NLO ポリマー/Ag/SiO2構造における SP 共鳴 SHG 現象

SP-enhanced SHG from NLO polymer/Ag/SiO₂ structure

静大工 ^O杉田 篤史, 望月 寛太, 菊池 康平, 周藤 要, 小野 篤史, 居波 渉, 川田 善正 Shizuoka Univ., ^oA. Sugita, K. Mochizuki, K. Kikuchi, K. Suto, A. Ono, W. Inami and Y. Kawata E-mail: sugita.atsushi@shizuoka.ac.jp

本発表では非線形光学(NLO)ポリマー薄膜を成長した銀(Ag)薄膜における表面プラズモン (SP)共鳴条件下での第二高調波発生(SHG)現象について報告する。SP 共鳴励起により金属薄 膜の表面非線形性は増大することが知られているが、本研究は金属表面に NLO 感受率の大きなポ リマー薄膜を成長することにより更に大きな NLO 動作を実現させることを目的として実施した。

Fig. 1 に検討した NLO ポリマー/Ag 薄膜/石英ガラス(SiO₂) 構造および光学系の構成を示す。SP 共鳴は、プリズムを用い たクレッチマン配置で励起した。励起光源であるフェムト秒 レーザー(発振波長 780 nm)は、SiO₂ 側より入射し、入射角度 を回転させながら反射光及び SHG 光を検出した。NLO ポリ マーは、ポリメチルメタクリレートに有機色素分子 DR1 を分 散させた複合物質である。Ag 薄膜の厚さは *d*₁=40 nm で一定 とし、NLO ポリマーの膜厚は *d*₂=0-80 nm とした。



Fig. 1 Schematics of NLO polymer/Ag/SiO₂ structure and optical geometry of reflection and SHG spectroscopies.

Fig. 2 に様々な NLO ポリマー膜厚 d_2 の系に対する反射率及び SHG 信号の励起光の入射角度依存性を示す。 $d_2=0$ nm は、NLO ポリマーを未成長な Ag 薄膜系の結果に対応する d_2 に依存せず、反射スペクトルには SP 共鳴によるディップ構造が表れ

た。ディップ構造は d_2 が厚くなるほど、広角に現れた。 一方、反射ディップの位置で強い SHG 発生を観測し、SP 共鳴において NLO 動作が増大することが分かる。ピーク SHG 信号について注目すると、 $d_2=20$ nm において最大と なり、それより膜厚が厚くなると単調減少した。 $d_2=20$ nm の場合の SHG 信号強度は、 $d_2=0$ nm の純粋な Ag 薄膜の 場合と比較して、約 30 倍も高強度であった。

実験結果は、トランスファー行列法とグリーン関数法 を組み合わせた手法によって解析した。その結果、SHG 信号は SP 電場増強度、NLO ポリマー中での SHG 波の成 長過程、そしてポリマー中で前方および後方に伝搬する SHG 波どうしの光学干渉によって決定されることが明ら かとなった。詳細は以下の論文でも議論している。 参考文献 [1] A. Sugita et al., Phys. Rev. B 101, 045303 (2020)



Fig. 2 (a) Reflectivity and SHG intensity from NLO polymer/Ag/SiO₂ structure against angle of incidence. d_2 is the thickness of NLO polymer layer.