

走査型近接場周波数干渉顕微鏡を用いたフェムト秒レーザー励起プラズモン場の 応答関数計測と時空間制御

Measurement of response functions of plasmon excited by femtosecond laser pulses using spectral interferometry
combined with near-field scanning optical microscope for spatiotemporal control

大西 秀太郎 (M2)

Shutaro Onishi

Abstract

Based on a plasmon response function in both amplitude and phase measured by a spectral interferometry combined with a near-field scanning optical microscopy, the femtosecond plasmon pulse at gold nanostructures is deterministically tailored.

1. はじめに

フェムト秒レーザー励起によって金属ナノ構造に局在するプラズモン、および表面プラズモンポーラリトン(SPP)は、ナノ空間における時空間制御された超高速励起を可能にする。これまでに規則的な金ナノ構造に対して、励起に用いるフェムト秒レーザーパルスを変調整形することでその局在プラズモン電場分布を空間的に制御する実験が報告されている[1]。また、励起フェムト秒レーザーパルスを閉ループ制御変調整形することで SPP 伝播を最適化する実験も報告されている[2]。他にも、FDTD モデル計算を用い、フェムト秒レーザーパルス整形とプラズモン共鳴を組み合わせた時空間制御光励起スキームが提案されている[3,4]。Brixner らは、フェムト秒レーザー励起のプラズモン応答関数を求めることで閉ループ制御変調整形を用いずに決定論的にプラズモンの時空間制御が可能であることを提案している[5]。しかし、正確に設計・製作されたナノ構造であれば数値モデルで得られた応答関数に基づいた制御が可能であるが、実際にはプラズモン応答関数の測定、制御されたプラズモン場のダイ

ナミクスを計測することは必須となる。

これまでに、我々は周波数干渉法(SI)と近接場光学顕微鏡(NSOM)を組み合わせた新たな測定系(SI-NSOM)を確立し、実験的に局在プラズモンの応答関数計測および時空間制御を実証した。また、FDTD シミュレーションを用いて SPP における応答関数計測と時空間制御について検証した。本年度は不十分であった全反射アライメントを行った上で、実験的に局在プラズモンおよび SPP における応答関数計測と時空間制御を行った。さらに FDTD シミュレーションを用いて近接場プローブがプラズモン場に与える影響について検証した。

2. 実験セットアップ

まず、SI-NSOM の実験セットアップを Fig. 1 に示す。光源は Ti : Sapphire レーザ (パルス幅~8 fs、繰返し周波数 150 MHz、スペクトル帯域 600~1000 nm、VENTEON) である。今回は 4f 系の関係でスペクトル帯域は 630~970 nm である。近接場光学顕微鏡は自作のものであり、プリズムを用いた全反射励起系である。プローブは開口径 50 nm、遮光コート金のファイバプローブを用いており、コレクションモードにより近接場光を取得した。VENTEON のレーザー光を BS で信号光と参照光に分け、信号光は 4f 系において変調整形し、 $\lambda/2$ 板で偏光方向を調整して、S 偏光で近接場光学顕微鏡に入射し、ファイバプローブでナノ構造近傍の光を検出している。一方、参照光は遅延時間をつけて、分散補償用にファイバプローブと同質のファイバに伝搬させた後に、

BS で信号光と同一直線状にしている。その後、グレーティング-レンズ対、冷却 CCD カメラによって、周波数干渉縞を測定している。

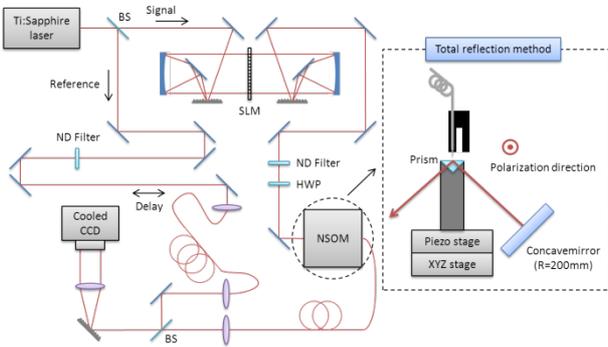


Fig. 1 Experimental setup of SI-NSOM.

