

日本女子大学 博士学位論文

低次元周期性を有するフォトニック結晶
の構造と光物性

島田良子

は し が き

これは、学位規則(昭和28年4月1日文部省令第9号)第4条第1項により、平成12(2000)年9月24日に本学において博士(理学)の学位を授与した者の論文である。

日本女子大学博士学位論文

目次

第一章 序論

低次元周期性を有するフォトリック結晶
の構造と光物性

1.1 低次元周期性を有するフォトリック結晶の概要

1.2 低次元周期性を有するフォトリック結晶の構造

1.3 低次元周期性を有するフォトリック結晶の光物性

1.4 低次元周期性を有するフォトリック結晶の応用

1.5 低次元周期性を有するフォトリック結晶の将来展望

1.6 低次元周期性を有するフォトリック結晶の参考文献

1.7 低次元周期性を有するフォトリック結晶の結論

1.8 低次元周期性を有するフォトリック結晶の謝辞

1.9 低次元周期性を有するフォトリック結晶の参考文献

1.10 低次元周期性を有するフォトリック結晶の参考文献

第二章 低次元周期性を有するフォトリック結晶の構造

2.1 低次元周期性を有するフォトリック結晶の概要

2.2 低次元周期性を有するフォトリック結晶の構造

2.3 低次元周期性を有するフォトリック結晶の光物性

2.4 低次元周期性を有するフォトリック結晶の応用

2.5 低次元周期性を有するフォトリック結晶の将来展望

2.6 低次元周期性を有するフォトリック結晶の参考文献

2.7 低次元周期性を有するフォトリック結晶の結論

2.8 低次元周期性を有するフォトリック結晶の謝辞

2.9 低次元周期性を有するフォトリック結晶の参考文献

2.10 低次元周期性を有するフォトリック結晶の参考文献

島 田 良 子

目次

第1章 序論	1
1.1 本研究全体の背景	1
1.2 本研究の経緯と位置付け	4
1.3 本研究の目的	5
1.4 本論文の構成	6
第2章 誘電体球配列構造のフォトニック・バンド状態：理論	8
2.1 はじめに	8
2.2 電子と光子(フォトン)	9
2.3 フォトンに対する散乱問題	10
2.4 孤立した誘電体球による光散乱現象	21
2.5 周期的に誘電体球が配列した系のフォトニック・バンド	22
2.6 本研究における理論の位置付け	28
2.6.1 Si_3N_4 球 2 次元結晶を用いた実験との比較	28
2.6.2 本研究における理論的解析の位置付け	30
第3章 擬 2 次元フォトニック結晶の構造と光物性	32
3.1 はじめに	32
3.2 コロイド結晶の研究	33
3.2.1 3 次元コロイド結晶	33
3.2.2 2 次元コロイド結晶	35

3.2.3	フォトニック結晶としてのコロイド結晶	36
3.3	コロイド微粒子を用いた擬2次元フォトニック結晶	38
3.3.1	ポリスチレン微粒子（ラテックス）とその性質	38
3.3.2	自己集積によるコロイド微粒子の配列	40
3.4	擬2次元フォトニック結晶の作製方法	43
3.4.1	バッチ法	43
3.4.2	移流集積法：Dimitrov cell method	45
3.5	擬2次元フォトニック結晶の光物性	46
3.5.1	ポリスチレン・ラテックス粒子の評価	46
3.5.2	実験方法	48
3.5.3	実験結果および考察	53
3.6	実験と理論によるスペクトル幅の違い	66
3.7	まとめ	70
第4章	2重周期構造を有する1次元フォトニック結晶の光物性	71
4.1	はじめに	71
4.2	転送行列法	72
4.3	2重周期性の概念	79
4.4	2重周期性を有する1次元フォトニック結晶：誘電率変調モデル	80
4.4.1	誘電率変調に用いた計算モデル	80
4.4.2	2重周期構造の光学的特徴：光のバタフライ・ダイアグラムと 強く局在したバンド状態の出現	81
4.5	2重周期性を有する1次元フォトニック結晶：厚み変調モデル	96
4.5.1	厚み変調に用いた計算モデル	96
4.5.2	厚み変調2重周期系でのフォトニック・バンドの分裂と 光のバタフライ・ダイアグラム	97
4.6	厚み変調による2重周期構造の光物性：実験的検討	101

4.6.1	本実験の位置付け	101
4.6.2	誘電体多層膜の作製	102
4.6.3	実験結果および考察	103
4.7	2重周期構造の応用：光ファイバグレーティング	107
4.7.1	光ファイバグレーティング	107
4.7.2	2重周期性を有する光ファイバグレーティング	108
4.8	まとめ	111
第5章 結論		113
謝辞		117
参考文献		120
研究業績リスト		127

第1章 序論

1.1 本研究全体の背景

「フォトリック結晶」と呼ばれる誘電体媒質に関する研究が、光物性、量子エレクトロニクス、光エレクトロニクス、高分子化学、コロイド化学など基礎から応用にわたる非常に広範な分野での注目を集めている [1]。

ここで、「フォトリック結晶」とは、電磁波としての光の波長と同程度のスケールで誘電率（屈折率）が周期的に変化する構造を持つ誘電体の総称である。このような周期構造の中での光は、多重散乱や Bragg 回折現象により、半導体や金属結晶における電子バンド構造に類似した特徴を有する固有モードよりなる光子（フォトリック）バンド構造を示す。ただし、電子が Schrödinger 方程式に従う Fermi 粒子であるのに対して、光は Maxwell 方程式で記述される電磁波であり、量子としては Bose 粒子であるという違いはあるが、周期的な散乱体による多重散乱と回折効果に基づいたバンド効果を示すという点では類似した点が少なくない。そのため、基礎的な研究対象としてだけでなく、新規な光機能性を有する光デバイスへの応用にも大きな期待がもたれている [2, 3, 4]。

このような「フォトリック結晶」に関する研究は、それが内外で本格化してからまだ 10 数年しかたっていない。1979 年に大高一雄教授（当時は東京大学、現在は千葉大学）によって球状の誘電体周期構造の中での光（フォトン）のエネルギーバンドの理論的な取り扱いがなされた [5]。この理論は、球状の誘電体微粒子が面心立方格子状に配列した系での電磁波の回折現象をベクトル球面波展開法を用いて定式化したものであり、当時としては、先進的な研究であったが、内外の多くの研究者は、

現実的な研究対象にはなり難い純粋な数理モデルに過ぎないと考えたためか、惜しいことに新しい研究の展開をもたらすには至らなかった。

フォトニック結晶に対して多くの研究者が注目するようになったのは、大高らの研究より約8年後の1987年に米国の E. Yablonovitch が、結晶光学の観点から誘電体周期構造の光学的性質(ただし、マイクロ波領域)を検討し、あらゆる方向に光の伝搬が禁止される禁制帯、つまりフォトニック・バンド・ギャップ (Photonic Band Gap) が生じ得ること、さらにそれによって自然放出を制御する可能性を指摘した時からとされている [6]。Yablonovitch らは、実際に実現可能な系として半導体にドリルで斜方向に空洞をあけることにより周期性を導入した3次元フォトニック結晶を作製し、マイクロ波領域でフォトニック・バンド・ギャップが実現されることを示した(このフォトニック結晶は、「Yablonovite」と呼ばれている)。また、その内部に不規則な空洞を入れることにより、そのバンドギャップ中に電子バンド構造でのドナー準位やアクセプター準位に類する欠陥準位を作ること成功している [7]。これと同時期(1987年)に、S. John は、均一な周期構造に不純物や欠陥を導入すると、その周りに光が局在する現象について解析を行っている [8]。このようにして1980年代終わりに始まった「フォトニック結晶」の研究は、その後、自然放出光の制御の可能性や光の局在化を利用した高いQ値の光共振器によって光の増強効果とそれによる新しいレーザーの実現を期待して内外で盛んに行われ、現在に至っている。理想的には、しきい値ゼロのレーザーも可能であるといわれている。さらに、初期の研究でのマイクロ波領域の研究にとどまらず、フォトニクスへの応用展開を考えて、可視光領域から紫外光領域への研究の発展が計られるようになってきた。実際、現在の半導体プロセス技術を用いれば、サブミクロンオーダーの周期構造を作製すること(その精度は別にしても)は十分に可能であり、すでに多くの例が報告がなされている [9]。

微細加工技術の利用が進む一方で、誘電体微粒子を自己組織的に周期配列させた系(3次元系は「人工オパール」とも呼ばれている)についても、フォトニック・バンド・ギャップの評価やその中に発光物質を埋め込んだ発光特性の評価などが盛ん

に行われるようになってきた [10, 11, 12, 13, 14]。コロイド集合体については、フォトリック結晶の研究が開始されるずっと以前から代表的な高分子コロイド(ラテックス)の集合体が示す虹彩色 (iridescence) の研究や粒子の凝集過程の研究などが化学、工学、統計物理学の分野で研究対象とされてきた [15, 16]。しかし、この系をフォトリック結晶という観点から捉えた研究例は、最近に至るまではほとんどなかった(フォトリック結晶としてのコロイド結晶に関する最近の研究については後章で述べる)。また、この系では全方位にわたる完全なフォトリック・バンド・ギャップの実現はきわめて困難であることがわかっているが、球状誘電体微粒子中の光の伝搬と単一誘電体中の Whispering Gallery mode の結合という観点から、原子における分子軌道と対応させて研究した例 [17] など基礎的な観点から物理的興味の研究対象として盛んな研究が行われるようになってきた。

また最近では、完全なフォトリック・バンド・ギャップが得られない結晶についても、バンド構造の持つ強い分散性や異方性を利用して「光を操る」可能性に着目した研究例が報告されている [4]。これらは、「フォトリック結晶光学」という新しい領域へ展開する可能性を与えるとともに、これまでもっぱら固体物理学の観点から捉えていた「フォトリック結晶」を光学の新しい展開として捉えようとするものであり、量子エレクトロニクス、近接場光学など広い分野で注目を集めている。

「フォトリック結晶」をとりまく内外の研究環境は、このように多種、多彩であり、現在盛んな研究が繰り広げられている。今後、基礎的な研究の精密化と同時に、より多様な光機能性素子への応用の可能性の開拓と、その実用化に向かって研究開発が期待されている。

1.2 本研究の経緯と位置付け

本研究は、大きく分けて次の2つからなる。

- 擬2次元フォトリック結晶に関する研究
- 2重周期構造を有する1次元フォトリック結晶に関する研究

前者は、日本女子大学理学部数物科学科国府田隆夫教授の指導のもとに実施してきた。

研究の始まりは、3次元コロイド結晶であった。コロイド微粒子によって作製された3次元周期構造は、虹彩色 (iridescence) を呈する美しい結晶であり、面心立方構造をなす。この虹彩色は、Bragg 回折によるということはすでに明らかにされていたが、この結晶をフォトリック結晶として捉えた研究はほとんどなかった。そこで、このフォトリック結晶の持つ光学特性を明らかにするため、巨大な3次元結晶の作製と種々の光学測定を試みた。一方、球状の誘電体配列構造におけるフォトンのバンド状態についての理論的解析結果はすでに報告されていた [5]。3次元的に配列したコロイド結晶の光学特性を解析するのにあたり、強力な理論的手法となることは明らかであった。しかしながら、水中に浮かぶ3次元コロイド結晶は、熱的にも機械的にも不安定であり、フォトリック結晶の持つ光学特性を調べるには不向きであることが分かった。

そこで、より安定な系での測定を目指して、このコロイド微粒子を2次元平面 (ガラス基板) 上に配列させた2次元コロイド結晶の作製へ研究方針を移行させた。この2次元コロイド結晶を用いて行った光学測定より、フォトリック・バンド効果の現われの一端を確認することはできたものの [18, 19]、さらに精密な光学測定を行うには、作製した結晶の配列性に問題があることが分かった。そこで、さらに試料作製技術に改良を加えた結果、後章 (第3章) で詳しく述べるように、擬2次元コロイド結晶 (六方最密構造) のフォトリック・バンド構造に関して、現在可能な限りの精度で解明することができた。

後者(2重周期性を有する1次元フォトリック結晶)についての研究は、電気通信大学大学院博士前期課程在学中より手がけてきた研究テーマである。これは、誘電体多層膜を1次元フォトリック結晶として捉え、その誘電率の形状に変化が生じた場合の光の伝播特性とバンド構造を数値解析によって調べたものである。例えば、通常、誘電率の変化構造を矩形型で設計した誘電体多層膜は、作製上の理由からその形状は完全な矩形型とはならず、台形型となる可能性がある。この形状の変化が光学特性に及ぼす影響について理論的に研究を行ってきた。その中から、「2重周期性」という独自の概念を見出した。

このような2つの研究を総合して、低次元周期性を有するフォトリック結晶の構造と、その構造から生じるさまざまな光物性について、基礎物理的な観点からの理解を深めることを主題とした。

1.3 本研究の目的

本論文では、前節で述べた研究の背景と経緯を踏まえた上で、低次元の周期性を持つフォトリック結晶に関する基礎的な光物性について、理論的・実験的に明らかにすることを目的とした。

具体的には、以下に示す通りである。

1. 擬2次元フォトリック結晶の構造と光物性：

- ポリスチレンラテックスを用いて、擬2次元フォトリック結晶(ラテックス単層膜)の作製を行い、この系におけるフォトリック・バンド構造を実験的に決定する。決定されたフォトリック・バンド構造から、この系における基礎的な光物性を理解する。
- そのための有益な手法として、ベクトル球面波展開法を用いた理論的な解析手法を用いる。
- このような2次元系での基礎的な光物性の理解によって、今後の応用への

可能性を探るための基礎的な知見を提供する。

2. 2重周期1次元フォトリック結晶の構造と光物性

- 1次元フォトリック結晶としての誘電体多層膜に、本研究独自の概念である「2重周期性」を導入する。この2重周期性によって生じる基本的な光学特性について、数値解析によって検討する。
- さらに、現実系における2重周期構造の実現の可能性について検討し、実験によって予想される光学特性を検証する。
- 最後に、1次元フォトリック結晶である光ファイバグレーティングに2重周期性を導入し、新規な光機能を有するデバイスの可能性を提案する。

以上のように、低次元周期性を持つフォトリック結晶に関する研究は、基礎的にも応用的にも極めて興味深い問題である。

1.4 本論文の構成

本論文は以下のような構成になっている。

第1章では、序論として、本研究全体の背景と、これまで行ってきた研究の経緯について述べた。本研究の背景と経緯を踏まえた上で、本論文の目的について述べた。

つづく第2章では、誘電体が規則的に配列した周期構造におけるフォトリック・バンド状態の理論的な取り扱いについて述べる。具体的には、電子バンド構造との類似性に触れ、一般的なフォトンに対する散乱問題について解説する。さらに、具体的に球状の誘電体配列構造におけるフォトリック・バンド理論について大高による理論を中心に述べる。

第3章では、第2章で取り扱った球状の誘電体配列構造についての実験的研究について述べる。これまで明らかになっている問題点を踏まえて、ポリスチレン微粒子を用いた擬2次元フォトリック結晶の作製とその構造評価を行う。さらに、作製した結晶を用いての光学測定の結果および考察について述べる。第2章で述べた理

論的な解析手法と本研究における実験的フォトニック・バンド構造の決定に関して議論を行う。

第4章では、本研究独自の概念である「2重周期性」を有する1次元フォトニック結晶の光物性について、数値解析を中心に述べる。また、実現可能な系における2重周期誘電体多層膜の検討と予備的な実験結果について述べる。最後に、この2重周期構造の応用として、1次元フォトニック結晶である光ファイバグレーティングに適用した場合の新規な光機能について考察する。

最後に第5章では、本研究全体を総括し、まとめとする。

本研究に際して、ご指導、ご助力をいただいた多くの方々への謝辞と参考文献を最後に記載した。

第2章 誘電体球配列構造のフォトニク ク・バンド状態：理論

2.1 はじめに

誘電率が周期的に変化する構造(フォトニック結晶)中では、Maxwell方程式に従う光も、結晶中の電子と同じようにバンド状態をとる。ここで、バンド状態とは無限に続く周期構造中での波動の固有状態で、それは一般的に「Blochの定理」により、準連続的な波数ベクトル \mathbf{k} を指標とする固有エネルギー $E(\mathbf{k})$ (あるいは固有振動数 $\omega(\mathbf{k})$) を持っている。このような観点から、フォトニック結晶中の光子(フォトン)に関するさまざまな特性を結晶中の電子状態とのアナロジーによって考察することができる。このような観点は、必ずしも最近になって初めて考案されたものではない。例えば、誘電体多層膜で代表される1次元周期構造での全反射帯(ストップバンド)についての概念や原子による多重散乱効果を考慮したX線動力学理論では、光(一般には電磁波)に対してもバンド構造の概念が適用できることが古くから知られていた。しかし、このようなフォトニック・バンド状態の特徴を詳しく調べるためには、取り扱う波長に応じたサイズの周期構造を実現することが必要である。したがって、初期の研究では、波長の長いミリ波やマイクロ波領域での研究が多かったが、最近になって、将来の光デバイスへの応用を期待して、光の波長程度の周期構造に関する研究がより大きな注目を集めるようになった。しかし、前章に詳しく述べたように、ナノスケールを持ったフォトニック結晶の実験的研究については、まだ多くの問題点があり、これまで半導体が担ってきた役割に対比できるような役割をフォトニック結晶が実際に果たすことができるかどうか、まだ確実な見通しが得

られていないというのが実情である。その成否は、いかに良い周期性を持った系が実現できるかという点にかかっているといつてよい。

本章では、まず、電子との類似性に基づいた光子の回折について述べる。続いて、フォトンにおける散乱問題の理論的な取り扱いについて、主に球状誘電体を構成要素とする周期構造におけるフォトリック・バンドの代表的理論である、大高らによる理論を中心に述べる。なお、文献については、これまで大高らのグループによって公表された論文の中で主要なものだけを参考文献リストに挙げた。詳しくは、解説論文 [20] に引用されている文献と、最近の論文 [21] に引用されている文献に譲る。

2.2 電子と光子(フォトン)

ここでは、まず、波動(ド・ブロイ波)としての電子と電磁波としての光を、それぞれが従う基本方程式の数理的な類似性という観点から考察し、フォトリック・バンドの基本的な性質について定性的に検討する。

一様な誘電率 ϵ を持った誘電体での電場ベクトル $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ についての Maxwell 方程式は、

$$(\Delta + \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon)\mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0 \quad (2.1)$$

と書き表わすことができる。これを Schrödinger 方程式と形式的に対比するため次のように書き直す。

$$\text{フォトン:} \quad [-\Delta - \frac{\omega^2}{c^2}(\epsilon - 1)]\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2}\mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (2.2)$$

$$\text{電 子 :} \quad [-\Delta + V]\psi(\mathbf{r}) = \epsilon\psi(\mathbf{r}) \quad (2.3)$$

ここで、Schrödinger 方程式は、電子のエネルギー E 、ポテンシャルエネルギー v を規格化し、 $\epsilon = \frac{2m}{\hbar^2}E$ 、 $V = \frac{2m}{\hbar^2}v$ としている。電子に対する静電ポテンシャルに対して、フォトンに対しては次のパラメータがポテンシャルの役割を果たしていると考えることができる。

$$V(\mathbf{r}) = -\frac{\omega^2}{c^2}(\epsilon - 1) \quad (2.4)$$

この $V(\mathbf{r})$ が一様でないとき、平面波状態の光に対する散乱効果を摂動として扱うと、その摂動の大きさは $V(\mathbf{r})$ によって決まる。それは、 ω^2/c^2 と $(\epsilon - 1)$ の大きさに依存し、一様でない媒質では誘電率 ϵ の値が 1 からどのくらい離れているかが重要になる。電子状態との対比で言えば、 ϵ の値が 1 より大きいところでは引力型のポテンシャルとして働くことがわかる。

物質による電磁波 (X 線やそれより波長の長い光) の回折効果は、この $(\epsilon - 1)$ が空間的に周期的な変化をしていることによって生じる多重散乱波の干渉効果によって説明できる。X 線回折の場合には、結晶を構成している原子の周期構造が $(\epsilon - 1)$ の周期変化を与える。しかし、X 線領域では、 $(\epsilon - 1)$ の大きさは、 10^{-6} 程度である。このようなわずかな変化によっても X 線の回折が起こる。ただし、この場合には多数の散乱波が同位相になる Bragg 回折条件が必要であり、多重散乱効果は通常は無視できる (それを 2 波近似として考慮したのが X 線動力学の回折理論である)。

他方、可視光やそれより波長が長い光の領域では、 ϵ の値が 10 程度あるいはそれ以上の媒質も稀ではない。その値が空間的に周期変化する場合に、強い回折が生じる。このように、光子と周期的誘電率変化構造を持った物質の間には大きな相互作用が生じる。X 線領域では、固体電子論での “ほとんど自由なバンドの近似 (Nearly Free Electron Band Model)” が成り立つのに対して、光の場合には、“強結合のバンドの近似 (Tight Binding Electron Band Model)” が適用される状況となる。強い引力型の周期ポテンシャルに束縛された電子系と同じようなバンド状態の光子がバンド構造を作る。これが、フォトリック結晶と呼ばれる系の最大の特徴である。特に、強束縛状態の光子は、電子系の重い Fermi 粒子 (Heavy Fermion) になって、“重い光子 (Heavy Photon)” と呼ばれている [22]。

2.3 フォトンに対する散乱問題

前節の考察では、誘電率 ϵ が一様 (場所によらない) としたので、電磁波は横波となるが、誘電率 ϵ が一様でない場合、 $\epsilon(\mathbf{r})$ はテンソル量となるため、特別な場合を

除いては、横、縦両成分を持つ。前節に述べたフォトニック・バンドの理論的考察は、一般的な形を持った誘電体周期構造のものであった。電子のバンド構造の理論と同様に、具体的な誘電体周期系についてのフォトニック・バンド状態を解析するには、さまざまなアプローチがある。もっとも一般的な方法のひとつは、平面波展開法である。しかし、ここでは、特に球状の誘電体が規則配列した系について考えている。このような系は、第1に以下に詳しく述べるベクトル球面波展開法による厳密な解析が可能であることと、第2に、実際に球状誘電体粒子からなるフォトニック結晶の実験結果を解析する際の強力な理論的手段を与えるという点で、特に大きな重要性を持つ。

誘電体中の光子に対して、解くべき Maxwell 方程式は、一般的に次のように書ける。

$$\begin{cases} \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) \\ \nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \\ \nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = 0 \\ \nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = 0 \end{cases} \quad (2.5)$$

電流密度 $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$ は、誘電体中の分極 $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ の時間変化による分極電流で、次のように表わされる。

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = \frac{\partial \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (2.6)$$

ここで、時間依存性 $\exp(-i\omega t)$ を仮定し、 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega t)$ 等とすると、第1式、第2式の右辺で、 $\partial/\partial t \rightarrow -i\omega$ となる。さらに、

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \varepsilon_0 \varepsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (2.7)$$

という局所的な応答関係 (媒質中の分極応答が各点ごとに独立に生じ、その近傍の影響を受けないとする近似) を仮定すると、分極 $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ は $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ と次の関係にある。

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\mathbf{r}) &= \mathbf{D}(\mathbf{r}) - \varepsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}) \\ &= \varepsilon_0 \{\varepsilon(\mathbf{r}) - 1\} \mathbf{E}(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (2.8)$$

$\varepsilon(\mathbf{r})$ を点 \mathbf{r} での誘電率として、真空中に誘電率 $\varepsilon_<$ の球 (半径 a) がある場合には、

$$\varepsilon(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1 & (\text{球の外部: } r > a) \\ \varepsilon_< & (\text{球の内部: } r < a) \end{cases} \quad (2.9)$$

である。 $\varepsilon_<$ の値は球内で一定とする。また、非磁性体を考えているので、 $\mathbf{B}(\mathbf{r})$ と $\mathbf{H}(\mathbf{r})$ は、

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \mu_0 \mathbf{H}(\mathbf{r}) \quad (2.10)$$

と表わすことができる。

式 (2.5) の Maxwell 方程式から \mathbf{B} 、 \mathbf{H} を消去すると電場ベクトル $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ についての方程式は次のようになる。(ここで、 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega t)$)

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\frac{\omega^2}{c^2} \left(1 + \frac{c^2}{\omega^2} \nabla \nabla \cdot \right) \{ \varepsilon(\mathbf{r}) - 1 \} \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (2.11)$$

ここで、右辺の括弧内の第2項 $\left(\frac{c^2}{\omega^2} \nabla \nabla \cdot \right)$ は、前述のように誘電率 $\varepsilon(\mathbf{r})$ が一様でないために生じた項である。この式を、 $\omega^2/c^2 = \kappa^2 (> 0)$ とおいて変形すると、

$$(\nabla^2 + \kappa^2) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \left(1 + \frac{1}{\kappa^2} \nabla \nabla \cdot \right) V(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}). \quad (2.12)$$

となる。ここで、前節と同様に電磁波 (光) に対するポテンシャル $V(\mathbf{r})$ を

$$V(\mathbf{r}) = -\kappa^2 \{ \varepsilon(\mathbf{r}) - 1 \} \quad (2.13)$$

とおいた。今考えている電磁波の波長 ($\sim c/\omega$) が、ポテンシャル $V(\mathbf{r})$ と電場の空間的な変化の割合より小さいとして、式 (2.11) 右辺の括弧内の第2項を無視すると、 $V(\mathbf{r})$ をポテンシャルとする Schrödinger 方程式と同じになる (前節の式 (2.2) で一様な ε を $\varepsilon(\mathbf{r})$ に置き換えたものと同じになる)。

$\varepsilon(\mathbf{r}) > 1$ のときは $V(\mathbf{r}) < 0$ となり、電磁波に対して引力的な有効ポテンシャルが働き束縛的な状態が現れる。ただし、電子の場合には固有エネルギーが負となる真の束縛状態が生じるのに対して、光の場合には負のエネルギーを取り得ないので、有限な寿命を持った仮想束縛状態である点が電子の場合とは大きく異なる。これに対して、 $\varepsilon(\mathbf{r}) < 1$ のときには、斥力ポテンシャルが働く。

Maxwell 方程式に対する積分方程式とボルン近似

大高らは、上述のような一般的理論に基づいて、多数の球状誘電体よりなる系での電磁波状態をベクトル球面波によって展開し、多重散乱問題を Green 関数を用いて取り扱った。この理論の概要を以下に述べる [23]。

系の外部から振幅電場 $\mathbf{E}^0(\mathbf{r})$ を持った光が入射したとき、Maxwell 方程式から導かれた、式 (2.12) を満たす電場は、Green 関数 $G_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ を用いて次のように書くことができる。

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}^0(\mathbf{r}) + \int_{\text{unit cell}} d\mathbf{r}' \left(1 + \frac{1}{\kappa^2} \nabla' \nabla' \cdot \right) G_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') \mathbf{E}(\mathbf{r}'). \quad (2.14)$$

ここで、 ∇' は、 \mathbf{r}' についてのベクトル微分演算子である。入射光の電場 $\mathbf{E}^0(\mathbf{r})$ は、波数 \mathbf{k}^0 の単色平面波で、次のように表わすことができるとする。

$$\mathbf{E}^0(\mathbf{r}) = \mathbf{E}^0 \exp(i\mathbf{k}^0 \cdot \mathbf{r}). \quad (2.15)$$

$$\mathbf{k}^0 = (k_x^0, k_y^0, k_z^0) = (\mathbf{k}_{\parallel}^0, k_z^0). \quad (2.16)$$

ここで、層状の誘電体構造を想定し、その層面に垂直な方向を z 軸に取り、層面 (x, y 平面) に平行な方向を添字 \parallel によって表わしている。

式 (2.14) 中の 3 次元 Green 関数 $G_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ は、次のように書ける。

$$\begin{aligned} G_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}') &= g_k^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + g_k^{(1)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \\ &= -\frac{1}{4\pi} \frac{\exp(i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \\ &\quad - \frac{1}{4\pi} \sum_{n \neq 0} \frac{\exp(i\mathbf{k}_{\parallel}^0 \cdot \mathbf{R}_n) \exp(i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot |\mathbf{r} - \mathbf{r}' - \mathbf{R}_n|)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}' - \mathbf{R}_n|}. \end{aligned} \quad (2.17)$$

右辺の第 1 項は、特定のユニットセル ($k = 0$) からの散乱過程を表わし、第 2 項は \mathbf{R}_n の位置にある周囲のユニットセル ($n \neq 0$) からの散乱過程を表わす。単一層からなる擬 2 次元系についての Green 関数を求めるためには、層に平行な \mathbf{k} ベクトルを持った電磁波モード (擬 2 次元フォトリック・バンド) を考えているから、 $\mathbf{k}^0 \rightarrow \mathbf{k}_{\parallel}^0$ とすればよい。また、次の相反関係を利用して、 $\nabla' G_k$ を ∇G_k に変える。

$$\frac{\partial}{\partial x'_i} G_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -\frac{\partial}{\partial x_i} G_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \quad (2.18)$$

その結果、

$$\begin{aligned}
 E_i(\mathbf{r}) &= E_i^0(\mathbf{r}) + E_i^S(\mathbf{r}) \\
 &= E_i^0 \exp(i\mathbf{k}^0 \cdot \mathbf{r}) \\
 &\quad + \sum_j \int_{\text{unitcell}} d\mathbf{r}' g_{k,ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') E_j(\mathbf{r}').
 \end{aligned} \tag{2.19}$$

となる。式(2.19)の第2項は多重散乱成分に対応する。

ここで、 $g_{k,ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ はテンソル型の Green 関数で、次のように書ける。

$$\begin{aligned}
 g_{k,ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') &= \left[\delta_{ij} + \frac{1}{\kappa^2} \frac{\partial}{\partial x'_i} \frac{\partial}{\partial x_j} \right] G_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \\
 &= \left[\delta_{ij} + \frac{1}{\kappa^2} \frac{\partial}{\partial x_i} \frac{\partial}{\partial x'_j} \right] G_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}')
 \end{aligned} \tag{2.20}$$

G_k を式(2.18)に従って、 $g_k^{(0)}$ と $g_k^{(1)}$ の成分に分けたために、テンソルの Green 関数も次のように2つの項に分かれる。

$$g_{k,ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = g_{k,ij}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + g_{k,ij}^{(1)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \tag{2.21}$$

この表式は、2階のテンソルの指標 ij が現れることを除けば、よく知られた電子のバンド理論での Korringa-Kohn-Rostoker (KKR) 法の場合と同じである。

式(2.19)の積分は表面積分を使って書き換えることができ、球の内部と外部の \mathbf{r} に対して、次の結果を与える。

球の内部 ($r < a$) :

$$0 = E_i^0(\mathbf{r}) + \sum_j \int_{r'=a} ds' \cdot [g_{k,ij}(\nabla' E_j(\mathbf{r}')) - (\nabla' g_{k,ij}) E_j(\mathbf{r}')] \tag{2.22}$$

球の外部 ($r > a$) :

$$E_i(\mathbf{r}) = E_i^0(\mathbf{r}) + \sum_j \int_{r'=a} ds' \cdot [g_{k,ij}(\nabla' E_j(\mathbf{r}')) - (\nabla' g_{k,ij}) E_j(\mathbf{r}')]. \tag{2.23}$$

ここで、 $E^0(\mathbf{r}')$ は入射波の電場ベクトルを表わし、 $E_i^0(\mathbf{r}')$ は、その $i = x, y, z$ 成分を示す。ここで、式(2.22)で入射波が存在しないとすると ($E_i^0(\mathbf{r})=0$)、フォトリック結晶の固有電磁波モード、すなわちフォトリック・バンドを決める固有方程式が

得られる。式 (2.22) は球の内部での、式 (2.23) は球の外部での電場を決めている。入射波の項を除かずに、かつ $g_{k,ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ を $g_{k_{||},ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ に替えれば、単一層からなる 2 次元周期系の入射光に対する応答としての光の反射と透過を扱うことができる。

ベクトル球面波の定義

誘電体球の内部での任意の電場は、球面調和関数 $Y_L(\hat{\mathbf{r}})$ 、(第一種) 球ベッセル関数 $j_L(\kappa r)$ およびベクトル展開係数 α_L を用いて、次のように展開可能である。

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \sum_L j_L(\kappa r) Y_L(\hat{\mathbf{r}}) \alpha_L. \quad (2.24)$$

ただし、

$$\kappa_{<}^2 = \omega^2 \epsilon_{<}. \quad (2.25)$$

と仮定する。この展開式は、電場の x, y, z 成分、 $\{E_x(\mathbf{r}), E_y(\mathbf{r}), E_z(\mathbf{r})\}$ をそれぞれスカラー展開係数 $\{\alpha_L^x\}, \{\alpha_L^y\}, \{\alpha_L^z\}$ を使って分解したことに相当する。しかしながら、誘電体球の内部では $\epsilon_{<}$ の値が一様であるから、電場は横波であり、 $\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0$ の条件を満たす。この付加条件によって、3 つの係数のうちの 2 つがわかれば内部の電場を求めることができる。

球の内外での電場は、次の Helmholtz 方程式を満たす。

$$\begin{aligned} \text{球の外部 } (r > a); \quad (\Delta + \kappa^2) \mathbf{E}(\mathbf{r}) &= 0 \\ \text{球の内部 } (r < a); \quad (\Delta + \kappa_{<}^2) \mathbf{E}(\mathbf{r}) &= 0 \end{aligned} \quad (2.26)$$

