

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：12102

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2014～2017

課題番号：26706018

研究課題名(和文) 通信帯フェムト秒表面プラズモン波束の顕微映像化と非線形増幅

研究課題名(英文) Microscopic imaging of surface plasmon wave packet at optical communication wavelength and the nonlinear amplification

研究代表者

久保 敦 (KUBO, Atsushi)

筑波大学・数理解物質系・講師

研究者番号：10500283

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,800,000円

研究成果の概要(和文)：表面プラズモンポラリトンを情報伝達の媒体に用いる「プラズモニックデバイス」の実装には、実用化が先行するフォトニックデバイスの波長域(光通信波長帯： $\approx 1.55\ \mu\text{m}$)との整合が求められる。加えて、デバイスの超広帯域な動作を実現するには、超高速時間領域におけるプラズモン信号の測定・評価が必要となる。本研究は新しい時間分解顕微鏡法の開発により、波長 $1.55\ \mu\text{m}$ 帯の表面プラズモンの伝搬の様子をフェムト秒の時間分解能で映像化したものである。

研究成果の概要(英文)："Plasmonic devices", which are considered as next-generation information processing devices, are required to work at optical communication wavelengths. Moreover, their dynamical properties at ultrafast time-regime have to be understood well to realize ultra-wideband information processing. In this study, we developed a new time-resolved microscopy, which enabled to obtain "movies" of surface plasmons of the wavelength at $1.55\ \mu\text{m}$ with femtosecond time resolutions.

研究分野：物性物理学

キーワード：表面プラズモン プラズモニクス フェムト秒 レーザー 顕微鏡 超高速現象 時間分解 非線形光学

1. 研究開始当初の背景

今日の情報化社会を支えるインターネットのネットワークを飛び交う情報量は年々増大している。通信のボトルネックはルーターやスイッチなどのエレクトロニクス機器である。これを解消するため、光信号を電気信号への変換なしに処理する全光素子が研究されているが、光導波路の最小サイズは回折限界により制限される。

この微細化の限界は、光の代わりに表面プラズモンを用いる技術、“プラズモニクス”により打ち破ることができる。表面プラズモンは、高速な群速度や、コヒーレンス性、可干渉性など、光波とよく似た性質を持つ。その一方、導波路のサイズを波長以下に微細化することが可能である。

この理由から、プラズモニクスは次世代の超高速・高集積デバイスを実現する有力候補であり、世界的に大変活発な研究が推進される状況にあった。プラズモン波源、導波路、変調器、増幅器などの開発が次々と報告された。EU ではこれらを CMOS プロセスを基にオンチップ化する国際プロジェクト (NAVOLCHI) が進行し、国内においても通信帯プラズモニックデバイスの研究が開始されつつあった。

プラズモニクス素子における情報伝達とは、つまるところ、パルス状のプラズモン波束列による信号の伝送である。フォトリソグラフィ分野でも、波長分割多重方式に加え、超短光パルスを用いる時分割多重方式の研究が進んでおり、これら光ベースの通信方式との整合性を持たせる上でも超短プラズモンパルスによる情報伝送が実現されなければならない。このためには、プラズモン波束の動的な性質についての理解、ならびに、パルスの減衰や分散広がりへの補償方法の開発が必要である。また、能動素子の開発には非線形応答の理解も必要である。その一方、当該分野において波束運動の動的性質や非線形応答に関する研究は限定的な状況にあった。

2. 研究の目的

波長 $1.55 \mu\text{m}$ 近赤外フェムト秒レーザーを光源とし、時間分解二光子蛍光顕微鏡法を表面電磁場の可視化に用いる事により、通信帯表面プラズモン波束の動的過程 (動き) のフェムト秒映像化を行う。プラズモニック導波路、分岐路、干渉計、共鳴器、金属フォトリソグラフィ構造など、プラズモニックデバイスの基本素子を作製し、それらの構造を伝搬するプラズモン波束の時間分解映像を取得・解析し、波束の群速度、位相速度、伝搬距離、位相緩和時間、分散広がりなど、波束の動的な特性を解明する。従来、パルスの伝搬特性は導波路の分散関係から推定されるものではあるが、分散関係は導波路の幾何学形状に依存して変化し、さらに非線形性のある場合には単純な評価は困難になる。加えて、金属-誘電体界面に電磁場が集中するプラズモニックス

素子では、界面構造の揺らぎの影響も顕著になるため、実際の試料に対してパルスの伝搬特性を評価できる事が大切である。本研究では、実験的手法による波束ダイナミクスの直接的計測法を提案する。

