

## フェムト秒レーザー波形整形による

### 回折格子結合超高速表面プラズモンパルス及び非線形放射制御

Control of grating-coupled ultrafast surface plasmon pulse

and its nonlinear emission by shaping femtosecond laser pulse

藤間 一憲(M2), 正木 雄太(M1)

Kazunori Toma, Yuta Masaki

#### Abstract

Spatiotemporal nanofocusing of surface plasmon polaritons excited by femtosecond laser pulses coupled on a metal Au tapered tip with radius of curvature of few tens of nanometer is deterministically controlled based on the measured plasmon response function. We controlled SPP pulse and second harmonic generation at the apex of the Au tapered tip by shaping excitation laser pulses based on the response function. Similar control scheme was also adapted for coherent anti-stokes Raman scattering. Selective CARS excitation of a single Raman mode was achieved with only a single excitation laser pulse at the apex of the tip.

#### 1. はじめに

近年の著しい微細加工技術の発展に伴い、光電子デバイスの大容量化、高度集積化、省電力化の需要が高まり、光の回折限界以下への光の閉じ込めが必要不可欠となっている。このナノ領域への光の閉じ込めを実現する手法として表面プラズモン - ポラリトン (SPP) が注目を集めている。特に、フェムト秒レーザーパルス励起によるサブ波長領域への超高速 SPP ナノ集光を用いれば、時間および空間的に極限的に局在した光励起が可能となる。手法のひとつとして、回折格子構造を有す金属テーパチップへフェムト秒レーザーパルス励起の SPP を結合させ

ることでチップ先端へのナノ集光が可能である [1]。この金属テーパチップへ SPP をナノ集光させる手法は、背景光のない局所光励起を可能にするので、近接場走査型顕微鏡 (NSOM) における局在ポンプ光源として非常に重要な技術となる。さらに、チップ先端に伝播した SPP パルスの第 2 次高調波 (SH) を用いて、IFROG により SPP パルスの特性評価が行われている [2]。そこで、我々は、フェムト秒レーザーパルス励起による金テーパチップに結合した SPP パルスのナノ集光時間特性を計測し、フェムト秒レーザーパルスの波形整形によってナノ集光 SPP パルス及びチップ先端の SH スペクトルの制御に成功した。この技術を近接場コヒーレント・アンチストークス・ラマン散乱 (CARS) 計測にも応用し、ナノ集光 SPP を局在ポンプ光として、カーボンナノチューブの単一振動モードを選択的に CARS 励起し SN 比の良い CARS 信号の取得に成功した。

#### 2. 実験セットアップ

相互相関暗視野顕微計測の実験セットアップを Fig. 1 に示す。光源は、Ti:Sapphire フェムト秒レーザー“VENTEON”を使用した。スペクトル帯域 600-1000 nm, パルス幅 < 8 fs, 繰り返し周波数 150 MHz, 平均パワーは 150-180 mW である。設計作製した金テーパチップは、先端の角度が 15°, 先端曲率半径が 20 nm であり、周期 1730 nm, 幅 860 nm,

深さ 200 nm の溝が 8 本刻まれている。金テーパチップの SEM 画像を Fig. 2 に示す。励起光が直接、検出側の対物レンズに入射しないように、励起方向と検出方向を 90° の位置関係にして暗視野計測を行っている。光源から出射されたレーザー光をビームスプリッターで 2 つのパルスに分け、一方のパルスは励起光として使い、4f 光学系と 2 次元 SLM を通ってから放物面鏡（焦点距離 20.3 mm）によって集光された励起光は Bragg 回折条件を満たすように入射角 30° でチップの回折格子を照射し先端からの散乱光を対物レンズ（×40, NA=0.55, 作動距離 3.4 mm）を用いて CCD に入射させた。波面整形に用いた 2 次元 SLM は 768×768 pixel で受光面が 20 mm×20 mm であるため、2 次元 SLM 入射時のビーム径は 18 mm としている。励起光のスポットサイズは約 8 μm である。このとき、チップを FTL パルスで励起できるように、4f 光学系であらかじめ分散補償している。もう一方のパルスは、参照光として遅延時間をつけて CCD に直接入射することで信号光と干渉させた。遅延時間を走査させることでフリンジ分解電界相互相関関数を求めた。遅延時間はピコモータを用いて分解能が約 0.125 fs の遅延時間差をつけている。CCD は露光面が 5.7 mm×4.3 mm で 650×480 pixel であり、イメージ分解能は 1pixel で約 1 μm の分解能をもつ。

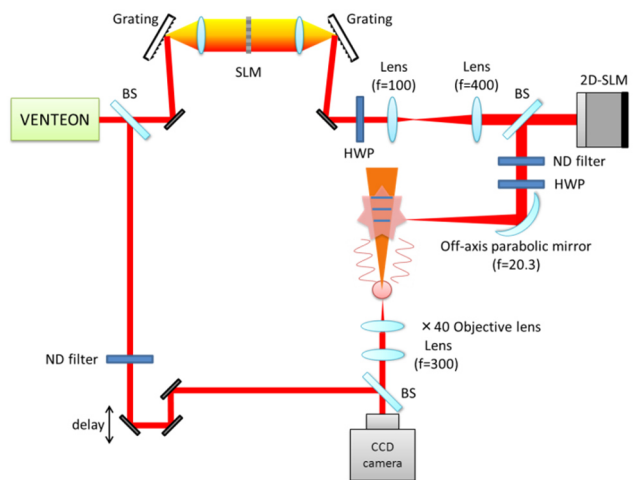


Fig. 1 Experimental setup of cross-correlation dark-field image measurement.

