーリエスペクトルと (a) 開口部の体積ひずみのフーリエスペクトル、(b) 開口面積の相対変化のフーリエスペクトルとの比較を示す。

まず、シミュレーションで得られた体積ひずみと開口面積の相対変化のフーリエ振幅のピーク位置は等しい。両フーリエスペクトルからは 3.1、3.8、4.6、5.5、8.3、12.3 GHz のピークが確認できる。これらをモード (1)~(6) と呼ぶ。これらは実験で確認されたピーク群と同じ領域に存在する。各振動モードと EOT 構造のプラズモニック共鳴を結びつけてよりプラズモニック共鳴を変調できる振動モードを特定し、実験で光学的に観測されたピークと同定することは困難である。

そこで各振動モードの形状を明らかにし、開口部の変形による光透過率変化とガラス基板内の光弾性効果による光透過率変化について比較、検討を行うこととする。

シミュレーションで得られた EOT 構造各部の変位  $U_x$  と  $U_z$  のフーリエ振幅から変形モードの形状を求めた。シミュレーションで求めたモード (1)~(6) の変位の分布と変形形状を図 3.10 に示す。変形形状を示すメッシュイメージの変形量は形状がわかりやすいように規格化してあるため、実験的には数十 pm 程度しか変形しない。変形アニメーションについては参考文献 [140] の Supplementary Information として Web で公開しているので参照していただきたい。図では変位が最大となる位相の形状を示している。

得られた振動モードはすべて EOT 構造の開口が開閉する振動モードであることが分かった。そこでプラズモニック共鳴を考慮せず、変形に伴う開口部の相対的面积変化 ( $|\delta A/A|$ ) と開口部の体積ひずみ ( $|\delta V/V|$ )、それぞれによる光透過率変化の比率を求め、本実験で得られた光透過率変化を支配する音響現象を解明する。

$|\delta A/A|$  と  $|\delta V/V|$  の比、 $|\delta A/A|/|\delta V/V|$  を取得した。振動モード (1)~(6) について強度比はそれぞれ、2.9、3.2、2.1、3.3、4.9、5.7 である。体積ひずみに比べて面積変化の方がおおむね 3 倍ほど大きいことが分かった。

次に、開口面積変化と体積ひずみが単位量あたり光透過率をどの程度変調するのか導出する。以下では簡単のため、 $\delta A/A \sim 0.03$ 、 $\delta V/V \sim 0.01$  としてそれぞれが与える光透過率変化を計算する。ここでは形状やひずみによるプラズモニック共鳴のシフトは考慮しない。

#### ○体積ひずみについて

開口部のガラス基板最表面の体積ひずみが光透過率を変調するのは、2.4 節で紹介したように光弾性効果による屈折率変化が原因である。ガラスのような等方的な媒質について、屈折率変化は

$$\delta n = -\frac{n^3 P_{12}}{2} \frac{\delta V}{V} \quad (3.2)$$

と書ける [33, 146]。ここで  $n$  はプローブ光波長におけるガラス基板の屈折率 ( $n = 1.52$  [159])、 $P_{12}$  は光弾性係数 (ガラスでは  $P_{12} = 0.27$  [162])。3.2 式より屈折率変化は  $\delta n \sim -4.6 \times 10^{-3}$  と見積もれる。次に垂直入射の場合のガラス基板の光透過を考える。開口サイズによる補正などを無視すると、基板の光透過率は空気-ガラス界面の光透過率とガラス-空気界面での光透過率の積で表される。しかし基板の厚み (1 mm) に比べ、体積ひずみの存在する領域は金の膜厚 (40 nm) 程度と非常に狭いためガラス-空気界面での光透過率は光弾性効果の影響を受けない。そのため光弾性効果による透過率変化は空気

-ガラス界面での光透過率の変化のみ考慮する。空気-ガラス界面での光透過率はフレネルの式より、

$$T = \frac{4n_{\text{air}}n_{\text{glass}}}{(n_{\text{air}} + n_{\text{glass}})^2} \quad (3.3)$$

ここで、 $n_{\text{air}}$  と  $n_{\text{glass}}$  は空気とガラスの屈折率の実部である。(プローブ光の光波長では空気、ガラスともに吸収がないため) 光弾性効果による屈折率変化を考慮し、 $n_{\text{glass}} \rightarrow n_{\text{glass}} + \delta n$  とすると 3.3 式は、

$$T + \delta T = \frac{4n_{\text{air}}(n_{\text{glass}} + \delta n)}{(n_{\text{air}} + (n_{\text{glass}} + \delta n))^2} \quad (3.4)$$

となる。ここで  $\delta T$  は光弾性効果による光透過率変化である。3.3 式と 3.4 から、光弾性効果による光透過率の相対的変化は  $\delta T/T \sim 6.25 \times 10^{-3}$  となる。

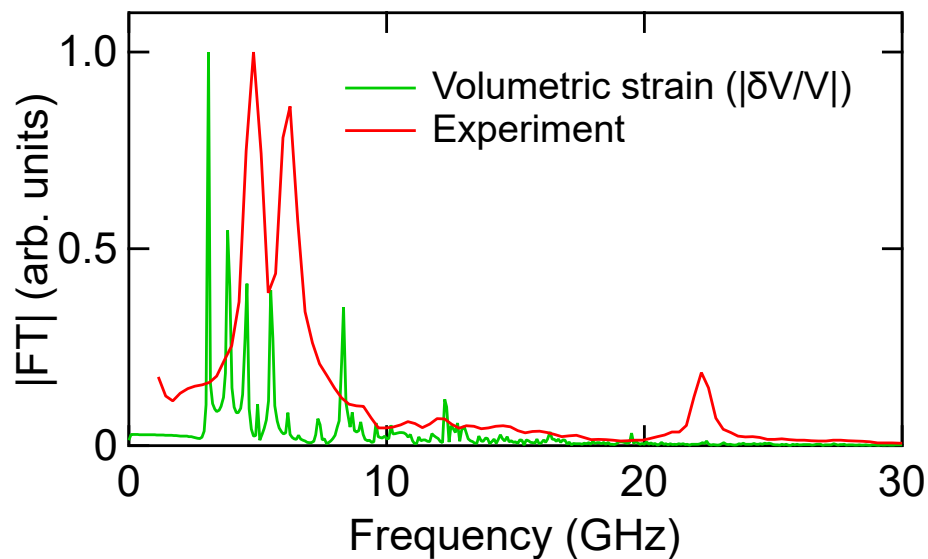
次に開口部の面積変化による光透過率変化を見積もる。プラズモニック共鳴や Bethe の透過理論を無視すれば、開口部を通過する光量は開口面積に比例することが容易に想像できる。この比例係数を見積もるために、開口の面積を正方形に保ったまま、5 % ずつ変化させた場合の光透過率を FEM ベースの汎用物理シミュレーションソフトウェア、COMSOL Multiphysics (COMSOL, Inc.) を用いて計算した。まず、プラズモニック共鳴のピーク波長であるが 5 % 程度の開口面積の変化ではシフトは確認できなかった。次にプローブ光波長における光透過率は開口面積が 105 %、100 %、95 % のときでそれぞれ、31.8 %、31.0 %、30.2 % であった。ここから相対的透過率変化を計算すると、開口部の面積変化が  $\pm 5 \%$  の場合で  $\delta T/T \sim 2.6 \times 10^{-2}$ 、開口面積変化と相対的透過率変化が線形に変化すると仮定すると、 $\delta A/A \sim 0.03$  のときは  $\delta T/T \sim 1.6 \times 10^{-2}$  と見積もれる。

したがって、数値シミュレーションから得られた開口面積変化と体積ひずみの量的関係とそれぞれに関連する透過率変化を考慮すると EOT 構造においては開口面積変化と体積ひずみによる光透過率変調への寄与は 2.5:1 で、開口面積の変化によるものが大きいことが分かった。

### 3.8 まとめ

ガラス基板上の金薄膜内に正方開口が正方格子状に周期的に配列された EOT 構造のプラズモニック共鳴に起因する光透過率を、フェムト秒パルスレーザーで励起した 5~12 GHz の音響振動による音響変調に成功した。実験的に観測された振動モードは、FEM シミュレーションで計算されたものと概ね一致しており、光弾性効果や開口面積の変化により EOT 構造の光透過率が変調されていると示した。また振動モードによる開口面積変化と生成されるひずみとの比較検討により、それぞれの光透過率変化に対する寄与は 2.5:1 程度であると見積もることができた。EOT 構造における音響振動とプラズモニック共鳴を結ぶ定量的な理論の構築には至らなかったが、2次元の EOT 構造において振動モードによるプラズモニック共鳴のアクティブコントロールを世界で初めて実証した。

(a)



(b)

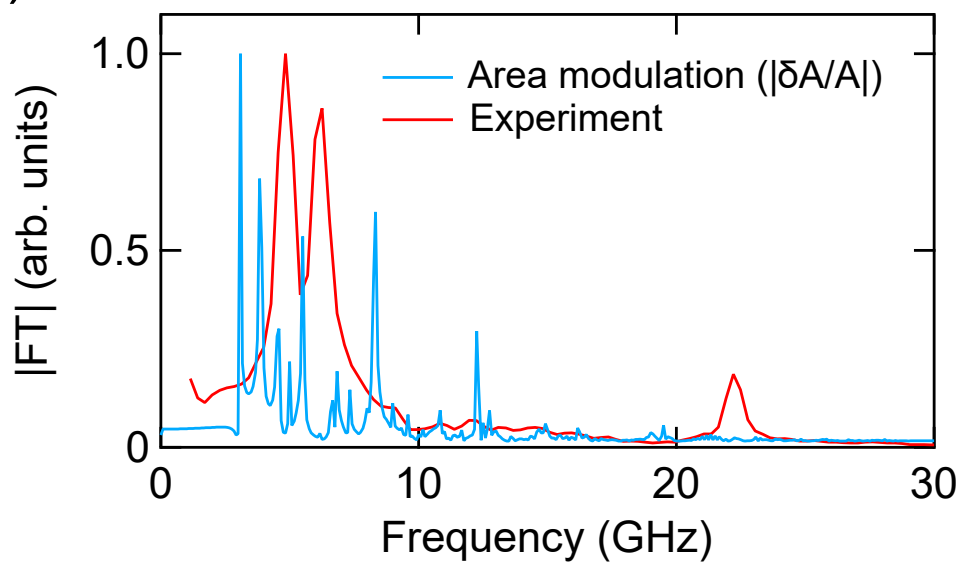


図 3.9 実験およびシミュレーションによって得られたフーリエスペクトル。実験: 赤実線、(a) 開口部のガラス最表面の体積ひずみ: 緑実線、(b) 開口面積の相対変化: 青実線。それぞれ縦軸はフーリエ振幅、横軸は周波数。各フーリエ振幅はそれぞれの最大値で規格化されている。



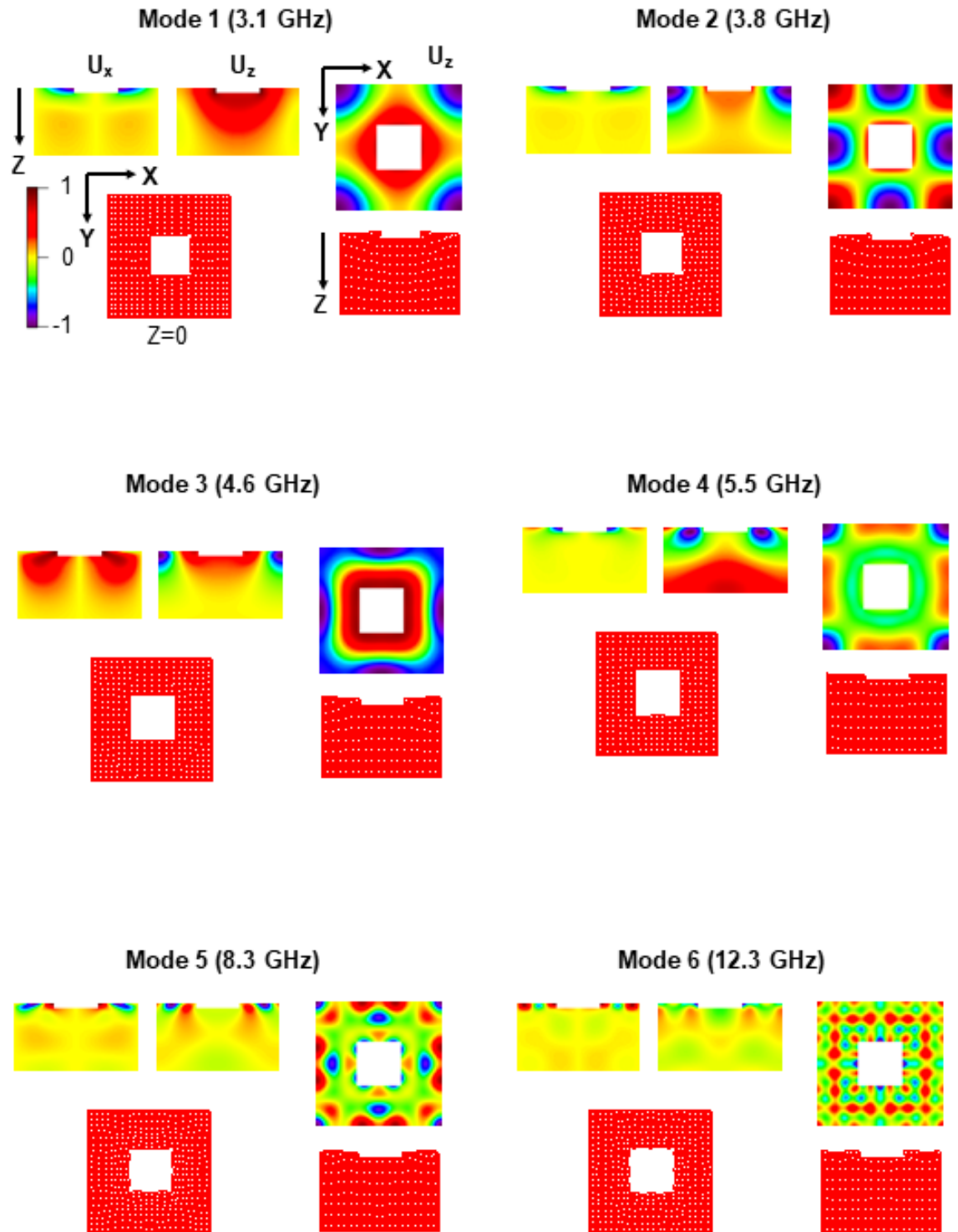


図 3.10 振動モード (1)~(6) における変位分布、および変形形状 (メッシュイメージ)。  
 X、Y は面内方向、Z は面外方向の軸である。変形のアニメーションは参考文献 [140]  
 の Supplementary Information として Web で公開している。

## 第 4 章

# 金 SRR 周期構造のギガヘルツ機械振動モードによる光学変調

本章では、Split ring resonator (SRR) をメタ原子とするメタマテリアルにおけるメタ原子の機械的固有振動モードを利用した機械的光学変調の研究について述べる。

### 4.1 スプリットリング共振器

1967 年、旧ソ連の物理学者 V. G. Veselago は誘電率と透磁率が同時に負の値をとる物質の電磁場応答について考察した論文を発表した [5]。この論文では、両者が同時に負の値をとる物質は電磁波に対して負の屈折率を持つことが理論的に示された。この後数年の間、誘電率と透磁率が同時に負となる物質の探求が行われたがそのような物質が見つかることはなかった。しかし、1990 年代後半になって英国の物理学者 J. B. Pendry によって細い銅線の配列がマイクロ波領域で負の誘電率を示すことが示された [163]。その後、Pendry は磁気応答する人工構造の研究を行い、1999 年に金属製の分割リング構造がマイクロ波領域で磁気応答を示し負の透磁率を持つことを発見した [7]。この金属製の分割リング構造が Splitring resonator(SRR、スプリットリング共振器) である。

また SRR はメタマテリアルを構成する代表的なメタ原子であり、周波数領域、理論と実験、基礎と応用を問わず広く研究されている。

### 4.2 試料

本研究では試料として図 4.2(a) に SEM 写真に示す SRR 構造を用いた。便宜上、メタ原子 (=単位素子) としてのスプリットリング共振器を SRR、基板を含む試料構造を指して SRR 構造と称す。Cr を 2 nm 蒸着した BK7 ガラス上に  $200\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  の範囲に周期 326 nm の正方格子状に金 SRR が配列された SRR 構造を用いた。本試料中の SRR は  $230\ \text{nm} \times 230\ \text{nm} \times 60\ \text{nm}$  の直方体から  $138\ \text{nm} \times 112\ \text{nm} \times 60\ \text{nm}$  の直方体をくり抜いた U の字状の形状をしている。以下では便宜上、SRR(U 字構造) の垂直腕の部

分を SRR 側腕部、水平腕の部分 SRR 底部と記す。SRR 構造の 3 次元モデルと 4 章で共通して用いる座標系を図 4.2(b) に示す。試料の寸法は Cr、金の膜厚を除き、SEM 写真から見積もった。この試料は豪州 Swinburne University of Technology の Saulius Juodkazis 教授と Gediminas Seniutinas 氏に提供して頂いた。

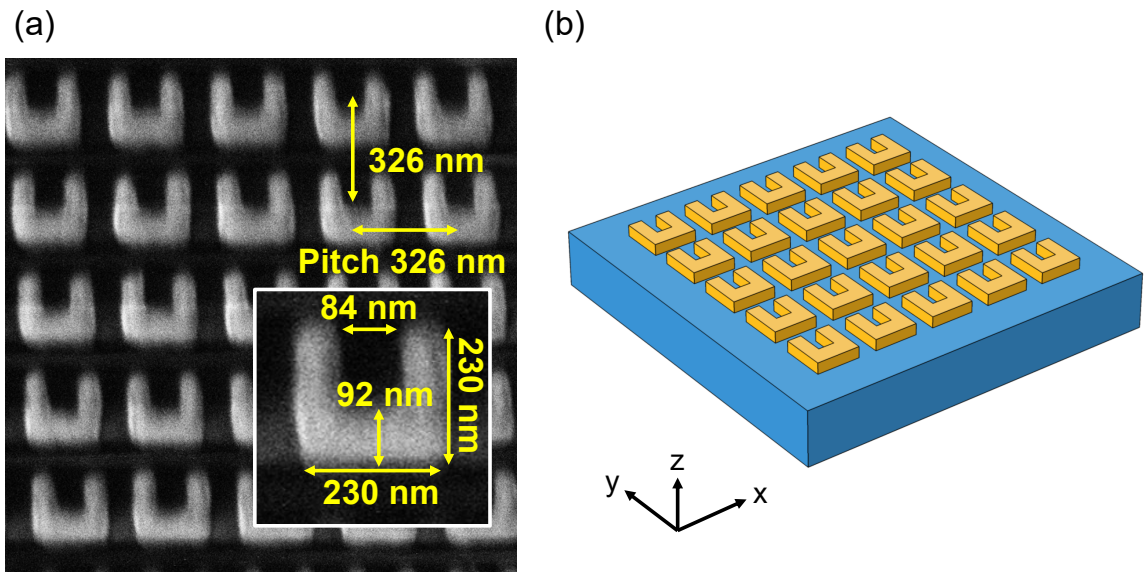


図 4.1 (a)SRR 試料の SEM 画像。基板は BK7 ガラス、SRR の厚みは 60 nm。(b) 試料の 3 次元モデル。実際には  $200\ \mu\text{m}$  四方に配列しているが、便宜上図中には SRR を 25 個のみ描写している。図中の座標系は 4 章において共通して用いる。

### 4.3 SRR 構造の光学スペクトラム

4.1 節でも述べたように SRR の光学スペクトルは入射光の偏光の向きに依存する、より具体的には入射光の直線偏光の向きが X 軸方向 (X 偏光) の場合と Y 軸方向 (Y 偏光) の場合でそれぞれ別のプラズモニック共鳴に基づく光学スペクトルを示す。本節では実験的に取得した透過率スペクトラムとこれに用いた光学系、COMSOL で計算した反射率、吸収を含む光学スペクトラムについて紹介する。

図 4.2 に光学系を示した。光源には Supercontinuum(SC) 光を出射できる Fianium 社の Whitelaser micro を用いた。SC 光は超短レーザーパルスを用いたフォトニック結晶ファイバーによる非線形光学効果により生成される広帯域・同位相の白色レーザー光である。光源から出射した白色光はまず偏光子によって X 軸方向 (Y 軸方向) の直線偏光のみが取り出される。次にレンズペア、対物レンズを通して試料に集光される。ここでレンズペアは集光時のビーム径をより小さくするために用いた。白色光を用いているため試料上で色収差を避けるために広帯域 (波長 480 nm~1800 nm) で色補正されているミットヨ社の

