

局域态密度对表面等离激元特性影响的研究*

韩清瑶[†] 汤俊超 张弢 王川 马海强 于丽 焦荣珍

(北京邮电大学理学院, 北京 100876)

(2011年9月1日收到; 2011年12月21日收到修改稿)

表面等离激元是一种在金属与介质界面上激发并耦合电荷密度起伏的电磁振荡, 具有近场增强和短波长等特性, 在纳米光子学的研究中扮演重要角色. 将表面等离激元的效应用于单光子源的制备, 不但可以有效减小器件的体积, 而且可以有效提高单光子的辐射和收集效率. 本文根据表面等离激元的珀赛尔系数与光子态密度的关系, 采用局域态密度计算的方法, 分析了不同金属材料的局域态密度及珀赛尔系数的特性. 通过计算比较, 选择银为最佳金属材料, 并在此基础上讨论了探测距离和电介质材料对局域态密度和珀赛尔系数的影响, 为基于表面等离激元的单光子源制备提供重要参数.

关键词: 表面等离激元, 局域态密度, 珀赛尔系数, 单光子源

PACS: 52.40.-w, 52.40.Hf, 52.40.Db

1 引言

表面等离激元是光学和电子学在纳米尺度的连接桥梁, 它既解决了光学元件受衍射极限影响无法达到纳米尺寸的问题, 又保留了光传输容量大, 速度快的一系列特点^[1,2]. 利用表面等离激元的性质, 改变其相应的结构, 可以有效的得到单光子源^[3]. 单光子源的优良与否在现代量子信息应用中具有重要的影响, 它与单光子探测器的性能决定了量子密钥系统的通信距离和安全通信速率^[4]. 这两项领域, 国内外众多研究学者都进行了深入的研究并取得了优秀的成果, 特别是表面等离激元方面, 提出了多种激发表面等离激元的结构和装置^[5], 制成纳米级别的光学天线, 在辐射强度和角度方面进行有效的控制, 提高收集效率^[6,7]. 本文中, 将表面等离激元振荡看作等离子腔, 作为产生单光子的方式, 这种运用表面等离激元共振得到的单光子源可以在指定的空间模式中提高辐射以及收集效率, 而且可以增大珀赛尔系数 F_P 来减小辐射寿命^[8], 使得产生单光子的能力得到加强. 由于 F_P 与品质因数成正比, 与电磁场模式的有效量成反比, 因此解决扩大 F_P 值的关键在于保证有效带宽的同时增强共振模式的空间约束能力. 在本文中, 我们分析讨论

了几种金属材料在真空条件下的局域态密度, 并计算了其对应的珀赛尔系数. 在其它参数不变的情况下, 我们在金属表面覆盖上介电常数较高的介质材料^[9], 分析计算珀赛尔系数的变化, 为基于表面等离激元的单光子源制备提供重要参数.

2 理论和计算公式

表面等离激元振荡的总衰减率 Γ_T 是激发寿命的倒数并与局域态密度直接相关. 其表达式为:

$$\Gamma_T = \frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} | i \rangle|^2 \rho(\hbar\omega), \quad (1)$$

其中 τ 即为自发辐射寿命, $\langle f | \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} | i \rangle$ 为跃迁矩阵单元, $\rho(\hbar\omega)$ 为光子态密度^[10]. 在不考虑固有损耗的情况下, $\Gamma_T \propto \rho_z^E$, ρ_z^E 是局域态密度关于 z 方向的电场分量^[11]. 自发辐射增强的效果可由增强后的自发辐射速率与真空中自发辐射速率之比来表示 (即珀赛尔系数), 表达式为 $F_P = \Gamma_T / \Gamma_0$, 其中 Γ_0 是运用相同材料的介质来代替光学纳米天线时的衰减率, 它同样也满足关系 $\Gamma_0 \propto \rho_{0z}^E$. 综合以上, 珀赛尔系数的表达式可简化为

$$F_P = \Gamma_T / \Gamma_0 = \rho_z^E / \rho_{0z}^E. \quad (2)$$

无限大金属平面上受到平面波照射, 其局域态密度密度包括两个分量, 即电场分量和磁场分量.