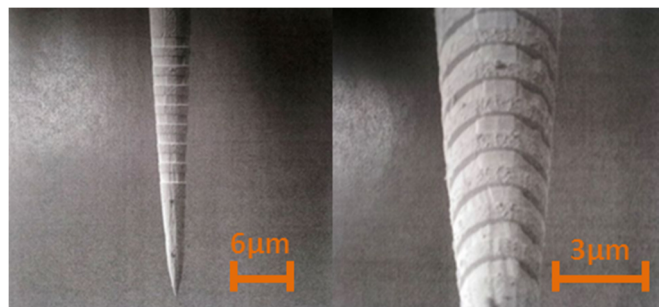


Fig. 2 SEM images of Au tapered tip.

また、高強度なフェムト秒レーザー励起でも、先端で発生する SH や CARS は光強度が微弱であるため、我々はアバランシェフォトダイオード (APD) を用いたシングルフォトンカウンティング法による計測を行った。フォトンカウンティングの実験セットアップを Fig. 3 に示す。APD の受光面は、20 μm 四方であるため、反射型対物レンズ（×10, NA=0.2, 作動距離 19.9 mm）をモノクロメータの出射スリット直後に配置し、集光して APD に照射した。

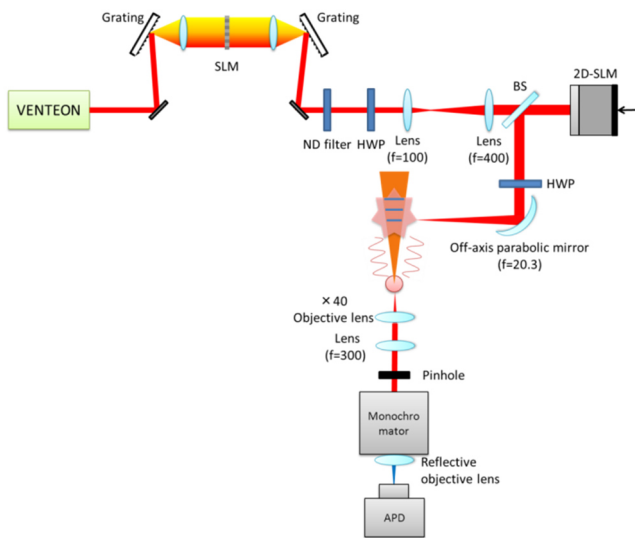


Fig. 3 Experimental setup of single photon counting measurement.

### 3. 実験結果

#### 3-1 励起光空間波面整形によるナノ集光 SPP 増強

本研究で用いた金属テーパチップのような複雑な構造のプラズモニック導波路において、SPP ナノ集光を起こす場合、先端部に到達した SPP の位相が揃わないと負の干渉を起こし、ナノ集光効率を低下させる原因となる。しかし、励起位置のチップの曲率半径に合わせて励起光空間波面を整形すれば先端での SPP の位相を揃えることができる[3]。本研究ではテーパ構造に適した励起光の空間波面を整形するために、2次元 SLM を用いた。励起レーザ光が単一波長であれば所望の集光分布の逆フーリエ変換から2次元 SLM で整形する空間波面を定義できるが、広帯域光を扱う場合、最適波面を理論的に決定することはできない。また、チップの励起位置によって最適波面は異なるため、実験を行う際に励起位置として定義した位置を確実に励起することは難しい。以上の2つの理由から、広帯域光およびテーパ構造に適した励起光空間波面を求める

ため、適応制御による最適波面の決定を行った。チップ先端にナノ集光した SPP 強度を CCD で測定し、その情報を2次元 SLM にフィードバックしている。適応制御を行うにあたり、最適化アルゴリズムを用いたので、その流れを以下に示す。

#### Step1

➤ 7つの基底関数の組み合わせで構成される波面を12パターン用意して計測を始める。

(7つの基底関数は Zernike 多項式の次数が1~7の波面を採用した。傾き、非点収差、コマ収差の特徴に対応するものである。)

(ただし、基底関数を足し合わせるときの各基底関数につける係数は-1~1の範囲とする。)

- CCD でチップ先端の強度を測定する。
- 世代ごとに測定開始時に平面波励起時の強度を測定しておき、平面波励起時と比べた増強度を評価基準とする。

#### Step2

➤ 12パターンの波面で励起した時の先端強度を測定し、平面波励起時と比べた増強度を算出する。

#### Step3

- 12パターンの波面のうち、増強度が大きかった上位4つの波面を次の世代に残す。(Fittest individuals)
- その選ばれた4つの波面の基底関数の係数をランダムに入れ替えて、新たに4つの波面を用意する。(Crossover)
- さらに、4つの波面をランダムで新たに用意する。(Mutation)

