

フェムト秒レーザー波形整形による

回折格子結合超高速表面プラズモンパルスおよび非線形放射制御

Control of grating-coupled ultrafast surface plasmon pulse

and its nonlinear emission by shaping femtosecond laser pulse

藤間 一憲 (M1), 正木 雄太(B4)

Kazunori Toma, Yuta Masaki

Abstract

We demonstrate a new nanometer-scale light source. It is based on the grating-coupled excitation of surface plasmon polariton (SPP) on the shaft of a sharp conical gold taper with a tip radius of few tens of nanometers. Spatiotemporal nanofocusing of SPP excited by femtosecond laser pulses on a gold tapered tip is deterministically controlled.

1. はじめに

近年の微細加工技術の発展により、フォトニック集積回路や高分解能アプリケーションなどの実現が可能となり、光の回折限界よりも小さい空間での光の取り扱いが必要とされている。そういった要求に応えるため、従来の光の回折限界を超えた光の閉じ込めが重要であるとみなされ、ナノ空間における光学が活発に研究されている。この微細領域への光の閉じ込めを実現する手法として注目されているのが、表面プラズモン-ポラリトン(SPP)である。SPPとは、金属表面における電磁波と自由電子の集団的な振動が結合したモードである[1]。SPPのような近接場光を測定するには、回折限界を超えた空間分解能をもつ近接場走査型顕微鏡(NSOM)が用いられる。NSOMのイルミネーション・コレクションモードでは、近接場での励起と検出の両方が

できるが、欠点として励起点と検出点が同一点で行えないという制限がある。この課題を改善するために、ナノオーダーで励起と検出を別々の点で行えるNSOMのダブルファイバースプローブ法が考案されている。この方法を用いてSPPの干渉縞の計測が実証されている[2]。しかし、NSOMのイルミネーションモードによる励起では、空間分解能は高いが、励起が微弱であり、ファイバ内の分散効果で超高速性が失われるという問題が生じる。そのため、SPPをナノ集光させることによる超高速、高分解能、高強度な微細領域での励起源が考案されている[3]。この実現は、ナノ領域での時空間的な光励起プロセスを明らかにすることにもつながる。さらに、先端では伝搬したSPPパルスによる2次高調波発生が可能となり、IFROG法によるSPPパルスの時間特性測定が報告されている[4]。我々は、フェムト秒レーザーパルス励起によって金テーパチップに結合したSPPパルスのナノ集光時間特性を測定し、励起伝播を1つの応答関数で表現できると仮定し、励起レーザーパルスの波形整形によるナノ集光パルスの決定論的・時間的制御を行った。また、先端で発生する第二次高調波(SH)、四光波混合(FWM)の非線形放射の制御も同様に行った。

2. 実験セットアップ

Fig. 1 に暗視野顕微鏡計測法を用いた相互相関計

測の実験セットアップを示す。励起光が直接、検出側の対物レンズに入射しないように励起側(×20, NA=0.35, 作動距離=20.5 mm)と検出側の対物レンズ(×40, NA=0.55, 作動距離=7.5 mm)を 90° の位置関係にして暗視野計測を行っている。光源は、カーレンズモード同期 Ti:Sapphire フェムト秒レーザー “VENTEON” を使用した。スペクトル帯域 600-1000 nm, パルス幅<8 fs, 繰り返し周波数 150 MHz で, 平均パワーは 150~180 mW である。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。励起光は, Bragg 回折条件を満たす角度で回折格子に照射した。入射角度を変えることで SPP 結合波長を変化できる。Fig. 1 の相互相関計測のセットアップに示されるように, フェムト秒レーザーパルスをビームスプリッター(BS)で 2 つのパルスに分けて, 一方のパルスは励起光として用い, 4f 光学系を通してから金プローブに 30° の入射角で照射して先端からの散乱光を対物レンズを用いて CCD に入射させた。励起光のスポットサイズは約 10 μm である。もう一方のパルスは, 参照光として遅延時間をつけて CCD に直接入射することで信号光と干渉させた。信号光と参照光の重ね合わせは, CCD カメラを見ながらアライメントを行った。遅延時間を走査させることでフリンジ分解電界相互相関関数を求めた。遅延時間はピコモータを用いて分解能が約 0.125 fs の遅延時間差をつけている。CCD は露光面が 5.7 mm×4.3 mm で 650×480pixel であり, イメージ分解能は 1pixel で約 1 μm の分解能をもつ。

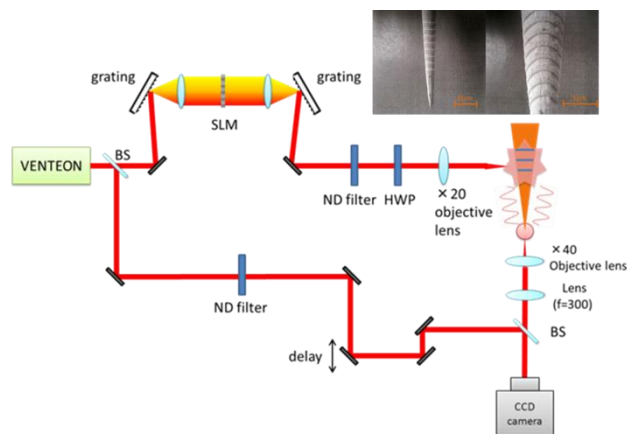


Fig. 1 Experimental setup of cross-correlation dark-field image measurement.

