

金属粒子阵列共振的偏振特性

殷澄 许田 陈秉岩 韩庆邦

Polarization characteristics of the lattice resonance of metal nanoparticle array

Yin Cheng Xu Tian Chen Bing-Yan Han Qing-Bang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 164202 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.164202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.164202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I16>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

Bessel 光束经椭圆环形孔径后的衍射光场

Diffraction optical field of the Bessel beam through elliptical annular aperture

物理学报.2015, 64(12): 124201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.124201>

大散射角散斑场中有关相位奇异新特性的研究

New features of the speckle phase singularity produced in large angle scattering

物理学报.2015, 64(8): 084210 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.084210>

利用近前向散射图样识别单粒子形状的理论研究

Shape classification of single aerosol particle using near-forward optical scattering patterns calculation

物理学报.2015, 64(5): 054202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.054202>

连续相位板面形的随机特性研究

Surface stochastic characteristics of continuous phase plate

物理学报.2014, 63(16): 164203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.164203>

应用改进的物理光学法和图形计算电磁学近似算法快速计算导体目标电磁散射特性

Fast computation of electromagnetic scattering characteristics from conducting targets using modified-physical optics and graphical electromagnetic computing

物理学报.2014, 63(16): 164202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.164202>

金属粒子阵列共振的偏振特性*

殷澄^{1)†} 许田²⁾ 陈秉岩¹⁾ 韩庆邦¹⁾

1)(河海大学, 江苏省输配电重点实验室, 常州 213022)

2)(南通大学物理系, 南通 226007)

(2015年1月28日收到; 2015年3月9日收到修改稿)

当金属纳米粒子形成规则分布且阵列周期与单粒子的共振波长近似匹配时, 会形成一种特殊的阵列共振, 这种共振比单粒子的局域表面等离子体共振具有更窄的共振线宽和更高的共振强度. 基于修正的长波近似方法, 讨论了矩形阵列的消光截面与阵列因子和单粒子的极化率之间的关系; 并详细研究了在不同偏振的入射光照射下, 阵列因子随着电偶极子方向的变化而产生的变化, 以及这一效应对阵列共振和消光截面所产生的影响. 结果表明, 大型的方阵是偏振无关的; 在矩形阵列中, 沿着阵列两个轴向的相邻粒子之间的耦合形成了阵列因子的两个极值, 并且分别对应了散射截面的最小值.

关键词: 散射, 表面等离子体激元学, 纳米粒子**PACS:** 42.25.Fx, 78.67.Bf**DOI:** 10.7498/aps.64.164202

1 引言

随着加工工艺和制备方法的不断进步, 与金属微结构相关的光学现象受到了越来越多的关注, 并逐渐发展成一门新兴学科: 表面等离子体激元学 (plasmonics)^[1,2]. 该领域的一个巨大优势在于能够突破传统的光学衍射极限, 从而大幅缩小光学器件的尺寸, 例如一个粒径小于波长的金属粒子可以通过激发局域表面等离子体共振 (localized plasmonic resonance)^[3-5] 从而把光能限制在极小的区域内. 这一现象已经在光电子器件^[6,7]、传感检测^[8-10] (尤其是表面增强拉曼散射) 等领域获得了广泛的研究和应用. 当电磁波作用于金属纳米粒子时, 振荡的电场驱动着自由电荷在粒子内部重新分布, 而新的电荷分布又对所有偏移平衡位置的自由电荷形成一个回复力, 使整个金属粒子可以等效为一个辐射的电偶极子. 当波长匹配时, 可以观察到对入射光的共振吸收和散射的现象, 同时在粒子的表面会形成一个很强的场强分布. 对于单个粒子

而言, 米散射理论 (Mie scattering) 是基于麦克斯韦方程组的严格解; 但是当金属粒子的粒径远小于电磁波波长时, 可以认为其内部电场是均匀的, 从而使用更加简单的静电学近似来处理^[11]. 当金属的粒径与波长相当时, 由于粒子内部的场不再是均匀的, 需要考虑粒子内部的延迟效应及电偶极子的辐射损耗. 基于上述考虑来对静电学近似的结果进行修正的方法又被称为修正长波近似方法 (modified long-wavelength approximation)^[12].

