

# 表面等离子激元与入射光共同作用下的 金纳米结构近场调控\*

王悦 王伦 孙柏逊 郎鹏 徐洋 赵振龙  
宋晓伟 季博宇<sup>†</sup> 林景全<sup>‡</sup>

(长春理工大学物理学院, 长春 130022)

(2023年4月4日收到; 2023年5月11日收到修改稿)

表面等离子激元 (surface plasmon polariton, SPP) 激发纳米结构产生的局域等离子激元 (localized surface plasmon, LSP) 具有更强的近场增强以及特殊的光谱和动力学响应, 为探究光与物质相互作用提供了新的思路, 然而目前对此方面的研究相对不足. 本文利用时域有限差分方法研究由半圆环狭缝与金纳米棒组成的等离子激元聚焦透镜复合结构在双光束激发下的近场特性. 结果表明, 通过调节双光束相对时间延时, 可实现对复合体系中金纳米棒近场强度的灵活调控, 并揭示出调控机制来自于 SPP 激发 LSP 与光激发 LSP 相干叠加. 此外, 研究表明在不同双光束延迟时间下, 等离子激元模式对应的去相位时间存在差异, 可将其归因于两个模式在不同延迟时间下的耦合强度存在差异所致. 该研究有望进一步促进等离子激元在表面增强拉曼散射和等离子激元远程催化等领域的应用.

**关键词:** 等离子激元学, 表面等离子激元与局域等离子激元相互作用, 近场调控, 时域有限差分方法

**PACS:** 52.35.Mw, 78.67.Sc, 78.68.+m, 78.20.Bh

**DOI:** 10.7498/aps.72.20230514

## 1 前言

表面等离子激元 (surface plasmon, SP) 是一种在金属-电介质界面上传播的具有电场和集体电荷密度振荡双重特性的电磁模式, 其具有突破光学衍射极限和高的近场增强特性, 已在高分辨率纳米光学、传感、光伏等领域得到了应用和关注<sup>[1-7]</sup>. 表面等离子激元可分为传输型表面等离子激元<sup>[8]</sup> (surface plasmon polariton, SPP) 和局域型表面等离子激元<sup>[9]</sup> (localized surface plasmon, LSP). SPP 在金属与电介质表面传输, 其传输距离可达数十至上百微

米, 且具有较长的衰减时间 (即去相位时间较长), 但近场增强相对较弱; 而 LSP 具有较强的局域场增强, 但衰减时间较短<sup>[10,11]</sup>.

通过平面等离子激元透镜可实现表面等离子激元聚焦, 从而进一步提升表面等离子激元近场强度, 减小近场尺寸. 已有研究表明环形结构<sup>[12-16]</sup>、椭圆环结构<sup>[17]</sup>、同心圆结构<sup>[18-20]</sup>、阿基米得螺旋线结构<sup>[21,22]</sup>、对称性破缺纳米环结构<sup>[16,23]</sup>等均可以在平面内聚焦表面等离子激元, 同时采用相位偏振等方式对焦斑位置进行调控. 等离子激元聚焦结构在超快纳米电子点源<sup>[24,25]</sup>、超分辨率成像<sup>[26,27]</sup>和纳米光刻<sup>[28]</sup>等领域具有重要应用潜力.

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFA1604304, 2022YFA1604303)、国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 62005022, 12004052)、吉林省青年成长科技项目 (批准号: 20230508143RC)、吉林省科技厅项目 (批准号: YDZJ202201ZYTS299)、吉林省教育厅研究项目 (批准号: JJKH20220720KJ) 和吉林省青年科技人才托举工程 (批准号: QT202217) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: jiboyu@cust.edu.cn

<sup>‡</sup> 通信作者. E-mail: linjingquan@cust.edu.cn

基于 LSP 的纳米天线提供了极好的亚波长限制, 能够将自由空间中传播的波转化成局部能量, 可作为接受和发射的耦合器件. 纳米天线产生的高度局域电磁场增强可以应用在表面增强拉曼散射<sup>[29]</sup>、等离激元诱导光探测<sup>[30]</sup>、生物传感<sup>[31]</sup>、非线性纳米光子学<sup>[32]</sup>等方面. 此外, 已有研究表明, 在金属膜上 SPP 与纳米天线 LSP 耦合可以进一步增强电场<sup>[33,34]</sup>, 与单纯放置于 SiO<sub>2</sub> 衬底上的天线相比, 耦合体系的近场强度可显著提高<sup>[35,36]</sup>. 然而, 目前针对 SPP 与 LSP 相互作用的研究多是利用周期纳米结构阵列产生 SPP, 伴随着与纳米结构 LSP 发生相互作用, 其中涉及的激发与耦合机制较为复杂<sup>[3,6]</sup>. 而 SPP 直接激发纳米结构的研究则有助于直观分析 SPP 与 LSP 相互作用的潜在机制, 并且也为近场调控提供额外的手段. 因此, 开展基于 SPP 激发纳米结构所形成的等离激元场强度的主动控制与表征研究具有重要意义, 但目前这方面研究严重不足<sup>[29,37,38]</sup>.

本文采用时域有限差分 (finite-difference time-domain, FDTD) 法, 开展了 SPP 直接激发纳米结构复合体系近场强度的双光束调控与去相位时间表征研究. 设计了表面等离激元透镜激发纳米粒子复合结构, 模拟研究了半圆环狭缝与金纳米棒组成的等离激元聚焦透镜复合结构在双光束激发下的近场特性. 结果表明, 通过调节双光束相对时间延时, 可实现对复合体系中金纳米棒近场强度的灵活调控, 间隙位置近场强度可从 27 调节至 50, 并揭示出调控机制来自于 SPP 激发 LSP 与光源激发 LSP 相干叠加. 此外, 研究表明在不同双光束延迟时间下, 表面等离激元间隙模式对应的去相位时间存在差异, 在双光束延迟  $\Delta t = 0.72$  fs 时, 两个模式对应的去相位时间相同, 都为 6.0 fs. 而在  $\Delta t = 1.92$  fs 时, 长波对应模式的去相位时间为 7.1 fs, 短波对应模式的去相位时间为 5.8 fs. 我们将其归因于两个模式在不同延迟时间下的耦合强度存在差异所致.

## 2 结构设计及模拟设置

采用 FDTD 模拟软件对表面等离激元透镜激发纳米天线复合结构近场光学响应进行研究. 等离激元聚焦透镜与纳米天线复合结构示意图如图 1 所示. 对于表面等离激元聚焦透镜结构, 以二氧化

硅 (SiO<sub>2</sub>) 作为基底, 上面覆盖厚度为  $H$  的金膜, 在金膜上刻蚀厚度  $H$  (与金膜厚度相同), 宽度  $W = 100$  nm, 内半径  $R = 1000$  nm 的半环形狭缝, 金膜厚度远大于金的趋肤深度<sup>[39]</sup>. 在模拟设置中, 使用三维精细化网格覆盖表面等离激元聚焦透镜结构周围区域, 采用 mesh 精度为  $5\text{ nm} \times 5\text{ nm} \times 5\text{ nm}$ . 将表面等离激元透镜结构放置于真空中, 采用全场散射场光源 (TFSF) 作为激发光源 (称为 S1), 沿  $z$  轴正方向照射覆盖整个耦合结构, 激光场的波长范围为 600—1100 nm, 脉冲持续时间为 3.98 fs, 时间延时 offset 为 11.28 fs, 沿  $x$  轴方向偏振. 将金纳米棒放置在金膜上, 使金纳米棒的中心与金纳米环圆心处重合, 在金纳米棒与金膜之间放置厚度  $d = 10$  nm 的二氧化硅间隔层. Mesh 精度为  $2\text{ nm} \times 2\text{ nm} \times 2\text{ nm}$  覆盖整个金纳米棒与间隔层. 同样采用全场散射场光源 (TFSF) 作为激发光源 (称为 S2), 沿  $z$  轴负方向照射只覆盖金纳米棒结构, 激光场的波长范围为 600—1100 nm, 脉冲持续时间为 3.98 fs, 金材料的光学性质选自与 Johnson 和 Christy<sup>[40]</sup> 实验测量结果. 模拟区域采用完美吸收层作为边界条件, 模拟区域大小为  $4\text{ }\mu\text{m} \times 4\text{ }\mu\text{m} \times 4.2\text{ }\mu\text{m}$  收敛性测试结果显示设置计算网格精度可以达到要求.

