

# 双金属纳米天线在少周期激光中的宽带超快电磁响应\*

杨盈莹<sup>1)2)</sup> 张永亮<sup>1)</sup> 赵震声<sup>1)</sup> 段宣明<sup>1)†</sup>

1) (中国科学院理化技术研究所, 中国科学院功能晶体与激光技术重点实验室, 北京 100190)

2) (中国科学院研究生院, 北京 100190)

(2011年2月27日收到; 2011年3月22日收到修改稿)

研究了耦合的核壳双金属纳米粒子天线的光场增强与超快时域响应. 在少周期激光的应用中, 如表面等离子激元金属纳米器件中的超快响应探测元件, 这种双金属天线展示了超宽带共振频谱及控制局域表面等离子激元增强的能力. 研究了二聚体、三聚体以及七聚体, 并且发现三聚体 Ag/Au 核壳结构显现了极高的场增强能力, 其场振幅增强因子超过了 120, 并在 5 fs 的时间内场振幅迅速衰减为 30, 保持了超快的光学响应特性. 利用该结构的表面等离子激元增强效应产生高次谐波, 对于产生超快阿秒脉冲有着潜在的重要应用价值.

**关键词:** 纳米光学天线, 双金属球壳结构, 少周期激光脉冲, 表面等离子激元

**PACS:** 42.50.Nn, 42.62.-b

## 1 引言

在过去的 20 年中, 强场激光超短脉冲的出现对科学技术和人类社会产生了深刻的影响, 开拓了光与物质相互作用的新研究领域, 成为现代超快物理学中非常重要的研究手段. 高强度的激光脉冲能量可以剥离原子中的电子, 通过激光脉冲控制, 被电离出来的电子返回母离子时发生碰撞结合, 产生具有超宽频谱的高次谐波<sup>[1]</sup>. 这一发现对新的 X 射线光源、激光驱动的离子加速器和极紫外 (extreme ultraviolet, 简记为 XUV) 波段的阿秒脉冲<sup>[1]</sup> 的研究都有很大的促进作用. 这种新的 XUV 光源对基础科学研究、观测及控制电子在复杂体系中的运动有着深远的影响, 不仅是对单电子进行控制, 也包括对电子集体运动的相干控制. 在纳米结构的物质中, 表面等离子激元 (表面电荷密度波) 可以通过改变纳米尺度的光学器件的大小、形状和材料来调控. 当少周期的激光脉冲照射到金属纳米结构上, 将会激发超快过程的电磁场. 纳米尺度的局域表面等离子激元的移相时间通常在 5—100 fs, 这使得用飞秒激

光对局限在纳米尺度的光能量进行相干控制成为可能. 在金属纳米结构中, 电子或费米子的集体运动打开了阿秒时间尺度的超快过程研究大门<sup>[2]</sup>. 理解及掌握在飞秒及阿秒时间尺度下纳米体系中的粒子的集体振荡, 对下一代纳米光子学器件有着重要的意义, 这将有利于发展基于纳米结构的表面等离子激元增强的新型 XUV 及 X 射线光源<sup>[3]</sup>, 以及超越硅基光电器件数倍的超高速全光器件<sup>[4]</sup>.

金属纳米天线的出现为少周期的激光脉冲及高次谐波的应用提供了一个非常有前景的发展方向. 在这些应用当中, 利用金属纳米粒子构成的光学天线产生超快电磁场响应, 能使入射光的强度增大若干个数量级. 对于高次谐波 (high-harmonic generation, 简记为 HHG)<sup>[3]</sup> 来说, 以宽带飞秒激光振荡器为入射光, 其聚焦后的能量可达到  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>, 利用纳米天线的表面等离子激元共振放大两个数量级即可达到产生高次谐波的阈值, 并且不会对纳米结构产生破坏. 在韩国 Kim 小组<sup>[3]</sup> 的工作中就采用了这样的方法, 利用金属蝴蝶结构对激光脉冲的放大作用, 观察到了高次谐波信号.

\* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2010CB934103)、国家自然科学基金 (批准号: 61077028, 50973126) 和国家科技部国际合作项目 (批准号: 2008DA02050, 2010DFA01180) 资助的课题.

