

# 電界自己相関型暗視野顕微鏡によるフェムト秒レーザー励起

## プラズモン場の時空間特性計測

### Auto-correlation measurement of spatio-temporal plasmon field irradiated by femtosecond laser with a dark field microscope

大井潤(B4), 松石圭一郎(M1), 原田卓弥(D2)  
Jun Oi, Keiichiro Matuishi and Takuya Harada

## Abstract

Fringe-resolved autocorrelation with dark-field microscopy is applied to the spatio-temporal characterization of localized plasmon excited by ultra-broad femtosecond laser pulses at metal nano-structures.

## 1 はじめに

ナノ構造を持った金や銀などは、紫外から近赤外域の波長の光電場とカップリングして局在プラズモン共鳴 (LSPR: Localized Surface Plasmon Resonance) を起こす。このような現象を用いることで、光の回折限界を超えたナノメートル領域に光エネルギーを閉じ込めることができるため、ナノスケールの光導波路、光スイッチ、イメージセンサーなどへの応用が可能となる。またナノ粒子、ナノ構造表面近傍の空間では光の群速度低下と著しく増強された局所電場が発生するため、これに基づく超高感度な計測や分子励起の高効率化が可能となると考えられている。

こういった背景から近年、プラズモニクス (Plasmonics)に関する研究が盛んに行われているが、その多くはナノ粒子・ナノ構造体の設計に注がれている。われわれは照明光のパラメータや光励起に伴うプラズモン場のダイナミクスを広帯域なフェムト秒レーザーを用いることで、周波数チャープや偏光を波形整形し、時間的・空間的に制御することを目的としている。プラズモン共鳴波長を含む広帯域レーザーパルスに周波数チャープを乗せると、共鳴波長の異なった金属微粒子は異なる時刻にプラズモン共鳴を起こすことになる。たとえば試料基板上に異なったアスペクト比を持った金ナノロッドがあれば2次元画像として時間的に異なった共鳴ピークを測定することができる。こういったナノ構造のフェムト秒領域での光学応答の測定は、金ナ

ノ微粒子の散乱光を高いS/N比で2次元画像として取得できる暗視野顕微鏡を用いて、その散乱光を電界自己相関測定することで可能となる。

今回は金ナノロッドのプラズモン共鳴波長が、長軸に対する電界方向に依存することに着目し、基板上に不均一に散布された同一のアスペクト比を持った金ナノロッド(アスペクト比:3)を、特定の電界の偏光方向によって励起した。Fig.1に大日本塗料から提供された試料の吸高度測定の結果を示す。

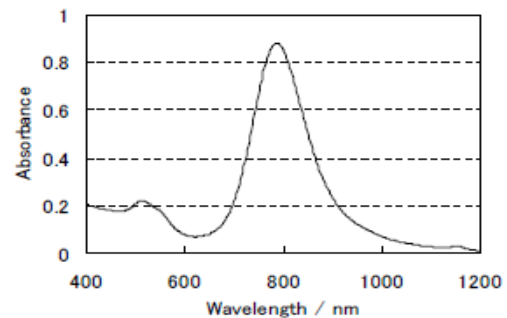


Fig.1 Absorption spectrum of gold nanorods.

## 2 ナノロッドの偏光依存性

### 2-1 測定方法

まず実験セットアップについて Fig.2 を用いて説明する。Ti サファイアレーザー光源から出てきたパルスはBSでふたつに分け干渉計に通した。その後、ビーム径を凹凸銀ミラーを用いておよそ 50 mm に広げ暗視野コンデンサ (U-DCD:Olympus,NA=0.80~0.92)に入射させた。その後金ナノロッドを散布した試料に入射させ対物レンズ(40倍,NA:0.60)によって金ナノロッドの散乱光を取得する。取得した散乱光を CCD で測定し、2次元画像における任意の輝点での電界自己相関波形を取得した。この時、2つのパルスの delay を調整するた

めにピエゾ素子にかかる電圧を制御し 1 プロット 0.167 fs 間隔で合計で 1200 プロット、200 fs 分の CCD 画像を取得した。

実験に用いた Ti サファイアレーザのスペクトルを Fig.3 に示す。これをみると今回測定に用いた金ナノロッドのプラズモン共鳴波長である 780 nm 付近には強い強度が見られないことが分かる。また、実際に試料面に入射されるスペクトルは金ミラーを通してため 600 nm 付近の入射パワーは実際の測定では落ちる。

レーザの偏光は $\lambda/2$ 波長板を用いて常盤に水平な電界方向を $0^\circ$ として、 $0\sim 170^\circ$ まで $10^\circ$ おきに測定した。このとき電界自己相関波形をフーリエ変換し、そのスペクトル成分が 780 nm 付近において非常に高い強度をもつものと、それに直交する電界偏光の角度を比較した。

