

表面プラズモン増強光電場によって励起された
 ホスト-ゲスト型ポリマー中における第二高調波発生

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

The second harmonic generations in hosts-guest type polymer
 that are excited by surface plasmon enhanced optical field

(Shizuoka Univ.)

○Tomoyuki Sato, Kaname Sudo, Atsushi Ono, Yoshimasa Kawata, Atsushi Sugita

【序】

表面プラズモン及びその応用技術が近年大きな注目を集めている。金属に励起光を照射すると表面プラズモンが励起され、金属表面には入射電場と比較して2、3桁高い光電場が発生する。この表面プラズモン励起に伴う高密度電場を利用した非線形光学応用について活発に研究が進められている。従来の研究では金属自身の非線形性に注目した研究が盛んに行われていた。しかし金属はその導電性ゆえに非線形性が非常に小さく、大きな非線形動作も実現が出来ない点が問題である。この課題を克服するために本研究では非線形光学ポリマーを金属表面に積層させ、この系における表面プラズモン励起による非線形光学現象について検討した。

【実験】

本研究ではクレッチマン型光学配置による全反射減衰法によって表面プラズモンを励起した。測定用試料の構成を図1に示す。表面プラズモン励起のための銀薄膜をBK7ガラスプリズムの上に蒸着した。さらにその上に非線形光学ポリマーをスピコート法によって積層した。なお非線形光子ポリマーはホスト-ゲスト型構造をとり、ホスト分子はポリメチルメタクリレート(PMMA)、ゲスト分子はディスパースレッド1(DR1)を用いた。光源には、チタンサファイア再生増幅器より発生する光パルス(中心波長800 nm、パルスエネルギー0.5 mJ、繰り返し周波数1 kHz、パルス幅150 fs)を使用した。試料の表面プラズモン共鳴条件については反射率の励起光入射角度に対する依存性を測定することで決定した。また試料の二次非線形光学感受率は第二高調波を測定することで観測した。

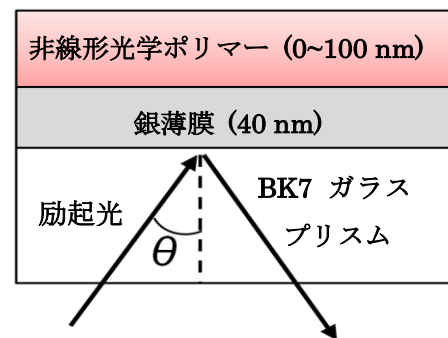


図1: 試料概略図

【結果と考察】

図2に励起光の入射角度に対する試料の反射率を示す。ここでは非線形光学ポリマーの膜厚が25 nm、50 nmの試料に関する結果を掲載した。また比較のために高分子を積層していない試料に関する結果も示す。各試料には反射率が大きく低下する入射角度が存在し、この角度においてプラズモンが励起されている。反射率のディップは高分子の膜厚が厚くなるほど広角側に現れていることが分かる。一方第二高調波はディップの現れる入射角度において強いものが観測された。この結果は表面プラズモン増強光電場によって高分子薄膜中に非線形光学分極が励起されたことを示すものである。励起光の角度を低角度側から広角度側へと変化させていくと、第二高調波の

強度はピークの直前に減少し、その後に信号強度が大きく増加してピーク部分となる。この一旦第二高調波光が低下する現象は、伝搬光によって励起されている弱い第二高調波光と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光が、互いに位相が反転したために打ち消し合っているからだと考えられる。

図 3 は各膜厚におけるピーク強度をまとめたもので、第二高調波光の高分子膜厚に対する強度依存性を示している。実験の結果、膜厚 30 nm 付近において SHG 強度が最大となることが分かった。一般的に非線型光学相互作用は、光波と物質の相互作用する距離が大きくなるほど強くなる傾向がある。トランスフォーマトリクス法により表面プラズモン共鳴条件における電場増強度を求めたところ、膜厚が厚くなるに従って電場の増強度は減少することが確認された。この結果は膜厚が 30nm 付近で相互作用長と電場増強度のバランスが最もとれることを示すものと考えている。

