

波面および波形整形による超高速プラズモン場の時空間制御

Spatiotemporal Control of Ultrafast Plasmon Pulses at Metallic Nano-Structures

by Light Wave Shaping.

小島康裕 (B4)

Kojima Yasuhiro

Abstract

We numerically demonstrate spatiotemporal control of ultrafast localized plasmon pulses at metallic nanostructures and propagation of surface plasmon polariton pulses along a MIM waveguide. The wavefront of femtosecond laser pulses is designed by superposition of high-order Hermite-Gaussian beams so that a desired spatial plasmon distribution is attained at a specific location in nanostructures. Temporal characteristics of the plasmon pulses are manipulated by separate pulse shaping.

1. はじめに

局在表面プラズモン共鳴は、金属ナノ粒子中の自由電子の局所的な振動であり、結果として回折限界以下の領域での光電場の閉じ込め、増強効果を可能にする。局在表面プラズモン共鳴の時間域における特性はそれを励起するレーザパルスにも依存する。この依存性を利用し、波形整形したフェムト秒レーザパルスによって局在プラズモン場の時空間制御が可能であることを Brixner らは理論的に示しており [1]、最近我々はこれを実験的に証明している [2]。

しかしながら、波形整形フェムト秒レーザパルスによる時空間制御は、ナノ構造のプラズモン応答関数の差が大きいものを選ぶ必要があり、ナノ構造の形状に対する制限が大きい。一方で、単一波長によってナノ構造体に励起されるプラズモン分布は、励起光の空間分布を整形することで、決定論的に空間

制御可能であることを示す報告が Volpe らによってなされている [3]。

そこで、本研究では、波面整形および波形整形技術を組み合わせることでより柔軟なプラズモン場の時空間制御が可能であることを FDTD 法を用いたシミュレーションモデルによって示した。

2. 原理

単一波長における波面の決定方法について述べる。まず、ナノ構造体を含めたある系が入射光の複素電界空間分布とこの入射光に対する応答を含めた散乱場の複素電界空間分布が線形演算で表すことができるとする。このような系を想定し、あらかじめ基底となる入射光 (高次エルミートガウシアンビーム) の複素電界空間分布群に対する散乱場が既知であったとする。このとき、所望の分布をこれらの散乱場の重ね合わせで近似的に表現することができれば、その分布を励起するような入射光の複素電界空間分布を、基底である高次エルミートガウシアンビームの重ね合わせで得ることができる。

一方で、波形整形によるプラズモンパルスの時空間制御は、以下の式であらわされる。

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{i=S \text{ or } P}^2 \begin{pmatrix} A_x^i(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{e}_x \\ A_y^i(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{e}_y \\ A_z^i(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{e}_z \end{pmatrix} \sqrt{I_i(\omega)} e^{i\phi_i(\omega)}$$

上式は励起レーザパルスに対するプラズモンパルスの依存性を示している。この式はプラズモンパルスの位相特性 (応答関数) を、波形整形によって入射光パルスにエンコードすることで、FTL プラズ

モンパルスなど任意のプラズモン波形が励起できることを示している。これは SPP の伝搬特性にも適用することができる。

3. 局在表面プラズモンの時空間制御

Fig. 1 (b) に示すような Au パッドを 5 つ SiO₂ 基板の上に並べたシミュレーションモデルを用意した。

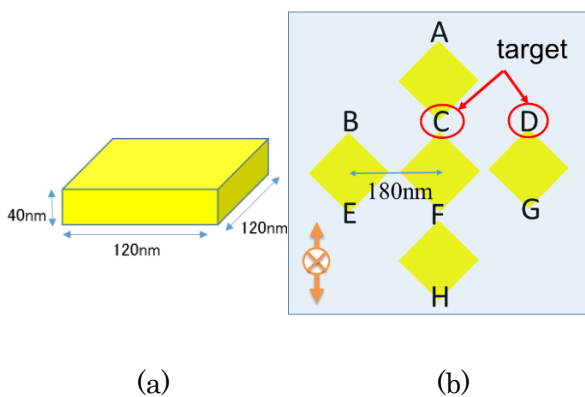


Fig. 1 Shape of Au nano-pad and an arrangement on a SiO₂ substrate.