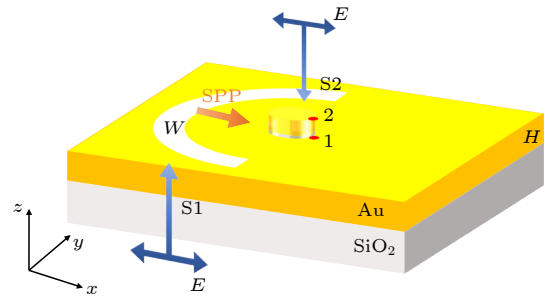


图 1 等离激元聚焦透镜与金纳米棒复合结构示意图  
Fig. 1. Schematic diagram of the composite structure of plasmon focusing lens and gold nanorod.

## 3 结果与讨论

### 3.1 等离激元聚焦透镜与金纳米棒复合结构参数选择

由于将激发的 SPP 聚焦到结构中心位置是探究复合结构光学响应的重要前提, 因此, 首先对表面等离激元聚焦透镜结构的近场光学响应进行了表征. 采用 S1 光源激发单独的表面等离激元聚焦

透镜结构 (如图 2(a) 所示), 结果表明, 近场分布图像显示出 SPP 模式被有效激发, 同时聚焦到结构中心, 产生明亮的焦斑, 如图 2(b) 所示. 为使入射光 (S1) 与表面等离子激元聚焦透镜结构更好地耦合, 探究狭缝的结构参数对聚焦焦斑处近场强度的影响.

图 2(c) 所示为不同狭缝宽度条件下, 等离子激元聚焦结构焦点位置处的近场强度光谱. 可以看到, 对于金膜厚度  $H = 200$  nm, 狭缝宽度  $W$  由 100 nm 增至 200 nm, 步长为 20 nm, 焦斑处近场强度随波长的变化曲线如图 2(c) 所示, 在波长监测范围内, 均存在一个明显的共振模式, 狭缝宽度为 100 nm 时, 共振波长在 800 nm 附近, 随着狭缝宽度的增大, 共振峰逐渐蓝移, 在宽度为 200 nm 时, 共振波长在 750 nm 附近. 同时发现, 共振波长处的近场强度随着狭缝宽度的增加逐渐增加.

其次探究了金膜厚度对焦斑中心位置近场强度的影响. 对于狭缝宽度  $W = 100$  nm, 金膜厚度  $H$  由 100 nm 增至 200 nm, 步长为 20 nm, 焦斑处近场强度随波长的变化曲线如图 2(d) 所示. 发现存在一个明显的共振模式. 在金膜厚度  $H = 120$  nm 时, 共振波长为 620 nm, 随着金膜厚度的增大, 共振峰逐渐红移, 在金膜厚度  $H = 200$  nm

时, 在 800 nm 附近存在共振波长. 对于共振波长处的近场强度, 随着金膜厚度的增大逐渐减小.

当 SPP 与 LSP 的共振频率相匹配时, SPP 与 LSP 的耦合作用效果最佳<sup>[41,42]</sup>. LSP 的共振波长强烈依赖于纳米结构的形状、尺寸、介电常数等条件, 因此通过调节金纳米棒结构的结构参数, 选取较合适的共振波长. 如图 3(a) 上所示, 当金纳米棒长度为 300 nm, 宽度为 100 nm, 厚度为 140 nm 时, 在间隙位置, 金纳米棒的共振波长大约在 800 nm 附近. 图 3(a) 下所示为狭缝宽度  $W = 100$  nm, 厚度  $H = 200$  nm 的半圆环结构激发聚焦 SPP 时, 在焦斑处的近场强度光谱曲线, 可以看到在 800 nm 附近存在一个共振峰. 图 3(b), (c) 所示为纳米棒结构电场与  $E_z$  分量  $x-z$  面分布图. 通过图 3(b) 可以看到, 热点分布在金纳米棒上表面两侧以及间隙位置, 且间隙模式的近场增强 (如图 3(b) 白色虚线位置所示) 明显强于结构上表面的间隙强度高于上表面. 通过  $x-z$  平面近场强度  $E_z$  分量分布图 (图 3(c) 所示) 可以看出, 在金纳米棒两侧, 间隙模式以及上表面模式存在明显的反相特性. 这种间隙模式类似于一种暗模式, 它来自于纳米棒结构自身偶极模式向间隙处能量转移<sup>[43]</sup>. 因此, 当这种复合结构中

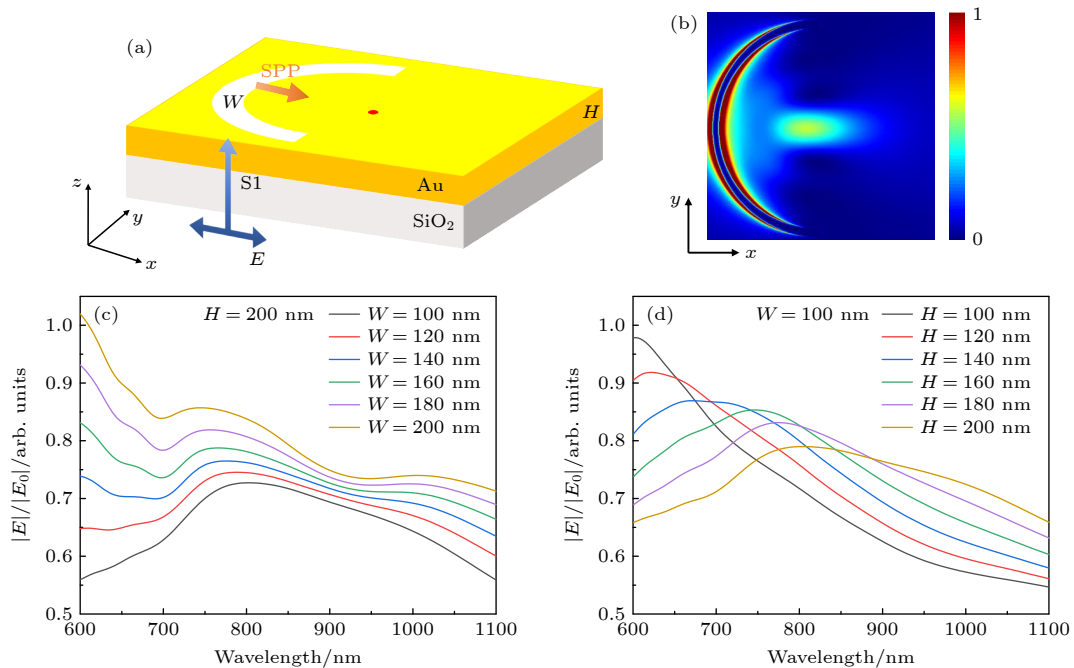


图 2 表面等离子激元聚焦透镜结构参数对聚焦焦斑强度的影响 (a) 表面等离子激元聚焦透镜结构示意图; (b) 表面等离子激元透镜近场分布图像; (c) 狭缝宽度  $W$  对聚焦焦斑处近场强度的影响; (d) 狭缝厚度  $H$  对聚焦焦斑处近场强度的影响

Fig. 2. Effect of structural parameters of surface plasmon focusing lens on focal spot intensity: (a) Schematic diagram of the surface plasmon focusing lens; (b) near-field distribution of the surface plasmon lenses; (c) effect of slit width  $W$  on near-field strength at focal spot; (d) effect of slit thickness  $H$  on near-field strength at focal spot.

