

赤外領域における近接場分光 (レビュー)



岡村英一（神戸大院理）

池本夕佳、森脇太郎、木下豊彦（JASRI/SPring-8）

石川迪雄、中嶋悟（阪大院理）

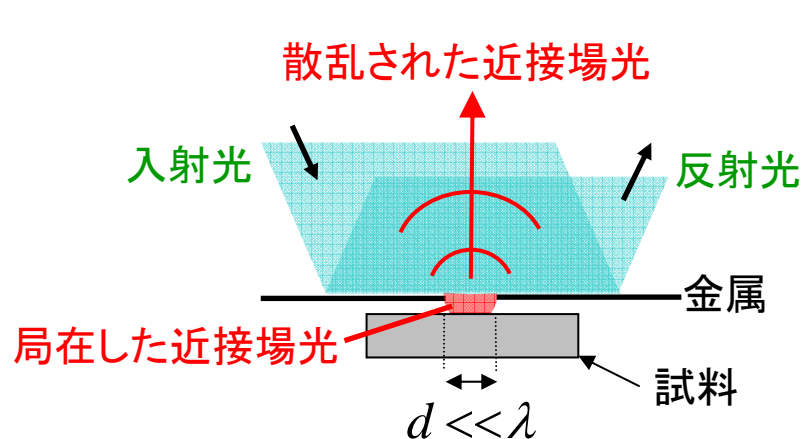


アウトライン

- 近接場光学技術を用いた超解像赤外顕微分光
- 単色赤外レーザーによる実験
 - Table top lasers (Keilmann et al.)
 - FEL (Dresden FELBE)
- ブロードバンド赤外光による実験
 - 擬似ブロードバンドレーザー (Keilmann et al.)
 - Globar: 石川、中嶋ら (阪大)
 - (Incoherent) SR: 池本ら (SPring-8 BL43IR)
 - テラヘルツ領域の実験 (THz TDS、CSR)

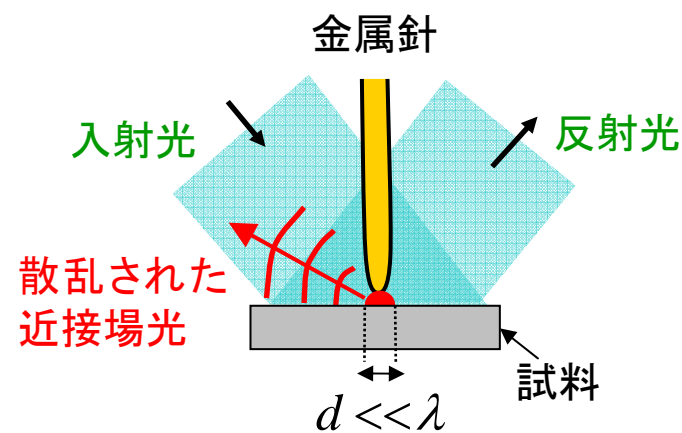
近接場光学の応用による顕微分光

- 近接場光学 (Near-field optics)
 - 局在した(伝播しない)近接場光(エバネッセント光)
 - 回折限界に依らない空間分解能($\sim \lambda/100$ or higher)
 - 近接場走査プローブ顕微鏡(NSOM)



開口型NSOM

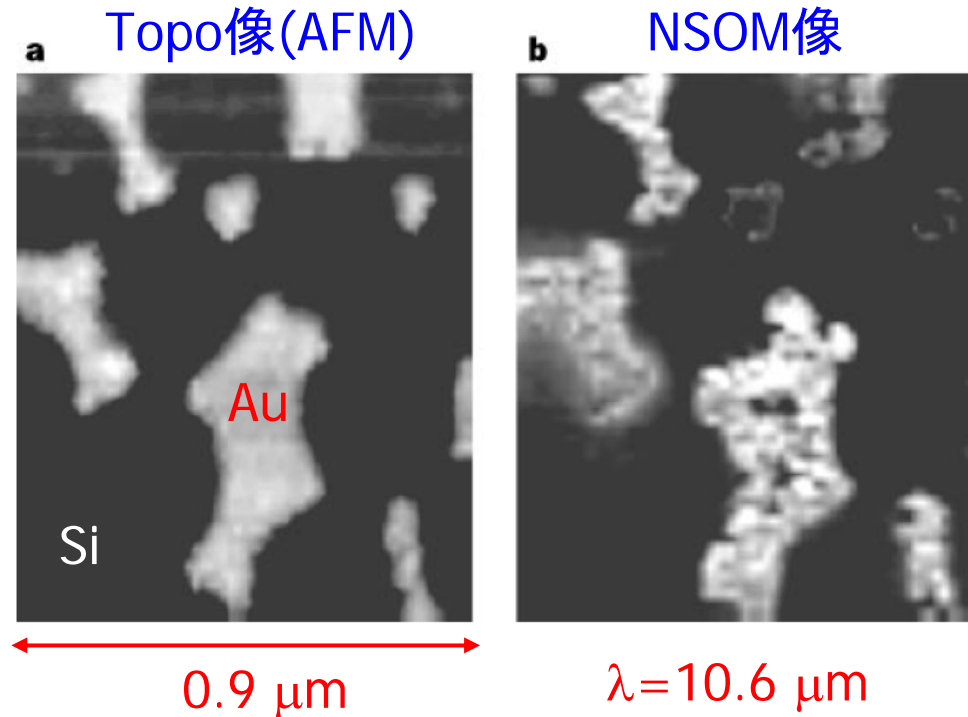
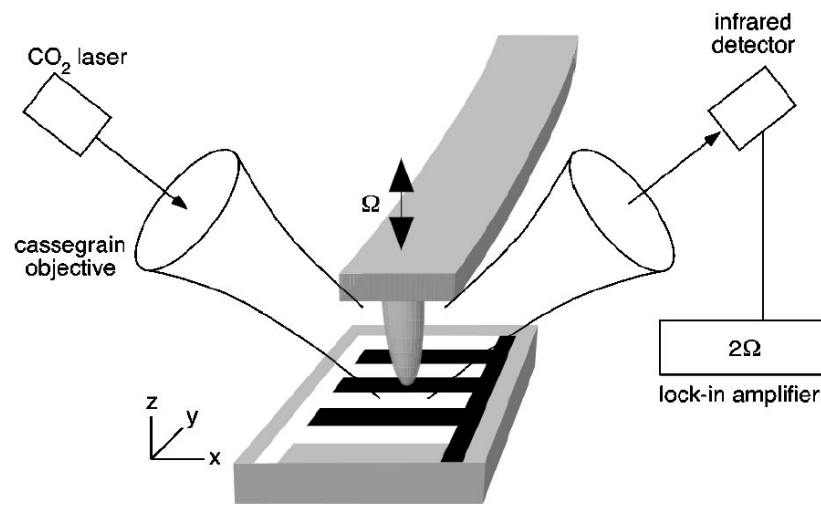
- ・主に可視領域(光ファイバー使用)
- ・レーザー + PL, Ramanが主流



