

学位プログラム名 物理学学位プログラム

学籍番号 202030036

学生氏名 伊知地直樹

学位名 博士(理学)

指導教員 池沢道男 印

博士論文題目 Spatio-temporal control of surface plasmon polariton wave packet  
(表面プラズモンポラリトン波束の時間-空間制御)

### はじめに

金属-絶縁体界面に束縛された電子の集団振動運動、Surface plasmon polariton (SPP)は極めて微小な領域に強い電場を局在させることができることから、センシングデバイスや光ピンセット技術など幅広い応用可能性を有している[1]。特に、回折限界を超えた電場の閉じ込め効果と光速に近い伝搬速度から、高速ではあるが集積化が困難であるフォトニック回路と高集積が可能であるものの低速度であるエレクトロニクス回路の中継点としての役割が期待されている[2]。デバイス応用の可能性に加え、エバネッセント場を有する表面波である SPP が横方向スピン角運動量(transverse spin angular momentum:  $t$ -SAM)を有することが報告されたことから、基礎科学的な観点からも改めて注目されている[3]。伝搬方向と直交する一方向に固定される SPP の $t$ -SAM は、量子スピンホール効果の光学対応とみなされ、方向選択的励起やトポロジカル準粒子状態等多岐にわたる研究が報告されている[4-6]。

デバイス応用と基礎科学どちらの分野においても、SPPの実験的研究を行う上では指定した座標に設計した運動量を持つ SPP を励起することが重要である。しかし、導波路構造を有さない平坦な金属平面上を伝搬する SPP は回折や分散の影響を受けるため、励起された SPP には電場強度の減衰と波束形状の空間的な変化が生じてしまう。伝搬に伴う回折がもたらす波束の拡散は自由空間を伝搬する光波束においても解決すべき課題であり、Bessel ビームや Airy ビームなど、光の波面をコントロールすることで無回折な伝搬特性を有した波を構築する試みが古くからおこなわれてきた[7, 8]。これらの自由空間において実証された無回折ビームの概念を SPP に適用することにより、Cosine SPP 波や Airy plasmon 波等の無回折特性を有した無回折 SPP 波が実現されている[9, 10]。しかしながら、これらの無回折 SPP 波を励起するためには金属平面上に精密に設計されたナノスケール SPP 励起構造を構築する必要があり、高い微細加工技術が必須となるとともに試料表面上の特定箇所においてのみしか励起することができない。加えて、現在報告されている無回折 SPP 波束の励起構造は単一周波数に合わせた設計が必用であり、幅広いスペクトル幅を有した超短パルスへの適用は原理上困難である。それゆえに、伝搬軸と直交方向水平方向両方に空間的な束縛を持ちながら伝搬する SPP 波束、いわゆる plasmonic bullet は現時点で実現されていない。

近年、回折格子を用いて光波束を周波数分解したのちに個々の周波数成分の波面を制御することで、新規な伝搬特性を有した光波束を構築する技術が実験的に実証された。波束を構成する周波数成分ごとに空間的な位相制御を行うことで新規な伝搬特性を有する波束を構築する技術は space-time (ST)波束と呼ばれ、無回折特性[11]や調節可能な群速度[12]、伝搬中の加減速[13]等様々な伝搬特性を有した ST 波束が実証されている[14]。ST 波束の特異な伝搬特性は真空中だけに限定されず、媒質境界における異常屈折現象や分散媒質中における無分散伝搬の可能性などが報告されてきた。2020年には K. L. Shepler らによって ST 波束の概念を SPP に導入した SPP 波束、ST-SPP 波束が提唱された[15]。先行研究では金属平面上において ST-SPP 波束が励起されたと仮

定し、励起された波束が金属平面上を励起時点での空間形状を保ったまま無回折、無分散に伝搬することを理論的に示している。一方で、ST-SPP 波束の実験検証は自由空間中の ST 波束が SPP を励起可能なことの確認にとどまっております[16]、ST-SPP 波束の伝搬現象を実験的に確認した報告は現時点において存在していない。