† E-mail: xmduan@mail.ipc.ac.cn

但这种方法所需要的纳米天线需要采用电子束和离子束刻蚀的方法加工, 制作工艺复杂且成本比较高, 不适用于大规模批量生产纳米结构, 这也限制了入射激光光束的有效作用面积.

Au 和 Ag 的纳米粒子, 由于其独特的光学以及电磁响应特性, 一直以来在表面等离子激元光学中都是研究的热点. 它们可以用胶体化学<sup>[5]</sup>或微纳加工刻蚀<sup>[6]</sup>的方法制造出来. 在可见光和红外波段的表面等离子激元共振增强特性<sup>[7-9]</sup>使它们有相当强的应用潜力. 由这些金属构成的纳米光学天线, 其局域表面等离子激元共振可以产生远高于激励源的光强, 并且能量高度集中. 因此这些纳米结构的表面等离子激元器件是操纵具有高能量且空间上高度集中的电磁场的关键因素. 它们能把光的能量控制在纳米尺度上<sup>[10-12]</sup>, 在光学物理上开辟了超越衍射极限的新领域, 被广泛地运用在近场扫描光学显微镜<sup>[13,14]</sup>、光通信集成器件<sup>[15]</sup>、纳米量级的高密度信息存储<sup>[16]</sup>及生物传感器方面<sup>[17,18]</sup>.

本文中我们研究了由 Ag/Au 的核壳结构组成的双金属纳米天线结构的特性. 这种双金属核壳结构最近被用胶体化学方法成功地合成出来<sup>[19,20]</sup>, 由于采用 Au 作为外层壳, 这就避免了内层金属 Ag 被氧化. 在实验方面, 这种双金属结构的化学方法制备及光谱测试近年来已有文献进行报道<sup>[19-22]</sup>. 我们将其应用于少周期激光脉冲, 对其进行理论计算分析及优化设计. 采用数值方法计算并优化了这种双金属纳米天线, 并与纯 Au 和纯 Ag 纳米结构进行比较. 我们发现当双金属结构的核壳比例经过优化设计和调整后, 这种双金属纳米天线比起纯 Au 或纯 Ag 构成的纳米天线有着更高的表面等离子激元增强能力, 而且, 它们的表面等离子激元共振光谱覆盖可见光到红外波段, 其超宽的频谱响应实现了超快的时域响应. 通过比较可用自组装法合成的二聚体、三聚体和七聚体结构的双金属纳米粒子光学天线, 发现优化设计其几何结构后, 双金属纳米天线不仅可以提供超宽的共振频谱, 也增大了电磁场增强的有效面积, 这对基于纳米结构产生高次谐波以及产生孤立的阿秒脉冲等应用具有重要的意义.

## 2 Au, Ag 及 Ag/Au 双金属结构纳米天线的性质比较

图 1 展示了 Ag/Au 双金属核壳结构的纳米粒

子的结构. 小球的内核由 Ag 构成, 外面由厚度为  $h_{\text{Au}}$  的 Au 壳包覆, 小球的总半径为  $R$ . 我们采用了有限元法 (finite element method, FEM)<sup>[23]</sup> 计算金属粒子的光学响应. Au 和 Ag 的介电常数采用了 Palik 的实验数据<sup>[24]</sup>. 在我们的理论模型中, 金属纳米粒子的外界环境是真空 (折射率为 1.0), 总的计算区域是  $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ , 采用了厚度为 500 nm 的完美匹配层 (perfect matched layer, 简记为 PML) 作为边界吸收条件<sup>[25]</sup> 包围在计算区域的外面. 为确保对近场天线的计算精度, 我们划分的三维计算单元网格为  $1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm}$ <sup>[26]</sup>.

我们优化核壳结构的目标有 3 个方面: 1) 共振频谱与中心波长为 800 nm 的 Ti: Sapphire 飞秒激光入射光源相匹配, 最大化表面等离子激元的增强因子; 2) 优化表面等离子激元共振 (场振幅增强因子 > 100) 的增强区域, 扩大能够产生高次谐波 HHG 的区域面积; 3) 设计纳米结构的排列, 使表面等离子激元共振响应有超快响应. 基于以上目的, 我们相继研究了不同金属纳米小球的排列, 单个的以及耦合的二聚体、三聚体和七聚体纳米天线.