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2010CB923202) 和中央高校基本科研业务费 (批准号 BUPT2009RC0709) 资助的课题.

[†] E-mail: hanqingyao18@yahoo.com.cn

现将金属平面作为 $x-y$ 平面, 以金属与真空的接触面作为 $z = 0$ 的位置, 真空一侧为 z 的正方向, 则局域态密度公式可表示为:

$$\rho(z, \omega) = \rho^E(z, \omega) + \rho^H(z, \omega), \quad (3)$$

在金属表面, 局域态密度的电场分量为

$$\begin{aligned} & \rho^E(z, \omega) \\ &= \frac{\rho_v(\omega)}{4} \left\{ \int_0^1 \frac{\kappa d\kappa}{p} [2 + \text{Re}(r_{12}^s e^{2ip\omega z/c}) \right. \\ & \quad + \text{Re}(r_{12}^p e^{2ip\omega z/c})(2\kappa^2 - 1)] \\ & \quad + \int_1^\infty \frac{\kappa d\kappa}{|p|} \left[\text{Im}(r_{12}^s) \right. \\ & \quad \left. \left. + (2\kappa^2 - 1) \text{Im}(r_{12}^p) e^{-2|p|\omega z/c} \right] \right\}, \quad (4) \end{aligned}$$

此式是对所有可能的波矢积分, 其中: $p = \sqrt{1 - \kappa^2}$, $\kappa \leq 1$, $p = i\sqrt{\kappa^2 - 1}$, $\kappa > 1$, r_{12}^s, r_{12}^p 是介质 1 与 2 之间 s 和 p 两种偏振波的非涅尔反射系数 [12].

在这里, 我们将 $\sin \theta = \kappa$, $\cos \theta = p$. 当 $0 \leq \kappa \leq 1$ 时为传输波, 即正常的波反射, 式 (4) 中前半部分相对应的积分为传输波的局域态密度; 当 $\kappa > 1$ 时为倏逝波, 此部分为与表面等离激元振荡有关的量, 式 (4) 中后半部分相对应的积分为倏逝波的局域态密度, 金属的介电函数采用的是 Drude 模型 [13].

3 结果与讨论

根据相应的理论及公式, 本文选取金、银、铜、铝四种不同的金属材料对各种参数进行了详细的计算.

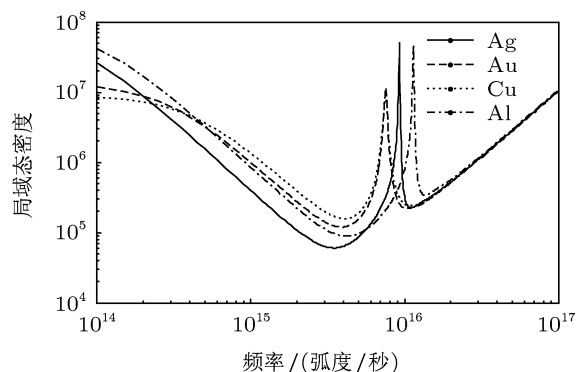


图 1 不同的金属材料(金、银、铜、铝)在距离金属表面 1nm 处的总体电场局域态密度随频率的变化

图 1 是不同的金属材料在距离金属表面 1 nm 处的总体电场局域态密度随频率的变化关系. 图中银、铜的局域态密度曲线更为显著, 在其靠近各自

的等离体振荡频率处, 其珀赛尔系数较大, 而在低于等离体振荡频率的范围内, 它们的珀赛尔系数比金和铜的小, 说明吸收比较明显, 这有利于减小单光子的脉冲时间, 更准确地提供较为稳定的单光子源. 和铝相比, 银的共振频率较低, 波长较长, 应用范围更广.