散乱型NSOM

- ・アンテナ効果による電場増強
- ・透過しない試料でも可

単色レーザーによる赤外NSOM

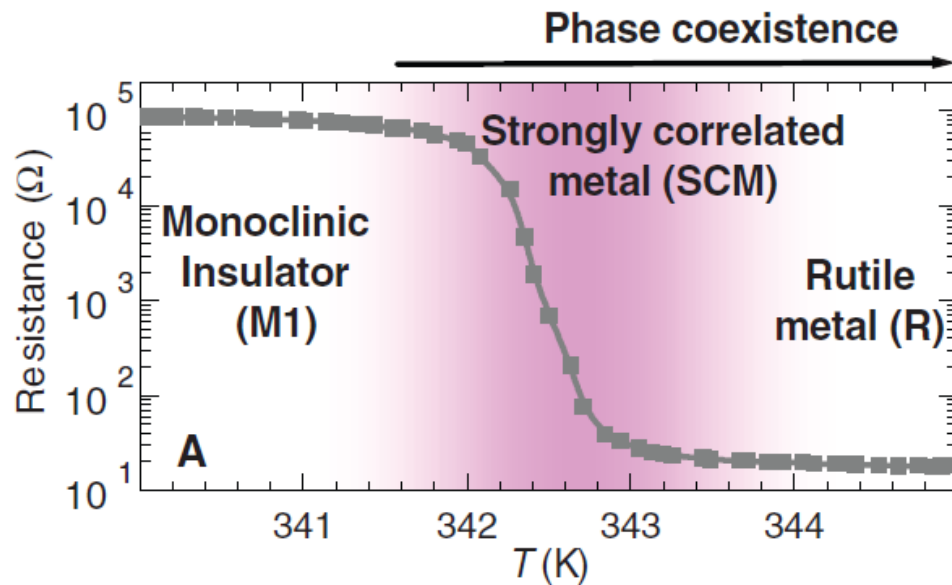


Knoll and Keilmann, Nature **399** (1999)134.

- 原子間力顕微鏡(AFM)プローブ先端にCO₂レーザー(10.6 μm)
- プローブのタッピング振動数でロックイン検出(2倍波)
 - プローブ先端—試料間の距離に強く依存する近接場光を抽出
- 振幅情報のみ(位相は得られない)

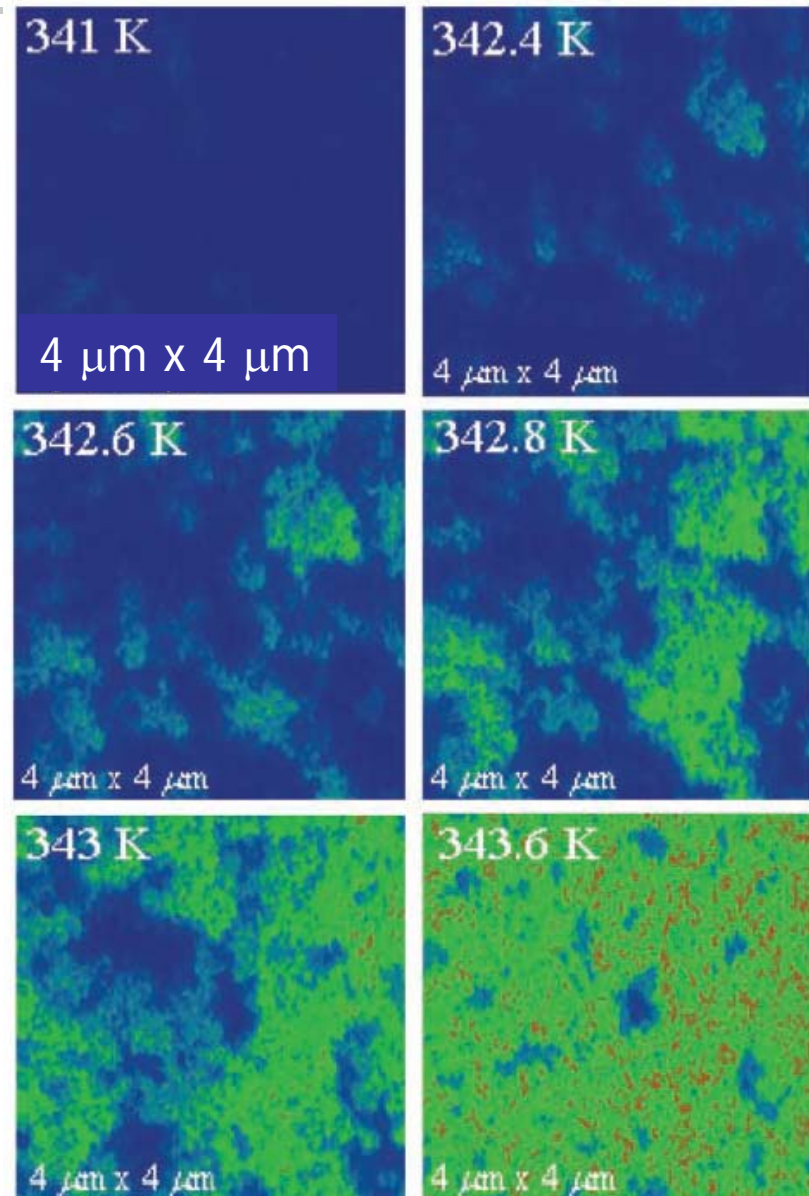
単色赤外NSOMの例(1)

VO₂の金属絶縁体相分離・共存



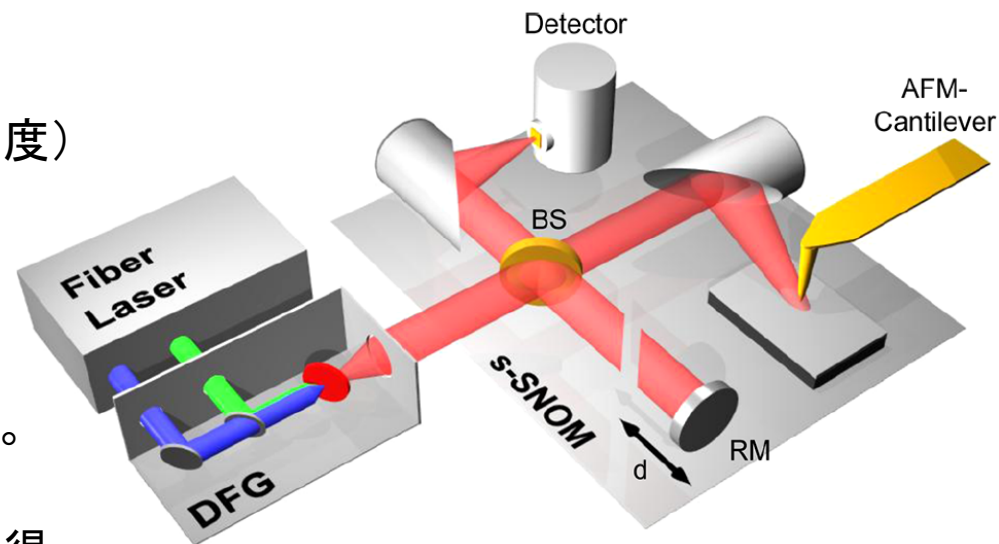
CO₂レーザー: $\lambda = 10.6 \mu\text{m}$
($h\nu \sim 0.11 \text{ eV}$)

Basov et al., Science
318, 1750 (2007).