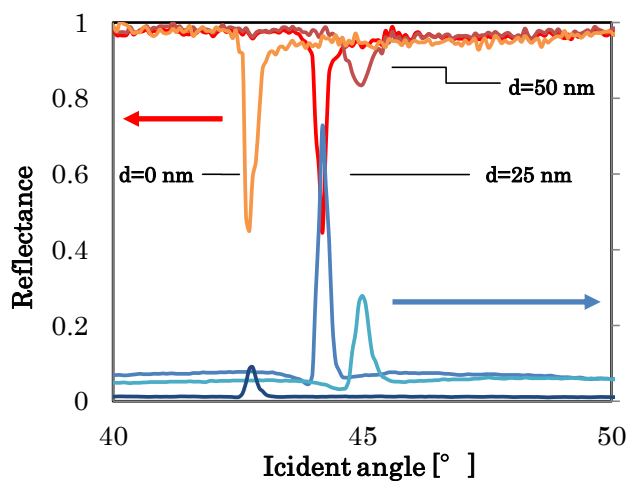


図 2：高分子薄膜を積層した金属膜の反射率及び第二高調波の入射角度依存性

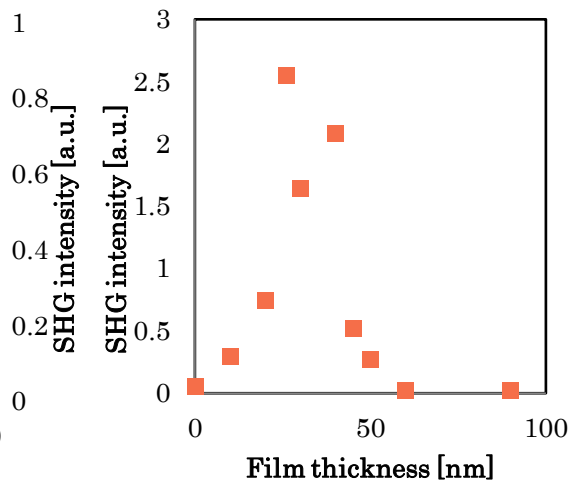


図 3：第二高調波光の高分子薄膜に対する依存性

試料角度を共鳴ピーク角度で固定したまま、試料に入射する光に対して半波長板を回転させることで発生する第二高調波光の入射光偏光依存性を図 4 に示す。偏光角度 180°(*p*-偏光)のときの SHG 強度で規格化し、極座標表示を行った。入射光の偏光角度が 0°や 180°といった *p*-偏光の際に SHG 強度は最大となり、*s*-偏光の時ほとんど発生しないことが確認できた。次に、試料から発生した第二高調波光の偏光成分を調べるために、試料角度を共鳴ピーク角度で固定し、励起光を *p*-偏光で試料に照射した。試料において発生した SH 光を偏光板を通過させることで SH 光の偏光を調べた。偏光板の角度を変化させ、それによる SH 光強度の変化を図 5 に示す。試料から発生した SH 光は *p*-偏光で最大となり *s*-偏光では検出されなかった。このことから *p*-偏光の入射光により励起された SH 光も、ほぼ *p*-偏光成分のみを持っていることが分かった。

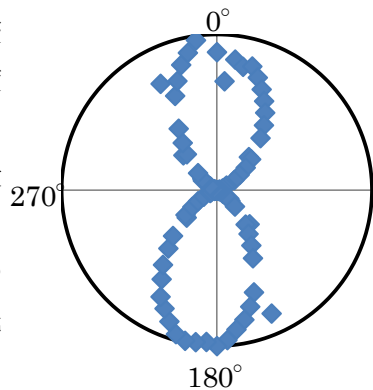


図 4：入射偏光依存性

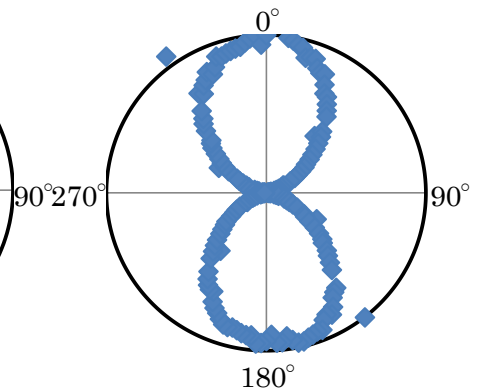


図 5：SH 光偏光依存性