

## 金薄膜の 2 光子励起可視発光

(東北大・通研\*, 北陸先端大\*\*) ○三本木 智則\*, 片野 諭\*,

上原 洋一\*, 潮田 資勝\*\*

【序】時間分解 STM (scanning tunneling microscopy) 発光分光を行うためには、電子トンネルが起こるタイミングを制御し(すなわち、トンネル電流をパルス化し)、それと同期して STM 発光の時間分解計測を行う必要がある。Uehara らは、ピコ秒レーザーパルスを用いてトンネル電流パルスをつくる方法を試みた[1],[2]。レーザー光をパルス化すればトンネル電流もパルス化され、もしこのトンネル電流がピコ秒の応答時間をもてば、ピコ秒のトンネル電流パルスが得られることになる。

以上のようなアイデアに基づき、探針はタングステン、試料は金蒸着膜を用いて STM 発光実験を行った。金試料の STM 発光は、基本的には、ローカルプラズモンからの発光であり、その可視域での寿命はサブピコ秒の領域にある[3]。したがって、ピコ秒の時間分解能の範囲ではローカルプラズモンの寿命時間が STM 発光の持続時間に影響を及ぼすことはない。すなわち、計測される発光のパルス幅はトンネル電流のパルス幅と光計測系の時間分解能のコンボリューションで決まる。これは時間分解 STM 発光分光法の時間分解能を与える。

実際に計測を行ったところ、金薄膜の STM 発光の時間分解スペクトルに数百～1000 ピコ秒程度の長寿命成分が観測された。このような発光は、レーザー誘起されたトンネル電流により励起された発光で、入射レーザーパルスと同寿命を持つもの(～2 ピコ秒)及び STM 探針 - 試料間でレーザーパルスにより非線形励起された表面プラズモンポラリトンによる間接的な発光 (<1 ピコ秒) である。しかしこれら 2 つの過程の発光寿命では、数百～1000 ピコ秒という発光寿命を説明できない。本研究は、光子エネルギー1.35 eV のピコ秒レーザーパルスを半球プリズムの底面に蒸着した金薄膜に照射し、そのときのプリズム側からの発光を時間分解計測することによりこの長寿命成分を明らかにすることを目的としている。

【実験】図 1 に発光計測システムを示す。光子エネルギー1.35 eV のピコ秒レーザーパルスを半球プリズムの底面に蒸着した金薄膜(～40 nm)に照射し、プリズム側からの発光をフォトンカウンティングにより計測した。レーザーはフォーカスさせて照射し、また発光を効率よく集光

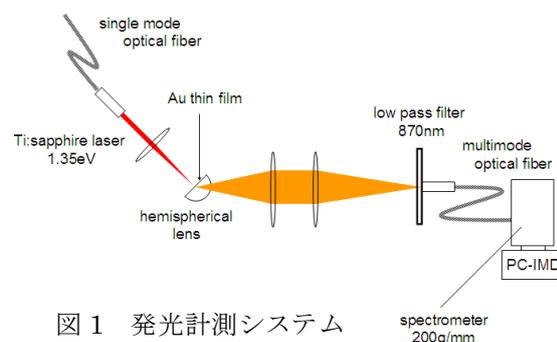


図 1 発光計測システム

するため 2 枚の平凸レンズを用いた。まず発光の有無を確認し、次にレーザー強度を変化させ、それぞれのレーザー強度における発光強度を観測した。使用したレーザーは Ti:sapphire レーザー（パルス幅：2 ピコ秒、繰り返し周波数：80 MHz）、発光計測機器は PC-IMD（photon counting-intensified multichannel detector）である。

【結果と考察】 図 2 にレーザー強度 2.1 mW のレーザーパルスを照射したときに得られた金薄膜からの発光スペクトルを示す。フォトンカウントは 3000 秒積算したものを 1000 秒当りに換算してある。なお、レーザーを照射していないときのダークカウントは除いてある。計測の結果、1.4 eV~2.7 eV の光子エネルギー領域にブロードな発光が観測された。また発光のカットオフは励起レーザーの光子エネルギーの 2 倍である 2.7 eV であった。図 3 に発光強度のレーザー強度依存性を示す。発光強度は 1000 秒当たりのフォトンカウントを積算したものである。ここで、レーザー強度のおよそ 2 乗に比例して発光強度が増加することがわかった。

発光のカットオフが励起レーザーの光子エネルギーの 2 倍であることと、発光強度がレーザー強度の 2 乗に比例していることから、この発光は 2 光子過程で励起されたことがわかる。この発光は、金薄膜中で 2 光子過程により生成された d バンドホールが sp 電子と再結合するときの発光であると考えられる。当日は発光機構の詳細について議論する。

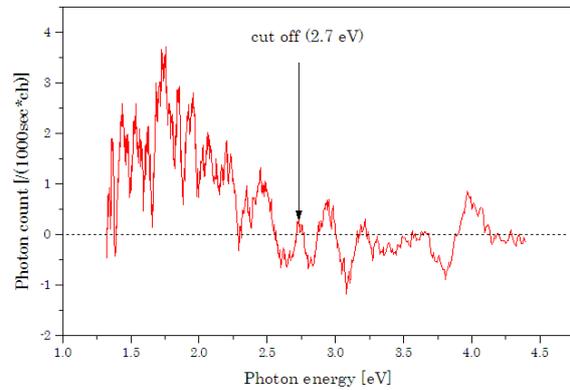


図 2 金薄膜からの発光スペクトル

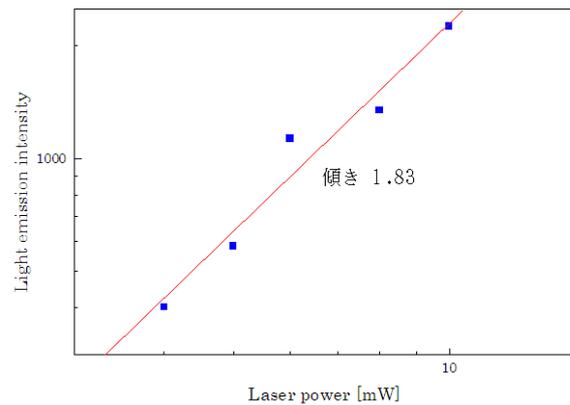


図 3 発光強度のレーザー強度依存性

[1]Y.Uehara, A.Yamagami, K.J.Ito, and S.Ushioda, *Appl. Phys. Lett.* **76**(2000)2487

[2]Y.Uehara, A.Yamagami, K.J.Ito, and S.Ushioda, *Appl. Surf. Sci.* **169-170**(2001) 198-201

[3]U.D.Keil, T.Ha, J.R.Jensen, and J.M.Hvam, *Appl. Phys. Lett.* **72**(1998)3074