

金属纳米球-纳米圆盘结构中表面等离激元共振模式的电磁场增强研究

李梦君¹, 方 晖²

1. 唐山师范学院物理科学与技术学院, 河北 唐山 063000

2. 深圳大学微纳光子学研究院/纳米光子学研究中心, 深圳市微尺度光信息技术重点实验室, 广东 深圳 518060

摘要 表面等离激元自诞生以来已有一百多年的历史, 并逐渐形成了一门新的学科——表面等离激元光学。位于金属纳米结构中的局域表面等离激元可产生非常显著的近表面电场增强, 并成功应用于诸多研究领域当中, 而对局域表面等离激元与外界入射光中磁场的相互作用的研究则相对较少。该研究在前期已有的研究基础之上模拟计算了金属纳米球-纳米圆盘结构间隙处的近表面电、磁场增强, 研究表明该结构在单束聚焦径向偏振光束的激发下, 金属纳米圆盘产生局域表面等离激元呼吸模式和上下表面处的电偶极矩模式, 该模式使圆盘中心纵向表面电场得到增强。由于金属纳米圆盘与金属纳米球的局域表面等离激元电偶极矩的耦合共振相互作用, 可以形成纵向电场得到有效增强的局域表面等离激元共振间隙模式。通过数值模拟计算研究, 证明该金属纳米结构间隙模式的纵向电场分量相对于径向偏振入射光的有效激发横向电场分量即近表面电场的增强因子高达 250 倍; 而近表面磁场的增强因子高达 170 倍。为了更清晰地展现出这种新型金属纳米结构的光谱特性以及近表面电、磁场分布特征, 还展示出了该金属纳米结构的近表面电场增强分布、近表面磁场振幅分布以及近表面电、磁场共振波长的对比分析, 计算结果表明所提出的金属纳米球-纳米圆盘结构具有明显的局域近表面电、磁场增强优势以及较宽的频谱波段。由于本文提出的金属纳米结构具有电、磁场增强优势, 希望计算结果能应用到更多的研究领域当中, 尤其是生物医学等领域, 为人们抗击疫情提供一点点参考和帮助。

关键词 微纳光学; 金属纳米球-纳米圆盘; 表面等离激元共振; 电磁场增强

中图分类号: O433.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2022)04-1098-06

引言

表面等离激元(surface plasmon polariton, SPP)是自由电子在界面处发生集体相干振荡时形成的一种特殊的表面波, 该表面波可存在于金属(如金、银、铜、铝、碱金属、钯、铂以及合金等)、重掺杂半导体以及一些二维材料^[1]等材料中, 其中以贵金属金和银最为人们所熟知, 被视为研究 SPP 常见的理想材料^[2], 因为贵金属一般都具有较大的自由电子数密度, 是影响 SPP 丰富特性的首要因素。除此之外, SPP 的特性(如共振频率、强度等)还与金属的形貌和结构密切相关。以金属纳米颗粒为代表的金属纳米结构其几何尺寸非常小, 内部包含的原子个数大约仅为 $10^2 \sim 10^4$ 个, 且表面原子

数随其尺寸的减小而迅速增加, 从而形成表面原子数比例较高的金属纳米结构。位于金属纳米颗粒上的 SPP 即局域表面等离激元(localized surface plasmon polariton, LSP)在外界光场的激发下可表现出比较显著的表面电场增强, 该局域表面电场增强被广泛应用于诸多研究领域中, 如荧光^[3]、拉曼散射、非线性光学^[4]、光热转换^[5]、光声效应、催化以及光伏转换^[6-7]等。因此精密设计金属纳米颗粒的形貌和结构来有效地调控 LSP 的性质特别是局域表面电场增强就显得尤为重要, 目前常用的金属纳米结构有: 具有尖角/尖端/边缘的金属纳米颗粒或具有纳米量级间隙的金属纳米颗粒聚集集体等。

根据经典电磁理论人们发现, 自然界中还未发现一种天然材料对外界入射的高频电磁波中的磁场产生响应, 即找不

收稿日期: 2021-03-15, 修订日期: 2021-05-05

基金项目: 国家重点基础研究发展计划项目(2015CB352004), 唐山市科学技术研究与发展计划项目(20130220b), 唐山师范学院科学研究基金项目(2019A07)资助