图 2 是不同的金属材料在距离金属表面 1nm 处的珀赛尔系数随频率的变化关系. 由于铜和金的等离体共振频率与衰减系数相差不大, 所以这两种材料的珀赛尔系数在位置上和数值上差别不大, 而对于铝来说, 虽然珀赛尔系数的数值比铜和金的要高, 但是它产生所对应的频率太高, 不太适合于应用, 且在这四种金属中, 铝的等离体波的穿透深度和长度是最小的. 相对于其它几种金属, 银的珀赛尔系数更高, 更窄, 有利于获得较高的收集效率和缩小衰减时间.

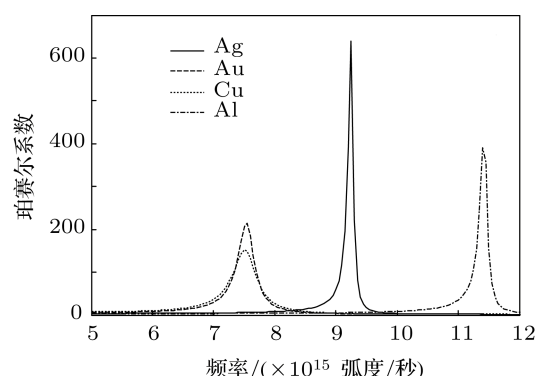


图 2 四种金属材料(金、银、铜、铝)在距离金属表面 1 nm 处的珀赛尔系数随频率的变化

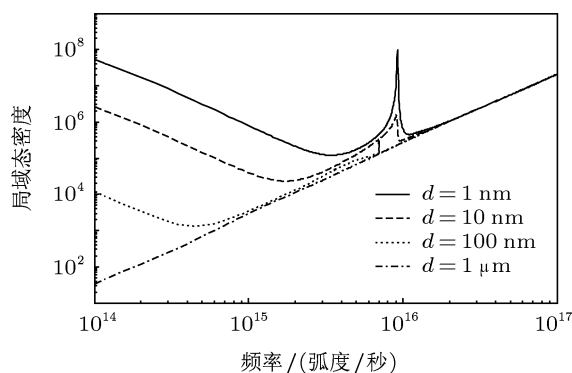


图 3 银金属表面不同高度处的局域态密度随频率的变化关系

通过以上比较得出金属银优于其它几种金属, 因此在图 3 和图 4 中对于局域态密度的讨论以银为金属材料. 图 3 为在金属银表面不同高度处的电场局域态密度, 从图中可得出, 随着计算点离金属

表面距离的增加,其电场的局域态密度逐渐减弱,当距离为 $1\ \mu\text{m}$ 时,局域态密度几乎与真空中的局域态密度相同,这充分验证了表面等离子激元是沿金属表面传播的电磁波,会随着距离的增加而衰减.因此在满足一定的理论条件下,我们选取较小的高度来进行计算.

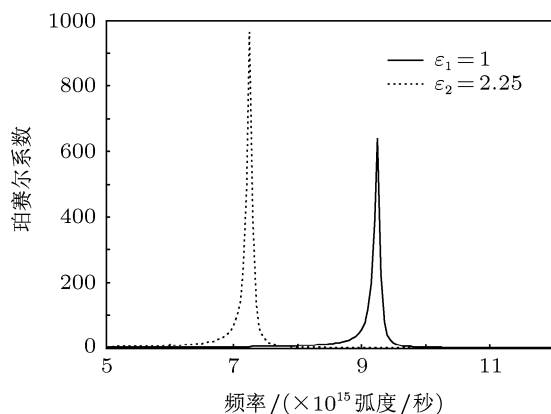


图4 银金属在不同电介质常数下的的珀赛尔系数随频率的变化

图4是金属银在真空和电介质覆盖的条件下距界面 1nm 处的珀赛尔系数随频率的变化关系图像.由图中可得出,较高介电常数的电介质明显增强了珀赛尔系数的数值,而且使产生珀赛尔系数的频率大大降低,并且从实际的角度来讲,银金属自身极易氧化,保存的时间很短,在表面镀膜之后,可以防止它的快速氧化,便于保存和使用.

