

4D17

プラズモニック物質における光電場の可視化と制御

(早稲田大¹, JST さきがけ², 北大電子研³, 分子研⁴) 井村考平^{1,2}, 今枝佳祐¹, 上野貢生^{2,3}, 三澤弘明³, 岡本裕巳⁴

Visualization and control of optical fields in plasmonic materials

(¹Waseda Univ., ²JST PRESTO, ³Hokkaido Univ., ⁴Inst. Mol. Sci.) Kohei Imura,^{1,2} Keisuke Imaeda,¹ Kosei Ueno,^{2,3} Hiroaki Misawa,³ Hiromi Okamoto⁴

【序】 プラズモン共鳴を示す金属ナノ構造物質は、特異な光学特性を示ため、バルク固体と区別してプラズモニック物質と呼ばれる。プラズモニック物質は、光電場をナノ構造体近傍に閉じ込め局所的に光電場を増強する。増強光電場は、光の回折限界以下での光導波を実現し次世代のナノ光デバイスへの応用を可能とする。プラズモニック物質の特性は、光電場の空間構造に依存し、その理解のためには光電場の可視化が重要である。プラズモン光増強場の空間スケールは、通常の光学顕微鏡の空間分解能よりも小さいため、これを可視化することは困難である。回折限界を超える空間分解能を実現する近接場光学顕微鏡は、プラズモン光電場の可視化を可能とする。我々は、これまでに線形および非線形な近接場顕微分光イメージング手法により、プラズモニック物質に励起されるモードや光電場の空間構造の可視化を行なってきた^{1,2)}。プラズモン光電場の空間構造を制御することができれば、プラズモニック物質の機能を飛躍的に高めることができる。本研究では、非線形近接場光学顕微鏡とパルス波形制御技術を用いてプラズモニック物質における光電場の可視化と制御を目的とした。

【実験】 自作の開口型近接場光学顕微鏡とモードロックチタンサファイアレーザーを組み合わせ、非線形近接場光学顕微鏡を構築した。開発した装置では、光パルスが光ファイバー中を伝播する際に群速度分散によりパルス幅が広がるのを抑制するために、従来の顕微鏡と比べて光ファイバー長を短くした。さらに、プリズムペアによる分散補償によりファイバーによる群速度分散を補償し、近接場顕微鏡下でパルス幅約 20 fs を実現した。近接場光学顕微鏡にパルス光を導入する直前に空間位相変調器を中心とする波形整形器を導入し、光パルス波形のスペクトル特性を制御した。プラズモニック物質として、電子線リソグラフィ-リフトオフにより作製した金ナノ構造体を用いた。プラズモン光電場の空間構造は、金の二光子誘起発光を信号とする近接場二光子励起確率像により評価した。また、試料の分光特性は、キセノンランプを光源として用い、透過測定により評価した。試料は、近接場開口部より光照射し、発光および透過光を試料基板の下に設置した対物レンズで集光し分光検出した。

【結果及び考察】 作製した金ナノワイヤの走査型電子顕微鏡 (SEM) 像と表面形態像の測定結果から、ワイヤの形状が約 $(700 \pm 50) \text{ nm} \times (100 \pm 10) \text{ nm} \times (35 \pm 5) \text{ nm}$ であることが分かった。また、表面に数 nm 程度のラフネスがあるものの、すべてのワイヤの形状が高い精度で作製できていることが分かった。ワイヤ長軸と平行な偏光成分を検出して測定した近接場偏光透過スペクトルには、780 nm, 860 nm 近傍に共鳴ピークが観測された。金ナノロッドとの比較から、共鳴ピークはワイヤ長軸に分極したプラズモン共鳴に帰属される。図 1 に共鳴波長近傍で観測した近接場透過イメージを示す。図中の暗部は、透過光の減少部分を示す。図から、ワイヤ長軸に沿って周期的に暗明暗を繰り返す振

動構造が可視化されることが分かる。また図 1a と図 1b の比較から、長波長側で可視化される振動構造は、短波長側のものとは比べて周期が長いことが分かる。金ナノロッドにおいても同様の空間特性、また波長依存性が観測され、局所状態密度計算との比較から、可視化される空間構造が励起波長に共鳴するプラズモンモードに帰属されることが分かっている。このことから、図 1 において可視化された空間構造はプラズモンモードに帰属される。

