

## 4P078 開口カンチレバー式フェムト秒時間分解走査型近接場光学顕微鏡の開発：時間分解能の評価

(産総研) 古部昭広, 玉城喜章<sup>a</sup>, 加藤隆二

<sup>a</sup> NEDO フェロー

【序】我々は、光電子デバイス・太陽電池・光触媒材料等のナノ構造を有する光機能材料における、光誘起超高速反応の実時間顕微観測のため、フェムト秒過渡吸収分光測定を走査型近接場光学顕微鏡(SNOM)下で実現する装置を開発している。400-900 nm の広いポンプ/プローブ波長範囲、100 fs/100 nm の時間/空間分解能が目標である。通常の SNOM では先鋭化光ファイバーをチップに用いるため、ファイバーそのもののダメージ、フェムト秒レーザーがファイバー中を伝播する際の群速度分散によるパルス幅広がり、さらに非線形効果による波長変換等が問題となる。また、波長の異なる2パルスを導入することも難しいため、ポンプ光とプローブ光を用いる過渡吸収分光法には様々な問題点がある。本装置では開口カンチレバーをチップに用いているので、レーザー光は空气中を伝播するため、これらの問題を回避できる。また、チップの光透過効率が高い(約1%)という利点もある。本研究では、時間分解能の評価のため、チップ直下においたフォトダイオードによる二光子吸収信号を利用して、入射フェムト秒レーザーの自己相関関数を測定した。

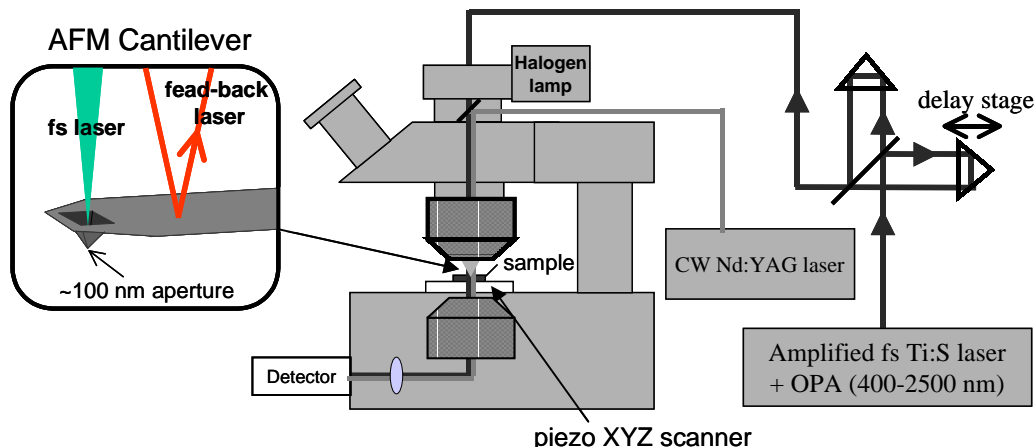


図1 開口カンチレバー式フェムト秒時間分解走査型近接場光学顕微鏡の装置図および自己相関関数測定光学系。

【実験】図1に開発中の開口カンチレバー式フェムト秒時間分解 SNOM の装置図を示している。レーザー光源は増幅チタンサファイアレーザーを OPA で波長変換したもので 400-2500 nm の波長範囲のフェムト秒パルスが得られる[Spectra Physics, Super Spitfire (800 nm, 50 fs fwhm, 1.4 mJ/pulse) with OPA-800 又は, Spectra Physics, Hurricane (800 nm, 150 fs fwhm, 1 mJ/pulse) with Quantronix, TOPAS]。光学フィルター等の都合で、現在の使用波長範囲は 400-700 nm, 800 nm であるが、AFM 用フィードバックレーザーおよび光学フィルターの交換により測定範囲を 400-900 nm まで広げる予定である。開口カンチレバー式 SNOM は市販品(WITec, -SNOM)であり、顕微鏡上部からフェムト秒レーザーを落射させ対物レンズ(8×)によってカンチレ

