

# 截面形状对快电子激发纳米双线 表面等离子激元的影响\*

王垒 蔡卫<sup>†</sup> 谭信辉 向吟啸 张心正 许京军

(南开大学物理学院, 弱光非线性光子学教育部重点实验室, 天津 300071)

(南开大学泰达学院应用物理学院, 天津 300457)

(2010年6月24日收到; 2010年9月15日收到修改稿)

采用边界元方法研究了快电子在金属纳米双线中激发间隙表面等离子激元(SPP)的性质, 比较了在不同横截面形状(包括圆形、尖劈形和不规则形状)下电子所激发SPP的不同. 研究表明: 在以上波导结构中, 快电子都能激发具有较长传播距离和较好局域性的低阶单级-单级耦合的间隙等离子激元模式; 同时通过对波导无量纲价值参数的比较, 发现快电子在纳米双线中激发间隙等离子激元对双线波导的横截面形状要求不高, 横截面形状真正影响的是高阶等离子激元模式的激发, 而且快电子在截面形状为尖劈的双线波导中能激发局域性更强的间隙SPP. 该研究将对实验中利用电子显微镜手段实现SPP间隙模式的激发具有指导意义.

**关键词:** 表面等离子激元, 间隙模式, 金属纳米波导

**PACS:** 73.20.Mf, 73.40.Ns, 79.20.Uv

## 1. 引言

表面等离子激元(SPP)由于其高度局域性和强电磁场分布, 将成为未来实现纳米尺度光学回路以及纳米传感器设计的核心组成部分<sup>[1,2]</sup>. 然而, SPP的局域性和传播距离是一对相互矛盾的基本参数, 因为局域性增强导致的SPP的场增强效应会加大欧姆损耗, 缩短传播距离. 这种现象严重限制了SPP在纳米光学回路中的应用, 如何实现SPP局域性和传播距离的双赢成了目前该领域的一个研究热点. 迄今为止, 已提出多种波导结构来解决这个难题, 其中包括纳米粒子链<sup>[3,4]</sup>、尖劈结构<sup>[5]</sup>、凹槽结构<sup>[6,7]</sup>、层状波导<sup>[8]</sup>、紧靠的纳米线对<sup>[9]</sup>、耦合纳米线阵列<sup>[10]</sup>、双椭圆截面纳米金属棒结构<sup>[11]</sup>、双三角形截面金属棒结构<sup>[12]</sup>、金属介质混合结构<sup>[13]</sup>和非对称结构<sup>[14]</sup>等. 这些结构都在一定程度上达到了提

高局域性和延长传播距离的目的, 相比较而言, 紧靠的纳米线对中所产生的间隙模式具有较长的传播距离和较好的局域性, 并且能很好抑制波导直接的相互耦合, 是集成等离子激元光学波导设计的优先选择之一. 与此同时, 如何实现SPP的定点激发也是等离子激元光学中一直悬而未决的重要问题之一. 最近的研究表明, 直接利用快电子轰击是实现传播SPP定点激发的有效手段<sup>[15,16]</sup>, 并且电子显微镜被广泛用于SPP的真正纳米量级的分辨研究<sup>[17]</sup>. 因此, 结合快电子与间隙SPP的研究将对未来纳米尺度的光学回路的应用起到关键作用.

本文重点研究快电子激发不同截面形状(包括规则的圆形、纳米尖劈形和非规则形状)的纳米线对中的SPP的局域性与传播距离等性质, 从而分析如何选择结构以实现应用所要求的SPP的激发, 为实验中利用电子显微镜实现间隙模式的激发提供理论指导.

\* 中央高等学校基本科研基金、国家自然科学基金(批准号: 11004112, 10874093, 10804055)、国家重点基础研究发展计划(批准号: 2007CB307002, 2010CB934101)、教育部海外名师引进计划(批准号: MS2010NKDX023)和高等学校学科创新引智计划(批准号: B07013)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: weicai@nankai.edu.cn

## 2. 计算方法

快电子在与金属结构相互作用的过程中产生可探测的能量损失,其中大部分能量损失来源于 SPP 的产生. 通过探测电子能量损失就能得到电子在金属纳米结构中所激发的 SPP 的性质<sup>[18,19]</sup>.

