

周波数干渉型近接場顕微計測を用いた金ナノ構造の応答関数計測

Measurement of response function of Au nanostructure by spectral interferometry with NSOM

大西 秀太郎 (M1)

Shutaro Onishi

Abstract

Response function of localized plasmon at Au nanorod is measured. A fiber probe of NSOM influences the plasmon field, We research plasmon resonance spectrum of Au nanostructures and influence of Au-coated fiber probe. We measure localized plasmon resonance experimentally, and demonstrate that localized plasmon can be controlled by incident excitation laser pulse shape based on the response function.

1. はじめに

近年、光デバイスの微小化・高度集積化に伴い、ナノオプティクス的重要性が高まっている。その中で我々は nm、fs という非常に高い分解能で光電場の時空間制御することに着目している。ナノ領域で光を扱う方法の一つに金属ナノ構造のプラズモン現象を用いる方法がある。局在プラズモン共鳴とは、金属ナノ構造が特定の波長と共鳴して、その結果著しく増強した電場が、ナノ構造近傍に局在する現象である。ナノ構造の局在プラズモン共鳴現象には、入射波の周波数依存性、偏光依存性がある。この特性を応用することで、ナノ領域で局在プラズモン場を時空間的に制御できると考えられている。これまでに規則的なナノ構造とフェムト秒レーザーパルスのアダプティブ偏光波形整形を用いることで、局在プラズモンを空間的に制御する研究が報告されている[1]。また、シミュレーションによって、プラズモン応答関数を用いることで局在プラズモンを

決定論的に時空間制御できる可能性が示されている[2]。

これまでに、我々は周波数干渉(SI)法と近接場光学顕微鏡(NSOM)を組み合わせた新たな測定系(SI-NSOM)により、実験的に局在プラズモンの応答関数計測および時空間制御を実証したが、共鳴を確認することはできなかった。そこで、金属コートファイバプローブの影響やナノ構造の共鳴波長について、FDTD シミュレーションを用いることで再度検討し、その結果を基に局在プラズモン共鳴が起こる中で実験的に応答関数計測および時空間制御を実証した。

2. 試料・実験セットアップ

測定に用いたナノ構造は Fig. 1 のようにアスペクト比の異なるナノロッドを十字構造に組み合わせた金十字ナノ構造をガラス基板上に作製したものであり、アスペクト比は 3 と 3.5~7 である。Fig.1 にシミュレーションによって計算される共鳴波長を示す。なお、実際の試料は Fig. 1 の SEM 画像を

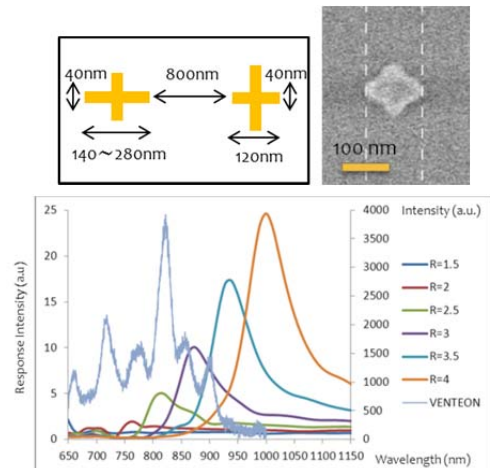


Fig. 1 Cross nanostructures and plasmon resonance spectra calculated by FDTD simulation.

見ても分かるように完全な四角形ではなく、エッジが丸みを帯びているため、シミュレーションにおいても限りなくその形状を再現した。Fig. 1の結果より、今回用いる励起光の中で共鳴が確認できるアスペクト比は1.5~3.5であることが分かるため、ここではアスペクト比が3.5の試料について計測を行う。