ST-SPP 波束の実験的な励起にむけた主要な課題は自由空間中において構築した ST 波束を金属平面上における SPP に結合させる際に生じる周波数特性の変化である。自由空間中の光から SPP への結合は一般に金属平面に設置されたリッジ構造やスリット構造などの散乱体に光を入射することで行われるが、自由空間中の光と SPP は異なる分散関係を持つため励起光と SPP の間には波長の変化が生じる。また、光-SPP 間の結合効率は SPP 励起部の幾何学形状および金属の誘電関数に応じた周波数依存性を有している。一般に SPP の励起に用いられる回折格子構造は特定周波数において高い励起性能を有するため、単色平面波の励起には適している一方で励起光のスペクトル特性を保持したまま SPP 波束を励起する用途には励起には適さない。それゆえに、ST-SPP 波束の実験的観測には励起用 ST 波束の設計及び光-SPP 結合構造の最適化が必須である。加えて、現時点における ST-SPP 波束の理論的研究は最も単純な誘電関数モデルを用いた金属平面上における伝搬特性のみに限られており、複雑な空間構造とエネルギー流れを有する ST-SPP 波束に付随すると考えられる SAM 及びスピネクスタは未検討な課題である。

本博士論文では、①数値計算による ST-SPP 波束のスピン角運動量の評価、②Finite Differential Time Domain(FDTD)シミュレーションによる ST-SPP 波束の励起可能性の検討、③二光子蛍光顕微鏡法を用いた ST-SPP 波束の実験的観測を行った。以下に各研究内容の概要を記述する。

## 概要

第一章で論文全体の概要を述べたのち、第二章においてST波束及びST-SPP波束の理論的記述を含んだ背景情報を記述した。ここでは第二章において記述したST-SPP波束の理論背景を簡単に述べる。

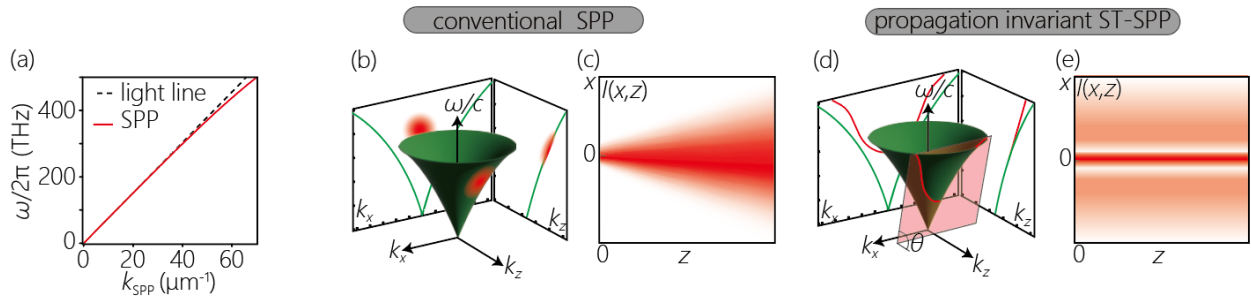


図1. (a)表面プラズモンの分散関係図。(b)通常SPP波束の分散関係図。緑色のコーンが $k_z^2 + k_x^2 = k_{SPP}^2$ を満たす。(c)通常SPP波束の強度プロファイル模式図。(d)ST-SPP波束の分散関係図。半透明の赤色で示された spectral planeとSPPライトコーンの交線がST-SPP波束のスペクトル領域に相当する。(e) ST-SPP波束の強度プロファイル模式図。

一次元上を伝搬するSPP波束の計算には、時間周波数 $\omega$ と空間周波数 $k$ の関係、分散関係が用いられる(図1 (a))。波束の群速度を表す $d\omega/dk$ が常に一定値をとる真空中の光(図1. (a)黒破線)とは異なり、SPPは周波数に応じて異なる群速度を示し、曲線状の分散関係を示す(図1. (a) 赤線)。フェムト秒パルスのような広いスペクトル帯域を有する波束の場合には、波束内部の伝搬速度差は波束内部に周波数勾配を生じさせ、伝搬距離が増加するにつれ伝搬軸方向へのチャープとして反映される[17]。加えて、伝搬軸に直行する方向への回折も波束形状の変形の要因となり、金属平面上を伝搬するSPP波束には二次元的な空間広がりが生じる。このような波束の二次元的な伝搬現象を考えるためには、従来の分散関係図における波数軸を波数平面に拡張した三次元分散関係図、SPP-ライ

