

近接場光学測定用光プローブの作製

佐藤友弘*, 須鎗 章*, 富岡明宏*.[#]

Probe Fabrication for Optical Near Field Measurements

Tomohiro SATO*, Aki SUYARI* and Akihiro TOMIOKA*.[#]

Abstract

Optical probes for Near Field measurements were fabricated from silica single-mode optical fibers, first melted with a focused CO₂ laser beam then pulled apart rapidly by electromagnet driven arms. To obtain an ideal tip form optimal condition was searched varying four parameters: 1) timing of the laser irradiation and the pulling; 2) intensity of the laser; 3) duration of the laser; 4) strength of the pulling force. All these four parameters were adjusted reproducibly through a custom-made digital circuit. After many trials some fabrication condition was found in which probe's overall shape ($>1\mu\text{m}$) became ideal, though once in ten times. This low reproducibility seemed to originate from that of start timing of the pulling electromagnet even though it was activated precisely ($\Delta t < 1\text{ms}$). Scanning electron microscopy reveals the existence of sharp tip ($\sim 200\text{nm}$), however some fine irregular structure (probably due to tip breakage) was also observed. To obtain smooth fine structure and gain high reproducibility one may need to raise the laser power transiently as the stretched fiber diameter becomes smaller in the final fabrication stage.

1. はじめに

近接場光学測定を行うための、光プローブの作製例を紹介する。このような光プローブは先端が先鋭化しているので、ナノメートル・スケールで光学計測・測定を行うのに広く利用できる。計測に当たっては試料との距離を 100nm（目安として）程度以下に位置制御することが望ましいが、それができなくとも達成可能な距離制御精度にほぼ等しい空間分解能で光学計測を行うことが可能となるので、応用範囲は広いと考えられる。例えば、光導波路や光ファイバー中の伝搬光の断面内強度分布、あるいはダイオードレーザの発光の局所分布など、端面に光プローブを接近させて「ニアフィールド・パターン」を計測する等光学素子の評価・計測に一般に利用できよう。用意する機材としては、大掛かりな近接場顕微鏡が無くとも前回報告¹⁾したような（ナノメートル位置制御可能な）頑丈なステージと本論文で紹介する光プローブがあれば十分である。

2. 光プローブとは？

目標とする光プローブの形状

図 1 (b)に示したような先端が尖っている針状のものが目標とする光プローブの形状である。先の方の太さ数 μm 以下の細い部分ではコア中に伝搬モードが存在しなくなるので、この部分の長さは極力短

2000 年 4 月 3 日受理

* 工学部電子材料工学科, [#] 大学院工学系研究科総合電子工学専攻

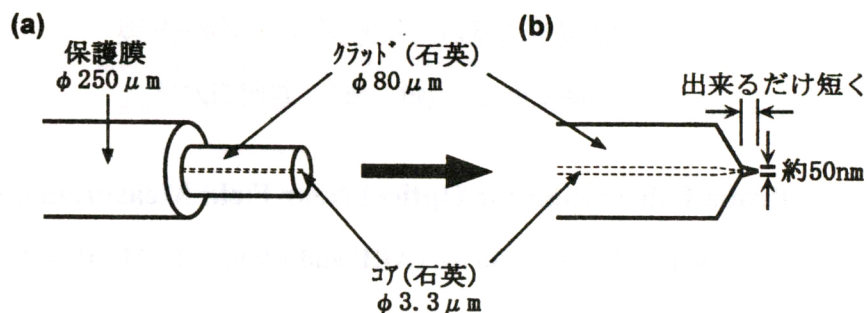


図 1. (a)材料とする可視光用シングルモード光ファイバーの形状. クラッドおよびコアは石英でできているが、コアの方が屈折率が高いので、光は両者の界面で全反射を繰り返しながらコア内部を伝搬する. (b)目標とする先鋭化光プローブの形状. クラッド外形が細くなるに従い内部のコアも徐々に細くなってゆくことが望ましい. 特に細く突き出た部分でもコアが露出していない方が、内部伝搬光の外部への滲みだしが少なく（そう期待でき）よいであろう. 先端の曲率直径が 50nm 程度になるまで先鋭化したい.

い方がよい. ある太さまではクラッド層を光が伝搬し、空気界面での散乱により外部に伝搬光が出てきてしまう、のが第一の理由. 第二に、これより細い部分では通常の「光」ではなく、近接場という「電磁場」としてしか存在できず、距離とともに指数関数的に減衰するからである. なお後に述べるように金属被覆の厚さが 25nm 以上必要なので、先端の尖り具合を先端直径 50nm まで細くすることが 1 つの目標である.

