

金纳米柱阵列表面等离子体激元与 J-聚集分子强耦合作用

赵泽宇 刘晋侨 李爱武 徐颖

Strong coupling between J-aggregates and surface plasmon polaritons in gold nanodisks arrays

Zhao Ze-Yu Liu Jin-Qiao Li Ai-Wu Xu Ying

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 65, 231101 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.231101

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.231101>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I23>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[基于 Logistic 函数模型的纳米自组装动力学分析](#)

[Kinetic study of nanorods self-assembly process based on logistic function model](#)

物理学报.2016, 65(12): 126101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.126101>

[B/N掺杂类直三角石墨烯纳米带器件引起的整流效应](#)

[Rectifying behaviors induced by B/N-doping in similar right triangle graphene devices](#)

物理学报.2015, 64(19): 196101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.196101>

[GaAs\(111\)表面硅烯、锗烯的几何及电子性质研究](#)

[Atomic and electronic structures of silicene and germanene on GaAs\(111\)](#)

物理学报.2015, 64(18): 186101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.186101>

[虹彩环形结构色氧化铝薄膜的制备与研究](#)

[Preparation and study of anodic alumina thin films with rainbow rings](#)

物理学报.2015, 64(7): 076102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.076102>

[水热法合成纳米花状二硫化钼及其微观结构表征](#)

[Synthesis and characterization of flower-like MoS<sub>2</sub> microspheres by hydrothermal method](#)

物理学报.2015, 64(1): 016102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.016102>

# 金纳米柱阵列表面等离子体激元与J-聚集分子强耦合作用\*

赵泽宇<sup>1)2)</sup> 刘晋侨<sup>3)</sup> 李爱武<sup>1)</sup> 徐颖<sup>1)†</sup>

1)(吉林大学电子科学与工程学院, 集成光电子学国家重点联合实验室, 长春 130012)

2)(中国科学院光电技术研究所, 微细加工光学技术国家重点实验室, 成都 610209)

3)(西安交通大学机械工程学院, 西安 710049)

(2016年5月11日收到; 2016年7月19日收到修改稿)

采用脱模工艺制备了表面光滑的金纳米柱阵列结构, 这种加工方法操作简单、可重复性强, 可以将形貌相同的纳米柱阵列结构大批量复制到不同衬底上。采用这种金纳米柱阵列结构激发表面等离子体激元并实现了其与J-聚集染料分子的强耦合作用。在所制备的杂化耦合体系中, 观测到了200 meV的拉比劈裂值。进一步通过调节金纳米柱阵列的周期来改变耦合强度, 在反射谱中观测到了强耦合存在的标志性实验证据: 耦合杂化态对应能量的反交叉曲线。这种简单并可以大批量制备的强耦合杂化体系对于促进强耦合作用在纳米等离子体器件中的广泛应用具有积极意义。

**关键词:** 强耦合, 拉比劈裂, 表面等离子体激元, J-聚集

**PACS:** 11.15.Me, 61.46.-w, 71.45.Gm, 78.40.-q

**DOI:** 10.7498/aps.65.231101

## 1 引言

近年来, 表面等离子体激元(surface plasmon polaritons, SPPs)与物质之间的相互作用已经得到了广泛的关注与研究<sup>[1–5]</sup>。按照相互作用的强弱, 表面等离子体激元与物质之间的相互作用可以分为两类: 弱耦合与强耦合。在弱耦合作用范围内, 分子的能级结构并未受到扰动, 表面等离子体激元所起到的作用主要是诱导材料分子增强吸收、荧光等<sup>[6,7]</sup>。理论上, 弱耦合作用可以通过费米黄金理论进行描述<sup>[8]</sup>。相反, 当表面等离子体激元与物质之间的相互作用足够强时, 分子的能级结构将会受到扰动。类似于原子之间通过电子交换形成分子轨道, 分子同样可以与表面等离子体激元之间通过交换能量形成相互作用, 当这种能量交换的速率大于任何其他非相干作用损耗的速率时, 就会形成新的表面等离子体激元与分子耦合杂化态<sup>[9,10]</sup>。交换的

