

機関番号：10101

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2010

課題番号：19049002

研究課題名（和文） 超狭帯域レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能性構造の光局在反応解析

研究課題名（英文） Analysis of photon-localization within integrated functional structures using narrow-band laser microimaging spectroscopy

研究代表者

笹木 敬司 (SASAKI KEIJI)

北海道大学・電子科学研究所・教授

研究者番号：00183822

研究成果の概要（和文）：

本研究では、局在プラズモンによる空間的光捕集（光アンテナ効果）と微小共振器による時間的光捕捉（群速度抑制効果）を相補的に組み合わせることにより、光子と分子の究極的な結合状態、すなわち光子1個と分子1個が100%相互作用する系の実現を目指した研究を行った。この目的に対し、超狭帯域レーザー顕微分光イメージング装置を用いて、(a)テーパファイバ結合微小球を用いた高効率局在プラズモン励起、および、(b)散乱型近接場顕微鏡を用いた光局在場の高空間分解マッピングの実現を行った。その結果、微小共振器構造を利用した高効率局在プラズモン励起では、テーパファイバ結合微小球共振器の高入出力結合および高Q値等の特性により、テーパファイバ結合微小球共振器に近接させた金コートAFMチップの微小球—AFMチップ間距離の最適化により、約93%もの入射光が金コートAFMチップ先端において光が散乱・吸収される事を示し、金コートAFMチップ先端部において高強度の局在プラズモン励起の可能性を示唆した。また、散乱型近接場顕微鏡を用いた光局在場の直接観察では、電子線リソグラフィ/リフトオフにより精度良く作製したナノギャップ（約7nm）金ナノ構造体の散乱場および試料の凹凸像の同時測定を行い、回折限界を遥かに越えた（半値全幅 $9.2 \pm 0.5 \text{ nm} \sim \lambda/100$ ）微小光局在スポットの観測に成功した。これまで数値計算あるいは散乱スペクトル等の間接的な情報から推測するしか無かった局在場の空間分布を実験的に初めて示す事に成功した。

研究成果の概要（英文）：

In this research project, we were aiming to realize the ultimate strong photon-molecule coupling fields, in which one photon and one molecule are interacted with perfect (100%) efficiency. This coupling field is based on the combination of spatial photon-localization (optical antenna effect) in plasmonic nanostructures and temporal photon-confinement (group-velocity reduction effect) in optical micro-cavities. For this purpose, we have investigated (a) a technique for the efficient localized plasmon excitation using a fiber-coupled microspherical cavity system and (b) a spatially resolved mapping of localized fields using a scattering-type near-field microscope. In the study of efficient plasmon field excitation using a microcavity system, we have succeeded to suggest the possibility that about 93% incident light could couple to a gold coated AFM tip via a tapered fiber coupled microspherical cavity system at the critical condition, which was achieved by changing the distances between a taper, a microsphere, and a gold-coated AFM tip. Furthermore, we constructed a scattering-type near-field optical microscope in order to directly measure localized plasmonic fields in metal nanostructures with high spatial resolution beyond the diffraction limit. By using a scattering-type near field microscope, we measured metal nanostructures with a nanogap, which were fabricated by e-beam lithography / lift-off techniques. From the results, we confirmed that the intense scattering light was observed at the nanogap of the structure and the intensity distribution showed that the width of this intensity spot was  $9.2 \pm 0.5 \text{ nm}$ , which was  $\sim 1/100$  of the incident laser wavelength. Because these experimental results were in good agreement with those of numerical predictions, we succeeded to directly visualize the localized fields induced in metal nanostructures.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	20,900,000	0	20,900,000
2008年度	21,800,000	0	21,800,000
2009年度	20,000,000	0	20,000,000
2010年度	11,800,000	0	11,800,000
年度		0	
総計	74,500,000	0	74,500,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学、工学基礎・応用光学、量子光工学

キーワード：微小共振器、顕微分光イメージング、金属ナノ構造体、光局在、光反応増強

1. 研究開始当初の背景

超短パルスレーザーを用いた時間分解分光技術の進展はめざましく、フェムト秒からアト秒の時間領域に達しつつあり、本特定領域においてもプラズモンの伝搬や光反応ダイナミクスの解析に時間分解イメージングは重要な役割を担う。一方、光子と分子の強結合状態を形成するためには、プラズモンの他、フォトニック結晶、微小球、ランダム媒質等の微小光共振器によって、光子あるいは光子と電子が強くカップリングした状態を微小空間に閉じ込める系が必要であり、そのような共鳴系ではスペクトル線幅が極めて狭く、時間の不確定性は大きくなる。したがって、局在状態の解析には、時間応答特性を観るより、狭帯域の光で局在領域を効率的に励起しプローブする手法が必要不可欠である。