当金属纳米粒子排列成阵列结构时, 会产生一种与单粒子结构完全不同的共振现象, 又被称为阵列共振 (lattice resonance)^[13]. 虽然这一现象很早就被预言了, 但是直到2008年才首次通过实验观察到非常明显的共振峰^[14]. 单粒子的共振与粒子的大小、形状、材质以及周围介质相关; 而阵列共振除了上述参数以外, 还取决于阵列的形状、大小^[15]、周期以及入射光的偏振方向. 两种共振相比较, 阵列共振通常具有更高的共振峰和更窄的线宽. 虽然目前已经报道的研究工作还不多, 但这一现象有着广阔的研究和应用前景, 将会被推广到

* 国家自然科学基金 (批准号: 11404092) 和江苏省自然科学基金 (批准号: SBK2014043338) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: cyin.phys@gmail.com

超颖材料、荧光检测、生化传感等重要领域. 例如, Törmä 小组 [16] 通过实验研究了阵列共振、单粒子的局域等离子体共振和有机染料分子的共振吸收之间的强烈耦合现象.

本文着重探讨矩形粒子阵列共振的偏振特性. 运用修正长波近似方法来计算单粒子的极化率, 并引入一个阵列因子来获得阵列的散射截面, 由此详细分析入射光的不同偏振方向对共振特性的影响. 本文第二部分简单地介绍了计算的模型和所用的相关理论; 第三部分给出了方形阵列偏振无关特性成立的条件, 研究共振峰的位置的决定因素, 以及不同偏振情况对阵列共振的影响; 第四部分为结论.

2 模型和理论介绍

本文仅限于讨论矩形阵列, 六边形 (hexagonal)、蜂窝形 (honeycomb) 阵列不在本文研究的范围内. 考虑如图 1 所示的 n_y 行 n_x 列的粒子阵列模型, 并且令平行 x 轴方向的周期为 dx , 平行 y 轴方向的周期为 dy . 假设入射光的电场分量与 x 轴之间的夹角为 θ_p , 那么可以近似地认为在该电场作用下的每一个金属纳米粒子都可以等效为一个平行于 θ_p 方向的电偶极子.

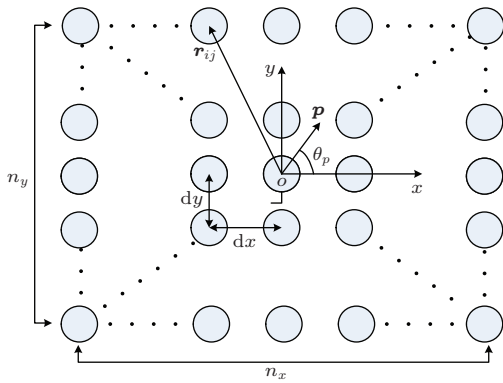


图 1 纳米金属粒子的矩形阵列模型

Fig. 1. Rectangular array of the metal nanoparticles.

对仅存在一个粒子的情况, 用修正的长波近似的方法计算出它的极化率已经比较成熟 [12]. 当很多个完全相同的粒子排列成规则阵列以后, 由于每一个等效的电偶极子都会向外辐射电场, 因此每一个粒子的极化 p 不仅仅取决于它所处位置的外加场, 还取决于所有其他粒子在该位置所产生的辐射场. 可以引入一个阵列因子 S 来给出粒子在阵列中

的极化率 α_{array} [15]

$$\alpha_{array} = \frac{\alpha}{1 - \alpha S}, \quad (1)$$

其中 α 是只存在一个粒子时的极化率. 为了使计算不失普遍性, 以下实例中的粒子都是银的椭球状粒子, 其中椭球的三个主轴半径分别为 50, 50 和 25 nm; 周围介质的折射率为 1.5, 银的介电系数来自文献 [17]. 阵列因子 S 的表达式为 [15]

$$S = \sum_j \exp(ikr_j) \left[\frac{(1 - ikr_j)(3 \cos^2 \theta_j - 1)}{r_j^3} + \frac{k^2 \sin^2 \theta_j}{r_j} \right], \quad (2)$$

