

旋转对称表面等离激元结构中极端局域光场的准正则模式分析

周强 林树培 张朴 陈学文

Quasinormal mode analysis of extremely localized optical field in body-of-revolution plasmonic structures

Zhou Qiang Lin Shu-Pei Zhang Pu Chen Xue-Wen

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 68, 147104 (2019) DOI: 10.7498/aps.68.20190434

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190434>

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

柱状磁光颗粒的局域表面等离激元共振及尺寸效应

Localized surface plasmon resonance and the size effects of magneto-optic rods

物理学报. 2016, 65(11): 114202 <https://doi.org/10.7498/aps.65.114202>

介电常数近零模式与表面等离激元模式耦合实现宽带光吸收

Broadband absorption caused by coupling of epsilon-near-zero mode with plasmon mode

物理学报. 2018, 67(20): 207301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181106>

基于塔姆激元-表面等离极化激元混合模式的单缝加凹槽纳米结构的增强透射

Enhanced optical transmission by exciting hybrid states of Tamm and surface plasmon polaritons in single slit with multi-pair groove nanostructure

物理学报. 2018, 67(10): 107104 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180117>

金属-光折变材料复合全息结构对表面等离激元的波前调控

Surface plasmon polaritons' propagation controlled by metal-photorefractive material composite holographical structure

物理学报. 2019, 68(6): 067101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181664>

阿基米德螺旋微纳结构中的表面等离激元聚焦

Focusing surface plasmon polaritons in archimedes' spiral nanostructure

物理学报. 2015, 64(19): 194201 <https://doi.org/10.7498/aps.64.194201>

一维原子链局域等离激元的非线性激发

Nonlinear excitation of localized plasmon in one-dimensional atomic chain

物理学报. 2016, 65(8): 087301 <https://doi.org/10.7498/aps.65.087301>

专题： 等离激元增强光与物质相互作用

旋转对称表面等离激元结构中极端局域光场的准正则模式分析*

周强 林树培 张朴[†] 陈学文[‡]

(华中科技大学物理学院, 武汉 430074)

(2019年3月27日收到; 2019年4月25日收到修改稿)

金属微纳结构中表面等离激元能够将自由空间光场局域到亚波长甚至纳米尺度, 增强光与物质相互作用等各种物理过程, 为等离激元光学在诸多领域带来诱人的应用. 然而, 目前对表面等离激元光学模场的局域性定量描述仍主要基于直观的空间几何尺寸确定的模式体积, 并常被用于刻画模场与物质相互作用的强度. 本文基于准正则模理论发展了表征表面等离激元结构中光场局域的理论描述方法, 并针对两类典型结构的表面等离激元共振进行了系统的模式分析. 结果显示表面等离激元共振可由多个本征模式构成, 观察到的光场局域是所有模式共同作用的结果, 只有当共振对应单一模式时可以用该本征模式的模式体积描述光场局域. 最后, 基于上述结果, 本文探讨了极端局域光场和近来出现的“皮米腔”的光场局域本质.

关键词: 光场局域, 表面等离激元, 准正则模式分析, 旋转对称体

PACS: 71.45.Gm, 78.20.Bh, 02.70.Dh, 42.60.Da

DOI: 10.7498/aps.68.20190434

1 引言

光场局域^[1-3]是微纳光学研究的中心议题之一. 基于金属微纳结构的表面等离激元共振效应^[3,4], 光场可以被局域在远小于波长的空间尺度范围内^[5-7], 这种局域光场被称为热点^[8]. 光场局域效应可增强光与物质相互作用, 基于此, 近20—30年来等离激元光学发展出了众多的应用领域, 包括亚波长集成光学器件^[9]、表面增强拉曼散射光谱^[8,10,11]、超分辨传感或成像^[12-14]、癌症治疗^[15,16]和光镊^[17,18]等. 此外, 表面等离激元结构另一个备受关注的效应是它可以灵活调控附近纳米量子辐射体的发光特性, 包括加快辐射速率和改变光子统计特性等^[19]. 耦合强度是研究它们相互作用的关键物理量, 不同

