

# 金テーパ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

Nanofocusing of ultrafast surface plasmons onto gold taper tips by grating-coupling

藤間 一憲 (B4)

Kazunori Toma

## 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. We measure the SPP intensity and phase at the tip end and demonstrate a field enhancement at the apex.

## 1. はじめに

高度情報化社会である現在の社会において、デバイスの大容量化、高度集積化、省電力化が必要とされている。そういった要求に応える将来の光デバイスでは、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のことである。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しか行えないという制限がある。この制限を改善するために、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[1]。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高強度な微細領域での励起源が考案されている[2]。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。そこで、我々は、時空間的な光の閉じ込めを実現するため、高強度・超短パルスレーザ励起によるSPPの回折格子結合効果を用いて、金テーパチップへナノ集光させ、その伝播特性を計測し、ナノオーダーでの高強度な励起源を実証した。

## 2. FDTD シミュレーション

先端に波長 800 nm の SPP が最も効率良く伝播するような金プローブに刻む回折格子のパラメータを決定するため、FDTD シミュレーションを用いて最適な値を求めた。決定する回折格子のパラメータは、溝の本数、周期、幅、深さである。金プローブの先端は  $15^\circ$ 、先端から最初の溝までの距離は  $10 \mu\text{m}$  である。励起光の波長は 800 nm、レーザを照射する範囲は溝の刻まれている範囲より  $1.3 \mu\text{m}$  大きめに照射している。Fig. 1 にシミュレーションモデルを示す。

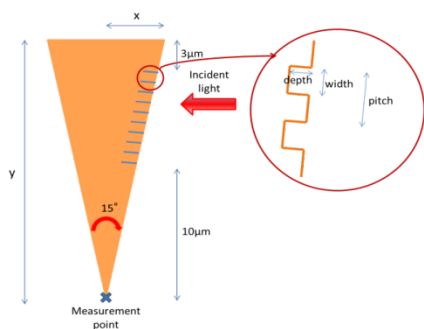


Fig. 1 Nano structure used for FDTD simulation.

まず、溝の周期は、運動量保存則を用いて決定した。運動量保存則を式(1)に示す。

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

ここで、 $\lambda_{in}$ 、 $\lambda_{SPP}$ 、 $\Lambda$ 、 $n$ 、 $\theta$ 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。励起光の波長が800 nm、入射角が32.5°のとき、先端に波長800 nmのSPPが最も効率良く伝播するように回折格子の周期を求め、1727 nmと決定した。

Fig. 2に溝の本数を変化させたときの先端におけるSPPの時間波形を示す。暫定的に溝の深さを100 nm、幅を300 nmとした。Fig. 2より、溝の本数が8本のとき、時間波形のピーク強度が最大になる。溝が6本および10本のときのピーク強度は、溝が8本ときに比べて、それぞれ0.90倍、0.83倍となる。また、パルス幅は、溝が6本、8本、10本のとき、それぞれ24.9 fs、25.4 fs、23.8 fsとなる。これよりSPPの全エネルギーを比較すると、溝が8本のときに比べて、溝が6本および10本のときは、それぞれ0.89倍、0.78倍である。つまり、ピーク強度を大きくしたいなら励起サイズは大きくしすぎないほうがいいが、ある程度の励起サイズがないと回折格子へのSPP結合効率下がってし

まう。よって、ピーク強度とSPPの回折格子結合率を考慮した励起スポットサイズをふまえると、溝の本数が8本が最適であると考えられるので、溝は8本とした。

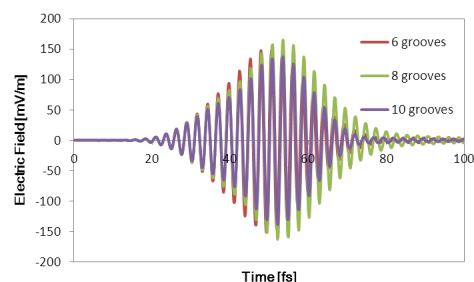


Fig. 2 Simulation result of SPP pulse arrived at the tip end for various number of grooves.

