

平成 30 年 5 月 29 日現在

機関番号：14603

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13936

研究課題名(和文) 波動関数の干渉を応用した超分解能コヒーレンス制御手法の開発

研究課題名(英文) Development of super-resolution coherent control based on wave packet interferometry

研究代表者

香月 浩之 (Katsuki, Hiroyuki)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・准教授

研究者番号：10390642

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：当初の固体水素を用いる計画に変更を加え、基板表面に作成した周期酸化膜の表面に局在するブロッホ表面波を用い、その面内伝播特性を利用して二次元面内での励起状態の微小領域への局在化を目標とする。分散曲線のシミュレーションを行い550nm周辺で局在したモードが出現する条件を設定し、スパッタによってその構造をSiO<sub>2</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>周期膜により作成し、断面SEM計測により構造を確認した。全反射顕微鏡を構築し、位相空間によるイメージング手法により反射角度分散を一括して計測する装置を作製した。実際に測定したイメージからブロッホ表面はモードの確認を行った。シミュレーションとの相異について、現在解析を行っている。

研究成果の概要(英文)：Due to the leakage problem of gas-H<sub>2</sub>, we have changed our target from condensed phase hydrogen to a surface localized polariton which can be generated by the strong interaction of the Bloch surface wave and organic exciton. We have prepared a periodic oxide thin-film layer to prepare a Bloch surface wave. The transfer matrix simulation is performed using SiO<sub>2</sub> and Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layer as a target medium. We have fabricated the designed structure using a magnetron sputter, and checked its structure by cross section SEM image. The total reflection type microscope setup is built using a high-NA objective lens. We have measured the k-space image of the reflected light to observe the angle-dependent reflectivity spectrum. We have successfully measured the reflected image from the periodic oxide thin-film layer, and detected a dip on the reflectivity. The mismatch between the simulation and experiment is not negligible, which may be due to the low quality (homogeneity) of our sputtered sample.

研究分野：コヒーレント制御

キーワード：ブロッホ表面波 強結合状態 コヒーレント制御 回折現界

### 1. 研究開始当初の背景

通常の光学系を用いた光計測法では、回折限界の存在のため、それ以下の分解能を得ることはできない。近年、STED(stimulated emission depletion)や STORM(Stochastic optical reconstruction microscopy)といった超分解能顕微分光技術が開発され、すでに様々な研究応用がなされている。例えば STED では、蛍光を示す色素分子を励起したのちに、ドーナツ状に整形した STED 光と呼ばれる脱励起パルスを照射することにより、ドーナツ型の中心部のみに励起状態蛍光分子を集中させることによって、回折限界を超えた分解能を得ることに成功している。ただしこの手法では、対象とする試料に対してタグとなる蛍光色素を添加する必要がある。

本研究では、これまでの手法とは異なり、蛍光分子を利用せずにレーザー光の空間波形整形技術と波動関数の干渉を利用して励起スポットの形状を制御することにより、回折限界を下回るようなスポットサイズで対象となる量子系内に励起状態を生成し、観測することが可能ではないかと考え、そのための手法の開発を試みた。

### 2. 研究の目的

本研究の当初の目的では、STED の手法の代わりに空間位相変調によるパルススポットの形状の変調と、波束干渉制御技術を組み合わせ、部分的に波束干渉によって励起状態の波束を消してしまうことによって、励起状態に残った部分を回折限界よりも小さなサイズにできるのではないかと、ということを実証する目的であった。波束の干渉を利用できる量子的な系として、固体パラ水素の振動励起状態を考えていたが、実験を進めていく上で、パラ水素結晶に回折限界レベルでレーザー光を集光することで微小なクラックが生じ、これによるシグナル強度の減少とシグナルの不安定化が生じた。これを回避するために、液体水素を試料とした実験を試みたが、この場合には銅製セルのインジウムシールの隙間から液体水素が断熱層に漏れ出してしまい、クライオスタットの断熱が破れてしまう、という現象が起きた。極低温でのスーパーリークは対策が難しく、急激な突沸で水素ガスが爆発的に発生する恐れがあり、経験の浅い学生に実験を行ってもらうことに安全上の問題が生じた。おそらく、固体水素結晶を作成する場合には、最初に成長した固体によって隙間が埋められるために、リークは大きな問題にはならなかったものと考えられる。何度か異なる条件で試みたものの、極低温におけるリークの改善が見られないため、計画を変更しターゲットと励起手法を変更して、最終的に回折限界を超えるような励起実験を目指すことにした。