#### Step4

以上の12パターンの波面を次の世代とする。

以上の Step1~4 を繰り返して最適波面を決定した。各世代の適応度, 適応制御により決定した空間波面を整形するために 2 次元 SLM に印加するグレースケール値を, それぞれ Fig. 4, 5 (a) に示す。また, 励起レーザ光が単一波長であれば所望の集光分布の逆フーリエ変換より 2 次元 SLM で整形する空間波面を定義できるので, 単一波長 800 nm で設計した空間波面を Fig. 5 (b) に示す。Fig. 4 より, 約 40 サイクル程度で値が飽和し, 最適波面が決定できることがわかる。また, Fig. 5 (a) の適応制御により決定した広帯域光に適した空間波面は, 左右対称になっており, 励起光スポットの中心がテーパチップの軸上にあり, チップの曲率を補償した波面になっている。上下方向に関しては, 上から下に向かって位相が進む波面になっており, これはチップへの励起光の入射角  $30^\circ$  を補償するためである。横方向, 縦方向ともに Fig. 5 (b) に示した理論的に単一波長 800 nm で設計した波面に類似した特徴を持っていることがわかる。

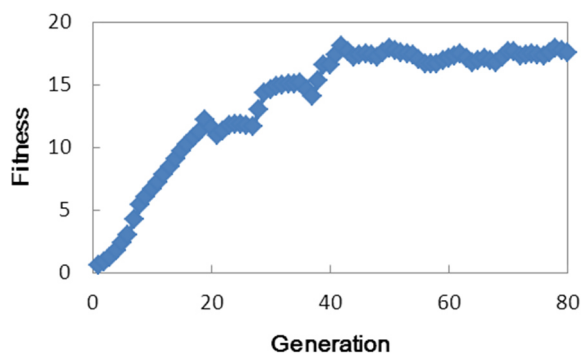


Fig. 4 Fitness of each generation.

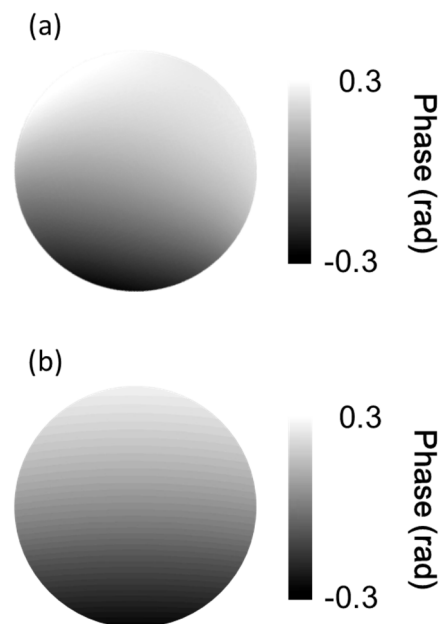


Fig. 5 (a) Optimized wave front with adaptive control, and (b) shaped wave front for the wavelength of 800 nm.

励起光空間波面がチップ先端への SPP ナノ集光効率に与える影響を調べるため, 平面波, 入射角度  $30^\circ$  を考慮した 800 nm 狭帯域で設計した波面 (Fig. 5 (b)), 入射角度  $30^\circ$  を考慮した広帯域用に平均化した波面, 適応制御により決定した最適波面 (Fig. 5 (a)) で励起した場合のチップ先端の SPP スペクトルを計測した。広帯域用に平均化した波面とは, 励起レーザスペクトル帯域内の波長ごとに設計した波面を算出し平均化したものである。測定したチップ先端の SPP スペクトルを Fig. 6 に示す。適応制御により決定した最適波面励起時の SPP スペクトルは, 平面波励起時と比べて 6.2 倍に増強している。ちなみに, 800 nm 狭帯域で設計した波面 (入射角度  $30^\circ$ ) で励起した場合は 3.2 倍, 広帯域用に補正した波面 (入射角度  $30^\circ$ ) で励起した場合は 3.8 倍の増強であった。励起光空間波面をテーパ構造に適した波面に整形することにより, チップ先端における SPP 位相のずれに起因する負の干渉の効果を

緩和でき、ナノ集光効率を著しく増強できた。また、単一波長で設計した波面で励起した場合より適応制御を用いて決定した最適波面で励起した場合の方が増強効果が大きいことから、広帯域光、テーパ構造に適した波面を決定することができていることがわかる。

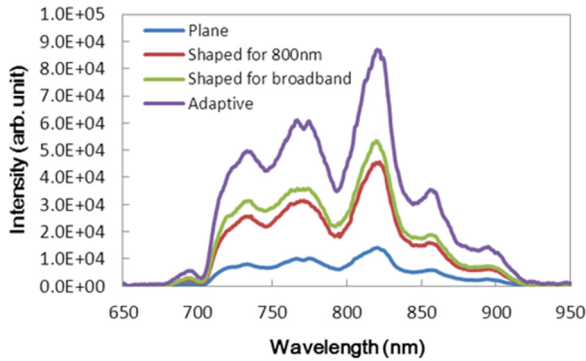


Fig. 6 SPP spectrum at the apex of the tip.