まず、この金ナノ構造体に対して、9つの単一波長(825nm)高次エルミートガウシアンビームで励起したときのそれぞれのプラズモン場の基底空間分布を FDTD 法によって計算した。次に得られた9つのプラズモン空間分布を Fig. 1 (b) 中、C、D点のみ強度が大きくなるように重み係数(複素数)を調整して重ね合わせた。この結果を Fig. 2 に示す。

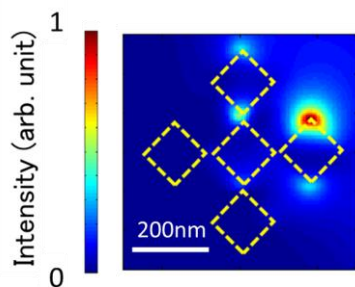


Fig. 2 Superposition of plasmon spatial distribution.

このとき、各プラズモン基底空間分布にかかる重み係数は最適化アルゴリズムによって決定した。この重み係数を基底入射光分布に適用し、入射光波面を高次エルミートガウシアンを重ね合わせで得た。この入射光の焦点面における強度および位相分布を次に示す。

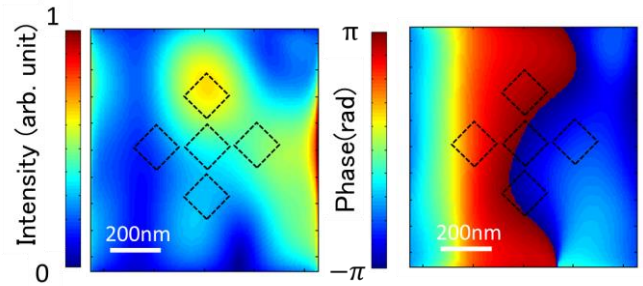


Fig. 3 Intensity and phase spatial distribution of optimized incident light.

これを入射光と想定し、ナノ構造体を励起したときのプラズモン分布の計算結果を Fig. 4 に示す。

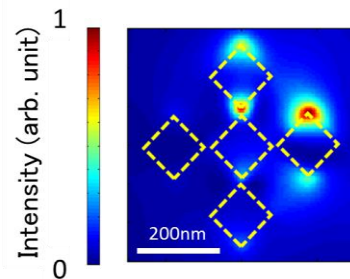


Fig. 4 Plasmon spatial distribution excited by the optimized incident light.

Fig. 2, Fig. 4 はよく一致しており、C、D 点の強度が大きくなっており、本手法の妥当性が確認できる。高次の基底入射光分布を用いることで精度は向上するが、FDTD 計算における空間分解能の制限も同時に受ける。

一方で、Fig. 3 の波面を中心波長 825nm、帯域幅 100nm の超広帯域パルスに適用し、同様のナノ

構造体を励起したときの各点におけるプラズモンパルスの時間波形を Fig. 5 に示す。

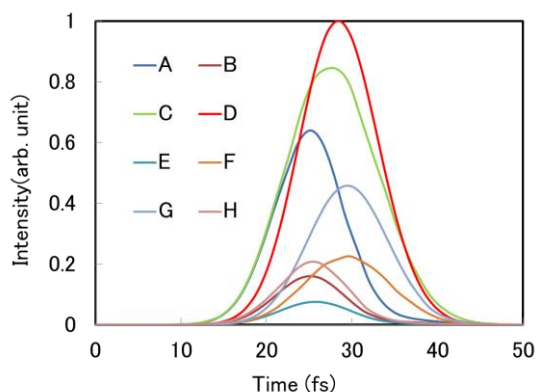


Fig. 5 Plasmon pulses excited by FTL laser pulse with the optimized incident light.

