

ラジアル偏光ビームを用いた表面プラズモン顕微鏡

加 野 裕・渡辺 向陽

Scanning Localized Surface Plasmon Microscope with Radially Polarized Illumination

Hiroshi KANO and Kouyou WATANABE

We report on a microscope using locally excited surface plasmons as a sensing probe for the measurement of refractive index distribution on a metallic surface with high spatial resolution. We show that surface plasmons produce an electric field distribution with two peaks which provides a dual image when linear polarization is chosen for illumination light. In order to solve the problem of the dual image, we introduce radial polarization for illumination light. The result of the experiment using a point-like object as a sample shows that radially polarized light improves the imaging property of the microscope.

Key words: surface plasmon, microscope, refractive index imaging, radial polarization

レンズを用いて一様媒質中へ平面波を集光すると、レンズに入射させる光の偏光状態によらず、光軸に対して垂直な面内で振動する電場成分が支配的な集光スポットが形成される。これに対し、誘電体と誘電体の境界面に、屈折率の高い媒質側から光を集光すると、境界面に垂直な方向に振動する電場成分を増強する効果が働き、必ずしも光軸に対して垂直な面内で振動する電場成分が支配的ではなくなる。たとえば、高い開口数を有する顕微鏡対物レンズを用いて、屈折率差の大きな媒質の境界面に光を集光する場合には、光軸方向に振動する電場成分を無視できなくなる。対物レンズに入射させる光が直線偏光である場合、光軸方向に振動する電場成分は、焦点面において光軸対称な2つのピークをもつ分布を形成し、スポットサイズの拡大をもたらす。従来、顕微鏡対物レンズはこのような利用が想定されていなかったため、この問題が注目されることはなかったが、エバネセント波を顕微領域において局所的に発生させる方法のひとつ¹⁾として、その利用が広まるとともに関心が高まっている。

さて、この問題は、光軸方向に振動する電場成分を増強する効果が大きい構造（光学配置）に集光する場合に、より顕著になる。その光学配置のひとつに、クレッチマン配置がある²⁾。クレッチマン配置は、高屈折率誘電体/金属

薄膜/低屈折率誘電体の3層で構成され、低屈折率誘電体に面した金属薄膜表面に、集団的電子振動の量子である表面プラズモンを励起するために用いられる。クレッチマン配置では、高屈折率媒質側から励起条件（入射角と偏波）を満たした平面波を入射させると、金属表面に垂直な方向に振動する電場が著しく増強される一方、励起条件を満たさない平面波の透過率は低い¹⁾ため、金属表面において光軸方向に振動する電場成分が支配的になり、直線偏光を集光してもシングルピークを形成できない。

クレッチマン配置に集束光を入射させることで、局所的に励起される表面プラズモンは、金属表面（低屈折率媒質に面した側）の屈折率を測定する顕微鏡の測定プローブとして利用されている³⁾。この顕微鏡の像特性は、金属表面に表面プラズモンが形成する電場分布により決定されるため、この電場分布はシングルピークを形成することが望まれる。

本稿では、まずこの顕微鏡の測定原理を述べ、測定プローブである表面プラズモンの形成する電場分布がラジアル偏光照明により最適化されることを示す。そして、ラジアル偏光を生成し、これを用いることにより、顕微鏡の像特性が改善されることを示す。

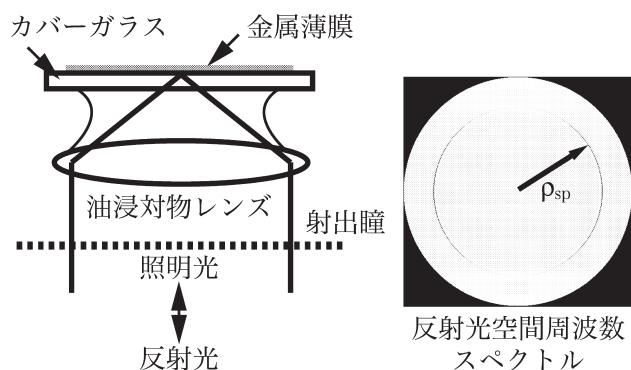


図1 表面プラズモンの局所励起法と屈折率測定原理。

1. 局所励起表面プラズモン顕微鏡

図1に、表面プラズモンの局所励起法と、これを用いた屈折率測定の原理を示す。クレッチマン配置には、金属薄膜でコートした顕微鏡カバーガラスを用いる。これに、高開口数を有する油浸対物レンズを用いて、対物レンズに入射する平面波を集光する。この系では、表面プラズモンの励起条件（入射角と偏波）を満たす波面成分が、集束光を平面波展開した成分の中に含まれていると、金属表面に表面プラズモンが励起される。従来からのプリズムを用いる方式²⁾と異なり、金属表面をさまざまな方向へ伝搬する表面プラズモンを励起することができ、さらに、それらを互いに干渉させて光軸近傍に局在させることができる。