作者简介: 李梦君, 女, 1986年生, 唐山师范学院物理科学与技术学院讲师 e-mail: aiwomengjun123@126.com

到一种材料在同一波段同时具有负的介电常数和磁导率, 所以一般认为其相对磁导率为 1。而早在 1968 年, 有研究者就曾提出负折射率材料的假设, 但一直没有取得研究进展。直到 2005 年, 人们通过对金属纳米结构及其对称性的设计与优化, 可使金属纳米结构对外界入射电磁波的激发产生很强的磁响应, 即磁表面等离激元(magnetic surface plasmon polariton, MSPP)^[8]。负折射率材料相对于天然材料具有很多特异性质, 如反常多普勒效应、隐身、突破亚波长分辨率成像的衍射极限等^[9], 可以对物理学、光学、化学和材料学等领域的研究产生深远的影响; MSPP 还可以为数据存储、亚波长结构波导、光镊、生物传感器^[10]以及太阳能电池等领域提供新的契机。基于 LSPP 的强局域表面电场的约束作用, 入射光的能量被限制在亚波长、深亚波长甚至是纳米尺度的范围内。同理, 在纳米量级范围内实现磁场的增强也逐渐成为了人们十分关注的问题。目前实现磁场增强的金属纳米结构有: 周期性金属纳米结构(如金属纳米颗粒对阵列^[11])或金属纳米颗粒多聚体^[12]等。

由以上论述可以看出, 具有间隙结构的金属纳米多颗粒能同时实现局域表面电场和磁场的增强, 因此通过对该结构的设计和调控, 可以有效地提高局域表面电场和磁场的增强因子。本文在前期研究工作^[13]的基础之上, 舍去金属纳米球-薄膜结构, 选择金属纳米球-纳米圆盘结构间隙处的新型表面等离激元共振模式继续进行研究, 得出金属纳米球-纳米圆盘结构在单束紧聚焦径向偏振光的激发下, 影响局域表面电场和磁场增强因子的因素, 说明本文提出的新型金属纳米结构既在电磁场增强方面相对于已有的金属纳米结构具有一定的优势, 又能丰富金属纳米颗粒 SPP 的理论、实验研究和广泛应用, 并为后续的进一步深入研究提供一定的参考和基础。

1 实验部分

为了使研究对象更接近于实际实验和广泛应用, 本文对文献^[13]中的研究对象进行了改进, 将两束同轴反向传播的径向偏振光改为单束沿 z 轴正向传播的紧聚焦径向偏振光, 其电场和磁场振幅与入射光波长的变化曲线如图 1 所示。从图 1(a)和(b)可以看出, 经过紧聚焦的径向偏振光在光轴上沿光传播方向出现了相对于径向电场分量较强的轴向电场分量, 但从图 1(c)可知, 光轴上角向磁场的强度则相对比较微弱, 这也正是有些研究领域中忽略入射光中磁场的影响的原因之一。

采用 Comsol Multiphysics 软件模拟计算的金属纳米结构如图 2 所示, 圆盘半径为 600 nm, 厚度为 10 nm, 球半径为 50 nm, 盘和球的间距为 5 nm, 为了视觉效果, 图中盘的厚度扩大了 10 倍。由于该结构和入射激发光都具有二维旋转轴对称性, 因此本文只显示某一旋转平面上的计算结果, 如图中红色方框所示。本文中金属纳米结构的材料为金(对于银材料, 其原理、计算过程、结果分析以及结论基本相同,

