

京都大学	博士 (工学)	氏名	羅 天易 (Lo TienYang)
論文題目	Flexible Metasurface Stickers: Fabrication, Integration and Dynamically Tunable Optical Resonances (フレキシブルメタサーフェスの作製・集積化と動的制御可能な光学共振に関する研究)		
(論文内容の要旨)			
本論文は、金属あるいは誘電体のナノ粒子から構成されるメタサーフェスをフレキシブルな状態で作製し、単層あるいは積層膜において観察される光学的性質を実験と数値計算に基づいて調べ、光学現象が生じる機構を考察した結果をまとめたものであって、7章からなっている。 第1章は序章であり、メタ光学の基本概念である局在型表面プラズモン共鳴、ミー共鳴、表面格子共鳴 (SLR)、連続体における束縛状態 (BIC) などについて説明するとともに、ナノ光学分野においてフレキシブルなメタサーフェスを作製することの意義を述べている。プラズモン共鳴とミー共鳴はそれぞれ金属と誘電体のナノ粒子に特徴的な現象であり、前者では Ag、Au、Al などが、後者では Si や TiO₂ などが実用的な観点から有望な材料となりうることを、特にミー共鳴では光学損失が抑制できるとともに電気的なモードのみならず磁気的なモードも光機能の増幅に利用できることを説明している。また、ナノ粒子の2次元規則配列に特徴的な SLR は高い Q 値と光学的状態密度を提供する場となること、BIC は無限の Q 値とトポロジカルな性質を有する非常に特異な状態であることを述べている。 第2章では Ag ナノ粒子からなるフレキシブルメタサーフェスの作製と光物性について報告している。ナノインプリントリソグラフィー法で Ag メタサーフェスを得る際に、基板との接着性が乏しい Ag 薄膜が鋳型に密着したまま剥離してしまうという作製上の困難に対し、基板と Ag 薄膜の間に Al の超薄膜を設けることでこの問題を克服して、Ag ナノ粒子アレイがポリジメチルシロキサン (PDMS) 樹脂に埋め込まれたフレキシブルメタサーフェスを作製することに成功している。得られた Ag メタサーフェスに対して消光スペクトルの入射角依存性の測定を行い、消光係数が SLR の回折線に沿って変化することを見いだすとともに、有限要素法に基づく数値計算により、面外方向の電気四極子と面内方向の電気双極子からなる SLR モードが消光の波長ならびに入射角依存性に寄与することを明らかにしている。また、蛍光色素分子であるルモゲンを含むポリメチルメタクリレート (PMMA) 膜と Ag メタサーフェスを組み合わせることにより、メタサーフェスに特徴的な指向性の強い発光を実現している。 第3章では、非晶質 GeO₂ の高い水溶性に着目し、フレキシブルメタサーフェスを作る際に必要となる犠牲層としてこの物質を用いる手法を新たに提案している。ミスト化学気相成長法を用いてシリカガラス基板上に非晶質 GeO₂ 薄膜を成長させ、これを 750℃で熱処理しても非晶質状態が保たれ、薄膜の表面粗さも 1 nm 以下に低減できることを見だし、この薄膜を犠牲層として、TiO₂ ナノ粒子の2次元規則配列が PDMS 膜に埋入されたフレキシブルメタサーフェスを作製することに成功している。その際、Ti 金属ナノ粒子の 750℃での熱酸化によって TiO₂ ナノ粒子を得ていることから、非晶質 GeO₂ の高い耐熱性がこの種のメタサーフェスの作製に有効であることを示唆している。また、TiO₂ メタサーフェスの消光スペクトルの入射角依存性を測定し、数値計算から導かれる結果とよい一致を示すことを見いだすとともに、Y₃Al₅O₁₂:Ce³⁺ 蛍光体との組合せにより指向性の強い発光の増強を実現している。			

京都大学	博士（工学）	氏名	羅 天易（Lo TienYang）
第4章では、シリカガラス基板上に作製した TiO_2 メタサーフェスと Ag フレキシブルメタサーフェスを積層することによって擬3次元構造を実現し、そこに見られる新たな光学現象を実験と数値計算に基づいて解析している。層間の距離を変えて2種類のメタサーフェスを積層し、消光スペクトルを測定して、面外電気四極子 SLR モードに基づくピークが層間距離の減少にともなって分裂し、層間距離が短いほど分裂したピークのエネルギー差が大きくなるという現象を見いだしている。この系に対して数値計算を実行し、層間距離が短くなると TiO_2 メタサーフェスと Ag メタサーフェスの面外電気四極子 SLR モードがカップリングして四極子の対称モードと反対称モードを形成するため消光スペクトルのピークに分裂が生じることを明らかにしている。また、層間距離が長いと磁氣的 SLR モードが支配的であるが、層間距離が約 400 nm 以下になると電氣的 SLR モードが支配的になること、さらに、膜厚の異なるルモゲン含有 PMMA 膜をコートした TiO_2 メタサーフェスに Ag フレキシブルメタサーフェスを積層した系の発光増強が、約 400 nm の層間距離を境に大きく変化することを見いだしている。加えて、TiO_2 ナノ粒子と Ag ナノ粒子の位置が互いにずれたとしても消光スペクトルや発光スペクトルがほとんど変化しないことを実験と数値計算から明らかにしている。 第5章では、二つの TiO_2 メタサーフェスの積層で得られる擬3次元構造を対象に、光学現象の測定と解析を行っている。第4章で述べた Ag メタサーフェスと TiO_2 メタサーフェスの積層の場合と同様、各層における面外四極子 SRL モードが積層によってカップリングし、その度合いが層間距離の減少にともない増加すること、カップリングの大きさと層間距離依存性は、実験および数値計算で得られる消光スペクトルのピークの分裂に反映されることを見いだしている。特に二つの誘電体 (TiO_2) メタサーフェスを積層することの特徴として、電気四極子モードのみならず磁気四極子モードのカップリングが起これ、それぞれの対称・反対称モードが出現することを明らかにしている。また、発光層と組み合わせた場合、電気四極子モードと磁気四極子モードのいずれもが発光の指向性の向上に寄与するとともに、Ag/TiO_2 系積層メタサーフェスと比べて光学損失の少ない発光を実現できることを示している。 第6章では、フレキシブルメタサーフェスの特徴を活かして、TiO_2 メタサーフェスを面内一軸方向に伸長することでナノ粒子の配列を変えて、それにとまう光学的性質の変化を調べている。伸長によるひずみの大きさに依存して多極子モードが変化し、光学的バンド構造にも変化が生じること、また、ひずみの導入により2次元格子の対称性が低下し、ひずみの小さい領域では二重の BIC が現れることを実験と数値計算に基づいて実証している。さらに、数値計算に基づき、メタサーフェスの面外方向の電気双極子ならびに磁気双極子モードの2次元波数空間における分布が、BIC を特異点としてトポロジカルチャージをもたらすこと、その符号がひずみの大きさにともない反転することを見いだしている。 第7章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。			