4 结论

局域态密度和珀赛尔系数是密切相关的,通过以上数据和分析结果,得出在其它参数一定的条件下,金属银的珀赛尔系数更高.而就某一特定金属而言,减小表面等离子激元的传输损失并采用较高介电常数的介质涂层可以更进一步的增大珀赛尔系数.运用表面等离子激元共振特性制备的单光子源可以获得更高的收集效率,并且能够减小衰减时间,增强单光子的产生能力,这为通过改进产生表面等离子激元的结构,获得稳定的单光子源的实验研究提供了重要的理论依据.

- [1] Wang Q Y, Wang J, Zhang S L 2009 *Optical Technique* **35** 163
- [2] Oulton R F, Bartal G, Pile D F P, Zhang X 2008 *New Journal of Physics* **10** 105018
- [3] Lounis B, Orrit M 2005 *Rep. Prog. Phys.* **68** 1129
- [4] Choi Jeong-Ryeol 2010 *Chin. Phys. B* **19** 010306
- [5] Chen J J, Li Z, Zhang J S, Gong Q H 2008 *Acta. Phys. Sin.* **57** 5893 (in Chinese) [陈建军, 李智, 张家森, 龚旗煌 2008 物理学报 **57** 5893]
- [6] Wu Z Y, Yang Y T, Wang J Y 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 1890 (in Chinese) [吴振宇, 杨银堂, 汪家友 2010 物理学报 **59** 1890]
- [7] Wang Y, Wu Q, He X J, Zhang S Q, Zhuang L L 2009 *Chin. Phys. B* **18** 1801
- [8] Gerard J M, Sermage B, Gayral B, Legrand B, Costard E, Thierry-Mieg V 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 1110
- [9] Liu B C, Yu L, Lu Z X, 2011 *Chin. Phys. B* **20** 037302
- [10] Gontijo I, Boroditsky M, Yablonovitch E 1999 *Phys. Rev. B* **60** 11564
- [11] Novotny L, Hecht B 2006 *Principles of Nano-Optics* (Cambridge, Cambridge University Press) pp236–259
- [12] Shchegrov A.V, Joulain K, Carminati R, Greffet J J 2000 *Phys. Rev. Lett* **85** 1548
- [13] Chen J J, Li Z, Gong Q H 2009 *Chin. Phys. B* **18** 3535

The effects of local density of states on surface plasmon polaritons*

Han Qing-Yao[†] Tang Jun-Chao Zhang Chao Wang Chuan Ma Hai-Qiang
Yu Li Jiao Rong-Zhen

(*Science School, Beijing University of Posts and Telecommunication, Beijing 100876, China*)

(Received 1 September 2011; revised manuscript received 21 December 2011)

Abstract

Surface plasmon polariton (SPP) is a kind of electromagnetic oscillation coupling due to the undulation of charge intensity, which is excited at the interface between metal and dielectric. With the help of near-field enhancement, surface plasmon polariton plays an important role in nano-photonics. When the effect of SPP is used to fabricate the single photon resource, not only the volume can be miniaturized, but also the single photon radiation and collection efficiency can be effectively improved. According to the relationship between the factor of Purcell effect and the density of states, we calculate the local density of electromagnetic states(LDOS) and Purcell factor. By analyzing the local densities of electromagnetic states of different metallic materials, we find that silver is the most suitable metal. For a certain metal, the detection distance and the dielectric material also have influences on local density of electromagnetic states and Purcell factor, and they provide important parameters for the designing of single photon resource based on surface plasmon resonances.

Keywords: surface plasmon polaritons, local density of electromagnetic states, Purcell factor, single photon resource

PACS: 52.40.-w, 52.40.Hf, 52.40.Db

* Project supported by the National Basic Research Program of China(Grant No. 2010CB923202) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Ministry of Education of China (Grant No. BUPT2009RC0709).

[†] E-mail: hanqingyao18@yahoo.com.cn