次にSI-NSOMの実験セットアップをFig. 2に示す。

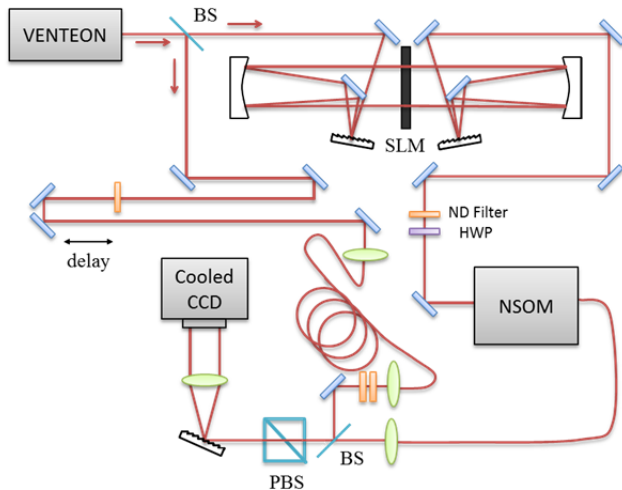


Fig. 2 Experimental setup for SI-NSOM.

光源はTi:Sapphireレーザ（パルス幅~8 fs、繰返し周波数150 MHz、スペクトル帯域600~1000 nm、VENTEAON）である。今回は4f系の関係でスペクトル帯域は630~970 nmである。近接場光学顕微鏡は自作のものであり、プリズムを用いた全反射励起系である。プローブは開口径140 nm、遮光コート金のファイバプローブを用いており、コレクションモードにより近接場光を取得した。VENTEAONのレーザ光をBSで信号光と参照光に分け、信号光は4f系において波形整形し、 $\lambda/2$ 板で偏光方向を調整して、S偏光で近接場光学顕微鏡に入射し、ファイバ

バプローブでナノ構造近傍の光を検出している。一方、参照光は遅延時間をつけて、分散補償用にファイバプローブと同質のファイバに伝搬させた後に、BSで信号光と同一線状にしている。その後、グレーティング-レンズ対、冷却CCDカメラによって、周波数干渉縞を測定している。ここでFig. 3に金コートファイバプローブの影響について検討したシミュレーション結果を示す。

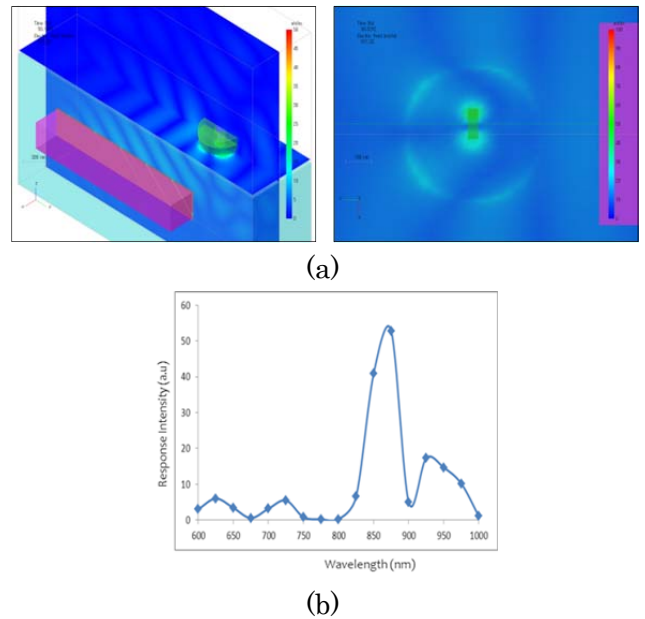


Fig. 3 Influence of Au-coated fiber probe calculated by FDTD simulation: (a) electric field mapping, and (b) plasmon resonance spectrum of R=3.

Fig. 3より金コートファイバプローブ上でも共鳴が確認できる。また、Fig. 1と比較して、共鳴スペクトルの形状は異なるものの、共鳴波長はほぼ変化しないことが分かる。したがって、実験においても問題なく共鳴が確認できると考えられる。