また, 高強度なフェムト秒レーザーを用いても, 先端で発生する SH や FWM は光強度が微弱であるため, 我々はアバランシェフォトダイオード(APD)を用いたシングルフォトンカウンティング法による計測を行った。フォトンカウンティングの実験セットアップを Fig. 2 に示す。APD の受光面は, 20 μm 四方であるため, 反射型対物レンズ(NA=0.2, 作動距離 19.9 mm)をモノクロメータの出射スリット直後に配置し, 集光して APD に照射した。

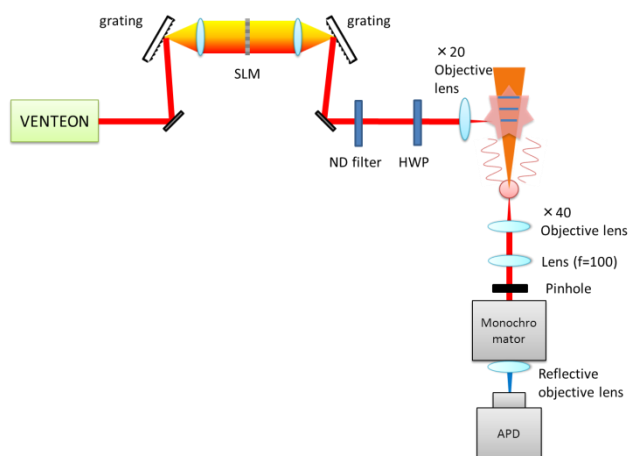


Fig. 2 Experimental setup of single photon counting measurement.

3. 実験結果

(1) SPP スペクトルの入射角依存性

SPP 結合波長は式(1)に示す運動量保存則に従って、励起光の入射角を変えることで変化させることができる。

$$\frac{2\pi}{\lambda_{SPP}} = \frac{2\pi}{\lambda_{in}} \sin \theta + n \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (1)$$

ここで、 λ_{in} , λ_{in} , Λ , n , θ は、それぞれ伝播する SPP の波長、励起光の波長、回折格子の周期、整数、入射角である。我々は、チップを励起する最適な角度を求めるため、入射角度を変化させて SPP スペクトルが最も広帯域になる入射角度を実験的に求めた。Fig. 3 に SPP スペクトルの入射角依存性を示す。

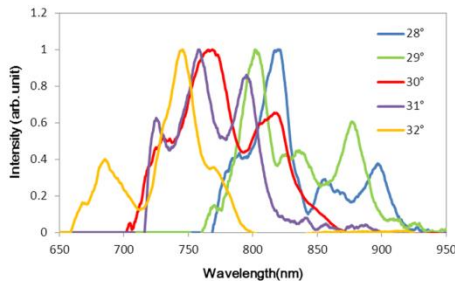


Fig. 3 Spectral shift and broadening of the SPP spectrum at various incident angles.

この結果より、入射角度が 30° のとき SPP スペクトルが最も広帯域になるので、我々は入射角として 30° を採用した。

(2) プラズモン応答関数計測および SPP パルス整形

Fig. 4, 5 にそれぞれ測定した SPP ナノ集光の結合・伝播の応答関数とフーリエ限界(FTL)パルス励起時の SPP パルスを示す。

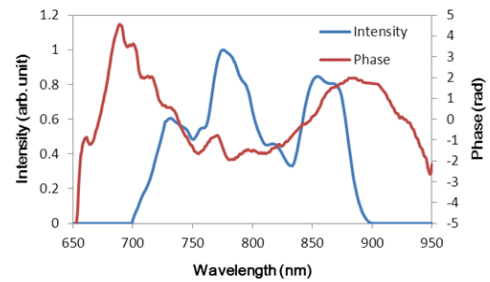


Fig. 4 Measured Plasmon response function.

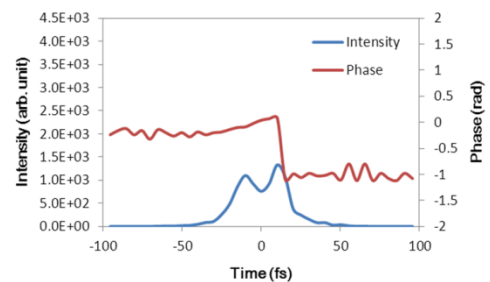


Fig. 5 Measured SPP pulse excited by FTL laser pulse.