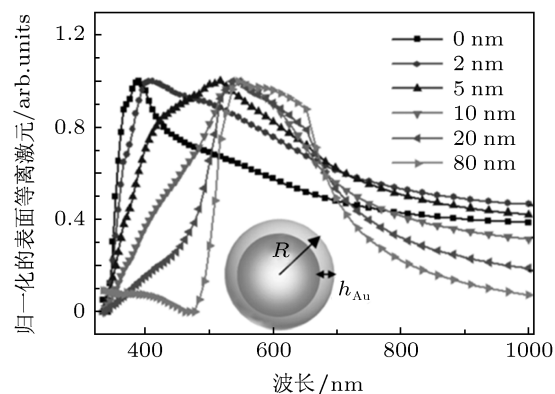


图 1 不同壳厚的 Ag/Au 双金属核壳结构纳米粒子的共振光谱

由于共振频率和场增强因子对金属纳米结构的形状和排列非常敏感, 因此我们首先计算了不同的 Au 外壳厚度对双金属结构纳米小球的光学性质产生的影响 (图 1). 双金属核壳结构的小球半径  $R$  固定为 80 nm. Au 外壳厚度  $h_{\text{Au}}$  由 0 nm 增加到 80 nm, 即小球由纯 Ag 逐渐变化到纯 Au. 为计算该结构对每个波长的共振谱, 我们分别以归一化后每个波长的平面波为入射源, 由上方照射在纳米小球上, 入射场的极化方向为横向. 在距离双金属小球表面的 2 nm 处探测所激发出的表面等离子激元, 结果如图 1 所示. 比较双金属结构和纯 Au 及

纯 Ag, 可以清楚地观察到双金属结构有着更宽的共振频谱. 当 Au 壳厚度增加时, 共振光谱有红移现象, 光谱带宽也随之变化, 最宽的共振带宽出现在 Au 壳厚度为 5 nm 时.

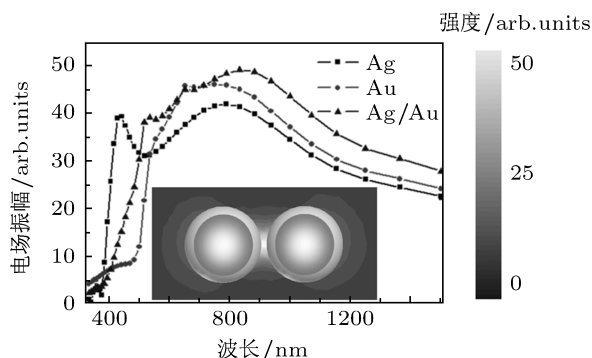


图2 双金属 Ag/Au 核壳结构及纯 Au、纯 Ag 结构纳米天线的表面等离子共振光谱 插图为耦合的双金属纳米小球天线的增强电场分布

当单个的双金属核壳结构的纳米小球有着超宽的频谱响应时, 其电磁场的增强能力却很有限, 这就限制了其应用范围, 例如不利于应用在高次谐波的产生上. 因此, 我们进一步研究了优化后的纳米小球组成的耦合纳米天线结构, 使其能够产生足够高的场增强效应. 首先研究了最简单的耦合结构, 由一对纳米小球组成的二聚体, 小球间的距离间隔为 5 nm(图 2), 其中, 双金属小球的外层 Au 壳厚度为 5 nm, 小球总半径  $R = 80$  nm. 并且, 计算了两小球间隙中心的光场, 与同样结构的纯 Au, 纯 Ag 纳米天线进行了比较.