具体的には、周期酸化膜の表面に局在して存在する局在した電場分布と強く相互作用するような有機薄膜を周期膜表面に作成し、

局在電場と有機薄膜中の電子励起状態の強結合状態を作成する手法である。このような局在電場をプロッホ表面波と呼び、その状態と混ざり合って生成する光と励起子の局在状態はプロッホ表面波ポラリトンと呼ぶことができる。この状態の特徴として、伝搬による減衰が非常に小さいことが知られている。本研究期間内では試みることができないが、将来的には酸化膜の表面層に二次元的なパターンを作成し、空間分布をデザインした励起光を用いて、量子干渉やポラリトンの表面伝搬を利用することによりポラリトンの分布の制御が実現できる。このような切り口で回折限界を超えることが可能なのではないかと考え、その第一歩としてプロッホ表面波ポラリトンの作成を目指し、試料と測定系の作成を行った。

### 3. 研究の方法

研究は(1)シミュレーションによる周期多層膜構造の設計、(2)設計した周期多層膜をスパッタによって作成、(3)全反射型顕微光学系を作成し、(2)で作成した試料の反射スペクトルと  $k$  (波数ベクトル) 空間におけるイメージを観測する、という順序で進めていく。表面に局在したモードの存在は、全反射顕微鏡を利用して角度依存反射スペクトルを観測すると、特定の角度において外部からの侵入光の波数ベクトルとプロッホ表面波の波数ベクトルが等しくなり、エネルギーがプロッホ表面波にリークしていく現象が生じ、結果的に反射率スペクトルにディップが生じる。このようなディップの観測からプロッホ表面波の存在が確認できる。まず、有機多層膜を成膜しない周期多層膜のみの試料を作成して、プロッホ表面波を確認する。その次の段階として、表面に色素薄膜を成膜して、強結合状態を確認することを目指す。

### 4. 研究成果

#### (1) シミュレーションの実施

以下ではプロッホ表面波強結合状態の作成と評価について説明する。研究は試料の作成と評価装置の立ち上げの両方を行った。試料を作成するために、まずどのような膜厚で周期酸化膜を作成すればプロッホ表面波が生じるか予測するために、transfer matrix 法を応用した、プロッホ表面波の分散関係と局在電場分布のシミュレーションを行った。酸化膜材料として  $Ta_2O_5$  と  $SiO_2$  を仮定し、両者を任意の厚さで積層した場合の、エネルギーと波数ベクトルの分散関係を計算した。例として、 $SiO_2$ 80nm、 $Ta_2O_5$ 154nm を 8 周期積層し、さらにその表面に  $Ta_2O_5$  を 12.3nm 積層した試料における分散関係の計算結果を図 1 (上) に示す。表面の  $Ta_2O_5$  層は有機薄膜層の代わりとして仮に配置している。この図でエネルギー 2.0eV、波数ベクトル  $k = 10(1/\mu m)$  辺りに存在する 1 本の白線が Bloch 表面波に対応している。それ以外のラインは通常の伝

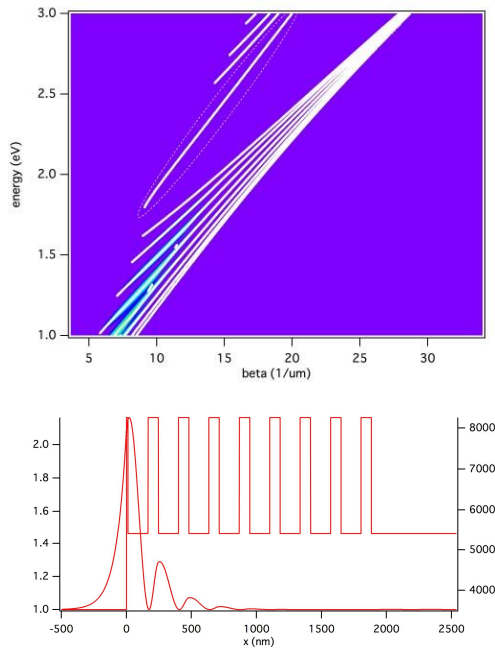


図1 (上)面内波数ベクトルとエネルギー間の分散関係。点線で囲んでいる曲線がBSWモードに対応する。(下)BSWモードに相当する2.25 eV,  $\beta=13.09(1/\mu\text{m})$ における電磁波の強度分布と屈折率分布。横軸の0が基板表面に対応する。

搬する電磁波モードを表している。この結果から、エネルギー2.25eV,  $\beta=13.09(1/\mu\text{m})$ の条件で電磁波モードの厚さ方向での強度分布を計算した結果を図1(下)に示す。

