

金ナノ粒子三量体構造体の第二高調波発生

Second harmonic generations from trimaric Au nanostructures

静岡大院工 ○(M1)中塚 庸靖, 小野 篤史, 川田 善正, 居波 渉, 杉田 篤史

Shizuoka Univ., ○Y.Nakatsuka, A.Ono, Y.Kawata, W.Inami, A.Sugita

E-mail: yooooooooo.0511@gmail.com

金ナノ粒子三量体構造の第二高調波発生(SHG)現象について報告する。検討した二種類の三量体構造はいずれも互いに平行に配列した金ナノ粒子二量体とそれに垂直に配置した単量体から構成される。二量体部分は第一の構造体では正三角柱状金ナノプリズム形状(AuNP)、第二の構造体では直方体ロッド形状(AuNR)である。単量体部分は両方の構造体ともロッド形状とした。これらをそれぞれ(AuNP)₂/AuNR 及び(AuNR)₂/AuNR 構造体と呼ぶ。

Fig. 1 (a)、(b)に(AuNP)₂/AuNR、(AuNR)₂/AuNR 構造の減光及び SHG 励起スペクトルを示す。いずれの構造体も減光スペクトルには二つのピークが存在し、短波長側及び長波長側のピークはそれぞれ二量体及び単量体由来する。単量体由来のピークは孤立した金ナノロッドのそれよりも長波長側にシフトしていた。これは三量体構造中では単量体のプラズモン分極が近接場相互作用により二量体中のそれと連成した結果である。

一方、SHG 励起スペクトルはいずれの構造体とも単量体由来のピークで強い SHG 信号を発生した。(AuNP)₂/AuNR 構造体の場合はこれらに加え、二量体由来のピーク付近で弱い SHG 信号を発生した。この信号は二量体部分で局在したプラズモンモードに起因する。従って、三量体構造の連成プラズモンモードは大きな非線形応答を示すことが分かる。

(AuNP)₂/AuNR のピークの SHG 信号量は AuNR₂/AuNR 構造のそれとほぼ同等であった。通常、電気双極子励起型の二次非線形感受率は反転中心の破れた構造のみで許容である。(AuNR)₂/AuNR 構造では構成ユニットの AuNR が反転中心を持ち、二次非線形光学遷移禁制であるが、三量体構造としたことで系全体で反転中心を失い、光学遷移許容となる。一方、(AuNP)₂/AuNR 構造は構造全体の幾何学形状で反転中心が欠如しているのみならず、構成粒子の AuNP も反転中心を欠如している。二つの三量体構造の SHG 信号量がほぼ同等であったことから各構成粒子の幾何形状は非線形動作に本質的な役割を果たさず、系全体の反転中心の破れが非線形性を決定したものと結論した。

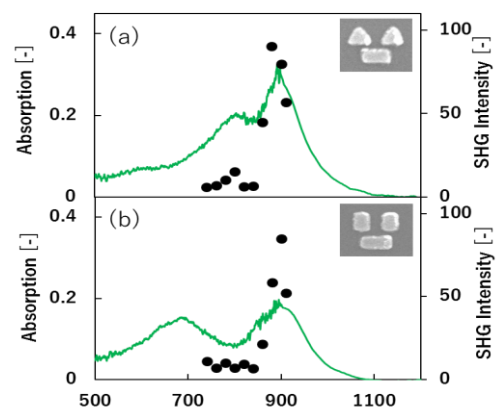


Fig. 1 Extinction (solid curve) and SHG excitation spectrum (filled circles) of (a) (AuNP)₂/AuNR and (b) (AuNR)₂/AuNR trimer structures. Insets show SEM images of trimer structures.