图 2 为模拟的双金属及纯 Au, 纯 Ag 结构的纳米小球表面等离子共振增强共振光谱. 场振幅增强因子的最大值在三种材料中均超过了 40. 并且, 光强增强因子在纳米小球间隙中, 有  $50 \text{ nm} \times 50 \text{ nm} \times 50 \text{ nm}$  的范围超过了 100, 这样, 利用表面等离子共振的增强就足够产生 XUV 光. 比较三种不同材料的耦合纳米小球对, 耦合的 Ag 纳米粒子具有最宽的表面等离子共振光谱. 相对于 Au 纳米粒子的共振谱线, Ag 纳米粒子偏向蓝光波段. 耦合的 Au 纳米小球天线有着比 Ag 更高的场增强因子, 但共振光谱带宽却相对比较窄. 双金属核壳结构的小球构成的纳米天线结合了 Au 和 Ag 的优点, 有着从 500 nm 到 1200 nm 超宽的共振光谱, 且最大场振幅增强因子达到了 50. 值得注意的是, 耦合的纳米小球对的间隙 5 nm 是任意选取的, 更小的间距 1—5 nm 均可以由自组装方法实现及调节<sup>[27,28]</sup>. 当计算更小的耦合纳米粒子间距

时, 我们发现其共振频谱仅有微小的不同, 稍稍向红光方向偏移, 频谱带宽是相似的. 但增强因子有着显著的提高, 这使得耦合纳米粒子有着更广阔的应用范围.

### 3 三聚体和七聚体 Ag/Au 核壳结构纳米天线的超宽电磁响应

通过改变紧密排列的团簇中粒子的数目、位置及大小, 共振光谱会出现强烈的进场增强特性及类 Fano 共振现象<sup>[29]</sup>. 在这些紧密相邻的粒子间隙中, 产生强烈的表面等离子耦合共振, 表现为表面等离子激元的混合模式<sup>[30]</sup>. 目前报道的利用自组装方法制备的金属纳米小球, 其间距可以控制在 2 nm 附近.<sup>[27,28]</sup> 其分辨率超过目前的微纳蚀刻加工方法. 这种化学合成的方法方便且成本低, 能够大批量生产二维和三维的纳米表面等离子激元结构<sup>[31,32]</sup>. 我们理论计算了 Ag/Au 核壳结构的三聚体和七聚体的表面等离子共振光谱及透射光谱. 基于现今的自组装技术<sup>[27,28]</sup>, 我们选择了 2 nm 作为三聚体和七聚体结构的相邻粒子间隙. 并且, 在设计耦合的纳米天线结构中, 我们选用了同样大小的粒子, 这简化了制备过程中的难度.

三聚体和七聚体的排列分别显示在图 3 中. 半径  $R = 80$  nm, 外壳金的厚度为 5 nm, 相邻小球间隙为 2 nm, 在最上端空隙的中心测得它们的增强光谱, 并分别显示于图 3(a) 与 3(b) 中, 入射光场为水平方向极化. 方点曲线是表面等离子共振增强光谱. 三聚体的场振幅增强因子的最大值达到了 100, 而七聚体的最大值甚至达到了 200. 光强增强因子在每个纳米小球间隙中, 有  $50 \text{ nm} \times 50 \text{ nm} \times 50 \text{ nm}$  的范围超过了 100. 七聚体在 500 nm 和 950 nm 两处出现的表面等离子共振峰是横向和纵向的表面等离子共振的混合模式. 在图 3(a) 和 3(b) 中的圆点曲线是透射光谱. 三聚体的透射光谱在 550 nm 处出现了一个突降, 这是由于窄带宽的亚辐射模(暗共振模式)与宽带宽的超辐射模的相干叠加形成的<sup>[33]</sup>. 这种相互作用导致了不对称的光谱图, 被称为类 Fano 共振<sup>[29]</sup>. 这是由于入射光的极化方向打破了纳米结构的对称性, 产生了类 Fano 共振<sup>[34]</sup>. 类似的现象也可以在七聚体的透射光谱中观察到, 出现在 500 nm 和 950 nm 左右. 对于七聚体结构, 在 500 nm 和 950 nm 左右的 Fano 共振是由于位于中心的纳米粒子和外围环绕的六聚体的

相互作用, 两者的混合模式引起了表面等离子元共振, 尽管 500 nm 处的突降不像 950 nm 处那么明显.

