



金属基底上光学偶极纳米天线的自发辐射宽带增强：表面等离激元直观模型

张炼 王化雨 王宁 陶灿 翟学琳 马平准 钟莹 刘海涛

Broadband enhancement of spontaneous emission by optical dipole nanoantenna on metallic substrate: An intuitive model of surface plasmon polariton

Zhang Lian Wang Hua-Yu Wang Ning Tao Can Zhai Xue-Lin Ma Ping-Zhun Zhong Ying Liu Hai-Tao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 118101 (2022) DOI: 10.7498/aps.70.20212290

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20212290>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

表面等离激元增强的光和物质相互作用

Surface plasmaons enhanced light-matter interactions

物理学报. 2019, 68(14): 149101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190337>

基于双层阿基米德螺线的表面等离激元涡旋产生方法

Generation of surface plasmon vortices based on double-layer Archimedes spirals

物理学报. 2019, 68(23): 234201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190747>

Al纳米颗粒表面等离激元对ZnO光致发光增强的研究

Enhancement of photoluminescence from zinc oxide by aluminum nanoparticle surface plasmon

物理学报. 2019, 68(10): 107301 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190062>

表面等离激元纳米聚焦研究进展

Research progress of plasmonic nanofocusing

物理学报. 2019, 68(14): 146201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190564>

银纳米线表面等离激元波导的能量损耗

Energy loss of surface plasmon polaritons on Ag nanowire waveguide

物理学报. 2018, 67(24): 247302 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20182085>

表面等离激元传播的调制

Modulation of propagating surface plasmons

物理学报. 2019, 68(14): 147302 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190802>

金属基底上光学偶极纳米天线的自发辐射宽带增强： 表面等离激元直观模型*

张炼¹⁾²⁾ 王化雨¹⁾²⁾³⁾ 王宁¹⁾²⁾ 陶灿¹⁾²⁾ 翟学琳¹⁾²⁾ 马平准¹⁾²⁾
钟莹⁴⁾ 刘海涛^{1)2)†}

1) (南开大学电子信息与光学工程学院, 现代光学研究所, 天津 300350)

2) (南开大学, 天津市微尺度光学信息技术科学重点实验室, 天津 300350)

3) (郑州师范学院物理与电子工程学院, 郑州 450044)

4) (天津大学精密仪器与光电子工程学院, 精密测试技术及仪器国家重点实验室, 天津 300072)

(2021年12月12日收到; 2022年2月26日收到修改稿)

本文提出一种具有宽波段自发辐射增强性能的金属基底上光学偶极纳米天线, 实现的总辐射速率与远场辐射速率增强因子分别达到 5454 和 1041, 在近红外波段, 自发辐射增强 (Purcell 因子超过 1000) 波长范围达到 260 nm, 并且能够实现远场定向辐射. 为了阐明天线性能背后的物理机制, 本文考虑天线臂上表面等离激元激发和多重散射的直观物理过程, 基于 Maxwell 方程组第一性原理, 建立了一个半解析模型, 能够全面复现天线的辐射特性, 包括总辐射速率、远场辐射速率、远场辐射方向图等. 该模型提供了一个直观的物理图像, 即在模型导出的两个相位匹配条件下, 表面等离激元在天线臂上形成了一对 Fabry-Perot 共振获得增强, 然后传播到纳米间隙内点辐射源位置和散射到自由空间, 由此分别提高了总辐射速率和远场辐射速率. 并且, 这一对 Fabry-Perot 共振产生了一对相互靠近的谐振峰, 由此形成了宽波段自发辐射增强. 本文提出的偶极纳米天线可以应用于荧光增强、拉曼散射增强及高速、高亮度纳米光源等领域, 所提出的模型可用于光学天线的物理解释和直观设计.

关键词: 光学纳米天线, 自发辐射增强, 表面等离激元, 半解析模型

PACS: 81.07.-b, 52.25.Os, 52.40.Fd, 78.20.Bh

DOI: 10.7498/aps.70.20212290

1 引言

光学纳米天线^[1,2]支持表面等离激元 (surface plasmon polariton, SPP), 能够将电磁场限制在远小于衍射极限区域内^[2,3], 产生局域表面等离激元共振 (localized surface plasmon resonance, LSPR), 可实现远场激励下电磁场增强^[4-7]或辐射源 (荧光分子或量子点) 激励下自发辐射增强^[8-11], 因此被广泛应用于生物及折射率传感^[2,3], 荧光增强^[8,9,12-15],

拉曼散射增强^[16,17], 单光子源^[2,3,18], 发光二极管^[3,19], 纳米激光器^[20,21]及非线性增强^[22,23]等方面. 在过去的几十年中, 由单个或耦合的纳米粒子组成的光学纳米天线, 如金属纳米球^[24], 金属纳米立方体^[16], 偶极天线^[1,4,25,26], 蝶形纳米天线^[12,26], Sierpinski 分形天线^[5], 环形天线^[8,27,28], 孔径天线 (零模波导^[14,15], 交叉槽纳米天线^[29]) 等, 已被广泛研究.

最近, 一种金属镜面上纳米颗粒 (nanoparticles on mirror, NPoM) 天线结构, 凭借其易于制造, 且形成的纳米间隙尺寸能达到纳米甚至亚纳米

* 国家自然科学基金 (批准号: 62075104, 61775105) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liuht@nankai.edu.cn

量级等优势,成为光学纳米天线研究的热点.该结构的纳米颗粒和金属基底之间能形成间隙表面等离子激元(gap surface plasmon, GSP)^[30,31],将电磁场限制在深亚波长区域内,从而突破光学衍射极限,产生极大的电磁场增强^[32–35].对于在纳米间隙中放置了辐射源(荧光分子或量子点)的NPOM结构,GSP能获得极小的模式体积 V ,导致更高的Purcell因子 F_p (正比于 Q/V , Q 是GSP模式的品质因子)^[3,32,36],从而缩短荧光寿命,可用于提升单光子源^[2,3,18]、发光二极管^[3,19]、纳米激光器^[21]等高速纳米尺度光源的调制速度.此外,由于NPOM纳米间隙中巨大的局域场增强能导致荧光激发速率和自发辐射速率的同时增大^[37,38](后者能够提高辐射源的量子产率),从而显著提高荧光强度,这对于高亮度光源^[2,3,18,19,21]、高灵敏度荧光传感^[2,3,37]、表面增强拉曼散射^[16,39,40]等应用有重要意义.

为了解释光学天线具有上述性能的物理机制,已经建立了一些理论模型.第一种模型将光学天线视为由电阻、电容和电感组成的等效电路^[41,42],研究天线的谐振特性,然而无法得到天线的远场辐射方向图.第二种模型是基于LSPR,将纳米天线视为开放的谐振腔,将光学天线的谐振特性归因于LSPR的激励^[43–45].LSPR可被定义为准简正模式(quasi-normal mode, QNM)^[46–49],当激励源频率与QNM的复数本征频率的实部相等时,纳米光学天线会产生谐振.上述两种模型中,均未体现SPP的作用.为了阐明SPP在天线谐振特性中的关键作用,建立了SPP的Fabry-Perot模型^[50–56],把金属纳米天线看作一个Fabry-Perot共振腔.该模型可灵活应用于多种结构,例如,纳米棒光学天线^[51,52,54]、圆形天线^[56],甚至任意形状的金属纳米颗粒^[53]等.然而,其中一些模型虽然能够较好地复现天线的辐射速率和远场辐射图等^[51,54],但是其中某些参数是通过假设或拟合得到,缺乏严格的电磁学基础.与此不同,通过考虑天线中SPP的激发与多重散射过程,能够建立多重散射SPP模型,模型中所有参数都是通过Maxwell方程组第一性原理计算获得,而无需任何假设或拟合,这保证了模型具有严格的电磁学基础,此类模型已应用到单纳米线天线^[57]、偶极天线^[46,58],甚至具有弯曲臂的分裂环形天线^[59],能够全面预测自发辐射速率增强因子^[46,58,59]、近场分布^[46,57–59]和远场辐射角分布^[58,59]等.

由于荧光分子或量子点的荧光光谱通常覆盖一定的波长范围^[12,18],因此设计具有宽波段辐射增

强性能的天线具有重要意义.在这方面,采用一种纳米线光学纳米腔,具备超小的模式体积,能提供30 nm带宽的自发辐射速率增强(峰值 $F_p > 6$)^[60].采用金纳米环-中心蝴蝶结天线^[8]以及金纳米环-单蝶形尖峰天线^[27],能分别在600 nm的宽带内实现 $F_p > 1000$ ^[8]以及在800 nm的宽带内实现 $F_p > 450$ ^[27].采用对数周期纳米天线,通过调节尺寸参数,能够实现宽频带的Purcell因子增强^[61].采用V型槽环谐振器,能在1.0–1.8 eV的频率范围内获得最大值高于2000的Purcell因子^[62].采用银纳米颗粒和银膜组成的NPOM结构,在500–1000 nm的波长范围内自发辐射速率增强因子最大值能达到100以上^[63].采用非对称等离子体天线,由于每个臂具有不同的共振频率,也可以产生宽波段Purcell因子增强^[9].

本文提出了一种NPOM天线结构——金属镜面上光学偶极纳米天线.该天线的总自发辐射速率增强因子(即Purcell因子 F_p)能够达到5454,远场辐射速率增强因子达到1041.在近红外波段,天线能够实现宽波段自发辐射增强, $F_p > 1000$ 的波长范围达到260 nm,并且能够实现远场定向辐射.通过改变天线臂间狭缝宽度、两臂长度,能够分别调节自发辐射增强的带宽和增强因子.为了解释天线上性能背后的物理机制,本文通过考虑沿天线臂传播的SPP的多重散射过程,建立了SPP半解析模型.模型中所有参数都是通过第一性原理计算获得,不需要任何拟合过程,这保证了模型具有坚实的电磁学基础,并且能够给出定量的预测.该模型能够全面复现天线的辐射特性,包括总辐射速率、远场辐射速率、远场辐射方向图等.由模型得到了能预测天线谐振的两个相位匹配条件.模型表明,在相位匹配条件下,SPP在天线臂上形成了一对Fabry-Perot共振获得增强,并传播到纳米间隙内点辐射源位置和散射到自由空间中,由此分别提高了总自发辐射速率和远场辐射速率;并且,这一对Fabry-Perot共振产生了一对靠近的谐振峰,由此形成了宽波段自发辐射增强.