3. 実験結果

NSOMによる測定結果をFig. 4に示す。(a)はトポグラフィ、(b)はDC検出の強度分布、(c)はロック

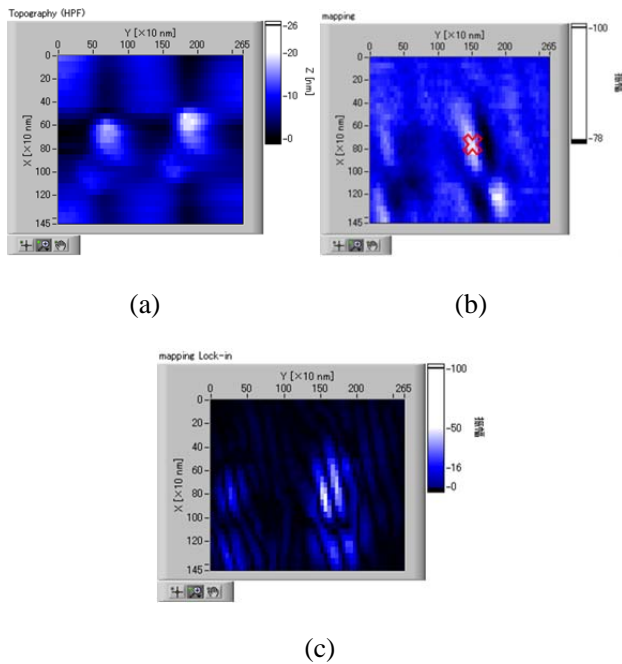


Fig. 4 NSOM measurements: (a) topography (b) DC detection, and (c) Lock-in detection.

イン検出の強度分布を示している。入射光は臨界角 (43°) 以上になるように入射し、偏光方向は S 偏光である。使用したプローブの先端径が 500 nm 程度であるため、十字構造を読み取ることはできないが、試料の外形はトポグラフィによって確認でき、また、トポグラフィと強度分布に相関性があることが分かる。

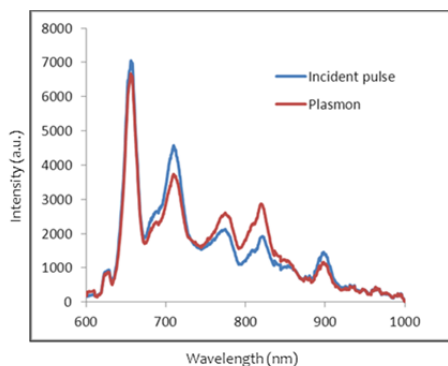


Fig. 5 Spectrum of incident pulse and plasmon.

ここで、Fig. 4 に示したように、アスペクト比 3.5 の金ナノ構造において最も近接場光強度の強い点を測定点とし、プラズモン応答関数を計測した。まず、冷却 CCD 分光器を用いて測定したスペクトルを Fig. 5 に示す。プラズモンスペクトルを入射光のスペクトルで除することで、周波数域における強度応答関数を求めることができる。次に SI-NSOM によって測定した干渉縞を Fig. 6(a)に示す。この干渉縞をフーリエ変換位相解析法によって求めた相対位相を Fig. 6(b)に示す。

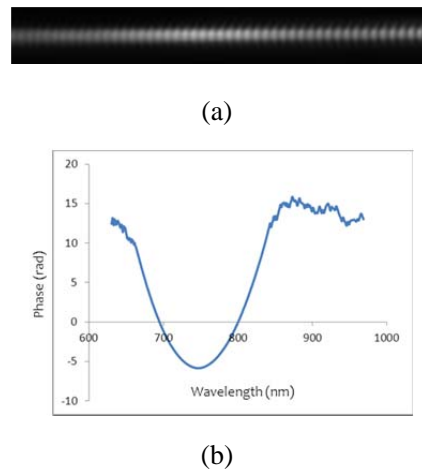
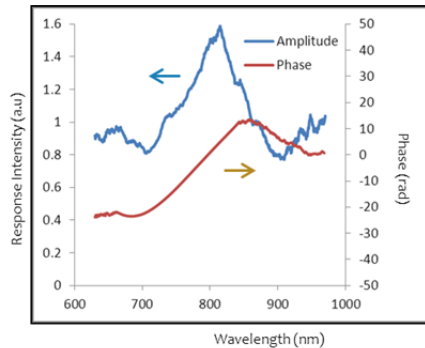


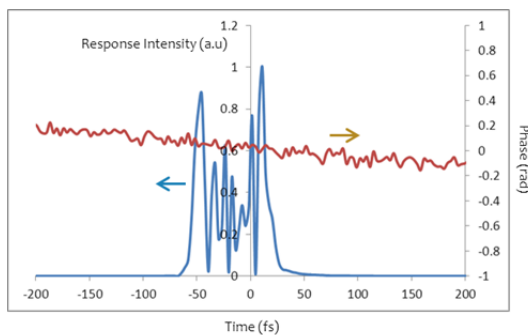
Fig. 6 (a) Spectral interference fringe pattern (b) Reconstructed spectral phase.