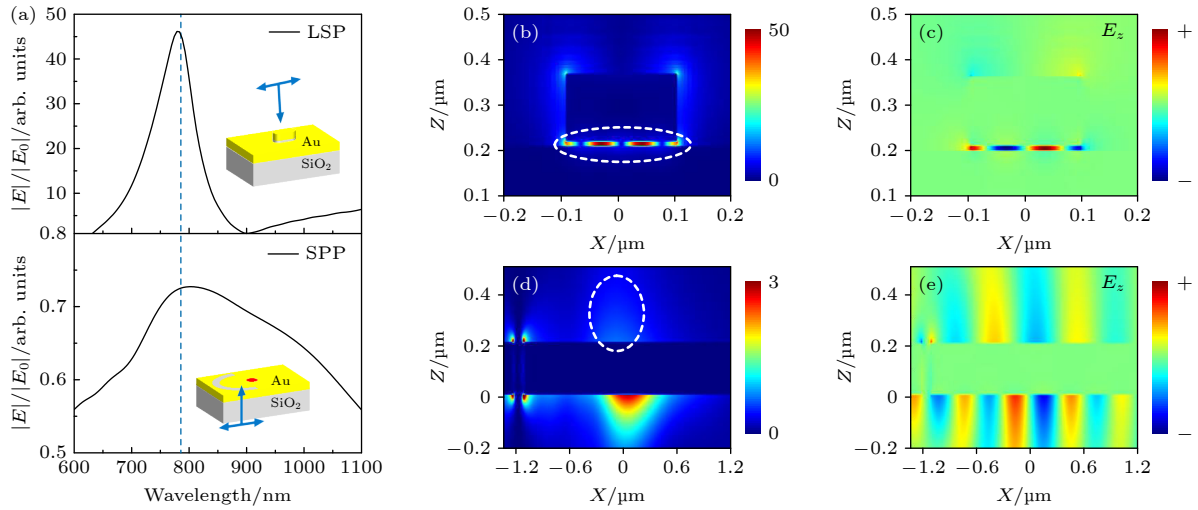


图3 表面等离子元透镜与金纳米棒光学响应 (a) 金纳米棒结构(上图)与等离子元聚焦透镜结构(下图)近场强度分布曲线; 波长在800 nm金纳米棒近场强度  $x-z$  平面分布图(b)和  $E_z$  分布图(c); 波长在800 nm附近表面等离子元透镜近场强度  $x-z$  平面分布图(d)和  $E_z$  分布图(e)

Fig. 3. Optical response of the surface plasmon focusing lens and the gold nanorod: (a) Near-field intensity spectra of gold nanorod structure (top) and plasmon focusing lens structure (bottom); near-field intensity distribution (b) and  $E_z$  component distribution (c) of gold nanorods at the wavelengths of 800 nm; near-field intensity distribution (d) and  $E_z$  component distribution (e) of the surface plasmon focusing lens at the wavelengths of 800 nm.

的间隙模式被激发时, 结构散射谱中通常会出现一个散射凹陷<sup>[44,45]</sup>. 图3(d)为表面等离子元透镜  $x-z$  平面近场强度分布图. 结果表明, 在金膜上、下表面半圆环中心位置均产生明亮聚焦焦斑, 且靠近光源一侧焦斑强度强于背光侧焦斑强度, 由于SPP在金膜两侧的衰减存在明显差异, 因此在金膜两侧的相位分布不一致, 如图3(e)所示. 本文研究需排除光场的影响, 因此采用背光侧作为研究位置, 图3(d)白色虚线所示. 在该结构参数下, 等离子元聚焦透镜与金纳米棒结构可以实现较好的耦合. 以下研究均采用上述结构参数.

SPP激发纳米棒结构可以通过如下过程进行描述: 在S1光照射下, SPP在凹槽激发, 并沿着金属和介质界面传输<sup>[46,47]</sup>. 由于设计的等离子元聚焦透镜结构, 使得传输的SPP向位于焦点处的纳米棒结构汇聚, 并与纳米棒发生耦合<sup>[29,48]</sup>. 由于纳米棒下表面与底层金膜之间存在10 nm厚SiO<sub>2</sub>介质层, 因此, 部分SPP能量会耦合进入到金纳米棒与金膜之间的介质层中, 形成间隙模式<sup>[49,50]</sup>.

### 3.2 双光束相对时间延迟近场强度调控

接下来, 研究双光束相对延迟对金纳米棒近场强度影响. 在双光束激发金纳米棒结构(SPP和入射光同时激发金纳米棒, SPP&S2-LSP)条件下,

调节正入射光源(S2)的时间延时(offset)由11 fs增至21 fs步长为0.2 fs. 首先探究双光束相对时间延时的对金纳米棒间隙位置近场强度的影响(监测位置如图1位置1). 当相对时间延时  $\Delta t = 0.72$  fs时(即正入射光源offset为12 fs), 在间隙位置近电场强度光谱曲线如图4(a)黑色曲线所示. 可以看到在监测范围内主要存在两个共振模式, 第1个共振模式和第2个共振模式波长分别为770 nm和999 nm. 此外, 如图4(a)中红色曲线所示, 对于S2激发纳米棒(S2-nanorod)仅在波长为770 nm附近产生一个共振模式, 而SPP激发纳米棒(SPP-nanorod)(图4(a)中蓝色曲线)在波长为770 nm和999 nm附近产生两个共振模式. 通过调节S2的时间延时, 提取出两个共振模式近场强度对时间延时的变化曲线如图4(b)所示. 在两个共振模式下, 电场强度均随着时间延时的增加呈周期性变化, 实现了在对间隙模式近场强度的调控.

对于770 nm对应的模式, 在半个调节周期(从12—13.2 fs), 近场强度从50降低到27. 此外, 通过图4(a)可以看出, 该模式对应S2激发金纳米棒占主导作用. 图5(a), (c)分别展示出了在最强和最弱处的  $E_z$  分量近场强度动力学演化曲线, 以及S2-nanorod和SPP-nanorod电场的动力学演化曲线. 如图5(a)所示, 时间延时  $\Delta t = 0.72$  fs时,

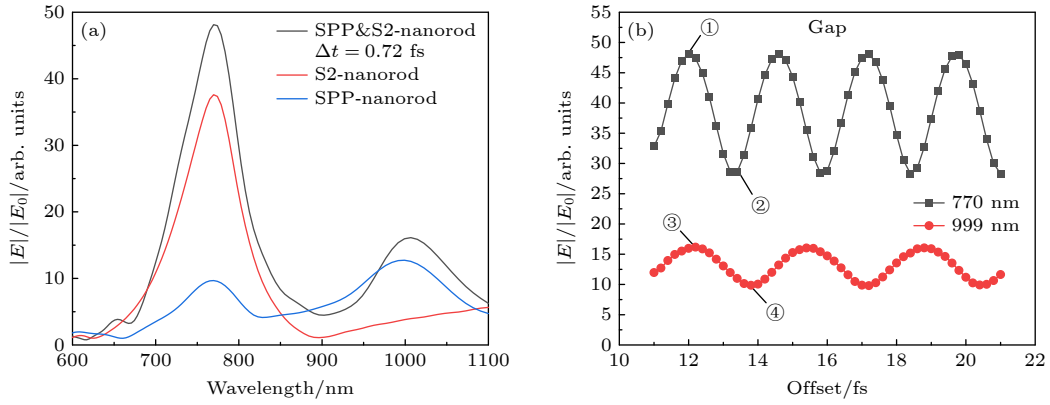


图 4 间隙位置近场强度光谱曲线以及共振波长处近场强度调控曲线 (a) 间隙位置近场强度光谱曲线, 黑色曲线为相对时间延时  $\Delta t = 0.72$  fs 时, SPP&S2-nanorod 激发条件, 红色曲线和蓝色曲线分别代表 S2-nanorod 和 SPP-nanorod 激发条件; (b) 共振波长 770 nm (黑色曲线) 和共振波长 999 nm (红色曲线) 处, 不同双光束相对时间延时对应的近场强度

Fig. 4. Near-field intensity spectrum at gap position and near-field intensity regulation related with relative time delay between two laser pulses at resonant wavelength: (a) Near-field intensity spectrum for gap positions, the black curve corresponds to SPP&S2-nanorod at the relative time delay  $\Delta t = 0.72$  fs; the red and blue curve corresponds to S2-nanorod and SPP-nanorod, respectively; (b) relative time delay dependent near field intensity at the resonance wavelength of 770 nm (black curve) and 999 nm (red curve), respectively.