次に十字型ナノ構造について Fig. 2 に示す。

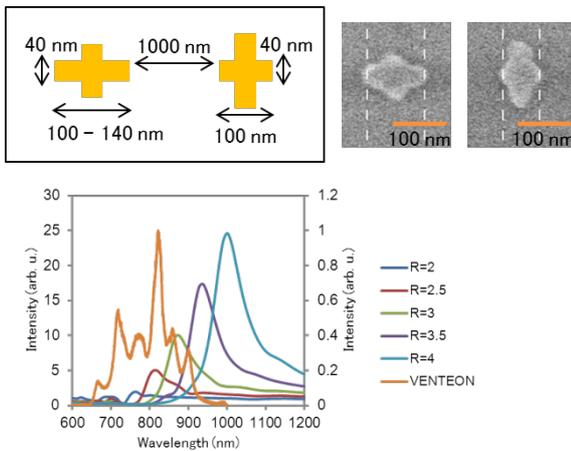


Fig. 2 Cross nanostructures and their plasmon resonance spectra calculated by FDTD simulation.

厚さ 0.65 mm のガラス基板上に、厚さ 30 nm の金ナノ構造を電子ビームリソグラフィで作製したものである。また、線幅 40 nm でアスペクト比 2.5 とアスペクト比 2.5~4 のナノ構造を組み合わせたものであり、見ても分かるように完全な四角形ではなく、エッジが丸みを帯びているため、シミュレーション

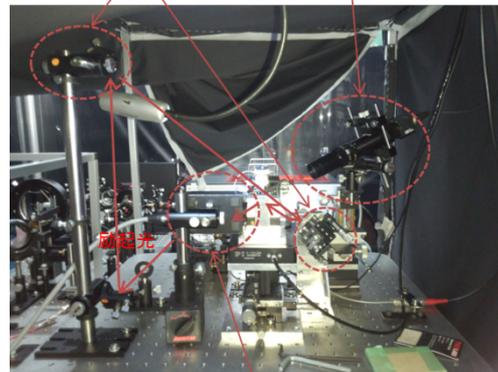
においても限りなくその形状を再現した。Fig. 2 の結果より、今回用いる励起光の中で共鳴が確認できると予想されるアスペクト比 2.5 と 3 のナノ構造において応答関数計測と時空間制御を行う。

3. 全反射励起系のアライメント

プラズモンを励起する時、全反射が不完全であると増強度が小さくなる等で正確な応答関数を計測することができないため、全反射励起系のアライメントを行った。まず、Fig. 3 に示したセットアップを用いてアライメントを行った。CCD カメラで試料面に励起光が照射されていることを確認しつつ、プリズムからの反射光をパワーメータで計測しながら、2つのミラーを用いて角度を調整する。当然、全反射が完全であるほど、反射光は大きくなるので、最もパワーメータで計測される値が大きくなるようにアライメントを行った。

この2つのミラーで角度を調整する。

CCDカメラで試料面を確認しつつ調整する。



パワーメータで計測しながら、反射光が最も強くなる角度に調整する。

Fig. 3 Setup for alignment of total reflection.