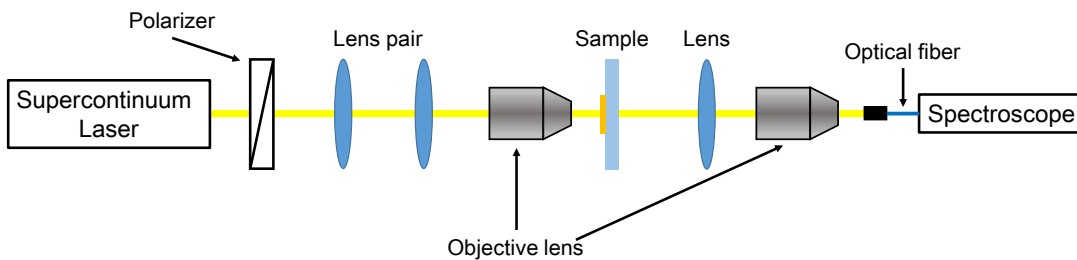


図 4.2 SRR 構造の透過スペクトル取得に用いた光学系。光源には Supercontinuum (SC) 光 (ファイバーレーザー) を使用。光源から出た白色光を対物レンズで試料表面に集光し、試料後部のレンズで平行光に復元し、光ファイバーを用いて分光器 (Spectroscope) に入射する。色収差を避けるために試料前の対物レンズには波長 480 nm~1800 nm の範囲で色補正されているミツトヨ社の無限補正対物レンズ M Plan Apo NIR 20× を用いた。分光器にはパソコンと USB 接続できる Ocean Optics 社の USB2000+ を用いた。

無限補正対物レンズ M Plan Apo NIR 20× を試料前の対物レンズとして使用した。試料を透過した白色光は試料後部のレンズにより平行光に復元され、対物レンズ、光ファイバーを通して分光器に集め、光学スペクトルを取得する。分光器には Ocean optics 社の USB 2000+ を用いた。これはグレーティングと 2048 素子リニアシリコン CCD アレイを内蔵したファイバマルチチャンネル分光器で、パソコンと USB 接続することでデータを取得できる。各直線偏光について測定された透過率スペクトル、および COMSOL Multiphysics で計算した反射率、透過率、吸収を図 4.3 に示す。透過率は入射光が X 偏光のときは波長 548 nm と 780 nm (計測値) に、Y 偏光のときは波長 808 nm (計測値) にディップを持つことが分かる。本研究では、X 偏光の波長 780 nm、Y 偏光の波長 808 nm に存在するプラズモン共鳴周辺における SRR 構造の光反射率を音響変調の対象とする。理由は 2 つある。1 つは超短光パルス光源として用いる Ti:Sapphire レーザーの発振波長が近赤外域 (～800 nm) にあること。もう 1 つはこの 2 つの共鳴が本質的に同じものであるからだ。これらは共に入射光の電場と平行な SRR の腕部 (X 偏光なら SRR 底部、Y 偏光なら SRR 側腕部) の Mie プラズモン共鳴に起因する共鳴モードである [164,165]。また、直線偏光の向き (黒矢印) と SRR の幾何学的関係を図 4.3(a)(b) 中の内挿図に示す。4.4 節のピコ秒音響法におけるプローブ光の波長 ( $\lambda=800$  nm) と光学スペクトルの比較のため、プローブ光の波長を黒実線で表示している。

#### 4.4 ピコ秒音響法によるギガヘルツ音響光学変調

本節では測定に用いた光学実験系について説明する。図 4.4 に本実験系を示す。本実験では SRR の振動モードをポンプ光 (波長 400 nm) によって励起し、励起された振動モードによる SRR の光反射率の過渡的变化 (=音響光学変調) をプローブ光 (波長 800 nm) に

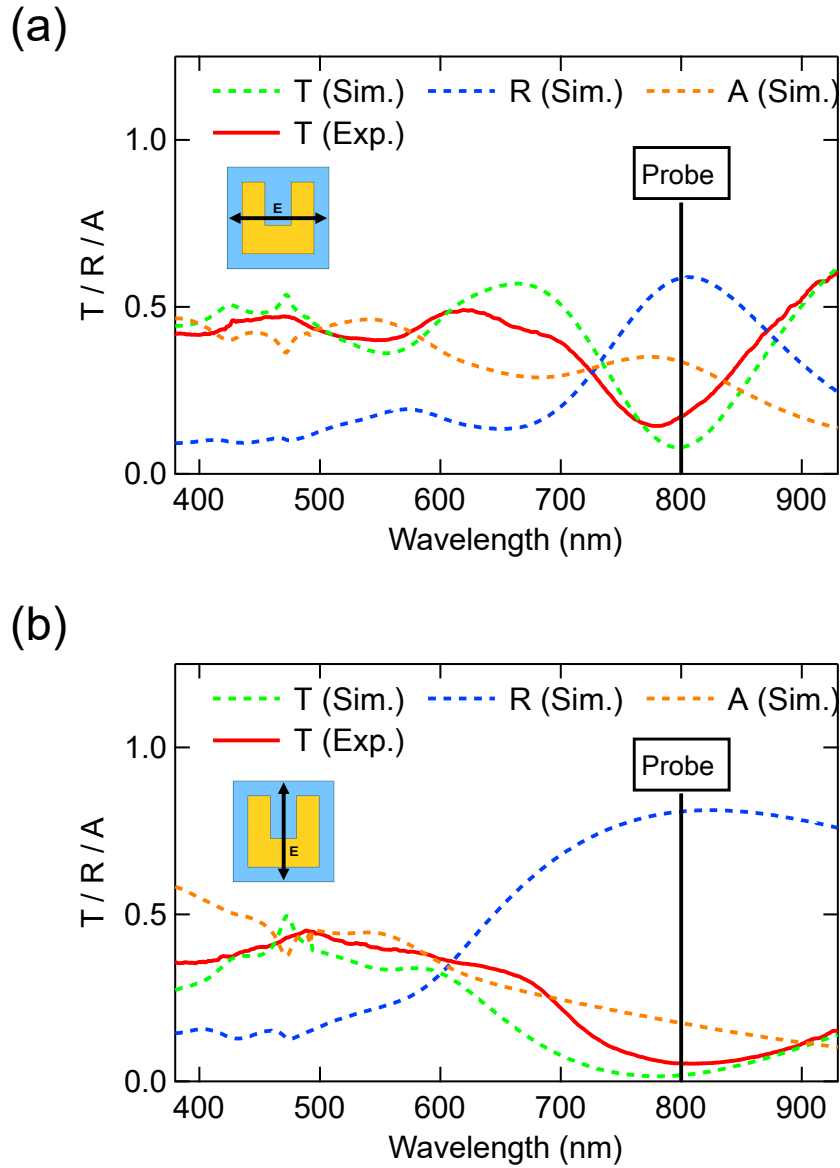


図 4.3 (a)X 軸方向、(b)Y 軸方向の直線偏光を垂直入射した場合の SRR 構造の光学スペクトル (強度スペクトル)。計測値：透過率 (赤実線)、計算値：透過率 (緑破線)、反射率 (青破線)、吸収 (橙破線)。グラフ中の内挿図はそれぞれの直線偏光の向き (黒矢印) と SRR との関係を示す。グラフ内の黒の実線は 4.4 節のプロブ光の波長 ( $\lambda=800$  nm) を示す。

よって観測する。光源として、中心波長 800 nm、パルス幅 200 fs、繰り返し周波数 81.8 MHz(12.5 ns 周期) のモードロックチタン・サファイアレーザーを用いる。また SHG 結晶から発生する波長が半分 (400 nm) の第二次高調波をポンプ光として用いる。プローブ光に波長 800 nm の光パルスを用いるのは図 4.3(a) に示す波長 780 nm のプラズモニック共鳴を音響光学変調の対象としたためである。ピークを中心波長からプローブ光の波長

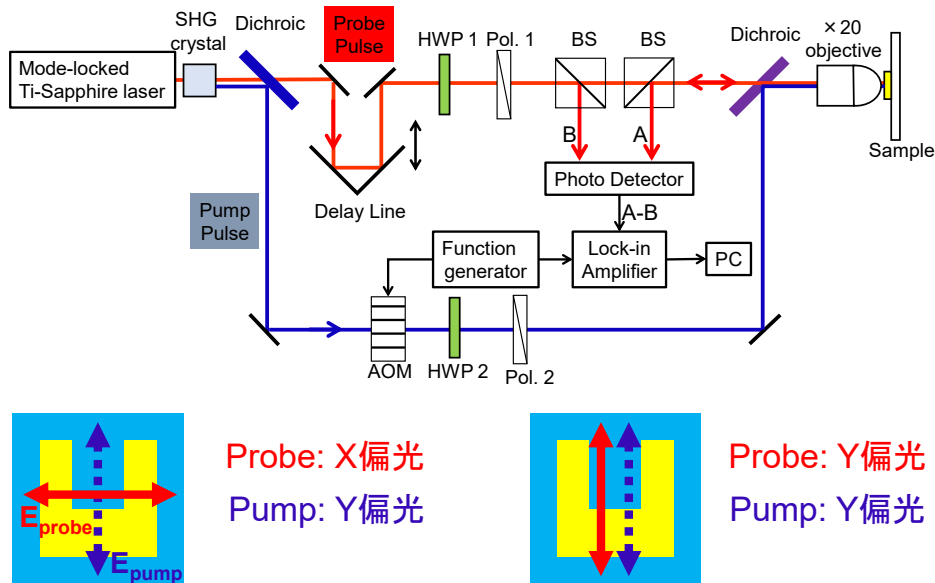


図 4.4 音響光学変調に用いた光学系。プローブ光の波長は 800 nm、ポンプ光の波長は 400 nm。図中下部に測定で用いたポンプ光とプローブ光の直線偏光を図示している。SHG: Second Harmonic Generation, Dichroic: Dichroic mirror, HWP: Half-Wave Plate, Pol.:Polarizer, BS: Non-polarized Beam Splitter, objective: Objective lens, AOM: Acousto-Optic Modulator, PC: Personal Computer

をずらしているのは、本手法により得られる反射率の相対的変化量が一般に  $\sim 10^{-6}$  程度と微小なため、スペクトルの極大値ではなくピーク付近の傾きの大きいところを使うことで反射率の変化量を増大させることを目的としている。

ポンプ光は直線偏光で、20 倍の対物レンズにより試料表面において  $6 \mu\text{m}$  程度 (FWHM) に集光され、試料に垂直に入射される。ポンプ光のエネルギーは主に SRR を構成する金の電子により吸収され、電子-格子相互作用を経て SRR 構造中にひずみが熱弾性的に生成される。このひずみにより GHz 帯の音響振動や音響波が励起される。本実験においてポンプ光の光強度、直線偏光の方向は一定にしているため、SRR 構造中に励起される物理現象の強度や周期、寿命といったパラメータはプローブ光に関わらず共通している。ポンプ光パルス一発あたりのエネルギーは約 50 pJ で温度変化にして  $\sim 20 \text{ K}$ 、SRR 表面で  $\sim 20 \text{ pm}$  の変異を引き起こす。またこのポンプ光は AOM (音響光学変調器) によって 1.0 MHz で強度変調されている。ここでポンプ光を変調している理由は微小な相対反射率変化を測定するためにロックイン検出を行う必要があるからである。

プローブ光は遅延光路を通り、ポンプ光と同じ対物レンズを通して試料上に  $6 \mu\text{m}$  程度 (FWHM) に集光する。プローブ光はポンプ光が照射されているのと同じ場所に垂直に入射し、その反射光強度を測定する。ポンプ光、プローブ光の照射領域内には約 300 個の SRR が存在し、ポンプ光によって音響現象が励起される。この音響現象により反射光強

度が変調される。数値制御された遅延光路を動かし、プローブ光パルスが試料に照射されるタイミングを走査することで反射光強度の時間変化を測定する。本手法における時間分解能はプローブ光パルスの時間幅と同程度である。4.1 節、4.3 節で述べたように SRR の光学特性にはプラズモニック共鳴に起因する偏光依存性がある。そのため、それぞれ X 偏光、Y 偏光の直線偏光を持つプローブ光で同様の測定を行った。本実験で用いるフォトディテクターは 2 つのチャンネル A、B があり、チャンネル A には試料から反射したプローブ光を、チャンネル B には参照光を入射させる。2 つのパルス光の強度の差  $A - B$  を電圧信号としてロックインアンプに出力する。これはレーザーの揺らぎによるノイズを抑える効果がある。

## 4.5 ピコ秒音響法による実験結果と原理

図 4.5 にはプローブ光が X 偏光のとき、図 4.6 にはプローブ光が Y 偏光のときに取得された過渡的な光反射率変化を示す。図 4.5、図 4.6 の 4 つのグラフに共通して、横軸はポンプ光とプローブ光の相対的時間差 (= 遅延時間)、縦軸は相対的な光反射率変化である。

時系列に沿って実験結果を説明する。図 4.5(a)、図 4.6(a) 中、遅延時間 0 ps においてポンプ光が試料に到達し、キャリア励起に起因する急峻な光反射率変化が発生している。その後に観測された光反射率変化には指数関数上に変化する成分と周期的に振動する成分が含まれている。前者は励起されたキャリアのエネルギーの内、熱として拡散していく分によって生じた過渡的熱緩和による光反射率変化で、後者はキャリアのエネルギーが弾性波や弾性振動と化して光弾性効果や幾何光学的に光反射率変化を生じさせている。本研究で目的としている音響光学変調は後者に相当する。図 4.5(b)、図 4.6(b) にはキャリア励起、過渡的熱緩和による背景信号を除去した音響光学変調による光反射率変化を示している。本研究における音響光学変調の大きさはプローブ光が X 偏光のときは  $\sim 10^{-4}$ 、Y 偏光のときは  $\sim 10^{-5}$  と見積もれる。

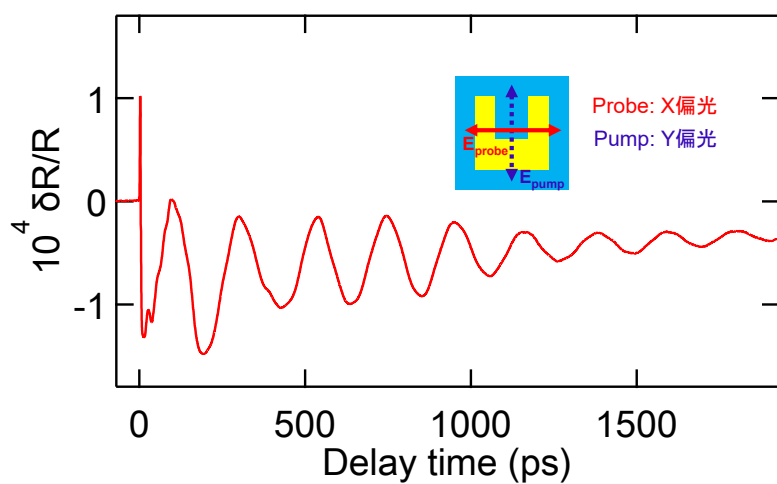
次に、音響光学変調を引き起こしている音響現象を解明するために図 4.5(b)、図 4.6(b) に示した背景信号を除去した光反射率の過渡的变化を時間フーリエ変換したときのフーリエ振幅を図 4.7 に示す (X 偏光: 赤実線、Y 偏光: 青実線)。両フーリエ振幅は X 偏光の場合のピーク振幅で規格化されている。プローブ光が X 偏光、Y 偏光どちらのときでも 4.8 GHz にピークが見られたほか、X 偏光では 3.2、6.5、9.5、13.5、20.5 GHz にピークが観測できた。この内、20.5 GHz のピークはブリルアン散乱に起因するピークである。Y 偏光で後者の 5 つのピークが観測されなかったデータ処理上の理由は反射率変化の振幅が小さいためである。

図 4.7 に示したプローブ光の偏光ごとの光反射率変化のフーリエスペクトラムであるが、同種の起源を持つプラズモニック共鳴 [164, 165] 由来の光反射率を、同一の音響現象をもって変調したにも関わらず、得られた反射率変調のピーク振幅は 12.8 倍、X 偏光の場合のほうが大きい。

この差異を考察するために音響変調における、光反射率変化が起こる原因、およびそれ



(a)



(b)

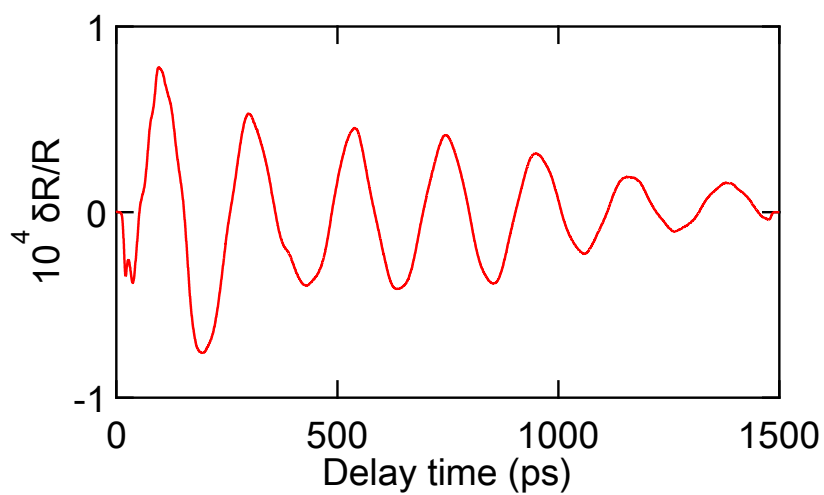
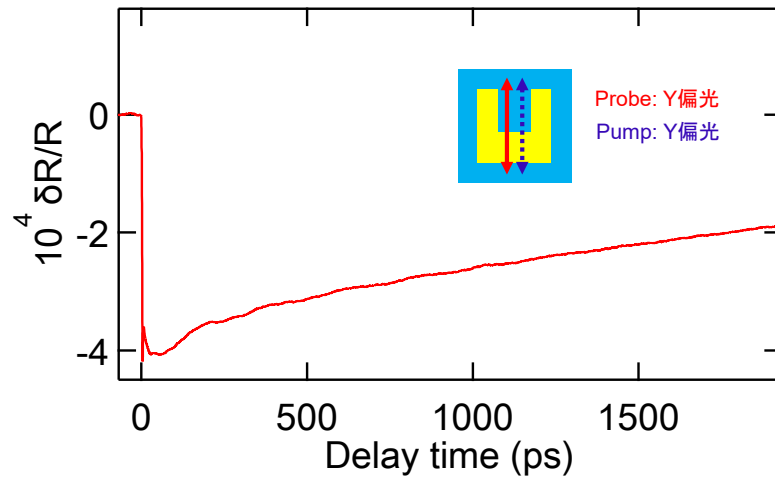


図 4.5 X 偏光を持つプローブ光を用いたとき、測定された過渡的光反射率変化。横軸は遅延時間、縦軸は校正された相対的反射率変化である。(a) キャリア励起、過渡的熱緩和現象といった背景信号を含む測定値、内挿図はポンプ光、プローブ光の偏光の向きと SRR の幾何的關係を示す。(b) (a) のデータから背景信号を除去した SRR の振動モードに起因する過渡的光反射率変化。



(a)



(b)

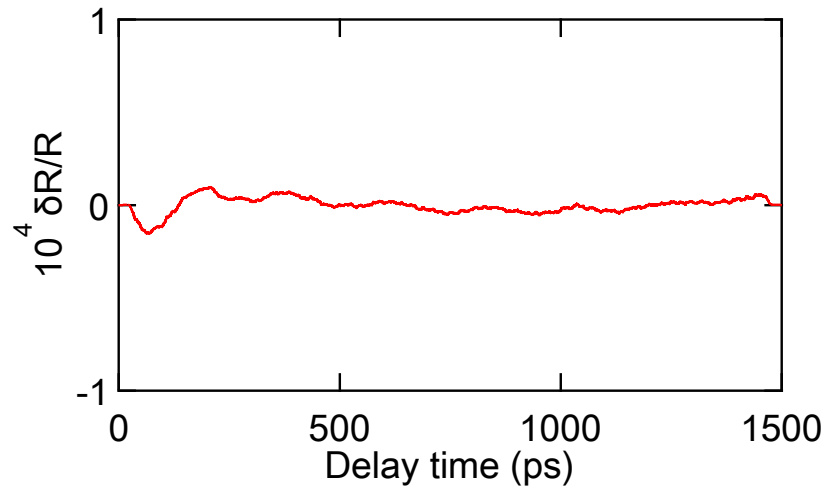


図 4.6 Y 偏光を持つプローブ光を用いたとき、測定された過渡的光反射率変化。横軸は遅延時間、縦軸は校正された相対的反射率変化である。(a) キャリア励起、過渡的熱緩和現象といった背景信号を含む測定値、内挿図はポンプ光、プローブ光の偏光の向きと SRR の幾何的關係を示す。(b) (a) のデータから背景信号を除去した SRR の振動モードに起因する過渡的光反射率変化。

