

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月20日現在

機関番号： 10101  
 研究種目： 基盤研究（A）  
 研究期間： 2010～2012  
 課題番号： 22246012  
 研究課題名（和文） コヒーレントフォノンによる表面プラズモン - ポラリトン伝播の超高速制御  
 研究課題名（英文） Ultrafast phononic plasmonics

## 研究代表者

O・B WRIGHT (OLIVER B. WRIGHT)  
 北海道大学・大学院工学研究院・教授  
 研究者番号：90281790

研究成果の概要（和文）：超高速光技術を用いて、金属プラズモニック構造と GHz 周波数帯のフォノンの相互作用を観測した。ナノナノボイド周期構造や、異常光透過現象(EOT)を起こす微小開口格子、ナノスケール直線導波路の試料を測定した。ナノボイド周期構造試料では、2次元イメージングにより空洞試料の GHz 振動を明らかにし、その振動が局在 Mie プラズモンとどのように相互作用しているかを示した。EOT 試料では、開口格子の集団振動を明らかにし、その振動が光透過率変調にもたらす効果について示した。導波路試料については、ナノスケール直線導波路試料とそれを用いた進行中の研究について記述する。

研究成果の概要（英文）：By means of an ultrafast optical technique, we investigate the coupling of high frequency phonons at GHz frequencies with metallic plasmonic structures. Various samples are probed, including nanovoid arrays, lattices of tiny holes exhibiting extraordinary optical transmission (EOT) and nanoscale linear waveguides. For the nanovoid arrays, we reveal GHz breathing vibrations of the voids by 2D imaging, showing how the vibrations couple to localized Mie plasmons. For the EOT samples, we reveal collective vibration of the hole arrays, and their effect on the optical transmission modulation. For the waveguides we describe work in progress, and fabrication of nanoscale linear gold waveguides.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	20,500,000	6,150,000	26,650,000
2011年度	7,600,000	2,280,000	9,880,000
2012年度	8,500,000	2,550,000	11,050,000
年度			
年度			
総計	36,600,000	10,980,000	47,580,000

研究分野： 工学

科研費の分科・細目： 応用物理学・工学基礎、応用物理学一般

キーワード： プラズモン、コヒーレントフォノン、イメージング、音響光学変調、異常光透過現象

## 1. 研究開始当初の背景

表面プラズモン（Surface Plasmon Polariton: 以下 SPP と表記）は導体表面で電子とフォトン（光子）が結合して振動・伝播するものであり、将来のナノフォトニック

デバイスとしての応用、つまり SPP を利用して光をナノスケール回路の中に局在・制御して高速な情報処理をする革新的な手段として期待されている。本研究の前までも導波路を伝播している SPP を動的に制御する研

究は、屈折率を熱励起や構造変化、キャリア励起を使って変調させる方法がいくつか発表されていたが、それらは応答速度が  $1\ \mu\text{s}$  ~  $50\ \text{ps}$  と遅いものであり、THz 周波数で SPP を効果的に変調させる方法は発表されていなかった。また本研究で提案する方法と同様にフォノンを利用して SPP や光を変調する方法としては、2008 年に SPP による光の異常透過現象 (Extraordinary optical transmission: 以下 EOT と記述、内容については後述) を弾性表面波で変調するというものがあったが、その周波数は GHz 帯であり効率も  $\sim 0.01\%$  と低いものであった。フォノンの利用でも弾性表面波の代わりに、より周波数を高くしやすいバルク波を利用できる縦波のフォノン (フェムト秒レーザーパルス励起によるコヒーレントフォノン) を利用できるのではないかと期待がある。また、フォノンにより SPP が変調されるメカニズムについてもよくわかっていない部分が多く、SPP がフォノンとうまく相互作用するような試料形状についての研究も課題であった。

## 2. 研究の目的

本研究のフォノンによる SPP の超高速変調を調べることにより、ナノスケールにおける音響光変調の分野を開拓することである。まず、光により SPP が効率的に励起され、かつその励起された SPP がフォノンとも効率的に相互作用する試料構造が必要となる。

