

励起子-プラズモン強結合系の近接場分光特性

(北大院総化¹・北大院理²) ○武内 浩輝¹・岳 俊峰¹・今枝 佳祐²・上野 貢生²
Near-field spectral properties of exciton-plasmon strong coupling systems (¹Graduate School of Chemical Sciences and Engineering, Hokkaido University, ²Faculty of Science, Hokkaido University) ○Hiroki Takeuchi,¹ Junfeng Yue,¹ Keisuke Imaeda,² Kosei Ueno²

Metal nanostructures show localized surface plasmon resonances (LSPRs). LSPRs which are collective oscillation of conduction electrons give rise to the enhancement of electromagnetic field in the vicinity of the metal nanostructure. This phenomenon is expected to be applied to efficient photochemical reaction fields. However, the phase relaxation time of LSPRs is very short due to elastic phase loss processes such as electron-electron scattering. To strongly confine light in the nanospace using LSPRs, it is essential to extend the lifetime of plasmons. We are trying to control the phase relaxation dynamics by utilizing the strong coupling between LSPRs and exciton composed of molecular aggregates. In this study, we investigated the near-field spectral properties and phase relaxation dynamics of the exciton-plasmon strong coupling system.

Keywords : Localized surface plasmon resonance; Near-field spectrum; Strong coupling; Exciton-polaritons; Phase relaxation dynamics

金属ナノ粒子は、局在表面プラズモン共鳴により入射光電場強度の数桁倍におよぶ光電場増強効果を示す。これにより金属ナノ微粒子近傍に存在する分子からのラマン散乱や光化学反応が促進されることから、高感度化学センサーや光エネルギー変換系への応用が期待されている。しかし、局在表面プラズモンの位相緩和時間は短く、より高い光電場増強を実現するためにはプラズモンの長寿命化が不可欠である。我々は、励起子との強結合によりプラズモン共鳴の位相緩和時間を制御することを試みている。本研究では、ポルフィリン J 会合体を用いた励起子-プラズモン強結合系の近接場分光特性と位相緩和ダイナミクスについて明らかにすることを目的とする。

ガラス基板上に電子ビームリソグラフィー/リフトオフ法により金ナノブロック構造を作製した。構造体上に TPPS-J 会合体を成膜し、既報の顕微吸収測定系により消光スペクトルを測定した。近接場分光特性は、波長可変フェムト秒レーザービームを励起光源として金 2 光子発光の作用スペクトルを測定することにより取得した。位相緩和時間は、フェムト秒レーザー (λ_p : 790 nm, $\tau < 20$ fs, f : 80 MHz) を用いて干渉型ポンプアンドプローブ法により自己相関を測定し、レーザーパルスとある寿命を持つプラズモンとの重畳積分により計算した自己相関によるフィッティングから得た。

励起子-プラズモン強結合系の消光スペクトルは 2 つのピークに分裂した。分裂したピークのエネルギーをプラズモンの共鳴波数に対してプロットして分散曲線を得たところ、強結合に特有の反交差な振る舞いを示した。また、金ナノ構造の近接場スペクトルや位相緩和ダイナミクスを測定できることを確認した。発表では、励起子-プラズモン強結合系の近接場分光特性と位相緩和ダイナミクスについて報告する。