

人工物質「ナノ原子」の光応答を100兆分の1秒の時間分解能で可視化

近年、「メタマテリアル」と呼ばれる人工物質群の研究が急速に進んでいます。これらは、光の波長よりも小さな光共振器や光アンテナを多数並べた配列構造により、自然物質にはない、新しい光学的機能を持っており、平面型レンズや反射防止膜、発光・受光素子などの光デバイス開発に応用されています。メタマテリアルを構成する光共振器や光アンテナの一単位を「メタ原子」と呼びます。金属型のメタ原子では、電子と光の結合波（表面プラズモン波）が構造体にまとわり付くように励起されることで巨大な分極が生じ、光に対し非常に強い応答を示します。このような、メタマテリアルの動作原理を根本的に解明し、デバイスの精緻な設計を実現するためには、メタ原子一つひとつの光応答の高精度な観察が必要です。

今回、本研究グループが開発したフェムト秒レーザー励起二光子蛍光顕微鏡法を用い、メタ原子の一つであるナノ光共振器（構造長約100 nm）に表面プラズモン波束が入射し、相互作用を経て通り抜ける様子を、100兆分の1秒の時間分解能で可視化することに成功しました。

ナノ共振器を通り抜けた表面プラズモン波束には±数 μm の強度ピーク位置のシフトが観察され、通り抜けに伴う共鳴的な相互作用が波束の空間形状を変形する効果が確認されました。このピークシフトは、共振器の構造長、もしくは、波束を励起する光パルスの調整により制御できます。

本研究成果により、メタマテリアルの進歩と、それによる新規光デバイス開発のさらなる加速が期待されます。

研究代表者

筑波大学数理物質系

久保 敦 講師

研究の背景

光に関する物理学の分野において、光パルスの時空間的な振る舞いを制御することは重要であり、さまざまな物質を用いて、その方法が研究されてきました。そのうち、人工物質を用いた例として、メタマテリアル^{注1)}があります。メタマテリアルは、光の波長よりも小さな光共振器^{注2)}や光アンテナ^{注3)}などのメタ原子の配列構造によって構成されており、一つひとつのメタ原子は、入射光と散乱光との間に、特定量の位相、振幅、偏光の変調を与えます。これら多数の足し合わせの効果として、異常反射、異常屈折、ベクトルビーム形成、波長フィルター、光加速、超短パルスレーザー整形など、さまざまな機能を持つ光学素子の設計・製作が可能になります。従って、光パルスが、メタ原子の単位構造との相互作用を通じてどのように変形・変調されるのかを観測し評価することが、メタマテリアルの動作原理を根本的に理解するために不可欠です。

メタマテリアルの特徴的な光学的性質（入射光とメタ原子との相互作用）が観察されるのは、メタ原子の共鳴振動数付近の周波数領域に限られます。そのため、微細なメタ原子と限られた領域の光パルスとの相互作用を観測することは困難であり、実験的な評価方法の確立が課題となっていました。

研究内容と成果

本研究では、メタ原子として、構造長約 100nm の金属-絶縁体-金属型ナノ共振器（MIM-NC）を金属表面上に作製し、この試料表面のやや離れた位置で、光パルスを電子-光結合波（表面プラズモン^{注4)}波、SPP）の波束^{注5)}に変換して MIM-NC に入射する方法により、単一のメタ原子と光パルスとが相互作用する系を同一平面上に実現しました。この試料を、本研究グループが以前に独自開発したフェムト秒時間分解二光子蛍光顕微鏡法（TR-2PFM）^{注6)}で観察したところ、SPP 波束が金属表面上を伝搬して MIM-NC に到達し、共鳴的な相互作用を経て通り抜けていく様子を、10 フェムト秒（100 兆分の 1 秒）の時間分解能、0.5 μm の空間分解能で、顕微的に可視化することに成功しました（図 1）。その結果、MIM-NC を通過した波束には、ピークの位置に数 μm 程度の後方シフト、あるいは前方シフトが生じることを見いだしました（図 2）。