非常に太い導波路を直径 50nm まで細くすることは困難であるから、出発材料として少しでもこの太さに近い材料を選ぶのが賢明であろう. 可視光用シングルモード光ファイバーは光の通路であるコア直径が約 3μm と始めから十分に細く、単一のモードしか通さず空間フィルターの役割も兼ねるという意味で、最適な材料と考えた.

ただ材質が石英なので、加工するためには融点の $>1300^{\circ}\text{C}$ に加熱しなければならないことが困難な点である. 別の方法として、物部ら²⁾はフッ酸を使った化学エッチング法で先端の円錐角を自由に変えて加工する条件を見いだしている. シングルモード光ファイバーは直径 3.3μm のコア部のまわりを直径 80μm のクラッド層が取り巻く（屈折率がコア部より低いので、境界面で全反射しながらコア内部を光が伝搬する）という形状をしている（図 1 (a)）. これを細くするとコア内部への閉じこめ条件が破れて、クラッド層／空気界面での全反射に移行する. 化学エッチング法で作製したプローブは、この細くなっている部分でシングルモード光ファイバーのコア部が露出しており、空気との界面での散乱が強く多くの伝搬光が漏れ出てくると考えられる. 他方ここで紹介する熔融延伸法では、熱的に熔融して左右に引っ張る際、直径数μm 以下の細い部分でもなおクラッド層の内部に高屈折率のコア部が閉じこめられたまま細く加工できる（図 1 (b)）可能性があり、この場合電磁場は中央コア近傍に集中するので³⁾、漏れ出てくる遠視野光（通常の光、近接場と区別する必要がある場合こう呼ばれる）を最小限に抑制できると期待できる.

金属プローブとの比較

先端が原子オーダーで先鋭化しているトンネル顕微鏡（STM）用金属プローブは、作製法が確立され

実験で材料として用いる光ファイバーは直径が $80\mu\text{m}$ とこれの $1/10$ 以下であるため、これを保持する金属部分を変更した。特に直径が $80\mu\text{m}$ という細い材料を真直ぐに保持するためには、改良後も多少の技術を要する。また前節で述べたようにプローブの細い部分なるべく短くしたく、十分に石英が溶融する前に引っ張り始めるので、光ファイバーが保持具から滑って抜けてしまう。保持具に、硬質だが表面粘度もある薄いゴムシートを貼って使用した。延伸時に真直ぐ引っ張り続けられるよう、アームとアームガイドの間のガタツキを取るよう改良した（拡大図）。

マイクロキャピラリーの場合には十分な時間加熱して先端径 $1\mu\text{m}$ 程度の長いマイクロキャピラリーを作製する。これに対して本実験では、細い部分をなるべく短くするために強加熱を短時間で停止する必要があることが判明した。従って元の抵抗加熱用リボンヒーターを除去し、代わりに 1W の CO_2 レーザーで光ファイバーを溶融することにした。ビームサイズが 3mm 程度ありほとんどのビームが無駄になるので、長焦点の ZnSe レンズで適度に絞って照射した。あまりビームサイズが小さいと光ファイバーの位置合わせが面倒になる（計算上は焦点位置で直径 0.2mm ）ので、故意に焦点とは異なる位置に光ファイバーを置いている。

使用した CO_2 レーザーは 5kHz の TTL パルス制御で、出力強度はパルスの duty 比で決まる（パルスが High の時間が長い程、光出力が増す）。光出力の立ち上がりを急峻にするため、予め duty 比が 0.5% のパルスを送ってレーザー管体内の CO_2 ガスを励起しておき（反転分布には至らない）、duty 比を急に増せばこの瞬間からレーザー発振が開始する。

レーザー照射を始めてからある時間後にピペットプラーのスタートスイッチを押すと延伸が始まる。この時間内に光ファイバーに注入された光エネルギーによって、光ファイバーの溶融体積が決まるようであった。だが手動でスタートスイッチを押しているとその時間を一定に保つことができないようで、できるプローブの長さはマチマチになったため最適条件が見つけれなかった。

そこで専用のタイミング制御回路を作り、（機能 1） CO_2 レーザー励起用の信号を出力する、（機能 2）これを予熱パルスから励起パルスに自動的に切替える、（機能 3）設定時間経過後（市販のプログラマブル・タイマリレーを使用）にピペットプラーをスタートさせる、（機能 4）別の設定時間後にレーザーを停止させる、（機能 5）レーザー励起強度を可変できる、以上 5 つの機能を持たせた。