そのために、以下の 3 つの種類を試料構造を考案し、試料作製、光学実験、解釈のための数値シミュレーションを行う。

### (1) 金ナノボイド試料

金薄膜の内部に球形の空洞 (ボイド) が周期的に並んだ試料構造である。この周期性により、プラズモニック結晶性とフォノン結晶性を併せ持つ試料構造であると言える。この試料の各所におけるフォノン振動による光反射率変化を時間領域で観測し、その振動分布を空間マッピングする。

### (2) 周期ナノホールによる EOT 試料

EOT とは、金や銀の薄膜に光の波長よりも小さな径の穴を周期的に並べると、その光の透過率が単純に開口の面積から計算した透過率に比べて非常に大きくなる現象である。この現象には SPP が大きな役割を果たしている。この EOT 現象を起こす金薄膜上にナノスケール開口を周期的に開けた試料を作製し、その試料にピコ秒超音波パルスを発生させ光透過率変化を時間領域で測定した。

### (3) プラズモニック導波路試料

ガラス基板上的金薄膜からなる幅  $100\ \text{nm}$  以下の SPP 導波路をもつ試料構造を利用する。光が SPP に変換され、導波路を伝播した後、また SPP が光に再変換される過程

の中で、導波路部分にコヒーレントフォノンを発生させ、出力される光を効率的にフォノンにより変調することを目的とする。

## 3. 研究の方法

試料の準備:

金ナノボイド試料はイギリスのケンブリッジ大学の J. J. Baumberg 教授、S. Mahajan 教授、R. M. Cole 氏から、プラズモニック導波路試料はオランダのアムステルダム FOM 研究所の Kuipers 教授のグループから提供していただいた。

金ナノボイド試料は、金薄膜内に直径  $1.6\ \mu\text{m}$  の空洞が周期的に空いている試料である (図 1 (a)-(c) 参照)。EOT 試料は、北海道大学オープンファシリティの電子線リソグラフィ装置等を用いて作製した。ガラス基板上に厚み  $40\ \text{nm}$  の金薄膜が貼られており、金薄膜には幅  $250\ \text{nm}$  の正方開口が周期  $710\ \text{nm}$  で正方格子状に配置されている。

実験方法:

この研究の実験方法はすべてフェムト秒パルスレーザーを用いたポンプ・プローブ法である。目的で述べた三種類の試料について、それぞれ最適な方法で測定する。

(1) 金ナノボイド試料では、空洞の位置によって SPP の分布や弾性振動の分布が異なっている。そこでポンプ光パルスとプローブ光パルスをできるだけ絞った状態にして、試料内部を空間的に走査し、プローブ光の反射率変化のマッピングを行う。この振動マッピングでは、試料を 3 軸ピエゾステージに乗せ、ポンプ光 (波長  $820\ \text{nm}$ ) とプローブ光 (波長  $410\ \text{nm}$ ) の焦点距離を合わせた状態で、 $0.3\ \mu\text{m}$  ステップで 2 次元走査と、レーザーパルス列の周期  $12\ \text{ns}$  を時間走査する。

(2) EOT 試料の実験では、2 台の超短パルスレーザーを同期して用いた。フェムト秒パルスレーザーからの光をポンプ光として波長  $415\ \text{nm}$  で固定し、同期したピコ秒パルスレーザーからのプローブ光の波長を  $758\ \text{nm}$  ~  $820\ \text{nm}$  の範囲で変えながら時間走査の測定をした。ポンプ光とプローブ光は重ねて試料にスポット径  $5\ \mu\text{m}$  (試料上の微小開口が約 25 個入る大きさ) で照射されており、プローブ光の透過率変化を計測する。また白色光源と分光器を使って試料の透過スペクトルを測定する。

(3) プラズモニック導波路試料ではプローブ光による SPP の励起箇所と、SPP が光に再変換して発光する箇所が異なる。SPP は金薄膜使用上の格子の部分に、光が特定の角度で入射したときに励起できるので、それを効率的に励起する方法や、導波路部分で効果的に SPP に変化を与える方法を考案して実験を行う。