电子能量损失概率用不同能量  $\hbar\omega$  和不同平行波矢动量  $\hbar k_{\parallel}$  分量的能量损失概率贡献之和来表示,即

$$\Gamma(\omega) = \int_0^{\infty} dk_{\parallel} \Gamma(k_{\parallel}, \omega).$$

通过计算外场对电子的推迟力所作的功计算出能量损失概率的分量为

$$\Gamma(k_{\parallel}, \omega) = \frac{e}{\pi^2 \hbar \omega} \int dk_{\parallel} e^{-i\omega t} \mathbf{v} \cdot \mathbf{E}^{\text{ind}}(k_{\parallel}, b, vt, \omega), \quad (1)$$

其中诱导电场为

$$\mathbf{E}^{\text{ind}}(k_{\parallel}, b, vt, \omega) = \int dx e^{-ik_{\parallel}x} \mathbf{E}^{\text{ind}}(x, b, vt, \omega).$$

这里  $e$  代表电子电荷,  $2\pi\hbar$  为普朗克常数,  $\omega$  为光子角频率,  $\mathbf{v}$  为激发电子速度,  $b$  为碰撞参数(见图 1),  $x = vt$  描述快电子的运动轨迹(假设  $z$  为波导方向). 在研究过程中,体系的电磁场通过边界元方法(BEM)来精确求解. BEM 方法的主要思想是将电磁场表示为所研究结构表面等电荷和电流,通过电荷和电流在表面的边界连续条件得到一组线性微分方程,然后在外部场的情况下自洽地求解该方程组就能得到体系的电磁场<sup>[20,21]</sup>. 通过 BEM 方法得到诱导电磁场后,然后通过方程(1)得到电子能量损失谱  $\Gamma(k_{\parallel}, \omega)$ , 其直接反映了光子局域态密度的大小<sup>[22]</sup>.

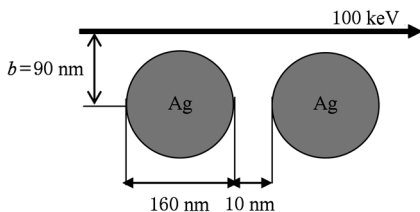


图 1 快电子激发银纳米双线截面图

在计算中,我们取  $z$  方向为平移不变的方向,电子运动轨迹沿着  $x$  方向. 激发电子能量取为 100 keV, 这是扫描透射电子显微镜的典型值. 银纳米线直径取为 160 nm, 波导间距取为 10 nm, 将每一个截

面圆的边界等分为 200 份,即边界元步长大约为 2.5 nm,周围的介质取为真空,银介电常数取自文献[23]. 计算所得电子能量损失谱如图 2(a) 所示,其极大值直接反映了电子激发的 SPP 的色散关系.

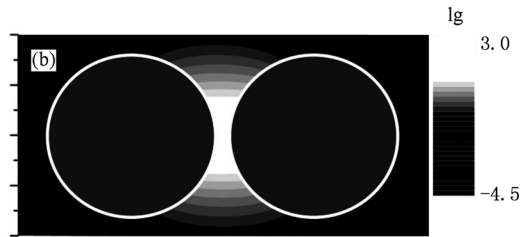
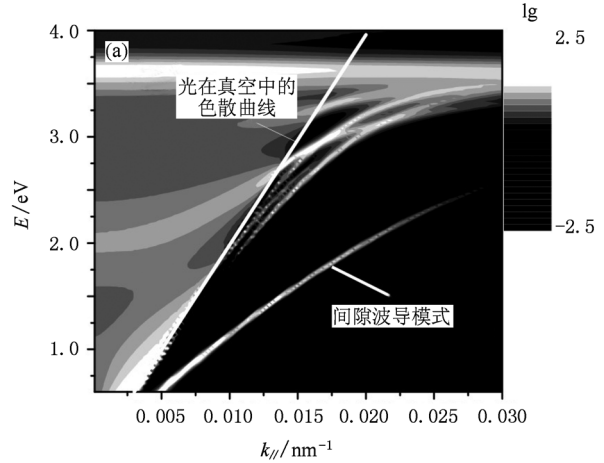