トコーンが用いられる[15]。図1. (b)は二次元平面を伝搬する回折を有した通常のSPP波束のSPPライトコーン上のスペクトル領域を図示したものである。縦軸が時間周波数を、水平軸が波数を表し、緑色のSPP light coneの表面がSPPの分散関係 $k_z^2 + k_x^2 = k_{SPP}^2$ に相当する。なお、ここではSPPの伝搬する平面を $xz$ 平面とし、伝搬方向を $z$ として定義した。通常のSPP波束は各周波数成分が幅を持った $k_x$ 成分を有しているため、SPPライトコーン上における分布は二次元的な面積を有する。このSPP波束は伝搬とともに拡散し、放射状の強度プロファイルを示す(図1. (c))。これに対し、伝搬不変ST-SPP波束は図1. (d)に示すようにSPPライトコーンと $k_x$ 軸に平行なspectral planeの交線によって定義される。波束を構成する周波数成分ごとに設計した $\pm k_x$ 成分を与えることで時間周波数 $\omega$ と空間波数 $k_x$ の間に一対一の関係を与え、一次元状のスペクトル領域を構築する。この時、 $\omega - k_z$ 平面に射影される軸上の分散関係は直線になり、 $d\omega/dk_z$ は周波数にかかわらず一定の値となる。それゆえに、伝搬不変ST-SPP波束は伝搬軸の上において伝搬距離に依存しない空間形状を保ち、図1. (e)に示すようなビーム状強度プロファイルを示す[11]。

第三章では、ST-SPP 波束の各電場、磁場成分からポインティングベクトルの導出を行い、ST-SPP 波束の伝搬に付随する SAM 及びスピネクスタの計算を行った。図 2. (a,b)に群速度 $v_g$ を真空中の光速 $c$ に設定した ST-SPP 波束のポインティングベクトルを示す。ST-SPP 波束の伝搬軸方向成分 $P_z$ と伝搬軸に直行する方向への横向き成分 $P_x$ をプロットした。ポインティングベクトルの空間形状からは、ST-SPP 波束が二本の帯状の波束によって形成されていることが確認できる。 $z$ 軸方向へのポインティングベクトル( $P_z$ )が常に正の値を示す一方で、 $P_x$ は二本の帯状波束構造がそれぞれ正と負の値を示していた。計算により、ST-SPP 波束の調節可能な群速度が互い違いのエネルギー流れを有する二つの波束の斜め方向への移動によって説明できることが明らかになった。

二次元平面上において一様な強度分布を示す SPP の場合、 $\mathbf{S} = \text{Im}(\epsilon \mathbf{E}^* \times \mathbf{E} + \mu \mathbf{H}^* \times \mathbf{H}) / (2\omega)$ で表される $t$ -SAM は界面に水平かつ伝搬方向に直行する一成分しか存在し得ない。しかし、ST-SPP 波束のような二次元的な空間構造とエネルギー流れを有する表面波の場合にはエネルギー流れ密度の勾配によって界面垂直方向へも $t$ -SAM が存在し、三次元的なスピネクスタの分布を有する[18, 19]。図 2. (c-e)に ST-SPP 波束の SAM の各成分を示す。SAM の面内成分はエネルギーの方向と直交する向きに固定されるため、 $P_z$ と $S_x$ 、 $P_x$ と $S_z$ がそれぞれ対応する空間分布を持つ(図 2. (c,d))。また、面内エネルギー流れ密度の回転で表される SAM の面外成分 $S_y$  ( $S_y = \partial P_z / \partial x - \partial P_x / \partial z$ )が波束中央部に生じることが確認された(図 2. (e))。  $P_z$ 、 $S_x$ 、 $S_y$ の分布は先行研究で示された $x$ 方向に Cosine 関数型の空間分布を有する SPP の SAM の計算結果と無矛盾であった[18]。加えて、磁気スキルミオン構造における創発磁気に対応するスピネクスタの計算を行った結果、ST-SPP 波束には有限のトポロジカル粒子密度が付随して伝搬することが明らかになった。