式中, r_j 是以阵列中心的粒子为原点, 第 j 个粒子所在位置距离原点的距离; 而 θ_j 是位矢量 r_j 与该粒子的电偶极矩间的夹角. 严格地说, 应用 (1) 式和 (2) 式只能得到中心粒子的极化率; 但是一般实验中所使用的阵列都比较大, 当入射光照射在阵列中心时, 用中心粒子的消光截面计算的透射率与实验结果符合得很好. 因此可以通过以下公式计算阵列的吸收截面、散射截面和消光截面:

$$C_{abs} = 4\pi k \text{Im} \{ \alpha_{array} \}, \quad (3)$$

$$C_{sca} = \frac{8}{3} \pi k^4 |\alpha_{array}|^2, \quad (4)$$

$$C_{ext} = C_{sca} + C_{abs}. \quad (5)$$

图 2 分别计算了单粒子以及周期为 410, 350 和 470 nm 的方形粒子阵列的消光截面. 本文中并不考虑阵列行数和列数不相同的情况, 文中所有例子的阵列大小都是 401×401 .

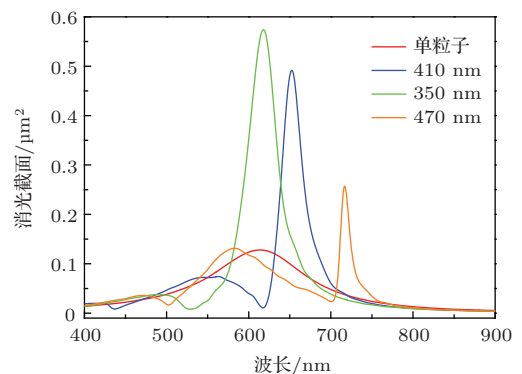


图 2 (网刊彩色) 不同周期的方形阵列所产生的阵列共振与单粒子共振的对比

Fig. 2. (color online) The lattice resonance of square array with different period and the resonance of an isolated particle.

由图 2 可以看到, 单粒子所产生的局域表面等离子体共振的峰值在 615 nm, 由于介质的折射率

为1.5, 所对应的阵列周期正好为410 nm. 图中三种不同周期的阵列都形成了共振结构, 且比单粒子共振具有更窄的线宽和更大的共振强度. 从图中还可以看到, 对应正好匹配的周期阵列(410 nm)并不具有最大的消光截面, 因为周期更小的阵列在单位面积内具有更多的粒子, 它的消光截面也更大.

3 阵列共振的偏振特性

方形阵列作为矩形阵列的一种特殊情况, 具有更好的对称性, 通过简单的分析就可以发现方形阵列在一定条件下是偏振无关的.

在方形阵列中, 对应任意一个粒子 $P(i, j)$, 都可以找到如图3中所示的另外三个粒子, 它们到中心粒子的距离相同, 且相邻两个粒子间的位矢量相互垂直. 对于任意偏振方向的入射光, 都有下面等式成立:

$$\theta_1 + \theta_3 = \pi, \quad \theta_2 + \theta_4 = \pi. \quad (6)$$

结合(2)和(6)式, 可以发现仅考虑这样4个粒子时, 阵列因子中 θ_j 可以完全消去, 因此整个方形阵列的共振与入射光的偏振方向是无关的; 但是该偏振无关特性的前提是必须有 $n_x = n_y$. 但在实际应用中, 对于大型的阵列, 当 $|n_x - n_y| \ll \min\{n_x, n_y\}$ 时, 就可以认为该共振是偏振无关的. 这一特性在其他对称性好的阵列中, 比如六边形和蜂窝状阵列也是成立的.

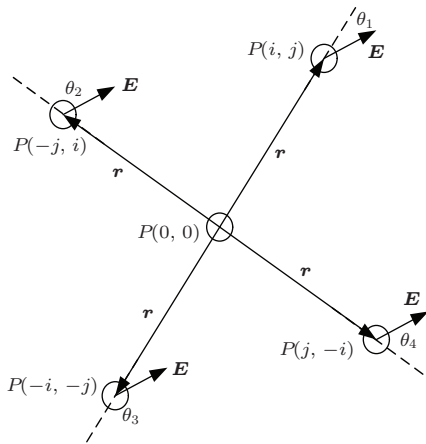


图3 方形阵列的偏振无关特性

Fig. 3. The polarization independent characteristics of the square lattice.

