

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360036

研究課題名(和文) プラズモン応答関数を用いたフェムト秒レーザー励起プラズモン場の決定論的時空間制御

研究課題名(英文) Deterministic Spatiotemporal Control of Plasmon Excited by Femtosecond Laser Pulses by Plasmon Response Function

研究代表者

神成 文彦 (Kannari, Fumihiko)

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：40204804

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,500,000円、(間接経費) 4,650,000円

研究成果の概要(和文)：金属ナノ構造の近接場増強効果および表面プラズモン・ポラリトン(SPP)伝播をフェムト秒レーザー技術と組み合わせることで、究極的な時間域と空間域の局在化が実現できる。これらの超高速プラズモンパルスは、プラズモン応答関数が得られれば励起フェムト秒レーザーパルス波形整形により決定論的に制御可能である。そこで、周波数干渉走査型近接場顕微計測、相互相関暗視野イメージ計測を開発し、金ナノ構造上の局在プラズモン、プラズモン導波路のSPPパルス伝播、金テーパチップにおけるSPPナノ集光について広帯域応答関数を計測し、その応答関数に基づいたフェムト秒レーザーパルス整形によってプラズモンパルスの時空間制御性を実証した。

研究成果の概要(英文)：When combining metal nanostructures supporting near-field enhancement and surface plasmon polariton (SPP) transport with ultrafast laser technologies, one can demonstrate ultimate spatiotemporal confinement of optical fields. These plasmons can be deterministically controlled by pulse shaping excitation femtosecond laser pulses based on their response functions. In this study, a spectral interferometer with scanning near-field microscopy and a cross-correlation dark-field imaging microscopy were developed to obtain plasmon response functions for local plasmon pulses excited on Au nanostructures, SPP pulse propagation in an Au plasmon waveguide, and SPP pulse nano-focusing on an Au tapered tip. Then, spatiotemporal controllability of ultrashort plasmon pulses excited by pulse shaped femtosecond laser pulses was demonstrated.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用光学・量子光工学

キーワード：超高速光エレクトロニクス 局在プラズモンパルス 表面プラズモン・ポラリトン 時空間プラズモンパルス制御 プラズモンナノ集光制御

1. 研究開発当初の背景

フェムト秒レーザー励起によって金属ナノ構造に局在するプラズモン、および表面プラズモンポーラリトン(SPP)は、ナノ空間における時空間制御された超高速励起を可能にする。正確に設計・製作されたナノ構造であれば、数値計算で得られた応答関数に基づいて励起レーザーパルスを整形することで決定論的なプラズモンパルス制御が可能であるが、実際には製作されたナノ構造の精度を考えると、プラズモン応答関数の測定、さらには制御されたプラズモン場のダイナミクスを計測することは必須となる。このような応答関数を用いた決定論的なプラズモンパルス制御の実験研究は前例がない。一方、フェムト秒レーザー励起プラズモンの複素電界特性計測は、孤立したロッド形状のような単純なものについては2倍波発生と組み合わせた計測が行われているが、非線形光学を用いるためには高いプラズモン場強度が必要であり汎用的ではない。さらに超高速 SPP パルスの伝播ダイナミクスとその制御性に関しては、金テーパチップを用いたナノ集光でチップ先端のプラズモン場を非線形光学手法で計測する実験以外は、一切計測例がない。

2. 研究の目的

本研究では、周波数干渉法(SI)と近接場光学顕微鏡(NSOM)を組み合わせた新たな測定系(SI-NSOM)を確立し、フェムト秒レーザー励起局在プラズモンパルスおよび SPP パルスの複素応答関数計測を実現し、励起フェムト秒レーザーパルスに応答関数に基づいて整形することでプラズモンパルスを時空間制御する手法を確立することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 周波数干渉型走査型近接場顕微計測法(SI-NSOM)

まず、SI-NSOMの実験セットアップを図1

に示す。光源はTi:Sapphireレーザー(パルス幅~8 fs、繰返し周波数 150 MHz、スペクトル帯域 600~1000 nm)である。計測用プローブは開口径 50 nm、遮光コート金のファイバプローブを用いており、コレクションモードにより近接場光を取得した。レーザー光をビームスプリッター(BS)で信号光と参照光に分け、励起光は波形整形した後、 $\lambda/2$ 板で偏光方向を調整して s 偏光で金ナノ構造をガラス基板の裏から全反射によるエバネッセント波で励起し、ファイバプローブでナノ構造の近接場を検出している。一方、参照光は遅延時間をつけて、分散補償用にファイバプローブと同質のファイバに伝搬させた後に、BSで信号光と同一直線状にし、グレーティング・レンズ対、冷却 CCD カメラによって、周波数干渉縞を測定する。