故此处不再赘述), 介电常数取自普遍被采用的文献^[14]中的结果, 磁导率为 μ_0 ; 为简单起见, 金属纳米结构周围的介质设为真空。

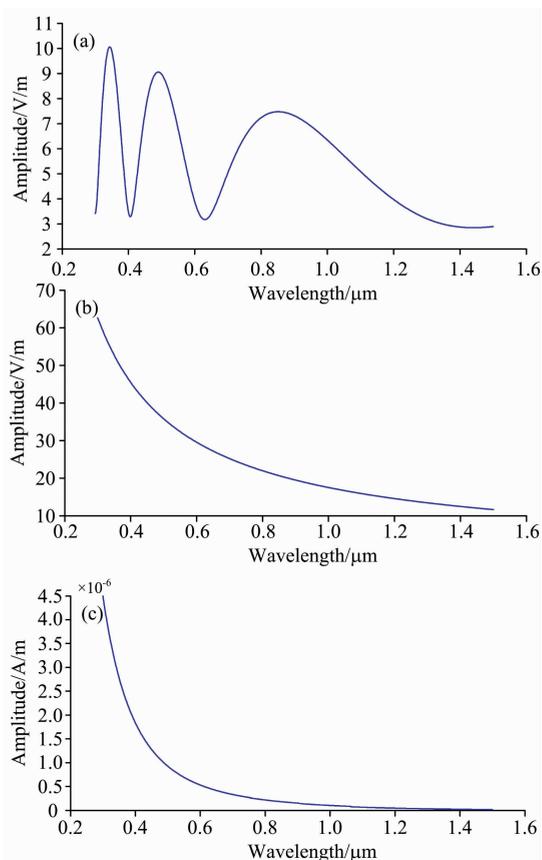


图 1 入射光电、磁场振幅变化曲线

(a): (602, 5) nm 处电场振幅曲线;

(b): (0, 7) nm 处电场振幅曲线;

(c): (0, 7) nm 处磁场振幅曲线

Fig. 1 Amplitude curves of electromagnetic field in incident light

(a): Amplitude curve of electric field at (602, 5) nm;

(b): Amplitude curve of electric field at (0, 7) nm;

(c): Amplitude curve of magnetic field at (0, 7) nm

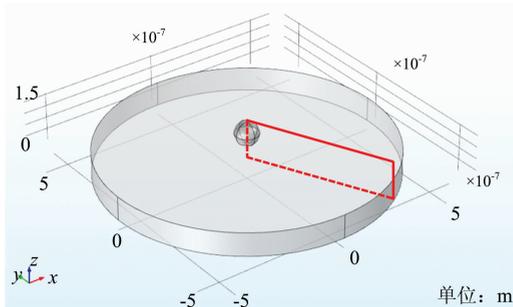


图 2 模拟计算中的金属纳米结构

Fig. 2 Metal nanostructures studied in the simulation

2 结果与讨论

2.1 对金属纳米球-纳米圆盘结构近表面电场的分析

本文首先计算了金属纳米球-纳米圆盘结构的近表面电场随入射光波长的变化, 探测点仍位于 $(r, z) = (0, 7)$ nm 处, 图 3(a), (b) 和 (c) 分别为该结构的近表面电场振幅、增强因子以及相位的模拟计算结果。从图 3(a) 中可以看出, 金属纳米球-纳米圆盘结构的近表面电场振幅的最大值相对于文献[13]中的结果提高了近 50 倍左右; 由图 3(b) 的近表面电场增强因子曲线可知, 金属纳米球-纳米圆盘结构的近表面电场增强因子的最大值是文献[13]中结果的接近 2 倍; 此外在图 3(a) 和 (b) 中, 两条曲线都显示出了三个比较明显的共振峰, 分别位于 600, 650 和 720 nm 处, 此共振峰相对于文献[13]中的结果都有了一定的蓝移, 而在波长为 400 和 900 nm 处, 近表面电场振幅/增强因子曲线看似比较平缓, 实际上此处应为两个相对较低的共振峰, 因为在图 3(c) 中, 波长为 400 和 900 nm 时, 近表面电场的相位出现了突变。另外, 从图 3(c) 中还可以看出, 图中共有 7 个近表面电场的相位突变, 因此不管是近表面电场振幅曲线还是增强因子曲线, 都应有 7 个共振峰, 由于近表面电场相位的变化比其振幅/增强因子的变化要快, 故只能在图 3(a) 和 (b) 中观察到 5 个共振峰, 而位于近紫外区域的 2 个共振峰则被 400 nm 处

