

令和 3 年 6 月 11 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03480

研究課題名(和文) 近赤外光領域のメタサーフェスにおける波束伝搬のフェムト秒ダイナミクス

研究課題名(英文) Femtosecond dynamics of wavepacket propagation on metasurfaces at near infrared region

研究代表者

久保 敦 (Kubo, Atsushi)

筑波大学・数理物質系・講師

研究者番号：10500283

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：近赤外光領域のメタサーフェスを構成する代表的なメタ原子である、金属-絶縁体-金属(MIM)積層型ナノ共振器(NC)とフェムト秒表面プラズモン波束の相互作用ダイナミクスの実験的・理論的研究を行った。波束はMIM-NCの透過後、強度ピーク位置に最大 \pm 数 μm のシフトを示す。このシフト量はMIM-NCの固有振動数、もしくは、波束の搬送波チャープの制御により、連続的な操作が可能である。この効果は、MIM-NCを透過する波束の「見かけの群速度」から定義される「見かけの群屈折率」についての、 $-40\sim 60$ もの範囲における操作に相当する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

「光と物質」についての基本的な問いのひとつに、「光の伝搬速度・伝搬の向き」の問題がある。真空中では「光速度 c 」である光の群速度を、特殊な物質を用意することで、「 c より速い光」、「 c より遅い光」、「逆進する光」を実現した研究が報告されている。このような「物質内における異常な光速度」は、自然物質では構成原子の共鳴線近傍で生じる屈折率変化に起因する。メタマテリアルの場合には「メタ原子」が、これに対応する共鳴的な光応答を担う。本研究の成果は、個々のメタ原子の光応答ダイナミクスや、パルスに与えられる強度、空間波形、時間波形の変調についての詳細な理解を与え、新規光デバイス・光素子開発に繋がるものである。

研究成果の概要(英文)：An experimental and theoretical study of the dynamics of femtosecond surface plasmon wave packets interacting with metal-insulator-metal (MIM) nanocavities (NCs), which are typical meta-atoms for constructing metasurfaces in the near-infrared region, has been performed. The wave packet exhibits a shift of up to \pm several μm in the intensity peak position after transmission through the MIM-NC. The amount of this shift can be continuously manipulated by controlling the eigen frequency of the MIM-NC or the chirp of carrier frequency of the wave packet. This effect corresponds to a manipulation of an "apparent group refractive index", which is defined from the "apparent group velocity" of the wave packet transmitting through the MIM-NC, in the range of -40 to 60 .

研究分野：物性物理学

キーワード：表面プラズモン メタマテリアル 超高速現象 ナノ構造 顕微鏡 フェムト秒 時間分解

1. 研究開始当初の背景

「光と物質」についての基本的な問いのひとつに、「光の伝搬速度(群速度)」の問題がある。古くはゾンマーフェルトの先駆信号の観測[Pleshko, Palocz, PRL (1969)]があり、2000年頃からは物質の光吸収の共鳴振動数付近に生じる異常分散を利用した c を超える群速度(速い光; superluminal)や、極端に遅い群速度(遅い光; subluminal)、負の群速度(negative group velocity)の実現が、自然物質(冷却原子など)と人工物質(メタマテリアル、フォトニック結晶など)の両方を含む種々の物質群において報告されるようになった。自然物質の場合、構成原子の共鳴線の近傍で生じる屈折率変化が、非定型な光伝搬を生じると解釈される。メタマテリアルの場合には、メタ原子がこの共鳴的な応答を担う。

メタマテリアルとはサブ波長サイズの微小光共振器の配列からなる人工物質であり、各々の共振器は入射波に対して位相、振幅、偏光のシフトが付与された散乱波を放出するように機能する。各メタ原子の光応答が、入射光のスペクトル幅、ならびに、照射領域にわたって重ね合わされた結果として、光パルス全体の時空間的な振る舞いが決定される。メタ原子はまた、光の振動数領域の交流電磁波に対して磁気的な共鳴応答を生じることにより、自然物質にはない、負値を含む1以外の値の比透磁率(μ)を実現し、負の屈折率を発生するための要素ともなる[Grigorenko, *et al.*, Nature (2005), Dolling *et al.*, Science (2006)]。