計測対象に用いた金十字型ナノ構造は、厚さ 0.65 mm のガラス基板上に、厚さ 30 nm の金ナノ構造を短辺の幅 40 nm でアスペクト比(長辺との比) $R=2.5$ と $R=2.5\sim 4$ のナノ構造を組み合わせて十字になるように電子ビームリソグラフィで作製した。

同様に SPP においても応答関数計測および時空間制御を行った。図 2 に実験に用いた MIM 導波路ナノ構造を示す。フェムト秒レーザーは散乱光による背景光を抑制するために 50 μm 離れた直線導波路端を全反射照射し SPP を励起した。

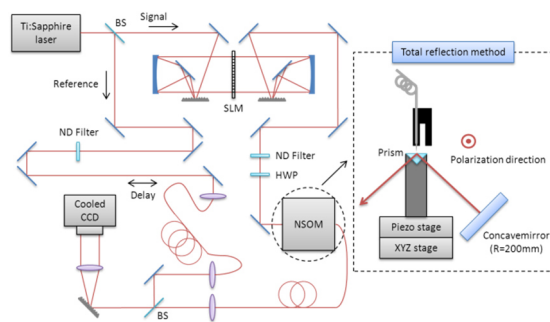


図 1 SI-NSOM 実験セットアップ

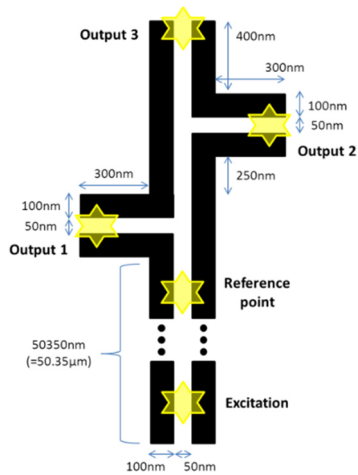


図 2 金プラズモン導波路形状と励起および計測位置

(2) 相互相関イメージング法を用いた局在プラズモンパルス計測法

光学顕微鏡の分解能以上に離れたナノ構造は、プラズモン散乱場を相互相関イメージ計測することで、複素応答関数は計測可能である。実験セットアップを図 3 に示す。励起光は試料に直径 $150\mu\text{m}$ のスポットサイズで集光し、試料によって発生する散乱光を対物レンズ($\times 10$, $\text{NA}=0.25$)で集め CCD 面に入射させた。一方、参照光は、遅延差をつけて直接 CCD 面に入射しフリンジ分解相互相関波形を得た。このとき、特定の偏光を持つ光のみを検光子で選択して計測した。

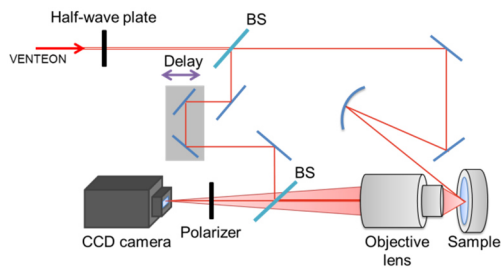


図 3 相互相関暗視野イメージング法の実験セットアップ

(3) 金ナノテーパーによる SPP パルスのナノ集光と非線形放射の制御

SPP パルスのナノ集光用に設計作製した金テーパーチップは、先端の角度が 15° 、曲率半径が $\sim 20\text{ nm}$ であり、周期 1730 nm 、幅 860 nm 、

深さ 200 nm の溝が 8 本刻まれている。フェムト秒レーザー光を Bragg 回折条件を満たす角度で回折格子に照射すると SPP が励起できる。入射角度を変えることで SPP 結合波長を変化できる。計測には、相互相関型暗視野イメージング法を用いた。

4. 研究成果

(1) 周波数干渉型走査型近接場顕微計測法 (SI-NSOM)

アスペクト比 2.5 と 3 のナノ構造においてそれぞれ計測された応答関数と FTL パルス励起時のプラズモン波形を図 4 に示す。実験結果より共鳴波長でプラズモン増強が確認される。また、アスペクト比の違いによって共鳴波長のシフトも確認できる。次にこの得られた応答関数の逆位相をそれぞれに加えることでフーリエ限界 (FTL) プラズモンパルスを発生できることを確かめた。その結果を図 5 に示す。