擬似ブロードバンドレーザーによる実験 (Hillenbrand, Keilmann et al)

- 差周波中赤外レーザー
 - 中心波長10 μm 程度 (1000 cm^{-1} 程度)
 - バンド幅200 cm^{-1} 程度
 - チューナブル
- 非対称FT-IRの採用
 - 干渉計内部 \rightarrow 位相情報が得られる。
(原理はTHz-TDSと同じ)
 - 近接場光と参照光の干渉 \rightarrow 信号利得



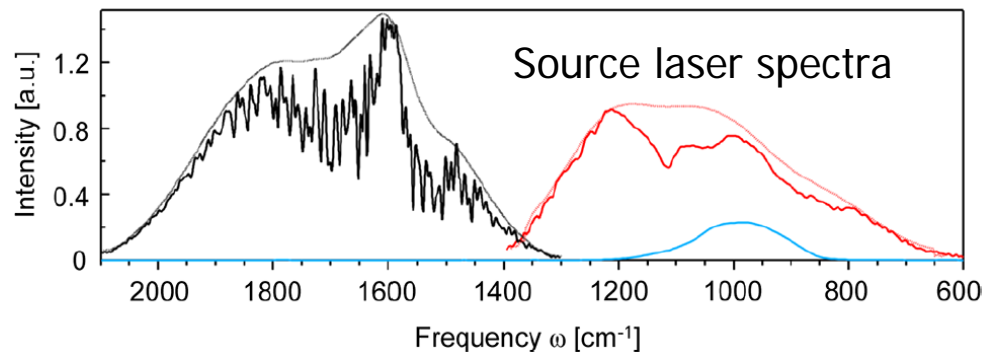
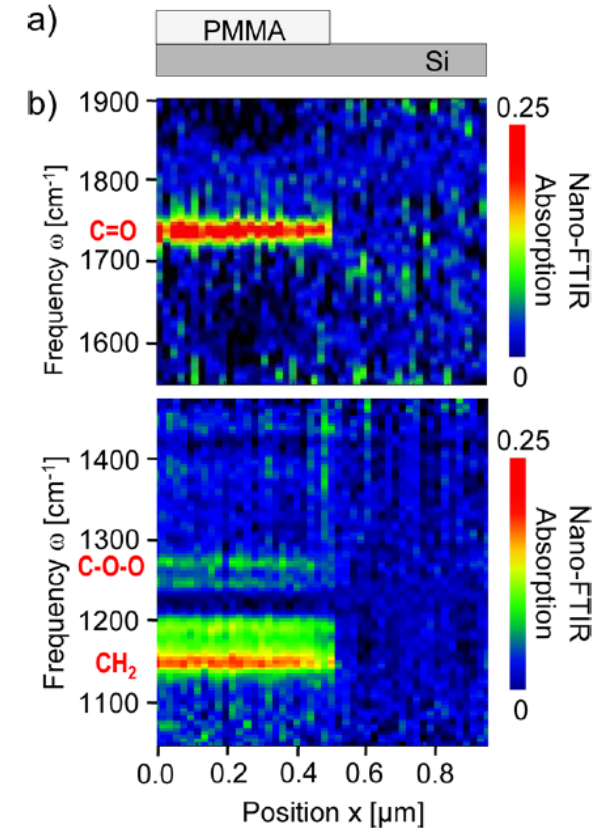
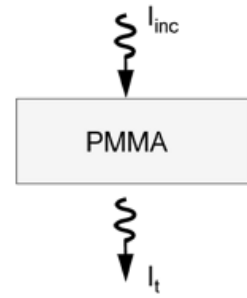
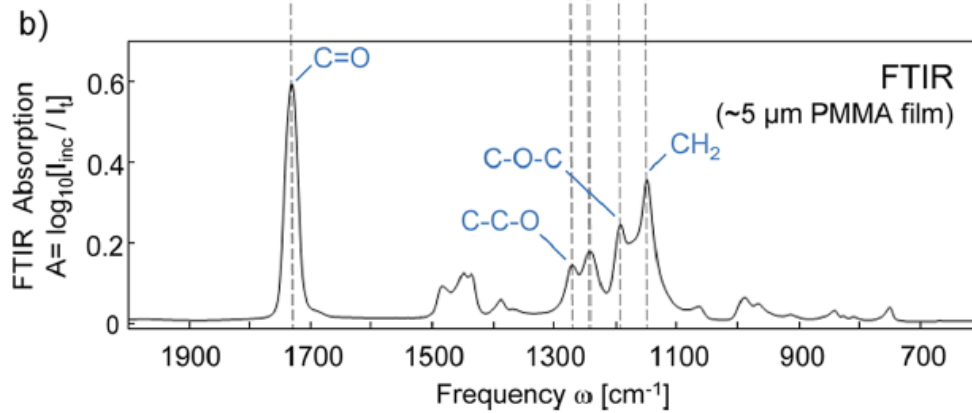
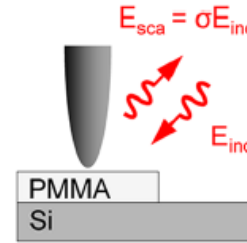
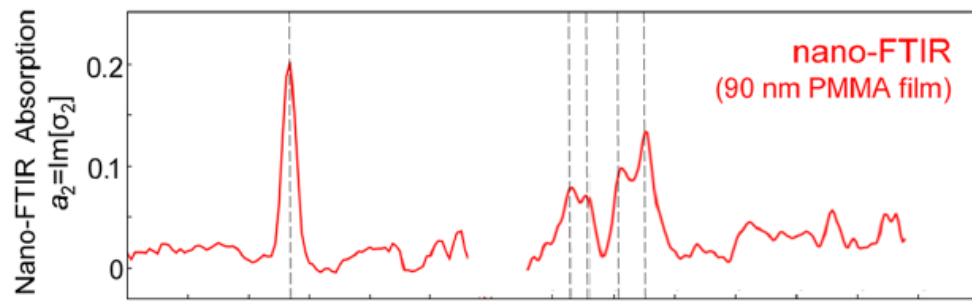
Huth et al., Nano Lett. (2012) ASAP.