2 研究方法

2.1 全波数值计算方法

如图1(a)所示,本文提出一种金基底上金偶极纳米天线结构,由金基底、聚甲基丙烯酸甲酯(polymethyl methacrylate, PMMA)中间介质层及

位于上方的偶极金纳米矩形天线组成, 天线处于空气环境中 (折射率为 1). 两天线臂之间的狭缝沿 x 方向的宽度为 w , 天线与金基底之间的纳米间隙沿 z 方向的高度为 $H = 10$ nm. 设天线的两臂臂长为 L , y - z 横截面为正方形 (边长为 $D = 40$ nm). 取坐标系原点 O 位于金基底表面上狭缝中心位置. 荧光分子或量子点辐射源采用点电流源表示, 位于天线与金基底之间的纳米间隙内点 S 处, 沿 z 方向偏振, 该偏振方向和其他偏振方向相比能获得更高的自发辐射速率. 金依赖于波长的折射率采用文献 [64] 中的数值.

z 偏振的点电流源可以表达为电流密度 $\mathbf{J} = \delta(x - x_s, y - y_s, z - z_s)\mathbf{z}$, 其中 δ 为狄拉克函数, (x_s, y_s, z_s) 是点源的位置坐标, \mathbf{z} 为沿 z 向的单位矢量. 取 $(x_s, y_s, z_s) = (w/2 + L - d, 0, H/2)$, 其中 $d = 10$ nm 为点源到天线右端距离. 点源的总辐射速率可表达为 [58] $\Gamma_{\text{tot}} = -\text{Re}[E_z(x_s, y_s, z_s)]/2$, 其中 $\text{Re}[E_z(x_s, y_s, z_s)]$ 为点源位置电场 z 方向分量的实部. 总辐射速率 Γ_{tot} 包含两部分: 一部分为非辐射速率 Γ_{nr} , 以热的形式损耗在金属内部; 另一部分为远场辐射速率 Γ_{rad} , 该部分能量向天线外辐射到远场, 即 $\Gamma_{\text{tot}} = \Gamma_{\text{rad}} + \Gamma_{\text{nr}}$. Γ_{rad} 表达为 $\Gamma_{\text{rad}} = \iint_A \mathbf{S} \cdot \mathbf{n} da$, A 为包含天线和点源的封闭曲面, \mathbf{S} 为点源激发的电磁场的时间平均坡印廷矢量, \mathbf{n} 为 A 上指向外的法向单位矢量.

为了表征自发辐射速率的增强, 本文将总辐射速率增强因子 (Purcell 因子 [36]) 和远场辐射速率增强因子分别定义为 $\gamma_T = \Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ 及 $\gamma_R = \Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$. 其中 $\Gamma_{\text{PMMA}} = \eta_{\text{vac}} k_0^2 n_{\text{PMMA}} / (12\pi)$, 是全空间为 PMMA 的均匀介质中点源的总辐射速率, η_{vac} 为真空中的波阻抗, $k_0 = 2\pi/\lambda$ 为真空中的波数, $n_{\text{PMMA}} = 1.5$ 为 PMMA 的折射率. 为了缩短高速纳米光源 (如单光子源 [2,3,18]、发光二极管 [3,19] 和纳米激光器 [21]) 的荧光寿命, 以提高调制速率, 需要高的 γ_T 值. 此外, 荧光强度正比于荧光发射体的量子产率, 表达为 $\eta = \gamma_R / (\eta_0^{-1} - 1 + \gamma_T)$ [8,12,27,38,63], 其中 $\eta_0 \in (0, 1)$ 表示荧光发射体的固有量子产率. 对于较高 η_0 的发射体, 即 $\eta_0 \approx 1$ (例如量子点 [11,18,19], 或直接带隙半导体结构、可见光发射的染料分子、荧光蛋白 [3]), 纳米天线导致的修正后的量子产率可能会降低 [3,12,63,65], 表达为 $\eta \approx \gamma_R / \gamma_T$ (称为天线辐射效率) [38,65]; 而对于具有极低 η_0 的发射体, 即 $\eta_0 \ll 1$ (例如红外发射的染料分子、自发荧光的生

物结构和硅 [3]), 纳米天线导致的修正后的量子产率可能会增大 [3,8,27,63], 表达为 $\eta \approx \gamma_R \eta_0$.

为了简化分析和计算, 位于点 $S(x_s, y_s, z_s)$ 振幅为 1 的点源, 可等效为位于点 $S(x_s, y_s, z_s)$ 和点 $S'(-x_s, y_s, z_s)$ 处, 振幅均为 1/2 的对称点源 (如图 1(b1) 所示) 和振幅分别为 1/2 和 -1/2 的反对称点源 (图 1(b2)) 的叠加, 表达式为

$$\begin{aligned} \mathbf{J} &= \mathbf{J}_{\text{sym}} + \mathbf{J}_{\text{asym}} \\ &= \left[\frac{1}{2} \delta(x - x_s, y - y_s, z - z_s) \mathbf{z} \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{2} \delta(x + x_s, y - y_s, z - z_s) \mathbf{z} \right] \\ &\quad + \left[\frac{1}{2} \delta(x - x_s, y - y_s, z - z_s) \mathbf{z} \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{2} \delta(x + x_s, y - y_s, z - z_s) \mathbf{z} \right]. \end{aligned} \quad (1)$$

于是, 单位振幅点源产生的辐射场为 $\Psi = \Psi_{\text{sym}} + \Psi_{\text{asym}}$, 其中 $\Psi = [\mathbf{E}, \mathbf{H}]$ 表示电场 (\mathbf{E}) 和磁场 (\mathbf{H}) 矢量, Ψ_{sym} 和 Ψ_{asym} 分别表示对称、反对称点源的辐射场. 因此, 纳米间隙中点源的总辐射速率表达为

$$\begin{aligned} \Gamma_{\text{tot}} &= \Gamma_{\text{tot,sym}} + \Gamma_{\text{tot,asym}} \\ &= -\frac{1}{2} \text{Re}[E_{z,\text{sym}}(x_s, y_s, z_s) + E_{z,\text{asym}}(x_s, y_s, z_s)], \end{aligned} \quad (2)$$

其中 $E_{z,\text{sym}}(x_s, y_s, z_s)$ 和 $E_{z,\text{asym}}(x_s, y_s, z_s)$ 分别是对称点源和反对称点源在点 $S(x_s, y_s, z_s)$ 位置激发的电场 z 分量. 此外, 利用 $\Psi = \Psi_{\text{sym}} + \Psi_{\text{asym}}$, 也可以计算远场辐射速率 Γ_{rad} . 为了获得天线辐射的严格数据, 本文使用全波非周期傅里叶模式法 (aperiodic Fourier modal method, a-FMM) [66,67].

2.2 SPP 模型

为了分析天线自发辐射增强的物理机制, 接下来将考虑 SPP 直观的激发和多重散射过程, 建立一个半解析 SPP 模型. 将天线臂看成沿 x 方向平移不变的波导, 支持沿 x 方向传播的 SPP 波导模式. 由于所有波导模式构成了一组完备的基函数 [68], 因此, 在天线臂沿 x 方向的范围内 ($-w/2 - L \leq x \leq -w/2$ 或 $w/2 \leq x \leq w/2 + L$), 点源激励的电磁场能够表达为天线臂支持的 SPP 波导模式的线性叠加. 由于天线截面尺寸以及天线与金基底之间的间隙尺寸远小于波长, 因此只有 SPP 基模式是束缚的 (场沿横向 y 和 z 方向无限远处衰减为 0) 和传播的 (传播常数几乎为实数), 其他高阶模式要

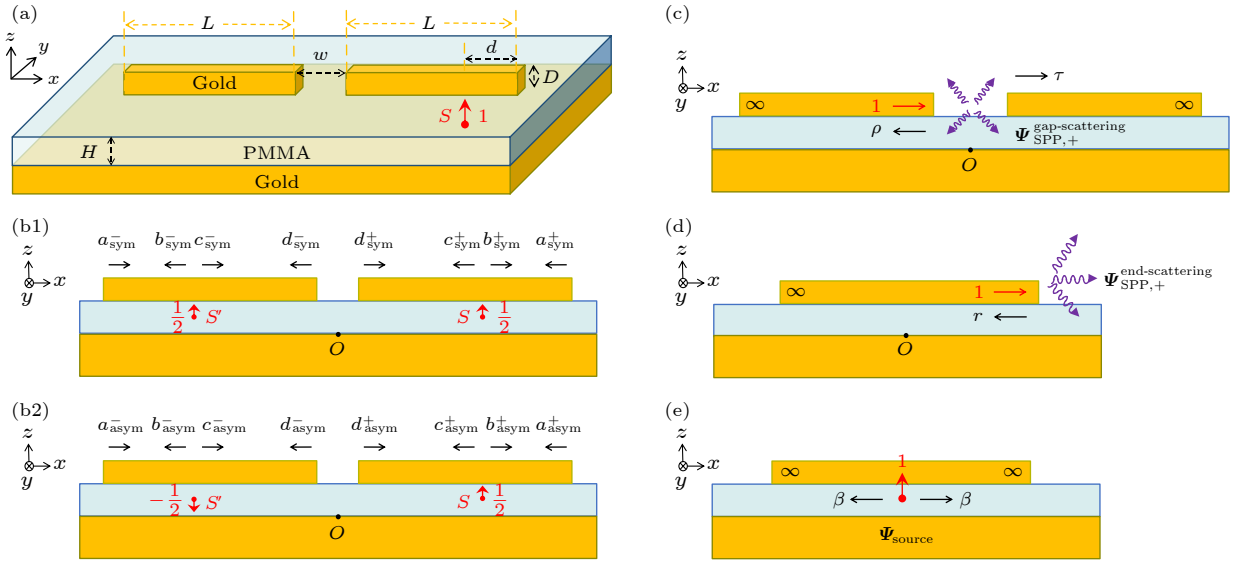


图 1 (a) 金基底上金偶极纳米天线结构示意图; (b1), (b2) 对称点源和反对称点源激励下, SPP 模型中的 SPP 模式系数 $a_{\text{sym/asym}}^{+/-}$, $b_{\text{sym/asym}}^{+/-}$, $c_{\text{sym/asym}}^{+/-}$, $d_{\text{sym/asym}}^{+/-}$ 的定义; (c)—(e) SPP 模型中用到的 SPP 散射系数 ρ , τ , r , β 以及电磁场 $\Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{gap-scattering}}$, $\Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{end-scattering}}$, Ψ_{source} 的定义

Fig. 1. (a) Schematic diagram of the gold dipole nanoantenna on a gold substrate; (b1), (b2) definition of the SPP mode coefficients $a_{\text{sym/asym}}^{+/-}$, $b_{\text{sym/asym}}^{+/-}$, $c_{\text{sym/asym}}^{+/-}$, $d_{\text{sym/asym}}^{+/-}$ in the SPP model under excitation by symmetric and anti-symmetric point sources; (c)–(e) definition of the SPP scattering coefficients ρ , τ , r , β and electromagnetic fields $\Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{gap-scattering}}$, $\Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{end-scattering}}$, Ψ_{source} used in the SPP model.

么是非束缚的, 要么是非传播的^[69]. 因此, 对于上述电磁场表达为 SPP 波导模式的线性叠加, 模型中只考虑 SPP 基模式, 忽略其他高阶模式的贡献. 图 2 给出了使用全波 a-FMM^[66,67] 计算得到的 $y-z$ 横截面上 SPP 基模式场分布, 可见间隙中电场的主要分量为 E_z . 计算选取波长 $\lambda = 1 \mu\text{m}$, $D = 40 \text{ nm}$, $H = 10 \text{ nm}$, 计算得到 SPP 基模式的等效折射率为 $n_{\text{eff}} = 3.4304 + 0.1009i$.

在 SPP 模型中, 分别考虑了对称、反对称点源激励的情况, 如图 1(b1) 和图 1(b2) 所示. 采用 $a_{\text{sym/asym}}^{+/-}$ 与 $d_{\text{sym/asym}}^{+/-}$ 分别表示自天线臂端面和狭缝开始传播的 SPP 未知系数. 采用 $b_{\text{sym/asym}}^{+/-}$ 与 $c_{\text{sym/asym}}^{+/-}$ 分别表示自点源 (位于 S 或 S') 开始向天线臂端面和狭缝传播的 SPP 未知系数. 其中下标 sym 和 asym 分别对应对称、反对称点源激励, 上标-和+分别对应天线左臂、右臂上 SPP 系数. 这里, SPP 模式在其开始传播的截面上满足图 2 所示的归一化. 因此, 对于对称点源激励 (图 1(b1)), 满足 $a_{\text{sym}}^+ = a_{\text{sym}}^-$, $b_{\text{sym}}^+ = b_{\text{sym}}^-$, $c_{\text{sym}}^+ = c_{\text{sym}}^-$ 和 $d_{\text{sym}}^+ = d_{\text{sym}}^-$; 对于反对称点源激励 (图 1(b2)), 满足 $a_{\text{sym}}^+ = -a_{\text{sym}}^-$, $b_{\text{sym}}^+ = -b_{\text{sym}}^-$, $c_{\text{sym}}^+ = -c_{\text{sym}}^-$ 和 $d_{\text{sym}}^+ = -d_{\text{sym}}^-$.