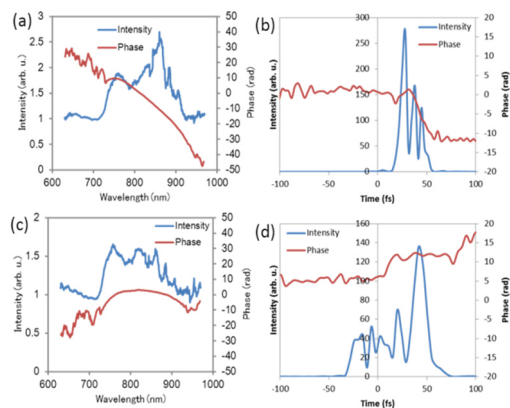


図 4 計測されたナノ十字構造のプラズモン応答関数： (a) $R=3$, (c) $R=2.5$. FTL 励起パルスで励起した際のプラズモンパルス： (b) $R=3$. (d) $R=2.5$

いずれの各ナノ構造においても FTL プラズモンが励起されていることが分かる。また、その時のもう一方のナノ構造では応答関数の位相が異なるので FTL プラズモンにはなっ

ておらず、ピーク強度も小さくなっている

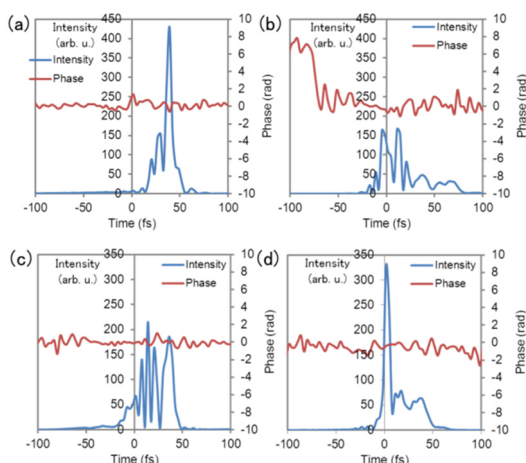


図 5 応答関数に基づき FTL プラズモンパルスを発生するように励起レーザーパルスを波形整形した際のプラズモンパルス波形：(a) $R=3$, (d) $R=2.5$. (c), (d)は(a), (d)の励起パルスでのそれぞれ $R=2.5$, 3 におけるプラズモン波形.

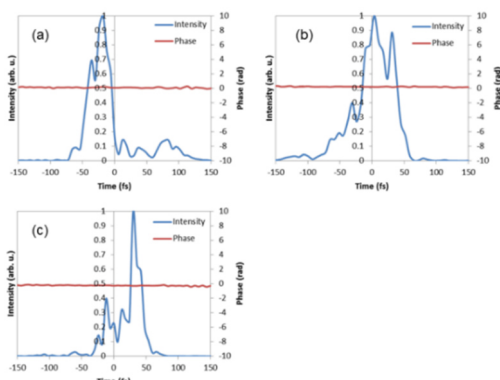


図 6 プラズモン導波路の出力端 1,2,3 においてそれぞれ FTL プラズモンパルスを出力するように励起レーザーパルスを波形整形した際の各出口でのプラズモンパルス波形

同様にプラズモン導波路の SPP パルスにおいても応答関数計測および時空間制御を行った結果を図 6 に示す。応答関数の分散を補償するように励起レーザーパルスを整形することで、図 2 の 3 つの出力点において応答関数の分散補償をした励起パルスにより FTL プラズモンが励起されていることが分かる。したがって、SPP においても本手法によって応

答関数計測および時空間制御が実証された。

(2) 相互相関イメージング法を用いた局在プラズモンパルス計測法

十字構造の軸に励起光の偏光を合わせて応答関数の計測を行なった。このとき、測定したプラズモン場の偏光は励起光の偏光と平行な偏光を測定している。

$A1(R=2.5, 2.5)$ の十字構造)、 $A2(R=2.5, 3.0)$ 、 $A3(R=2.5, 3.5)$ の応答関数を図 7 に示す。

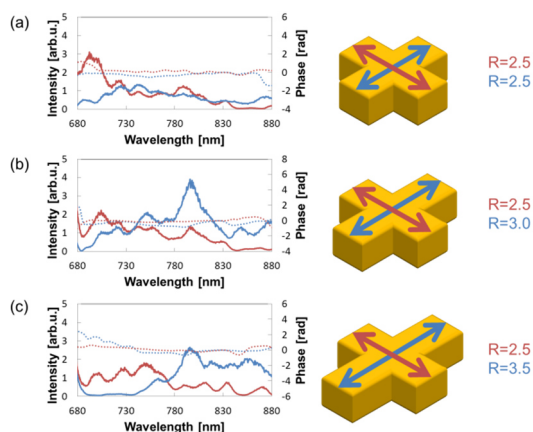


図 7 (a) $A1$, (b) $A2$, (c) $A3$ における相互相関暗視野顕微イメージング法で計測した応答関数。曲線の色はそれぞれ軸の方向に励起および計測の偏光を揃えた計測に対応する