3 次元 Helmholtz 方程式の解は、周知のように 1 つの縦波と 2 つの横波を基本とする 3 種類のベクトル場である。上記の Helmholtz 方程式を満たす 3 種類のベクトル球面波は、対称性を考慮して次のスカラー関数から導くことができる [24]。

$$\psi_{lm}(\mathbf{r}) = j_l(\kappa r) Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}}) \quad (2.27)$$

ここで、 $j_l(qr)$ はベッセル関数、 $Y_{lm}(\mathbf{r})$ は球面調和関数で、 l, m の対を L で表わすことにする。

これより導かれる3種類の電場ベクトルは、次のように書ける。

$$\mathbf{E}_L^M(\mathbf{r}; j) = i\hat{\mathbf{L}}\psi_L(\mathbf{r}) \equiv \hat{\mathbf{P}}^M\psi_L(\mathbf{r}), \quad (2.28)$$

$$\mathbf{E}_L^N(\mathbf{r}; j) = \frac{1}{\kappa}\nabla \times \mathbf{E}_L^M(\mathbf{r}) \equiv \hat{\mathbf{P}}^N\psi_L(\mathbf{r}), \quad (2.29)$$

$$\mathbf{E}_L^L(\mathbf{r}; j) = \frac{1}{\kappa}\nabla\psi_L(\mathbf{r}) \equiv \hat{\mathbf{P}}^L\psi_L(\mathbf{r}). \quad (2.30)$$

式(2.28)、(2.29)、(2.30)は、特定の固有値 L を持ったスカラー関数 ψ_L に対して、それぞれベクトル生成演算子 $\hat{\mathbf{P}}^M$ 、 $\hat{\mathbf{P}}^N$ 、 $\hat{\mathbf{P}}^L$ を作用させれば、式(2.26)の解である3種類の電場ベクトルが導かれることを表わしている。この3つのベクトル球面波をそれぞれ L 波、 M 波、 N 波と呼ぶ。ここで、式(2.28)の演算子 $\hat{\mathbf{P}}^M$ は、次のように定義される“角運動量演算子”である。

$$\hat{\mathbf{P}}^M \equiv i\hat{\mathbf{L}} = \mathbf{r} \times \nabla. \quad (2.31)$$

この角運動量演算子 $\hat{\mathbf{P}}^M$ によって作られる電場(L 波)は、 $\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) \neq 0$ の縦波であり、これに対して角運動量演算子 $\hat{\mathbf{P}}^N$ 、 $\hat{\mathbf{P}}^L$ によって作られる電場(M 波と N 波)は横波となる。モード指数 M 、 N 、 L によって定義された3種類のベクトル場 \mathbf{E}_L^M 、 \mathbf{E}_L^N 、 \mathbf{E}_L^L の極座標 (r, θ, ϕ) 成分は、次のように書ける。

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_L^M(\mathbf{r}) &= \left(0, -j_l(\kappa r) \frac{\partial Y_L(\hat{\mathbf{r}})/\partial \phi}{\sin \theta}, j_l(\kappa r) \frac{\partial Y_L(\hat{\mathbf{r}})}{\partial \phi} \right), \\ \mathbf{E}_L^N(\mathbf{r}) &= \left(l(l+1) \frac{j_l(\kappa r)}{\kappa r} Y_L(\hat{\mathbf{r}}), \frac{[\kappa r j_l(\kappa r)]'}{\kappa r} \frac{\partial Y_L(\hat{\mathbf{r}})}{\partial \theta}, \frac{[\kappa r j_l(\kappa r)]'}{\kappa r \sin \theta} \frac{\partial Y_L(\hat{\mathbf{r}})}{\partial \phi} \right), \\ \mathbf{E}_L^L(\mathbf{r}) &= \left(\frac{\partial}{\partial r} j_l(\kappa r) Y_L(\hat{\mathbf{r}}), \frac{\partial}{r \partial \theta} j_l(\kappa r) Y_L(\hat{\mathbf{r}}), \frac{1}{r} \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \phi} j_l(\kappa r) Y_L(\hat{\mathbf{r}}) \right). \end{aligned} \quad (2.32)$$

ここで、 $[\kappa r j_l(\kappa r)]'$ は、 κr についての微分を示す。

ここまで、球ベッセル関数を使ってベクトル球面波を書き下したが、ノイマン関数 $n_l Y_L$ を用いても同様に Helmholtz 方程式を満たすベクトル解を定義することができる[24]。

任意のベクトル波のベクトル球面波展開

以下の考察では、任意のベクトル波が前節に述べた3種類の球面ベクトル波によって展開できること、すなわち L 、 M 、 N 波が完全系をなすことを、大高らの議論に従って証明する。

まず、任意のベクトル波 $\mathbf{f}^\beta(\mathbf{r})$ を次のような球面ベクトル波の重ね合わせとして表わす。

$$\mathbf{f}^\beta(\mathbf{r}) = \sum_L^I \mathbf{E}_L^\beta(\kappa r) \alpha_L^\beta. \quad (2.33)$$

ただし、指標 β は M または N を表わす。総和記号の上のプライムは次のような意味を示している。

$$\sum_L^I = \sum_{l=1}^I \sum_{m=-l}^l \quad (2.34)$$

ここで、 $L=0$ については、 M 、 N 球面ベクトル波状態が伴っていないため（水素原子での $1s$ 状態に軌道縮退がないことと類似している）、総和記号にプライムが付されているのである。このベクトル場 $\mathbf{f}^\beta(\mathbf{r})$ も、Helmholtz 方程式の解である \mathbf{E}_L^β の線形結合として同じ Helmholtz 方程式を満たすから、その x 、 y 、 z の3つの成分は、スカラー関数 $j_l Y_L$ で展開できる。実際に、 $i = x, y, z$ として次の式が成立する。

$$f_i^\beta(\mathbf{r}) = \sum_{LL'}^I Y_L(\hat{\mathbf{r}}) j_l(\kappa r) (\mathbf{P}_i^\beta)_{LL'} \alpha_{L'}^\beta. \quad (2.35)$$

行列 $(\mathbf{P}_i^\beta)_{LL'}$ の行ベクトルは $L=0$ から始まり、列ベクトルは $L=(1, -1)$ から始まるので、行列 $(\mathbf{P}_i^\beta)_{LL'}$ は正方行列ではない。そこで、列ベクトル $\mathbf{Y}(\hat{\mathbf{r}})$ を

$$\mathbf{Y}(\hat{\mathbf{r}}) = [Y_{00}(\hat{\mathbf{r}}), Y_{1-1}(\hat{\mathbf{r}}), Y_{10}(\hat{\mathbf{r}}), \dots]^t. \quad (2.36)$$

とし、次の対角化行列 $\mathbf{j}(\kappa r)$ を導入する。

$$\langle L | \mathbf{j}(\kappa r) | L' \rangle \equiv \delta_{LL'} j_l(\kappa r). \quad (2.37)$$

これらを用いると、式 (2.35) は次のようになる。

$$f_i^\beta(\mathbf{r}) = \mathbf{Y}^t(\hat{\mathbf{r}}) \mathbf{j}(\kappa r) \mathbf{P}_i^\beta \alpha^\beta. \quad (2.38)$$

ここで、 α^β は、

$$\alpha^\beta \equiv [\alpha_{1-1}^\beta, \alpha_{10}^\beta, \alpha_{11}^\beta, \dots]^t. \quad (2.39)$$

という列ベクトルである。

P_i^β の具体形を求めるためにまず、実際の $E_L^\beta(\mathbf{r})$ の3成分を求める。この結果、 M 波に対しては、

$$\begin{aligned} E_L^M(\mathbf{r})_x &= (-iA_{0-}(l, m)Y_{l, m-1} - iA_{0+}(l, m)Y_{l, m+1})j_l(\kappa r), \\ E_L^M(\mathbf{r})_y &= (A_{0-}(l, m)Y_{l, m-1} - A_{0+}(l, m)Y_{l, m+1})j_l(\kappa r), \\ E_L^M(\mathbf{r})_z &= imY_{l, m}j_l(\kappa r). \end{aligned} \quad (2.40)$$

N 波に対しては、

$$\begin{aligned} E_L^N(\mathbf{r})_x &= (l+1)[-B_{--}Y_{l-1, m-1} + B_{-+}Y_{l-1, m+1}]j_{l-1}(\kappa r) \\ &\quad + l[-B_{+-}Y_{l+1, m-1} + B_{++}Y_{l+1, m+1}]j_{l+1}(\kappa r), \\ E_L^N(\mathbf{r})_y &= -i(l+1)[B_{--}Y_{l-1, m-1} + B_{-+}Y_{l-1, m+1}]j_{l-1}(\kappa r) \\ &\quad + il[B_{+-}Y_{l+1, m-1} + B_{++}Y_{l+1, m+1}]j_{l+1}(\kappa r), \\ E_L^N(\mathbf{r})_z &= -(l+1)C_{-0}Y_{l-1, m}j_{l-1}(\kappa r) - lC_{+0}Y_{l+1, m}j_{l+1}(\kappa r). \end{aligned} \quad (2.41)$$

となる。ここに表示した係数 $A_{0\pm}$ 、 $B_{\pm\pm}$ 、 $C_{\pm 0}$ は次のように表わすことができる。

$$\begin{aligned} A_{0\mp}(l, m) &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{l \pm m}{l \mp m + 1}}, \\ B_{-\mp}(l, m) &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(l \pm m - 1)(l \pm m)}{(2l - 1)(2l + 1)}}, \\ B_{++}(l, m) &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(l \mp m + 1)(l \mp m + 2)}{(2l + 1)(2l + 3)}}, \\ C_{-0}(l, m) &= \sqrt{\frac{(l + m)(l - m)}{(2l - 1)(2l + 1)}}, \\ C_{+0}(l, m) &= \sqrt{\frac{(l + m + 1)(l - m + 1)}{(2l + 1)(2l + 3)}}. \end{aligned} \quad (2.42)$$

これを用いると、次のような結果を導くことができる。

$$\begin{aligned}
P_x^M &= i[A_{0-}, A_{0+}], \\
P_y^M &= [A_{0-}, A_{0+}], \\
P_z^M &= [im], \\
P_x^N &= [(l-1)B_{--}, -(l-1)B_{-+}, -(l+2)B_{+-}, (l+2)B_{++}], \\
P_y^N &= i[-(l-1)B_{--}, -(l-1)B_{-+}, (l+2)B_{+-}, (l+2)B_{++}], \\
P_z^N &= [-(l-1)C_{-0}, -(l+2)C_{+0}].
\end{aligned} \tag{2.43}$$

ここで、 A 、 B 、 C の添字 0 ± 1 は、 $(l, m\pm 1)$ 列の成分を表し、添字 $--$ は、 $(l-1, m-1)$ 列の成分を表す。 P_z^M は対角化行列である。

$j_l(\kappa r)Y_L(\hat{r})$ を x 、 y 、 z で微分しても、Helmholtz方程式を満たすことにかわりない。したがって、それらも $\{j_L Y_L\}$ の線形結合として表わすことができるから、任意の列ベクトル ξ に対して、

$$\frac{\partial}{\partial x_i} Y^t(\hat{r}) j(\kappa_{>} r) \xi = \kappa Y^t(\hat{r}) Q_i \xi. \tag{2.44}$$

が成立する。上式で、行列 Q_i は行ベクトル、列ベクトルともに $L=0$ から始まる正方行列 Q_i であり、その成分は次のように表わすことができる。

$$\begin{aligned}
Q_x &= [B_{--}, -B_{-+}, B_{+-}, -B_{++}], \\
Q_y &= i[-B_{--}, -B_{-+}, -B_{+-}, -B_{++}], \\
Q_z &= [-C_{-0}, C_{+0}].
\end{aligned} \tag{2.45}$$

これらの Q_i と前述の P_i^β の間には、次の直交関係が成り立つ。

$$\sum_i Q_i P_i^\beta = 0. \tag{2.46}$$

式(2.33)で表わされたベクトル波は横波のベクトル場であるから、その発散は零である($\nabla \cdot \mathbf{f}^\beta = 0$)。式(2.44)を使うと、この関係から

$$\nabla \cdot \mathbf{f}^\beta = Y^t(\hat{r}) j(\kappa_{>} r) \left(\sum_i Q_i P_i^\beta \right) = 0. \tag{2.47}$$

が得られる。したがって、式(2.46)が成立していることが確かめられる。

また、行列 P_i^M 、 P_i^N 、 Q_i の間には、次の関係があることを証明できる。

$$\sum_{\beta} P_i^{\beta} L(P_j^{\beta})^{\dagger} = \delta_{ij} I + Q_i Q_j. \quad (2.48)$$

式(2.45)から行列 Q_i は反エルミート行列 ($Q_i^{\dagger} = -Q_i$) であり、これを使うと、次のように書ける。

$$\sum_{\beta} P_i^{\beta} L(P_j^{\beta})^{\dagger} + Q_i Q_j^{\dagger} = \delta_{ij}. \quad (2.49)$$

ここで、ベクトル (Q_x, Q_y, Q_z) は演算子 ∇ を基底系 $\{j_l Y_L\}$ で表現したものである。

∇ は L 波型の球面ベクトル波の生成演算子である。したがって、

$$P_i^L = Q_i. \quad (2.50)$$

となり、式(2.49)は、

$$P_i^M L(P_j^M)^{\dagger} + P_i^N L(P_j^N)^{\dagger} + P_i^L (P_j^L)^{\dagger} = \delta_{ij} I. \quad (2.51)$$

となる。この関係は、3種類の球面ベクトル波、 M 、 N 、 L 波の完全性を示すものに他ならない。

そこで、この完全性を利用して横波の平面波で表わされる入射波 $E^0(\mathbf{r})$ を球面ベクトル波に展開すると、次のようになる。

$$\begin{aligned} E_i^0(\mathbf{r}) &= \exp(i\mathbf{k}^0 \cdot \mathbf{r}) E^0 \\ &= Y^t(\hat{\mathbf{r}}) j(\kappa r) U Y^*(\hat{\mathbf{k}}^0) E \\ &= \sum_{\beta=M,N} Y^t(\hat{\mathbf{r}}) j(\kappa r) P_i^{\beta} \alpha^{\beta}(0). \end{aligned} \quad (2.52)$$

ただし、

$$U_{LL'} = \delta_{LL'} 4\pi i^L. \quad (2.53)$$

$$\alpha^{\beta}(0) = L \sum_j (P_j^{\beta})^{\dagger} U Y^*(\hat{\mathbf{k}}^0) E_j^0. \quad (2.54)$$

である。この入射光に対する系の応答は、式(2.22)、(2.23)によって求められる。

2.4 孤立した誘電体球による光散乱現象

球の内部が一様な誘電率を持つ単一の誘電体球を考え、それによる電磁場の散乱を考える。光学では、光の波長が誘電体球の半径とほぼ同じ程度の場合に生じる光散乱を、Mie 散乱と呼んでいる。いっぽう、光の波長が球の半径 a に比べて十分に長い場合、つまり $\kappa a \rightarrow 0$ の極限は、Rayleigh 散乱と呼ばれている。Rayleigh 散乱は Mie 散乱の長波長極限といえる。

さて、1 個の誘電体球による光散乱は、式 (2.14) の Green 関数 G_k を G に置き換えた積分方程式によって表わされる。単一球である場合には、各 L ごとに M 波と N 波の 2 種類の部分波の散乱を考えればよい。この 2 種類の部分波は、球の中心を原点とした座標系では散乱によって混じらずに、位相変化 (phase shift) を受けるだけである。この位相変化を δ_l^M と δ_l^N ($l \geq 1$) とすると、Green 関数を用いた波動関数からそれぞれの値を求めることができる。

球が 1 個の場合の位相変化は、その球内の電磁波モードとの共鳴周波数付近で急激な変化を示す。その半値幅は 2 次元系のバンドの状態密度に対応することがわかっている。角運動量に従ってバンドを分類すると、共鳴周波数の変化は周波数が大きくなるほど 2π よりも小さくなり、 l が大きくなるほど変化が大きくなる。このことは、球の内部のみで働く短距離型の引力ポテンシャルによって、遠心力的な障壁の内部に閉じ込められた局在的な電磁場が生じていることを示している。

しかし、この電磁場は、この障壁を越えて球の外へも浸み出している。したがって、球内の束縛の状態は、指数関数的に減衰しながらトンネル効果によって外部の平面波と結合しているため、放射減衰効果による有限の寿命 (life time) を持つ。いかえると、球内に局在した光子は、ある一定時間 (life time) の間、球の内部に閉じ込められた後、外部へと放出される。このような光子の状態は、正のエネルギーを持った電子が、引力型のポテンシャルに一時的に束縛されている状態に対応し、トンネル効果による有限な寿命を持つため仮想束縛状態 (virtual bound state) と呼ばれている。電子の場合には、負のエネルギーを持った真の (無限の寿命を持つ

た) 束縛状態も存在するが、フォトンの場合には、正のエネルギーのみしか取り得ないため、すべての状態が仮想束縛状態となる。その寿命を決めているトンネル効果がどれくらいの大きさであるかは、共鳴の前後での位相の変化幅によって推定できる。例えば、モード数 l が大きくなるほど位相変化が急峻になることは、ポテンシャル障壁が高くなるためトンネル障壁を抜けての光の外部放出が生じにくくなり、それだけ光の局在性が高まることを示している。球が周期的に配列している場合には、この束縛状態から放出されたフォトンが、再び近接する球に束縛されるという過程によって、フォトンが球から球へとホッピングしながら伝播していくという描像が成り立つ。次に、このように誘電体球が規則的に配列した系におけるフォトンの振る舞いについて、理論的な取り扱いの概略を述べる。

2.5 周期的に誘電体球が配列した系のフォトニック・バンド

多くの誘電体球が周期的に配列した系でも、孤立球による位相変化と球の配列構造の2つの要因がわかれば、系全体の電磁場のエネルギー固有値が決まる。その際の理論的計算には、電子バンド計算でのグリーン関数法をベクトル場に対して適用すればよい。電子バンド理論でのこの方法はKKR法と呼ばれ、結晶を構成している原子を球対称ポテンシャルによって近似し、電子波についての位相変化 $\delta_l(\kappa r)$ をGreen関数を用いて求める手続きが取られている。ここでは、周期的に誘電体球が配列した系の電場ベクトルに対して、この方法を適用し、系の固有状態としてのフォトニック・バンドの位相変化、状態密度と寿命を求め、遠視野 (far field) スペクトルを計算する取り扱いについて述べる。基本的に、このモデルは、各サイトに置かれた単一の誘電体球による散乱電磁波を周期的境界条件によって接続するという考え方に基づいている。

誘電体球が周期的に配列した系に外部から光が入射した場合、個々の球による Mie

散乱が連続的に生じる多重散乱過程を考えなければならない。このような系を透過または反射してきた光（電磁波）は、この系に固有なフォトニック・バンド構造に関する重要な情報を含んでいる [21]。

個々の球で生じる Mie 散乱を決定するのは、次の 2 つの因子である。ひとつは単一の散乱体内での Mie 散乱過程を表わす行列 \mathbf{t} 、もうひとつは規則的に配列した散乱体の間で生じる光子のホッピング伝播特性を決定する構造因子 $\Gamma(\mathbf{k})$ である。前節に述べたように、周期系では、特定の球から隣接する球へと連続的にフォトンが飛び移っていくホッピング過程がおこる。それが無限に続く過程は、

$$\mathbf{t}[1 + \Gamma(\mathbf{k})\mathbf{t} + \Gamma(\mathbf{k})\mathbf{t}\Gamma(\mathbf{k})\mathbf{t} + \cdots] = \mathbf{t}[1 - \Gamma(\mathbf{k})\mathbf{t}]^{-1}. \quad (2.55)$$

と表わすことができる。実際に数値計算を行う際には、行列 \mathbf{t} と $\Gamma(\mathbf{k})$ を、基本的な横波のベクトル球面波の関数として表わすことが必要である。前述したように、このような基本波は、球面調和関数 $Y_{lm}(\theta, \phi)$ によって定義される指標 $L = (l, m)$ と、各 L に対して定義される 2 つのベクトル球面波 $\beta = M, N$ で指定される。これらの部分波 (β, L) を基底にとると、上記の行列 \mathbf{t} の行列要素は、次のように表される。

$$\langle \beta, L | \mathbf{t} | \beta', L' \rangle = \delta_{\beta\beta'} \delta_{LL'} t_L^\beta, \quad (2.56)$$

$$t_L^\beta = -\frac{i}{2\omega} \{ \exp(2i\delta_l^\beta) - 1 \}. \quad (2.57)$$

式 (2.57) の δ_l^β は位相変化である。

一方、構造因子 $\Gamma(\mathbf{k})$ は、個々の球で散乱された部分波の重ね合わせとして表わすことができる。ここで、次のような 2×2 の行列を定義する。

$$\mathbf{t} = \begin{pmatrix} \mathbf{t}^M & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{t}^N \end{pmatrix}, \quad (2.58)$$

$$\Gamma(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} \Gamma_{MM}(\mathbf{k}) & \Gamma_{MN}(\mathbf{k}) \\ \Gamma_{NM}(\mathbf{k}) & \Gamma_{NN}(\mathbf{k}) \end{pmatrix}. \quad (2.59)$$

\mathbf{t}^M 、 \mathbf{t}^N は対角化行列であり、その対角要素は、式 (2.57) によって定義される t_L^M と t_L^N である。

今考えている擬2次元系のフォトニック・バンド状態を表わす特性量として、行列 $B(\mathbf{k})$ を考える。この行列は、後に述べる DETB 法で重要な役割を果たす行列であるが、さしあたってはそれ自体の定義に代えて、その逆行列 $B^{-1}(\mathbf{k})$ を次のように定義する。

$$B^{-1}(\mathbf{k}) = [I - \Gamma(\mathbf{k})t]^{-1}. \quad (2.60)$$

ここで、行列 $\Gamma(\mathbf{k})$ 、 t は、式 (2.58) と式 (2.59) で定義される対角化行列である。ここで重要なことは、一般的に B^{-1} の極は寿命 (life time) が有限である効果によって複素数の留数をもつことである。

誘電体球からなる2次元格子についての透過波、反射波は、系の外側に向けた $|\mathbf{k} + \mathbf{h}|$ の波数ベクトルを持っている。ここで \mathbf{h} は、逆格子ベクトル $\mathbf{h} = (h_x, h_y)$ である。もし、 $\omega > |\mathbf{k} + \mathbf{h}|$ であれば、逆格子点 \mathbf{h} に対応する Bragg 回折波のチャンネルが開く。他方、 $\omega < |\mathbf{k} + \mathbf{h}|$ の場合には、回折のチャンネルは開かない。

次に、次式のように単位振幅を持った入射波 (0 波) に対する透過波と反射波の振幅について考える。

$$E^0(\mathbf{r}) = E^0 \exp [i(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\rho} + \gamma_0^+ z)]. \quad (2.61)$$

ここで、 $\boldsymbol{\rho} = (x, y)$ 、 $\gamma_0^+ = +(\omega^2 - \mathbf{k}^2)^{1/2}$ 、 $E^0 = (E_x^0, E_y^0, E_z^0)$ 、 $|E^0| = 1$ である。このとき、透過波と反射波の \mathbf{h} 波成分の振幅は、それぞれ $\sum_{i'} T_{ii'}(\mathbf{h}0) E_i^0$ および $\sum_{i'} R_{ii'}(\mathbf{h}0) E_i^0$ によって与えられる。ここで、 $T_{ii'}(\mathbf{h}0)$ と $R_{ii'}(\mathbf{h}0)$ は、それぞれ振幅透過率、振幅反射率のテンソルである ($i, i' = x, y, z$)。無限系の場合についての振幅透過率は、次式の形に書ける。

$$T_{ii'}(\mathbf{h}0) = \delta_{ii'} \delta_{\mathbf{h}0} + \frac{\alpha}{\gamma_h^+} Y^i(\hat{\mathbf{k}}) \tau_{ii'} Y^{*i'}(\hat{\mathbf{k}}_0^+) \quad (2.62)$$

テンソル $\tau_{ii'}$ は $B^{-1}(\mathbf{k})$ に関係する重要な量である。振幅反射率 $R_{ii'}(\mathbf{h}0)$ も、この $\tau_{ii'}$ を使って簡単に表すことができる。

これらの振幅透過率 $T_{ii'}$ と振幅反射率 $R_{ii'}$ を用いると、チャンネル \mathbf{h} と関連した

強度透過率と強度反射率は、それぞれ次のように書くことができる。

$$\begin{aligned} |T_{\mathbf{h}}|^2 &= \sum_i \left| \sum_{i'} T_{ii'}(\mathbf{h}\mathbf{0}) E_{i'}^0 \right|^2, \\ |R_{\mathbf{h}}|^2 &= \sum_i \left| \sum_{i'} R_{ii'}(\mathbf{h}\mathbf{0}) E_{i'}^0 \right|^2. \end{aligned} \quad (2.63)$$

ただし、Bragg回折波については考慮していない。したがって、式(2.63) ($|T_{\mathbf{h}=\mathbf{0}}|^2$ と $|R_{\mathbf{h}=\mathbf{0}}|^2$) だけを考えることにする。以下では簡単のために、これらを $|T_0|^2$ と $|R_0|^2$ と表す。

次に、有限な寿命を持つ擬2次元フォトリック・バンドを得るための理論的アプローチの代表的な方法を紹介する (詳しくは文献 [21] を参照)。

DETB 法 (det B 法)

$B(\mathbf{k})^{-1}$ の行列要素 (pq) は、

$$[B(\mathbf{k})^{-1}]_{pq} = \Delta_{pq} / \det B. \quad (2.64)$$

となる。 Δ_{pq} は、この行列の余因子 (cofactor) である。式(2.62)と式(2.63)より、透過率 $|T_0|^2$ と反射率 $|R_0|^2$ は $B(\mathbf{k}) = 0$ のときに共鳴的に発散する。つまり、行列式 $\det B(\mathbf{k}) = 0$ の点が、この系の固有モードに対応する共鳴周波数を与えることになる。このようにして $\det B$ からフォトリック・バンドを求める方法を、大高らに従って DETB 法と呼ぶ。ただし、擬2次元系の場合、この共鳴周波数は一般的には複素数となる。複素周波数平面上の実軸上に根があるときのみ $|T_0|^2$ と $|R_0|^2$ は発散する。

このような複素根で表わされる擬2次元フォトリック・バンドを求めるため $1/|\det B(\mathbf{k})|$ のスペクトルを描いたとき、そこに現れる極大の中には、それに対応する位置に透過や反射スペクトルの構造 (極大、極小) が観測されないことがある。このような固有モードは、外部から入射した電磁波に対して不活性なエバネッセント波的模式である。

以上のように、 $1/|\det B(\mathbf{k})|$ のスペクトルを計算し、その極大を $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ の関数としてプロットすれば、有限な寿命を持つ2次元フォトリック・バンドに対応す

る理論的な分散関係を得ることができる。この分散関係には、光学的に活性 (active) なモードと不活性 (inactive) なモードを含む、すべての情報が含まれている。

DOS 法 (状態密度法)

これは、固有方程式より得られる複素解の状態密度 DOS (Density-of-States) から理論的な分散関係を求める方法である。

系に固有のフォトニック・バンド・モードに対する DOS は、次式によって表わされる。

$$N_{\mathbf{k}}(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\partial}{\partial \omega} \text{Im} \log \det |\delta_{\beta\beta'} \delta_{LL'} + \tan \delta_l^\beta A_{LL'}^{\beta\beta'}(\mathbf{k})|. \quad (2.65)$$

ここで、 $A_{LL'}^{\beta\beta'}$ は行列 $\mathbf{A}(\mathbf{k})$ の行列要素であり、次のような関係が成り立つ。

$$\mathbf{A}(\mathbf{k}) = \mathbf{\Gamma}(\mathbf{k}) - \mathbf{I}. \quad (2.66)$$

さまざまな \mathbf{k} に対する DOS スペクトルの極大をプロットすることによって、フォトニック・バンド・モードの理論的な分散関係が得られる。また、DOS スペクトルのピーク幅は、対応するモードの寿命を示す。厳密に言えば、この $N_{\mathbf{k}}(\omega)$ は自由空間に置かれた単一の誘電体球についてのフォトン状態密度が、周期的に配列した誘電体球の間のホッピング過程によって変化する様子を示すものであるが、ここでは主に、球の内部に生じる WG モードから発生するフォトニック・バンドについてのみ考えている。

TR 法 (透過・反射スペクトル法)

入射電磁波の入射角度を変えて、誘電体球配列層からの透過・反射スペクトルを理論的に計算し、擬 2 次元フォトニック・バンドを求める方法である。入射角度によってスペクトル構造が移動することから、その系の固有のフォトニック・バンド・モードの分散が求められる。特定の波数ベクトル \mathbf{k} に対して、透過スペクトル $|T_0|^2$ の極小の位置をプロットすることによって、理論的なフォトニック・バンド構造が

求められる。なお、 $|T_0|^2$ における極小の位置は、 $|R_0|^2$ における極大の位置に対応する。いいかえれば、透過スペクトル構造と反射スペクトル構造は1:1に対応する。このことから、この方法をTR法と呼んでいる。

なお、次章で述べる測定方法によって、実験的にフォトリック・バンド構造を求める際には、試料に対してさまざまな角度で光を入射させ、特定の角度ごとに波長走査して得られる透過(吸収)スペクトルの極小位置をプロットしている。このような実験結果を解析するには、ここで述べたTR法が最も適している。

ODOS法(光学的状態密度法)

この方法は、入射波に対する透過波の位相変化を利用してフォトリック・バンドを求める方法である。この方法で用いるODOS(Optical Density-of-State: 光学的状態密度)は、入射電磁波の透過・反射振幅により定義される 2×2 の行列(S行列)を対角化することによって得られる。S行列のユニタリー性により、その2つの固有値は固有な光学的位相変化(OPS: Optical Phase Shift)を用いて表わすことができる。これらはS行列の偶奇性(パリティ)によって区別することができるから、総計で4種類のOPS、すなわち $\delta_{\pm}^{(P)}(k_x, \omega)$ と $\delta_{\pm}^{(S)}(k_x, \omega)$ が定義できる。各対称性によって決まるモードのODOSの表式は次の通りである。

$$N_{k_x, \pm}^{(P)}(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\partial}{\partial \omega} \delta_{\pm}^{(P)}(k_x, \omega), \quad (2.67)$$

$$N_{k_x, \pm}^{(S)}(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\partial}{\partial \omega} \delta_{\pm}^{(S)}(k_x, \omega). \quad (2.68)$$

例えば、偶(even)のパリティを持つフォトリック・バンドの $N_{k_x, \pm}^{(P)}(\omega)$ は、P偏光の入射電磁波に対してのみ活性である。系全体のODOSは、4種類のODOSの和で表される。したがって、ある k_x に対してODOSを計算し、 $N_{k_x, \pm}^{(P)}(\omega)$ の極大位置を ω の関数としてプロットすれば、 $\Gamma-X$ 方向の \mathbf{k} ベクトルを持ち、P偏光の入射電磁波に対してのみ活性な2次元フォトリック・バンドの分散関係が得られる。また、ODOSのピーク幅から、その寿命がわかる。このような性質を示す代表的な例は、参考文献[21]のFig. 13に示されている。

この方法の特徴は、入射電磁波の散乱データを使用して求めているので、光学的に活性なモードの情報だけを得ることができることと、異なったパリティのモードを区別して表わすことができることである。透過波の位相は、 P 偏光の場合、次のように表される。

$$\phi = \delta_+^{(P)}(k_x, \omega) + \delta_-^{(P)}(k_x, \omega) \quad (2.69)$$

このように、透過波の位相には系全体の情報が含まれているので、パリティの違いを区別することはできないが、OPS の計算結果から ODOS を求める方法では、その系に固有なフォトニック・バンドの偏光特性やパリティによる違いを区別することができる。

以上に述べたように、理論的なフォトニック・バンドの計算には、いくつかの方法があるが、それは単に計算技法上のことではない。それぞれの方法によって求められたフォトニック・バンド状態は、それぞれの理論的アプローチの違いに従って、性格が異なっている。これは、擬 2 次元フォトニック結晶の特徴とも関係していて、それだけ多様な性質のフォトニック・バンド状態が存在することを示唆している。いかえると、2 次元コロイド結晶のフォトニック・バンド状態を実験的に調べる際に、そこで用いている測定方法に依存して、異なった性質のフォトニック・バンドが検出される可能性があることに留意する必要がある。

2.6 本研究における理論の位置付け

2.6.1 Si_3N_4 球 2 次元結晶を用いた実験との比較

以上述べてきた大高らによる厳密な理論解析は、 Si_3N_4 球を用いた 2 次元正方格子構造の実験結果と比較して詳細な検討がなされている [21]。

実験に用いられた Si_3N_4 球は直径 $d \approx 3.2\text{mm}$ (1/8 inch) で、誘電率 $\epsilon = 8.67$ である。この Si_3N_4 球を 25×25 個、正方格子状に配列させた単層膜が測定試料として用いられた。測定周波数は、 $\omega/2\pi = 40 \sim 60 \text{ GHz}$ である。典型的な実験による透

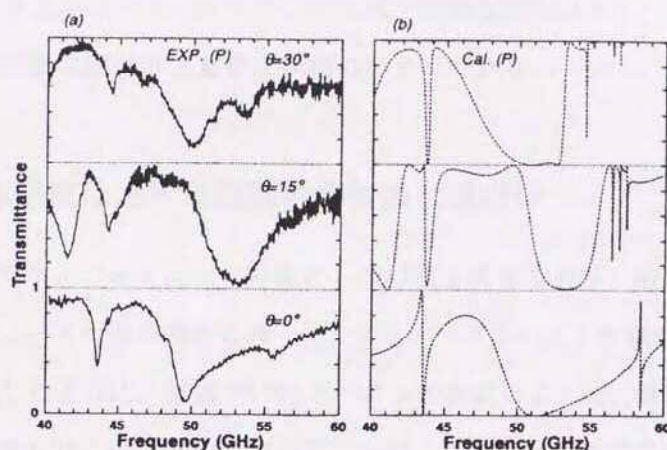


Figure 2.1: Transmission spectra for the P wave for a square lattice of Si_3N_4 spheres: (a) experimental spectra, (b) theoretical spectra calculated by the DETB method[21].

