

纳米银六角阵列在掺氧氮化硅中的局域表面等离子共振特性仿真

张文平 马忠元 徐骏 徐岭 李伟 陈坤基 黄信凡 冯端

Simulation of localized surface plasmon resonance of hexagonal Ag nanoarrays and amorphous oxidized silicon nitride

Zhang Wen-Ping Ma Zhong-Yuan Xu Jun Xu Ling Li Wei Chen Kun-Ji Huang Xin-Fan Feng Duan

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 64, 177301 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.177301

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.177301>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I17>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[Au 纳米颗粒和 CdTe 量子点复合体系发光增强和猝灭效应](#)

[Enhancement and quenching of photoluminescence from Au nanoparticles and CdTe quantum dot composite system](#)

物理学报.2015, 64(16): 167301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.167301>

[复合金属光栅模式分离与高性能气体传感器应用](#)

[Split modes of composite metal grating and its application for high performance gas sensor](#)

物理学报.2015, 64(14): 147302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.147302>

[径向偏振光下的长焦、紧聚焦表面等离子体激元透镜](#)

[Plasmonic lens with long focal length and tight focusing under illumination of a radially polarized light](#)

物理学报.2015, 64(9): 097301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.097301>

[十字结构银纳米线的表面等离子极化激元分束特性](#)

[Surface plasmon polaritons splitting properties of silver cross nanowires](#)

物理学报.2015, 64(9): 097303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.097303>

[金属光栅对表面等离子体波的辐射抑制研究](#)

[Suppression of metal grating to surface plasma radiation](#)

物理学报.2015, 64(8): 087301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.087301>

纳米银六角阵列在掺氧氮化硅中的局域表面 等离子激元共振特性仿真*

张文平¹⁾²⁾³⁾ 马忠元^{1)2)3)†} 徐骏¹⁾²⁾³⁾ 徐岭¹⁾²⁾³⁾ 李伟¹⁾²⁾³⁾
陈坤基¹⁾²⁾³⁾ 黄信凡¹⁾²⁾³⁾ 冯端¹⁾²⁾

1)(南京大学电子科学与工程学院, 南京 210093)

2)(人工微结构科学与技术协同创新中心, 南京 210093)

3)(江苏省光电信息功能材料重点实验室, 南京 210093)

(2015年1月14日收到; 2015年5月13日收到修改稿)

通过 COMSOL Multiphysics 和 Lumerical FDTD solution 对不同尺寸纳米银六角阵列在非晶态掺氧氮化硅 ($a\text{-SiN}_x\text{:O}$) 介质中的局域表面等离子激元共振 (LSPR) 特性进行仿真, 计算结果表明半径为 25 nm 的纳米银六角阵列形成的局域表面等离子激元 (LSP) 与厚度为 70 nm 的 $a\text{-SiN}_x\text{:O}$ 的蓝光发射 (460 nm) 的共振效果最为显著, 随着纳米银颗粒尺寸的增大其消光共振峰红移. 在 460 nm 波长激发下半径为 25 nm 的纳米银阵列在 $a\text{-SiN}_x\text{:O}$ 中的极化强度和表面极化电荷的分布模拟证明了该阵列在 460 nm 激发下形成的 LSP 为偶极子极化模式, 通过对该尺寸的纳米银阵列的 LSP 在 $a\text{-SiN}_x\text{:O}$ 中的最强垂直辐射空间计算, 获得了银颗粒上方 $a\text{-SiN}_x\text{:O}$ 的最佳厚度为 30 nm, 仿真结果对硅基蓝光发射器件 (450—460 nm) 的设计提供了重要的理论参考.

关键词: 局域表面等离子激元, 纳米银六角阵列, 极化模式, 有效辐射空间

PACS: 73.20.Mf, 78.67.Bf, 95.30.Gv, 95.30.Jx

DOI: 10.7498/aps.64.177301

1 引言

硅基光电集成是集成电路产业可持续发展的解决方案之一, 其中高效的硅基光源是实现硅基光电集成的关键^[1-6]. 近年来纳米金属颗粒的局域表面等离子激元 (LSP) 在增强发光材料发光效率方面的应用引起了广泛的关注, 在谐振波长激发下, 纳米金属结构表面的 LSP 共振可以导致其附近发光源自发辐射的增强, 提高辐射复合速率, 因此可用来提高发光材料的发光效率^[4-9]. Lu 小组^[10]、Das 小组^[11]、Ahmed 小组^[12]报道了纳米银颗粒形成的 LSP 在 GaN, Er^{3+} 掺杂 ZnO, GaN/InGaN 量子阱结发光材料中的发光增强应用. Yang 小

组^[13]和 Li 小组^[14]报道了纳米银阵列形成的 LSP 在 GaN/InGaN 结构、ZnO 发光材料中的发光增强应用, 证实了有序纳米银阵列结构在提高发光效率方面的优势, 而在提高硅基光源发光效率方面, 利用有序纳米金属阵列结构 LSP 增强发光的研究还较少, 大部分采用自组织纳米金属颗粒的方法形成 LSP, 如 Karsren 等利用金纳米颗粒的 LSP 特性实现了纳米晶硅在红光波段的光致发光增强^[15], Gayatri 等利用银离子注入形成的 LSP 实现了纳米硅团簇的紫外发光增强^[16]. 与随机排列无序的纳米银颗粒相比较, 有序排列、尺寸可控的纳米银阵列形成的 LSP 具有整体均一模式并且其散射与吸收强度可实现精准控制, 将这种有序可控的局域表面等离子激元共振 (LSPR) 特性应用于硅基蓝光发射