信号光と参照光の分散補償をすることで、周波数域における位相応答関数を求めることができる。以上の方法で求めた周波数域プラズモン応答関数を Fig. 7(a)に示す。さらに周波数域応答関数をフーリエ変換することで得られる時間域応答関数を Fig. 7(b)に示す。Fig. 7 からプラズモン共鳴が確認でき、さらに共鳴波長において位相がシフトしていることが分かる。この現象はクラマース・クローニッヒの関係式より説明される。また、シミュレーション値

との誤差は、実際のナノ構造の形状を正しく再現できていないためだと考えられる。



(a)

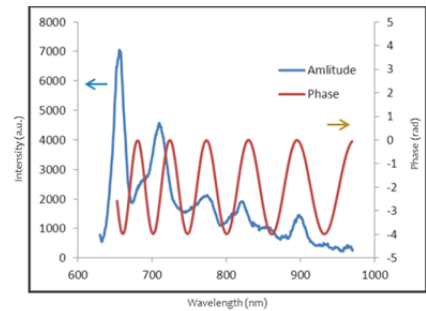


(b)

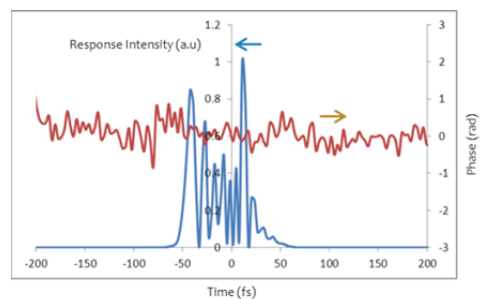
Fig. 6 Plasmon response function: (a) frequency domain, and (b) time domain.

また、計測したプラズモン応答関数計測の妥当性を検証するため、フェムト秒レーザパルス波形整形技術を用いることで時空間制御されたプラズモン場を励起した。Fig. 8(a)は波形整形器において sin 変調関数の周波數位相を加えた励起光である。それに対して、Fig. 8(b)はその励起光によって励起されたプラズモンを SI-NSOM によって求めた実験値、Fig. 8(c)はその励起光と計測したプラズモン応答関数によって求めた計算値を示している。両者を比較すると、ほぼ一致していることが分かる。この結果より、計測されたプラズモン応答関数の妥当性が示

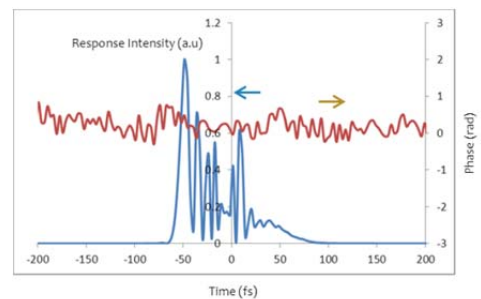
されたと言える。



(a)



(b)



(c)

Fig. 8 (a) Shaped sinusoidal excitation light, (b) experimentally measures plasmon pulse, and (c) calculated plasmon pulse with the plasmon function.

4. まとめ

金属ナノ構造の共鳴波長および金コートファイバプローブの影響について FDTD シミュレーションを用いることで検証し、局在プラズモン共鳴を計測

できる可能性を示した。その結果を基に SI-NSOM を用いることで実験的に局在プラズモン共鳴が計測でき、共鳴波長において位相がシフトしていることが分かった。さらにフェムト秒レーザーパルス波形整形技術によって、計測したプラズモン応答関数の正当性が検証でき、決定論的なプラズモン場の時空間制御が実証できた。

References

- [1] M.Aeschlimann, M.Bauer, D.Bayer, T.Brixner, F. Javier, G.Abajo, W.Pfeiffer, M.Rohmer, C.Spindler and F.Steeb, Nature 446, 301 (2007)
- [2] J. S. Huang, D. V. Voronine, P. Tuchscherer, T. Brixner, and B. Hecht, Phys. Rev. Lett. B79 195441 (2009)