\rightarrow 近接場光の電場 $=\alpha E_0$ とすると ($\alpha \ll 1$)

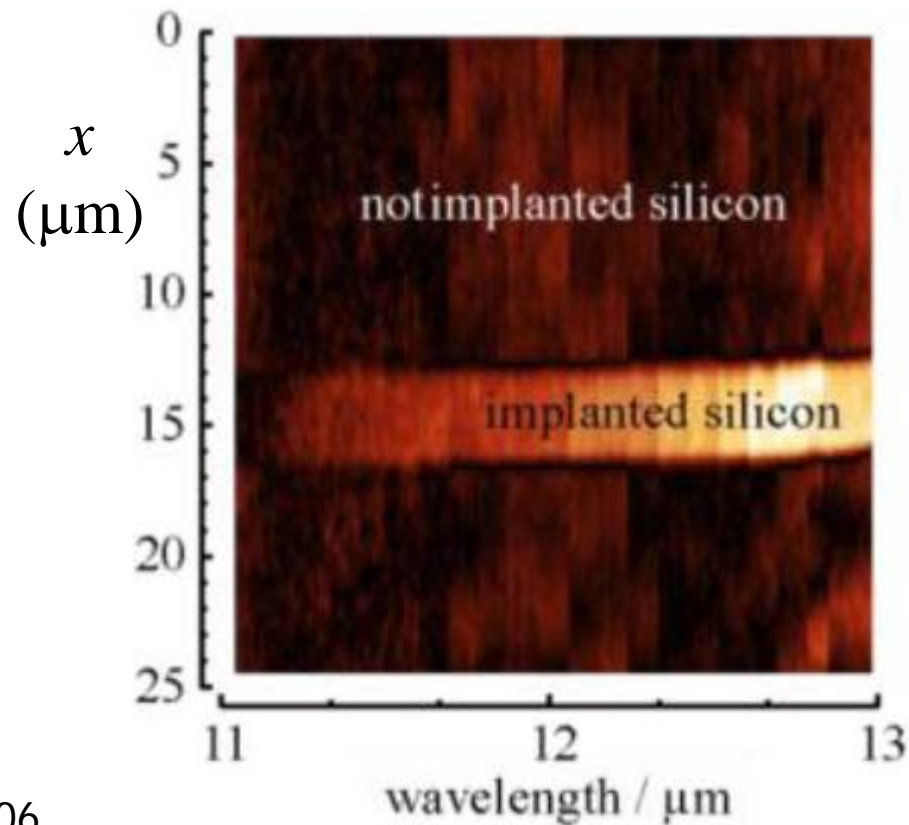
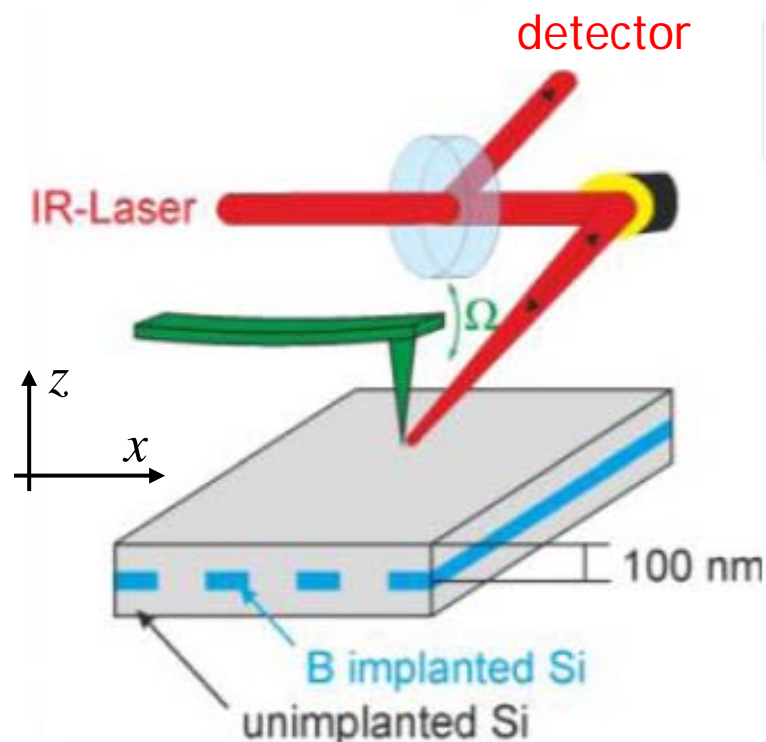
$$\left\{ \begin{array}{l} \text{対称FTIRの信号強度: } \alpha^2 E_0^2 \\ \text{非対称FTIRの振動強度: } \left(\frac{E_0}{2} + \alpha \frac{E_0}{2} \right)^2 = \left(\frac{1}{4} + \frac{1}{2}\alpha + \frac{1}{4}\alpha^2 \right) E_0^2 \end{array} \right.$$

ブロードバンドレーザーによる実験例

Huth et al., Nano Lett. (2012) ASAP.



IR-FELによる実験 (Dresden, FELBE)

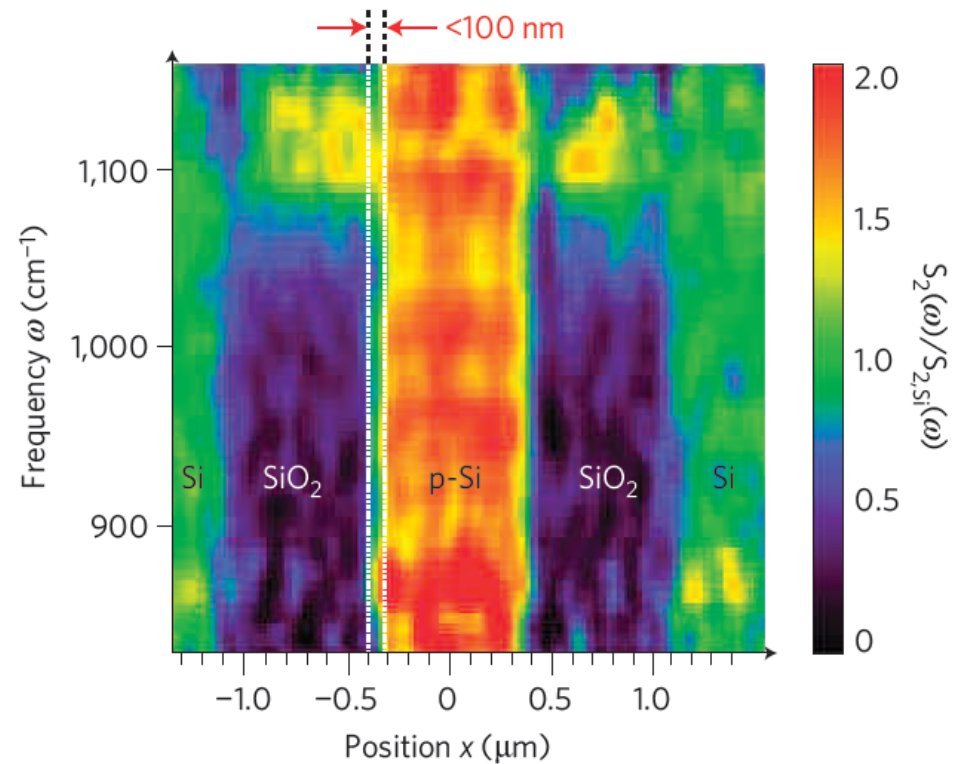
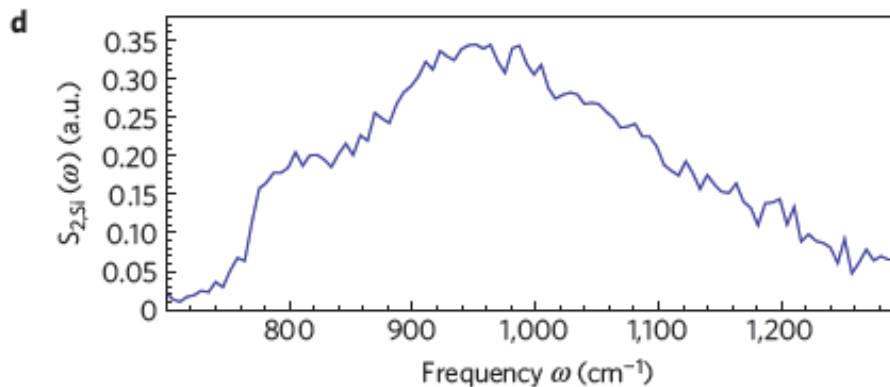
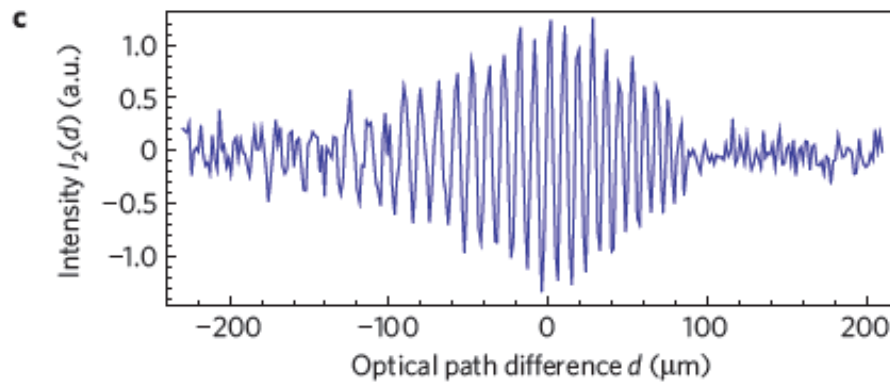