由(1)式和图4可见, 阵列的共振峰出现在 $|1 - \alpha S|$ 的极小值位置, 而 $|1 - \alpha S|$ 的极大值对应

了消光截面的极小值. 通常情况下, 共振峰位置受到粒子和阵列的参数共同影响, 改变任何一个参数都会使共振峰位置发生改变.

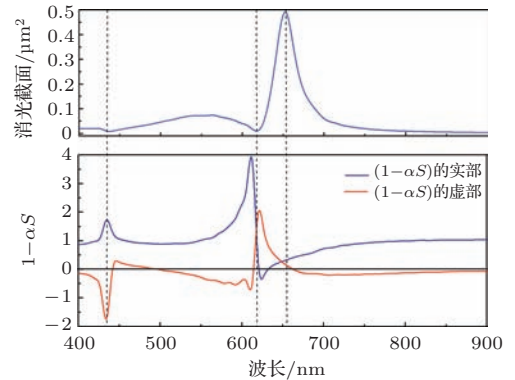


图4 (网刊彩色) 周期410 nm的方形阵列共振的位置与阵列因子、单粒子极化率之间的关系

Fig. 4. (color online) The relation between the resonance and the particle-polarizability and the array factor.

接下来考虑矩形阵列, 一般情况下它的阵列因子 S 是偏振相关的, 因此它的共振特性也是偏振相关的. 首先考虑 $dx = 410$ nm, $dy = 320$ nm 的矩形阵列(见图5). 通过计算可以发现, 当入射光的偏振角度 θ_p 从 0° 增加到 90° 时, 共振峰的位置从615 nm附近移动到655 nm附近, 并且除了 0° 以外, 其他偏振角度对应的曲线在615 nm位置处存在一个极小值. 同样地, 除了 90° 所对应的曲线外, 其他偏振角度在480 nm附近也存在一个极小值.

为了弄清上述现象的物理机理, 图6给出了阵列因子在几个偏振角度下的绝对值大小. 从图中可以清楚看到阵列因子在615和480 nm位置存在两个极大值, 其中615 nm等于 x 方向的周期乘以介质折射率, 而480 nm等于 y 方向的周期乘以介质折射率, 因此这两个 $|S|$ 的极值分别与 x 方向和 y 方向的耦合相关. 而这些阵列因子的极大值完全决定了消光截面的极小值的位置, 因为在这些位置有 $|S| \gg |1/\alpha|$. 由此可以得出结论: 消光截面的极小值位置完全是由阵列结构所决定的, 并且分别和矩形阵列的两个周期上的耦合相关.

从图6中还可以看到, 当入射光的偏振方向与 x 轴或 y 轴相平行时, 所对应的 $|S|$ 极大值就会消失. 这一现象也很容易从物理上进行理解, 因为振荡的电偶极子的辐射在沿着电偶极矩的方向是最弱的. 当入射光的偏振方向沿着 x 轴时, 粒子在 x

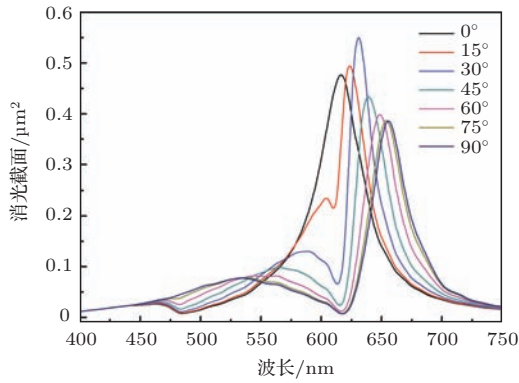


图5 (网刊彩色) $dx = 410$ nm, $dy = 320$ nm的矩形阵列在不同偏振光下的共振情况

Fig. 5. (color online) Resonance of a rectangular lattice with $dx = 410$ nm, $dy = 320$ nm under different polarization.