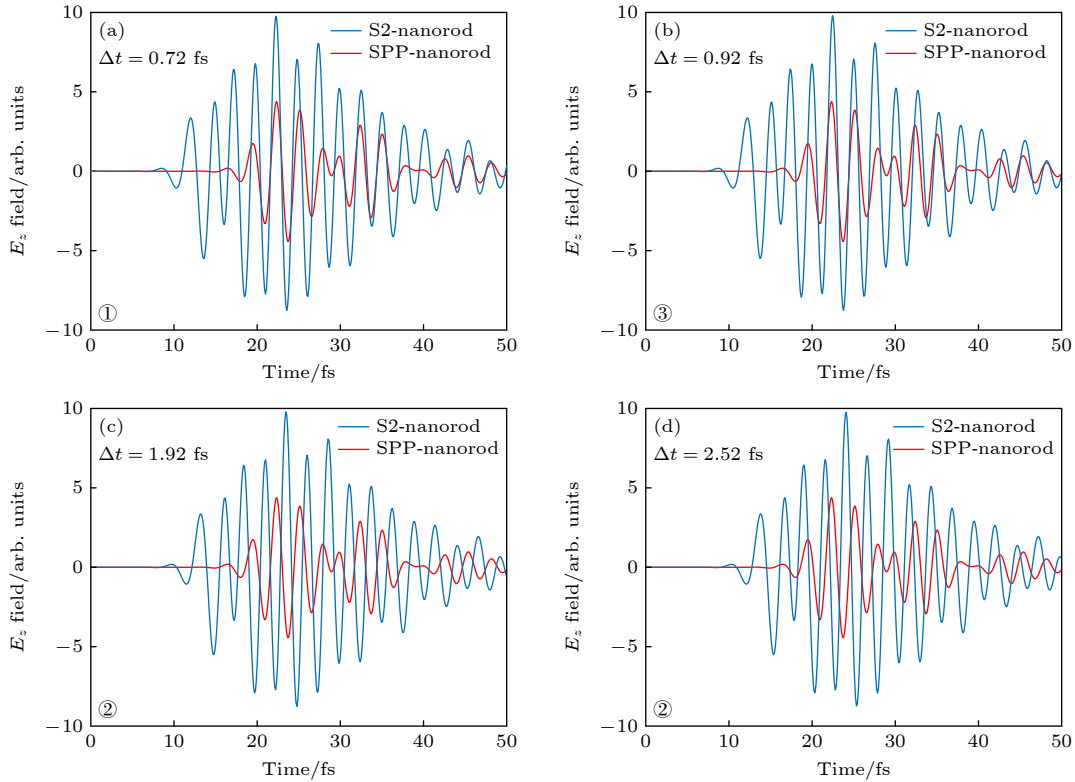


图 5 间隙位置  $E_z$  分量动力学演化曲线 (a)—(d) 对应于图 4(b) 中 ①③②④ 位置. 蓝色曲线为 S2-nanorod; 红色曲线表示 SPP-nanorod 条件下, 图中蓝色线的起始时间根据相对延迟数进行了调整

Fig. 5. Dynamics evolution of  $E_z$  component at the gap position: (a)–(d) Corresponding to the position ①③②④ in Figure 4(b), respectively. The blue and red curves correspond to S2-nanorod and SPP-nanorod, respectively. The initial time of the blue curve in the graph is adjusted based on the relative time delays.

S2-nanorod 与 SPP-nanorod 振荡方向同向, 对激发金纳米棒间隙模式近场强度起到促进作用, 因此, 表现出电场强度增强; 如图 5(c) 所示, 时间延

时  $\Delta t = 1.92$  fs 时, S2-nanorod 与 SPP-nanorod 振荡方向相反, 对激发金纳米棒间隙模式近场强度起到抑制作用, 因此表现出电场强度减弱.

对于波长 999 nm 对应的共振模式, 在时间由 12 fs 调节至 14 fs, 电场强度由 16 降低到 10. 此外, 根据图 4(a) 可以看出, 在该模式下 SPP-nanorod 占主导作用. 图 5(b), (d) 分别展示了该延时下最强和最弱处近场强度, SPP-nanorod 以及 S2-nanorod 动力学演化曲线. 如图 5(b) 所示, 在时间延时  $\Delta t = 0.92$  fs 时, SPP-nanorod 与 S2-nanorod 振荡方向相同, 对纳米棒间隙模式近场强度起到促进作用, 表现出电场强度增大; 而在时间延时  $\Delta t = 2.52$  fs 时, 如图 5(d) 所示, SPP-nanorod 与 S2-nanorod 的振荡方向相反, 因此对纳米棒间隙模式近场强度起到抑制作用, 表现出电场强度减小.

其次, 探究了双光束相对时间延时对金纳米棒结构上表面电场强度的影响, 结果如图 6 所示. 可以看到, 当相对时间延时  $\Delta t = 0.72$  fs 时, 在结构上表面近场强度光谱曲线如图 6(a) 黑色曲线所示, 在监测范围内存在波长为 719 nm 和 802 nm 两个共振模式. 图 6(b) 所示为不同 S2 时间延时下, 两个共振模式位置近场强度与时间延时关系曲线. 对于金纳米棒上表面在两个共振模式处, 电场强度调节范围大致相同, 约为 15, 调节周期在 2.4—2.8 fs 之间.

第 1 个共振模式其波长为 719 nm 时, 其电场强度最强与电场强度最弱时 (对应于图 6(b) 中 ①②), SPP-nanorod 与 S2-nanorod  $E_z$  动力学演化曲线, 如图 7(a), (c) 所示. 结果表明, 在时间延时  $\Delta t = 0.72$  fs 时 (图 7(a)), SPP-nanorod 与 S2-

nanorod 振荡方向相同, 对双光束激发纳米棒起到促进作用, 表现出电场强度增大; 在时间延时  $\Delta t = 1.92$  fs 时 (图 7(c)), SPP-nanorod 与 S2-nanorod 振荡方向反向, 对双光束激发纳米棒起到抑制作用, 表现出电场强度减弱.

第 2 个共振模式其波长为 802 nm 时, 其电场强度最强图与电场强度最弱时 (对应于图 6(b) ③④), SPP-nanorod 与 S2-nanorod  $E_z$  动力学演化曲线, 如图 7(b), (d) 所示. 对于相对时间延时  $\Delta t = 2.72$  fs 时, 如图 7(b) 所示, SPP-nanorod 与 S2-nanorod 振荡方向一致, 因此促进了金纳米棒近场强度的增大; 而在时间延时  $\Delta t = 1.32$  fs 时, 如图 7(d) 所示, SPP-nanorod 与 S2-nanorod 振荡方向相反, 此时, 抑制了金纳米棒附近的 LSP 强度, 表现出电场强度的减弱. 整体来说, 当时间延迟对应近场增强提升时, SPP-nanorod 与 S2-nanorod 的  $E_z$  动力学演化曲线同相; 相反, 当时间延迟对应近场增强减弱时, SPP-nanorod 与 S2-nanorod  $E_z$  动力学演化曲线反相.

为了进一步分析双光束相对时间延时对金纳米棒间隙位置以及上表面对近场强度的影响, 分别展示了间隙位置和结构上表面在对应共振波长下不同方式激发纳米棒电场强度  $E_z$  分量分布图, 如图 8 与图 9 所示. 对于间隙位置 (图 8 所示), S2-nanorod 时, 在 770 nm 共振波长处结构热点均匀分布于金纳米棒 4 个部分 (图 8(a) I), 呈现出高阶模式分布. 并且, 纳米棒结构边缘热点强度低于结构