MIM-NC の構造長を 50~220 nm の範囲で系統的に変化させて同様の観察を行うと、この波束の位置シフトは MIM-NC の持つ共鳴振動数、および、波束のチャープ広がり^{注7)}と密接に結びついており、波束のスペクトル中心に対して共鳴振動数を高（低）振動数側に離調させた場合には通り抜け波束に後方（前方）シフトが生じ、さらにスペクトル幅内に 2 つの共鳴振動数が入るように調整した場合には通り抜け波束には 2 ピークへの分裂が生じることが明らかになりました（図 3）。波束の位置シフトと形状変化は MIM-NC の構造長に対し鋭敏であり、数 10 nm の変調を加えるだけでシフト方向の前後の切り換えが生じます。

理論的な解析の結果、これらの現象は MIM-NC のファブリー-ペローエタロン^{注8)}型の光学特性と表面プラズモンモードの複素分散関係^{注9)}で解釈できることが示されました。さらに、波束のシフト方向の前後の切り換えは、MIM-NC の共鳴振動数を調整しなくても、SPP 波束を励起する光パルスに正もしくは負のチャープを外から加えることによって起こることが分かりました。通り抜け波束の位置シフトは、波束が MIM-NC を通り抜ける際の「見かけの群速度異常」を生じます。現実的なチャープ印加で操作できる位置シフト量は +6~-8 μm 程度であり、これを見かけの群屈折率^{注10)}に換算すると、-40~+60 にも及ぶ巨大な光学効果に相当します。このように大きな光学効果は、メタマテリアルに新たな設計指針を与え得るものです。

今後の展開

本研究チームが開発したフェムト秒時間分解二光子蛍光顕微鏡法が、今回、マイクロメートルスケールの空間内における固体の光励起状態の時間・空間的な振る舞い、特に電子と光の結合状態である表面プラズモン波の動的な性質を研究する上で非常に強力な手法であることが示されました。また、表面プラズモン波は従来型の光デバイスを小型化・高集積化し高密度な情報処理デバイスを構築する上での鍵になると考えられています。本研究成果は、さまざまな新規光学機能を持つナノ構造人工物質や表面プラズモン波で情報伝送を行うプラズモニックデバイスの開発につながると期待されます。