的耦合强度将导致系统具有完全不同的动力学演化过程. 弱耦合时表面等离激元通过 Purcell 效应增强纳米发光体辐射; 强耦合时光与物质形成不可区分的混合体系, 发生 Rabi 振荡等现象^[20-22]. 目前, 人们通常将一个表面等离激元共振等同视作单模纳米谐振腔, 用唯像定义的光场局域体积近似模式体积, 进而获得耦合强度^[23-25]. 这种近似处理方法虽然在应用于不少经典表面等离激元结构时足够准确, 对于一般性更复杂的微纳结构则可能导致不可忽视的误差和错误的结论^[26,27]. 例如最近的研究报道, 表面等离激元结构表面的原子凸起附近会产生极端局域的热点^[5], 作者从单模谐振腔假设出发推算出热点附近可见光光场局域体积似乎达到 1 nm^3 以下(皮米腔), 然而皮米尺度光场局域现象的来源、本质和它所蕴含的物理还有待澄清. 系统

* 国家自然科学基金(批准号: 11874166)和国家自然科学基金青年科学基金(批准号: 11604109)资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: puzhang0702@hust.edu.cn

[‡] 通信作者. E-mail: xuwen_chen@hust.edu.cn

性的模式分析是解决这些问题的有效途径.

根据电磁理论的麦克斯韦方程组,在一定边界条件下微纳结构支持一系列完备的本征模式^[28-31].把局域光场看作模式的叠加,光场演化及其与物质相互作用的图景将变得十分清晰.同时,模式分析的方法还能够比较自然地过渡到量子理论^[32,33].然而,一般意义上的模式分析理论仅适用于封闭无损耗的介质光学谐振腔(例如法布里-珀罗腔)等厄米系统,对应的模式称为正则模式.对于开放介质结构、表面等离子激元结构等非厄米系统,如何进行模式分析是一个有趣而困难的问题,长期以来吸引了世界各国众多研究者的关注^[29].除了微扰近似^[34]、全频率积分^[35]等间接的求解技术之外,准正则模式理论^[29]是人们为了解决该问题采用最多的一种方法.它既保留了正则模式理论的简明范式,又为表面等离子激元开放结构中局域光场的模式分析建立了较完善的理论基础.近年来,准正则模理论逐渐被普遍用于研究表面等离子激元结构的光学特性^[29],但具体到对光场局域的定量化描述还未见报道.本文以两类典型结构为例,将准正则模理论用于分析表面等离子激元结构的光场局域,并探索了光场能够局域到的极限体积.

本文首先简要回顾了准正则模理论的主要结论,发展了旋转对称体结构的快速数值求解方法,随后分析了典型表面等离子激元结构的局域准正则模式,研究了其模场空间局域的程度.在此基础上,本文还仔细研究了表面存在原子尺度特征(如凸起)的表面等离子激元结构,探讨了原子尺度特征附近极端光场局域现象的来源和本质问题.

2 理论和数值方法

2.1 准正则模理论及在旋转对称体的应用

本文对表面等离子激元结构光场局域性质的分析主要基于准正则模理论,本节首先简要介绍准正则模理论框架,并发展了一套适用于处理大尺寸旋转对称微纳结构的数值求解方法.

从直观理解来看,准正则模与正则模式类似,都是所研究结构在无外界激励情况下支持的本征光场模式.数学上可以表示为 $[\mathbf{E}(\mathbf{r}), \mathbf{H}(\mathbf{r})] \exp(-i\tilde{\omega}t)$,满足本征值问题形式的无源麦克斯韦方程组^[29,30]:

$$\begin{bmatrix} 0 & i(\varepsilon_0\varepsilon(\mathbf{r},\tilde{\omega}))^{-1}\nabla\times \\ -i\mu_0^{-1}\nabla\times & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{E} \\ \mathbf{H} \end{bmatrix} = \tilde{\omega} \begin{bmatrix} \mathbf{E} \\ \mathbf{H} \end{bmatrix}. \quad (1)$$

对于诸如表面等离子激元结构的开放式有损耗系统,求解该本征值问题时电磁场需要满足索末菲辐射边界条件并且相对介电常数 ε 不再是实数,因此本征值问题(1)式所描述的是非厄米系统,对应的本征值也必然是复数频率.金属等色散材料的介电常数一般来自实验测量及数值拟合,只在实频率有定义,现在需要将相对介电常数函数解析延拓至复频率域,也即式中的 $\varepsilon(\mathbf{r},\tilde{\omega})$.可以看出准正则模与正则模式最大的不同是其本征频率为复数: $\tilde{\omega} = \omega_0 - i\gamma$,其中虚部 γ 为模式的衰减速率,比率 $\omega_0/(2\gamma)$ 为模式的品质因数.