Fig. 4 より共鳴波長で SPP が最も効率よく伝播していることがわかる。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. 6 に示す。

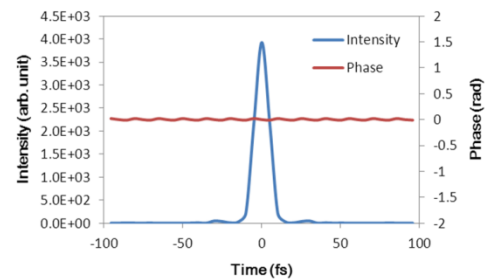


Fig. 6 Measured SPP pulse excited by the femtosecond laser pulse to generate a FTL SPP pulse at the tip end.

Fig. 6 より、Fig. 5 の 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。実験的に測定したプラズモン応答関数に基づき励起レーザパルスを制御することで、SPP パルス を制御し、FTL SPP パルスの発生に成功した。

(3)SH スペクトル制御

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 SH が発生する。先端に発生する SH スペクトルは、式(2)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。

$$|E^{(2)}(\omega_0)|^2 = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \sqrt{I_{plas}\left(\frac{\omega_0}{2} + \Omega\right)} \sqrt{I_{plas}\left(\frac{\omega_0}{2} - \Omega\right)} \exp \left[i \left\{ \phi_{plas}\left(\frac{\omega_0}{2} + \Omega\right) + \phi_{plas}\left(\frac{\omega_0}{2} - \Omega\right) \right\} \right] d\Omega \right|^2 \quad (2)$$

ここで、 $I_{plas}(\omega)$ 、 $\phi_{plas}(\omega)$ はそれぞれ SPP スペクトル、SPP 位相を示す。我々は、プラズモン応答関数および応答関数に基づくパルス制御の検証を行うため、応答関数を測定した実験系とは別の方法で SH スペクトルを測定し、制御を行った。Fig. 7, 8 にそれぞれ SH スペクトル整形の結果、励起光強度に対する先端散乱光強度の依存性を示す。

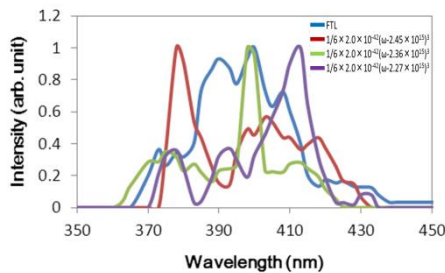


Fig. 7 Control of SH spectrum at the apex by 3rd-order dispersion.

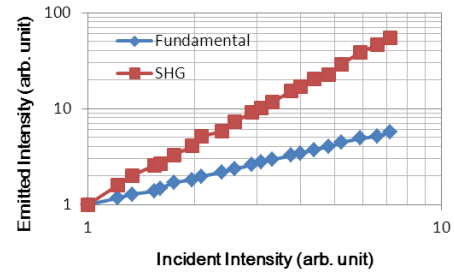


Fig. 8 Intensity dependence of the apex emitted light on incident light.

Fig. 7 より、FTL SPP パルスに加える 3 次分散の変曲点を変えることにより SH スペクトルのピークを 370-420 nm の範囲で制御できていることがわかる。加える 3 次分散は、変曲点を 770 nm, 800nm, 830 nm の異なる波長にもつ 3 つのタイプを試みた。また、FTL 時に比べて、SH スペクトルが狭帯域化できていることも確認できる。群速度の同じ周波数が和周波を発生することを利用して、3 次分散の変曲点に SH を集中させることに成功した。さらに、Fig. 8 より、先端における基本波強度は励起光に比例して大きくなり、SH 強度は励起光の 2 乗に比例して大きくなることがわかる。この先端への SPP 伝播に伴う SH 強度は、先端を直接励起した場合に生じる SH 強度の約 1/5 に相当する。SH スペクトルが適切に制御できているので、応答関数および応答関数に基づく SPP パルス制御の精度の高さを検証できたと考えられる。

(4)FWM 発生

FWM でも SHG と同様に、位相変調によって特定の周波数同士を時間的に重ね合わせることで、FWM の発生を制御することを試みた。その概念図を Fig. 9 に示す。励起光のスペクトルを長波長側(シグナル光)と短波長側(ポンプ光)に分け、同じ 2 次分散量を掛けた後に長波長側に 1 次分散を掛けることでシグナル光とポンプ光を時間的にオーバーラ