パー先端付近のチップ先端部の開口（直径~100 nm）に集光する。近接場光および伝搬光が、カンチレバー下側の開口出口から試料に照射される。チップはコンタクトモード AFM の原理をもちいて試料に緩く接した状態に保たれる。試料はピエゾ XYZ スキャナーで走査される（ $100 \times 100 \times 20 \mu\text{m}^3$ ）。透過レーザー光を対物レンズ（ $20\times, 40\times$ ）でコリメートした後光ファイバー入り口に集光し、光電子増倍管に導きポジション毎の透過光強度を検出する。今回の実験では、試料位置にフォトダイオード[GaAsP (band-gap: ~700 nm) or GaP (band-gap: ~550 nm)] を置き入射レーザー光の自己相関関数を求めた。二光子吸収による電流信号を、強度 1:1 に分割した 2 光束の遅延時間の関数として測定した。

**【結果と考察】**図 2（上）に自己相関関数の測定結果を示す。入射レーザーの波長は 660 nm、パルス半値全幅は約 160 fs であり、フォトダイオード GaP を用いている。得られる電流信号は非常に小さいので（~pA）電流アンプで増幅し、ボックスカー積分器で検出した。一光子吸収による信号に重なって二光子吸収信号が得られている。干渉パターンの包絡線をガウス関数でフィットすると、その半値全幅は 190 fs であった。顕微鏡に導入する前のレーザーパルスの自己相関関数半値全幅は約 220 fs であったので、SNOM に導入することによる時間分解能の低下は、予想通りほとんどないことが確かめられた。

50 fs のレーザーシステムを用いるとさらなる高時間分解能が期待される。時間分解能の最高値を確かめるため 50 fs レーザーの基本波を用いて上と同様の実験を試みた。レーザーの基本波長 800 nm は AFM フィードバックレーザーの波長(780 nm)と近いので顕微鏡内の誘電多層膜ミラーで大部分が反射されてしまい、試料位置にはわずかししか到達しない。そのため十分な二光子吸収信号が得られなかったため、カンチレバーチップを取り外し、共焦点顕微鏡の様な配置で自己相関関数の測定をおこなった。これにより 50 fs レーザーのパルス幅の保持度合いを評価した。先の実験から SNOM チップによる時間分解能の低下はほとんどないことが確かめられているので、この測定によりおよそその最高時間分解能が評価できると考えた。フォトダイオードは GaAsP を用いた。レーザーパルスの分散補償をしない場合は、光路上の光学素子の屈折率分散によってパルス幅が広がり、自己相関関数半値全幅は 95 fs となった。しかし、二光子吸収強度が強くなるように負の分散をあらかじめ与えた場合は、図 2（下）に示すように、68 fs の半値全幅が得られた。AFM フィードバックレーザー交換後のデータを当日発表する予定である。

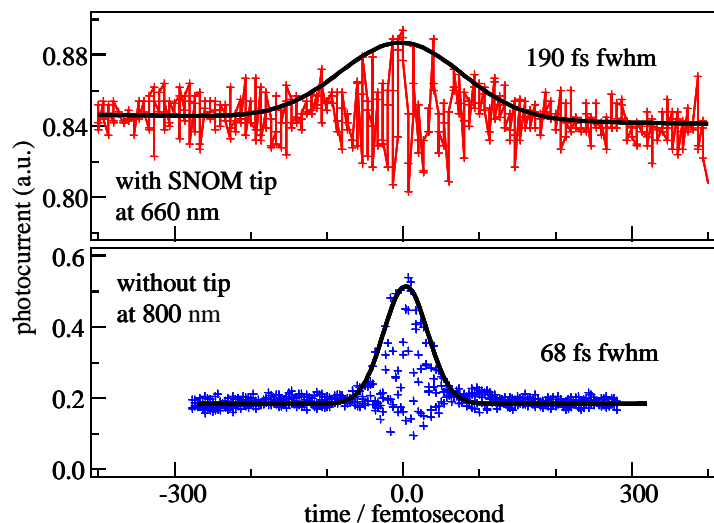


図 2 （上）SNOM 下におけるフェムト秒レーザーパルス (~160 fs)の自己相関関数。(下)チップ無し、~50 fs レーザーの場合。