为了求解 SPP 系数, 可以写出一组 SPP 耦合方程:

$$a_{\text{sym/asym}}^+ = b_{\text{sym/asym}}^+ ur, \quad (3a)$$

$$b_{\text{sym/asym}}^+ = \beta/2 + d_{\text{sym/asym}}^+ v, \quad (3b)$$

$$c_{\text{sym/asym}}^+ = \beta/2 + a_{\text{sym/asym}}^+ u, \quad (3c)$$

$$d_{\text{sym/asym}}^+ = c_{\text{sym/asym}}^+ v\rho + c_{\text{sym/asym}}^- v\tau, \quad (3d)$$

其中 $u = \exp(ik_0 n_{\text{eff}} d)$ 是 SPP 从点源传播距离 d 到达天线端面时累积的相移因子, $v = \exp[ik_0 n_{\text{eff}} (L - d)]$ 是 SPP 从点源传播距离 $(L - d)$ 到达狭缝时累积的相移因子, $k_0 = 2\pi/\lambda$ 是真空中波数, n_{eff} 是 SPP 模式的复数等效折射率 (无量纲). ρ 和 τ 分别是 SPP 在天线臂间狭缝的反射和透射系数, 如图 1(c) 所示. r 是 SPP 在天线端面的反射系数, 如图 1(d) 所示. β 是单位振幅的点源激励的 SPP 系数, 如图 1(e) 所示. 这里 ρ , τ , r , β 是作为散射矩阵元素^[70,71], 采用全波数值方法 a-FMM^[66,67] 严格计算得到. 可见, 模型中用到的所有物理量都是基于 Maxwell 方程组第一性原理计算获得, 无需任何拟合过程, 这就保证了模型具备严格的电磁学基础, 并且能够给出定量的预测. 此外, β 也可以采用互易定理^[68] 计算如下:

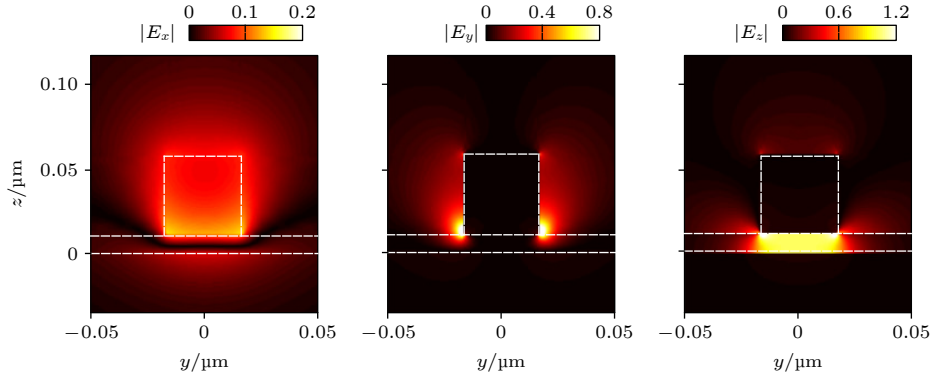


图 2 在 y - z 横截面上 SPP 基模式电场分量的模值 ($|E_x|$, $|E_y|$, $|E_z|$), 在 $(y, z) = (0, H/2)$ 处满足归一化 $E_z = 1$. 图中叠加的虚线显示了结构的边界

Fig. 2. Moduli of the electric-field components ($|E_x|$, $|E_y|$, $|E_z|$) on the y - z cross section for the fundamental SPP mode satisfying normalization $E_z = 1$ at $(y, z) = (0, H/2)$. The superimposed dashed lines show the boundaries of the structure.

$$\beta = \frac{-\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}_{\text{SPP},-}(0, y_s, z_s)}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} [\mathbf{E}_{\text{SPP},-}(0, y, z) \times \mathbf{H}_{\text{SPP},+}(0, y, z) - \mathbf{E}_{\text{SPP},+}(0, y, z) \times \mathbf{H}_{\text{SPP},-}(0, y, z)] \cdot \mathbf{x} dy dz}, \quad (4)$$

其中 $\Psi_{\text{SPP}, \pm}(x, y, z) = \Psi_{\text{SPP}, \pm}(0, y, z)\exp(\pm ik_0 n_{\text{eff}} x)$, 表示沿 x 轴正向 (+)、负向 (-) 传播的 SPP 模式, $\mathbf{p} = \mathbf{z}$ 为沿点源偏振方向的单位矢量. 方程 (4) 的优势在于, 当计算得到 $\Psi_{\text{SPP}, \pm}$ 后, 如果改变点源的位置 (y_s, z_s) 或偏振方向 \mathbf{p} , 不必重复求解 Maxwell 方程组, 即可得到 β .

方程 (3) 可以直观地理解如下. 以方程 (3b) 为例, 天线右臂 S 点右侧右行 SPP 系数 ($b_{\text{sym/asym}}^+$) 来源于两部分贡献: 一是振幅为 $1/2$ 的点源的直接激发 ($\beta/2$), 二是狭缝右侧右行 SPP (系数为 $d_{\text{sym/asym}}^+$) 从狭缝传播到了 S 点右侧 (相移因子为 v). 对于方程 (3d), $d_{\text{sym/asym}}^+$ 来源于两部分贡献: 一是天线右臂 S 点左侧左行 SPP (系数为 $c_{\text{sym/asym}}^+$) 传播到狭缝 (相移因子为 v) 发生反射 (反射系数为 ρ), 二是天线左臂 S' 点右侧右行 SPP (系数为 $c_{\text{sym/asym}}^-$) 传播到狭缝 (相移因子为 v) 发生透射 (透射系数为 τ). 方程 (3) 中其他方程可以类似来理解.

求解方程 (3), 可以分别得到对称、反对称点源激励的 SPP 模式系数, 即

$$a_{\text{sym}}^+ = a_{\text{sym}}^- = \frac{[1 + v^2(\rho + \tau)] ur\beta/2}{1 - u^2 v^2 r(\rho + \tau)}, \quad (5a)$$

$$b_{\text{sym}}^+ = b_{\text{sym}}^- = \frac{[1 + v^2(\rho + \tau)] \beta/2}{1 - u^2 v^2 r(\rho + \tau)}, \quad (5b)$$

$$c_{\text{sym}}^+ = c_{\text{sym}}^- = \frac{(1 + u^2 r) \beta/2}{1 - u^2 v^2 r(\rho + \tau)}, \quad (5c)$$

$$d_{\text{sym}}^+ = d_{\text{sym}}^- = \frac{(1 + u^2 r) (\rho + \tau) v \beta/2}{1 - u^2 v^2 r(\rho + \tau)}, \quad (5d)$$

$$a_{\text{asym}}^+ = -a_{\text{asym}}^- = -\frac{[1 + v^2(\rho - \tau)] ur\beta/2}{1 - u^2 v^2 r(\rho - \tau)}, \quad (5e)$$

$$b_{\text{asym}}^+ = -b_{\text{asym}}^- = -\frac{[1 + v^2(\rho - \tau)] \beta/2}{1 - u^2 v^2 r(\rho - \tau)}, \quad (5f)$$

$$c_{\text{asym}}^+ = -c_{\text{asym}}^- = -\frac{(1 + u^2 r) \beta/2}{1 - u^2 v^2 r(\rho - \tau)}, \quad (5g)$$

$$d_{\text{asym}}^+ = -d_{\text{asym}}^- = -\frac{(1 + u^2 r) (\rho - \tau) v \beta/2}{1 - u^2 v^2 r(\rho - \tau)}. \quad (5h)$$

在对称、反对称点源激励下 (图 1(b1) 和图 1(b2)), 天线右臂与金基底之间间隙内电磁场 $\Psi_{\text{gap, sym}}$ 和 $\Psi_{\text{gap, asym}}$ 可表达为

$$\Psi_{\text{gap, sym/asym}} = \frac{1}{2} \Psi_{\text{source}} + a_{\text{sym/asym}}^+ \Psi_{\text{SPP}, -} + d_{\text{sym/asym}}^+ \Psi_{\text{SPP}, +}. \quad (6)$$

方程 (6) 中, $\Psi = [\mathbf{E}, \mathbf{H}]$ 与前文定义一致, Ψ_{source} 是振幅为 1 的点源直接激发的电磁场, 如图 1(e) 所示. $\Psi_{\text{SPP}, +}$ 和 $\Psi_{\text{SPP}, -}$ 分别是前文定义的右行、左行 SPP 基模式场. Ψ_{source} , $\Psi_{\text{SPP}, +}$, $\Psi_{\text{SPP}, -}$ 都可以利用全波 a-FMM^[66,67] 进行计算. 于是, 在单个点源激励下 (图 1(a)), 天线右臂与金基底间的间隙内电磁场可以表达为

$$\begin{aligned} \Psi_{\text{gap}} &= \Psi_{\text{gap,sym}} + \Psi_{\text{gap,asym}} = \Psi_{\text{source}} \\ &+ (a_{\text{sym}}^+ + a_{\text{asym}}^+) \Psi_{\text{SPP,-}} + (d_{\text{sym}}^+ + d_{\text{asym}}^+) \Psi_{\text{SPP,+}}. \end{aligned} \quad (7)$$

利用方程 (7), 即可得到间隙中点源的总自发辐射速率 $\Gamma_{\text{tot}} = -\text{Re}[E_z(x_s, y_s, z_s)]/2$.