また、近年、波面の各位置における波数ベクトルと振動数を精密に制御する構造化光や、光の進行軸上における周波数チャープと色収差の組み合わせ技術など、超短光パルスの時間-空間結合性をあらわに用いた新しいパルス制御法が開発され、ほぼ任意と言える光パルスの群速度(もしくは、ピーク強度速度)の制御性が示されるに到っている。これらのことから、個々のメタ原子の光応答ダイナミクスや、その結果としてパルスに与える強度、空間波形、時間波形の変調についての理解が、光の新規な制御性に基づいた様々な展開のために、ますます重要性を増している。一方、メタマテリアルの実験的な研究は、ほとんどの場合、遠隔場(far-field)における光線光学的な計測による光学特性の評価に限られる。上述の負の群速度や負屈折率媒質中の後退波に関しても、時間領域差分(FDTD)法などの数値計算による多大なシミュレーションがあるものの、それらと直接比較することが可能な、「特異な光伝搬の様子を微視的に観察」した実験はほとんどなく、現象の実験的な検証・解明は進んでいないといえる。

2. 研究の目的

本研究は、新奇な光の状態を生じる物質内への光パルスの入射や伝搬のダイナミクスを、詳細な時間分解観察により解明することを目的とする。しかし一般に、ポリウムのある3次元の物質中を伝搬する光を可視化するのは困難である。そこで、本研究では、問題を二次元面内における波束のダイナミクスに落とし込み、メタサーフェスへと入射する表面プラズモンポラリトン(SPP)波束の様子を、時間分解顕微鏡法を用い、10フェムト秒、サブミクロンメートルの時間-空間分解能で動的に可視化する。特に、入射波束が単一のメタ原子と相互作用し、変調を生じる過程の微視的な映像化を行い、波束の空間的な形状や分布が時間経過と共にどのように変形していくかを理解する事を目的とする。

3. 研究の方法

金属膜上を伝搬するフェムト秒表面プラズモン(SPP)波速が同一平面上に形成されたメタ原子に入射し、光学的相互作用を経由して再び波束として出射する様子を時間分解顕微鏡法により映像化する。メタ原子として、Au薄膜上に金属-絶縁体-金属型ナノキャビティ(MIM-NC)を形成する。MIM-NCはフィッシュネット型メタマテリアルの単位構造であり、光の振動数領域において交流電磁場に対し磁気共鳴を生じる事が可能なメタ原子として代表的である。様々な構造長のMIM-NCを作製し、固有周波数を系統的に変化させたメタ原子に対し表面プラズモン波束を入射する。金属膜上にはMIM-NCに加え、フェムト秒レーザーの照射によりSPP波速を励起するためのAuナノリッジ構造を形成した。これらの試料作製には、NIMS微細加工プラットフォーム、および、筑波大学微細加工プラットフォームを利用した。波束の励起とその後の動的な挙動の可視化は、パルス幅10フェムト秒、中心波長810nmのチタン・サファイアレーザーを光源に用いた、時間分解二光子蛍光顕微鏡法を用いて行った。また、MIM-NCの設計、および、SPP波速との相互作用における電磁場分布の時間的・空間的な発展の様子の解析には、時間領域差分(FDTD)法による数値シミュレーションを用いた。

4. 研究成果

(1)FDTDシミュレーションによるフェムト秒SPP波速とMIM-NCの相互作用の解析

SPP波の電場・磁場に共鳴するMIM-NCを金(Au)薄膜上に設置し、遠方からSPP波速を入射した場合における相互作用ダイナミクスについてFDTDシミュレーションによる詳細な調査を行った。SPP波速の到達に伴い、MIM-NCの絶縁体層部分には電磁場強度の濃縮が生じ、空間的に強く束縛されたSPP固有モードの励起が生じる。束縛された電磁場強度のスペクトルを評価した

ところ、スペクトルはキャビティの構造長に依存して振動数が変化する複数のピークを有し、それぞれのピーク周波数は有限長の MIM 型 SPP 導波路におけるファブリー・ペロー共鳴周波数の解析解と概ね一致した。

特に SPP 波速の時間・空間的な振る舞いに関する内容としては、以下の事が明らかになった。

1. SPP 波束が NC に入射した際に取り得る経路は、大きく「透過 (reflection)」と「反射 (transmission)」の 2 つに分けられる。NC により散乱され、大気中に散逸する割合は低く抑えられる。さらに、「透過」の経路は、NC 内部を通過する浸透波 (penetration) と、NC の外側を通る回折波 (diffraction) に区分される。(図.1)

2. MIM-NC は SPP 波束に対しファブリー・ペローエタロン型の周波数フィルタとして機能し、透過スペクトルの強度分布は概ね共振器の共鳴スペクトルと一致する。浸透波と回折波の干渉の結果、いわゆる Fano 型のスペクトル形状を示す。透過波以外のスペクトル成分は反射される。その結果、透過波束と反射波束のスペクトルは互いに相補的な関係になる。(図.2)

