

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24年 5月 24日現在

機関番号：82723

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21310065

研究課題名（和文）金属ナノ構造における局在プラズモン・格子間結合の動力学的研究

研究課題名（英文） Study on Localized Plasmon-Lattice Dynamics in Metal Nanostructures

研究代表者 北島 正弘 (KITAJIMA MASAHIRO)

防衛大学校・応用科学群・教授

研究者番号：00343830

研究成果の概要（和文）：コヒーレントな振動の振幅が金ナノ構造による局在電場増強により励起されることが超短時間領域で初めて直接確認された。表面増強ラマンのダイナミクスを解明するための重要な一歩となる。さらに本研究で得られた成果は、今後の化学反応ダイナミクスの制御の基盤となる知見を与える。

研究成果の概要（英文）：We have observed directly in the ultrashort time-domain, for the first time, that the amplitudes of coherent oscillations are enhanced by the localized electromagnetic fields due to the gold nanostructures. This becomes the first step for understanding the dynamics of Surface Enhanced Raman Scattering (SERS), and would provide an important clue for controlling chemical reaction dynamics in solids and/or the surfaces.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	8,600,000	900,000	9,500,000
2010年度	3,700,000	300,000	4,000,000
2011年度	1,900,000	210,000	2,110,000
年度			
年度			
総計	14,200,000	1,410,000	15,610,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・ナノ構造物性

キーワード：(1)ナノ粒子配列構造 (2)局在光物性 (3)プラズモン・格子結合 (4)超高速ダイナミクス (5)ホットスポット

## 1. 研究開始当初の背景

微粒子に局在する集団電子運動である表面プラズモンは、ナノスケールの空間領域に光電場を効率的に閉じこめ、微粒子近傍に局所的に増強した光電場を作り出す。この局所的

な光電場には、表面増強ラマン散乱(SERS)をはじめ、光導波路やその他のさまざまなナノ光デバイスへの応用が考えられる。効率的に機能するナノアレイの設計には局在表面プラズモンの分光学的特性評価が必須である。

配列構造における粒子間の結合、光電場増大や表面プラズモンの伝播のプロセスではダイナミクス（動学的過程）の解明を避けて通れないが、それについては研究例がほとんどない。特に、SERSに関しては、周囲のフォノンあるいは吸着分子の振動モードと結合し光の散乱へと至る過程は、表面プラズモンのダイナミクスに関わっている。

研究代表者らはシリコンのコヒーレント光学フォノンの測定により、電子系と格子系との強い相互作用（結合）による過渡的なファノ干渉を観測した。さらに最近では、ナノ系物質に拡張し、CNTにおいて異方的に励起される電子とコヒーレントフォノン間の結合（アンテナ効果）も観測している。これらは電子系と格子系との相互作用を時間領域ではじめて観察したものであり、そのダイナミクスを解き明かす第一歩となる。また、表面プラズモンの空間分布やそれらのカップリングに関しては、走査近接場光学顕微鏡を用い、その異方的な分布や局在性などを初めて観察している。これらの成果をダイナミクス解明の基礎として研究を開始した。

## 2. 研究の目的

金属ナノ粒子と格子（分子）の共存する系におけるエネルギー伝搬の輸送およびプラズモンと格子（分子）振動の励起のダイナミクスを明らかにする。そのため、CNTなど炭素系物質および色素分子と金属ナノ粒子配列体を対象に、超短波パルス光に対するフォノン（分子）と局在表面プラズモンのコヒーレント応答を観測し、それらの励起エネルギー、励起光の偏光依存性、金属微粒子の配列・構造との関係を詳細に調べる。さらに観測データを説明する理論的モデルの構築を目指す。

## 3. 研究の方法

1) 局在光物性（ホットスポット）の基礎的特徴を知るために、はじめにラマン増強度および局在光電場の評価を行うために近接場顕微分光を行った。また、非線形光学特性への影響を調べるためにSHG（第2高調波発生）の測定を行った。

2) コヒーレント光学フォノンの測定はサブ10フェムト秒ポンプ・プローブ時間分解反射率により行った。積算の効率化のためにファストスキャンを使用する。主たる対象の振動モードは面内でのC=C伸縮振動モードとした。

3) コヒーレント光学フォノンが局在プラズモンによる光電場の増強に伴う、振幅、緩和時間および位相の変動について詳細なデータ解析を行った。

## 4. 研究成果

### (1) 局在光物性の評価

①コロイド乾燥手法により一次元金粒子が一次元に並んだ鎖状構造(1D-A構造)を作成し、これらについての近接場顕微分光データを詳細に解析した結果、局在電場が粒子数4以上の大きさで、エッジ部分に偏って分布することがわかった。FDTD(電磁場時間領域差分法)による電場分布の計算はこのような不均質分布をよく再現した。この結果は、プラズモン間のカップリングにより伝搬された局在プラズモン励起はエッジ部分で伝搬は抑制されることを表す。これは、粒子間に存在するホットスポットはどこでも均質であるという“常識”に合わない予想外の特異な挙動である。

### ②SHG 及び SERS 特性

上記試料(1D-A構造)について、SHGの励起光の偏光を試料の1Dの方向に平行にとった時は垂直にとった時と比べて強くなった。また、この試料に色素分子R6Gを吸着させた試料についてラマン散乱を測定すると、SERS特性に

強い偏光依存性が観察された。これらの結果は1D 方向にカップリングされた局在プラズモンが1D 方向に強い電場増強をもたらし、それが分子のラマン励起を促進することを明瞭に表している。