参考図

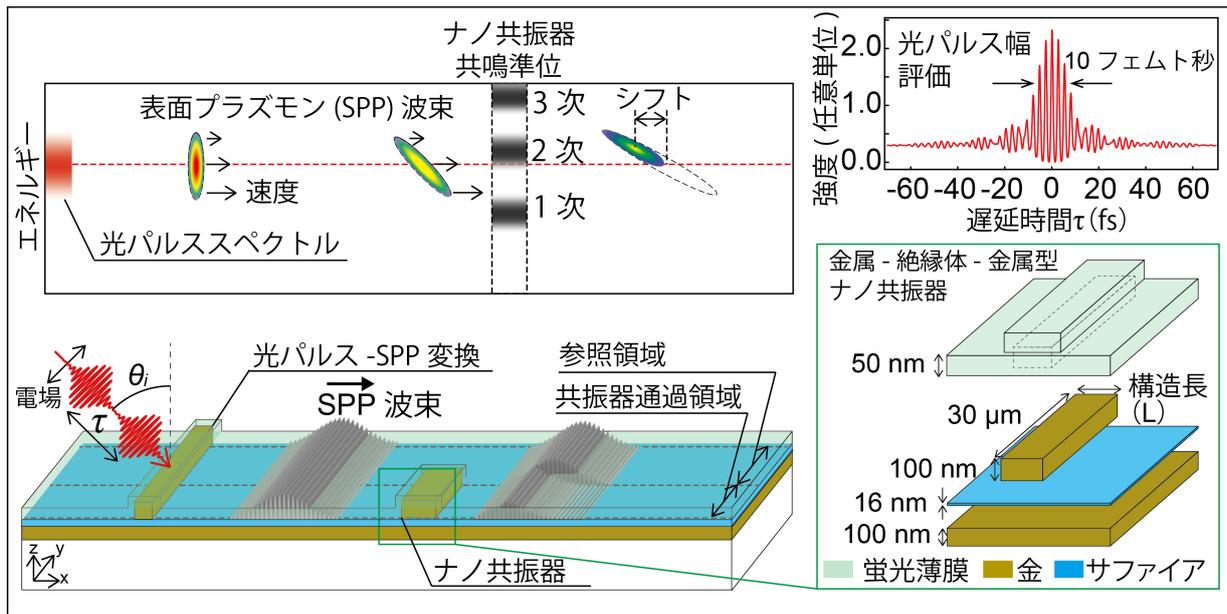


図1 本研究に用いた実験手法の概略図

金薄膜（下図、茶色領域）の上に作製されたナノ共振器に向け、光パルス-SPP変換を介して生成した表面プラズモン（SPP）波束を、少し離れた位置から出射する（左下図）。ナノ共振器は、金薄膜の上に薄いサファイア層と金ナノブロック（構造長： L ）を重ねた構造である（右下図）。このような構造を、金属-絶縁体-金属（MIM）型と呼ぶ。SPP波束が伝搬しナノ共振器を通り抜けるまでの様子を、10フェムト秒の時間分解能で可視化した（上図）。ナノ共振器を通り抜けたSPP波束の強度ピーク位置には、平坦部（参照領域）に対するずれ（シフト）が見いだされた。