過スペクトルと理論解析によるスペクトルの比較を Fig. 2.1 に引用する。これは、入射光の偏光状態を P 偏光として、入射角度を 0° 、 15° 、 30° と変えた場合のスペクトルの比較である。スペクトルの幅に違いはあるものの、スペクトルの極小位置は一致する結果が得られている。これらの実験的透過スペクトルには、誘電体球が周期的配列した系に固有なフォトリック・バンド構造に関する重要な情報が含まれている。例えば、それぞれのスペクトルの幅から、孤立した誘電体球の WG モード (Whispering Gallery modes) に由来するバンドの伝播効果による寿命変化を評価することができる。一般に、単一球の場合と比較して、2 次元配列構造では固有モードの寿命が長くなる。また、誘電体球での WG モードのエネルギー散逸効果が、2 次元フォトリック・バンドの分散曲線の形成と大きくかかわっていることも、このような解析によって定量的に調べることができる。ただし、この実験例では、試料のサイズが有限 (25×25 個) であるから、その端でフォトリック・バンドモードが散乱される効果も考慮に入れなければならない。また、球の配列構造の僅かなずれも、実

測スペクトルの幅に影響を与える可能性がある。後に述べる本研究でのラテックス単層膜のフォトニック・バンドについても、同様な問題があり、スペクトル幅の詳細な解析は今後に残された重要な課題のひとつである。

2.6.2 本研究における理論的解析の位置付け

2次元構造は、フォトニック結晶としては擬2次元であり、面外でのエネルギー散逸効果によって有限の寿命を持ったフォトニック・バンド状態が生じる。しかし、前項で紹介したように、透過(吸収)スペクトル測定によって、厳密な理論と比較できる実験結果が得られるという点に関しては、フォトニック結晶の光学的特徴を基礎的に調べる対象として他の系にはない特徴を持っている。

本章では、このような球状誘電体粒子からなる配列結晶に関して、既に20年近く以前から大高らによってなされてきた理論的研究の概要を述べてきた。通常の実験的研究については、その基礎となっている理論はすでに多くの研究による検証を受け、教科書にも記述されるような標準的な知識として確立されている場合が多い。しかしながら、本研究で取り扱った「フォトニック結晶」については、まだこの分野の研究者が共有できる厳密な理論が確立されてないのが現状である。これは、フォトニック結晶の研究が、内外で積極的に進められるようになってからまだ日が浅いことを考えると、むしろ当然のことであろう。電子バンド理論では、スカラー量として波動関数を扱う。しかし、固体物理学においても、現在のように、密度汎関数法、擬ポテンシャル法、APW法、グリーン関数法(KKR法)など、各種の近似計算が確立されるに到るまでには、基礎理論としても現実的な数値計算技術としても、多くの年月にわたる努力が数10年にわたって積み上げられてきた。フォトニック結晶では、スカラー波ではなくベクトル波の多重散乱と回折を扱わなければならない困難がさらに加わる(電子バンドでの電子相関効果がない代わりに)。このような観点に立つと、フォトニック結晶の研究の現状は、“力まかせ”に周期構造を作製し、“力まかせ”に平面波展開法を適用している状況にあるといわざるを得ない。本

章で紹介した大高らの理論は、その対象が球状誘電体配列構造に限られてはいるが、理論的な厳密性と同時に現象の本質を物理的に考察する上で、エレクトロニック結晶の研究に匹敵できる注目すべき特徴と意義を持つものである。

本研究では、このような現状認識を踏まえ、この理論的モデルが適用できる現実のコロイド結晶(ラテックス単層膜)を対象として実験を行った。その結果と解析を次章で述べる。ある意味では、この実験は本章で述べた理論的モデルの「妥当性」を検証するという性格を持っているが、それだけに止まるものではない。まず、正確に同じ粒径を持つ、完全に球形の誘電体粒子が、完全な周期性を有する構造を作っているという理想化された理論的モデルで予測されたフォトリック・バンド・モードが、種々の制約や不完全性による試料において現実的に観測可能な固有モードとして存在し得るかどうかを確認するという課題がある。さらに進めば、半導体研究での例と同じように、現実のフォトリック結晶が示す光学的特性の中には、理論的モデルで考慮されていない効果(例えば、配列の不完全性に伴う光局在状態や基板の影響など)が、予想以上に顕著な形で観測にかかる可能性がある。このような観点からいえば、その実在性を実験的に確認することが、物理学の正当な研究対象としての公民権として必要であるだけでなく、その応用の可能性を探索する上でも現実的な基盤を確立し、「フォトリック・バンド状態」を現実の諸条件下で実在する現象として捉えることが必要不可欠となる。そのような視点から実験的なフォトリック・バンド構造を求め、それを本章で述べた理論による結果と比較して、フォトリック・バンド状態を実現するための条件として何が必要であるかを具体的に調べるのが、次章で述べる本研究の主目的である。

第3章 擬2次元フォトニック結晶の構造と光物性

3.1 はじめに

自然界には、固体、液体、気体の3相の物質が存在している。これらの状態は、系のおかれた物理的環境（例えば、温度、圧力など）を変化させると、この3相間で転移現象を示す。このような相転移現象のメカニズムを解明するため、さまざまな系（例えば液晶）の物性が基礎的な観点から研究され、また、その特徴を応用した機能材料や機能素子が開発されている。水中に懸濁したコロイド粒子系も、その動的研究のモデル材料のひとつであり、これまで多くの研究がなされてきた。（厳密な学術用語としてのコロイド粒子とは、「直径が1～500nmの範囲にあり、 $10^3 \sim 10^9$ の原子を含んでいる（理化学辞典参照）」であるが、ここではミクロンオーダーの球状微粒子を含めて、コロイド粒子と呼ぶことにする。）

ここで、コロイド系とは媒体（固体、液体、気体）の中に微小な粒子（固体、液体、気体）が分散している系の総称である。そこでは、気体-気体の組み合わせを除く8種類の組み合わせが考えられるが、その中には、意外に身近に存在するものも少なくない。例えばステンドグラスはガラス質の中に100nm程度の金属微粒子（金、銀、銅など）が分散したものであり、分散した金属微粒子の選択的な光吸収によってさまざまな色を呈するのである。また、コロイド系で最も一般的なものは、液体中に固体が分散した懸濁液や液体中に液体が分散したエマルションである。特に、懸濁液系における微粒子の規則的な配列構造はコロイド結晶と呼ばれ、金属結晶などの成長過程を解明するモデルとして、現在も盛んに研究されている。

本章では、まず本研究の発端となった懸濁液系におけるコロイド結晶の生成と、それに伴う光物性に関するこれまでの研究について概観し、ついで本研究がこのようなコロイド結晶の研究の中でどのような位置付けと意義を持つかを述べる。次に、本研究の対象であるポリスチレン微粒子の持つ基本的性質についてまとめる。さらに、ポリスチレン微粒子を用いた擬2次元結晶の作製方法と、それを用いた光学測定およびその結果について議論する。球状の誘電体配列構造の持つフォトニック・バンド構造を実験的に明らかにすることによって、前章に詳しく述べたように、理論的解析との比較が可能となる。これは、この系のみならず、フォトニック結晶一般の光学的特性を考える上で、基礎的な知見を与えるものである。球状の誘電体からなるフォトニック結晶については、最近、高硬度ボールベアリング球 (Si_3N_4 球) で作製した規則配列構造を用いたミリ波領域における実験が行われ、その結果に基づいて詳細な理論的検討が報告されている [21]。このような研究を可視光領域に拡張して、実験的にフォトニック・バンド構造を決定し、実験、理論の両面から擬2次元フォトニック・バンドの特徴を総合的に解明することが本章の課題である。

3.2 コロイド結晶の研究

3.2.1 3次元コロイド結晶

コロイド結晶とは、懸濁液系において粒子が液中で3次元的に規則配列したものである。対象となる粒子の大きさは直径が2nm から $100\mu\text{m}$ 程度までの種々のサイズのものがある。その中でも、光の波長程度のサイズ、すなわち直径100 ~ 500nm で単分散のポリスチレン球やシリカ球が最も広く使われている。

例えば、粒子の直径が100nm程度のポリスチレン球の分散液は、牛乳のように白濁している。この懸濁液にイオン交換樹脂を添加して放置しておくと、液中の余分なイオンが除去されて、懸濁液は透明になったり、光を当てる方向や見る方向によって青色や緑色に色調が変化する。これは虹彩色 (iridescence) と呼ばれ、規則的に配

列した粒子による光の Bragg 反射によるものとして説明できる。また、きわめて希薄な濃度 (例えば、0.001 %) の懸濁液では、大きさが数 mm に及ぶ巨大なコロイド単結晶が出現することが報告されている [25, 26]。このようなコロイド単結晶は、弾性率が極めて小さいので、わずかな振動で容易に結晶秩序が消失し、粒子が不規則に分布した液体状態に戻る。しかし、これを静置しておく、と時間とともに再び結晶が成長する。このようなコロイド単結晶の成長過程は何度も繰り返して観察できる。

水中で 3 次元コロイド結晶が形成するメカニズムは、水などに分散されたコロイド粒子のイオン濃度に応じた電気 2 重層の形成と粒子のブラウン運動によると考えられている。通常、低分子の電解質溶液におけるイオン分布は、Debye-Hückel 理論によって記述できると考えられているが、粒子間の相互作用については、未だに議論が続いている。

一般に、コロイド粒子系は電荷密度は低いが高分子電解質とみなせるため、この系におけるイオン分布は、DLVO(Deljaguin-Landau-Verweg-Overbeek) 理論 [27] と呼ばれるモデルによって説明されている。Fig. 3.1 に示すように、液中に存在する対イオンは、コロイド粒子表面から D_l の距離だけ隔たった球殻上に分布している。斥力ポテンシャルが $1/e$ (e は自然対数の底) になった所が D_l の値に対応する。粒子の表面付近にこのような電気 2 重層が形成されることによって、直径 d の粒子があたかも直径 $d + 2D_l$ の粒子であるかのような振る舞いをする。この有効径 $d_{eff} = d + 2D_l$ は、懸濁液中のイオン濃度に応じて変わる。粒子間の距離 D が有効径 d_{eff} よりも大きい場合には、粒子は液中を自由に動きまわることができる。 D が $d + 2D_l$ と同程度か少し大きくなると、粒子は互いに接触するが、まだ個別の運動の自由度は残っている。さらに、 D が $d + 2D_l$ と同程度かそれより小さくなった場合には、粒子は結晶状の構造を作るようになる。このとき、各粒子は、それぞれの平衡位置に保たれ、その点を中心として振動運動をしていると考えられる。このようなモデルは有効剛体球モデル (effective hard sphere model) と呼ばれている [28]。

このようなコロイド結晶の構造は、一般的には面心立方格子構造 (fcc) か体心立方格子構造 (bcc) をとる。特にコロイド単結晶の場合、容器 (試験管など) 内では、懸

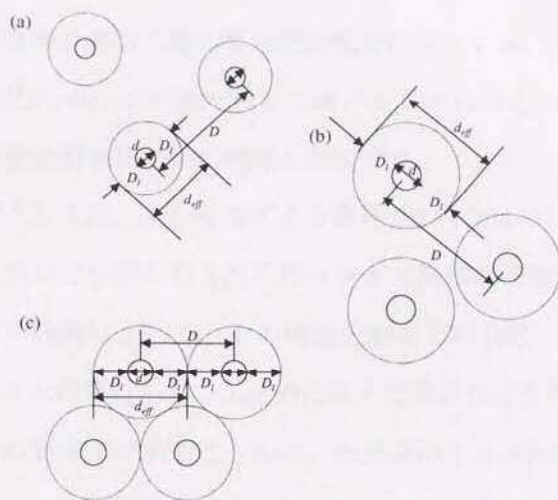


Figure 3.1: Schematic figures of colloidal systems having gas-like (a), liquid-like (b) and crystal-like (c) structures, D being the interparticle distance, d the real diameter, d_{eff} effective diameter, and D_l Debye-screening length [29].

濁液を入れたセルの壁面付近での不均一核生成から成長した微細な結晶と、液体内部での均一核生成によって成長したブロック状の単結晶からなる。イオン濃度とコロイド粒子サイズの条件を変えることによって前者を抑制すると、後者のみによる巨大なコロイド単結晶が出現することが報告されている [25, 26]。このような現象は、光学的な方法で経時的に時間変化を追って観測できるため、結晶成長過程の動的メカニズム解明に最適なモデルとされ、微小重力効果や電場効果を含めて、種々な研究が現在も続けられている。

3.2.2 2次元コロイド結晶

水中に分散したコロイド微粒子は、その自己集積力によって、ガラス表面など固体表面においても規則的な配列構造をとる。これを2次元コロイド結晶という。コロイド微粒子の間に働く力としては、van der Waals 力、静電力、近距離型の DLVO

力などの相互作用が知られているが、2次元結晶を構成する際の引力として新たに注目されたのが、物体の表面の濡れ性と表面張力に由来する、「横毛管力」と呼ばれる力である。この力については後で詳しく述べることにするが、ここでは、2次元コロイド結晶の研究の歴史について簡単に紹介する。

その初期の研究としては、Alfrey らによる直径 $0.2 \sim 1 \mu\text{m}$ のポリスチレン微粒子の合成と、それを用いて作製した3次元のコロイド薄膜の研究がある。彼らは、電子顕微鏡と光回折の実験によって、その構造を解析した [30]。もともとポリスチレン微小球は、人工ゴムの原料として工業的に広く使用されてきた。(現在は、それ以外にも、その形状が真球状であることから、顕微鏡のサイズ検定用標準試料として広く使われている。) 単分散のポリスチレン球の合成が確立されるとともに、このようなコロイド薄膜の研究が盛んになった。Alfrey らの実験結果について、Luck らは2次元の Bragg 反射によるものと説明している [31]。その後、種々なサイズのコロイド微粒子を用いて2次元結晶の作製と実験が行われ、その回折光が確かに2次元結晶構造に由来するものであることが証明された [32]。また、ポリスチレン懸濁液を乾燥して得られる2次元薄膜が、微小なレンズアレイとして利用できるというアイデアも報告されている [33]。球状微粒子懸濁液の乾燥過程によって得られるこのような2次元、3次元結晶は、主に固体(基板)表面上に作製されたものである。コロイド微粒子を水面上に展開して2次元の凝集体を形成させた報告もあるが、2次元コロイド結晶としては、液体界面よりも固体(基板)表面の方が適している。

3.2.3 フォトニック結晶としてのコロイド結晶

以上のように、コロイド結晶は、結晶成長や結晶欠陥のモデルとして、また微粒子の自己集積過程における動的メカニズム解明のモデルとして、古くからさまざまな研究の対象とされてきた。しかしながら、このコロイド結晶がフォトニック結晶という観点からの研究対象となったのは、1980年代になってからのことである。

ここで、本研究の背景として、フォトニック結晶あるいはその原型としてのフォト

ニック分子という観点からなされた最近の代表的な研究例を挙げておくことにする。

ポリスチレン懸濁液中における3次元結晶の研究としては、I. I. Tarhanらの研究が代表的な例である。彼らは、水中に分散したラテックス微結晶に特定の方向([111]方向)から光を入射し、その反射帯(フォトニック・バンド・ギャップ)付近での屈折率分散の異常をマッハツェンダー干渉計を用いた測定によって求めた[10]。さらにX線回折および電子線回折で知られたコッセル像に対応する自己回折像を利用して結晶方位を決め、透過スペクトルの測定からバンド構造の決定を試みた[11]。また、W. L. Vosらのグループは、ポリスチレン微粒子やシリカ微粒子(SiO_2)を四角形のキャピラリー中にイオン交換樹脂とともに入れ、壁面から成長する3次元fcc構造の結晶の光回折現象について研究を行った[12, 13, 34]。得られた3次元結晶中での超短パルス光の伝播を干渉計によって測定し、バンド端での異常な分散効果を議論した。一方で、酸化チタン(TiO_2)微粒子を液体から基板表面上に沈澱させた膜を焼結してした3次元結晶について、反射スペクトルを測定し、Braggピークの幅、つまりフォトニック・バンド・ギャップの幅を実験的に決定した[35]。また、理論的なフォトニック・バンド構造については、X線回折理論を適用し、平面波展開法による計算によって解析を試みている。しかしながら、彼らの用いた理論は、前章で詳述したベクトル球面波展開法による大高らの理論と比べると、厳密性と精度の点で、十分なレベルに達しているとはいえない。また、実験に用いた試料の粒子配列性にも、まだかなり問題の余地を残している。このほかに、シリカ微粒子(SiO_2)を用いた研究としては、 TiO_2 微粒子と同様に液体から基板表面上に沈澱させた膜を焼結して3次元結晶を作製し、その微粒子の隙間に有機色素分子を添加して、フォトニック・バンド効果を利用したレーザー作用を検出する試みや、粒子の間の空隙を屈折率の高い媒質で埋めて光散乱効果を抑制し、フォトニック・バンド・ギャップの確認を行う研究などが行われている[14, 36]。しかしながら、コロイド結晶系に特有なフォトニック・バンド構造の解明という点に関しては、上記の研究は、いずれも試料の品質と理論的解析に関して、まだかなり不十分な状況にあった。このような現状に鑑みると、本研究は2次元単層膜に研究対象を絞り、従来にない高品質の試料

を用いた測定と、球状微粒子系に対する厳密な理論による解析を行った点で、フォトリック結晶としてのコロイド結晶のフォトリック・バンド構造の研究に新しい展望を与えるものといえる。

なお、無限サイズのコロイド結晶系の研究以外に、最近になって、フォトリック原子、フォトリック分子という観点から、単一球および多連球系における球内のWGモードと関連づけて研究した例[17]や、 $2\mu\text{m}$ 程度のポリスチレン球を電子顕微鏡下で1個ずつ微小物体操作技術により並べ、有限サイズの配列構造(フォトリック・クラスター)を作製して、そのフォトリック・バンド状態を研究した例が報告されている[37]。しかし、これらの研究は、フォトリック結晶の研究という観点からみると、間接的な知見を与えるにとどまる。

上記のような研究状況を踏まえて、本研究では、単分散ポリスチレン・ラテックスを用いて、従来に用いられてきた試料と比較して、より広い領域にわたって方位と粒子配列の秩序性を保って2次元的に配列したフォトリック結晶作製の努力を行い、その結果得られた試料について2次元コロイド結晶中を伝播する光の特性やフォトリック・バンド効果についての研究を行った。その結果を、次節以下に述べる。

3.3 コロイド微粒子を用いた擬2次元フォトリック結晶

3.3.1 ポリスチレン微粒子(ラテックス)とその性質

ここで、本研究で用いたコロイド微粒子であるポリスチレン・ラテックスについて、改めてその基本的な特徴をまとめておくことにする[38, 39]。

ポリスチレン微粒子はラテックス(latex)と呼ばれている高分子微粒子の一種である(ポリスチレン以外に、ポリブチレンなども用いられている)。ラテックスとは、本来は天然ゴムの乳液のことを意味するものであった。しかしながら、第2次世界大戦後、それを人工的に合成する技術が確立されると、それらを総称してラテックスと呼ばれるようになり、合成ゴム、塗料、紙加工、繊維加工などのきわめて広い

工業分野で用いられるようになった。現在では、その用途に応じて各種のラテックス試料が市販されている。ラテックスは、主に界面活性剤や保護コロイドの存在下で乳化重合によって製造される。最近では、乳化剤を加えずにモノマーと不溶性の溶媒を強くかき混ぜ、モノマー油滴を溶媒中に分散させながら重合を行う懸濁重合法によって合成されている。この反応はラジカル重合として進行し、重合した高分子末端の官能基によって粒子に表面電荷が付与される。これらのラテックスは、粒子の直径が $0.1\sim 1.0\mu\text{m}$ の微細なポリマー粒子(ポリスチレン、ポリブチレンなど)と表面保護層によって構成されている。形状は一般的には球状であるが、アレイ状などさまざまな形状のラテックス粒子も開発されている。

ラテックスの基本的性質は大きく分けて次の2点である。ひとつはコロイド的、界面化学的性質であり、もうひとつはラテックスを用いて作製されたゴム状薄膜のフィルム的性質である。前者はラテックスそのものに関する性質であるが、後者は工業的利用に関する性質なので、ここでは省略する。

ポリスチレン・ラテックスは、可視光域での屈折率が1.6程度のほぼ真球状の透明な誘電体球である。懸濁液は、粒子のサイズに応じて白色から青みを帯びた乳白色までの多彩な色を呈する。粒子のサイズは、 $100\text{nm}\sim$ 数 $10\mu\text{m}$ と広い範囲にわたって存在し、光学顕微鏡や電子顕微鏡などのサイズ検定のための標準試料としても市販されている。粒径が良く揃った単分散の試料が容易に入手可能であること、およびその製造過程において容易に蛍光色素を添加することができる点も、各種の研究にラテックス粒子が広く利用されている理由である。このような蛍光性微粒子は主に細胞生物学での研究や医療分析用として多くの種類が合成されている。

次に、その光学的な性質について述べる。通常の懸濁液の状態では、ポリスチレン微粒子は液中に無秩序に分散していてブラウン運動をしている。そのため、揺らぎによる光散乱が生じる。入射する光の波長に比べてポリスチレン微粒子のサイズが小さい場合には、いわゆる Rayleigh 散乱が生じる。入射光によってその電場(偏光)方向を向いた電気双極子がほぼ一様な密度で粒子内に誘起される。それによって生じる双極子放射としての散乱光強度は、粒子体積に比例し、光の波長の4乗に反

比例する。つまり、粒子が大きいほど、または光の波長が短いほど散乱光強度が強くなる。粒子のサイズが入射する光の波長より大きい場合には、1個の粒子内で特定の空間的分布をしている双極子場が誘起される。この双極子分布は、粒径 d に対する入射光波長 λ の比によって異なるさまざまな空間パターンをとる。この場合、粒子間の各点から生じる双極子放射には、入射光に対する観測方向によって異なる位相差が生じる。したがって、散乱光強度やその方位依存性と偏光状態にも、励起されるモードによって異なる特徴が生じる。この散乱過程については、G. Mie によって厳密な理論式が1908年に導かれており、それ以来、この種の散乱はMie散乱と呼ばれている。

また、3.2.2節で述べたように、ラテックス懸濁液が虹彩色 (iridescence) を呈するのは、ラテックスの粒子サイズが極めてよく揃い、かつそれらが規則正しい配列状態 (通常 fcc 構造) を作るので、可視光に対して光の Bragg 回折が生じるためである [31, 32]。これについてはすでに前節で説明した。

3.3.2 自己集積によるコロイド微粒子の配列

次に、本研究においてラテックス配列膜作製の基本的過程である自己集積によるコロイド微粒子の配列のメカニズムについて述べる。

自己集積 (self-assembly) あるいは自己組織化 (self-organization) とは、その文字が示す通り構成要素の間で自ら力を及ぼしあうことにより、自分自身で組織的な (秩序だった) 構造を形成することである。自然界では、生物、無生物にわたってあたりまえのように種々な自己集積作用による集合体の形成が実現されている。粒子数が多くなるとともに、それらを個別的に制御することが不可能となるため、多数の構成要素からなる系では、自己集積力を用いて微細な規則構造を作り出すことが、ほとんど唯一の手段となるのである。フォトニック結晶については自己集積化によるコロイド結晶の作製以外に、半導体のエピタキシャル成長過程で自己組織的構造の生成が、3次元フォトニック結晶作製の有効手段となることが示されている [40]。

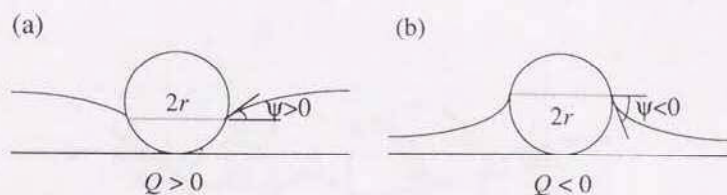


Figure 3.2: Meniscus patterns around a particle for hydrophobic case (a), and hydrophilic case (b) [43].

コロイド微粒子についての自己集積過程には次に示すような3種類の要因がメカニズムとして働いていることがわかっている [41, 42, 43]。

1. 集積過程には、溶媒の安定な流動層の存在が必須である。(基板表面の濡れ性)
2. 粒子は蒸発が誘起する溶媒の流れによって運ばれ、膜を形成する。(移流集積化)
3. 一部分が溶媒に浸った粒子の間には、表面張力に由来の力が働く。(横毛管力)

この機構を、永山らに従って模式図に示すと以下のようなになる。水に浮かぶ粒子には Fig. 3.2(a)、(b) に示すように表面の濡れ性によって曲率の異なるメニスカスができる。濡れ性の同じ2つの粒子を水に沈めたときに生じる水面の形状は、2粒子間の距離によって変化する。水面を平面から変化させるのに必要なエネルギーは、粒子間の距離と物体固有の幾何学的性質 ($2r, \psi$) に依存する。このエネルギー変化によって生じる粒子間の力を荷電粒子間の静電力に対比させて、次のように定義される“毛管電荷”という仮想的物理量を導入する。

$$Q = r \sin \psi. \quad (3.1)$$

ここで、 ψ はメニスカスの傾き角、 r は濡れ接触部位の曲率半径である。これら量を用いて Fig. 3.3 に示すような2つの粒子間に働く力をこの Q によって示すと、次のようになる。

$$F = 2\pi\gamma Q_1 Q_2 q K_1(qL) [1 + O(q^2 R^2)], \quad r_k \ll L. \quad (3.2)$$

ここで、 γ は液体の表面張力、 Q_1, Q_2 はそれぞれ粒子1と粒子2の毛管電荷、 q は毛管定数 (水の場合は、 $q^{-1} = 2.7 \text{ mm}$ である)、 $K_1(x)$ は1次の変形ベッセル関数、 L

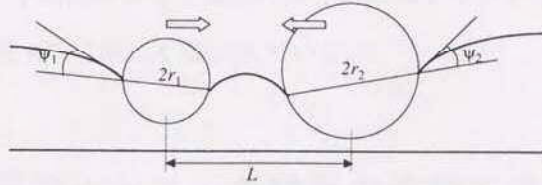


Figure 3.3: The lateral capillary force between two particles floating liquid surface [43].

は粒子間距離である。 $K_1(x)$ は $x \ll 1$ のとき、 $1/x$ となるので、式 (3.2) は、

$$F = 2\pi\gamma \frac{Q_1 Q_2}{L}, \quad r_1, r_2 < L < q^{-1}. \quad (3.3)$$

と近似できる。これは、毛管電荷 Q_1, Q_2 をもった 2 つの電荷間に働く 2 次元的なクーロン力に相当し、粒子間距離 L の逆数に比例する。式 (3.1) と Fig. 3.2 に示すように、メニスカスの傾き角 ψ の符号により、毛管電荷 Q_1, Q_2 の値は正にも負にもなる。両方とも正の場合には引力、両方とも負の場合には斥力となる。

水の表面上に浮かんだ粒子に働く力は浮体力と言われ、粒子の重力、浮力と表面張力のつり合いで決まる次式で表される。

$$\text{浮体力} \quad F \propto \frac{R^6}{\gamma} K_1(qL). \quad (3.4)$$

また、粒子が基板面に接触し、水位が粒子径より低くなって粒子が液体表面から頭を出すと、横方向に強い力が働く。この力 F は、横液浸力と呼ばれ、次のように表される。

$$\text{液浸力} \quad F \propto \gamma R^2 K_1(qL). \quad (3.5)$$

上記の浮体力と横液浸力の 2 種の力は、ともに表面張力に由来するが、浮体力は、粒子の体積に依存するのに対して、横液浸力は粒子の半径と液体薄膜の厚さに依存している。

コロイド粒子が集積する過程では、液浸力つまり液体薄膜中の粒子間の力が重要になってくる。この水表面の粒子と壁面に働く力に関する厳密な定式化については、参考文献 [44, 45, 46, 47] に詳しく書かれている。

3.4 擬2次元フォトニック結晶の作製方法

ここでは、擬2次元フォトニック結晶の作製方法について説明する。これから説明する2つの方法は、ともに ERATO 永山たんぱく集積プロジェクトで行われていた手法を参考にして、独自に経験的な工夫を重ねたものである。

3.4.1 バッチ法

この方法は、Fig. 3.4 (a) に示すように、ロウ (ワックス) を用いて作製した円筒形の鋳型を利用して、その内部に同心円状にコロイド微粒子（ここではポリスチレン・ラテックス）を並べる方法である [48, 49, 50, 51]。

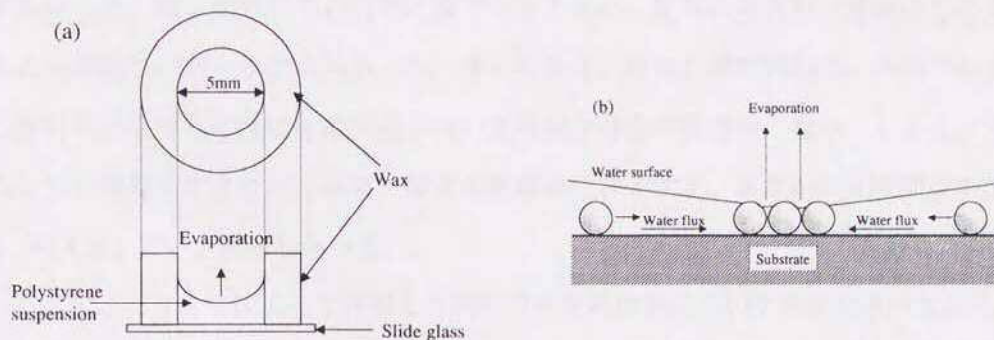


Figure 3.4: (a) Schematic figure of sample preparation by the batch method. (b) Self-assembly process due to lateral capillary immersion forces [41].

円筒形の鋳型は、次のようにして作製する。ガラス板上に内径 15mm の金属リングを置き、その中央部に外径 5mm の金属製の円柱を立てる。リングと円柱の間に

融解させたロウを注入し、自然冷却させる。それが凝固した後、ガラス板から取り外し、金属リングおよび円柱を取り除く。

このようにして作製した円筒形の鋳型は、洗浄したガラス基板上に融着させ、試料作製に用いるセルが完成する。

このセルの中央部にラテックス懸濁液を滴下する。セルの壁面(ロウ)は親水性を示すため、Fig. 3.4 (a)に示すようなメニスカスができる。水の蒸発は鋳型の中央部より始まる。液面が粒子のサイズと同じか少し低くなったときに、Fig. 3.4 (b)に示すような表面張力に由来する横毛管力が働き、水の流れに乗って粒子が中央部に集積する。

ここで重要なのは、注入するラテックス懸濁液の濃度と量である。あらかじめ、サンプルを作る面積と使用する粒子サイズ、懸濁液の濃度の関係を調べて、粒子が1層に並ぶだけの適量を算出しておく必要がある。例えば、粒径 501nm のラテックス懸濁液の場合、懸濁液濃度を 0.1 % に調整し、これを約 $5\mu\text{l}$ 滴下する。この滴下量は、経験的に単層膜になる量の 2 倍程度である。しかしながら、この方法では粒子配列が広い領域にわたって秩序性を保った単層膜を作製することが困難であることがわかった。粒子配列が同心円状に進行するために、配列の方向を一方向にそろえることが難しいという欠点もあった。多くの場合、円型の薄膜試料は、円の中心から放射状に広がる方向に結晶平面が向いた微細な結晶の集合体となってしまう。また、自然蒸発させるため、室温や湿度の影響を受けやすく、またかなり時間がかかる(約1日)という難点もあった。

ここで、バッチ法によって作製した試料の光学的性質について簡単に述べておく。粒径の異なるラテックス粒子を用いて、この方法により作製した数多くの単層膜の中から、秩序性の良い試料を選んで垂直入射透過スペクトルの測定を行った。その代表的な実験結果を Fig. 3.5 に示す。このような透過スペクトルとその解析については次節で詳しく述べるが、粒径の異なる 2 種類の試料において、同様の構造を示していることから、スケール則(粒径に比例して波長を大きくとれば、粒径によらず同じスペクトルを示すこと)が成り立っていることが明らかになった。しかしなが

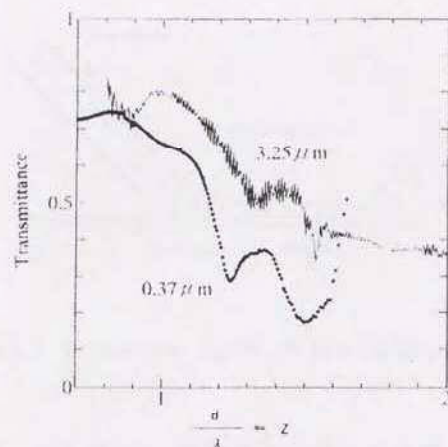


Figure 3.5: Typical transmission spectra for normal incidence of light. Spectra are plotted against the reduced energy Z , which is the ratio of the lattice constant d to the wavelength λ .

