

# 金テーパ構造におけるフェムト秒プラズモン集光特性の向上に向けた数値モデル計算

## Numerical simulation for improving nano-focusing performance

### of femtosecond plasmon pulses with gold taper structures

片野 利佳 (B4), 小島 康裕 (M1), 正木 雄太 (M2)

Rika Katano, Yasuhiro Kojima, Yuta Masaki

#### Abstract

In this report, we design various gratings on a metal Au tapered tip with FDTD simulation to improve intensity of 1500-nm localized femtosecond plasmon pulses at the tip apex. We numerically reveal the improvement with an ideal wave front of the incident femtosecond laser pulses at the rating and a curved grating.

#### 1. はじめに

回折限界以下のサイズにプラズモンを集光する手法として、金テーパチップを用いたナノ集光が注目されている。我々は、昨年度、励起光にフェムト秒レーザーパルスを用いることで、このナノ集光プラズモンパルスを用いてチップ先端サイズの空間分解能約 20 nm で選択的 CARS 計測を行い、カーボンナノチューブの THz 分光イメージングに成功している[1]。金テーパチップへの表面プラズモンポラリトン(SPP)の励起は、集光イオンビームで加工した回折格子を介して行うが、Schmidtらは集光効率を上げるために回折格子の形状を整形する案や励起光波面をテーパの曲率に沿うように調整する案を報告している[2]。実際藤間等は、空間光変調器(SLM)を用いた波面整形により著しい集光強度の増加を実現した。本研究では、平面波入射においても SPP が効率よく理想的にチップ先端に集光するような回折格子の形状、さらにはより広帯域な SPP パルスを励起できる形状を設計するために、FDTD 法を用いたシミュレーションを行った。

#### 2. 回折格子の設計

ここでは、本研究に用いた金プローブの回折格子のパラメータの最適な値を求めるために行ったシミュレーションについて述べる。プローブの媒質は加工しやすさや化学的な安定性を考え、金を用いた。金プローブの先端角は  $15^\circ$ 、先端から最初の溝までの距離は  $15\ \mu\text{m}$ 、最後の溝から終端までの距離は  $3\ \mu\text{m}$  である。励起光の中心波長は今後長波長域でのプラズモン実験を想定して  $1500\ \text{nm}$  とし、パルス幅  $10\ \text{fs}$  と設定した。集光位置は先端から  $20.91\ \mu\text{m}$ 、スポット直径は断らない限り  $4.575\ \mu\text{m}$ 、 $\text{NA}=0.2$  である。測定点は金プローブの先端とした。励起光の波長と同じ  $1500\ \text{nm}$  となるように回折格子の構造パラメータを求めた。Fig.1(a)に設計したシミュレーションモデルの構造とパラメータの定義、(b)に励起光源を示す。

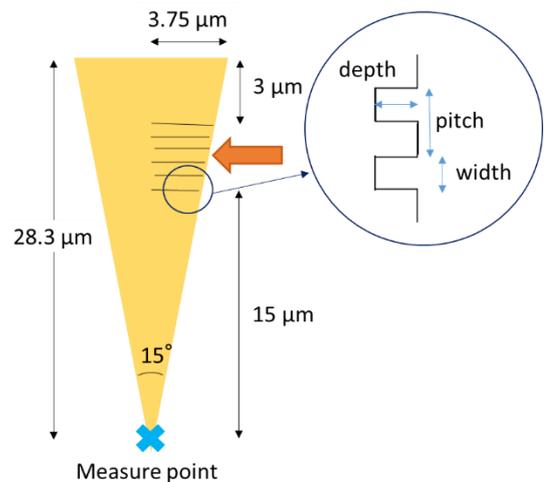
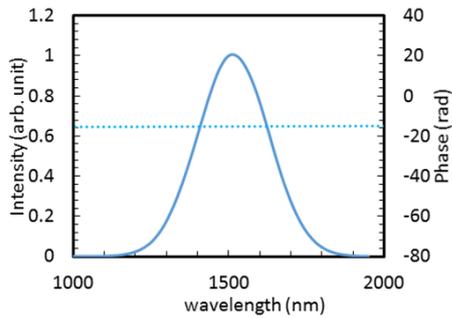