図 3 にこのタイミング制御回路の内部構成を示す。まずレーザー発振用 5kHz 基準パルスを非安定マルチバイブレータで発生させる。周波数は外付け抵抗・コンデンサの値で決まり ($\propto 1/RC$)、enable 入力につないだ Pulse Start SW を high にすると連続してパルスが出る。これを次段の単安定マルチバイブレータ(1)に入れて励起パルス（出力 Q2）と予熱パルス（出力 Q1）に変換する。パルスの duty 比は外付け抵抗・コンデンサの値で決まる ($\propto 1/RC$) ので、予熱パルスは duty 比 0.5% に固定、励起パルスはポテンシオメータで duty 比可変（上記機能 5）とした。単安定マルチバイブレータは 1 パルス入力される毎に 1 パルス出るので、周波数は前段の非安定マルチバイブレータで決まる。これら 2 種類のパルスをアナログスイッチ(1)で切替えて CO_2 レーザーに送る（機能 1, 2）。バイナリカウンタ(1~4)は CO_2 レーザーに送られた励起パルスのパルス数を数えて、設定時間後に NAND ゲートを介してアナログスイッチ(1)を戻して、予熱パルス送出に戻す（機能 4）。Clear SW を ON（テンポラリ）にしても強制的にレーザー発振が止まるよう、NAND ゲートを用いた。

アナログスイッチ(1)の切替えは D Flip-flop の出力 Q2 による。Fire Sw を ON にすると D Flip-flop の出力 Q1 は high に遷移し（チャタリングの吸収）、これを単安定マルチバイブレータ(2) の-Q1, D Flip-flop の出力 Q2 と経由して時間遅れ信号を作ってアナログスイッチ(1)の切替えに使用した。この

ームのほとんどは照射に寄与しなくなる。光ファイバーが有効な太さを保っている時間は他の条件から決まってしまうので、この条件だけを独立して制御できなかった。

条件 1)には敏感で 10ms 時間差を変えると先端形状は大きく変化した。レーザー照射開始の後に延伸を始めないと光ファイバーは引きちぎられ、時間差が短すぎてもそうなる。適正な時間より 10ms 長いと太さ 1~3 μm に細くなった部分が 0.1mm 以上に長く伸びてしまう。タイマーリレーの設定時間 (190ms 程度) にピペットプラー内部回路での遅延時間が重畳するので、実際の時間差は不明である。

この条件と比べて条件 2)のレーザー強度依存性は少なかった。従ってレーザー強度を少しずつ変えながら、その条件での最適な時間差を調べるという手順で最適条件を探索した。作製条件を変えながら試作した数例の光プローブを光学顕微鏡で観察したものを図 4 に示す。(a)は先端が壊れており、(c)は先端が割れている。(b)は先端部の付け根でシャープに折れて、先端部が欠損したように思われる。これらの作製条件は、延伸する力が強すぎたかまたはレーザー強度が小さすぎたと考えられる。(d)、(e)は細い (数 μm 径) 部分が長く伸びすぎ、延伸力が弱すぎた (延伸速度が遅い?) かまたはレーザー強度が大きすぎたと思われる。(f)はほぼ最適な作製条件と考えられるが、ファイバーの保持が斜めになっていたため先端突起が曲がっている。

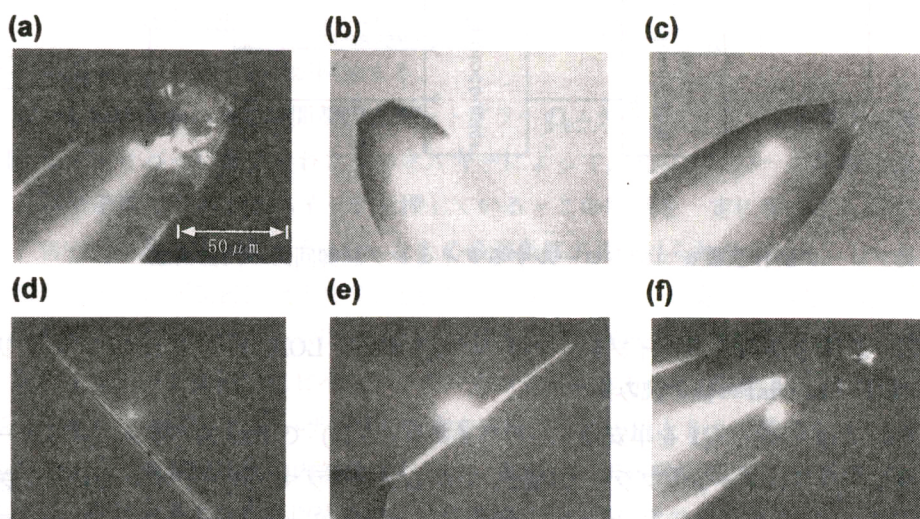


図 4. 光プローブの作製条件を変えた場合のプローブ形状の例 (光学顕微鏡像、スケールバーは 50 μm).

