

微小球共振器による発光過程の制御と 光プローブ顕微鏡への応用に関する研究

学位論文内容の要旨

現代の情報化社会の到来に伴う光デバイスのめざましい進歩は、半導体レーザーや光ファイバ等の光材料作製技術や微細加工技術の向上のみならず、微小領域における光計測手法の進展にも依るところが大きい。特に近年、非伝搬光成分であるエバネッセント場を利用した近接場走査光学顕微鏡が開発され、ナノメートル空間領域において表面形状と分光学的な物性情報を同時に得ることが可能な技術として注目を浴びている。しかしながら、光ファイバの先端を尖らせ金属でコートした従来のプローブでは、波長より細くなったファイバの先端部を通る際にレーザー光が急激に減衰するので、光が試料まで到達する効率が 10^{-4} から 10^{-6} と極めて低いという問題がある。また、金属コートの熱的な損傷を避けるために入射レーザーパワーが制限され、プローブ先端では nW オーダーの光強度しか得られず、十分な精度で蛍光や吸収を測定することが困難である。そのため、ごく限られた試料にしか応用されていないのが現実である。

本論文では、マイクロメートルオーダーの微小球に特有な「光共振現象」を利用した近接場レーザープローブ顕微鏡を提案する。マイクロメートルサイズの球形微粒子の中で色素をポンプして光らせると、微粒子の表面に浅い角度で入射した発光は全反射し、再び同じ角度で界面に入射するので全反射が繰り返され、微小球の縁に沿って伝搬する。一周して位相が揃う波長の光は共振して場が増強し、誘導放出を誘起してレーザー発振に至る。微小球共振器のQ値は 10^8 にも達する。レーザー発振微小球の表面近傍には全反射によるエバネッセント場が生成するので、ナノメートル微粒子を接着すると場を散乱し光局在場が発生する。この微小球を光の放射圧を利用したレーザー操作技術によって非接触に走査しナノ光源として用いるのがレーザー発振微小球プローブである。本プローブは、(1)光ファイバ等の導波路を介さないので高強度の光局在場が得られる、(2)微小球レーザー発振の非線形性によりフォトンネリングの高感度な検出が可能、(3)微小球共振器レーザーはピコ秒パルス光の発生が可能であり高速時間分解分光へ応用可能、といった特徴がある。本研究では、レーザー発振微小球プローブの提案とともに基礎的技術を開発するための指針について検討を行った。

本論文は以下の7章から構成される。

第1章では、序論として本研究の背景と目的そして本論文の構成について述べる。

第2章では、微小球の光共鳴現象について波動光学的・幾何光学的な取り扱いについて述べ、共振器量子電気力学効果による色素分子の自然放出過程の制御に関す

る理論を概説するとともに、希土類イオンのアップコンバージョン機構について述べる。また、近接場顕微鏡用のレーザー発振微小球プローブを提案し、その原理と特徴について述べる。

第3章では、レーザー発振微小球プローブの基礎的実験としてレーザー発振微小球のフォトンネリング特性を解析した。微小球とガラス基板の距離をレーザーマニピュレーションにより制御しながら発振スペクトルを測定した結果、エバネッセント場の強度分布に対応した発振ピークの強度変化が現れた。この現象はMie散乱理論を用いて説明することができ、光局在場を介したフォトンネリングが起こっていることを実証できた。また、ナノメートルサイズの金属微粒子を微小球に接着することによって、エバネッセント場が選択的に散乱される様子を観測し、近接場顕微鏡プローブとしての有効性を示した。

第4章では、微小球レーザーの長時間安定性、ポンプ光と発振光の波長域の分離を目的として、希土類イオン含有ガラス微小球を作製し、アップコンバージョンレーザー発振を試みた結果について述べる。近赤外光を用いた3光子励起により480nm及び800nmの両波長において初めて微小球アップコンバージョンレーザー発振に成功し、10時間程度の連続動作後も安定に動作することを確認した。

第5章では、色素溶液中に分散した微小球におけるレーザー発振現象の観測について述べる。従来レーザー色素として用いられてきた有機色素分子では励起光照射による退色によってレーザー発振光強度が減少し、最終的には発振が停止するという問題がある。そこで、有機色素分子を含有した溶液中に非発光性のガラス微小球を分散しても微小球周辺のエバネッセント場領域が利得媒質となってレーザー発振が誘起できることを実験的に示した。溶液中での色素分子の拡散により退色の速度は色素分子含有微小球に比べて大幅に遅くなることを確認した。

第6章では、光デバイスの低しきい値化、省電力化を実現する上で注目を集めている共振器量子電気力学効果をマイクロメートルサイズの高分子微小球において実験した結果について述べる。ピレン分子を含有した高分子微小球においてピレン分子の蛍光ダイナミクスを測定し、自然放出過程が増強される様子を初めて観測することに成功した。実験から求めた増強因子が粒径 $2.4\mu\text{m}$ で約17倍にも達することを明らかにし、共振器量子電気力学の理論との整合性を示した。また、2分子間の双極子-双極子相互作用によるエネルギー移動の効率も共振器量子電気力学効果により増加することを実験的に明らかにした。

第7章では、本研究における成果を総括するとともに今後の課題・展望について述べる。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 笹 木 敬 司