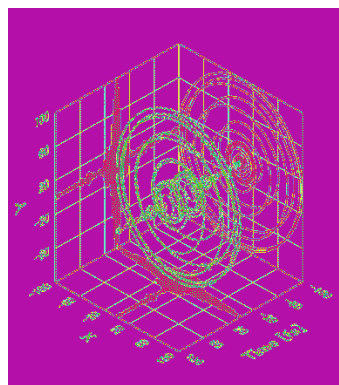


図 8 直交偏光励起における応答関数を用いて励起パルスの偏光整形を行い、円偏光プラズモンを発生させた例

直交した偏光励起によって得られた応答関数によって局在プラズモン場をほぼ再構築できることが示された。励起レーザーパルスのベクトルパルス整形を行うことにより、任意のプラズモン偏光パルスの発生が可能になる。

例として、A1 から発生するプラズモン場を円偏光にするためには、全体のプラズモン場を45度偏光のFTLとし、さらに直交する偏光の位相を $\pi/4$ だけずらせばよい(図8)。

(3) 金ナノテーパーによるSPPパルスのナノ集光と非線形放射の制御

図9, 10(a)にそれぞれ測定したSPPナノ集光の結合・伝播の応答関数とFTLパルス励起時のSPPパルスを示す。

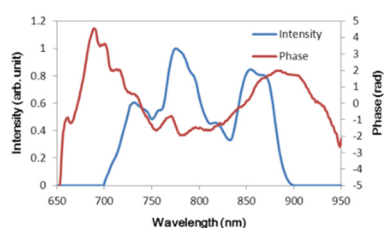


図9 計測したナノ集光プラズモンの応答関数

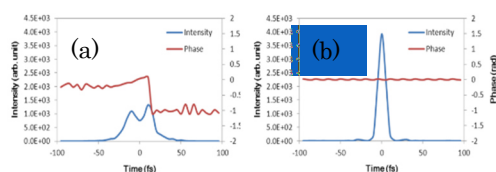


図10 (a)FTL レーザパルスで励起した際のチップ先端におけるプラズモン波形、(b) 応答関数をもとにチップ先端でFTLが発生するように励起した際のプラズモン波形

さらに、測定したプラズモン応答関数に基づいてSPPパルスの制御を行った。プラズモン応答関数の逆位相を加えることによってSPPパルスのFTL化を行った結果をFig. 10(b)に示す。FTL励起時のSPPパルスに比べて、パルス幅が36.0 fsから12.3 fsに短くなり、ピーク強度は約4倍に大きくなったことがわかる。

テーパーチップでは先端の軸対称性の崩壊により、SPPナノ集光に伴って2倍波(SH)が発生する。先端に発生するSHスペクトルは、次式に示されるようにSPPの振幅・位相を変化させることによって変化する。図11に励起レーザパルスに与える3次分散関数を変えてSHスペクトルピークをシフトした結果を示

す。ナノ集光されたSPPパルスの2倍波発生が制御できたことが確認された。

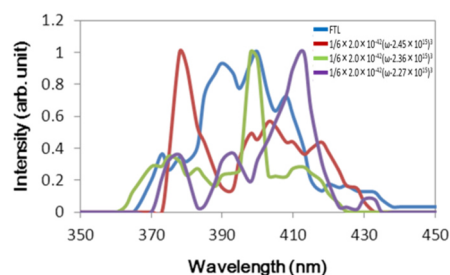


図11 励起レーザパルスに3次分散関数を与えることで整形したチップ先端の2倍波スペクトル制御結果。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 4 件)

- (1) 大井潤、草場美幸、松石圭一郎、大西秀太郎、原田卓弥、大石裕、神成文彦、”暗視野相関顕微鏡イメージング法を用いたフェムト秒レーザーパルス励起局在プラズモン特性計測。”レーザー研究, 査読有, Vol.14, pp.952-956 (2013).
- (2) S. Onishi, K. Matsuishi, S. Harada, M. Kusaba, and F. Kannari, “Spatiotemporal control of femtosecond plasmon using plasmon response functions measured by near-field scanning optical microscopy (NSOM)”, Opt. Express, 査読有, Vol. 21, pp.6631-26641 (2013). DOI:10.1364/OE.21.026631
- (3) T. Harada, K. Matsuishi, Y. Oishi, K. Isobe, A. Suda, H. Kawano, H. Mizuno, A. Miyawaki, K. Midorikawa, and F. Kannari, “Temporal control of local plasmon distribution on Au nanocrosses by ultra-broadband femtosecond laser pulses and its application for selective two-photon excitation of multiple fluorophones,” Opt. Express, 査読有, Vol.19, pp.13618-13627 (2011). <http://dx.doi.org/10.1364/OE.19.013618>
- (4) 神成文彦、礒部圭祐、須田亮、橋本博、河野弘幸、水野秀昭、宮脇敦史、緑川克美、”超広帯域フェムト秒レーザーを用いた非線形光学顕微鏡,”レーザー研究, 査読有, Vol. 39, pp.893-903 (2011).