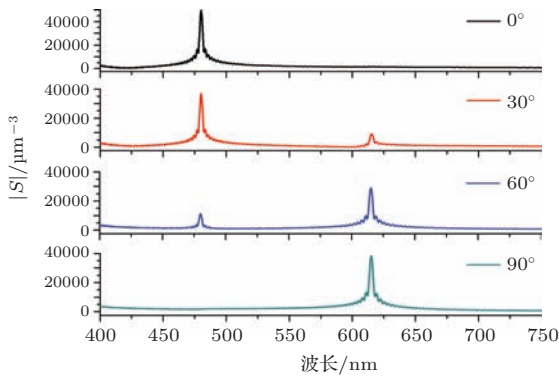


图6 (网刊彩色) 阵列因子的绝对值随着偏振光的偏振角度的变化情况

Fig. 6. (color online) The absolute value of the array factor under different polarization.

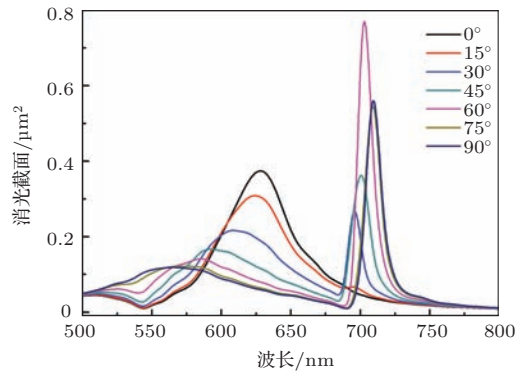


图7 (网刊彩色) $dx = 460$ nm, $dy = 360$ nm的矩形阵列在不同偏振光下的共振情况

Fig. 7. (color online) Resonance of a rectangular lattice with $dx = 460$ nm, $dy = 360$ nm under different polarization.

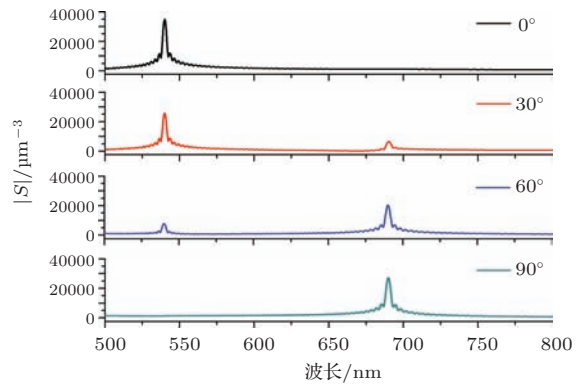


图8 (网刊彩色) 阵列因子的绝对值随着偏振光偏振角度的变化情况

Fig. 8. (color online) The absolute value of the array factor under different polarization.

方向的辐射场最弱, 因此粒子和它相邻4个粒子间的相互作用中, 沿着 x 轴方向的相互作用是最弱的, 而沿着 y 轴方向的相互作用是最强的. 所以 $\theta_p = 0$ 时, 沿着 x 方向的耦合作用可以忽略, 使得 $|S|$ 在 615 nm 处的极大值缺失了. 在这个例子中由于 615 nm 正好是单粒子的共振位置; 为了不失普遍性, 图7和图8计算了 $dx = 460$ nm, $dy = 360$ nm 的矩形阵列的消光截面和 $|S|$ 值.

之前的结论在上面这个例子中依旧成立, 由此可知, 阵列共振峰的位置必须由粒子和阵列的特性共同决定, 但是消光截面的极小值则完全由阵列决定, 并且与入射光的偏振相关. 这里需要说明的是, 本文所使用的案例中, 粒子间的相互距离都远大于粒子半径的3倍以上, 即满足“独立散射”的判断条件^[18], 当粒子间距离很近时, 必须进一步考虑粒子间的近场耦合作用.

4 结 论

本文研究了金属纳米粒子阵列的阵列共振的偏振特性, 利用单粒子的长波近似模型结合阵列因子来计算矩形阵列在不同偏振光作用下的消光截面, 并得到以下结论: 1) 行列数相同的方形阵列的共振是偏振无关的; 2) 共振峰的位置通常由粒子特性和阵列参数以及入射光的偏振方向共同决定, 但是消光截面的极小值则完全取决于阵列的结构参数, 它和沿着阵列周期方向的耦合有关; 3) 对矩形阵列而言, 它在两个周期上的耦合各自决定了自己的阵列因子极大值的位置, 但是当入射光的偏振方向与某一个周期方向平行时, 这一周期上的耦合最弱, 从而对应的极大值消失, 相应的消光截面的极小值也会消失.