图 2 快电子激发圆形截面银纳米双线 SPP (a) 电子能量损失谱,其极大值对应着快电子激发 SPP 的色散关系;(b) 间隙模式的近场分布

图 2(a) 中标出了光在真空中的色散曲线,位于该线右边的亮线即为 SPP 共振的色散曲线. 从图 2(a) 中可以清晰地看到 6 种 SPP 共振模式,其中能量最低、偏离光的色散曲线最远的模式即为单级-单级耦合的 SPP 间隙波导模式(gap plasmon mode),另外 5 种模式为高阶模式<sup>[24]</sup>. 图 2(b) 所示为间隙模式的近场(感应电场强度)分布. 间隙模式的色散曲线离光的色散曲线较远,即说明相同能量即相同  $k$  的情形下  $k_{\parallel}$  较大,由  $k^2 = k_{\perp}^2 + k_{\parallel}^2$  ( $k_{\parallel} > k$ ) 得知  $k_{\perp}$  的虚部较大,即横向上的局域性较好. 同时,等离激元传播的主要媒质由金属表面转移到了介电常数的虚部  $\epsilon''$  几乎为零的介质中,欧姆损耗近似为零,所以传播距离也比较远. 将  $E^2$  降为极大值的  $1/e$  的曲线所包围的面积定义为模式尺寸  $S$ ,具体计算可通过对间隙模式用 BEM 方法计算电场强度的空间分布,再对有效区域积分得到. 传播距离定义为

$l = [2\text{Im}(k_z)]^{-1}$ ,  $k_z$  即为局域态密度 (LDOS) 对  $q$  作图得到峰值的半峰半宽 (HWHM), 具体计算可通过给定耦合 SPP 光波长 (如 800 nm), 用 BEM 方法计算出在该能量下的 LDOS 对  $q$  作图, 读出峰值的 HWHM 得到. 能量波导无量纲价值参数  $F$  可表示为<sup>[9]</sup>  $F^2 = \frac{l^2}{S}$ , 经计算可得其模式尺寸约为 509.4 nm<sup>2</sup>, 传播距离约为 11 μm, 有效参数  $F \approx 488.6$ , 与文献[9]报道的类似结构结果 ( $F \approx 540$ ) 相差不大, 比别的形状波导模式有效参数值大一个数量级以上. 这样, 快电子横向穿过金属纳米双线, 由于快电子所产生消逝场的作用, 激发了传播距离和局域性

的双赢的间隙等离激元模式, 解决了实验中该模式定点产生的问题.

### 3. 结果与讨论

为了研究不同截面形状波导对电子产生 SPP 间隙模式的影响, 我们计算了紧靠银尖劈对和紧靠非规则截面银波导对两种不同结构的电子能量损失谱, 得到电子激发的 SPP 的色散关系及其近场分布, 并与圆形截面纳米双线作比较, 以期对利用电子显微镜产生 SPP 的实验提供理论指导. 激发配置截面图如图 3 所示.

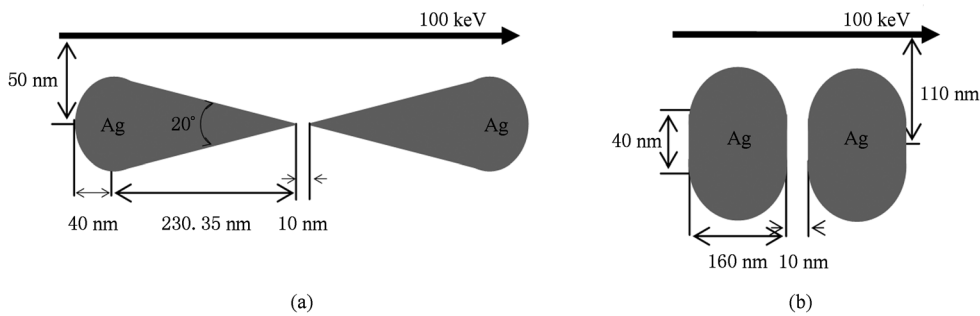


图 3 快电子激发不同截面形状纳米双线 SPP 图 (a) 尖劈截面纳米双线示意图; (b) 非规则截面形状纳米双线示意图

在紧靠的截面为尖劈的波导中, 尖劈顶角为 20°, 尖劈尾部用圆弧连接, 圆弧的半径为 40 nm, 碰撞参数  $b$  为 50 nm, 即圆的上端离电子轨迹仍然为 10 nm. 圆心到尖劈顶点的距离经计算约为 230.35 nm, 两尖劈纳米线间距保持为 10 nm. 周围介质用真空, 用 BEM 方法数值解得此结构的 EELS 图和模式近场分布见图 4.

