

4P065

超短パルス (<20fs) 近接場顕微分光測定による金ナノ構造体の プラズモン位相緩和過程の観測

(分子研¹, 総研大², 早大・理工³, JST さきがけ⁴) 西山 嘉男¹, Wu Hui Jun^{1,2},
成島 哲也^{1,2}, 井村 考平^{3,4}, 岡本 裕巳^{1,2}

Observation of plasmon dephasing processes in gold nanostructures by near-field optical microscopy with ultrashort laser pulses (<20fs)

(Institute for Molecular Science¹, The Graduate Univ. for Advanced Studies², Waseda Univ.,
School of Advanced Science and Engineering³, PRESTO, JST⁴) Yoshio Nishiyama¹, Wu Hui
Jun^{1,2}, Tetsuya Narushima^{1,2}, Kohei Imura^{3,4}, Hiromi Okamoto^{1,2}

[序] 貴金属ナノ構造体に現れるプラズモンは光増強効果・光閉じ込め効果を示すことから、そのナノスケールでの光応答には興味を持たれている。この点で回折限界を上回る空間分解能を持つ近接場光学顕微鏡(SNOM)は有用であり、これまで金ナノロッドを対象とした透過光強度・二光子誘起発光(TPI-PL)強度の空間マッピングではプラズモン波動関数が観測されている[1]。一方で、その位相緩和過程は非常に速く、時空間での光応答を明らかにする上では超短パルスを用いた近接場測定が重要となるが、近接場での超短パルス発生はプローブによる分散が大きいためにこれまでほとんど行われていない。本研究では、プラズモンの位相緩和過程(<20fs)と同程度の時間分解能をもつ超短パルス SNOM 装置を開発し、金ナノ粒子の位相緩和過程の観測を行った[2]。

[実験] 図1に、今回開発した超短パルス SNOM 装置を示す。Ti:Sapphire レーザーパルス (パルス幅 15fs, スペクトル幅 80nm) は用いるファイバークラウドにより大きな波長分散を受ける。そのため、プリズム対、回折格子対、可変形鏡を通過させることで分散の前補償を行った。可変形鏡の形状の最適化は、プローブ直下で BBO 結晶により二倍波 (SHG) を発生し、その信号強度が最大になるようフィードバックをかけることで行った。