3. SPP 波束は Au 薄膜表面を伝搬中、表面プラズモン分散曲線の曲率に由来する群速度分散により、パルス先頭部から後尾部にかけ周波数が上昇する正チャープを呈する。共振器により広帯域な SPP スペクトル成分のうち一部分のみが選択的に切り取られることにより、共鳴ピークが波束スペクトルの低 (高) 振動数側に一致する場合、透過波束のピーク強度位置が前進 (後退) し、見かけ上の群速度が増大 (低下) する。(図.3)

とりわけ、上記 3 の特性は、波束の見かけの群速度が MIM-NC の共振周波数の選択により制御できることを示しており、メタ材料構造による波束伝搬の新たな制御法を提案するものである。(N. Ichiji, Y. Otake, A. Kubo, "Spectral and temporal modulations of femtosecond SPP wave packets induced by resonant transmission/reflection interactions with metal-insulator-metal nanocavities", Opt. Express, 27, 22582-22601 (2019))

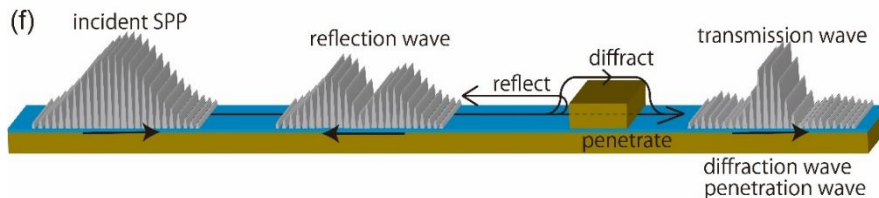


図.1 金属膜上に設置されたメタ原子 MIM ナノ共振器に入射する SPP 波束の光学応答の模式図

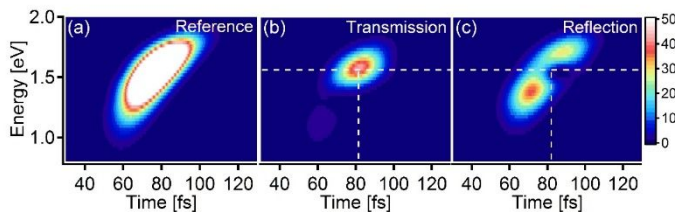


図.2 SPP 波束の時間-周波数プロット。(a): 平坦 Au 表面における波束、(b): 構造長 160nm の MIM-NC を透過した波束、(c): 同 MIM-NC で反射した波束。MIM-NC の透過波束の強度ピーク的位置は、時間軸、周波数軸のいずれに対しても、反射波束に現れる強度ディップの位置に一致して

おり、透過波束と反射波束は互いに相補的な関係にある。

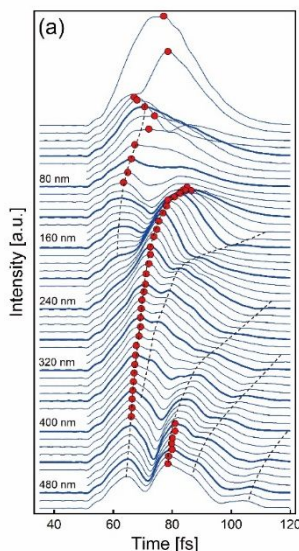


図.3 構造長 0 ~ 500 nm の MIM-NC に対する、透過 SPP 波束の包絡線形状。赤丸は各々の包絡線の強度が最大となる時刻を示す。MIM-NC がない (構造長 0 nm) 場合の強度ピークは 80 fs に位置する。MIM-NC の構造長の増大に伴い包絡線形状に変化が生じ、これにより強度ピークの時刻にもシフトが生じる。構造長 0 nm を基準としたピーク時刻のシフトは、前進側・後退側のどちら側にも生じ、シフト時間は最大で約 ± 10 fs である。

(2) 時間分解顕微鏡法によるフェムト秒 SPP 波速と MIM-NC の相互作用の可視化

SPP の励起光源にパルス幅 10 fs、中心波長 810 nm のフェムト秒レーザーを用い、試料には Au 蒸着膜上に Al_2O_3 を積層した基板に、構造長 50 ~ 200 nm の Au ナノブロックを形成することで共鳴振動数を系統的に変化させた MIM-NC を作製して用いた。Au ナノリッジ構造から出射され