また、素子の能動的動作に本質的な非線形応答の制御の例として、SPASER 機構 (利得媒質からの誘導放射によるプラズモン波束のコヒーレントな増幅) を用いた、コントロール光による波束振幅の変調を行う。

3. 研究の方法

(1) 通信帯フェムト秒レーザーを光源にした時間分解二光子蛍光顕微鏡の建設

当システムは、 $1.55 \mu\text{m}$ フェムト秒レーザー光源、高精度ポンプ-プローブ光学系、CCD 顕微鏡システム、の 3 点から構成される。表面プラズモンは、極薄の蛍光膜を試料表面に形成し、プラズモン場による二光子励起蛍光を誘起する事により可視化する。微弱な蛍光をバンドパスフィルターで切り出し、EM-CCD カメラにより高感度に検出し画像化する。

(2) 通信帯表面プラズモン波束の伝搬の映像化と解析

建設した顕微鏡システムを用い、金属表面での通信帯表面プラズモン波束のフェムト秒映像化を行う。映像の解析により、波束の群速度、位相速度、伝搬長、寿命、分散広がり等、波束の動的な物理パラメーターの実験的決定を行う。結果は、多層膜の固有値方程式から求まる表面波モードの複素分散関係や、数値シミュレーション (FDTD 法) と比較し、本計測方法の妥当性を確認する。

(3) ナノスケールプラズモニック素子の製作

プラズモニック素子の基本要素となる、導波路、分岐路、マッハ ツェンダー型スイッチ、共鳴器、金属フォトリソグラフィ構造などを製作し、それらを導波する波束の映像化を行う。素子の製作には電子ビームリソグラフィ法、フォトリソグラフィ法や、集束イオンビームなどを利用する。

(4) プラズモン波束の非線形増幅と能動的な振幅変調

SPASER (Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation) を用いたプラズモン波束振幅のアクティブな変調を行う。利得媒質には $1.55 \mu\text{m}$ 帯に発光を持つ半導体量子ドット等を用いる。また、この前段階として可視光域における SPASER の実証実験を、いわゆるクレッチマン型光学配置を用いた発光スペクトル計測により行う。

最終的には、導波路の一部を利得媒質で包埋した素子を作製し、コントロール光照射による利得部の光ポンピングの on/off による波束増幅の制御を目指す。

4. 研究成果

(1)波長1.55 μm 帯フェムト秒レーザー光源、およびポンプ-プローブ時間分解顕微鏡光学系の建設を行った。通信帯フェムト秒レーザー光源には、当初ファイバーレーザーを候補に調査・検討を行ったが、十分なパルスエネルギーを得るための増幅過程においてレーザーのスペクトルに多数のピーク、ディップが生じ、その結果としてフーリエ限界まで圧縮した場合でも、パルスのフリッジ分解自己相関波形の裾部分にうねりを伴うバックグラウンドが不可避免的に生じる、との結論に到った。このため、パルスの出力が高く、スペクトル形状が滑らかである事を基準に光源を再検討し、レーザーシステムとしては大掛かりになってしまうが、チタンサファイア再生増幅器(パルス幅:100 フェムト秒)で励起する光パラメトリック増幅器(OPA)のシグナル光を用いる事とした。

光源に合わせ、ポンプ-プローブ光学遅延の製作、顕微鏡光学系の製作、EM-CCD カメラの導入等を行い、当初目的の時間分解顕微鏡システムを構築した。

(2)上述の顕微鏡システムを用い、ストライプ型 Au 表面プラズモン導波路を伝搬する表面プラズモン波束をフェムト秒の時間分解能で映像化することに成功した。光リソグラフィ法と集束イオンビームを複合的に使用することにより、幅:1 μm ~500 μm 、長さ500 μm のストライプ型 Au 導波路を作製し、表面に極薄の蛍光層を形成することで、波束の伝搬を可視化した。導波路内部におけるプラズモンモードの強度分布は FDTD 計算の結果と定性的に一致した。実験的に得られた映像から決定したプラズモン波束の伝搬速度やプラズモン波長は、試料の多層膜構造に対する固有モード方程式の解(表面プラズモンモードの複素分散曲線)から計算される理論値と一致した。本手法により、確かに表面プラズモン波束の動的な物理特性が計測可能であることが確認された。