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2010CB934402, 2013CB632101), 国家自然科学基金 (批准号: 61071008, 61376004, 11374153), 中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: 1095021030, 1116021004, 1114021005), 国家教育部博士点基金 (批准号: 20130091110024), 江苏高校优势学科建设工程资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zyma@nju.edu.cn

材料, 将有助于提高LSP光子萃取效率, 进一步提高蓝光发射强度, 大面积周期纳米银阵列制备技术的不断突破, 将有利于薄膜蓝光发射材料在器件中的应用^[17]. 最近我们小组将纳米球掩膜技术制备的有序纳米银六角阵列应用到硅基蓝光发射材料a-SiN_x:O薄膜中, 实现了a-SiN_x:O薄膜在蓝光波段的光致发光增强^[17]. a-SiN_x:O作为一种新型的与硅工艺相兼容的硅基发光材料, 由于通过调节其硅氮比可实现发光峰位在可见光波段的调控^[4], 因此在硅基蓝光发射器件应用方面具有潜在的应用前景. 鉴于有序银纳米阵列LSP在a-SiN_x:O介质中的共振增强发光特性的理论研究报道较少, 为了获得高效的硅基蓝光发射器件, 本文对纳米银六角阵列的LSP与a-SiN_x:O的蓝光发射共振特性做系统的理论研究, 仿真结果将对硅基高效蓝光器件的设计具有重要的研究意义.

本文通过COMSOL Multiphysics和FDTD Solution构建了镶嵌在蓝光发射a-SiN_x:O有源层和硅衬底之间的纳米银六角阵列几何模型, 根据麦克斯韦方程组结合边界条件计算和分析了不同半径纳米银六角阵列(25 nm, 50 nm, 75 nm和100 nm)的LSP散射和吸收截面随激发波长的变化, 发现了LSP与a-SiN_x:O的蓝光达到最佳共振的纳米银颗粒半径为25 nm; 对460 nm蓝光激发下25 nm六角银颗粒阵列的LSP在a-SiN_x:O中的极化强度和极化电荷分布的仿真证明了该阵列的LSP属于偶极子极化模式; 通过对460 nm蓝光激发下25 nm银颗粒阵列的LSP在a-SiN_x:O中的有效垂直辐射空间计算, 得到了纳米银颗粒上方a-SiN_x:O的最佳厚度为30 nm.

2 不同半径纳米银六角阵列在a-SiN_x:O介质中的谐振波长计算分析

我们选取的研究对象为镶嵌在蓝光发射a-SiN_x:O有源层和硅衬底之间的六角纳米银阵列, 其几何模型结构如图1(a)所示. 我们利用COMSOL Multiphysics中的波动光学模块来计算不同尺寸六角纳米银阵列的散射和吸收截面以及半径为25 nm的纳米银六角阵列的空间散射与吸收特性; 利用FDTD Solution分析其在谐振波长下的极化模式和表面极化电荷分布. 图1(b)为本文的

仿真三维结构图, 硅衬底厚度为400 nm, 有源层a-SiN_x:O的厚度为70 nm, 银颗粒的半径分别为25 nm, 50 nm, 75 nm和100 nm, 相邻颗粒间距为100 nm, 完美匹配层厚度为50 nm, 边界条件为布洛赫周期边界, 整个计算区域的网格剖分采用极细化精度, a-SiN_x:O的介电常数和折射率的参数值分别为9.7和1.6.

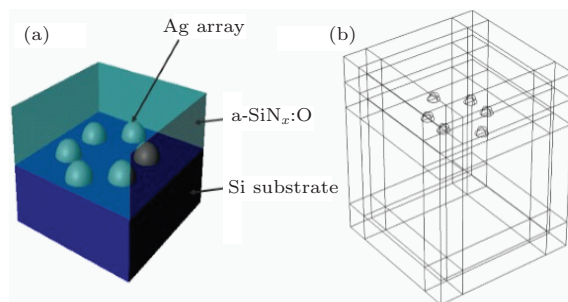


图1 仿真模型结构以及COMSOL计算中的几何结构
Fig. 1. Schematic diagram of hexagonal Ag nanoarrays embedded in a-SiN_x:O films and the geometry model used in the COMSOL calculation.

通常我们用散射截面 C_{sca} , 吸收截面 C_{abs} 以及消光截面 C_{ext} 来描述银颗粒的LSP的特性, 散射截面表征LSP的有效辐射增强空间范围, 而吸收截面是表面电子的有效吸收能量空间, 用以形成LSP, 而消光截面是上述两种现象的综合效应, 表征周围介质与纳米金属颗粒界面处对入射电磁场的综合作用能力, 可以用来观测LSP与入射光场之间的有效共振波长, 即消光截面的峰值对应的波长就是银颗粒的LSPR波长^[18]. 以上物理量和银颗粒的尺寸, 形状, 以及周围的介质环境有关, 其定义公式如下^[19]:

$$C_{abs} = k \text{Im} \{ \alpha \} = 4ka^3 \text{Im} \left\{ \frac{\epsilon_m - \epsilon_0}{\epsilon_m + 2\epsilon_0} \right\}, \quad (1)$$

$$C_{sca} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha|^2 = \frac{8}{3} k^4 \pi a^6 \left| \frac{\epsilon_m - \epsilon_0}{\epsilon_m + 2\epsilon_0} \right|^2, \quad (2)$$

$$C_{ext} = C_{sca} + C_{abs}. \quad (3)$$

k 为入射光波矢, α 为银颗粒的极化率, a 为纳米银颗粒尺寸半径, ϵ_m 和 ϵ_0 分别为纳米银颗粒以及环境介质的介电常数, Im 为虚部. 为了探究在蓝光发射的a-SiN_x:O介质中LSPR位于460 nm附近的纳米银颗粒尺寸, 我们计算了纳米银颗粒半径分别为25 nm, 50 nm, 75 nm和100 nm的六角阵列结构在a-SiN_x:O介质中的散射截面和吸收截面强度随激发波长的变化情况. 如图2(a)所示, 半径为25 nm的银颗粒其散射峰位和吸收峰位为459 nm