Fig. 3に溝の深さを固定して溝の幅を変化させたときの先端におけるSPPの時間波形のピーク強度の変化を示す。溝の深さは100 nm、200 nm、300 nmの3パターンである。Fig. 3より、溝の幅が860 nm、深さが200 nmのときピーク強度が最大になるので、この値を採用した。

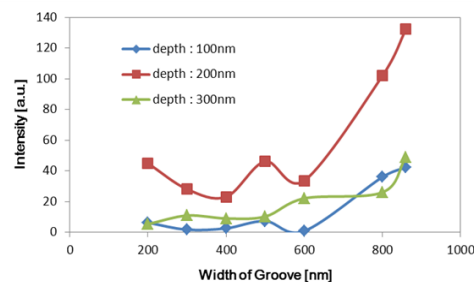


Fig. 3 Simulation result when the width and depth of grooves is changed.

以上のシミュレーション結果より、溝の本数が8本、周期が1727 nm、幅が860 nm、深さが200 nmと決定した。このとき、励起光のピーク強度に対して先端でのSPPのピーク強度は0.2倍であった。

### 3. 実験セットアップ

Fig. 4、Fig. 5 にそれぞれ暗視野顕微鏡計測法を用いた自己相関計測と相互相関計測の実験セットアップを示す。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 650-1050 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。Fig. 4 の自己相関計測のセットアップでは、4f 光学系から出てきた光を BS で 2 つのパルスに分けて、一方のパルスを参照光として遅延時間をつけてから、再度 BS で信号光と参照光の 2 つのパルスをコリニアにして、金プローブに角度をつけて照射して先端からの散乱光を対物レンズを介して CCD に入射させ検出している。Fig. 5 の相互相関計測のセットアップでは、BS で 2 つのパルスに分けて、一方のパルスを参照光として遅延時間をつけて、もう一方を信号光として 4f 光学系を通してから金プローブに角度をつけて照射して先端からの散乱光を対物レンズを介して再度 BS に入射し、信号光と参照光の 2 つのパルスをコリニアにして CCD に入射させ検出している。励起光のスポットサイズは約 10  $\mu\text{m}$  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  $\times$  4.3 mm で 650  $\times$  480 pixel であり、イメージ分解能は 1 pixel で約 1  $\mu\text{m}$  の分解能をもつ。励起側の対物レンズは、倍率が 20 倍、NA が 0.35、作動距離が 20.5 mm である。検出側の対物レンズは、倍率が 10 倍、NA が 0.25、作動距離が

7.5 mm である。また、励起光が直接側の対物レンズに入射しないように励起側と検出側の対物レンズを 90° の位置関係にして暗視野計測を行っている。

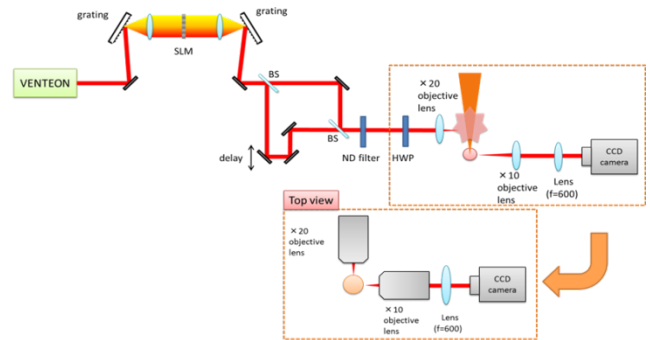


Fig. 4 Experimental setup of autocorrelation image measurement

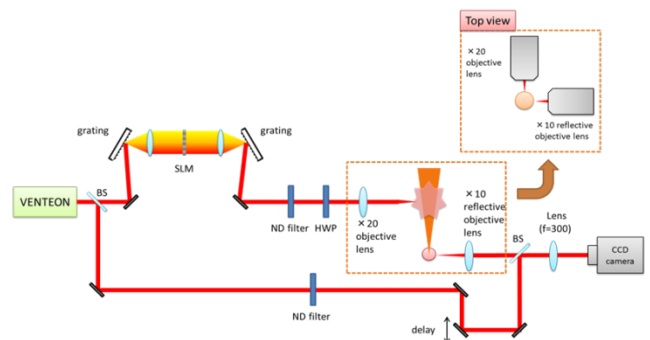


Fig. 5 Experimental setup of cross-correlation image measurement

### 4. 実験結果

以下に示す実験結果(3)は Fig. 4 の自己相関計測、(4)は Fig. 5 の相互相関計測を用いて行った。

#### (1) 回折格子結合効果

Fig. 6(a), (b)にそれぞれ回折格子の刻んでない金プローブと刻んである金プローブを示す。励起光の入射角は 32.5°、励起スポット径は約 10  $\mu\text{m}$  である。