Fig. 5 より、C、D 点での増強を確認できる。また、波面整形 CW 励起時のプラズモン分布との比較のため、各点におけるピーク強度の比をまとめた結果を Fig. 6 に示す。ここでは、より広帯域なパルスに波面を適用し、ナノ構造体を励起したときの結果も示す。

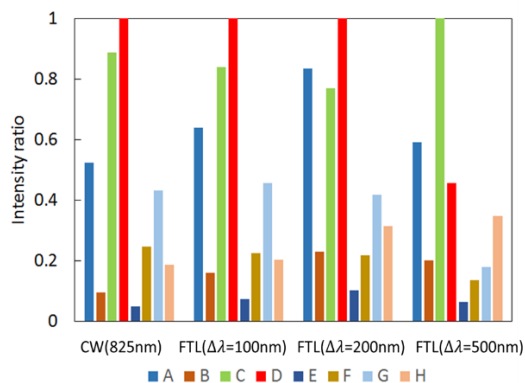


Fig. 6 Comparison plasmon intensity excited by CW and femto second laser pulses.

Fig. 6 よりパルス励起時の各点における強度比は、CW 励起時のものと比較して、帯域 100nm で

は、良い再現性が確認できる。一方で、帯域幅が大きくなると、CW 励起時との差異が大きくなっていることが確認できる。これは波長によって、励起されるプラズモン分布が異なるためである。

さらに、波形整形パルスによる各座標での波形整形の可能性を検証するために、中心波長 825nm、帯域幅 100nm の超広帯域パルスに正のチャープ (500fs^2) を加え、このパルスに波面を適用し、ナノ構造体を励起したときの各点におけるプラズモンパルス時間波形計算を示す。

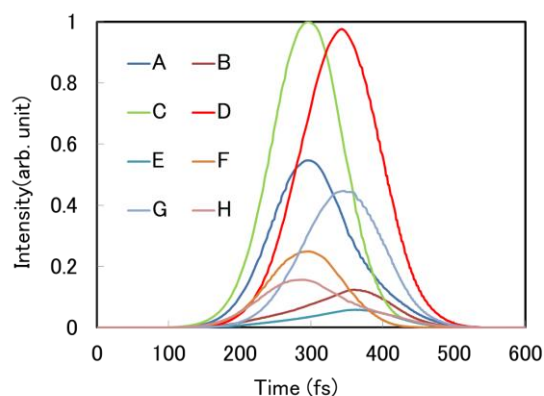


Fig. 7 Plasmon pulses excited by linearly frequency chirped laser pulse with optimized incident light.

Fig. 7 の結果からチャープを加えたパルスの場合でも C、D、において強度が大きくなるように励起できており、またチャープの効果でピーク強度を示す時刻がシフトできていることも確認された。

4. SPP の伝搬制御

Fig. 8 に示すような SiO_2 基板上に金を配置した MIM 型プラズモニック導波路に対して、波面整形および波形整形による SPP 伝搬制御のシミュレーションを行った。

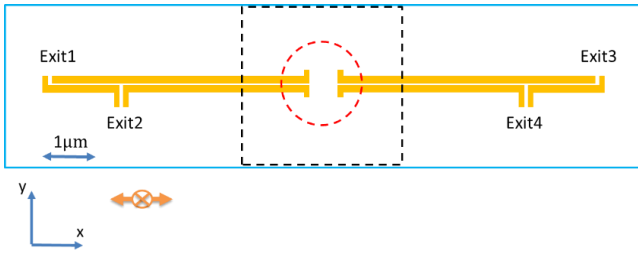


Fig. 8 Shape of the SPP wave guide.