ら、短波長側には、後に述べるような構造がほとんど認められない。(なお、ラテックス単層膜の配列性の良否がその透過スペクトルにどう影響するかについては、次に述べる移流集積法によって作製した試料を用いて詳しく検討する。) いずれにしても、バッチ法には上述のような自己組織化構造の品質について限界があり、この方法によって作製した試料では、フォトニック・バンド効果を広いエネルギー領域にわたって精密に調べることが無理であると判断し、次の方法に転換することとした。

3.4.2 移流集積法 : Dimitrov cell method

バッチ法における問題点を解決するために、作製方法を改良することを試み、その結果、最終的に採用したのが、移流集積法と呼ばれる結晶作製方法である [52, 53]。この方法は Fig. 3.6 に示すように、これまでは水の自然蒸発により同心円状に配列させていた結晶を、試料セルに対して基板を一定方向に移動させることにより配列方向を制御する方法である。ラテックス懸濁液の入ったガラスセル (2 枚の平行なガラスを間隔 1mm 程度で固定したもの) を適当な高さに固定し、その下に置かれたガラス基板を水平方向に一定の速度で移動させる。このときのラテックス懸濁液の濃

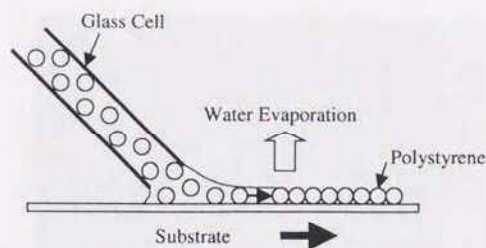


Figure 3.6: Schematic figure of the Dimitrov cell method

度と基板の移動速度については、使用するラテックス粒子サイズごとに異なる最適条件を経験的に求める必要がある。この方法を採用することによって、従来の方法に比べて、格段に広い領域にわたって、配列方向の揃った単層膜を得ることが可能になった。このようにして作製した単層膜の構造と光学的性質については次節で詳しく述べる。

なお、この方法を採用し実施するにあたっては、東京大学工学部応用化学科、藤嶋研究室の方々、とりわけ大学院生の松下祥子氏の助言に負うところが大きかったことを付記する。

3.5 擬2次元フォトニック結晶の光物性

ここでは、最終的に本研究での試料作製として採用した移流集積法によって得られた擬2次元フォトニック結晶の構造評価と、フォトニック・バンド構造の実験的決定のために、これらの試料を用いて行った光学測定およびその解析結果について述べる。

3.5.1 ポリスチレン・ラテックス粒子の評価

実験に用いたポリスチレン・ラテックスは、市販されている Polyscience, Inc. 製の標準試料用ラテックス (Polybead Polystyrene Certified Standards Calibration Par-

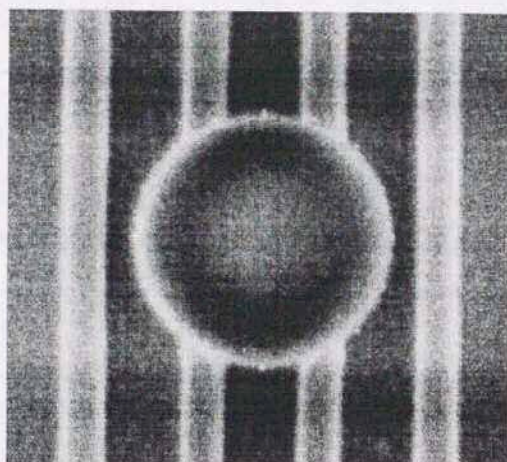


Figure 3.7: A SEM image of a polystyrene particle (at the center). The vertical stripes are the standard scales carved on the silicon crystal surface.

ticles)である。粒径 d は、 $1.00\mu\text{m}\sim 0.50\mu\text{m}$ で、単分散性 (Coefficient Variance) は、 $\Delta d/d \leq 1.5\%$ とカタログに記載されている。

粒子の正確なサイズとそのばらつきは、擬2次元結晶を作製する際に、その配列秩序性の良否に決定的な影響を与える。市販品として購入した試料には、粒径や分散のデータ (平均粒径の公称値と分散) が添付されているが、それを全面的に信頼することは危険であることが、経験的に分かった。そこで、購入した試料の正確な粒子サイズと分散を走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope :SEM) によって確認することにした。測定には、半導体ウェハプロセス評価用測長 SEM (HITACHI S-7840) を使用した。なお、この測定は、本学の大隅正子教授のご好意により (株) 日立サイエンスシステムズに依頼して行った。

そこから得られたデータは、懸濁液試料の中からランダムに選んだ20個の粒子の直径をSEMによって測定し、その平均粒子サイズと分散の評価を行ったものである。その一例として、購入時の公称粒径が501nmと表示されていたラテックスのSEM像をFig. 3.7に示す。縦の縞模様は、Si結晶表面にリソグラフィ技術により刻まれた間隔240nmの基準線である。

表示されていた粒子サイズ (501nm) に対して、実際に評価されたデータでは、平均直径 536.2nm、最大値 541.0 nm、最小値 529.9 nm となっていた。平均直径に対する分散は、 $\Delta d/d=2\%$ であった。

今後、測定に使用した試料について表示した粒子サイズには、すべてこの測長用 SEM によって検定された平均値を用いた。(この SEM の測定についてご助力賜った大隅正子教授および (株) 日立サイエンスシステムズの関係者の方々に感謝する。)

3.5.2 実験方法

上述のようにして正確な粒子の直径が検定されたさまざまな粒径のポリスチレン・ラテックスを用いて、前述の移流集積法により、各種の粒径のラテックス単層膜を作製した。その一例として、粒径 989nm 単層膜の写真を Fig. 3.8 に示す。

配列性が広い範囲にわたって良好であり、またその方位が揃っているため、Bragg 反射による虹彩色の色合いが場所によって不規則に変わらず、連続的に変化している様子が認められる。黒い斑点模様は、2 層以上の多層膜構造の領域である。粒径が小さいために、光学顕微鏡でははっきりとした粒子の配列状態は確認できない。そこで、原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope : AFM) による表面観察を行った。その一例を Fig. 3.9 に示す。この観察によって、ラテックス単層膜は六方最密構造であることが確かめられた。ただし、注意してみると、単層膜上には金属結晶の転位欠陥や境界線に似た線状の不整箇所が生じていることがわかる。しかしながら、これらの不整箇所は、その両側の配列構造が、互いに平行な方向に全体としてずれた一種のスリップ状の欠陥であり、その両側での結晶方位はほとんど変化していないことがわかる。この点が、パッチ法で作製した試料と比較して、移流集積法によって作製された試料の特徴 (長所) であり、後述する光学測定を可能とした決定的な要因となっている。得られた単層膜の配列領域は、方位性が保たれたドメイン領域を含めて、粒径 989nm の試料でおよそ $3 \times 3\text{mm}^2$ である。粒子のサイズによって、配列領域の面積が異なり、粒径が小さくなると乱れが増す傾向にある。

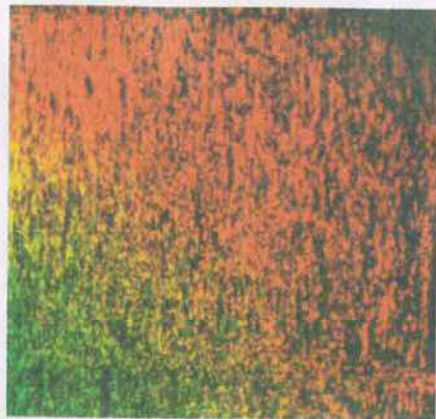


Figure 3.8: Photograph of a quasi-2D photonic crystal made of 989 nm particles on a glass substrate. The iridescent color is due to the Bragg reflection of illuminated light.

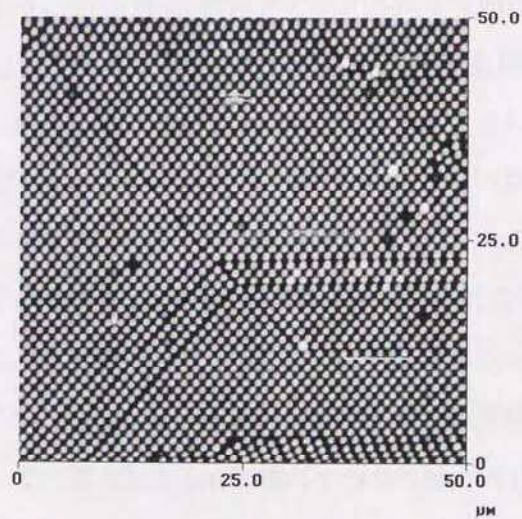


Figure 3.9: Atomic force microscope (AFM) image of a quasi-2D photonic crystal. The diameter of each polystyrene particle is 989 nm.

このようなラテックス単層膜を用いて、斜入射偏光透過スペクトルの測定を行った。まず、直径4mmの穴をあけたホルダーにサンプルを固定した。この穴を通してレーザー光(粒径により波長を適当に選択する)を照射し、照射スポットをずらして回折パターンを観察することにより、配列性の良い部分を確認することができる。六角形の回折パターンから配列方向の確認を行った。回折パターンの一例をFig. 3.10に示す。1次の回折スポットがはっきりと六角形状に観察され、このことからきわめて配列性の良い六方最密構造の単層膜が作製できていることがわかる。試料ホルダーの上で試料を回転し、特定の結晶軸が水平または垂直になるような位置で試料を固定した。

ここで、入射光が膜の法線方向に対して角度 θ をなしているとき、入射光の波数ベクトルの大きさ($|\mathbf{k}| = \omega/c$)と膜内に平行な波数ベクトル成分の大きさ k_{\parallel} の関係を示しておく。試料面に平行な波数ベクトルの成分を k_{\parallel} とすると、

$$k_{\parallel} = \frac{\omega}{c} \sin \theta \quad (3.6)$$

と表わすことができる。[100]軸(1個のラテックス粒子を囲む6個の粒子が作る正六角形で、相対する頂点を結ぶ方向)を中心にして試料を回転する場合を考える(Fig. 3.11)。このとき、波数ベクトル k_{\parallel} は ω を変えることによって、2次元 Brillouin 領域における[Γ -K]方向に沿ってその値を変化させていることになる。同様に、[010]軸(正六角形の相対する辺の中心を結ぶ方向)を中心にして試料を回転させ、一定の角度に固定して ω を連続的に変化(走査)させると、光の振動数(エネルギー) ω が変化すると同時に、 k_{\parallel} の値が式(3.6)に従って、第1 Brillouin 領域の[Γ -M]方向に沿って変化する。このようにして、斜入射配置で入射光の振動数(または波長)を変化させることによって、第1 Brillouin 領域の2つの主軸方向([Γ -K]方向と[Γ -M]方向)に平行な方向に振動数 ω で伝播する、任意の大きさの波数ベクトルを持った電磁場状態を作ることができる。

さらに、この入射光に偏光を用い、入射面(入射光と膜の法線を含む面)に対して平行な電場をもったP偏光と入射面に垂直な電場を持ったS偏光について、測定を



Figure 3.10: Laser diffraction pattern of ordered polystyrene particles. The structure is close-packed hexagonally.

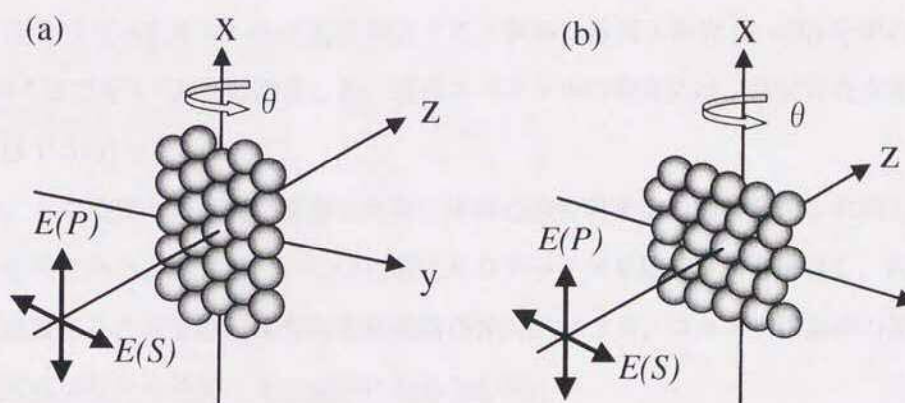


Figure 3.11: Rotation axis was fixed either along (a) $[100]$ direction or (b) $[010]$ direction. Wave vector is scanned from Γ to K (a) and from Γ to M (b) in first Brillouin zone.

行った。この2つの偏光で励起されるフォトニック・バンド状態が互いに独立な固有モードであることは、系の対称性から明らかである。

他方、ラテックス単層膜については、前章の理論で詳しく考察されたように、誘電体球の2次元結晶に固有な擬2次元フォトニック・バンド状態が存在している。この固有状態全体は、振動数 ω (前章で述べたように一般に複素数の値となる)と波数ベクトル k とによって指定されるフォトニック・バンド構造を形成している。特定の入射角 θ と偏光方向を持った入射光によって、膜上には振動数 ω 、波数 k_{\parallel} の電磁場が作られ、それが、光学活性なフォトニック・バンド状態の ω と k と一致したとき、入射光の電磁場エネルギーが共鳴的にフォトニック・バンド状態に移行する。このとき、透過スペクトルには、振動数 ω をピークとする極小(ディップ)構造が観測されるはずである。この状態に対する波数ベクトルの方向と大きさは、式(3.6)に従って、試料の回転軸の向きと回転角 θ の値から知ることができる。

このような原理に基づき、各試料については回転軸を $[100]$ 方向に設定した場合と、 $[010]$ 方向に沿う場合のそれぞれについて、S偏光、P偏光の入射光に対する透過スペクトルの測定を行った。前者は k_{\parallel} ベクトルを $[\Gamma-K]$ 方向に走査することに対応し、後者は $[\Gamma-M]$ 方向への走査に対応する。試料は垂直入射光($\theta = 0$)を中心に $\theta = \pm 30^\circ$ までを 1° おきに測定した。透過スペクトルの測定には、自記分光光度計(JASCO V-570)を用いた。

なお、この測定は大阪大学基礎工学部、伊藤正教授研究室の藤村徹氏と共同して行ったものである。同グループには以前よりラテックス単層膜試料を提供し、同研究室に設置された走査型近接場光学顕微鏡(SNOM)により、コロイド結晶中の光伝播特性の共同研究を進めてきた関係にある[54, 55]。

ω 、 k_{\parallel} の走査について

ここで、次の点を付記しておく。上述のように、斜入射角 θ を原理的には $\theta = 0^\circ$ (垂直入射)から $\theta = 90^\circ$ (膜面に平行に入射)までの範囲の値に設定し、入射光の ω (すな

わち光子エネルギー、または波長)を走査することによって、 ω の値と同時に k_{\parallel} の値を式(3.6)に従って連続的に走査することができる。しかし、このようにして走査することのできる領域は、 (ω, k_{\parallel}) 平面の第一象限(ただし、 $k_{\parallel}=0 \sim \pi/a$)のすべてを覆うわけではない。 $\theta=90^\circ$ に相当する $k_{\parallel}=\omega/c$ で表わされる直線(これはlight lineと呼ばれている)と縦軸($k_{\parallel}=0: \theta=0$ に対応する)とで挟まれた三角形内の領域(2次元の波数ベクトル k を考えると原点を頂点として倒立した円錐領域(light cone)の内部)に限られている。現実の測定では、 θ が大きくなると入射光ビームが当たる領域が膜面上で細長く伸びて透過スペクトルの測定が困難となるので、 $\theta=30^\circ$ 付近までが限界である。フォトリック・バンド状態の実験的検出は、 (ω, k_{\parallel}) 面上で、この領域内に限られることになる。また、今回の測定周波数(波長)範囲は、 Γ -K、 Γ -M方向のいずれについても、周期配列構造によって1次のBragg回折条件を満たす周波数(波長)より低周波数側(長波長側)にある。すなわち、第3章で述べた球状粒子の2次元格子による散乱理論に即して言えば、1次のBragg回折の散乱チャンネルが、まだ開かない領域に相当する。

3.5.3 実験結果および考察

垂直入射透過スペクトル

垂直入射光に対するラテックス単層膜の透過スペクトルの代表例をFig. 3.12に示す。実線は粒径989nmの単層膜、一点鎖線は536nmの単層膜の透過スペクトルである。また比較のために、大高らによる六方最密格子配列ラテックス単層膜(誘電率 $\epsilon=2.56$)の透過スペクトルを点線で示してある。ここで、横軸 E は、次のように定義された規格化周波数(エネルギー)である。

$$E = \frac{\sqrt{3}d}{2\lambda} \quad (3.7)$$

λ は入射光の波長、 d は各単層膜のラテックス粒子の直径である。誘電体球の光学スペクトルは、単一球についてもその集合体についても、透過光の波長と粒径の比

が同じであれば、マイクロ波、ミリ波から可視光域に至るまで、その波長の大小を問わず、同じスペクトル特性を示すはずである(これを光学的なスケール則と呼ぶ)。したがって、上記のように規格化することによって、どのような粒径の単層膜についても共通のパラメータ E を用いて、そのスペクトルの特徴を考察することができると予想される。

実際に、既に Fig. 3.5 に示したように、粒径の異なる上記の2種類の単層膜における透過スペクトルは、同様の構造を示すことが確かめられている。このことから、スケール則が成立していることは明らかである。また、実験結果と計算結果を比較してみると、透過スペクトルの極小構造の現れるエネルギー位置が、ほぼ一致している。しかしながら、計算によるスペクトル構造はきわめて幅が狭く鋭い極小を示している。一方、実験によるスペクトルは、ずっと幅が広い。この違いの原因については、後節で詳しく考察することにする。

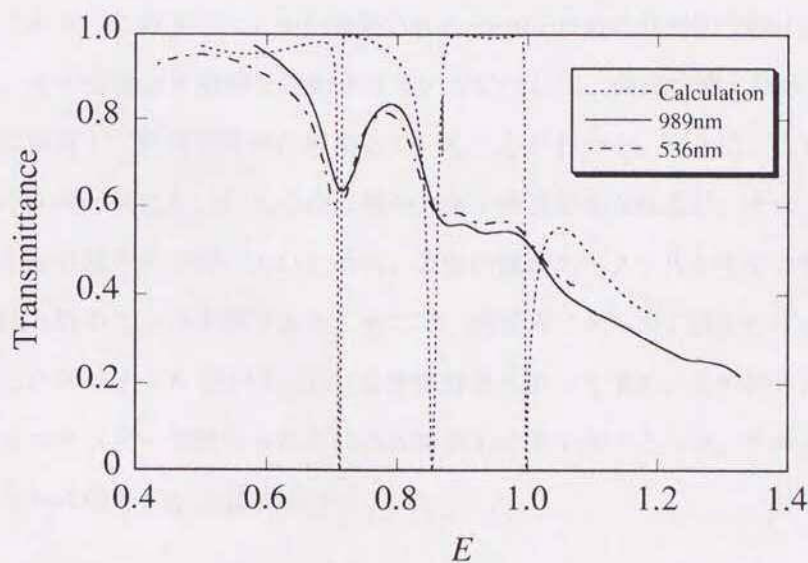


Figure 3.12: Transmission spectra for normal incidence of light, plotted against the normalized energy $E = (\sqrt{3}/2)(d/\lambda)$.

斜入射偏光透過スペクトル

前節で述べたように、入射光に対して試料面を一定の角度 θ だけ傾けることにより、式 (3.6) によって表わされる大きさを持った波数 k_{\parallel} の電磁場を回転軸と垂直な試料面内に作ることができる。この電磁場 (E, k_{\parallel}) に共鳴するフォニック・バンドモードが斜入射偏光透過スペクトルの極小として観測にかかる。このようにして得られた代表的な測定結果を Fig. 3.13、Fig. 3.14 に示す。

実験では、 k_{\parallel} の方向をそれぞれ Γ -K、 Γ -M 方向とするように、回転軸の方向を設定し、それぞれについて S、P 偏光の入射光に対する透過スペクトルを垂直入射位置 ($\theta = 0^\circ$) を中心として $\pm 30^\circ$ の範囲で 1° おきに変化させて測定した。Fig. 3.13 と Fig. 3.14 は、見やすくするために、 0° から 30° まで 3° おきのスペクトルを示してある。ここで、 $\theta = 0^\circ$ の透過スペクトルは、垂直入射光の場合であるから、波数ベクトル $|\mathbf{k}| = 0$ の点、すなわち第 1 Brillouin 領域の原点 (Γ 点) に対応する。 Γ 点は六回の回転対称性を持つから偏光依存性もなく、Fig. 3.13 と Fig. 3.14 の 4 つの図に共通である。このスペクトルで観察される $E=0.7$ 付近の代表的な極小構造に注目すると、その位置は単層膜を回転させていくにつれて、偏光状態と波数ベクトル \mathbf{k} の方向に依存して低周波数側に移動していくことがわかる。さらに、この極小構造の高エネルギー側にも、いくつかの細かい極小構造が見られるが、そのスペクトル構造はかなり緩やかで幅が広いために、直接に透過スペクトルからその極小位置を正確に読み取ることが困難である。そこで、透過スペクトル $T(E)$ を E に関して 1 次微分したスペクトル $(dT(E)/dE)$ を数値計算によって求め、その符号が正から負に変わるエネルギー位置をそれぞれの共鳴点のエネルギーとした。そのような微分スペクトルの例を Fig. 3.15 に示す。

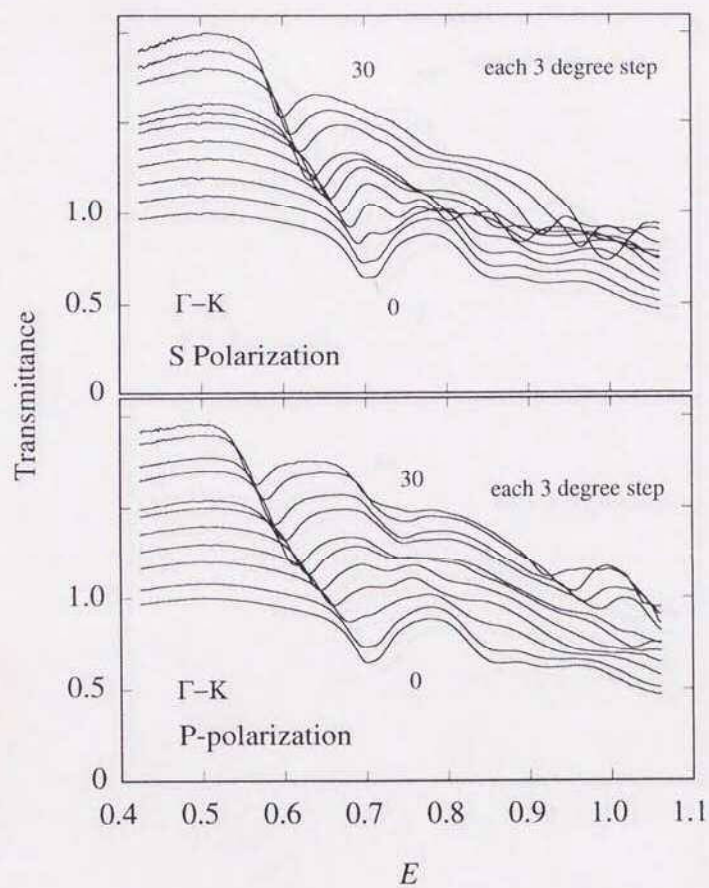


Figure 3.13: θ -dependence of the experimental polarized transmission spectra for the Γ -K direction from $\theta=0^\circ$ to 30° each by 3° step, E being the reduced energy $E = (\sqrt{3}/2)(d/\lambda)$.

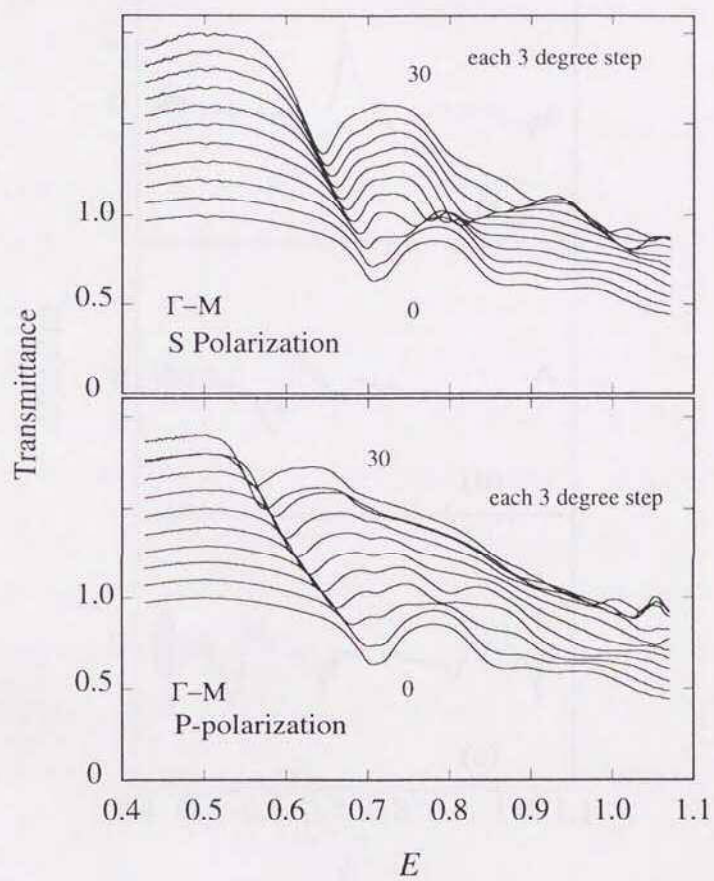


Figure 3.14: θ -dependence of the experimental polarized transmission spectra for the Γ -M direction from $\theta=0^\circ$ to 30° each by 3° step, E being the reduced energy $E = (\sqrt{3}/2)(d/\lambda)$.

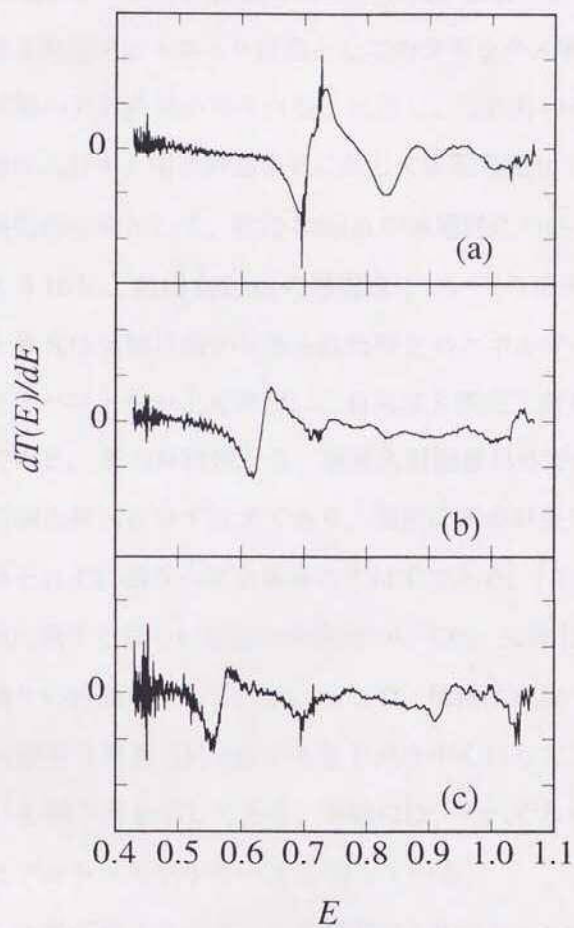


Figure 3.15: Typical differential transmission spectra with respect to E , for the Γ -K direction and P-polarization. Incident angles are (a) $\theta = 0^\circ$, (b) $\theta = 15^\circ$ and (c) $\theta = 30^\circ$. E is the reduced energy $E = (\sqrt{3}/2)(d/\lambda)$.

擬2次元フォトニック・バンド構造

結晶の方位、偏光状態ごとに、上述の手続きに従って斜入射偏光透過スペクトルの極小構造のエネルギー位置を求め、それを波数ベクトル $|\mathbf{k}|$ に対してプロットすると、擬2次元フォトニック結晶としてのラテックス単層膜に固有なフォトニック・バンド状態の分散曲線が得られる。ただし、これらのモードは第2章に述べたように、平面波入射光と遠視野透過光に対して観測可能な“光学活性”モードに限られている。典型的な例として、粒径536nmの単層膜についてのフォトニック・バンド構造をFig. 3.16に、粒径989nmの単層膜についての結果をFig. 3.17に示した。

白丸と黒丸は実験結果から得られた特定のエネルギーと波数ベクトルを持つフォトニック・バンドモードを表わし、白丸はS偏光、黒丸はP偏光にに対して活性なモードである。系の対称性から、垂直入射配置以外では、各モードはS、P偏光いずれかの偏光特性を示すはずであり、偶然に縮退が生じる場合を除いて、これらのモードはそれぞれ異なった分散を示すはずである。(フォトニック・バンド・モードの対象性に関する詳しい群論的考察については、文献[22]を参照。) 実験結果は、この予想通りの特徴を示している。ここで、横軸は波数ベクトルの大きさ $|\mathbf{k}|$ であり、Brillouin領域の原点 ($|\mathbf{k}|=0$) である Γ 点を中心にして、その左側に Γ -M軸方向を、右側に Γ -K軸方向を示してある。縦軸には、それぞれの走査波長領域に対応する規格化した光子エネルギー E を取っている。

前述した垂直透過スペクトルの測定によりスケール則が成立していることが確かめられたが、粒径の異なる2種類の単層膜の斜入射透過スペクトルから得られたフォトニック・バンドについても、その分散曲線は全体として同一のバンド構造の特徴を示しており、ここでもスケール則が成立していることが確認された。

実験によって得られたバンド構造の特徴をさらに詳しく調べると、次のようなことがわかる。

実験によるフォトニック・バンド構造は、低エネルギー領域では全体として連続的であるが、高エネルギー領域では部分的に途切れたバンド状態となっている。そ

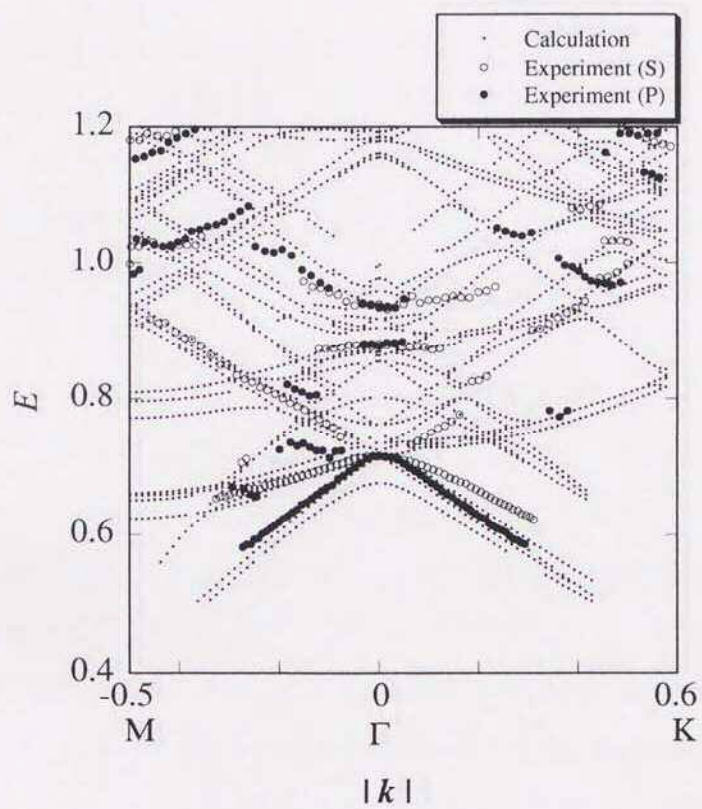


Figure 3.16: Theoretical and experimental quasi-2D photonic band structure for a $d=536$ nm sample.

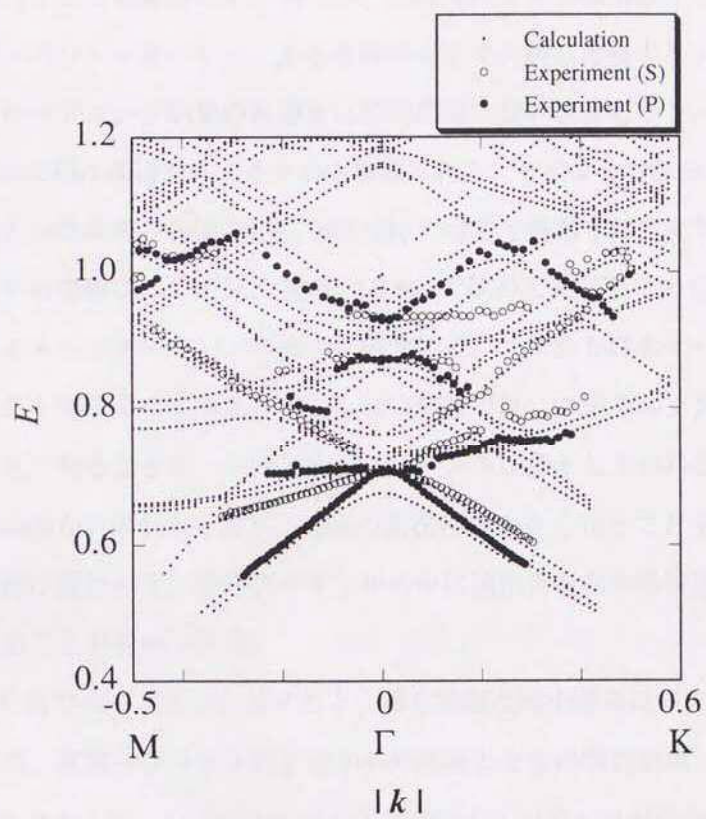


Figure 3.17: Theoretical and experimental quasi-2D photonic band structure for the $d=989$ nm sample.