### 3-2 ナノ集光 SPP パルス制御

相互相関暗視野顕微計測により実験的に求めたナノ集光 SPP の結合・伝播・再放射のプラズモン応答関数を Fig. 7 に示す。

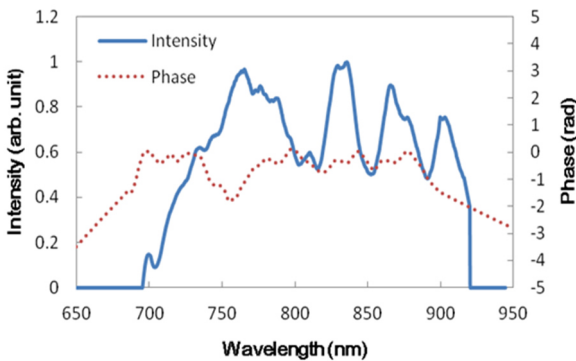


Fig. 7 Plasmon response function at the apex.

フーリエ限界 (FTL) パルス励起時の SPP パルスを Fig. 8 (a) に示す。さらに、Fig. 7 のプラズモン応答関数に基づいて、励起フェムト秒レーザーパルスを波

形整形することでチップ先端のナノ集光 SPP パルスの制御を行った。プラズモン応答関数の逆位相を加えることによって SPP パルスの FTL 化を行った結果を Fig. 8 (b) に示す。プラズモン応答関数に基づいて SPP パルスを制御し FTL SPP パルスの発生に成功した。

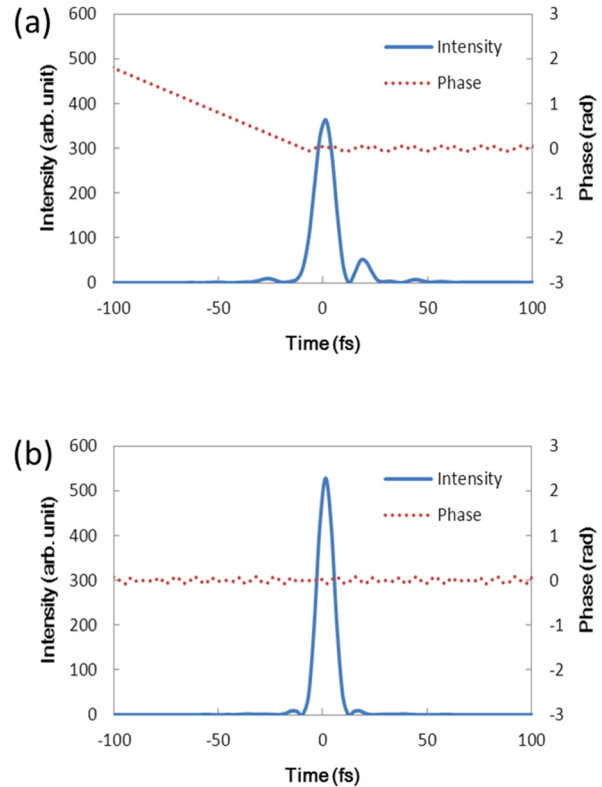


Fig. 8 Time history of SPP at the apex excited by (a) FTL laser pulse, and (b) the laser pulse to generate FTL SPP pulse.

### 3-3 チップ先端における SPP SH 制御

テーパチップ先端では軸対称性の崩壊により、SPP ナノ集光に伴って SH が発生する。先端に発生する SH スペクトルは、式(1)に示されるように SPP の振幅・位相を変化させることによって変化する。

$$|E^{(2)}(\omega_0)|^2 = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \sqrt{I_{plas}\left(\frac{\omega_0}{2} + \Omega\right)} \sqrt{I_{plas}\left(\frac{\omega_0}{2} - \Omega\right)} \times \exp\left[i\left\{\phi_{plas}\left(\frac{\omega_0}{2} + \Omega\right) + \phi_{plas}\left(\frac{\omega_0}{2} - \Omega\right)\right\}\right] d\Omega \right|^2 \quad (1)$$

ここで、 $I_{plas}$ 、 $\phi_{plas}$  は、それぞれ SPP のスペクトル強度、スペクトル位相である。式(1)において、 $\phi(\omega_0/2+\Omega)+\phi(\omega_0/2-\Omega)=0$  が成立するスペクトル位相に変調すれば、角周波数 $\omega_0$ に SH スペクトルを集中させることができる。本研究では、SH スペクトルを集中させるためのスペクトル位相に角周波数 $\omega_0/2$ を対称に符号が逆になる3次関数を用いた。