超短パルスレーザーを用いた顕微分光システムは、時間分解イメージングや多光子蛍光顕微鏡、非線形顕微鏡など、数多く開発されているものの、狭帯域レーザーを利用した共焦点光学顕微鏡および光散乱プローブ顕微鏡は世界的にも例がなく、高波長分解イメージングの分野に新しい道を拓くとともに、光-分子強結合反応を誘起し制御するシステムとしても大いに貢献すると期待できる。

2. 研究の目的

本申請研究では、局在プラズモンによる空間的光捕集（光アンテナ効果）と微小共振器による時間的光捕捉（群速度抑制効果）を相補的に組み合わせることにより、光子と分子の究極的な結合状態、すなわち光子1個と分子1個が100%相互作用する系の実現を目指した研究を行った。この目的に対して、波長可変狭帯域レーザーを共焦点光学顕微鏡および光散乱プローブ顕微鏡に導入して、メガヘルツの周波数(<math>10^{15}</math> nm 波長)分解能とマイクロ～ナノメートル空間分解能を併せ持つ顕微分光システムを新たに開発し、フォト

ンが時間・空間的に強局在する現象の詳細な解析を行う事によって、光局在場における分子遷移ダイナミクスの観測、非線形光反応プロセスの増強効果の解析を目指した。これらの装置を使用し、研究期間内に(a)主にテーパファイバ結合微小球共振器を介した高効率局在プラズモン励起の実現と、(b)散乱型近接場顕微鏡を用いた金属ナノ構造体中の光局在場の高空間分解イメージングの実現を目指した。

これらの構造における光局在モードの時間共鳴特性の解析を行う事によって、高波長分解イメージングの分野に新しい道を拓くとともに、光-分子強結合反応を誘起し制御するシステムとしても大いに貢献すると期待できる。また、共振器-プラズモン結合システムにより超高効率局在プラズモン励起を実現する試みは、我々独自のアイデアに基づくものであり、世界に先駆けた研究であると言える。

3. 研究の方法

本研究では、レーザー顕微鏡、および、微小球やランダム媒質光共振器の研究実績やこれまで培ってきた最先端光技術のノウハウを活かして、狭帯域レーザー顕微分光装置および散乱型近接場顕微鏡の構築を行い、これらの装置を用いて、金属ナノ構造体中のプラズモン解析や共振器を介した高効率局在プラズモン励起の検証実験を行った。

図1は構築した散乱型近接場顕微鏡の概念図を示している。顕微鏡を介して対物側から試料を全反射照明し、金属ナノ構造体中に局在プラズモン場を誘起する。AFMチップを走査しながらこの局在プラズモン場を散乱させ、その散乱光を同じ対物レンズで検出すると同時に試料の凹凸像の情報もPCで記録した。一方、試料として、電子線リソグラフィ/リフトオフにより精度良く作製したナノギャップ(約7nm)金ナノ構造体(三澤G共

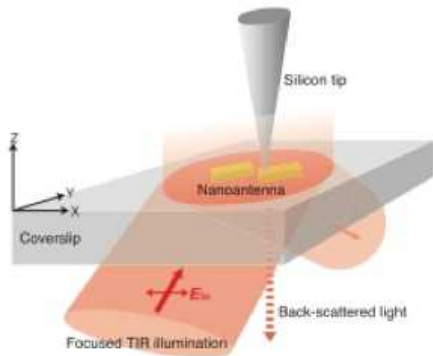


図1 散乱型近接場顕微鏡の概念図

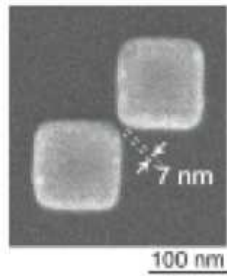


図2 作製したナノギャップを持つ金ナノ構造

同研究) を作製した (図2)。この試料を構築した散乱型近接場顕微鏡で測定し、回折限界を越えた空間分解能でギャップ部分に発生する局在場の直接観察を試みた。

また、提案したテーパファイバ結合微小球共振器を介した金属ナノ構造の高効率光結合のアイデアを実験的に実証するため、テーパファイバ、微小球、金コート AFM チップ間の距離を高精度に制御しながら透過率スペクトルを測定する実験装置を構築した (図3)。高 Q 値の共振器の共鳴スペクトルを測定する為に、超狭帯域レーザーをテーパファイバに結合し、波長を挿引しながら様々な結合条件 (ピエゾステージにより各要素間の距離を変えながら) における透過率スペクトル変化を観測し、解析する事によって金コート AFM チップへの光結合効率の見積りを行った。また、微小球共振器はテーパファイバ先端を