[学会発表] (計 20 件)

- (1) Yuta Masaki, Miyuki Kusaba, Kazunori Toma, and Fumihiko Kannari, “Vector Pulse Shaped Ultrafast Plasmon Based on Response Functions Measured for Orthogonally Polarized

- Excitation,” 19th International Conference on Ultrafast Phenomena, Naha, July 7-11 (2014)
- (2) Kazuhiro Toma, Yuta Masaki, Kenichi Hirose, and Fumihiko Kannari, “Control of Femtosecond Surface Plasmon Coupled onto a Gold Tapered Tip and its Nonlinear Emission,” 19th International Conference on Ultrafast Phenomena, Naha, July 7-11 (2014).
- (3) Fumihiko Kannari, Shutaro Onishi, Kazunori Toma and Miyuki Kusaba, “Spatiotemporal Control of Ultrafast Plasmon Based on Response Functions Measured by Cross-Correlation NSOM,” SPP 6 International Conference on Surface Plasmon Photonics, Ottawa, May 26-31 (2013).
- (4) Miyuki Kusaba and Fumihiko Kannari, “Switching of Plasmon Response Function of Au Nanorods on GeSbTe Phase Changing Material,” International Conference on Nanoscience + Technology (ICN+T) 2013, Paris, July 23-27 (2013).
- (5) Fumihiko Kannari, Shutaro Onishi, Miyuki Kusaba, and Jun Oi, “Spatiotemporal Ultrafast Plasmon Control Based on Response Functions of Nanostructures Measured by Interferometric Cross-Correlation Microscopy,” XVIIIth International Conference on Ultrafast Phenomena, Lausanne, July 8-13 (2012).
- (6) Shutaro Onishi, Jun Oi, Miyuki Kusaba, and Fumihiko Kannari, “Measurement of Plasmon response Function by Spectral Interferometry with NSOM for Spatiotemporal Plasmon Control,” International Conference on Nanoscience + Technology (ICN+T) 2012, Paris, Sep. 23-29 (2012).
- (7) Miyuki Kusaba, Jun Oi, Shutaro Onishi, and Fumihiko Kannari, “Measurement of Femtosecond Plasmon Response Function with Cross-correlation Dark-field Microscopy,” International Conference on Nanoscience + Technology (ICN+T) 2012, Paris, Sep. 23-29 (2012).
- (8) J. Oi, S. Onishi, K. Matsuishi, T. Harada, and F. Kannari, “Measurement of Plasmon Response Functions of Nanostructures with Femtosecond laser Cross-correlation Microscopy Toward Spatiotemporal Plasmon Control,” CLEO Europe 2011, Munich, May 25 (2011).
- (9) J. Oi, S. Onishi, K. Matsuishi, T. Harada, and F. Kannari, “Measurement of

- Plasmon response Functions with Cross-correlation Microscopy using Femtosecond Laser Pulses Toward Spatiotemporal Control,” IQEC/CLEO Pacific Rim Conference, Sydney, Aug. 25 (2011).
- (10) J. Oi, K. Matsuishi, S. Onishi, T. Harada, and F. Kannari, “Measurement of Plasmon Response Functions with Cross-correlation Microscopy using Femtosecond Laser Pulses Toward Spatiotemporal Control,” The International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP5), Busan, May 20 (2011).
- (11) S. Onishi, J. Oi, K. Matsuishi, T. Harada, and F. Kannari, “Measurement of Plasmon Response Function by Spectral Interferometry with NSOM for Spatiotemporal Plasmon Control,” IQEC/CLEO Pacific Rim Conference, Sydney, Aug. 25 (2011).

[その他]

ホームページ等

<http://www.kami.elec.keio.ac.jp/about/report2012.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

神成文彦 (KANNARI, Fumihiko)

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：40204804

(2) 研究分担者

田邊孝純 (TANABE, Takasumi)

慶應義塾大学・理工学部・准教授

研究者番号：40393805