測定した SH スペクトルを Fig. 9 に示す。スペクトル位相は FTL (blue)、変曲点を 770 nm (red), 800nm (green), 830 nm (purple)の異なる波長にもつ3次分散の場合を測定した。Fig. 9 より、FTL SPP パルスに加える3次分散の変曲点を変えることで、波長 370-420 nm の範囲で所望の3次分散の変曲点に、SH スペクトルのピークをシフトすることに成功している[4]。つまり、応答関数の位相をキャンセルしてから印加したスペクトル位相が正確に印加されていることがわかるので、応答関数に基づくパルス制御の検証も同時に行うことができた。また、FTL 時に比べて、SH スペクトルが狭帯域化できていることも確認できる。群速度の同じ角周波数が和周波を発生することを利用して、3次分散の変曲点に SH を集中させることに成功した。

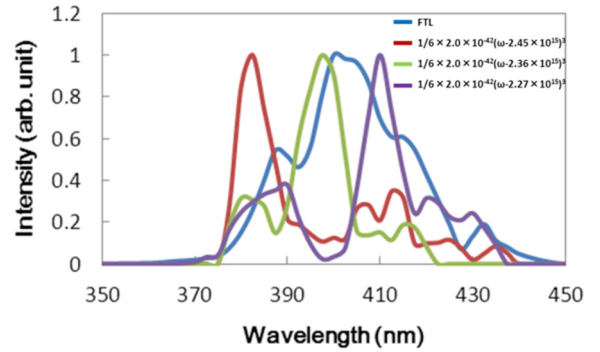


Fig. 9 Measured SH spectrum at the apex.

### 3-4 ナノ集光 SPP 励起による近接場 CARS 計測

CARS 計測を行う際も応答関数に基づいたフェムト秒レーザ波形整形を行うので、実験を行うたびにプラズモン応答関数の計測が必要である。特に、プローブとサンプルを接近させる CARS 計測時にはチップ先端付近の環境が大きく変わるので、サンプルによる位相応答関数の変化を計測した。プローブ-サンプル間の距離  $d$  が 5  $\mu\text{m}$  以上の場合、サンプルがカーボンナノチューブ (CNT) でサンプル-プローブ間の距離  $d$  が 20 nm 以下の場合、サンプルが金ミラーでサンプル-プローブ間の距離  $d$  が 20 nm 以下の場合の位相応答関数を Fig. 10 に示す。サンプルがチップ先端の近接場領域内に入ることによって相互作用が生じ、サンプル-プローブ間の距離が十分離れているときに比べて位相がシフトすることがわかった。また、サンプルが金と CNT の場合を比較することで、サンプルの種類によって位相のシフト量が異なることもわかる。

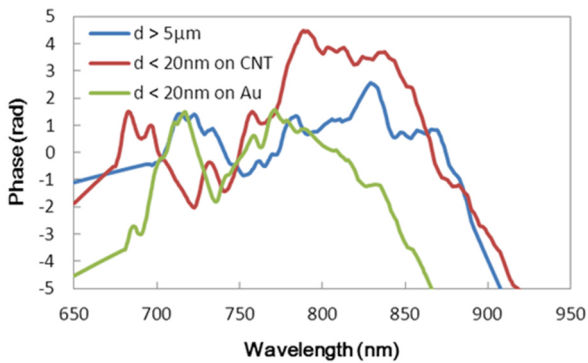


Fig. 10 Changes in response function by the sample.

本研究では選択的 CARS 計測の手法として広帯域励起パルス内で発生する差周波励起方式[5]を用いた。励起光の全周波数域にわたり特定の線形チャープを掛け、分岐角周波数 $\omega_b$ よりも低周波数のみに遅延時間を与えることで等しい群遅延で伝播する角周波数の差周波数を常に一定に保ち、それらが時間的に重なり合うようになる。その差周波数を目的とする振動モード $\Omega_R$ に合わせることで選択的に特定の振動モードのみを励起することができる。

Fig. 11 に差周波励起方式の概念図を示す。

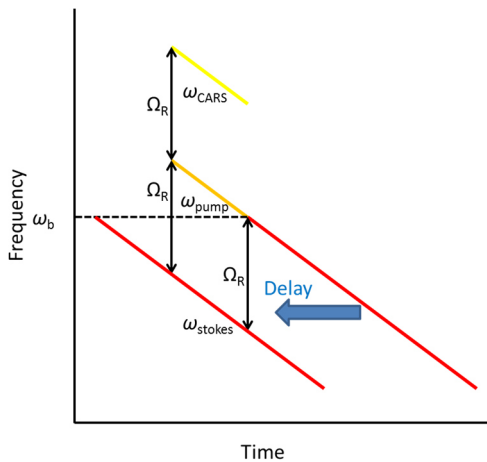


Fig. 11 Time-spectral distribution of excitation pulse for selective CARS excitation of a single Raman mode.

