

17a-F12-9

VO₂ ナノドットアレイからの赤外表面プラズモン: モット相転移と近接場効果Surface plasmons emerged from VO₂ nanodot arrays: Mott transition and near-field effects東大工¹, 阪大産研² °松井裕章¹, 神吉輝夫², 田中秀和², 田畑仁¹The Univ. of Tokyo¹, ISIR-Sanken, Osaka Univ.²,°Hiroaki Matsui¹, Teruo Kanki², Hidekazu Tanaka², and Hitoshi Tabata¹

E-mail: hiroaki@ee.t.u-tokyo.ac.jp

光局在性を誘起する表面プラズモンは、物質中の様々な素励起と結合し、興味ある光学的性質を示す。近年、赤外プラズモン励起に向けて、半導体や酸化材料が”Designed metals”として注視されている[1, 2]。特に、電子濃度変化に立脚したプラズモン制御は、従来の貴金属では実現しえない機能である。本講演では、VO₂ の絶縁体から金属へのモット相転移に伴う赤外表面プラズモンの制御、及びその光学的性質を示す。更に、ナノドット間で生じる近接場励起がモット相転移に与える影響を考察する。

プラズモン共鳴のピークエネルギー($h\nu_{sp}$)は、816 nm のドットサイズにおいて、0.4 eV の赤外域で観測される(図 1a 挿入図)。更に、ピークエネルギーはドットサイズに依存し、1 から 0.4 eV の範囲内でシフトする(図 1)。スペクトル半値幅(Γ)に起因するプラズモン寿命($\tau_{sp} = 2\hbar/\Gamma$)は、 $h\nu_{sp}$ が赤外へレッドシフトすることで向上し、 $\tau_{sp} = 12$ fs (816 nm のドット試料)に達する。これは、VO₂ の伝導帯の電子構造に関連する。フェルミ準位から 1.2 eV に局在した 3d 軌道が、光励起に伴う電子間遷移(3d 軌道から伝導帯空位)が生じ、プラズモン振動のコヒーレンスが阻害される(図 1b)。故に、近赤外域(0.8 - 1.0 eV)は、プラズモン励起が弱く、3d 軌道からの電子間遷移が小さい中赤外域(0.4 - 0.6 eV)において、プラズモン励起が増強し、プラズモン寿命の増大に至る。しかし、実験結果に基づく τ_{sp} は、単一ナノドットとして仮定した長波長近似(MLWA)に基づく理論的な τ_{sp} と大きく相違する(図 1(a), 赤線)。これは、ナノドット間の近接場効果が強く影響している。

図 2a 及び図 2b に、816 nm のドット試料におけるプラズモン共鳴強度とそのピークエネルギーの温度依存性を示す。共鳴強度は、温度上昇に伴う相転移によって増大し、相転移に必要な温度幅(ΔT)は約 30°C である。一方、共鳴ピークエネルギーの相転移に必要な ΔT は 16°C であり、鋭い変化を示す。2 次元ナノドットアレイからの表面プラズモンは、ドット間の”near-field”と”far-field coupling”によって強く影響される。故に、共鳴ピークエネルギーの鋭い相転移は、近距離で相互作用するプラズモン混成(近接場)が重要な役割を果たし、それはピークエネルギーのレッドシフトから示唆される。一方、プラズモンの共鳴強度に関する相転移は、幅広い ΔT を示し、遠距離まで相互作用が必要であることを意味する。

従来の VO₂ における相転移制御は、格子歪や不純物ドーピング技術を用いて実施されてきた。本研究結果から 2 次元ナノドットアレイの構造制御に基づいた近接場効果を利用し、モット相転移の新しい人工制御が期待される。

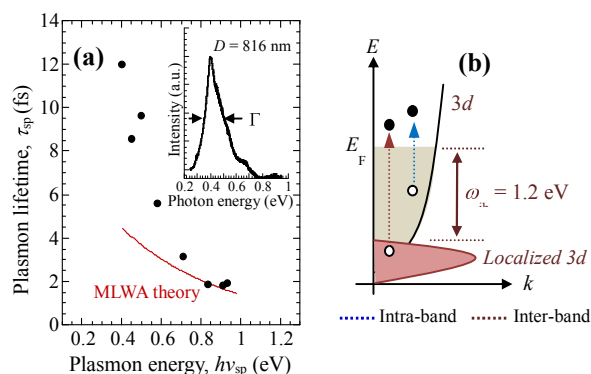
[1] H. Matsui, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 011913 (2011).[2] H. Matsui, *Advanced Opt. Materials* **1**, 397 (2013).

図 1. (a) プラズモン寿命(τ_{sp})と共鳴ピークエネルギーとの相関。挿入図は、金属相の VO₂ ナノドットアレイからの表面プラズモン共鳴($D = 816$ nm)。 (c) VO₂ における伝導帯の電子バンド構造。

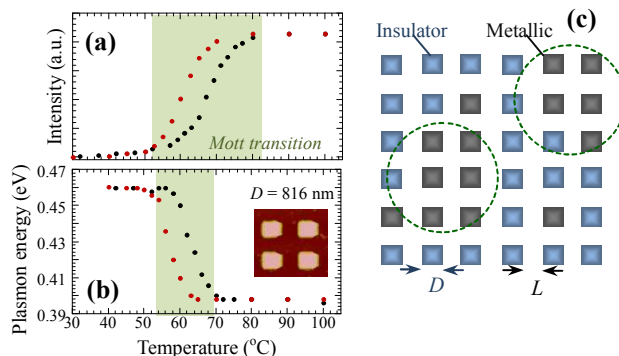


図 2. プラズモン共鳴強度(a)及び共鳴エネルギー(b)の温度依存性。 (c) 金属相クラスター形成の模式図。