能量在分子与表面等离子体激元之间的振荡被称为拉比振荡。当分子能级对应的频率与表面等离子体激元的起振频率共振时, 新的耦合杂化态之间的能量差被称为拉比劈裂。在强耦合作用下, 分子的波函数与表面等离子体激元模式是相干耦合叠加并形成统一的杂化体系。

表面等离子体激元是金属表面的准自由电子气的集体振荡与光子相互作用后形成的共振元激发<sup>[11]</sup>。由于表面等离子体激元具有很高的空间局域性, 所以基于表面等离子体激元的强耦合体系可以将光子与分子都局限在尺寸远小于波长的尺度范围内<sup>[12,13]</sup>, 这使得强耦合成为纳米科学领域的热点研究方向<sup>[14–16]</sup>。目前, 表面等离子体激元已经与多种类型的材料分子如J-聚集分子<sup>[17–20]</sup>、宽光谱染料分子<sup>[21,22]</sup>以及无机半导体量子点等<sup>[23,24]</sup>实现了强耦合。目前实验上观测到的拉比劈裂强度已经达到了约1 eV, 进入了超强耦合的范围<sup>[25,26]</sup>。随着更高耦合强度的实现, 强耦合

\* 国家自然科学基金(批准号: 31378053)资助的课题。

† 通信作者。E-mail: xuying1969@hotmail.com

作用已经被用于调控化学反应速率<sup>[27]</sup>, 调控有机分子的功函数<sup>[28]</sup>、电导率<sup>[29]</sup>以及控制分子间的能量传递过程<sup>[30]</sup>. 而且, 强耦合已经在单体等离子体结构以及单分子水平上得以实现<sup>[12,31]</sup>, 这部分工作奠定了强耦合在量子信息应用方面的基础. 近年来随着飞秒时间分辨光谱技术的发展<sup>[32–35]</sup>, Hao 等<sup>[18]</sup>利用飞秒抽运探测技术在共振激发下对强耦合动力学过程进行了有益的研究, 揭示了强耦合杂化体系的光物理本质.

基于表面等离子体激元的强耦合体系的简易、大批量加工对于强耦合中基本光物理过程的探索以及强耦合在先进纳米等离子体器件中的广泛应用是至关重要的. 本文提出了一种采用脱模工艺制备金纳米柱阵列的方法, 并利用其激发的表面等离子体激元实现了与 J-聚集染料分子的强耦合作用. 这种方法的可重复性强, 可以将形貌相同的金属纳米柱阵列大批量复制到不同衬底上并用于强耦合体系的实现.

## 2 实验部分

### 2.1 试剂与仪器

J-聚集染料为 Thia, 产品号 NK-1976, (Biochemical Laboratories 公司); 聚乙烯醇 PVA (Sigma-Aldrich 公司); 光敏材料为 Norland Optical Adhesive 61 (Norland 公司); 氧化铟锡玻璃 (ITO, 南玻显示器件科技公司).

maAldrich 公司); 光敏材料为 Norland Optical Adhesive 61 (Norland 公司); 氧化铟锡玻璃 (ITO, 南玻显示器件科技公司).

聚焦离子束刻蚀 FIB / 扫描电子显微镜 SEM 双束系统 (FEI Helio NanoLab 650 DualBeam FIB systems); KJL 电子束蒸发系统 (Kurt J Lesker 公司); 紫外分光光度计 (Shimadzu UV2550); 紫外灯光源; 实验室自主搭建的微区反射测试系统.

### 2.2 实验过程

本实验中的表面等离子体激元与 J-聚集染料分子的混合结构是采用脱模工艺技术<sup>[36,37]</sup>制备的, 具体方法如图 1 所示.

