

相互相関 SNOM を用いたフェムト秒プラズモンの時間波形計測

Measurement of time waveform of femtosecond localized plasmon by cross-correlation with SNOM

大西秀太郎(M1), 松石圭一郎(M2)

S. Onishi and K. Matsuishi

Abstract

We apply a new method of a cross-correlation with SNOM in the spatio-temporal characteristics of femtosecond localized plasmon at metal nano-structures. Temporal characteristics of femtosecond localized plasmon at Au are measured by this method.

1 はじめに

近年、光の回折限界を超えたナノ領域におけるプラズモン現象に関する研究が盛んに行われている。その中でも、ナノ領域における光技術の実現のために注目されている現象の1つとして、金属ナノ構造の局在プラズモン共鳴が挙げられる。局在プラズモン共鳴とは、金属ナノ構造中の電気分極と入射波が共鳴を起こすことであり、この際にナノ構造の大きさに依存した著しく増強した電場を発生することができる。この局在プラズモン共鳴の特性はナノ構造によって異なり、局在プラズモン共鳴によってナノ領域に局在した光を扱うことができる[1,2]。また、局在プラズモン共鳴には、入射波の周波数依存性、偏光依存性があることから、規則的なナノ構造に偏光波形整形したフェムト秒レーザーパルスを用いることで、局在プラズモンを空間的に制御する研究も報告されている[3]。局在プラズモンの時空間制御を可能にするためには、フェムト秒レーザー励起局在プラズモンの時間測定が必要であり、これまでに光電子顕微分光(PEEM)とフリンジ分解自己相関計測を組み合わせた方法によって、時間特性を測定した報告がある[4]。

我々は局在プラズモンの時空間制御を目指して、時間域電界相互相関法と近接場光学顕微鏡(SNOM)を組み合わせた新たな測定系により、金属ナノ構造におけるフェムト秒レーザー励起局在プラズモンの時空間特性を測定した。この

測定系には、PEEM ではなく SNOM いるので測定試料を限定しないなどの利点が挙げられる。この測定法の確立によって、局在プラズモンの時空間特性を測定することができ、更には局在プラズモンの時空間制御へとつながると考えられる。

2 実験セットアップ

時間域電界相互相関法と SNOM を組み合わせた実験セットアップを Fig. 1 に示す。光源は Ti:Sapphire レーザ(パルス幅~8 fs, 繰返し周波数 150 MHz, スペクトル帯域 650-1100 nm, VENTEON)である。今回は用いたファイバのカットオフ波長が 850 nm であるので、4f 系においてスペクトル帯域を 750-920 nm にして光源として使用した。SNOM は自作のものを用いている。プローブは開口径 100 nm、遮光金コートされたファイバプローブを用いており、コレクションモードにより近接場光を取得した。4f 系でスペクトルを狭帯化した後、ビームスピリッターで2つのパルスに分ける。一方のパルスはシグナル光として金属ナノ構造(金コート回折格子(N=830 lines/mm))に斜め上から照射し、局在プラズモンをファイバプローブによって検出する。

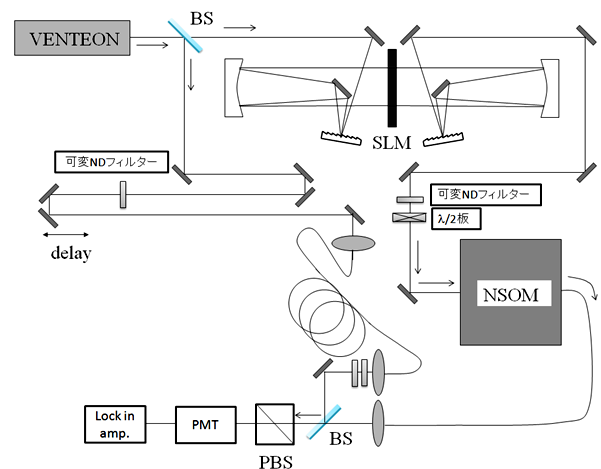


Fig. 1 Experimental setup

もう一方のパルスは、参照光として遅延時間をつけた後、ファイバプローブと同質のファイバを伝搬させる。その後、ビームスプリッターによって2つのパルスをコリニアにして、PMTで検出した後に、ロックイン検出している。得られた相互相関波形をフーリエ変換することで局在プラズモンの相対スペクトル強度、相対スペクトル位相を求めた。