## (2) 試料表面および金ナノ粒子構造の観察

グラファイト表面及び単層カーボンナノチューブ(SWCNT) 膜については、コロイド乾燥手法とは別にスパッタ蒸着により金ナノ粒子構造を作製した。図1はグラファイト表面のSTM像である。(a)にはAuを蒸着する前を、(b)にはAuを0.1nm蒸着した後をそれぞれ示している。図1(a)よりサンプル表面には

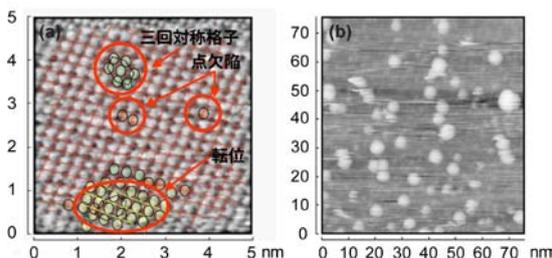


図1 (a)グラファイト表面と(b)その上に生成された金ナノ構造のSTM像

点欠陥やステップの端、転移など多数の欠陥が点在していることが分かる。Au蒸着を行ったグラファイトの表面には、多数のAuの半球状のナノ構造が生成されていることが分かる(図1(b))。グラファイトでは欠陥部に選択的にAuが集合しナノ構造が形成されることが既に分かっており、観察されたAuナノ構造はこれに対応する。半球の直径は数nm~20nm程度であった。

図2は金蒸着SWCNT試料の高分解電子顕微鏡(TEM)観察の結果である。数nmサイズの金微粒子がCNTに付着されることが分かる。グラファイトと同様に、電気的な蒸着方法だと欠陥部分に金が集合するためこのようなナノ構造が生成される。

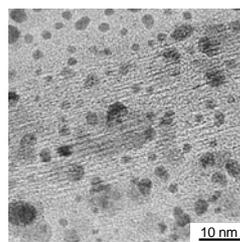


図2 金蒸着SWCNT膜のTEM像

## (3) 超高速時間分解測定

### ① 金ナノ構造-グラファイト

コヒーレント光学フォノンの測定はフェムト秒ポンプ・プローブ時間分解反射率測定を金-グラファイト系に対して系統的に行った。時間分解反射率には、最表面層に励起されるコヒーレントC=C伸縮振動の内Dモード振動が金蒸着により生成されることが初めて捉えられた。以下にその詳細を述べる。

図3はグラファイトにおいて観測された過渡反射率変化である。縦軸に反射率変化、横軸に遅延時間をとっている。 $t=0$ に観測される鋭いスパイク状の信号が、ポンプ光がサンプルに照射された瞬間に相当し、ポンプ光でサンプル内部に分極ができたことにより見られる電子応答である。また挿入図は縦軸を100倍程度拡大したものである。これより周期が1ps程度のゆっくりとした振動が見られる。振動成分をより詳細に議論するため、さらにこの振動1周期分程度を拡大したものを図4に示す。周期の短い振動が存在する。ゆっくりとした振動の周波数は1.27THz(周期:787fs)、速い振動の周期は47.6THz(周期:21fs)である。これらの振動は面間振動に対応する $E_{2g1}$ モード(周期770fs)と面内のC=C伸縮振動に対応するGモード(周期21fs)のコヒーレントな格子振動(コヒーレントフォノン)である。

ここからは高周波の振動のみに着目し議論を行う。図5は電子応答や低周波成分は除去し、高周波成分のみを抽出したものを

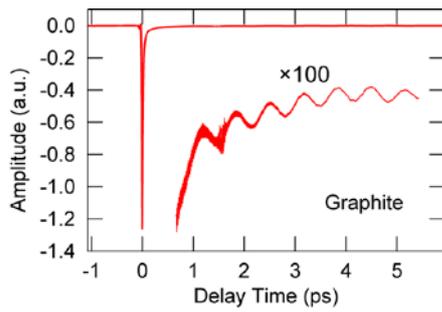


図3 グラファイトにおける過渡反射率変化。挿入図は縦軸を 100 倍拡大したもの。

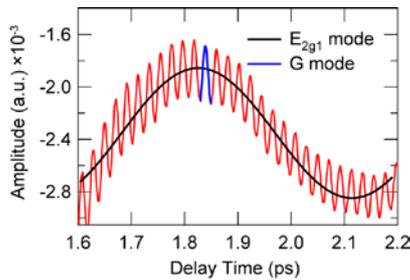


図4 グラファイトにおけるコヒーレントフォノンの高周波モード

示す。赤の実線は Au を蒸着する前のグラファイトにおける高周波な振動成分を、オレンジの実線は Au を平均膜厚 4nm 蒸着したグラファイトにおける高周波な振動成分をそれぞれ表している。Au 蒸着無しのグラファイトでは G モードフォノンのみが観測されている。一方、Au 蒸着グラファイトでは、この G モードフォノンの振幅が 0.13ps の周期で変調されている。

この G モードフォノンの振幅変調の原因を明らかにするため、高周波振動成分をフーリエ変換したものが図 6 である。Au 蒸着無しのグラファイトでは 48THz 付近の G モードフォノンのみが観測されている。一方、Au 蒸着グラファイトでは G モードに加え、40THz 付近に Au 無蒸着では見られなかった新たなピークが観測される。この振動は欠陥性モード (Disorder Induced mode : D-mode) とよばれる振動で

ある。この結果は G モードフォノンの振幅変調が D モードフォノンによるものであることを意味する。すなわち、Au 蒸着により D モードフォノンが増強されることが分かる。

