

2P068

近接場光学顕微鏡によるプラズモニック増強場の生成機構の検討

(早大理工¹, JST さきがけ²) 森本 仁嗣¹, 井村 考平^{1,2}

Near-field optical microscopic study

on enhanced mechanism of plasmonic optical fields

(¹Waseda Univ., ²JST PRESTO) Hitoshi Morimoto,¹ Kohei Imura^{1,2}

【序】金属ナノ構造体に光が照射されると、光電場により金属中の自由電子が集団的に振動し、プラズモン共鳴が励起される。プラズモン共鳴は、光電場をナノ構造体近傍に閉じ込めるため、金属ナノ構造体の近傍で光増強場が発生する。この電場をプラズモニック増強場と呼ぶ。プラズモニック増強場は、フォトクロミック反応やプラズモニック太陽電池、センサーなどへの応用が期待され、多くの研究が報告されている。プラズモニック増強場の空間構造とその生成メカニズムを理解することは、プラズモニック増強場の応用を研究する上で不可欠である。

単一ナノ構造体および、その集合体におけるプラズモニック増強場は、開口型の近接場光学顕微鏡を用いて可視化がなされている。金属ナノ構造体では、近接場光によってプラズモンが局所励起された場合、プラズモン間の相互作用により、それが周囲に伝搬することが報告されている¹。一方、ファーフィールド励起では、光照射スポット内において複数のプラズモンが励起され、それが周囲に伝搬、干渉し、光電場が形成されると考えられる。つまり、近接場光による局所励起とファーフィールド光による励起では、形成される光電場の空間構造が一致しない可能性がある。しかし、実際に励起される光増強場が照射方法に依存するかは不明である。本研究では、近接場光学顕微鏡を用いて、凹凸ナノ薄膜に誘起されるプラズモニック増強場の生成機構を検討した。

【実験】スパッタ法を用いて、膜厚約 20 nm の金ナノ薄膜を作成し測定試料とした。プラズモニック増強場は、近接場光学顕微鏡を用いた二光子誘起発光測定により評価した。図 1 に、評価に用いた 3 つの測定モード（照射モード、集光モード、散乱モード）を示す。照射モードでは、近接場プローブ先端に発生させた近接場光により試料を局所励起し、試料からの発光を試料下の対物レンズにより集光し、ファーフィールドで検出する。集光モードと散乱モードでは、励起光を対物レンズにより集光し、ファーフィールドから試料を励起する。集光モードでは、試料表面近傍の発光を近接場プローブの開口により近接場で検出する。一方、散乱モードでは、近接場プローブ先端で散乱した光を対物レンズによって集光し、ファーフィールドで検出する。二光子発光の励起には、中心波長 790nm、パルス幅約 100 fs、繰り返し周波数 80 MHz のモードロックチタンサファイヤレーザーを光源として用いた。入射偏光は 1/2, 1/4 波長板を用いて調整した。検出には、アバランシェフォトダイオードを用いた。

