

金属ナノプレートに励起されるプラズモンの対称性とその分光特性

¹早大院先進理工, ²早大理工研

○松浦拓哉¹, 長谷川誠樹¹, 今枝佳祐², 井村考平¹

Symmetry and optical properties of plasmons excited in single metallic nanoplates

○Takuya Matsuura¹, Seiju Hasegawa¹, Keisuke Imaeda², Kohei Imura¹

¹ Graduate School of Advanced Science and Engineering, Waseda Univ.

² Waseda Research Institute for Science and Engineering

【Abstract】

Localized surface plasmon resonances (LSPRs) enhance electromagnetic fields in the vicinity of metallic nanostructures. LSPRs play significant important roles in sensing, nano-optics, and thermal therapy. For further application of the LSPRs, utilizations of various plasmon modes such as multipole and magnetic modes are promising. For that purpose, visualization and characterization of plasmon modes is essentially important. In this study, we visualize plasmon modes in gold hexagonal plates by using a near-field transmission microscopy. We assigned the observed near-field transmission imaging to superpositions of the plasmonic eigen modes. From symmetry analysis based on group theory, the visualized modes are classified to in-plane and out-of-plane modes. We also developed three dimensional near-field imaging apparatus to reveal that spatial distribution of the plasmon modes in detail. We found from 3D near-field imaging that out-of-plane mode confines optical fields more tightly than that for the in-plane mode.

【序】

金属ナノ粒子に励起される局在表面プラズモン共鳴は、微小領域に光を局在化するためナノオプティクスやナノデバイスへの応用が期待される。一次元ナノ構造体に励起されるプラズモンモードは広く研究されている一方、二次元ナノ構造体に励起される高次プラズモンや磁気プラズモンモードに関する研究はあまり進展していない。プラズモンをさらに幅広い分野で応用するためには、二次元ナノ構造体に励起されるプラズモンの立体的な可視化と理解が不可欠である。本研究では、プラズモンの3次元空間特性の可視化を実現する近接場光学顕微鏡 (SNOM) を開発し、それを用いて六角形金ナノプレートに励起されるプラズモンモードの立体的可視化を目的とした。また、群論を用いた対称性の検討から、プレートプラズモンの分極特性を解明することを目的とした。

【方法 (実験・理論)】

化学的に合成した六角金プレートをガラス基板上に分散させ近接場測定試料とした。図 1 に示す近接場プローブ先端と試料表面間の距離 d を制御することで、近接場空間特性の立体的可視化装置を開発した。試料の近接場光学特性は、近接場プローブ開口 (70 - 150 nm) から白色光を試料に照射し、透過光を分光して評価した。粒子内部の固有モードは、二次元無限井戸に閉じ込められた粒子の Schrödinger 方程式を境界条件を考慮して計算した。

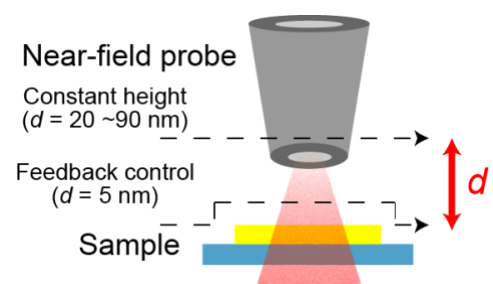


Figure1. Schematic illustration of three dimensional near-field imaging apparatus. Sample-probe distance is defined as d .