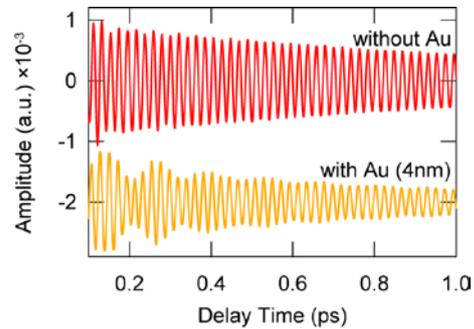


図5 Au 蒸着前追及び 4nm 蒸着後のグラファイトにおけるコヒーレントフォノン

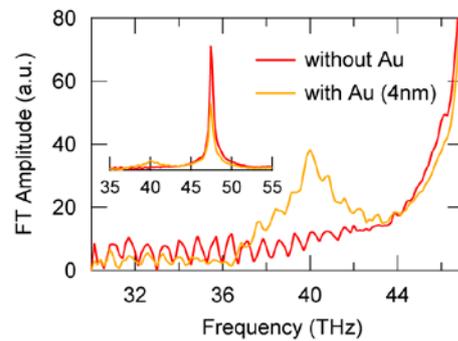


図6 時間分解反射率変化 (図 5) のフーリエ変換 (FT) スペクトル

では Au 蒸着によるコヒーレント D モードフォノンの観測(D モードフォノンの振幅の増強)は何を意味するのか? その起源について考察を以下に行う。

グラファイトに用いた試料HOPG(高配向性熱分解黒鉛)の剥離表面にはステップ、点欠陥およびディスロケーションなどの欠陥が多数存在する(図1a)。それにも関わらず、Au蒸着無しグラファイトでは、コヒーレントDモードフォノンは観測されていない。一方、コヒーレントDモードフォノンが観測されたAu蒸着を行ったグラファイトの表面

には、多数のAuの半球状ナノ構造が生成されている (図1b)。これらの結果から判断すると、コヒーレントDモードフォノン振幅は金ナノ構造による電場増強によって励起されることが示唆される。

このAuナノ構造により電場増強が起こったのかを明らかにするため、有限差分時間領域法(Finite Difference Time Domain method : FDTD法)によりグラファイト表面にAuナノ構造がある場合の電場計算を行った。計算結果とそのイメージを図7に示す。計算はグラファイト表面上に半球状のAuナノ構造が2つ並んでいる場合で行った図7(a)。図1 (b)に示したSTM像に対応して、Auナノ半球構造の直径は10nmとしている。また入射パルスは、パルス幅 : 10fs、中心波長 : 800nmのガウス関数の形状を持つ場合で計算を行った。Auナノ構造近傍で電場が強くなっていることが分かる。特に2つの半球状のAuナノ構造の間において、電場が強くなっている。さらに注目すべきは、半球構造近くの金-グラファイト界面はグラファイトのバルク内部に比べて電場が強くなっていることである。電場の増強は界面から~1nmの範囲で著しい。コヒーレントC=C伸縮フォノンモードの変位は、入射電場の二乗に比例すると考えられる、界面から1nmの範囲では特に変位が大きくなり、コヒーレントフォノンの振幅が大きくなることが計算から分かる (図7(b))。

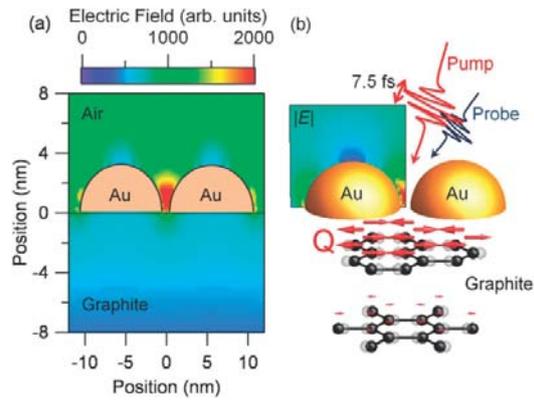


図7(a) FDTD法による金ナノ構造近傍における電場増強の計算結果。(b) 金ナノ構造によるグラファイト表面におけるコヒーレントフォノンの振幅増強のイメージ図

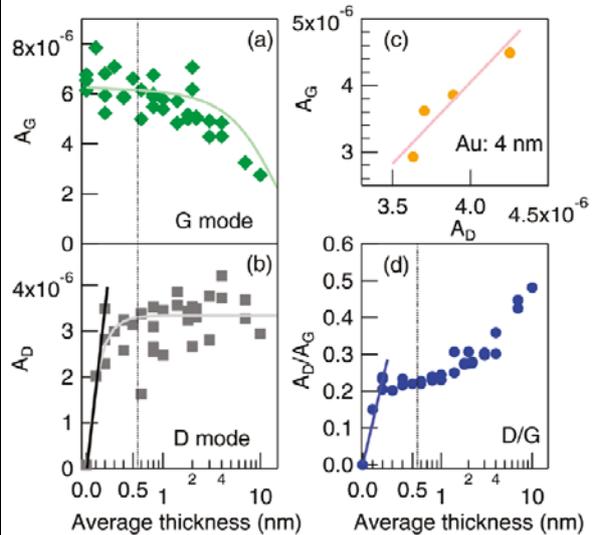


図8 (a) Gモード振幅  $A_{DG}$ 、(b) Gモード振幅  $A_D$ 、(c) それらの相関、および (d)  $A_D/A_G$

金ナノ構造と振幅の増強との関係をより詳細に議論するため、振幅とAuの(平均)膜厚の関係を系統的解析した結果を図8に示す。 $A_G$ はコヒーレントGモードフォノンの振幅を、 $A_D$ はコヒーレントDモードフォノンの振幅をそれぞれ示す。はじめに、Dモードフォノン振幅の膜厚依存性について考える。Au無しのグラファイトではDモードは観測されない。ここにAuを蒸着するとモノマーやダイマー、トリマーといった多数のAuナノ構造が欠陥近傍に生成