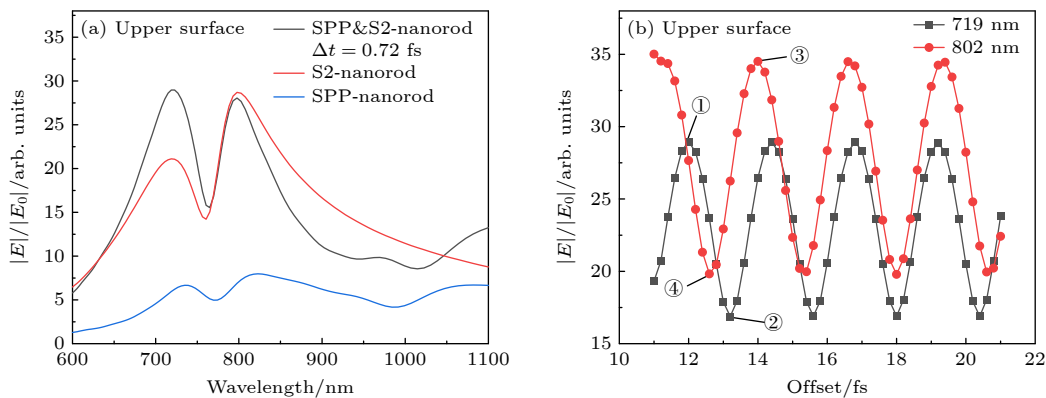


图 6 结构上表面近场强度光谱曲线以及共振波长处近场强度调控曲线 (a) 上表面近场强度分布曲线; (b) 共振波长 719 nm (黑色曲线) 和共振波长 802 nm (红色曲线) 处, 不同双光束相对时间延时对应的近场强度

Fig. 6. Near-field intensity spectrum at the upper surface of nanorod and near-field intensity regulation related with relative time delay between two laser pulses at resonant wavelength: (a) Near-field intensity spectrum at the upper surface of nanorod; (b) relative time delay dependent near field intensity at the resonance wavelength of 719 nm (black curve) and 802 nm (red curve), respectively.

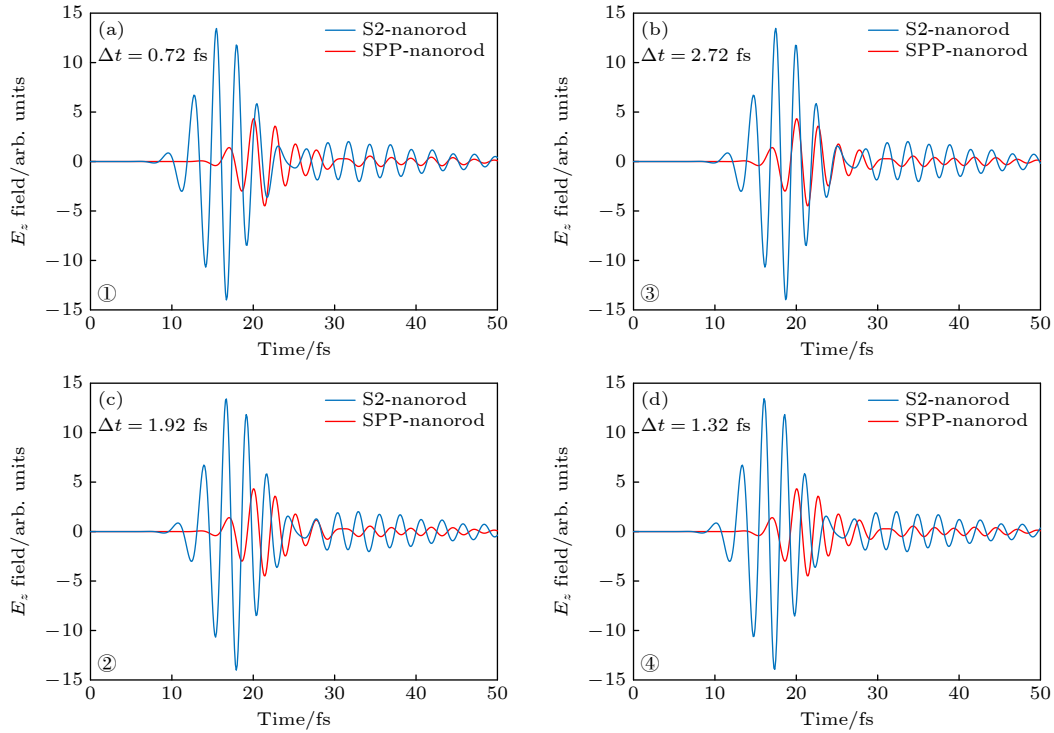


图 7 纳米棒上表面  $E_z$  分量动力学演化曲线 (a)—(d) 对应于图 6(b) 中①③②④ 位置, 图中蓝色线的起始时间根据相对延迟数进行了调整

Fig. 7. Dynamics evolution of  $E_z$  component at the upper surface of nanorod: (a)—(d) Corresponding to the position ①③②④ in Fig. 6(b), respectively. The initial time of the blue curve in the graph is adjusted based on the relative time delays.

中心热点强度. 在 999 nm 激发条件下 (如图 8(b) I 所示), 热点均匀分布于金纳米棒左右两侧, 等量异号电荷分布于对应热点位置, 呈现出低阶模式分布. SPP-nanorod 在检测范围内产生 2 个共振峰 (图 4(a) 蓝线所示), 在共振波长为 770 nm 处, 热点分布与 S2-nanorod 在该波长下分布相似 (图 8(a) II), 呈现出相对较高阶模式分布. 但与光直接激发不同的是, 此时纳米棒边缘位置的热点强度高于中心位置; 在共振波长为 999 nm 处, 热点均匀分布于金纳米棒边缘和中间位置 (图 8(b) II), 呈现出相对较低阶模式分布 (与共振波长为 770 nm 相比). SPP&S2-nanorod 在波长为 770 nm 和 999 nm 附近产生两个共振峰 (图 4(a) 黑线所示). 对于共振波长为 770 nm 处, S2-nanorod 与 SPP-nanorod 对应热点分布反相, 进一步说明了 S2-nanorod 与 SPP-nanorod 对 SPP&S2-nanorod 起抑制作用. 对于共振波长为 999 nm 处, SPP&S2-nanorod 与 SPP-nanorod 和 S2-nanorod 分布一致, 表明在 999 nm 处, S2-nanorod 与 SPP-nanorod 对 SPP 和 S2-nanorod 起到促进作用. 此外, 发现 SPP&S2-nanorod 的近场强度明显强于另外两种激发方式

(与图 4(a) 结果一致), 进一步说明 S2-nanorod 和 SPP-nanorod 在此时相互促进, 使双光束激发 LSP 近场得到增强.

图 9 所示为 719 nm 与 800 nm 波长下, 金纳米棒结构上表面在 3 种激发方式下的近场  $E_z$  分量分布. 可以看到, 在 719 nm 和 800 nm 共振波长处, S2-nanorod、SPP-nanorod 以及 SPP&S2-nanorod 激发条件下, 纳米棒结构上表面热点主要分布于棒左右两侧边缘处. 对于共振波长为 719 nm 时, SPP-nanorod (图 9(a) II) 的相位分布与 S2-nanorod (图 8(a) I) 的相位分布相反, 而 SPP&S2-nanorod (图 9(a) III) 与 SPP-nanorod 的相位分布一致, 且呈现出近场强度增强, 因此表明在共振波长为 719 nm 附近, SPP-nanorod 占主导作用. 对于共振波长为 800 nm 时, 3 种激发方式下金纳米棒的相位分布一致, 此时由于 SPP-nanorod (图 9(b) II) 和 S2-nanorod (图 9(b) I) 同时存在, 因此无法明确区分其贡献.

此外, 通过观察 SPP 激发纳米棒结构间隙与上表面  $E_z$  分量示意图 (如图 8 II 与图 9 II 所示) 可以看出, 在 SPP 激发下, 结构左右两侧强度呈现非

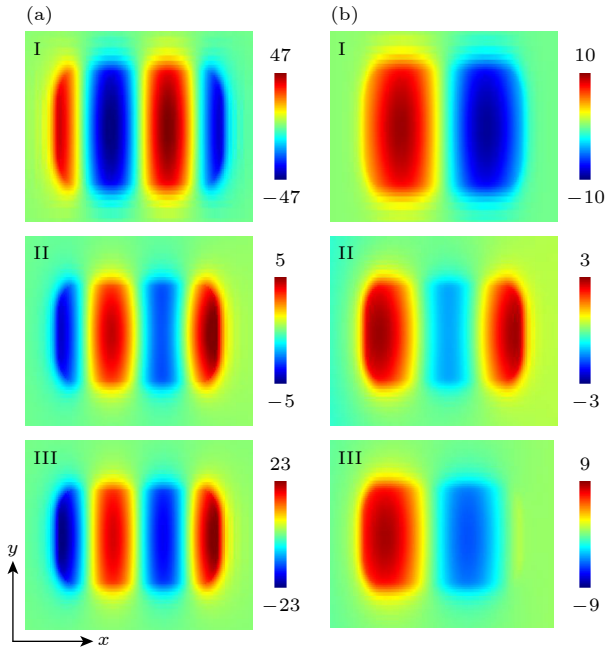


图 8 间隙位置电场强度  $E_z$  分量分布图 (a) 共振波长为 770 nm; (b) 共振波长为 999 nm. I 为 S2-nanorod; II 为 SPP-nanorod; III 为 SPP&S2-nanorod

Fig. 8.  $E_z$  component distribution in the gap position of the nanorod: (a) The resonance wavelength is 770 nm; (b) the resonance wavelength is 999 nm. The excitation conditions corresponding to I, II, and III are S2-nanorod, SPP-nanorod and SPP&S2-nanorod, respectively.

