

# 相互相関型暗視野顕微計測を用いた金ナノ構造のプラズモン応答関数計測と制御

## Measurement of Plasmon Response Function of Gold Nano Structures using Dark-field

### Cross-correlation Microscopy and Control

草場 美幸 (M1)

Miyuki Kusaba

#### Abstract

We report the experimental results of response functions for gold nano-structures measured by dark-field cross-correlation microscopy, where its temporal scanning function is improved. We deterministically shape ultrafast plasmon waveform using shaped excitation laser pulses.

#### 1. はじめに

ナノ構造を持つ金などの貴金属は、紫外から近赤外域において局在プラズモン共鳴 (LSPR: Localized Surface Plasmon Resonance) という現象を発生する。超高速光パルスで励起された局在プラズモンの時空間特性に関しては、PEEM を用いて複素電界計測をした例や[1], 励起フェムト秒レーザーパルスのベクトル波形整形を用いて時空間制御する提案[2]などがこれまでに報告されている。近年, このようなフェムト秒レーザーパルスを金や銀などの微粒子やナノ構造に照射したときのプラズモン応答関数を測定あるいは計算するといった研究が盛んに行われている。我々は PEEM よりも簡便な相互相関暗視野顕微鏡を用いることで, CCD で計測した 2 次元面内の複数の位置において同時に異なったプラズモン応答関数を計測した。この手法を用いることで, PEEM と比較してとても短い測定時間で相関波形を得ることが可能となった。

今回我々は改善した遅延光学系を用いて、金ナノ構造の応答関数を求めた。さらに、二次分散をかけ

たときにプラズモン波形が変化することを確認した。

#### 2. 実験セットアップ

試料は外注して電子ビームリソグラフィで作製したもので、厚さ  $625 \mu\text{m}$  のガラス基板上に高さ  $30 \text{ nm}$  の金ナノ構造が配置されている。金ナノ構造は, Fig. 1 に示したような三角および四角の bow-tie 構造を用いた。ギャップはそれぞれ  $10\sim 40 \text{ nm}$  で設計を行ったが, 三角 bow-tie 構造ではギャップがつぶれているとの報告があった。

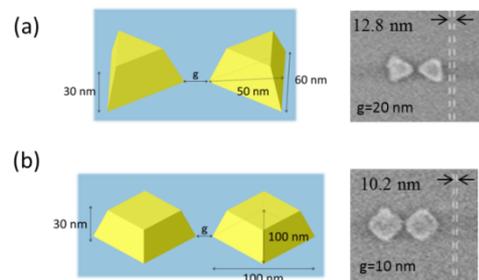


Fig. 1. Designed Au nanostructures and SEM images: (a) square structure (b) triangular structure.

実験はモード同期 Ti:Sapphire レーザ (波長  $650\sim 1050 \text{ nm}$ , パルス幅  $10 \text{ fs}$ , 繰り返し周波数  $150 \text{ MHz}$ , VENTEON) を用いた相互相関型暗視野顕微鏡による応答関数計測を行った。実験セットアップを Fig. 2 に示す。VENTEON のレーザーパルス光は signal 光と reference 光に分けられ, signal 光は試料に直径  $150 \mu\text{m}$  のスポットサイズで集光し, 試料によって発生する散乱光を対物レンズ ( $\times 10$ ,

NA=0.25)で集め CCD 面に入射させた。一方、reference 光は、走査型遅延光学系によって signal 光との間に遅延差をつけて直接 CCD 面に入射した。CCD 画像上の任意の点の強度を遅延差をつけながら取得していくことにより、フリンジ分解相互相関波形を得た。応答関数は、相互相関スペクトルおよび励起光スペクトルを用いて以下のように記述できる。

$$R(r, \omega) = \frac{\tilde{M}(\omega)}{|\tilde{E}_{ref}(\omega)|^2} \quad (1)$$

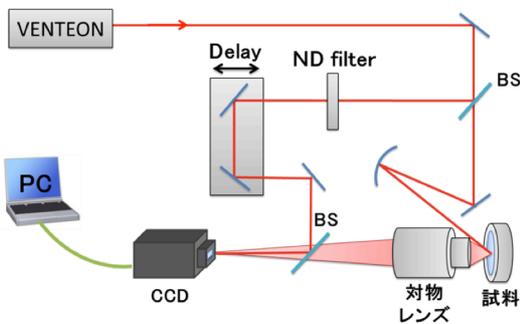


Fig. 2. Schematic of the experimental setup.