和 455 nm, 与 a-SiN_x:O 的光致发光峰 460 nm 基本一致, 其吸收强度大于散射强度, 随着纳米银颗粒半径增加到 50 nm, 其散射峰位和吸收峰位分别红移到 480 nm 和 500 nm, 其吸收强度和散射强度相当. 根据 David 小组报道: 纳米银颗粒的散射和吸收特性与其尺寸有关, 随着纳米银的尺寸增大, 其散射与吸收峰红移, 当尺寸达到一定程度, 还会观测到高阶模式^[20]. 根据 (1), (2) 式可知散射截面与纳米银颗粒半径的 6 次方成正比, 而吸收截面与半径颗粒的 3 次方成正比, 因此较小尺寸的纳米银颗粒对光的吸收比散射更有效率, 因此半径为 25 nm 的纳米银颗粒的吸收强度高于散射强度. 随着纳米银颗粒半径增加到 50 nm, 散射强度增加并趋近于吸收强度, 上述两种情况下由于颗粒尺寸较小, 表面极化电荷振荡相位延迟较小, 属于偶极子极化模式^[18]. 当纳米银颗粒的半径为 75 nm 时, 散射峰位和吸收主峰分别红移到 530 nm 和 510 nm, 并在 300 nm 波长附近出现了强度较弱的次峰; 当纳米银颗粒的半径为 100 nm 时, 散射峰位和吸收主峰

分别红移到 633 nm 和 630 nm, 在 300 nm 的位置也出现了一个强度稍弱的次峰. 对于 75 nm 以及 100 nm 银颗粒, 可以观察到其散射强度大于吸收强度, 这是由于较大尺寸的纳米银颗粒的散射能力强于吸收能力^[20]. 75 nm 以及 100 nm 颗粒的散射与吸收截面主峰属于偶极子模式, 由于尺寸较大导致的颗粒表面极化电荷振荡相位延迟以及辐射衰减效应, 300 nm 附近的次峰属于四偶极子极化模式^[18], 该结论已经得到国内 Li 组的实验和理论证实^[14]. 上述观察到吸收和散射峰位随着纳米银半径的增大而红移动的原因在于: 纳米银尺寸的增加导致其表面极化谐振电子增加, 从而使周围的介质中诱导出更多极化电荷来屏蔽金属纳米颗粒表面电子振荡的库仑回复力, 由于库仑力的减小降低了 LSP 共振频率, 所以共振波长红移^[18]. 通过以上分析, 可知半径为 25 nm 的纳米银六角阵列的吸收和散射峰位与蓝光波段发光 (460 nm) 匹配较好, 因此其 LSP 与蓝光发射能实现共振耦合.

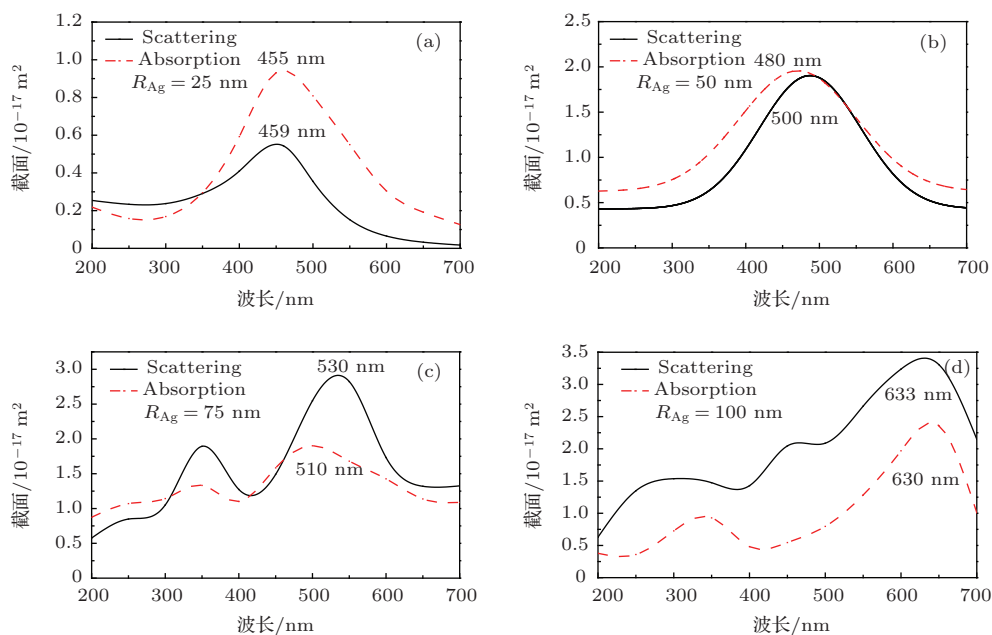


图2 (网刊彩色) (a), (b), (c), (d) 半径分别为 25 nm, 50 nm, 75 nm 和 100 nm 的银颗粒的散射与吸收截面随激发波长的变化

Fig. 2. (color online) The scattering and absorption cross section spectra of Ag particles with various radius of (a) 25 nm; (b) 50 nm; (c) 75 nm; (d) 100 nm, respectively.