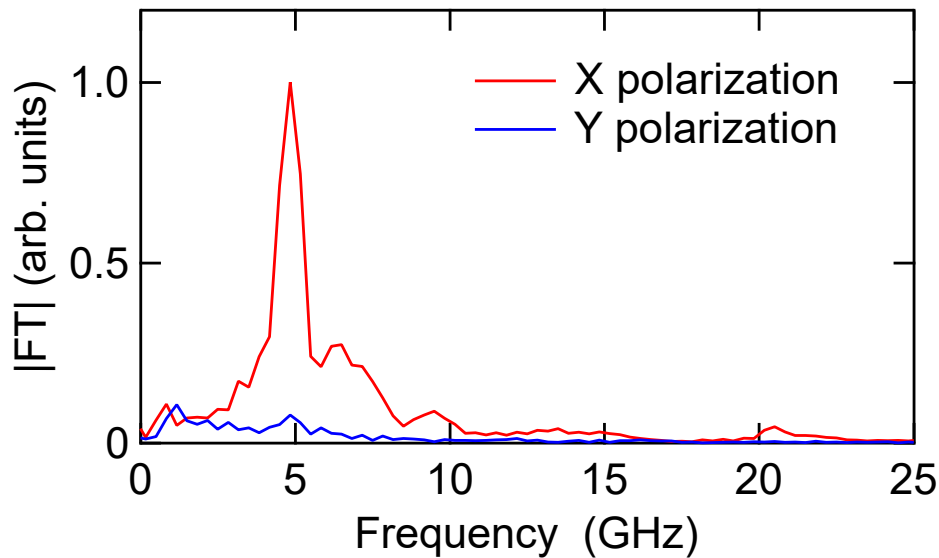


図 4.7 SRR 構造における過渡的光透過率変化をフーリエ変換したフーリエ振幅。縦軸はフーリエ振幅、横軸は周波数。プローブ光が X 偏光の場合のフーリエ振幅を赤実線、Y 偏光のものを青実線で示す。

それぞれの要因におけるプローブ光の偏光への依存性について記述する。

○構造の振動モードの変形により光検出器に戻るプローブ光の光量が直接的に変化することで起こる光反射率変化

2.3 節で書いたように SRR 構造が変形することで試料に対するプローブ光の入射角が振動に合わせて過渡的に変化する。そのため SRR 構造から反射して対物レンズを通過する光量が振動モードに合わせて増減し、直接的に光反射率を変調する。この変形における反射率変化の考え方は試料に照射されるプローブ光の内、ガラス (基板) と金 (SRR) とにどれだけ照射されるかというものであり、プローブ光の偏光による影響が出るとは考えづらい。

○ブリルアン散乱による光反射率変化

ブリルアン散乱は 2.2 節で説明した試料表面と試料内部の音響波、それぞれから反射される光の干渉により光反射率が周期的に変化する現象である。今回の場合では SRR 構造と空気との界面から反射されたプローブ光と、金 SRR 中で発生しガラス基板内部へ透過、伝播する縦波の音響波から反射されたプローブ光とが干渉し、光反射率変化を生じさせている。2.2 節で紹介したように、プローブ光を試料に垂直入射したときのブリルアン散乱

の周波数は、

$$f = \frac{1}{T} = \frac{2v_l n}{\lambda} \quad (2.4)$$

で表される。ここで  $v_l$  はガラス (BK7) 基板内を伝播する縦波の音響波の音速 (6050 m/s) [159]、 $n$  はガラス基板のプローブ光の波長に対する屈折率 (1.51) [159]、 $\lambda$  はプローブ光の光波長 (820 nm) で、 $f_{\text{Brillouin}} = 22.3$  GHz と見積もられる。これは実験的に観測された 20.5 GHz のピークに相当する。さてブリルアン散乱はガラス基板中を伝播する音響波による現象である。まずガラスは等方性物質であるため、基板由来の偏光依存性はない。音響波によって光が反射される理由は光弾性効果による屈折率変化である。入射光の各電場成分についての光弾性効果に寄与するのは入射光の偏光と直交する方向のひずみなので SRR から伝搬してくる音響波由来のひずみの XY 面内方向成分、 $\eta_x$  と  $\eta_y$  に強度差があればブリルアン散乱による反射率変化はプローブ光の偏光への依存性を持つ。ただし、音響変調におけるブリルアン散乱による反射率変化は独立したものであるので、20.5 GHz で変動する反射率変化以外においては寄与を持たず、したがって偏光への依存性もない。

#### ○光弾性効果による光反射率変化

ブリルアン散乱以外の光弾性効果による光反射率変化も存在する。SRR 表面 (光侵入長程度) には振動モードの変形によるひずみが生じる。また本研究で用いた試料は 2 次元の周期構造であるので、ある種のフォノンニック結晶としても動作する。そのためポンプ光が照射しているガラス基板上にはひずみの局在モードが生じる。これらのひずみによる光弾性効果により試料表面の屈折率変化、ひいては反射率変化が引き起こされる。ただし、SRR の材質である金では光弾性効果による屈折率変化自体は十分に大きい [66, 166]、ピコ秒音響法においては反射率変化は実験的に観測されない [146, 167]。そのため SRR 中のひずみによる光弾性効果は光反射率を直接的には変調しない、したがって偏光依存性もない。ガラス基板中の光弾性効果については、先に挙げたように基板中に存在するひずみの面内方向の成分、 $\eta_{xx}$  と  $\eta_{yy}$  に強度差があれば光弾性効果による光反射率変化の振幅もまたプローブ光の偏光方向に対して依存性を持つ。ここで光弾性効果による X 偏光、Y 偏光それぞれに対する誘電率の変化量は次のように書き表される。

$$\delta\epsilon_{xx} = P_{11}\eta_{xx} + P_{12}\eta_{yy} + P_{12}\eta_{zz} \quad (4.1)$$

$$\delta\epsilon_{yy} = P_{12}\eta_{xx} + P_{11}\eta_{yy} + P_{12}\eta_{zz} \quad (4.2)$$

ここで  $\eta_{ij}$  はガラス基板中のひずみ、 $P_{ij}$  は光弾性定数 (ガラスでは  $P_{12}/P_{11} \sim 2$  [162]) である。

#### ○プラズモニック共鳴のシフトによる光反射率変化

2.5 節で挙げた形状の変形や応力・ひずみによって引き起こされるプラズモニック共鳴のシフト量やシフト方向は振動モードに合わせて変化する。SRR のプラズモニック共鳴波長は形状や SRR 構造を構成する材料 (本研究では金 (SRR)、ガラス (基板)、空気 (雰囲気)) の屈折率、光の入射角によりシフトすることが過去の研究から判明してい

る [80, 87, 122, 132, 164, 168–174]。つまり振動モードによる変形やひずみ、SRR 構造内における光弾性効果由来の屈折率変化によってプラズモニック共鳴がシフトする。共鳴波長がシフトすることで、図 2.3 に示すようにプローブ光の光波長に対する SRR 構造の光反射率に変調される。SRR 構造のプラズモニック共鳴は図 4.3 に示したように明確な入射光の偏光に対する依存性を持つ。よって共鳴シフトによる光反射率変化もまたプローブ光の偏光への依存性を持つ。

変形やひずみによってプラズモニック共鳴をシフトさせ、プラズモニック構造の光反射率 (透過率) を変調した例は、MEMS やバイメタル、電磁気力など方式を問わず大量に存在する [12, 22, 103–135]。また本研究 [175] も含め、プラズモニック共鳴の利用の有無にかかわらず、ピコ秒音響法によって励起される音響振動やひずみによってプラズモニック構造や同じスケールの微細金属構造の光反射率 (透過率) を変調した研究も多数存在する [53, 56–58, 61–64, 66–68, 74, 140, 175–177]。2 章、3 章で紹介したように、音響振動によるプラズモニック共鳴波長のシフト量はごくわずかなため、測定される光反射率変化はプローブ光波長における試料構造の反射率の傾きに比例する。本研究で用いた SRR 構造において図 4.3 に示したシミュレーションの光学スペクトルから反射率スペクトルと透過率スペクトルの傾きの絶対値はほぼ同じであることが読み取れる。そこで光反射率スペクトルの傾きの代わりに、実験で観測された光透過率スペクトルのプローブ光の波長 800 nm での傾き、

$$\frac{dT_{\text{spectrum}}}{d\lambda} = \begin{cases} 1.7 \times 10^{-3} & X \text{ 偏光} \\ -1.3 \times 10^{-4} & Y \text{ 偏光} \end{cases} \quad (4.3)$$

から SRR 構造に同等の変形、ひずみが生じた場合で X 偏光のプローブ光では Y 偏光に比べて約 13 倍強い光反射率変化が得られる。この値は図 4.7 に示す、ピコ秒音響法から得られた X 偏光と Y 偏光でのピーク強度比 12.8 とよく一致している。

実験から得られた事実をまとめる。ピコ秒音響法によって SRR 構造の光反射率の音響変調を行った結果、過渡的光反射率変化のフーリエ振幅に 6 つのピーク (3.2、4.8、6.5、9.5、13.5、20.5 GHz) が確認できた。この内、20.5 GHz のピークはブリルアン散乱に由来するものと思われるが後述する振動シミュレーションで 21.3 GHz のピークが得られたため、ブリルアン散乱と振動モードの混合の可能性がある。残り 5 つは SRR 構造の振動モードによるものである。光反射率変化を引き起こす振動モードについて理解を深めるために 3 章と同様に FEM による振動モードの解析を行う。

## 4.6 数値シミュレーションの条件

SRR 構造の振動モードを理解するために FEM ベースの数値シミュレーションを行う。本章では 3 章とは異なり、汎用物理シミュレーションソフトの COMSOL Multiphysics (COMSOL, Inc.) を用いた。この節ではシミュレーションに課された各条件について紹介する。メッシュは一辺 ~8 nm の四面体メッシュ、計算の時間幅は 1 ps、計 12 ns の時間領域シミュレーションを行った。実験で観測された振動モードは約 300 個の SRR を集

团的に励起した場合のものである。しかし、300 個もの単位構造について十分なメッシュ数を保った状態で数値シミュレーションを行うことは現実的ではない。そこで周期境界条件を用いて SRR 構造が無限に広がっているという条件のもと数値計算を行った。単位構造は  $326\text{ nm} \times 326\text{ nm} \times 755\text{ nm}$  の BK7 ガラス基板上と Au の SRR(寸法は 4.2 節のものと同様) から構成される。単位構造の模式図を図 4.8 に示す。

ガラス基板の側面に周期境界条件 (Periodic Condition)、底面に吸収境界条件 (Low-Reflecting Boundary) を設定した。他の開放面はすべて自由境界である。括弧内は COMSOL における各境界条件の定義名である。SRR 構造の振動モードの励起には実験における熱弾性的な励起を再現するために、時刻 0 において SRR に等方的な初期応力を与えた。振動モードの計算には縦波と横波の音速、および質量密度を用いた。Au と BK7 ガラスのそれぞれの文献値、 $3240\text{ m/s}$ 、 $1200\text{ m/s}$ 、 $19300\text{ kg/m}^3$  [161]、および  $6050\text{ m/s}$ 、 $3680\text{ m/s}$ 、 $2510\text{ kg/m}^3$  [159] を使用した。

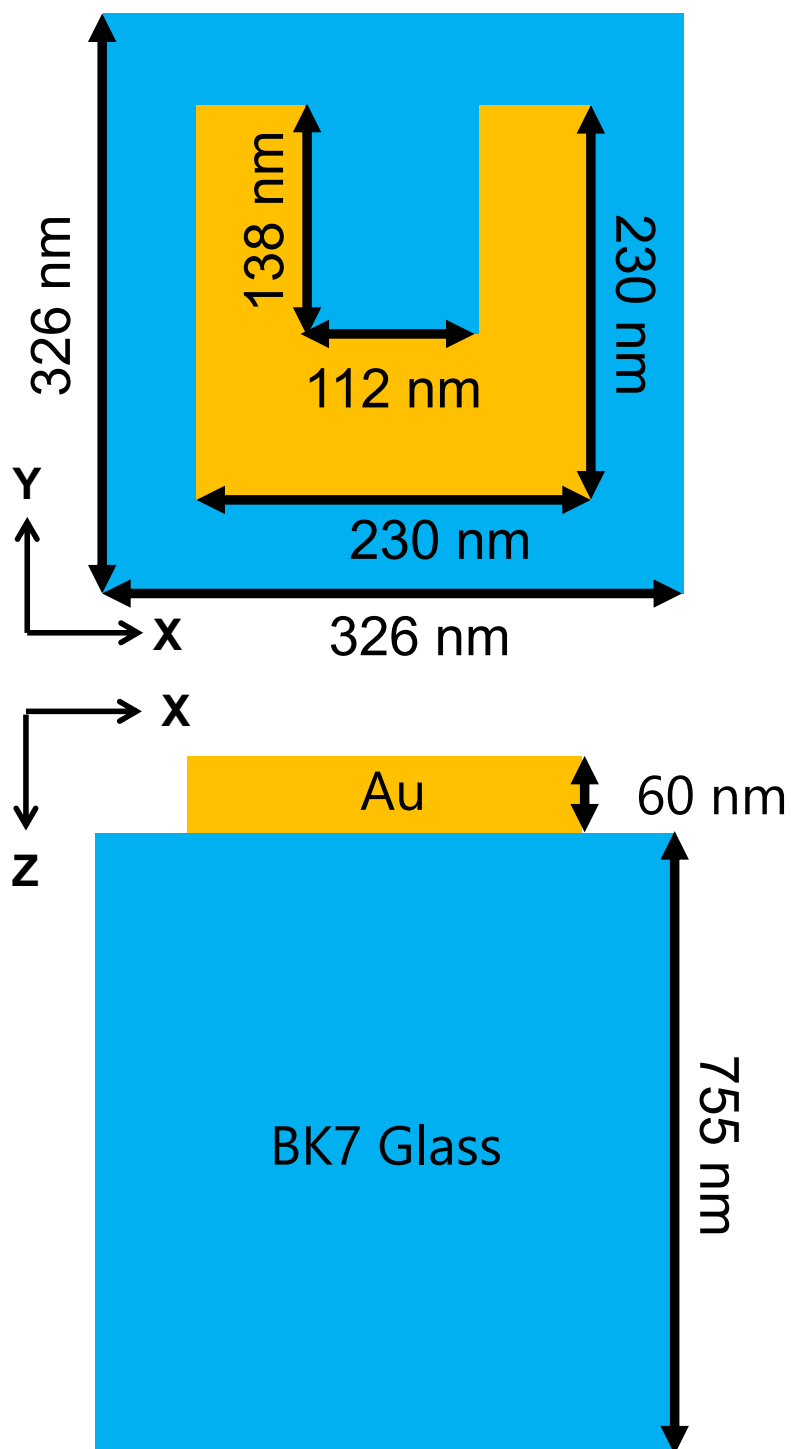


図 4.8 数値シミュレーションに用いた SRR 構造の単位構造の模式図。

## 4.7 実験結果と数値シミュレーションの比較

結果の考察においては SRR の変位とガラス基板中のひずみに注目する。実験で得られた光反射率変化のフーリエスペクトルと、シミュレーションで得られた SRR の変位のフーリエスペクトル (図 4.9)、ガラス基板中のひずみのフーリエスペクトル (図 4.10) の比較を示す。シミュレーションから得られた各フーリエスペクトルのピークの周波数位置は同一である。シミュレーションのフーリエスペクトルから 6 つの振動モードを確認できた。それぞれの周波数は 2.8、4.5、6.0、10.0、12.8、21.3 GHz である。これらをモード (1)~(6) と呼ぶことにする。それぞれの振動モードによる変形とひずみの分布を図 4.11 に示す。振動モードの変形アニメーションは参考文献 [175] の Supplementary Information として Web で公開している。

実験で得られたフーリエスペクトルとシミュレーションで得られた各要素のフーリエスペクトルを比較すると、各要素におけるピーク強度の大小関係が実験で観測された光反射率変化のピーク強度の大小関係と一致している。つまり、SRR 構造の機械的な振動モードは直接的に SRR 構造の光反射率を変調していることが分かる。実験、シミュレーション共に最も振幅の大きいモード (2) は SRR 側腕部が開閉するような変形を示す。参考文献 [164] にあるように SRR のギャップ幅の変化は入射光が X 偏光の場合に SRR のプラズモニック共鳴をシフトする作用が強く、偶然であるが実験結果と直感的に一致している。

また、先述したガラス基板内のひずみによる光弾性効果の偏光依存性であるが、図 4.10 に示すようにモード (2) においてその振幅比は 1.5 倍程度でしかないので支配的な影響になるとは考えられない。

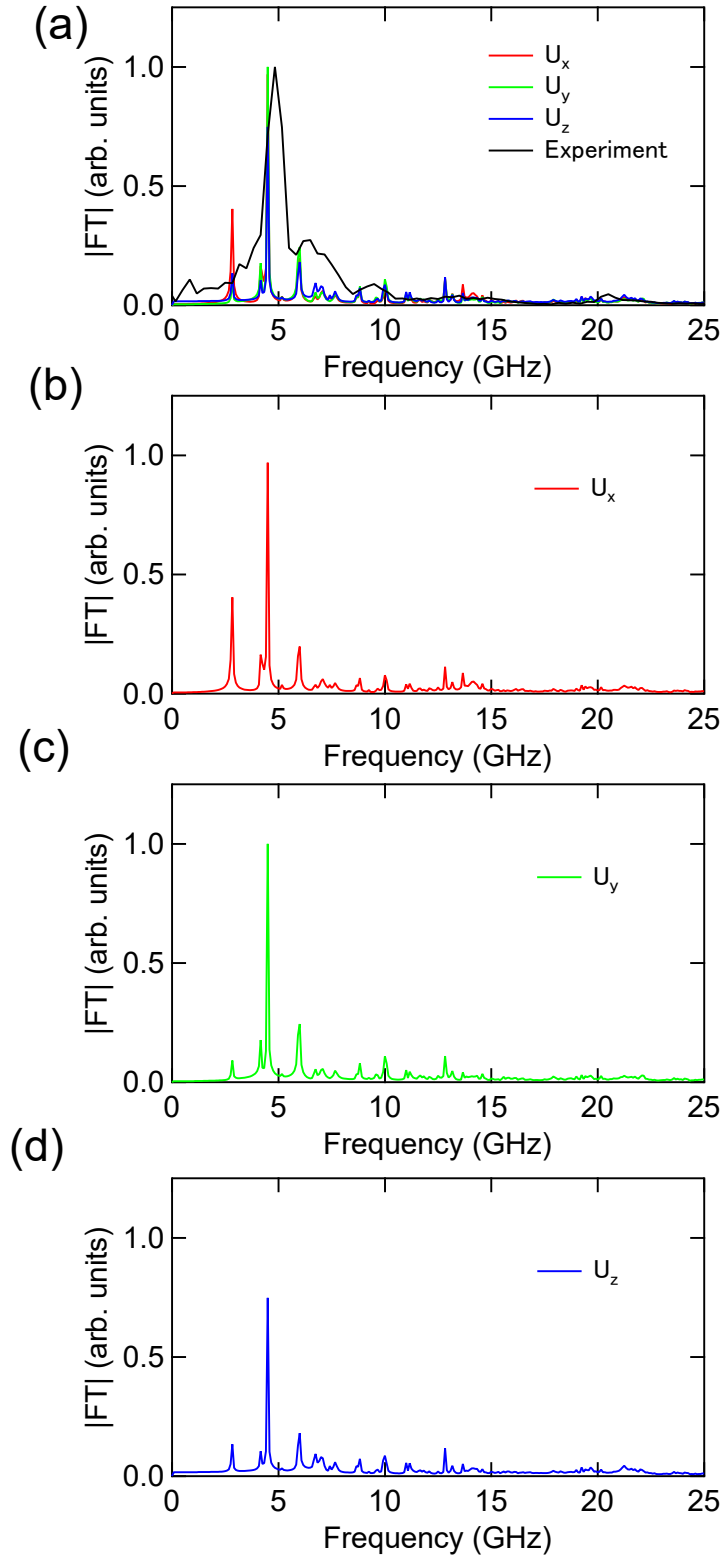


図 4.9 (a) 実験的に観測された光反射率変化のフーリエスペクトルとシミュレーションで得られた SRR の変位のフーリエスペクトルの比較、SRR の (b)X 方向、(c)Y 方向、(d)Z 方向の変位のフーリエスペクトル。シミュレーションスペクトルの振幅は 3 成分の最大値で規格化している。