Fig.1(a) Structure of tapered Au probe



(b) Spectrum of excitation light source

(i) 回折格子の溝の周期の決定

回折格子の周期は、Bragg の回折格子の条件より以下の式で表される。左辺の第 1 項が伝搬する表面プラズモンの項、右辺の第 1 項が回折格子に関する項、第 2 項は入射光の表面プラズモンの伝搬軸方向への波数ベクトルである。

$$K_{spp} = K_{in} \sin \theta + K_p$$

上式は以下のように変形できる。

$$\frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}} = \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta_{in} + \frac{2\pi}{P}$$

$\epsilon_1$  は金属の誘電率、 $\epsilon_2$  は誘電体の誘電率、 $c$  は光速、 $\lambda$  は入射光の波長、 $P$  は回折格子の間隔である。式 (3.2) から  $\lambda = 1500 \text{ nm}$ 、 $\theta_{in}$  は長軸に対して垂直に入射するように設定した。以上より、回折格子の周期は  $1697 \text{ nm}$  と決定した。

(ii) 回折格子の溝幅の決定

回折格子の溝幅  $w$  は周期に対して  $1/4$ ,  $1/3$ ,  $2/5$ ,  $1/2$ ,  $2/3$ ,  $1$ ,  $4/5$  倍の値を用い、溝の深さ  $d$  は  $300 \text{ nm}$ 、溝の本数  $n$  は  $6$  本を用い、それぞれモデルを作成し、先端におけるパワー密度を測定した結果を Fig.2 に示す。Fig.2 より、溝幅  $w$  はパワー密度が最大となる  $566 \text{ nm}$  と決定した。

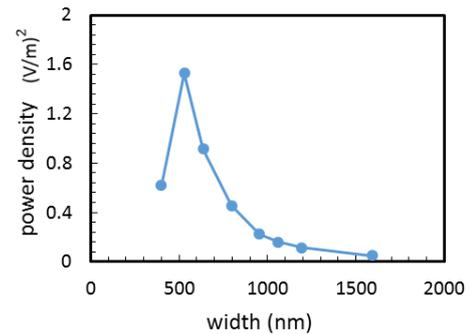


Fig.2 Dependence of focused SPP power as a function of width of groove

(iii) 回折格子の溝の深さの決定

回折格子の溝の深さ  $d$  を  $100, 200, 300, 400 \text{ nm}$  と変化させ、溝の本数  $n$  は  $6$  本を用い、先端におけるパワー密度を測定した結果を Fig.3 に示す。Fig.3 より、溝の深さ  $d$  はパワー密度が最大となる  $300 \text{ nm}$  と決定した。

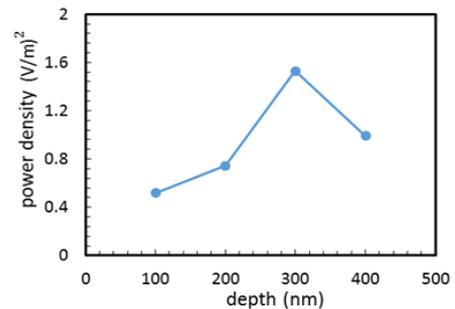


Fig.3 Dependence of focused SPP power as a function of depth of groove

(iv) 回折格子の溝の本数の決定

回折格子の溝の本数  $n$  を  $1 \sim 7$  本まで  $1$  本ずつ増やしたモデルをそれぞれ作成した。結合効率とスペクトル幅を Fig.4 に示す。