される。生成された Au ナノ構造は数 nm~20nm 程度の直径であるためプラズモン共鳴が起こり、これによって Au ナノ構造近傍で電場が増強され、欠陥由来の D モードフォノンの振幅も増強され観測される (~0.2nm)。さらに Au を蒸着すると、Au ナノ構造の直径が大きくなっていくだけでなく、より重要なダイマーやトリマーの生成数が増える。さらに蒸着を行っていくと隣接する Au のナノ構造同士が互にくっ付き合い一面を覆うようになってくる。このような場合には効果的な電場の増強は起こらないと考えられ、よって観測される D モードフォノンの振幅は減少していく (>10nm)(図 8(a))。D モードフォノンは欠陥による励起電子の散乱に起因されて発生するが、このような欠陥は剥離グラファイトの表面にのみ存在する。また Au ナノ構造による局在電場の増強は表面領域に限定される(図 7)。したがって、Au ナノ構造により誘起されたコヒーレント D モードフォノンは表面におけるフォノンと考えられる。

一方、G モードフォノン振幅の解釈は D モードフォノンのそれとは異なる。入射光のグラファイトへの侵入長がおおよそ 40nm 程度あるからバルクからの成分の寄与も大きい。Au ナノ構造による表面での G モードフォノンの増大を議論するため、以下の考察を行った。今、各膜厚において、2 つのモード (G, D) の振幅のばらつきが大きいことに注目してみよう。STM 像からも分かるように、Au は均一に表面に付くわけではなく、Au ナノ構造がある場所とない場所が点在している。また生成されるナノ構造も異なる。このような要因により、同一の膜厚でも振幅がばらつく原因となっていると考えられる。D モードと G モードの振幅に相関がないかを調べた(図 8(c))。

これより D モードと G モードの振幅は場所により異なるが、両者の間には相関がある。さらに、図 8(d)はこれらの比  $A_D/A_G$  を Au 膜厚でプロットしたものである。D/G 比をとることで各々の振幅の場合よりもバラつきが減少していることが良く分かる。これらの結果は、Dモード振幅が大きいと Gモード振幅も大きい、すなわち、電場増強の効果が大きいナノ構造がある場合は両モードとも振幅は増加することを示している。したがって Gモードも表面の成分は Au ナノ構造により振幅が増大することが分かる。

この結果は表面増強ラマン散乱の超高速ダイナミクスを初めて捉えるものである。すなわち、格子原子振動の変位の増大を観察することが出来た。

## ②金ナノ構造-CNT

表面増強ラマン散乱ダイナミクスの測定を CNT系に拡張した。

図 9 にコヒーレントフォノンの実験結果を示す。周期約 20fs の振動は面内の C=C 伸縮振動に対応するコヒーレントフォノンである。まず、金微粒子を蒸着することで、コヒーレントフォノンの振動成分の振幅が大きくなり、さらに、うなりようの変調が見て取れる(図 9 上)。これは Gモード(振動数 47THz)に加えて Dモードが共存していることを意味しているが、解析して得られたフーリエスペクトルでも、38THz 付近の Dモードの増強を明瞭に確認することができる(図 9 下)。

特に Dモードフォノンの振幅増強が著しいのは、金微粒子が単層カーボンナノチューブの欠陥付近に集中したことによって欠陥起因の振動モードである Dモードを特に

増強したためと考えられる。これは、電気的な蒸着方法だとCNTの欠陥部分に金が集中することとも一致する。

金蒸着単層CNTには金微粒子数nmサイズの金微粒子が付着されることがTEM観察より明らかとなっている(図2)。グラファイト表面の場合と同様に、このようなnmサイズの付着金微粒子がコヒーレントフォノンの振幅を増強することが確認された。

これにより、付着された金微粒子と単層カーボンナノチューブにおいても、コヒーレントフォノンの振幅増強との相関を見いだすことができた。

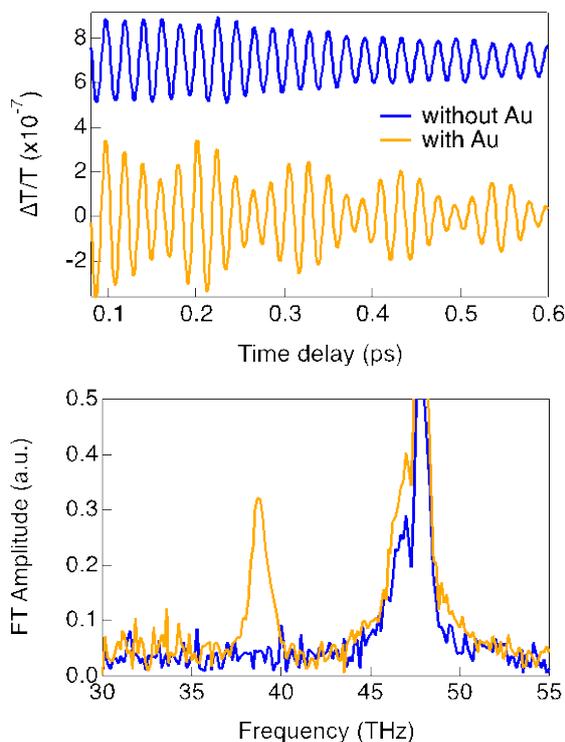


図9 Au 蒸着前後の SWCNT におけるコヒーレントフォノン:時間分解透過率(上)およびそのフーリエ変換 (FT) スペクトル(下)