Jacob et al., Opt. Express **25** (2010) 26206.

- ・FELBEでは他にも多くのNSOM実験が行われている。
(L. Eng, M. Helmらによる)

熱光源による実験

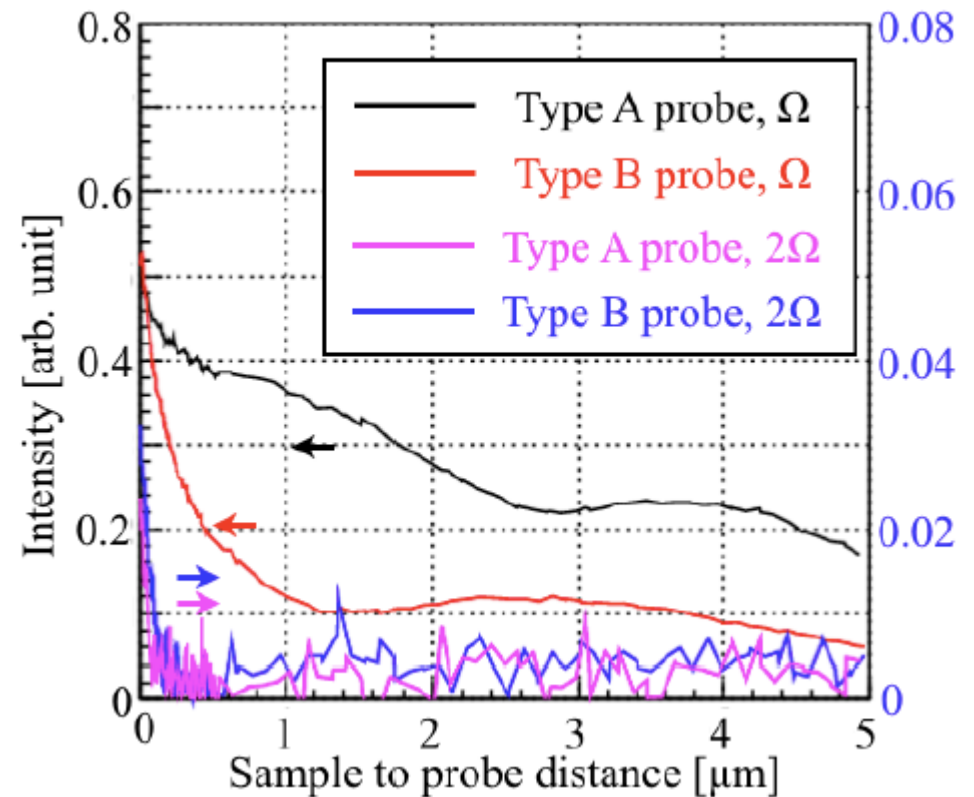
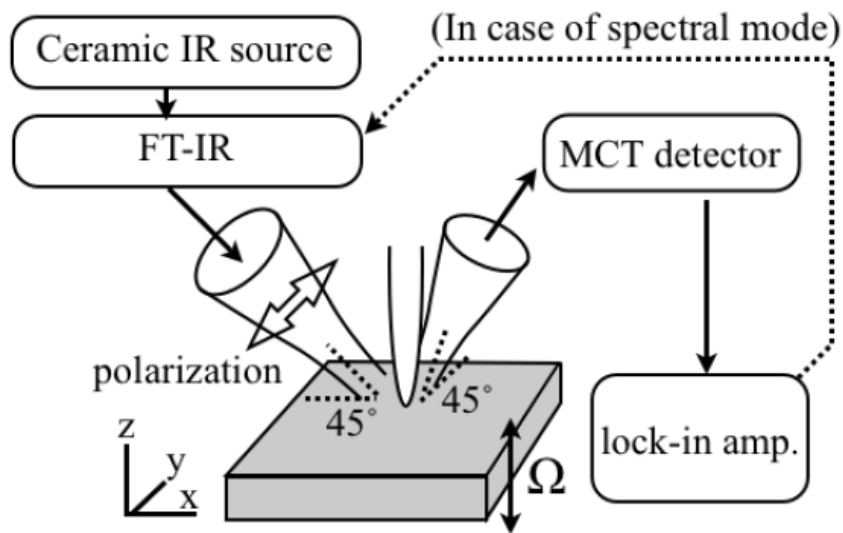
- Hillenbrandらのグループ(2011)
 - Huth et al., Nat. Mater. **10** (2011) 352.
 - 熱光源(黒体輻射光源) + Neasnom