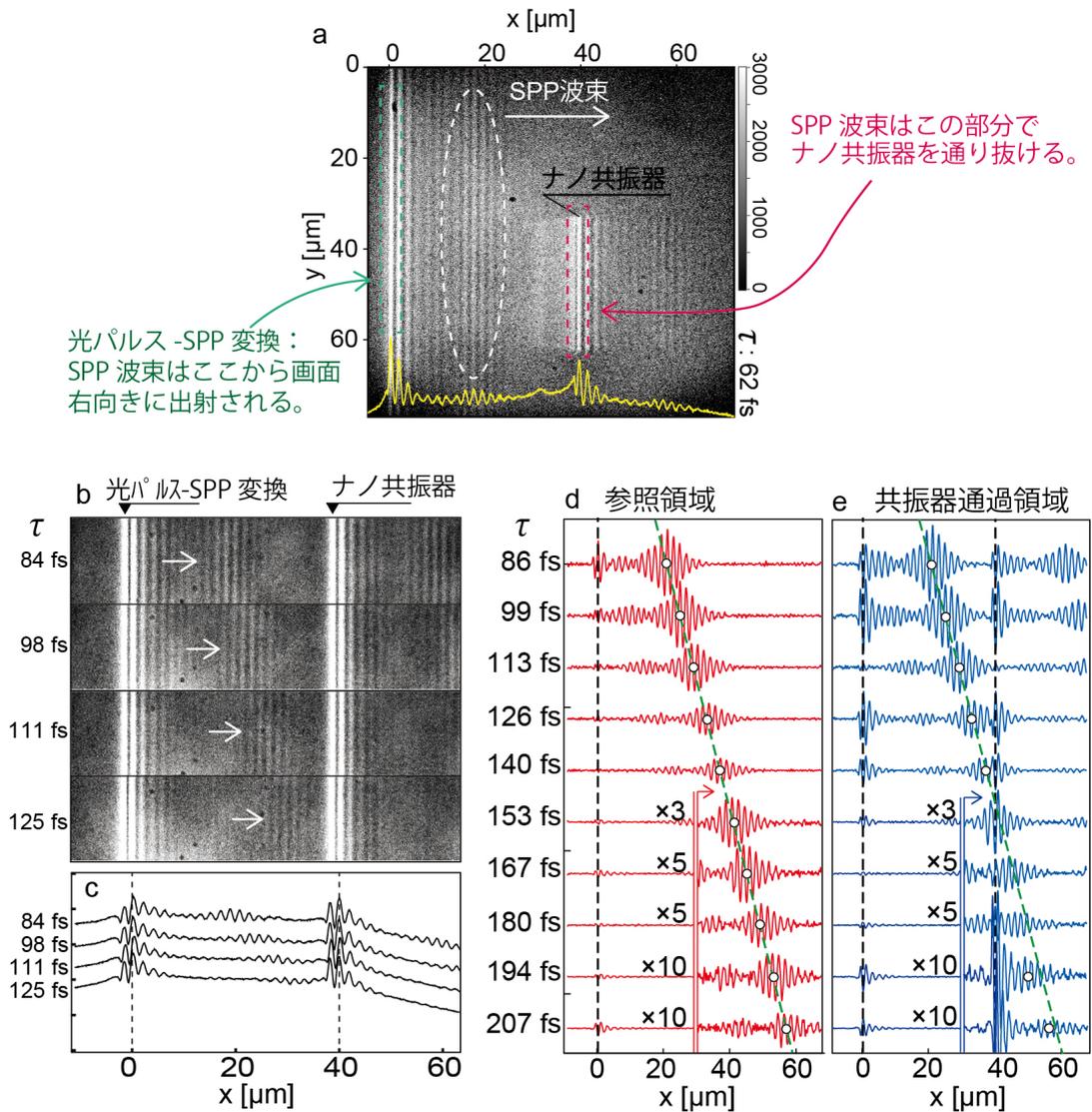


図2 ナノ共振器を通り抜ける表面プラズモン波束の時間分解映像のスナップショット

(a) 表面プラズモン波束は「光パルス-SPP変換」部で生成の後、画面右方向に向かって伝搬する。(b) 波束の伝搬が、白色の矢印で示すビート状パターンの動きとしてイメージングされる。(c) bの各スナップショットを画面の縦方向に加算平均した断面図。(d, e) 背景強度除去後の波束を広い時間範囲に渡り示した。(e) このナノ共振器（構造長 160nm）を通り抜けた後の波束の後方シフト（約 $2\mu\text{m}$ ）。

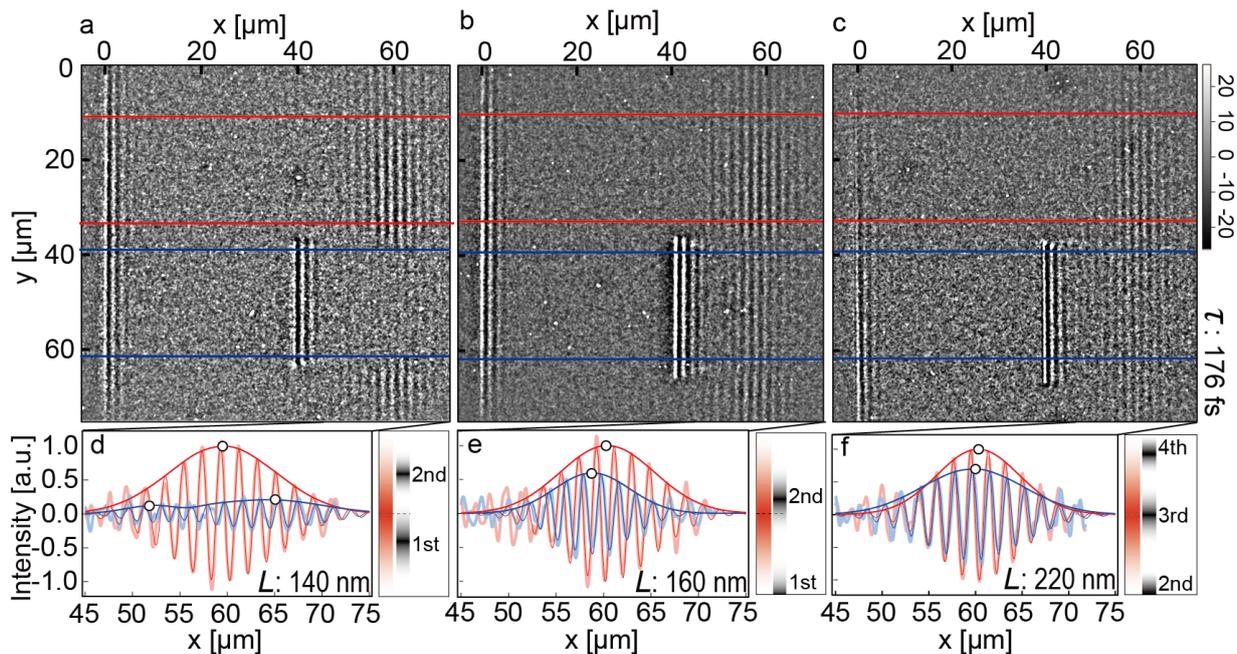


図3 ナノ共振器の共鳴振動数の「離調」による通り抜け波束のシフトの制御

(a-c) 通り抜け波束の顕微像 (a : ナノ共振器の構造長 $L = 140\text{nm}$ 、b : $L = 160\text{nm}$ 、c : $L = 220\text{nm}$)、(d-f) それらの断面 (赤色 : 参照領域、青色 : 共振器通過領域、波束のスペクトルに対する各共振器の共鳴振動数 (1st~4th) の位置を枠外に併せて示す)。(a,d) 2つの共鳴振動数 (1st, 2nd) による波束のダブルピーク化。(b,e) 離調 (高振動数側 ; 2nd) による波束の後方シフト。(c,f) 同調 (3rd) によるピークシフトの消失。