(3)(2)で記述した様に、まずストライプ型 Au 表面プラズモン導波路を対象に、1.55 μm 帯表面プラズモン波束の映像化を実施した。次に同ストライプ型導波路をユニットとしたマッハツェンダー干渉計(MZI)や分岐路に表面プラズモンを励起したところ、プラズモン波はこれらの導波構造の分岐部や曲がりにおいて強い散乱損失を示し、構造に沿った導波を示さなかった。微細なプラズモニック素子の構成要素となる導波路構造は、曲げに対する散乱損失が小さく、プラズモンモードを強固に導波路空間内に閉じ込めるものでなければならない。

この様な要求を満足する導波路として、Zayats らの提唱による誘電体堆積型表面プラズモンポラリトン導波路(Dielectric Loaded SPP Waveguide; DLSPPW)を選択し、

導波路や MZI の製作を行った。Au 蒸着を行った基板の上に、ネガ型レジスト SU-8 の塗布、および、電子線リソグラフィ法によるパターン描画により、導波路の幅・高さ 600nm のシングルモードプラズモン導波路、MZI の作製を行った。

並行して、現有の波長 800nm フェムト秒レーザーを光源とする時間分解 2 光子蛍光顕微鏡を用い、プラズモニック結晶導波路における表面プラズモンの導波や、金属-誘電体-金属(MIM)積層型ナノキャビティを励振し通過する表面プラズモン波束の映像化を行った。特に後者に関しては、ナノキャビティの通過に伴う波束の位相変調量の実験的計測に成功し、キャビティの固有振動数の変調に伴い位相変調量が変化することを見出した。

(4)SPASER によるプラズモン波束変調の実施に先立ち、利得媒質の光ポンピングによる SPASER 出現の定量的な評価手法の確立を目的として、可視光域(600nm 帯)に発光を有する Dye-PMMA/Ag/プリズム積層構造を作製し、Kretschmann 型配置による角度分解反射スペクトル計測、および、Dye-PMMA 層をナノ秒パルスレーザーで光ポンピングしての角度分解発光スペクトル計測を行った。

角度分解反射スペクトルには、表面プラズモンモード、および PMMA 層内のフォトリックモード、それぞれの共鳴角において反射率の落ち込みが観測され、各モードの分散曲線が明瞭に観測された。

次にこの状態で Dye-PMMA 層を光ポンプすると、励起された Dye のエキシトンから表面プラズモンモード、フォトリックモードへのエネルギー移行が速やかに生じ、それぞれの共鳴角方向に非常に指向性の高い輻射を生じた。このうち表面プラズモン共鳴角への輻射成分に注目すると、輻射強度のポンプ光強度依存性はポンプ光エネルギー密度 0.6m J/cm² に明瞭な閾値を示し、それ以上の領域でポンプ高強度の増大に対するより鋭敏な輻射強度の増大を示した。また輻射スペクトルの線幅はポンプ強度の増大に伴い狭窄化し、最終的に半値全幅が 7nm (自然放出の蛍光スペクトル幅の 1/5) に到った。これらの特徴は表面プラズモンが誘導放出により増強された増強自然放出(amplified spontaneous emission: ASE) の出現を示しており、すなわち SPASER による表面プラズモン増幅が実現した。

この知見を元に、光通信帯波長に発光を有する硫化鉛(PbS) および硫化セレン(PbSe)量子ドットを PMMA にドーブして作製した利得媒質に対する SPASER 特性の評価を試みた。InGaAs ライン検出器を用いた近赤外域角度分解反射/発光スペクトル計測装置を構築し、上述の可視光域と同様の試料評価を試みたが、量子ドットからの発光強度の微弱さ、および光ポンプに対するブリーチング耐性の弱さのため、SPASER の確認には到らなかった。