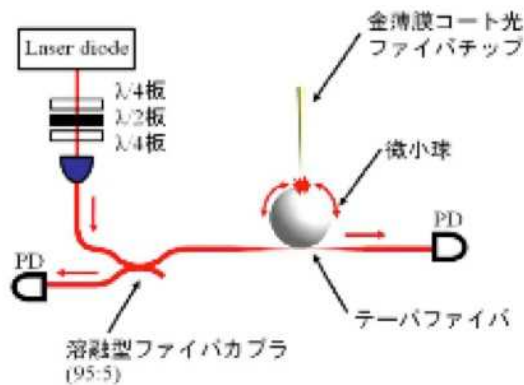


図3 テーパファイバ結合微小球共振器を介した高効率局在プラズモン場励起用実験光学系

CO<sub>2</sub> レーザーの加熱溶融する事により作製し、テーパファイバは市販のシングルモードファイバをセラミックヒータで加熱延伸する事により作製した。

#### 4. 研究成果

【テーパファイバ結合微小球共振器を用いた高効率局在プラズモン励起】

テーパファイバ結合微小球共振器を介した金属ナノ構造の高効率光結合を実験的に実証するため、直径約 400nm のテーパファイバに微小球共振器 (直径約 80μm) を接触させた状態 (オーバーカップリング状態) に、図3の配置の様にテーパファイバの反対側から金コート AFM チップを接近させながら、透過スペクトルを測定し、共鳴ディップの深さや幅が距離に応じて変化する様子を確認した (図4)。この結果を解析した所、最適な結合状態 (距離 50nm 付近) において、入射した光のうち約 93%の光が金コート AFM チップにより散乱・吸収されている事を明らかにした。この結果は、金コート AFM チップ先端において光強度の局在プラズモン場が誘起されている可能性を示唆しており、共振器を介した高効率局在プラズモン励起の実現可能性を初めて示唆した。

【散乱型近接場走査型顕微鏡を用いた光局在場の高空間分解マッピング】

金ナノ構造体中に誘起される光局在場の回

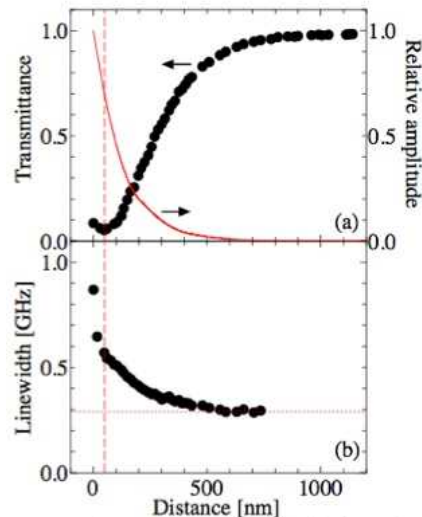


図4 透過スペクトル中の共鳴ディップにおける透過率と共鳴幅変化のチップ-微小球間距離依存性

折限界を越えた高空間分解マッピングを行った。構築した散乱型近接場顕微鏡を用いて、作製したナノギャップ金ナノ構造体 (図2) の凹凸像と散乱像の同時取得を行った。その結果、金ナノ構造のギャップ部分において強い回折限界を遥かに越えた (半値全幅約 9nm) 微小な局在スポットの観測に初めて成功し