シミュレーション；

本研究では、実験結果の解釈のためにシミュレーションも行った。コヒーレントフォノン（弾性波）の伝播については、市販の有限要素法ソフトウェアの PZFlex を用いた。また、試料上の電場分布については COMSOL Multiphysics を用いた。

#### 4. 研究成果

##### (1) 金ナノボイド試料

図 1 に金ナノボイド試料の構造と、数値シミュレーションで計算したポンプ光やプローブ光に対する Mie プラズモンの空間電場分布を示した。

図 2 (a) に空洞の中心と柱の部分で測定した反射率変化の時間依存性を示す。調和関数でフィッティングすることにより、それぞれの振動モードの周波数・振幅・位相・減衰を求めた。図 2 (b) にそのフーリエ変換をしたもの、(c) に PZFlex での音響シミュレーション結果をフーリエ変換したものを示す。実験では 0.27, 0.75, 1.01 GHz に振動モードが見られたが、シミュレーションで一番顕著に見られるのは 0.89 GHz の振動モードである。シミュレーションでは励起や検出のシステムを考慮していないので、実験のピークとピークの高さが一致することは期待されない。周波数の差異は試料とシミュレーションモデルのサイズや形状、弾性定数のわずかな違い

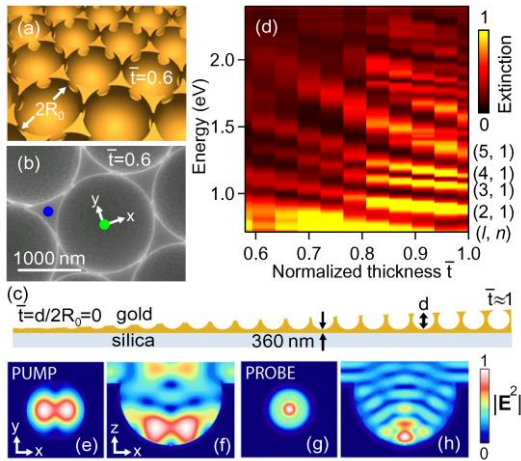


図 1 (a) ナノボイド試料の概念図： $\bar{t}$  は直径に対する金薄膜の厚みを示し、実験では  $\bar{t}=0.6$  の部分を用いた。(b) 電子顕微鏡写真：緑点は穴の底の部分、青点は柱の部分を示す。(c) 試料の断面の概念図。位置によって金薄膜の厚みが連続的に変化している。(d) 試料の厚みと光子エネルギーに対する垂直入射での光吸収率。(e)-(h) シミュレーションによる光の電場強度分布。(e) と (f) はポンプ光、(g) と (h) はプローブ光に対するものである。ポンプ光は直線偏光、プローブ光は円偏光である。

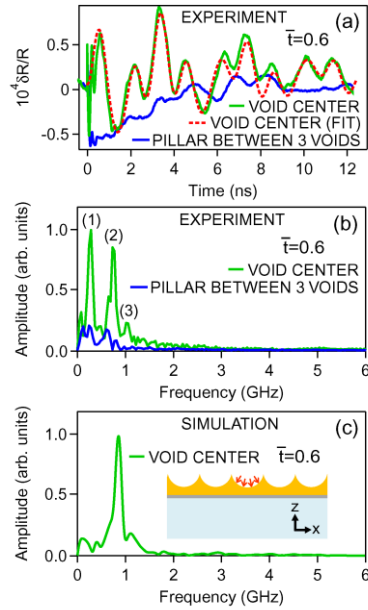


図 2 (a) 反射率変化の時間依存性：緑線は底の中心、赤線はそれに対するフィット線、青色は柱の部分を示す。(b) 反射率変化のフーリエ変換結果：(1)~(3) は底の中心での振動ピークを示す。(c) 底での振動のシミュレーションにおける z 方向の変位をフーリエ変換したもの。挿入図の赤線は初期インパルスの力の方向を示す。