同じ形状のナノワイヤの近接場二光子励起像を図 2 に示す。二光子発光を用いたイメージングは光電場の可視化に有効であることから、図 2 において可視化される像は、光電場の強度分布を示すと解釈される。二光子励起像においてもワイヤ長軸に沿って振動構造が観測され、その周期が励起波長とともに長くなるのが分かる。一方、図 1 と図 2 を比較すると、振動構造の周期が、図 2 では図 1 と比べて短くなっているように見える。

図 2 においてワイヤ両端以外の内部の部分で観測されるスポットは、透過像で観測されるスポットの位置と概ね一致することから、この振動構造はプラズモンモードに帰属される。

ワイヤの両端で観測されるスポットは、ワイヤのエッジ部分に相当し、また励起波長によって変化しないことから、避雷針効果による光電場の増強に由来すると考えられる。つまり図 2 では、プラズモンモードによる光電場増強と避雷針効果による光電場増強が同時に観測されるために、図 1 と比べて振動周期が一見短くなったように観測されたと解釈できる。

同じワイヤに対しスペクトル変調した励起光パルスを用いて励起光として光電場を可視化したところ、図 2 とは空間的特徴が全く異なるイメージが可視化された。可視化されるイメージは、励起波形の変調により大きく変化する。このことは、励起光パルスの波形整形により、光電場の空間構造を制御できることを示唆している。詳細については、発表当日議論する。

【参考文献】

- 1) K. Imura, H. Okamoto, *Progress in Nanophotonics I*, Springer-Verlag, 127 (2011).
- 2) H. Okamoto, K. Imura, *Prog. Surf. Sci.* **84**, 199 (2009).

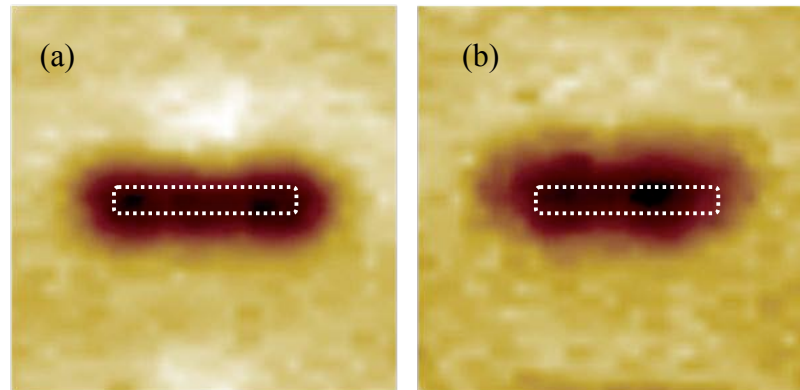


図 1. 金ナノワイヤの近接場透過像。観測波長:(a) 約 780 nm, (b) 約 860 nm。破線は、金ナノワイヤの概形。

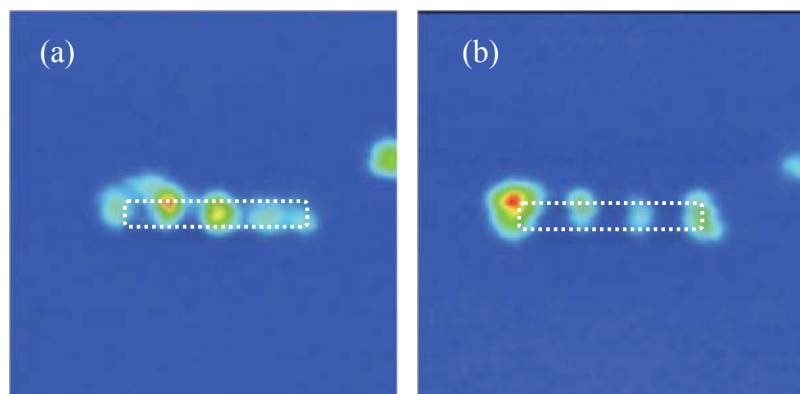


図 2. 金ナノワイヤの近接場二光子発光励起像。励起波長:(a) 約 780 nm, (b) 約 850 nm。破線は、金ナノワイヤの概形。