### ③チオール分子鎖-金系

SERS現象のみならず、有機分子を利用した機能性素材の開発を目指して、金属の有機分子の界面付近の電子状態や光学応答に

大きな注目が集まっている。基本的な芳香族分子としてベンゼンチオール (BT) 分子を対象とし、その変形による光学過渡応答をフェムト秒スケールの超高速分光を用いて観察した。ここでは、その液相の場合と、金属表面に分子吸着した場合の変化について研究した。

サブ10fs光パルス光の照射によって引き起こされる有機分子の応答をポンプ・プローブ計測によって実時間で検出した。BTの液相の透過率変化の結果は図10(inset は電子応答、低周波成分除去後)。ここで見られる振動のFT スペクトルはラマンスペクトルとほぼ同様のピークを持ち、ベンゼン環の面内振動モードに対応していた。

次に、シリコン基板上の金の薄膜(50Å)をベンゼンチオールに浸漬して作成した単分子吸着膜の表面で、同様に反射率の測定を行った(図11)。この場合には、FT スペクトルのピークの強度比、周波数ともに吸着前と大きく異なっていた。これらは表面吸着の影響による変化であると考えられる。それぞれのモード強度は金の膜厚によって変化した。このことは金ナノ構造による局在電場の生成を示唆している。また、実時間振動の検出より、各周波数振動強度を時間変化を伴って観測することができ、振動モードの干渉効果を見ることができた(図11、20THz)。さらに、干渉効果以外の強度

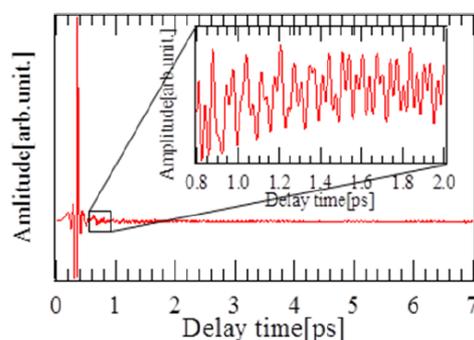


図10 ベンゼンチオール (BT) の透過率の過渡応答変化

変化、位相および量子力学計算から、金サイトの吸着に由来するモード間のカップリングに対応する現象が見られた。

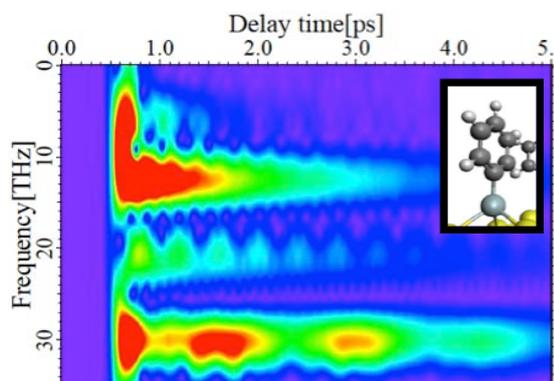


図 11 BT の時間分解フーリエ変換による周波数-時間マップ。

#### (4) 結言

グラフェン物質系(グラファイト、カーボンナノチューブ、グラフェン層)を主たる対象に超短時間領域におけるナノ構造-格子(分子)結合ダイナミクスの研究を行った。金ナノ構造の存在に由来して、コヒーレントな振動振幅が局在電場増強により励起されること、また、振動モード間にコヒーレントなカップリング挙動が発生すること等、特異な現象を観察することが出来た。本研究で得られた成果は、表面増強ラマンのダイナミクスを解明するための重要な一歩となるだけでなく、今後の化学反応ダイナミクスの制御に繋がる知見を与える。

謝辞：本研究では、研究分担者の他に、特に以下の方々から多大なる研究協力を頂きました。この場を借りて感謝の意を表します：横浜国大工学研究院・知的構造の創生部門 武田淳教授、首藤健一准教授、古賀翔(同部門院生)、田原佳祐(同部門院生)、土井幸司郎(同部門院生)、防衛大学校応用科学群 鈴木隆則教授、橋谷田俊一(同学群学生)、弘前大学教育学部 島田透講師、分子研 岡本

裕巳教授、NTT 物性基礎科学研究所 加藤景子博士、大阪大学超高压電顕センター 保田英洋教授。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 16 件)