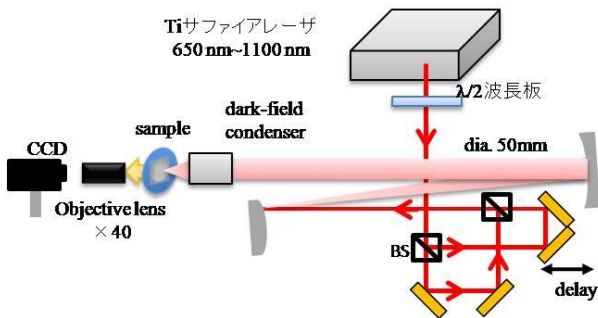


Fig.2 Experimental setup of autocorrelation measurement of ultrafast plasmon with dark-field microscopy

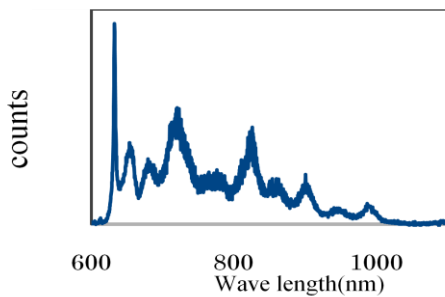


Fig.3 spectrum of Ti sapphire laser

## 2-2 測定結果

電界自己相関波形の偏光依存性のグラフを Fig.4 に示す。偏光を変えて測定したときに、 $170^\circ$  のときに金ナノロッドの共鳴波長に強いピークが見られた。Fig.4 ではそれに直交する  $80^\circ$  での電界自己相関波形も示している。これによるとプラズモン共鳴が起きている

偏光方向ではパルスが伸びていることがわかる。[1] また共鳴が起きている偏光方向とそれに直交する偏光の電界自己相関波形の違いが delay が 10 fs から 30 fs で見られるためにプラズモン共鳴の位相情報はこの部分の波形から見られることが分かる。[2]

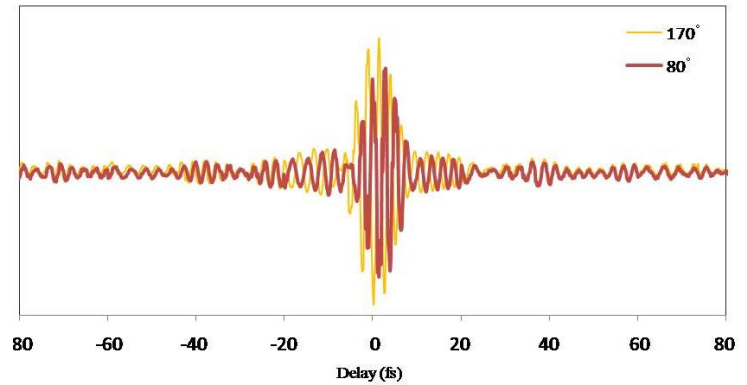


Fig.4 fringe-resolved autocorrelation function measured at an Au nano-rod

この電界自己相関波形の結果をフーリエ変換することでプラズモン共鳴による散乱光のスペクトル成分を得ることができる。

$$F_2(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t)E(t-\tau)\exp[2i\{\phi(t)-\phi(t-\tau)\}]dt \quad (1)$$

$$F(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} F_2(\tau)\exp(-i\omega\tau)d\tau \quad (2)$$

この結果を Fig.5 に示す。これによると  $170^\circ$  の時に見られたプラズモン共鳴波長である 780 nm 付近にはそれに直交する電界方向で励起した  $80^\circ$  のスペクトル成分では強いピークは見られないことが分かる。

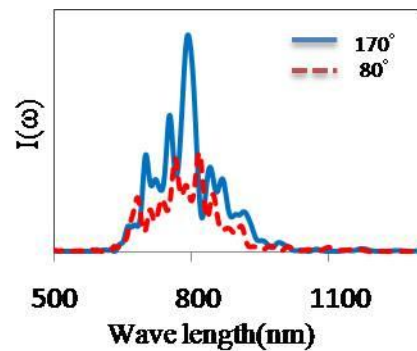


Fig.5 spectra of an Au nanorod obtained by Fourier transform of fringe-resolved autocorrelation

ロッド形状の場合には、長軸方向に水平な電界によって励起されたプラズモン共鳴波長と、短軸方向に水平な電界によって励起された共鳴波長は異なる。[3] 金ナノロッドの長軸方向のプラズモン共鳴は 780 nm であり、Ti サファイアレーザの帯域に含まれているのでこの実験では長軸方向のプラズモン共鳴は励起出来るが、短軸方向のプラズモン共鳴波長はこの試料の金ナノロッドでは 500 nm 付近にあるため励起されない。

またこの実験では広帯域な光源によってプラズモン共鳴を励起しているため、どの周波数でもナノロッドにはその周波数で分極が発生し、電磁波を近接場と伝播モードに出していると考えられる。したがってサイズの共鳴する波長は増強され、遠視野の電磁波は、増強されていない波長での分極放射と増強された共鳴波長の分極放射の伝播モードが現れるはずなので、バックグラウンドの前者に共鳴波長が載ったスペクトルになると考えられる。増強されない周波数モードはほぼ偏光に依存しないと考えられる。