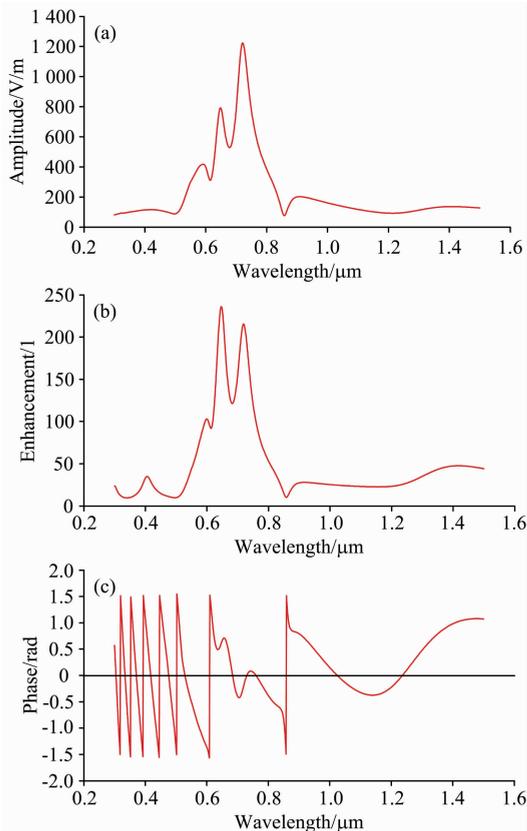


图 3 近表面电场激发情况

(a): 振幅; (b): 增强因子; (c): 相位

Fig. 3 Simulations of near surface electric field

(a): Amplitude; (b): Enhancement; (c): Phase

的共振峰所掩盖。

值得注意的是图 3 中每个共振峰各对应着一种 LSPP 呼吸模式^[13]。当外界激发光入射到金属纳米圆盘上时, 入射光中的径向电场分量在圆盘上激发出 LSPP 呼吸模式, 使得圆盘轴线上聚集了一定量的电子, 产生了比较强的纵向电场分量; 此外, 入射光中的轴向电场分量也在圆盘上下表面处发出电偶极矩, 这使得圆盘轴线上的电子数量进一步增加, 从而使纵向电场分量进一步得到增强。此时金属纳米圆盘和金属纳米球的 LSPP 电偶极矩模式相互耦合形成了间隙模式, 当两者的能量相近时, 间隙处的共振耦合作用得到加强, 从而得到更强的纵向电场分量。此外, 对近表面电场振幅/增强因子平方即可推知光谱结果, 可以看到本文提出的金属纳米结构的共振波长可覆盖近红外至近紫外区域, 具有较宽的频谱波段, 显示出了该结构在近表面电场调控(强度和共振波长)方面具有一定的优越性。

为了更直观地展示金属纳米球-纳米圆盘结构的近表面电场增强分布, 本文选取入射光波长分别为 600, 650 和 720 nm 时即在共振峰处间隙结构处的近表面电场激发情况, 如图 4(a), (b) 和 (c) 所示, 其中不同颜色代表了近表面电场振幅的增强, 而黑色箭头则显示了纵向电场分量的增强, 其中图 4(a) 显示的为虚部; 图 4(b) 和 (c) 显示的为实部。从图中可以看出, 在金属纳米圆盘与金属纳米球产生共振时, 间隙结构处的局域近表面电场得到了成百倍的增强, 尤其是在 650

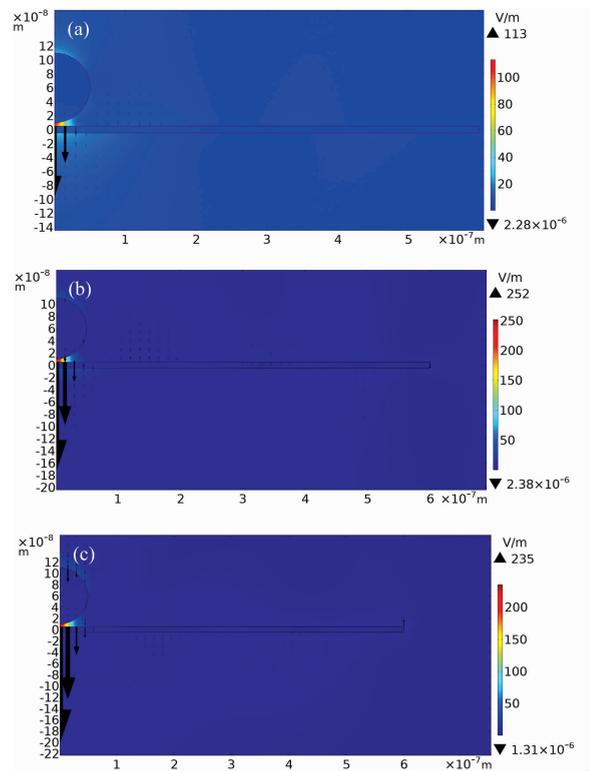


图 4 共振波长处的近表面电场分布

(a): 600 nm; (b): 650 nm; (c): 720 nm

Fig. 4 Distributions of near surface electric field at resonant wavelength

(a): 600 nm; (b): 650 nm; (c): 720 nm

nm 处, 增强因子高达 250 倍左右; 且入射光的能量大部分聚集于此, 从而形成所谓的高能量密度的“热点”, 可以显著地增强各种光与物质的相互作用过程^[15]。

