

超高速時間分解近接場顕微測定による
金ナノロッド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) ○西山 嘉男¹, 成島 哲也^{1,2}, 井村 考平³,
岡本 裕巳^{1,2}

Observation of plasmon dephasing processes in gold nanorods by ultrafast
time-resolved near-field optical microscopy

(Institute for Molecular Science¹, The Graduate Univ. for Advanced Studies²,
Waseda Univ., School of Advanced Science and Engineering³)

○Yoshio Nishiyama¹, Tetsuya Narushima^{1,2}, Kohei Imura³, Hiromi Okamoto^{1,2}

[序] 貴金属から成るナノ構造体は、プラズモンに由来する光電場増強効果を示すことから近年注目されている。プラズモンによる増強電場はナノ構造体近傍のナノスケールの空間に存在し、プラズモンの短い寿命 (20 fs 以下) によって非常に速い時間応答を示す。そのため、プラズモンの特性を詳細に理解する上で高い時間・空間分解能を持つ観測手法が重要である。高い空間分解能を持つ近接場光学顕微鏡(SNOM) はプラズモンの波動関数や増強電場を観測する有効な手法である[1]とともに、超高速分光法を組合せた時空間分解測定法への展開も期待される場所である。我々は波形整形を用いた分散補償を行うことで、近接場測定においても高い時間分解能(<17 fs)を達成することに成功した [2]。本研究では、この超高速時間分解 SNOM 装置を用いて、金ナノロッドにおけるプラズモンの位相緩和過程の観測を行った。

[実験] 図 1 に、今回開発した超高速時間分解 SNOM の装置構成を示す。Ti:Sapphire レーザーパルス (パルス幅 12 fs, スペクトル幅 80 nm) は用いるファイバープローブにより大きな波長分散を受け、数 ps まで大幅に時間分解能が低下する。そのため、回折格子対、可変形鏡、チャープミラーにより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。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 (図 2) から、近接場光のパルス幅は 15 fs と見積もられた。