図1(下)の結果から、電場強度が期待した通り表面部分に局在して存在していることが確認された。このような電場と有機薄膜層中の励起子遷移とを共鳴させることができれば、プロッホ表面波=ポラリトン状態の生成が可能となると考えられる。

### (2) スパッタによる周期薄膜構造の作成と評価

(1)で行ったシミュレーションの結果に基づいて、実際にTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>とSiO<sub>2</sub>を周期酸化膜層とする多層膜をマグネトロンスパッタによって作成した。作成のための装置は奈良先端科技大の共通利用設備と、産総研ナノテクノロジープラットフォームのユーザー共用施設を利用させていただいた。作成後に断面をSEMで測定して、実際に積層された各層の厚さを測定した(図2)。SiO<sub>2</sub>層が150-160nm, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>層が80-82nmと見積もられ、ほぼ計画通りの周期多層膜が作成できていることが確認された。

### (3) 全反射型顕微イメージング装置の作成と評価

シミュレーションの結果から、入射/反射角が40~50度周辺において、プロッホ表面波に由来するディップが観測できるものと予想される。角度依存の反射スペクトルを計測する方法として、プリズムとKretschmann geometryを利用して入射(反射)光の角度を

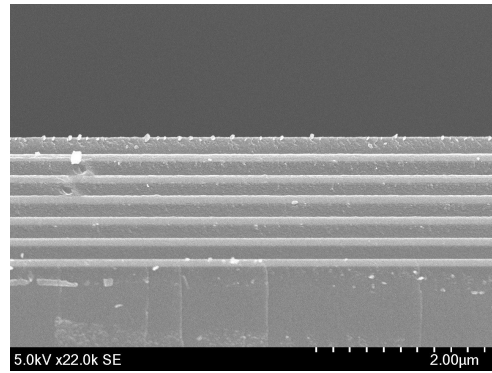


図2 スパッタで作成したTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub>周期酸化膜の断面SEMイメージ。Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の厚さは80~82nm, SiO<sub>2</sub>の厚さは150~160nmと見積もられた。

掃引する方法とNAの大きな対物レンズを利用して、広域にわたる角度のスペクトルを一括して測定する手法が考えられる。本研究ではNA=1.4の全反射顕微鏡用のTIRF対物レンズを利用して、後者の手法によって角度依存反射スペクトルの観測を試みた。光源には白色光源を利用し、バンドパスフィルタで波長域を560nm±10nmに狭め、CCDカメラによるk(位相)空間におけるイメージ計測を試みた。結果を図3に示す。

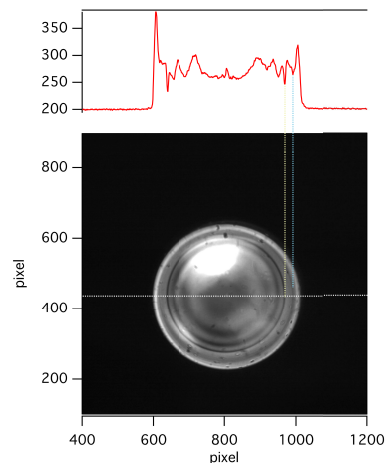


図3 (下)全反射顕微鏡によるk空間での反射イメージ (上)白線に沿っての断面図。青い点線側のディップがBloch表面波によるものと考えられる。

今回得られた反射率のディップの角度はシミュレーションの結果とあまりよく一致しておらず、またディップの線幅がかなり広いことから、スパッタによって作成した周期酸化膜の質に問題がある可能性がある。様々な条件の異なる周期酸化膜を作成する場合にはコストの問題から自力で成膜することが必要となるが、周期膜構造が確定している場合には、外部の専門業者でより高品質な成膜を行ってもらうことも可能である。今後、図1で示した周期膜構造について、外部業者に依頼してイオンビームスパッタなどの手法で成膜を行うことを計画している。

5. 主な発表論文等  
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 1 件)

Christian M. Laurio, Hiroyuki Katsuki, and Hisao Yanagi,  
“ Observation of strongly-coupled Bloch surface waves and excitons in a 1-D SiO<sub>2</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> photonic crystal ”

2017年9月23日

日本物理学会 2017年秋季大会(ポスター発表 23pPSA-34)@岩手大学 上田キャンパス

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

香月 浩之 (KATSUKI, Hiroyuki)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・准教授

研究者番号：10390642

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

(4)研究協力者

なし