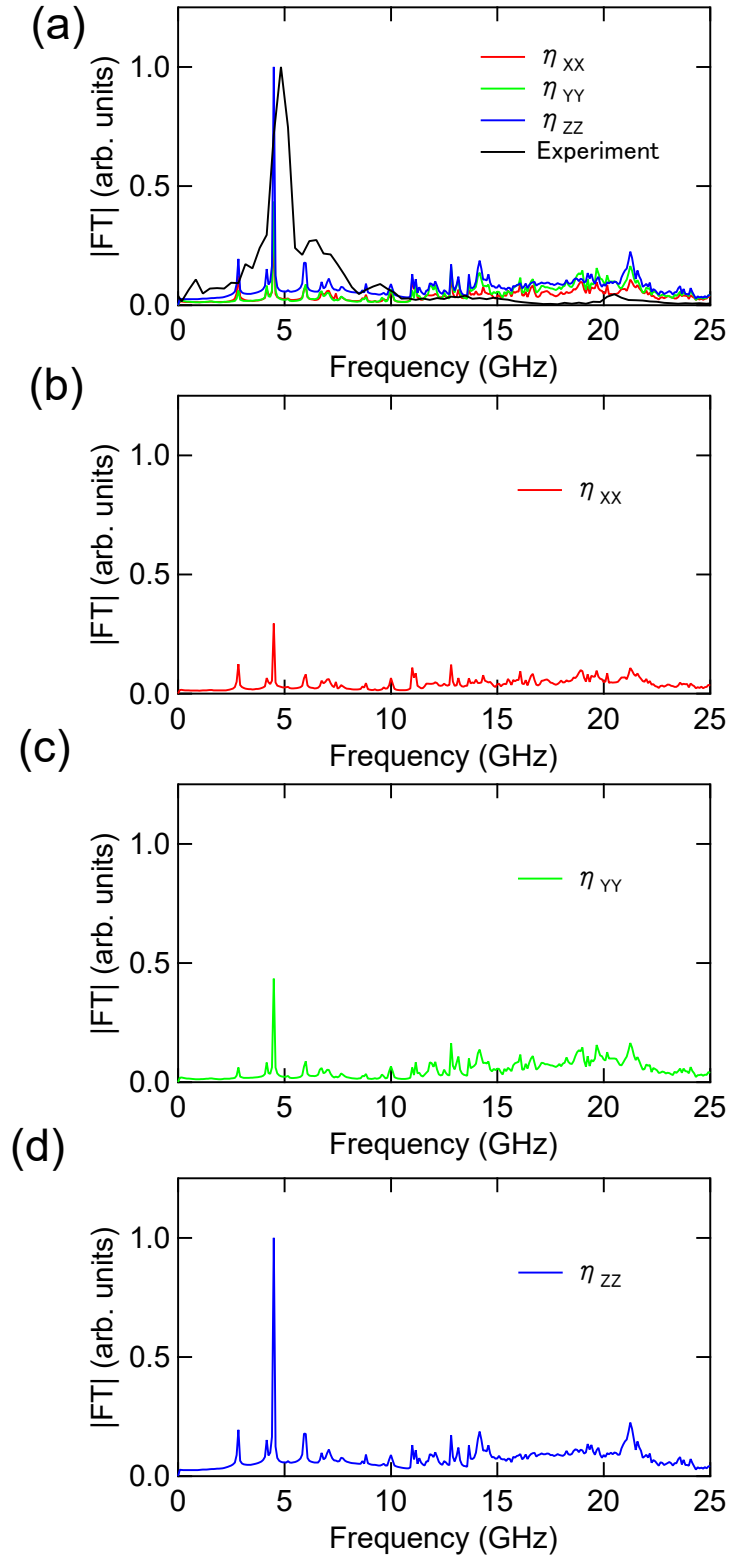


図 4.10 (a) 実験的に観測された光反射率変化のフーリエスペクトルとシミュレーションで得られたガラス基板最表面のひずみのフーリエスペクトルの比較、ガラス基板最表面の (b)XX 方向、(c)YY 方向、(d)ZZ 方向のひずみのフーリエスペクトル。シミュレーションスペクトルの振幅は 3 成分の最大値で規格化している。

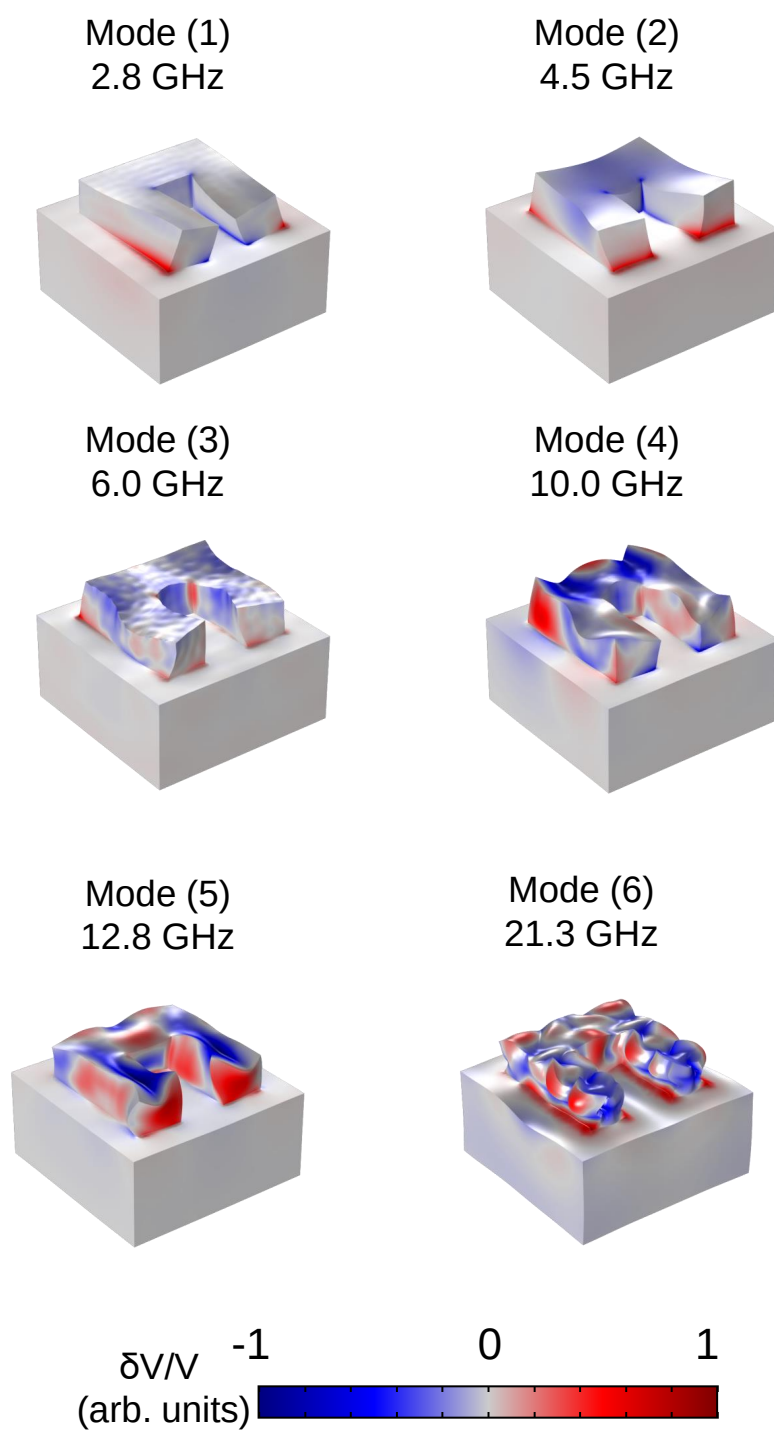


図 4.11 シミュレーションで確認された 6 つの振動モードの変形とひずみ分布。カラースケールは体積ひずみである。変形のアニメーションは参考文献 [175] の Supplementary Information として Web で公開している。

## 4.8 まとめ

光周波数領域にプラズモニック共鳴を持つ SRR 構造において、フェムト秒パルスレーザーを用いた偏光分解の過渡的光反射率変化の励起と検出を行った。実験的に金 SRR の 3~20 GHz の振動モードを観測し、数値シミュレーションと組み合わせることでそれぞれの振動モードの同定を行った。SRR 構造における音響振動は X 偏光の入射光に対する SRR の光学スペクトルを Y 変更に比べて 10 倍以上強く変調することを示した。3 次元構造である SRR の振動モードの変形やひずみの分布は複雑であるため、それらとプラズモニック共鳴を直接結びつける理論の構築はできないがすでに知られている SRR の光学特性の幾何依存性と振動モードによる変形後の形状に一致が見られた。本研究の最大の特色は、メタマテリアルにおいて GHz 周波数領域の音響変調を行った世界初の研究であることである。音響振動とプラズモニック共鳴を結ぶ研究はその報告数が少ないため、まだまだ手探りの状態にある。そうした中で本研究は音響-プラズモン相互作用を実験的に示すことができ、今後の発展のため礎となれたことが喜ばしい。

## 第 5 章

# ナノスケールプラズモニク表面弾性波トランスデューサー

### 5.1 超音波トランスデューサー

トランスデューサは測定や情報転送のためにある種類のエネルギーを別のものに変える装置である。一般的には電気と他の物理量の変換に用いられるものが多く、基本的には双方向の変換が可能である。例えば電気-音のトランスデューサであるマイクロフォンはマイク (音圧を電気に変換) とスピーカー (電気を音圧に変換) のどちらにも使われている。ある物理量を別のものに変換できるという特性上、トランスデューサは科学研究や産業、医療など分野を問わず利用されており、もちろん超音波測定においてもトランスデューサーは広く用いられている。例えば、船や潜水艦のソナー、超音波探傷、病院で行うエコー検査などが挙げられる。

電磁波や超音波を使った測定では、基本的に波長が短ければ短いほど空間分解能が向上する。より短波長の超音波トランスデューサ実現の手法として、超短パルスレーザーとナノ構造とを用いる方法が注目されている。超短光パルスによる光音響効果を用いた手法は短波長の超音波を励起する最も有効な手法であるが、励起される超音波の波長はバルク波であれば光侵入長、表面波や板波であればレーザーの回折限界といった限界が存在する。特に金や銀のような貴金属では電子-格子相互作用が弱いことが手伝い、励起される超音波の波長は光侵入長や回折限界よりも長いものになる [35, 139]。これは光のエネルギーを受け取った部分が超音波の波源となるからである。そこで半導体量子井戸 [38] や金属薄膜 [34, 141, 178]、金属ナノ構造 [61, 66, 179] のような人工的に作製した光吸収体を用いることで、超音波の波源となる空間を制御し、より短波長の励起が可能になる。またナノ構造を励起源に用いるメリットは超音波を短波長にできるだけではなく、任意の形状の波源を作り出せることや検出側にも同じ構造を作ることによって検出効率を上げられるといった利点がある。ただしレーザー励起する場合では空間光変調器などを用いる場合 [180] を除き、超音波の波源の形状は点波源や線波源といった単純なものに限られる。

ここまでナノ構造を用いるメリットを挙げたがもちろんデメリットもある。それは光吸

収体がナノスケールであるため根本的な光吸収量が少なく、結果、励起される超音波の強度が低いことである。これは励起する超音波がバルク波の場合では薄膜の面内方向のサイズを大きくすれば問題にならない [141] が、板波や SAW (surface acoustic wave; 表面弾性波) では問題となる。この問題を解決するために板波や SAW の場合では回折格子のような 1 次元周期構造が光吸収体と検出器として用いられる [181–184]。このような場合、励起される超音波の波長は回折格子の空間周期により決定される。周期構造を使う手法は容易に短波長の超音波を励起・検出できるが 1 つ欠点がある。それは単一の周波数の超音波しか励起できないという点である。超音波の有力な応用の一つに弾性的な材料特性の評価がある。しかし、分散のような材料特性のばらつきを評価するには、複数の周波数で測定する必要があるため、測定回数が増加する。

しかし、超短パルスレーザーと単一のナノワイヤなどのナノ構造を励起源として利用することで高周波数かつ広帯域の超音波パルスを得ることが可能になり、複数回の測定をまとめて行うことができると考えられる。例えば、50 nm 幅のロッドを用いて、約 10 GHz を中心とする大きな周波数帯域で SAW を生成可能なことは理論的に予想される。問題は、単一構造を用いたパルス信号の発生と検出は、回折格子のような周期的構造を用いたものよりも励起される超音波の強度の低下、検出効率の低下があげられる。

本研究においては、音響波の検出効率の向上の為、レシーバー側のトランスデューサにプラズモニック共鳴を有する金ナノロッドを採用したナノワイヤーナノロッドから構成されるナノスケールの SAW トランスデューサを実証する。ナノロッドはオーソドックスなプラズモニック構造の一つで、ナノロッドの長軸方向の偏光の電場成分とよくカップリングすることが知られている [185]。4 章で紹介したように、構造の持つプラズモニック共鳴をうまく利用することで 10 倍以上検出感度を向上させることが可能である。

## 5.2 試料

本実験で使用する SAW トランスデューサ構造の SEM 写真と模式図を図 5.1 ~ 図 5.3 に示す。SAW トランスデューサの励起側 (送信側) は幅 70 nm、長さ 50  $\mu\text{m}$ 、厚み 50 nm、のナノワイヤ構造である。後述するが、線光源を用いてナノワイヤ全体を励起することでナノワイヤの長さ方向と直交する方向に進む平面波の SAW を励起する。検出側 (受信側) は幅 70 nm、長さ 210 nm、厚み 50 nm のナノロッドを 100 nm の隙間を空けてナノワイヤの長さ方向に配列した 1 次元ナノロッド鎖構造である。本研究ではトランスデューサ間の距離やナノロッドの向きなどで 4 つの試料を作製・測定したが、ナノワイヤと単体のナノロッドの寸法はすべて共通である。本研究で用いる試料は電子線リソグラフィおよびスパッタリング装置を用いたリフトオフ法によって作製した。

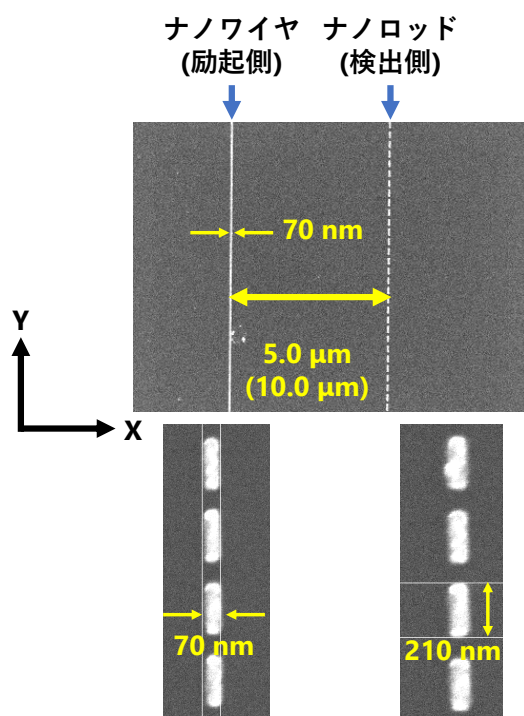


図 5.1 励起側と検出側のトランスデューサー間の距離が 5  $\mu\text{m}$  と 10  $\mu\text{m}$  かつ、ナノワイヤの長さ方向とナノロッドの長軸方向が平行な試料の SEM 写真。

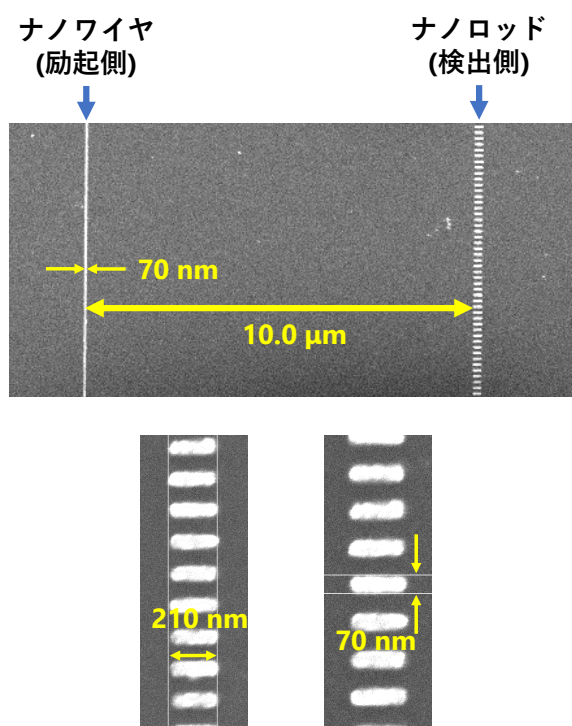


図 5.2 励起側と検出側のトランスデューサー間の距離が 10  $\mu\text{m}$  かつ、ナノワイヤの長さ方向とナノロッドの長軸方向が直交する試料の SEM 写真。

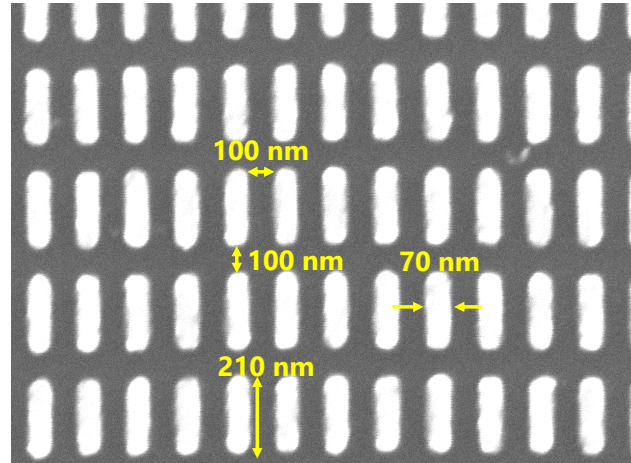


図 5.3 検出側のナノロッドを縦横ともに 100 nm の間隔をあけて 2 次元に配列した試料の SEM 写真。

作製した 4 つの試料の内、図 5.1 のナノワイヤとナノロッドの長さ方向が平行で、ナノワイヤ-ナノロッド一次元鎖間距離が  $5\ \mu\text{m}$  と  $10\ \mu\text{m}$  の試料と、図 5.2 のナノワイヤとナノロッドの長さ方向が直交して、ナノワイヤ-ナノロッド一次元鎖間距離が  $10\ \mu\text{m}$  の試料との 3 つは表面弾性波の輸送実験に用いた。図 5.3 のナノロッドを縦横 100 nm の間隔で 2 次元配列した試料は光反射率測定に使用した。光反射率測定に 2 次元アレイを用いたのは一次元鎖では白色光のスポットに占めるナノロッドの割合が少なく、構造の光学スペクトルの取得に支障をきたすためである。

### 5.3 ナノロッドの光学スペクトラム

光学スペクトルの測定には、表面弾性波の輸送実験に用いる 1 次元のナノロッド鎖 (図 5.1、図 5.2) ではなく、ナノロッド間の間隔を保ちながら 2 次元に配列したナノロッドアレイ (図 5.3) を用いた。使用した光学系を図 5.4 に、測定された反射率スペクトルを図 5.5 に示す。光源には Supercontinuum(SC) 光を出射できる Fianium 社の Whitelaser micro を用いた。SC 光は超短レーザーパルスをもとにフォトニック結晶ファイバーによる非線形光学効果により生成される広帯域・同位相の白色レーザー光である。光源から出射した白色光はまず偏光子によって図 5.1 中の X 軸方向 (Y 軸方向) の直線偏光のみが取り出される。次にレンズペア、対物レンズを通して試料に集光される。ここでレンズペアは集光時のビーム径をより小さくするために用いた。白色光を用いているため試料上で色収差を

避けるために広帯域（波長 480 nm～1800 nm）で色補正されているミットヨ社の無限補正対物レンズ M Plan Apo NIR 20× を試料前の対物レンズとして使用した。試料から反射された白色光は再び対物レンズを通り、ハーフミラーによって取り出される。分離された反射光は別の対物レンズ、光ファイバーを通して分光器に集められ、光学スペクトルを取得する。分光器には Ocean optics 社の USB 2000+ を用いた。これはグレーティングと 2048 素子リニアシリコン CCD アレイを内蔵したファイバマルチチャンネル分光器で、パソコンと USB 接続することでデータを取得できる。

図中の黒線は後述するピコ秒音響法の実験におけるプローブ光の光波長である。図中、青実線が Y 偏光、赤実線が X 偏光に対する反射率スペクトルである。プローブ光がナノロッドの長軸方向の偏光をもつ時、ナノロッドのプラズモニック共鳴を生かした検出が可能である。

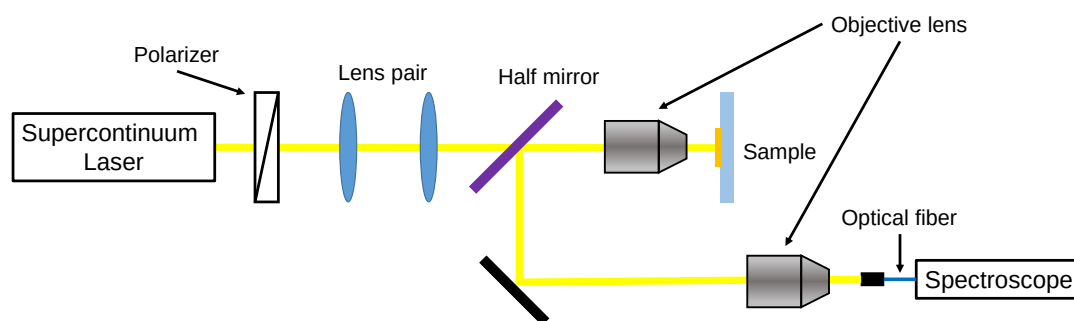


図 5.4 ナノロッドアレイの反射スペクトル取得に用いた光学系。光源には Supercontinuum (SC) 光 (ファイバーレーザー) を使用。分光器にはパソコンと USB 接続できる Ocean Optics 社の USB2000+ を用いた。