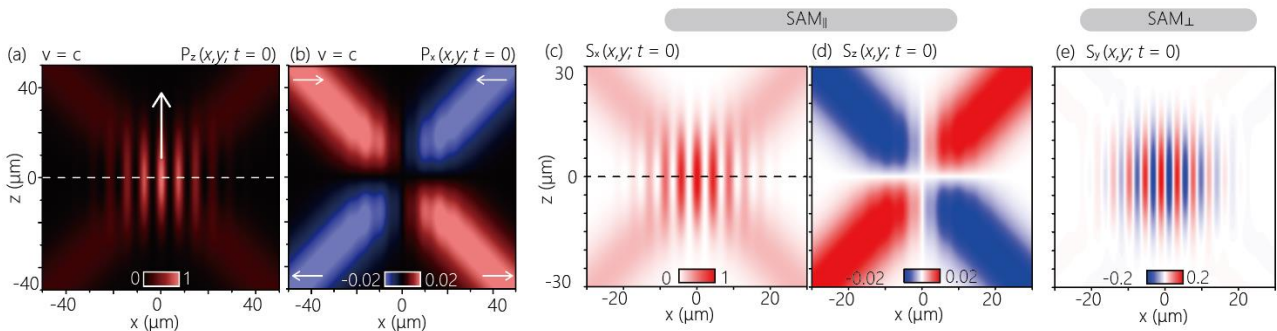


図 2. (a,b) ST-SPP 波束の面内ポインティングベクトルの空間分布 $P(x, z; t = 0)$ 。(c-e) ST-SPP 波束の SAM の各成分の空間分布 $S(x, z; t = 0)$ 。

第4章には、FDTDシミュレーションによるST-SPP波束の励起手法の検討結果を示す[20, 21]。第一にFDTDシミュレーション上において平面波源の重ね合わせによってST波束を構築し、これまでに実験的に確認されているST波束の伝搬特性[14]がシミュレーションソフト上において再現されていることを確認した。次に、金属平面上に設けた幅100 nmの単スリット構造をSPP励起構造とし、ST波束の照射によるST-SPP波束の励起及び伝搬特性の検証を行った。結果として、自由空間中においてSPPの分散曲線をもとに位相調整量を事前補正した励起用ST波束を用いることで設計した群速度を有する伝搬不変ST-SPP波束の構築が可能であることが示された。

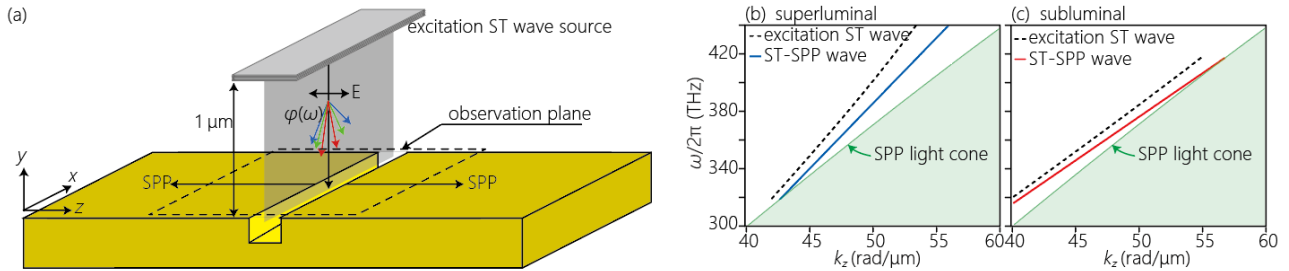


図3 (a)FDTDシミュレーションにおけるモデル模式図。(b,c)ST-SPP波束の励起に用いられる励起用ST波束の $\omega - k_x$ 分布図。半透明の緑領域がSPPの分散関係を、実線が励起するST-SPP、黒破線が励起用ST波束の分散関係を示している。(b) $v_g = c$ , (c) $v_g = 0.8c$ 。

ST-SPP波束の実験観測は第五章及び第六章に記述した。第五章では、FDTDシミュレーションで評価した励起手法の確認として、スリット近傍で励起されたST-SPP波束と励起ST光の自己干渉ビートを観測した[22]。ST-SPP観測光学系として、励起用ST波束構築系とSPP検出系からなる光学系を新規に構築した(図4.(a))。励起用ST波束構築系は回折格子、シリンドリカルレンズ、及び空間光変調器(Spatial light modulator: SLM)から構成され、回折格子で周波数分解された光にSLMを用いて周波数成分ごとに設計した位相変調を与えることでST波束を構築する。この際、本研究で使用する超短パルスレーザーの波長帯域は先行研究で伝搬不変ST-SPP波束を導出する際に仮定していた波長幅と比較して非常に大きく、スペクトルの全領域において位相制御を行う場合必要な変化量が担保できないことが明らかになった。このため、少ない位相変調量で構築が可能なST-SPP波束を設定し、観測対象とした。本実験では、伝搬軸に対して直交方向に周波数にかかわらず一定の波数成分 $k_x$ を設定することで伝搬軸と直交する方向に周期 $\lambda_x$ を有するstriped ST-SPP波束を設計した(図4.(b,c))。