局所的に励起した表面プラズモンは、従来からのプリズムを用いる方式と同様に、屈折率の測定プローブとして利用できる。図1において、表面プラズモンを励起する平面波成分は表面プラズモンによって吸収されるため、射出瞳の光強度分布に光吸収が現れる。直線偏光を入射させる場合、光吸収のパターンは円弧状に現れる。その半径 ρ_{sp} は表面プラズモン伝搬定数の実部に等しく、金属表面の有効屈折率 n_s とは、近似的に次のような関係にある⁴⁾。

$$\rho_{sp} = \text{Re}\{k_{sp}\} = \text{Re}\left\{\frac{\omega}{c} \left(\frac{n_m^2 n_s^2}{n_m^2 + n_s^2} \right)^{\frac{1}{2}}\right\} \quad (1)$$

ただし、 n_m はそれぞれ金属の屈折率、 ω/c は真空中での光の波数である。これにより、金属薄膜表面上の媒質を試料として、その局所的な屈折率を求めることができる。

この屈折率測定原理により、金属表面を二次元顕微鏡観察する場合の像特性は、表面プラズモンの形成する電場分布により決定される。電場分布は、金属薄膜に集光される光を平面波展開し、クレッチマン配置における多重反射を考慮して、それぞれの平面波が金属表面に形成する電場を重ね合わせることで計算することができる⁵⁾。対物レンズに入射する光の偏光については、対物レンズの入射瞳の各点

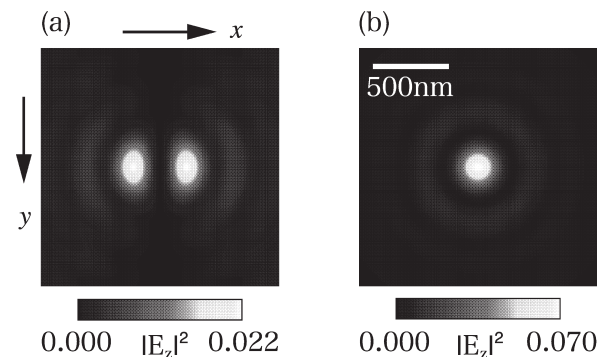


図2 金属表面の電場分布（光軸方向の成分）。(a) 直線偏光照明、(b) ラジアル偏光照明。

において、光軸を中心軸として、動径方向、接線方向に振動する成分の複素振幅を与えることで、計算に組み込むことができる。入射瞳の各点における動径方向、接線方向の成分は、対物レンズによってクレッチマン配置へ入射する平面波に変換され、p 偏光、s 偏光としてクレッチマン配置に入射するので、それぞれに対して多重反射計算を行う。

図2は、光軸（ z ）方向に振動する電場成分の強度分布を示している。計算では、照明光の波長を 632.8 nm、対物レンズの開口数を 1.4、カバーガラスの屈折率を 1.515、金属薄膜の屈折率を $0.0666 + 4.045i$ 、膜厚を 54.44 nm、金属薄膜に接する媒質の屈折率を 1.000 とし、入射瞳に与える光強度で縦軸の値を規格化している。(a) は、 x 軸方向に電場ベクトルが振動する直線偏光を入射瞳に与えた場合の強度分布である。2つのピークが、光軸対称に照明光の偏光方向に沿って、およそ 330 nm 離れて形成されることがわかる。それぞれのピークの大きさは、およそ 300 nm である。このような電場分布が形成されるのは、各平面波成分が光軸上で z 方向の振動成分を打ち消すように干渉するためである。一方、(b) はラジアル偏光を入射瞳に与えた場合の強度分布である。光軸上にシングルピークが形成され、その大きさはおよそ 300 nm であることがわかる。これは、すべての平面波成分が、光軸上で z 方向の振動成分を強めあうように干渉するためである。このように、ラジアル偏光を用いると、シングルピークの回折限界スポットを形成できるため、顕微鏡の照明光学系に最適である。

なお、 x または y 方向に振動する電場成分は、おもに入射瞳の中心付近を通った光によって形成される透過光であり、表面プラズモンへの関与は小さいため、屈折率分布の測定結果にほとんど影響を与えない。

