

1P-059

クレッチマン法によって励起された表面増強光電場の第二高調波発生

(静岡大院・工) ○小野 義大, 周藤 要, 佐藤 知幸, 小野 篤史, 居波 渉, 川田 義正, 杉田 篤史

Nonlinear optics polymers excited by surface plasmon enhanced field in Kretschmann configuration

Shizuoka Univ. Y.Ono, K.Suto, T.Sato, A.Ono, W.Inami, Y.Kawata, and A.Sugita

【序】

伝導電子の集団励起状態である表面プラズモンに大きな注目が集められている。表面プラズモンを光によって励起すると、金属表面には入射光電場よりも 2~3 桁高い増強光電場を発生することが特徴である。この高密度電場を利用した様々な応用、特に高エネルギー線の発生に関する研究が活発に行われている^[1,2]。本研究ではこの表面プラズモン増強光電場の二次非線形光学への応用について検討した。すなわち、表面プラズモン増強光電場により、非線形光学ポリマー中で第二高調波発生を試みた。

【実験】

これまでに様々な表面プラズモンの励起方法が検討されているが、本研究ではプリズムを用いた全反射減衰法によって励起した。非線形光学分光法のための試料は3層構造より構成される。40nmの銀薄膜をNLOポリマーの薄膜が塗布してあるBK7ガラスプリズム上に塗布し、さらにその上に非線形光学ポリマーを積層した。ここで、非線形光学ポリマーはホストゲスト材料で、ホストであるポリメチルメタクリレートとゲストであるディスプレイレッド1で構成されている。我々は先行研究において、非線形光学ポリマー金属と接触する界面に積層し、ガラス転移温度よりも高温でアニーリングすると自発的に二次非線形光学感受率を示すために必要な反転対称性の欠如した構造を形成することを確認している。^[3]ポリマーの厚さは15~100nmである。

二次非線形光学感受率を測定するための実験装置は図1に示した。励起光源は、フェムト秒光パルスである(中心波長: 800nm、パルス幅: 150fs、パルスエネルギー: 1mJ)。反射 SHG 信号はカラーガラスフィルターで分離した後に光電子増倍管で検出した。試料表面上のビーム径は約 $\phi 5\text{mm}$ であった。励起光の偏光に対する依存性で SHG 光の偏光特性についても検討した。

【結果・考察】

図2(a)は p 偏光を持つ励起光を照射した場合の試料より発生した第二高調波光の強度の入射角度に対する依存性を示す。ここでは膜厚が 15 nm と 40 nm の試料に関する結果を示す。また、参考のためにポリマーをコートしてない銀薄膜に関する結果も示す。反射率に関するデータにおいてポリマーをコートした銀薄膜もコートしていない銀薄膜も、表面プラズモン共鳴条件を満たす入射角度においてディップ構造を示す。ポリマーをコートしていない銀薄膜のみの試料の場合、 $\theta_{sp}=41.2^\circ$ においてディップ構造が見られた。ポリマーをコートした試料では θ_{sp} の位置はポリマー層の厚さに依存し、より広い膜厚のポリマーのサンプルはより広い角度で示した。また、ディップの幅はポリマー層の膜厚が厚

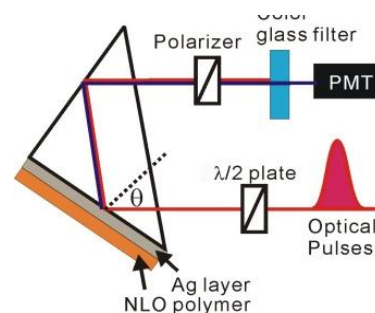


図1 表面プラズモン増強光電場励起による非線形光学ポリマー中での第二高調波発生を観測するための光学系

くなるほど広がる傾向が見られた。ディップ構造を示す入射角 θ_{sp} はより広角側となる。ディップ幅は、表面プラズモン増強電場の強度に密接に関係しており、ディップ幅が狭ければより高い表面プラズモンの増強度を持つ。一方、SHG 強度は反射率の入射角度依存性の結果に対応しており、ディップにおけるもっとも反射率の低い入射角において SHG 信号の強度が最も大きくなった。

図 2(b) は SHG 光強度を励起光の強度 I_{pump} の関数としてプロットした。いずれの試料より放出される第二高調波光の強度は、一般的な伝搬光の場合と同様に I_{pump}^2 に比例することが確認された。また、ポリマーコートした銀薄膜からの SHG 信号強度はコートしていないものよりも高い。故に、表面プラズモン増強電場は銀薄膜のみならず NLO ポリマー中で励起された非線形光学分極によるものということが出来る。

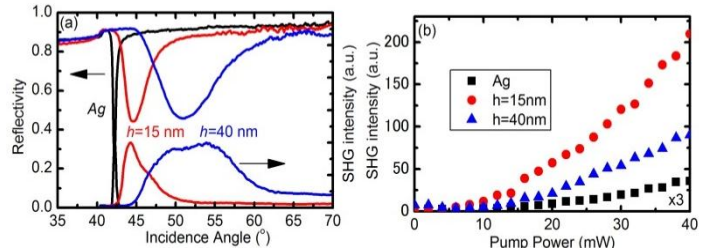


図 2 (a) 様々な膜厚のポリマー中での表面プラズモン増強光電場によって励起された第二高調波励起光入射角度に対する依存性 (b) 様々な厚さのポリマーより発生した第二高調波光の励起光強度依存

図 3(a) は表面プラズモン共鳴条件における SHG 信号強度の励起光の偏光角 γ_p に対する依存性を示す。ここで、ポリマー層の厚さが 15nm の試料を用いた。実験結果は関数 $\cos^4 \gamma_p$ でよく再現された。結果は、非線形光学分極が p -偏光の波によってのみ励起されていることを示すものである。図 3(b) に SHG 光強度の偏光依存性を示す。実験結果は関数 $\cos^2 \gamma_a$ でよく再現された。この結果は SHG 信号が p -偏光方向に偏光していることを示すものである。一般的に、ホスト-ゲスト型 NLO ポリマーの二次非線形感受率は、3つの独立テンソル成分 d_{33} 、 $d_{31}(=d_{32})$ 、 $d_{24}(=d_{15})$ の線形結合で表現することができる。この研究で観測された γ_p と γ_a に対する依存性は、SHG 信号が d_{33} 成分のみに関連することを示している。ポンプ光の p -偏光成分のみが、銀表面の法線方向に表面プラズモン増強光電場を励起し、これにより NLO ポリマー中における銀表面の法線方向の非線形分極成分が励起されたのであろう。

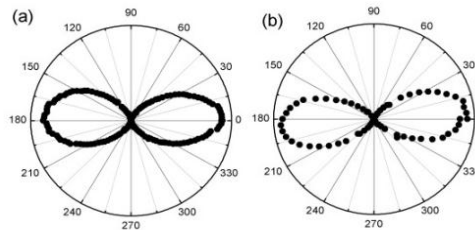


図 3 (a) 第二高調波光強度の励起光の偏光に対する依存性 (b) 第二高調波光の偏光依存性

【結論】

本研究ではポリマーをコートした銀薄膜における表面プラズモン共鳴条件における二次非線形光学感受率について検討した。実験結果は、非線形ポリマーをコーティングすることにより、表面プラズモン共鳴条件における銀薄膜の非線形性を増強させることができることを証明した。

参考文献

1. S. E. Irvine et. al. Phys. Rev. Lett. **98**, 184801 (2004).
2. S. Kim et. al. Nature, **453**, 757 (2008).
3. A. Sugita et. al. Optical Material Express **2**, 1588 (2012).