当体系无色散时, ε 与频率无关,方程(1)是常规的线性本征值问题;对于色散体系,方程(1)是非线性本征值问题.表面等离子激元结构等色散体系中准正则模式求解的困难主要来源于此.对此,文献中主要报道了如下几种解决方法^[36].对于简单几何结构(如单个纳米颗粒)体系,可以首先定义一个无色散的背景,从背景的准正则模式构建出色散体系的准正则模式^[31,37].又当体系模式构成比较简单时,可人工引入激励源,通过频域^[38]或时域^[39,40]方法将体系激发到感兴趣的准正则模式.以上两种都是间接方法,适用范围有限.为直接求解非线性本征方程(1),可考虑引入与色散相关的辅助场化为线性形式^[30,41,42],其最大的优势在于可以批量得到本征解,获得有关准正则模式分布的全局性质.本文以下内容均采用此种方法进行计算.具体而言,我们用洛伦兹-德鲁德模型 $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty \left[1 - \sum_i^N \omega_{p,i}^2 / (\omega^2 - \omega_{0,i}^2 + i\omega\gamma_i) \right]$ 描述物质色散,引入定义在色散区域内的辅助场 $\mathbf{P}_i = \omega_{0,i}^2 / (\omega^2 - \omega_{0,i}^2 + i\omega\gamma_i) \mathbf{E}$ 和 $\mathbf{J}_i = -i\omega \mathbf{E}_i$,将方程(1)化为线性形式^[30,41],最后出于数值离散与求解方便^[43]的考虑,再消去磁场 \mathbf{H} 和辅助场 \mathbf{J}_i ,导出二次本征值方程:

$$\hat{K} \begin{bmatrix} \mathbf{E} \\ \mathbf{P}_1 \\ \dots \\ \mathbf{P}_N \end{bmatrix} + \tilde{\omega} \hat{C} \begin{bmatrix} \mathbf{E} \\ \mathbf{P}_1 \\ \dots \\ \mathbf{P}_N \end{bmatrix} + \tilde{\omega}^2 \hat{M} \begin{bmatrix} \mathbf{E} \\ \mathbf{P}_1 \\ \dots \\ \mathbf{P}_N \end{bmatrix} = 0, \quad (2)$$

式中 \hat{K} , \hat{C} 和 \hat{M} 为与色散模型参数相关的矩阵或算符^[30].该方程可通过有限元等数值方法求解,但对于实际应用相关的大尺寸微纳结构,大规模三维

计算仍然是准正则模式分析的瓶颈问题.

我们注意到很多通常遇到的表面等离激元微纳结构具有旋转对称性, 利用旋转对称性可以将三维问题简化为二维, 从而大大降低计算量, 这已被广泛用于解决时域^[44]和频域^[45,46]的电磁学问题. 由于本文所关注的典型表面等离激元结构包括纳米球和旋转椭球等, 均具有旋转对称性, 基于上述准正则模理论我们发展了相应的有限元数值求解方法. 其关键一步是将待解本征值方程 (2) 转化为弱形式表述: 寻找准正则模式本征频率 $\tilde{\omega} \in \mathbb{C}$ 和本征模场 $\mathbf{W} = (\mathbf{E}, \mathbf{P}_1, \dots, \mathbf{P}_N) \in \mathcal{H}(\Omega) \times \prod_i^N \mathcal{H}(\Omega_i^d)$, 使得对任意测试函数 $\mathbf{V} = (\mathbf{V}_E, \mathbf{V}_{P_1}, \dots, \mathbf{V}_{P_N}) \in \mathcal{H}(\Omega) \times \prod_i^N \mathcal{H}(\Omega_i^d)$, 满足

$$\begin{aligned} & \tilde{\omega}^2 \left(\int_{\Omega} (\varepsilon_0 \varepsilon_{\infty} \mathbf{E}) \cdot \mathbf{V}_E 2\pi\rho d\rho dz \right. \\ & \left. + \sum_i^N \int_{\Omega_i^d} (\varepsilon_0 \varepsilon_{\infty} \mathbf{P}_i) \cdot \mathbf{V}_E 2\pi\rho d\rho dz \right) \\ & - \int_{\Omega} \left((\mu\mu_0)^{-1} \nabla_m \times \mathbf{E} \right) \cdot (\nabla_m \times \mathbf{V}_E) 2\pi\rho d\rho dz = 0, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} & \tilde{\omega}^2 \int_{\Omega_i^d} \mathbf{P}_i \cdot \mathbf{V}_P 2\pi\rho d\rho dz + \tilde{\omega} \int_{\Omega_i^d} i\gamma_i \mathbf{P}_i \cdot \mathbf{V}_{P_i} 2\pi\rho d\rho dz \\ & + \int_{\Omega_i^d} (\omega_{p,i}^2 \mathbf{E} \cdot \mathbf{V}_{P_i} - \omega_{0,i}^2 \mathbf{P}_i \cdot \mathbf{V}_{P_i}) 2\pi\rho d\rho dz = 0, \end{aligned} \quad (4)$$