参考文献

- [1] Ekmel O 2006 *Science* **311** 189
- [2] Stefan A M, Harry A A 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 011101
- [3] Katherine A W, Richard V D 2007 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **58** 267
- [4] Xu D, Wang X Y, Huang Y G, Ouyang S L, He H L, He H 2015 *Chin. Phys. B* **24** 024205
- [5] Huang Q, Zhang X D, Zhang H, Xiong S Z, Geng W D, Geng X H, Zhao Y 2010 *Chin. Phys. B* **19** 047304
- [6] 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]
- [7] Stefan A M, Mark L B, Pieter G K, Sheffer M, Ari A G R, Harry A A 2001 *Adv. Mater.* **13** 1501
- [8] Huang Q, Xiong S Z, Zhao Y, Zhang X D 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 157801 (in Chinese) [黄茜, 熊绍珍, 赵颖, 张晓丹 2012 物理学报 **61** 157801]
- [9] Huang Q, Cao L R, Sun J, Zhang X D, Geng W D, Xiong S Z, Zhao Y, Wang J 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1980 (in Chinese) [黄茜, 曹丽冉, 孙建, 张晓丹, 耿卫东, 熊绍珍, 赵颖, 王京 2009 物理学报 **58** 1980]
- [10] Eleonora P, Ulrich J K 2011 *Anal. Chim. Acta* **706** 8
- [11] Craig F B, Donald R H 1998 *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (New York: John Wiley & Sons) p136
- [12] Alexander M 2009 *JOSA B* **26** 517
- [13] García de Abajo F J 2007 *Rev. Mod. Phys.* **79** 1267
- [14] Kravets V G, Schedin F, Grigorenko A N 2008 *Phys. Rev. Lett.* **22** 087403
- [15] Rodriguez S, Schaafsma M, Berrier A, Rivas J G 2012 *Physica B* **407** 4081
- [16] Väkeväinen A I, Moerland R J, Rekola H T, Eskelinen A P, Martikainen J P, Kim D H, Törmä P 2014 *Nano Lett.* **14** 1721
- [17] Palik E D 1985 *Handbook of Optical Constants of Solids* (New York: Academic Press) p275
- [18] Hulst H C 1981 *Light Scattering by Small Particles* (New York: Dover Publications Inc.) p4

Polarization characteristics of the lattice resonance of metal nanoparticle array*

Yin Cheng^{1)†} Xu Tian²⁾ Chen Bing-Yan¹⁾ Han Qing-Bang¹⁾

1) (Jiangsu Key Laboratory of Power Transmission and Distribution Equipment Technology, Hohai University, Changzhou 213022, China)

2) (Physics Department, Nantong University, Nantong 226007, China)

(Received 28 January 2015; revised manuscript received 9 March 2015)

Abstract

A special lattice resonance can be observed when the array period of a metal nanoparticle array matches the resonant wavelength of the localized plasmon resonance of an isolated particle. The lattice resonance is sharper and its linewidth is narrower than the localized plasmonics resonance of a single particle. According to the modified long wavelength approximation approach, we discuss the extinction cross-section of the rectangular array in terms of the array factor and the particle polarizability. In this paper we emphasize the polarization characteristics of the regular array when the laser is incident vertically under different polarizations, and we also discuss in detail the variation of the array factor with the direction of electric dipole, and its influence on extinction cross section of the particle array. The square lattice with big size is polarization independent, while the rectangular lattice is polarization dependent. The coupling between the neighboring particle dipoles along the two lattice vectors of the regular array gives rise to a maximum value of its array factor, which determines a minimum value of the extinction cross section. When the incident light is polarized along one of the lattice vectors, the dipole coupling along that direction can be ignored since the particles are located in the far field of its neighboring particles, and the relevant peak in the array factor disappears.

Keywords: scattering, plasmonics, nanoparticles

PACS: 42.25.Fx, 78.67.Bf

DOI: 10.7498/aps.64.164202

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11404092) and the Natural Science Foundation of Jiangsu Province, China (Grant No. SBK2014043338).

† Corresponding author. E-mail: cyin.phys@gmail.com