

## 複素分散モデルによるフェムト秒表面プラズモン波束伝搬の解析

## Analysis of fs-Surface Plasmon Wave Packets using the Complex Dispersion Relations

筑波大物理 軽部 大雅, 岩室 洋隆, 久保 敦

Univ. of Tsukuba, Hiromasa Karube, Hiroataka Iwamuro, Atsushi Kubo

E-mail: kubo.atsushi.ka@u.tsukuba.ac.jp

金、銀などの金属薄膜のエッジや薄膜上に形成したナノスケールの梁や溝といった構造を超短パルス光で照射すると、構造を起点として超短パルス状の表面プラズモン(SP)の波束が励起され、平坦面上へと伝搬する[1]。波束伝搬の様子は、時間分解二光子蛍光顕微鏡法により動的に可視化できる事を我々は過去に報告した[2]。この手法では、SPの励起光源に時間幅 10 fs の近赤外レーザーパルスを整形した同軸のポンプ-プローブパルス対を用いる。ポンプパルスで励起された SP 波束は、遅延時間( $\tau$ )を隔てて到達するプローブパルスと試料表面で干渉し、表面の電場にビート状の強度変調を誘起する。パルスの幅がきわめて短いため、SP とプローブパルスの干渉は空間的に限定された領域でのみ生じる。 $\tau$ を増大させながら干渉ビートの位置・形状の変化を順次画像化して行くことで、SP 波束のダイナミクスの可視化がなされる。時間分解像から SP の群速度や位相速度、寿命などを決定する事ができるが、当手法では SP-プローブ光干渉を観測しており、直接に SP 波束を観察していないため、動画像の解析には注意を要する。

今回、SP 波束の時間分解像を一体的に解釈し、波束ダイナミクスに関する情報をより明瞭にするため、SP の複素分散関係を用いた解析モデルを構築し[3]、時間分解像のシミュレーションを行った。モデルは 1 次元であり、 $x=0$  で 10 fs レーザーにより励起された SP 波束が正/負両方向に伝搬する。SP 波束の伝搬に伴う減衰と変形は次のように取り扱う：まず、試料の多層膜構造（空気/蛍光膜/金属蒸着膜/基板）に対する SP の複素分散関係から、複素波数ベクトルの実部、虚部 ( $k_{sp}(\omega) = k'_{sp}(\omega) + ik''_{sp}(\omega)$ ) を求める。次に、 $x=0$  での SP 波束 ( $P_{sp}(0,t)$ ) をフーリエ変換し、各フーリエ成分の初期位相  $\phi_i(0)$  と初期振幅  $R_i(0)$  を決定する。先に求めた複素波数ベクトルを用い、距離  $x$  での位相の増加は  $\phi_i(x) = \phi_i(0) + k'_{sp}(\omega_i) \cdot x$ 、振幅の減衰は  $R_i(x) = R_i(0) \cdot \exp(-k''_{sp}(\omega_i) \cdot x)$  と求められるので、あらゆる距離で位相と振幅を計算しそれらを逆フーリエ変換することで、各位置における SP 波束の形状 ( $P_{sp}(x,t)$ ) を得る。このようにして計算された  $P_{sp}(x,t)$  と、試料に斜め入射された励起光電場の和により局所的な電場強度が決定されるものとして時間分解像をシミュレートした。

幾つかの遅延時間における SP の時間分解像と該当するシミュレーション結果を Fig.1 に示す。両者は良く一致し、 $\tau$ の増大に伴い、画面中央部のナノ梁構造から左右に SP-プローブ光干渉のビートパターンが移動する様子が再現されている。特に、SP-プローブ光干渉の左右非対称性に起因する、ビート波長の違いや波束の伝搬速度の見かけ上の違いが良く再現されており、当解析モデルの妥当性を確認する事ができる。

[1] 久保敦, Hrvoje Petek, 表面科学 33, 235 (2012)

[2] 服部, 久保, 小栗, 中野, 宮崎, 2012 年春季応用物理学会

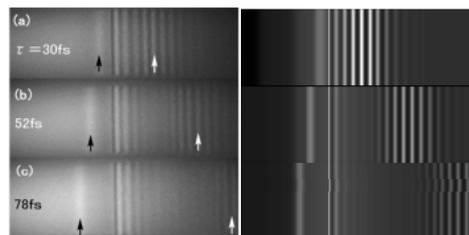
[3] L. Zhang, A. Kubo, L. Wang, H. Petek, T. Seideman, Phys. Rev. B 84, 245422 (2011)

Fig.1 10fs レーザーより励起された表面プラズモン波束の時間分解像(左)、および同シミュレーション