試料作製方法に関し検討を要する結果となった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

1. H. Yu, Q. Sun, J. Yang, K. Ueno, T. Oshikiri, A. Kubo, Y. Matsuo, Q. Gong, H. Misawa, "Near-field spectral properties of coupled plasmonic nanoparticle arrays", *Optics Express*, **25**, 6883-6894 (2017)
 2. H. Yu, Q. Sun, J. Yang, K. Ueno, T. Oshikiri, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa, "Exploring Coupled Plasmonic Nanostructures in the Near Field by Photoemission Electron Microscopy", *ACS Nano*, **10**, 10373-10381 (2016)
 3. 久保敦, "表面プラズモンのフェムト秒時間・ナノメートル空間分解イメージング", *光アライアンス*, **27**, 14-18 (2016)
 4. Q. Sun, H. Yu, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa, "Dissecting the Few-Femtosecond Dephasing Time of Dipole and Quadrupole Modes in Gold Nanoparticles Using Polarized Photoemission Electron Microscopy", *ACS NANO*, **10**, 3835-3842 (2016)
- 〔学会発表〕(計32件)
1. 大竹祐香, 伊知地直樹, 久保敦, "金属-絶縁体-金属積層型ナノキャビティを配置した金属表面におけるフェムト秒表面プラズモン波束の伝搬", 第65回応用物理学会春季学術講演会, 2018年3月17-20日, 早稲田大学
 2. 久保敦, "フェムト秒時間領域における表面プラズモン波束の動的振舞い", CPEC seminar, 2018年2月20日, 東京大学生産技術研究所〔招待講演〕
 3. 大竹祐香, 伊知地直樹, 久保敦, "単一ナノキャビティのコヒーレント応答によるフェムト秒表面プラズモン波束の位相変調", 第15回プラズモニクスシンポジウム, 2018年2月2-3日, 大分コンパルホール
 4. 大竹祐香, 久保敦, "MIM型ナノキャビティを有する金属表面におけるフェムト秒表面プラズモン波束の挙動", *Optics & Photonics Japan 2017*, 2017年10月30日-11月2日, 筑波大学東京キャンパス文京校舎
 5. 久保敦, "フェムト秒時間領域における表面電磁波の振る舞い", 第14回原子・分子・光科学(AMO)討論会, 2017年6月30日-7月1日, 電気通信大学〔招待講演〕
 6. 松本実夏, 久保敦, "Ag/Rhodamine系色素積層構造における表面プラズモン・光導波モードの多重波数ASE", 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017年3月14日, パシフィコ横浜
 7. 村上亮輔, 宮崎純, 池沢道男, 久保敦, "Au導波路における1.55 μm 帯フェムト秒表面プラズモンポラリトンの時間分解顕微鏡観察", 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017年3月14日, パシフィコ横浜
 8. 久保敦, "「光のパルス」を金属表面やナノ空間に補足して可視化するレーザーと電子顕微鏡・光学顕微鏡の組み合わせ", 日本顕微鏡学会様々なイメージング技術研究部会第4回研究会, 2016年11月20日, ホテル紫雲閣・日立製作所基礎研究センタ〔招待講演〕
 9. 久保敦, "物質の2次分散と3次分散は波束をどの様に歪ませるか?", 分子キラリティー研究センターシンポジウム「光化学の最先端2016」, 2016年11月24日, 千葉大学西千葉キャンパス
 10. 久保敦, "フェムト秒レーザー励起二光子蛍光顕微鏡法によるフェムト秒プラズモン波束の時間・空間ダイナミクス", 筑波大学プレ戦略イニシアチブキックオフシンポジウム, 2016年11月1日, 筑波大学
 11. A. Kubo, "Dissecting deformation dynamics of femtosecond surface plasmon wave packet", OSJ-OSA Joint Symposia, 2016年10月30日, Univ. of Tsukuba, Tokyo, Japan〔招待講演〕
 12. 久保敦, "フェムト秒時間領域におけるプラズモン波束の変形と崩壊", 日本物理学会2016年秋季大会シンポジウム「表面界面ナノ構造のその場観察」, 2016年9月15日, 金沢大学〔招待講演〕
 13. 松本実夏, 久保敦, "Dye-PMMA/Ag/プリズム積層構造の蛍光発光スペクトルの角度分解測定", 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年9月15日, 金沢大学
 14. 大竹祐香, 久保敦, 笠谷岳士, 宮崎英樹, "フェムト秒表面プラズモン波束によるMIM型ナノキャビティ励振のダイナミクス", 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年9月15日, 金沢大学
 15. 中村圭佑, 久保敦, "フェムト秒表面プラズモン波束の搬送波位相・包絡線形状変化の超高速イメージングによる解析", 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年9月14日, 金沢大学
 16. 大竹祐香, 久保敦, 笠谷岳士, 宮崎英樹, "フェムト秒表面プラズモン波束による平面型ナノキャビティの共鳴励起" 第63回応用物理学会春季学術講演会, 2016年3月21日, 東京工業大学大岡山キャンパス
 17. 中村圭佑, 久保敦, "フェムト秒時間領域における高次分散に起因する表面プラズモン波束の変形の解析", 第63回応用物理学会春季学術講演会, 2016年3月20日, 東京工業大学大岡山キャンパス
 18. 村上亮輔, 池沢道男, 久保敦, "1.55 μm