のような部分的バンドは、バンドの極小点が極大点付近の位置に生じる傾向が認められる。これらの実験点が断片的なのは、一般に高エネルギー領域では Fig. 3.13 と Fig. 3.14 に見られるように、透過スペクトルの極小構造の幅が広がっているため、微分スペクトルで注意深く調べても、そのエネルギー位置を確定することが困難になるからである。それにもかかわらず、ある共鳴モードが透過スペクトルの極小として部分的にしても観測にかかるのは、入射光によって単層膜中に励起されたフォトリック・バンド・モードが、ある条件のもとで、後に考察するような各種の機構によるブロードニング効果の影響を比較的を受けない状態となり、識別可能な透過スペクトルの極小構造を与えるためと解釈される。そのような部分的な分散曲線は、計算による分散曲線の極値(極大、極小値)の付近で観測され傾向がある。ブロードニング効果の機構については、後節(3.6節)で改めて述べることにするが、定性的には、フォトリック・バンドの極小、極大付近、すなわち固有モードのエネルギーが波数ベクトルによってあまり変化しない領域では、フォトリック・バンドの状態密度が大きくなることと、フォトリック・バンド状態として伝わる Bloch 光子の群速度 $v_p = dE/dk$ が小さくなり、光子の局在性が大きくなることを考えると、散乱機構の詳細に関わらず、透過スペクトルの中に検出可能な共鳴構造が、より現われやすくなることが説明できる。

次に、 Γ 点でのバンドに注目すると、最も顕著な極小構造に対応する $E=0.7$ 付近のバンドは、波数ベクトル k が Γ 点から外れるとともに偏光状態、波数ベクトル方向の両者に依存して、いくつかのバンドに分裂していくことが分かる。このことは、対称性の高い Γ 点($k=0$)においては、いくつかの異なった対称性を持ったモード(誘電体球の WG モードに由来する)が縮退している状態にあることを意味している。入射光が膜面に対して傾き、さらに S、P 偏光によって対称性が低下すると、これらの状態の縮退が解けていくつかのバンドに分裂することが、この実験結果によって明らかに示されている。同様の分裂効果は、高エネルギー領域におけるバンドについても観察される。

上述の実験結果を理論計算によるフォトリック・バンド構造と比較して、検討し

てみる。図中に小さい黒点(ドット)で示した点は、理論計算(TR法)によって求められたフォトリック・バンドモードに対応している。それぞれの点は、特定の偏光特性(S、P偏光)を持っているが、図中では複雑さを避けるため、それらを区別せずに共通の黒い点で表わした。波数ベクトル k の値に不連続なピッチを設定して計算を行っているため、計算結果も不連続な点の分布になっているが、実際の分散特性 $E(k)$ は、いうまでもなく連続的な曲線である。少数の点が不連続的に出現したり、準連続につながった点で表わされたバンドが突然に途絶えている。それは、第3章で述べたTR法によって有限の波数間隔での透過極小を確定できる領域が、複素量としての E の虚数部の増大による大きなブロードニング効果のために、不連続的、あるいは離散的な領域に限られるためである(文献[21]のFig. 13を参照)。黒点を滑らかな曲線によって結ぶと、全体として、光学活性なフォトリック・バンドモードよりなる理論的なバンド構造が得られる。ところどころでこの連続的な曲線が途切れている箇所があることが目につくが、これは、前述のように擬2次元系での固有モードに特徴的な複素量としての固有エネルギーの虚数部がある条件のもとではきわめて大きくなり、もはや固有の伝播モードと見なすことができなくなるためである。このとき、対応するフォトリック・バンド状態の寿命は、放射減衰によりきわめて短くなり、エネルギーと寿命の間の不確定性によって決まるスペクトル構造の幅がきわめて広がって、その共鳴位置を確定できなくなる。これらの結果は、第2章で詳しく述べた大高らによるベクトル球面波展開法の計算結果とよく一致している。なお、ミリ波領域における誘電体球(Si_3N_4 球)の正方格子配列結晶に対するフォトリック・バンド構造が同じ計算手法により計算され、実験結果と比較・検討されている[21]。今回の計算でも、それと同様の手法が用いられているが、主な違いは、球の配列構造がラテックス単層膜では2次元六方最密構造であるのに対して Si_3N_4 系では2次元正方格子であることと、測定波長域がラテックス単層膜では可視・赤外光領域(350~800nm および 800~2000nm)であるのに対して Si_3N_4 系ではミリ波領域(40~60GHz)であること、および、球の誘電率の値がラテックスでは $\epsilon=2.56$ 、 Si_3N_4 球では $\epsilon=8.67$ であることである。基板の効果は、いずれの場合にも

考慮されていない。

2種類のラテックス単層膜について、実験的に求められたフォトニック・バンド構造には、全体として、先に述べたよう定量的にかなり良い一致が認められるが、いくつかの検討を要する問題点も存在している。第一には、前述のように、実験ではきわめて幅の広い極小構造が観測されているのに対して、理論による透過スペクトルは、実験結果と比べてきわめて幅の狭い鋭い極小構造を示す点である。第二には、計算結果によるとそのような極小構造が、観測しているエネルギー領域にわたって数多く出現することが予想されているのに対して、実測のスペクトルでは、それらに対応する構造が認められない点である。第一の点であるスペクトル幅の違いについては、次節にまとめて考察する。ここでは、第二の点の原因について、いくつかの可能性を述べておきたい。

理論的なフォトニック・バンド計算を実行するプログラムでは、計算された透過スペクトルのエネルギー微分曲線を取り、そこに生じるすべての変曲点を自動的、無差別的にプロットする操作が取られている。しかしながら、この過程では、それらの変曲点付近でのスペクトル形状をひとつひとつ実際に調べて、それが正しく極小構造、すなわち光学活性なフォトニック・バンド・モードの存在に対応するかどうかの確認がなされていない。したがって、Fig. 3.16とFig. 3.17にプロットされた理論的な分散曲線のすべてを、ラテックス単層膜に固有な光学活性なフォトニック・バンド状態と結論づける正当な根拠付けがなされていない。他方、実験的なスペクトルについても、さまざまな機構によるブロードニング効果により、本来は観測されるはずの極小構造が、幅広いバックグラウンドに埋もれて分離不可能となっているという状況を免れていない。

しかしながら、このような現状を踏まえた上で、ここで次のことを結論できる。実験的に検出されたモードの大部分については、それが理論的結果とも一致することが確認された。これは、球状モードについては粒子よりなる擬2次元フォトニック結晶に固有のフォトニック・バンド状態が、現在得られる最良の試料の中に現実存在していることを確認できたことを意味する。このことは、単に理論の実験的

な裏付けにとどまらず、それぞれに特有の個性を持ったフォトリック・バンド・モードの実在性を確認したという点で、今後のフォトリック結晶の基礎・応用研究の上で、少なからぬ意義を持つものとする。

最後に、理論的なバンド構造で、主要な極小構造の低エネルギー側 ($E=0.68$ 付近) に認められるバンドの性格について簡単に触れておく。他のバンドとは異なり、このバンドには偏光状態による分裂が認められない。これは、球固有のフォトリック・バンド・モードではなく、単層膜を一枚の層とみなした場合に生じる導波モードであるためである。実際に、実測の透過スペクトルにおいても、これに対応する位置に、なだらかな極小帯が存在することが認められている [19]。この低エネルギー・バンドだけでなく、注意して理論的なバンド構造を見ると、その高エネルギー側にも、このバンドと同様に分裂を示さず、 Γ 点を極大点としてなだらかな凸型の分散を示すいくつかのバンドが認められる (例えば、 Γ 点の位置: $E \simeq 0.8, 1.18$)。これらのバンドも、均一な厚さを持った有効誘電体層を伝播する高次の導波モードに対応するものと考えられる。

3.6 実験と理論によるスペクトル幅の違い

前節までの議論で、実験的に得られたスペクトルと理論的に得られたスペクトルを比較した結果、次のことが明らかになった。まず、フォトニック・バンド状態に対応するスペクトル構造(透過スペクトルの極小)の位置を規格化周波数(エネルギー) E で表わすと、実験と理論の結果が全体としてきわめてよく一致している。この事実は、注目に値する。なぜなら、ここで用いている理論的結果は、ラテックス球の屈折率と六方最密構造という幾何学的な配置のみを考慮したモデルによって計算されたもので、実験結果との一致を得るための任意調節パラメータは、一切導入されていない。

Fig. 3.16 と Fig. 3.17 に示したフォトニック・バンド構造で、白丸と黒丸で表わされた実験結果は、全般的に計算されたフォトニック・バンド構造の分散曲線上によく乗っていて、そのエネルギー、偏光状態だけでなく、計算された不連続な黒点を結んで得られる分散曲線の形ともよく一致している。しかしながら、既に述べたように、実験と理論とでは透過スペクトルの幅に大きな違いが存在するという問題も存在している。擬2次元フォトニック結晶の特徴を反映して、理論的に計算されたスペクトルにも、固有モードの有限な寿命に由来する有限の幅があり、モードによっては、その幅がきわめて大きくなるためにスペクトルの極小構造が識別されない場合もあることは前述のとおりである。そのような挙動は、 Si_3N_4 球よりなる2次元正方結晶について計算された理論的なバンド分散の図にも示されている。その一例として、Fig. 3.18 には文献 [21] の Fig. 13 を引用した。縦線が施されたエネルギー範囲がそれぞれのモードの幅を示している。50GHz 付近の幅広いバンドが、 $k=0.2$ 付近で途絶えているのは、それより低波長側では透過極小の幅が過大となって、その中心を固有モードとして同定することの意味が失われるためである。しかし、理論的には十分に狭い幅を持つと予想される極小についても、それに対応する位置にある実測の極小構造には、計算結果よりはるかに大きな幅が存在している。実際、代表的なスペクトル(例えば、Fig. 3.12 参照)について見ると、実験によって求められ

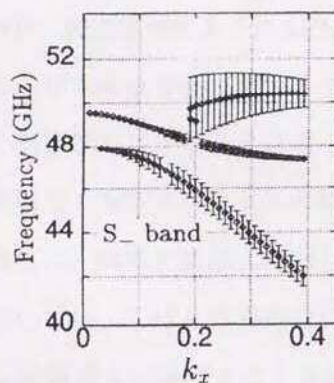


Figure 3.18: Typical example of calculated quasi-2D photonic bands, the vertical bars indicating the bandwidths of respective eigen modes due to the finite lifetime effect. (taken from Fig. 13 in ref. [21].)

たスペクトル幅 $\Delta\omega$ は、計算結果と比較して約1桁近く大きくなっている。その理由としては次の3つの可能性が考えられる。

1. 実験に用いた配列膜が完全な単結晶構造ではなく、比較的少数ながら点状の格子欠陥や線状の格子不整合箇所を有するため、特定のエネルギーと波数ベクトルを持ったフォトニック・バンド状態が、これらの周期性の乱れにより、別のエネルギーと波数ベクトルを持った固有状態に散乱される。
2. 粒子の直径のばらつきや、その位置のわずかなずれにより、完全結晶での理想的な周期性が乱れている。
3. 理論的モデルでは無視されている基板の影響により、放射減衰効果が増強されている。

現在の段階で、これらの機構の中でどれが支配的なのかを定量的に検討して結論付けることは困難である。また、特定のフォトニック・バンド・モードごとに、それぞれの機構が異なった比率で影響を及ぼしているという可能性も考えられる。しかし、現実の状況を考えて、まず検討しなければならないのは、第1項と第2項に

よる散乱効果であろう。本研究で用いているラテックス粒子は、標準試料として用いられる単分散性粒子であり、先に述べたようにSEM像から求められた粒径分散は $\Delta d/d \sim 10^{-2}$ の大きさであるが、それでもこの大きさのばらつきは通常の結晶の中で、格子点の原子が室温で熱振動していることによる位置の揺らぎに比べても、かなり大きい。固体の光物性研究で光学スペクトルの微細構造を精密に測定し、理論的スペクトルと比較する際には、試料を低温に冷却して格子の熱振動を抑制することが常識である。室温においては、しばしば熱的なブロードニング効果により、理論的に予想されたスペクトル構造を分解することが困難となることが通例である。時間的に変動する振動(フォノン)による散乱に対して、球粒径の分散は性的なポテンシャル変動として扱えるが、現段階ではラテックス粒子サイズのばらつきを理論計算に取り入れた例は報告されていないために、本研究で用いた系に即して、この効果を理論的に議論することは困難である。

以上に述べたように、本研究の測定に用いた試料の結晶性は、ラテックス単層膜に対して望み得る最良の程度に達していると考えられているが、それにもかかわらず、現有のラテックス粒子の粒径分散の程度では、微細なスペクトルに(熱振動による効果に似た)大きなブロードニング効果をもたらすことは避けられないと考えるのが自然であろう。また、点欠陥やドメイン構造の境界における散乱も無視できない影響を与えていると思われる。この推測は、次のような事実に基づいている。すなわち、互いに接し合って一直線上に並んだ粒子の中心を結ぶ方向([Γ -M]方向)に伝播するフォトニック・バンド・モードに対応する分散曲線は、粒子の間隙を結ぶ方向([Γ -K]方向)に伝播するモードに対応する分散曲線に比べて、かなり広い波数ベクトル k の範囲にわたって連続した分散曲線として観測にかかっている。また、分散曲線の極値(極大、極小点)の付近では、部分的なバンド実験的に検出されている。前者の結果は、球の直径に多少のばらつきがあっても、球同士が接している[Γ -M]方向に沿って伝わるモードの方が、球内にフォトンが滞在している時間が長いから、隣接球の間に隙間のある[Γ -K]方向に伝わるモードに比べても、ホッピング過程で周期性の乱れの影響を受ける程度が小さいと考えれば、定性的に理解でき

る。また、分散曲線の極大、極小点付近では、既に前節で述べたように、周期性の乱れによる散乱によって特定のフォトニック・バンド・モードが異なった k ベクトルの状態に散乱されても、そのエネルギー変化が小さいことから、ブロードニング効果の影響が比較的小さいと予想される。その結果、分散曲線の極大、極小点の付近では、実測スペクトルに観測可能な極小構造が生じるという解釈が可能であろう。

他方、基板の影響については、実験的には誘電率の異なった各種の基板を用いて、そのスペクトルを比較してみればよいが、良好な配列膜を作製するには周到な表面処理が必要とされるため、現在用いているガラス以外の固体表面を用いて同じように品質の良い試料を作製することは事実上困難である。さしあたり、基板の存在を考慮した理論的モデルによる計算と比較する以外に方法はない。実際に、そのような計算が東北大学の宮寄らによって最近試みられているが(2000年春の物理学会で報告)、まだ定量的な結論には到っていない。また、 Si_3N_4 球を用いた2次元結晶は、薄い高分子シート状に配列しているために基板の影響は無視できるが、それでも理論的スペクトル構造に比べて実測のスペクトル構造には、特に、高エネルギー側でかなり広い幅が観測されている(Fig. 2.1 参照)。精密機械の軸受けに広く用いられているボール・ベアリングとして実用化されている Si_3N_4 球の粒径分散は、本研究に用いたラテックス粒子に比べて約2桁以上小さい($\Delta d/d < 4 \times 10^{-4}$)。このことを考えると、実測のスペクトル幅の主要な原因としては、粒子配列のわずかな乱れによる散乱効果が支配的であろうと推測している。(ただし、 Si_3N_4 球の配列構造は、 25×25 個の有限サイズであるため、サイズ効果の影響も考えられる。)実験的には、現在の低分散ラテックスを用いたコロイド結晶は、他のフォトニック結晶に比べてはるかに良好な周期性を持っているが、それをもってしても、実測のスペクトル構造の分離を現在より格段によくすることは、きわめて困難であろう。今後の研究では、基板や配列の乱れを考慮した現実的な理論的モデルを用いて、ブロードニング効果のメカニズムを詳細に解明することが、重要な課題であろう。

3.7 まとめ

ポリスチレン・ラテックス微粒子を用いた擬2次元フォトニック結晶について、その作製方法の改良により広い配列領域と配列方向の揃ったラテックス単層膜が得られることが確認できた。しかしながら、さらに精密な研究を展開するには、ドメイン境界での線状欠陥の存在などの問題がまだ残っている。

この単層膜を用いて、精密な斜入射偏光透過スペクトルの測定を行った。その結果、ラテックス単層膜における擬2次元フォトニック・バンド構造を従来にない精度と広いエネルギー領域にわたって実験的に決定することができた。

今までに報告されているコロイド結晶の研究では、2次元、3次元コロイド結晶の作製と、それらを用いた応用的研究が中心的な関心事であった。例えば、シリカ球による3次元コロイド結晶では、その空隙に蛍光色素を添加して発光ダイオードへの適用が検討されている[36, 56, 57]。また、有限なサイズのフォトニック分子やフォトニック・クラスター(例えば、ミクロンサイズの微小球を手動法により配列させたクラスター集合体)を用いて光学的性質の研究[37]も行われている。しかし、コロイド結晶に特有なフォトニック・バンド状態を詳細に解明するには至っていない。

このような状況にあって、本研究は、光の波長オーダーの粒子サイズ(サブミクロン)を持つポリスチレン・ラテックスを用いて、可視光領域から赤外光領域における光学測定を精密に行い、規格化エネルギーとして $E=0.5 \sim 1.2$ という広いエネルギー領域にわたってフォトニック・バンド構造を実験的に明らかにした点で、独自の成果を挙げたものといえる。この結果は、擬2次元系に限らず、3次元系をも含めたフォトニック結晶の基礎的光物性を理解する上で、有用な知見を与えるものである。

第4章 2重周期構造を有する1次元

フォトニック結晶の光物性

4.1 はじめに

前章で述べたように、フォトニック結晶は、基礎的な観点から光物性、物理光学の新しい研究対象として注目されているばかりでなく、自然界では制御不可能な現象とされている光の自然放出過程を制御して、高効率かつ超高速な光機能性を実現するための新しい概念として、光エレクトロニクス、光通信分野などからも大きな期待が寄せられている。フォトニック結晶による光の自然放出過程の制御に関しては、さまざまな次元のフォトニック・バンド・ギャップを用いた研究例がすでに多く報告されている [58]。

本章では、このような観点に立って、1次元フォトニック結晶に着目する。1次元フォトニック結晶の代表例は、広く知られている誘電体多層膜である。誘電体多層膜中の光の伝播特性の解析は、古くから広く行なわれており、すでに標準的な教科書にも詳説されている [59]。その周期構造中では、電磁波の多重反射成分の間に干渉 (Bragg 回折) が生じ、その結果として生じる透過率・反射率の極大・極小構造特性が各種の光学フィルターや反射防止膜として広く利用されている。ここでは少し見方を変えて、この誘電体多層膜を1次元フォトニック結晶として捉える立場をとる。そのような観点から見ると、多層膜の光伝播特性における透過帯は1次元フォトニック・バンドに対応し、反射帯は1次元フォトニック・バンド・ギャップに対応する。

1次元フォトニック結晶に関する研究としては、これまでも、例えば、非線形

有機材料や半導体量子ドットを不純物準位として導入し、非線形光学効果の増強効果を調べた研究や [60, 61]、シリコン結晶に直線的な細孔 (穴は 0 次元的なニュアンス) を開けて光導波路型のフォトニック結晶を作製し、そのバンド・ギャップをマイクロキャビティとして利用した研究 [62] などが報告されている。

このような背景のもとに、本研究では、1 次元フォトニック結晶としての誘電体多層膜に本研究者の独自のアイデアである「2 重周期性」を導入し、これによって生じる新しい光学特性の出現を調べた。さらに、その際に生じる新規な特性を応用する可能性を探索するために、別種の 1 次元フォトニック結晶である光ファイバグレーティングに 2 重周期構造を導入したときの光学特性を調べた。これらの 2 種類の 1 次元フォトニック結晶系における特徴的な光学特性について詳しい解析と検討を行う。

4.2 転送行列法

1 次元フォトニック結晶である誘電体多層膜中の光伝播特性について解析するため、多層膜理論で一般に使われている転送行列法を用いて計算を行った [63, 64, 65]。この方法により、誘電体多層膜の厚さを有限系とした場合の透過スペクトル $T(E)$ と無限系での 1 次元フォトニック・バンド $E(k)$ の計算を行うことができる。

1 次元フォトニック結晶についても、第 2 章、第 3 章での擬 2 次元コロイド結晶の場合と同様に、電子の散乱問題を扱う理論と類似の方法によって考えることができる。異なる点といえば、解くべき方程式が Schrödinger 方程式から Maxwell 方程式に変わるだけである。

解くべき Maxwell 方程式は、式 (2.5) と同じで、

$$\begin{cases} \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B}(\mathbf{r}, t), \\ \nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \\ \nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = 0, \\ \nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = 0. \end{cases} \quad (4.1)$$

であり、以下の扱いも第2章に述べたものと同じである。ここで、改めて書くと、周波数 ω の成分の電場 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ に対する固有方程式は、次の形になる。

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\frac{\omega^2}{c^2} \left(1 + \frac{c^2}{\omega^2} \nabla \nabla \cdot \right) \{ \varepsilon(\mathbf{r}) - 1 \} \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (4.2)$$

この式で、 $\omega^2/c^2 = \kappa^2 (\kappa^2 > 0)$ とおいて変形すると、次のようになる。

$$(\nabla^2 + \kappa^2) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\kappa^2 \left(1 + \frac{1}{\kappa^2} \nabla \nabla \cdot \right) \{ \varepsilon(\mathbf{r}) - 1 \} \mathbf{E}(\mathbf{r}). \quad (4.3)$$

ここで、前と同様に、

$$V(\mathbf{r}) = -\kappa^2 \{ \varepsilon(\mathbf{r}) - 1 \} \quad (4.4)$$

とおき、式 (4.3) 右辺の括弧内の第2項を近似的に省略すると、 $V(\mathbf{r})$ をポテンシャルとする Schrödinger 方程式と同じ形になる。

$$(\nabla^2 + \kappa^2) \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \{ V(\mathbf{r}) - \kappa^2 \} \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0. \quad (4.5)$$

さらに、 $K^2 = V(\mathbf{r}) - \kappa^2$ とおいて書き換えると次の固有方程式となる。

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) - K^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0. \quad (4.6)$$

本章で扱う系は1次元系なので、 x 依存性だけを考えればよい。そこで、高誘電率層 (厚さ $b - a$) と低誘電率層 (厚さ a) が交互に積層した多層構造を考える。この基本構造の中で、 $x < a$ の領域 (低誘電率層) での電場を E_L とし、高誘電率層 ($a < x < b$) の中の電場を E_C とする。さらに、高誘電率層の右側の領域 $x > b$ の電場を E_R とすると、 E_L 、 E_R 、 E_C は次のように書ける。

$$E_L = C_L \exp[ik(x - a)] + D_L \exp[-ik(x - a)], \quad (x < a)$$

$$E_R = C_R \exp[ik(x-b)] + D_R \exp[-ik(x-b)], \quad (x > b) \quad (4.7)$$

$$E_C = AE_1(x) + BE_2(x), \quad (a < x < b).$$

C_L 、 D_L 、 C_R 、 D_R 、 A 、 B は係数である。 $x=a$ における接続条件から、次の連立方程式が導かれる。

$$\begin{aligned} C_L + D_L &= AE_1(a) + BE_2(a) \\ ik(C_L - D_L) &= AE'_1(a) + BE'_2(a) \end{aligned} \quad (4.8)$$

また、 $x=b$ における接続条件から、次の関係が得られる。

$$\begin{aligned} C_R + D_R &= AE_1(b) + BE_2(b), \\ ik(C_R - D_R) &= AE'_1(b) + BE'_2(b). \end{aligned} \quad (4.9)$$

ここで、 E'_1 と E'_2 は、 x についての 1 次微分を表わす。

式 (4.8) と式 (4.9) の 2 組の方程式を 2 行 2 列の行列を使って表わすと、次のようになる。

$$\begin{pmatrix} 1 & 1 \\ ik & -ik \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_L \\ D_L \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_1(a) & E_2(a) \\ E'_1(a) & E'_2(a) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix}, \quad (4.10)$$

$$\begin{pmatrix} 1 & 1 \\ ik & -ik \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_R \\ D_R \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_1(b) & E_2(b) \\ E'_1(b) & E'_2(b) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix}. \quad (4.11)$$

式 (4.10)、式 (4.11) より、

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} C_R \\ D_R \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} E_{11} & E_{12} \\ E_{21} & E_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_L \\ D_L \end{pmatrix} \\ &= T \begin{pmatrix} C_L \\ D_L \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.12)$$

となる。ここで、 T は転送行列 (Transfer Matrix) と呼ばれ、次のように定義される。

$$T \equiv \begin{pmatrix} E_{11} & E_{12} \\ E_{21} & E_{22} \end{pmatrix}$$

$$\begin{aligned}
&= \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ ik & -ik \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} E_1(b) & E_2(b) \\ E'_1(b) & E'_2(b) \end{pmatrix} \\
&\quad \times \begin{pmatrix} E_1(a) & E_2(a) \\ E'_1(a) & E'_2(a) \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ ik & -ik \end{pmatrix} \quad (4.13)
\end{aligned}$$

一方、係数 C_R 、 D_L について解くと、

$$\begin{pmatrix} C_R \\ D_L \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} t & r' \\ r & t' \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_L \\ D_R \end{pmatrix} \quad (4.14)$$

という関係が得られる。ただし、右辺の行列要素は転送行列の行列要素 T_{ij} を用いて、

$$\begin{aligned}
t &= \frac{T_{11}T_{22} - T_{12}T_{21}}{T_{22}}, & r' &= \frac{T_{12}}{T_{22}}, \\
r &= -\frac{T_{21}}{T_{22}}, & t' &= \frac{1}{T_{22}}, \quad (4.15)
\end{aligned}$$

と表わされる。

式 (4.14) からわかるように、転送行列とは、誘電体層の基本単位構造を考えたとき、その左側の電場の係数を使って、右側の電場の係数を表わす行列である。ここでは、左側から入ってくる光のみを考えることとして、 $C_L = 1$ 、 $D_R = 0$ とすると、式 (4.14) より、 $C_R = t$ 、 $D_L = r$ が得られるから、 t および r は左から単位振幅の電場の光が入射したときの振幅透過率、振幅反射率を表わすということがわかる。同様に、右側から光が入射するときには、 $C_R = r'$ 、 $D_L = t'$ となるから、 r' および t' は、右側からの入射波に対する振幅反射率、振幅透過率である。

つぎに、以上の結果に基づいて、Fig. 4.1 に示すような2組の誘電体層がある場合を考える。そのときの電場は各領域ごとに次のように表わされる。

$$\text{領域 1: } E_1(x) = C_L \exp(ikx) + D_L \exp(-ikx)$$

$$\text{領域 2: } E_2(x) = A_1 \exp[\kappa(x-a)] + B_1 \exp(-\kappa x)$$

$$\begin{aligned}
\text{領域 3: } E_3(x) &= C_{C1} \exp[ik(x-a)] + D_{C1} \exp[-ik(x-a)] \\
&= C_{C2} \exp[ik(x-a-b)] + D_{C2} \exp[-ik(x-a-b)]
\end{aligned}$$

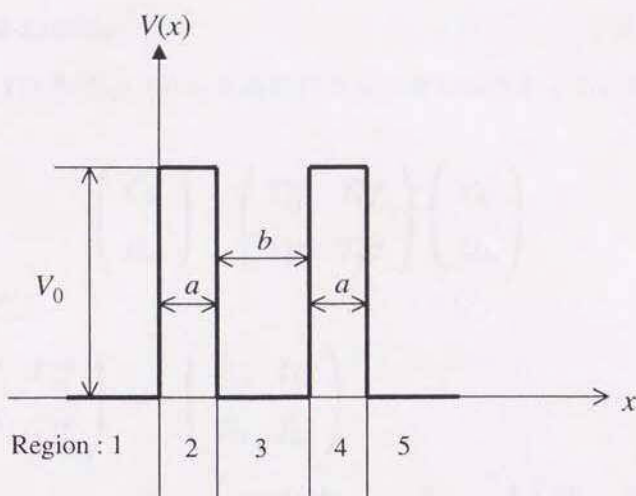


Figure 4.1: square-well type dielectric structure model

領域 4: $E_4(x) = A_2 \exp[\kappa(x - b - 2a)] + B_2 \exp[-\kappa(x - b - a)]$

領域 5: $E_5(x) = C_R \exp[ik(x - b - 2a)] + D_R \exp[-ik(x - b - 2a)]$ (4.16)

式 (4.16) の E_1 、 E_2 、 E_3 は、式 (4.7) と同形であるから、単一の誘電体層の場合の転送行列を使って、次のように表わすことができる。

$$\begin{pmatrix} C_{C1} \\ D_{C1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_L \\ D_L \end{pmatrix}. \quad (4.17)$$

また、式 (4.16) の E_3 の第 2 式と、 E_4 、 E_5 の表式について考えると、これらは原点を $(a+d)$ だけずらせば式 (4.7) と同じものとなる。さらに、境界条件についても $(a+d)$ だけずれたところで前と同じ関係を満たさなくてはならないから、同じ転送行列を使って、次のように表わすことができる。

$$\begin{pmatrix} C_R \\ D_R \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{C2} \\ D_{C2} \end{pmatrix}. \quad (4.18)$$

また、 E_3 の表式より、

$$\begin{pmatrix} C_{C2} \\ D_{C2} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \exp(ikb) & 0 \\ 0 & \exp(-ikb) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{C1} \\ D_{C1} \end{pmatrix} \quad (4.19)$$

が成り立つことがわかる。

そこで、式(4.17)を式(4.19)の右辺に代入し、その結果をさらに式(4.18)の右辺に代入すると、

$$\begin{pmatrix} C_R \\ D_R \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11}^{\text{tot}} & T_{12}^{\text{tot}} \\ T_{21}^{\text{tot}} & T_{22}^{\text{tot}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_L \\ D_L \end{pmatrix} \quad (4.20)$$

が導かれる。ただし、

$$\begin{pmatrix} T_{11}^{\text{tot}} & T_{12}^{\text{tot}} \\ T_{21}^{\text{tot}} & T_{22}^{\text{tot}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \exp(ikb) & 0 \\ 0 & \exp(-ikb) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} \quad (4.21)$$

である。

ここで式(4.21)は、2組以上の誘電体層があるときの転送行列の合成則を与えるものである。

以上の結果に基づいて、具体的なモデルとして、厚さ a の高誘電率層、厚さ b の低誘電率層からなる誘電体多層膜の高誘電率層に対する転送行列 T を求めると、次のようになる。

$$T = \begin{pmatrix} \cosh Kb + i \frac{(k^2 - K^2) \sinh Kb}{2kK} & -i \frac{(k^2 + K^2) \sinh Kb}{2kK} \\ i \frac{(k^2 + K^2) \sinh Kb}{2kK} & \cosh Kb - i \frac{(k^2 - K^2) \sinh Kb}{2kK} \end{pmatrix} \quad (4.22)$$

ここで、 $K^2 = V(x) - \kappa^2$ 、 $V(x) = -\kappa^2\{\varepsilon(x) - 1\}$ と定義する。また、低誘電率層に対する転送行列 B は、次のように書ける。

$$B = \begin{pmatrix} \exp(ikb) & 0 \\ 0 & \exp(-ikb) \end{pmatrix}. \quad (4.23)$$

したがって、全系が l 周期の場合の転送行列 T_{ij}^{total} は、次のように書ける。

$$T_{ij}^{\text{total}} \equiv T^l = \begin{pmatrix} T_{11}^l & T_{12}^l \\ T_{21}^l & T_{22}^l \end{pmatrix}. \quad (4.24)$$

以上のように、誘電体多層膜に対して求めた転送行列の行列要素を用いて、 l 周期の誘電体多層膜の透過率 $|t|^2$ は、相反定理を利用して次のように表わすことができる。

$$\begin{aligned} |t|^2 &= T_{11}^l - \frac{T_{12}^l \cdot T_{21}^l}{T_{22}^l}, \quad (\text{左側からの入射}) \\ &= \frac{1}{T_{22}^l}, \quad (\text{右側からの入射}) \end{aligned} \quad (4.25)$$

また、無限系についての 1 次元フォトリック・バンド $E(k)$ の計算は、次のように行えばよい。

2 行 2 列の単位行列を I として、永年方程式を表わすと次のようになる。

$$|T^l - \exp(iq)I| = 0. \quad (4.26)$$

ここで、 q は規格化されたエネルギー固有値を表わす。したがって、

$$\det|T^l - \exp(iq)I| = 0. \quad (4.27)$$

を満たす固有値 q を波数ベクトル k に対してプロットすると、この系についての固有エネルギーの分散曲線 $E(k)$ が得られる。なお、式 (4.26) を解く際には、2 分法を用いて数値計算を行った。

以上述べた転送行列法は、次節で述べる 2 重周期構造の多層膜についても適用できる。ここでは、次節で 2 重周期性についての詳しい説明を述べるのに先立って、次のことを付記しておくにとどめる。

異なった周期 (λ_1, λ_2) を持つ 2 重周期構造は、全体として周期 Λ の基本単位の繰り返し構造からなり、2 重周期パラメータ $p = m/n$ により特徴づけられる。その単位構造の転送行列 $T(p)$ は短周期 λ_1 の繰り返し数が n であることから、次のように表わすことができる。

$$T(p) = T(1)B T(2)B T(3)B \cdots T(n)B. \quad (4.28)$$

この転送行列法を用いて、2 重周期性を有する 1 次元フォトリック結晶のエネルギーバンドや、有限長の系での透過、反射スペクトルを計算することができる。具体的なモデルに依る計算結果は、次節で詳しく述べる。

4.3 2重周期性の概念

はじめに、本研究で取り扱う「2重周期」とはどのようなものかを、Fig. 4.2を用いて定性的に説明する。

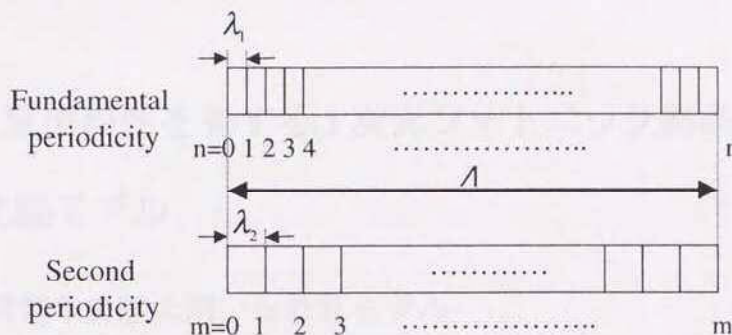


Figure 4.2: Schematic illustration of the dual-periodicity concept

まず、単一周期 λ_1 を持った基本構造があるとする。これは通常の誘電体多層膜に対応する。この周期 λ_1 に対して、それよりも長い周期 λ_2 を持った第2の周期によって全系の誘電率の値を空間的に変調したとき、これによって生じる新たな周期性を「2重周期性」という。しかし、このとき第2の周期によって変調を受けた系が、全体として周期性を持つためには、それぞれの周期 (λ_1 , λ_2) が一定数だけ繰り返されたところで一致し、共通の周期 Λ を持つことが必要であるこの条件が満たされなければ、系は全体としての周期性を失い、準周期系となる。このような共通周期 Λ を持つためには、次の条件が成立することが必要であり、このとき、この系は「2重周期性」を持つという。

$$\Lambda = n\lambda_1 = m\lambda_2. \quad (4.29)$$

ここで、 n と m は2重周期系の固有の波長 Λ に含まれるそれぞれの周期 (λ_1 , λ_2) の数である。第2の周期による変調の度合いを示すパラメータとして、次のように定義されるパラメータ p を導入する。

$$p = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} = \frac{m}{n}. \quad (4.30)$$

ここで、 m と n はともに整数でなければならないから、パラメータ p は有理数でなければならない。 p が無理数の場合には、全体としての周期性が失われ準結晶となる。

この2重周期パラメータ p をさまざまな値にとることによって、2重周期系の変調の度合いを準連続的に変えることができる。

4.4 2重周期性を有する1次元フォトリック結晶：誘電率変調モデル

4.4.1 誘電率変調に用いた計算モデル

1次元フォトリック結晶である誘電体多層膜に上述のような2重周期性を導入するため、高誘電体層の誘電率を次に示すようなモデル関数に従って変調する。

$$\varepsilon(x) = \frac{\varepsilon_m + 1}{2} + \frac{\varepsilon_m - 1}{2} \cos(2\pi px). \quad (4.31)$$

ここで、変数 x は連続変数となっているが、実際には高誘電率層の中心点に対応する不連続的な値を用いる。また、 p は式(4.30)で定義されたパラメータであり、この p をさまざまな有理数の値にとることによって変調の度合いの異なる多くの2重周期系をモデル的に設定することができる。

このような誘電率の変化構造の一例を Fig. 4.3 に示す。一定の誘電率(ここでは $\varepsilon=1$)を持った厚さ b の矩形型誘電体層を挟んで、cosine 関数に従って長周期の変調が加えられた厚さ $a = b/3$ の高誘電率層が存在している多層構造となっている。系全体の周期は、この場合、 $\Lambda = 40a$ であるが、この長周期は p の値によって変化する。 $p=0$ のときは、単一周周期構造で通常の誘電体多層膜となる。

このような2重周期誘電体多層膜モデルを用いて、無限系でのエネルギー・バンドと有限系(周期は任意)での透過スペクトルを計算した。計算法には、前節に述べた転送行列法を用いた。



Figure 4.3: Model of dielectric function $\varepsilon(x)$ for a typical dual-periodic multilayer structure. Parameters are chosen to be $\varepsilon_m=8$, $b/a=3$, $p=1/10$.

