

# 相互相関型暗視野顕微計測を用いた金十字ナノ構造の応答関数計測

## Measurement of Response Function of Gold Nano Cross Structure using Dark-field

### Cross-correlation Microscopy

大井 潤 (M2)

Oi Jun

#### Abstract

We report the experimental results of response functions of gold cross nano structures measured by dark-field cross-correlation microscopy. Moreover, we demonstrated deterministic control in the ultrafast plasmon waveform based on the measured response function using femtosecond pulse shaping technique.

#### 1. はじめに

ナノ構造を持つ金などの貴金属は、紫外から近赤外域において局在プラズモン共鳴 (LSPR: Localized Surface Plasmon Resonance) という現象を発生する。超高速光パルスで励起された局在プラズモンの時空間特性に関しては、PEEM を用いて複素電界計測をした例や[1], 励起フェムト秒レーザーパルスのベクトル波形整形を用いて時空間制御する提案[2]などがこれまでに報告されている。近年, このようなフェムト秒レーザーパルスを用いた金や銀などの微粒子やナノ構造に照射したときのプラズモン応答関数を測定あるいは計算するといった研究が盛んに行われている。我々は PEEM よりも簡便な相互相関暗視野顕微鏡を用いることで, CCD で計測した 2 次元面内の複数の位置において同時に異なったプラズモン応答関数を計測した。この手法を用いることで, PEEM と比較してとても短い測定時間で相関波形を得ることが可能となった。こ

れによって周波数チャープや偏光を波形整形し, 時間的空間的にプラズモンダイナミクスを制御を行った。

#### 2. 実験セットアップ

試料は NTT-AT に外注して作製したもので, 厚さ  $625 \mu\text{m}$  のガラス基板上に高さ  $30 \text{ nm}$  の金ナノ構造が配置されている。金ナノ構造の設計形状と実際の形状の SEM 写真は, Fig. 1 に示したような十字構造である。十字構造はアスペクト比の異なるナノロッドがクロスした構造で,  $1 \mu\text{m}$  離れた位置に  $90^\circ$  回転させた構造が存在する。

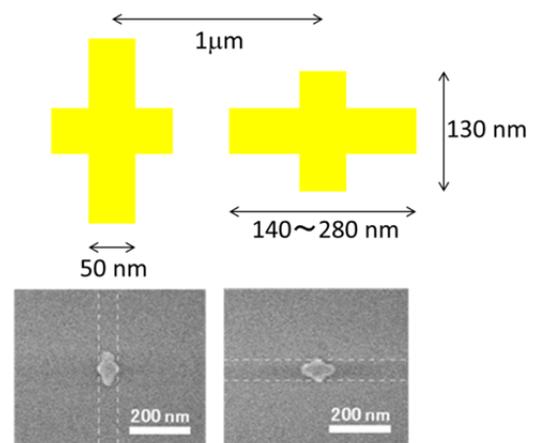


Fig. 1. Designed Au nanostructures and SEM images of fabricated structures by e-beam lithography.

本実験では, モード同期 Ti:Sapphire レーザ (波長  $650 \sim 1050 \text{ nm}$ , パルス幅  $10 \text{ fs}$ , 繰り返し周波

数 150 MHz, VENTEON) を用い, 相互相関型暗視野顕微鏡による応答関数計測および SLM を用いた励起レーザの波形整形により相互相関プラズモン時空間制御を行った。時空間制御の実験セットアップを Fig. 2 に示す。VENTEON のレーザ光は半波長板を用いて十字構造の軸方向に励起光の偏光を合わせ, そしてビームスプリッタによって signal 光と reference 光に分けられる。signal 光は凹ミラーを用いて試料に集光し, 試料によって発生する散乱光を対物レンズ( $\times 10$ ,  $NA=0.25$ )で CCD に入射した。一方, reference 光は, ピコモーターによって signal 光と約 0.066 fs の分解能を持つ遅延差をつけて直接 CCD に入射した。時空間制御では SLM で signal 光のみの周波数位相を変調したが, 応答関数計測では, SLM をビームスプリッタと半波長板の間に配置して実験を行った。CCD の直前に偏光子を挿入し, 偏光子を励起光の偏光と一致させた。CCD 画像上の任意の点の強度を遅延差をつけながら取得していくことにより, 相互相関波形を得た。応答関数は, 相互相関スペクトルおよび励起光スペクトルを用いて以下のように記述できる。

$$R(r, \omega) = \frac{\tilde{M}(\omega)}{|\tilde{E}_{ref}(\omega)|^2} \quad (1)$$

