

**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
—ジェリウム模型を適用した時間依存密度汎関数理論による検討—**

**Nonlinear Optical Response Analysis for Plasmonic Metasurface with Sub-nm Gaps
- Investigation by Time-Dependent Density Functional Theory with Jellium model -**

筑波大計科セ¹ °竹内 嵩¹, 矢花 一浩¹

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

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

平面上に金属ナノ粒子を周期配列したプラズモニックメタ表面は、構成粒子のプラズモン共鳴に基づく特異かつ幅広い自由度の光物性を発現する。一般にメタ表面では金属ナノ粒子間の周期長を入射光のサブ波長程度に選ぶことが多いが、近年、周期長が極端に短く、粒子間にサブ nm のギャップを持つメタ表面が実験で作成され注目を集めている[1-2]。文献[1]では、ギャップ 0.45nm のメタ表面が作成され、ギャップ間での強いプラズモン共鳴に起因する高い実効屈折率の発現が確認された。一方著者らは、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、ギャップ 0.45nm 未満の領域における実効屈折率の変動を調べた[3]。その結果、ギャップ 0.2nm 以下では電子輸送が生じてプラズモン共鳴が弱まり、実効屈折率が低下することを明らかにした。

上記の報告は光の強度が低い線形領域での光学応答を対象としているが、最近ではサブ nm ギャップを持つメタ表面の非線形光学応答が注目されている。文献[2]ではギャップ 0.6nm のメタ表面が作成され、極めて大きい 3 次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有用であり工学的にも重要であるが、しかしながら発現の機構は十分に理解されていない。また、ギャップサイズに対する依存性も不明である。

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[4]。その結果、非線形光学応答にはギャップ間の電子輸送が大きく寄与し、その影響が最も強まるギャップ 0.1nm 付近にて最大の非線形効果が得られた。

[1] D. Doyle, N. Charipar, C. Argyropoulos, S. A. Trammell, R. Nita, J. Naciri, A. Piqué, J. B. Herzog, and J. Fontana, ACS Photon. **5**, 1012 (2018).

[2] L. S. Menezes, L. H. Acioli, M. Maldonado, J. Naciri, N. Charipar, J. Fontana, D. Rativa, C. B. Araújo, and A. S. L. Gomes, J. Opt. Soc. Am. B **36**, 1485 (2019).

[3] T. Takeuchi, M. Noda and K. Yabana, ACS Photon. **6**, 2517 (2019).

[4] M. Noda, S. A. Sato, Y. Hirokawa, M. Uemoto, T. Takeuchi, S. Yamada, A. Yamada, Y. Shinohara, M. Yamaguchi, K. Iida, I. Floss, T. Otobe, K. Lee, K. Ishimura, T. Boku, G. F. Bertsch, K. Nobusada, and K. Yabana, Comput. Phys. Commun. **235**, 356 (2019). <https://salmon-tddft.jp/>