上式中 $\mathcal{H}(\Omega)$ 和 $\mathcal{H}(\Omega_i^d)$ 分别为 \mathbf{E} , \mathbf{V}_E 和 \mathbf{P}_i , \mathbf{V}_{P_i} 所从属的索伯列夫空间^[47], Ω_i^d 为第 i 个洛伦兹色散项对应的色散计算区域, 而 Ω 为全部计算区域. “ $\nabla_m \times$ ” 为旋转对称体系旋度算符:

$$\begin{bmatrix} (\nabla_m \times \mathbf{A})_{\rho} \\ (\nabla_m \times \mathbf{A})_z \\ (\nabla_m \times \mathbf{A})_{\phi} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & \frac{im}{\rho} & -\partial_z \\ \partial_z & -\partial_{\rho} & 0 \\ -\frac{im}{\rho} & 0 & \frac{1}{\rho} \partial_{\rho} \rho \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{A}_{\rho} \\ \mathbf{A}_z \\ \mathbf{A}_{\phi} \end{bmatrix}, \quad (5)$$

此处 m 为方位角阶数, 在实际有限元计算时电磁场的 ρ, z 分量与 ϕ 分量需使用不同的离散基函数^[46,47], 这是方程 (3) 和 (4) 成功求解的关键.

为方便后文讨论, 我们首先将旋转对称体系准正则模式分析方法用于单个半径 $r_s = 40$ nm 的纳米球 (色散模型参见附录 A) 作为示例. 图 1 展示了旋转对称结构准正则模式分析的建模方法和计算结果. 如图 1(a) 所示, 模式求解只需考虑三维结构沿对称轴的某一剖面, 索末菲辐射边界条件由外围完美匹配层 (perfectly matched layer, PML) 替代. 设定不同的方位角阶数 m , 可解出不同系列的模式, 与米氏散射理论解析结果 (参见附录 B) 相对照, 可将每一系列模式根据极角指标 l 由低到高排列, 得到图 1(b) 所示图谱. 多数情况下, 我们考虑轴向偏振光照射旋转对称表面等离激元结构, 在轴上产生轴向偏振的强烈电场局域效应. 由于对称性

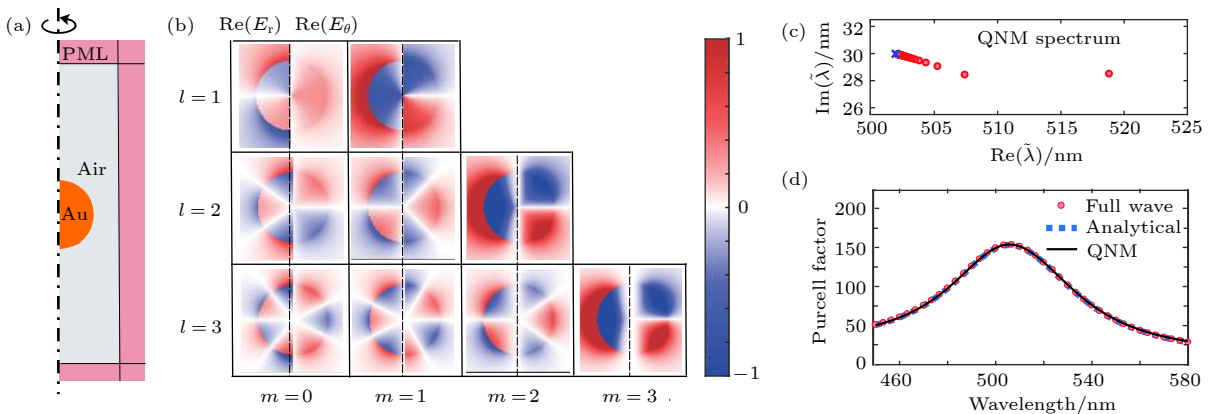


图 1 半径 40 nm 金球的准正则模式分析 (a) 旋转对称结构建模示意; (b) 按指标 l, m 排列的归一化准正则模场分布, 中心线左右两侧分别为 E_r 和 E_{θ} 的实部; (c) 准正则模式谱分布, 蓝色叉为模式聚点; (d) 用全波仿真 (full wave)、解析公式 (analytical) 和准正则模式重建 (QNM) 三种方法得到的距金纳米球表面 10 nm 处沿轴向的 Purcell 因子

