

励起子-プラズモン強結合系の近接場分光特性とダイナミクス

Near-field spectral properties and dynamics of exciton-plasmon strong coupling systems

北大院総化¹, 北大院理² ○(M2) 武内浩輝¹, 今枝佳祐², 龍崎 奏², 上野貢生²

Grad. Sch. of Chem. Sci. and Eng., Hokkaido Univ.¹, Dept. Chem., Fac. Sci., Hokkaido Univ.²

○Hiroki Takeuchi¹, Keisuke Imaeda², Sou Ryuzaki², Kosei Ueno²

E-mail: takeuchi.hiroki.d1@elms.hokudai.ac.jp

【緒言】金属ナノ微粒に光を照射すると局在表面プラズモン共鳴が誘起され、入射光電場強度の数桁倍に及ぶ光電場増強効果を示す。局在表面プラズモン共鳴による光電場増強効果は、空間的な光閉じ込め効果と時間的な光閉じ込め効果の2つの効果によって誘起される。空間的な光閉じ込め効果は、光電場の局在であり、我々はナノギャップ構造が究極の空間的な光閉じ込め効果を示すことをすでに明らかにしている。一方、時間的な光閉じ込め効果は、プラズモンの位相緩和に由来しており、その緩和寿命は数 fs と極めて短いことが知られている。近年、強結合やダークプラズモンなど、結合系プラズモニックナノ構造を用いるとプラズモンが長寿命化することが期待されているが、強結合状態の近接場分光特性やそのダイナミクスは明らかになっていない点が多い。本研究では、励起子-プラズモン強結合系の分光特性とダイナミクスを明らかにすることを目的とした。

【実験】ガラス基板上に電子線リソグラフィ-リフトオフ法により金ナノブロック構造体を作製した。テトラフェニルポルフィリンテトラスルホン酸のJ会合体溶液(TPPS-J, 12 μM)を調整し、金ナノ構造体基板上にドロップキャスト法により成膜してハイブリッド構造体を作製した。励起スペクトル測定には、フォトニック結晶ファイバーにより得たスーパーコンティニューム光を用い、分光器で波長を選択し、顕微発光測定により各波長における発光強度を測定することにより得た。ハイブリッド構造体の位相緩和ダイナミクスは、励起スペクトルの半値全幅やフェムト秒レーザーを用いた干渉型ポンプ・プローブ法により測定した。

【結果と考察】作製した金ナノブロック構造体のプラズモン共鳴波長は、構造サイズに対してほぼ線形的に長波長シフトし、プラズモン共鳴ピークを厳密に制御できることを確認した。ハイブリッド構造体の消光スペクトルは、TPPS-J 会合体 (図 1(a)) や金ナノブロック構造 (図 1(b)) の消光スペクトルでは見られなかった2つのピークが出現し、これらのピークエネルギーをプラズモン共鳴波数に対してプロットした分散曲線では強結合に特有の反交差な振る舞いを示した。一方、励起スペクトルにおいても消光スペクトルと同様の波長域において2つのピークが観測された (図 1(c))。自己相関波形や励起スペクトルの半値全幅から、ハイブリッド準位の位相緩和ダイナミクスを検討したところ、元のプラズモンよりも長寿命化していることが示唆された。本結果から、ハイブリッド準位の形成とその位相緩和寿命の長寿命化を実験的に明らかにすることに成功した。

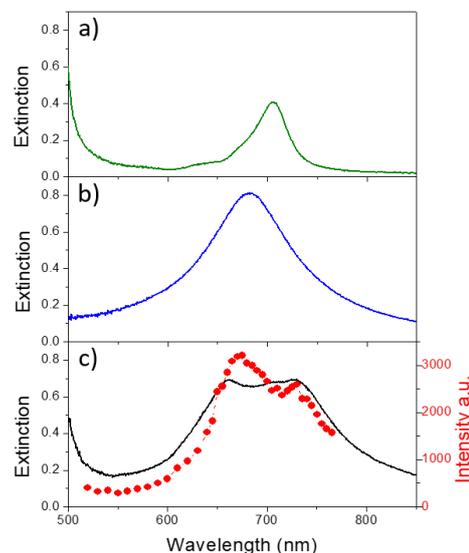


Figure 1. Extinction spectra of TPPS-J (a), gold nanoblocks (b), and the exciton-plasmon strong coupling system (c, solid line) and its excitation spectrum (c, plot).