对称分布. 对于这一结果, 我们将其归因于以下两个可能原因: 第一, 在 SPP 激发下, 纳米棒结构中的面内和面外偶极 LSP 相干叠加, 进而导致这种非对称分布<sup>[51,52]</sup>; 第二, 由于 SPP 是从纳米棒左端向右侧端传输, 这种沿纳米棒一侧激发的方式, 会引入迟滞效应, 进而导致结构呈现非对称强度分布<sup>[53,54]</sup>.

### 3.3 不同激发方式与延迟下间隙模式去相位时间比较

进一步对 S2-nanorod, SPP-nanorod 及 SPP&S2-nanorod 相对时间延时  $\Delta t = 0.72$  fs (近场强度最强) 和  $\Delta t = 1.92$  fs (近场强度最弱) 时, 间隙位置的去相位时间 (dephasing time, DT) 进行研究. 采用准正模 (quasi-normal mode, QNM)<sup>[55]</sup> 方法对其近场响应谱进行拟合 (如图 10 所示), 从而可以获得其去相位时间, 插图为结构示意图. 结果表明, 在频率为 390 THz 附近时, S2-nanorod 的去相位时间为 5.9 fs (图 10(a)), SPP-nanorod 的去相位时间为 5.1 fs (图 10(b)). SPP&S2-nanorod 在相对时间延时  $\Delta t = 0.72$  fs 时 (促进电场强度增强),

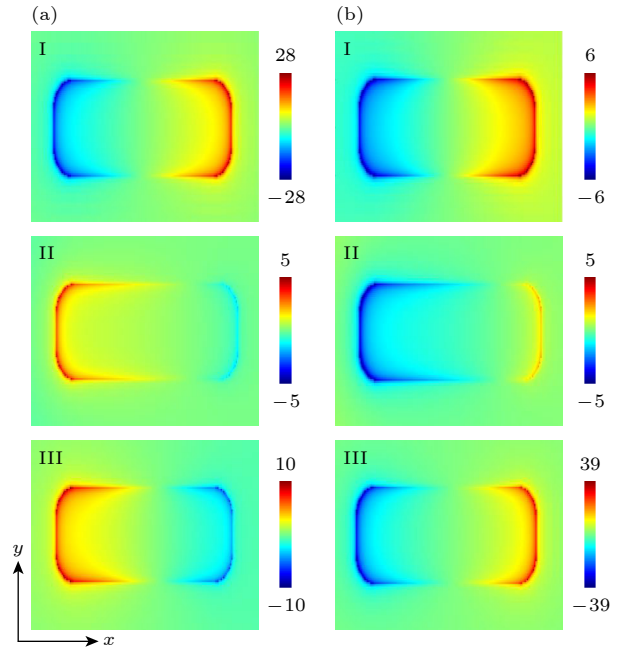


图 9 金纳米棒上表面电场强度  $E_z$  分量分布图 (a) 共振波长为 719 nm; (b) 共振波长为 802 nm. I 为 S2-nanorod; II 为 SPP-nanorod; III 为 SPP&S2-nanorod

Fig. 9.  $E_z$  component distribution of the near field in the upper surface of the nanorod: (a) The resonance wavelength is 719 nm; (b) the resonance wavelength is 802 nm. The excitation conditions corresponding to I, II, and III are S2-nanorod, SPP-nanorod and SPP&S2-nanorod, respectively.

去相位时间为 6 fs(图 10(c)), 在相对时间延时  $\Delta t = 1.92$  fs 时 (抑制电场强度增强), 去相位时间为 5.8 fs(图 10(d)). 发现 SPP-nanorod 的去相位时间明显小于 S2-nanorod 的去相位时间, SPP&S2-nanorod 的去相位时间与 S2-nanorod 的去相位时间相差不大. 对于频率为 300 THz 附近的模式, SPP&S2-nanorod 在相对时间延时  $\Delta t = 0.72$  fs 时 (促进电场强度增强), 去相位时间为 6 fs(图 10(c)), 在相对时间延时  $\Delta t = 1.92$  fs 时 (抑制电场强度增强), 去相位时间为 7.1 fs(图 10(d)). 可以看到, 对于频率为 300 THz 附近的模式, 无论是在促进近场强度的情况下, 还是抑制近场强度的情况下, SPP&S2-nanorod 的去相位时间都明显强于 SPP-nanorod 的去相位时间. 此时 S2-nanorod 未出现共振, 进一步说明了此时为 SPP-nanorod 占主导, 并且由于 S2 入射光的参与, 使得复合结构体系中纳米棒结构中等离子激元模式的去相位时间受到调控. 需要注意的是, 图 10 中高频和低频边缘处曲线拟合相对较差, 可将其归因于研究光谱范围之外的模式影响.

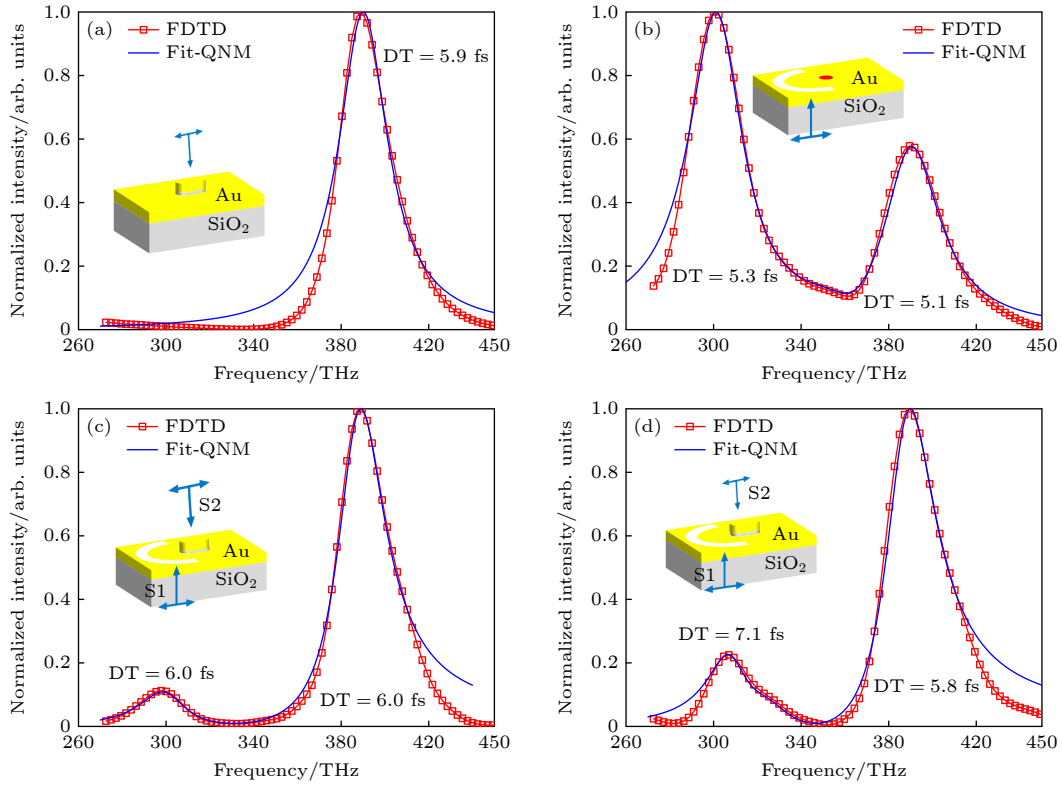


图 10 不同情况下间隙模式去相位时间比较 (a) S2-nanorod; (b) SPP-nanorod; (c) 相对时间延时  $\Delta t = 0.72$  fs 激发 LSP; (d) 相对时间延时  $\Delta t = 1.92$  fs 激发 LSP

Fig. 10. Dephasing times of the gap mode under various excitation conditions: (a) S2-LSP; (b) SPP-LSP; SPP&S2-LSP with the relative time delay  $\Delta t = 0.72$  fs (c) and  $\Delta t = 1.92$  fs (d).