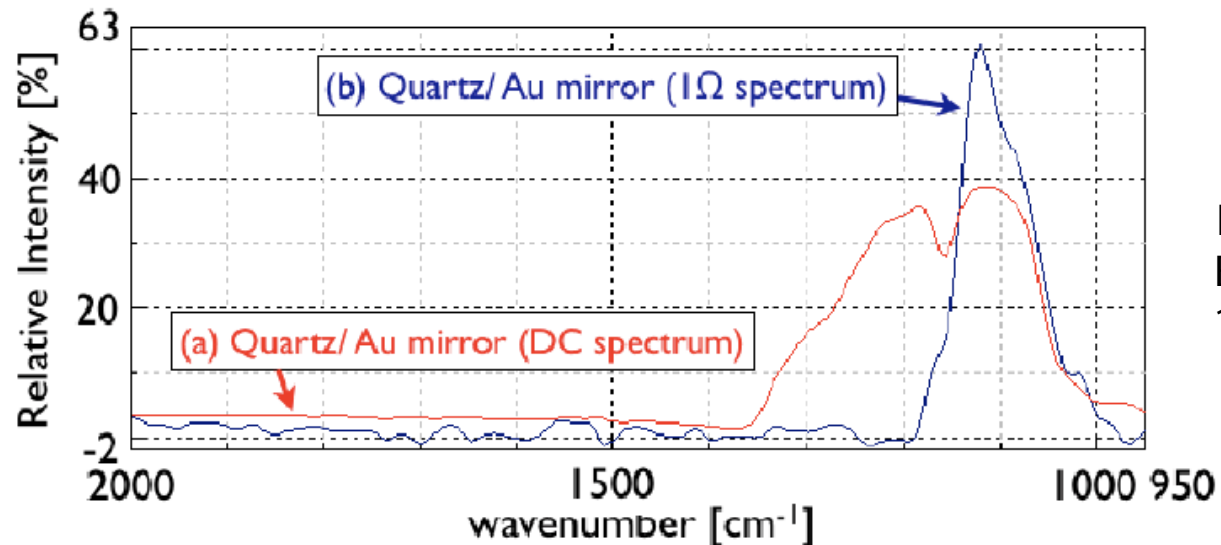
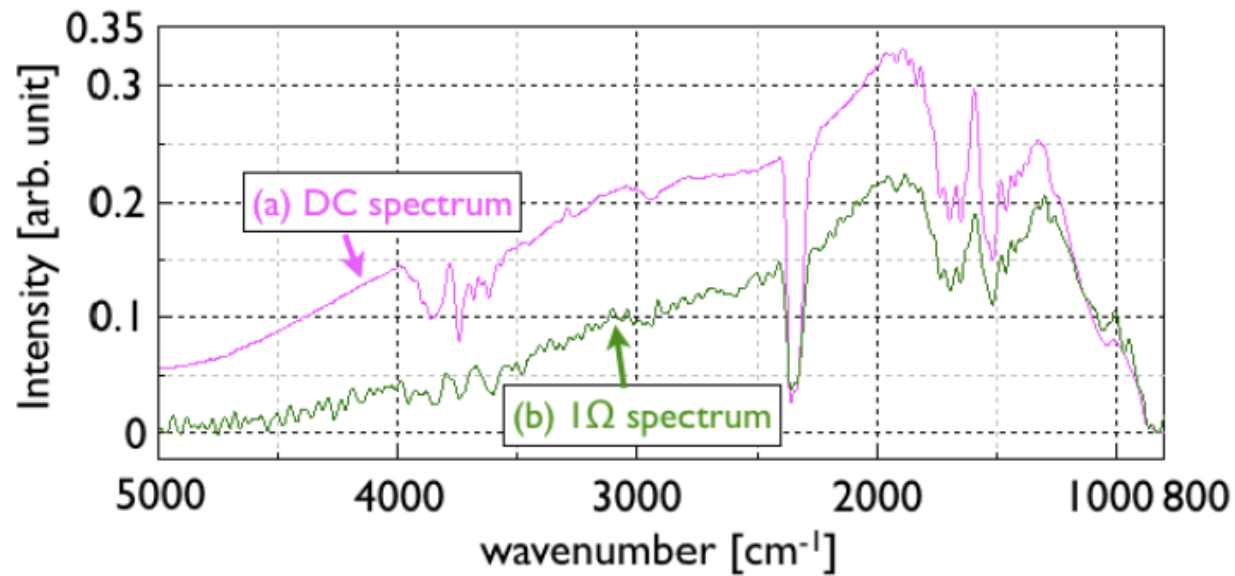
熱光源による実験：通常FTIR+AFM

- 石川、中嶋(阪大)ら

- Ishikawa et al., Opt. Express **19** (2011) 12469.
- Ishikawa et al., Opt. Express **20** (2012) 11064.
- 熱光源(黒体輻射光源) + 通常のFTIR/AFM + ロックイン検出



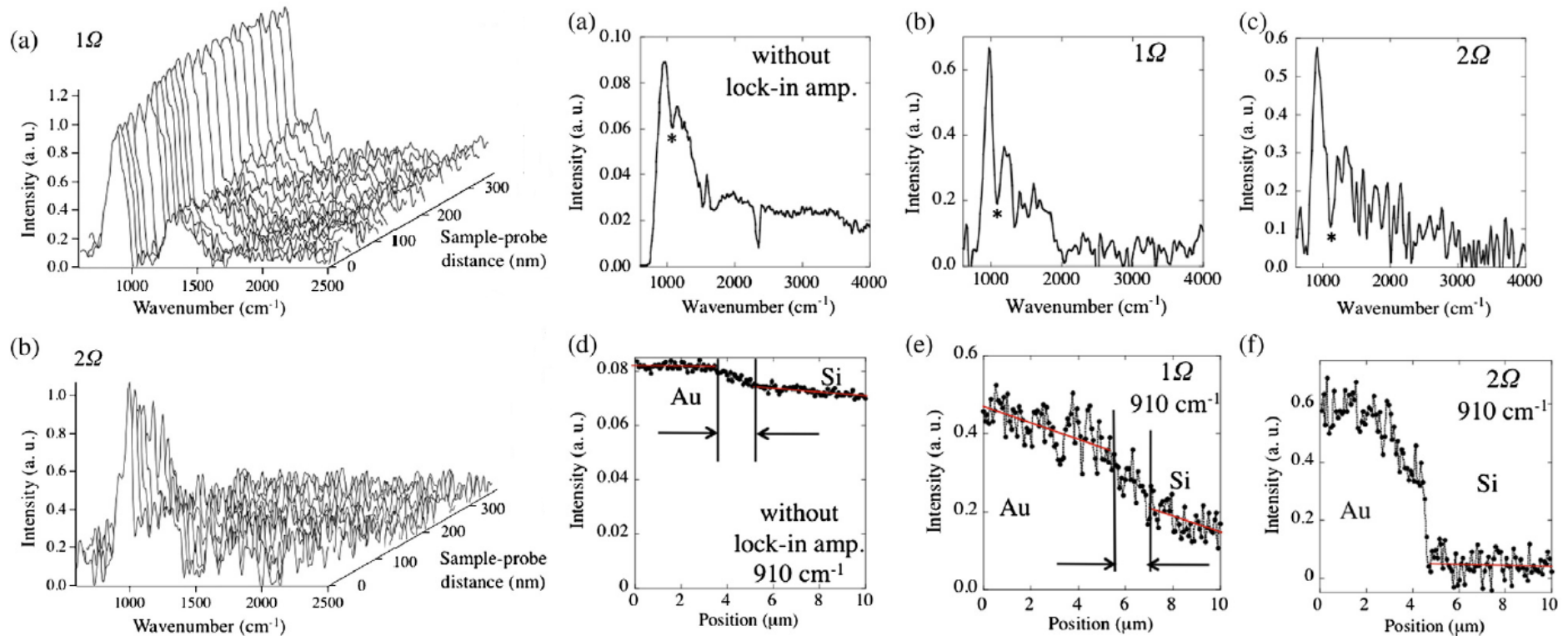
熱光源 + 通常FTIRによる実験(2)