与图 2(a) 类似, 图 4(a) 标出了光在真空中的色散曲线, 该线右边的亮线即为 SPP 波导模式. 从图 4(a) 清晰可辨的至少有 4 种模式. 其中, 能量最低的模式即为 SPP 间隙波导模式, 对比图 2(a) 可得出两条间隙模式曲线的 EELS 强度相差不大, 而且位置也基本符合, 但偶极-偶极耦合的高阶模式位置和条数都发生了改变. 这说明两波导交界区域的曲率半径减小并不会对单级-单级耦合的 SPP 的间隙模式产生很大影响, 但会对偶极-偶极耦合的高阶模式产生较大的影响. 经计算可得, SPP 间隙模式的模式尺寸约为 90.3 nm<sup>2</sup>, 传播距离为 5.8 μm, 有效参数  $F \approx 611.2$ . 这说明只要保持材料的对称性, 材料表面的尖端突起并不会对 SPP 间隙模式激发造成

很大的影响, 降低了实验上实现间隙模式激发的难度. 图 4(b) 为图 4(a) 中间隙模式的近场 (感应电场强度) 分布, 其中模式分布和计算得到的模式尺寸都表明这种尖劈间隙等离激元模式的局域性非常好, 传播距离也较长. 这说明用此波导来激发间隙等离激元模式也是一条可行的途径, 尤其是当纳米集成光路对局域性要求非常高时, 这种尖劈波导的局域性优势便更为明显.

图 3(b) 中所给的截面非规则形状的纳米双线波导可看成将圆形截面双线波导 (即图 1 所示波导) 从中间劈开, 然后再用矩形波导将劈开的两部分连接起来的结果. 所以此波导在波导间隙区应该具有平面间隙波导的性质, 而在上下方具有圆形截面纳米双线波导的性质. 本文中上下半圆的半径均取为 80 nm, 矩形的长 (即半圆的直径) 为 160 nm, 矩形的宽为 40 nm. 碰撞参数为 110 nm, 即保证半圆的上端离电子轨迹仍然为 10 nm. 两波导间距为 10 nm, 周围介质用真空. 用 BEM 方法解得其色散关系和模式近场如图 5 所示.