### 3. 実験結果

#### A. 遅延光学系の改善

本実験系の分解能は機械的走査モジュールの精度と顕微鏡の精度によって決定される。そこで、よりノイズを減らし、分解能の高いデータを得るために機械的走査モジュールの改善を行なった。新しく導入した機械的走査モジュールは APE 社製の Scan Delay である。まず初めに、Fig. 3 に示すようなマイケルソン干渉計を用いて Scan Delay の性能測定を行なった。Scan Delay は電圧駆動モータで印加電圧値が遅延距離に相当する。

Scan Delay を一定速度で走査したときの CCD カメラ上のある点でその強度を測定し、その強度を FFT することにより遅延モータの分解能を求める。実験は、He-Ne レーザ (CW レーザ、波長 633 nm)

を光源とし、CCD カメラの露光時間を 1/33 s として 2500 サンプルの測定を行なった。

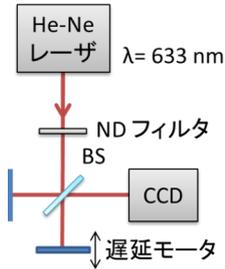


Fig. 3. Schematic of the experimental setup of the performance measurement.

測定結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 の上のグラフは CCD カメラの強度と Scan Delay の印加電圧値のグラフであり、それを FFT したものが下のグラフである。下のグラフでは、分光器で得られた He-Ne レーザのスペクトル (緑線) も併せて記載した。Fig. 4 より Scan Delay の空間分解能は 8.4 nm であった。Scan Delay を用いることで、従来の遅延モータの分解能 (~19 nm) と比較してより精度のよい測定が可能となる。

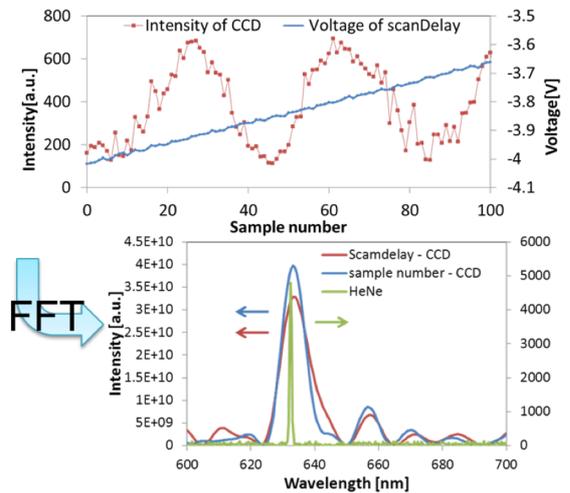


Fig. 4. Waveform of Michelson interferometer and Spectra of waveform.

