

# 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 dark-field microscopy measurement of spatio-temporal plasmon field excited by femtosecond laser pulses

大井潤(M1), 松石圭一郎(M2), 原田卓弥(D3)  
Jun Oi, Keiichiro Matuishi and Takuya Harada

## Abstract

We demonstrated auto-correlation measurement of plasmon field at Au nanorods excited by femtosecond laser pulses using dark-field microscopy. Although the spatial resolution is limited by the diffraction limit of the microscope, we can simultaneously obtain the plasmon spectra of various nanorods from the auto-correlation images measured by a CCD camera.

## 1. はじめに

金や銀などの貴金属ナノ構造は、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。

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。Lamprecht ら[1]は金ナノ粒子や銀ナノ粒子にフェムト秒レーザーを照射したときの強度自己相関波形を測定した。また Kubo ら[2]は、検出器に光電子顕微鏡 (PEEM) を用いることで、フェムト秒レーザー励起プラズモンの自己相関波形を2次元イメージで測定した。マルチポイントでの測定は実際の微細加工されたプラズモン回路の応答関数を測定するうえで必要な手段である。自己相関計測ではなくプラズモン応答時間波形を測定した例としては、Alexandria Anderson ら[3]が FROG を用いて金ナノ短針におけるプラズモン時間波形を測定した。

このように近年、フェムト秒レーザーパルスで金や銀などの微粒子やナノ構造に照射したときのプラズモン応答関数を測定あるいは計算するといった研究が盛んに行われている。我々は PEEM よりも簡便な暗視野顕微鏡を用いることで、CCD で計測した2次元面内の複数の位置において同時に異なったプラズモン波形が得られることを実験的に確かめた。この手法を用いることで、PEEM と比較してとても短い測定時間で相関波形を得ることが可能となった。これによって周波数チャープや偏光を波形整形し、時間的空間的にプラズモンダイナミクスを制御するための定量的な手法が確立できると考えている。

## 2. 実験方法、結果

本実験に用いたチタンサファイアレーザー (VENTEON,  $\Delta\lambda = 650\sim 1100$  nm) のスペクトルを以下に示す。

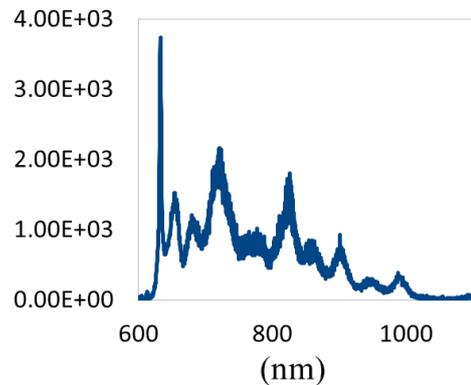


Fig. 1 Spectrum of VENTEON

本研究において用いた試料は、VENTEON のスペクトル帯域に共鳴波長が含まれるような金ナノロッド (共鳴波長 $\sim 800$  nm) をガラス基板上 ( $\text{SiO}_2$ ) にランダム