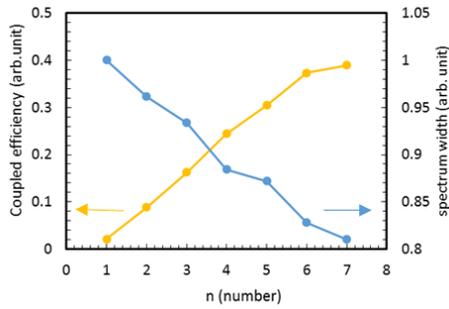


Fig.4 Coupled efficiency and spectrum of width

Fig.4 より，結合効率は回折格子の溝の本数が増えるにしたがって線形に増加し，しだいに飽和することが分かった．また，今回の励起光源のスポット径は  $4.575 \mu\text{m}$  であることも考慮し，回折格子の溝の本数は 6 本とした．

次に，今回求めたパラメータを用いた金テーパーにおいてナノ集光が起きているか確認するためのシミュレーションを行った．励起光源は波長  $1500 \text{ nm}$  の CW を使い，先端に至るまでの表面プラズモン強度を測定した．その結果を Fig.5 に示す．

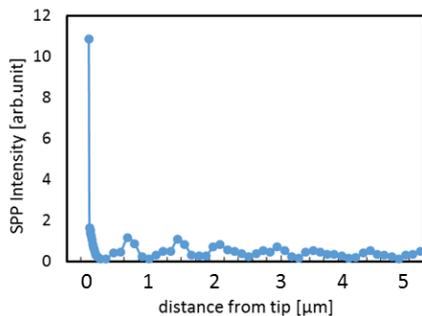


Fig.5 SPP intensity along Au taper propagation.

Fig.5 より，先端にいたるまでに断熱的な集光，ナノ集光が出来ていることが確認できた．今回はこのモデルを基本形とし，さらなる高効率なプローブの形状の設計を行った．

次に，設計した直線型回折格子における入射ビームの NA との関係を示す．励起光パルスは三番めの回折格子に集光の中心をセットしたモデルとコリ

メートしたビームの二種類を用いた．その結果を Fig.6 に示す．

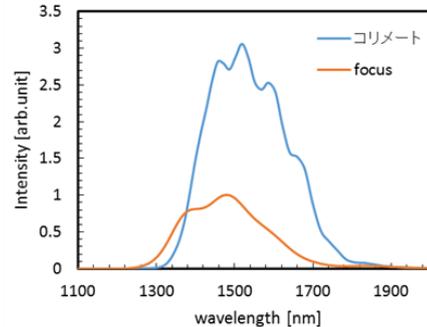
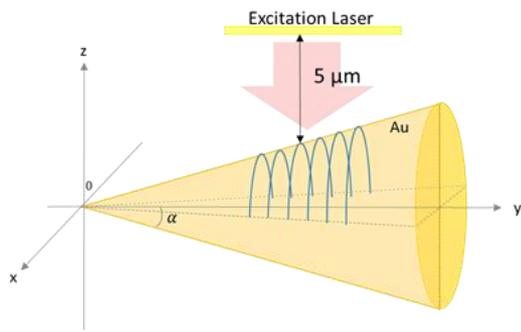


Fig.6 SPP intensity

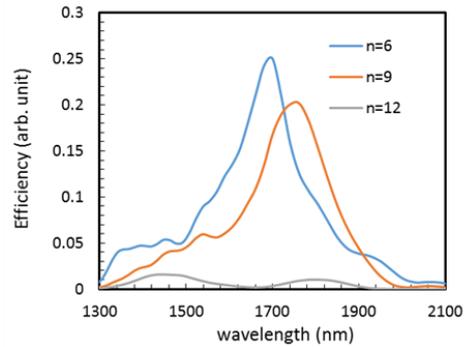
メートしたビームでも広帯域で結合できることが確認できた．

このことから，回折格子で広帯域な結合が実現しているのは，集光パルスの NA による効果ではなく，回折格子の溝数が少ないので狭帯域な Bragg 条件が達成されず，効率は低いが広帯域で結合できているのだと予想される．