ほぼ最適な作製条件でできたと考えられるプローブの先端形状をより高倍率で検証するため、斜め上向きに保持できる試料ホルダーを作って走査電子顕微鏡で観察した (図 5). (a)の光学顕微鏡像とほぼ同じ倍率の像が(b)であり、以下(c)、(d)と順に倍率が高い。(b)、(c)で先端が白く光っているのは、先端の先鋭度が高く (電子線で) 帯電した先端部近傍に強い電場が生じているためと考えられる。(d)はこの白く光る先端部だけを拡大したもので、オートコントラストによりコントラストが下がっている。先端部の曲率直径は 200nm 程度に見える。先鋭度はまずまずと言える。(だが(c)でわかるように径数 μm の部分は滑らかな形状になっていないことが問題である。)

光プローブの先鋭化していない他端から可視光レーザーを導入し、プローブ側にフォトダイオードを近づけて出射光強度を測定したところ、入射光の約 10%がプローブ先端から出てくることが確認さ

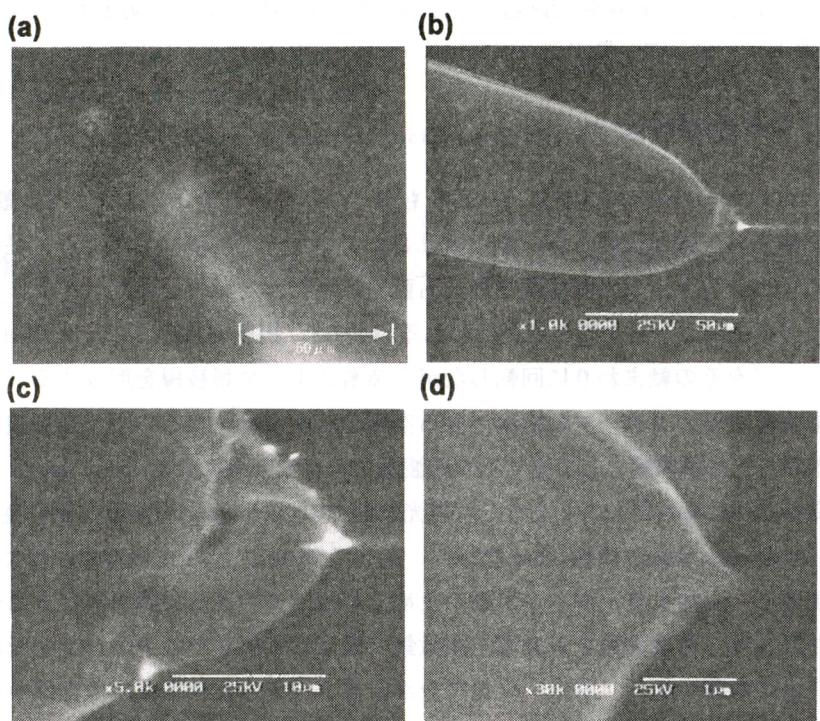


図 5. ほぼ最適な作製条件で作製した光プローブの先端形状. (a)光学顕微鏡像 (スケールバーは 50 μ m). (b)~(d)走査電子顕微鏡像 (スケールバーは順に 50 μ m, 10 μ m, 1 μ m).

れた. 従って内部のコア領域はプローブ先端近くまで伸びていることが期待できる. ただこの測定では遠視野場で測っているため, プローブ先端部でこのうち何%が近接場として滲みだしているのかは不明である. プローブ先端での近接場発生効率を見積もるためには, プローブ先端を十分な分解能で距離制御⁵⁾しながら, 距離に関して指数関数的に光強度が減少する成分を測定する必要がある. この測定を行うに当たっては, フォトダイオードの活性層の厚さは近接場の有効厚さよりも厚いと考えられ, プローブを直接フォトダイオードに接近させる方法は不適当である. 蛍光分子の超薄膜を試料として