初めに、中心波長 825nm、帯域幅 100nm の超広帯域 FTL パルス励起時の各 1, 2 におけるプラズモン応答関数を示す。3, 4 の出口は 1, 2 と同一である。

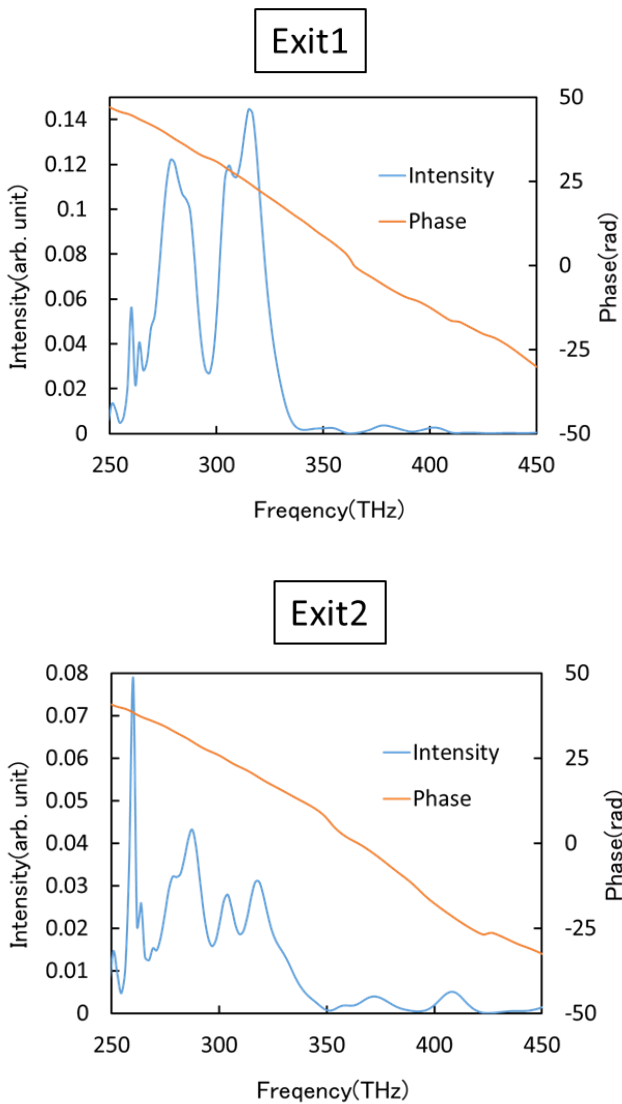


Fig. 9 Response function at Exit1 and Exit2.

次に、Fig.8 赤線で示した回折限界内の導波路を選択的に励起する入射光波面を決定するため、4 種の高次エルミートガウシアンビームに対するプラズモン分布を計算した。入射位置は Fig. 8 の中心であり、図中の赤点線円は最低次モードの最小ビームスポットサイズを示す。前節と同様の方法で、図左側の導波路入口の強度が大きくなるように入射光波面を決定した。

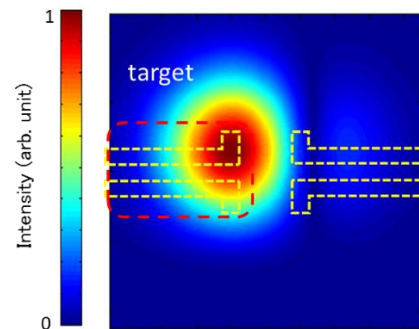


Fig. 10 Intensity and phase spatial distribution of optimized incident light.

