2D08

フェムト秒表面プラズモン共鳴による金薄膜のコヒーレントフォノンの観測

（理化学研究所・分子分光研究室）　○山口祥一，田原太平

【序】

薄膜の高感度な光学測定の一つの方法として，表面プラズモン共鳴（SPR）が知られている．SPR は，誘電率が正と負の二つの媒質（例えば空気と金属）の界面に存在する電荷粗密波（表面プラズマ）とバルクの電磁波（光）との位相整合によってもたらされる．SPR は，表面・界面に対する高選択性と高感度性を有するユニークな分光分析法として，生化学や材料科学などの分野で広く利用されている [1]．今回我々は，SPR とフェムト秒ポンプ - プローブ法を組み合わせた新しい方法によって，金薄膜のコヒーレント音響フォノンを観測できることを見出した．

【実験】

図 1 に測定配置図を示す．プリズムの上にマッチングオイルを介して金薄膜板（50 nm の金をコートしたガラス板）を置き，上方から波長 650 nm のフェムト秒パルス（ポンプ光）を照射した．下方からは，SPR の共鳴条件を満たす入射角度(θ)で 800 nm のフェムト秒パルス(プローブ光)を同じスポットに照射した. ポンプ - プローブの相互相関時間は 200 fs であった．ポンプ光は p- 偏光とした．プローブ光が p- 偏光で共鳴条件が満たされているとき，反射率は 1% 程度にまで減少する．言い換えると，p- 偏光プローブ光が SPR によって吸収されるような配置とした．ポンプ光によって誘起される反射率変化（$\Delta R/R$）を，ポンプ - プローブの遅延時間を掃引しながら測定した．

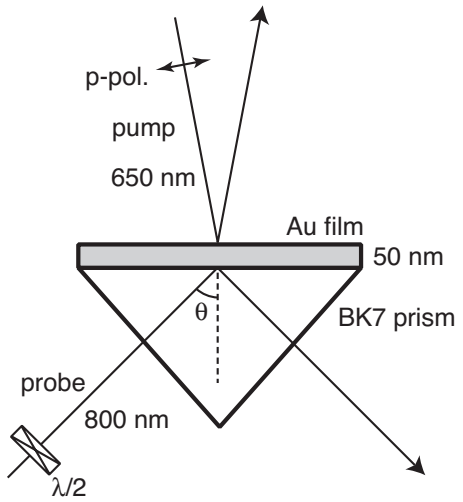

図 1. フェムト秒ポンプ - プローブ SPR の実験配置図.

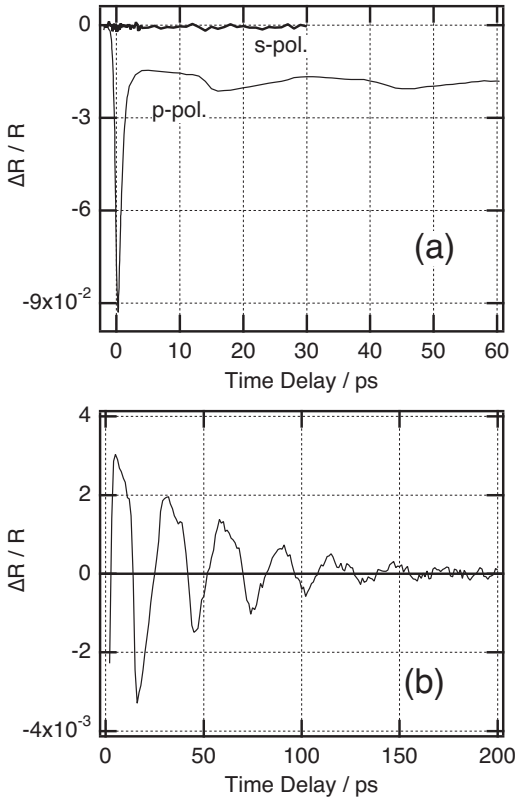

図 2. $\Delta R/R$ の遅延時間依存性 .

(a) プローブ光が p- 偏光（細線）および s- 偏光（太線）の場合の $\Delta R/R$.