3 実験結果

金コート回折格子表面のプラズモン強度の大きい位置において、電界相互相関計測した結果を Fig. 2 に示す。Fig. 2(a)は DC 検出、(b)はロックイン検出による相互相関波形を示している。

測定条件は、積算時間 100 ms、ピコモーター待ち時間 100 ms、測定時間 12 分である。これが、積算時間、ピコモーター待ち時間を最小にして、最も測定時間が短くなるようにして測定した結果である。Fig. 2 の結果より、DC 検出、ロックイン検出においても相互相関波形を測定できていることが分かる。しかし、時間に対して強度の安定性がないことが分かる。また、この測定においては、フリッジはある程度きれいに測定できている。

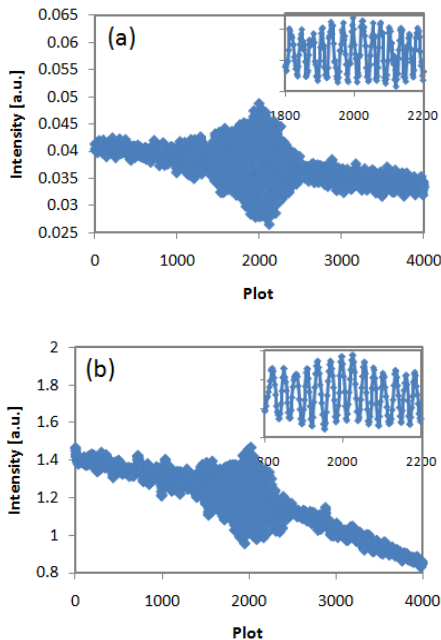


Fig. 2 Cross-correlation waveform

(a) DC detection (b) 2ω lock-in detection

Fig. 2(b)に示される 2ω のロックイン検出の相互相関波形をフーリエ変換することで求めた相対スペクトル強度と相対スペクトル位相を Fig. 3 に示す。Fig. 3 に示されている相対スペクトル強度と相対スペクトル位相の結果を見ると位相が正しく取得できていないことがわかる。したがって、共振器の安定性を長時間確保するのが難しく、プラズモン応答関数を測定することは難しいと考えられる。

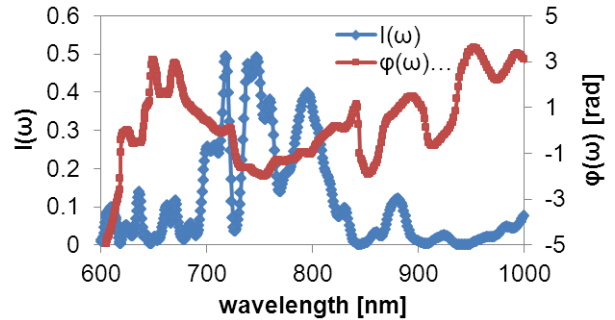


Fig. 3 Spectral intensity and phase calculated by Fig. 2(b)

4 まとめ

今回、時間域電界相互相関法と SNOM を組み合わせた新たな実験系によって、ファイバプローブ先端に結合した局在プラズモンのフェムト秒における時間波形を計測することができた。しかし、この実験系では測定時間が長いことで、共振器の安定性に問題が生じ、プラズモンの時空間制御を行う上で必要な応答関数を測定することが難しいことが分かった。したがって、周波数干渉法(SI)などの方法によって、この問題を解決していく必要がある。

References

- [1] S.Link, and M. A. El-Sayed, Phys. Chem. B 103, 8410 (1999)
- [2] P. K. Jain, W. Huang, and M.A.El-Sayed, Nano Lett. 7, 2080 (2007)
- [3] M.Aeschlimann, M.Bauer, D.Bayer, T.Brixner, F. Javier, G.Abajo, W.Pfeiffer, M.Rohmer, C.Spindler and F.Steeb, Nature 446, 301 (2007)
- [4] A.Kubo, K.Onda, H.Petek, Z.Sun, Y.S.Jung, and H.K.Kim, Nano Lett. 5, 1123 (2005)