表 1 不同激发方式下 LSP 去相位时间和近场强度比较

Table 1. Comparison of dephasing time and near-field intensity of LSP under different excitation conditions.

	S2-LSP	SPP-LSP	双光束 $\Delta t = 0.72$ fs	双光束 $\Delta t = 1.92$ fs
波长/nm	769	996.4	769.2	1000
频率/THz	390	302	390	300
去相位时间/fs	5.9	5.3	5.1	6.0
电场强度	37.6	12.7	9.6	15.9
				48.1
				13.6
				28.7

将不同激发条件下纳米结构对应的频率下去相位时间以及近场强度绘汇总至表 1 中. 可以看到, 在高频波段 (390 THz 左右) 较强的电场强度对应于较长的去相位时间, 这与激光脉冲激发的传统 LSP 以及远程激发 LSP 的研究一致 [37,56,57]. 在低频波段 (300 THz 左右), 由于频率移动较大, 导致无法在相同波段对近场强度与去相位时间进行比较. 此外可以看到, 在  $\Delta t = 0.72$  fs 时, 两个模式对应的去相位时间相同, 都为 6.0 fs. 而在  $\Delta t = 1.92$  fs 时, 长波对应模式的去相位时间为 7.1 fs, 短波对应模式的去相位时间为 5.8 fs. 在不同延迟下, 两个模式对应不同的去相位时间, 可认为这一结果来自于不同延迟条件下, 两个模式的耦合强度不同所致 [58].

## 4 总结

综上所述, 利用时域有限差分 (FDTD) 方法, 首先表征了结构参数对单一纳米狭缝以及单一金纳米棒结构共振波长的影响; 其次, 探究了双光束激发表面等离子元聚焦耦合结构, 相对时间延时对近场强度的影响; 最后, 利用 QNM 方法对间隙模式 3 种方式激发 LSP 的去相位时间进行研究. 结果表明, 通过调节双光束相对时间延时, 发现在间隙位置和结构上表面均可以实现对表面等离子元聚焦耦合结构近场强度的调控, 这是由于 SPP 激发 LSP 与光源激发 LSP 相干叠加导致. 同时, 发现双光束激发 LSP 的去相位时间略长于 SPP 激发 LSP 的去相位时间, 约延长了 1.4 倍. 此

外,研究发现在不同双光束延迟时间下,等离激元模式对应的去相位时间存在差异:  $\Delta t = 0.72$  fs 时,两个模式对应的去相位时间相同,都为 6.0 fs. 而在  $\Delta t = 1.92$  fs 时,长波对应模式的去相位时间为 7.1 fs,短波对应模式的去相位时间为 5.8 fs. 我们将其归因于两个模式在不同延迟时间下的耦合强度存在差异. 本文通过调节双光束相对时间延时,实现了聚焦 SPP 激发纳米棒复合结构近场强度调控,并揭示了共振模式下近场强度调控机制来自于 SPP 激发 LSP 以及光激发 LSP 电场的相干叠加;采用双光束激发纳米结构可以延长混合模式去相位时间,在不同相对延迟下(对应不同的近场增强),混合模式的去相位时间存在明显差异. 本研究基于聚焦 SPP 与纳米结构相互作用,通过调节双光束相对延迟,对结构近场强度以及去相位时间进行调控,并揭示其作用机制. 该研究结果有望促进基于等离激元的超灵敏度检测器件性能的提升,为等离激元在表面增强拉曼散射、荧光增强和传感等领域的进一步应用奠定基础.

## 参考文献

- [1] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W 2003 *Nature* **6950** 824
- [2] Jin X, Xue L, Xiong J C, Ye S W, et al. 2023 *In Plasmonics in Biology and Medicine XX, SPIE* **12396** 34
- [3] Ren Y, Li T, Zhou J, et al. 2023 *Opt. Mater. Express* **3** 796
- [4] Wu N, Zhang Y, Ma H, et al. 2021 *Prog. Electromagn. Res.* **172** 23
- [5] Ahmed A, Gordon R 2011 *Nano Lett.* **4** 1800
- [6] Cui W, Peng W, Yu L, et al. 2019 *Nanomaterials* **3** 334
- [7] Liu L, Li Z 2022 *Prog. Electromagn. Res.* **173** 93
- [8] Fainman Y, Tetz K, Rokitski R, Pang L I N 2006 *Opt. Photonics News* **17** 24
- [9] Ritchie R H 1957 *Phys. Rev.* **106** 874
- [10] Zhou Y C, Zhang X C, Hu X, Tang L L, Cao Y, Li J Q, Wang J, Dong Z G 2021 *J. Appl. Phys.* **8** 083103
- [11] Zeng P, Cadusch J, Chakraborty D, Smith T A, Roberts A, Sader J E, Davis J, Gómez D E 2016 *Nano Lett.* **16** 2651
- [12] Lerman G M, Yanai A, Levy U 2009 *Nano Lett.* **9** 2139
- [13] Liu Z, Steele J M, Lee H, Zhang X 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 171108
- [14] Liu Z, Steele J M, Srituravanich W, Pikus, Y, Sun C, Zhang X 2005 *Nano Lett.* **5** 1726
- [15] Darak M S, Mote R G, Shukla S 2018 *Ann. Phys.* **530** 1800193
- [16] Qin Y, Ji B, Song X, Lin J 2021 *JOSA B* **38** C58
- [17] Lerman G M, Yanai A, Ben-Yosef N, Levy U 2010 *Opt. Express* **18** 10871
- [18] Chen W, Abeyasinghe D C, Nelson R L, Zhan Q. 2009 *Nano Lett.* **9** 4320
- [19] Rahbany N, Geng W, Montiel R S, Cruz S D L, Méndez E R, Blaize S, Couteau R B C 2016 *Plasmonics* **11** 175
- [20] Podbiel D, Kahl P, Makris A, et al. 2017 *Nano Lett.* **17** 6569
- [21] Yang S, Chen W, Nelson R L, Zhan Q 2009 *Opt. Lett.* **34** 3047
- [22] Chen W, Abeyasinghe D C, Nelson R L, Zhan Q 2010 *Nano Lett.* **10** 2075
- [23] Fang Z, Peng Q, Song W, et al. 2011 *Nano Lett.* **11** 893
- [24] Müller M, Kravtsov V, Paarmann A, Raschke M B, Ernstorfer R 2016 *ACS Photonics* **3** 611
- [25] Ciappina M F, Pérez-Hernández J A, Landsman A S, et al. M. 2017 *Rep. Prog. Phys.* **80** 054401
- [26] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534
- [27] Willets K A, Wilson A J, Sundaresan V, Joshi P B 2017 *Chem. Rev.* **117** 7538
- [28] Srituravanich W, Pan L, Wang Y, Sun C, Bogy D B, Zhang X 2008 *Nat. Nanotechnol.* **3** 733
- [29] Xia M, Zhang P, Qiao K, Bai Y, Xie Y H 2016 *J. Phys. Chem. C* **120** 527
- [30] Knight M W, Sobhani H, Nordlander P, Halas N J 2011 *Science* **332** 702
- [31] Zijlstra P, Paulo P, Orrit M 2012 *Nat. Nanotechnol.* **6** 737
- [32] Kauranen M, Zayats A V 2012 *Nat. Photonics* **6** 737
- [33] Seok T J, Jamshidi A, Kim M, et al. 2011 *Nano Lett.* **11** 2606
- [34] Fernandez-Garcia R, Rahmani M, Hong M, Maier S A, Sonnefraud Y 2013 *Opt. Express* **21** 12552
- [35] Chu Y, Zhu W, Wang D, Crozier K B 2011 *Opt. Express* **19** 20054
- [36] Wang D, Zhu W, MD Best, Camden J P, Crozier K B 2013 *Nano Lett.* **13** 2194
- [37] Sun B, Ji B, Lang P, Qin Y, Lin J 2022 *Opt. Commun.* **505** 127498
- [38] Zhe S Lei S, Yao C 2016 *Opt. Express* **24** 16052
- [39] Lalanne P, Hugonin J P, Liu H. T, Wang B 2009 *Surf. Sci. Rep.* **64** 453
- [40] Johnson P B, Christy R W 1972 *Phys. Rev. B* **6** 4370
- [41] Chu Y, Crozier K B 2009 *Opt. Lett.* **34** 244
- [42] Farhang A, Bigler, Martin O J 2013 *Opt. Lett.* **38** 4758
- [43] Schertz F, Schmelzeisen M, Mohammadi R, Kreiter M, Elmiers H J, Sch Nhense G 2012 *Nano Lett.* **2** 1885
- [44] Ma Y, Huang Y, Zhu Y, et al. 2023 *Nanomaterials* **13** 492
- [45] Shen Q, Boyce A M, Yang G, Mikkelsen M H 2019 *ACS Photonics* **6** 1916
- [46] Wang L M, Petek H 2013 *Laser Photonics Rev* **7** 1003
- [47] Wang Y, Ming C, Zhang Y, Xu J, Feng F, Li L, Yuan X 2020 *Opt. Express* **28** 33516
- [48] Rahbany N, Geng W, Bachelot R, Couteau C 2018 *Nanotechnology* **28** 185201
- [49] Feng S L, Wang J Y, Chen S, Meng L Y, Shen S X, Yang Z L 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 147801 (in Chinese) [冯仕靓, 王靖宇, 陈舒, 孟令雁, 沈少鑫, 杨志林 2019 物理学报 **68** 147801]
- [50] Zhang Q, Li G C, Lo T W, Lei D Y 2018 *J. Opt.* **20** 024010
- [51] Lemke C, Lei Ner T, Evlyukhin A, et al. 2014 *Nano Lett.* **5** 2431
- [52] Mařsell E, Losquin A, Svård R, et al. 2015 *Nano Lett.* **15** 6601
- [53] Ji B, Qin J, Tao H, Hao Z, Lin J 2016 *New J. Phys.* **18** 093046
- [54] Melchior P, Bayer D, Schneider C, Fischer A, Rohmer M, Pfeiffer W, Aeschlimann M 2011 *Phys. Rev. B* **83** 235407
- [55] Hensen M, Huber B, Friedrich D, et al. 2019 *Nano Lett.* **19** 4651
- [56] Hanke T, Cesar J, Knittel V, Trügler A, Hohenester U, Leitenstorfer A, Bratschitsch R 2012 *Nano Lett.* **12** 992
- [57] Ueno K, Yang J, Sun Q, et al. 2019 *Appl. Mater.* **14** 159
- [58] Yang J H, Sun Q, Ueno K, et al. 2018 *Nat. Commun.* **9** 4858