今回用いた溝の本数は 6 本であるが，溝の本数  $n$  を増やした場合 ( $n=9,12$ ) 結合帯域への影響を調べるためにシミュレーションを行った．本数の増加に伴い，回折格子の全体のサイズは順次大きくしている．同様に，回折格子全体に当たるように照射するビームは大きく設定したが，ビームの全強度は  $n$  の本数に関わらず一定になるように設定した．作成したモデル図と光源が照射されている範囲を Fig.7 に示す．

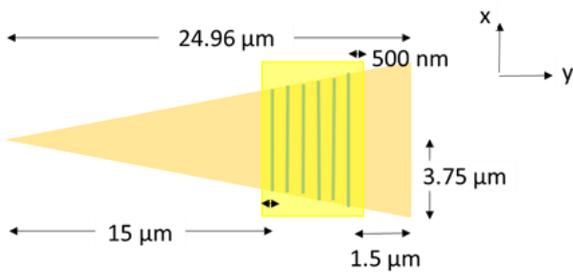


(a) Straight grating



(b) Coupled efficiency

Fig.8

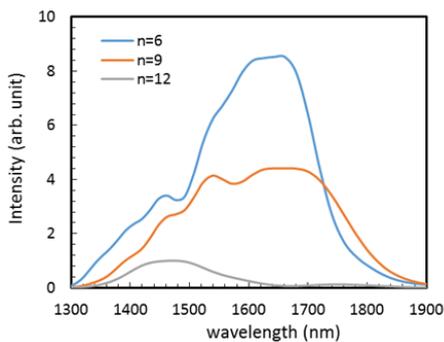


(b) Size of excitation source

Fig.7 Simulation model

n=6,9 においては結合帯域の違いは大きく表れていないが、n=12 において若干狭帯域となることが確認できた。また、1500 nm における結合効率は、n=6 のとき 0.06、n=9 のとき 0.04、n=6 のとき 0.01 となった。溝数を増やすと、金表面を伝播する距離が長くなることからプラズモンの伝播損失が増加する。n=12 での結合効率の低下の要因のひとつであると考えられる。

それぞれのモデルにおいて、先端における強度と結合効率を Fig.8 に示す。



(a) SPP intensity (n=6,9,12)

### 3. 高効率化に向けた回折格子の設計 [2]

テーパー構造を用いた際、Fig.9 のφ方向に表面プラズモンが励起されるタイミングが異なるため、テーパーを伝搬する波面はゆがみ集光効率が悪くなる。そこで、ナノ集光の効率を向上させるための励起光源と回折格子の設計を行った。

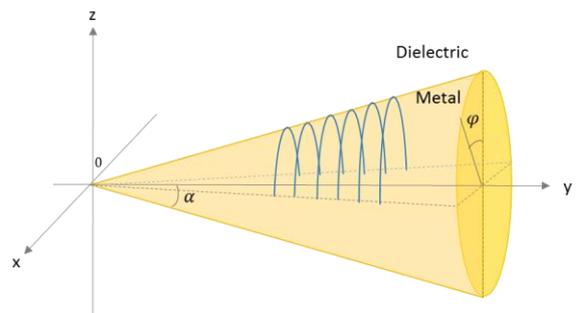


Fig.9 Straight grating

金テーパー先端におけるナノ集光の効率を向上させる方法は二つある。一つ目は、励起光源の波面をテーパーの曲率に合わせて整形し、先端部での SPP の位相を揃える方法である。二つ目は、励起光源に平面波を用いた場合、結合する位置によって生じる SPP の結合の時間差を調整するために、回折格子の構造を湾曲させることで、先端部での SPP の位相を揃える方法である。まず前者について説明する。

(i) ナノ集光効率の向上に向けた波面の設計

ナノ集光効率の向上のため、金テーパーの曲率に合わせた波面をもつ励起光源を設計した。Fig.10(a) は平面波励起で集光している四番目の回折格子の x-z 面における電界強度のスナップショット、(b) 波面整形で集光している四番目の回折格子の x-z 面における電界強度のスナップショットを示している。先述した通り、回折格子の溝の周期  $P=1697$  nm, 溝幅  $w=533$  nm, 溝の深さ  $d=300$  nm, 溝の本数  $n=6$  本を用いている。この条件でシミュレーションを行い、先端における強度を測定した。