Fig. 6(a)、(b)ともに先端から約  $10\ \mu\text{m}$  離れた位置を励起したときの CCD 画像である。回折格子は先端から  $10\ \mu\text{m}$  の位置から約  $13\ \mu\text{m}$  の範囲にわたって刻まれている。この 2 つを比べると、Fig. 6(a)では先端には何も伝播されていないが、Fig. 6(b)では先端に SPP が伝播している様子がわかる。また、SPP を伝播させて集光させたときの先端の強度は  $2.8 \times 10^4\ \text{W}/\text{cm}^2$  で、先端を直接励起したときの強度が  $0.4 \times 10^4\ \text{W}/\text{cm}^2$  なので、回折格子結合効果により SPP が十分に励起され、 $10\ \mu\text{m}$  離れた先端にまで伝播して集光されていることがわかる。

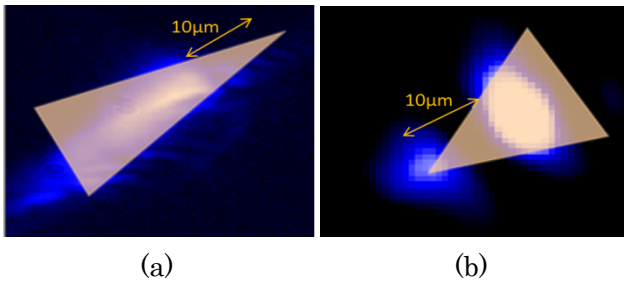


Fig. 6 CCD image of scattered light at excitation of an Au probe

(a)not carved grooves (b)carved grooves

## (2)偏光依存性

Fig. 7(a)、(b)にそれぞれ溝に対して平行に励起した場合と垂直に励起した場合の違いを示す。Fig. 7(a)、(b)を比較すると、励起光の強度は同じにもかかわらず溝に平行に励起した場合の方が先端に SPP が効率良く伝播していることがわかる。これより、SPP の伝播方向と励起光の偏光方向が一致したとき最も効率良く SPP が先端へ伝播することがわかる。また、Fig. 8 に実験セットアップにおける半波長板を回して偏光方向を変えたときの先端の SPP の強度の変化を示す。 $60^\circ$ 、 $160^\circ$  がそれぞれ溝に対して平行、垂直に励起した場合に相当し、約  $90^\circ$  偏光方向が変わると SPP の強度が最大から最弱に変化するので、励起レーザーの偏光を維持した

SPP が伝播してきていることがわかる。

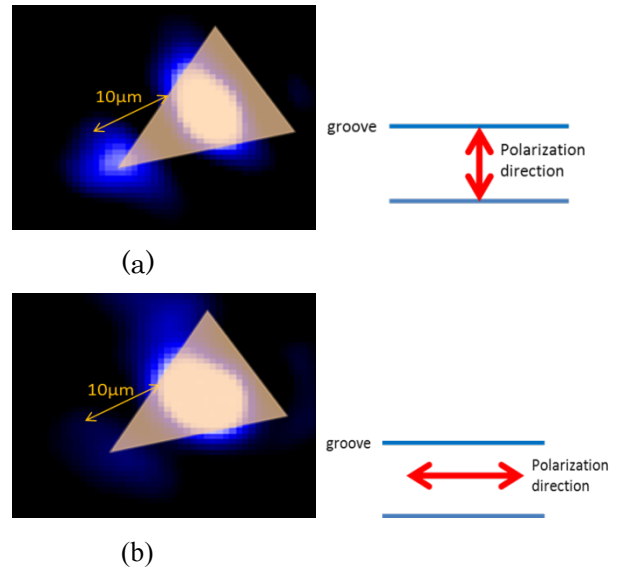


Fig. 7 CCD image of scattered light at excitation of an Au probe

(a)polarization parallel to the grating groove; and (b)polarization perpendicular to the grating groove

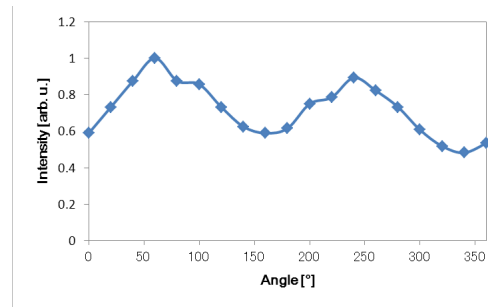


Fig. 8 Polarization property of scattered light at the Au probe end.

