

4P071

近接場光学顕微鏡による酸化亜鉛マイクロ構造体の 励起モードの可視化

(早大理工¹, JST さきがけ²) 武内麻未¹, 井村考平^{1,2}

Visualization of excitation modes in a single ZnO micro structure by near-field optical microscope

(¹Waseda Univ., ²JST PRESTO) Mami Takeuchi,¹ Kohei Imura^{1,2}

【序】酸化亜鉛マイクロ構造体は、キャビティ効果により特異な光学特性を示すことが知られており、安全性や合成の簡単性から光学デバイスへの応用が期待されている。酸化亜鉛マイクロ構造体の光学特性を理解し制御するためには、構造体内部に励起される空間モードについての知見を得ることが重要である。空間モードを理解する上でモードの可視化は本質的であり、これまでに酸化亜鉛マイクロ構造体に励起される空間モードの可視化を試みた例はいくつか報告されているが、技術的な制限により明瞭な空間構造は得られていない。本研究では、高い空間分解能をもつ近接場光学顕微鏡を用いて酸化亜鉛マイクロ構造体に励起される空間モードの可視化を行った。さらに特異値分解によるデータの解析、サイズ依存性の測定から、可視化された空間モードの起源について考察した。

【実験】酸化亜鉛マイクロ構造体は、酢酸亜鉛二水和物、クエン酸三ナトリウム、水酸化ナトリウム水溶液を混合加熱し合成した¹。このとき加熱時間を変化させて、異なるサイズの構造体を調製した。マイクロ構造体を水およびエタノールで洗浄後、ガラス基板に滴下し、さらにポリビニルアルコール水溶液をスピコートして測定試料を作製した。試料の光学特性は、開口型近接場光学顕微鏡を用いて評価した。近接場観察では、透過測定および二光子誘起発光測定を行い、光源にはそれぞれ、キセノンランプ、モードロックチタンサファイヤレーザーを用いた。

【結果と考察】図1に加熱合成した酸化亜鉛マイクロ構造体の走査型電子顕微鏡(SEM)像を示す。図から、ディスク型とドーナツ型の構造体が生成していることが分かる。詳しい解析により、端から中央に近づくにつれて厚みが増す構造になっていること、また直径は2~2.5 μm 、厚みは1~1.5 μm であることが分かった。

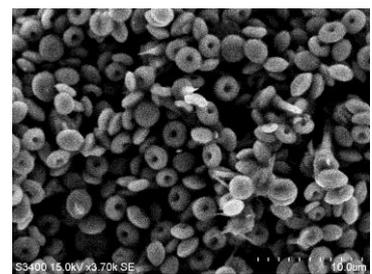


図1. 合成した酸化亜鉛マイクロ構造体の走査型電子顕微鏡(SEM)像。

図2(a)に、合成した酸化亜鉛マイクロ構造体のSEM像を示す。図から、マイクロ構造体の形状がディスクであり、その直径が約2.3 μm であることが分かる。また表面形態測定から中央部の厚みは約1.2

μm であることが分かる。図2(a)と同じ領域を、近接場光学顕微鏡を用いて測定した透過像を図2(b,c)に示す。観測波長はそれぞれ(b)761 nm, (c)812 nmである。図2(b,c)の明部では透過光が増強し、暗部では透過光が減少する。透過光の増強は、近接場プローブ開口付近に局在する近接場光が散乱され、ファーストフィールドで検出されることによる。透過光の減少は、試料による吸収および散乱による。図2(b,c)を比較するとディスクの中央部で像が顕著に変化していることが分かる。詳細な解析から、ディスク

中央(図 2(a)①)で測定した透過スペクトルには複数のピークが存在することが分かった。また観測されるイメージはピーク波長近傍において変化することが明らかとなった。得られた透過イメージの特徴的なパターンは、電磁場計算により定性的に再現される。以上の結果から、可視化される像は励起波長に共鳴するモードの空間構造を反映していると推測される。さらに、特異値分解により得られた固有値に対してイメージを作成したところ、固有値ごとに異なるイメージが得られた。このことは、可視化された像が共鳴モードの空間形状を反映するという上述の知見を強く支持する。