考虑到纳米银阵列之间的距离间隔也是影响 LSPR 峰位的重要因素, 根据 John 和 Julie 的实验和模拟结果: 对于相同尺寸形状的金属颗粒阵列, 其间隔越小, LSPR 的峰位会出现蓝移并且颗粒之间近场耦合增强导致的近场辐射效果增强^[7,21], 我

们计算了半径分别为 75 nm 和 50 nm 的纳米银阵列在距离缩小为 50 nm 时, 其散射和吸收截面随波长的变化, 如图 3(a), (b) 所示. 对于半径为 75 nm 的阵列, 当间距减小为 50 nm 时, 其散射和吸收的主峰蓝移到 500 nm, 与蓝光波段并不匹配. 对于半

径为 50 nm 的纳米银阵列, 当间距减小为 50 nm 时, 其散射和吸收峰位蓝移到 490 nm 和 474 nm, 其峰位与 a-SiN_x:O 薄膜的蓝光发射 (460 nm) 仍有差距,

综上所述这两种尺寸的纳米银阵列在间距缩小的情况下虽然散射增强, 但是其 LSPR 峰位与蓝光不匹配, 因此不能实现与蓝光的共振增强.

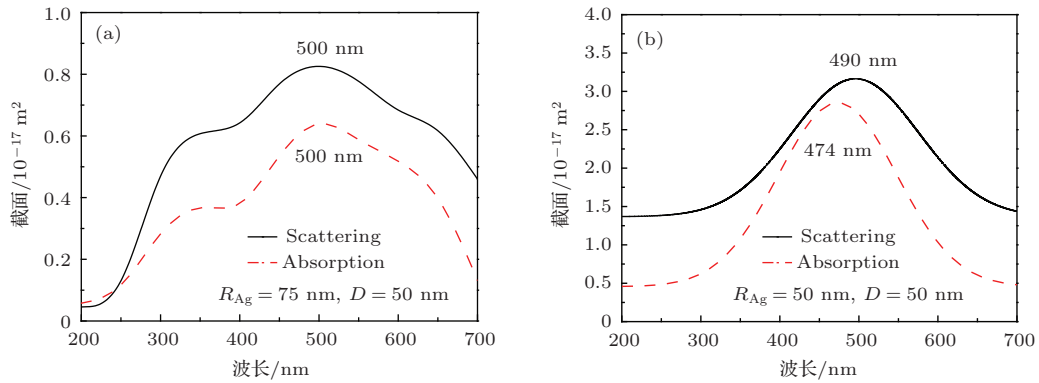


图3 (网刊彩色) 半径为 75 nm (a) 和 50 nm (b) 的银颗粒当间距为 50 nm 时, 散射与吸收截面随激发波长的变化
 Fig. 3. (color online) The scattering and absorption cross section spectra of Ag nanoparticle with the radius of 75 nm (a) and 50 nm (b) under the mutual distance of 50 nm.

3 半径为 25 nm 的纳米银六角阵列在 a-SiN_x:O 中的 LSP 极化电场强度与极化电荷分布

对于六角阵列分布的纳米银颗粒, 由于银颗粒的 LSP 消光特性以及周期阵列结构的纳米银之间的相互耦合作用, 在共振波长的入射下纳米银六角阵列与入射能量将出现较强的耦合. 基于上述不同尺寸纳米银阵列的谐振波长的计算结果, 半径为 25 nm 的六角银阵列的散射和吸收截面峰位于 460 nm 附近, 因此其消光峰位于 460 nm. 我们利用 COMSOL Multiphysics 计算了半径为 25 nm 的纳米银六角阵列在蓝光发射的 a-SiN_x:O 有源层中的电场分布, 如图 4(a) 所示, 当入射波长为 460 nm 时, 银颗粒周围出现明显的近场辐射增强现象^[22], 最强辐射场强达到 1.46×10^4 V/m, 这是由于来自纳米银阵列的 LSP 与入射的蓝光发生共振耦合, 导致有源层中辐射复合增强. 图 4(b) 是纳米银六角阵列能量吸收平面图, 可以观察到纳米银颗粒截面处能量的吸收强度为 6.16×10^{18} W/m³, 大约 6 倍于周围介质的吸收, 具有相对较强的纳米尺寸空间吸收能力. 纳米银六角阵列在共振频率下吸收的能量主要用来形成银颗粒表面高能量的 LSP, 由于 LSP 的消光峰位和发光有源层的光致发光峰位匹配, 因此能实现 LSP 和发光有源层的能量转移, LSP 的能量可以转移到 a-SiN_x:O 的发光中心进行

辐射复合, 提高内量子效率, 实现 LSP 对 a-SiN_x:O 的发光增强作用.