在对称、反对称点源激励下, 自由空间中的电磁场 Ψ_{sym} 和 Ψ_{asym} 可表达为

$$\begin{aligned} \Psi_{\text{sym}} &= \frac{1}{2} \Psi_{\text{source}} + \frac{1}{2} \Psi'_{\text{source}} + b_{\text{sym}}^+ u \Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{end-scattering}} \\ &+ c_{\text{sym}}^+ v \Psi_{\text{SPP,-}}^{\text{gap-scattering}} + b_{\text{sym}}^- u \Psi_{\text{SPP,-}}^{\text{end-scattering}} \\ &+ c_{\text{sym}}^- v \Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{gap-scattering}}, \end{aligned} \quad (8a)$$

$$\begin{aligned} \Psi_{\text{asym}} &= \frac{1}{2} \Psi_{\text{source}} - \frac{1}{2} \Psi'_{\text{source}} + b_{\text{asym}}^+ u \Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{end-scattering}} \\ &+ c_{\text{asym}}^+ v \Psi_{\text{SPP,-}}^{\text{gap-scattering}} + b_{\text{asym}}^- u \Psi_{\text{SPP,-}}^{\text{end-scattering}} \\ &+ c_{\text{asym}}^- v \Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{gap-scattering}}. \end{aligned} \quad (8b)$$

方程 (8) 中, Ψ_{source} 和 Ψ'_{source} 分别表示位于 S, S' 振幅为 1 的点源直接激发的电磁场, $\Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{end-scattering}}$ (如图 1(d) 所示) 和 $\Psi_{\text{SPP,-}}^{\text{end-scattering}}$ 分别表示右行、左行 SPP 在天线臂端面的散射场 (定义为总场减去入射场, 后者定义为金基底上无限长金纳米线支持的入射 SPP 场), $\Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{gap-scattering}}$ (图 1(c)) 和 $\Psi_{\text{SPP,-}}^{\text{gap-scattering}}$ 分别表示右行、左行 SPP 在天线狭缝位置的散射场. 上述四个散射场均可以采用全波 a-FMM^[66,67] 计算得到. 方程 (8) 可直观理解如下: 第 1, 2 项为点源的直接辐射场, 第 3, 4 项为天线右臂上 SPP (系数为 $b_{\text{sym/asym}}^+, c_{\text{sym/asym}}^+$) 传播到端面、狭缝 (相移因子为 u, v) 的散射场, 第 5, 6 项为天线左臂上 SPP (系数为 $b_{\text{sym/asym}}^-, c_{\text{sym/asym}}^-$) 传播到端面、狭缝 (相移因子为 u, v) 的散射场. 于是, 在单个点源激励下, 自由空间中的电磁场可表达为

$$\begin{aligned} \Psi_{\text{rad}} &= \Psi_{\text{sym}} + \Psi_{\text{asym}} \\ &= \Psi_{\text{source}} + (b_{\text{sym}}^+ + b_{\text{asym}}^+) u \Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{end-scattering}} \\ &+ (c_{\text{sym}}^+ + c_{\text{asym}}^+) v \Psi_{\text{SPP,-}}^{\text{gap-scattering}} \\ &+ (b_{\text{sym}}^- + b_{\text{asym}}^-) u \Psi_{\text{SPP,-}}^{\text{end-scattering}} \\ &+ (c_{\text{sym}}^- + c_{\text{asym}}^-) v \Psi_{\text{SPP,+}}^{\text{gap-scattering}}. \end{aligned} \quad (9)$$

利用方程 (9), 即可计算远场辐射速率 Γ_{rad} .

3 结果与讨论

3.1 天线的自发辐射宽带增强现象

为了研究单个点源辐射波长 λ 及天线臂间狭

缝宽度 w 对天线辐射特性的影响, 根据附录 A 中金基底上单臂纳米天线的结果, 将偶极天线臂长固定为 $L = L_{\text{res},1} = 126 \text{ nm}$ (图 3(a1) 和图 3(b1)) 及 $L = L_{\text{res},2} = 272 \text{ nm}$ (图 3(a2) 和图 3(b2)), 绘制了归一化总自发辐射速率 $\gamma_{\text{T}} = \Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ 与归一化远场辐射速率 $\gamma_{\text{R}} = \Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ 随 λ 变化的函数曲线, 其中选取不同的天线臂间狭缝宽度 $w = 5, 10, 15, 20, 25, 30, 35 \text{ nm}$. 全波 a-FMM 的计算结果 (圆圈) 表明, 在谐振峰处, 偶极天线能够实现 $\gamma_{\text{T}}, \gamma_{\text{R}}$ 的显著增强 ($\gamma_{\text{T}} \gg 1, \gamma_{\text{R}} \gg 1$). 例如, 当 $L = L_{\text{res},1}, w = 35 \text{ nm}$ 时, 在波长 $\lambda = 1.01 \mu\text{m}$ 处 $\gamma_{\text{T}}, \gamma_{\text{R}}$ 分别达到 5454 及 1041. 如 2.1 节所述, 高的 $\gamma_{\text{T}}, \gamma_{\text{R}}$ 值对于高速纳米光源^[2,3,18,19,21]、表面增强荧光^[8,9,12–15] 或拉曼散射^[16,17,39,40] 等应用非常重要. 在这方面, 对于其他具有宽波段辐射增强性能的天线, 例如, 金纳米环-中心蝴蝶结天线^[8] 可实现最高 $\gamma_{\text{T}} \approx 2100, \gamma_{\text{R}} \approx 1700$, 金纳米环-单蝶形尖峰天线^[27] 可实现最高 $\gamma_{\text{T}} \approx 760, \gamma_{\text{R}} \approx 520$, V 型槽环谐振器^[62] 可实现最高 $\gamma_{\text{T}} \approx 2400$, 非对称等离子体天线^[9] 可实现最高 $\gamma_{\text{T}} \approx 4500, \gamma_{\text{R}} \approx 1800$. 和上述天线相比, 本文提出的偶极天线能获得更高的 γ_{T} 和数量级相当的 γ_{R} , 并且, 该偶极天线属于 NPoM 结构^[30–35], 在制备方面具有能够精确形成纳米间隙的优势. 此外, 本文计算的天线尺寸在实验中能够实现, 已有研究可制备偶极天线臂长为几十 nm^[43], 两臂间狭缝宽度达到 5 nm^[25]. 对于实验制备偶极天线可能出现的棱边、棱角圆角化, 附录 B 中的计算结果表明, 天线圆角化只会导致谐振波长移动, 对 γ_{T} 和 γ_{R} 发生增强的带宽及其在谐振峰位置的数值影响很小.

值得注意的是, 图 3 显示出成对、可调的共振峰, 由此产生自发辐射速率的宽带增强现象. 对于图 3(a1) 和图 3(b1) 中 $L = L_{\text{res},1}$ 的天线, $\gamma_{\text{T}}, \gamma_{\text{R}}$ 的谐振峰总是成对出现. 随着狭缝宽度 w 的增大, 双谐振峰逐渐接近, 当继续增大 w 时, 双峰逐渐演变成单峰, 且越来越尖锐, 趋于单臂纳米天线的结果. 当 w 从 10 nm 增大到 35 nm 时, $\gamma_{\text{T}} > 1000$ 的波长范围可由 [932, 1200] nm 连续变化到 [938, 1100] nm. 与 γ_{T} 类似, 也可以通过改变 w 来连续调节 γ_{R} 获得增强的波长范围. 将左、右谐振峰的谐振波长分别记为 $\lambda_{\text{res},1}, \lambda_{\text{res},2}$, 可以发现 $\gamma_{\text{T}}, \gamma_{\text{R}}$ 谐振峰的谐振波长一致. 例如, 在图 3(a1) 和图 3(b1) 中, 用两条竖直蓝色 (或红色) 点划线标出了 $w = 5 \text{ nm}$

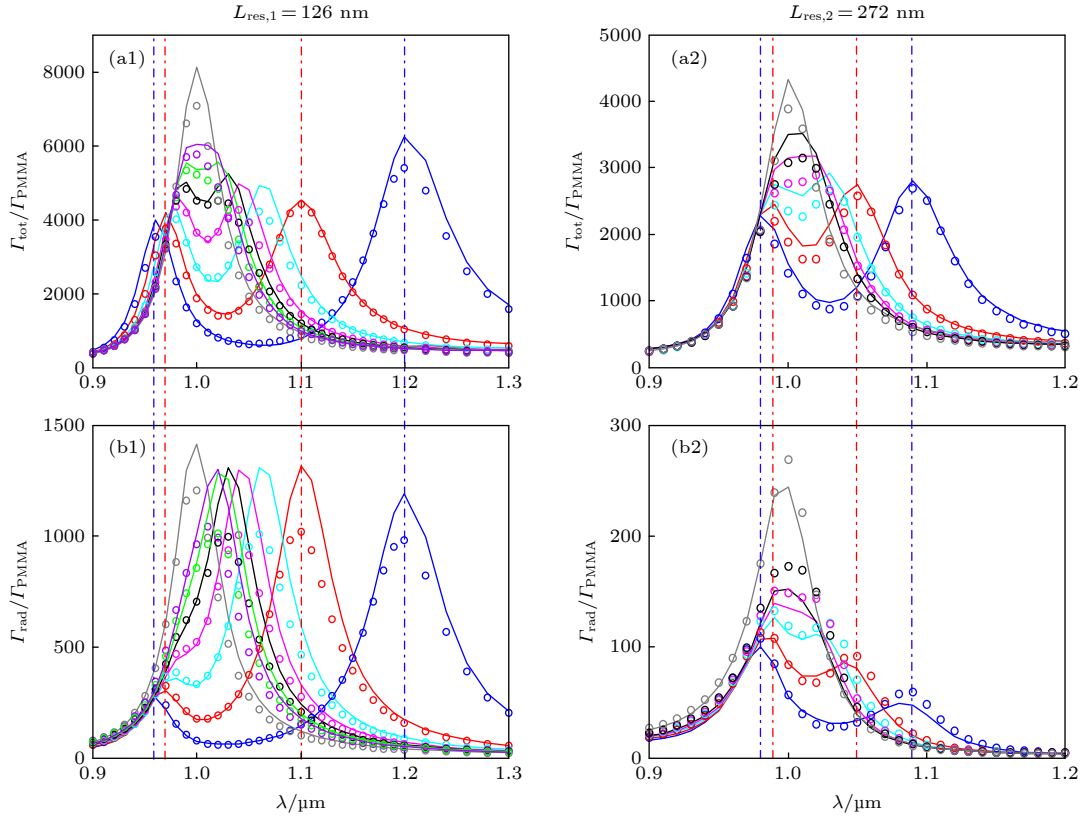
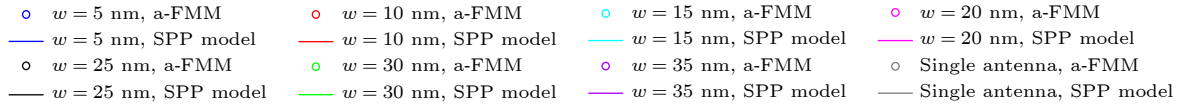


图 3 在单个点源激励下, 偶极纳米天线的归一化总辐射速率 $\Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ ((a1), (a2)) 和归一化远场辐射速率 $\Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ ((b1), (b2)), 显示为点源辐射波长 λ 的函数. 结果分别采用 a-FMM 严格计算 (圆圈) 和 SPP 模型 (实线) 得到. (a1), (b1) 天线臂长 $L = L_{\text{res},1} = 126$ nm. (a2), (b2) $L = L_{\text{res},2} = 272$ nm. 不同天线臂间狭缝宽度 w 对应不同颜色的曲线. 灰色曲线对应单臂纳米天线的结果. 竖直线划显示了方程 (10) 预测的谐振波长

Fig. 3. Normalized total emission rate $\Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ ((a1), (a2)) and normalized radiative emission rate $\Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ ((b1), (b2)) of the dipole nanoantenna under a single point-source excitation plotted as functions of the excitation wavelength λ . The results are obtained with the rigorous a-FMM calculation (circles) and the SPP model (solid curves), respectively. (a1), (b1) Antenna arm length $L = L_{\text{res},1} = 126$ nm. (a2), (b2) $L = L_{\text{res},2} = 272$ nm. Different widths w of the slit between the antenna arms correspond to curves of different colors. The gray curves show the results of a single-arm nanoantenna. The vertical dash-dot lines show the resonant wavelengths predicted by Equation (10).