- 帯フェムト秒表面プラズモンの二光子蛍光顕微鏡観察”，第 63 回応用物理学学会春季学術講演会，2016 年 3 月 20 日，東京工業大学大岡山キャンパス
19. 久保敦，“極小ポンプ-広域プローブ型干渉時間分解顕微鏡法”，「新しい光科学の創成とナノ情報デバイスへの展開」研究会，2015 年 10 月 15 日，東北大学電気通信研究所
 20. 中村圭佑，久保敦，“フェムト秒表面プラズモン波束のチャープ広がり の時間分解観察”，第 76 回応用物理学学会秋季学術講演会，2015 年 9 月 15 日，名古屋国際会議場
 21. A. Kubo，“Evolution of surface plasmon wave packets in femtosecond time-domain”，MANA-DIPC Workshop 'Nanostructures and Complex Functional Materials'，2015 年 8 月 27 日，DIPC, San Sebastian, Spain〔招待講演〕
 22. 久保敦，“プラズモニクスと伝搬型表面プラズモン”，第 5 回光科学異分野横断萌芽研究会，2015 年 8 月 4 日，ホテル竹島〔招待講演〕
 23. A. Kubo，“Femtosecond imaging of surface plasmon wave packet by using time-resolved fluorescence microscopy”，The 9th International Symposium on Ultrafast Surface Dynamics，2015 年 5 月 26 日，Resort Hotel Laforet Biwako, Siga, Japan
 24. 久保敦，“非同径干渉時間分解蛍光顕微鏡法による局所励起表面プラズモン波のフェムト秒映像”，国際光年記念シンポジウム，2015 年 4 月 21 日，東京大学安田講堂
 25. 中村圭佑，久保敦，“フェムト秒表面プラズモン波束の変形・減衰ダイナミクス”，国際光年記念シンポジウム，2015 年 4 月 21 日，東京大学安田講堂
 26. 加藤佳祐，久保敦，“非同径ポンプ-プローブレザー励起顕微鏡法による局所励起表面プラズモン波束のフェムト秒事件分解映像”，第 62 回応用物理学学会春季学術講演会，2015 年 3 月 11 ~ 14 日，東海大学湘南キャンパス
 27. 加藤佳祐，久保敦，“マイクロ領域から伝搬する表面プラズモン波束の時間分解イメージング”，第 12 回プラズモニクスシンポジウム，2015 年 1 月 23 ~ 24 日，早稲田大学西早稲田キャンパス
 28. A. Kubo，“10-fs time-resolved imaging of surface electromagnetic waves”，The 15th RIES-Hokudai International Symposium，2014 年 12 月 16 ~ 17 日，Gateaux Kingdom, Sapporo, Japan〔招待講演〕
 29. 久保敦，“近紫外/近赤外域表面プラズモンの 10 フェムト秒時間分解イメージング”，日本光学会年次学術講演会 Optics Photonics Japan 2014，2014 年 11 月 5-7 日，筑波大学東京キャンパス文京校舎〔招待講演〕
 30. 加藤佳祐，久保敦，“フェムト秒非同径ポンプ-プローブ法による表面プラズモンの可視化”，日本光学会年次学術講演会 Optics Photonics Japan 2014，2014 年 11 月 5 ~ 7 日，筑波大学東京キャンパス文京校舎
 31. 久保敦，“非同径パルス対を用いた局所励起光応答の追跡”，東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究会「新しい光科学の創成とナノ情報デバイスへの展開」，2014 年 10 月 30 日，東北大学ナノスピン実験施設
 32. 加藤佳祐，久保敦，“フェムト秒レーザーにより局所的に励起された表面プラズモンの観察”，第 75 回応用物理学学会秋季学術講演会，2014 年 9 月 17 ~ 20 日，北海道大学札幌キャンパス
- 〔図書〕(計 1 件)
1. A. Kubo，“Time-Resolved Photoemission Electron Microscopy” in “Compendium of Surface and Interface Analysis”，Ed. by The Surface Science Society of Japan, pp. 741-748, Springer (2018)
- 〔その他〕
- ホームページ等
<http://www.trios.tsukuba.ac.jp/researcher/0000000553>
6. 研究組織
- (1) 研究代表者
 久保 敦 (KUBO Atsushi)
 筑波大学・数理物質系・講師
 研究者番号：10500283