SPPの可視化には二光子蛍光顕微鏡法を用いた。試料表面で励起されたST-SPPは励起直後に試料表面を走査する励起光自身と干渉し、試料表面において干渉ビートを形成する。試料表面には蛍光色素を含んだPMMA層を塗布しており、試料表面の電場分布は蛍光色素の二光子蛍光を介してCCDカメラで取得される。実験の結果、SPPの波長を反映した伝搬軸方向へのビートパターンに加えて伝搬軸に直行する周期的なパターンが確認された(図4.(d))。得られた蛍光顕微鏡像の空間分布は数値計算によって精度よく再現された。また、striped ST-SPP波束の横方向への周期 $\lambda_x = 2\pi/k_x$ はSLMの位相パターンによって調節可能である。本実験では $\lambda_x$ を10 μmから30 μmまで変化させ、設計した $\lambda_x$ を有するstriped ST-SPP波束の励起が可能であることを確認した(図4.(f-i))。

最後に、ST-SPP観測系に遅延光学系を追加し、時間分解観察系を用いたST-SPP波束の伝搬現象の観測を行った(第六章)。超短パルスはpump光とprobe光に分離され、pump光はST波束構築系へ、probe光は遅延光学系に入射する。ST光がST-SPPを励起したのちに遅延時間 $\tau$ 秒後にprobe光を試料表面に入射することにより、スリットから一定距離伝搬したST-SPP波束とprobe光の間に生じる干渉ビートを取得する。Pump光をスリット付近に集光させ、probe光を横方向に広い領域に照射することで、設計したビーム幅を持つstriped ST-SPP波束が数十μmの距離にわたって伝搬する様子を確認した。得られた蛍光顕微鏡像より背景強度を除去して遅延時間に依存して伝

搬するビートパターン画像を取得し、時間積分をとることで強度プロファイルを取得した。得られた強度プロファイルはレイリー長の約5倍以上の距離にわたってST-SPP波束が同一の幅で伝搬をした様子を示した。以上の実験結果より、無回折特性を有したST-SPP波束の実験的励起及び観察に成功したと結論付けた。