- ① Keiko Kato, Atsushi Ishizawa, Katsuya Oguri, Kouta Tateno, Takehiko Tawara, Hideki Gotoh, Masahiro Kitajima and Hidetoshi Nakano, Anisotropy in ultrafast carrier and phonon dynamics in *p*-type heavily doped Si, *Jap. J. Appl. Phys.*, 査読有, vol.4, 2009, pp.100205-1002007, DOI:10.1143/JJAP.48.100205
- ② O.V. Misochko, M. Kitajima, K. Ishioka, Comment on “Small Atomic Displacements Recorded in Bismuth by the Optical Reflectivity of Femtosecond Laser-Pulse Excitations”, *Phys.Rev.Lett.*, 査読有, vol.102, 2009, pp.0297101-1-1, DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.029701
- ③ Hiroshi Takahashi, Keiko Kato, Hidetoshi Nakano, Masahiro Kitajima, Kenji Ohmori, Kazutaka Nakamura, Optical control and mode selective-excitation of coherent phonons in YBa2Cu3O, *Sol. St. Commun.*, 査読有, vol.149, 2009, pp.1955-1957  
[www.elsevier.com/locate/ssc](http://www.elsevier.com/locate/ssc)
- ④ K. Ishioka, M. Kitajima, O.V. Misochko, Coherent A<sub>1g</sub> and E<sub>g</sub> Phonons of Antimony, in *Ultrafast Phenomena XVI*, edited by P. Corkum, et al., Springer, Berlin, 査読有, 2009, pp220-222, [www.springer.com](http://www.springer.com)
- ⑤ K. Kato, K. Ishioka, M. Kitajima, J. Tang, H. Petek, Ultrafast dynamics of coherent

- phonons in the aligned single-walled carbon nanotubes, in *Ultrafast Phenomena XVI*, edited by P. Corkum, et al., Springer, Berlin, 査読有, 2009, pp259-261, [www.springer.com](http://www.springer.com)
- ⑥ K. G. Nakamura, H. Takahashi, K. Ishioka, M. Kitajima, J. C. Delagnes, H. Katsuki, K. Hosaka, H. Chiba, K. Ohmori, K. Watanabe, Y. Matsumoto, Mode selective Excitation of Coherent Phonons in Bismuth by Femtosecond Pulse Pair, in *Ultrafast Phenomena XVI*, edited by P. Corkum, et al., Springer, Berlin, 査読有, 2009, pp223-225, [www.springer.com](http://www.springer.com)
- ⑦ O.V. Misochko, M.V. Lebedev, K. Ishioka, M. Kitajima, S.V. Chekalin, T. Dekorsy, “Large-amplitude coherent phonons in semimetals, in *Ultrafast Phenomena XVI*, edited by P. Corkum, et al., Springer, Berlin, 査読有, 2009, pp229-231, [www.springer.com](http://www.springer.com)
- ⑧ M.Hase and M.Kitajima, Interaction of coherent phonons with defects and elementary excitations, *J. Phys.: Condens. Matter*, 査読有, vol.22, 2010, 073201-073223, DOI: 10.1088/0953-8984/22/7/073201
- ⑨加藤景子、北島正弘, カーボンナノチューブのコヒーレントフォノン, *真空*, 査読有、53 巻、2010、pp. 317-326, <http://www.vacuum-jp.org>
- ⑩ I. Katayama, S. Koga, T. Shimada, K. Kato, S. Hishita, D. Fujita, J. Takeda, and M. Kitajima, Surface Plasmon Enhancement of Coherent phonons in an ion-implanted graphite, *Ultrafast Phenomena XVII*, ed. By M. Chergui, et al. Oxford Univ. Press, 査読有, 2011, pp.227-229, [www.oup.com](http://www.oup.com)
- ⑪ Keiko Kato, Katsuya Oguri, Atsushi Ishizawa, Kouta Tateno, Takehiko Tawara, Hideki Gotoh, Masahiro Kitajima, Hidetoshi Nakano, and T.Sogawa, Doping-type dependence of phonon dephasing dynamics in Si, *Appl. Phys. Lett.*, 査読有, vol.98, 2011, pp. 045101-1-3 DOI:10.1063/1.3574533
- ⑫H. Takahashi, Y. Kamihara, H. Koguchi, T. Atou, H. Hosono, I. Katayama, J. Takeda, M. Kitajima, K. G. Nakamura, Coherent optical phonons in the iron oxypnictide  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  ( $x=0.075$ ), *J.Phys. Soc. Jpn.* 査読有, vol.80,2011, pp.013707-1-4, DOI:10.1143/JPSJ.80.013707
- ⑬ I. Katayama, S. Koga, K. Shudo, J. Takeda, T. Shimada, S.Hishita, D.Fujita, J.Takeda, and M. Kitajima, Ultrafast Dynamics of Surface-Enhanced Raman Scattering Due to Au Nanostructures, *Nano Lett.*, 査読有, vol. 11, 2011, pp. 2648-2654, DOI: 10.1021/nl200667t
- ⑭Hiroyuki Sakaibara, Yuki Ikegaya, Ikufumi Katayama, and Jun Takeda, Single-shot time-frequency imaging spectroscopy using an echelon mirror, *Opt. Lett.*, 査読有, vol.37, 2011, 1118-1120, DOI: 10.1364/OL.37.001118
- ⑮ I. Katayama, H. Sakaibara, and J. Takeda, Real-Time Time-Frequency Imaging of Ultrashort Laser Pulses Using an Echelon Mirror, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 査読有, vol.50, 2011, pp. 102701-1-5,

DOI: 10.1143/JJAP.50.102701

- ⑫ Hiromi Okamoto, Kohei Imura, Toru Shimada, and Masahiro Kitajima, Spatial distribution of enhanced optical fields in monolayered assemblies of metal nanoparticles: Effects of interparticle coupling, J. Photochem. Photobiology A: Chemistry, 査読有, vol. 221, 2011, pp.154-159,  
DOI:10.1016/j.jphotochem.2011.01.017

[学会発表] (計 35 件)