この波面をパルスに適用し、各出口でのプラズモンパルスを計算した結果を示す。

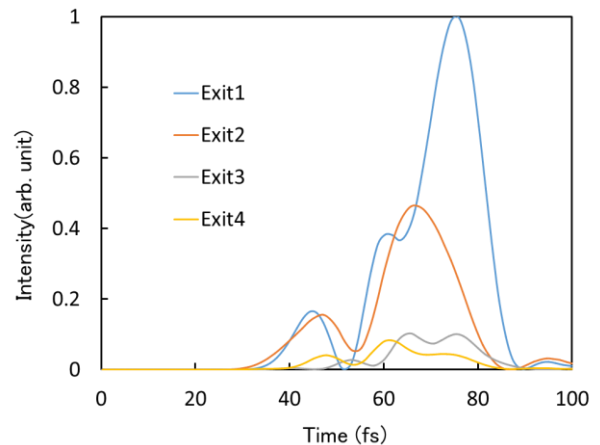


Fig. 11 Plasmon pulses excited by FTL laser pulse with optimized incident light

さらに Exit1 の応答関数の逆位相を加えた波形整

形レーザパルスに波面を適用し、励起した際の各出口におけるプラズモンパルスの計算結果を示す。

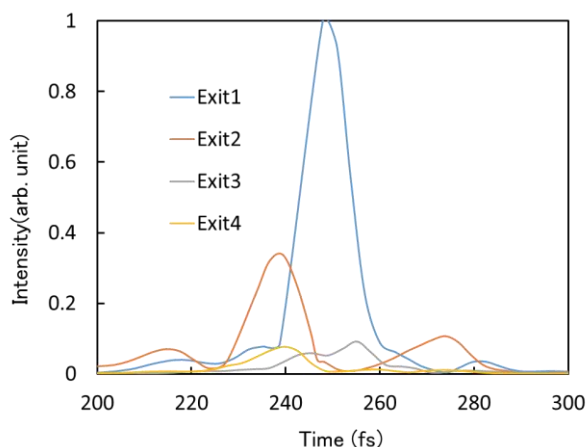


Fig. 12 Plasmon pulses excited by shaped laser pulse with optimized incident light

Fig. 12 から Exit1 おいて FTL プラズモンパルスが確認できる。またその他の出口においては、強度が抑えられている。これらの結果から波形整形および波面整形によって SPP の伝搬制御の可能性を示した。

5. まとめ

FDTD 法による数値計算によって、波面整形によるプラズモン場空間制御のパルス適用について検証した。また、波面および波形整形を組みあわせることで、MIM 型プラズモニック導波路における SPP の柔軟な伝搬制御が達成可能であることを示した。この結果は、励起レーザパルスの整形によって、導波路出口に配置した蛍光分子や量子ドットの 2 光子蛍光を制御可能であることを示している。

また、レーザパルスの波面および波形整形は SLM (空間光変調器) によって実現可能であり、本研究で示したフェムト秒、nm 領域での時空間制御は SLM を組み合わせた光学系によって実験的実証が期待される。

References

- [1] J. S. Huang, D. V. Voronine, P. Tuchscherer, T. Brixner, and B. Hecht, "Deterministic spatiotemporal control of optical fields in nanoantennas and plasmonic circuits," *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **79**, 1–5 (2009).
- [2] S. Onishi, K. Matsuishi, J. Oi, T. Harada, M. Kusaba, K. Hirokawa, and F. Kannari, "Spatiotemporal control of femtosecond plasmon using plasmon response functions measured by near-field scanning optical microscopy (NSOM)," *Opt. Express* **21**, 26631–26641 (2013).
- [3] G. Volpe, G. Molina-Terriza, and R. Quidant, "Deterministic Subwavelength Control of Light Confinement in Nanostructures," *Phys. Rev. Lett.* **105**, 216802 (2010).
- [4] C. Girard, "Near fields in nanostructures," *Reports Prog. Phys.* **68**, 1883–1933 (2005).
- [5] C. Rewitz, T. Keitzl, P. Tuchscherer, J.-S. Huang, P. Geisler, G. Razinskas, B. Hecht, and T. Brixner, "Ultrafast plasmon propagation in nanowires characterized by far-field spectral interferometry," *Nano Lett.* **12**, 45–9 (2012).
- [6] G. Volpe, S. Cherukulappurath, R. J. Parramon, G. Molina-Terriza, and R. Quidant, "Controlling the optical near field of nanoantennas with spatial phase-shaped beams," *Nano Lett.* **9**, 3608–3611 (2009).
- [7] M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, S. Cunovic, F. Dimler, A. Fischer, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Schneider, F. Steeb, C. Strüber, and D. V. Voronine, "Spatiotemporal control of nanooptical excitations.," *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **107**, 5329–33 (2010).