

非平行配列金ナノロッド二量体構造における第二次高調波発生現象

SHG behaviors of noncollinearly aligned Au nanorod dimer structure

静岡大学 ○王 俊真, 中塚 庸靖, 杉田 篤史

Shizuoka Univ., °Shunma OH, Yohsei Nakatsuka, Atsushi Sugita

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

本発表では非平行に配列した金ナノロッド二量体構造の第二次高調波発生(SHG)現象について報告する。反転中心をもつ長方体ロッド形状の金ナノ粒子を非平行に配列することで、系全体で反転中心を破り、SHG 遷移を許容化することが研究目的である。また、二つ以上の金属ナノ粒子を接近すると、粒子間でプラズモン分極が連成する。本研究ではどのような連成プラズモンが二次非線形動作に寄与するかに着目した。

Fig. 1(a)に電子線描画装置により作製した金ナノロッド二量体の SEM 画像を示す。二つのロッド間の成す角度は $2\theta=90^\circ$ とした。ここで、紙面に対して水平方向を x 軸、垂直方向を y 軸と定義する。また、比較のために同一寸法の金ナノロッド単量体も製作した (Fig. 1(b)および(c))。

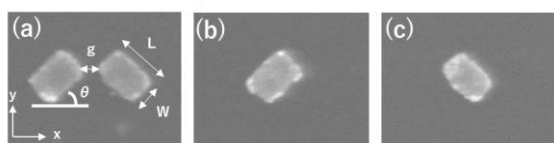


Fig. 1 SEM images of (a) Au nanorod dimer and (b) monomer with $\theta=+45^\circ$ and (c) one with $\theta=-45^\circ$. The length and width of Au nanorods, and gap and crossing angle between two monomers are $L=135$ nm, $W=85$ nm, $g=21$ nm and $2\theta=90^\circ$, respectively.

Fig. 2 に二量体と単量体に対してそれぞれ x 偏光および y 偏光の配置で測定した減光スペクトルおよび SHG 励起スペクトルを示す。二量体を構成する二つの単量体構造の和スペクトルも表示した。減光スペクトルでは二量体と単量体いずれもプローブ光の偏光に依存せず、2つのピークを示した。単量体構造ではいずれも長軸方向に 45° 方向の偏光であるため、等価なスペクトルを得た。長波長側および短波長側のピークはそれぞれ金ナノロッドの長軸方向および短軸方向に振動するプラズモン分極によるものである。

x 偏光励起した場合のスペクトルでは、二量体のピークは単量体に比べ、より長波長にシフトした (Fig. 2(a))。一方、 y 偏光励起した場合のスペクトルでは、二量体のピークは単量体のそれより短波長にシフトした (Fig. 2(b))。長波長側のピークシフトは粒子同士のプラズモン分極が強く結合したことによる。 x 偏光励起した場合は各粒子のプラズモンが逆位相での、 y 偏光励起した場合は同位相での連成に寄与する。

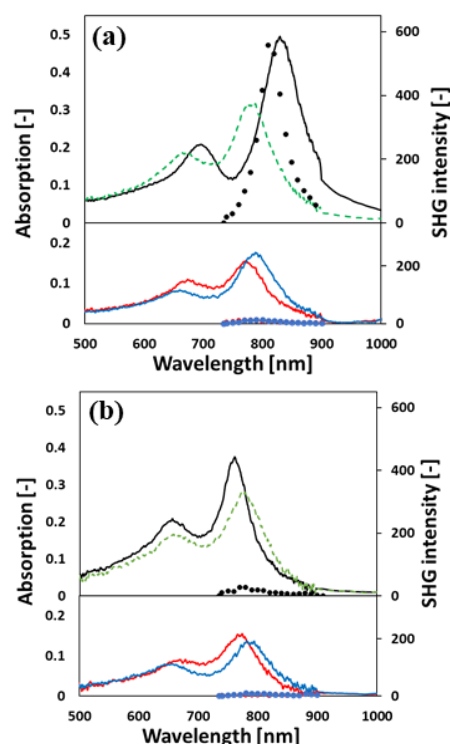


Fig. 2 Extinction (solid curve) and SHG excitation spectra (filled circles) of noncollinearly aligned Au nanorod dimer (black) and monomer (red and blue curves) under (a) x -polarized and (b) y -polarized light. Green-dashed curves are the summations between the spectra of two monomers.

SHG 励起スペクトルでは x 偏光と y 偏光励起のいずれの場合も単量体では弱い SHG 信号のみが現れた。この信号は反転中心を持つ粒子構造でも許容な電場勾配の関与する多重極子励起型効果によるものである。これに対し x 偏光励起条件での二量体構造では強い SHG 信号を示した。二量体からのピーク SHG 信号量は単量体のそれに比べ 22 倍であった。ピーク SHG 波長は減光ピーク波長よりも ~ 10 nm 程度ほど短波長側であるものの概ね一致しており、連成プラズモン効果が二次非線形遷移に寄与したことが分かる。 y 偏光励起条件においては二量体からも微弱な SHG 信号のみが観測された。

以上より逆位相の連成プラズモンモードのみが二次非線形性に寄与したことを確認した。発表では FDTD シミュレーションによって計算した電場分布のデータを使って SHG 変換動作とその偏光状態についても議論する。