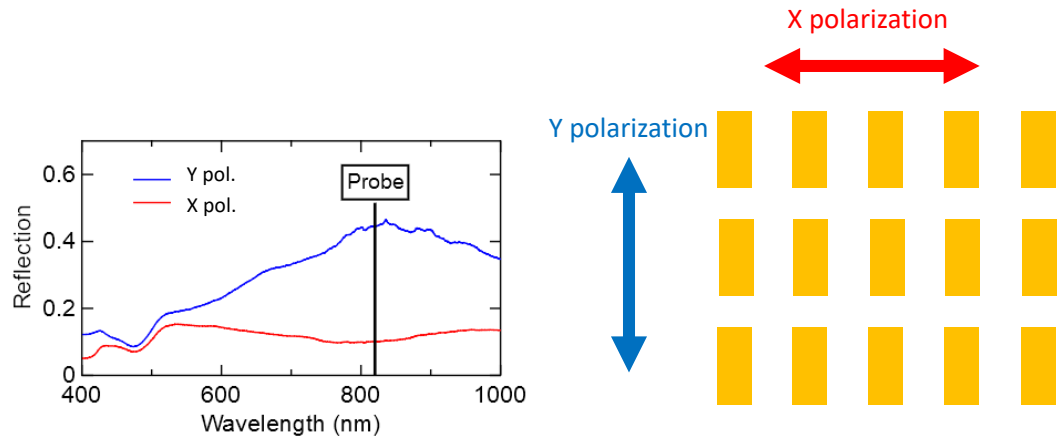


図 5.5 ナノロッドの 2 次元アレイの光反射率スペクトル。青実線は Y 偏光に対する光反射率、赤実線は X 偏光に対する光反射率。変更の向きを X、Y としているが重要なのはナノロッドの長さ方向に対して平行か垂直かである。図中では平行なのが Y 偏光、垂直なのが X 偏光である。

## 5.4 ピコ秒音響法による表面弾性波の輸送実験

本節では測定に用いた光学実験系について説明する。図 5.6 に本実験系を示す。本実験では平面波状の表面弾性波をナノワイヤ上に線状に集光したポンプ光 (波長 410 nm) によって励起し、ガラス基板上を伝搬してきた表面弾性波による金ナノロッド一次元鎖の光反射率の過渡的变化をプローブ光 (波長 820 nm) によって観測する。光源として、中心波長 820 nm、パルス幅 200 fs、繰り返し周波数 81.8 MHz (12.5 ns 周期) のモードロックチタン・サファイアレーザーを用いる。また SHG 結晶から発生する波長が半分 (410 nm) の第二次高調波をポンプ光として用いる。プローブ光に波長 820 nm の光パルスを用いるのは図 5.5 中、青実線で示す光反射率の波長 830 nm のプラズモニック共鳴を表面弾性波の検出感度増強に利用するためである。ピークの中心波長からプローブ光の波長をずらしているのは、本手法により得られる反射率の相対的变化量が一般に  $\sim 10^{-6}$  程度と微小なため、スペクトルの極大値ではなくピーク付近の傾きの大きいところを使うことで反射率の変化量を増大させることを目的としている。

ポンプ光は直線偏光で、シリンドリカルレンズと 50 倍の対物レンズにより試料表面において幅 3  $\mu\text{m}$ 、長さ 70  $\mu\text{m}$  に集光され、ナノワイヤに一様に垂直入射される。ポンプ光のエネルギーは主にナノワイヤを構成する金の電子により吸収され、電子-格子相互作用を経てナノ構造中にひずみが熱弾性的に生成される。このひずみにより GHz 帯の表面弾

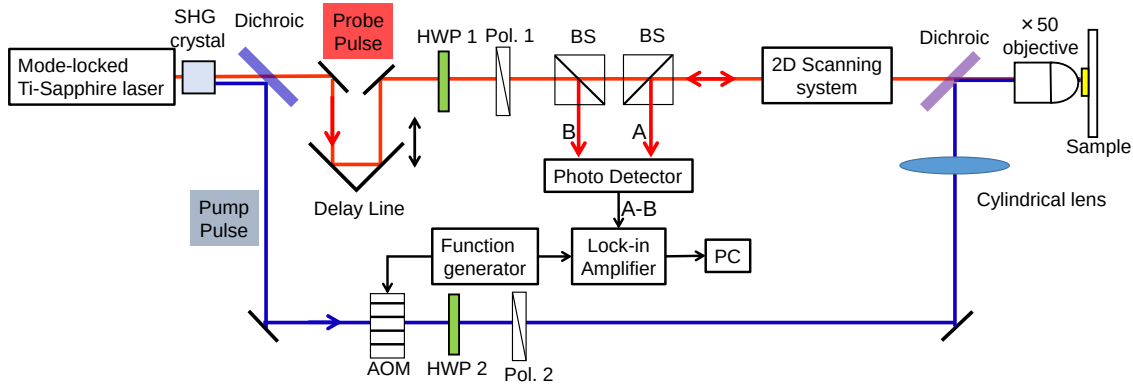


図 5.6 表面弾性波の輸送に用いた光学系。プローブ光の波長は 820 nm、ポンプ光の波長は 410 nm。プローブ光の 2 次元走査システムを組み込むことでサブ  $\mu\text{m}$  単位でプローブ光の精巧な位置決めが可能になる。SHG: Second Harmonic Generation, Dichroic: Dichroic mirror, HWP: Half-Wave Plate, Pol.:Polarizer, BS: Non-polarized Beam Splitter, objective: Objective lens, AOM: Acousto-Optic Modulator, PC: Personal Computer

性波が励起される。本実験ではナノワイヤを表面弾性波の音響ソースとしているため、ナノワイヤの長さ方向に鉛直な面内方向へと伝搬する平面波ライクの表面弾性波が励起される。本実験においてポンプ光の光強度、直線偏光の方向は一定にしているため、励起される表面弾性波は共通である。ポンプ光は AOM（音響光学変調器）によって 1.0 MHz で強度変調されている。ここでポンプ光を変調している理由は微小な相対反射率変化を測定するためにロックイン検出を行う必要があるからである。

## 5.5 ピコ秒音響法による実験結果と解析

ナノロッドの (光) 偏光依存性、表面弾性波の空間特性を踏まえて次の 3 つの組み合わせによる比較を行った。

- I. 励起側と検出側のトランスデューサー間の距離が  $5\ \mu\text{m}$  と  $10\ \mu\text{m}$  の場合の比較
- II. プローブ光の偏光がナノロッドのプラズモニック共鳴とカップリングする場合としない場合
- III. ナノロッドの長軸方向が表面弾性波の進行方向と直行する場合と平行な場合

I. では一連のピコ秒音響法による実験で観測される光反射率変化がナノワイヤから伝搬してきた表面弾性波によるものであると確認するため、つまり本実験における最大の目的である、周期構造を用いずに、ナノスケールの単一構造からナノスケールの単一構造まで表面弾性波を輸送できることを示す。試料には図 5.1 に示す、ナノワイヤとナノロッドの長さ方向が平行で、ナノワイヤ-ナノロッド次元鎖間距離が  $5\ \mu\text{m}$  と  $10\ \mu\text{m}$  のものを用いた。ポンプ光はナノワイヤの長さ方向と平行な直線偏光で、ワイヤ上に線状に照射され、表面弾性波を励起する。プローブ光はナノロッドの長さ方向と平行な直線偏光で、ナノロッド上に直径  $\sim 1\ \mu\text{m}$  で集光し、スポット内に 4 個程度のナノロッドを有する。表面弾性波の伝搬距離が  $5\ \mu\text{m}$  と  $10\ \mu\text{m}$  の実験結果で比較を行った。

II. では輸送された表面弾性波の検出にナノロッドのプラズモニック共鳴を使う場合と使わない場合の差を検証する。試料には図 5.1 に示す、ナノワイヤとナノロッドの長さ方向が平行で、ナノワイヤ-ナノロッド次元鎖間距離が  $5\ \mu\text{m}$  のものを用いた。ポンプ光の条件は I. と同じ。ナノロッドのプラズモニック共鳴による表面弾性波の検出感度増強を示すために、プローブ光の直線偏光がナノロッドの長さ方向と平行な場合と垂直な場合とで観測される反射率変化の振幅の比較を行った。

III. では、表面弾性波の特性、ナノロッドの振動モード、プラズモニック共鳴の 3 つの観点からナノロッドの幾何学的配置とプローブ光の偏光が最適の組み合わせを紹介する。ポンプ光の条件は I.、II. と同じ。プローブ光はどの場合でもナノロッドの長さ方向と平行である。

上記、I.~III. の実験結果を図 5.7 ~ 5.9 に示す。図 5.7 ~ 5.9、(a)、(b) はナノロッド上で観測された光反射率の過渡的变化。横軸、遅延時間はポンプ光がナノワイヤに到達したタイミングを遅延時間 0 ps とする。(c)、(d) は光反射率変化のフーリエ振幅である。

I. の測定結果である図 5.7 ではナノロッドの光反射率が (a)1443 ps、(c)3048 ps から比較的強く変調されている。この遅延時間とトランスデューサー間距離から音速を求めるとそれぞれ (a)3470 m/s、(c)3248 m/s となり、ホウケイ酸ガラスの表面弾性波の音速 3150 m/s と誤差約 10 % で一致していることから、観測された光反射率変化が伝搬してきた表面弾性波によるものであると推定する。よって、本実験の最大目標の達成を確認できた。また光反射率変化のフーリエスペクトルからは 5 GHz と 8 GHz にピークが観測できた。

次に、II. の測定結果である図 5.8 ではナノロッドの光反射率変化がプローブ光の直線偏光がナノロッドの長さ方向と (a) 平行な時の方が (b) 垂直な時と比べて得られる光反射率変化の振幅が 5 倍以上増幅されていることが確認された。やはり、プラズモニック共鳴を活用することでより高感度な表面弾性波の検出が可能なが改めて示された。

最後に、III. では共にナノロッドのプラズモニック共鳴を利用できる直線偏光を持つプローブ光で表面弾性波の検出を行ったが、ナノロッドの長さ方向と表面弾性波の進行方向が (a) 垂直の時と比べて (b) 平行な時では 10 倍以上強く光反射率変化が引き起こされた。これは表面弾性波の変位は面外方向と波の進行方向の成分からなることが原因だと考えられる。ナノロッドの基本的な振動モードは長さ方向の伸び縮みであるため、表面弾性波の変位方向と振動モードの向きが同じ時の方が表面弾性波による影響をより強く受けると推

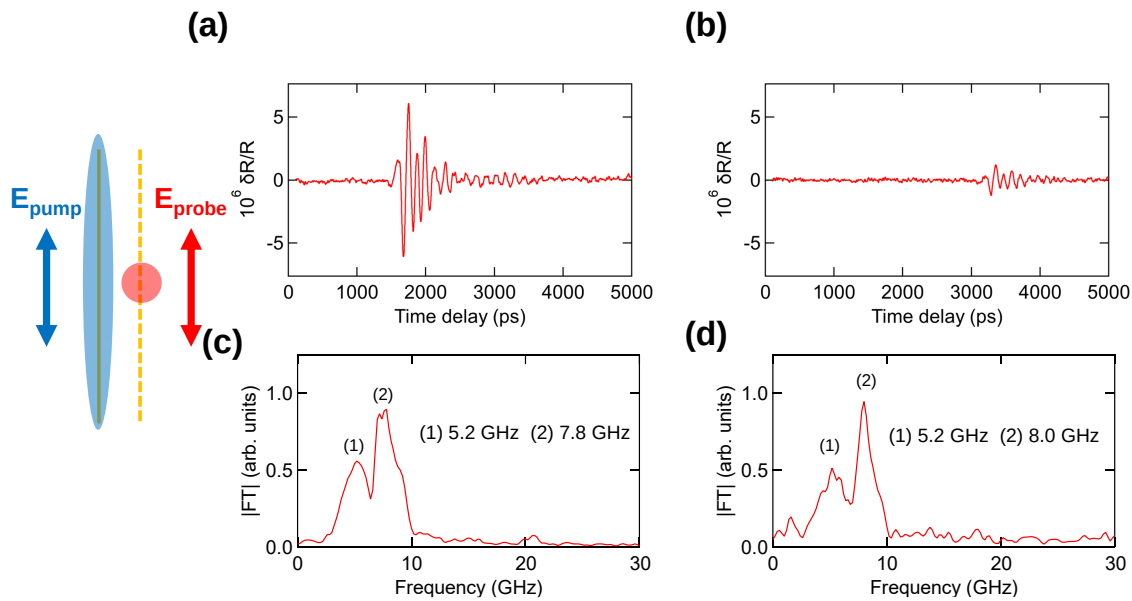


図 5.7 ナノワイヤで生成された表面弾性波によるナノロッドの光反射率変化、(a) トランスデューサー間の距離が 5  $\mu\text{m}$ 、(b) 10  $\mu\text{m}$  の場合。および、そのフーリエ振幅、(c) トランスデューサー間の距離が 5  $\mu\text{m}$ 、(d) 10  $\mu\text{m}$  の場合。

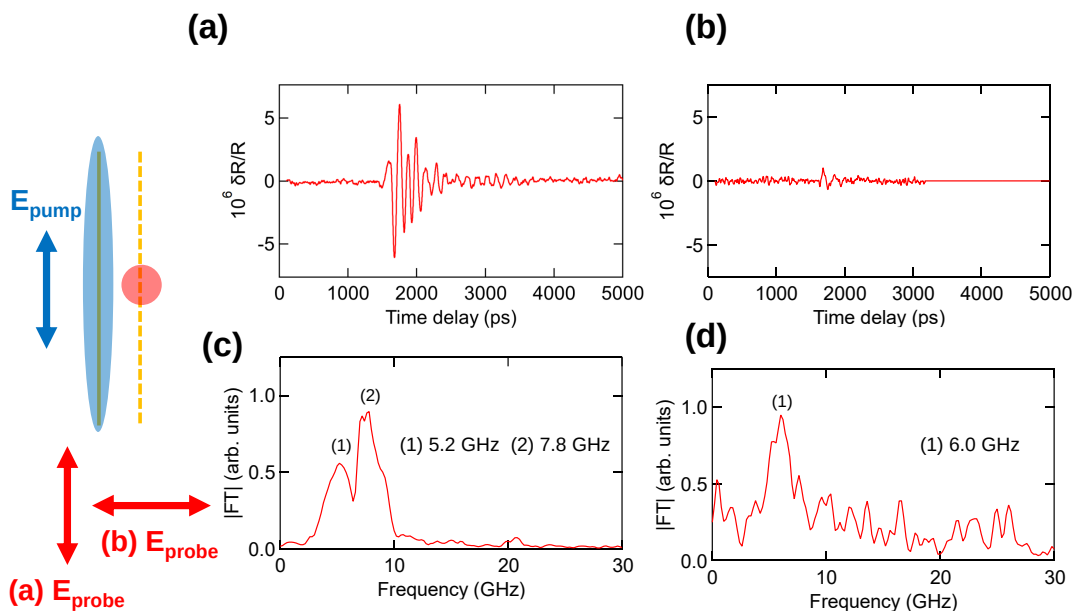


図 5.8 プローブ光の偏光がナノロッドのプラズモニック共鳴とカップリングする場合 (a,c) としない場合 (b,d) の光反射率変化の過渡的応答とフーリエ振幅。

測できる。

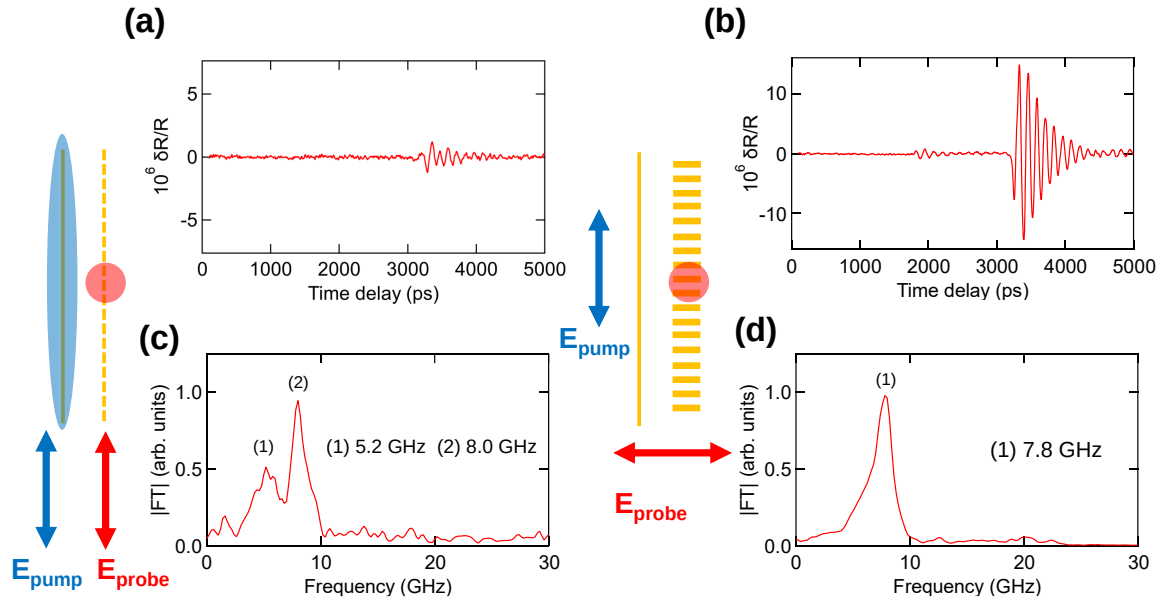


図 5.9 ナノロッドの長軸方向が表面弾性波の進行方向と垂直な場合 (a,c) と平行な場合 (b,d) の光反射率変化の過渡的応答とフーリエ振幅。

## 5.6 まとめ

単一の金ナノワイヤと金ナノロッド一次元鎖からなる表面弾性波トランスデューサ構造において、ピコ秒音響法による表面弾性波の輸送実験を実施した。金ナノロッドのプラズモニック共鳴を利用して表面弾性波の検出を行うことで、周期構造を用いないにもかかわらず輸送されてきた GHz 周波数帯の表面弾性波の検出に成功した。本研究は、周期構造を用いない表面弾性波トランスデューサにおいて、世界で初めて GHz 周波数での表面弾性波輸送を実験的に行った研究である。また表面弾性波の進行方向と平行な直線偏光によって励起される SPP モードを利用することで、単にプラズモニック共鳴を利用するよりも 10 倍以上検出感度を向上させることに成功した。

## 第 6 章

# 総括

本論文の総括として、以下では研究内容と成果、将来の展望などをまとめる。

本論文ではプラズモニックナノ構造において、ギガヘルツ周波数帯の音響振動や音響波によりそのプラズモニック共鳴を変調させること、発生した振動モードや歪みによる表面プラズモンへの影響を調べることを目的に 3 つのプラズモニックナノ構造において研究を行った。特に第 4 章で扱ったスプリットリング共振器は一般にメタマテリアルに分類され、メタマテリアルにおけるギガヘルツ音響変調は本研究が世界初の実証である。本研究では超短光パルスを用いたピコ秒音響法と音響場、電磁場に関する数値シミュレーションを用いて、音響変調の要因となる振動モード、その振動モードと光学特性の関わりを調べた。

EOT 構造の研究では、従来の EOT 構造におけるギガヘルツ音響変調の研究には欠けていた振動モードの解析を行い、開口の収縮・拡大する振動モードが EOT 構造においては光透過率変調の主な要因であることを解明した。

SRR 構造の研究では、前述したように世界で初めてとなるメタマテリアルのギガヘルツ音響変調の実証に成功した。数値シミュレーションを用いて計算した振動モードと、ピコ秒音響法で得られた過渡的反射率変化の比較により、SRR のギャップが開閉する振動モードが SRR 構造における光反射率変調の主な要因であることを解明した。

ナノワイヤとナノロッド一次元鎖からなるトランスデューサー構造の研究では、ナノワイヤを波源とするギガヘルツ表面弾性波によりナノロッド一次元鎖の光反射率変調を行った。この研究において、ギガヘルツ音響変調を介することで、世界で初めてナノスケール to ナノスケールの表面弾性波の送受信を実証した。

全体を通して、音響現象を利用したアクティブ・プラズモニクスというまだまだ研究報告の少ない分野において、プラズモニック構造における音響変調やそれを利用したセンシングといった研究例を与え、特に第 3 章、第 4 章のプラズモニック構造においては、そのプラズモニック共鳴を効率よく変調する振動モードを実験的に導き出した。本論文においてはピコ秒音響法によってさまざまな振動モードを同時に励起し、それによる音響変調を行った。得られる変調周波数は 10 GHz 程度と高速であったが、その変調率は  $10^{-6}$  程度であった。しかし、piezo 素子などを用いて特定の振動モードのみを励起するなどすれ

ばもっと効率的な光学特性の変調が可能になり、実用的なレベルの変調率が得られるだろう。また第5章で行った表面弾性波の送受信も、より光学的・音響的な構造の最適化を図れば、一粒子 to 一粒子で表面弾性波の送受信が行える超高感度なトランスデューサーとして用いることが可能であろう。音響現象を用いたアクティブ・プラズモニクスはまだ始まったばかりであり、複雑な振動モード注のプラズモン共鳴モードなどまだ未解決のことが多い。それらの理解が深まれば、医療や情報通信といった光と音響波の両方を利用している分野において非常に役立つツールになると期待している。

## 付録 A

# レーザーの揺らぎの軽減

本研究の実験において、実際にロックインアンプに入力している信号は、試料を反射(透過)した後に光検出器に入射するプローブ光(信号光)の強度から、試料を経由せずに光検出器に入射するプローブ光(参照光)の強度を引いたものである。本質的には信号光だけで十分である。しかし、本実験のような非常に微小な信号を検出する場合ではノイズによる測定誤差を極力軽減したい。本研究で用いた信号光から参照光を引くという行為は、レーザー発振器の出力揺らぎを軽減する働きをしている。そのことを、数式を用いて示す。まずレーザーパルスの強度を  $I$  としその揺らぎを  $\delta I$  と表わす。また試料の反射率を  $R$  としその誤差を  $\delta R$  とする。このときの信号光の強度は次のように表される。

$$(I + \delta I)(R + \delta R) = IR + I\delta R + \delta IR + \delta I\delta R \quad (\text{A.1})$$