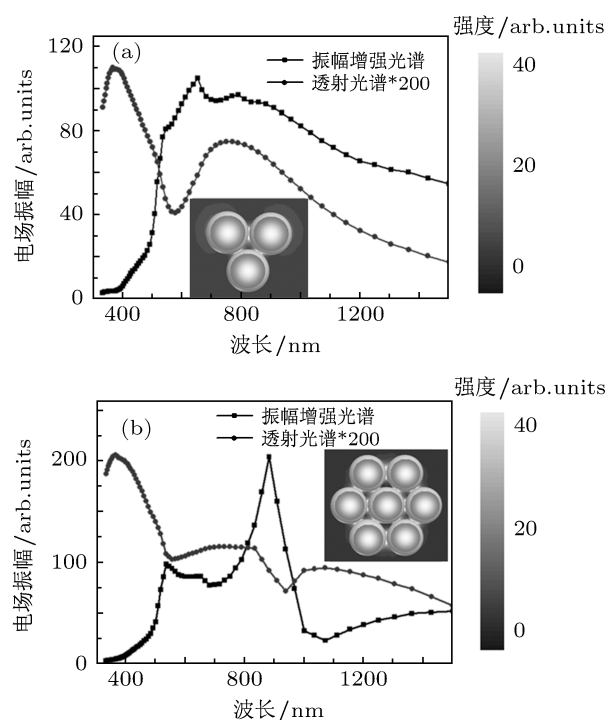


图 3 Ag/Au 纳米核壳结构小球的三聚体 (a) 和七聚体 (b) 的电场特性 (a) 与 (b) 中的插图分别为三聚体和七聚体增强的电场分布

观察图 3(a) 和 3(b) 中的等离子元增强光谱和透射光谱, 不论是三聚体还是七聚体, 其透射光谱类 Fano 共振突降的位置正好对应着近场表面等离子元增强的峰值. 在这个频率, 纳米系统只向外辐射少量的光, 并不会耗尽表面等离子元共振的能量. 本质上, 粒子内部的间隔距离决定了从单一的表面等离子元共振模式到混合的共振模式. 由于强烈的同相的表面等离子元共振, 超辐射模有着足够宽的光谱带宽与亚辐射模的光谱叠加在一起. 在这些表面等离子元纳米光学天线中, 纳米结构的几何形状和排列以及金属材料本身固有的阻尼因子对 Fano 共振的形成起着重要的作用, 并且最终决定了 Fano 共振的带宽.

#### 4 在少周期激光的激励下耦合的 Ag/Au 核壳结构天线的超快时域响应

为了寻找具有表面等离子元超快衰减特性(有

利于实现单个超短阿秒脉冲), 同时仍然具有足够高的场增强能力(例如满足产生高次谐波的条件 [35,36]) 的纳米结构排列, 我们探讨了双金属纳米结构的时域响应. 这里我们采用超短激光脉冲作为激励源, 中心波长为 800 nm, 脉冲的 Gaussian 波包半高全宽 (full width of half maximum, FWHM) 为 2.5 fs, 入射激光脉冲显示在图 4(a) 中. 我们模拟了在这个激励源下, 耦合的二聚体、三聚体和七聚体结构的纳米天线引起的时域响应. 我们运用有限时域差分法 (finite difference time domain, FDTD) 进行计算, 结果如图 4 所示. 为了让它们更可比性, 二聚体的小球间空隙与三聚体、七聚体一致, 均为 2 nm.

二聚体的时域响应很大程度上类似于入射的激励脉冲. 激发出来的表面等离子元共振导致了增强的光场信号有一个时间上的相位延迟. 与初始的激励脉冲相比较, 相位约延迟了  $\pi$ , 即延迟了  $180^\circ$ . 电磁场受到激励后, 首先迅速地增大, 随后经历了一个快速的呈指数性的衰减, 衰减时间为 21 fs. 最大的场振幅增强因子达到约 160. 图 4(c) 为三聚体的时域响应. 增强的电磁场有一个约  $\pi/2$  的时间相位延迟. 首先电磁场迅速地增加到了 120, 然后经历了持续 42 fs 的衰减过程. 七聚体的时域响应显示在图 4(d) 中. 电磁场在 3 个周期振荡后缓慢地增加到最大值 80, 然后经历了持续 38 fs 的衰减过程. 七聚体与二聚体、三聚体相比, 其时域响应有明显的不同, 这是因为其共振光谱虽然有很大的增强因子, 但其带宽相对较窄, 并且共振峰偏离了中心波长为 800 nm 的入射脉冲. 而有着类似的 Fano 共振性质的三聚体, 其共振光谱与入射脉冲的光谱比较匹配. 因此, 七聚体的衰减在三种结构中最平缓的. 与二聚体相比, 在相邻粒子的空隙中, 三聚体和七聚体可以提供更大面积的有着足够增强能力的表面等离子元共振区域, 这将增加产生高次谐波的转换效率. 二聚体和三聚体展示了相似的电磁场迅速衰减的性质, 并且具有相当高的场增强能力, 这对少周期的激光应用有裨益, 如产生孤立的阿秒脉冲 [36]. 尽管二聚物有着最高的增强因子, 但它仅有一个空隙作为表面等离子元增强区域. 三聚物不仅对少周期的激光脉冲有着足够的增强能力, 同时它较多的粒子间的空隙也提供了面积较大的场增强区域.