[結果・考察] 図2に、可変形鏡の最適化後に得られた近接場光の SHG 自己相関信号を示す。この信号から、近接場光のパルス幅は 16fs と見積もられた。

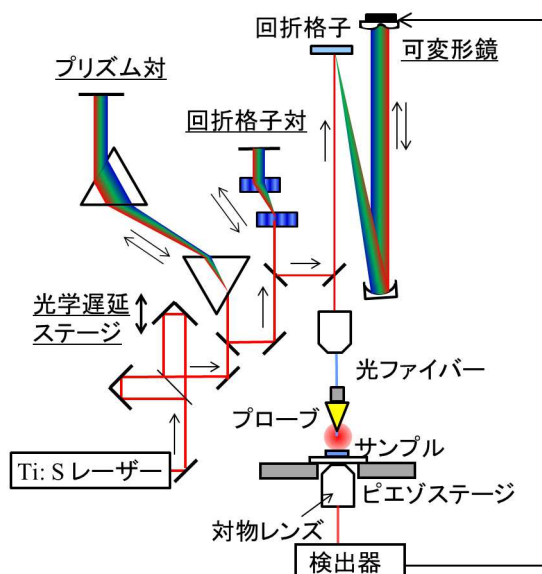


図1.
超短パルス近接場測定システム

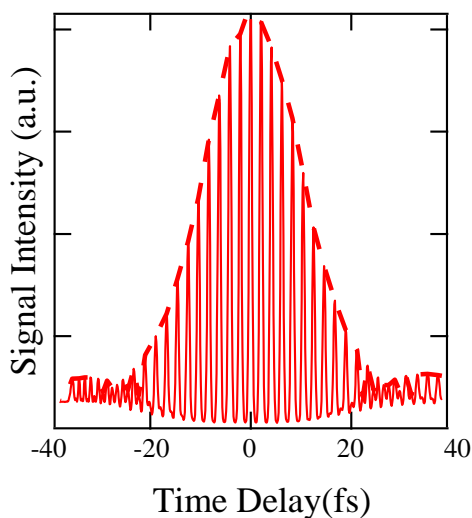


図2.
近接場 SHG 相関信号。点線は信号の
包絡線。

また、この装置を用いて電子線描画法により作成した金ナノディスクダイマー(図3)上での1点(×印)における TPI-PL 相関信号を測定した。(図4) その結果、信号の波形は SHG 自己相関信号に比べて広がっており(包絡線の相関幅: SHG→23fs、TPI-PL→25fs)、近接場測定においてプラズモンの光応答を時間領域でとらえることに成功した。観測される相関信号は入射場(E_{applied})とプラズモン応答(χ)の畳み込みにより以下のように表される。

$$E_{\text{plasmon}}(t) = \int E_{\text{applied}}(t-t')\chi(t')dt'$$

$$I_{\text{TC-TPI-PL}}(\tau) = \int [E_{\text{plasmon}}(t) + E_{\text{plasmon}}(t+\tau)]^4 dt$$

プラズモンの時間応答が指数関数的に減衰すると仮定すると、得られた TPI-PL 相関信号からプラズモン位相緩和の時定数は 8fs と見積もられた。単一金ナノ微粒子の位相緩和時間は主に伝搬光を用いた光散乱の振動数領域測定によって行われているが、今回の測定したサンプルに近い特性のもの(アスペクト比の小さい金ナノロッド)では緩和時間は 6-11fs と報告されている[3]。この測定では空間を分解せず、微粒子全体としての応答を観測しているにもかかわらず、今回のディスクの値と類似している。この結果は、超短パルスのスペクトル帯域中に単一プラズモンバンドのみが存在するため、既報のロッドのモードと類似した特性の単一のモードを励起していることに起因するものと考えられる。講演では、位相緩和時間のマッピングを行うとともに、他のナノ構造体について測定を行った結果についても報告する予定である。

[1] H. Okamoto, K. Imura, Prog. Surf. Sci. (2009)

[2] H. J. Wu, et al. Appl. Phys. Express, 5, 062002 (2012).

[3] C. Sönnichsen, et al. Phys. Rev. Lett. (2002)

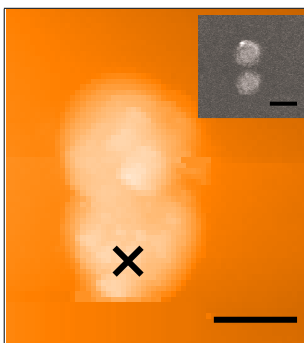


図3.

金ナノディスクダイマー(直径 400nm, 厚さ 40nm)の形状像。(挿絵は電子顕微鏡像)スケールバーの長さは 400nm。×印は TPI-PL 相関測定を行った箇所。

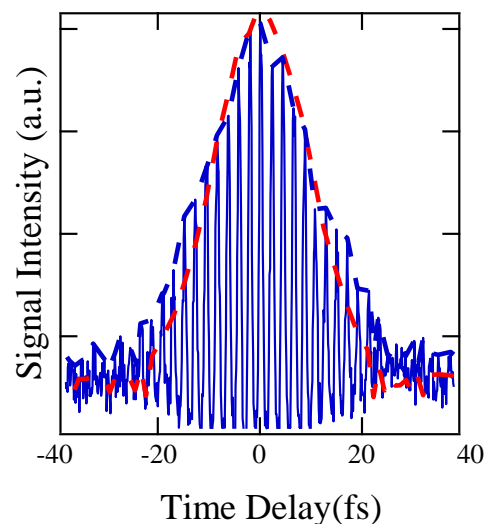


図4.

TPI-PL 相関信号。点線は包絡線。赤点線は SHG 信号の包絡線。