本研究では曲率半径 20 nm のチップ先端に SPP がナノ集光するので、CARS 光発生が位相整合条件に

厳しく制限を受けることはない。近接場 CARS 計測は SH 測定同様に Fig. 3 に示したフォトンカウンティング計測を採用し、チップ先端の下にサンプルを配置した。サンプルは CNT である。サンプル-プローブ間の距離制御は、金テーパチップをチューニングフォークに取り付けシェアフォース制御している。位相応答関数をキャンセルしてから、CARS 計測に必要な位相変調をして CARS 信号の計測をした。CARS 計測のための位相変調は、式(2)に従う。

$$\varphi(\omega) = \begin{cases} \frac{\varphi''}{2}(\omega - \omega_0)^2 + \varphi''\Omega_R(\omega - \omega_b) & (\omega < \omega_b) \\ \frac{\varphi''}{2}(\omega - \omega_0)^2 & (\omega \geq \omega_b) \end{cases} \quad (2)$$

ここで、 $\varphi''$ 、 $\omega$ 、 $\omega_b$  は、それぞれ群遅延分散、励起パルスの角周波数、中心角周波数である。ターゲットとする振動モードは CNT の G バンドのモード ( $1592 \text{ cm}^{-1}$ ) とし、分岐角周波数は  $\omega_b = 2.64 \times 10^{15} \text{ rad/s}$  とした。 $\omega_0 = 2.39 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ 、 $\varphi'' = 2000 \text{ fs}^2$  としている。 $\Omega_R$  は  $200 \text{ cm}^{-1}$  から  $3000 \text{ cm}^{-1}$  までスキャンした。モノクロメータ後の APD で測定した信号は、励起光の高周波側の中心周波数を  $\omega_c$  とすると、 $\omega_c + \Omega_R$  とした。測定した CNT の CARS スペクトルを Fig. 12 に示す。

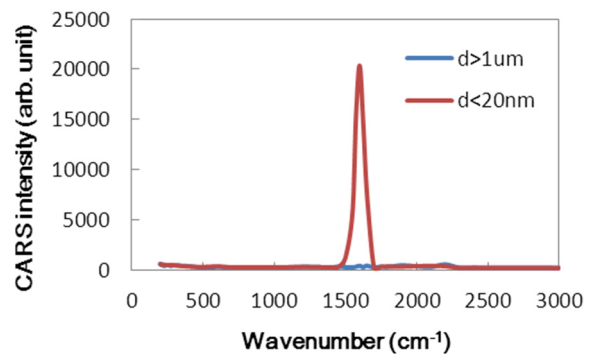
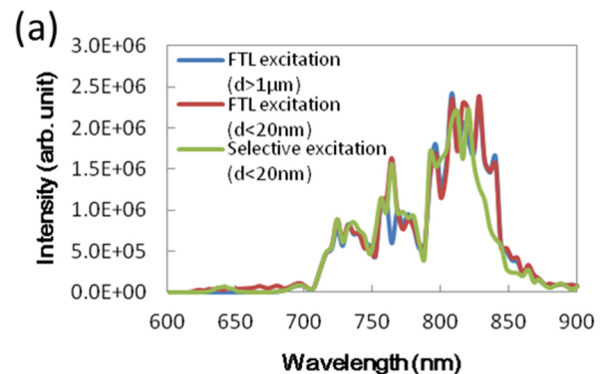


Fig. 12 CARS spectrum of CNT at different distance between the sample and the probe.

G バンド ( $1592 \text{ cm}^{-1}$ ) からの CARS 信号を取得できていることがわかる, 分岐角周波数を励起光の中心角周波数より高周波側に設定したことで, CARS スペクトル幅は  $80 \text{ cm}^{-1}$  まで小さくすることができた。差周波励起方式では, 分岐角周波数よりも高周波側によってつくられるアンチストークス成分が CARS 信号となるため, 光パルスのパルス幅とスペクトル幅の不確定性原理より, 励起光の高周波成分のパルス幅を長くすることで CARS スペクトルのスペクトル分解能を向上させることができる。

また, 差周波励起方式による選択的 CARS 計測の機能性を証明するため, 差周波励起と FTL 励起の場合の CARS スペクトルの比較をした。ターゲットとする振動モードは, カーボンナノチューブの G バンド ( $1592 \text{ cm}^{-1}$ ) とした。差周波励起方式では, CARS スペクトルが励起 SPP スペクトルと重ならないように, さらに CARS スペクトルの狭帯域化をアピールできるように, 励起 SPP パルスの高周波側と低周波側の分岐角周波数は  $\omega_b = 2.60 \times 10^{-15} \text{ rad/s}$  とした。  $\omega_b = 2.39 \times 10^{-15} \text{ rad/s}$ ,  $\varphi'' = 2000 \text{ fs}^2$ ,  $\Omega_R = 1592 \text{ cm}^{-1}$  としている。測定した CARS 信号および SPP を含むチップ先端からの散乱スペクトルを Fig. 13 (a) に示す。CARS スペクトルに注目するため, Fig. 13 (a) の波長  $600 \sim 700 \text{ nm}$  を抽出したものを Fig. 13 (b) に示す。波長  $680 \text{ nm}$  以上にあらわれるスペクトルは励起 SPP スペクトルである。FTL 励起でサンプル - プローブ間の距離  $d$  が  $1 \mu\text{m}$  以上離れているとき, FTL 励起でサンプル - プローブ間の距離  $d$  が  $20 \text{ nm}$  以下のとき, 差周波励起でサンプル - プローブ間の距離  $d$  が  $20 \text{ nm}$  以下のときのスペクトルを測定した。FTL 励起でサンプル - プローブ間の距離  $d$  が  $1 \mu\text{m}$  以上離れている場合は, 励起 SPP スペクトルより短波長側にあらわれる CARS スペクトル