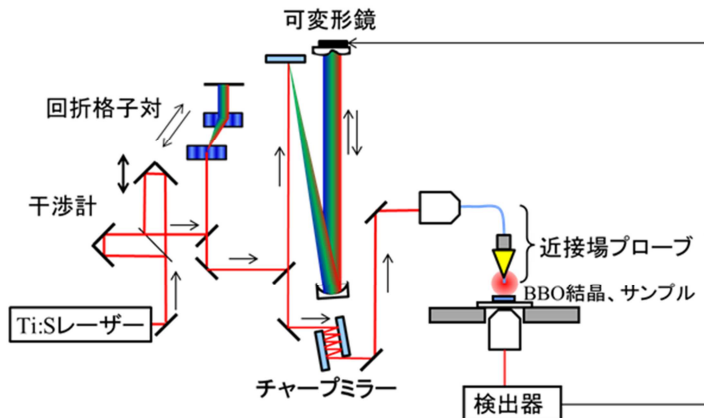


図 1. 超高速時間分解近接場測定システム

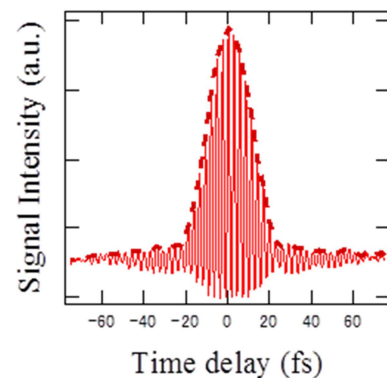


図 2. 近接場 SHG 相関信号。
点線は信号の包絡線。

【結果】 図3に今回対象とした金ナノロッド(電子線描画法により作成、長さ 1200 nm、幅 65 nm、厚さ 50 nm) に対して行った近接場透過測定の結果を示す。ナノロッドでは長軸方向に周期的に振動する像が観測され、これは個々のプラズモン共鳴モードが持つ波動関数に対応している。レーザーの発振スペクトル域内 (750~850 nm) でも波長により異なる振動周期を持つ空間像が観測され、この波長範囲に複数のプラズモン共鳴モードが含まれていることが分かった。プラズモンの時間応答を観測するために金の二光子誘起発光 (TPIPL) の時間相関測定を行った (図4)。得られた信号の相関幅はパルスの SHG 自己相関 (図4 (b),(c)の黒線、それぞれピーク・ベースラインの位置で規格化) よりも広がりを示しており、これは中間状態であるプラズモンの寿命を反映している。また、TPIPL 像の異なる位置で相関測定を行ったところ、相関幅に大きな違いが観測された。この結果は異なる位置で異なるプラズモンモードが励起されたことを示唆しており、講演では相関幅の空間像を示し、より詳細な議論を行う予定である。

- [1] H. Okamoto, K. Imura, Prog. Surf. Sci. 84, 199 (2009)
 [2] H. J. Wu, et al. Appl. Phys. Express, 5, 062002 (2012).

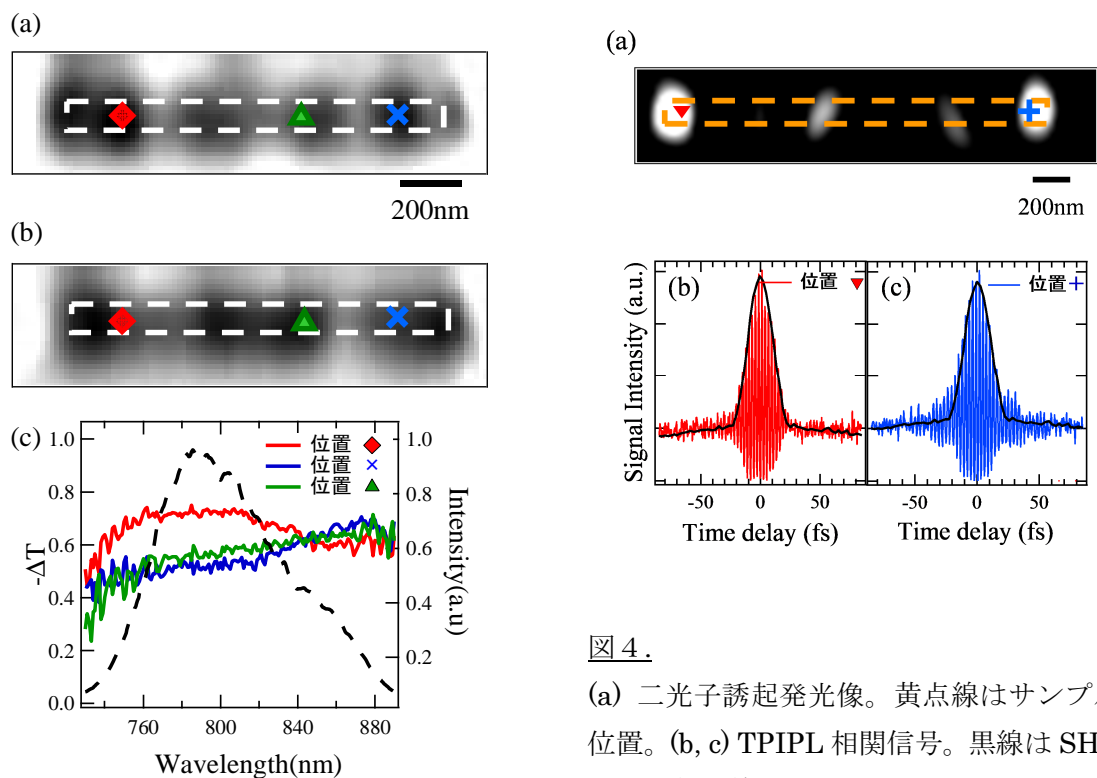


図4. (a) 二光子誘起発光像。黄点線はサンプル位置。(b, c) TPIPL 相関信号。黒線は SHG 信号の包絡線。

図3. (a, b) 近接場透過像 (a : 波長 780 nm, b : 870 nm)。白点線はサンプル位置。(c) 透過スペクトル。黒点線は近接場プローブから出力された照射パルスのスペクトル