

金ナノディスク系のフェムト秒時間分解吸収分光

Femtosecond time-resolved absorption spectroscopy of Au nanodisks systems

静大工¹, 東北大理² ○ 浜田 勝平¹, 余語 宏文¹, 松井 大海², 小野 篤史¹, 居波 渉¹,
川田 善正¹, 吉澤 雅幸², 杉田 篤史¹

Shizuoka Univ.¹, Tohoku Univ.², °S. Hamada¹, H. Yogo¹, H. Matsui², A. Ono¹, W. Inami¹,

Y. Kawata¹, M. Yoshizawa², A. Sugita¹

E-mail: sugita.atsushi@shizuoka.ac.jp

近年、表面プラズモン増強光電場によって粒子表面で電子加速されたホットエレクトロンの振る舞い及びその利用について活発な議論が行われている。表面プラズモン分極の振る舞いは励起光の偏光に大きく依存するが、これまでその動力学的偏光依存性についてあまり多く議論されていない。本研究ではフェムト秒ポンププローブ分光法により金ナノディスク系の過渡吸収スペクトルの偏光依存性について検討した。

図 1 に検討した金ナノディスクの SEM 画像を示す。粒径は $\phi=350\text{nm}$ 、厚さ $T=30\text{nm}$ で石英ガラス基板の上に製作した。図 2(a)にこの粒子の吸収スペクトルを示す。1080nm に局在表面プラズモンによるピークを示し、概ね粒子形状と同様に等方的で偏光に対する依存性は見られなかった。

図 2(b)にポンプ光に対しプローブ光が平行及び垂直配置での過渡吸収スペクトルを示す。ポンプ光の波長はプラズモン共鳴ピークとほぼ一致する 1100nm とし、プローブ光は石英ガラス基板中での自己位相変調効果により生じたフェムト秒白色光を用いた。ここではポンプ光とプローブ光の遅延時間 50fs の過渡吸収スペクトルを示す。1130 nm に正のピーク、1050 nm に負のピークが見られた。図 3 にプローブ波長 1130nm における過渡吸収の遅延時間に対する依存性を示す。過渡吸収はプローブ光の偏光に依存せず、時定数 220fs で減衰した。

観測された過渡吸収変化はプラズモン増強光電場による電子加速によりバンド内遷移したホットエレクトロンの緩和過程によるものと解釈した。時間変化は、バンド内遷移された非平衡な分布をした電子のボルツマン分布への再分配過程を反映したもので、金ナノ粒子の誘電率変化に付随してプラズモン共鳴周波数が変化したものである。過渡吸収量はプローブ光の偏光に対する依存性を示した。光励起が粒子全体に誘電率変化をもたらすとする従来のモデルでは、観測された偏光依存性は説明できない。励起光の偏光に応じて励起電子の空間分布に励起方向とそれに垂直な方向で異方性が表れたとすると、この結果が説明できる。

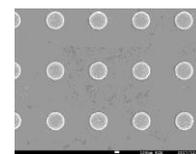


Fig.1 SEM image of Au nanodisks.

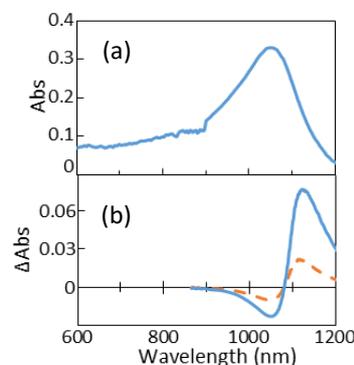


Fig.2 (a) Linear absorption and (b) time-resolved absorption spectrum at 50fs-delay time of Au nanodisks.

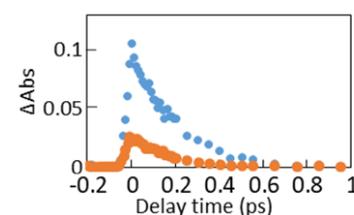


Fig.3 Time-resolved absorption of Au nanodisks at 1130 nm. The blue and red circles correspond to the date for pump//probe and pump ⊥ probe, respectively.