(b) 上の p- 偏光のデータから抜き出した振動成分.

【結果・考察】

図 2(a) は，プローブ光が p- および s- 偏光の場合の $\Delta R/R$ の遅延時間依存性である．SPR を与えない s- 偏光の場合，有意な強度の信号が得られなかった．一方 p- 偏光の場合は，大きな信号が得られた．このことは，ポンプ光によって SPR の共鳴条件が変調を受けて，大きな $\Delta R/R$ がもたらされていることを意味している．p- 偏光のデータは，ポンプ光照射と同時に立ち下がり数ピコ秒以内に減衰する超高速成分と，それ以降も残る遅い成分から成っている．超高速成分は電子緩和に由来すると考えられるが，ここではこれ以上議論しない．遅い成分には，周期約 30 ps で振動する成分が重なっている．この振動成分を抜き出して示したのが図 2(b) である．100 ps 以降まで振動が続いていることがわかる．この振動の由来を明らかにするために，図 2(b) のデータをフーリエ変換して得られるパワースペクトルを図 3(a) に示す．データ点の間隔は 5 GHz である．このスペクトルには，周波数 35 GHz に最大のピークがあることがわかる．この周波数は，50 nm の金薄膜を縦波の音波が往復するのに要する時間の逆数に等しいことから，観測された振動成分は金薄膜のコヒーレント音響フォノンによるものと結論することができる．また，図 3(b) の縦軸を拡大したスペクトルを見ると，最大のピーク 35 GHz の他，70, 106, 141 GHz にも小さなピークがあることがわかる．これらは，35 GHz を基本音として，各々 2, 3, 4 倍音に帰属することができる．このように倍音が基本音から分離されてはっきりと観測されることは，フォノンの振動数が，金薄膜の厚み方向（50 nm）の閉じ込めによって量子化されていることを意味している．金属や半導体のコヒーレントフォノンは，これまでに反射法や透過法で時間領域で観測されてきたが [2]，SPR を用いたのは今回が初めてである．基本音・倍音のモードや光励起による音響フォノンの生成過程について当日議論する．

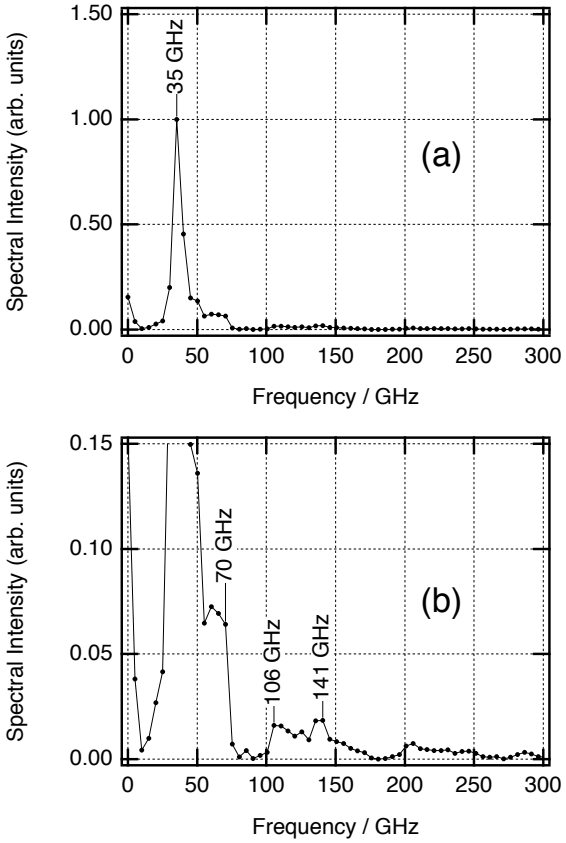

図 3(a). 金薄膜のコヒーレントフォノンのスペクトル（図 2(b) のデータをフーリエ変換して得たパワースペクトル）. (b) は (a) の縦軸を拡大したもの.

【参考文献】

[1] J. Homola, S. S. Yee, and G. Gauglitz, Sensors and Actuators B **54**, 3 (1999).

[2] S. Nakashima, M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima, 表面科学 **19**, 64 (1998).