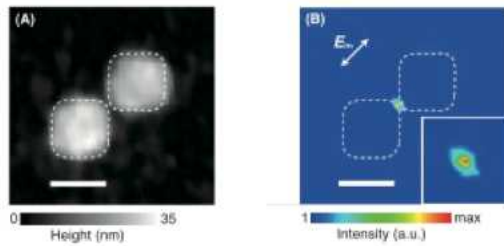


図5 金属ナノ構造の(A)凹凸像と(B)光散乱像

た(図5)。偏光方向を $90^\circ$  変えると、ナノギャップからの散乱光強度が弱くなる事が確認され、数値解析的な予測とよく一致した。また、ギャップサイズを変えた試料の測定も行った所、数値解析から得られた局在場分布と非常に良い一致を示す事から、本結果が局在プラズモン共鳴に基づくものであることが確認された。また、本装置を用いる事によって初めて、局在場の何処でどのような光反応が誘起されるか、と言った事も実験的に明らかにする事が可能となると期待され、今後は局在スポットにおけるラマン散乱分光の実現を目指し、ナノギャップ金属ナノ構造体の光反応についての新たな知見を得られるものと期待している。

#### 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 24 件)

①Y. Tanaka, H. Ishiguro, H. Fujiwara, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa, and K. Sasaki: “Direct imaging of nanogap-mode Plasmon-resonant fields” Opt. Exp., 査読有 19(8), 7726-7733 (2011)

②H. Fujiwara, Y. Kawabe, R. Okamoto, Sh. Takeuchi, and K. Sasaki: “Quantum lithography under imperfect conditions: effects of loss and dephasing on two-photon interference fringes” J. Opt. Soc. Am. B, 査読有 28(3), 422-431 (2011)

③S. Kadri, H. Fujiwara, and K. Sasaki: “Fano-like resonance in an optically driven atomic force microscope cantilever” Opt. Exp., 査読有 19(3), 2317-2324 (2011)

④Y. Tanaka and K. Sasaki: “Selection and transfer of individual plasmon-resonant metal nanoparticles”, Appl. Phys. Lett., 査読有, 96(5), 053117/1-053117/3 (2010)

⑤H. Fujiwara, Y. Tanaka, H. Ishiguro, A. Saito and K. Sasaki: “Direct observation of localized fields in nanogaps between metal particles using a scattering-type near-field microscope” Appl. Phys. Exp., 査読有, 2(10) 102002/1-102002/3 (2009)

⑥H. Fujiwara, Y. Hamabata, and K. Sasaki: “Numerical analysis of resonant properties of a waveguide structure within a random medium” Opt. Exp., 査読有 17(13), 10522-10528 (2009)

⑦H. Fujiwara, Y. Hamabata, and K. Sasaki: “Numerical analysis of resonant and lasing properties at a defect region within a random structure” Opt. Exp., 査読有 17(5), 3970-3977 (2009)

⑧H. Takashima, H. Fujiwara, S. Takeuchi, K. Sasaki, and M. Takahashi: “Control of spontaneous emission coupling factor  $\beta$  in fiber-coupled microsphere resonators” Appl. Phys. Lett., 査読有 92(7), 07115-1 - 07115-3 (2008)

⑨Yoshio Kawabe, H. Fujiwara, R. Okamoto, K. Sasaki, and S. Takeuchi: “Quantum interference fringes beating the diffraction limit” Opt. Exp., 査読有 15(21), 14244-14250 (2007)

⑩T. Nagata, R. Okamoto, J. O’ Brien, K. Sasaki and S. Takeuchi: “Beating the Standard Quantum Limit with Four Entangled Photons” Science, 査読有 316, 726-729 (2007)

[学会発表] (計 40 件)

①K. Sasaki: “Quantum photonic technology beating the classical limit”, Visiting Professor Seminar, Swinburne University of Technology, Melbourne, Australia (2010-1-21)

②K. Sasaki: “Photon technology beating the classical limit”, RIES-CIS Mini-workshop on Nano/Bio/Quantum Science, National Chiao Tung University or Hsinchu Jiao Tong University, Taiwan (2009-12-10)

③K. Sasaki: “Observation of entangled photon interference beating the diffraction limit”, 2009 International Conference on Optical Instrument Technology (OIT 2009), Shanghai Everbright Convention & Exhibition Center, China (2009-10-19)

〔図書〕（計 1 件）

① H. Fujiwara and K. Sasaki : Wiley-VCH, :  
Molecular Nano Dynamics Vol.1, Chap.  
7 :Dynamic analysis using photon force  
measurement (2009), 722

〔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

<http://optsys2.es.hokudai.ac.jp/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

笹木 敬司 (SASAKI KEIJI)

北海道大学・電子科学研究所・教授

研究者番号：00183822

### (2) 研究分担者

藤原 英樹 (FUJIWARA HIDEKI)

北海道大学・電子科学研究所・准教授

研究者番号：10374670

### (3) 連携研究者

該当なし