4.4.2 2重周期構造の光学的特徴：光のバタフライ・ダイアグラムと強く局在したバンド状態の出現

誘電体多層膜に2重周期性を導入した場合に生じる特徴的な光学特性について、前節までに述べた理論的モデルに基づいて明らかにされた主要な結果を、以下に述べる。

フォトニック・バンドの分裂効果

2重周期構造にすることによって生じる光学的特徴のうち、最も注目に値する結果の一つはフォトニック・バンドの分裂効果である。

このことを示す代表的な例として、Fig. 4.4 に式 (4.31) のパラメータを $\varepsilon_m=8$ 、 $b/a=3$ とした場合の典型的なフォトニック・バンド構造 (左側) と透過スペクトル (右側) を示す。縦軸は規格化したフォトンエネルギー $E(=ka)$ である。横軸には、バンド構造に対しては波数ベクトル (1次元)、透過スペクトルに対しては透過率をとっている。前者は、1次元フォトニック結晶としての誘電体多層膜のフォトニックバンド構造を4.2節に述べた転送行列法によって無限系 (x 方向に無限に続いている) について計算したものであり、後者は有限の厚さの同じ多層膜の透過スペクトルを同

じく 4.2 節に述べた転送行列法によって計算したものである。透過スペクトルの計算には、2 重周期誘電体多層膜を有限の厚さ ($L = l(a+b)$) にとり、その片側から入射した光が反対側へ透過してくるときの強度を計算した。ここでは、 $l=4$ として計算を行っている。

Fig. 4.4 (a) に示した単一周周期構造 ($p=0$) の場合と比較して、Fig. 4.4 (b) には、2 重周期系の代表的な例として、 $p=1/3$ の場合を示してある。まず、Fig. 4.4 の左側に示した 1 次元フォトニックバンド構造を比べてみる。単一周周期 ($p=0$) のフォトニック・バンド $E(k)$ は、図の原点 ($k=0, E=0$) から始まる光の Bloch 状態 (実線) が、第 1 Brillouin 領域の端で下方に曲がりながら切断され、一定のエネルギー間隙を隔てて、第 2 のバンド状態が始まるという構造になっている。Fig. 4.4 (a) には 4 番目までのバンド ($E=3$ までの領域) までが示されている。バンド間隙は 1 次元フォトニック・バンド・ギャップを表わし、この領域内には光の Bloch 状態が存在しない (半導体での電子バンド・ギャップに対応する)。実際に、右側の透過スペクトルを見ると、このフォトニック・バンド・ギャップ領域では、透過率 $T=0$ 、すなわち全反射帯となっている。他方、バンド状態 (実線) が存在する領域は、それぞれの E, k を持った Bloch 状態の光が多層膜を伝播するから、透過率 (無限系での) $T=1$ となる。しかし、計算されたスペクトルでは、この領域での透過率が 1 ではなく、振動構造を示しているが、これは膜の厚さを有限にしたために生じる干渉効果 (Fabry-Pérot モード) によるもので、系の厚さを増していけば構造は消失し、 $T \rightarrow 1$ となる。また、バンド・ギャップ領域での透過率が 0 ではなく、きわめて小さいながら有限の値となっているのも、同じ理由による。

このような単一周周期系に 2 重周期性を導入すると、変調パラメータ p の値に応じて、フォトニック・バンドが分裂する。Fig. 4.4 (b) では、単一周周期系の各バンドが 3 つのバンドに分裂しているが、これは、基本周期の繰り返し $n=3$ に対応している。一般的に、バンド分裂の数は $p = m/n$ での整数 n の増大に従って増していく。この分裂の様子は、有限系についての透過スペクトルの構造にも、はっきりと現われている。ここでも、透過スペクトルの透過帯に見られる振動構造は、有限系での

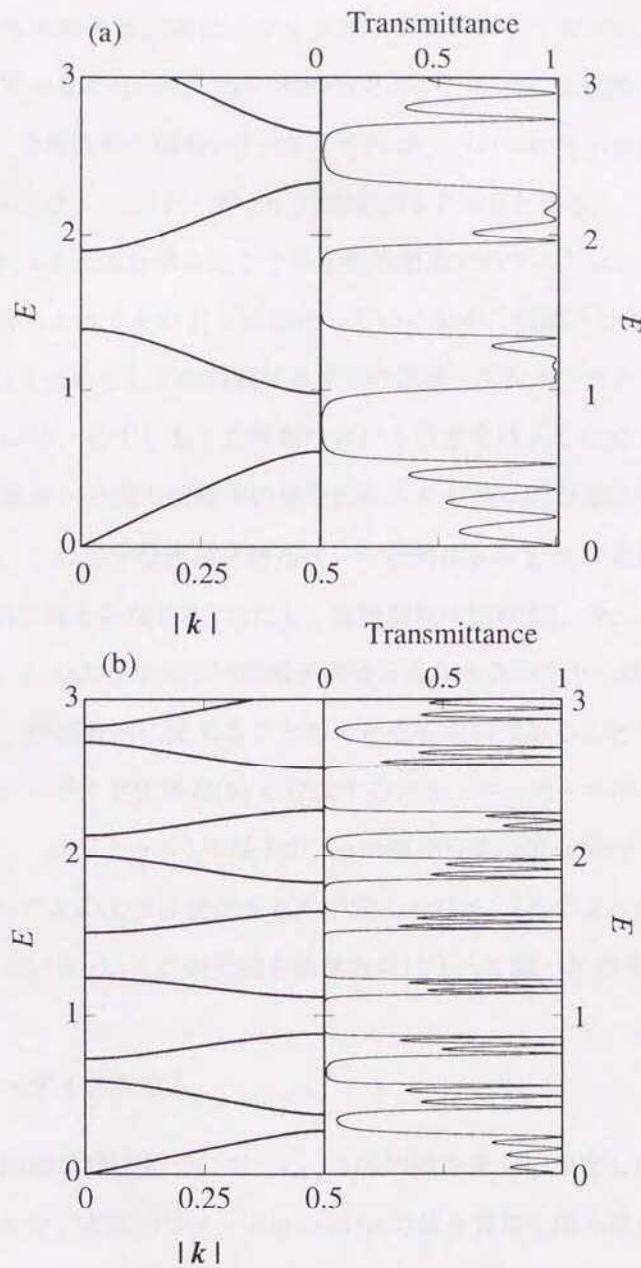


Figure 4.4: Calculated 1D photonic band structure (left half) and transmission spectra (right half) for the basic single-periodic structure (a) and a typical dual-periodic structure (b), with $p = 0$ and $p = 1/3$, respectively. The parameters are taken to be $\varepsilon_m=8$, $b/a=3$, and $l=4$ for the transmission spectra.

干渉効果によるものである。また、フォトリック・バンド・ギャップに対応する反射帯の中には、 $T=0$ となっていないものもあるが、これも多層膜の厚さが有限であるためであり、2重周期の層数 l を大きくすれば、バンド状態の存在する領域では $T=1$ 、フォトリック・バンド・ギャップ領域では $T=0$ となる。

このとき、Fig. 4.4に例を示したような2重周期系でのフォトリック・バンドとその分裂が、 p の値によってどのように変化していくかが、問題となる。なぜならば、1次元フォトリック結晶としての誘電体多層膜の透過、反射スペクトルをいくつかに分裂させるためには、必ずしも2重周期性という概念を導入しなくても、単一周周期構造の中に、何層目かの膜の誘電率の値を変化させた光学的な超格子構造とすれば良いからである。このような超格子構造は、一般的に $p=1/N$ で表わされるような2重周期系の特別な形とみなせる(ただし、変調関数は矩形型)。今、ここで考えている2重周期系が、このような光学的超格子構造と異なる点のひとつは、2重周期パラメータ p の値が、準連続的に変えることができる有理数であることである。このとき、フォトリック・バンド状態 $E(k)$ が存在するフォトリック・エネルギー帯領域の分布(エネルギー・スペクトル)の様子が、 p の値を可能な限り細かく変化させたとき、 p の関数としてどのように変化するかに関心をひく。(このような研究例は、これまで報告されていない。)この問題を数値計算によって調べた結果を次に述べる。

光のバタフライ・ダイアグラム

上述のような問題意識に基づいて、 ϵ_m 、 b/a の値を適当に設定したときのエネルギー・スペクトルを、変調パラメータ $p=m/n$ の値を可能な限り細かく変えて計算した。その結果、エネルギー・スペクトル $E(k)$ を p の関数としてプロットすると、Fig. 4.5に示すような特徴的なパターンが出現することが見出された。ここで、スペクトル中の黒い領域は、特定の p におけるフォトリック・バンド領域(光のBloch状態が存在する許容バンド領域)に対応し、それを隔てている白い領域がフォトリック・バンド・ギャップ領域(光のBloch状態が存在しない禁制バンド領域)に対応す

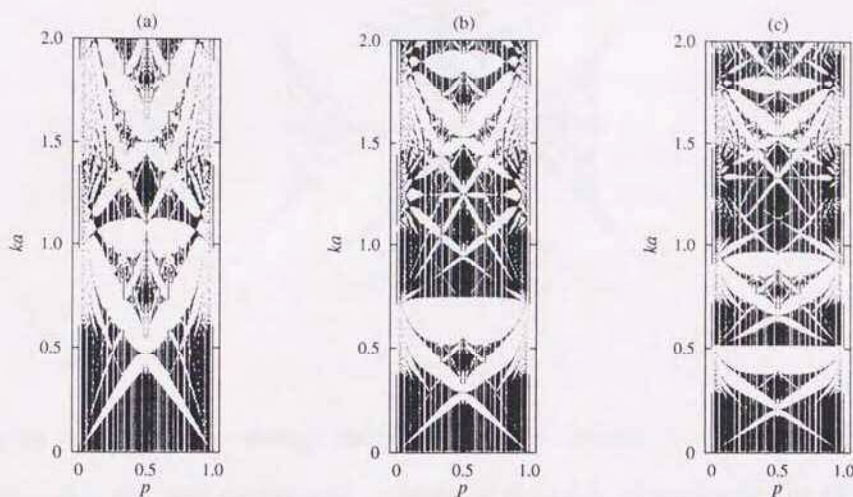


Figure 4.5: Typical energy spectra of dual-periodic multilayer, (a) $\epsilon_m=8$, $b/a=1$, (b) $\epsilon_m=8$, $b/a=3$ and (c) $\epsilon_m=8$, $b/a=5$. These energy spectra are named optical “Butterfly diagram” [66].

る。横方向に縞状の縞模様が見られるのは、 p の値に不連続な有理数を取っているためであるが、実際には有理数の値は準連続的に存在するから、この縞模様の間隙は、望みに応じていくらかでも狭くすることができる。この点が、離散的な $p (= 1/N)$ の値しか取れない光学的超格子構造との大きな違いである。 p の値の範囲は $p=0 \sim 1.0$ としているが、その中間点 ($p = 1/2$) の場合は、実は基本周期の長さを 2 倍にした単一周周期系となっていることが、周期構造の図を描いてみると分かる。 $p = 1/2$ を中心として、その左右のパターンが対称形となっているのは、このような 2 重周期構造の幾何学的対称性の反映である。ここに見られる特徴的なパターンは、大小の蝶の羽がフラクタル的に組み合わせられた形をしている。そこで、この 2 重周期誘電体多層膜のエネルギー・スペクトルを「光のバタフライ・ダイアグラム」と名付けた [66]。この特徴的なパターンは、ここで用いているパラメータ ϵ_m 、 b/a に特定の値を取った場合だけに現われるものではない。これは、Fig. 4.5 (a) から (c) に示し

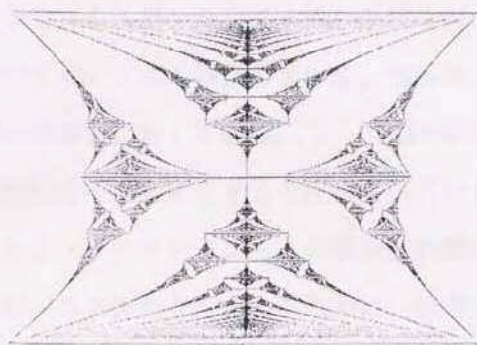


Figure 4.6: Electron energy diagram in solid crystals in uniform magnetic field. Abscissa is electron energy and ordinate is the ratio of magnetic flux [67].

たように、 b/a の値 (2 種類の誘電体の膜厚の比) を変化させたダイアグラムを比較してみると明らかである。これらの 3 つの場合について、それぞれのダイアグラムに見られるパターン全体の形状は変化するが、フォトニック・バンドが p の値を変化させることによって分裂し、フォトニック・バンドとバンド・ギャップの位置変化が特徴的な「バタフライ・ダイアグラム」を示す点では共通している。

本研究では、誘電体多層膜構造に「2 重周期性」を導入することによって、このような特徴的な光のバタフライ・ダイアグラムが得られることを、理論的にはじめて見出すことができた [66]。生物の形態にしばしば見られるこのような美しい対称性やフラクタル性を示す複雑なパターンは、生物界だけでなく、結晶の電子状態を研究対象とする物性物理学の世界においても、以前よりある条件のもとで電子系エネルギー・スペクトルに、同じようなパターンが生じることが知られている。よく知られた例は、2 次元正方格子状に配列した原子に強く束縛されている電子系に、2 次元平面に垂直に均一な静磁場をかけたときのエネルギー・スペクトルである。2 次元正方格子面に垂直に一様な磁場をかけると、2 次元的な Bloch 電子バンドがランダウ準位をとるため、そのエネルギー・スペクトルが分裂する。その分裂のパターンには、Fig. 4.6 に示すようなバタフライ・ダイアグラムが現われる [67]。蝶の羽状

のパターンだけでなく、それがフラクタル的な性質を持つ点でも、前述の「光のバタフライ・ダイアグラム」とよく類似している。電子系についてのこのような特徴は、基本的に、格子の周期に対して磁束によって電子状態の位相変化の周期がずれることによる2重周期性に由来するとして説明されている。そこで、ここで見出された「光のバタフライ・ダイアグラム」との場合との類似性に何らかの理論的根拠があるかどうかを調べる手掛かりを求めるために、以下にその理論の概略を述べることにする。

半導体の中の価電子が原子に強く局在し、隣接の原子上の価電子の波動関数との重なりが小さい場合を考える。このような強結合電子系を考える場合、次のような強結合近似モデルが適用できる。簡単のために、2次元正方格子を考えると、各格子点に局在した価電子の Schrödinger 方程式は、次のように書ける。

$$T[\psi(m+1, n) + \psi(m-1, n) + \psi(m, n+1) + \psi(m, n-1)] = E\psi(m, n) \quad (4.32)$$

ここで、 (m, n) は特定の格子点の位置を表わし、 T は最近接原子間での波動関数の重なり積分である。正方格子では上下左右方向の最近接原子の間隔は一定値 a である。このとき、電子の Bloch 関数は、次の形に書ける。

$$\psi(m, n) = A \exp[i(k_x a m + k_y a n)] \quad (4.33)$$

そのエネルギー固有値は、2次元波数ベクトル $\mathbf{k}(k_x, k_y)$ の関数として、よく知られた次式の cosine バンド $E(\mathbf{k})$ で表わされる。

$$E(\mathbf{k}) = 2T(\cos k_x a + \cos k_y a). \quad (4.34)$$

ここで、 a は正方格子の格子定数である。 $E(k)$ は $k = 0 \sim 2\pi/a$ をバンド端とする幅 $4T$ の2次元バンドをなしている。

このような2次元電子系の面に垂直方向に一様な磁場 H をかけたときの、Schrödinger 方程式は、ベクトル・ポテンシャルをランダウ・ゲージ $\mathbf{A} = H(0, x, 0)$ にとることにより、次のように書けることが Peierls によって示されていた [68]。

$$\psi(m+1, n) + \psi(m-1, n) + \exp\left[\frac{-ieHa^2m}{\hbar c}\right] \psi(m, n+1)$$

$$+ \exp\left[\frac{ieHa^2m}{\hbar c}\right] \psi(m, n-1) = \frac{E}{T} \psi(m, n). \quad (4.35)$$

ここで、外部磁場のパラメータとして、正方格子の単位胞に含まれる磁束 a^2H を磁束量子 $(2\pi\hbar c/e)$ で割った次の無次元量を定義する。

$$\alpha \equiv \frac{a^2H}{2\pi(\hbar c/e)}. \quad (4.36)$$

上記の Schrödinger 方程式に対して、 $\psi(m, n) = \exp(i\nu n)g(m)$ の形の解を仮定すると、式 (4.35) 次の 1 次元差分方程式に帰着する。

$$g(m+1) + g(m-1) + 2\cos[2\pi m\alpha - \nu]g(m) = \varepsilon g(m) \quad (4.37)$$

右辺の ε は、無次元化された規格化エネルギー固有値 $\varepsilon = E/T$ である。この方程式を解けば、磁場中でのエネルギーバンドが求まるが、これは一般に “Harper 方程式” と呼ばれていて、扱いにくいことで古くから知られている方程式であり、その一般解を解析的に得ることはできない。しかし、特別な場合として、磁場のパラメータ α の値が $\alpha = q/p$ (p, q を互いに素な正整数) と書けるとき、すなわち α が有理数のときには、電子バンド $E(\mathbf{k})$ 全体が p 個のランダウ・サブバンドに分裂する。パラメータ α を縦軸にとり、準連続的な有理数としてその値を変化させたとき、このようなランダウ準位を示す電子エネルギー・スペクトルを描いた結果が、Fig. 4.6 である。ここに見られる特徴的な形状から「バタフライ・ダイアグラム」と呼ばれて、このようなダイアグラムで表わされる電子状態の性質が、固体物理学での興味ある研究対象とされてきた。この図においても、 α の値を特定の有理数としたとき、Bloch 状態としての電子バンドがその黒点で示されている。 $\alpha = q/p$ での正整数 p の値に応じて p 個に分裂したバンドの集合となるので、その全体像は、無限に複雑な構造からなるパターンとなる。他方、 α の値が有理数ではなく無理数のときには系の周期対称性が失われるので、バンド状態が消失し、局在状態に対応する無数の点の集合となるが、これは全体としてカントール集合となることが知られている。

2 重周期性、あるいは準周期性を持った電子系では、前述した Harper 系に関する研究 [69, 70] のほかにも、Fibonacci 系準結晶における自己相似性 (self-similarity) に

ついでの研究が報告されている [71, 72]。この 2 つの系には、フラクタル性などの共通点もあるが、定性的には次のような違いがあることに注目すべきであろう。すなわち、Harper 系では、パラメータ α の大きさによって電子系が 2 重周期性と準周期性の間を移り変わり、これに伴ってエネルギー状態も非局在状態と局在状態との間を移り変わる。これに対して、Fibonacci 系では局在状態のみしか存在しない。

このような電子系での挙動に対して、誘電体構造の中の光についても同様な特徴的挙動が期待されるが、そのような研究例としては、Fibonacci 系的な誘電体多層膜構造の光学特性が理論的 [73, 74]、実験的 [75] に報告されているだけであった。

本研究で新しい概念として導入された 2 重周期誘電体多層膜構造は、そのエネルギー・スペクトルに見出された特徴的な「バタフライ・ダイアグラム」からも明らかのように、光に対する Harper 系ともいえるものであり、この種の系についての基礎的な光物性を初めて明らかにした成果といえる。

光の局在性

2 重周期性を有する誘電体構造についての、第 2 の顕著な特徴は、変調パラメータ p の値を小さくした場合に、強い局在性を持った光の Bloch 状態が出現することである。以下に、この注目すべき現象について詳しく述べることにする。

前掲の Fig. 4.5 のバタフライ・ダイアグラムの左端で、 $p = 0$ から少し右によった位置 ($p \ll 1$) のエネルギー・スペクトルを注意深く見ると、そのバンド・ギャップ (白い領域) の中に、小さな黒点が散在していることに気づく。一見、半導体の不純物準位に似ているが、系の対称性は全体にわたって保たれているから、“点” も Bloch 状態であることに代わりはないはずである。そこで、この点状の光子状態の性質を調べるために、この付近のエネルギー・バンドと透過スペクトルを計算によって詳しく調べてみた。その典型的な例を Fig. 4.7 に示す。これは、基本周期のパラメータを $\varepsilon_m = 8$, $b/a = 3$ に設定し、2 重周期の変調パラメータ p を $p = 1/18$ としたときの、無限系に対するフォトニック・バンド構造 $E(k)$ (図の左側) と、厚さを $l = 4$ の有限層と

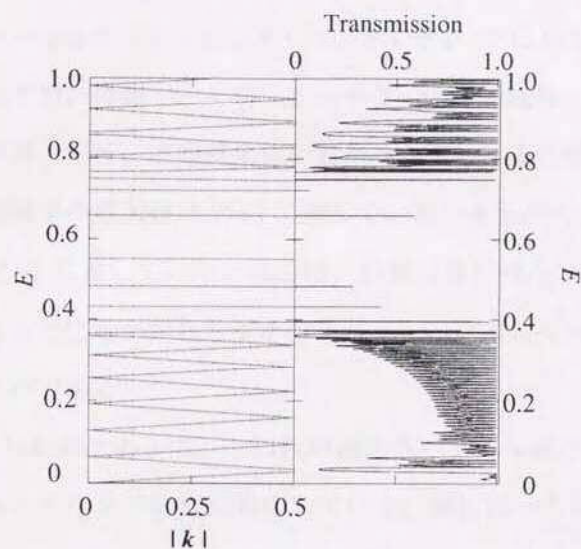


Figure 4.7: Transmission spectra (right) and photonic band structure (left) of a dual-periodic multilayer with $p=1/18$, $\epsilon_m=8$, $b/a=3$. The transmission spectra are for a finite layer thickness of $l=4$, which the photonic bands are for an infinite system.

した場合の透過スペクトル $T(k)$ (図の右側) である。 p の値が小さいために、 $E(k)$ 、 $T(k)$ のスペクトルは、ともに単一周期構造 ($p=0$) の第1、第2フォトニック・バンド (透過帯) と、その間のフォトニック・バンド・ギャップ (全反射帯) の特徴を残しているが、波長の長い第2周期による変調によって、各バンドは18個のサブバンドに分裂している。ただし、その分裂成分の間のミニ・バンド・ギャップの幅は変調による摂動効果が小さいため、きわめて狭い。(透過スペクトルに見られる細かい振動構造は、既に述べたように、膜厚が有限であることによる Fabry-Pérot 効果によるものである。)

ここで注目すべき点は、これらのサブ・バンドのいくつかが元バンドから分離して、きわめて分散の小さい (k 依存性の小さい) 状態としてバンド・ギャップ中に、離散的に出現していることである。これは、透過スペクトルの全反射帯中に現われ

た線状の透過スペクトルに対応する。Fig. 4.7の右側に示した透過スペクトルについては、 $E=0.4 \sim 0.8$ のフォトリック・バンド・ギャップにあたる領域に見られるいくつかのきわめて鋭い透過ピークが、このサブ・バンド状態に対応している。これらの透過ピークは、本来、多層膜全体に広がった Bloch 波状態に対応するものであるから、その透過率の最大値は $T=1$ に達しているべきものである。しかし、Fig. 4.7で、それが $T=1$ に達していない理由は、計算の実行時にエネルギー幅 (ピッチ) を充分小さく取ったにもかかわらずその幅が、この透過スペクトルの線幅よりもまだ大きかったためである。

Fig. 4.7 からわかるように、この鋭い透過スペクトル線は、きわめて分散の小さいフォトリック・バンド状態に対応している。膜に沿って伝播する光の群速度は、 $v_g = dE(k)/dk$ で与えられるから、この領域では、膜内を伝わる光の群速度がきわめて小さくなるはずである。 $T=1$ の場合、入射光と透過光の光のエネルギー流 ([電磁場エネルギー密度] \times [群速度]) は等しくなければならないから、上記の結果は電磁波が強く増強された状態が膜内に生じていることを予測させる。そこで、この狭いバンド状態の分散を $E = 0.48$ 付近のバンドについて拡大して調べてみた。その結果、Fig. 4.8 のように $\Delta E(k) = 2.96 \times 10^{-5}$ のきわめて狭いバンド幅の状態が存在し、その分散式は次式によって表わされる cosine バンドの形状にきわめてよく一致することが確かめられた。

$$E(k) = E_0 - 2T \cos k. \quad (4.38)$$

これは、1次元電子系の場合、各格子点に強く束縛された電子が原子間のホッピングによって原子間を伝わっていく場合に適用される強束縛 (Tight-binding) 近似モデルに対応している。電子系の場合も光の場合も、周期系での Bloch 状態が特定の場所に局在化される程度 (すなわち滞留時間) は、そのバンド幅に逆比例する。今考えている狭いバンド状態の幅は、元のバンド幅 ($\Delta E \approx 0.4$) の約 7×10^{-5} 倍であるから、光子が隣接する層の間を伝播する過程で通常の透過光に比べて約 10^4 倍以上も長い時間にわたって、ある領域内に局在してから隣の領域にホッピングしているこ

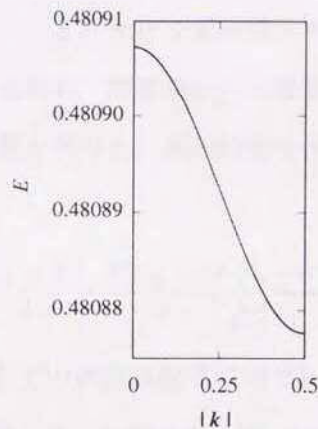


Figure 4.8: Typical dispersion curve for the strongly localized Bloch photon mode at around $E=0.48$. The curve fits quite well with a cosine function of $|k|$, showing a feature of well-known cosine band for a 1D tight-binding electron system.

とになる。しかし、今用いている2重周期モデルにおいては、単一周期の基本構造が、ゆるやかに変化する変調関数によって変調されているから、このような光の局在化の範囲もかなり広い領域にわたっているはずである。そこで、2重周期構造を有する誘電体多層膜中に、どのように電磁波エネルギーが分布しているかを数値計算によって調べてみた。その典型的な結果を Fig. 4.9 に示す。この計算では、光のエネルギーを Fig. 4.8 に示した $E=0.48$ 付近の狭いバンドの中心近くの位置にとり、誘電体多層膜の左側から光の“強度”($I = [\text{エネルギー密度}] \times [\text{群速度}]$) $|E|^2=1$ の光を入射したときの電磁場エネルギー密度の相対値 $|E|^2$ の分布をプロットしてある。この結果、多層膜内での電磁場強度は、入射光強度に対して最大で約 1.4×10^4 倍に局所的に増強されていることがわかる。この光の局在領域は誘電率の2重周期構造に対応していて、長波長の誘電率変化構造の谷の部分で強い光の局在化と電磁場エネルギーの増強が生じている。このような光の増強効果は、2重周期多層膜がQ値のきわめて大きな光共振器になっていることを示している。

電磁場エネルギー密度分布が、2重周期性で導入された長周期の誘電率変化構造

を反映していることから、変調関数の形を cosine 関数よりもっと鋭い谷の形をもった形に変えることにより、より大きな電磁場エネルギーの増加が生じると予想される。このことを確かめるため、誘電率変化の変調関数として、より急峻な三角波型の変調関数を用いて計算を試みた。具体的なモデルとしては、次に示すような関数を用いた。

$$\varepsilon_a(x) = \frac{\varepsilon_m + 1}{2} - \frac{4(\varepsilon_m - 1)}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\cos[(2n-1)\pi(2x-1)p]}{(2n-1)^2}. \quad (4.39)$$

ここで、 \sum は $n = \infty$ までの無限級数項の和であるが、実際の数値計算では展開項の第4項 ($n=4$) までを取った。比較のために、他のパラメータの値には、Fig. 4.9 に示した cosine 関数変調の場合と同じ値を用いた。

このようにして計算された電磁場エネルギー密度分布と、そのときの誘電率構造を Fig. 4.10 に示す。三角波変調の場合にも、誘電率構造の谷の部分で強く光が増強されていることがわかるが、その増強率は入射光強度を1として 10^{10} 倍という驚異的な値を示している。なお、同様な計算を矩形型の光学的超格子構造についても試みたが、その効果は、領域的にも狭く限定されると同時に、 $|E|^2$ の増幅率としても 10^3 倍程度の増強効果を示すのみであった。

以上の結果から、2重周期系においては、変調パラメータ p が小さいときにきわめて幅の狭い強束縛的なバンド状態が出現すると同時に、そのような光に対しては、顕著な光の増強効果が生じることが理論的に明らかになった。また、変調関数の形を変えることによって、光の局在性を制御することも可能であることが確かめられた。これらの注目すべき光物性は、2重周期誘電体構造に特有なものであり、基礎研究の上でも、またその将来の応用の可能性を追及する上でも、今までにない新しい知見を与えるものである。

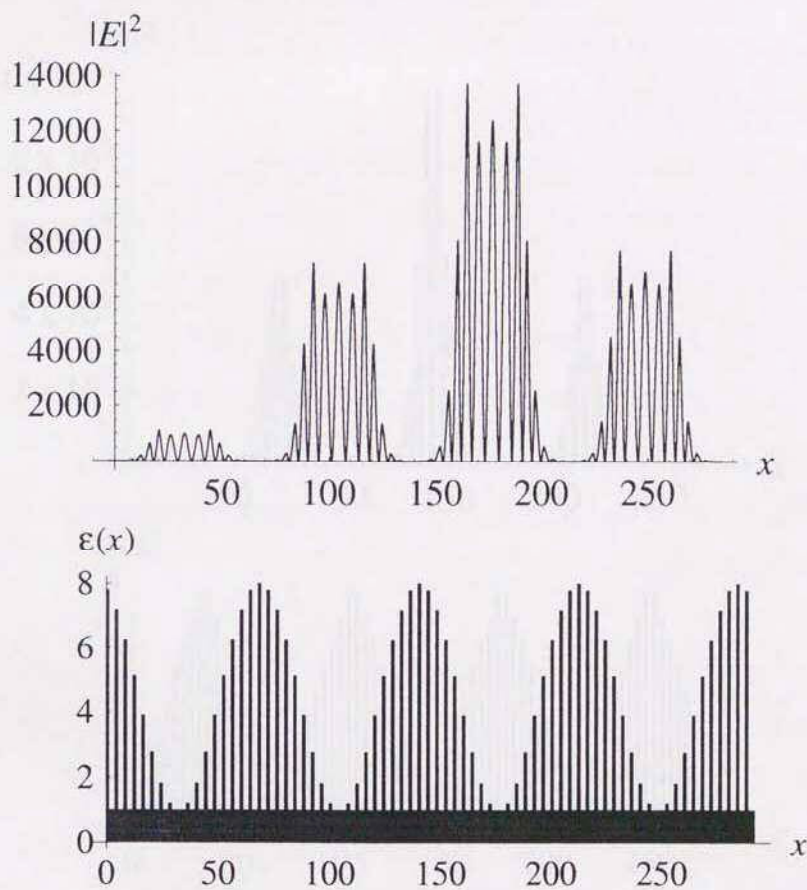


Figure 4.9: Electromagnetic energy density distribution in a dual-periodic multilayer at $E=0.48$ (upper) for the sinusoidal modulation model shown in the lower part. The parameters are; for $p=1/18$, $\epsilon_m=8$, $b/a=3$ and $l=4$.