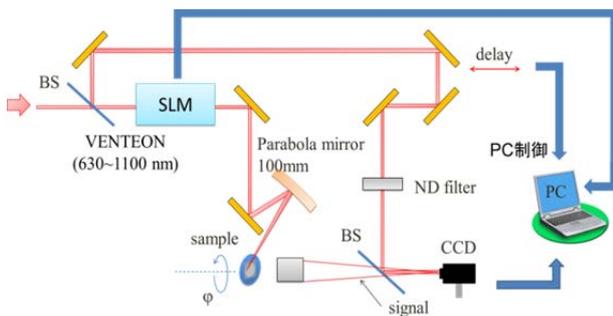


Fig. 2. Schematic of the experimental setup.

また, 富士通の Poynting for Optics という FDTD モデルを用いて金ナノロッドの応答関数計算を行った。シミュレーションは, ガラスの屈折率

を 1.45, 導電率を 0, 比透磁率を 1 とし, 金の波長 775 nm における屈折率を 0.17, 消衰係数を 4.86, 瞬間比透磁率を 12 のドルーデモデルとして計算を行った。

### 3. 実験結果

#### A. シミュレーション結果

テーパー角を考慮したアスペクト比  $R=2, 3, 3.5, 4$  の金ナノロッドの応答関数および VENTEON スペクトルを Fig. 3 に示す。Fig. 3 より, アスペクト比が 4 以上のナノ構造では励起光のスペクトルが共鳴波長と一致していないことがわかる。

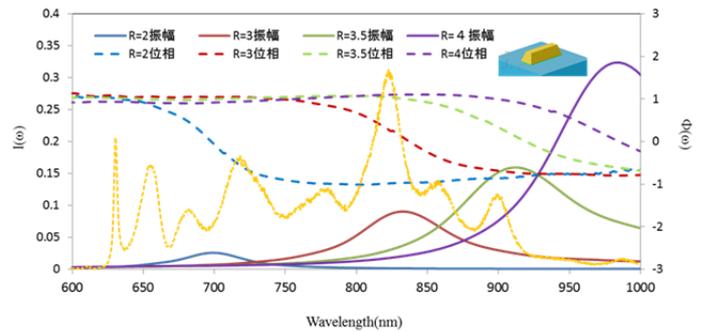


Fig. 3. Plasmon resonance function in frequency domain for  $R=2-4$ .

#### B. 応答関数計測

半波長板の適応波長が 700 nm から 1000 nm であるため, 励起光の 700 nm 以下の帯域を SLM によってカットした。

はじめに, 応答関数を計測した試料の CCD 画像を Fig. 4 に示す。Fig. 4 の青矢印, 赤矢印はそれぞれ励起光の偏光, 偏光子の角度を示している。A 点, B 点, D 点は励起光の偏光に対してそれぞれアスペクト比  $R=2.8, 3.2, 3.6$  の長軸が対応しており, C 点, E 点はアスペクト比  $R=2.6$  の短軸に対応している。

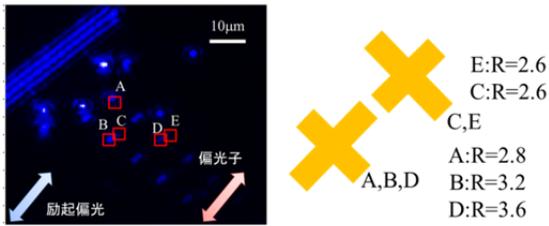


Fig. 4. CCD image of measured points.

また、偏光子の角度を変えることにより、十字構造の偏光特性を測定した結果を Fig. 5 に示す。Fig. 5 に示したアスペクト比はその軸に対して励起を行った結果である。Fig. 5 より、R を大きくしていくとプラズモンの偏光が楕円偏光になっていくことがわかる。これは、アスペクト比が大きいナノ構造の共鳴波長が励起光の波長帯域よりも長波長側にあるためであると考えられる。

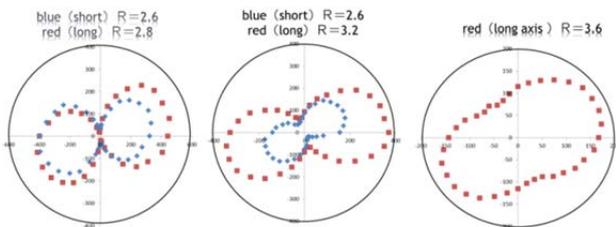


Fig. 5. Polarization property of each gold nanostructures.