模板材料是带有纳米孔阵列的 ITO 导电玻璃. 纳米孔阵列是采用聚焦离子束(FIB)刻蚀方法进行加工的, 具体参数设定如下:  $\text{Ga}^+$  离子发射加速电压 30 kV; 束流 23 nA; 二维扫描过程中每个孔的加工时间为 20 ms, 所得到孔的直径约为 100 nm; 孔阵列周期设定为 250—450 nm; 加工面积为  $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ . 加工完成后的纳米孔阵列的扫描电子显微镜图片如图 2(a) 所示.

将加工完成的 ITO 衬底放入 KJL 电子束蒸发系统中, 在纳米孔阵列结构上蒸镀 200 nm 的金膜,

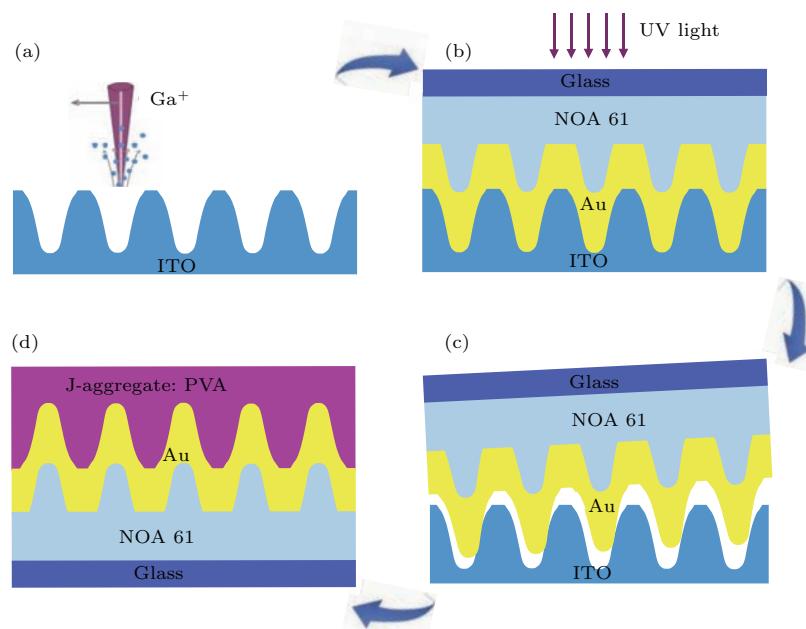


图 1 (网刊彩色) 脱模工艺制备金纳米柱阵列与 J-聚集染料分子耦合结构的流程图

Fig. 1. (color online) Schematic illustration of the template stripping process, the fabricated hybrid system consists of Au nanodisks array and J-aggregate molecules.

蒸发速度控制为  $1 \text{ \AA/s}$ ; 随后, 在蒸镀的金膜上旋涂一层光敏材料 NOA 61, 旋涂转速  $1000 \text{ r/min}$ , 旋涂时间  $30 \text{ s}$ . 之后在 NOA 61 材料上覆盖一块清洗干净的玻璃衬底, 并放入紫外灯箱对 NOA 61 进行固化, 曝光时间  $5 \text{ min}$ .

固化完成后进行脱模处理, 将 NOA 61 上的金膜从具有纳米结构的 ITO 衬底上剥离下来, 由于 ITO 衬底与金膜的黏附程度要小于光敏材料 NOA 61 与金膜的黏附程度, 所以金膜会随着 NOA 61 被剥离下来并完好地复制出孔阵列的结构, 进而形成金纳米柱阵列结构(图 2(b)), 阵列中纳米柱具有圆锥形结构, 柱的高度为  $100 \text{ nm}$ , 表面形貌光滑.

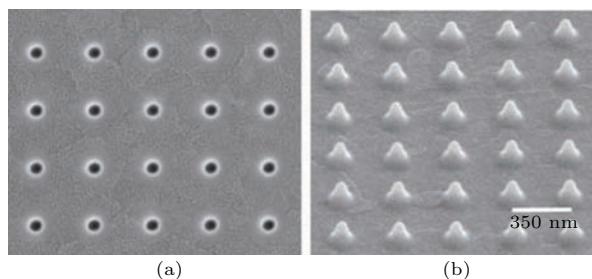


图 2 扫描电子显微镜图片 (a) ITO 纳米孔阵列模板; (b) 金纳米柱阵列结构

Fig. 2. Scanning electron microscope (SEM) images of (a) nanoholes array in ITO glass substrate and (b) Au nanodisks array.