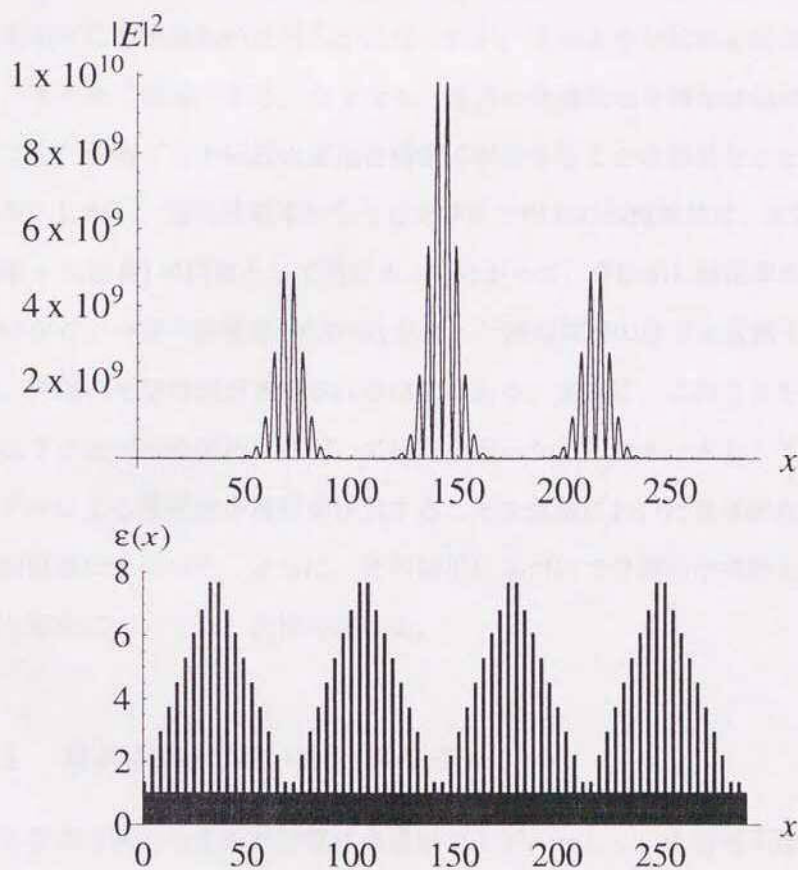


Figure 4.10: Electromagnetic energy density distribution in a dual-periodic multi-layer at $E=0.609$ (upper) for the triangle wave modulation model shown in the lower part. The parameters are; $\epsilon_m=8$, $b/a=3$ and $l=4$.

4.5 2重周期性を有する1次元フォトニック結晶：厚み変調モデル

前節で述べたような誘電率変調型の2重周期誘電体多層膜がさまざまな新しい光物性を示すことが理論的に明らかになったが、そのような試料を現実には作製することは、きわめて困難である。なぜなら、現在の先端的な半導体結晶成長技術をもってしても、各層ごとの組成比変化を精密に制御することは容易なことではないからである。しかし、透明誘電体からなる光学系での光の伝播特性は、常に光学距離(=屈折率×光路長)の関数として決まる。したがって、直接的に誘電率の値を変調するのではなく、一定の誘電率(屈折率)を持った誘電体層の厚さを変調することによっても、同様の光学特性が実現されるはずである。実際に、このことを確認するために、以下に述べるモデルに基づいて検討を行った。パラメータとしては、実際にこのモデルによる誘電体多層膜を作製することを念頭においた具体的な数値を設定して、数値解析を行った。さらに、その結果に基づいて予備的な実験を行った。その結果と解析については、次節で述べる。

4.5.1 厚み変調に用いた計算モデル

厚み変調された2重周期誘電体多層膜のモデルとして、低誘電率層の厚みは一定値 b とし、高誘電率層の厚み $a(x)$ を次に示す関数を用いて変調した構造を考えることにする。

$$a(x) = \frac{a_{\max} + a_{\min}}{2} + \frac{a_{\max} - a_{\min}}{2} \cos(2\pi px). \quad (4.40)$$

その誘電率変化の様子を模式的に Fig. 4.11 に示す。ここで、 a_{\max} は高誘電率層(誘電率 ϵ_2)の厚さの最大値であり、 a_{\min} はその最小値である。低誘電率層(誘電率 ϵ_1)の厚さ b は一定とした。2種類の媒質の屈折率($n_1 = \sqrt{\epsilon_1}$ 、 $n_2 = \sqrt{\epsilon_2}$)は波長によらない一定値とし、モデル計算の際には、それぞれの数値として酸化シリコン(SiO_2)と酸化チタン(TiO_2)の屈折率の値($n_1 = 1.432$ 、 $n_2 = 2.311$)を用いた。また、変調

パラメータ p には、前節の誘電率変調モデルの場合と同様に、有理数 $p = m/n$ を取った。

このように高誘電率層の厚みを式 (4.40) で変調することによって得られる 2 重周期誘電体多層膜についても、誘電率変調モデルと同様の特徴的な光学特性が予想されることは前述のとおりである。しかし、実際に予想されるとおり、フォトニック・バンドの分裂、光のバタフライ・ダイアグラムの出現と局在的な狭いバンド状態の発生が見られるかどうかは、数値計算によって確認する必要がある。そのような目的で行った計算の結果を、次に述べる。

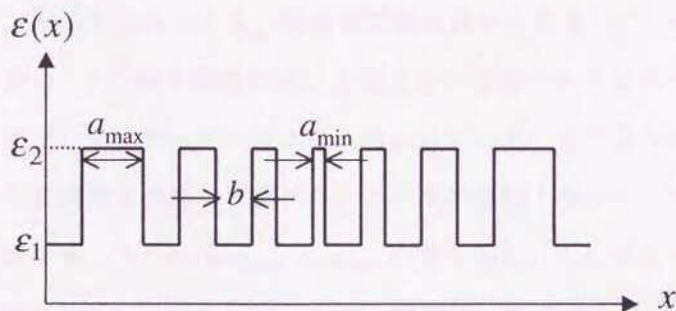


Figure 4.11: Dielectric function $\varepsilon(x)$ for the thickness modulation model.

4.5.2 厚み変調 2 重周期系でのフォトニック・バンドの分裂と 光のバタフライ・ダイアグラム

厚み変調モデルによる 1 次元フォトニック・バンドの分裂を調べるために、有理数 p の値を変えて、フォトニック・バンド構造 $E(k)$ と透過スペクトル $T(E)$ の計算を行った。

その代表的な例を Fig. 4.12 に示す。前節と同様に、縦軸には規格化光子エネルギー E を、横軸には左側のフォトニックバンド構造では規格化波数ベクトルの大きさ $|k|$ を、右側の透過スペクトルでは透過率を取っている。先に述べたように、計

算に用いたパラメータとしては、 SiO_2 層の厚さを一定 ($b=1$) とし、 TiO_2 層については、最大値 $a_{\max}=1$ 、最小値 $a_{\min}=0.2$ の cosine 関数で厚さを変調した。それぞれの屈折率は薄膜について測定した値を用い、 SiO_2 層については $n_{\text{SiO}_2}=1.432$ 、 TiO_2 層については $n_{\text{TiO}_2}=2.311$ とした。透過率のスペクトルは有限の厚さ ($l=2$) の多層膜について計算した。パラメータ $p = m/n$ の n の値が、 $m=3, 5, 7, 10$ と増大するにつれて、フォトニック・バンドが分裂していく様子がわかる。予想したとおり、これは誘電率変調の場合と同じであり、 p の値に応じてフォトニック・バンドや透過帯、反射帯の幅やエネルギー位置を制御することができることが確かめられた。また、 p の値が小さいとき、フォトニック・バンド・ギャップの中に局在性の強い、幅の狭いサブバンドが生じることも、誘電率変調の場合と共通している。

これらの特徴は、 p の値を準連続的に変化させた場合のエネルギー・スペクトルに見られるバタフライ・ダイアグラムにも現われている。このような特徴を実際に厚み変調された多層膜を作製して調べることが次の課題となるが、その時に問題となるのは、変調の幅、すなわち a_{\max} と a_{\min} の差である。それを大きくとることが望ましいと予想されるが、小さい a_{\min} の値を精度良く制御することは技術的な困難を伴う。そこで、このような変調の幅の違いがフォトニック・バンド状態にどのような影響を及ぼすかを、数値計算によって調べてみた。その例として、 $a_{\max}=1$ に対して、 a_{\min} の値を 0.2 および 0.05 とした場合の光のバタフライ・ダイアグラムを Fig. 4.13 に示す。両者のパターン形状は全体としてよく似ているが、厚み変調の幅 ($a_{\max}-a_{\min}$) が大きい場合 (Fig. 4.13 (b)) に、この系特有のパターンが顕著に現われるようである。

しかし、実際に厚み変調多層膜を作製する際に、最小膜厚をこのような小さな値に設定することには技術的な限界がある。そこで、ここでは実現可能な範囲で、 $a_{\max}=1$ 、 $a_{\min}=0.2$ として、 SiO_2 層と TiO_2 層を交互に積層した 2 重周期誘電体多層膜の設計を行った。

以下に、その予備的な実験の結果について述べる。

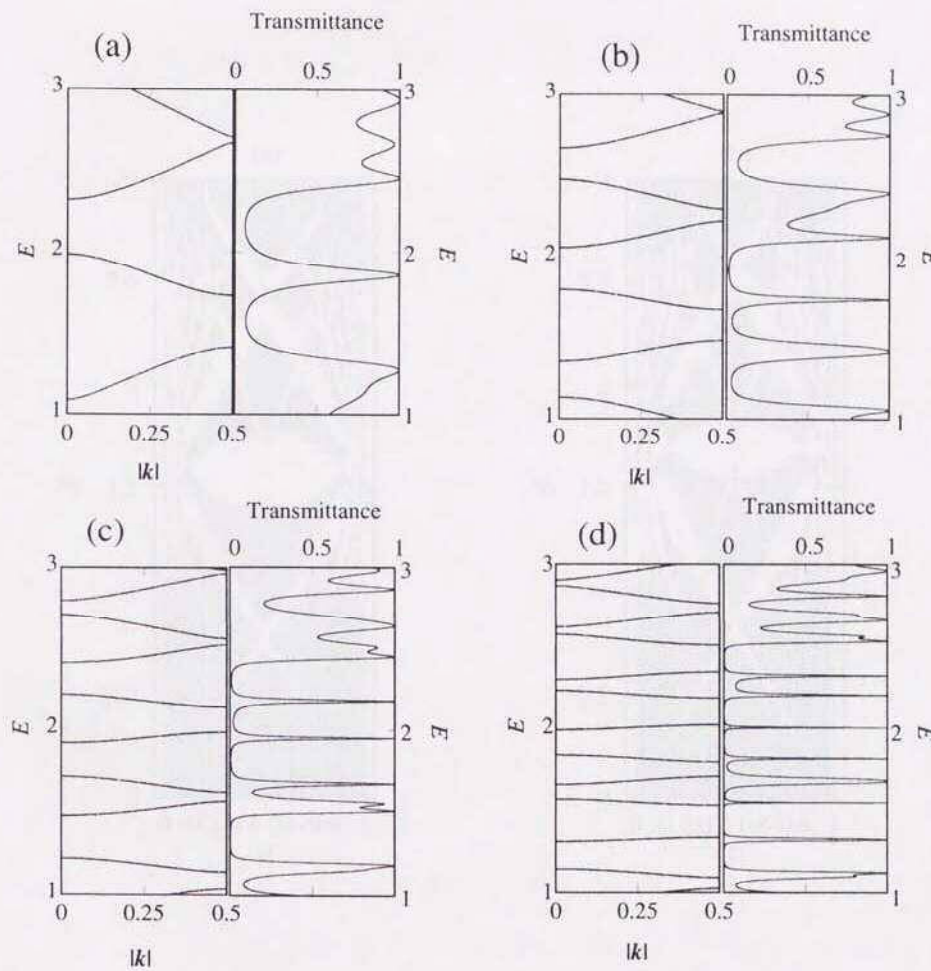


Figure 4.12: Photonic band structure (left) and transmission spectra (right) for the thickness modulated dual-periodic multilayers with $n_{\text{SiO}_2}=1.432$, $n_{\text{TiO}_2}=2.311$, $l=2$, $a_{\text{max}}=1$, $a_{\text{min}}=0.2$, $b=1$, and (a) $p=1/3$, (b) $p=1/5$, (c) $p=1/7$, (d) $p=1/10$.

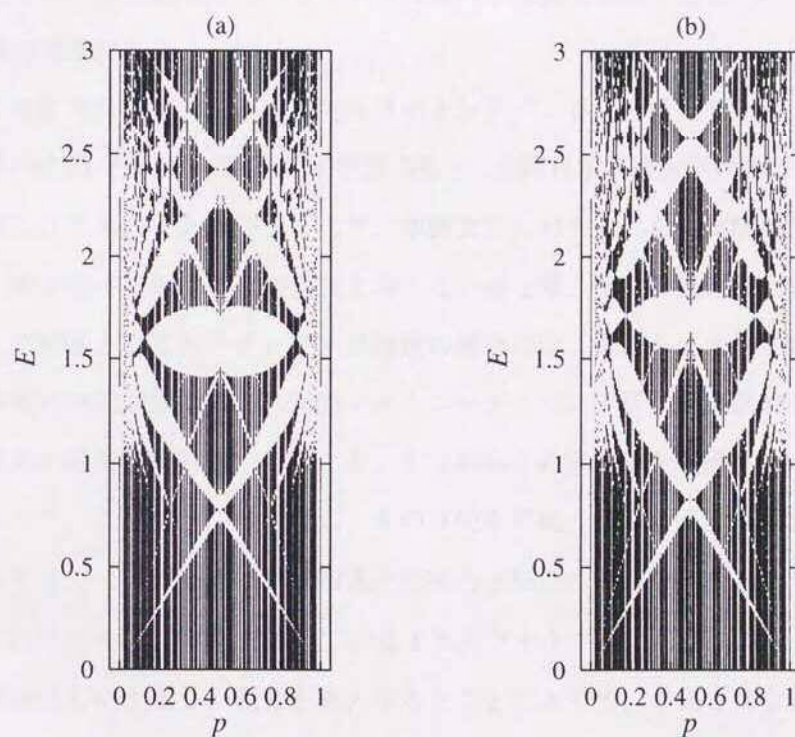


Figure 4.13: Typical energy spectra for thickness modulated dual-periodic multilayers with $n_{\text{SiO}_2}=1.432$, $n_{\text{TiO}_2}=2.311$, $b=1$, and (a) $a_{\text{max}}=1$, $a_{\text{min}}=0.2$, (b) $a_{\text{max}}=1$, $a_{\text{min}}=0.05$.

4.6 厚み変調による2重周期構造の光物性：実験的検討

4.6.1 本実験の位置付け

本節で以下に述べる内容は、前節までの理論的な考察の結果、2重周期誘電体多層膜について予想されたいくつかの特徴的な性質を確認するために行った予備的な実験の結果である。

この研究は、豊田工業大学先端フotonテクノロジー研究センターにおいて、同大学の生嶋 明教授と藤原 巧助教授（現在、長岡科学技術大学助教授）の指導のもとに行われたものであるが、ここで、本論文におけるこれらの実験の位置付けについて、若干述べておくことが適当と考える。第2章、第3章に述べた擬2次元フォトニック結晶としてのラテックス単層膜の場合には、大高らにより理論的に求められた誘電体球配列膜の擬2次元的フォトニック・バンド状態を実験的に検証し、それが現実の系で観測可能であること、すなわちその実在性を確認することが主な目的であった。この場合についても、その目的を可能とするような高品質の試料が作製できるまでに、長期間の試行錯誤的な努力と経験の蓄積を必要とした。

これに対して、本章で述べている1次元フォトニック結晶については、そこに2重周期性という新しい概念を導入するとことによって、さまざまな新しい特徴が現われること、すなわち、光のバタフライ・ダイアグラムの出現、きわめて幅の狭いバンド状態の発生とそこでの異常に大きな電磁場強度の増強などの新規な光物性を、数値計算により予測した理論的研究がまず行われた。これらの注目すべき光学的性質が現実の系で観測にかかるかどうかを検証することが、次の課題となった。このような問題意識に基づいて実施した実験の結果を本節で述べる。基礎的な観点からの研究だけでなく、将来の技術的応用を目指した研究を行うためには、実験結果の再現性、目的に応じた材料の選択と機能設計、時間的、熱的耐用性など、あらゆる観点からの検討が必要とされる。このような観点から見ると、以下に述べる研究は、まだきわめて予備的な段階にあると言わねばならない。しかしながら、応用を目標

とした研究を行う際においても、まず、その指針として役立つ理論モデルを確立し、ある程度の予備的実験のデータを求めておくことには、少なからぬ意義があると考ええる。以下に述べる実験は、今後、このテーマに関する基礎・応用研究を進める上で、の水先案内としての役割を果たすことを意図して行ったものである。

4.6.2 誘電体多層膜の作製

誘電体多層膜の材料としては、一般的に反射防止膜に使用されている酸化シリコン (SiO_2) と酸化チタン (TiO_2) を用いることとし、薄膜の作製には、高周波 (RF) マグネトロンスパッタリング法を利用した。実験に使用した装置は、ANELVA SPF-410 を改造した、コンピュータ制御による 2 ターゲットの自動スパッタリング装置である。主なスパッタリング条件は、次のとおりである：アルゴン (Ar)/酸素 (O_2) 雰囲気、RF 出力 150w、基板加熱温度 200°C 。

この条件のもとに、2 重周期性を有する $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜の作製を、パラメータ p の値をいくつかに設定して行った。変調には、前節に述べた厚み変調方式を用い、高誘電率層である TiO_2 層の厚さを式 (4.40) に従って変調した。低誘電率層である SiO_2 の厚さは一定としている。このようにして作製した多層膜の光学特性を評価するために、その透過特性を測定し、数値計算の結果と比較検討を行った。

なお、多層膜の作製に先立って、事前にそれぞれの材料だけを用いた薄膜の作製条件の設定と光学定数の評価を行い、前節の理論的モデルに基づいた多層膜設計と多層膜試料の作製時における基礎データとした。

実際の試料作製に際しては、各誘電体層の厚みを具体的にどの程度の値にするかを決めなければならない。そのため、測定波長域を可視光領域 ($300 \sim 800\text{nm}$) とした場合に、最低エネルギーのフォトリック・バンド・ギャップ (反射帯) が観測に便利な波長域に生じることと、パラメータ p の値を変えたとき、透過率のスペクトルにできるだけ顕著な変化が見られるような条件に設定した。その一例として、 $p=1/3$ と $p=1/5$ の TiO_2 層の厚みの設計値を Table. 4.1 に示す。これは、2 重周期構造の 1

(a)	Layer No.	Thickness (nm)	(b)	Layer No.	Thickness (nm)
	1	100		1	100
	2	40		2	72
	3	40		3	27
				4	27
				5	72

Table 4.1: Designed parameter values for the thickness modulation of TiO_2 layer for $l=1$; (a) $p=1/3$, (b) $p=1/5$. Thickness of SiO_2 layer is constant (100nm).

周期分 ($l=1$) の厚みの変化である。これらの基本構造を所定の周期だけ繰り返せば、有限膜厚の2重周期多層膜が得られる。このような予備的な検討の結果、本研究では TiO_2 層の厚みを最大 100nm とし、2重周期数 $l=2$ の多層膜を作製した。繰り返し周期数を $l=2$ というかなり小さい値に取ったことは、有限系としての問題を残すことになる。また、 $p=1/3$ 、 $1/5$ 、 $1/7$ 、 $1/10$ の試料を作製するには最大で 40 層まで積層しなければならないため、技術的な限界もある。しかしながら、理論的に予想される光学特性の基本的な理解という観点からは、 $l=2$ であっても十分にその特性を確かめられることは、事前に数値計算により確かめている。

4.6.3 実験結果および考察

前述の各条件に基づいて数種類の $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜を作製し、それらを用いて、その光学的性質の評価を行った。代表的な透過スペクトルを Fig. 4.14 に示す。実測の透過スペクトルを実線で、数値計算により求めた理論的スペクトルを点線で示してある。ここで、数値計算の際には、実測結果との一致をよくするために、Table. 4.2 に示したように、膜厚の値を設定値に対して約 7% ほど薄くしている。ただし、屈折率には設定値と同じ値を取っている。このようなパラメータ調節は、スパッタリング法による薄膜作製の際の膜厚制御の精度を考慮すると、やむを得ないものと考

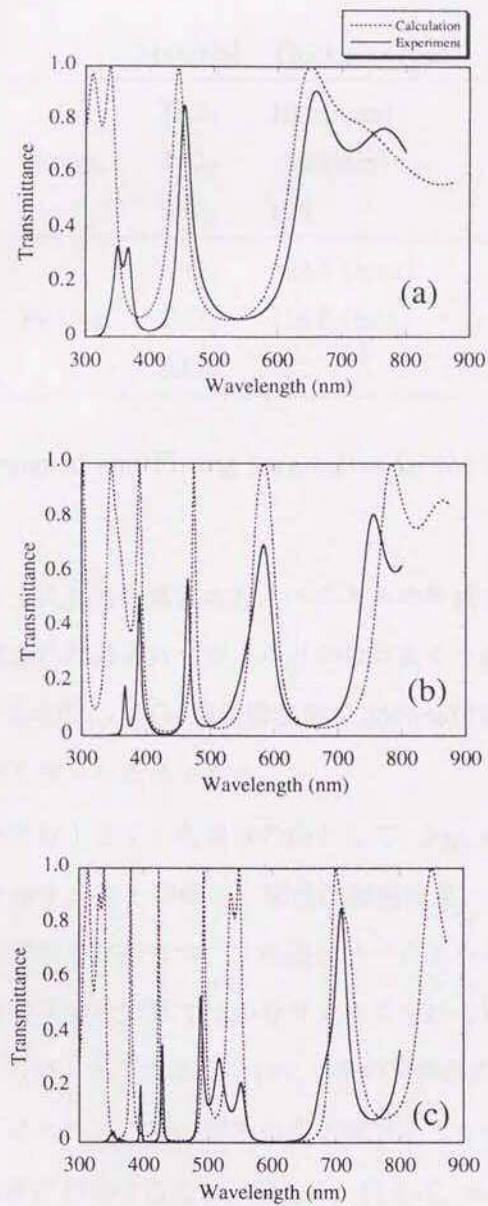


Figure 4.14: Experimental (solid lines) and calculated transmission spectra (dotted lines) for the thickness modulated $\text{SiO}_2\text{-TiO}_2$ dual-periodic multilayers with (a) $p=1/3$, (b) $p=1/5$, (c) $p=1/7$.

	Material	Thickness (nm)	Refractive index
Design	TiO ₂	100 (max)	2.311
	TiO ₂	20 (min)	
	SiO ₂	100	1.432
Fitting	TiO ₂	92.8 (max)	2.311
	TiO ₂	18.6 (min)	
	SiO ₂	97	1.432

Table 4.2: Designed and Fitting parameters for the SiO₂-TiO₂ dual-periodic multilayers.

える。このようにして計算されたスペクトルの形状と透過ピークの波長位置は、全体として実測された透過スペクトルとかなりよく一致している。短波長側で透過率が低下しているのは、TiO₂ 層の吸収端が 350nm 付近にあり、紫外光領域での吸収が無視できなくなったためである。

さらに p の値を小さくした場合の例として、Fig. 4.15 に $p=1/10$ の多層膜の透過スペクトルを示す。前と同様に、実線は実験結果、点線は数値計算の結果である。Fig. 4.14 の 3 種類の試料についての透過スペクトルと比較すると、透過ピークの現れる波長位置が実測と計算ではかなり大きくずれていることが目につく。この不一致の原因としては、以下のようないくつかの可能性が考えられる。まず、 p の値を小さくしていくにつれて、層の厚みの変化幅が小さくなるが、このような精度を現在の試料作製技術に期待することは難しい。例えば、 $p=1/10$ の場合については、TiO₂ 層の最小膜厚は 20nm となり、その次の層の膜厚 27nm との差が 7nm とかなり小さくなる。現段階では、スパッタリング法による薄膜の作製法では、精密な膜厚の制御が困難であり、設定された層の厚さからのばらつきが 10 % 程度となることが避けられない。そのため、TiO₂ 層の厚みの変化が小さい場合には、厚み変調の空間パターンに乱れが生じ、2 重周期系の特徴がはっきりしなくなるという可能性が考えられる。

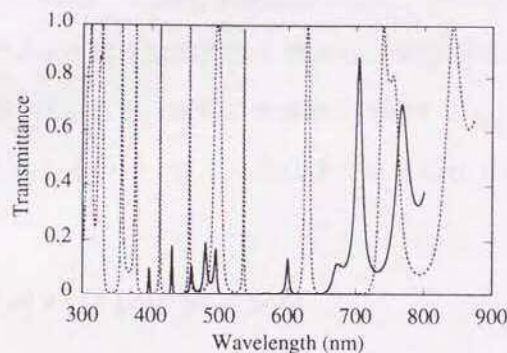


Figure 4.15: Experimental (solid lines) and calculated transmission spectra (dotted lines) for the thickness modulated SiO_2 - TiO_2 dual-periodic multilayers with $p=1/10$, other parameters being the same as shown in the caption of Fig. 4.14.

このほかにも、高誘電率層に用いた TiO_2 自身の構造不安定性の問題がある。 Ti イオンは価数が不安定で、 Ti^{3+} 、 Ti^{4+} の状態が混在しやすく、スパッタリング条件によってその結晶構造の変化が生じやすいことが知られている。また、試料作製後に空気にさらした後の酸化による経時変化の影響も考えられる。このような構造不安定性が少ない物質 (例えば、 Ta_2O_3) を材料として選定することが、安定な 2 重周期多層膜を作製し、その光学的性質を詳しく調べる上での鍵となるであろう。

以上、本研究で理論的に予想された 2 重周期系に特徴的な光物性を基礎的な観点から実験的に確かめるために、いくつかの $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ 多層膜を作製し、それについて実測された透過スペクトルと数値計算との比較を試みた結果について述べてきた。現在はまだ予備的な段階ではあるが、2 重周期性を導入したことによって生じる特徴的な光学特性を部分的ながら確認することができたと考えられる。しかしながら、実験的には解決すべき多くの問題点が残されている。今後、この種の系の光学特性を詳細に解明するためには、スパッタリング技術の高度化とともに、その目的に応じた材料を慎重に選択することが必要である。

4.7 2重周期構造の応用：光ファイバグレーティング

本研究では、前節に述べた誘電体多層膜の他に、広く研究開発がなされている光ファイバグレーティングに2重周期性を導入し、光学特性の検討を試みた。これも、まだ予備的な段階ではあるが、前節の多層膜に比較すると、将来の応用研究につながる可能性が高いと考えるので、以下に現在までに得られている主要な結果を述べる。

4.7.1 光ファイバグレーティング

均一な光ファイバ中のコアの部分に1次元的な周期構造を導入し、それによって生じる特徴的な光学特性を利用したのが、光ファイバグレーティングである[76, 77, 78]。

本研究の観点から見ると、この系も1次元フォトニック結晶と見なすことのできる構造となっている。このような光ファイバグレーティングは、光ファイバの長手方向に沿ってブラッグ回折格子を形成したものであり、光通信分野における波長多重伝送(Wavelength Division Multiplexing:WDM)方式で必要とされている狭帯域での波長選択と光制御の要素技術のひとつとして広く注目を集めている。

通常のシリカガラス光ファイバでは、コア部分にゲルマニウム(Ge)が添加されている。この光ファイバの側面から紫外光を照射すると、光誘起屈折率変化が生じることがわかっている[79]。そのメカニズムについては、まだ確実な理解には到っていないが、紫外光照射によりシリカガラス中に欠陥が誘起され、またはもともと存在している欠陥が消失し、それによって生じる吸収変化に伴って、吸収領域付近の波長域でKramers-Kronig(KK)の分散関係に従って屈折率の変化が生じるという可能性が考えられている[80, 81]。しかし、現実の屈折率変化の割合は 10^{-4} 以上に及び、これを光誘起吸収だけで説明することは難しいため、紫外光照射による密度変化機構なども関係した複合的要因によるとされている。

光ファイバグレーティングの作製にはいくつかの方法があるが、一般的には再現性に優れている位相格子法が多く用いられている。これは石英基板上に凹凸を形成

した位相マスクを用い、それによって生じる回折光を互いに干渉させる方法である。位相マスクの種類によって、種々の形状や間隔のグレーティングを書き込むことが可能である。

このような光ファイバグレーティングは、次式で表わされる Bragg 波長 λ_B 付近の幅の狭い波長 (真空中の値) の光を選択的に反射するフィルタとなる。

$$\lambda_B = 2n_{eff}\Lambda. \quad (4.41)$$

ここで、 n_{eff} はグレーティング部分のコアの平均 (有効) 屈折率、 Λ はグレーティングの周期である。1次元フォトニック結晶という観点からいうと、この反射は単一周期構造でのフォトニック・バンド・ギャップに対応している。

4.7.2 2重周期性を有する光ファイバグレーティング

ここでは、本研究独自の概念である2重周期性を光ファイバグレーティングに適用した場合に、どのような特徴がその光学特性に現われるかを検討する。(本研究テーマは、本研究者を含む日本女子大グループ (国府田研究室) と豊田工大グループ (生嶋 明教授、藤原 巧助教授) が共同研究計画を検討している過程で、前節に述べた誘電体多層膜での2重周期性を、従来の単一周期構造の光ファイバグレーティングに適用できないかという発想が生まれたものである。)

通常の光ファイバでは、コア部分に単一周期グレーティングが形成されている。その透過スペクトル例を Fig. 4.16 (a) に示した。これは、単一モード構造であることを考慮して、光ファイバの一般的な伝送理論 (モード結合理論) に代えて、4.2 節で述べた転送行列法を適用して行った数値計算の結果である。グレーティングの周期で決まる特定波長 (この場合には、 $1.55\mu\text{m}$) の光のみが選択反射されていることが分かる。これに対して、同じ部分の屈折率変化を2重周期構造としたときに予想される透過特性を、Fig. 4.16 (b) に示した。これも前節で用いたのと同様の転送行列法により計算したものである。この結果、2重周期構造に伴って、複数の反射帯が

出現していることが分かる。これらの線状の反射帯の本数と間隔は、2重周期の変調のパラメータ p の値によって決まる。

本研究者によって行われた上記の数値計算による理論的予測に基づいて、実際に作製された試料の測定が、三菱電線工業(株)フォトニック研究所で行なわれた。その予備的な実験結果を以下に紹介する。

用いた試料の作製には、光源に Nd:YAG レーザーの4倍波(平均出力:10mW、繰り返し周波数:10Hz、 $\lambda=266\text{nm}$)を使用し、位相マスクには、基本周期のマスク ($\lambda_1=1065\text{nm}$) とそれより長周期のマスク (λ_2 は p の値に応じて変化させている) の2枚を用いた回折法が用いられた。ファイバには、紫外光に対して高い感度 (Photosensitivity) を持つ Sn、Ge 共添加光ファイバが使用された [82, 83]。

このようにして作製された試料についての実験結果の一例として、変調パラメータを $p=1/20$ とし、基本周期 λ_1 、変調周期 λ_2 をそれぞれ $\lambda_1=1065\text{nm}$ 、 $\lambda_2=21300\text{nm}$ とした場合の結果を Fig. 4.17 に示した。書き込みを行ったグレーティングの長さは 20mm である。Fig. 4.16 (b) に示した理論的結果から予想されたように、基本周期 λ_1 で決まる中心反射帯の両側に2重周期特有の分裂した鋭い反射帯が出現することが確認された。(ここで、Fig. 4.16 の計算結果は透過スペクトルで表わされているのに対して、Fig. 4.17 の実測結果は、反射スペクトルとしてプロットされていることに注意。) しかし、これらの反射帯の相対強度や波長位置、サイドローブ(有限系であるためにピークの両側に生じる側帯構造) などに関しては、計算と実測結果の間の定量的な一致はあまり良くない。その原因としては、1次元系としての多層膜の場合とは異なり、擬1次元的な光ファイバ構造に特有ないくつかの問題(例えば、伝播モードの電場分布や現実の光誘起屈折率変化の形状など) が関係していると思われる。これらの問題については、今後の詳細な解析が必要である。また、ここでの解析には、誘電体多層膜に対して適用される転送行列法を用いたが、光ファイバについては光ファイバの特性に即したモード結合理論を用いる解析が必要であろう。

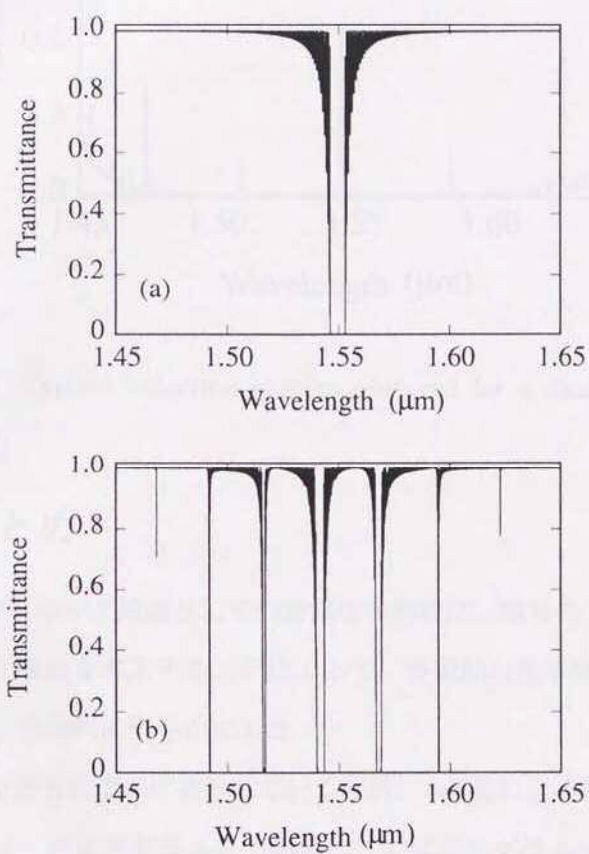


Figure 4.16: Typical theoretical transmission spectra for (a) conventional (single-periodic) fibre grating with $p=0$, (b) dual-periodic fibre grating with $p=1/20$.

