

金属ナノ構造体における二光子励起過程の顕微分光による研究

Excitation Mechanism of Two-Photon Excitation Processes in Metal Nanoparticles

Studied by Near- and Far-Field Optical Microscope

早大院先進 ○馬 昭明, 今枝 佳祐, 井村 考平

Waseda Univ., °Shomin Ma, Keisuke Imaeda, Kohei Imura

E-mail: imura@waseda.jp

金属ナノ構造体において光励起されるプラズモン共鳴は、構造体近傍に増強光電場を生成し、高次高調波発生や二光子吸収などの非線形光学過程を効率的に誘起する。例えば、金ナノ粒子では、近赤外光パルスの二光子吸収により可視発光 (TPI-PL) が誘起される。二光子誘起発光は、生体イメージングなどへの応用が期待されている。二光子発光の効率を高めるためには、二光子吸収過程の理解が本質的に重要である。しかしながら、詳細な機構は未解明である。本研究では、近接場およびファーフールド顕微鏡を用いて、金属ナノ構造体における二光子励起過程の究明を目的とした。

試料は、化学合成した金ナノロッドをガラス基板上に分散させ作製した。試料のプラズモン特性を暗視野散乱測定により評価するとともに、二光子発光特性は、近接場光学顕微鏡および共焦点光学顕微鏡を用いて、単一粒子レベルで評価した。発光の励起には、モードロックチタンサファイアレーザーおよびフォトニック結晶ファイバーから発生させたパルス光を用いた。

図1にファーフールド励起単一金ナノロッドの二光子発光の入射偏光依存性を示す。図中の曲線は、ロッド長軸と入射偏光のなす角を θ としたとき、 $\cos^4\theta$ の曲線でフィットした結果である。曲線は、実験結果をよく再現する。一方、球状の粒子と近接したロッドでは、図2のように、観測結果を $\cos^2\theta$ の関数でよくフィットできる。興味深いことに、同一の構造体において、第二高調波を測定したところ、 $\cos^4\theta$ の入射偏光依存性を示した。このことは、二光子発光と第二高調波発生とは、励起機構が異なることを示唆する。以上の結果から、孤立ロッドと粒子が近接したロッドでは、入射偏光特性が異なることから、二光子の励起機構が異なると考えられる。近接したナノ構造体では、そのギャップ部位において局在光が発生するため、これが励起機構に影響を及ぼしている可能性がある。この効果を検証するため、近接場光学顕微鏡を用いて孤立したロッドの偏光依存性を測定した。その結果、近接場励起では、入射偏光依存性が $\cos^2\theta$ にしたがうことが明らかとなった。以上の観測結果は、近接場励起とファーフールド励起では、二光子の励起過程が変化することを示す。

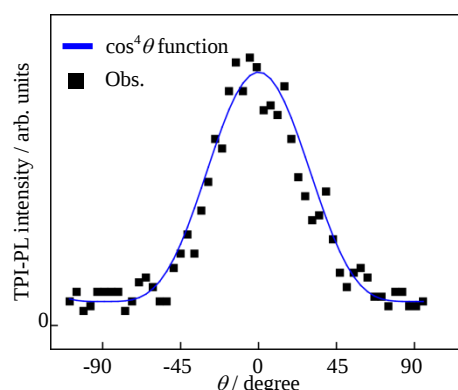


Fig. 1. Incident polarization dependence of TPI-PL on single gold nanorod (dia. 25 nm, length 300 nm).

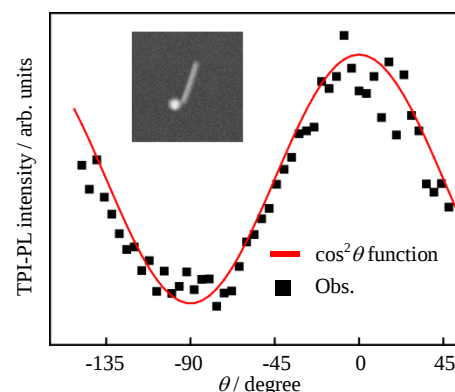


Fig. 2. Incident polarization dependence of TPI-PL on closely contacted nanorod-particle dimer. Inset: SEM image of the sample. Image size: 1 μm .