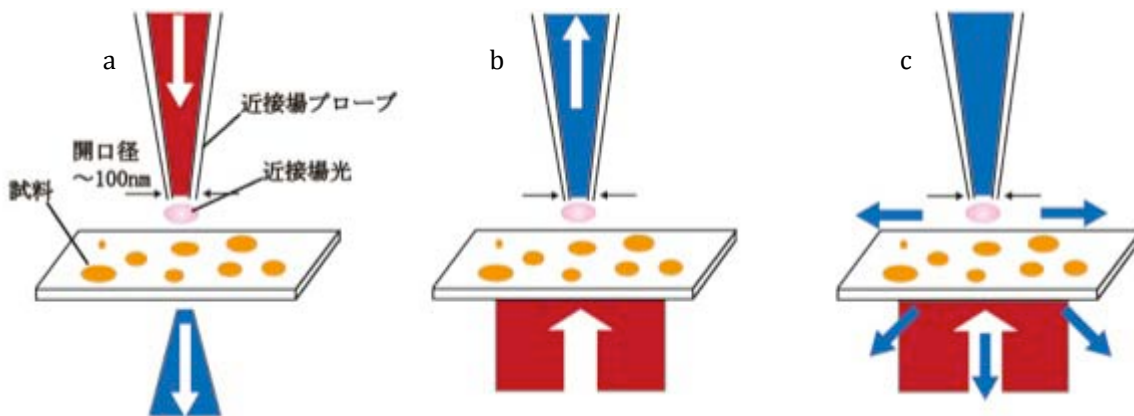


図 1. 近接場光学顕微鏡の測定モード。(a)照射モード、(b)集光モード、(c)散乱モード。矢印は光の進行方向を示す。

【結果と考察】近接場光学顕微鏡を用いて測定したイメージを図2, 図3に示す。図2(a)は試料の表面形態像, (b,c)はそれぞれ集光モード, 照射モードで測定した二光子励起像である。二光子イメージングは光電場の可視化に有効であり, 図2, 3において可視化される二光子励起像は光電場の強度分布を反映すると解釈される。すなわち, 図の明るい部分において, 励起確率が高く, 光電場が増強していることが分かる。図2(b,c)の比較から, 試料表面において観測される光増強場の一部に異なる場所が存在している。つまり, 集光モードと散乱モードでは, 観察される光増強場が完全に一致しないことが分かる。また, 表面形態像との比較から, 構造体の端部において光増強場の相違が顕著に現れていることが分かる。これら二つのモードでは, 励起法が異なる。近接場光による局所励起では励起されないプローブ開口部周辺のナノ構造体のプラズモンが, ファーフィールドによる励起では励起される。そのため, ファーフィールド励起では励起された複数のプラズモン間の相互作用, 干渉が現れると推測される。金属ナノ構造体においてプラズモンを局所励起した場合, 励起されたプラズモンは周囲に伝搬するため, 集合体の辺縁部における強い光増強場が形成されると報告されている。図2(b,c)で観測された相違は, 集合体の辺縁部でのプラズモンの干渉が顕著であることを示唆する。

図3に, (a)ナノ薄膜の表面形態像と(b)散乱モード(c)集光モードで測定した二光子励起像を示す。図3(b,c)の比較から, 散乱モードと集光モードでは, イメージの空間特性が概ね一致することがわかる。このことからファーフィールド光を用いてプラズモンを励起した場合は, 集光方法によらず光増強場の空間構造が変化しないことが分かる。

以上の通り, 近接場光を用いた局所光照射とファーフィールド光を用いた光照射では, プラズモン増強場の発生機構が異なることが明らかとなった。一方, 光学の原理からは相反性が成立するため, 照射モードと集光モードで測定したイメージは厳密に一致することが期待される。本研究で得られた成果は, 一見, 光学の原理と整合しない。理由は不明であるが, 近接場プローブが光学系の対称性を崩している可能性がある。現在, 実験および理論による検討を進めている。

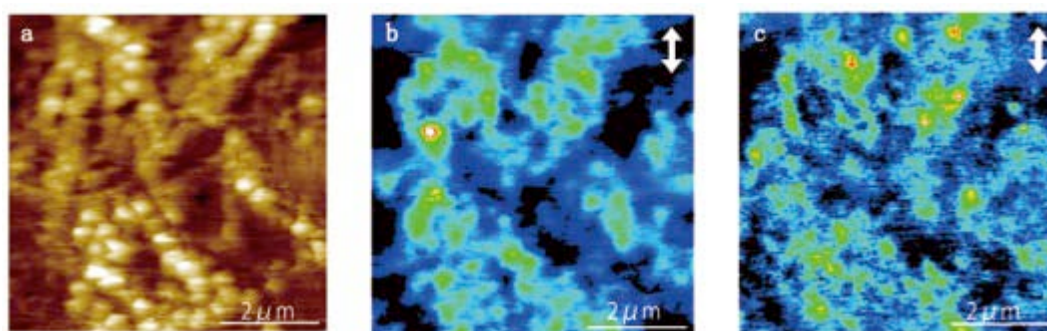


図2. 近接場光学顕微鏡を用いて測定した金ナノ薄膜の(a)表面形態像, (b)二光子励起像(集光モード), (c)二光子励起像(照射モード)。光学像中の矢印は偏光方向を示す。

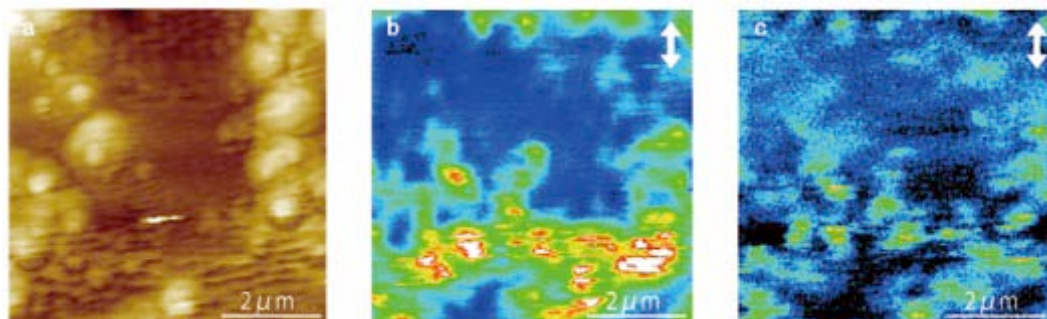


図3. 近接場光学顕微鏡を用いて測定した金ナノ薄膜の(a)表面形態像, (b)二光子励起像(散乱モード), (c)二光子励起像(集光モード)。光学像中の矢印は偏光方向を示す。

【参考文献】 1. T. Shimada, K. Imura, M. K. Hossain, H. Okamoto, M. Kitajima. *J. Phys. Chem. C*, **112**, 4033 (2008).