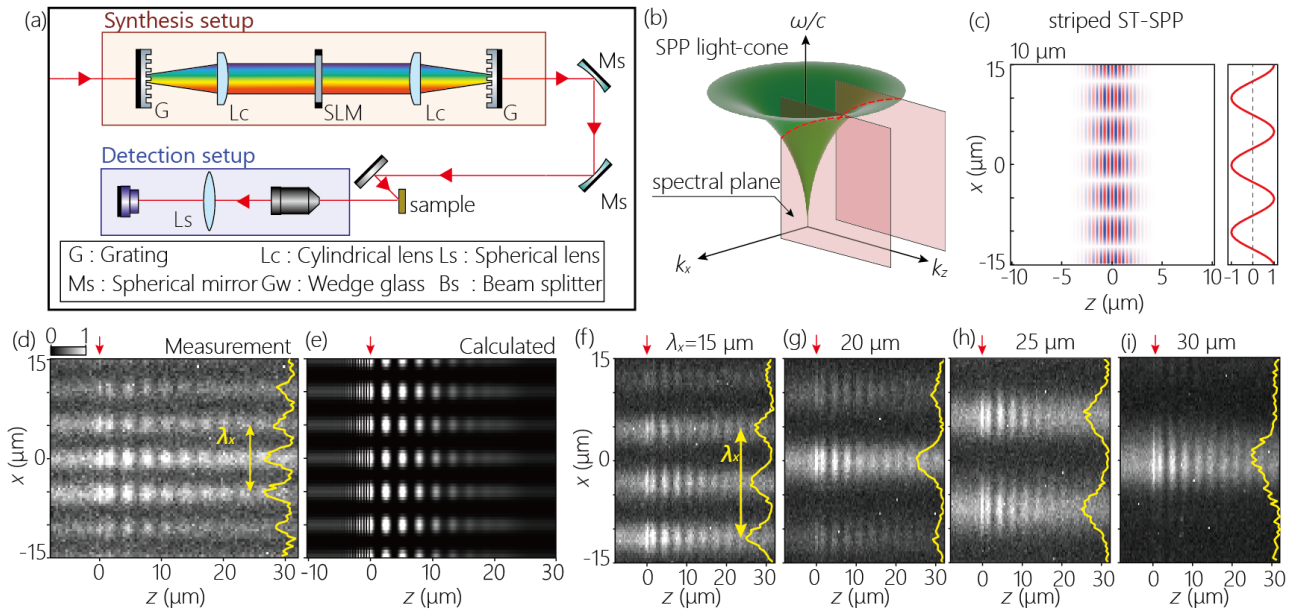


図 4. (a)ST-SPP 波束観測光学系全体模式図。赤四角領域が励起用 ST 波束構築光学系、青四角領域が SPP 観測光学系を示す。(b)ST-SPP 波束の分散関係図。SPP ライトコーンと iso- $k_x$  平面の交線によってスペクトル領域が定義される。(c) $\lambda_x = 10 \mu\text{m}$  の striped ST-SPP 波束の電場分布図  $E(x, z; t = 0)$ 。横パネルに示す赤線は  $z = 0 \mu\text{m}$  における断面分布。(d,e)  $\lambda_x = 10 \mu\text{m}$  の striped ST-SPP 波束の (d) 蛍光顕微鏡像及び (e) 数値計算結果。(f-i)  $\lambda_x = 15 \sim 30 \mu\text{m}$  の striped ST-SPP 波束の蛍光顕微鏡像。

## 結論

本論文では、ST-SPP 波束の伝搬特性について数値計算、電磁界シミュレーション、二光子蛍光顕微鏡法を用いて研究を行い、1. ST-SPP 波束には面内/面外両方の SAM が付随し、有限のトポロジカル粒子密度分布が伝搬付随すること、2. 適切に事前補正した励起光をナノスリット構造に照射する手法により設計した伝搬特性を有する ST-SPP 波束を励起できることを明らかにした。FDTDシミュレーションによって検討した励起手法をもとに ST-SPP 波束観測光学系を新規に構築し、設計された空間幅を保ったまま伝搬する ST-SPP 波束をサブミリスケールで実験的に観測した。

本研究結果は、これまで理論計算でのみ提唱されていた ST-SPP 波束の初めての実験的実証であるとともに、複雑な励起構造を用いることなく二次元的な空間構造を有する SPP 波束の励起が可能であることを示している。幅広いスペクトル幅を有したフェムト秒波束におけるサブミリスケールでの無回折伝搬はこれまでに報告されておらず、本研究結果は構造化 SPP の実験的研究への高い応用可能性を有する。

また、理論計算により明らかになった ST-SPP 波束の空間構造に起因するスピントロニクス及びトポロジカル粒子密度の発現は、今回実験的に実証した ST-SPP 波束に創発磁場が付随することを示している。空間的な移動を伴う光学トポロジカル構造は理論的にもほぼ未検討な分野であるが、今回の研究により伝搬する面直 SAM や創発磁場などが実験的に観測可能な可能性が示唆された。これらの研究結果は、SPP の空間構造に付随する創発磁場の観測や、ST-SPP 波束への磁場の印加による伝搬コントロールなど、スピントロニクス及び光学トポロジカル分野の研究の可能性を大きく広げるものである。

今回の実験では光学系の対応する位相変化量が限られていたために伝搬不変 ST-SPP 波束ではなく striped ST-SPP 波束を対象として観測を行ったため、光学系の対応する位相変調量を拡大することによる伝搬不変 ST-SPP 波束の実験的励起及び観測が今後の課題となる。また、構造を有した SPP の界面垂直方向への SAM の実験的観測はすでに報告されており[18, 23]、ST-SPP 波束に付随する SAM の空間分布の観測光学系の構築も今後の検討課題とする。