た SPP 波束が Au 表面を伝搬し、MIN-NC に到達・透過する様子を、ポンプ-プローブ時間分解蛍光顕微鏡法により動的に可視化した。顕微イメージングの結果から透過波束の振幅、および波束のピーク位置を決定したところ、両者とも MIM-NC の構造長の変化に対して敏感な応答を示し、透過率：0.2~0.8、ピークシフト量：±数 μm の範囲で変化した。波束の空間シフトの方向、および量は、MIN-NC の構造長を <10 nm の精度で変化させ、SPP 波束スペクトルに対する共振器固有モードエネルギーの離調を精密に決定することにより、制御できることが示された。FDTD シミュレーションとの比較から、この現象は、Au 膜上の伝搬によりチャープ印加された SPP 波束に対し、ナノ共振器の固有モードによるスペクトルの「切り取り」が働き、フェムト秒波束の時間-空間結合性を介して、波束の強度ピーク座標のシフトを与えた結果であると解釈された。

チャープ広がりを伴う SPP 波束の伝搬現象とキャビティ共鳴によるフィルタリング効果の両方を包含した物理モデルを、表面プラズモンモードの複素分散曲線(Complex dispersion curve, CD)に基づき構築した(CD モデル)。本モデルに基づき、波束の強度ピーク位置の変調は、共振器の固有エネルギーの調整だけに依るのではなく、SPP 波束を励起するフェムト秒レーザーのチャープを外因的に変化させることによっても制御できることを示した。