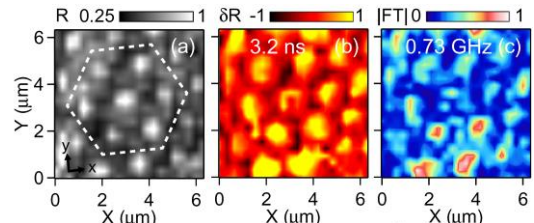


図 3 (a) 試料表面の反射イメージ。白い点線で示された六角形の中に 7 つの空洞の底が含まれている。(b) 遅延時間 3.2 ns における反射率変化の空間分布。(c) 0.73 GHz (図 2 (b) 中の (2) のピーク) での反射率変化の空間分布。

から引き起こされている。

図 3 に試料の反射率変化のマッピング結果を示す。試料の底と柱の部分では振幅や位相が異なることが観測できた。また、空洞の底と柱の部分で減衰から予想できる振幅比と、実際に測定した反射率変化の振動振幅の比からフォノン振動と SPP の相互作用によって相対反射率変化にして約 6 倍の反射率増強効果が得られたことを示した。

以上の研究成果は雑誌論文②や国際学会の招待講演②③等で発表した。

##### (2) EOT 試料

図 4 に電子線リソグラフィで作製した EOT 試料を示す。図 5 はプローブ光の波長を 800 nm にした際の透過率変化の時間依存性と、そのフーリエ変換したものを示す。EOT

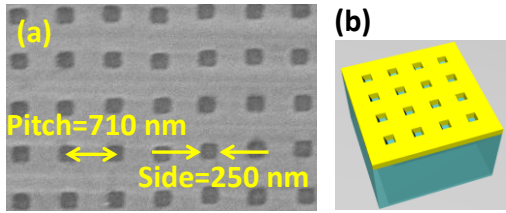


図4 (a)EOT 試料の走査型電子顕微鏡写真：金薄膜に幅 250 nm ピッチ 710 nm の正方形の開口が2次元周期的に配置している。(b)試料の概念図：ガラス基板の上にチタンの接着層を挟み、金薄膜が 40 nm 蒸着されている。

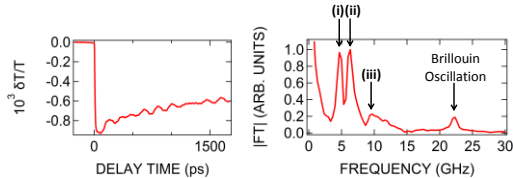


図5 (a)プローブ光波長 770 nm の際の透過率変化の時間依存性。(b)透過率変化をフーリエ変換したもの。5.0, 6.0, 10.9 GHz にピークが見られる。22 GHz のピークはブリルアン振動によるものである。

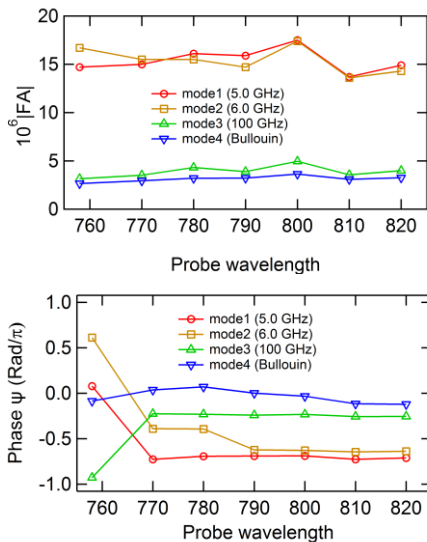


図6 各振動モードにおける振幅 (上) と位相 (下) のプローブ光波長依存性。透過率変化の振動の振幅に関しては大きな波長依存性がないが、位相はプラズモニック共鳴波長 (~760 nm) の付近で大きく変化した。