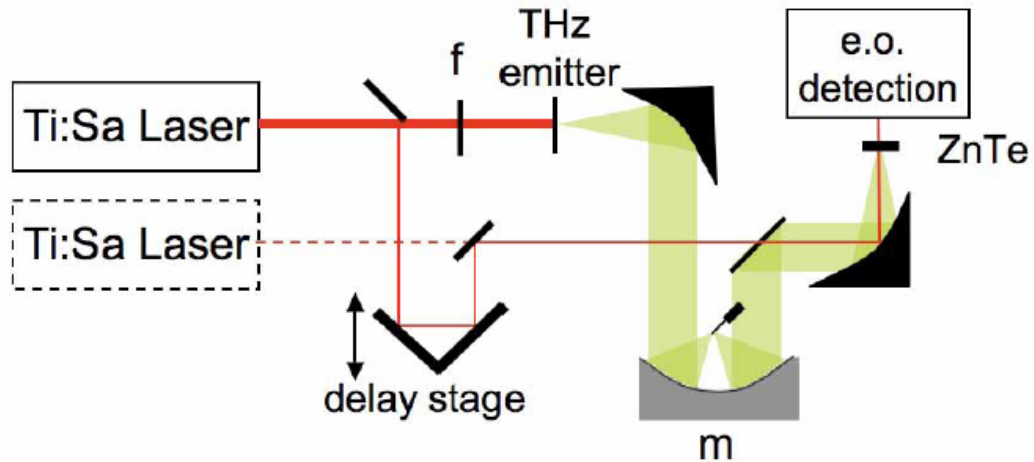
Ishikawa et al., Opt.
Express **20** (2012)
11064

赤外放射光＋通常FTIRによる実験

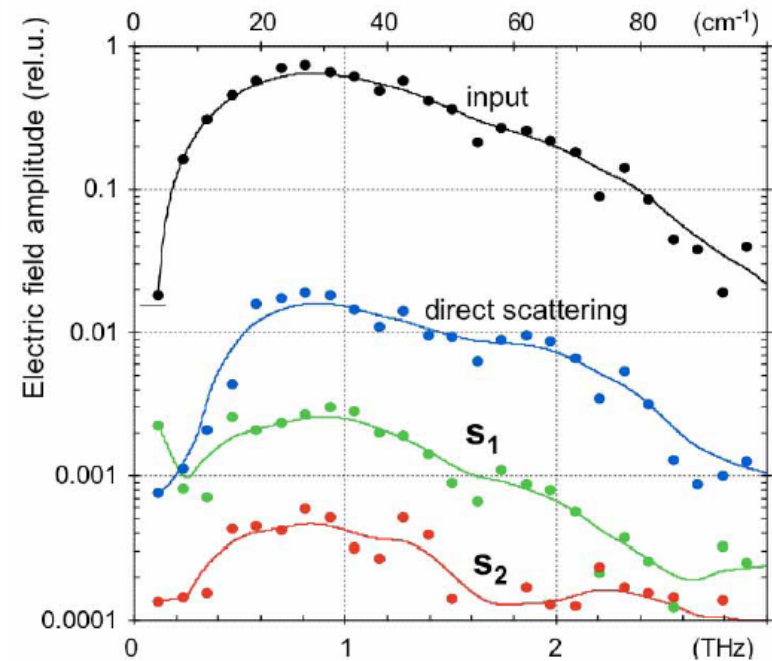
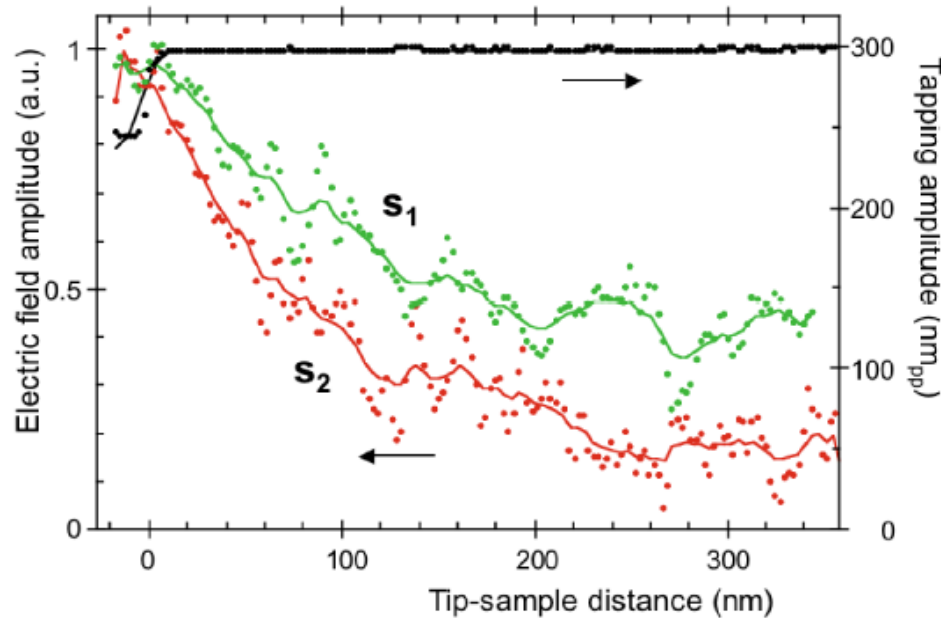
- 池本ら (SPring-8 BL43IRでの実験)
 - Ikemoto et al., Opt. Commun. **285** (2012) 2212.