为了进一步分析纳米银六角阵列与 a-SiN_x:O 有源层的耦合机理, 我们需要了解纳米银六角阵列的 LSP 极化模式和纳米银颗粒表面的电荷分布之间的关系. 对于规则的尺寸远小于入射波长的球形颗粒, 其极化模式主要与不同波长激发下的纳米金属的介电常数和周围介质的介电常数有关, 简化后的极化公式如下^[19]: $\alpha = 4\pi a^3 \frac{\epsilon_m - \epsilon_0}{\epsilon_m + 2\epsilon_0}$. α 为极化率, ϵ_m 为纳米银颗粒的介电常数, ϵ_0 为周围介质的介电常数, a 为纳米银颗粒的半径. 当粒子较大时, 尤其是可以和入射波长比拟时, 需要考虑电场在纳米银颗粒中的延迟效应和辐射衰减效应, 对简化极化率 α 修正后的极化率 α_{corr} 如下:

$$\alpha_{\text{corr}} = \frac{\alpha}{1 - \frac{2}{3}ik^3 \frac{\alpha}{4\pi} - \frac{1}{a}ik^2 \frac{\alpha}{4\pi}}$$

该极化公式可以适用于更高阶的极化模式^[23]. 对于尺寸较小的规则球体颗粒来说, 纳米银颗粒表面的电子振荡方向均匀, 偶极子极化模式的强度要远远大于更高阶极化模式的强度^[14]. 对于纳米银多粒子体系和图形阵列结构, 其等离激元模式可以划分为明场模式和暗场模式, 其划分依据是原子杂化轨道的理论, 当相邻银颗粒表面电子为成键轨道耦合时, 该种耦合方式容易被激发形成超辐射模式, 从而形成具有较强对外散射性能的高能 LSP, 称为明场模式; 当相邻银颗粒表面电子为反键轨道耦合时, 由于总电偶极距为零或者颗粒间偶极耦合

减弱,难以被外界光场激发,定义为暗场模式^[24].本文利用FDTD Solution并参考Chen小组的分析方法^[24],计算了六角纳米银阵列在a-SiN_x:O有源层中的平面极化电场及其表面极化电荷分布情况.图5(a)(b)分别是半径为25 nm六角纳米银阵列的LSP在a-SiN_x:O有源层中的明场模式和暗场模式极化电场分布,可以观察到明场模式中最强极化强度为2.9,纳米银颗粒周围的电场分布为两片花瓣形状,属于典型的明场偶极子模式^[24],而图5(b)最强极化强度仅为0.02比明场模式的强度小很多.利用FDTD Solution对纳米银六角阵列在a-SiN_x:O

有源层中的形成LSP的表面电荷分布计算结果如图5(c)所示,可以观察到纳米银颗粒表面的正负电荷呈局域化分布,随着单个颗粒中正负电荷分布位置的相对变化,其对应的极化电场也出现相应的改变,即两片花瓣状呈对称和非对称的改变如图5(a)所示,整体电荷分布仍然属于对称性分布,因此六角纳米银阵列的总偶极矩得以加强,这一结果符合Chen小组关于成键偶极子的论证^[24],由此我们将纳米银六角阵列在a-SiN_x:O有源层中的LSP归因于偶极子极化模式.

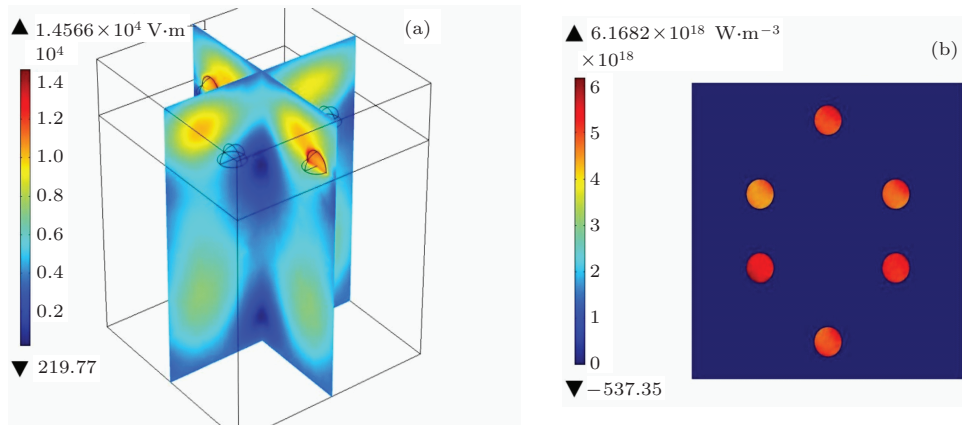


图4 (网刊彩色) 在460 nm激发下纳米银六角阵列在a-SiN_x:O有源层中的电场分布与能量吸收分布
Fig. 4. (color online) The electric field distribution (a) and energy absorption (b) of hexagonal Ag nanoarray embedded in a-SiN_x:O under the excitation of 460 nm.