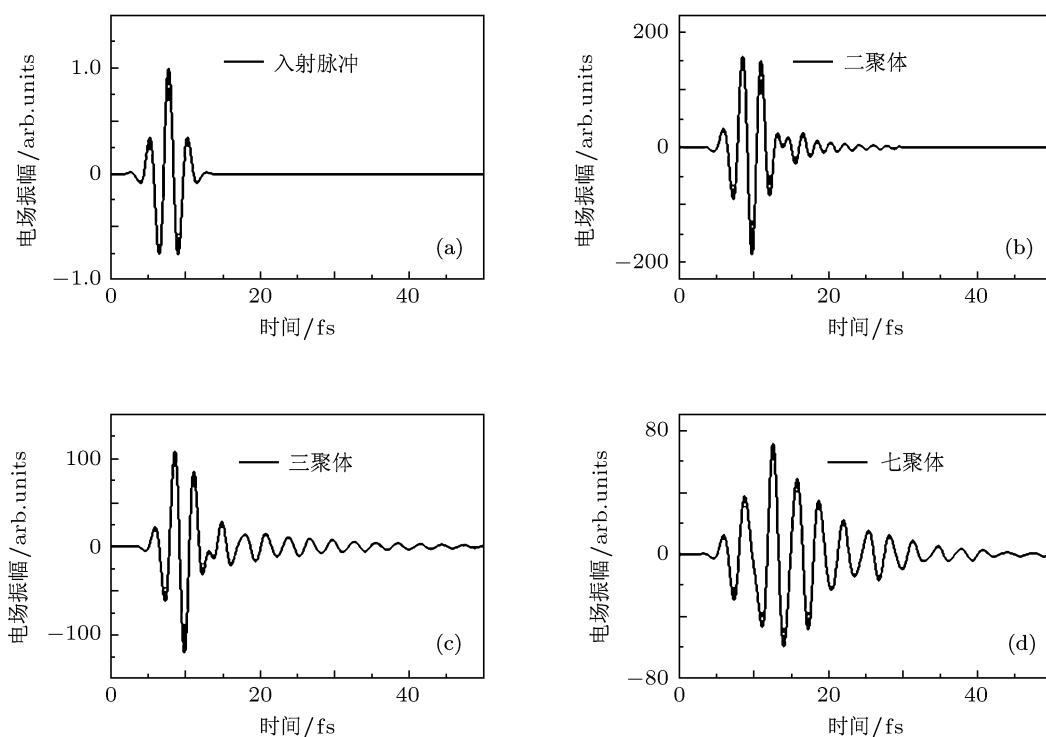


图4 耦合的双金属结构纳米天线的时域响应 (a)入射脉冲,其 Gauss 波包的 FWHM 为 2.5 fs,中心波长 800 nm;二聚体 dimer (b),三聚体 trimer (c)和七聚体 heptamer (d)的超快时域响应,其结构分别显示在图 2 和图 3(a), 3(b) 中

## 5 结论

我们对双金属核壳结构纳米天线进行了优化设计,数值模拟结果展示了该结构可以提供超宽带的表面等离子体共振光谱,并且支持超快时域响应.后一个特性能够利用光学近场增强来产生兆赫兹重复频率的孤立的 XUV 脉冲.这 3 种纳米结构中,我们均发现其具有较大的场增强面积,足以用来产生高次谐波,即在每个耦合的纳米粒子空隙间中,有  $50 \text{ nm}^3$  的增强范围的场振幅增强因子能达到 100.

