

金ナノ粒子/Si₃N₄/SiO₂ 構造の第二次高調波現象に関する研究

Second harmonic generation behaviors of gold nanoparticle/Si₃N₄/SiO₂ structure.

静岡大 °片平 優紀, 望月 寛太, 杉田 篤史

Shizuoka Univ. °Yuki Katahira, Kanta Mochizuki, Atsushi Sugita

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

本発表では金ナノ粒子(AuNP)/Si₃N₄/SiO₂ 構造の第二高調波現象(SHG)について報告する。金属ナノ粒子に光を照射すると表面プラズモン効果により入射光よりも高強度な光電場を発生する。この高強度の増強光電場は非線形光学効果を誘起するために有用である。本研究では更に大きな非線形光学効果を実現するため、表面プラズモンモードを同じく光閉じ込め効果の期待される導波路モードと結合することに注目した。

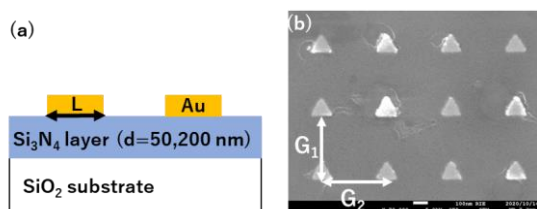


Fig. 1 (a) The schematics and (b) SEM image of Au nanoparticles on Si₃N₄/SiO₂ substrate.

Fig. 1(a)に検討した AuNP/Si₃N₄/SiO₂ 構造の構成を示す。この構造は高屈折率の Si₃N₄ 層を低屈折率の SiO₂ 基板及び大気層が挟むことにより Si₃N₄ 層に導波路モードが発生する。

モデル構造の製作過程では最初に SiO₂ 基板上に Si₃N₄ 薄膜を ECR スパッタリング法で成膜した。Si₃N₄ 層の膜厚は $d=50, 200$ nm とした。次に、電子線リソグラフィ法によって AuNP を製作した。AuNP の形状は正三角柱状にし、一辺の長さ $L=150$ nm、高さ $H=30$ nm とした。各粒子は正方格子状に配列し、その周期間隔は $G_1=G_2=300-500$ nm に設計した。製作した基板の SEM 画像を Fig.1(b)に示す。比較のために Si₃N₄ 層の膜厚が $d=50$ nm の構造も製作した。この膜厚は薄く導波路効果を生じないため、光学応答は導波路効果と結合しない孤立した表面プラズモンモードのみに起因する。

試料の表面プラズモン特性は散乱分光によって評価した。光源はタンゲステンランプにより放射される白色光を用い、スペクトルデータとして記録した。SHG 分光のための光源はモードロックチタンサファイアレーザーからのフェムト秒光パルスである。発振波長を 730-920 nm の領域で可変し、励起スペクトルを測定した。

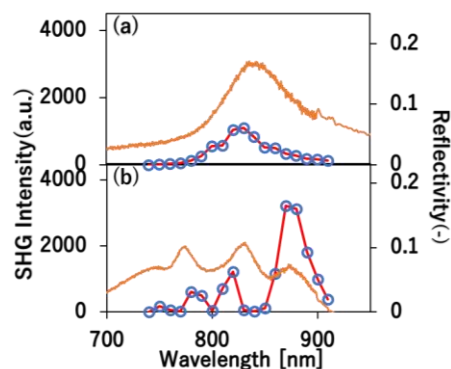


Fig. 2 Reflectivity (solid curve) and SHG excitation spectra (filled circles) of AuNP / Si₃N₄ / SiO₂. The data (a) and (b) corresponds to the Si₃N₄ thickness of (a) $d=50$ and (b) $d=200$ nm, respectively, at interparticle separation is $G_1=G_2=500$ nm.

Fig. 2(a)及び(b)に Si₃N₄ 薄膜の膜厚 $d=50, 200$ nm の散乱スペクトルと SHG 励起スペクトル結果を示す。AuNP 同士の周期間隔は $G_1=G_2=500$ nm であった。励起偏光は y 軸方向とした。

Si₃N₄ 層の膜厚が $d=50$ nm の系では散乱信号のピークに単一のピークが見られた。また、SHG 励起スペクトルでも散乱ピークとよく一致した波長で強い信号が見られた。これは表面プラズモン共鳴により金表面の非線形感受率の増大したことによるものである。

一方、 $d=200$ nm の系では散乱スペクトルには三つのピークが現れた。これはプラズモンモードと導波路モードとの間に強結合効果を生じたことによるものである。表面プラズモンモードと x 軸方向及び y 軸方向の導波路モードが混成し、三つの結合モードが現れたと考察した。

SHG 励起スペクトルでは分裂した各ピーク付近で強い信号を示した。特に 870 nm に現れた最も長波長側のピークにおいて特に強い SHG 信号が見られた。

FDTD シミュレーションによりこのモードに関する電場分布を解析した。その結果、プラズモンモードと導波路モードが励起光方向に強く結合している様子が見られた。この結果は導波路構造を利用することで表面プラズモン共鳴した金ナノ粒子の非線形動作を増大できることを示すものである。

発表では x 偏光励起条件での結果及び他のピークでの電場解析の結果を示す。