ナノ共振器の透過前後における波束ピーク位置の時間変化から、波束が共振器を通過する際の「見かけの群速度 (v_g^{ap})」を定義する事ができる。平坦面における SPP 波束の群速度 (v_g^{SPP}) に対する比として「見かけの群屈折率 ($n_g^{ap} = v_g^{SPP}/v_g^{ap}$)」を計算すると、レーザーパルスの外因的チャープによる n_g^{ap} の制御の範囲は -40~60 にも及び、いわゆる速い光、遅い光、負の群速度の全領域を含む速度変調の実現を示唆する結論が得られた。(論文投稿中、N. Ichiji, Y. Otake, A. Kubo, "Spatiotemporal control of femtosecond surface plasmon polariton wave packets with nanocavities", arXiv:2103.07568)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Dai Yanan, Zhou Zhikang, Ghosh Atreyie, Mong Roger S. K., Kubo Atsushi, Huang Chen-Bin, Petek Hrvoje	4. 巻 588
2. 論文標題 Plasmonic topological quasiparticle on the nanometre and femtosecond scales	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature	6. 最初と最後の頁 616 ~ 619
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41586-020-3030-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Ichiji Naoki, Otake Yuka, Kubo Atsushi	4. 巻 27
2. 論文標題 Spectral and temporal modulations of femtosecond SPP wave packets induced by resonant transmission/reflection interactions with metal-insulator-metal nanocavities	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 22582 ~ 22601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.27.022582	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Ichiji Naoki, Kubo Atsushi	4. 巻 11278
2. 論文標題 Resonance-enhanced transmission of surface plasmon polariton wave-packets through metal-insulator-metal nanocavities	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Proceedings of SPIE	6. 最初と最後の頁 1127815-1~8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1117/12.2544586	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 T. Sugiyama, A. Kubo, T. Nakano	4. 巻 1
2. 論文標題 Plasmonic modulator driven by phase-transition of GST superlattice	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Extended Abstracts of the 2019 International Conference on Solid State Devices and Materials	6. 最初と最後の頁 101~102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 A. Kubo, T. Sugiyama, K. Sato, T. Nakano	4. 巻 1
2. 論文標題 Plasmonic Modulator based on Hybrid Plasmonic Waveguide	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proceedings of the 31st Symposium on Phase Oriented Science PCOS 2019	6. 最初と最後の頁 12-15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kosei Ueno, Jinghuan Yang, Quan Sun, Daisuke Aoyo, Han Yu, Tomoya Oshikiri, Atsushi Kubo, Yasutaka Matsu, Qihuang Gong, Hiroaki Misawa	4. 巻 14
2. 論文標題 Control of plasmon dephasing time using stacked nanogap gold structures for strong near-field enhancement	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Materials Today	6. 最初と最後の頁 159-165
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apmt.2018.12.004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計23件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 伊知地直樹, 久保敦
2. 発表標題 ナノ共振器構造の固有モード共鳴によるフェムト秒SPP波束の空間形状変化
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊知地直樹, 久保敦
2. 発表標題 金属-絶縁体-金属型ナノキャビティの固有モード共鳴によるフェムト秒プラズモン波束の時間-空間変調
3. 学会等名 日本光学会ナノオプティクス研究グループ 第27回研究討論会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 久保敦
2. 発表標題 プラズモニクナノ構造表面における波束伝搬
3. 学会等名 Optics & Photonics Japan 2020 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊知地直樹, 久保敦
2. 発表標題 ナノ共振器構造によるフェムト秒SPP波束の空間形状変化の実空間観測及び評価
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊知地直樹, 久保敦
2. 発表標題 ナノキャビティによるスペクトル変調とパルスレーザーチャープを用いたSPP波束の空間分布制御
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 N. Ichiji, A. Kubo
2. 発表標題 Resonance-enhanced transmission of surface plasmon polariton wave-packets through metal-insulator-metal nano-cavities
3. 学会等名 SPIE Photonics West (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 久保敦
2. 発表標題 近赤外域プラズモニック導波路におけるフェムト秒波束の導波
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会 第40回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊知地直樹, 久保敦
2. 発表標題 ナノ共振器共鳴によるチャープSPP 波束の時間・空間分布の狭窄化とチャープ量依存性
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会 第40回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 組澤悠真, 宮崎純, 久保敦
2. 発表標題 Time-Resolved Imaging of Femtosecond Telecom-Wavelength Surface Plasmon Polaritons in Dielectric Loaded Waveguides
3. 学会等名 第13回表面・界面スペクトロスコピー
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 久保敦
2. 発表標題 金属ナノ構造による表面プラズモン波の導波制御
3. 学会等名 2019年日本表面真空学会学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 久保敦
2. 発表標題 ナノサイズメタ原子とプラズモン波束の相互作用の可視化 ” , 口頭
3. 学会等名 OCU先端光科学シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 組澤悠真, 宮崎純, 久保敦
2. 発表標題 誘電体堆積型導波路における通信波長帯フェムト秒表面プラズモンポラリトンの時間分解観察
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊知地直樹, 久保敦
2. 発表標題 MIM型ナノキャビティの固有モード共鳴による表面プラズモン波束の透過強度変調
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊知地直樹, 久保敦
2. 発表標題 FDTDシミュレーションによる金属-絶縁体-金属積層型ナノキャビティを通過するフェムト秒表面プラズモン波束のスペクトル変調の評価
3. 学会等名 第16回プラズモニクスシンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Ichiji, A. Kubo
2. 発表標題 The modulation of femtosecond SPP wavepackets induced by MIM nano cavities
3. 学会等名 The 8th Advanced Lasers and Photon Sources (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Sugiyama, A. Kubo, T. Nakano
2. 発表標題 Plasmonic modulator driven by phase-transition of GST superlattice
3. 学会等名 2019 International Conference on Solid State Devices and Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 久保敦, 杉山岳, 佐藤健輔, 中野, 隆志
2. 発表標題 Plasmonic Modulator based on Hybrid Plasmonic Waveguide
3. 学会等名 PCOS 2019, The 31st Symposium on Phase Change Oriented Science (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊知地 直樹、久保 敦
2. 発表標題 金属-絶縁体-金属型ナノキャビティを透過するフェムト秒表面プラズモンポラリトン波束のスペクトル変調
3. 学会等名 Optics & Photonics Japan 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Atsushi Kubo
2. 発表標題 Applications of imaging techniques of surface plasmons to topological plasmonics
3. 学会等名 Third informal workshop "Variety and universality of bulk-edge correspondence in topological phases: From solid state physics to transdisciplinary concepts"
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 伊知地直樹、久保敦
2. 発表標題 フェムト秒表面プラズモン波束のナノキャピティ通過に伴う遅延
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 杉山岳, 久保敦, 中野隆志
2. 発表標題 [(GeTe) ₂ (Sb ₂ Te ₃) ₁] _n 超格子を用いたハイブリッドプラズモニック変調素子
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 伊知地直樹、久保敦
2. 発表標題 金属/絶縁体/金属(MIM)型ナノキャピティによるフェムト秒表面プラズモン波束の遅延の観測と数値シミュレーションによる評価
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第39回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 杉山 岳, 久保 敦, 中野 隆志
2. 発表標題 [(GeTe) ₂ (Sb ₂ Te ₃) ₁] _n 超格子の相転移を用いたハイブリッドプラズモン導波路モードの強度変調素子
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第39回年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

筑波大学研究者総覧 https://trios.tsukuba.ac.jp/researcher/0000000553 researchmap https://researchmap.jp/kubo_atsushi
--

6. 研究組織			
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
米国	University of Pittsburgh		
その他の国・地域 台湾	National Tsing Hua University		