最后, 在金纳米柱阵列结构上旋涂 J-聚集染料与 PVA 的混合薄膜. J-聚集染料与 PVA 粉末分别溶解于水中, 浓度分别为  $8 \text{ mg/mL}$  和  $50 \text{ mg/mL}$ . 充分溶解后按照  $1:1$  的比例进行混合后旋涂在纳米柱结构上, 旋涂速度  $2000 \text{ r/min}$ , 旋涂时间  $60 \text{ s}$ , 混合薄膜的厚度约为  $300 \text{ nm}$ .

实验中采用的 ITO 玻璃表面光滑, 具有优良的导电性能, 非常适合用于聚焦离子束刻蚀加工; 另外光敏材料 NOA 61 是一种无色的液体光刻胶, 在紫外灯曝光下可以很快固化, 而且由于其具有高黏度的性质非常适合应用于脱模工艺中. 完全固化后的 NOA 61 光刻胶可以完全透过  $350$  到  $3000 \text{ nm}$  波长范围内的光, 对我们的光谱测试没有任何影响. 这种采用脱模工艺制备金纳米柱阵列结构的实验方法操作简单, 可重复性强, 剥离后的 ITO 模板仍然可以重复利用, 可以在不同衬底上大批量制备出形貌相同的金纳米柱阵列结构.

### 3 结果与讨论

本实验制备了表面等离子体激元与 J-聚集染料分子的强耦合杂化体系. 体系中所选择的 Thia 染料分子在混合 PVA 旋涂后形成的 J-聚集薄膜在  $623 \text{ nm}$  处有一个很强的吸收峰, 如图 3 中蓝色曲线所示. 同时很窄的吸收光谱也反映出 Thia 分子在形成 J-聚集后具有非常高的振子跃迁强度, J-聚集分子的这种特殊性质使其成为制备强耦合杂化系统的首选分子材料. 另一方面, 杂化系统中的表面等离子体激元是由脱模工艺制备的金纳米柱阵列所激发. 表面等离子体激元的共振频率可以通过纳米柱阵列的周期进行调控, 通过对旋涂有 PVA 介质的纳米柱阵列结构反射谱的测试, 可以发现当纳米柱阵列的周期由  $250 \text{ nm}$  增加至  $450 \text{ nm}$  时, 表面等离子体激元的共振波长可以由  $550 \text{ nm}$  调节至  $730 \text{ nm}$  (图 4(b)). 特别是, 当纳米柱阵列的周期调节至  $350 \text{ nm}$  时, 表面等离子体激元的反射谱与 J-染料分子的吸收谱峰位基本重合(图 3 中灰色和蓝色曲线), 可以形成最高强度的耦合. 图 3 中红色曲线展示了在此周期下旋涂了掺有 J-聚集染料分子的 PVA 薄膜的纳米柱阵列结构的反射谱, 两个新的峰位在  $589$  和  $652 \text{ nm}$  处出现, 对应着新的高能、低能耦合杂化态的形成, 相对应的拉比劈裂强度达到  $200 \text{ meV}$ . 值得注意的是, 这一劈裂的宽度明显大于表面等离子体激元反射谱以及 J-聚集染料分子吸收谱的半波宽, 这也是耦合体系进入强耦合作用范围的显著特性. 然而耦合体系中, 对应于 J-聚集染料吸收峰的位置仍然有很强的反射峰位出现, 说明体系中仍然有一部分 J-聚集染料分子并没有与表面等离子体激元形成耦合, 而是以非耦合态的形式存在于体系中.

