

## 2B18

### フォントラップ分光：金属超微粒子単層膜による共振器の光透過特性制御の解析

(コンボン研\*、豊田工大\*\*)

江頭和宏\*、寺寄 亨\*\*、近藤 保\*\*

【序】固体表面吸着種の光吸収を超高感度に検出する原理的に新しい手法として、フォントラップ分光法の開発を進めてきた[1, 2]。これは、光共振器中に定在波状に閉じ込めた光と試料とを相互作用させ、試料の光吸収によって光閉じ込め寿命が短縮されることを測定原理とする計測法であり、光源の強度変動の影響を受けないために極めて高い感度が得られることが特長である。その過程で、表面吸着種のように波長に比べて十分に薄い試料が定在波の節に位置する場合に光吸収が消失する「透明化現象」を見出した[2]。

微弱な吸収を捉える目的で行なったこれまでの実験[2]では、吸収体の吸光度は 100 ppm 程度であり、透過光の強度が目に見えて変化するような「透明化」は体感できないが、仮に光を 10%しか透過しない薄膜吸収体があれば、共振器を構成して透過率をほぼ 100%にまで大きく変化させることができるはずである。本講演では、そのような吸収体候補となる物質として、表面プラズモン共鳴に由来する強い吸収を示す金属超微粒子に着目した。これをモデル化して数値解析を行ない、「透明化」の可能性を検討した。とりわけ、入射された光が吸収を免れて蓄積され、定在波形成するに至るか否かは自明ではなく、ビルドアップ過程をシミュレーションしてそのダイナミクスを解析した結果を報告する。

【解析手法とモデル】(1) 解析手法：まず、光強度の時間発展を解析するために、マクスウェル方程式の数値解法を開発した。標準的な電磁場解析手法である時間領域差分(FDTD)法では、解法の不安定さが原因で、強い吸収を持つ媒質内で光強度が発散する問題が生じた。そのため、微分方程式の安定な数値解法として知られる CIP (Constrained Interpolation Profile)法を基礎として、屈折率の異なる媒質間の光伝播を精密かつ効率的に取り扱う計算手法を開発して解析を行なった。

(2) モデル光学系：薄膜吸収体を挿入した光共振器は、図 1 のように 5 つの領域から成る光学系と見なせる[1]。領域 0 と 4 は共振器鏡に相当する。これらは仮想的に屈折率の大きな光学媒質と考えることができ、その反射率  $R$  は、