副 査 教 授 三 島 瑛 人

副 査 教 授 小 柴 正 則

副 査 教 授 末 宗 幾 夫

学 位 論 文 題 名

微小球共振器による発光過程の制御と 光プローブ顕微鏡への応用に関する研究

現代の情報化社会の到来に伴う光デバイスのめざましい進歩は、半導体レーザーや光ファイバ等の光材料作製技術や微細加工技術の向上のみならず、微小領域における光計測手法の進展にも依るところが大きい。特に近年、非伝搬光成分であるエバネッセント場を利用した近接場走査光学顕微鏡が開発され、ナノメートル空間領域において表面形状と分光学的な物性情報を同時に得ることが可能な技術として注目を浴びている。しかしながら、光ファイバの先端を尖らせ金属でコートした従来のプローブでは、波長より細くなったファイバの先端部を通る際にレーザー光が急激に減衰するので、光が試料まで到達する効率が 10^{-4} から 10^{-6} と極めて低いという問題がある。また、金属コートの熱的な損傷を避けるために入射レーザーパワーが制限され、プローブ先端では nW オーダーの光強度しか得られず、十分な精度で蛍光や吸収を測定することが困難である。そのため、ごく限られた試料にしか応用されていないのが現実である。

本論文では、マイクロメートルオーダーの微小球に特有な「光共振現象」を利用した近接場レーザープローブ顕微鏡を提案している。マイクロメートルサイズの球形微粒子の中で色素をポンプして光らせると、微粒子の表面に浅い角度で入射した発光は全反射し、再び同じ角度で界面に入射するので全反射が繰り返され、微小球の縁に沿って伝搬する。一周して位相が揃う波長の光は共振して場が増強し、誘導放出を誘起してレーザー発振に至る。微小球共振器のQ値は 10^3 にも達する。レーザー発振微小球の表面近傍には全反射によるエバネッセント場が生成するので、ナノメートル微粒子を接着すると場を散乱し光局在場が発生する。この微小球を光の放射圧を利用したレーザー操作技術によって非接触に走査しナノ光源として用いるのがレーザー発振微小球プローブである。本プローブは、(1) 光ファイバ等の導波路を介さないので高強度の光局在場が得られる、(2) 微小球レーザー発振の非線形性によりフォトンネリングの高感度な検出が可能、(3) 微小球共振器レーザーはピコ秒パルス光の発生が可能であり高速時間分解分光へ応用可能、という特徴がある。本研究では、レーザー発振微小球プローブの提案とともに基礎的技術を開発するための指針について検討を行っている。

以下に本論文の構成を示す。

第1章では、序論として本研究の背景と目的そして本論文の構成について述べている。

第2章では、微小球の光共鳴現象について波動光学的・幾何光学的な取り扱いについて述べ、共振器量子電気力学効果による色素分子の自然放出過程の制御に関する理論を概説するとともに、希土類イオンのアップコンバージョン機構について述べている。また、近接場顕微鏡用のレーザー発振微小球プローブを提案し、その原理と特徴について述べている。

第3章では、レーザー発振微小球プローブの基礎的実験としてフォントンネリング特性の解析を行っている。微小球とガラス基板の距離をレーザーマニピュレーションにより制御しながら発振スペクトルを測定した結果、エバネッセント場の強度分布に対応した発振ピークの強度変化が現れることを示している。この現象はMie散乱理論を用いて説明することができ、光局在場を介したフォントンネリングが起こっていることを実証できている。また、ナノメートルサイズの金属微粒子を微小球に接着することによって、エバネッセント場が選択的に散乱される様子を観測し、近接場顕微鏡プローブとしての有効性を示している。

第4章では、微小球レーザーの長時間安定性、ポンプ光と発振光の波長域の分離を目的として、希土類イオン含有ガラス微小球を作製し、アップコンバージョンレーザー発振を試みた結果について述べている。近赤外光を用いた3光子励起により480nm及び800nmの両波長において初めて微小球アップコンバージョンレーザー発振に成功し、10時間程度の連続動作後も安定に動作することを確認している。

第5章では、微小球に添加した有機レーザー色素の光退色によって発振光強度が時間とともに減少する問題を解決するために、有機色素分子を含有した溶液中に非発光性の微小球を分散しても球周囲のエバネッセント場領域が利得媒質となってレーザー発振現象が誘起できることを実験的に示している。溶液中の分子拡散により退色速度は色素分子含有微小球に比べて大幅に遅くなることを確認している。

第6章では、レーザーの低しきい値化を実現する上で注目を集めている共振器量子電気力学効果をマイクロメートルサイズの高分子微小球において実験した結果について述べている。ピレン分子を含有した高分子微小球においてピレン分子の蛍光ダイナミクスを測定し、自然放出過程が増強される様子を初めて観測することに成功するとともに、共振器量子電気力学の理論との整合性を示している。また、2分子間の双極子-双極子相互作用によるエネルギー移動の効率も共振器量子電気力学効果により増加することを実験的に明らかにしている。

第7章では、本研究における成果を総括し、今後の課題・展望について述べている。

これを要するに、著者は、微小球内の光の特異な振る舞いを利用して自然放出やエネルギー移動ダイナミクスを制御するとともに、ナノメートル空間における光物理現象を高感度、高精度に計測するレーザー発振微小球プローブ顕微鏡への応用に関する有益な知見を得たものであり、光エレクトロニクスの分野に貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。