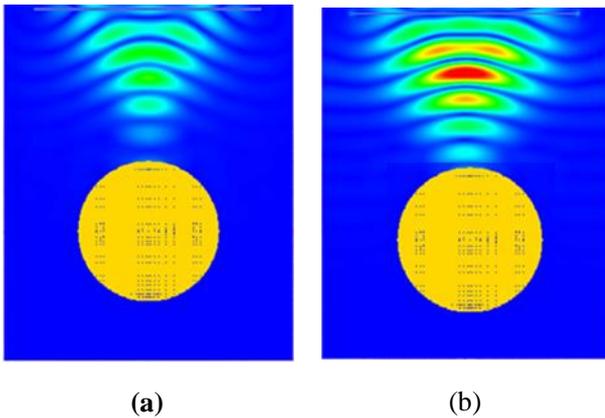


Fig.10 Ideal wave front of the incident light field at tip surface

- (a) wave front of x-z side: plane wave
- (b) wave front of x-z side: shaped wave

(ii) ナノ集光効率の向上に向けた回折格子の設計  
波面のゆがみを修正するために、回折格子の形状を伝搬する波面に沿った形にする湾曲回折格子を設計した。Fig.6 の座標系で考えると、金テーパーを伝搬する波面の位相差  $\Delta\phi$  は以下のように表される[2].

$$\Delta\phi = k_{spp} \cdot r_{inc} - \{k_L \cdot \sin\alpha \cdot (r_{inc} - r \cos\phi) + k_{spp,r} \cdot r\}$$

上式において、右辺第一項は  $\phi = 0$  のときの光路長、右辺第二項は  $\phi \neq 0$  のときの光路長を表している。湾曲回折格子において発生する SPP の波面の  $\phi$  方向の位相差  $\Delta\phi$  は  $\phi = 0$  のときの光路長と  $\neq 0$  のときの光路長の差と等しい。一方、湾曲回折格子における回折格子構造を設置する先端からの最適な位置は、以下のように表される。

$$r_{gr}(\phi) = r_{inc} \cdot \frac{k_{spp} - k_L \cdot \sin\alpha}{k_{spp} - k_L \cdot \sin\alpha \cdot \cos\phi}$$

上式において、 $r_{inc}$  は励起位置、 $k_L$  は励起光の波数、 $k_{spp}$  は SPP の波数、 $\alpha$  は先端角の半角である。今回、励起光の波数  $k_L$  は中心波長 1500 nm とし、SPP の波数  $k_{spp}$  も励起光の中心波長 1500 nm で励起された SPP とした。設計したモデルを Fig.11 に示す。

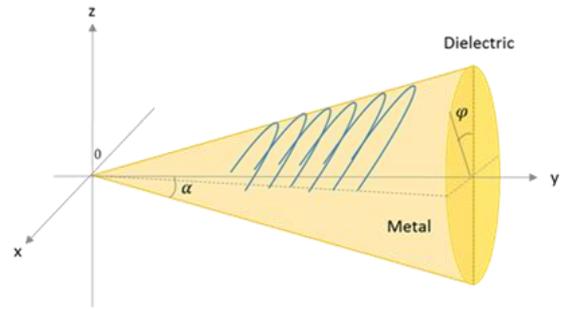


Fig.11 Curved grating

4. シミュレーション結果

4.1 先端における強度比較

先述した三種類のモデルで先端における SPP スペクトルを Fig.12 に示す。1 は直線型回折格子(平面波励起)、2 は直線型回折格子(波面整形)、3 は湾曲型回折格子(平面波励起) である。