(或 $w = 10$ nm) 时, γ_{T} 及 γ_{R} 双谐振峰的谐振波长, 分别为 $\lambda_{\text{res},1} = 0.96 \mu\text{m}$, $\lambda_{\text{res},2} = 1.20 \mu\text{m}$ (或 $\lambda_{\text{res},1} = 0.97 \mu\text{m}$, $\lambda_{\text{res},2} = 1.10 \mu\text{m}$), 其物理机制将在下一节讨论. 当 $w = 10$ nm 时, 在 $\lambda_{\text{res},2} = 1.10 \mu\text{m}$ 位置, 天线辐射效率为 $\gamma_{\text{R}}/\gamma_{\text{T}} = 22.95\%$, 表明天线具有较好的远场辐射性能. 对图 3(a2) 和图 3(b2) 中 $L = L_{\text{res},2}$ 的天线, γ_{T} , γ_{R} 也出现了与 $L = L_{\text{res},1}$ 的天线类似的双谐振峰. 当 w 从 10 nm 增大到 25 nm 时, $\gamma_{\text{T}} > 1000$ 的波长范围可由 [960, 1090] nm 连续变化到 [962, 1060] nm. 当 $w = 10$ nm 时, 在谐振波长 $\lambda_{\text{res},1} = 0.99 \mu\text{m}$ 位置, 天线辐射效率为 $\gamma_{\text{R}}/\gamma_{\text{T}} = 4.92\%$. 对于相同的 w 取值, 天线臂长度

从 $L = L_{\text{res},1}$ 增大到 $L = L_{\text{res},2}$, γ_{T} 与 γ_{R} 的峰值及获得增强的带宽均明显减小, 并且在谐振波长位置, 天线的辐射效率明显下降.

3.2 天线自发辐射增强特性基于 SPP 模型的机理分析

为了揭示数值结果背后的物理机制, 我们使用 SPP 模型来预测 γ_{T} 与 γ_{R} . 如图 3 所示, SPP 模型预测 (实线) 与全波 a-FMM 计算 (圆圈) 结果符合较好, 这证实了模型的有效性. 然而, 在谐振峰附近, SPP 模型存在一定的误差. 该误差表明, 除了模型中考虑的 SPP 基模式以外, 模型中忽略的其

他高阶模式(非束缚态模式、非传播模式)^[68,69]也对天线辐射有贡献.

为了解释图 3 中显示的自发辐射宽带增强现象, SPP 模型方程 (7)(或方程 (9)) 表明, 对于 γ_T (或 γ_R) 达到极大值, 要求 SPP 模式系数 $a_{\text{sym/asym}}^+$, $d_{\text{sym/asym}}^+$ (或 $b_{\text{sym/asym}}^{+/-}$, $c_{\text{sym/asym}}^{+/-}$) 达到极大值, 即要求满足以下两个相位匹配条件之一:

$$2k_0\text{Re}(n_{\text{eff}})L + \arg(r) + \arg(\rho + \tau) = 2M\pi, \quad (10a)$$

$$2k_0\text{Re}(n_{\text{eff}})L + \arg(r) + \arg(\rho - \tau) = 2N\pi, \quad (10b)$$

其中 $\arg()$ 表示辐角; $k_0 = 2\pi/\lambda$ 是真空中波数; M, N 取整数, 分别是对称、反对称点源激励下的谐振级次. 方程 (10) 由方程 (5) 分母模值 $|1 - u^2v^2r(\rho \pm \tau)|$ 取极小值得到, 这要求 $\arg[u^2v^2r(\rho \pm \tau)]$ 取 2π 的整数倍(即方程 (10)), 以及 $|u^2v^2r(\rho \pm \tau)| = |uv|^2|r||\rho \pm \tau| \approx 1$, 后者基于以下考虑得到. 首先, SPP 反射、透射系数 ρ 和 τ 需要满足相干形式的能量守恒关系^[72], 即 $|\rho + \tau| \approx 1$, $|\rho - \tau| \approx 1$ (当 $w = 10 \text{ nm}$, $\lambda = 1 \mu\text{m}$ 时, $|\rho + \tau| = 0.9939$, $|\rho - \tau| = 0.9676$); 其次, SPP 在天线两端的反射较强, 即 $|r| \approx 1$ (当 $\lambda = 1 \mu\text{m}$ 时, $|r| = 0.9793$); 再次, 结构中支持的 SPP 为传播模式, 其等效折射率 n_{eff} 虚部很小($\lambda = 1 \mu\text{m}$ 时, $n_{\text{eff}} = 3.4304 + 0.1009i$), 从而使得 SPP 传播一个天线臂距离的衰减 $|uv| = \exp[-k_0\text{Im}(n_{\text{eff}})L] \approx 1$.

方程 (10) 可用于确定发生自发辐射增强时的天线参数. 例如, 对于方程 (10a), 可写成超越方程 $\lambda = f(\lambda)$ 的形式, 其中

$$f(\lambda) = \frac{4\pi\text{Re}(n_{\text{eff}})L}{2M\pi - \arg(r) - \arg(\rho + \tau)},$$

$n_{\text{eff}}, r, \rho, \tau$ 均为波长 λ 的缓变函数. 该超越方程可通过线性插值迭代法^[73,74] 求解, 得到 $\lambda = \lambda_{\text{res, sym}}$, 为对称点源激励下的谐振波长. 用同样的方法可求解方程 (10b), 确定 $\lambda = \lambda_{\text{res, asym}}$, 为反对称点源激励下的谐振波长.

如图 4 所示, 利用方程 (10), 预测了不同狭缝宽度 w 对应的谐振波长 $\lambda_{\text{res, sym/asym}}$, 预测结果与图 3 中 a-FMM^[66,67] 严格计算结果吻合(有 $\lambda_{\text{res, sym}} = \lambda_{\text{res, 1}}$, $\lambda_{\text{res, asym}} = \lambda_{\text{res, 2}}$), 这证实了模型方程 (10) 的有效性. 图 4 表明, 有 $\lambda_{\text{res, sym}} < \lambda_{\text{res}}^{\text{single antenna}} < \lambda_{\text{res, asym}}$, 其中 $\lambda_{\text{res}}^{\text{single antenna}} = 1 \mu\text{m}$ 为金基底上单臂纳米天线的谐振波长, 如图 4 中水平黑点划

线所示(由附录 A 中方程 (A5) 确定), 黑色点划线上方为偶极天线在反对称点源激励下的谐振波长 $\lambda_{\text{res, asym}}$, 下方为偶极天线在对称点源激励下的谐振波长 $\lambda_{\text{res, sym}}$. 随着 w 增大, $\lambda_{\text{res, sym}}$ 与 $\lambda_{\text{res, asym}}$ 逐渐靠近, 并逐渐趋于 $\lambda_{\text{res}}^{\text{single antenna}}$, 使得发生自发辐射增强的带宽减小, 这与图 3 所示结果一致. 以上结果可解释如下. 随着 w 增大, 狭缝处 SPP 的透射系数 τ 趋于 0, 反射系数 ρ 趋于 SPP 在天线端面的反射系数 r (如图 1(c) 和图 1(d) 所示), 这使得方程 (10) 中 $\arg(\rho + \tau)$ 与 $\arg(\rho - \tau)$ 均趋于相同的数值 $\arg(r)$, 于是方程 (10) 趋于单臂纳米天线的谐振条件(附录 A 中方程 (A5)), 这使得 $\lambda_{\text{res, sym}}$ 和 $\lambda_{\text{res, asym}}$ 均趋于 $\lambda_{\text{res}}^{\text{antenna single}}$.

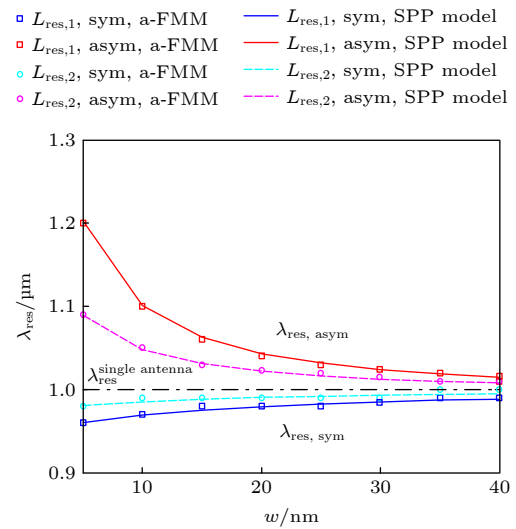


图 4 偶极纳米天线谐振波长 λ_{res} 随狭缝宽度 w 变化的曲线. 图中 $\lambda_{\text{res, sym}} = \lambda_{\text{res, 1}}$, $\lambda_{\text{res, asym}} = \lambda_{\text{res, 2}}$, $\lambda_{\text{res, 1}}, \lambda_{\text{res, 2}}$ 为图 3 中 γ_T 或 γ_R 的谐振波长. 方形、圆为 a-FMM 严格计算结果. 实线、虚线为 SPP 模型方程 (10) 预测的结果. 红色、蓝色曲线对应天线臂长 $L = L_{\text{res, 1}} = 126 \text{ nm}$ [对应方程 (10) 中 $M = N = 1$], 洋红、青蓝色曲线对应 $L = L_{\text{res, 2}} = 272 \text{ nm}$ (对应 $M = N = 2$). 水平点划线为方程 (A5) 预测的单臂纳米天线的谐振波长

Fig. 4. Resonant wavelength λ_{res} of the dipole nanoantenna plotted as a function of the slit width w . There are $\lambda_{\text{res, sym}} = \lambda_{\text{res, 1}}$ and $\lambda_{\text{res, asym}} = \lambda_{\text{res, 2}}$, with $\lambda_{\text{res, 1}}$ and $\lambda_{\text{res, 2}}$ being the resonant wavelengths of γ_T or γ_R shown in Figure 3. The squares and circles show the results obtained with the rigorous a-FMM calculation. The solid and dashed curves show the predictions of the SPP model Equation (10). The red and blue curves correspond to the antenna arm length $L = L_{\text{res, 1}} = 126 \text{ nm}$ (obtained for $M = N = 1$ in Equation (10)). The magenta and cyan curves correspond to $L = L_{\text{res, 2}} = 272 \text{ nm}$ (obtained for $M = N = 2$). The horizontal dash-dot line shows the resonant wavelength of the single-arm nanoantenna predicted by Equation (A5).

下面基于 SPP 模型方程, 解释天线产生谐振并引起自发辐射增强的原因. 首先, 当预测谐振条件的方程 (10) 得到满足时, SPP 沿天线臂往返传播一周所累积的相移 (方程 (10) 左侧) 为 2π 的整数倍, 这使得经过多重散射后的 SPP 产生相长干涉叠加, 从而形成 SPP 的 Fabry-Perot 共振. 然后, 根据方程 (7), 这些共振激发的 SPP (具有较大系数 $a_{\text{sym/asym}}^+$, $d_{\text{sym/asym}}^+$) 将增强点辐射源位置的电场, 最终增大总自发辐射速率 Γ_{tot} , 如图 3(a1) 和图 3(a2) 所示. 对于远场辐射速率 Γ_{rad} , 根据方程 (9), 这些共振激发的 SPP (具有较大系数 $b_{\text{sym/asym}}^{+/-}$, $c_{\text{sym/asym}}^{+/-}$) 会增强其产生的散射场, 并最终增强 Γ_{rad} , 如图 3(b1) 和图 3(b2) 所示.

图 3 显示了随着天线臂长 L 的增大, 发生谐振时 γ_{T} , γ_{R} 的峰值减小. 为了解释该现象, 发生谐振时, 方程 (5) 给出的 SPP 系数的分母模值满足:

$$\begin{aligned} |1 - u^2 v^2 r(\rho \pm \tau)| &= 1 - |u^2 v^2 r(\rho \pm \tau)| \\ &= 1 - |\rho(\rho \pm \tau)| \exp[-2k_0 \text{Im}(n_{\text{eff}}) L], \end{aligned} \quad (11)$$

其中 $\text{Im}(\)$ 表示虚部. 当 L 增大时, 方程 (11) 右端增大, 使得 SPP 系数减小, 进而使得 γ_{T} , γ_{R} 均减小.