为了进一步证明 J-聚集染料分子与金纳米柱阵列所激发的表面等离子体激元之间的相互作用进入了强耦合范围, 我们又对不同相互作用强度的耦合体系进行了研究. J-聚集染料分子与表面等离子体激元间的耦合强度可以通过改变金纳米柱阵列的周期进行调控. 图 4(b) 中展示了金纳米柱阵列的周期由  $250 \text{ nm}$  增大至  $450 \text{ nm}$  时耦合体系的反射谱. 从图中可以看出, 相互作用形成的高能耦合杂化态与低能耦合杂化态的峰位都随着周期的增大而发生红移.

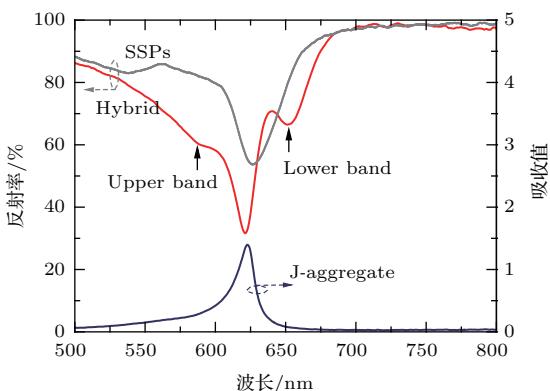


图3 (网刊彩色) J-聚集染料分子薄膜的吸收光谱(蓝色曲线); 350 nm周期的金纳米柱阵列(灰色曲线)与350 nm周期强耦合杂化体系(红色曲线)的反射光谱

Fig. 3. (color online) Absorbance spectrum of the J-aggregate film (blue line); reflection spectrum of Au nanodisks array (gray line) and strong coupling hybrid system (red line) with period of 350 nm.

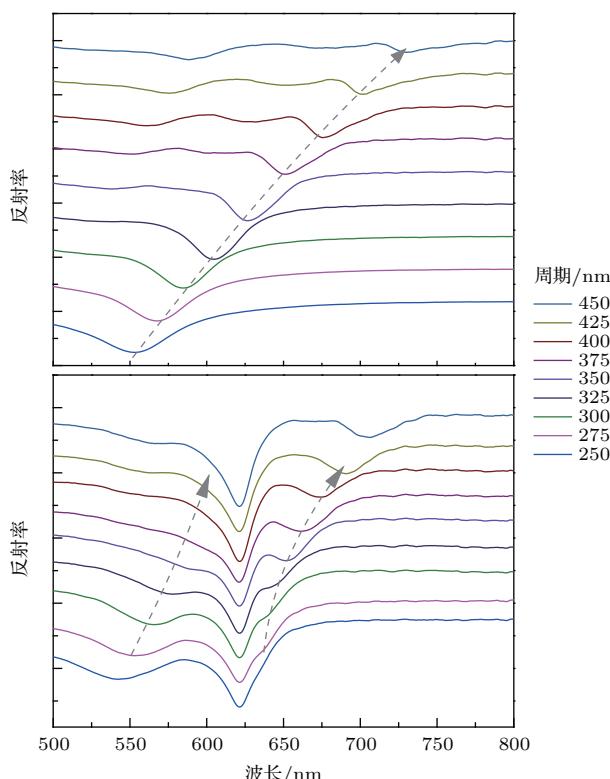


图4 (网刊彩色) (a) 金纳米柱阵列结构; (b) 耦合杂化体系的反射光谱

Fig. 4. (color online) Reflection spectrum of (a) Au disks arrays and (b) hybrid systems.

图5中展示了耦合杂化态的峰位分布图, 蓝色和红色的三角分别对应了高能、低能耦合杂化态峰位所对应的能量。在强耦合作用的范围内, 它们分布于表面等离子体激元色散曲线以及J-聚集染料分子跃迁能级的两侧, 并且呈现出非常明显的反交叉特征, 这一特征被普遍认为是证实强耦合存在的

标志性实验证据<sup>[38]</sup>.