参照光の強度は単に、

$$I + \delta I \quad (\text{A.2})$$

である。対物レンズや試料を経由するため、信号光の強度は参照光に比べて弱くなる。そこで参照光の強度を ND フィルタにより調整する。ここで ND フィルタによる強度低下の係数を  $N$  とすると、ロックインアンプに入力される信号は次のようになる。

$$\begin{aligned} \text{Inputsignal} &= (I + \delta I)(R + \delta R) - (I + \delta I)N \\ &= (R - N)(I + \delta I) + I\delta R \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

ND フィルタを調整し、 $(R - N)$  項を小さくすることでレーザーの揺らぎを軽減することができる。



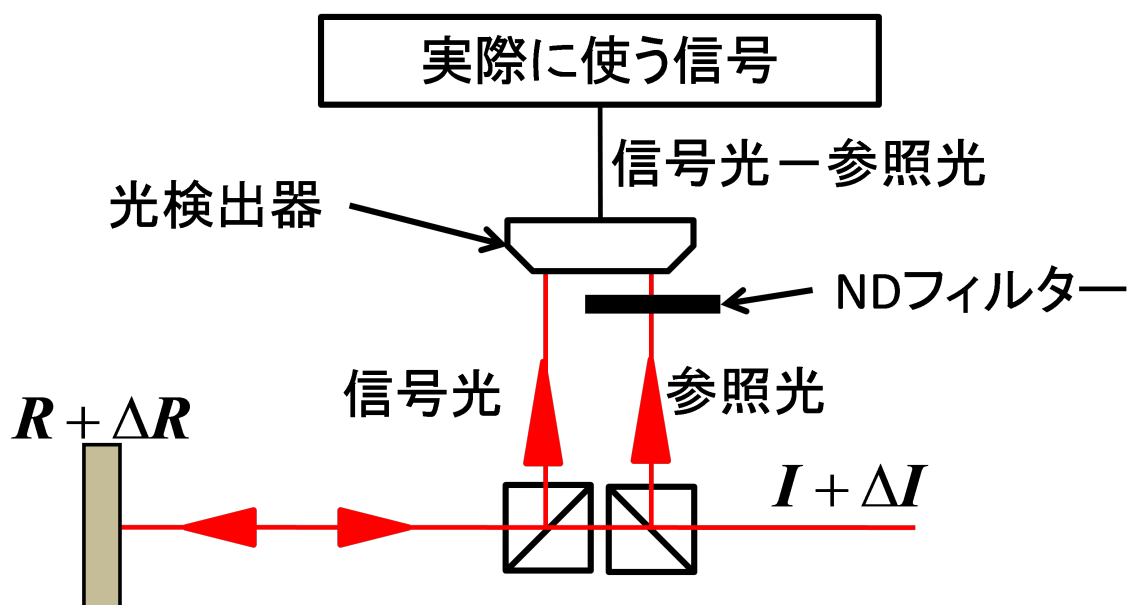


図 A.1 レーザーによる揺らぎを軽減するための光学系の概念図。

## 付録 B

# ポンプ光パルスによる温度上昇

励起パルス光が試料に入射したとき、試料の温度は変化する。その温度変化は大きく 2 つに分けられる。1 つ目はレーザーの繰り返し周波数で入射するパルス光の 1 つあたりの瞬間的な温度上昇、2 つ目は連続的にパルス光列が照射され続け、十分時間が経過したときの温度上昇である [34]。

### B.1 瞬間的な温度上昇

ポンプ光が試料に当たることで生じる過渡的な温度上昇について述べる。エネルギー  $Q$  をもった超短光パルス (ポンプ光) が厚さ  $d$  の薄膜表面に入射されているとする。ここで光吸収距離  $\xi$  は薄膜の厚さ  $d$  よりはるかに小さいものとし、光パルスの照射面積  $A$  の直径は  $d$ 、 $\xi$  よりも大きいものとする。光強度が薄膜内の深さ方向の距離  $z$  に対して指数関数的に減衰することを考慮して、単位体積あたりに吸収されるエネルギーは

$$\frac{Q}{A\xi} e^{-\frac{z}{\xi}} \quad (\text{B.1})$$

またポンプ光パルスの反射率を  $R$  とすると、試料に吸収されるエネルギーは

$$W(z) = (1 - R) \frac{Q}{A\xi} e^{-\frac{z}{\xi}} \quad (\text{B.2})$$

となる。このエネルギー吸収による温度上昇は

$$\begin{aligned} \delta T(z) &= \frac{W(z)}{C} \\ &= (1 - R) \frac{Q}{A\xi C} e^{-\frac{z}{\xi}} \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

で表される。ここで  $C$  は試料の比熱である。この温度上昇における最大の値は  $z = 0$  (薄膜表面) での値である。

また、ポンプ光がガウシアンビームであるときは薄膜の深さ方向だけでなく、薄膜表面の面内方向にも一様でない光エネルギーの分布が生じる。そのため、ガウシアンビームの場合では式 B.1 ～ B.3 において  $\frac{Q}{A}$  の代わりに  $\frac{Q}{(\frac{\pi w^2}{2})}$  を用いる。ここで  $w$  は光強度が最大値の  $e^{-2}$  となるスポット半径である。この場合、式 B.3 の最大値は

$$T_{\max} = \frac{2(1-R)Q}{\pi w^2 C \xi} \quad (\text{B.4})$$

で表される。

## B.2 定常状態における温度上昇

ポンプ光が照射されて十分時間が経過したときの温度上昇を考える。試料表面に光のエネルギーが全部吸収されると仮定し、熱の空気への移動（熱輻射）を無視すると

$$\delta T_{\infty} = \frac{(1-R)P_{\text{av}}}{\sqrt{2\pi\kappa w}} \quad (\text{B.5})$$

で表される。ここで  $P_{\text{av}}$  はレーザービームの平均パワーで、レーザーパルスの繰り返し周波数  $f$  と  $2P_{\text{av}} = Qf$  という関係がある。また、 $\kappa$  は熱伝導率である。

## 付録 C

# ピコ秒音響法に使用する光学素子

ここでは本研究における光学実験で用いた光学素子や測定装置について説明する。

### ○Ti:Sapphire Laser(チタン・サファイアレーザー)

チタン・サファイアをレーザー媒質として用いたフェムト秒パルスレーザーである。YAGレーザーからの強力な光励起によりレーザー媒質中に電子の反転分布を生成させ、レーザー発振を生じさせる。モードロックすることにより、ピコ秒-フェムト秒パルスが発生する。モードロックとは共振器内の発振モード間の位相関係が固定されている状態のことである。

### ○SHG 結晶(Second Harmonic Generation Crystal、第二高調波発生結晶)

2 次の非線形感受率を有する物質に、角周波数  $\omega$  の強力な光 (基本波と呼ぶ) が入射すると、角周波数  $2\omega$  で振動する分極が生じて、その振幅は基本波の光電場の振幅の 2 乗に比例する。そのようにして生じた分極からは角周波数  $2\omega$  で振動する光、第 2 高調波が発生する。例えば SRR の実験では、波長 800 nm の光をこの SHG 結晶に入射して波長 400 nm の光を発生させ、ポンプ光として用いた。本実験では、SHG 結晶として BBO 結晶を用いた。

### ○AOM (Acousto-Optic Modulator、音響光学変調器)

AOM は、光学媒体中を伝搬する超音波による回折現象を利用した素子である。ファンクションジェネレーターからの電気信号により、ある特定の周波数で光をチョッピングする。本実験ではファンクションジェネレーターから送られる 1.0 MHz の矩形波でチョッピングした。

### ○Delay Line (遅延光路)

コーナーキューブプリズムを機械的に移動させることにより、光路長を変化させパルス光が試料にあたるタイミングを変えることができる。ポンプ光に対するプローブ光の到着時間を遅らせることにより、サブピコ秒時間の光反射率の時間変化を測定できる。

### ○Function Generator (ファンクションジェネレーター)

特定の周波数の電気信号を作る。AOM とロックインアンプに接続し、AOM によってポンプ光をチョッピングする周波数とロックインアンプで検出する周波数を同じものに設定できる。本実験では 1.0 MHz の矩形波の電気信号を発生させるために用いた。

### ○Lock-in Amplifier (ロックインアンプ)

ロックインアンプは増幅機能と特定信号検出機能を併せ持ったアンプである。ファンクションジェネレーターから参照される特定の周波数を持った信号 (これを作るために AOM を用いている) のみを測定することができる。測定におけるノイズを減らすことができるため、微小な信号を測定できるようになる。ロックインアンプを用いた微小信号検出をロックイン検出という。

### ○Beam Splitter (ビームスプリッター)

1 本のビームを 2 本以上のビームに分割または、2 本のビームを 1 本のビームに合成する光学素子をビームスプリッターという。本実験で用いたのは主に、2 個の直角プリズムを接着した立方体形のものである。

### ○Half-wave Plate (半波長板)

これは波長板の一種である。波長板は光学軸を含む 1 軸性結晶でできている。そこに垂直に入射する任意偏光の光は、常光線と異常光線とで伝搬速度が異なり、通過後の位相差は波長板内部の光学距離の差に比例する。この位相差が  $\pi$  のものを半波長板、または  $\lambda/2$  板といい、入射された直線偏光の向きを変えることができる。

### ○Dichroic Mirror (2 色ミラー、ダイクロイックミラー)

波長によって入射光の反射・透過が決まるミラーのことを指す。本実験では青色の光を反射、赤色の光を透過させるダイクロイックミラーをポンプ光、プローブ光ともに試料に対して垂直に入射させる際に使用している。

### ○Polarizer (ポラライザー)

本実験で用いたポラライザーは方解石製の偏光プリズムを用いたものを使用している。これに非偏光の光を入射すると直線偏光が得られる。本実験では任意の強度と偏光を持った光パルスを作り出すために  $\lambda/2$  板と組み合わせて用いられた。

### ○Photodetector (光検出器)

プローブ光の光強度を測定する。光強度は電圧として出力される。本実験で用いるフォトディテクターは 2 つのチャンネル A、B がある差動式のものである。チャンネル A には試料から反射したプローブ光を、チャンネル B には参照光を入射させる。2 つのパルス光の強度の差 A-B を電圧信号としてロックインアンプに入力する。

## 付録 D

# SRR のプラズモニック共鳴モード

第 chap:SRR 章で扱った SRR は、入射光が X 偏光の場合では波長 548 nm と 780 nm、入射光が Y 偏光の場合では波長 808 nm にプラズモニック共鳴を呈することを実験的に光透過率を取得し、確認した。取得した光透過率スペクトラム、および FEM で計算した光学スペクトラムは本文中の図 4.3 に示されている。

ここでは FEM シミュレーションで明らかにした、それら 3 つのプラズモニック共鳴モードを形成している SRR の単位構造中の電場分布と SRR 表面の電流密度分布を図 D.1 に示す。それぞれカラスケールでスカラー場、矢印でベクトル場を示している。実際に作製された SRR 構造と計算上の SRR モデルのずれによって、プラズモニック共鳴を呈する光波長が計測値に比べて長波長側にシフトしている。そのためシミュレーションでは、入射光が X 偏光の場合では波長 572 nm と 808 nm、入射光が Y 偏光の場合では波長 824 nm にプラズモニック共鳴が存在する。

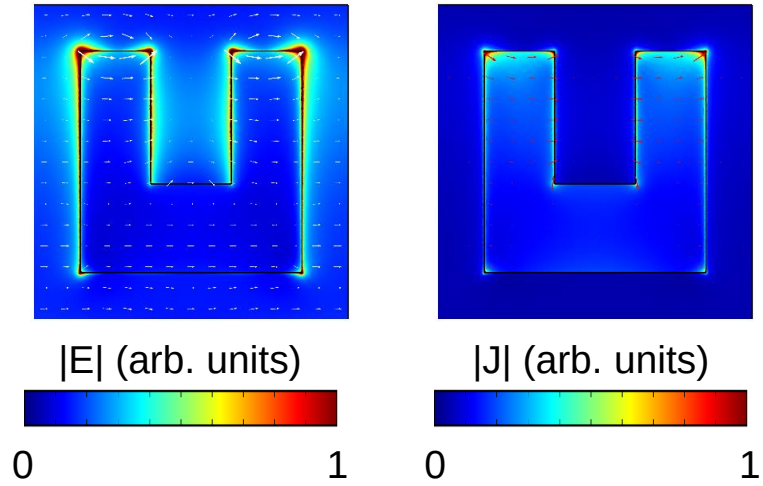
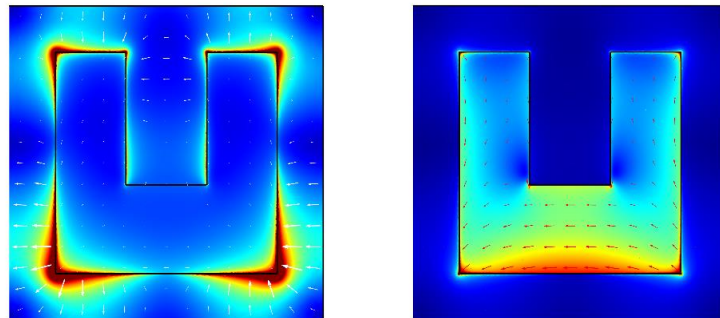
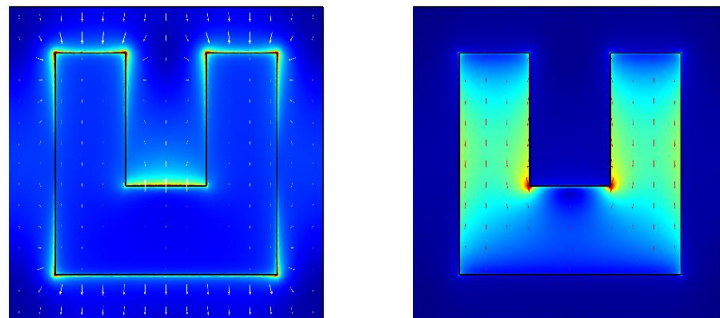
(a) X polarization at  $\lambda = 572$  nm(b) X polarization at  $\lambda = 808$  nm(c) Y polarization at  $\lambda = 824$  nm

図 D.1 SRR のプラズモニック共鳴モードにおける電場分布と電流密度分布。それぞれ入射光が、(a)X 偏光で波長 572 nm、(b)X 偏光で波長 808 nm、(c)Y 偏光で波長 824 nm のプラズモニック共鳴におけるプロットである。

## 参考文献

- [1] A. Otto. Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei*, 216(4):398–410, 1968.
- [2] E. Kretschmann and H. Raether. Notizen: Radiative Decay of Non Radiative Surface Plasmons Excited by Light. *Zeitschrift für Naturforschung A*, 23(12):2135–2136, 1968.
- [3] E. Kretschmann. Die Bestimmung optischer Konstanten von Metallen durch Anregung von Oberflächenplasmaschwingungen. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei*, 241(4):313–324, 1971.
- [4] 清都尚治, 白田真也, 谷武晴, 知花一孝, 納谷昌之, and 鎌田晃. 銀ナノ平板粒子を用いた近赤外反射材料の開発. *日本写真学会誌*, 76(6):469–472, 2013.
- [5] V. G. Veselago. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of  $\epsilon$  and  $\mu$ . *Soviet Physics Uspekhi*, 10(4):509–514, 1968.
- [6] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, and W. J. Stewart. Low frequency plasmons in thin-wire structures. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 10(22):4785–4809, 1998.
- [7] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, and W. J. Stewart. Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 47(11):2075–2084, 1999.
- [8] D. R. Smith, W. J. Padilla, W. J. Padilla, D. C. Vier, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser, S. C. Nemat-Nasser, S. Schultz, and S. Schultz. Composite Medium with Simultaneously Negative Permeability and Permittivity. *Physical Review Letters*, 84(18):4184–4187, 2000.
- [9] R. A. Shelby. Experimental Verification of a Negative Index of Refraction. *Science*, 292(5514):77–79, 2001.
- [10] F. Capolino, 萩行正憲, 石原照也, and 真田篤志. *メタマテリアルハンドブック*. 講談社, 2015.
- [11] C.-C. Chen, A. Ishikawa, Y.-H. Tang, M.-H. Shiao, D. P. Tsai, and T. Tanaka. Uniaxial-isotropic Metamaterials by Three-Dimensional Split-Ring Resonators.



- Advanced Optical Materials*, 3(1):44–48, 2014.
- [12] J.-Y. Ou, E. Plum, J. Zhang, and N. I. Zheludev. An electromechanically reconfigurable plasmonic metamaterial operating in the near-infrared. *Nature Nanotechnology*, 8(4):252–255, 2013.
  - [13] V. A. Fedotov, A. S. Schwanecke, N. I. Zheludev, V. V. Khardikov, and S. L. Prosvirnin. Asymmetric transmission of light and enantiomerically sensitive plasmon resonance in planar chiral nanostructures. *Nano Letters*, 7(7):1996–1999, 2007.
  - [14] I. Smolyaninov, Y. Hung, and C. Davis. Imaging and focusing properties of plasmonic metamaterial devices. *Physical Review B*, 76(20):205424, 2007.
  - [15] X. Huang, S. Xiao, D. Ye, J. Huangfu, Z. Wang, L. Ran, and L. Zhou. Fractal plasmonic metamaterials for subwavelength imaging. *Optics Express*, 18(10):10377–10387, 2010.
  - [16] J. Ou, J. So, G. Adamo, and A. Sulaev. Ultraviolet and visible range plasmonics of a topological insulator. *Nature Communications*, 5(5139):1–7, 2014.
  - [17] F. Von Cube, S. Irsen, R. Diehl, J. Niegemann, K. Busch, and S. Linden. From isolated metaatoms to photonic metamaterials: Evolution of the plasmonic near-field. *Nano Letters*, 13(2):703–708, 2013.
  - [18] Z. Vafapour and A. Zakery. New Approach of Plasmonically Induced Reflectance in a Planar Metamaterial for Plasmonic Sensing Applications. *Plasmonics*, 2015.
  - [19] X. Yin, M. Schäferling, A.-K. U. Michel, A. Tittl, M. Wuttig, T. Taubner, and H. Giessen. Active Chiral Plasmonics. *Nano Letters*, 15(7):4255–4260, 2015.
  - [20] K. Tanaka, E. Plum, J. Y. Ou, T. Uchino, and N. I. Zheludev. Multifold enhancement of quantum dot luminescence in plasmonic metamaterials. *Physical Review Letters*, 105(22):351–354, 2010.
  - [21] M. Miyata, J. Hirohata, Y. Nagasaki, and J. Takahara. Multi-spectral plasmon induced transparency via in-plane dipole and dual-quadrupole coupling. *Optics Express*, 22(10):11399–406, 2014.
  - [22] J. Zhang, K. F. MacDonald, and N. I. Zheludev. Optical gecko toe: Optically controlled attractive near-field forces between plasmonic metamaterials and dielectric or metal surfaces. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 85(20):1–5, 2012.
  - [23] N. Meinzer, W. L. Barnes, and I. R. Hooper. Plasmonic meta-atoms and meta-surfaces. *Nature Photonics*, 8(12):889–898, 2014.
  - [24] W. Cao, R. Singh, I. a. I. Al-Naib, M. He, A. J. Taylor, and W. Zhang. Low-loss ultra-high-Q dark mode plasmonic Fano metamaterials. *Optics Letters*, 37(16):3366, 2012.
  - [25] J. W. Lee, M. A. Seo, J. Y. Sohn, Y. H. Ahn, D. S. Kim, S. C. Jeoung, C. Lienau,

- 
- and Q.-H. Park. Invisible plasmonic meta-materials through impedance matching to vacuum. *Optics Express*, 13(26):10681–10687, 2005.
- [26] Z. G. Dong, H. Liu, J. X. Cao, T. Li, S. M. Wang, S. N. Zhu, and X. Zhang. Enhanced sensing performance by the plasmonic analog of electromagnetically induced transparency in active metamaterials. *Applied Physics Letters*, 97(11):10–13, 2010.
- [27] Z. L. Samson, K. F. MacDonald, F. De Angelis, B. Gholipour, K. Knight, C. C. Huang, E. Di Fabrizio, D. W. Hewak, and N. I. Zheludev. Metamaterial electro-optic switch of nanoscale thickness. *Applied Physics Letters*, 96(14):2008–2011, 2010.
- [28] J. Hao, J. Wang, X. Liu, W. J. Padilla, L. Zhou, and M. Qiu. High performance optical absorber based on a plasmonic metamaterial. *Applied Physics Letters*, 96(25):251104, 2010.
- [29] M. Liu, H. Y. Hwang, H. Tao, A. C. Strikwerda, K. Fan, G. R. Keiser, A. J. Sternbach, K. G. West, S. Kittiwatanakul, J. Lu, S. A. Wolf, F. G. Omenetto, X. Zhang, K. A. Nelson, and R. D. Averitt. Terahertz-field-induced insulator-to-metal transition in vanadium dioxide metamaterial. *Nature*, 487(7407):345–348, 2012.
- [30] J. H. Singh, G. Nair, A. Ghosh, and A. Ghosh. Wafer scale fabrication of porous three-dimensional plasmonic metamaterials for the visible region: chiral and beyond. *Nanoscale*, 5(16):7224–7228, 2013.
- [31] H.-k. Yuan, U. K. Chettiar, W. Cai, A. V. Kildishev, A. Boltasseva, V. P. Drachev, and V. M. Shalaev. A negative permeability material at red light. *Optics Express*, 15(3):1076, 2007.
- [32] V. Delgado, O. Sydoruk, E. Tatartschuk, R. Marqués, M. Freire, and L. Jelinek. Analytical circuit model for split ring resonators in the far infrared and optical frequency range. *Metamaterials*, 3(2):57–62, 2009.
- [33] O. Matsuda, M. C. Larciprete, R. Li Voti, and O. B. Wright. Fundamentals of picosecond laser ultrasonics. *Ultrasonics*, 56:3–20, 2015.
- [34] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc. Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. *Physical Review B*, 34(6):4129–4138, 1986.
- [35] O. B. Wright. Ultrafast nonequilibrium stress generation in gold and silver. *Physical Review B*, 49(14):9985–9988, 1994.
- [36] T. Saito, O. Matsuda, and O. B. Wright. Picosecond acoustic phonon pulse generation in nickel and chromium. *Physical Review B*, 67(20):205421, 2003.
- [37] O. B. Wright. Laser picosecond acoustics in double-layer transparent films. *Optics Letters*, 20(6):632, 1995.