つぎに、Fig. 4 に示した各点において相互相関波形を取得した。この際、励起光の偏光と偏光子の角度を Fig. 4 と同じにした場合の相互相関波形を Fig. 6 に、この相互相関波形から求められる応答関数を Fig. 7 に示す。

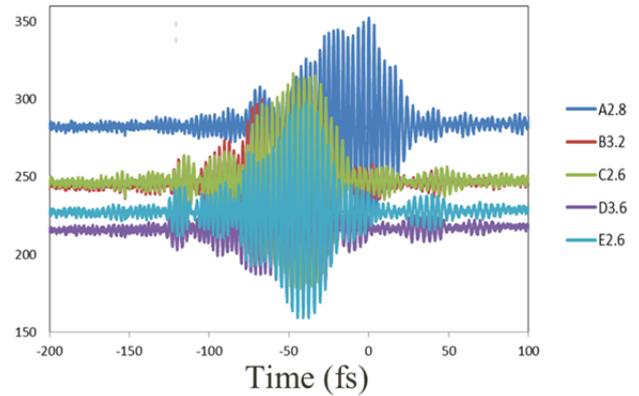


Fig. 6. Cross-correlation Waveform of gold nano structures.

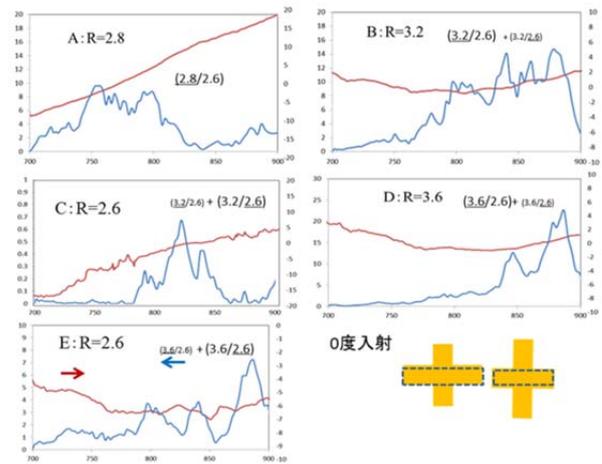


Fig. 7. Plasmon response function with 0 degree of excitation polarization.

Fig.7 において、青線、赤線はそれぞれスペクトル振幅、スペクトル位相を示している。この結果から、A 点の振幅と B 点の振幅、D 点の振幅はアスペクト比に対応して長波長側にシフトしていることがわかる。しかし、C 点に関しては、隣接する B 点、D 点のスペクトルと類似しており、これは  $1\mu\text{m}$  離れた十字構造の散乱成分の影響か、もしくはお互いに影響を及ぼしているためであると考えられる。また、位相に関してだが、共鳴吸収の箇所でのクラーマース・クロニッヒの関係で示されるような変化を

確認することはできなかった。

次に、励起光の偏光および偏光子の角度を 90 度回転させて同様の実験を行った。その結果を Fig. 8 に示す。Fig. 8 より、励起光の偏光を 90 度回転した場合も、スペクトル振幅はアスペクト比に対応して長波長側にシフトすることが確認できた。しかし、この結果においても隣接するナノ構造のスペクトルは類似するという結果となった。

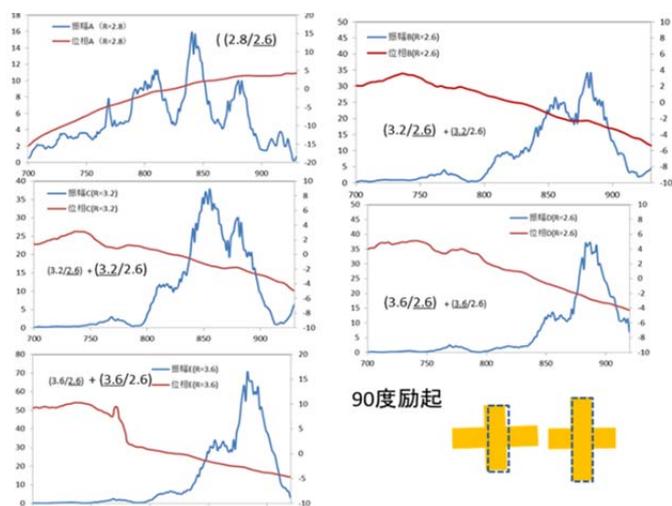


Fig. 8. Plasmon response function with 90 degree of excitation polarization.