### 3 画像上の異なる輝点での散乱光測定

#### 3-1 測定方法

Fig.6 のようないくつかの点が見られる CCD 画面上で電界自己相関計測を行うことで、それぞれの任意の点での電界波形とスペクトル成分を一度に取得することが可能となる。そこで Fig.6 における a,b,c,d の 4 点において Fig.2 のときの同様のセットアップを用いて測定を行った。

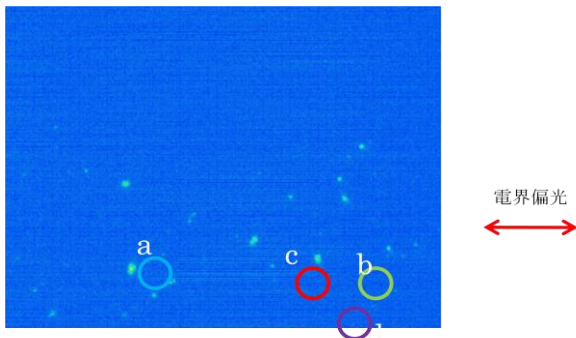


Fig.6 CCD image of some scattering lights

#### 3-2 測定結果

それぞれの点での電界自己相関波形とスペクトルを

Fig.7-10 に示す。

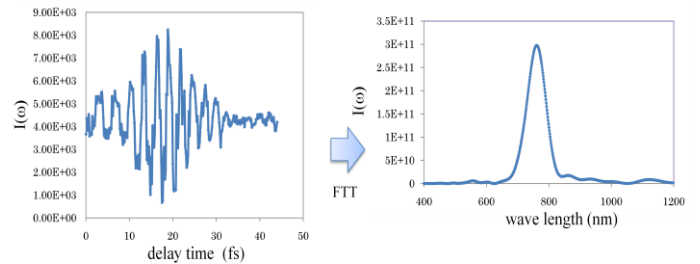


Fig.7 Fringe-resolved autocorrelation function measured at an Au nano-rod(a) and its spectrum

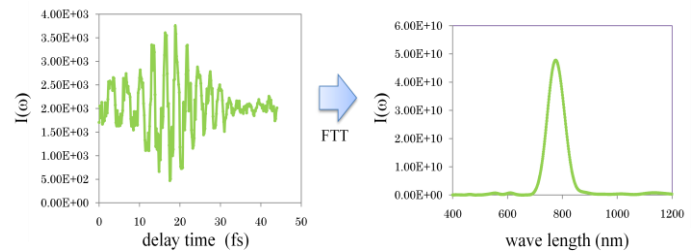


Fig.8 Fringe-resolved autocorrelation function measured at an Au nano-rod(b) and its spectrum

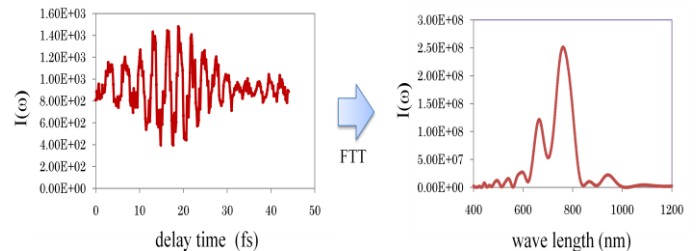


Fig.9 Fringe-resolved autocorrelation function measured at an Au nano-rod(c) and its spectrum

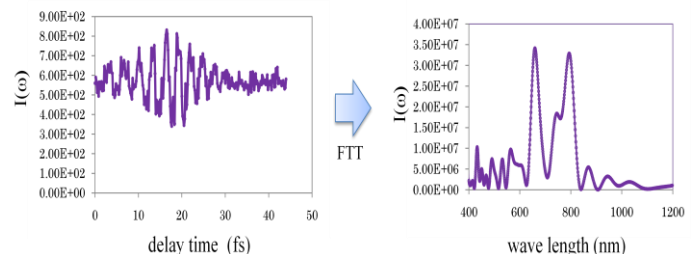


Fig.10 Fringe-resolved autocorrelation function measured at an Au nano-rod(d) and its spectrum

これにより偏光方向がランダムに試料上に散布された

金ナノロッドによる任意の点での散乱光の電界波形およびそのスペクトル成分が異なったものになることが測定結果からわかる。

## 4 まとめ

自己相関型暗視野顕微鏡測定により金ナノロッドの偏光依存性を測定することができた。またこの手法を用いれば CCD 画像上の任意の点での電界波形とスペクトルを一度に測定することができた。今後はこの利点を生かし、フェムト秒パルスに周波数チャープや偏光を波形整形することでプラズモン場の時空間制御を行う。

## References

- [1] B. Lamprecht, A. Leitner, F.R. Aussenegg, *Appl. Phys. B* **68**, 419–423 (1999)
- [2] Atsushi Kubo, Ken Onda, Hrvoje Petek, Zhijun Sun, Yun S. Jung, and Hong Koo Kim, *Nano Lett.* **5**, 1123–1127 (2005).
- [3] W. Gotschy, K. Vonmetz, A. Leitner, and F. R. Aussenegg, *Opt Lett* **21**, 15 (1996)