【結果・考察】

近接場測定に用いた六角金ナノプレート（SEM）像を図 2(a)に示す。図から、プレートの一辺の長さが 400 nm、また近接場光学顕微鏡の表面形態像計測から厚みが 30 nm であることがわかる。この金ナノプレートの近接場透過スペクトルには、波長 900, 810, 700 nm に共鳴ピークが観測される。図 2(b)に、共鳴波長 900 nm 近傍で測定した金ナノプレートの近接場透過像を示す。明部は、透過光の減少部分を示す。プレートの辺縁部および中心部分に透過光の減少部分が観測され、特徴的な空間パターンが可視化されることがわかる。観測された空間特性の起源を明らかにするため、プレート内部に励起される固有モードの空間特性との比較を行った結果、図 2(b)の空間特性は、図 2(c, d)に示す二つの固有モードの重ね合わせとして説明されることが明らかとなった。これら二つの固有モードは、固有エネルギーが近接するため、近接場観測ではスペクトル分離されず重なりとして観測されたと解釈される。群論を用いた解析から、これらのモードはそれぞれ既約表現 A_1 と B_2 に分類され、それぞれ面外および面内方向に分極したプラズモンモードに帰属される。他の共鳴波長においても特徴的な空間分布が可視化され、固有モードの計算との比較からプラズモンモードに帰属されることが明らかとなった。

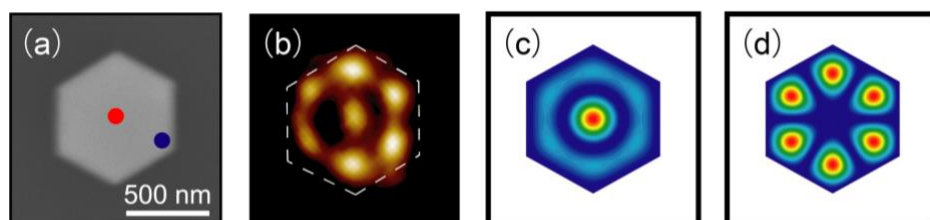


Figure 2. (a) SEM image of single gold hexagonal plate. (b) Near-field transmission image at 900 nm. (c, d) Square moduli of eigenfunction. Eigen energy : (c) $5.25E_0$, (d) $6.66E_0$. (E_0 is eigen energy of lowest order mode). Irreducible representations of (c, d) are A_1 , B_2 in C_{6v} point group, respectively.

図 2(b)で可視化された固有モードの空間特性をさらに詳細に理解するため、試料プローブ間距離を変化させて可視化した近接場透過像を図 3(a, b, c)に示す。興味深いことに、プローブ-試料表面間の距離の増加とともに、プレート中心部分で観測される透過光の減少度合いが小さくなることがわかる。図 3(d)にプレート辺縁部と中心部で測定した透過光強度のプローブ-試料表面間の距離依存性を示す。図から、プレート中心部では二段階の減衰を示し、減衰長がそれぞれ 160, 520 nm である一方、辺縁部では一段階の減衰を示し、その減衰長が 520 nm であることがわかる。中心部において観測される早い減衰は、面外モードに由来すると帰属される。このことは、面外モードが面内モードより早く減衰すること、つまり光閉じ込め効果が高いことを示す。以上のとおり、本研究から金プレートには面内と面外に分極したプラズモンモードが存在することが明らかとなった。また、プラズモンの立体的可視化から、面外モードの光閉じ込め効果が面内モードよりも強いことが明らかとなった。

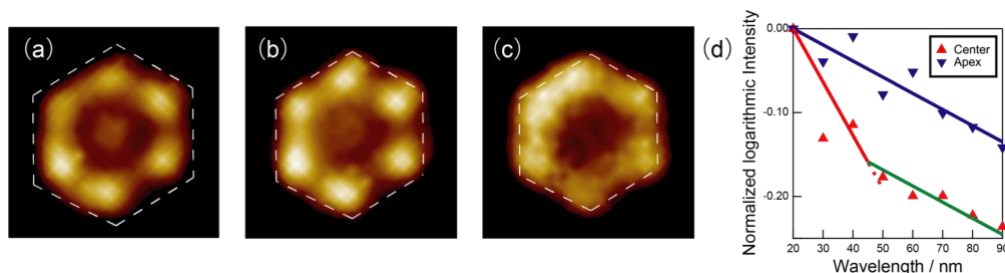


Figure 3. (a, b, c) Near-field transmission images taken at various sample-probe distance: (a) 20, (b) 40, (c) 90 nm. (d) Attenuation slope of extinction intensity at the center and apex of hexagonal plate. Attenuation slopes at apex and center were fitted by single and double exponential decay components, respectively.