局在表面プラズモン共鳴された金ナノ三角柱の偏光分解第二高調波分光

Second harmonic generations from equilateral triangular Au nanoprisms at LSP resonance 静大院工,⁰余語 宏文, 小野篤史, 川田善正, 杉田篤史

Shizuoka Univ., ^OHirofumi Yogo, Atsushi Ono, Yoshimasa Kawata, Atsushi Sugita E-mail: sugita.atsushi@shizuoka.ac.jp

本発表では金ナノ三角柱における局在表面プラズモン共鳴条 件下での二次非線形光学現象について報告する。通常、局在表 面プラズモン励起のために用いられる金属ナノ粒子は、球状や 棒状の反転対称な形状である。そのため、通常の双極子遷移の 非線形性は禁制である。これらの二次非線形性は粒子内での電 磁場の伝搬により誘起される多重極遷移を利用して励起され る。本研究ではナノ粒子を反転対称性の破れた三角柱形状とす ることにより、二次非線形光学に対しても双極子遷移可能な構 造を構築し、その二次非線形光学効果を検討した。

Fig.1 に本研究で作製した金ナノ三角柱の SEM 画像を示す。 正三角柱の一辺は150 nm、高さを 50 nm とした。同一形状の三 角柱は 250 nm の一定間隔で三方ネット格子上に二次元配置し た。従って、個々の金ナノ粒子のみならず系全体でも C_{3V} 対称 である。

Fig. 2 に金ナノ三角柱の散乱スペクトルを示す。励起光は基 板平面に対して垂直に入射し、その偏光方向は正三角形の底辺 方向(x 軸方向)、もしくは高さ方向(y 軸方向)とした。800 nm 付 近に表面プラズモン共鳴による散乱ピークが見られた。

Fig. 3 に様々な偏光をもつ励起光で測定した散乱強度および 第二高調波強度を示す。散乱強度は波長 810 nm での値を示し、 第二高調波は励起光波長も 810 nm である。散乱スペクトル強度 はプローブ光の偏光角度に依存せず、等方的である。 C_{3V} 対称な 系では線形光学テンソルで $\chi_{xx}=\chi_{yy}$ の関係が成り立つため観測 された散乱強度の偏光依存性はこの予想と矛盾しない。



Fig.1: SEM image of Au nanoprisms. The definition of polarization direction is also shown.



Fig.2: Scattering spectrum of Au nanoprisms probed in the x directions(red) and y directions (blue).



Fig.3: Polar plot of scattering (red) and SHG (blue) intensity of the Au nanoprism against excitation polarization.

これに対して、SHG 強度はおよそ 30°ごとに増減した。励起光の偏光が高さ方向に平行になっ たときに最大となったのに対し、励起光の偏光が底辺方向となった場合、SHG 強度は最小となっ た。通常の非線形光学では入射光の伝搬方向に対して垂直に振動する電場が同じ方向に偏光する 非線形分極を作る。この考えに従うと C_{3V} 対称点群では $\chi_{xxy}, \chi_{yxx}, \chi_{yyy}$ 成分が励起される。これら は $\chi_{yyy} = -\chi_{yxx} = -\frac{1}{2}\chi_{xxy}$ の関係があり、励起光の偏光に SHG 変換効率は依存しない。SHG 変換効率 が励起光の偏光角度に依存した理由として励起光方向と同軸方向に振動する近接場成分が寄与し、 $\chi_{xxz} = \chi_{yyz}$ 成分による SHG 波が励起されたことが挙げられる。すなわち観測された SHG 波の偏 光依存性は 2 つの異なる非線形分極に起因する SHG 波が重なったことによるものと考えられる。