

近接場光励起ダイナミクスに付随する電場の二倍波成分

Second-Harmonic Electric Field Component Concomitant with Optical Near-Field Excitation

東大院工¹, 分子研² ○山口真生¹, 信定克幸², 八井崇¹

Univ. Tokyo¹, IMS² ○M. Yamaguchi, K. Nobusada, and T. Yatsui

E-mail: yamaguchi@lux.t.u-tokyo.ac.jp

近接場光は、光が照射された物質の表面近くに局在する電磁場であり、(i) 光がナノ領域に集中することによる増強電場 (ii) 近接場光強度が物質からの距離に対して急激に減衰することによる電場勾配 という二つの性質を持つ [1]。近接場光のこれらの性質が引き起こす現象として、それぞれ、(i') 多光子吸収などの非線形光学効果 [2] と (ii') 電気双極子禁制遷移 [3] が知られている。

本発表では、これまでに指摘されていない近接場光の効果として、近接場光による電子の励起ダイナミクスから生じる電場の二倍波成分と、その結果引き起こされる二光子吸収 [4] を世界で初めて明らかにしたので報告する。これらの効果は、電場の絶対強度ではなく電場勾配に由来するという点で (i') と異なり、近接場光の電場勾配自体からではなく、電場勾配を持つ近接場光と電子の相互作用ダイナミクスから生じるという点で (ii') とは異なる。

二倍波成分・二光子吸収の発生を示すために、量子ドット (QD) を模したポテンシャル中の電子の近接場光励起の計算を行った。近接場光を振動する電気双極子ポテンシャルで近似し、これを QD に隣接させ (図2 挿入図)、電子の波動関数を時間依存 Schrödinger 方程式で時間発展させた。

図1 下図に近接場光に励起された電子の誘起双極子モーメント $d(t)$ を示す。 $d(t)$ の y 成分 $d_y(t)$ (青点線) が図1 上図に示した入射近接場光の振幅と同じ周波数で振動しているのに対して、 x 成分 $d_x(t)$ (赤実線) は光の2倍の周波数で振動していることが見て取れる。この振動を誘起しているのは上記の、近接場光励起に付随して発生する電場の二倍波成分であり、そのメカニズムは近接場光の強度勾配を持った電場と電子の相互作用ダイナミクスから理解することができる。

図2 に同等の電場強度を持つ伝搬光・近接場光で QD を励起した際の吸収スペクトルを示す。近接場光の吸収スペクトル (橙実線) は QD の共鳴周波数 ω_0 の半分のエネルギーに対応する $\omega_0/2$ に伝搬光 (緑点線) にはない吸収ピークを持つ。共鳴の半分のエネルギーを持つ光子の吸収は二光子吸収の発生を意味するが、同等の強度の伝搬光励起では $\omega_0/2$ にピークが見られないことから、これは (i') のような増強された電場強度による非線形光学効果ではない。実際、QD と双極子光源の位置関係に対する二光子吸収量の依存性から、近接場光と電子の相互作用に由来する電場の二倍波成分によるものであることが示される。

謝辞：科研費 (25288012、26286022)、JSPS 「研究拠点形成事業 (A. 先端拠点形成型)」

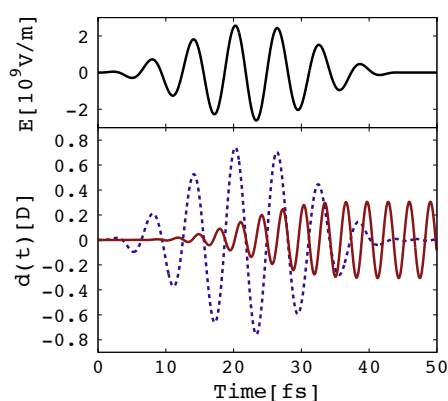


Fig 1: Induced dipole moment $d(t)$ of QD (red solid line : $d_x(t)$, blue dashed line : $d_y(t)$)

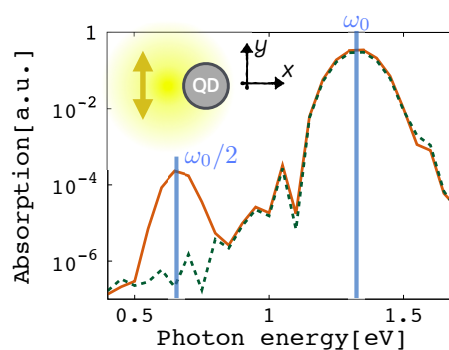


Fig 2: Absorption spectrum (orange solid line : near-field excitation, green dashed line : far-field excitation)

[1] L. Novotny et al., Principles of Nano-Optics (Cambridge University Press, 2006). [2] E.J. Sánchez et al., Phys. Rev. Lett., **82**, 4014 (1999). [3] J.R. Zurita-Sánchez et al., J. Opt. Soc. Am. B **19**, 2722 (2002). [4] M. Yamaguchi et al., Appl. Phys. Lett. **106**, 191103 (2015).