は当然ながら計測されない。FTL 励起でサンプル - プローブ間の距離  $d$  が  $20 \text{ nm}$  以下の場合には, 励起する SPP スペクトル内の全周波数が時間的に重なり合うので, その帯域内でカーボンナノチューブの G バンドの振動モード ( $1592 \text{ cm}^{-1}$ ) に一致する周波数差の組み合わせができて, 波長  $610 \text{ nm} \sim 690 \text{ nm}$  の帯域にわたって CARS スペクトルがあらわれている。差周波励起でサンプル - プローブ間の距離  $d$  が  $20 \text{ nm}$  以下の場合には, 分岐周波数を  $\omega_b = 2.60 \times 10^{-15} \text{ rad/s}$  としたため, 励起 SPP パルスの高周波成分によってつくられる反ストークス成分である CARS 信号は波長  $630 \sim 650 \text{ nm}$  の領域にスペクトルがあらわれていることがわかる。波長  $680 \text{ nm}$  以上の励起 SPP スペクトルとは分離できる波長に CARS 信号が確認できている。差周波励起方式では, 時間的に重なり合う周波数の組み合わせを制御でき, 励起 SPP パルスの高周波成分によってつくられる反ストークス成分のみ CARS 信号として計測されるので, FTL 励起パルスで励起した CARS スペクトルに比べて, 狭帯域化されたスペクトルが計測できた。





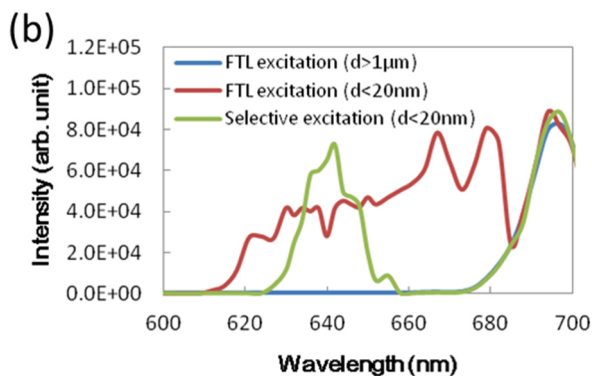


Fig. 5.13 (a) SPP spectrum at the apex and CARS spectrum of CNT with FTL excitation and selective excitation at  $1592 \text{ cm}^{-1}$ , and (b) CARS spectrum at shorter wavelength than  $700 \text{ nm}$  in (a).

それから, Fig. 5.12 の CARS スペクトルにおけるピークの  $1592 \text{ cm}^{-1}$  の入出力特性を測定した。Fig. 5.14 にその結果を示す。サンプル - プローブ間の距離  $d$  が  $1 \mu\text{m}$  以上離れている場合と  $20 \text{ nm}$  程度の場合を測定している。サンプル - プローブ間の距離  $d$  が  $1 \mu\text{m}$  以上では Slope は  $1.7$  となっている。金の 2 光子発光スペクトルが波長  $500 \text{ nm} \sim 700 \text{ nm}$  に存在する影響で Slope が  $1$  以上になっていると考えられる。また, 2 次元 SLM の反射率が波長  $680 \text{ nm}$  以下ではほぼ  $0$  になるはずだが, わずかに励起光の基本波が混じっているため Slope が  $1$  以上  $2$  未満になっていると思われる。また, サンプル - プローブ間の距離  $d$  が  $20 \text{ nm}$  以下では, Slope が  $2.2$  になっている。サンプル - プローブ間の距離を小さくすることで Slope が大きくなったので, この成分が距離依存性のある CARS 信号だと考えている。それに加えて, 金の 2 光子発光と励起光の基本波が混じっているので Slope が  $2.2$  程度になっていると考えている。

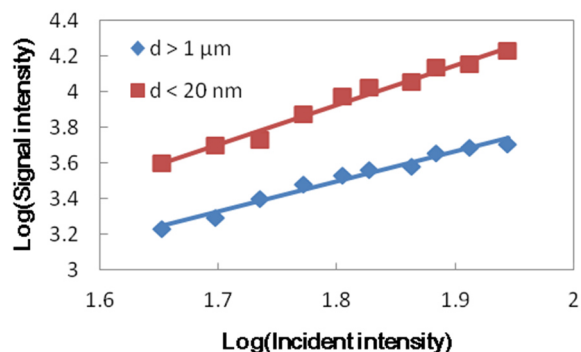


Fig. 5.14 Intensity dependence of measured signal excited at  $1592 \text{ cm}^{-1}$  on the incident intensity.