ップさせる。その結果、特定の周波数にシフトした FWM 光を得ることができる。また、長波長側の 2 次分散量を変化することによって狭帯域化した FWM を得ることができると考えられる。

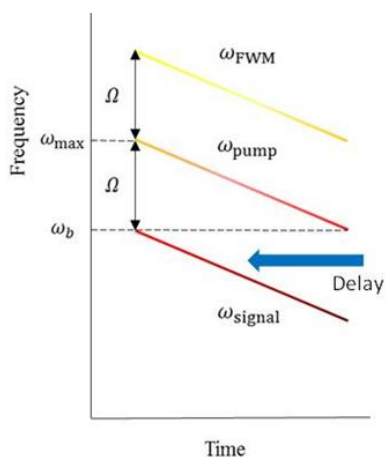


Fig. 9 Time-spectral distribution of excitation pulse for FWM.

まず、金テーパチップ先端を直接励起することで先端において共鳴プラズモンを誘発し、FWM 発生を試みた。励起光スペクトルの位相変調をしたときのスペクトル変化を Fig. 10 に示す。Case1~4 は、2 次分散量は一定で、長波長側に加える 1 次分散量を、それぞれ 141.5, 127.5, 120, 0 fs と変化させた結果である。

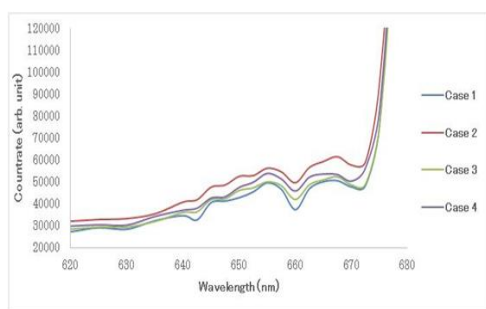


Fig. 10 Experimental result of FWM.

しかし、Fig. 10 のように、励起光スペクトルの位相変調によるスペクトル形状の変化は確認できな

かった。しかし、665 nm と 655 nm において 2 つのピークが見られたので、この 2 つの波長において入出力測定を行った結果を Fig. 11 に示す。

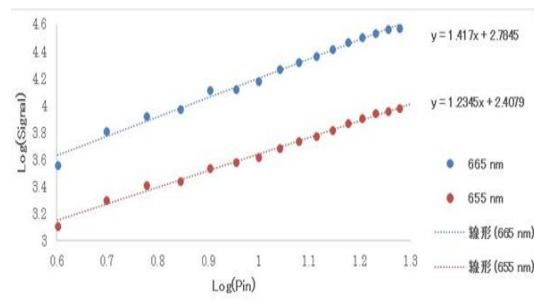


Fig. 11 Intensity dependence of signal light on incident light.

Fig. 11 のように、近似曲線の 1 次係数が 1 を超え、若干の非線形成分が混じっていることが確認されたが、FWM 光であることは確認できなかった。FWM 光が微弱であるのは、金テーパチップ先端における増強効果が小さく、FWM 光発生のにきい値を超えなかったためだと考えられる。そこで、より広帯域で大きな増強効果が期待できる回折格子結合による金テーパチップ先端での SPP 励起による FWM 発生を試みた。回折格子結合された SPP は先端に近づくにつれて増強するので、先端においては非常に高強度なプラズモン場が生じ、FWM 発生のにきい値を超えると考えた。応答関数のスペクトル位相をキャンセルすることによって分散補償し任意の位相を乗せた。しかしながら、どの位相変調においても先端からの散乱スペクトルに変化は確認できなかった。FWM 光が発生しなかったのは、回折格子結合によって励起され先端に到達している SPP の伝播モードがナノ集光モードではなく、予期していたほどの増強効果が得られていないためだとも考えられる。

4. まとめ

相互相関暗視野顕微計測により、フェムト秒レーザ

パルス励起によって金テーパーチップに結合した SPP パルスのナノ集光時間特性を測定し、プラズモン応答関数を求めた。プラズモン応答関数に基づいたフェムト秒レーザ波形整形により、実験的に SPP ナノ集光パルスの時間的制御を行った。また、先端で発生する SH, FWM の制御を行い、非線形ナノ光源の可能性を示した。

References

- [1] H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and Grating* (Springer, 1988)
- [2] X. Ren, A. Liu, C. Zou, L. Wang, Y. Cai, F. Sun, G. Guo, and G. Guo, *Appl. Phys. Lett.* 98, 201113 (2011)
- [3] C. Ropers, C. C. Neacsu, T. Elsaesser, M. Albrecht, M. B. Raschke, and C. Lienau, *Nano Lett.* 7, 2784 (2007)
- [4] S. Berweger, J. M. Atkin, X. G. Xu, R. L. Olmon, and M. B. Raschke, *Nano Lett.* 11, 4309 (2011)