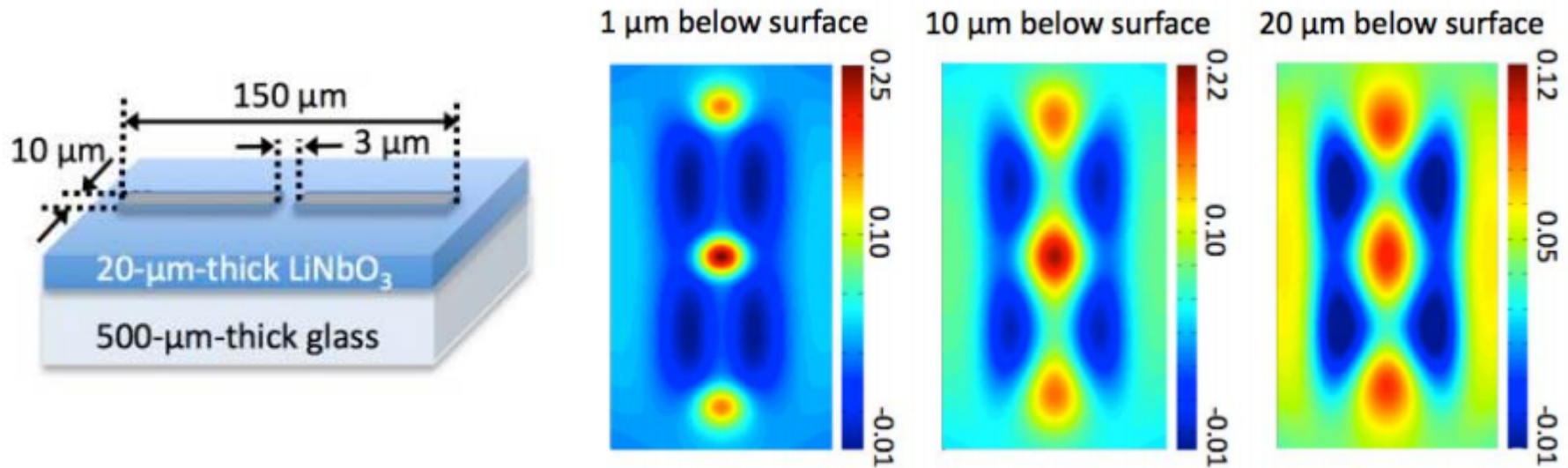
THz-TDSによる実験



Von Ribbeck et al., Opt. Express **16** (2008) 3430.



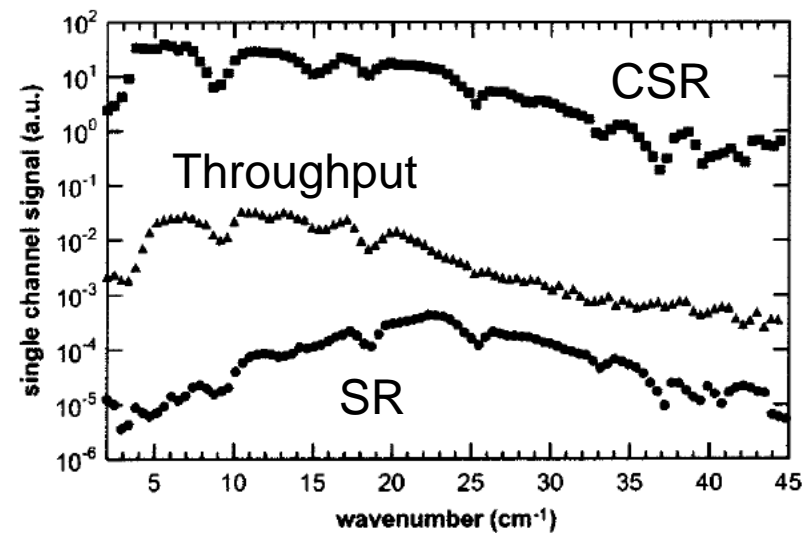
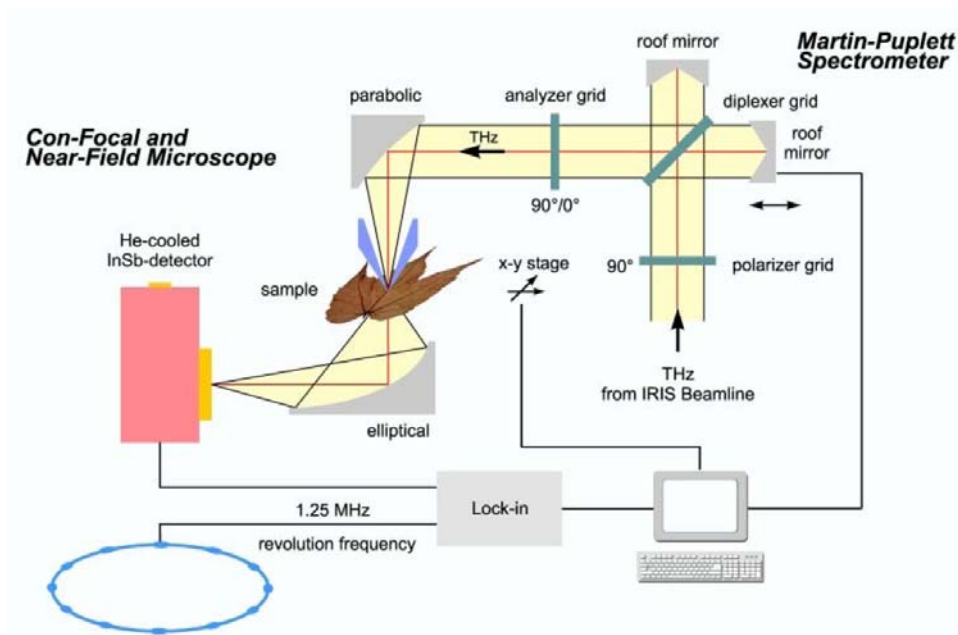
大強度THz光源による実験(京大グループ)



Blanchard et al., Opt. Express **19** (2011) 8277.

THz-CSRによる実験(BESSY)

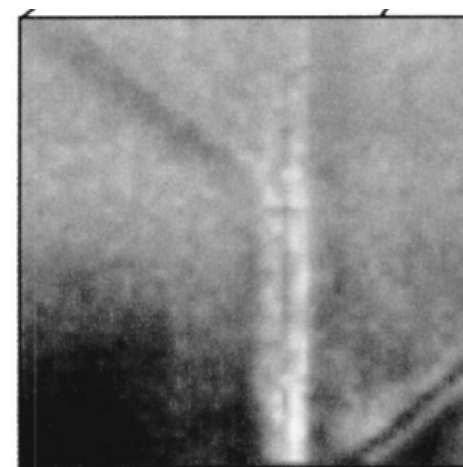
Schade et al., APL **84** (2004) 1422.



(100 μm dia./ 1 mA bunch current.)

- Martin-Puplett干渉計+ホーン型開口
- 透過配置
- 位相は求まらない(振幅のみ)

Schade et al., APL **84** (2004) 1422.



1 mm



まとめとTHz-CSRへの応用

- 中赤外（分子振動の指紋領域）
 - 非対称FTIR配置の装置が市販されており、高い性能を発揮。
 - 市販ブロードバンドレーザーだと、バンド幅 200 cm^{-1} 程度。
 - レーザーの進歩→ 指紋領域全体をカバー
- THz領域のブロードバンドNSOMにむけて
 - CSR or レーザー・ベース大強度THz？
 - NSOMの光源は輝度だけでなく、安定性が特に重要。
 - 位相も求まる方がよい→ 干渉法
(THz TDS方式 or FTIR方式)
 - 透過で測れない試料→ 散乱型NSOM
 - センシング・イメージング→ 透過型