2.2 对金属纳米球-纳米圆盘结构近表面磁场的分析

与由金属纳米圆盘边缘处径向偏振光的电场激发金属纳米圆盘上 LSPR 呼吸模式不同, 间隙结构处的近表面磁场则是由探测点处的入射光中的磁场激发产生, 因此本文取探测点处的入射激发光来做计算, 图 5(a), (b) 和 (c) 分别为该结构的近表面磁场振幅、增强因子以及相位的模拟计算结果。从图 5(a) 可以看出, 金属纳米球-纳米圆盘结构的近表面磁场振幅在 10^{-5} 量级左右, 而入射光中的磁场振幅则在 10^{-6} 量级左右 (见图 1(c)), 由此可知, 激发光在入射到间隙结构处时, 不仅近表面电场得到了增强, 近表面磁场也得到了一定的增强, 其增强因子曲线如图 5(b) 所示。由图 5(b) 可知, 金属纳米球-纳米圆盘结构的近表面磁场增强因子的最大值已达到 170 倍, 表现出了一定的增强优势。此外在图 5(a) 和 (b) 中, 两条曲线都显示出了四个不同的共振峰, 分别位于 590, 650, 720 和 900 nm 处。与近表面电场增强因子曲线相比, 图 3(b) 中 650 和 720 nm 处两个峰的峰值较高, 而图 5(b) 中只有 720 nm 处的峰值较高。另外, 从图 5(c) 中还可以看出, 图中共有 8 个近表面磁场的相位突变, 因此不管是近

表面磁场振幅曲线还是增强因子曲线, 都应有 8 个共振峰, 由于相位的变化要快于振幅/增强因子的变化, 故只能在图 5(a) 和 (b) 中观察到 4 个共振峰, 而位于近紫外区域的 3 个共振峰应该是被波长更短处的共振峰所掩盖, 位于近红外区域的 1 个共振峰应该是被波长更长处的共振峰所掩盖。

为了更直观地展示金属纳米球-纳米圆盘结构的近表面磁场分布, 本文选取在近表面电场增强时的共振波长间隙结构处的近表面磁场激发情况, 如图 6(a), (b) 和 (c) 所示, 其中不同颜色代表了近表面磁场的振幅, 而黑色箭头则显示了角向磁场的分布 (由于磁场方向垂直于 rz 平面, 故显示三维图形), 三个图显示的均为虚部。从图中可以看出, 探测点 $(r, z) = (0, 7)$ nm 处的磁场振幅相当于 $(r, z) = (30, 7)$ nm 处磁场振幅的 10^{-3} 倍左右, 但其增强因子的最大值确是后者的接近 7 倍, 显示出了一定的近表面磁场的增强优势。此外, 从图 6 还可以看出, 随着入射光波长的增加, 不仅近表面磁场的振幅/增强因子随之增加, 而且入射光的能量越来越向间隙结构附近处集中, 从而实现近表面磁场的局域化。