3.3 近场分析

图 5 显示了在单个点源激励下, 采用全波 a-FMM^[66,67] 严格计算得到的偶极天线发生谐振时的近场分布. 该结果对应图 3(或图 4) 中天线臂长度 $L = L_{\text{res},1}$ 及 $L = L_{\text{res},2}$, 狭缝宽度 $w = 10$ nm, 以及谐振波长 $\lambda_{\text{res},1}$, $\lambda_{\text{res},2}$ (或 $\lambda_{\text{res},\text{sym}} = \lambda_{\text{res},1}$, $\lambda_{\text{res},\text{asym}} = \lambda_{\text{res},2}$, 分别对应对称、反对称点源激励下的 M, N 谐振级次, 见方程 (10)). 图 5(a1) 和图 5(c1) 表明, 对于对称谐振级次 ($M = 1, 2$), $\text{Re}(E_z)$ 关于 $x = 0$ 呈对称分布. 图 5(b1) 和图 5(d1) 表明, 对于反对称谐振级次 ($N = 1, 2$), $\text{Re}(E_z)$ 关于 $x = 0$ 呈反对称分布. 这可以通过 SPP 模型来理解. 该模型预测, 在谐振条件 (方程 (10a)) 下, 单个点源中包含的对称点源激发的场产生谐振 (即方程 (5b))—(5d) 给出的对称点源激发的 SPP 系数取极大值), 因此强于单个点源中包含的反对称点源激发的场, 这使得对称点源激发的场成为电磁场的主要成分, 于是电磁场显示出和对称点源一致的对称性 (如图 5(a1) 和图 5(c1) 所示). 同理, 在谐振条件 (方

程 (10b)) 下, 电磁场将显示出和反对称点源一致的对称性 (如图 5(b1) 和图 5(d1) 所示). 图 5(a2)—(d2) 显示了 $|E_z|$ 近场分布, 其中在点源对应的 (x, y) 坐标位置出现了一个亮点, 这是由于点源位置 $\text{Im}(E_z)$ 存在趋于无穷大的奇异性.

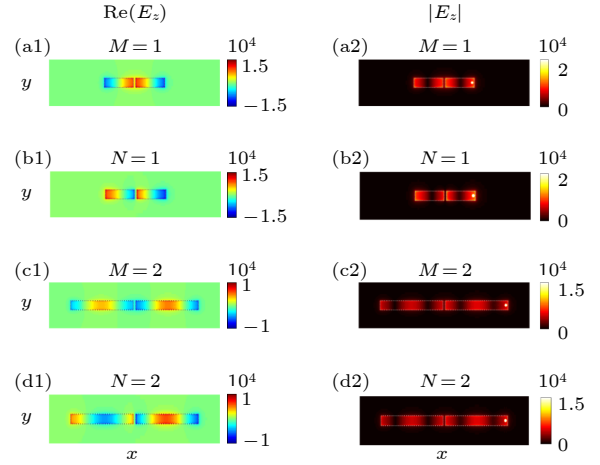


图 5 单个点源激励下, 天线纳米间隙内 ($z = H$ 下 1 nm 截面上) 主要电场分量 E_z 的近场分布 (a1), (a2), (b1), (b2) 天线臂长 $L = L_{\text{res},1} = 126$ nm, $\lambda_{\text{res},\text{sym}} = 0.97$ μm , $\lambda_{\text{res},\text{asym}} = 1.10$ μm (分别对应方程 (10) 中 $M = 1$ 和 $N = 1$); (c1), (c2), (d1), (d2) $L = L_{\text{res},2} = 272$ nm, $\lambda_{\text{res},\text{sym}} = 0.99$ μm , $\lambda_{\text{res},\text{asym}} = 1.05$ μm (分别对应 $M = 2$ 和 $N = 2$); (a1)—(d1) 显示了 $\text{Re}(E_z)$; (a2)—(d2) 显示了 $|E_z|$. E_z 做了归一化 (除以 Γ_{PMMA})

Fig. 5. Near-field distribution of the main electric-field component E_z in the antenna nanogap (on the cross-section of 1 nm below $z = H$) under excitation by a single point source: (a1), (a2), (b1), (b2) For antenna arm length $L = L_{\text{res},1} = 126$ nm and wavelengths $\lambda_{\text{res},\text{sym}} = 0.97$ μm , $\lambda_{\text{res},\text{asym}} = 1.10$ μm (respectively corresponding to $M = 1$ and $N = 1$ in Equation (10)); (c1), (c2), (d1), (d2) for $L = L_{\text{res},2} = 272$ nm and $\lambda_{\text{res},\text{sym}} = 0.99$ μm , $\lambda_{\text{res},\text{asym}} = 1.05$ μm (respectively corresponding to $M = 2$ and $N = 2$); (a1)—(d1) show $\text{Re}(E_z)$; (a2)—(d2) show $|E_z|$. E_z is normalized (divided by Γ_{PMMA}).

图 5 表明, 随着谐振级次增大 (M 或 N 从 1 增大到 2), 天线单臂上的驻波振幅极大值点数量增加 (从 2 个增加到 3 个), 并且场逐渐变弱. 这也可以通过 SPP 模型来理解. 驻波源于天线臂上两个反向传播 SPP 的叠加, 当谐振级次增大时, 相应的天线臂长增大 (见方程 (10)), 使得驻波振幅极大值点个数增多. 同时, 根据方程 (11), 随着发生谐振时天线臂长 L 增大, SPP 模式系数减小, 使得纳米间隙中电磁场 Ψ_{gap} (方程 (7)) 减弱, 这与模型预测的总自发辐射速率 Γ_{tot} 的降低一致 (见图 3).

4 结 论

本文提出了一种具有宽波段自发辐射增强性能的金属基底上光学偶极纳米天线. 全波数值计算结果表明, 对于位于纳米间隙内的辐射源, 该天线的总辐射速率与远场辐射速率增强因子分别达到 5454 和 1041(对应天线辐射效率 19.09%). 在近红外波段, 自发辐射增强 (Purcell 因子超过 1000) 的波长范围达到 260 nm. 通过改变天线臂间狭缝宽度、两臂长度, 能够分别调节自发辐射增强的带宽和增强因子, 便于设计. 该天线能够在一定的物镜数值孔径对应的中心角区 (极角 $\theta \leq 60^\circ$) 内获得较强的远场辐射, 从而提高物镜收集的荧光强度. 并且, 该天线属于 NPoM 结构, 具有能够精确形成纳米间隙的优势. 基于上述性能, 该天线能够为荧光分子或量子点 (其荧光光谱覆盖一定的波长范围) 提供宽波段的自发辐射增强, 对于高速及高亮度纳米光源、高灵敏度荧光分子传感等相关应用具有重要意义.

为了阐明天线自发辐射增强性能背后的物理机制, 本文考虑天线臂上 SPP 激发和多重散射的直观物理过程, 建立了一个半解析模型. 该 SPP 模型中所有参数都是基于 Maxwell 方程组第一性原理计算获得, 不需要任何拟合过程, 这保证了模型具有坚实的电磁学基础, 能够给出定量的预测. 模型能够全面复现天线的辐射特性, 包括总辐射速率、远场辐射速率、远场辐射方向图等. 由模型得到了两个相位匹配条件, 其能够预测天线发生谐振时的参数, 表明在此条件下, SPP 在天线臂上形成一对 Fabry-Perot 共振获得增强, 该增强的 SPP 传播到纳米间隙内点源位置或散射到自由空间中, 由此分别提高了总自发辐射速率或远场辐射速率. 并且, 这一对 Fabry-Perot 共振产生了一对相互靠近的谐振峰, 由此形成了宽波段自发辐射增强.

附录 A 单臂纳米天线的自发辐射增强特性与偶极天线臂长的确定

为确定正文中偶极天线的臂长, 这里考虑如图 A1(a) 所示的金基底上单根矩形金纳米线构成的光学天线 (下文简称为“单臂纳米天线”). 设单位系数 z 偏振点源位于 $(x_s, y_s, z_s) = (L/2 - d, 0, H/2)$, 取坐标原点 O 位于金基底表面

上天线中心位置. d, H , 天线尺寸, 折射率等的取值与正文偶极天线相同. 取波长 $\lambda = 1 \mu\text{m}$, 计算了归一化总辐射速率 $\gamma_T = \Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ 和归一化远场辐射速率 $\gamma_R = \Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ 随天线臂长 L 变化的曲线, 如图 A1(c) 所示. a-FMM^[66,67] 严格计算结果表明 (蓝色、红色圆圈分别显示了 γ_T, γ_R), γ_T 与 γ_R 呈现准周期谐振峰, 前 2 个峰值位置为 $L_{\text{res}, 1} = 126 \text{ nm}$, $L_{\text{res}, 2} = 272 \text{ nm}$. 在谐振峰位置, γ_T 与 γ_R 均显著增强 ($\gamma_T \gg 1, \gamma_R \gg 1$), 并且峰值数值随 L 增大逐渐下降, 最大峰值出现在 $L = L_{\text{res}, 1}$, 此时有 $\gamma_T = 7089, \gamma_R = 1574$.

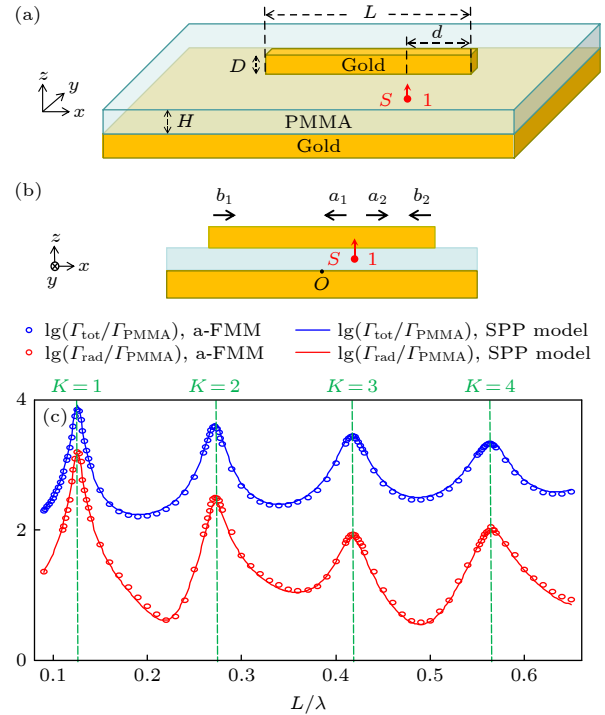


图 A1 (a) 金基底上单臂纳米天线示意图; (b) 在单个点源激励下, SPP 模型中 SPP 模式系数 a_1, a_2, b_1, b_2 的定义; (c) 归一化总辐射速率 $\Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (蓝色曲线) 和归一化远场辐射速率 $\Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (红色曲线) 随天线臂长 L 变化的曲线 (固定波长 $\lambda = 1 \mu\text{m}$). 圆圈和实线分别为全波 a-FMM, SPP 模型的结果. 竖直绿色虚线显示了方程 (A5) 确定的发生谐振的 L

Fig. A1. (a) Schematic diagram of a single-arm nanoantenna on a gold substrate; (b) definition of the SPP mode coefficients a_1, a_2, b_1, b_2 in the SPP model under a single point-source excitation; (c) normalized total emission rate $\Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (blue curves) and normalized radiative emission rate $\Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (red curves) of the antenna plotted as functions of the antenna arm length L (for fixed wavelength $\lambda = 1 \mu\text{m}$). The circles and solid curves show the results of the full-wave a-FMM and SPP model, respectively. The vertical green dashed lines show the L at resonance determined by Equation (A5).