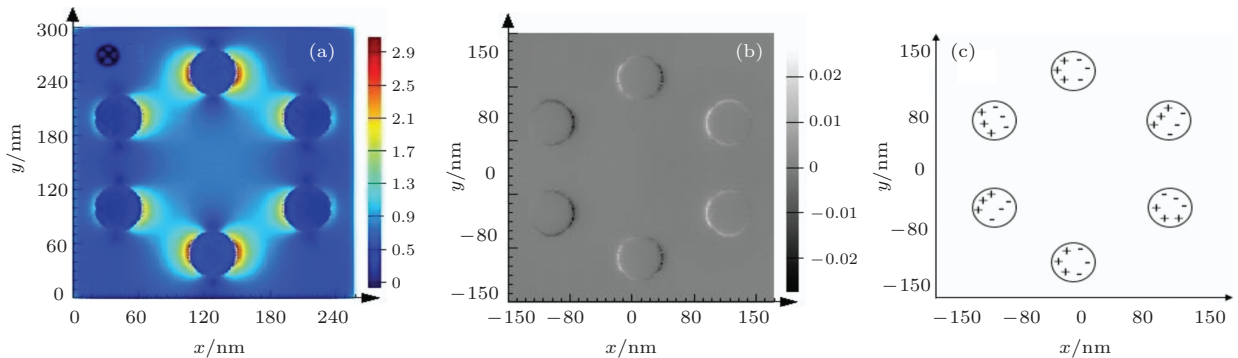


图5 (网刊彩色) 纳米银六角阵列在460 nm波长激发下的bright (a)及dark (b)模式的极化电场和表面电荷分布(c)
Fig. 5. (color online) The electric near-field profiles and surface charges distribution (c) of hexagonal Ag nanoarrays embedded in a-SiN_x:O films for bright mode (a) and dark mode (b) under the excitation of 460 nm.

4 半径为25 nm的六角纳米银阵列在a-SiN_x:O中的LSP垂直辐射强度计算

通常金属传播表面等离子激元(SPP)的能量是

在金属与介质的界面处沿着传递方向呈指数衰减,其辐射增强范围仅限于纳米尺度空间,而六角纳米银阵列的LSP由于受到纳米银形状和尺寸的限制,其辐射范围将被局限在较小的空间内,使其局域电场强度得到进一步的增强,因此通过六角纳米银阵列的LSP在a-SiN_x:O中辐射范围来选择a-SiN_x:O有源层的厚度对于纳米发光器件的性能提升具有

非常关键的作用. 对于半径为 25 nm 的六角纳米银颗粒阵列结构, 我们利用 COMSOL Multiphysics 计算了该阵列的上方 a-SiN_x:O 厚度分别为 10 nm, 30 nm, 50 nm 时的 LSP 辐射场强度分布. 图 6 (a) 所示为 25 nm 的六角纳米银颗粒阵列在 a-SiN_x:O 中的 LSP 电场强度随着有源层厚度从 10 nm 增加到 50 nm 范围内的剖面分布图. 从图 6 (b), (c), (d) 可以观察到随着银颗粒上方 a-SiN_x:O 的厚度从 10 nm 增加到 30 nm, LSP 在 a-SiN_x:O 表面的辐射强度从 2.25 V/m 增加到 3.9 V/m, 当 a-SiN_x:O 的厚度从 30 nm 增加到 50 nm, LSP 在 a-SiN_x:O 表面的辐射强度从 3.9 V/m 下降到 1.42 V/m. 经过不同厚度的 a-SiN_x:O 中 LSP 辐射强度的统计计算, 我们发现当银颗粒上方 a-SiN_x:O 的厚度为 30 nm 时

表面辐射强度最大, 由于 LSP 辐射强度呈指数衰减, 在距离银颗粒较远的 a-SiN_x:O 中的辐射强度将减小, 可见在最强的辐射范围内引入纳米银六角阵列将可以获得 a-SiN_x:O 有源层的光场强度的有效增强, 并提高其内量子效率 [17].

表 1 纳米银六角阵列在 a-SiN_x:O 中的 LSP 电场辐射强度随有源层厚度改变分布

Table 1. The electric field distribution of LSP from hexagonal Ag nanoarrays embedded in a-SiN_x:O film with various thickness from 10 to 50 nm.

