

金ナノディスク系のフェムト秒動力学における偏光依存性

Polarization dependent femtosecond dynamics of Au nanodisks

静岡大¹, 東北大理² ◦杉田篤史¹, 浜田勝平¹, 望月寛太¹, 松井広海², 小野篤史¹, 居波渉¹,
吉澤雅幸², 川田善正¹

Shizuoka Univ.¹, Tohoku Univ.², ◦Atsushi Sugita¹, Shohei Hamada¹, Hiroumi Matsui², Atsushi Ono¹,
Wataru Inami¹, Masayuki Yoshizawa², Yoshimasa Kawata¹

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

フェムト秒白色時間分解ポンププローブ分光による表面プラズモン共鳴励起した金ナノ粒子系の動力学現象を報告する。これまで金属ナノ粒子系のフェムト秒分光に関する多数の研究が報告されているが、本研究では比較的粒子サイズの大きな金ナノ粒子系に注目した。

図 1(a)に検討した円柱ディスク形状の金ナノ粒子(粒径 $R350\text{nm}$ 、高さ $H30\text{nm}$ 、 $\Lambda850\text{nm}$ 四方の正方格子に二次元配列)の減光スペクトルを示す。同じ図に励起光(中心波長 1100nm 、パルス幅 40fs)のスペクトルも示す。図 1(b)に遅延時間 50fs における時間分解スペクトルを示す。偏光がポンプ//プローブおよびポンプ \perp プローブ配置の結果を示す。いずれの偏光配置でも減光スペクトルピークよりも長波長側では正、短波長側では負のスペクトル変化を示した。時間分解スペクトルは、線形スペクトルの誘電率に対する微分スペクトルによりよく再現された。ポンプ \perp プローブ配置で信号量は、ポンプ//プローブ配置の 30%であった。

図 2 にプローブ波長 1140nm における減光度変化の時間依存性を示す。信号変化は時定数 $180\text{fs}\pm 15\text{fs}$ での減衰する成分に加え、観測時間領域内では変化しない成分により再現された。前者は非ボルツマン分布の非熱化電子、後者はボルツマン分布のホットエレクトロンによるものである。前者に対する後者の信号量は 1.1%であった。また、ポンプ \perp プローブ配置の時間波形はポンプ//プローブ配置とほぼ等価であった。

従来の表面プラズモン共鳴された金属ナノ粒子の過渡応答は、粒子全体で均一に広がった非熱化電子や温度の分布を仮定して説明されてきた。この研究で観測した偏光依存性は、この均一な分布を仮定したのでは説明できない。一連の過渡応答は、強い局所場の発生した一部の空間領域で生じたものと解釈した。

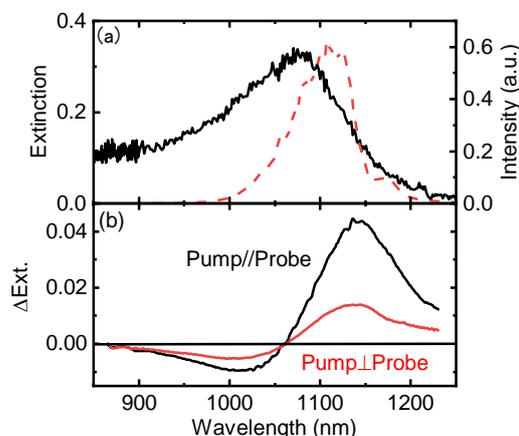


Fig. 1 (a) Extinction spectrum of Au nanodisks (solid) and spectrum of excitation light (dashed curve). (b) Time resolved extinction spectrum of Au nanodisks at 50-fs delay time.

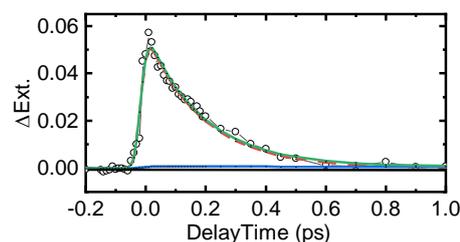


Fig. 2 Transient extinction against delay time at 1140 nm-probe wavelength in pump // probe configuration.