その後、ファイバプローブから得られる近接場光を分光器で計測しながら、さらに精度良くアライメントを行った。ファイバプローブをフィードバック制御させつつ、2つのミラーを調整し、励起レーザと同様のスペクトルになるようにアライメントを行

った。また、ファイバプローブをフィードバック制御させないで少し離れた状態においても、分光器で計測し、近接場光が検出されていないことを確認した。

4. 実験結果

アスペクト比 2.5 と 3 のナノ構造においてそれぞれ計測された応答関数と FTL パルス励起時のプラズモン波形を Fig. 4 に示す。なお、参照光としてナノ構造の無い場所でも近接場光を計測し、これと比較することで測定系の分散補償を行っている。

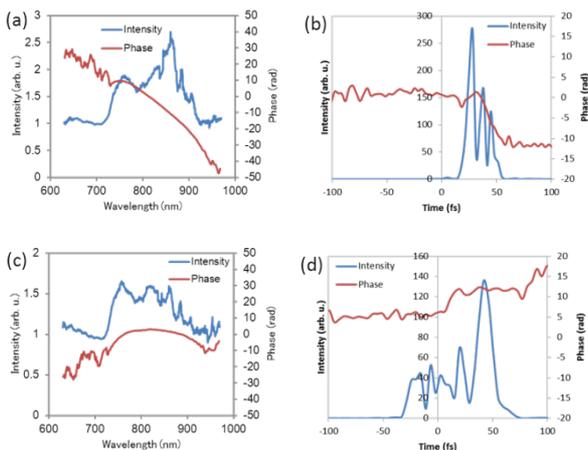


Fig. 4 Plasmon response functions at (a) R=3 and (c) R=2.5, and plasmon waveform excited by FTL pulse at (b) R=3 and (d) R=2.5.

結果より共鳴波長でプラズモン増強が確認される。また、アスペクト比の違いによって共鳴波長のシフトも確認できる。アスペクト比 3 において線形位相が確認されるのは参照点に対して、より遠い位置関係にあることが理由として考えられる。次にこの得られた応答関数の逆位相をそれぞれに加えることで FTL プラズモンの励起を試みた。Fig. 5 にその結

果を示す。

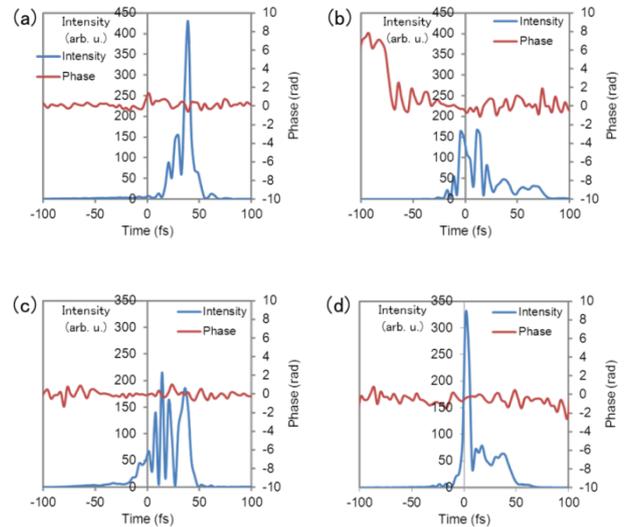


Fig. 5 Measured plasmon pulses excited by the femtosecond laser pulse to generate a FTL plasmon pulse at (a) R=3 and (b) R=2.5, (c) and (d) are plasmon pulses at R=2.5 and 3, respectively, when the laser pulse is shaped for (a) and (b).

結果より各ナノ構造において FTL プラズモンが励起されていることが分かる。また、その時のもう一方のナノ構造では当然、位相が異なるので FTL プラズモンにはなっておらず、ピーク強度も小さくなっている。

同様に SPP においても応答関数計測および時空間制御を行った。Fig. 6 に実験に用いた MIM 導波路ナノ構造を示す。図中にある 3 つの出力点において応答関数を計測し、得られた応答関数の逆位相をそれぞれに加えることで FTL プラズモンの励起を試みた。なお、参照光として図中に示したように枝分かれする直前の点においてもプラズモンを計測した。Fig. 7 にその結果を示す。