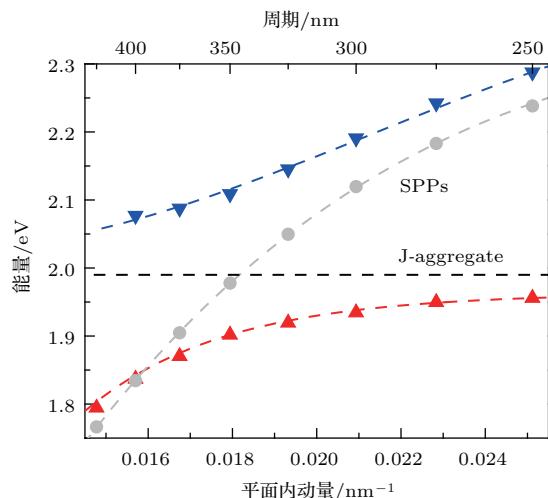


图5 (网刊彩色) 高能、低能耦合杂化态对应能量的反交叉曲线(蓝色和红色虚线); 灰色和黑色曲线分别为SPPs色散曲线和J-聚集染料在623 nm处吸收峰位所对应的能量

Fig. 5. (color online) anticrossing behavior of the upper and lower hybrid bands energies (blue and red dashed lines); the gray and black dashed lines correspond to the energy dispersion curves of SPPs and the J-aggregate 623 nm absorption energy.

## 4 结 论

本文利用脱模工艺制备出金纳米柱阵列结构。这种工艺方法操作简单、可重复性强。应用这种方法可以将表面形貌相同的纳米柱阵列结构大批量复制到不同衬底上。更重要的是, 采用这种表面形貌光滑的纳米柱阵列结构激发表面等离子体激元, 并实现了其与J-聚集染料分子的强耦合作用。耦合杂化体系的拉比劈裂值达到200 meV。并且通过金纳米柱阵列周期的调制, 观测到了不同耦合强度下高能、低能杂化耦合态对应能量的反交叉曲线, 进一步证实了制备出的表面等离子体激元和J-聚集染料分子混合体系中强耦合作用的存在。强耦合杂化体系的简易、大批量制备, 将使强耦合作用在纳米等离子体器件的研发中发挥更大的作用<sup>[9,39]</sup>。

感谢孙洪波教授的讨论与指导。

## 参考文献

- [1] Sheng Y, Fan D H, Fu J W, Yu C P 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 117302 (in Chinese) [沈云, 范定寰, 傅继武, 于国萍 2011 物理学报 **60** 117302]