图 5(a) 中光的色散曲线右边的亮线为 SPP 波

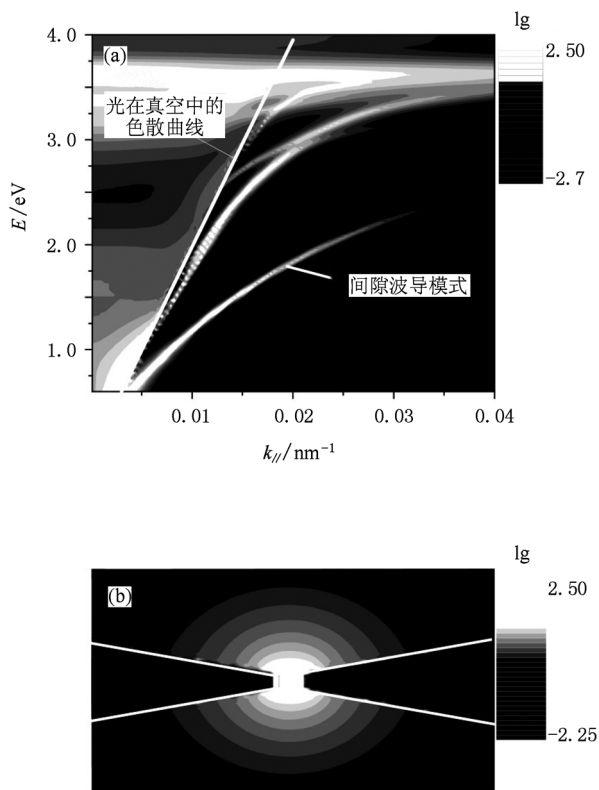


图4 快电子激发尖劈截面形状纳米双线 SPP (a)色散关系; (b)模式近场分布

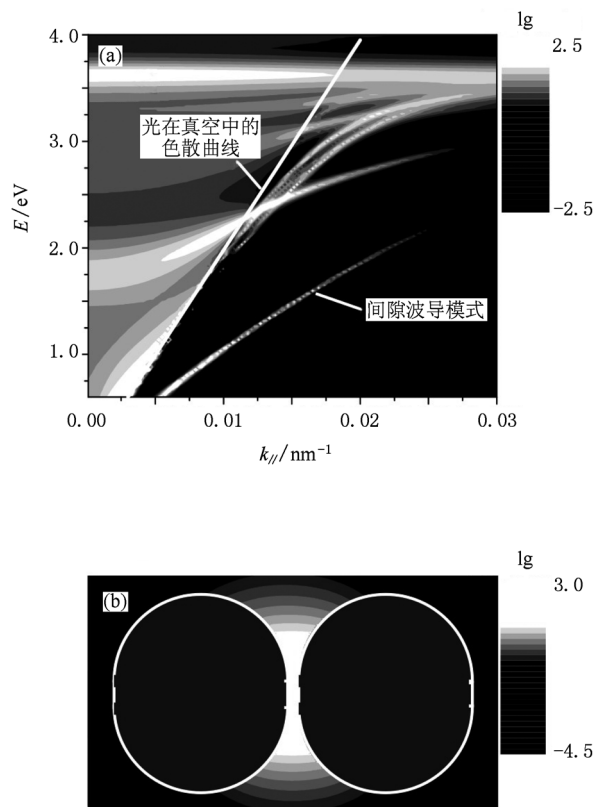


图5 快电子激发截面形状非规则的纳米双线银波导 SPP (a)色散关系;(b)近场分布

导模式. 从图 5(a) 中可辨认的 SPP 模式有 6 条. 其中, 能量最低的模式为 SPP 间隙波导模式, 对比图 2(a) 可得出两条间隙模式曲线的 EELS 强度相差不多, 而且位置也基本符合. 偶极-偶极耦合的高阶模式位置有了一些改变, 但整体分布和条数没有很大改变, 说明两波导交界区域的曲率半径变化并不会对单级-单级耦合的 SPP 的间隙模式产生较大影响, 只会对偶极-偶极耦合的高阶模式产生一些可观测的影响, 但影响并不大. 经计算可得, 间隙模式 SPP 的模式尺寸约为  $809.9 \text{ nm}^2$ , 传播距离约为  $9.16 \text{ }\mu\text{m}$ , 价值参数  $F \approx 321.7$ . 这说明只要保持材料的对称性, 材料表面的尖端过于平缓并不会对 SPP 间隙模式激发造成大的影响, 这使得实验上更易激发间隙模式. 图 5(b) 为图 5(a) 中间隙模式的近场 (感应电场强度) 分布. 图 5(b) 中表明, 模式主要仍然分布在波导间隙中, 局域性较好. 由色散关系亦可知其传播距离较长, 说明用此波导来激发间隙等离元模式也是可选途径之一.

为了得到电子激发 SPP 间隙模式的激发效率, 我们将  $\Gamma(k_{//}, \omega)$  色散关系在间隙模式附近对波矢

$q$  积分, 得到上述 3 种截面形状电子激发的 SPP 辐射概率, 结果如图 6 所示.

图 6(a) 中实线为圆形截面纳米双线的辐射效率, 虚线为尖劈纳米双线的辐射效率, 点划线为非规则双线的辐射效率. 由图 6(a) 中可以看出, 在红外以及远红外波段, 电子主要激发间隙 SPP, 间隙 SPP 的辐射概率约为  $10^{-3} \text{ eV}^{-1}$ , 表明约 1000 个电子激发单个 SPP. 特别地, 尖劈双线相对于其他两种波导, 电子激发间隙 SPP 辐射概率是最高的, 这说明纳米线对接触区曲率越大越有利于电子能量耦合进 SPP 的间隙模式中. 图 6(b) — (d) 分别为 3 种结构间隙模式辐射概率与电子能量损失总概率的对比, 从中可以看出, 电子能量损失曲线呈现波动形状, 峰值分别对应不同阶次的 SPP 的激发, 最低阶对应间隙 SPP. 3 种结构的能量损失总概率都在  $1.5 \text{ eV}$  附近出现谷值, 故能量激发效率的最大值也在该区域. 纳米双线和尖劈双线的能量激发效率都在  $1/3$  以下, 非规则双线的能量激发效率要更低些, 在  $1/7$  以下.