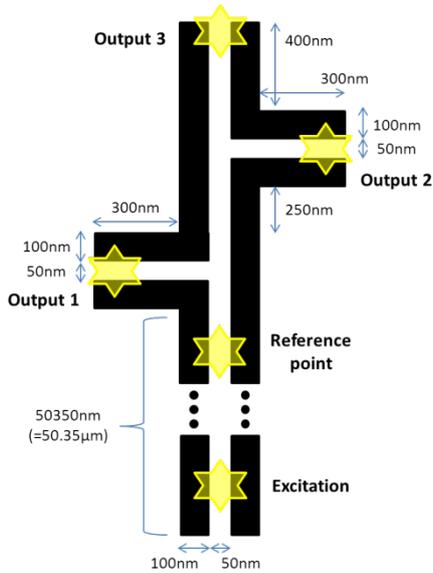


Fig. 6 Schematic of a gold MIM SPP waveguide fabricated by e-beam lithography.

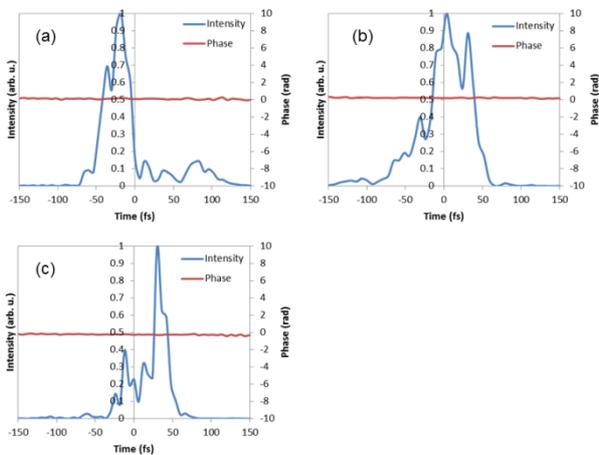


Fig. 7 Measured plasmon pulses excited by the femtosecond laser pulse to generate a FTL plasmon pulse at (a) output 1, (b) output 2, and (c) output 3 indicated in Fig. 7, respectively.

結果より各出力点において FTL プラズモンが励起されていることが分かる。したがって、SPP においても本手法によって応答関数計測および時空間制御が実証されたと言える。

5. プローブの影響

NSOM を用いてプラズモン場を計測する際、検出に用いるプローブがプラズモン場に与える影響が1つの大きな問題として挙げられる。そこでプローブによってプラズモン場がどのように変化するかを FDTD シミュレーションによって検証した。

まず、プローブの有無および金属コートの種類によって、測定されるプラズモン応答関数がどのように変化するかをシミュレーションする。Fig. 8 にシミュレーションに用いたモデルを示す。

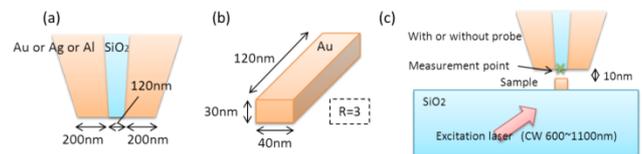


Fig. 8 Simulation model (a) probe (b) nanostructure (c) overall view.

プローブは開口径 120 nm で金属コートには金、銀、アルミを用い、試料はアスペクト比 3 の金ナノ構造である。励起光にはパルスレーザーが斜め発振できないため、ここでは CW レーザを用いて全反射励起系にしている。波長は 600~1100 nm を 50 nm 刻みでプロットした。偏光は基板に平行方向、つまり S 偏光である。なお、参照点は励起光の直後としている。Fig. 9 にシミュレーション結果を示す。

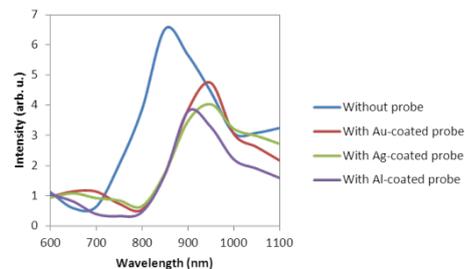


Fig. 9 Difference of response functions by influence of probe.