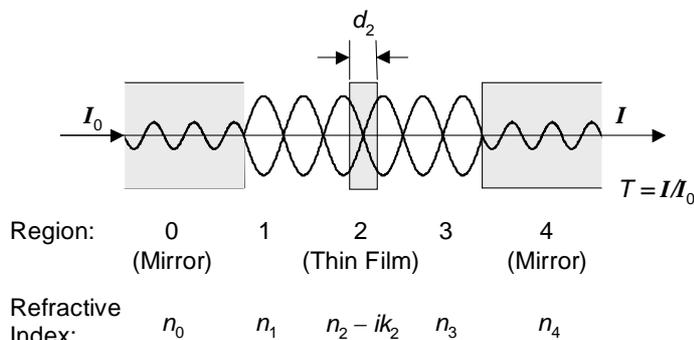


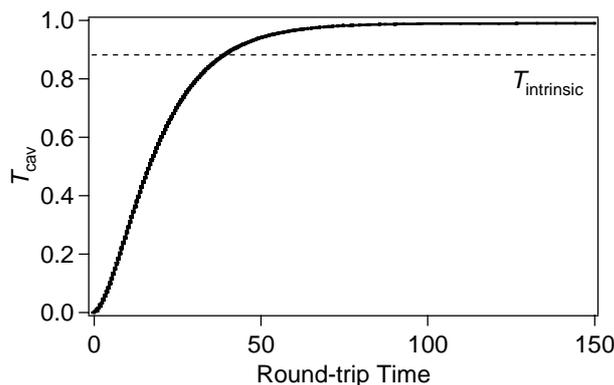
図 1 モデル共振器の構成図

$n_0 = n_4 = n_{\text{mirror}}$  の場合に、 $R = [(n_{\text{mirror}} - 1)/(n_{\text{mirror}} + 1)]^2$  で与えられる。共振器内部の領域 1、3 は真空とし( $n_1 = n_3 = 1$ )、中央に厚さ  $d_2$  の薄膜吸収体(領域 2)を置く。その複素屈折率を  $\hat{n}_2 = n_2 - ik_2$  として吸収の効果を取り入れた( $n_2$  は屈折率、 $k_2$  は消衰係数)。この媒質中を光が距離  $d_2$  進んだときの光の透過率  $T_{\text{intrinsic}}$  は物質固有の消衰係数  $k_2$  で決まり、 $T_{\text{intrinsic}} = \exp(-4\pi k_2 d_2 / \lambda)$  で与えられる( $\lambda$  は真空中の波長)。

(3) モデル物質：強い吸収を持つ物質の具体例として、400 nm 周辺で表面プラズモン共鳴吸収(吸収断面積： $1 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$ )を持つ、直径 4 nm の銀ナノ粒子を考える。このナノ粒子を単層状に敷き詰めた超薄膜を想定すると、その透過率は 90% と見積もられる。そこで、厚さ  $d_2/\lambda = 1/100$ 、屈折率  $n_2 = 2.0$ 、消衰係数  $k_2 = 1.0$  の薄膜媒質 ( $T_{\text{intrinsic}} = 88.2\%$ ) を薄膜吸収体のモデルとした。

【計算手順と結果】まず、高い透過を得る上で最適な共振器条件を求めるために、以下の計算を行なった。第 1 に、透明薄膜( $k_2 = 0$ )の場合に共振器出力  $T_{\text{cav}}$  が 100% となる最適な共振器長と薄膜位置とを求めた。第 2 に、薄膜に吸収項( $k_2 = 1.0$ )を入れて、 $T_{\text{cav}}$  が最大となる共振器鏡の最適反射率  $R_{\text{opt}}$  を求めた( $R$  が増加すると、ちょうど節位置の電場強度は弱まる一方で、節近傍の電場は、共振器内の電場増強によりむしろ強まる。有限厚さの吸収体では両者が競合し、 $R_{\text{opt}}$  が決まる[3])。一連の計算から最適値  $R_{\text{opt}} = 93.0\%$  ( $n_{\text{mirror}} = 55.0$ ) が決定された。このようにして得られた最適な共振器条件下で、共振器に光を入射後、 $T_{\text{cav}}$  が時間とともに増加して一定値に達するビルドアップ過程を計算した。

結果を図 2 に示す。光が共振器を 40 回往復する程度の中に  $T_{\text{cav}}$  は  $T_{\text{intrinsic}}$ (図 2 の点線)を上回り、最終的に一定値(99.0%)に達した。この出力値は、定常状態の解析と一致する結果である[3]。このように、



最適な共振器鏡の反射率と位相条件とにおいて、共振器中に定在波が形成され、その透過率は  $T_{\text{intrinsic}}$  よりも大きくなること( $T_{\text{cav}}^{\text{max}} > T_{\text{intrinsic}}$ )が示された。即ち、共振器を構成することで、金属超微粒子単層膜のように強い吸収を持つ吸収体を「透明化」することができる。

図 2 共振器出力の時間発展

[1] A. Terasaki, T. Kondow, and K. Egashira, J. Opt. Soc. Am. B, **22**, 675–686 (2005).

寺寄、江頭、近藤 分光研究、**56**, 62–65 (2007).

[2] K. Egashira, A. Terasaki, and T. Kondow, J. Chem. Phys. **126**, 221102 (2007).

[3] 江頭、寺寄、近藤 分子構造総合討論会 4P019 (2006).