に散布したものをを用いている。Fig.2の実験セットアップにあるように偏光を変化させることにより、励起軸を変えてプラズモン共鳴を励起することができる。

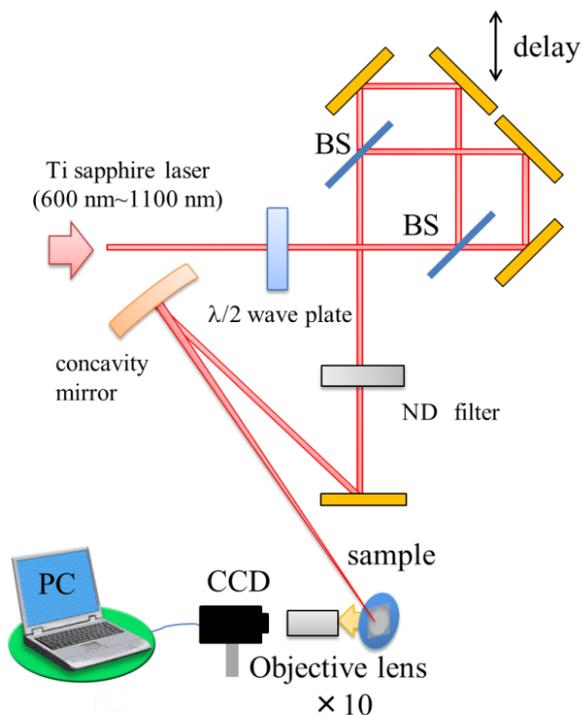


Fig. 2 Experimental set up

VENTEON の光を干渉計に通し、その光を凹ミラーで絞りながら暗視野照明を行った。プラズモン共鳴による散乱光は 10 倍の対物レンズを通過し CCD で Fig. 3 のようにそれぞれの光点として測定することができる。Fig.4 は CCD 画像上の点 A, 点 B, 点 C におけるそれぞれの励起光に対する偏光依存性を示している。

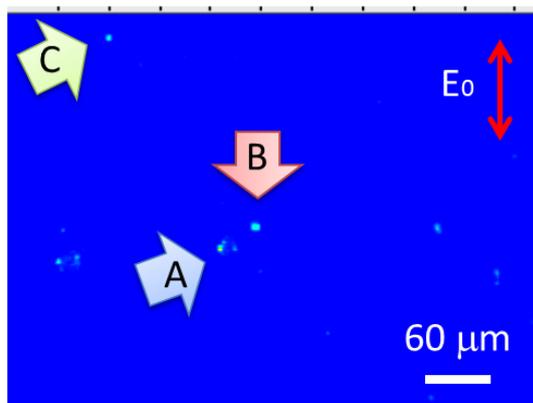


Fig.3 Snap-shot of CCD image at a certain delay time.

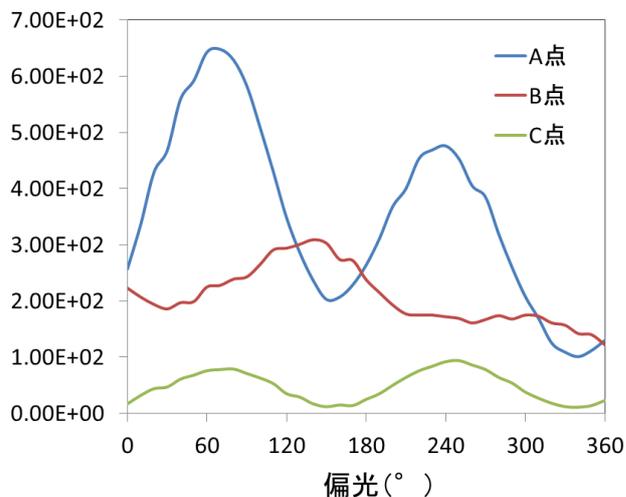


Fig.4 Polarization dependence of local plasmon intensity at three nanorods.

干渉計の delay の分解能は 30 nm であり、1 プロットピコモーターを動かすごとに CCD の画像を保存できるようにコンピュータプログラミング制御を行った。これにより 1 プロットあたりにかかる時間は CCD の露光時間(0.033 秒)程度にまで短くすることができた。

自己相関波形の測定結果を Fig.5 および Fig.6 に示す。Fig.5 は Fig.4 における偏光が 160 度の際のそれぞれの光点における電界自己相関波形を表しており、Fig.6 はそれに直交する偏光 70 度の際のそれぞれの光点における電界自己相関波形を表している。C 点においては強い偏光依存性がみられる。A 点と B 点は偏光によってその散乱光の強度が著しく変化していることがわかる。これにより金ナノロッドの偏光依存性による電界自己相関波形の異なるプラズモン波形を取得することが確かめられた。

自己相関波形をフーリエ変換することでそれぞれの点におけるスペクトルを求めることができる。Fig.5 の自己相関波形をフーリエ変換したものを Fig.7 に、Fig.6 のフーリエ変換を Fig.8 に示す。