为了解释数值结果, 下面建立 SPP 模型来预测 γ_T, γ_R , 模型的建立过程与偶极天线类似. 图 A1(b) 给出了模型中

的 SPP 模式系数, 其中 a_1, a_2 分别是由点源出发向天线左端、右端传播的 SPP 系数, b_1, b_2 是由天线左端、右端出发向点源传播的 SPP 系数. 为了确定 SPP 系数, 可以列出一组 SPP 耦合方程:

$$a_1 = \beta + b_2 u, \quad (\text{A1a})$$

$$a_2 = \beta + b_1 v, \quad (\text{A1b})$$

$$b_1 = a_1 v r, \quad (\text{A1c})$$

$$b_2 = a_2 u r, \quad (\text{A1d})$$

其中 $u = \exp(ik_0 n_{\text{eff}} d)$, $v = \exp[ik_0 n_{\text{eff}}(L - d)]$ 分别为 SPP 从点源传播到天线右端、左端的相移因子, SPP 散射系数 β, r 的定义及计算方法与偶极天线相同 (见正文方程 (3) 后). 求解方程 (A1), 可得 SPP 系数的表达式:

$$a_1 = \frac{\beta(1 + u^2 r)}{1 - u^2 v^2 r^2}, \quad (\text{A2a})$$

$$a_2 = \frac{\beta(1 + v^2 r)}{1 - u^2 v^2 r^2}, \quad (\text{A2b})$$

$$b_1 = \frac{\beta v r(1 + u^2 r)}{1 - u^2 v^2 r^2}, \quad (\text{A2c})$$

$$b_2 = \frac{\beta u r(1 + v^2 r)}{1 - u^2 v^2 r^2}. \quad (\text{A2d})$$

于是, 单臂纳米天线与金基底之间的间隙内电磁场 Ψ_{gap} 及自由空间中的电磁场 Ψ_{rad} 可表达为

$$\Psi_{\text{gap}} = \Psi_{\text{source}} + b_1 \Psi_{\text{SPP},+} + b_2 \Psi_{\text{SPP},-}, \quad (\text{A3})$$

$$\Psi_{\text{rad}} = \Psi_{\text{source}} + a_1 v \Psi_{\text{SPP},-}^{\text{end-scattering}} + a_2 u \Psi_{\text{SPP},+}^{\text{end-scattering}}. \quad (\text{A4})$$

方程 (A3) 和 (A4) 中, 电磁场 $\Psi_{\text{source}}, \Psi_{\text{SPP},\pm}^{\text{end-scattering}}$ 与波导模式场 $\Psi_{\text{SPP},\pm}$ 的定义和计算方法与偶极天线相同 (见正文方程 (6) 和方程 (8) 后). 得到 $\Psi_{\text{gap}}, \Psi_{\text{rad}}$ 后, 即可分别用于计算总辐射速率 Γ_{tot} 和远场辐射速率 Γ_{rad} .

如图 A1(c) 所示, SPP 模型 (实线) 与全波 a-FMM (圆圈) 计算得到的 Γ_{tot} (蓝色曲线), Γ_{rad} (红色曲线) 吻合, 验证了模型的有效性. 此外, 值得注意的是, 当改变天线长度 L 、点源到天线右端距离 d 时, SPP 模型的执行不必重复求解 Maxwell 方程组 (这是由于 SPP 模型方程对 L, d 的依赖关系是解析化的, 见方程 (A2)), 而全波 a-FMM^[66,67] 的执行需要重复求解 Maxwell 方程组, 因此, SPP 模型具有更高的计算效率. 这一点对于正文中偶极纳米天线的 SPP 模型也是成立的.

与正文方程 (10) 类似, 对于单臂纳米天线, Γ_{tot} 和 Γ_{rad} 取极大值要求 SPP 系数取极大值, 进而要求方程 (A2) 分母的模值取极小值, 可得如下相位匹配条件:

$$2k_0 \text{Re}(n_{\text{eff}})L + 2 \arg(r) = 2K\pi, \quad (\text{A5})$$

其中 K 取整数, 对应不同的谐振级次. 对比方程 (10) 和方程 (A5), 可见前者取 $\tau = 0, \rho = r$ 即成为后者, 原因是偶极天线取天线臂间狭缝尺寸 $w \rightarrow \infty$ 即成为单臂纳米天线. 利用方程 (A5), 对于固定的波长 λ , 有 $k_0 = 2\pi/\lambda$, n_{eff}, r 均与天线臂长 L 无关, 于是可确定天线发生谐振时的臂长 $L = L_{\text{res}}$. 方程 (A5) 确定的 L_{res} (取 $K = 1, 2, 3, 4$) 如图 A1(c) 中的竖直绿色虚线所示, 可见能准确预测谐振峰的位置, 验证了方程 (A5) 的有效性. 与正文方程 (10) 类似, 方程 (A5) 的物理含义为, SPP 沿天线往返传播一周所产生的相移 (方程 (A5) 左侧) 为 2π 的整数倍, 使得多重散射的 SPP 发生相长干涉叠加, 由此形成了 SPP 的 Fabry-Perot 共振.

固定波长 $\lambda = 1 \mu\text{m}$ 时, 基于图 A1(c) 中的 a-FMM 严格计算结果或 SPP 模型方程 (A5), 即可确定前 2 个谐振峰对应的单臂纳米天线长度 $L_{\text{res},1} = 126 \text{ nm}$, $L_{\text{res},2} = 272 \text{ nm}$ (对应 $K = 1, 2$), 这作为正文第 3 节的计算中偶极天线的天线臂长度. 由此可以预期, 当偶极天线的天线臂间狭缝尺寸 $w \rightarrow \infty$ 时, 偶极天线趋于单臂纳米天线, 则偶极天线的谐振波长必然趋于 $1 \mu\text{m}$, 如正文图 3 和图 4 所示.

附录 B 棱边、棱角圆角化对偶极天线性能的影响

对于实验制备偶极天线可能出现的棱边、棱角圆角化, 其对偶极天线性能的影响将在这里讨论. 如图 B1 所示, 天线棱边、棱角圆角化分别采用与矩形表面相切的圆柱面、球面, 设其半径为 R . 图 B2 给出了 $R = 2, 4, 6 \text{ nm}$ 时 (粉色、青色、蓝色曲线), 偶极天线的归一化总辐射速率 $\gamma_{\text{T}} = \Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (图 B2(a)) 和归一化远场辐射速率 $\gamma_{\text{R}} = \Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (图 B2(b)) 随点源辐射波长 λ 变化的曲线. 计算采用有限元法 (finite element method, FEM), 使用商用软件 COMSOL Multiphysics 执行. 计算固定天线臂长 $L = L_{\text{res},1} = 126 \text{ nm}$, 臂间狭缝宽度 $w = 10 \text{ nm}$. 图 B2 中

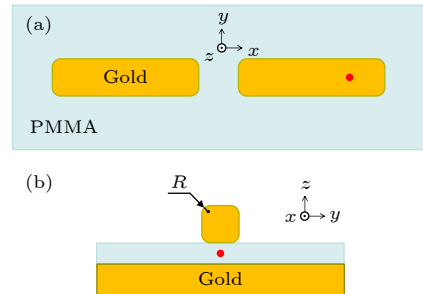


图 B1 偶极天线棱边、棱角圆角化后的俯视图 (a)、侧视图 (b). 图中红点代表辐射点源

Fig. B1. Top view (a) and side view (b) of the dipole antenna with rounded edges and corners. The red dot represents the emission point source.

$R = 0$ (红色曲线) 为无圆角化时, 全波 a-FMM 的计算结果 (即图 3(a1) 和图 3(b1) 中红色圆圈曲线). 结果表明, 随着圆角化半径 R 增大, γ_T, γ_R 的谐振波长减小, 然而, γ_T, γ_R 发生增强的带宽及其在谐振峰位置的数值变化很小.

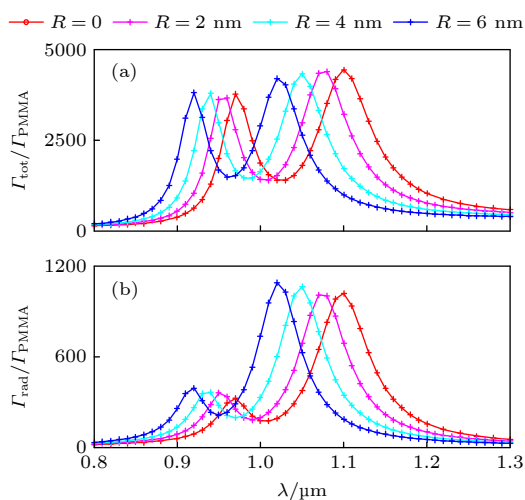


图 B2 对于不同圆角化半径 R 的偶极天线 (对应不同颜色的曲线), 在单个点源激励下, 归一化总辐射速率 $\Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (a) 和归一化远场辐射速率 $\Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (b) 随波长 λ 变化的曲线. 计算采用 a-FMM (红色曲线) 和 FEM (粉色、青色、蓝色曲线). 选取天线臂长 $L = L_{\text{res},1} = 126$ nm, 臂间狭缝宽度 $w = 10$ nm

Fig. B2. For the dipole antenna with different radii R of rounded edges and corners (corresponding to curves of different colors), the normalized total emission rate $\Gamma_{\text{tot}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (a) and normalized radiative emission rate $\Gamma_{\text{rad}}/\Gamma_{\text{PMMA}}$ (b) under excitation by a single point source, which are plotted as functions of wavelength λ . The calculation is performed with the a-FMM (red curves) and the FEM (pink, cyan, and blue curves). The antenna arm length is $L = L_{\text{res},1} = 126$ nm, and the width of the slit between the antenna arms is $w = 10$ nm.