厚度	10 nm	30 nm	50 nm
最大值	2.25	3.79	1.42
均值	3.84	1.25	2.18
方差	0.65	0.60	0.29

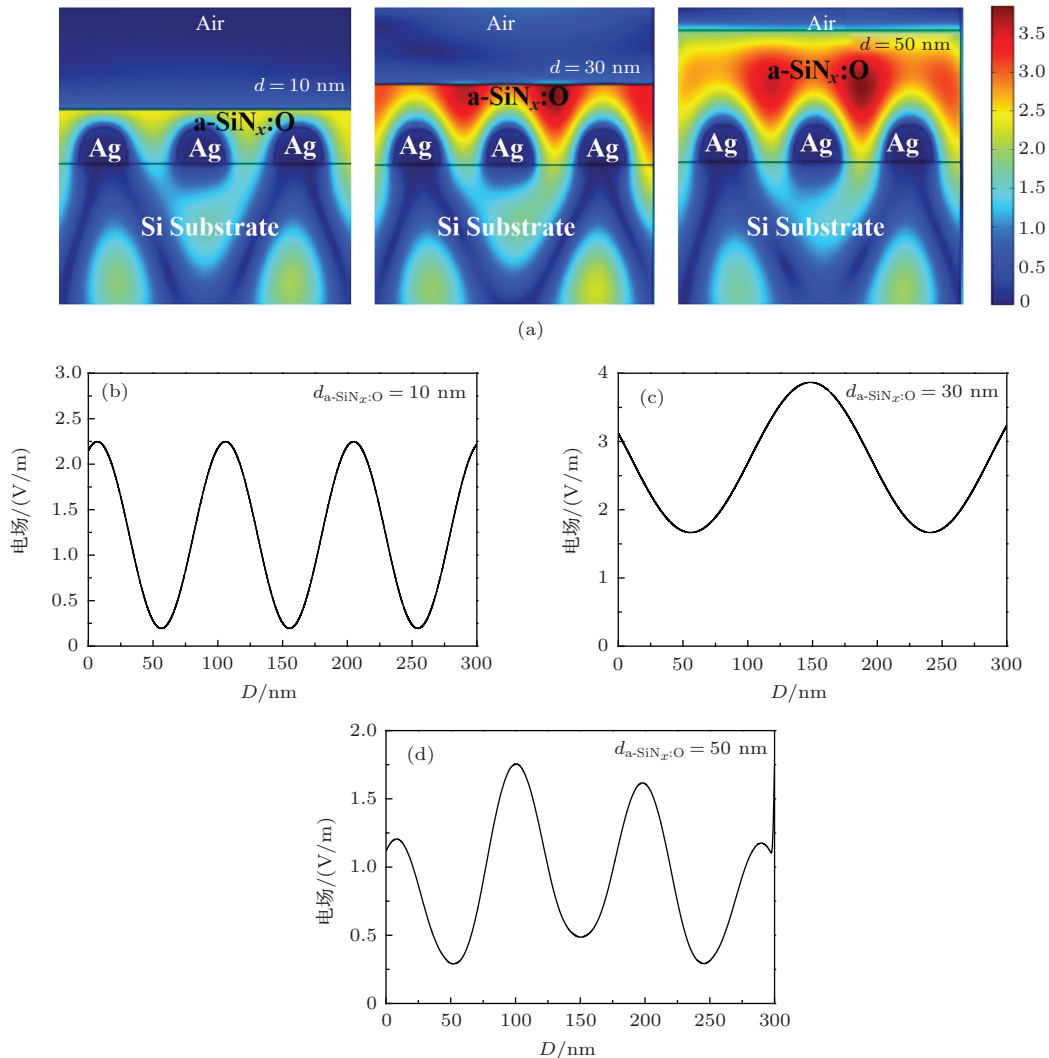


图 6 (网刊彩色) (a) 和 (b), (c), (d) 是半径为 25 的纳米银阵列在上方厚度分别为 10 nm, 30 nm, 50 nm 的 a-SiN_x:O 中的 LSP 辐射电场强度分布和 LSP 近场增强系数

Fig. 6. (color online) (a) The cross-section electric near-field distribution of LSP and (b)(c)(d) the electric near-field enhancement factor of LSP from hexagonal Ag nanoarrays embedded in a-SiN_x:O with thickness of 10 nm, 30 nm and 50 nm.

5 结 论

本文通过COMSOL Multiphysics 和 Lumerical FDTD solution 研究了不同尺寸六角纳米银阵列在 a-SiN_x:O 中的局域表面等离激元 (LSP) 的共振特性, 获得了与蓝光发射 a-SiN_x:O 具有最佳共振特性的纳米银六角阵列的半径为 25 nm, 在 460 nm 波长激发下半径为 25 nm 的纳米银阵列在 a-SiN_x:O 中的极化强度和极化电荷的分布模拟证明了该阵列在 460 nm 激发下形成的 LSP 为偶极子极化模式, 并进一步获得了 25 nm 的纳米银阵列的 LSP 在厚度为 30 nm 的 a-SiN_x:O 中的垂直辐射最强, 为硅基蓝光发射器件 (450—460 nm) 的设计提供了重要的理论参考。

参考文献

- [1] Ma Z Y, Chen K J, Huang X F, Xu J, Zhu D, Mei J X, Qiao F, Feng D 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 516
- [2] Hu M Z, Zhou S Y, Han Q, Sun H, Zhou L P, Zeng C M, Wu Z F, Wu X M 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 029501 (in Chinese) [胡梦珠, 周思阳, 韩琴, 孙华, 周丽萍, 曾春梅, 吴兆丰, 吴雪梅 2014 物理学报 **63** 029501]
- [3] Dong H P, Chen K J, Zhang P Z, Li W, Xu J, Ma Z Y, Sun Z F, Liu Z Y 2014 *Canadian Journal of Physics* **92** 602
- [4] Ma Z Y, Yan M Y, Jiang X F, Yang H F, Xia G Y, Ni X D, Lin T, Li W, Xu L, Chen K J, Huang X F, Feng D 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 013106
- [5] Kim B H, Cho C H, Mun J S, Kwon M K, Park T Y, Kim J S, Byeon C, Lee J, Park S 2008 *Advanced Materials* **20** 3100
- [6] Pillai S, Catchpole K R, Trupke T, Zhang G, Zhao J, Green M A 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 161102
- [7] Henson J, DiMaria J, Paiella R 2009 *Journal of Appl. Phys.* **106** 093111
- [8] Henson J, Dimakis E, Dimaria J, Li R, Minissale S, Negro L D, Moustakas T D, Paiella R 2010 *Optics Express* **18** 21322
- [9] Wei X X, Cheng Y, Huo D, Zhang Y H, Wang J Z, Hu Y, Shi Y 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 217802 (in Chinese) [魏晓旭, 程英, 霍达, 张宇涵, 王军转, 胡勇, 施毅 2014 物理学报 **63** 217802]
- [10] Lu C H, Wu S E, Lai Y L, Li Y L, Liu C P 2014 *Journal of Alloys and Compounds* **585** 460
- [11] Das R, Phadke P, Khichar N, Chawla S 2014 *Journal of Material and Chemistry C* **2** 8880
- [12] Fadil A, Lida D, Chen Y T, Ma J, Ou Y Y, Ou H Y, Petersen P M, Ou H Y 2014 *Scientific Report* **4** 6392
- [13] Kuo Y, Lin C H, Chen H S, Hsieh C, Tu C G, Shih P Y, Chen C H, Liao C H, Su C Y, Yao Y F, Chen H T, Kiang Y W, Yang C C 2015 *Japanese Journal of Applied Physics* **54** 02BD01
- [14] Zang Y S, He X, Li J, Yin J, Li K Y, Yue C, Wu Z M, Wu S T, Kang J Y 2013 *Nanoscale* **5** 574
- [15] Potrick K, Huisken F 2014 *Physical Review B* **91** 125306
- [16] Sahu G, Sahu V, Kukreja L M 2014 *Journal of Applied Physics* **115** 083103
- [17] Ma Z Y, Ni X D, Zhang W P, Jiang X F, Yang H F, Yu J, Wang W, Xu J, Xu L, Chen K J, Feng D 2014 *Optical Express* **22** 28180
- [18] Kelly K L, Coronado E, Zhao L L, Schatz G C 2003 *Journal of Physical Chemistry B* **107** 668
- [19] Tong L M, Xu H X 2012 *Physics* **41** 582 (in Chinese) [童廉明, 徐红星 2012 物理 **41** 582]
- [20] Evanoff D E, Chumanov G 2004 *Journal of Physical Chemistry B* **108** 13957
- [21] Biteen J S, Sweatlock L A, Mertens H, Lewis N S, Polman A, Atwater H A 2007 *Journal of Physical Chemistry C* **111** 13372
- [22] Cong C, Wu D J, Liu X J 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 047802 (in Chinese) [丛超, 吴大建, 刘晓峻 2012 物理学报 **61** 047802]
- [23] Jensen T R, Kelly L, Lazarides A, Schatz G 1999 *Journal of Cluster Science* **10** 295
- [24] Chen F Y, Negash A, Johnston R L 2011 *Advances* **1** 032134