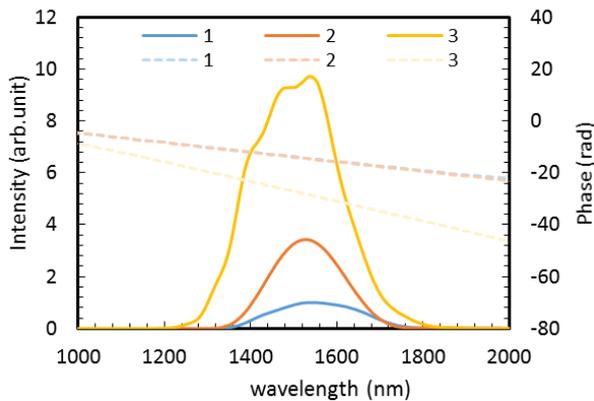


Fig.12 Spectra of the focused SPP pulses at the tip apex.

Fig.12 より，直線型回折格子（波面整形）では直線型回折格子(平面波励起) に比べて強度が 3.41 倍，湾曲回折格子では 9.73 倍となり，励起光源や回折格子の形状を設計することで先端における強度が大きくなることが確認できた．強度が大きくなった要因として，まず直線型回折格子（波面整形）と湾曲回折格子に共通しているのは金テーパーを伝搬する波面のずれが補正されたことが挙げられる．その中でも，2 と 3 の結果を考察する．一点目は，回折格子結合における違いである． $\varphi$  が小さいほど SPP の結合効率は高くなると考えられるが，2 のモデルでは回折格子上での x 方向のスポット径を大きくしているため， $\varphi = 0$  付近でのエネルギー密度が落ちてしまい，強度が 3 よりも小さくなった．二点目は，テーパー先端付近における増強度の違いについてである．1500 nm 帯（長波長側）ではレイリー長さの影響が大きくなるため，2 のモデルの特に先端側でテーパーの曲率に沿った波面になっていない可能性がある．三点目は，1500 nm 帯における SPP の実行屈折率の影響である．1500 nm 帯では周波数依存性は低いため，広い帯域で波面の揃った SPP を励起することができる 3 のモデルの設計で用いるパラメータは先端角と SPP の実行屈折率で決定されるため，3 では広帯域となったと考えられる．

#### 4.2 金テーパーを伝搬する SPP 強度の比較 [3]

三種類のモデルにおいて，先端から 10  $\mu\text{m}$  地点から先端に至るまでの SPP 強度を Fig.13 に示す．強度に大きく変化が現れる先端付近においては 50 nm 間隔で，先端から 10  $\mu\text{m}$  から 4  $\mu\text{m}$  までは 1  $\mu\text{m}$  間隔で測定点を設置し，強度を測定した．

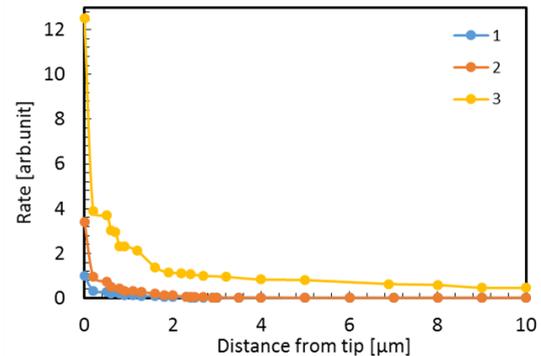


Fig.13 Enhancement of SPP Intensity from the grating to the tip apex for three gratings.

1 は直線型回折格子(平面波励起)，2 は直線型回折格子(波面整形)，3 は湾曲型回折格子(平面波励起)である．先端における強度の差が現れた要因として挙げられるのは，金テーパーを伝搬する波面の影響である．先述したように，テーパーを伝搬すると波面はゆがむため，先端での強度を大きくするためには，先端での位相が揃っている必要がある．励起光源をテーパーに沿って設計した直線型回折格子(波面整形) は，入射した光源が回折格子に到達するタイミングが揃っているため，先端での位相のゆがみが平面波励起に比べて補正され強度が大きくなったと考えられる．一方，湾曲回折格子の場合は，直線型回折格子を用いた二つのモデルよりも先端から 10  $\mu\text{m}$  離れた位置から SPP 強度が大きい値を示していた．先端から離れた位置で強度の差が現れた要因として挙げられるのは，回折格子の結合効率の影響である．直線型回折格子を用いている二つのモデルに比べ，先端から 10  $\mu\text{m}$  の地点で強度が大きくなった湾曲回折格子は四本目の回折格子に集光

