

波形整形パルスによるプラズモン光電場の制御

(早大理工¹, JST さきがけ²) 今枝佳祐¹, 井村考平^{1,2}

Control of plasmonic optical fields with shaped femtosecond pulses

(¹Waseda University, ²JST PRESTO) Keisuke Imaeda,¹ Kohei Imura^{1,2}

【序】貴金属ナノ構造体に光励起されるプラズモン共鳴は、ナノスケール空間に光電磁場を効率的に閉じ込め、局所的な増強光電場を形成する。プラズモンによる増強光電場は、表面増強ラマン散乱や蛍光増強、光化学反応場などへ利用できることから注目され、盛んに研究が行われている。プラズモン光電場について理解しこれを利用するためには、光電場を可視化、制御することが本質的に重要である。プラズモン光電場は、プラズモンの波動構造と密接に関係している。そのため、プラズモン光電場を制御するためには、プラズモンの波動構造を制御することが重要である。ナノ構造体に光励起されるプラズモンには、共鳴エネルギーの異なる複数のモードが存在する¹⁾。スペクトル広がりを持つ超短パルス光を用いることで、複数のモードを同時励起することが可能である。さらに、パルス波の周波数成分ごとに強度あるいは位相変調（波形整形）を行うことにより、励起されるプラズモン波動構造の制御が可能となる。本研究では、光源に超短光パルスを用いて、空間光変調器（SLM）によるパルス波形整形装置と走査型近接場光学顕微鏡を組み合わせることで、金薄膜に生じるプラズモン光電場の可視化、制御を行った。

【実験】スパッタリング法によりガラス基板上に作製した金薄膜（厚さ 20 nm）を、開口型近接場光学顕微鏡（開口径 < 100 nm）を用いて測定した。光源にハロゲンランプを用いて、試料の形状を測定しながら、同時に近接場透過測定を行った。また、光源にモードロックチタンサファイヤレーザー（中心波長 800 nm、繰返し周波数 80 MHz、パルス幅 < 20 fs）を用いて、試料の二光子発光励起像と第二高調波（SHG）像を観察した。これらの非線形励起測定においては、時間幅の短いパルスを用いることが本質的であるため、プリズム対による群速度分散補償を行った。さらにプリズム対と SLM を組み合わせることにより、パルス波形制御装置を構築した。図 1 にパルス波形制御装置の模式図を示す。SLM は、640 チャンネル数の液晶ピクセルから構成され、ピクセルごとに伝播する光の強度を制御することができる。図のように光学系を工夫することで、スペクトルの周波数成分ごとに強度の制御が可能となる。この装置を用いて変調光パルスを生成し、これを励起光として二光子発光

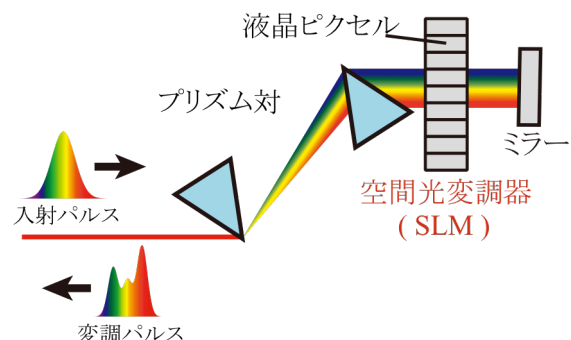


図 1 空間光変調器によるパルス波形制御装置の模式図。

励起像を測定した。

【結果と考察】表面形態像観測から、金薄膜表面にナノサイズの凹凸構造が存在することが分かった。測定した近接場透過像から試料の位置により透過光強度が変化することが分かった。これは、ナノサイズの凹凸構造により、金薄膜表面で光学特性が変化することを示している。また、透過スペクトルから、金薄膜の凸部には近赤外域（700～900 nm）に広い吸収バンドが存在することが分かった。古典電磁気モデル計算より、観測された吸収バンドがプラズモン共鳴に帰属できることを確認した。

二光子発光励起像と SHG 像は、金薄膜表面の光電場分布を反映する。表面形態像との比較から、金薄膜の凸部や凸部間において局所的な増強光電場が形成されていることが確認できた。また、二光子発光スペクトルを測定した結果、550 nm 付近にショルダーと 600～700 nm に強い発光バンドを持つスペクトルが得られた。これらの特徴が金ナノロッドの発光スペクトル²⁾と酷似していることから、金薄膜の二光子発光は、フェルミ面近傍の sp 軌道励起電子と d 軌道ホールの再結合発光に帰属することができる。

パルス波形整形前後で二光子発光の時間相関計測を行った結果、波形整形後のパルス幅が整形前に比べて約 10 fs 広がり、パルス波の形状が変化していることが確認できた。図 2(a, b)にパルス波形整形前後の金薄膜の二光子発光励起像を示す。また、図 2(c, d)に、図 2(a, b)中の破線部における断面図をそれぞれ示す。これらの図の比較から、破線部の両端で生じる光電場の強度分布が、波形整形前後で顕著に変化していることが分った。これは、波形整形により光励起されるプラズモン光電場が変化したことを表している。この結果は、パルス波形整形によりプラズモン光電場を制御できることを示唆している。今後、励起パルス波形の最適化を行い、プラズモン光電場の制御を行う予定である。

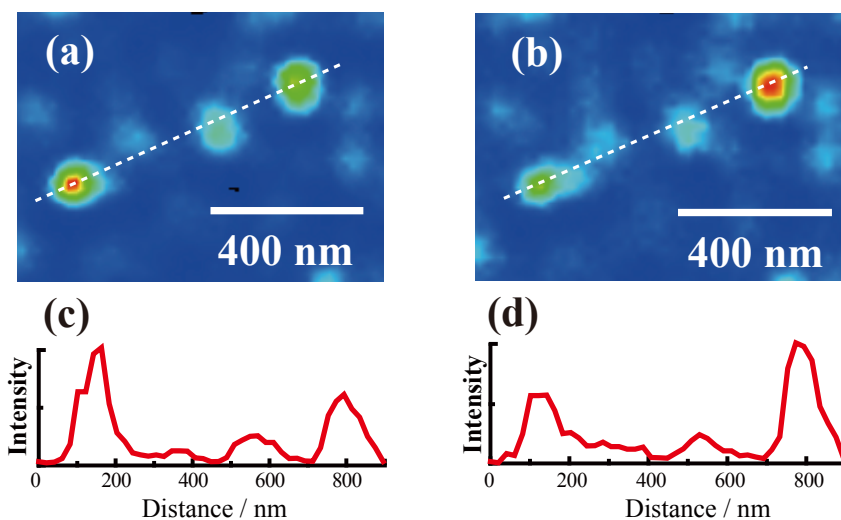


図 2 ナノサイズ凹凸構造を持つ金薄膜の二光子励起像と破線の断面。(a) 波形整形前、(b) 波形整形後。(c) (a) の破線断面図 (d) (b) の破線断面図。

【参考文献】

- 1) K. Imura, T. Nagahara, H. Okamoto, *J. Chem. Phys.* **122**, 154701 (2005).
- 2) K. Imura, T. Nagahara, H. Okamoto, *J. Phys. Chem. B* **109**, 13214 (2005).