

LSP 共鳴励起した非対称金ナノロッド二量体系の二次非線形光学効果

Second order nonlinearities of asymmetric Au nanodimers at LSP resonances

静岡大工, 奥村 巧樹、余語 宏文、小野 篤史、川田 善正、居波 渉、杉田 篤史

Shizuoka Univ. K.Okumura, H.Yogo, A.Ono, Y.Kawata, W.Inami, A.Sugita

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

金属ナノ粒子を光照射すると粒子表面に局在した高密度光電場が発生するが、ナノギャップ間隔を隔てて近接する金属ナノ粒子対系では単一粒子系と比較してより狭い空間に凝縮された光電場が発生する。本研究ではこの複合ナノ粒子対系におけるナノギャップ空間に閉じ込められた高密度光電場の非線形光学について検討した。偶数次非線形光学効果では反転対称性の破れた物質においてのみ電気双極子励起効果は許容である。本研究では系を構成する粒子サイズを変え、粒子近傍の光電場分布を非対称化することにより、電気双極子型二次非線形光学性を得ること試みた。

Fig. 1 に非対称系金ナノロッド二量体系の SEM 画像を示す。基本構成ユニットは長方体状の金ナノロッドである。一方のナノロッドの寸法は幅 100 nm、長さ 140 nm、高さ 30 nm とし、他方は幅 100 nm、長さ 120 nm、高さ 30 nm とした。二つのロッドは長軸方向に配列し、ロッド端同士の間隔 Λ を 15 -100 nm の間で調節した。金ナノ二量体系の表面プラズモン共鳴は吸収分光によって、非線形性は第二高調波分光法によって試験した。

Fig. 2 に様々な粒子間隔を持つ非対称金ナノ二量体系の吸収スペクトルを示す。各スペクトルには表面プラズモンに伴うピークが見られる。ピーク波長は粒子間隔が狭くなるのに従い、長波長側にシフトした。スペクトルのピークシフトは二つの粒子に生じたプラズモン分極が連成したことによるものである。ギャップ間隔 Λ が狭くなるのと同時に、ピークシフト量が大きくなったことはそれだけ近接場相互作用が強くなったことに対応する。

Fig. 3 に非対称金ナノロッド二量体系が放射する第二高調波の粒子間隔に対する依存性を示す。粒子間隔が広く、連成効果がほぼ無視できる $\Lambda=100\text{nm}$ の系も SHG 信号を示した。この信号は電場勾配効果の関与した多重極子励起効果による第二高調波発生現象によるものである。ギャップ間隔が $\Lambda=20\text{ nm}$ から縮小すると SHG 信号は急激に増加した。

FDTD 法により電場分布を計算したところ、粒子間隔が $\Lambda<30\text{nm}$ を切るとナノギャップ空間に電場分布が集中し、その強度は粒子間隔が狭いほど増強された。しかもその電場分布は系を反転操作しても元の分布には重ならないものであった。このような非対称に分布する光電場により粒子表面において変換された SHG 光は粒子近傍から離れても打ち消し合わず、遠方場まで伝播する。得られた実験結果結果は連成効果により実行的に系の反転中心が破れ、結果として電気双極子二次非線形性が許容になったことによるものと解釈した。

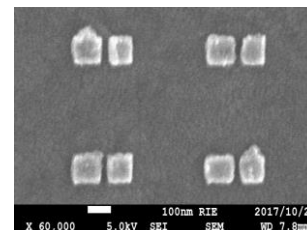


Fig. 1 SEM image of Au nanodimers

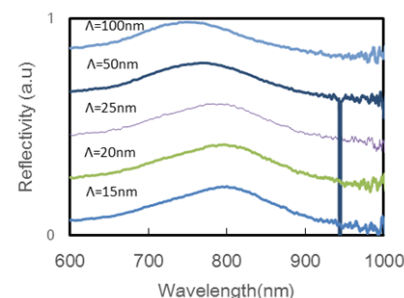


Fig. 2 Scattering spectra of Au nanorod dimers with interparticle separations Λ .

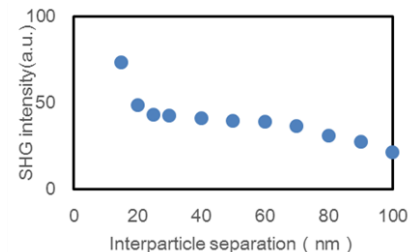


Fig. 3 SHG efficiencies against interparticle separations Λ .