- ① T. Shimada, K. Imura, M. K. Hossain, H. Okamoto, and M. Kitajima, Near-Field Study on Correlation of Localized Electric Field and Nanostructures in Monolayer Assembly of Gold Nanoparticles, 3rd International Conference on Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC3), June 16-18, 2009, Miel Park., Yokohama.
- ② Keiko Kato, Katsuya Oguri, Atsushi Ishizawa, Kouta Tateno, Takehiko Tawara, Hideki Gotoh, Masahiro Kitajima, and Hidetoshi Nakano, Ultrafast dynamics of coherent phonons in heavily doped *p*-type Si, 3rd International Conference on Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC3), June 16-18, 2009, Miel Park., Yokohama.
- ③ Keiko Kato, Atsushi Ishizawa, Katsuya Oguri, Kouta Tateno, Takehiko Tawara, Masahiro Kitajima, Hidetoshi Nakano, Dephasing dynamics of coherent phonons in heavily doped Si under non-resonant photoexcitation, CLEO/Europe-EQEC 2009, 14-19 June 2009, Muenchen, Germany
- ④ 古賀 翔、片山郁文、武田 淳、島田透、加藤景子、菱田俊一、藤田大介、北島正弘、グラファイトのコヒーレント

Dモードフォノン、第 57 回応用物理学関係連合講演会、3/17-3/20、2010、東海大学 (神奈川県)。

- ⑤ 古賀 翔、片山郁文、武田 淳、島田透、加藤景子、菱田俊一、藤田大介、北島正弘、カーボン系材料におけるコヒーレントフォノンのプラズモン増強、日本物理学会第 65 回年次大会、3/20-3/23、2010、岡山大学(岡山県)。
- ⑥ 工藤 雅史、島田 透、久保 敦、北島正弘、田中正俊、鈴木 隆則、一次元に配列した金微粒子からの第二高調波発生、第 57 回応用物理学関係連合講演会、3/17-3/20、2010、東海大学 (神奈川県)。
- ⑦ I. Katayama, S. Koga, T. Shimada, K. Kato, S. Hishita, D. Fujita, J. Takeda, M. Kitajima, Dynamics of Coherent Phonons in Disordered Graphite, International Conference of Ultrafast Phenomena 2010, 2010/7/20, Snowmass, USA.
- ⑧ S. Koga, I. Katayama, J. Takeda, T. Shimada, S. Hishita, D. Fujita, and M. Kitajima, Enhancement of coherent D-mode phonons in highly-oriented pyrolytic graphite, SSSJ-A3 Foresight Joint Symposium on Nano-materials and Nanostructures, 2010/7/6, 東京大学 (東京都)。
- ⑨ I. Katayama, S. Koga, J. Takeda, T. Shimada, S. Hishita, D. Fujita, and M. Kitajima, Surface Plasmon Enhancement of Coherent phonons in an ion-implanted graphite, International Conference on Nanophotonics 2010, 2010/6/2, つくば国際会議場 (茨城県)
- ⑩ 古賀 翔、片山郁文、武田 淳、島田透、加藤景子、藤田大介、北島正弘、炭素系材料におけるコヒーレントフォノンとその欠陥効果、第 20 回光物性研究会、2009 年 12 月 11 日-12 日、大阪市立大学 (大阪府)。
- ⑪ 古賀 翔、片山郁文、武田 淳、首藤健

- 一、島田 透、菱田俊一、藤田大介、北島正弘、グラファイトにおけるコヒーレントDモードフォノンの表面プラズモン増強、第71回応用物理学会学術講演会、2010年9月16日、長崎大学(長崎県)。
- ⑫ 片山郁文、古賀 翔、首藤健一、武田 淳、島田 透、菱田俊一、藤田大介、北島正弘、グラファイト表面におけるDモード・コヒーレントフォノンの振幅増強、日本物理学会2010年秋季大会、2010年9月26日、大阪府立大学(大阪府)。
- ⑬ 横田耕一郎、武田淳、韓貴、D. McCarthy、長尾忠昭、北島正弘、片山郁文、半金属Bi超薄膜におけるキャリアダイナミクスの時間領域THz分光、日本物理学会2010年秋季大会、2010年9月26日、大阪府立大学(大阪府)。
- ⑭ 古賀 翔、片山郁文、武田 淳、北島正弘、コヒーレントフォノン分光による炭素系材料の表面欠陥評価、横浜キヤノロジー創生フォーラム2010、2010年11月2日、横浜情報文化センター(神奈川県)。
- ⑮ 古賀 翔、片山郁文、武田 淳、首藤健一、島田 透、久保 敦、菱田俊一、藤田大介、北島正弘、Auナノ構造によるグラファイトのコヒーレントDモードフォノンの振幅増強、第21回光物性研究会、2010年12月10日-11日、大阪市立大学(大阪府)。
- ⑯ 横田耕一郎、武田淳、韓貴、D. McCarthy、長尾忠昭、北島正弘、片山郁文、時間領域THz分光を用いた半金属Bi超薄膜のキャリアダイナミクス、第21回光物性研究会、2010年12月10日-11日、大阪市立大学(大阪府)。
- ⑰ 土井幸司郎、古賀 翔、片山郁文、武田淳、北島正弘、金ナノ構造を用いた表面増強ラマン散乱の時間分解計測、第6回ナノテク交流シンポジウム、2011年3月4日、横浜市立大学(神奈川県)。
- ⑱ 田原佳祐、古賀 翔、片山郁文、武田淳、北島正弘、カーボンナノチューブにおけるDモードコヒーレントフォノンの振幅増強、第6回ナノテク交流シンポジウム、2011年3月4日、横浜市立大学(神奈川県)。
- ⑲ 田原佳祐、古賀翔、片山郁文、武田淳、唐捷、島田透、北島正弘、カーボンナノチューブにおけるコヒーレントフォノンの振幅増強、第58回応用物理学関係連合講演会、2011/3/25、神奈川工科大学(神奈川県)。
- ⑳ 古賀 翔、片山郁文、武田淳、阿部峻佑、吹留博一、末光眞希、島田 透、北島正弘、グラフェンにおけるコヒーレントフォノン、第58回応用物理学関係連合講演会、2011/3/26、神奈川工科大学(神奈川県)。
- ㉑ 田原佳祐、古賀 翔、片山郁文、武田淳、唐捷、柳 和宏、島田 透、北島正弘、局在表面プラズモンによるカーボンナノチューブのコヒーレントフォノン振幅増強、第72回応用物理学会学術講演会、2011年8月30日、山形大学(山形県)。
- ㉒ 古賀 翔、土井幸司郎、片山郁文、島田透、加藤景子、菱田俊一、藤田大介、北島正弘、グラファイトにおけるコヒーレントDモードフォノンの検出波長依存性、日本物理学会2011年秋季大会2011年9月22日、富山大学(富山県)。
- ㉓ 古賀 翔、土井幸司郎、片山郁文、吹留博一、末光眞希、武田淳、北島正弘、グラファイト・グラフェンにおけるコヒーレントDモードフォノン、第22回光物性研究会、2011年12月10日、熊本大学(熊本県)。
- ㉔ M. F. Avila-Ortega、S. Koga、I. Katayama、J. Takeda、H. Watanabe、S. Nakajima and M. Kitajima、Coherent Phonon Dynamics