Fig. 1. 2D axisymmetric quasinormal mode (QNM) analysis for a spherical gold nanoparticle with $r_s = 40$ nm: (a) Schematic of 2D axisymmetric modeling; (b) shows a table of normalized QNM profiles arranged according to indices l and m , where on the left and right side of the axis shows the real part of E_r and E_{θ} , respectively; (c) spectral distribution of QNMs with an accumulation point indicated by the blue cross; (d) at a position 10 nm away from the metal surface, Purcell factor in radial direction is calculated with full wave simulation, analytical methods and QNM reconstruction.

限制,如图 1(b) 所示,只有 $m = 0$ 的模式有非零的轴向电场,因此我们只需计算 $m = 0$ 的模式. 后文所有结果都只包括 $m = 0$ 的模式. 指标 l 相同的模式本征频率简并,本征频率分布如图 1(c) 所示. 从 519 nm 处偶极模式 ($l = 1$) 出发,随着 l 增加模式分布出现聚集效应,趋于金-空气界面表面等离激元波矢发散条件 $\varepsilon(\omega) + 1 = 0$ ^[30]. 为验证以上数值方法的正确性,我们进一步用准正则模式重建方法(参见 2.2 节)计算了距金纳米球表面 10 nm 处沿轴向的 Purcell 因子. 如图 1(d) 所示,其结果与全波模拟和解析计算(参见附录 B)结果完美符合. 这表明,我们在前人工作基础上发展的旋转对称体系准正则模式计算方法是正确有效的.

2.2 局域光场的准正则模式分析

将局域光场和相关物理量分解为准正则模式

$$\mathcal{N}_{mn} = \frac{1}{\tilde{\omega}_m - \tilde{\omega}_n} \int_{\Omega \cap \Omega_{\text{PML}}} \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{E}_m \cdot [\tilde{\omega}_m \varepsilon(\tilde{\omega}_m) - \tilde{\omega}_n \varepsilon(\tilde{\omega}_n)] \varepsilon_0 \mathbf{E}_n \\ - \mathbf{H}_m \cdot [\tilde{\omega}_m \mu(\tilde{\omega}_m) - \tilde{\omega}_n \mu(\tilde{\omega}_n)] \mu_0 \mathbf{H}_n \end{array} \right\} d^3 \mathbf{r} = 0, \quad (m \neq n), \quad (6)$$

$$\mathcal{N}_n = \int_{\Omega \cap \Omega_{\text{PML}}} \left\{ \mathbf{E}_n \cdot \frac{\partial [\omega \varepsilon(\omega)]}{\partial \omega} (\tilde{\omega}_n) \varepsilon_0 \mathbf{E}_n - \mathbf{H}_n \cdot \frac{\partial [\omega \mu(\omega)]}{\partial \omega} (\tilde{\omega}_n) \mu_0 \mathbf{H}_n \right\} d^3 \mathbf{r} = 1. \quad (7)$$

这时,准正则模式和完美匹配层模式一起组成了完备的模式集合^[30].

准正则模式正交归一化关系与正则模式理论相比有很大不同,亟需重新审视利用准正则模展开分析局域光场时这一改变所带来的影响. 人们通常假定共振对应单一模式,光场局域程度由等效模式体积刻画. 对于无损耗或低损耗的情形,一般认为模体积反映了能量空间分布的集中程度. 但对于表面等离激元结构中的光场局域,准正则模式归一化积分式(7)不具有光场能量的含义. 不过,换个角度,光场局域可以从局域光子态密度或 Purcell 因子的空间分布来理解. 空间 \mathbf{r} 处 \mathbf{u} 方向局域光子态密度由电磁场并矢格林函数的虚部确定^[34]:

$$\rho(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \omega) = \frac{6\omega}{\pi c^2} \left[\mathbf{u} \cdot \text{Im} \left\{ \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}; \omega) \right\} \cdot \mathbf{u} \right], \quad (8)$$

