

サブ nm ギャップを有するプラズモニックメタ表面の非線形光学応答解析 —電子輸送に基づく非線形性の増強—

Nonlinear Optical Response Analysis for Plasmonic Metasurface with Sub-nm Gaps

- Enhancement of Nonlinearity based on Electron Transports -

学振 PD¹, 筑波大計科セ² ◯竹内 嵩¹, 矢花 一浩²

Cent. for Comp. Sci., Univ. of Tsukuba¹, ◯Takashi Takeuchi¹, Kazuhiro Yabana¹

E-mail: take@ccs.tsukuba.ac.jp

金属ナノ粒子を 2 次元的に周期配列したプラズモニックメタ表面は、構成粒子近傍の光増強に依存する特異かつ幅広い自由度の光物性を発現する。光増強を高めるには粒子間距離(ギャップ)を短くして光をギャップに局在させる方法が有効である。特にこの 1-2 年では、1nm 未満(サブ nm)のギャップを持つメタ表面を自己組織化により安定かつ大面積に作成できる手法が確立し、基礎科学的にも応用的にも注目を集めている。とりわけ文献[2]ではギャップ 0.6nm のメタ表面を作成し、極めて大きな非線形効果の発現が確認された。このような大きな非線形効果は全光スイッチの小型化に直結するため、重要である。

一方、こういったサブ nm スケールでは、トンネル電流に代表される量子効果が顕著に現れる[3, 4]。昨年、著者らはジェリウム模型を適用した時間依存密度汎関数理論(TDDFT)を用い、サブ nm ギャップを有するメタ表面の線形応答を調査した[3]。結果、ギャップ 0.4nm 以下ではトンネル電流やオーバーバリア電流に由来する電子輸送が生じてプラズモン共鳴が弱まり、光物性が激変することを明らかにした。また、文献[4]ではサブ nm ギャップを有するダイマーの非線形光学応答を調査し、トンネル電流の持つ高い非線形性により高次高調波発生効率が高まることが報告された。しかしながら、メタ表面においては光増強のみが取り上げられ、サブ nm ギャップのもたらす量子効果が非線形効果に及ぼす影響は知られていない。

本報告ではジェリウム模型を適用した TDDFT を用い、サブ nm ギャップを持つメタ表面の非線形光学応答を調査した。TDDFT には、昨今我々のグループが開発した実時間・実空間光励起電子ダイナミクス第一原理計算プログラム、SALMON を用いた[5]。結果、ギャップが 0.4nm より大きい領域ではプラズモン共鳴と光増強により高い非線形効果が得られることを確認した。一方、ギャップが 0.4nm より小さい領域では、ギャップでの電子輸送による効果が現れ、さらに高い非線形効果が得られることを明らかにした。

[1] D. Doyle, et al., ACS Photon. **5**, 1012 (2018).

[2] L. S. Menezes, et al., J. Opt. Soc. Am. B **36**, 1485 (2019).

[3] T. Takeuchi, et al., ACS Photon. **6**, 2517 (2019).

[4] Aguirregabiria et al., Phys. Rev. B **97**, 115430 (2018).

[5] M. Noda, et al., Comput. Phys. Commun. **235**, 356 (2019). <https://salmon-tddft.jp/>