从 Ti:sapphire 振荡器出射的入射脉冲的强度是  $10^{11} \text{ W/cm}^2$ ,通过纳米结构的表面等离子体增强,峰值强度就可以超过  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ,这个强度

足以在稀有气体 Xe 和 Ar<sup>[36]</sup> 中产生高次谐波.在以上研究的这些体系当中,我们发现耦合的 Ag/Au 核壳结构的二聚体具有最强的场增强能力,场振幅增强因子可以超过 160.但对于少周期的激光应用,二聚体表面等离子体共振增强区域较小.三聚体不仅具有较大的场增强区域,同时支持超快的时域响应.七聚体表现了较强的类 Fano 共振特性,这导致了相当高的场增强能力,场振幅增强因子能达到 200 左右,但其光谱带宽比较窄.尽管这种结构不适用于产生孤立的阿秒脉冲,但对于产生高次谐波和生物传感上的应用有很大帮助.

感谢德国马克斯-普朗克量子光学研究所 (MPQ) 的 Matthias F Kling 教授, Sarah L Stebbings 博士和 Frederik Süßmann 对本文的有益讨论.

- [1] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [2] Stockman M I, Kling M F, Kleineberg U, Krausz F 2007 *Nature Phot.* **1** 539
- [3] Kim S, Jin J, Kim Y J, Park I Y, Kim Y, Kim S W 2008 *Nature* **453** 757
- [4] Assefa S, Xia F, Vlasov Y A 2010 *Nature* **464** 80
- [5] Sun Y, Xia Y 2002 *Science* **298** 2176
- [6] Sundaramurthy A, Schuck P J, Conley N R, Fromm D P, Kino G S, Moerner W E 2006 *Nano Lett.* **6** 355
- [7] Mock J J, Smith D R, Schultz S 2003 *Nano Lett.* **3** 485
- [8] Zhang Z, Weber-Bargioni A, Wu S W, Dhuey S, Cabrini S, Schuck P J 2009 *Nano Lett.* **9** 4505
- [9] Huang Q, Wang J, Cao L R, Sun J, Zhang X D, Geng W D, Xiong S Z, Zhao Y 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1984 (in Chinese) [黄茜, 王京, 曹丽冉, 孙建, 张晓丹, 耿卫东, 熊绍珍, 赵颖 2009 物理学报 **58** 1984]