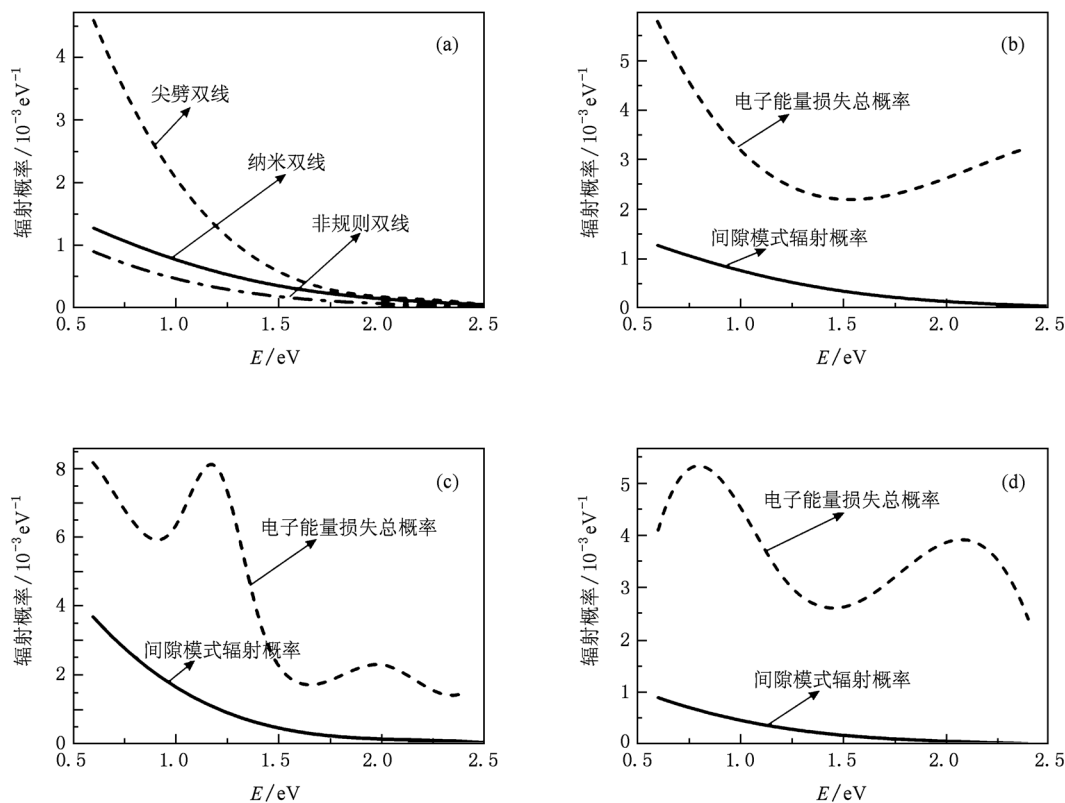


图6 快电子激发3种截面形状纳米波导辐射效率 (a)为3种波导结构辐射效率的对比;(b),(c)和(d)分别为纳米双线、尖劈双线和非规则双线的间隙模式辐射概率与该结构下电子能量损失总概率的对比

## 4. 结 论

通过 BEM 方法对快电子激发截面形状为尖劈的纳米双线和非规则截面形状的双线结构中的 SPP 模式进行了数值计算,并分析了波导无量纲价值参数.与圆形截面的纳米双线进行了比较发现,快电子在各种纳米线对结构中激发的间隙模式有较长的传播距离和较好的局域性.保持对称性的情形下改变两波导的形状,对间隙模式的色散曲线和价值

参数不会造成大的影响,这降低了实验上利用电子显微镜手段实现 SPP 间隙模式激发的难度.结构真正影响的是高阶模式,并且快电子在截面形状为尖劈的纳米双线中激发局域性更强的间隙模式.同时,量化比较了不同结构中间隙模式的激发概率,发现间隙接触点的曲率对激发间隙 SPP 有影响.总之,对不同截面形状的纳米双线对快电子耦合间隙 SPP 影响做了深入探讨,该研究将对利用电子显微实现激发间隙 SPP 提供的理论支持.