結果よりプローブの有無によって応答関数が変化していることが分かる。また、金属の種類によって多少の変化は確認できるものの、元の応答関数と同様の結果を得ることは難しいと考えられる。したがって、プローブや試料に改良を加えるか、分解能は落ちてしまうが、コート無プローブを用いる等の工夫が必要となる。

他にも、プローブによる共鳴なまり、プローブ-試料間距離および開口径の違いによる応答関数の変化についてシミュレーションを行った。なお、全体のシミュレーションモデルは先述のものと同様であり、違いを見たいパラメータのみを変化させている。Fig. 10 にそれぞれの結果を示す。

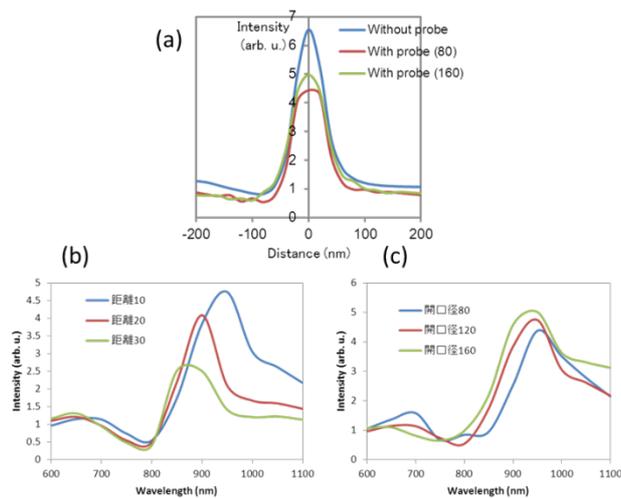


Fig. 10 (a) Resonance blunting by influence of probe, and difference of (b) distance between probe and sample or (c) opening size of probe.

結果よりプローブが有ることによって、強度分布上の共鳴がなまること分かる。さらに、そのなまりは開口径が小さいほど顕著になった。プローブ-試料間距離については、増強度は当然、距離が遠くなるほど小さくなるが、共鳴波長も短波長側にシフトしていることが分かる。また、開口径については、小さくなるにつれて、強度も多少小さくなるもの

の、応答関数は全体としてあまり大きな変化は見られなかった。したがって、これらの結果より実験中は常にプローブ-試料間距離を一定に保ち、開口径については光学的なバランスと共鳴なまりの関係を踏まえて決定する必要がある。

6. まとめ

全反射励起系アライメントを行った上で、SI-NSOM を用いることによって、局在プラズモンと SPP のどちらにおいても、応答関数計測と決定論的な時間空間制御を実証することができた。また、FDTD シミュレーションによって近接場プローブがプラズモン場に与える影響を明らかにした。

References

- [1] M.Aeschlimann, M.Bauer, D.Bayer, T.Brixner, F. Javier, G.Abajo, W.Pfeiffer, M.Rohmer, C.Spindler and F.Steeb, *Nature* **446**, 301 (2007).
- [2] J. M. Gunn, M. Ewald, and M. Dantus, *Nano Lett.* **6**, 2804 (2006).
- [3] P. Tuchscherer, C. Rewitz, D. V. Voronine¹, F. Javier G. de Abajo, W. Pfeiffer, and T. Brixner, *Opt. Express* **17**, 14235 (2009).
- [4] T. Harada, K. Matsuishi, Y. Oishi, K. Isobe, A. Suda, H. Kawano, H. Mizuno, A. Miyawaki, K. Midorikawa, and F. Kannari, *Opt. Express* **19**, 13618 (2011).
- [5] J. S. Huang, D. V. Voronine, P. Tuchscherer, T. Brixner, and B. Hecht, *Phys. Rev. Lett.* **B79**, 195441 (2009).