- [2] Huang Q, Cao L R, Sun J, Zhang X D, Geng W D, Xiong S Z, Zhao Y, Wang J 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1980 (in Chinese) [黄茜, 曹丽冉, 孙建, 张晓丹, 耿卫东, 熊绍珍, 赵颖, 王京 2009 物理学报 **58** 1980]
- [3] Gramotnev D K, Bozhevolnyi S I 2010 *Nat. Photonics* **4** 83
- [4] Xu B B, Zhang R, Liu X Q, Wang H, Zhang Y L, Jiang H B, Wang L, Ma Z C, Ku J F, Xiao F S, Sun H B 2012 *Chem. Commun.* **48** 1680
- [5] Xu B B, Ma Z C, Wang L, Zhang R, Niu L G, Yang Z, Zhang Y L, Zheng W H, Zhao B, Xu Y, Chen Q D, Xia H, Sun H B 2011 *Lab on Chip* **11** 3347
- [6] Wang H, Wang H Y, Gao B R, Jiang Y, Yang Z Y, Hao Y W, Chen Q D, Du X B, Sun H B 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 251501
- [7] Jiang Y, Wang H Y, Wang H, Gao B R, Hao Y W, Jin Y, Chen Q D, Sun H B 2011 *J. Phys. Chem. C* **115** 12636
- [8] Neogi A, Lee C W, Everitt H O, Kuroda T, Tackeuchi A, Yablonovitch E 2002 *Phys. Rev. B* **66** 153305
- [9] Törmä P, Barnes W L 2015 *Rep. Prog. Phys.* **78** 013901
- [10] Khitrova G, Gibbs H M, Kira M, Koch S W, Scherer A 2006 *Nat. Phys.* **2** 81
- [11] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W 2003 *Nature* **424** 824
- [12] Schlather A E, Large N, Urban A S, Nordlander P, Halas N J 2013 *Nano Lett.* **13** 3281
- [13] Zengin G, Wersäll M, Nilsson S, Antosiewicz T J, Käll M, Shegai T 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 157401
- [14] Ding K, Ning C Z 2012 *Light Sci. Appl.* **1** e20
- [15] Fang Y, Sun M 2015 *Light Sci. Appl.* **4** e294
- [16] Lai Y Y, Lan Y P, Lu T C 2013 *Light Sci. Appl.* **2** e76
- [17] DeLacy B G, Miller O D, Hsu C W, Zander Z, Lace S, Yagloški R, Fountain A W, Valdes E, Anquillare E, Soljačić M, Johnson S G, Joannopoulos J D 2015 *Nano Lett.* **15** 2588
- [18] Hao Y W, Wang H Y, Jiang Y, Chen Q D, Ueno K, Wang W Q, Misawa H, Sun H B 2011 *Angew. Chem.* **123** 7970
- [19] Wang H, Wang H Y, Bozzola A, Toma A, Panaro S, Raja W, Alabastri A, Wang L, Chen Q D, Xu H L, De Angelis F, Sun H B, Zaccaria R P 2016 *Adv. Funct. Mater.* DOI: 10.1002/adfm. 201601452
- [20] Wang H, Toma A, Wang H Y, Bozzola A, Miele E, Hadadpour A, Veronis G, De Angelis F, Wang L, Chen Q D, Xu H L, Sun H B, Zaccaria R P 2016 *Nanoscale* **8** 13445
- [21] Väkeväinen A I, Moerland R J, Rekola H T, Eskelinen A P, Martikainen J P, Kim D H, Törmä P 2014 *Nano Lett.* **14** 1721
- [22] Shi L, Hakala T K, Rekola H T, Martikainen J P, Moerland R J, Törmä P 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 153002
- [23] Gómez D E, Lo S S, Davis T J, Hartland G V 2013 *J. Phys. Chem. B* **117** 4340
- [24] Gómez D E, Vernon K C, Mulvaney P, Davis T J 2010 *Nano Lett.* **10** 274
- [25] Kéna-Cohen S, Maier S A, Bradley D D C 2013 *Adv. Opt. Mater.* **1** 827
- [26] Schwartz T, Hutchison J A, Genet C, Ebbesen T W 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 196405
- [27] Hutchison J A, Schwartz T, Genet C, Devaux E, Ebbesen T W 2012 *Angew. Chem. Int. Ed.* **51** 1592
- [28] Hutchison J A, Liscio A, Schwartz T, Canaguier-Durand A, Genet C, Palermo V, Samorì P, Ebbesen T W 2013 *Adv. Mater.* **25** 2481
- [29] Orgiu E, George J, Hutchison J A, Devaux E, Dayen J F, Doudin B, Stellacci F, Genet C, Schachenmayer J, Genes C, Pupillo G, Samori P, Ebbesen T W 2015 *Nat. Mater.* **14** 1123
- [30] Coles D M, Somaschi N, Michetti P, Clark C, Lagoudakis P G, Savvidis P G, Lidzey D G 2014 *Nat. Mater.* **13** 712
- [31] Santhosh K, Bitton O, Chuntonov L, Haran G 2016 *Nat. Commun.* **7** 11823
- [32] Wang L, Li Q, Wang H Y, Huang J C, Zhang R, Chen Q D, Xu H L, Han W, Shao Z Z, Sun H B 2015 *Light Sci. Appl.* **4** e245
- [33] Wang L, Zhu S J, Wang H Y, Qu S N, Zhang Y L, Zhang J H, Chen Q D, Xu H L, Han W, Yang B, Sun H B 2014 *ACS Nano* **8** 2541
- [34] Wang H, Wang H Y, Gao B R, Wang L, Yang Z Y, Du X B, Chen Q D, Song J F, Sun H B 2011 *Nanoscale* **3** 2280
- [35] Gao B R, Wang H Y, Hao Y W, Fu L M, Fang H H, Jiang Y, Wang L, Chen Q D, Xia H, Pan L Y, Ma Y G, Sun H B 2010 *J. Phys. Chem. B* **114** 128
- [36] Vogel N, Zieleniecki J, Koper I 2012 *Nanoscale* **4** 3820
- [37] Liu Y F, Feng J, Cui H F, Zhang Y F, Yin D, Bi Y G, Song J F, Chen Q D, Sun H B 2013 *Nanoscale* **5** 10811
- [38] Dintinger J, Klein S, Bustos F, Barnes W L, Ebbesen T W 2005 *Phys. Rev. B* **71** 035424
- [39] Cao L, Brongersma L M 2009 *Nat. Photonics* **3** 12