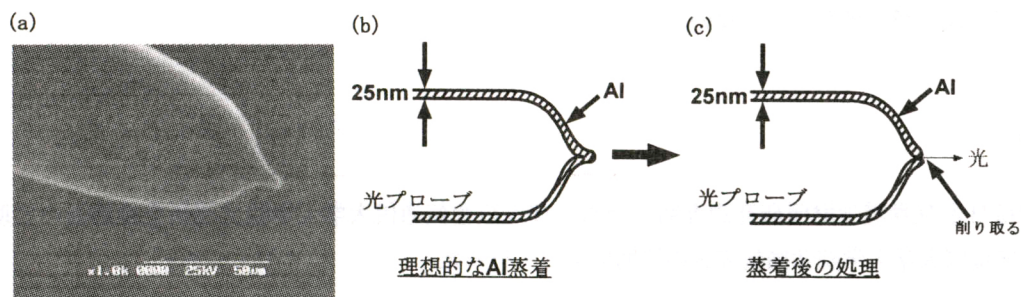


図 6. (a)アルミニウムを回転蒸着した光プローブ (図 5 のプローブとは異なる). (b)理想的な Al 被覆と, (c)先端部の Al 被覆の除去.

用いてプローブを接近させ、近接場で励起されて起こる蛍光の強度などを測定する必要がある。

5. 光プローブの金属被覆コート

図4、図5で光プローブが元のファイバーよりも細くなっている部分ではコア内伝搬モードが存在せず、ここで伝搬光の一部は反射され、他は散乱されてプローブ外部に出てくる。従ってこのままプローブを試料に近づけると、この散乱遠視野光も試料に当たって試料を励起してしまう。これを避けるため光プローブを金属コートすることが行われる(図6)。円筒対称のプローブ側面を均一にコートするため、プローブをその軸まわりに回転しながら蒸着により金属被覆を形成する。この金属被覆の厚さだけ先端も太くなり、プローブの検出できる空間分解能が低下するので、金属被覆はなるべく薄い方がよい。だが、光を電磁波として見てその周波数での表皮効果による skin depth 以上に厚くしないと、光の電磁場は外にしみだしてしまう。可視光領域での skin depth が最も薄い金属として Al が知られており、その skin depth は約 25nm である。従って 25nm 以上 Al を蒸着すればよいことになる。回転しながら蒸着し、しかもターゲットが細いため、平板でモニタした蒸着厚さとは一致しない。実際に蒸着された厚さは、蒸着前後を走査電子顕微鏡で観察して何らかの手がかりを元に比較するしかないだろう。今後の課題である。また、先端部分が金属コートされたままでは先端から近接場もしみ出せないで、先端部分の金属コートを何らかの方法で除去しなければならない。これを行う場合にも、プローブ先端を十分な分解能で距離制御⁵⁾することが必要となる。

6. まとめ

可視光用シングルモード光ファイバーをパルス制御の CO₂ レーザーで強加熱溶融し、市販のピペットプレーを改造した装置で延伸して、先鋭化光プローブを作製した。CO₂ レーザー強度、延伸する力、レーザー照射開始から延伸までの時間遅れ、の最適な条件を探索し、先端径 200nm 程度でしかも先鋭化した突起部が短いプローブの作製に成功した。だが同じ作製条件でも突起部の長さに「ばらつき」が起こり、先端部近傍に小さい構造が残る場合もある。これは、プローブ作製時光ファイバーが十分細くなって2本に分離する直前には、CO₂ レーザーが照射される面積が小さくてエネルギーが供給されなくなり、引きちぎられてしまう場合もあるからだと推察される。この最終段階でさらにレーザー強度を増すなどの改良が有効かもしれない。

7. 謝辞

本研究は日本証券奨学財団研究調査助成金および大阪電気通信大学大学院共同研究推進費の援助、さらに一部は同大学大学院共同研究Bの援助によって行った。

参考文献

- [1] 富岡明宏, 江良朋彦, 大阪電気通信大学研究論集 自然科学編 34 号 (1999) 79-91.

- [2] S. Mononobe, M. Naya, T. Saiki and M. Ohtu, Appl. Opt. **36** (1997) 1496-1500.
- [3] Consideration of coaxial conical dielectric structure: U.Ch. Fischer and M. Zapletal, Ultramicroscopy. **42-44** (1992) 393-398.
Theory: R.F. Harrington "Time Harmonic Electromagnetic Fields", McGraw-Hill, New York (1961).
- [4] Y. Inoue and S. Kawata, J. Microscopy. **178** (1995) 14-19.
- [5] 富岡明宏, 筧真嗣, 岡本周太, 植村隆, 上籠和人, 佐藤友弘, 大阪電気通信大学研究論集 自然科学編 35 号 (2000) 59-68.