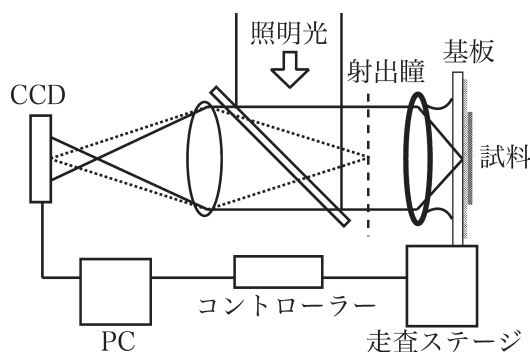


図3 走査型局所励起表面プラズモン顕微鏡の構成。

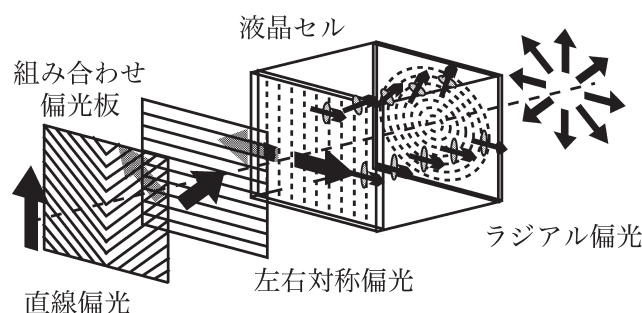


図4 液晶セルを用いたラジアル偏光生成デバイス。

2. ラジアル偏光による像特性改善

図3に、局所励起表面プラズモン顕微鏡の光学系を示す。コリメートしたレーザー光をビームスプリッターで反射させた後、高開口数油浸対物レンズに入射させ、クレッチマン配置に加工した基板の金属薄膜に集光する。そして、金属薄膜から反射される光の空間周波数スペクトルを、対物レンズとビームスプリッターを通して、対物レンズの射出瞳と光学的に共役な位置に配置したCCDで測定する。基板をピエゾステージにより、走査し、各測定点における空間周波数スペクトルを測定し、光吸収パターンの半径から有効屈折率を求める。

この光学系の照明系において、ビームスプリッターへ入射させる光の偏光を、図4に示すデバイスにより操作する⁶⁾。このデバイスは、同心円状にラビング処理を施した基板と直線状にラビング処理を施した基板の間に、液晶分子を封入した液晶セルを有している。液晶セルに対して、組み合わせ偏光板により、左右の領域で位相差 π をもつ偏光を入射させる。液晶分子はラビングの方向に沿うように並ぶため、2枚の基板間で光が伝搬するときに、液晶分子のねじれに合わせて光は旋光する。これにより射出される光はラジアル偏光となる。

ラジアル偏光を生成するデバイスを表面プラズモン顕微鏡の照明光学系に組み込んで偏光を操作し、ラジアル偏光

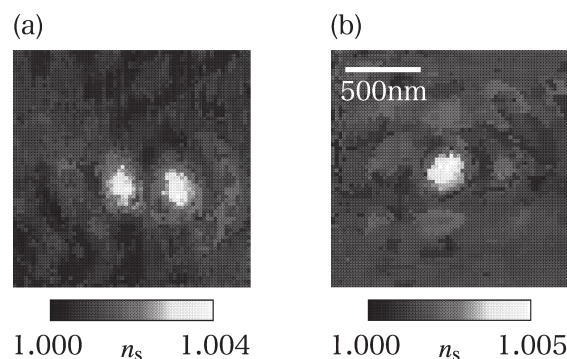


図5 ラテックス微小球（直径175 nm）の観察結果。(a) 直線偏光照明、(b) ラジアル偏光照明。

照明を行ったときの測定プローブの形状を調べた。図5(a), (b)は、試料に孤立した直径175 nmのラテックス球を用い、直線偏光、ラジアル偏光により、ラテックス球の作り出す屈折率分布を観察した結果である。実験結果には、理論計算で示した特徴を確認できる。ラジアル偏光を入射させた場合の屈折率分布はほぼ単一ピークとして測定されており、理想的な測定プローブが形成されていることを確認できる。これにより、直線偏光照明では、物体が二重写しになって観察される問題が、ラジアル偏光照明により解消されることがわかる。

表面プラズモンを測定プローブに用いる屈折率計測法は、金属表面への分子吸着や金属表面での分子間相互作用の検出、また金属表面に成膜される薄膜の膜質測定などで、その有用性が知られている。本顕微鏡により、その二次元顕微観察が可能になる。

文 献

- 1) H. Kano, S. Mizuguchi and S. Kawata: "Excitation of surface-plasmon polaritons by a focused laser beam," J. Opt. Soc. Am. B, **15** (1998) 1381-1386.
- 2) E. Kretschmann and H. Raether: "Radiative decay of nonradiative surface plasmons excited by light," Z. Naturforsch. A, **23** (1968) 2135-2136.
- 3) H. Kano and W. Knoll: "A scanning microscope employing localized surface-plasmon-polaritons as a sensing probe," Opt. Commun., **182** (2000) 11-15.
- 4) H. Raether: *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings* (Springer, Berlin, 1988).
- 5) H. Kano: "Excitation of surface-plasmon polaritons by a focused laser beam," *Near-Field Optics and Surface Plasmon Polaritons*, ed. S. Kawata (Springer, Berlin, 2001) pp. 189-206.
- 6) 宮地悟代, 大林 研, 末田敬一, 椿本孝治, 宮永憲明: "軸対称偏光ベクトルレーザービームの発生", レーザー研究, **32** (2003) 259-264.

(2006年8月4日受理)