#### B. 応答関数計測と位相制御

はじめに、Fig. 1 に示した金ナノ構造に対して応答関数の計測を行なった。さらに、試料に照射する

前の signal 光にガラス板(BK-7, 5 mm)を挿入し signal 光に分散を乗せて同様に測定を行なった。

結果として得られた三角構造、四角構造の相互相関波形をそれぞれ Fig. 5、Fig. 6 に示す。

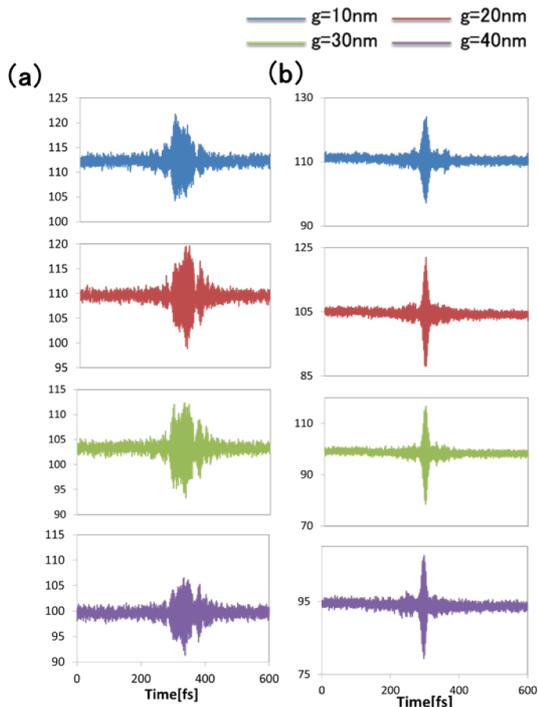


Fig.

5. Cross-correlation Waveform of triangular gold nano-structures:(a)Without BK-7 (b)With BK-7.

Fig. 5、Fig. 6 において、ガラス板を挿入した場合に相互相関時間波形が短くなっている。これは、相互相関波形は signal 光と reference 光のスペクトル強度と相対位相から成るためである。Fig. 2 に示すように、reference 光には ND filter が挿入されている。signal 光にガラス板を挿入することによって、signal 光と reference 光の位相差が小さくなることにより、相互相関波形の時間幅が小さくなる。

この相互相関波形から reference 光のスペクトル強度と ND filter の分散を考慮し応答関数を求めた。BK7 の分散は差し引いていないので、応答関数の

導出結果に現れるはずである。ガラス板による二次分散は物性値から  $223\text{fs}^2$  である。

三角構造の応答関数を Fig. 7、Fig. 8 に、四角構造の応答関数を Fig. 9、Fig. 10 に示す。

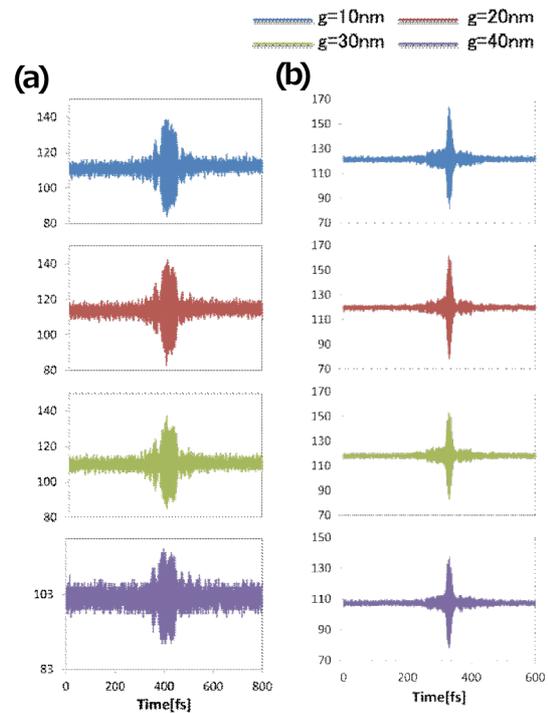


Fig. 6. Cross-correlation Waveform of square gold nano-structures:(a)Without BK-7 (b)With BK-7.

Fig. 7 から Fig. 10 より、ガラス板を挿入した場合にプラズモン応答波形の位相に二次分散が乗っていることが確認できた。この分散量はガラス板による分散量と同量である。

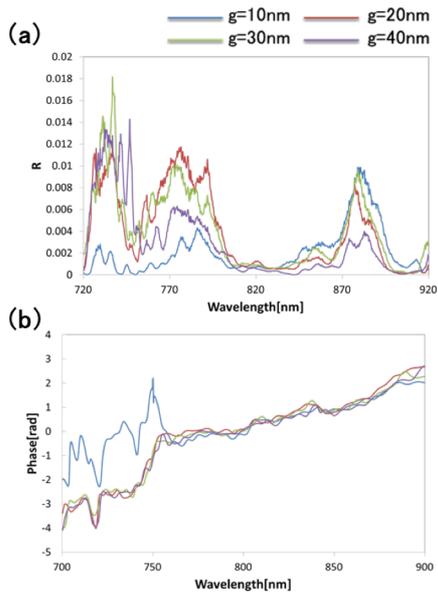


Fig. 7. Plasmon response function of triangular gold nano-structures without BK-7:(a)Intensity (b)Phase.