## References

- [1] W.L. Barnes, A. Dereux, T.W. Ebbesen, Surface plasmon subwavelength optics, *Nature*, 424 (2003) 824-830.
- [2] T.J. Davis, D.E. Gomez, A. Roberts, Plasmonic circuits for manipulating optical information, *Nanophotonics-Berlin*, 6 (2017) 543-559.
- [3] K.Y. Bliokh, A.Y. Bekshaev, F. Nori, Extraordinary momentum and spin in evanescent waves, *Nat Commun*, 5 (2014).
- [4] A. Aiello, P. Banzer, M. Neugebauer, G. Leuchs, From transverse angular momentum to photonic wheels, *Nat Photonics*, 9 (2015) 789-795.
- [5] K.Y. Bliokh, D. Smirnova, F. Nori, Quantum spin Hall effect of light, *Science*, 348 (2015) 1448-1451.
- [6] Y.A. Dai, Z.K. Zhou, A. Ghosh, R.S.K. Mong, A. Kubo, C.B. Huang, H. Petek, Plasmonic topological quasiparticle on the nanometre and femtosecond scales, *Nature*, 588 (2020) 616-+.
- [7] Z.Y. Liu, D.Y. Fan, Propagation of pulsed zeroth-order Bessel beams, *Journal of Modern Optics*, 45 (1998) L17-L21.
- [8] G.A. Siviloglou, J. Broky, A. Dogariu, D.N. Christodoulides, Observation of accelerating airy beams,

Phys Rev Lett, 99 (2007).

[9] J. Lin, J. Dellinger, P. Genevet, B. Cluzel, F. de Fornel, F. Capasso, Cosine-Gauss Plasmon Beam: A Localized Long-Range Nondiffracting Surface Wave, *Phys Rev Lett*, 109 (2012).

[10] A. Minovich, A.E. Klein, N. Janunts, T. Pertsch, D.N. Neshev, Y.S. Kivshar, Generation and Near-Field Imaging of Airy Surface Plasmons, *Phys Rev Lett*, 107 (2011).

[11] H.E. Kondakci, A.F. Abouraddy, Diffraction-free space-time light sheets, *Nat Photonics*, 11 (2017) 733-+.

[12] H.E. Kondakci, A.F. Abouraddy, Optical space-time wave packets having arbitrary group velocities in free space, *Nat Commun*, 10 (2019).

[13] M. Yessenov, A.F. Abouraddy, Accelerating and Decelerating Space-Time Optical Wave Packets in Free Space, *Phys Rev Lett*, 125 (2020).

[14] M. Yessenov, L.A. Hall, K.L. Schepler, A.F. Abouraddy, Space-time wave packets, *Adv Opt Photonics*, 14 (2022) 455-570.

[15] K.L. Schepler, M. Yessenov, Y. Zhiyenbayev, A.F. Abouraddy, Space-Time Surface Plasmon Polaritons: A New Propagation-Invariant Surface Wave Packet, *Acs Photonics*, 7 (2020) 2966-2977.

[16] M. Diouf, J.A. Burrow, K. Krishna, R. Odessey, A.F. Abouraddy, K.C. Toussaint, Excitation of surface plasmon polaritons by diffraction-free and vector beams, *Appl Opt*, 61 (2022) 7469-7473.

[17] 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 (2019) 22582-22601.

[18] P. Shi, L.P. Du, C.C. Li, A.V. Zayats, X.C. Yuan, Transverse spin dynamics in structured electromagnetic guided waves, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 118 (2021).

[19] L.P. Du, A.P. Yang, A.V. Zayats, X.C. Yuan, Deep-subwavelength features of photonic skyrmions in a confined electromagnetic field with orbital angular momentum, *Nat Phys*, 15 (2019) 650-+.

[20] N. Ichiji, M. Yessenov, K.L. Schepler, A.F. Abouraddy, A. Kubo, Propagation analysis of space-time surface plasmon polariton wave packet excited by light irradiation on nanobeam structure, *Ultrafast Phenomena and Nanophotonics Xxvi*, 11999 (2022).

[21] N. Ichiji, M. Yessenov, K.L. Schepler, A.F. Abouraddy, A. Kubo, Exciting space-time surface plasmon polaritons by irradiating a nanoslit structure, *arXiv*, DOI [https://doi.org/10.48550/arXiv.2212.05450\(2022\)](https://doi.org/10.48550/arXiv.2212.05450(2022)).

[22] N. Ichiji, H. Kikuchi, M. Yessenov, K.L. Schepler, A.F. Abouraddy, A. Kubo, Observation of ultrabroadband striped space-time surface plasmon polaritons, *ACS Photonics*, DOI [https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.2c00296\(2022\)](https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.2c00296(2022)).

[23] C. Taneja, D. Paul, G.V.P. Kumar, Experimental observation of transverse spin of plasmon polaritons in a single crystalline silver nanowire (vol 119, 161108, 2021), *Appl Phys Lett*, 119 (2021).