## (3)励起光の入射角依存性

Fig. 9に入射角  $32.5^\circ$  と  $45^\circ$  のときの先端における SPP の増強度を示す。増強度は、先端のスペクトルを励起部分のスペクトルで割って求めた。入射角  $32.5^\circ$  の場合、式(1)より理論的結合波長は  $800\ \text{nm}$  であるが波長  $850\ \text{nm}$  が最も効率良く先端に伝

播していることがわかる。このとき、波長 850 nm において 1.8 倍の増強度が確認できた。入射角 45° の場合、式(1)より理論的結合波長は 680 nm であるが波長 750 nm が最も効率良く先端に伝播していることがわかる。このとき、波長 750 nm において 2.2 倍の増強度が確認できた。また、入射角 32.5° と 45° を比較すると入射角を大きくすると先端に効率良く伝播する SPP の波長が短波長にシフトすることがわかる。これは、式(1)の運動量保存則に従う結果で、入射角を変化させることで先端に効率よく伝播する SPP の波長を変調させることができる。

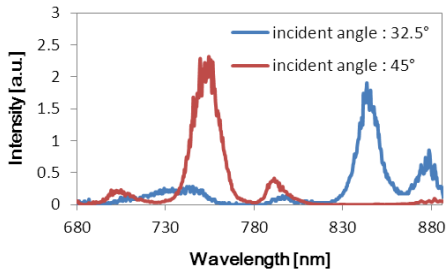


Fig. 9 Dependence of SPP propagation on the incident angle of the femtosecond laser pulse.

#### (4)位相特性

ここまで示した自己相関計測では SPP の強度情報だけで位相情報が得られないので、相互相関計測により信号光と参照光の相対位相を取得した。Fig. 10、11 に、それぞれ相互相関波形と先端における SPP の増強度と位相を示す。Fig. 10 の相互相関波形より先端に伝播する SPP の伝播速度が求まるので、2通りの方法で伝播速度を評価した。1つ目が励起スポットの端から先端への伝播速度で、伝播時間を Fig. 10 の励起スポットと先端のパルスの先端の時間差とすると、伝播時間は  $0.94 \times 10^8$  m/s となる。2つ目が励起スポットの中心から先端への伝播速度で、伝播時間を Fig. 10 の励起スポットと先端のパルスの

ピークの時間差とすると、伝播時間は  $1.32 \times 10^8$  m/s となる。Fig. 10 の波形のようにパルス幅が広がるのは、回折格子に結合した SPP が先端に随時伝播してくるためである。Fig. 11 の増強度は、先端のスペクトルを励起スポットのスペクトルで割って求めた。このとき、入射角は 32.5° なので理論的結合波長は 800 nm であるため、波長 800 nm が最も効率良く先端に伝播していることがわかる。このとき、波長 800 nm において 2 倍の増強度が確認できたし、先端に伝播する SPP の位相も取得できた。

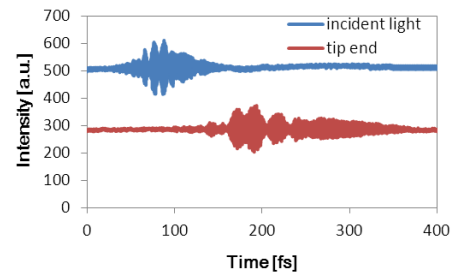


Fig. 10 Cross-correlation waveform

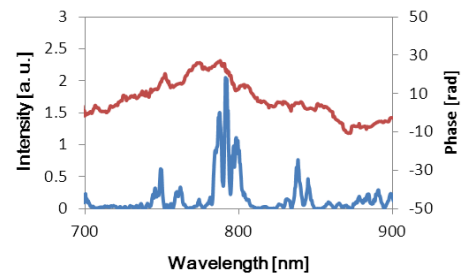


Fig. 11 Field enhancements and phase at tip end when incident angle is 32.5°

## 5. まとめ

FDTD シミュレーションにより、波長 800nm で最も効率良く SPP が伝播する回折格子のパラメータを決定した。また、回折格子結合の効果により金テーパチップへ SPP のナノ集光を実現した。実験

的に金テーパチップに伝播する SPP の偏光依存性、入射角依存性のような伝播特性を実証し、先端における増強度と位相の測定を行った。

## References

- [1] X. Ren, A. Liu, C. Zou, L. Wang, Y. Cai, F. Sun, G. Guo, and G. Guo, *Appl. Phys. Lett.* 98, 201113 (2011)
- [2] C. Ropers, C. C. Neacsu, T. Elsaesser, M. Albrecht, M. B. Raschke, and C. Lienau, *Nano Lett.* 7, 9 (2007)