現象は光波長がプラズモン共鳴周波数に一致した際に発現する。フォノン振動によって試料の誘電率がわずかに変化したり開口形状がわずかに変形することで、その共鳴ピークが変化する。この共鳴を利用してプローブ光の波長をプラズモニック共鳴波長に近づけると、透過率変化量が大きくなることを期待できる。

図5 (b)の 22 GHz に見られるブリルアン振動とは、ガラス中を伝播するフォノンパルス

によってプローブ光の干渉条件が変動することによる振動であり、透明試料の振動をピコ秒時間領域で測定するときによく観測される現象である。

図5 (b)で示したブリルアン振動由来以外の3つのピークは、プローブ光の波長を走査してもその振動数に変化は見られなかった。また、この試料自体のプラズモン共鳴がそれほど鋭くないこともあり、振幅についても波長依存性はそれほど見られていない。しかしプローブ光波長をプラズモン共鳴波長をまたいで変化させた場合に大きな位相変化が見られた。これはコヒーレントフォノンがプラズモンに影響を与えていることを強く示唆している。

この実験に関しては、PZFlex を用いた音響シミュレーションもできているが、その音響場を基にした光透過率のシミュレーションを実施している段階であり、実験結果の解釈ができていないために、現段階では論文発表には至っていない。

### (3) プラズモニック導波路試料

図7にプラズモニック導波路試料の写真を示す。この試料はガラス基板上に厚み 100 nm の金薄膜で作られており、メッシュ状の部分で光が SPP に変換され、中心部の導波路を通った光が反対側のメッシュ部分で光に変換される。効率よく導波路に SPP が伝播されるように幅 100 nm の導波路の両端はテーパ状になっている。波長 800 nm の光を使った場合、入射光強度に対する反対側か

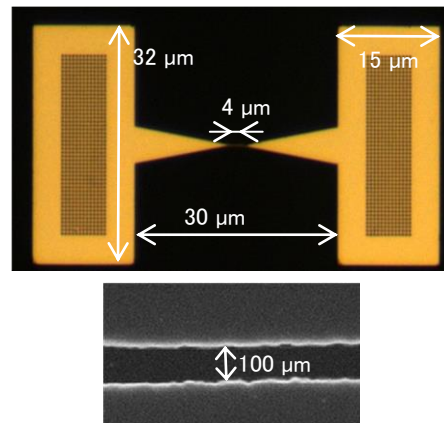


図7 プラズモニック導波路構造の光学顕微鏡写真 (上) と導波路部分の走査型電子顕微鏡写真 (下)：ガラス基板上に厚み 100 nm の金薄膜で構造が作られている。上図の左右のメッシュの部分は周期 525 nm で開口が開けられており、そこで光と SPP が変換される。例えば左側のメッシュ部分で SPP に変換された光が中央の導波路部分を通り、右のメッシュ部分で光に再変換される過程において、導波路部分にポンプ光をあてることで効率良く光変調できることが期待できる。



ら発光した光強度の割合は 0.1%であった。

この導波路の部分にポンプ光によってコヒーレントフォノンを光励起し、SPP 変調されるのが狙いである。変調の速さについても測定するために、フォノンを励起するポンプ光と SPP に変換されるプローブ光の両方を光パルスで実験した。しかし、試料の到着が遅れたために光変調に関する満足いく実験結果はまだ得られていない。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 14 件)