### C. SLM を用いた相互相関プラズモン時空間制御

SLM を用いて signal 光に対して位相変調を加えることにより、プラズモン場の時空間制御が可能となる。Fig. 9 の CCD 画像上に示した点において、SLM によって signal 光に sin 変調および矩形波変調をそれぞれ Fig. 10, Fig. 11 に示す。

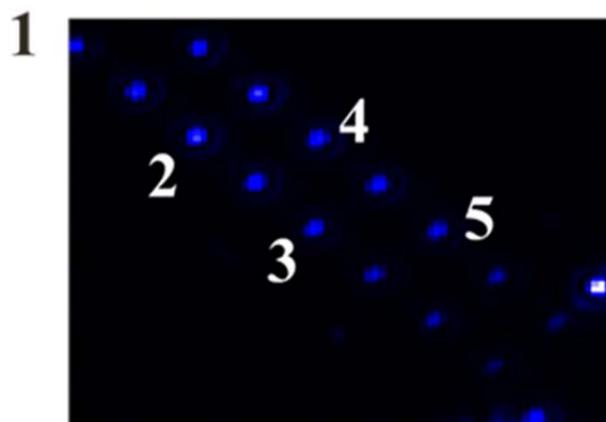


Fig. 9. CCD image of measured points

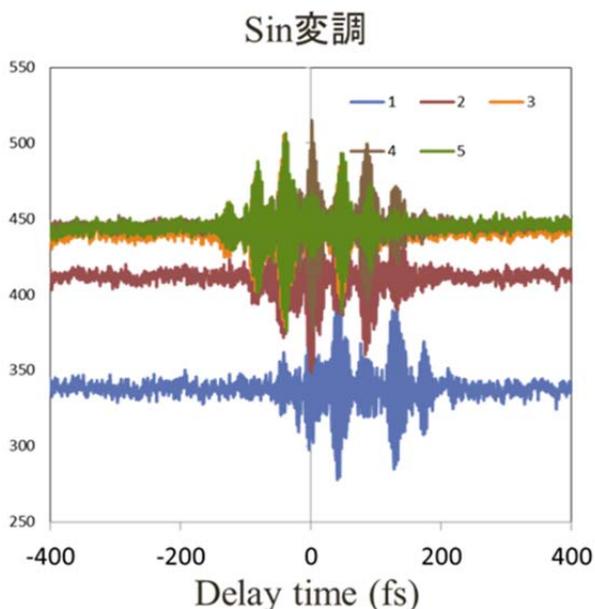


Fig. 10. Cross-correlation Waveform with sine modulation.

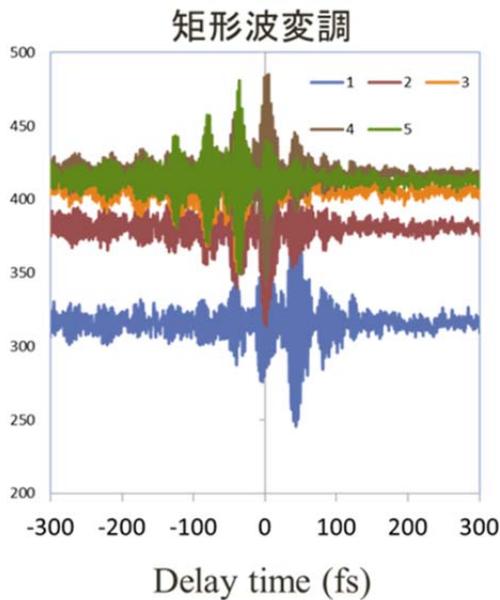


Fig. 11. Cross-correlation Waveform with square wave modulation.

Fig. 10, Fig. 11 より, signal 光に位相変調を加えることにより, プラズモン場の時間波形を制御することができることが確認できた。

#### 4. まとめ

相互相関暗視野顕微鏡を用いて広帯域パルスレーザの帯域における金ナノ構造の応答関数を計測し, それが試料のアスペクト比に依存していることを確認した。また, 金ナノ構造によるプラズモン場が励起光の偏光および位相に依存していることを確認した。

#### References

- [1] A. Kubo, K. Onda, H. Petek, Z. Sun, Y. S. Jung, and H. K. Kim, *Nano Lett.*, 5, 1123 (2005)
- [2] M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, F. Javier Garcia de Abajo, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Spindler and F. Steeb, *Nature*, 446, 301 (2007)