用語解説

注1) メタマテリアル

光 (電磁波) の波長よりも小さな構造体を利用して、物質の電磁気学的な特性を人工的に操作した疑似物質。メタマテリアルの構成要素をメタ原子と呼ぶ。

注2) 光共振器

光 (電磁波) を限定的な空間領域に閉じ込めるために鏡などの光の反射体で構成された構造。共振器内部における光のエネルギー密度の増大をもたらす。

注3) 光アンテナ

光に対し大きな散乱断面積を持つように設計されたナノ構造。金属ナノロッド (棒) などで構成される。

注4) 表面プラズモン

金属と絶縁体 (誘電体) の界面に局在し、界面に沿って伝搬する電磁波モード。表面プラズモンポラリトンとも呼ばれる。金属内における自由電子の粗密波と絶縁体側における電磁波とが結合した状態。

注5) 波束

電磁波など、波の振幅が空間に均一に広がっておらず、限定的な有限の部分に限られている状態。

注6) フェムト秒時間分解二光子蛍光顕微鏡法 (TR-2PFM)

フェムト秒レーザー (本研究では、時間幅 10 フェムト秒) の照射により試料に生じた励起を、試料表面に塗布した蛍光層の二光子励起蛍光発光を利用して波長変換し、光学顕微鏡で可視化する手法。レーザーパルスを時間間隔が定まった二重パルスに整形し、一定間隔で増大させながら順次顕微像を取得す

ることにより、試料の励起を動的に可視化することが可能である。(参考) T. Hattori, A. Kubo, K. Oguri, H. Nakano, H. T. Miyazaki, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 04DG03 (2012).

注7) チャープ広がり

光パルスを構成する交流電磁場の周波数が一定ではなく、時間経過と共に上昇もしくは下降することをチャープといい、チャープが生じることでパルスの時間幅が延展することをチャープ広がりという。

注8) ファブリー-ペローエタロン

二枚の反射平面を微小な距離を隔てて平行に向かい合わせた光学素子。共鳴振動数の光に対し大きな透過率を示す。

注9) 複素分散関係

波の波数 k と角周波数 ω 間の関係 $k(\omega)$ を分散関係と言い、特に波数が実部と虚部の両方を持つ複素数の場合を複素分散関係と呼ぶ。

注10) 群屈折率

物質中における光の群速度 v_g と真空中の光速 c との比、 c/v_g を群屈折率という。物質の種類と光の波長によって異なる値をとるが、可視光域におけるガラスでは1.4~1.6程度。原子の特殊な共鳴条件を用いるなどにより、極端に大きな値や負値などの異常値が実現しうる。最大では、真空中に浮遊させた超低温原子気体において、群屈折率約1700万を達成した報告例がある。

研究資金

本研究は、科研費(JP14459290, JP16823280, JP18967972, JP20J21825)、文部科学省 光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)「先端レーザーイノベーション拠点「次世代アト秒レーザー光源と先端計測技術の開発」部門」(JPMXS0118068681)、JST 戦略的創造研究推進事業(CREST)、文部科学省「ナノテクノロジープラットフォーム」事業、他の研究プロジェクトの一環として実施されました。

掲載論文

【題名】 Femtosecond imaging of spatial deformation of surface plasmon polariton wave packet during resonant interaction with nanocavity.

(表面プラズモンポラリトン波束とナノ共振器との共鳴的相互作用に伴う変形のフェムト秒イメージング)

【著者名】 Naoki Ichiji, Yuka Otake, Atsushi Kubo

【掲載誌】 Nanophotonics

【掲載日】 2022年2月25日

【DOI】 10.1515/nanoph-2021-0740

問い合わせ先

【研究に関すること】

久保 敦 (くぼ あつし)

筑波大学数理物質系 講師

URL: <https://www.u.tsukuba.ac.jp/~kubo.atsushi.ka/>

【取材・報道に関すること】

筑波大学広報室

TEL: 029-853-2040

E-mail: kohositu@un.tsukuba.ac.jp