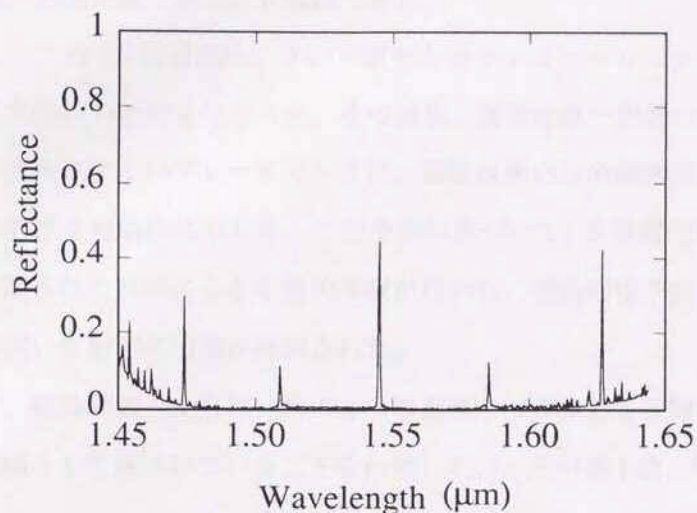


Figure 4.17: Typical reflection spectra observed for a dual-periodic fibre grating with $p=1/20$.

4.8 まとめ

1次元フォトニック結晶としての誘電体多層膜に、独自のアイデアによる「2重周期性」という概念を導入することによって、特徴的な光学特性が出現することを基礎的観点から理論的に明らかにした。

この特徴を最も典型的に表わしているのが、本研究によって初めて見出された「光のバタフライ・ダイアグラム」である。このダイアグラムから、2重周期の変調の度合いを示すパラメータ p の値によって、蝶の羽の部分にあたるフォトニック・バンド・ギャップが出現するエネルギー位置を任意に制御できることがわかった。また、 p の値の小さい領域で斑点状に現われるエネルギー状態は、光が強く局在している特殊なバンド状態に対応し、そこでは異常に大きな電磁場の増強効果が生じていることを明らかにした。

このような理論的予測は、実現可能な系としての厚み変調された2重周期誘電体

多層膜についての予備的実験の結果とも一致し、その結果、これらの新規な光学特性が実際に実現可能であること確認できた。

さらに、この「2重周期性」という概念を光ファイバグレーティングに適用した場合の光学特性の検討を行なった。その結果、従来は単一波長の光のみ分離しかできなかった光ファイバグレーティングに、複数波長の光分離機能を持たせることができる可能性を理論的に示した。この予測に基づいて、2重露光による位相格子法により作製された試料による予備的実験が行われ、理論的な予想と定性的に一致した複数の鋭い反射帯の出現が確認された。

最後に、理論的観点からは、次の2つの重要かつ興味ある課題が今後に解決されるべき問題として残されていることを付記したい。その第1は、「光のバタフライ・ダイアグラム」の特徴あるフラクタル性と、そこに現われる強束縛的なフォトニック・バンド状態の起源である。2重周期構造の中での固有状態は、周期的構造とランダム構造の境目にある準周期系(準結晶系)の中での波動状態と近い関係にあり、基礎物性的な観点からも数理物理的な観点からも、一層深く掘り下げて検討する価値のある課題であると思われる。もう一つの重要な課題は、2重周期性を導入することによって特定のフォトニック・バンド状態を実現しようとする場合に、関係するパラメータの値をどのように設定したらよいかという問題である。いいかえると、所要の光学特性が求められたとき、この結果を得るための条件設定を可能とする方法論を確立することである。これは、散乱問題(一定の入力波があったとき、どのような出力波が散乱過程によって生じるかという問題)に対して、その入出力関係を逆にした逆散乱問題[84]を2重周期系について解くことであり、将来の応用の可能性に備えるためには不可欠な問題である。残念ながら、本研究ではこれらの課題に対して解決の糸口を見出すまでには到らなかったが、本研究はこれらの重要な課題設定を具体的な形で示したものである。今後の研究の進展を期待したい。

第5章 結論

本論文では、低次元周期性を有するフォトニック結晶について、以下に示す2つのテーマについて研究を行った。それぞれの研究成果の詳しい説明は、第3章、第4章中に述べたので、ここでは全体として主な結論と今後の研究に残された重要な課題をまとめる。

1. 擬2次元フォトニック結晶の構造と光物性

本研究は、球状誘電体配列構造における光の伝播特性を基礎的観点から実験的に明らかにしたものである。以下にその主な成果について述べる。

1. 研究の対象となる擬2次元フォトニック結晶の作製では、球状の誘電体であるポリスチレン・ラテックスを用いて、広い(約 $3 \times 3 \text{ mm}^2$)規則配列領域を有し、この領域内で結晶方位の揃ったラテックス単層膜の作製が可能となった。
2. このラテックス単層膜を用いた斜入射偏光透過スペクトルの精密な測定によって、この系におけるフォトニック・バンド構造を実験的に明らかにした。

この結果を、大高らによるベクトル球面波展開法による厳密な解析によって求められたフォトニック・バンド構造と比較した結果、きわめて良い一致をみた。この結果は、この理論的解析手法が、球状誘電体からなるフォトニック結晶の実験結果を解析する有効な手段であることを示しているとともに、現実 to 得られる球状の誘電体配列構造の中に、この理論によって記述されるような特徴的な性質を持った擬2次元フォトニック・バンド状態が、実際に観測にかかる状態で存在していることを実証したものである。

以上のように、本研究では、球状誘電体が規則配列した系におけるフォトニック・バンド効果について、実験・理論の両面から基礎的なアプローチの方法を確立し、今後の応用への展開を検討する上で、重要な基礎的知見となる成果を得た。

II. 2重周期構造を有する1次元フォトニック結晶の構造と光物性

本研究は、従来から広く知られている誘電体多層膜を、1次元フォトニック結晶という観点から捉え、その基礎的な光物性を、主として数値解析によって詳しく調べたものである。その結果、以下に列記することが明らかになった。

1. 誘電体多層膜に独自のアイデアによる「2重周期性」を導入することによって、その光エネルギー・スペクトルに「光のバタフライ・ダイアグラム」という特徴的なパターンが出現することを、はじめて明らかにした。
2. 2重周期構造の特徴を示す変調のパラメータ p に応じて、フォトニック・バンド・ギャップの出現するエネルギー位置を制御できる可能性があることを示した。
3. p の値が小さいとき、強い光の局在状態が出現することを明らかにした。また、この局在状態には、強い電磁場の増強効果が伴っていることを明らかにした。この増強効果の程度は、変調する関数の形に依存し、特別な変調関数を用いると、異常といつてよい(入射光強度の $\sim 10^{10}$ にも及ぶ)電磁場エネルギーの増強が生じる可能性があることを示した。
4. 予備的な実験結果ではあるが、実際に2重周期誘電体多層膜を作製し、予測される基礎的な光学特性を検証した。
5. 2重周期構造を有する光学系として、2重周期構造を有する光ファイバグレーティングのアイデアを提案し、数値計算結果と予備的な実験結果との比較を行い、計算結果と定性的に一致した複数の鋭い反射帯の出現が確認された。この2重周期構造を実際に応用する可能性を追求するためには、その目的と使用波長域などに応じた材料の選定と、さらに詳細な実験的検討が必要である。また、

光ファイバグレーティングについては、光ファイバにおけるモード結合理論を用いた解析手法によってより詳細な検討が必要である。

以上をまとめると、本研究では、1次元フォトリック結晶に2重周期性という本研究者独自の概念を導入し、それによって生じる新規な光物性を詳細な数値計算によって理論的に明らかにした。この結果は、「光のバタフライ・ダイアグラム」やここに見られるフラクタル性など、光学における数理物理学的研究の対象として興味ある課題を提供している。さらに、本研究で見出された2重周期性によるフォトリック・バンド構造の制御の可能性や、局在的なフォトリック・バンド状態の出現とそれに伴う著しい電磁場増強効果などの新規な特徴的性質は、今後の基礎研究の重要な課題であるとともに、将来の応用の可能性を探求する上で有用な知見を与えているものと考ええる。

最後に、今後の研究に残されている課題の中で、特に重要と思われるものを、以下に列記する。

1. ラテックス配列膜の研究に関しては、本研究により実在性が確認された擬2次元フォトリック・バンド状態を利用した新しい現象を実験的に検出することが、最も重要な研究課題であろう。特に、大高、迫田ら[85]によって理論的に検討されている“重い光子 (Heavy Photon) 状態”を利用した非線形光学効果や、異なったパリティを有する複数のフォトリック・バンド状態が関係する非線形光学過程を、本研究で明らかにされたフォトリック・バンド構造の知見に基づいて、実験的に追及することが望まれる。
2. 2重周期性を有するフォトリック結晶の研究対象としては、現実的に1次元系に限られるから、本研究で扱った誘電体多層膜と光ファイバグレーティングが、当面の主要な研究対象となると考えられる。

これらの系についての研究としては、まず、求められた光学的性質(フォトリック・バンド・ギャップや狭帯域透過・反射帯に、特定の波長位置や幅を指定することなど)を実現するためのパラメータ設定を可能にする理論的手法を確立することが重要であろう。この問題は、固体物理学で最近、盛んな研究が進められている「逆散乱法」[84]に対応するものであり、与えられた入射光について透過・反射スペクトルを計算する転送行列法に対して、「逆転送法」とも言うべき理論を確立することである。そのような理論の必要性は、逆散乱法の場合と同様に、数理物理的観点からのみならず、新しい光デバイス設計の指針を与えるという点で、応用上からも重要な課題となろう。

2重周期性を有する誘電体多層膜や光ファイバグレーティングの応用に関する研究については、本研究はその端緒を開いたという段階にとどまっていて、今後の研究を必要とする課題は枚挙に暇ない。それについては、前章に詳しく記したので、ここでは改めて述べないことにする。

以上の結果を要約すると次のようになる。

本論文では、低次元周期性を有するフォトリック結晶の構造と光物性について、実験的、理論的に従来知られていなかったいくつかの概念や知見を明らかにした。これらの成果は、フォトリック結晶という新しい光機能物質についての基礎的研究としてだけでなく、非線形光学や光通信などの諸分野への応用につながる基礎的な知見を与えるものである。

謝辞

本研究をまとめるにあたり多くの方々から数々のご支援とご協力をいただきました。これらの方々にこの場を借りて感謝の意を表したいと思います。

日本女子大学理学部、国府田 隆夫教授には、本研究をはじめてから今日までの7年余りにわたり、数々のご指導をいただき、多くの貴重な経験と多くの方々との交流をする場を与えていただきました。「科学は美しいもの」、「研究は楽しむもの」という研究に取り組む姿勢と努力することの大切さを教えていただきました。何度もくじけそうになる私を励まし、勇気づけてくださったお陰で、このように本研究をまとめることができました。心より深く感謝いたします。

千葉大学先進科学教育センター、大高 一雄教授ならびに工学部植田 毅助手には、本研究全般の理論的な解析について、ご指導と有意義な議論をしていただきました。心よりお礼申し上げます。

本研究を立ち上げるにあたって、コロイド系のさまざまな取り扱いについては、中央学院大学、藤田 秀教授、東京農工大学工学部、美宅 成樹教授にご指導いただきました。

3次元コロイド結晶の作製については岐阜大学工学部(当時、京都大学)、大久保恒夫教授にご指導いただきました。心よりお礼申し上げます。

日本合成ゴム筑波研究所の竹田 研爾氏には、非常に良質のポリスチレン・ラテックスの提供をしていただきました。心よりお礼申し上げます。

2次元コロイド結晶の作製にあたっては、岡崎国立研究機構・生理学研究所、永

山 国昭教授 (当時、ERATO 新技術事業団永山たんぱく集積プロジェクト統括責任者) ならびに研究室の方々、東京大学大学藤嶋研究室の松下 祥子氏にそれぞれの作製方法に関して技術的なアドバイスをいただきました。お陰で、配列性のよい結晶を作製する技術を習得することができました。本当にありがとうございました。

基板の洗浄、表面処理については、東京大学工学部、宮野健次郎教授ならびに富岡明宏助手 (現在、大阪電気通信大学) にお世話になりました。心よりお礼申し上げます。

大阪大学基礎工学部、伊藤 正教授、藤村 徹氏には、ラテックス単層膜にかかわる多くの光学測定について、ご指導と有意義な議論をしていただきました。心よりお礼申し上げます。

豊田工業大学先端フロンティアテクノロジー研究センター、生嶋 明教授、藤原 巧助教授 (現在、長岡科学技術大学)、斎藤 和也講師には、2重周期誘電体多層膜の作製にあたり、共同研究として多くのご指導と貴重な議論をしていただきました。ここで得られたさまざまな経験は、私にとって大変貴重な財産となりました。心よりお礼申し上げます。また、同大学フロンティア材料研究室の皆様には、研究はもちろんのこと慣れない場所での生活をさまざまな面からサポートしていただきました。本当にありがとうございました。

東京大学工学部、岸田 英夫助手には、光学測定の基礎から研究全般に対して適切なアドバイスをいただきました。心よりお礼申し上げます。

日本女子大学理学部、高橋 雅江助教授、島崎 昌子助手には、学部学生時代から常に暖かく見守っていただき、多くの励ましをいただきました。心より感謝いたします。

電気通信大学電子工学科、岡田 (首藤) 佳子助手には、博士前期課程修了後もさまざまなアドバイスと励ましをいただきました。心より感謝いたします。また、博士前期課程入学時の指導教官であった小笠原 長篤助教授が在学中に急逝されたのは残念でなりません。心よりご冥福をお祈り申し上げます。

国府田研究室の28名卒業生の皆さん、そして現在の研究室の皆さんとの実験、議論がこのような形でまとめることができました。本当にありがとうございました。

ここにすべて書くことはできませんでしたが、本当に多くの方々にお世話になりました。改めて感謝したいと思います。

本研究は、1999年4月から12月の間、公益信託 林女性自然科学者研究助成基金「林フェロー(ブレ・ドクトラル)」の助成を受けました。また、2000年1月より、日本学術振興会 特別研究員として採用、研究助成を受けています。心より感謝いたします。

最後に、私のわがママをそっと見守り、支え続けてくれた両親と弟に深く感謝いたします。

参考文献

- [1] 総説としては、例えば次の文献を参照 : *Photonic Band Gaps and Localization*, edited by C. M. Soukoulis (Plenum Press, New York, 1993); *Photonic Band Gap Materials*, edited by C. M. Soukoulis (Plenum Press, New York, 1995); J. D. Joannopoulos, R. D. Meade, and J. N. Winn, *Photonic Crystals* (Princeton University Press, Princeton, 1995).
- [2] J. D. Joannopoulos, P. R. Villeneuve and S. Fan, *Nature*, **386**, 143 (1997).
- [3] J. C. Knight, T. A. Birks, P. St. J. Russell and D. M. Atkin, *Opt. Lett.*, **21**, 1547 (1996).
- [4] H. Kosaka, T. Kawashima, A. Tomita, M. Notomi, T. Tamamura, T. Sato and S. Kawakami, *Phys. Rev. B* **58**, R 10096 (1998).
- [5] K. Ohtaka, *Phys. Rev. B* **19**, 5057 (1979).
- [6] E. Yablonovitch, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 2059 (1987).
- [7] E. Yablonovitch, T. J. Gmitter, R. D. Meade, A. M. Rappe, K. D. Brommer and J. D. Joannopoulos, *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3380 (1991).
- [8] S. John, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 2486 (1987).
- [9] 最近の総合報告として : 川上 彰二郎, 太寺 康夫, 川嶋 貴之, *応用物理*, **68**, 1335 (1999).

- [10] İ. İ. Tarhan, M. P. Zinkin, and G. H. Watson, *Opt. Lett.* **20**, 1571 (1995).
- [11] İ. İ. Tarhan, and G. H. Watson, *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 315 (1996).
- [12] W. L. Vos, R. Sprik, A. Blaaderen, A. Imhof, A. Lagendijk, and G. H. Wegdam, *Phys. Rev. B* **53**, 16231 (1996).
- [13] J. E. G. J. Wijnhoven and W. L. Vos, *Science*, **281**, 802 (1998).
- [14] H. Míguez, C. López, F. Meseguer, A. Blanco, L. Vázquez, R. Mayoral, M. Ocaña, V. Fornés and A. Mifsud, *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 1148 (1997).
- [15] 和達 三樹, 巨勢 朗, 戸田 盛和, *科学*, **42**, 646 (1972).
- [16] S. Dosho, N. Ise, K. Ito, S. Iwai, H. Kitano, H. Matsuoka, H. Nakamura, H. Okumura, T. Ono, I. S. Sogami, Y. Ueno, H. Yoshida and T. Yoshiyama, *Langmuir*, **9**, 394 (1993).
- [17] T. Mukaiyama, K. Takeda, H. Miyazaki, Y. Jimba and M. Kuwata-Gonokami, *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 4623 (1999).
- [18] R. Shimada, A. Imada, T. Koda, T. Fujimura, K. Edamatsu, T. Itoh and K. Ohtaka, *Proceeding of 7th Asia Pacific Physics Conference*, (Science Press, Beijing), 367 (1999).
- [19] R. Shimada, A. Imada, T. Koda, T. Fujimura, K. Edamatsu, T. Itoh, K. Ohtaka and K. Takeda, *Mol. Cryst. and Liq. Cryst.*, **37**, 95 (1999).
- [20] 大高 一雄, *日本物理学会誌*, **52**, 328 (1997).
- [21] K. Ohtaka, Y. Suda, S. Nagano, T. Ueta, A. Imada, T. Koda, J. S. Bae, K. Mizuno, S. Yano, and Y. Segawa, *Phys. Rev. B* **61**, 5267 (2000).

- [22] K. Ohtaka and Y. Tanabe, J. Phys. Soc. Jpn., **65**, 2265 (1996), *ibid.* **65**, 2670 (1996), *ibid.* **65**, 3068 (1996), K.Ohtaka, T. Ueta, and Y. Tanabe, *ibid.* **65**, 2276 (1996).
- [23] K. Ohtaka, J. Phys. C: Solid St. Phys., **13**, 667 (1980).
- [24] J. A. Stratton, *Electromagnetic Theory* (McGraw-Hill, New York, 1941).
- [25] T. Ohkubo, Naturwissenschaften, **79**, 317 (1992).
- [26] T. Ohkubo, Colloid Polymer Sci., **153**, 587 (1992).
- [27] A. K. Sood, *Solid State Physics*, **45**, (Academic Press, Inc., 1991).
- [28] A. Kose, M. Ozaki, K. Takano, Y. Kobayashi and S. Hachisu, J. Colloid Interface Sci., **44**, 330 (1973).
- [29] 大久保 恒夫, 日本結晶成長学会誌, **19**, 263 (1992).
- [30] T. Alfrey, Jr., E. B. Bradford and J. W. Vanderhoff, J. Opt. Soc. Am., **44**, 603 (1954).
- [31] W. Luck, M. Klier and H. Wesslau, Naturwissenschaften, **50**, 485 (1963).
- [32] I. M. Krieger and F. M. O'Neill, J. Am. Chem. Soc., **90**, 3114 (1968).
- [33] S. Hayashi, Y. Kumamoto, T. Suzuki and Y. Hirai, J. Colloid Interface Sci., **144**, 538 (1991).
- [34] A. Imhof, W. L. Vos, R. Sprik and A. Lagendijk, Phys. Rev. Lett., **83**, 2942 (1999).
- [35] M. S. Thijssen, R. Sprik, J. E. G. J. Wijnhoven, M. Megens, T. Narayanan, A. Lagendijk and W. L. Vos, Phys. Rev. Lett., **83**, 2730 (1999).

- [36] S. G. Romanov, T. Maka, C. M. Sotomayer Torres, M. M. Müller, R. Zentel, *Appl. Phys. Lett.*, **75**, 1057 (1999).
- [37] H. T. Miyazaki, H. Miyazaki, K. Ohtaka and T. Sato, *J. Appl. Phys.*, **87**, 7152 (2000).
- [38] 室井 宗一, 「高分子ラテックスの化学」, (高分子刊行会, 1987).
- [39] 室井 宗一, 森野 郁夫, 「高分子ラテックス」 (高分子刊行会, 1988).
- [40] S. Kawakami, *Electron. Lett.*, **33**, 1260 (1997).
- [41] 永山 国昭, *表面*, **31**, 353 (1992).
- [42] 永山 国昭, *粉体工学会誌*, **32**, 34 (1995).
- [43] 永山 国昭, *Colloid Surface Chem.*, **19**, 2 (1994).
- [44] P. A. Kralchevsky, V.N. Paunov, I. B. Ivanov and K. Nagayama, *J. Colloid Interface Sci.*, **151**, 79 (1992).
- [45] V.N. Paunov, P. A. Kralchevsky, N. D. Denkov, I. B. Ivanov and K. Nagayama, *Colloids and surfaces*, **67**, 119 (1992).
- [46] V.N. Paunov, P. A. Kralchevsky, N. D. Denkov and K. Nagayama, *J. Colloid Interface Sci.*, **157**, 100 (1993).
- [47] P. A. Kralchevsky and K. Nagayama, *Langmuir*, **10**, 23 (1994).
- [48] N. D. Denkov, O. D. Velez, P. A. Kralchevsky, I. B. Ivanov H. Yoshimura and K. Nagayama, *Nature*, **361**, 26 (1993).
- [49] N. D. Denkov, O. D. Velez, P. A. Kralchevsky, I. B. Ivanov H. Yoshimura and K. Nagayama, *Langmuir*, **8**, 3183 (1992).

- [50] C. D. Duskin, H. Yoshimura and K. Nagayama, Chem. Phys. Lett., **204**, 455 (1993).
- [51] C. D. Duskin, K. Nagayama, T. Miwa and P. A. Kralchevsky, Langmuir, **9**, 3695 (1993).
- [52] A. S. Dimitrov and K. Nagayama, Langmuir, **12**, 1303 (1996).
- [53] S. Matsushita, Y. Miwa, D. A. Tryk and A. Fujishima, Langmuir, **14**, 6441 (1998).
- [54] T. Fujimura, K. Edamatsu, T. Itoh, R. Shimada, A. Imada, T. Koda, N. Chiba, H. Muramatsu and T. Ataka, Opt. Lett. **22**, 489 (1997).
- [55] T. Fujimura, T. Itoh, K. Hayashibe, K. Edamatsu, K. Shimoyama, R. Shimada, A. Imada, T. Koda, Y. Segawa, N. Chiba, H. Muramatsu and T. Ataka, Mater. Sci. Eng., B **48**, 94 (1997).
- [56] T. Yamasaki and T. Tsutsui, Jpn. J. Appl. Phys., **38**, 5916 (1999).
- [57] T. Yamasaki and T. Tsutsui, Appl. Phys. Lett., **72**, 1957 (1998).
- [58] For example, J. Opt. Soc. Am., **10** (1993), a special feature edited by C. M. Bowden, J. P. Dowling and H. O. Everitt.
- [59] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, Sixth Edition, (Cambridge University Press, 1980).
- [60] N. Tsurumachi, S. Yamashita, N. Muroi, T. Fuji, T. Hattori and H. Nakatsuka, Jpn. J. Appl. Phys., **38**, 6302 (1999).
- [61] N. Tsurumachi, M. Abe, M. Arakawa, T. Yoda, T. Hattori, J. Qi, Y. Masumoto and H. Nakatsuka, Jpn. J. Appl. Phys., **38**, L1400 (1999).

- [62] J. S. Foresi, P. R. Villeneuve, J. Ferrera, E. R. Thoen, G. Steinmeyer, S. Fan, J. D. Joannopoulos, L. C. Kimerling, H. I. Smith and E. P. Ippen, *Nature*, **390**, 143 (1997).
- [63] 川村 清, 「量子力学 I」 10 章 (産業図書, 1996).
- [64] S. Datta, *Electronic Transport in Mesoscopic System*, (Cambridge University Press, 1995).
- [65] P. Yeh, A. Yariv and C. S. Hong, *J. Opt. Soc. Am.*, **67**, 423 (1977).
- [66] R. Shimada, T. Koda, T. Ueta and K. Ohtaka, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **67**, 2239 (1998).
- [67] D. R. Hofstadter, *Phys. Rev. B* **14**, 2239 (1976).
- [68] R. E. Peierls, *Z. Phys.* **80**, 763 (1933).
- [69] S. Ostlund, R. Pandit, D. Rand, H. J. Schellnhuber and E. D. Siggia, *Phys. Rev. Lett.*, **50**, 1873 (1983).
- [70] S. Ostlund and R. Pandit, *Phys. Rev. B* **29**, 1394 (1984).
- [71] M. Kohmoto, L. P. Kadanoff and C. Tang, *Phys. Rev. Lett.*, **50**, 1870 (1983).
- [72] M. Kohmoto, B. Sutherland and C. Tang, *Phys. Rev. B* **35**, 1020 (1987).
- [73] H. Miyazaki and M. Inoue, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **59**, 2536 (1990), M. Inoue and H. Miyazaki, *ibid.* **59**, 2549 (1990), H. Miyazaki and M. Inoue, *ibid.* **59**, 2563 (1990).
- [74] H. Miyazaki, T. Watanabe and M. Inoue, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **61**, 1069 (1992).
- [75] T. Hattori, N. Tsurumachi, S. Kawato and H. Nakatsuka, *Phys. Rev. B* **50**, 4220 (1994).

- [76] 藤原 巧, 高橋 雅英, 生嶋 明, 分光研究, **45**, 292 (1996).
- [77] 井上 亨, 岩島 徹, 角井 素貴, 茂原 政一, 服部保次, 応用物理, **66**, 33 (1997).
- [78] 川上彰二郎, 白石和男, 大橋正治, 「光ファイバとファイバ形デバイス」 (培風館, 1996).
- [79] K. O. Hill, Y. Fujii, D. C. Johnson and B. Kawasaki, Appl. Phys. Lett., **32**, 647 (1978).
- [80] K. O. Hill, B. Malo, F. Bilodeau and D. C. Johnson, Annu. Rev. Mater. Sci., **23**, 125 (1993).
- [81] L. Dong, J. L. Archambault, L. Reekie, P. St. J. Russell and D. N. Payne, Appl. Opt., **34**, 3436 (1995).
- [82] K. Imamura, T. Nakai, Y. Sido and Y. Imada, Electron. Lett., **34**, 1 (1998).
- [83] K. Imamura, T. Nakai, K. Moriura, Y. Sido and Y. Imada, Electron. Lett., **34**, 1016 (1998).
- [84] 例えば、和達 三樹, 物性科学事典, 東京大学物性研究所編, 東京書籍, pp. 189-190, 「逆散乱法」の項を参照.
- [85] K. Sakoda, K. Ohtaka and T. Ueta, Opt. Express, **4**, 481 (1999).

研究業績リスト

1. R. Shimada, T. Koda, T. Ueta and K. Ohtaka, "Energy Spectra in Dual-Periodic Multilayer Structures", J. Phys. Soc. Jpn., **67**, 3414-3419 (1998).
2. R. Shimada, A. Imada, T. Koda, T. Fujimura, K. Edamatsu, T. Itoh and K. Ohtaka, "Optical Properties and Photonic Band Effect in Ordered Dielectric Particles (LATEX) Layers", Proceeding of 7th Asia Pacific Physics Conference, (Science Press, Beijing) 367-369 (1999).
3. R. Shimada, A. Imada, T. Koda, T. Fujimura, K. Edamatsu, T. Itoh, K. Ohtaka and K. Takeda, "Self-Assembled Polystyrene Microparticle Layers as Two-Dimensional Photonic Crystals", Mol. Cryst. and Liq. Cryst., **37**, 95-98 (1999).
4. R. Shimada, Y. Komori, T. Koda, T. Fujimura, T. Itoh and K. Ohtaka, "Photonic Band Effect in Ordered Polystyrene Particle Layers", Mol. Cryst. and Liq. Cryst., in press.
5. T. Fujimura, K. Edamatsu, T. Itoh, R. Shimada, A. Imada, T. Koda, N. Chiba, H. Muramatsu and T. Ataka, "Scanning near-field optical images of ordered polystyrene particle layers in transmission and fluorescence excitation modes", Opt. Lett. **22**, 489-491 (1997).
6. T. Fujimura, T. Itoh, K. Hayashibe, K. Edamatsu, K. Shimoyama, R. Shimada, A. Imada, T. Koda, Y. Segawa, N. Chiba, H. Muramatsu and T. Ataka, "Observation of local light propagation in ordered LATEX layers by scanning

- near-field optical microscope", *Mater. Sci. Eng. B* **48**, 94-102 (1997).
7. M. Haraguchi, T. Nakai, A. Shinya, T. Okamoto, M. Fukui, T. Koda, R. Shimada and K. Takeda, "Interaction of Near-Field Light with Ordered Polystyrene Spheres : Experimental Studies", *Optical Review*, **6**, 261-267 (1999).
 8. S. Matsushita, F. Minami, A. Imada, R. Shimada and T. Koda, "Light propagation in two-dimensional photonic crystal illuminated by a tightly focused laser beam", *Superlattices and Microstructure*, **25**, 347-350 (1999).
 9. T. Fujimura, T. Itoh, A. Imada, R. Shimada, T. Koda, N. Chiba, H. Muramatsu, H. Miyazaki and K. Ohtaka, "Near-field optical images of ordered polystyrene particle layers and their photonic band effect", *Journal of Luminescence.*, **87-89**, 954-956 (2000).
 10. T. Fujimura, T. Itoh, A. Imada, R. Shimada, T. Koda, S. Takabayashi, H. Miyazaki and K. Ohtaka, "Similarity in images between illumination and collection mode SNOM observation of a polystyrene particle layer", *Proceedings of The Second Asia-Pacific Workshop on Near-field Optics*, World Scientific Publishing Co. Ltd. (2000), to be published.
 11. M. Haraguchi, T. Nakai, A. Shinya, T. Okamoto, M. Fukui, T. Koda, R. Shimada, K. Ohtaka and K. Takeda, "The gallery modes in two-dimensionally ordered dielectric spheres excited by evanescent fields", *Proceedings of The Second Asia-Pacific Workshop on Near-field Optics*, World Scientific Publishing Co. Ltd. (2000), to be published.
 12. M. Haraguchi, T. Nakai, A. Shinya, T. Okamoto, M. Fukui, T. Koda, R. Shimada, K. Ohtaka and K. Takeda, "Optical modes in two-dimensionally ordered dielectric spheres", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39**, 1747 (2000).

文
の構造と光物性

平論製本
ヤマザキ
☎ (03) 3958-1681

平家