さらに, 近接場 CARS イメージの取得を行った。イメージング取得時は検出器を APD から光電子増倍管 (PMT) に変更して計測した。ターゲットとした振動モードは CNT の G バンドのモード ( $1592 \text{ cm}^{-1}$ ) である。励起光の高周波側と低周波側の分岐角周波数は  $\omega_b = 2.64 \times 10^{-15} \text{ rad/s}$  とした。  $\omega_b = 2.39 \times 10^{-15} \text{ rad/s}$ ,  $\phi'' = 2000 \text{ fs}^2$  としている。  $\Omega_R$  は CARS スペクトルのピークの  $1592 \text{ cm}^{-1}$  で固定し, モノクロメータ後の PMT で測定した信号は, 励起光の高周波側の中心角周波数を  $\omega_c$  としたとき  $\omega_c + \Omega_R$  の信号であり, 波長  $663 \text{ nm}$  なので励起光とは被らない。計測した CNT のトポグラフィ及び CARS イメージを Fig. 15 に示す。マッピング計測時のスキャン分解能は  $50 \text{ nm}$  としている。スキャン方向は各図において横方向である。 Fig. 15 (a) では, 長軸方向の長さが約  $1.2 \mu\text{m}$ , 高さが約  $20 \text{ nm}$  の CNT が確認できる。 Fig. 15 (b) の CARS イメージでは, CNT の長軸に沿ったイメージが取得できている。短軸方向に関しても, ロックイン検出を行うことで, 概ね CNT の形状に沿った CARS 強度分布の取得に成功した。

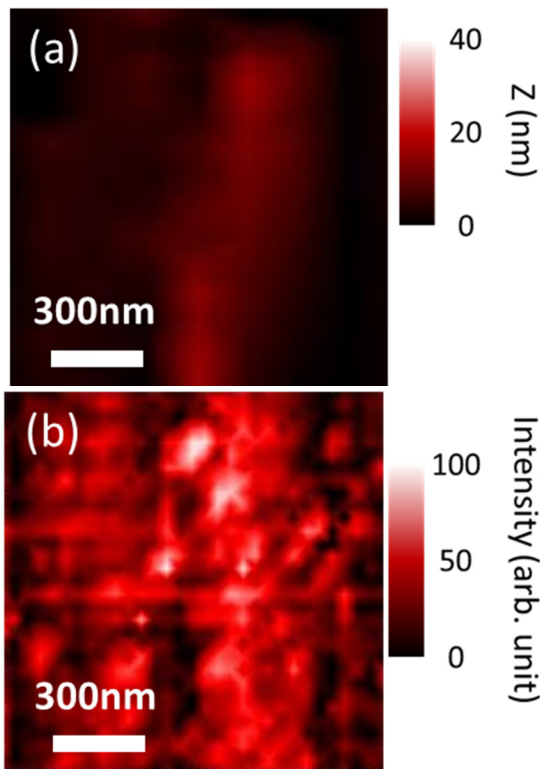


Fig. 5.15 (a)Topographic, and (b) CARS images of G-band of CNT with lock-in detection.

#### 4. まとめ

フェムト秒レーザーパルス励起による金テーパチップに結合した SPP パルスのナノ集光特性を非線形光学効果を用いない相互相関暗視野顕微計測によって取得した。測定したプラズモン応答関数に基づいたフェムト秒レーザー波形整形により SPP パルスおよび SH スペクトルの制御を達成した。チップ先端の近接場領域内にサンプルが存在すると、サンプルとの相互作用により応答関数がシフトし、サンプルの種類によってシフトの仕方が変わることを実証した。ナノ集光 SPP を局在ポンプ光として、CNT の G バンドを選択的に励起し、SN の良い CARS スペクトルおよび CARS イメージの取得に成功した。

#### References

- [1] C. Ropers, C. C. Neacsu, T. Elsaesser, M. Albrecht, M. B. Raschke, and C. Lienau, *Nano Lett.* **7**, 2784-2788 (2007).
- [2] S. Berweger, J. M. Atkin, X. G. Xu, R. L. Olmon, and M. B. Raschke, *Nano Lett.* **11**, 4309-4313 (2011).
- [3] S. Schmidt, P. Engelke, B. Piglosiewicz, M. Esmann, S. F. Becker, K. Yoo, N. Park, C. Lienau, and P. Gross, *Opt. Express* **21**, 26564-26577 (2013).
- [4] T. Harada, K. Matsuishi, Yu Oishi, K. Isobe, A. Suda, H. Kawano, H. Mizuno, A. Miyawaki, K. Midorikawa, and F. Kannari, *Opt. Express* **19**, 13618-13627 (2011).
- [5] K. Isobe, A. Suda, M. Tanaka, H. Hashimoto, F. Kannari, H. Kawano, H. Mizuno, A. Miyawaki, and K. Midorikawa, *Opt. Express* **17**, 11259-11266 (2009).