- [38] O. Matsuda, T. Tachizaki, T. Fukui, J. J. Baumberg, and O. B. Wright. Acoustic phonon generation and detection in GaAs/AlGaAs quantum wells with picosecond laser pulses. *Physical Review B*, 71(11):115330, 2005.
- [39] O. Matsuda, I. Ishii, T. Fukui, J. Baumberg, and O. Wright. Wavelength selective photoexcitation of picosecond acoustic-phonon pulses in a triple GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As quantum well structure. *Physica B: Condensed Matter*, 316-317:205–208, 2002.
- [40] O. Matsuda, O. B. Wright, D. H. Hurley, V. E. Gusev, and K. Shimizu. Coherent Shear Phonon Generation and Detection with Ultrashort Optical Pulses. *Physical Review Letters*, 93(9):095501, 2004.
- [41] O. Matsuda, O. B. Wright, D. H. Hurley, V. Gusev, and K. Shimizu. Coherent shear phonon generation and detection with picosecond laser acoustics. *Physical Review B*, 77(22):224110, 2008.
- [42] Y. Sugawara, O. B. Wright, O. Matsuda, M. Takigahira, Y. Tanaka, S. Tamura, and V. E. Gusev. Watching Ripples on Crystals. *Physical Review Letters*, 88(18):185504, 2002.
- [43] O. Wright, Y. Sugawara, O. Matsuda, M. Takigahira, Y. Tanaka, S. Tamura, and V. Gusev. Real-time imaging and dispersion of surface phonons in isotropic and anisotropic materials. *Physica B: Condensed Matter*, 316-317:29–34, 2002.
- [44] O. B. Wright and O. Matsuda. Watching surface waves in phononic crystals. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 373(2049):20140364, 2015.
- [45] P. H. Otsuka, R. Chinbe, M. Tomoda, O. Matsuda, I. A. Veres, J.-H. Lee, J.-B. Yoon, and O. B. Wright. Effect of excitation point on surface phonon fields in phononic crystals in real- and k-space. *Journal of Applied Physics*, 117(24):245308, 2015.
- [46] P. H. Otsuka, S. Mezil, O. Matsuda, M. Tomoda, A. A. Maznev, T. Gan, N. Fang, N. Boechler, V. E. Gusev, and O. B. Wright. Time-domain imaging of gigahertz surface waves on an acoustic metamaterial. *New Journal of Physics*, 20(1):013026, 2018.
- [47] J. Fujita, M. Ishida, T. Sakamoto, Y. Ochiai, T. Kaito, and S. Matsui. Observation and characteristics of mechanical vibration in three-dimensional nanostructures and pillars grown by focused ion beam chemical vapor deposition. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, 19(6):2834, 2001.
- [48] H. Portales, L. Saviot, E. Duval, M. Gaudry, E. Cottancin, M. Pellarin, J. Lermé, and M. Broyer. Resonant Raman scattering by quadrupolar vibrations of Ni-Ag core-shell nanoparticles. *Physical Review B*, 65(16):165422, 2002.

- 
- [49] S. KOJIMA, S. NISHIZAWA, and M. W. TAKEDA. テラヘルツ時間領域分光法と物質科学. *Journal of the Spectroscopical Society of Japan*, 52(2):69–81, 2003.
  - [50] J.-F. Robillard, A. Devos, and I. Roch-Jeune. Time-resolved vibrations of two-dimensional hypersonic phononic crystals. *Physical Review B*, 76(9):092301, 2007.
  - [51] H. Sakuma, M. Tomoda, P. H. Otsuka, O. Matsuda, O. B. Wright, T. Fukui, K. Tomioka, and I. A. Veres. Vibrational modes of GaAs hexagonal nanopillar arrays studied with ultrashort optical pulses. *Applied Physics Letters*, 100(13):131902, 2012.
  - [52] H. Lin, H. J. Maris, L. B. Freund, K. Y. Lee, H. Luhn, and D. P. Kern. Study of vibrational modes of gold nanostructures by picosecond ultrasonics. *Journal of Applied Physics*, 73(1):37–45, 1993.
  - [53] P. Zijlstra, A. L. Tchebotareva, J. W. M. Chon, M. Gu, and M. Orrit. Acoustic Oscillations and Elastic Moduli of Single Gold Nanorods. *Nano Letters*, 8(10):3493–3497, 2008.
  - [54] A. Crut, P. Maioli, N. Del Fatti, and F. Vallée. Acoustic vibrations of metal nano-objects: Time-domain investigations. *Physics Reports*, 549:1–43, 2015.
  - [55] J.-F. F. Robillard, A. Devos, I. Roch-Jeune, and P. A. Mante. Collective acoustic modes in various two-dimensional crystals by ultrafast acoustics: Theory and experiment. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 78(6):064302, 2008.
  - [56] M. Pelton, J. E. Sader, J. Burgin, M. Liu, P. Guyot-sionnest, and D. Gosztola. Damping of acoustic vibrations in gold nanoparticles. *Nature Nanotechnology*, 4(8):492–495, 2009.
  - [57] M. A. Van Dijk, M. Lippitz, and M. Orrit. Detection of acoustic oscillations of single gold nanospheres by time-resolved interferometry. *Physical Review Letters*, 95(26):1–4, 2005.
  - [58] T. A. Kelf, W. Hoshii, P. H. Otsuka, H. Sakuma, I. a. Veres, R. M. Cole, S. Mahajan, J. J. Baumberg, M. Tomoda, O. Matsuda, and O. B. Wright. Mapping gigahertz vibrations in a plasmonic-phononic crystal. *New Journal of Physics*, 15(2):023013, 2013.
  - [59] L. Wang, Y. Nishijima, K. Ueno, H. Misawa, and N. Tamai. Near-IR vibrational dynamics of periodic gold single and pair nanocuboids. *Applied Physics Letters*, 95(5):1–4, 2009.
  - [60] M.-N. Su, P. D. Dongare, D. Chakraborty, Y. Zhang, C. Yi, F. Wen, W.-S. Chang, P. Nordlander, J. E. Sader, N. J. Halas, and S. Link. Optomechanics of Single Aluminum Nanodisks. *Nano Letters*, 17(4):2575–2583, 2017.
  - [61] N. D. Lanzillotti-Kimura, K. P. O’Brien, J. Rho, H. Suchowski, X. Yin, and

- X. Zhang. Polarization-controlled coherent phonon generation in acoustoplasmonic metasurfaces. *Physical Review B*, 97(23):235403, 2018.
- [62] K. Yu, J. E. Sader, P. Zijlstra, M. Hong, Q.-H. Xu, and M. Orrit. Probing Silver Deposition on Single Gold Nanorods by Their Acoustic Vibrations. *Nano Letters*, 14(2):915–922, 2014.
- [63] R. Fuentes-Domínguez, R. Smith, F. Pérez-Cota, L. Marques, O. Peña-Rodríguez, and M. Clark. Size Characterisation Method and Detection Enhancement of Plasmonic Nanoparticles in a Pump-Probe System. *Applied Sciences*, 7(8):819, 2017.
- [64] F. Della Picca, R. Berte, M. Rahmani, P. Albella, J. M. Bujjamer, M. Poblet, E. Cortés, S. A. Maier, and A. V. Bragas. Tailored Hypersound Generation in Single Plasmonic Nanoantennas. *Nano Letters*, 16(2):1428–1434, 2016.
- [65] W.-S. Chang, F. Wen, D. Chakraborty, M.-N. Su, Y. Zhang, B. Shuang, P. Nordlander, J. E. Sader, N. J. Halas, and S. Link. Tuning the acoustic frequency of a gold nanodisk through its adhesion layer. *Nature Communications*, 6(1):7022, 2015.
- [66] K. O’Brien, N. D. Lanzillotti-Kimura, J. Rho, H. Suchowski, X. Yin, and X. Zhang. Ultrafast acousto-plasmonic control and sensing in complex nanostructures. *Nature communications*, 5(May):4042, 2014.
- [67] T. A. Kelf, Y. Tanaka, O. Matsuda, E. M. Larsson, D. S. Sutherland, and O. B. Wright. Ultrafast vibrations of gold nanorings. *Nano Letters*, 11(9):3893–3898, 2011.
- [68] G. Soavi, I. Tempra, M. F. Pantano, A. Cattoni, S. Collin, P. Biagioni, N. M. Pugno, and G. Cerullo. Ultrasensitive Characterization of Mechanical Oscillations and Plasmon Energy Shift in Gold Nanorods. *ACS Nano*, 10(2):2251–2258, 2016.
- [69] H. Staleva and G. V. Hartland. Vibrational Dynamics of Silver Nanocubes and Nanowires Studied by Single-Particle Transient Absorption Spectroscopy. *Advanced Functional Materials*, 18(23):3809–3817, 2008.
- [70] 山田淳. プラズモンナノ材料の最新技術. シーエムシー出版, 東京, 2009.
- [71] G. Soavi, I. Tempra, M. F. Pantano, A. Cattoni, S. Collin, P. Biagioni, N. M. Pugno, and G. Cerullo. Ultrasensitive Characterization of Mechanical Oscillations and Plasmon Energy Shift in Gold Nanorods. *ACS Nano*, 10(2):2251–2258, 2016.
- [72] A. Ahmed, M. Pelton, and J. R. Guest. Understanding How Acoustic Vibrations Modulate the Optical Response of Plasmonic Metal Nanoparticles. *ACS Nano*, 2017.
- [73] L. Le Guyader, A. Kirilyuk, T. Rasing, G. A. Wurtz, A. V. Zayats, P. F. A.

- Alkemade, and I. I. Smolyaninov. Coherent control of surface plasmon polariton mediated optical transmission. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 41(19):195102, 2008.
- [74] B. Dong, X. Chen, F. Zhou, C. Wang, H. F. Zhang, and C. Sun. Gigahertz All-Optical Modulation Using Reconfigurable Nanophotonic Metamolecules. *Nano Letters*, 16(12):7690–7695, 2016.
- [75] K. MacDonald and N. Zheludev. Active plasmonics: current status. *Laser & Photonics Reviews*, 4(4):562–567, 2009.
- [76] N. Jiang, X. Zhuo, and J. Wang. Active Plasmonics: Principles, Structures, and Applications. *Chemical Reviews*, 118(6):3054–3099, 2018.
- [77] V. Sanphuang, N. Ghalichechian, N. K. Nahar, and J. L. Volakis. Reconfigurable THz Filters Using Phase-Change Material and Integrated Heater. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 6(4):583–591, 2016.
- [78] S. Xiao, U. K. Chettiar, A. V. Kildishev, V. Drachev, I. C. Khoo, and V. M. Shalaev. Tunable magnetic response of metamaterials. *Applied Physics Letters*, 95(3):033115, 2009.
- [79] T. Cao, C. Wei, and L. Mao. Numerical study of achiral phase-change metamaterials for ultrafast tuning of giant circular conversion dichroism. *Scientific Reports*, 5(October):14666, 2015.
- [80] C. H. Kodama and R. A. Coutu. Tunable split-ring resonators using germanium telluride. *Applied Physics Letters*, 108(23):231901, 2016.
- [81] W. Lu, N. Jiang, and J. Wang. Active Electrochemical Plasmonic Switching on Polyaniline-Coated Gold Nanocrystals. *Advanced Materials*, 29(8):1604862, 2017.
- [82] M. Seo, J. Kyoung, H. Park, S. Koo, H.-s. Kim, H. Bernien, B. J. Kim, J. H. Choe, Y. H. Ahn, H.-T. Kim, N. Park, Q.-H. Park, K. Ahn, and D.-s. Kim. Active Terahertz Nanoantennas Based on VO<sub>2</sub> Phase Transition. *Nano Letters*, 10(6):2064–2068, 2010.
- [83] G. M. Koenig, M.-V. Meli, J.-S. Park, J. J. d. Pablo, and N. L. Abbott. Coupling of the Plasmon Resonances of Chemically Functionalized Gold Nanoparticles to Local Order in Thermotropic Liquid Crystals. *Chemistry of Materials*, 19(5):1053–1061, 2007.
- [84] T. Driscoll, S. Palit, M. M. Qazilbash, M. Brehm, F. Keilmann, B.-G. Chae, S.-J. Yun, H.-T. Kim, S. Y. Cho, N. M. Jokerst, D. R. Smith, and D. N. Basov. Dynamic tuning of an infrared hybrid-metamaterial resonance using vanadium dioxide. *Applied Physics Letters*, 93(2):024101, 2008.
- [85] W. Ni, H. Chen, J. Su, Z. Sun, J. Wang, and H. Wu. Effects of Dyes, Gold Nanocrystals, pH, and Metal Ions on Plasmonic and Molecular Resonance Cou-

- pling. *Journal of the American Chemical Society*, 132(13):4806–4814, 2010.
- [86] J.-W. Jeon, P. A. Ledin, J. A. Geldmeier, J. F. Ponder, M. A. Mahmoud, M. El-Sayed, J. R. Reynolds, and V. V. Tsukruk. Electrically Controlled Plasmonic Behavior of Gold Nanocube@Polyaniline Nanostructures: Transparent Plasmonic Aggregates. *Chemistry of Materials*, 28(8):2868–2881, 2016.
- [87] M. J. Dicken, K. Aydin, I. M. Pryce, L. A. Sweatlock, E. M. Boyd, S. Walavalkar, J. Ma, and H. A. Atwater. Frequency tunable near-infrared metamaterials based on VO<sub>2</sub> phase transition. *Optics Express*, 17(20):18330, 2009.
- [88] C. Zhang, Y. Yan, Y. S. Zhao, and J. Yao. From Molecular Design and Materials Construction to Organic Nanophotonic Devices. *Accounts of Chemical Research*, 47(12):3448–3458, 2014.
- [89] M. Zhang, D. J. Magagnosc, I. Liberal, Y. Yu, H. Yun, H. Yang, Y. Wu, J. Guo, W. Chen, Y. J. Shin, A. Stein, J. M. Kikkawa, N. Engheta, D. S. Gianola, C. B. Murray, and C. R. Kagan. High-strength magnetically switchable plasmonic nanorods assembled from a binary nanocrystal mixture. *Nature Nanotechnology*, 12(3):228–232, 2017.
- [90] H. Bouas-Laurent and H. Dürr. Organic photochromism (IUPAC Technical Report). *Pure and Applied Chemistry*, 73(4):639–665, 2001.
- [91] K. Xiong, G. Emilsson, A. Maziz, X. Yang, L. Shao, E. W. H. Jager, and A. B. Dahlin. Plasmonic Metasurfaces with Conjugated Polymers for Flexible Electronic Paper in Color. *Advanced Materials*, 28(45):9956–9960, 2016.
- [92] R. Geryak, J. Geldmeier, K. Wallace, and V. V. Tsukruk. Remote Giant Multi-spectral Plasmonic Shifts of Labile Hinged Nanorod Array via Magnetic Field. *Nano Letters*, 15(4):2679–2684, 2015.
- [93] A.-K. U. Michel, P. Zalden, D. N. Chigrin, M. Wuttig, A. M. Lindenberg, and T. Taubner. Reversible Optical Switching of Infrared Antenna Resonances with Ultrathin Phase-Change Layers Using Femtosecond Laser Pulses. *ACS Photonics*, 1(9):833–839, 2014.
- [94] D. Y. Lei, K. Appavoo, Y. Sonnefraud, R. F. Haglund, Jr., and S. A. Maier. Single-particle plasmon resonance spectroscopy of phase transition in vanadium dioxide. *Optics Letters*, 35(23):3988, 2010.
- [95] T. Nikolajsen, K. Leosson, and S. I. Bozhevolnyi. Surface plasmon polariton based modulators and switches operating at telecom wavelengths. *Applied Physics Letters*, 85(24):5833–5835, 2004.
- [96] R. A. Evans, T. L. Hanley, M. A. Skidmore, T. P. Davis, G. K. Such, L. H. Yee, G. E. Ball, and D. A. Lewis. The generic enhancement of photochromic dye switching speeds in a rigid polymer matrix. *Nature Materials*, 4(3):249–253, 2005.

- 
- [97] M. A. Kats, R. Blanchard, P. Genevet, Z. Yang, M. M. Qazilbash, D. N. Basov, S. Ramanathan, and F. Capasso. Thermal tuning of mid-infrared plasmonic antenna arrays using a phase change material. *Optics Letters*, 38(3):368, 2013.
  - [98] A. E. Cetin, A. Mertiri, M. Huang, S. Erramilli, and H. Altug. Thermal Tuning of Surface Plasmon Polaritons Using Liquid Crystals. *Advanced Optical Materials*, 1(12):915–920, 2013.
  - [99] Z. Zhang, P. Zhao, P. Lin, and F. Sun. Thermo-optic coefficients of polymers for optical waveguide applications. *Polymer*, 47(14):4893–4896, 2006.
  - [100] G. K. Joshi, K. N. Blodgett, B. B. Muhoberac, M. A. Johnson, K. A. Smith, and R. Sardar. Ultrasensitive Photoreversible Molecular Sensors of Azobenzene-Functionalized Plasmonic Nanoantennas. *Nano Letters*, 14(2):532–540, 2014.
  - [101] A.-K. U. Michel, D. N. Chigrin, T. W. W. Maß, K. Schönauer, M. Salinga, M. Wuttig, and T. Taubner. Using Low-Loss Phase-Change Materials for Mid-Infrared Antenna Resonance Tuning. *Nano Letters*, 13(8):3470–3475, 2013.
  - [102] M. Zhang, D. J. B. Bechstein, R. J. Wilson, and S. X. Wang. Wafer-Scale Synthesis of Monodisperse Synthetic Magnetic Multilayer Nanorods. *Nano Letters*, 14(1):333–338, 2014.
  - [103] Y.-S. Lin and C. Lee. Tuning characteristics of mirrorlike T-shape terahertz metamaterial using out-of-plane actuated cantilevers. *Applied Physics Letters*, 104(25):251914, 2014.
  - [104] H. S. Ee and R. Agarwal. Tunable Metasurface and Flat Optical Zoom Lens on a Stretchable Substrate. *Nano Letters*, 16(4):2818–2823, 2016.
  - [105] X. He, Z. Lv, B. Liu, and Z. Li. Tunable magnetic metamaterial based multi-split-ring resonator (MSRR) using MEMS switch components. *Microsystem Technologies*, 17(8):1263–1269, 2011.
  - [106] W. M. Zhu, A. Q. Liu, X. M. Zhang, D. P. Tsai, T. Bourouina, J. H. Teng, X. H. Zhang, H. C. Guo, H. Tanoto, T. Mei, G. Q. Lo, and D. L. Kwong. Switchable Magnetic Metamaterials Using Micromachining Processes. *Advanced Materials*, 23(15):1792–1796, 2011.
  - [107] M. Lapine, D. Powell, M. Gorkunov, I. Shadrivov, R. Marqués, and Y. Kivshar. Structural tunability in metamaterials. *Applied Physics Letters*, 95(8):084105, 2009.
  - [108] X. Ben and H. S. Park. Strain engineering enhancement of surface plasmon polariton propagation lengths for gold nanowires. *Applied Physics Letters*, 102(4):041909, 2013.
  - [109] S. Lee, S. Kim, T.-T. Kim, Y. Kim, M. Choi, S. H. Lee, J.-Y. Kim, and B. Min. Reversibly Stretchable and Tunable Terahertz Metamaterials with Wrinkled Layouts. *Advanced Materials*, 24(26):3491–3497, 2012.