図 2 と類似の単一酸化亜鉛マイクロ構造体において二光子誘起発光スペクトルを測定した結果を図 3(a)に示す。発光スペクトルにおいて、波長 400 nm 付近に第二高調波(SH)の発生が確認できる。酸化亜鉛マイクロディスクの表面形態像および SH 像をそれぞれ図 3(b,c)に示す。図から、透過像と同様、SH 像でもディスク中央に明部が見られることが分かる。またこのイメージは励起波長 800 nm 付近での透過像と類似していることから、励起確率の空間分布を反映していると考えられる。

直径 1.3 μm のマイクロ構造体の近接場測定を行ったところ、得られた近接場透過スペクトルの形状は直径 2.3 μm のものと明らかに異なることが分かった。また観測される透過イメージのパターンにも違いが生じることが分かった。これらのことから励起される空間モードが、波長だけではなく構造体のサイズにも依存することが明らかとなっている。現在励起モードのサイズ依存性について検討を進めており、これにより励起モードの空間形状の物理的起源をより詳細に理解できると考えている。

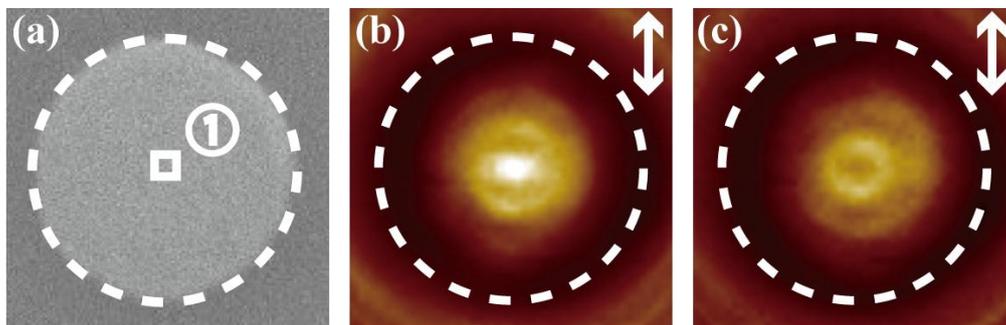


図 2. 酸化亜鉛マイクロ構造体の(a)SEM 像, (b,c)近接場透過像。観測波長: (b)761 nm, (c)812 nm。イメージサイズ: 2.8 μm \times 2.8 μm 。破線: 酸化亜鉛マイクロ構造体の概形。矢印: 出射の偏光方向。

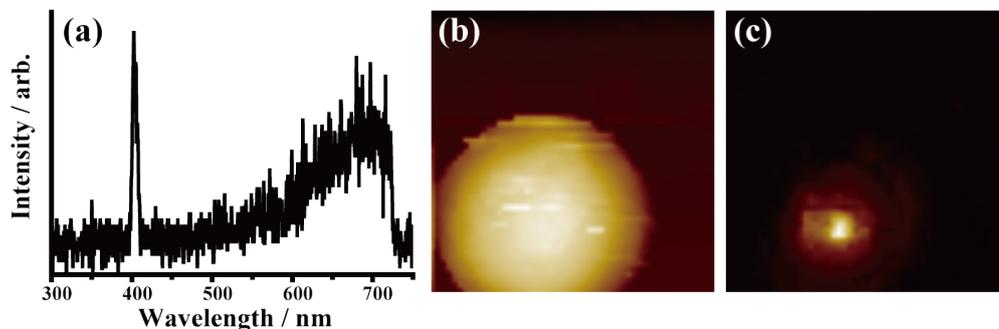


図 3. 酸化亜鉛マイクロ構造体の(a)二光子誘起発光スペクトル, (b)表面形態像, (c)SH 像。イメージサイズ: 5.1 μm \times 5.1 μm 。

【文献】 1. J. H. Zeng, B. B. Jin, Y. F. Wang, *Chem. Phys. Lett.* **472**, 90-95 (2009).