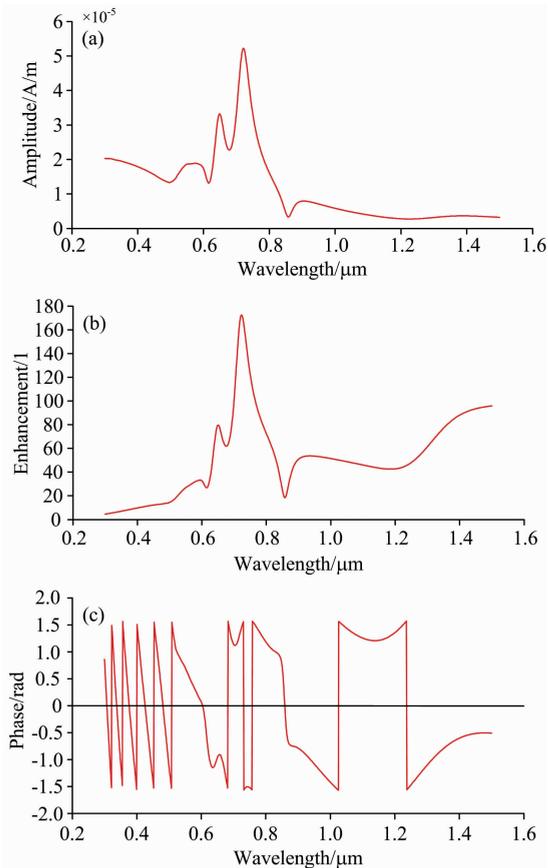


图 5 近表面磁场激发情况

(a): 振幅; (b): 增强因子; (c): 相位

Fig. 5 Simulations of near surface magnetic field

(a): Amplitude; (b): Enhancement; (c): Phase

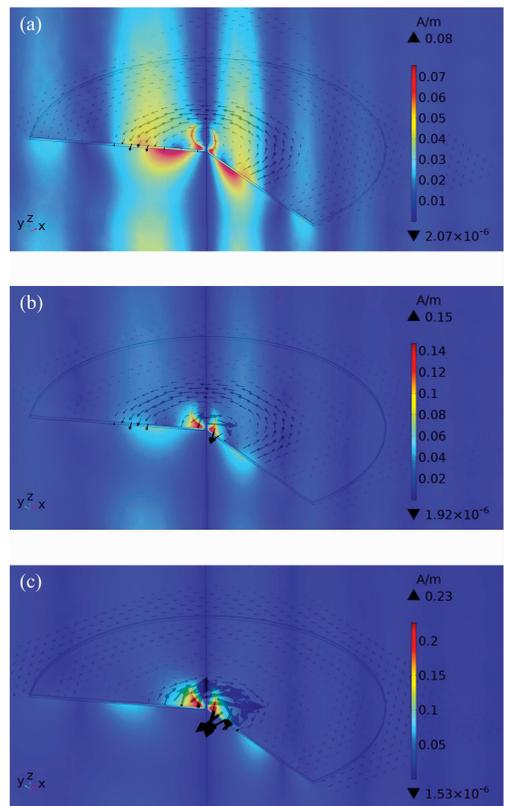


图 6 共振波长处的近表面磁场分布

(a): 600 nm; (b): 650 nm; (c): 720 nm

Fig. 6 Distributions of near surface magnetic field at resonant wavelength

(a): 600 nm; (b): 650 nm; (c): 720 nm

2.3 金属纳米球-纳米圆盘结构近表面电、磁场共振波长分布的对比

本文列出了金属纳米球-纳米圆盘结构在单束紧聚焦径向偏振光正入射情况下的近表面电、磁场共振波长分布, 如

表 1 所示。从表中的相互比较可以看出,金属纳米球-纳米圆盘结构的近表面电、磁场出现增强时,其入射光波长基本上都比较接近,有些情况下则完全相同(如 900 nm 处)。由此

可以看出,在共振波长处(或附近),本文提出的金属纳米结构可以同时实现近表面电、磁场的增强,展示出了一定的近场增强优势。

表 1 近表面电、磁场共振波长对比

Table 1 Comparison of resonant wavelength of near surface electromagnetic field

| | | 波长/ μm | | | | | | | | |
|----|------|-------------------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| 电场 | 振幅 | 0.4 | | | | 0.587 5 | 0.65 | 0.72 | 0.9 | |
| | 增强因子 | 0.4 | | | | 0.6 | 0.65 | 0.718 8 | 0.9 | |
| | 相位 | 0.318 8 | 0.35 | 0.388 | 0.443 8 | 0.5 | 0.61 | 0.856 3 | | |
| 磁场 | 振幅 | | | | | 0.562 5 | 0.7 | 0.718 8 | 0.9 | |
| | 增强因子 | | | | | 0.593 8 | 0.65 | 0.725 | 0.9 | |
| | 相位 | 0.321 4 | 0.353 6 | 0.401 8 | 0.45 | 0.507 9 | 0.685 7 | | 0.758 6 | 1.028 6 |

3 结 论

模拟计算结果表明,金属纳米球-纳米圆盘结构在单束聚焦径向偏振光的激发下会产生 LSPP 和 MSPP 近表面电、磁场的增强:近表面电场的增强因子高达 250 倍;近表面磁场的增强因子高达 170 倍,显示出了非常好的近场增强优势。但也应该看到,本文提出的金属纳米结构的近表面磁

场增强因子相对于已经报道的金属纳米结构(即金属纳米颗粒对阵列)还有一定的差距,如何进一步设计、优化金属纳米结构来同时提高近表面电、磁场的增强因子将是下一步的研究目标。此外,如何将金属纳米结构的近表面电、磁场增强应用于生物医学领域更是接下来长期的研究目标,也希望本文及以后的研究结果能为人们抗击疫情提供一份微薄之力。