- ① A. A. Maznev, A. G. Every and O. B. Wright, 'Reciprocity in reflection and transmission: what is a phonon diode?', *Wave Motion* 査読有, **50**, pp. 776-784 (2013), DOI:10.1016/j.wavemoti.2013.02.006
- ② T. A. Kelf, W. Hoshii, P. H. Otsuka, H. Sakuma, I. A. Veres, R. M. Cole, S. Mahajan, J. J. Baumberg, M. Tomoda, O. Matsuda and O. B. Wright, 'Mapping gigahertz vibrations in a plasmonic-phononic crystal', *New J. Phys.* 査読有, **15**, 023013 (2013), DOI:10.1088/1367-2630/15/2/023013
- ③ I. A. Veres, D. M. Profunser, A. A. Maznev, A. G. Every, O. Matsuda and O. B. Wright, 'Point source in a phononic grating: stop bands give rise to phonon-focusing caustics', *New J. Phys.* 査読有, **14**, 123015 (2012), DOI:10.1088/1367-2630/14/12/123015
- ④ H. Sakuma, M. Tomoda, P. H. Otsuka, O. Matsuda, O. B. Wright, T. Fukui, K. Tomioka, and I. A. Veres, 'Vibrational modes of GaAs hexagonal nanopillar arrays studied with ultrashort optical pulses' *Appl. Phys. Lett.* 査読有, **100**, 131902-1-3 (2012), DOI:10.1063/1.3696380
- ⑤ Oliver Wright, 'Gallery of whispers', *Phys. World* 査読有, 25, No. 2, pp. 31-36 (Feb. 2012), <http://www.tiptop.iop.org/pdf?site=pwa&bkdir=25/02&pdf=phwv25i02a36&pdfhash=A3EDF9C7A1FC0F5C617B21A71812B22B&doctime=Thu%2C%2002%20May%202013%2005%3A02%3A44%20GMT>
- ⑥ S. Danworaphong, T. A. Kelf, O. Matsuda, M. Tomoda, Y. Tanaka, N. Nishiguchi, O. B. Wright, Y. Nishijima, K. Ueno, S. Juodkazis and H. Misawa 'Real-time imaging of acoustic rectification', *Appl. Phys. Lett.* 査読有, **99**, 201910-1-3 (2011), DOI:10.1063/1.3662930
- ⑦ T. A. Kelf, Y. Tanaka, O. Matsuda, E. M. Larsson, D. S. Sutherland and O. B. Wright, 'Ultrafast vibrations of gold nanorings', *Nano Lett.* 査読有, **11**, pp.3893-3898 (2011), DOI:10.1021/nl202045z
- ⑧ I. A. Veres, D. M. Profunser, O. B. Wright, O. Matsuda and B. Culshaw, 'Real-time simulations and experiments on surface acoustic wave scattering in periodic microstructures', *Chin. J. Phys.* 査読有, **49**, 534-541 (2011), <http://psroc.phys.ntu.edu.tw/cjp/issues.php?vol=49&num=1>
- ⑨ O. B. Wright, I. A. Veres, D. M. Profunser, O. Matsuda, B. Culshaw and U. Lang, 'Dynamic visualization of surface phonons in phononic crystals', *Chin. J. Phys.* 査読有, **49**, 16-22 (2011), <http://psroc.phys.ntu.edu.tw/cjp/issues.php?vol=49&num=1>
- ⑩ A. A. Maznev, O. B. Wright and O. Matsuda, 'Mapping the band structure of a surface phononic crystal', *New J. Phys.* 査読有, **13**, 013037 (2011), DOI:10.1088/1367-2630/13/1/013037
- ⑪ P. H. Otsuka, O. Matsuda, M. Tomoda, and O. B. Wright, 'Interferometric imaging of surface acoustic waves on a glass sphere', *J. Appl. Phys.* 査読有, **108**, 123508-1-5 (2010), DOI:10.1063/1.3517076
- ⑫ T. Saito, O. Matsuda, M. Tomoda and O. B. Wright, 'Imaging gigahertz surface acoustic waves through the photoelastic effect', *J. Opt. Soc. Am. B* 査読有, **27**, pp. 2632-2638 (2010), DOI:10.1364/JOSAB.27.002632
- ⑬ T. Tachizaki, O. Matsuda, A. A. Maznev and O. B. Wright, 'Acoustic whispering-gallery modes generated and dynamically imaged with ultrashort optical pulses', *Phys. Rev. B* 査読有, **81**, 165434-1-5 (2010), DOI:10.1103/PhysRevB.81.165434
- ⑭ A. A. Maznev, T. A. Kelf, M. Tomoda, O. Matsuda and O. B. Wright, 'Optical generation of surface acoustic waves guided at the linear boundary between two thin films', *J. Appl. Phys.* 査読有, **107**, 033521-1-6 (2010), DOI:10.1063/1.3298472