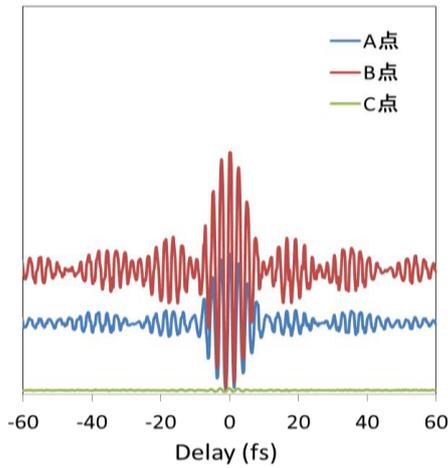


Fig.5 Auto-correlation waveforms for the polarization angle of  $160^\circ$

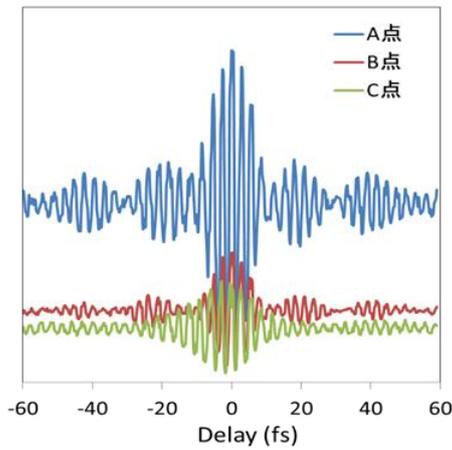


Fig.6 Auto-correlation waveforms for the polarization angle of  $70^\circ$

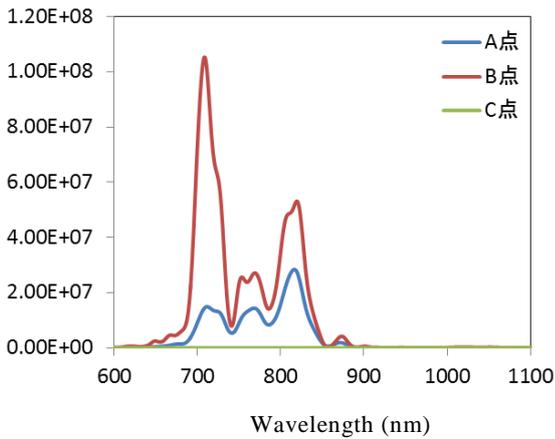


Fig.7 Auto-correlation waveforms for the polarization angle of  $160^\circ$

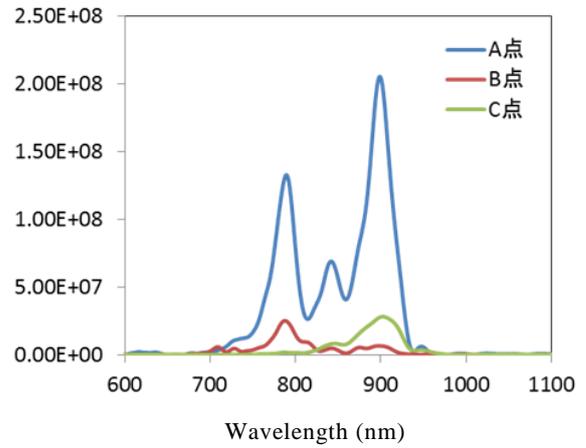


Fig.7 Auto-correlation waveforms for the polarization angle of  $160^\circ$

## まとめ

われわれは電界自己相関型暗視野顕微鏡を用いることで、CCDで計測された面内の任意の点におけるプラズモン場の電界自己相関波形を測定することに成功した。この手法を生かし、自己相関から相互相関にセットアップを用いることでプラズモン応答関数の振幅・位相特性を取得できる。

## 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] Alexandria Anderson, Kseniya S. Deryckx, Xiaoji G. Xu, Gu`nter Steinmeyer and Markus B. Raschke Nano Lett. (2010), 10, 2519–2524