した後、先端に向かって伝搬する波面に沿って回折格子が湾曲しているため、それぞれの回折格子で発生した SPP の強度が打ち消し合うことなく、損失が抑えられ強度が大きくなったと推測される。先端において強度に差が現れたのは直線型回折格子(波面整形)と湾曲回折格子であるが、先端から離れた位置から強度が大きくなった湾曲回折格子はさらに回折格子の結合効率の影響が重なり、三つのモデルの中で強度が最も大きくなったと考えられる。

### 4.3 金テーパーを伝搬する波面の比較

三種類のモデルにおいて、先端から 15  $\mu\text{m}$  離れた位置から先端へと伝搬する波面の様子を Fig.14 に示す。

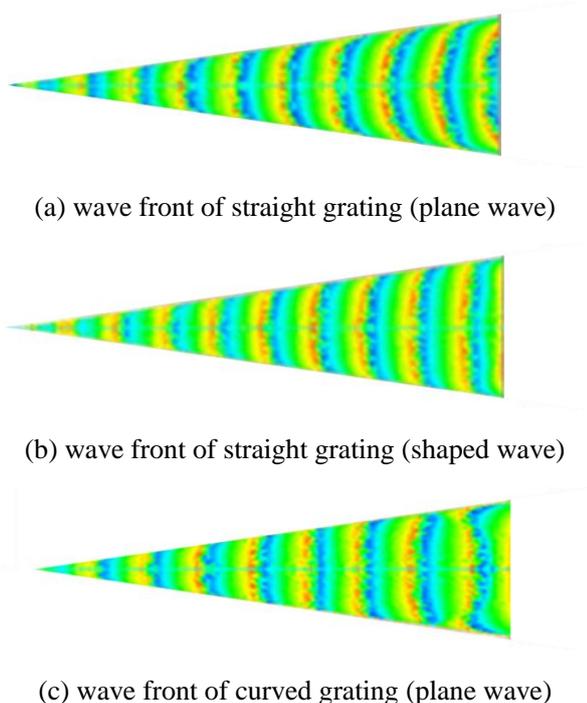


Fig.11 wave front along the taper

Fig.14 より、(a)に比べて(b)と(c)のにおいて伝搬する波面のゆがみが補正されていることを確認できた。特に、湾曲回折格子においてその効果が大きく、先端での位相が揃うため SPP 強度が大きくなったと考えられる。

## 5. まとめ

FDTD 法を用いたシミュレーションにより、金テーパーにおいて励起光源の中心波長 1500 nm が効率的にナノ集光するような回折格子の最適なパラメータを導いた。また、励起光源をテーパーの曲率に沿って整形したモデル、回折格子を湾曲させたモデルにおいて金テーパーを伝搬する波面のゆがみを補正し、従来のテーパー上の回折格子のモデルに比べて先端における強度がそれぞれ 3.41 倍、9.73 倍となり、このようなモデルを作成することで集光効率を向上させることを明らかにした。このような波長帯における高強度かつ超高速ナノ光源は走査型光学顕微鏡などへの応用が期待される。

## References

- [1] A. Giugni, B. Torre, A. Toma, M. Francardi, M. Malerba, A. Alabastri, R. Proietti Zaccaria, M. I. Stockman & E. Di Fabrizio, Nature Nanotech, 8, 845–852 (2013)
- [2] S. Schmidt, P. Engelke, B. Piglosiewicz, M. Esmann, S. F. Becker, K. Yoo, N. Park, C. Lienau, and P. Gross, Opt. Express 21, 26564 (2013)
- [3] 藤間一憲, 「金テーパーチップへの回折格子結合による超高速表面プラズモンのナノ集光」慶應義塾大学卒業論文(2012)