〔学会発表〕（計 13 件）

- ① O. B. Wright, 'Fleeting photons and phonons in tight places' (Plenary), Laser Ultrasonics and Advanced Sensing, 'June 25, 2013, The Red Brick Warehouse Yokohama (Japan)
- ② O. B. Wright, 'Imaging confined phonons in plasmonic and phononic crystals' (invited), Nanometa 2013, January 3, 2013, Olympia Congress Centre, Seefeld (Austria)
- ③ O. B. Wright, 'Imaging gigahertz vibrations trapped in phononic crystal cavities and nanovoid arrays' (invited), International Conference on Advanced Laser Applications in Science and Engineering, November 1, 2012, Nanjing University of Science and Engineering Nanjing (China)
- ④ P. H. Otsuka, 'k-space representation of surface phonon propagation in phononic crystal waveguides,' Phonons 2012, July 9, 2012, University of Michigan Ann Arbor, MI (USA)
- ⑤ O. B. Wright, 'Vibrational response of the optical transmission through a metamaterial made up of an array of square holes,' 2nd Japan Korea Metamaterials Forum, June 28, 2012, Tsukuba International Congress Centre, Tsukuba (Japan)
- ⑥ O. B. Wright, 'Imaging gigahertz vibrations trapped in phononic crystal cavities' (invited), 16th International Conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena, Nov.27,2011, Hyatt Regency Hotel Merida (Mexico)
- ⑦ O. B. Wright, 'Observation and simulation of surface acoustic waves in a phononic crystal' (invited), Phononics 2011: First International Conference on Phononic Crystals, Metamaterials and Optomechanics, May 29, 2011, Hilton Santa Fe Historic Plaza, Santa Fe (USA)
- ⑧ O. B. Wright, 'Phonon imaging in plasmonic structures,' The 1st Korea-Japan Metamaterials Forum 2011, July 7, 2011, LG Convention Center, Seoul (South Korea)
- ⑨ O. B. Wright, 'Ultrafast imaging of phonons in plasmonic structures,' The 5th International Conference on Surface Plasmon Photonics, May 15, 2011, Busan Exhibition and Convention Center, Busan (South Korea)
- ⑩ O. B. Wright, 'Ultrafast imaging of acousto-optic coupling in plasmonic structures,' 11th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling, April 4, 2011, Eugen-Wigner building TU-Berlin, Berlin (Germany)
- ⑪ O. B. Wright, 'Phonon imaging in plasmonic structures,' Proc. Autumn Conference of the Physical Society of Japan, Sept. 23, 2010, Osaka Prefecture University, Osaka (Japan)
- ⑫ O. B. Wright, 'Filming ripples on phononic crystals,' International School of Quantum Electronics (invited), 48th Course, Advances on Nanophotonics III: Plasmonics and Energy Efficiency, July 11, 2010, Erice Center, Sicily (Italy)
- ⑬ O. B. Wright, 'Picosecond laser acoustics from all angles' (invited), International School of Quantum Electronics, 48th Course, First Mediterranean International Workshop on Photoacoustic and Photothermal Phenomena, July 12, 2010, Erice Center, Sicily (Italy)

〔その他〕

ホームページ

<http://kino-ap.eng.hokudai.ac.jp/j-index.html>

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

O・B Wright (OLIVER B. WRIGHT)

北海道大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号：90281790

### (2)研究分担者

松田 理 (MATSUDA OSAMU)

北海道大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号：30239024

友田 基信 (TOMODA MOTONOBU)

北海道大学・大学院工学研究院・助教  
研究者番号：30344485

### (3)研究協力者

Paul Otsuka

北海道大学・大学院工学研究院・研究員

Jeremy Baumberg

Cambridge University (イギリス)・教授

L. Kobus Kuipers

FOM, Amsterdam (オランダ)・教授