Title	プラズモン応答関数を用いたフェムト秒レーザ励起プラズモン場の決定論的時空間制御
Sub Title	Deterministic spatiotemporal control of plasmon excited by femtosecond laser pulses by plasmon response function
Author	神成, 文彦(Kannari, Fumihiko) 田邊, 孝純(Tanabe, Takasumi)
Publisher	
Publication year	2014
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2013.)
JaLC DOI	
Abstract	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 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。 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.
Notes	研究種目 : 基盤研究(B) 研究期間 : 2011~2013 課題番号 : 23360036 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
Genre	Research Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_23360036seika

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって 保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the KeiO Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

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: 3 2 6 1 2
研究種目: 基盤研究(B)
研究期間: 2011~2013
課題番号: 2 3 3 6 0 0 3 6
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:4 0 2 0 4 8 0 4
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 spatiote mooral 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 interfero meter with scanning near-field microscopy and a cross-correlation dark-field imaging microscopy were devel oped 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, spatiotem poral controllability of ultrashort plasmon pulses excited by pulse shaped femtosecond laser pulses was de monstrated.

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 モンーポラリトン(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 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 秒レーザパルスを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) 周波数干涉型走查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 (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。レーザ光をビーム スプリッタ(BS)で信号光と参照光に分け、励 起光は波形整形した後、λ/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=2.5~4 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150µm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(×10,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 テーパチップは、先端の角度が 15°, 曲率半径 が~20 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 メージ法を用いた。

4. 研究成果

(1) 周波数干涉型走查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π/4だけずらせばよい(図 8)。

(3) 金ナノテーパによる 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、<u>神成文彦</u>、"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 <u>F. Kannari</u>, "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 <u>F. Kannari</u>, "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, 查読有, Vol.19, pp.13618-13627 (2011). http://dx.doi.org/10.1364/OE.19.013618
- (4) <u>神成文彦</u>、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)

 Yuta Masaki, Miyuki Kusaba, Kazunori Toma, and <u>Fumihiko Kannari</u>, "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 Hirosawa, and Fumihiko Kannari, "Control of Femtosecond Surface Plasmon Gold Coupled onto а Tapered Tip and Nonlinear Emission," $19^{\rm th}$ its International Conference on Ultrafast Phenomena, Naha, July 7-11 (2014).
- (3) <u>Fumihiko Kannari</u>, 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 <u>Fumihiko Kannari</u>,
 "Switching of Plasmon Response Function of Au Nanorods on GeSbTe Phase Changing Material," International Conference on Nnaoscience + 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 <u>Fumihiko Kannari</u>, "Measurement of Plasmon response Function by Spectral Interferometry with NSOM for Spatiotemporal Plasmon Control," International Conference on Nnaoscience + Technology (ICN+T) 2012, Paris, Sep. 23-29 (2012).
- (7) Miyuki Kusaba, Jun Oi, Shutaro Onishi, and <u>Fumihiko Kannari</u>, "Measurement of Femtosecond Plasmon Response Function with Cross-correlation Dark-field Microscopy," International Conference on Nnaoscience + Technology (ICN+T) 2012, Paris, Sep. 23-29 (2012).
- (8) J. Oi, S. Onishi, K. Matsuishi, T. Harada, and <u>F. Kannari</u>, "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 <u>F. Kannari</u>, "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 <u>F. Kannari</u>, "Measurement of Plasmon Response Functions with Cross-correlation Microscopy using Toward Femtosecond Laser Pulses Spatiotemporal Control," The International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP5), Busan, May 20 (2011).
- (11)S. Onishi, J. Oi, K. Matsuishi, T. Harada, and <u>F. Kannari</u>, "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/repor t2012.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