- [10] Maier S A, Kik P G, Atwater H A, Meltzer S, Harel E, Koel B E, Requicha A A G 2003 *Nature Mat.* **2** 229
- [11] Maier S, Brongersma M, Kik P, Meltzer S, Requicha A, Koel B, Atwater H 2003 *Adv. Mater.* **15** 562
- [12] Guo Y N, Xue W R, Zhang W M, 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4168 (in Chinese) [郭亚楠, 薛文瑞, 张文梅 2009 物理学报 **58** 4168]
- [13] Biagioni P, Polli D, Labardi M, Pucci A, Ruggeri G, Cerullo G, Finazzi M, Duo L 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 223112
- [14] Biagioni P, Huang J S, Duograve L, Finazzi M, Hecht B 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 256801
- [15] Maier S A, Kik P G, Atwater H A 2003 *Phys. Rev. B* **67** 205402
- [16] Zijlstra P, Chon J W M, Gu M 2009 *Nature* **459** 410
- [17] Chah S, Hammond M R, Zare R N 2005 *Chem. Biol.* **12** 323
- [18] Hao P, Wu Y H, Zhang P 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 6532 (in Chinese) [郝鹏, 吴一辉, 张平 2010 物理学报 **59** 6532]
- [19] Pande S, Ghosh S K, Praharaaj S, Panigrahi S, Basu S, Jana S, Pal A, Tsukuda T, Pal T 2007 *J. Phys. Chem. C* **111** 10806
- [20] Murugadoss A, Kar M, Pasricha R, Chattopadhyay A 2009 *Plasmonics* **4** 161
- [21] Douglas F, Yañez R, Ros J, Marín S, de la Escosura-Muñiz A, Alegret S, Merkoç A 2008 *J. Nanopart. Res.* **10** 97
- [22] Wu Y, Jiang P, Jiang M, Wang T W, Guo C F, Xie S S, Wang Z L 2009 *Nanotechnology* **20** 305602
- [23] Gilbert S, George F 1973 *An Analysis of The Finite Element Method.* (Prentice Hall)
- [24] Palik E D 1985 *Handbook of Optical Constants*
- [25] Berenger J P 1994 *J. Comput. Phys.* **114** 185
- [26] Kottmann J P, Martin O J F 2000 *IEEE T Antenn. Propag.* **48** 1719
- [27] Fan J A, Wu C, Bao K, Bao J, Bardhan R, Halas N J, Manoharan V N, Nordlander P, Shvets G, Capasso F 2010 *Science* **328** 1135
- [28] Li J F, Huang Y F, Ding Y, Yang Z L, Li S B, Zhou X S, Fan F R, Zhang W, Zhou Z Y, Wu D Y, Ren B, Wang Z L, Tian Z Q 2010 *Nature* **464** 392
- [29] Verellen N, Sonnefraud Y, Sobhani H, Hao F, Moshchalkov V V, Dorpe P V, Nordlander P, Maier S A 2009 *Nano Lett.* **9** 1663
- [30] Prodan E, Radloff C, Halas N J, Nordlander P 2003 *Science* **302** 419
- [31] Stebe K J, Lewandowski E, Ghosh M 2009 *Science* **325** 159
- [32] Lee J H, Wu Q, Park W 2009 *Opt. Lett.* **34** 443
- [33] Fan J A, Bao K, Wu C, Bao J, Bardhan R, Halas N J, Manoharan V N, Shvets G, Nordlander P, Capasso F 2010 *Nano Lett.* **10** 4680
- [34] Hao F, Sonnefraud Y, Dorpe P V, Maier S A, Halas N J, Nordlander P 2008 *Nano Lett.* **8** 3983
- [35] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M, Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, Kleineberg U 2008 *Science* **320** 1614.
- [36] Stebbings S L, Yang Y Y, Sussmann F, Graf R, Apolonskiy A, Weber-Bargioni A, Durach M, Stockman M I, Scrinzi A, Krausz F, Kling M F 2008 In *Probing Ultrafast Nano-Localized Plasmonic Fields Via XUV Light Generation* Proceedings of the SPIE 2008 p 77571F

# Broad-bandwidth and ultrafast electromagnetic response of coupled bimetal nanoantennas in few-cycle laser applications\*

Yang Ying-Ying<sup>1)2)</sup> Zhang Yong-Liang<sup>1)</sup> Zhao Zhen-Sheng Duan Xuan-Ming<sup>1)†</sup>

1) (*Key Laboratory of Functional Crystals and Laser Technology, Technical Institute of Physics and Chemistry,*

*Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*University of Chinese Academy Sciences, Beijing 100190, China*)

(Received 27 February 2011; revised manuscript received 22 March 2011)

## Abstract

We explore the field enhancement and temporal response of coupled bi-metal Ag/Au core-shell nanoparticle antennas. The bimetal antennas exhibit ultra-broadband resonances and allow exploiting the local field enhancement for few-cycle laser applications such as elements with an ultrafast response in nanoplasmonic device. We study dimer, trimer and heptamer arrangements and find that the Ag/Au core-shell trimer shows that a very high enhancement factor with an amplitude exceeds 120, but still facilitates an ultrafast response. Such systems may be ideal for the generation of attosecond light pulses based on high harmonic generation by employing nanoplasmonic field enhancement.

**Keywords:** optical nanoantennas, bimetal core-shell structures, few-cycle laser pulse, surface plasmon

**PACS:** 42.50.Nn, 42.62.-b

---

\* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2010CB934103), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61077028, 50973126), and the International Cooperation Program of the Ministry of Science and Technology (Grant Nos. 2008DA02050, 2010DFA01180).

† E-mail: xmduan@mail.ipc.ac.cn