Simulation of localized surface plasmon resonance of hexagonal Ag nanoarrays and amorphous oxidized silicon nitride*

Zhang Wen-Ping¹⁾²⁾³⁾ Ma Zhong-Yuan^{1)2)3)†} Xu Jun¹⁾²⁾³⁾ Xu Ling¹⁾²⁾³⁾ Li Wei¹⁾²⁾³⁾
Chen Kun-Ji¹⁾²⁾³⁾ Huang Xin-Fan¹⁾²⁾³⁾ Feng Duan¹⁾²⁾

1) (School of Electric Science and Engineer, Nanjing University China, Nanjing 210093, China)

2) (Collaborative Innovation Center of Advanced Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093, China.)

3) (Jiangsu Provincial Key Laboratory of Photonic Electronic Materials Science and Technology, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

(Received 14 January 2015; revised manuscript received 13 May 2015)

Abstract

Simulation on the properties of localized surface plasmon resonance (LSPR) of different sized hexagonal Ag nanoarrays embedded in the amorphous oxidized silicon nitride(a-SiN_x:O) matrix has been carried out by using COMSOL Multiphysics and FDTD Solution simulation software. Through the calculation of the scattering and absorption cross section of Ag array with different radius, we find that the position of extinction peaks red-shift from 460 to 630 nm when the radius of nanoparticles of hexagonal Ag arrays increases from 25 to 100 nm with the distance between particles 100 nm. The enhanced scattering cross section of the localized surface plasmon (LSP) and blue-shift of the extinction peak can be obtained by tuning the distance between Ag nanoparticles from 100 to 50 nm with the radius of Ag nanoparticles fixed at 50 and 75 nm, respectively. However the mismatch between the extinction peak of hexagonal Ag nanoarrays and the blue light emission of 460 nm from a-SiN_x:O films still exists. The novel overlap between the scattering cross section of LSP from hexagonal Ag arrays with a radius of 25 nm and the blue light emission of a-SiN_x:O films at 460 nm further confirms that the hexagonal Ag arrays with a radius of 25 nm is the optimal option to enhance the blue light emission from a-SiN_x:O films. Therefore, strong coupling between LSP and blue light emission at 460 nm from a-SiN_x:O films with a thickness of 70 nm can be realized when the radius of Ag nanoparticle is 25 nm. We also investigate the enhancement of near field radiative intensity of LSP from hexagonal Ag arrays with a radius of 25 nm. When the excitation wavelength is 460 nm, the maximum enhancement of near field intensity of LSP from hexagonal Ag arrays with a radius of 25 nm reaches 1.46×10^4 V/m. The calculated polarization intensity and charge distribution of hexagonal Ag nanoparticle with a radius of 25 nm embedded in a-SiN_x:O films reveal that the enhancement of electromagnetic field-intensity is through the dipolar plasmon coupling with the excitons in a-SiN_x:O films in bright field mode under the excitation of 460 nm. Further calculation of perpendicular radiative intensity for LSP from the hexagonal Ag array with a radius of 25 nm embedded in a-SiN_x:O films indicates that the maximum radiative intensity can be realized in a-SiN_x:O matrix with an optimum thickness of 30 nm for a-SiN_x:O films. Our theoretical calculations and analysis can provide valuable reference for the design of Si-base blue LED with light emission around 460 nm.

Keywords: localized surface plasmon, hexagonal Ag nanoarrays, polarization mode, optimum radiative space

PACS: 73.20.Mf, 78.67.Bf, 95.30.Gv, 95.30.Jx

DOI: 10.7498/aps.64.177301

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant Nos. 2010CB934402, 2013CB632101), the National Nature Science Foundation of China (Grant Nos. 61071008, 61376004, 11374153), the Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20130091110024), the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant Nos. 1095021030, 1116021004, 1114021005), and A Project Funded by the Priority Academic Program Development of Jiangsu Higher Education Institutions.

† Corresponding author. E-mail: zyrna@nju.edu.cn