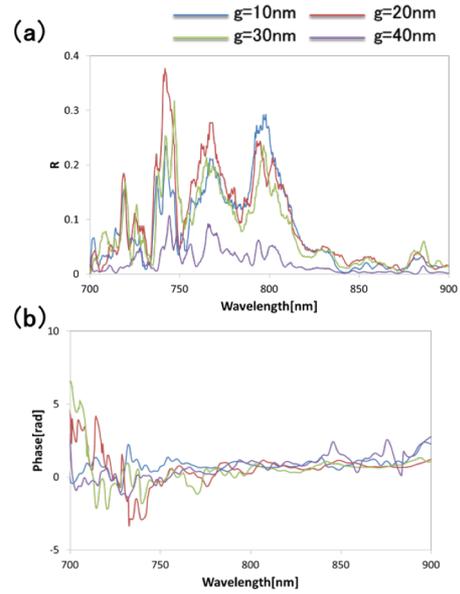


Fig. 9. Plasmon response function of square gold nano-structures without BK-7:(a)Intensity (b)Phase.

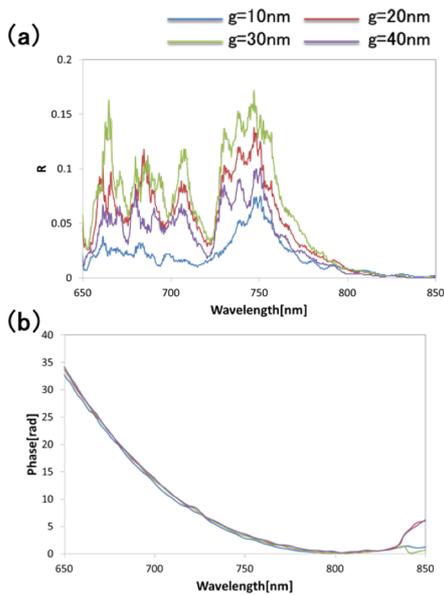


Fig. 8. Plasmon response function of triangular gold nano-structures with BK-7:(a)Intensity (b)Phase.

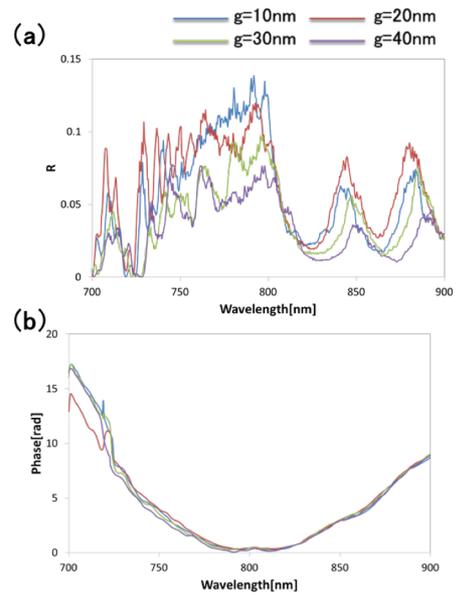


Fig. 10. Plasmon response function of square gold nano-structures with BK-7:(a)Intensity (b)Phase.

#### 4. まとめ

改善した相互相関暗視野顕微鏡を用いて広帯域パルスレーザの帯域における金ナノ構造の応答関数を計測し、ガラス板を挿入することによってプラズモンの時間波形を制御することができることを確認した。

#### References

- [1] A. Kubo, K. Onda, H. Petek, Z. Sun, Y. S. Jung, and H. K. Kim, *Nano Lett.*, 5, 1123 (2005)
- [2] M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, F. Javier Garcia de Abajo, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Spindler and F. Steeb, *Nature*, 446, 301 (2007)