- [110] J. Valente, J.-Y. Ou, E. Plum, I. J. Youngs, and N. I. Zheludev. Reconfiguring photonic metamaterials with currents and magnetic fields. *Applied Physics Letters*, 106(11):111905, 2015.
- [111] H. Tao, A. C. Strikwerda, K. Fan, W. J. Padilla, X. Zhang, and R. D. Averitt. Reconfigurable Terahertz Metamaterials. *Physical Review Letters*, 103(14):147401, 2009.
- [112] J. Y. Ou, E. Plum, L. Jiang, and N. I. Zheludev. Reconfigurable Photonic Metamaterials. *Nano Letters*, 11(5):2142–2144, 2011.
- [113] N. I. Zheludev and E. Plum. Reconfigurable nanomechanical photonic metamaterials. *Nature Nanotechnology*, 11(1):16–22, 2016.
- [114] A. Isozaki, T. Kan, H. Takahashi, K. Matsumoto, and I. Shimoyama. Out-of-plane actuation with a sub-micron initial gap for reconfigurable terahertz micro-electro-mechanical systems metamaterials. *Optics Express*, 23(20):26243, 2015.
- [115] R. Zhao, P. Tassin, T. Koschny, and C. M. Soukoulis. Optical forces in nanowire pairs and metamaterials. *Optics Express*, 18(25):25665, 2010.
- [116] W. Zhang, A. Q. Liu, W. M. Zhu, E. P. Li, H. Tanoto, Q. Y. Wu, J. H. Teng, X. H. Zhang, M. L. J. Tsai, G. Q. Lo, and D. L. Kwong. Micromachined switchable metamaterial with dual resonance. *Applied Physics Letters*, 101(15):151902, 2012.
- [117] P. Pitchappa, C. Pei Ho, P. Kropelnicki, N. Singh, D.-L. Kwong, and C. Lee. Micro-electro-mechanically switchable near infrared complementary metamaterial absorber. *Applied Physics Letters*, 104(20):201114, 2014.
- [118] W. Zhu, A. Liu, T. Bourouina, D. Tsai, J. Teng, X. Zhang, G. Lo, D. Kwong, and N. Zheludev. Microelectromechanical Maltese-cross metamaterial with tunable terahertz anisotropy. *Nature Communications*, 3(1):1274, 2012.
- [119] D. Chicherin, S. Dudorov, D. Lioubtchenko, V. Ovchinnikov, S. Tretyakov, and A. V. Räisänen. MEMS-based high-impedance surfaces for millimeter and submillimeter wave applications. *Microwave and Optical Technology Letters*, 48(12):2570–2573, 2006.
- [120] P. Gutruf, C. Zou, W. Withayachumnankul, M. Bhaskaran, S. Sriram, and C. Fumeaux. Mechanically tunable dielectric resonator metasurfaces at visible frequencies. *ACS Nano*, 10(1):133–141, 2016.
- [121] M. Lapine, I. V. Shadrivov, D. A. Powell, and Y. S. Kivshar. Magnetoelastic metamaterials. *Nature Materials*, 11(1):30–33, 2012.
- [122] I. M. Pryce, K. Aydin, Y. A. Kelaita, R. M. Briggs, and H. A. Atwater. Highly strained compliant optical metamaterials with large frequency tunability. *Nano Letters*, 10(10):4222–4227, 2010.

- 
- [123] J.-Y. Ou, E. Plum, J. Zhang, and N. I. Zheludev. Giant Nonlinearity of an Optically Reconfigurable Plasmonic Metamaterial. *Advanced Materials*, 28(4):729–733, 2016.
  - [124] S. Aksu, M. Huang, A. Artar, A. A. Yanik, S. Selvarasah, M. R. Dokmeci, and H. Altug. Flexible Plasmonics on Unconventional and Nonplanar Substrates. *Advanced Materials*, 23(38):4422–4430, 2011.
  - [125] V. Ginis, P. Tassin, C. M. Soukoulis, and I. Veretennicoff. Enhancing Optical Gradient Forces with Metamaterials. *Physical Review Letters*, 110(5):057401, 2013.
  - [126] T. Kan, A. Isozaki, N. Kanda, N. Nemoto, K. Konishi, H. Takahashi, M. Kuwata-Gonokami, K. Matsumoto, and I. Shimoyama. Enantiomeric switching of chiral metamaterial for terahertz polarization modulation employing vertically deformable MEMS spirals. *Nature Communications*, 6:8422, 2015.
  - [127] C. P. Ho, P. Pitchappa, Y.-S. Lin, C.-Y. Huang, P. Kropelnicki, and C. Lee. Electrothermally actuated microelectromechanical systems based omega-ring terahertz metamaterial with polarization dependent characteristics. *Applied Physics Letters*, 104(16):161104, 2014.
  - [128] Y. Cui, J. Zhou, V. A. Tamma, and W. Park. Dynamic Tuning and Symmetry Lowering of Fano Resonance in Plasmonic Nanostructure. *ACS Nano*, 6(3):2385–2393, 2012.
  - [129] B. Ozbey and O. Aktas. Continuously tunable terahertz metamaterial employing magnetically actuated cantilevers. *Optics Express*, 19(7):5741, 2011.
  - [130] T. Hand and S. Cummer. Characterization of Tunable Metamaterial Elements Using MEMS Switches. *IEEE Antennas and Wireless Propagation Letters*, 6:401–404, 2007.
  - [131] H.-T. Chen, W. J. Padilla, J. M. O. Zide, A. C. Gossard, A. J. Taylor, and R. D. Averitt. Active terahertz metamaterial devices. *Nature*, 444(7119):597–600, 2006.
  - [132] P. Pitchappa, M. Manjappa, C. P. Ho, Y. Qian, R. Singh, N. Singh, and C. Lee. Active control of near-field coupling in conductively coupled microelectromechanical system metamaterial devices. *Applied Physics Letters*, 108(11), 2016.
  - [133] Y. H. Fu, A. Q. Liu, W. M. Zhu, X. M. Zhang, D. P. Tsai, J. B. Zhang, T. Mei, J. F. Tao, H. C. Guo, X. H. Zhang, J. H. Teng, N. I. Zheludev, G. Q. Lo, and D. L. Kwong. A Micromachined Reconfigurable Metamaterial via Reconfiguration of Asymmetric Split-Ring Resonators. *Advanced Functional Materials*, 21(18):3589–3594, 2011.
  - [134] J. Valente, J.-Y. Ou, E. Plum, I. J. Youngs, and N. I. Zheludev. A magneto-electro-optical effect in a plasmonic nanowire material. *Nature Communications*,

- 6(1):7021, 2015.
- [135] W. Zhu, Q. Song, L. Yan, W. Zhang, P.-C. Wu, L. K. Chin, H. Cai, D. P. Tsai, Z. X. Shen, T. W. Deng, S. K. Ting, Y. Gu, G. Q. Lo, D. L. Kwong, Z. C. Yang, R. Huang, A.-Q. Liu, and N. Zheludev. A Flat Lens with Tunable Phase Gradient by Using Random Access Reconfigurable Metamaterial. *Advanced Materials*, 27(32):4739–4743, 2015.
  - [136] A. Lomonosov, A. P. Mayer, and P. Hess. 3. Laser-based surface acoustic waves in materials science. In *Experimental Methods in the Physical Sciences*, volume 39, pages 65–134. Academic Press, 2001.
  - [137] A. Neubrand and P. Hess. Laser generation and detection of surface acoustic waves: Elastic properties of surface layers. *Journal of Applied Physics*, 71(1):227–238, 1992.
  - [138] P. Cielo, F. Nadeau, and M. Lamontagne. Laser generation of convergent acoustic waves for materials inspection. *Ultrasonics*, 23(2):55–62, 1985.
  - [139] V. E. Gusev and O. B. Wright. Ultrafast nonequilibrium dynamics of electrons in metals. *Physical Review B*, 57(5):2878–2888, 1998.
  - [140] R. Ulbricht, H. Sakuma, Y. Imade, P. H. Otsuka, M. Tomoda, O. Matsuda, H. Kim, G. W. Park, and O. B. Wright. Elucidating gigahertz acoustic modulation of extraordinary optical transmission through a two-dimensional array of nano-holes. *Applied Physics Letters*, 110(9):1–5, 2017.
  - [141] K. Yu, T. Devkota, G. Beane, G. P. Wang, and G. V. Hartland. Brillouin Oscillations from Single Au Nanoplate Opto-Acoustic Transducers. *ACS Nano*, 11(8):8064–8071, 2017.
  - [142] S. Sadtler, A. Devos, and M. Foret. Hypersound damping in vitreous silica measured by ultrafast acoustics. *International Journal of Thermophysics*, 34(8-9):1785–1794, 2013.
  - [143] H. Ogi, T. Shagawa, N. Nakamura, M. Hirao, H. Odaka, and N. Kihara. Elastic constant and Brillouin oscillations in sputtered vitreous SiO<sub>2</sub> thin films. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 78(13), 2008.
  - [144] C. A. Maynell and G. A. Saunders. Ultrasonic loss in sodium borosilicate glasses. *Solid State Communications*, 11(10):1345–1349, 1972.
  - [145] B. E. A. Saleh and M. C. Teich. *Fundamentals of Photonics*. Wiley Series in Pure and Applied Optics. Wiley, 2nd edition, 2007.
  - [146] O. B. Wright. Thickness and sound velocity measurement in thin transparent films with laser picosecond acoustics. *Journal of Applied Physics*, 71(4):1617–1629, 1992.
  - [147] H. A. Bethe. Theory of Diffraction by Small Holes. *Physical Review*, 66(7-8):163–182, 1944.

- 
- [148] T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio, and P. A. Wolff. Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays. *Nature*, 391(6668):667–669, 1998.
  - [149] T. Thio, K. M. Pellerin, R. A. Linke, H. J. Lezec, and T. W. Ebbesen. Enhanced light transmission through a single subwavelength aperture. *Optics Letters*, 26(24):1972, 2001.
  - [150] H. J. Lezec. Beaming Light from a Subwavelength Aperture. *Science*, 297(5582):820–822, 2002.
  - [151] L. Martín-Moreno, F. J. García-Vidal, H. J. Lezec, K. M. Pellerin, T. Thio, J. B. Pendry, and T. W. Ebbesen. Theory of Extraordinary Optical Transmission through Subwavelength Hole Arrays. *Physical Review Letters*, 86(6):1114–1117, 2001.
  - [152] L. Salomon, F. Grillot, A. V. Zayats, and F. d. Fornel. Near-Field Distribution of Optical Transmission of Periodic Subwavelength Holes in a Metal Film. *Physical Review Letters*, 86(6):1110–1113, 2001.
  - [153] F. I. Baida and D. Van Labeke. Three-dimensional structures for enhanced transmission through a metallic film: Annular aperture arrays. *Physical Review B*, 67(15):155314, 2003.
  - [154] M. Sarrazin and J.-P. Vigneron. Light transmission assisted by Brewster-Zennek modes in chromium films carrying a subwavelength hole array. *Physical Review B*, 71(7):075404, 2005.
  - [155] F. J. García de Abajo, R. Gómez-Medina, and J. J. Sáenz. Full transmission through perfect-conductor subwavelength hole arrays. *Physical Review E*, 72(1):016608, 2005.
  - [156] A. V. Kats, M. L. Nesterov, and A. Y. Nikitin. Excitation of surface plasmon-polaritons in metal films with double periodic modulation: Anomalous optical effects. *Physical Review B*, 76(4):045413, 2007.
  - [157] H. Liu and P. Lalanne. Microscopic theory of the extraordinary optical transmission. *Nature*, 452(7188):728–731, 2008.
  - [158] J. B. Pendry. Mimicking Surface Plasmons with Structured Surfaces. *Science*, 305(5685):847–848, 2004.
  - [159] Schott AG. Optical Glass Data Sheets, 2017.
  - [160] J. Fish, T. Belytschko, 山田貴博, 永井学志, and 松井和己. 有限要素法. 丸善, 2008.
  - [161] D. R. Lide. *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 85th Edition*. Number 第 85 卷 in CRC Handbook of Chemistry and Physics, 85th Ed. Taylor & Francis, 2004.
  - [162] R. W. Dixon. Photoelastic Properties of Selected Materials and Their Relevance

- for Applications to Acoustic Light Modulators and Scanners. *Journal of Applied Physics*, 38(13):5149–5153, 1967.
- [163] J. B. Pendry, A. J. Holden, W. J. Stewart, and I. Youngs. Extremely low frequency plasmons in metallic microstructures. *Physical Review Letters*, 76(11):4773–4776, 1996.
  - [164] T. D. Corrigan, P. W. Kolb, A. B. Sushkov, H. D. Drew, D. C. Schmadel, and R. J. Phaneuf. Optical plasmonic resonances in split-ring resonator structures: an improved LC model. *Opt. Express*, 16(24):19850, 2008.
  - [165] S. Linden, C. Enkrich, M. Wegener, J. Zhou, T. Koschny, and C. M. Soukoulis. Magnetic Response of Metamaterials at 100 Terahertz. *Science*, 306(19):1351–1353, 2004.
  - [166] P. Cheyssac, R. Garrigos, R. Kofman, L. Pénavaire, J. Richard, and A. Saïssy. Modulation spectroscopy of gold: Comparative studies. *Surface Science*, 37:683–688, 1973.
  - [167] C. He, O. Ristow, M. Grossmann, D. Brick, Y. Guo, M. Schubert, M. Hettich, V. Gusev, and T. Dekorsy. Acoustic waves undetectable by transient reflectivity measurements. *Physical Review B*, 95(18):184302, 2017.
  - [168] I. Sersic, M. Frimmer, E. Verhagen, and A. F. Koenderink. Electric and Magnetic Dipole Coupling in Near-Infrared Split-Ring Metamaterial Arrays. *Physical Review Letters*, 103(21):1–4, 2009.
  - [169] J. Han and A. Lakhtakia. Semiconductor split-ring resonators for thermally tunable, terahertz metamaterials. *America*, 0340(December):9, 2008.
  - [170] C. Rockstuhl, F. Lederer, C. Etrich, T. Zentgraf, J. Kuhl, and H. Giessen. On the reinterpretation of resonances in split-ring-resonators at normal incidence. *Opt. Express*, 14(19):8827–8836, 2006.
  - [171] D. Shelton, I. Brener, J. C. Ginn, M. B. Sinclair, D. W. Peters, K. R. Coffey, and G. D. Boreman. Strong Coupling between Nanoscale Metamaterials and Phonons. *Nano Letters*, 11(5):2104–2108, 2011.
  - [172] N. P. Johnson, B. Lahiri, A. Z. Khokhar, R. M. De La Rue, and S. McMeekin. Optical properties of split ring resonator metamaterial structures on semiconductor substrates. In N. P. Johnson, E. Özbay, N. I. Zheludev, and R. W. Ziolkowski, editors, *PROCEEDINGS VOLUME 6987 SPIE PHOTONICS EUROPE — 7-11 APRIL 2008 Metamaterials III*, page 69871F, 2008.
  - [173] S. Linden, C. Enkrich, G. Dolling, M. W. Klein, J. Zhou, T. Koschny, C. M. Soukoulis, S. Burger, F. Schmidt, and M. Wegener. Photonic Metamaterials: Magnetism at Optical Frequencies. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 12(6):1097–1105, 2006.
  - [174] C. Rockstuhl, T. Zentgraf, H. Guo, N. Liu, C. Etrich, I. Loa, K. Syassen, J. Kuhl,

- 
- F. Lederer, and H. Giessen. Resonances of split-ring resonator metamaterials in the near infrared. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 84(1-2):219–227, 2006.
- [175] Y. Imade, R. Ulbricht, M. Tomoda, O. Matsuda, G. Seniutinas, S. Juodkazis, and O. B. Wright. Gigahertz Optomechanical Modulation by Split-Ring-Resonator Nanophotonic Meta-Atom Arrays. *Nano Letters*, 17(11):6684–6689, 2017.
- [176] V. V. Temnov. Ultrafast acousto-magneto-plasmonics. *Nature Photonics*, 6(11):728–736, 2012.
- [177] P. V. Ruijgrok, P. Zijlstra, A. L. Tchebotareva, and M. Orrit. Damping of Acoustic Vibrations of Single Gold Nanoparticles Optically Trapped in Water. *Nano Letters*, 12(2):1063–1069, 2012.
- [178] R. J. Smith, F. P. Cota, L. Marques, X. Chen, A. Arca, K. Webb, J. Aylott, M. G. Somekh, and M. Clark. Optically excited nanoscale ultrasonic transducers. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 137(1):219–227, 2015.
- [179] C. Jean, L. Belliard, T. W. Cornelius, O. Thomas, M. E. Toimil-Molares, M. Cassinelli, L. Becerra, and B. Perrin. Direct observation of gigahertz coherent guided acoustic phonons in free-standing single copper nanowires. *Journal of Physical Chemistry Letters*, 5(23):4100–4104, 2014.
- [180] S. Mezil, K. Fujita, P. H. Otsuka, M. Tomoda, M. Clark, O. B. Wright, and O. Matsuda. Active chiral control of GHz acoustic whispering-gallery modes. *Applied Physics Letters*, 111(14):144103, 2017.
- [181] J. Sadhu, J. H. Lee, and S. Sinha. Frequency shift and attenuation of hyper-sonic surface acoustic phonons under metallic gratings. *Applied Physics Letters*, 97(13):133106, 2010.
- [182] M. E. Siemens, Q. Li, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, R. Yang, E. H. Anderson, and K. A. Nelson. High-frequency surface acoustic wave propagation in nanostructures characterized by coherent extreme ultraviolet beams. *Applied Physics Letters*, 94(9):093103, 2009.
- [183] M. Grossmann, O. Ristow, M. Hettich, C. He, R. Waitz, E. Scheer, V. Gusev, T. Dekorsy, and M. Schubert. Time-resolved detection of propagating Lamb waves in thin silicon membranes with frequencies up to 197 GHz. *Applied Physics Letters*, 106(17):171904, 2015.
- [184] M. Schubert, M. Grossmann, O. Ristow, M. Hettich, A. Bruchhausen, E. C. S. Barretto, E. Scheer, V. Gusev, and T. Dekorsy. Spatial-temporally resolved high-frequency surface acoustic waves on silicon investigated by femtosecond spectroscopy. *Applied Physics Letters*, 101(1):013108, 2012.
- [185] 岡本隆之 and 梶川浩太郎. プラズモニクス : 基礎と応用. 講談社, 2010.



## 謝辞

本論文を完成させるにあたり、多くの方から指導、激励をいただきました。関係者の方々に、この場を借りてお礼申し上げます。

量子機能工学研究室に配属されてから早いもので6年が経過しました。指導教官である Wright 教授は研究室に配属された頃から今まで、常に世界中を飛び回られている大変ご多忙な方ですが、顔の見られない期間中でも常に私の研究には気を掛けて下さいました。光学系の調整すらまともにできなかった学部4年生のころには当時在籍していたポスドクの Ulbricht 氏をサポートにつけていただくなど、憂いなく研究できるよう多くの場面で適切な配慮をしていただけたと思います。まだまだ若く、未熟な私では Wright 先生がその言動でもって示してきたもののすべてを言い表すことも実行することもできませんが、それらを胸に秘めてこれから社会に出ていこうと思います。松田准教授は研究について鋭い指摘をよくいただきました。そういった直接的なことももちろんですが、コンピュータやネットワーク関係、研究機器の扱いや調整に関しても多大な援助をいただきました。特に修士1年から丸3年近く取り組んでいた L101 のレーザー同期の問題については松田先生の助けなくしては解決のめどを立てることも不可能でした。友田助教は多忙な Wright 教授に代わり実験や解析、シミュレーションをはじめ、研究に関する広範な援助を日常的にいただきました。それ以外にも研究室の運営にも気を遣っていただき、快適な研究室生活を送ることができました。ポスドクの Ulbricht 氏は実験技術の向上、Otsuka 氏は難解な解析プログラムの作成に関し、多くの援助をいただきました。そのほか、短期間滞在された教授陣やポスドク、先輩、同期、後輩、留学生など、この6年間で出会ったすべての方に感謝申し上げます。また秘書の高橋さん、山崎さんにも事務の面でご協力いただき大変感謝しております。

実験の実施にあたり、EOT のテーマを快く引き継がせていただいた当研究室 OB の佐久間さんに心より感謝申し上げます。金スプリットリング共振器構造を作製・提供していただいた豪州 Swinburne University of Technology の G. Seniutinas 氏、S. Juodkazis 教授に心より感謝申し上げます。白色分光実験に関して、的確な助言を頂いた、北海道大学応用物理学専攻の戸田教授に心より感謝申し上げます。表面弾性波トランスデューサ構造に関して、テーマの構築に全面的に協力して頂いた仏国 Le Mans University の V. Gusev 教授に心より感謝申し上げます。またトランスデューサ構造を作製するにあたり、北海道大学電子科学研究所の酒井助教、大西さんに多くご助言を頂きましたこと、心より



感謝申し上げます。また、電子線リソグラフィ、スパッタリング装置の利用については北海道大学オープンファシリティの、走査型電子顕微鏡の利用については北海道大学先端物性共用ユニットの協力を得ました。

最後になりましたが、27歳という世間的には独り立ちしていて当然の年齢になるまで何不自由なく学生であり続けさせていただいた両親に心よりの感謝を表させていただきます。この6年間、多くの人の助けを得ながら進んでまいりました。ここで学んだことを卒業後も忘れず、技術者、研究者として精進する所存であります。ありがとうございました。