- in Diamond Superlattices、第22回光物性研究会、2011年12月10日、熊本大学(熊本県)。
- ②⑤ 片山郁文、土井幸司郎、古賀 翔、首藤健一、武田 淳、北島正弘、グラファイト・グラフェンにおけるコヒーレントフォノン分光、表面・界面スペクトロスコープ2011、2011年12月3日、マホロバ・マインズ三浦(神奈川県)。
- ②⑥ 片山郁文、土井幸司郎、古賀 翔、首藤健一、武田 淳、北島正弘、グラファイト・グラフェンにおけるコヒーレントフォノン分光、表面・界面スペクトロスコープ2011、2011年12月3日、マホロバ・マインズ三浦(神奈川県)。
- ②⑦ 田原佳祐、古賀 翔、片山郁文、武田 淳、柳 和宏、島田 透、北島正弘、単層カーボンナノチューブにおけるコヒーレントフォノンの検出波長依存性、第59回応用物理学会関係連合講演会、2012年3月15-18日、早稲田大学(東京都)。
- ②⑧ 横田耕一郎、武田淳、長尾忠昭、C. Dang、韓貴、菱田俊一、北島正弘、片山郁文、半金属Bi超薄膜における表面金属状態の時間領域THz分光、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月24日、関西学院大学(兵庫県)。
- ②⑨ 首藤健一、土井幸四郎、片山郁文、北島正弘、武田淳、ベンゼンチオールのコヒーレント振動の金表面吸着による変化、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月24日、関西学院大学(兵庫県)。
- ③⑩ I. Katayama, S. Koga, J. Takeda, and M. Kitajima, Carrier and Coherent Phonon Dynamics in Ar<sup>+</sup>-ion Implanted Graphite, *The Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/QELS2011)*, May 1-6, 2011, Baltimore, USA.
- ③⑪ I. Katayama, et al., Single-Shot Time-Frequency Imaging of Phonon-Polariton Dispersion in Ferroelectric LiNbO<sub>3</sub>, *The Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/QELS2011)*, May 1-6, 2011, Baltimore, USA.
- ③⑫ K. Yokota, I. Katayama, J. Takeda, T. Nagao and M. Kitajima, Carrier Dynamics in Ultrathin Films of Semimetal Bismuth Studied with Terahertz Time-Domain Spectroscopy, 36th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, Oct. 2-7, 2011, Houston, USA.
- ③⑬ K. Shudo, K. Doi, I. Katayama, J. Takeda and M. Kitajima, Time-resolved Measurements of Coherent Vibrations in Benzenethiol Adsorbed on Au, 6th International Symposium on Surface Science, December 11-15, 2011, Tower Hall Funabori, Tokyo.
- ③⑭ 江田恭之、小口寛明、片山郁文、武田淳、北島正弘、神原陽一、中村一隆、SmFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> (x=0.075)のコヒーレントフォノン計測、レーザー学会学術講演会第32回年次大会:2012年1月30日、TKP仙台カンファレンスセンター(宮城県)。
- ③⑮ M. K. Hossain, M. Kitajima, K. Imura & H. Okamoto, Near-field spectroscopy of well-defined gold nanoaggregate, Fifth Sausi Science Conference, April 16-18, 2012, College of Applied Sciences. Umm Al-Qura University. Makkah, Saudi Arabia.

[図書] (計 1件)

- ① 北島 正弘、「現代表面科学シリーズ(第2巻)」第4章「超高速ダイナミクス」、共立出版、2012、35p。

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

北島 正弘 (KITAJIMA MASAHIRO)  
防衛大学校・応用科学群・教授  
研究者番号：00343830

### (2) 研究分担者

岸村 浩明 (KISHIMURA HIROAKI)  
防衛大学校・電気情報学群・助教  
研究者番号：40535332

### (3) 研究分担者

片山 郁文 (KATAYAMA IKUFUMI)  
横浜国立大学・学際プロジェクト研究センター・特任教員 (助教)  
研究者番号：80432532