# Strong coupling between J-aggregates and surface plasmon polaritons in gold nanodisks arrays\*

Zhao Ze-Yu<sup>1)2)</sup> Liu Jin-Qiao<sup>3)</sup> Li Ai-Wu<sup>1)</sup> Xu Ying<sup>1)†</sup>

1) (State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics, College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, China)

2) (State Key Laboratory of Optical Technologies on Nano-Fabrication and Micro-Engineering, Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610209, China)

3) (School of Mechanical Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

(Received 11 May 2016; revised manuscript received 19 July 2016 )

## Abstract

Recently, much attention has been paid to an interesting subject, i.e., the interactions between surface plasmon polaritons (SPPs) and molecules. The interactions between SPPs and molecules often appear in two opposite cases, namely weak and strong coupling. When the interaction is weak, the absorption maximum simply coincides with the electronic transition energy of the molecule. In the weak coupling regime, the wave functions of the molecule and the SPP modes are considered to be unperturbed, only leading to enhancement of the absorption or fluorescence of the molecules. On the other hand, when the interaction is strong enough, the SPPs and molecules can form a coherent hybrid object, thus the excitation energy is shared by and oscillates between the SPPs and molecular systems (Rabi oscillations), leading to vacuum Rabi splitting of energy levels at the resonance frequency. Due to the fact that both the SPPs and the molecule components can be confined into the nanometer scale, the work on strong coupling with SPPs offers a very good opportunity to realize nanoplasmonic devices, such as thresholdless laser and room temperature B-E condensates.

In this work, we investigate a hybrid system formed by strong coupled gold nanodisk arrays and J-aggregate molecules. Smooth gold nanodisk arrays are fabricated by a template-stripping process. In such an experimentally simple replicate process, mass-production of gold nanodisk arrays with the same morphology can be transferred from patterned indium tin oxides (ITO) glass. The structures on ITO glass are milled with a focused ion beam. Periodic gold nanodisk arrays have the capability of converting light into SPPs modes, resulting in a significant field confinement at the patterned metal surface. In particular, the desired SPP mode can be chosen by changing the nanodisk array period to match the absorbance peak of the J-aggregate molecule. On the other hand, J-aggregate molecule is chosen due to its large dipole moments and absorption coefficient, which makes it attractive for designing the strong exciton-plasmon interaction system. The strong coupled system is formed when the J-aggregate molecule is spin-coated on the gold nanodisk arrays. Through reflection measurements, Rabi splitting energy value 200 meV is observed when the period of the nanodisk array is 350 nm. Through tuning the coupling strength by changing the lattice period from 250 nm to 450 nm, the typical signature of strong coupling: anticrossing of energies is found in reflection spectra. This simple replicate process for strong coupling hybrid system fabrication should play an important role in designing novel ultrafast nanoplasmonic devices with coherent functionalities.

**Keywords:** strong coupling, Rabi splitting, surface plasmon polaritons, J-aggregates

**PACS:** 11.15.Me, 61.46.-w, 71.45.Gm, 78.40.-q

**DOI:** 10.7498/aps.65.231101

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 31378053).

† Corresponding author. E-mail: [xuying1969@hotmail.com](mailto:xuying1969@hotmail.com)