- [1] Hecht B, Bielefeldt H, Novotny L, Inouye Y, Pohl D W 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1889
- [2] Kneipp K, Wang Y, Kneipp H, Perelman L T, Itzkan I, Dasari R R, Feld M S 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1667
- [3] Maier S A, Kik P G, Atwater H A, Meltzer S, Harel E, Koel B E, Requicha A A G 2003 *Nat. Mater.* **2** 229
- [4] Quinten M, Leitner A, Krenn J R, Aussenegg F R 1998 *Opt. Lett.* **23** 1331
- [5] Moreno E, Rodrigo S G, Bozhevolnyi S I, Martín-Moreno L, García-Vidal F J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 023901
- [6] Bozhevolnyi S I, Volkov V S, Devaux E, Laluet J Y, Ebbesen T W 2006 *Nature* **440** 508
- [7] Zheng X H, Wang Y Q, Zhang Y 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 8571 (in Chinese) [郑显华、王瑛琪、张岩 2009 物理学报 **58** 8571]
- [8] Fernández-Domínguez A I, Moreno E, Martín-Moreno L, García-Vidal F J 2009 *Opt. Lett.* **34** 2063
- [9] Manjavacas A, García de Abajo F J 2008 *Nano Lett.* **9** 1285

- [10] Chen H, Wang L 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4605 (in Chinese)  
[陈华, 汪力 2009 物理学报 **58** 4605]
- [11] Guo Y N, Xue W R, Zhang W M 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4168  
(in Chinese) [郭亚楠, 薛文瑞, 张文梅 2009 物理学报 **58** 4168]
- [12] Xue W R, Guo Y N, Zhang W M 2010 *Chin. Phys. B* **19** 017302
- [13] Oulton R F, Sorger V J, Genov D A, Pile D F P, Zhang X 2008 *Nat. Photon.* **2** 496
- [14] Chen J J, Li Z, Gong Q H 2009 *Chin. Phys. B* **18** 3535
- [15] Bashevoy M V, Jonsson F, Krasavin A V, Zheludev N I, Chen Y, Stockman M I 2006 *Nano Lett.* **6** 1113
- [16] Cai W, Sainidou R, Xu J J, Polman A, García de Abajo F J 2009 *Nano Lett.* **3** 1176
- [17] Kuttge M, Cai W, García de Abajo F J, Polman A 2009 *Phys. Rev. B* **80** 033409
- [18] Gómez-Medina R, Yamamoto N, Nakano M, García de Abajo F J 2008 *New J. Phys.* **10** 105009
- [19] Vesseur E J R, de Waele R, Kuttge M, Polman A 2007 *Nano Lett.* **7** 2843
- [20] García de Abajo F J, Howie A 2002 *Phys. Rev. B* **65** 115418
- [21] García de Abajo F J, Howie A 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 5180
- [22] García de Abajo F J, Kociak M 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 106804
- [23] Johnson P B, Christy R W 1972 *Phys. Rev. B* **6** 4370
- [24] Cai W, Wang L, Zhang X Z, Xu J J, García de Abajo F J 2010 *Phys. Rev. B* **82** 125454

## Effects of cross-section shape on fast electron beams excited plasmons in the surface of nanowire pairs \*

Wang Lei Cai Wei<sup>†</sup> Tan Xin-Hui Xiang Yin-Xiao Zhang Xin-Zheng Xu Jing-Jun

(Key Laboratory of Weak-Light Nonlinear Photonics of Ministry of Education, School of Physics, Nankai University, Tianjin 300071, China)

(Teda Applied Physics School, Nankai University, Tianjin 300457, China)

(Received 24 June 2010; revised manuscript received 15 September 2010)

### Abstract

In this paper, we investigate the gap plasmon excitation by swift electron beams in nanowire pairs, in particular, with different cross-section shapes (including circular, wedge and irregular shape). For all these nanowire pairs, our results show that fast electron beams can efficiently excite low-order monopole-monopole gap plasmons, which possess long propagation distance and well spatial localization. Furthermore, in contrast to high-order plasmons, the excited gap plasmons do not depend highly on cross-section shape of nanowire pairs through comparing the merit parameters in these three kinds of waveguides. Besides, the excited gap mode will be more confined in nanowire pairs with wedge cross-section. Our study will be helpful for the experiments of gap plasmon generation using electron microscope.

**Keywords:** surface plasmon polaritons, gap plasmons, metallic nanowire waveguide

**PACS:** 73.20.Mf, 73.40.Ns, 79.20.Uv

\* Project supported by the Fundamental Scientific Research Funds for the Central Universities of China, the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11004112, 10874093, 10804055), the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant Nos. 2007CB307002, 2010CB934101), the Oversea Famous Teacher Program of Ministry of Education, China (Grant No. MS2010NKDX023), and the Discipline Innovation and Introducing Talents Program of Institution of Higher Education, China (Grant No. B07013).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: weicai@nankai.edu.cn