# Near-field control of gold nanostructure under joint action of surface plasmon polariton and incident light<sup>\*</sup>

Wang Yue   Wang Lun   Sun Bai-Xun   Lang Peng   Xu Yang  
Zhao Zhen-Long   Song Xiao-Wei   Ji Bo-Yu<sup>†</sup>   Lin Jing-Quan<sup>‡</sup>

(School of Physics, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China)

( Received 4 April 2023; revised manuscript received 11 May 2023 )

## Abstract

Localized surface plasmon (LSP) generated by nanostructure subjected to the excitation of surface plasmon polariton (SPP) possesses stronger near-field enhancement and special spectral and dynamic responses, thereby providing a new idea for exploring the interaction between light and matter. Meanwhile, this scheme can also release the signal background noise and structural thermal effect, and improve the performances of plasmonic components and sensing detectors based on LSP. However, the current research in this aspect is still insufficient. In this paper, we investigate the near-field characteristics of a plasmon composite structure composed of plasmon focusing lens and gold nanorod under the excitation of dual-beam by using finite-difference time-domain (FDTD) method. The result shows that the near-field intensity control on the upper surface and in the gap position of the nanorod can be achieved by adjusting the relative time delay between the first light beam (used to excite SPP) and the second light beam (used to excite LSP). Specifically, the maximum adjustment range of the near-field intensity corresponding to 770 nm resonant mode in the gap position is about 23, and the adjustment period is about 2.4 fs. In a resonant mode dominated by SPP at a wavelength of 999 nm, the adjustment range of near-field intensity is as small as 6, and the adjustment period is about 4 fs. On the upper surface of the structure, the adjustment range of the near-field intensities of the two resonant modes (719 nm and 802 nm) are basically the same (about 15), and their adjustment periods are 2.4 fs and 2.8 fs. The achievement of the near field control is attributed to the coherent superposition of SPP-excited LSP with light-excited LSP. In addition, the dephasing time of the coupling field is investigated by using a quasi-normal mode. It is found that the nanorod structure will correspond to different dephasing time under different relative time delay between two excitation light beams. Specifically, for the time delay of 0.72 fs ( $\Delta t = 0.72$  fs), the corresponding dephasing times for both modes are the same (6.0 fs). For  $\Delta t = 1.92$  fs, the dephasing time of the longer-wavelength mode is 7.1 fs, and the one of the shorter-wavelength mode is 5.8 fs. We attribute the difference in dephasing time to different coupling strengths between the two modes at different delay times. This study may further promote the application of plasmons in the fields of surface-enhanced Raman scattering and plasmon assisted catalysis.

**Keywords:** plasmonics, surface plasmon polariton interacts with localized surface plasmon, near-field control, finite-difference time-domain

**PACS:** 52.35.Mw, 78.67.Sc, 78.68.+m, 78.20.Bh

**DOI:** 10.7498/aps.72.20230514

\* Project supported by the National Key Research and Development Program (Grant Nos. 2022YFA1604304, 2022YFA1604303), the Young Scientists Foundation of the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 62005022, 12004052), the Department of Science and Technology of Jilin Province, China (Grant No. 20230508143RC), the Department of Science and Technology of Jilin Province, China (Grant No. YDZJ202201ZYTS299); the Department of Education of Jilin Province, China (Grant No. JJKH20220720KJ), and the Recruitment Programm of Science and Technology Youth Talents of Jilin Province, China (Grant No. QT202217).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [jiboyu@cust.edu.cn](mailto:jiboyu@cust.edu.cn)

<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: [linjingquan@cust.edu.cn](mailto:linjingquan@cust.edu.cn)



## 表面等离激元与入射光共同作用下的金纳米结构近场调控

王悦 王伦 孙柏逊 郎鹏 徐洋 赵振龙 宋晓伟 季博宇 林景全

## Near-field control of gold nanostructure under joint action of surface plasmon polariton and incident light

Wang Yue Wang Lun Sun Bai-Xun Lang Peng Xu Yang Zhao Zhen-Long Song Xiao-Wei Ji Bo-Yu Lin Jing-Quan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 175202 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230514

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230514>

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

#### 飞秒传输表面等离激元的近场成像表征与激发效率的调控

Near-field imaging of femtosecond propagating surface plasmon and regulation of excitation efficiency

物理学报. 2021, 70(10): 107101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201827>

#### 表面等离激元“热点”的可控激发及近场增强光谱学

Surface plasmon resonance “hot spots” and near-field enhanced spectroscopy at interfaces

物理学报. 2019, 68(14): 147801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190305>

#### 表面等离极化激元的散射及波前调控

Scatterings and wavefront manipulations of surface plasmon polaritons

物理学报. 2020, 69(15): 157804 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200614>

#### 量子等离激元光子学在若干方向的最新进展

Some recent advances on quantum plasmonics

物理学报. 2019, 68(14): 147103 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190331>

#### 表面等离激元调控化学反应

Surface plasmon mediated chemical reaction

物理学报. 2019, 68(14): 147102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190345>

#### 拓扑表面等离激元

Topological surface plasmon polaritons

物理学报. 2019, 68(22): 224101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191085>