References

- [1] Li Y, Li Z W, Chi C, et al. *Advanced Science*, 2017, 4(8): 1600430.
- [2] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W. *Nature*, 2003, 424: 824.
- [3] Li J F, Li C Y, Aroca R F. *Chem. Soc. Rev.*, 2017, 46: 3962.
- [4] Kauranen M, Zayats A V. *Nature Photonics*, 2012, 6: 737.
- [5] Brongersma M L, Halas N J, Nordlander P. *Nature Nanotechnology*, 2015, 10: 25.
- [6] Gangadharan D T, Xu Z H, Liu Y L, et al. *Nanophotonics*, 2017, 6(1): 153.
- [7] Rho W Y, Song D H, Yang H Y, et al. *Journal of Solid State Chemistry*, 2018, 258: 271.
- [8] Gollub J N, Smith D R, Vier D C, et al. *Physical Review B*, 2005, 71(19): 195402.
- [9] Fang N, Lee H, Sun C, et al. *Science*, 2005, 308(5721): 534.
- [10] Manera M G, Colombelli A, Taurino A, et al. *Scientific Reports*, 2018, 8: 12640.
- [11] Chen J, Nie H, Zha T Q, et al. *Journal of Lightwave Technology*, 2018, 36(13): 2791.
- [12] Fan J A, Wu C, Bao K, et al. *Science*, 2010, 328: 1135.
- [13] LI Meng-jun, FANG Hui, LI Xiao-ming, et al(李梦君, 方 晖, 李小明, 等). *Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析)*, 2019, 39(1): 8.
- [14] Johnson P B, Christy R W. *Physical Review B*, 1972, 6(12): 4370.
- [15] YU Hua-kang, LIU Bo-dong, WU Wan-ling, et al(虞华康, 刘伯东, 吴婉玲, 等). *Acta Physica Sinica(物理学报)*, 2019, 68(14): 149101.

Research of Electromagnetic Field Enhancement of Surface Plasmon Resonant Mode in Metal Nanosphere-Nanodisc Structure

LI Meng-jun¹, FANG Hui²

1. College of Physics Science and Technology, Tangshan Normal University, Tangshan 063000, China

2. Nanophotonics Research Center, Shenzhen Key Laboratory of Micro-Scale Optical Information Technology & Institute of Microscale Optoelectronics, Shenzhen University, Shenzhen 518060, China

Abstract Surface plasmon has a history of more than one hundred years since its birth and has been a brand new discipline-plasmonics. Localized surface plasmon in metal nanostructures can gain very strong near-surface electric field enhancement and has been applied to many types researches successfully. However, there is relatively less study of the interaction between localized surface plasmon and magnetic field in incident light. This paper calculates the near-surface electromagnetic field enhancement of metal nanosphere-nanodisc gap based on the previous achievement. This paper shows that under the excitation of the single tightly radially polarized optical beam, the metal nanodisc can produce localized surface plasmon breathing mode and electric dipole moment mode, which give rise to the longitudinal electric field enhancement at the nanodisc center. And then, because of the resonance interaction of the metal nanodisc and localized surface plasmon electric dipolar moment of the metal nanosphere, a gap mode of localized surface plasmon resonance with efficient longitudinal electric field enhancement can be produced. Through carrying out the numerical simulation, this paper demonstrates that the near-surface longitudinal electric field of metal nanostructure gap mode can obtain 250 times electrical field enhancement relative to the valid transverse electrical field that is used to excite the breathing mode, and the enhancement factor of near-surface magnetic field could be 170. In order to present more clearly the character of the spectrum and the near-surface electromagnetic field distribution of this new metal nanostructure, the near-surface electromagnetic field distribution and the resonant wavelengths of this new metal nanostructure are also studied. The calculation results show that the proposed metal nanosphere-nanodisc nanostructure owns an obvious advantage on the local near-surface electromagnetic field enhancement and a relatively large frequency spectrum. Due to the electromagnetic field enhancement advantage of the metal nanostructure proposed by this paper, the future is not without hope that the results here could be applied to more and more researches, especially biomedicine, and provide a bit of reference in order to fight for novel coronavirus.

Keywords Micro-nano optics; Metal nanosphere-nanodisc; Surface plasmon resonance; Electromagnetic field enhancement

(Received Mar. 15, 2021; accepted May 5, 2021)