参考文献

- [1] Mühlischlegel P, Eisler H J, Martin O J F, Hecht B, Pohl D W 2005 *Science* **308** 1607
- [2] Novotny L, Van Hulst N 2011 *Nat. Photonics* **5** 83
- [3] Pelton M 2015 *Nat. Photonics* **9** 427
- [4] Şendur K, Baran E 2009 *Appl. Phys. B* **96** 325
- [5] Sederberg S, Elezzabi A Y. 2011 *Opt. Express* **19** 10456
- [6] El-Toukhy Y M, Hussein M, Hameed M F O, Obayya S S A 2018 *Plasmonics* **13** 503
- [7] Aizpurua J, Bryant G W, Richter L J, García de Abajo F J, Kelley B K, Mallouk T 2005 *Phys. Rev. B* **71** 235420
- [8] Yong Z D, Zhang S L, Dong Y J, He S L 2015 *Prog. Electromagnet. Res.* **153** 123
- [9] Lu G W, Liu J, Zhang T Y, Shen H M, Perriat P, Martini M, Tillement O, Gu Y, He Y B, Wang Y W, Gong Q H 2013 *Nanoscale* **5** 6545
- [10] Akselrod G M, Argyropoulos C, Hoang T B, Ciraci C, Fang C, Huang J N, Smith D R, Mikkelsen M H 2014 *Nat. Photonics* **8** 835
- [11] Hoang T B, Akselrod G M, Argyropoulos C, Huang J, Smith D R, Mikkelsen M H 2015 *Nat. Commun.* **6** 7788
- [12] Kinkhabwala A, Yu Z H, Fan S H, Avlasevich Y, Müllen K, Moerner W E 2009 *Nat. Photonics* **3** 654
- [13] Muskens O L, Giannini V, Sánchez-Gil J A, Gómez Rivas J 2007 *Nano Lett.* **7** 2871
- [14] Baibakov M, Patra S, Claude J-B, Moreau A, Lumeau J, Wenger J 2019 *ACS Nano* **13** 8469
- [15] Barulin A, Claude J-B, Patra S, Bonod N, Wenger J 2019 *Nano Lett.* **19** 7434
- [16] Rycenga M, Xia X H, Moran C H, Zhou F, Qin D, Li Z Y, Xia Y N 2011 *Angew. Chem. Int. Ed.* **50** 5473
- [17] Nie S, Emory S R 1997 *Science* **275** 1102
- [18] Lodahl P, Mahmoodian S, Stobbe S 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 347
- [19] Tsakmakidis K L, Boyd R W, Yablonovitch E, Zhang X 2016 *Opt. Express* **24** 17916
- [20] Suh J Y, Kim C H, Zhou W, Huntington M D, Co D T, Wasielowski M R, Odom T W 2012 *Nano Lett.* **12** 5769
- [21] Ma R-M, Oulton R F, Sorger V J, Zhang X 2013 *Laser Photonics Rev.* **7** 1
- [22] Harutyunyan H, Volpe G, Quidant R, Novotny L 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 217403
- [23] Butet J, Martin O J F 2015 *Plasmonics* **10** 203
- [24] Gong T X, Guan F, Wei Z J, Huang W, Zhang X S. 2021 *Front. Phys-Lausanne* **9** 691027
- [25] Zhang W H, Huang L N, Santschi C, Martin O J F 2010 *Nano Lett.* **10** 1006
- [26] Fischer H, Martin O J F 2008 *Opt. Express* **16** 9144
- [27] Yong Z D, Gong C S, Dong Y J, Zhang S L, He S L 2017 *RSC Adv.* **7** 2074
- [28] Trojak O J, Park S I, Song J D, Sapienza L 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 021109
- [29] Zarrabi F B, Naser-Moghadasi M, Heydari S, Maleki M, Arezomand A S 2016 *Opt. Commun.* **371** 34
- [30] Lumde C, Yun B F, Kik P G 2014 *ACS Photonics* **1** 1224
- [31] Baumberg J J, Aizpurua J, Mikkelsen M H, Smith D R 2019 *Nat. Mater.* **18** 668
- [32] Huang S X, Ming T, Lin Y X, Ling X, Ruan Q F, Palacios T, Wang J F, Kong J, Dresselhaus M, Kong J 2016 *Small* **12** 5190
- [33] Huang Y, Ma L W, Hou M J, Li J H, Xie Z, Zhang Z J 2016 *Sci. Rep.* **6** 30011
- [34] Armstrong R E, van Liempt J C, Zijlstra P 2019 *J. Phys. Chem. C* **123** 25801
- [35] Huang Y, Ma L W, Li J H, Zhang Z J 2017 *Nanotechnology* **28** 105203
- [36] Purcell E M 1946 *Phys. Rev.* **69** 681
- [37] Lakowicz J R, Fu Y 2009 *Laser Photonics Rev.* **3** 221
- [38] Agio M 2012 *Nanoscale* **4** 692
- [39] Li L, Hutter T, Steiner U, Mahajan S 2013 *Analyst* **138** 4574
- [40] Yoon J K, Kim K, Shin K S 2009 *J. Phys. Chem. C* **113** 1769
- [41] Alu A, Engheta N 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 043901
- [42] Eggleston M S, Messer K, Zhang L M, Yablonovitch E, Wu M C 2015 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **112** 1704
- [43] Fernandez-Garcia R, Rahmani M, Hong M, Maier S A, Sonnefraud Y 2013 *Opt. Express* **21** 12552
- [44] Calderón J, Álvarez J, Martínez-Pastor J, Hill D 2015 *Plasmonics* **10** 703
- [45] Cooper C T, Rodriguez M, Blair S, Shumaker-Parry J S 2014 *J. Phys. Chem. C* **118** 1167
- [46] Jia H, Yang F, Zhong Y, Liu H 2016 *Photonics Res.* **4** 293

- [47] Lalanne P, Yan W, Vynck K, Sauvan C, Hugonin J P 2018 *Laser Photonics Rev.* **12** 1700113
- [48] Sauvan C, Hugonin J P, Maksymov I S, Lalanne P 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 237401
- [49] Ching E S C, Leung P T, Maassen van den Brink A, Tong S S, Young K 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 1545
- [50] Della Valle G, Søndergaard T, Bozhevolnyi S I 2008 *Opt. Express* **16** 6867
- [51] Taminiou T H, Stefani F D, van Hulst N F 2011 *Nano Lett.* **11** 1020
- [52] Cubukcu E, Capasso F 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 201101
- [53] Hasan S B, Filter R, Ahmed A, Vogelgesang R, Gordon R, Rockstuhl C, Lederer F 2011 *Phys. Rev. B* **84** 195405
- [54] Kim D, Jeong K Y, Kim J, Ee H S, Kang J H, Park H G, Seo M K 2017 *Phys. Rev. Appl.* **8** 054024
- [55] Chandran A, Barnard E S, White J S, Brongersma M L 2012 *Phys. Rev. B* **85** 085416
- [56] Filter R, Qi J, Rockstuhl C, Lederer F 2012 *Phys. Rev. B* **85** 125429
- [57] Wan J, Zhu J, Zhong Y, Liu H 2018 *J. Opt. Soc. Am. A*: **35** 880
- [58] Jia H, Liu H, Zhong Y 2015 *Sci. Rep.* **5** 8456
- [59] Zhai X, Wang N, Zhong Y, Liu H 2020 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **27** 4600815
- [60] Kotal S, Artioli A, Wang Y, Osterkryger A D, Finazzar M, Fons R, Claudon J, Bleuse J, Gérard J M, 2021 *Appl. Phys. Lett.* **118** 194002
- [61] Yang J, Kong F M, Li K, Sheng S W 2015 *Opt. Commun.* **342** 230
- [62] Vesseur E J R, de Abajo F J G, Polman A 2010 *Phys. Rev. B* **82** 165419
- [63] Edwards A P, Adawi A M 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 053101
- [64] Palik E D 1991 *Handbook of Optical Constants of Solids*, Part II (San Diego: Academic)
- [65] Anger P, Bharadwaj P, Novotny L 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 113002
- [66] Liu H T 2010 *DIF CODE for Modeling Light Diffraction in Nanostructures* (Tianjin: Nankai University)
- [67] Hugonin J P, Lalanne P 2005 *J. Opt. Soc. Am. A*: **22** 1844
- [68] Vassallo C 1991 *Optical Waveguide Concepts* (Amsterdam: Elsevier)
- [69] Chang D E, Sørensen A S, Hemmer P R, Lukin M D 2007 *Phys. Rev. B* **76** 035420
- [70] Li L 1996 *J. Opt. Soc. Am. A*: **13** 1024
- [71] Li L (edited by Popov E) 2014 *Gratings: Theory and Numeric Applications* (2nd Ed.) (Marseille: Institut Fresnel, Aix Marseille Université) pp573–574
- [72] Liu H 2013 *Opt. Express* **21** 24093
- [73] Ortega J M, Rheinboldt W C 1970 *Iterative Solution of Nonlinear Equations in Several Variables* (New York and London: Academic)
- [74] Li Y, Liu H, Jia H, Bo F, Zhang G, Xu J 2014 *J. Opt. Soc. Am. A*: **31** 2459
- [75] Yang J, Hugonin J P, Lalanne P 2016 *ACS Photonics* **3** 395

Broadband enhancement of spontaneous emission by optical dipole nanoantenna on metallic substrate: An intuitive model of surface plasmon polariton*

Zhang Lian¹⁾²⁾ Wang Hua-Yu¹⁾²⁾³⁾ Wang Ning¹⁾²⁾ Tao Can¹⁾²⁾
 Zhai Xue-Lin¹⁾²⁾ Ma Ping-Zhun¹⁾²⁾ Zhong Ying⁴⁾ Liu Hai-Tao^{1)2)†}

1) (*Institute of Modern Optics, College of Electronic Information and Optical Engineering, Nankai University, Tianjin 300350, China*)

2) (*Tianjin Key Laboratory of Micro-scale Optical Information Science and Technology, Nankai University, Tianjin 300350, China*)

3) (*College of Physics and Electronic Engineering, Zhengzhou Normal University, Zhengzhou 450044, China*)

4) (*State Key Laboratory of Precision Measurement Technology and Instruments, School of Precision Instrument and Opto-Electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China*)

(Received 12 December 2021; revised manuscript received 26 February 2022)

Abstract

Optical nanoantennas can achieve electromagnetic-field enhancement under far-field excitation or spontaneous-emission enhancement under excitation by radiating emitters. Among them, nanoantennas on a metallic substrate (i.e. the so-called nanoparticle-on-mirror antennas) have aroused great research interest due to their ease in forming metallic gaps of sizes down to a few nanometers or even subnanometer. Here we propose an optical dipole nanoantenna on a metallic substrate with a broadband enhancement of spontaneous emission.

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 62075104, 61775105).

† Corresponding author. E-mail: liuht@nankai.edu.cn

Its total and radiative emission-rate enhancement factors can reach up to 5454 and 1041, respectively. In the near-infrared band, the wavelength range of spontaneous-emission enhancement (Purcell factor over 1000) can reach 260nm. By changing the width of the slit between the two antenna arms and also the length of the antenna arms, the spontaneous-emission enhancement bandwidth and enhancement factors can be adjusted, respectively, which brings great freedom and simplicity to the design process. The antenna can achieve a strong far-field radiation within a central angular zone (polar angle $\theta \leq 60^\circ$) corresponding to a certain numerical aperture of objective lens, and therefore can increase the intensity of the fluorescence collected by the objective lens. Based on the above performances, the antenna can provide a broadband enhancement of spontaneous emission for fluorescent molecules or quantum dots (whose fluorescence spectrum usually covers a certain wavelength range), which is of great significance for the applications such as in high-speed and super-bright nanoscale light sources and high-sensitivity fluorescent-molecule sensing.

To clarify the underlying physical mechanisms, we build up a semi-analytical model by considering an intuitive excitation and multiple-scattering process of surface plasmon polaritons (SPPs) that propagate along the antenna arms. All the parameters used in the model (such as the SPP scattering coefficients) are obtained via rigorous calculations based on the first principle of Maxwell's equations without any fitting process, which ensures that the model has a solid electromagnetic foundation and can provide quantitative predictions. The SPP model can comprehensively reproduce all the radiation properties of the antenna, such as the total radiative emission rate and the far-field radiation pattern. Two phase-matching conditions are derived from the model for predicting the antenna resonance, and show that under these conditions, the SPPs on the antenna arms form a pair of Fabry-Perot resonance and therefore are enhanced, and the enhanced SPPs propagate to the emitter in the nanogap (or scattered into the free space), so as to enhance the total spontaneous emission rate (or the far-field radiative emission rate). Besides, this pair of Fabry-Perot resonance results in a pair of resonance peaks close to each other, then enhancing the spontaneous emission with a broadband.

Keywords: optical nanoantenna, spontaneous-emission enhancement, surface plasmon polariton, semi-analytical model

PACS: 81.07.-b, 52.25.Os, 52.40.Fd, 78.20.Bh

DOI: [10.7498/aps.70.20212290](https://doi.org/10.7498/aps.70.20212290)