而 Purcell 因子 $F(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \omega) = (\pi^2 c^3 / \omega^2) \rho(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \omega)$ ^[26]. 鉴于表面等离激元共振可能由不止单一准正则模式构成(详见第 3 节),以下明确考虑多个模式叠加的情况. 利用格林函数的准正则模式展开^[26,37],可将局域光子态密度分解为各准正则模式贡献的叠加,

贡献的叠加不仅可以简化理论处理的复杂度,更重要的是可以对其中涉及的物理过程给出清晰深刻的解读. 模式展开的关键是准正则模式的正交归一性和完备性. 完全不同于正则模式,准正则模式体系的非厄米性使得准正则模的正交归一性无法直接从正则模式理论推广得到. 由于本征频率为复数 $\tilde{\omega} = \omega_0 - i\gamma$,辐射在远场具有 $\exp(i\tilde{\omega}r/c)$ 形式因子,模场将在无限远处发散. 按传统方式定义的正交归一关系必不适用,准正则模式展开的完备性也得不到保证,这些困难严重阻碍了准正则模理论的进一步应用. 直到最近,在梁培煜等^[28,48]早期开创性工作的基础上, Muljarov 等^[26,31,37], Lalanne 等^[27,30,36]和 Hughes 等^[39,49,50]较好地解决了上述问题. 其中, Lalanne 等^[27,30]提出可以将远场区域映射为完美匹配层,利用互易性定理在映射空间中建立准正则模式的正交归一关系:

$$\rho(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \omega) = \sum_k \rho_k(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \omega) = \sum_k \frac{3}{\pi} \text{Im} \left\{ \frac{1}{V_k(\tilde{\omega}_k - \omega)} \right\}, \quad (9)$$

式中 V_k 为第 k 准正则模式的复数模体积,其定义为

$$V_k(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = \frac{\mathcal{N}_k}{2\varepsilon(\mathbf{u})\varepsilon_0(\mathbf{E}_k(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{u})^2}. \quad (10)$$

当 $\omega = \omega_{0,k} = \text{Re}(\omega_k)$ 时,第 k 准正则模式对局域光子态密度的贡献取得峰值:

$$\rho_{k,\text{max}} = \frac{3}{\pi\gamma_k} \text{Re} \left\{ \frac{1}{V_k} \right\}. \quad (11)$$

由此可见, $\text{Re}(V_k^{-1})$ 直接反映了第 k 准正则模式在实谐振频率 $\omega_{0,k}$ 处的局域光子态密度. 为直接刻画模场局域,我们将 $\tilde{V}_k(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = 1/\text{Re}(V_k(\mathbf{r}, \mathbf{u})^{-1})$ 定义为实的等效模体积. 它不仅描述了模场的空间局域性,还直接与空间 \mathbf{r} 处 \mathbf{u} 方向的局域光子态密度相关. 更小的等效模体积对应更大的场增强和局域光子态密度,也意味着与纳米发光体更强的耦合. 因此,人们一直致力于追求极端的光场局域和尽可能小的模式体积. 需要注意的是,虽然可以类似地根据局域光子态密度对任意表面等离激元共振定义“模式体积”,但共振并不等价于本征模

式,尤其在讨论光与物质相互作用时本征模式起着关键作用.下文我们仅针对在共振中起主导作用的准正则模式讨论模式体积和光场局域.

3 典型表面等离激元结构中的光场局域

利用表面等离激元效应能够实现亚波长尺度光场局域,探索光场局域的极限仍然是目前微纳光学研究热点之一^[6,7,51].二聚体(dimer)和颗粒-镜面(particle-on-mirror, PoM)结构是两类极具代表性的表面等离激元结构^[52,53].在这些结构的纳米间隙中,可以观察到几十立方纳米量级的光场局域.本节中,我们应用准正则模式理论,对一系列颗粒缝隙在1 nm及以上的旋转对称的金(色散模型参见附录A)二聚体和PoM结构进行了模式分析,包括准正则模式分布和近场Purcell因子光谱性质;针对成键偶极模式(bonding dipole plasmon, BDP)^[54],研究了该模式的模式体积演化,讨论了这两类结构中光场局域的一般演化规律.我们指出,颗粒缝隙在1 nm及以上时金属中电子的量子效应对准正则模式分析结果的影响甚微^[40],基于经典电磁理论的方法仍然准确可信^[55].而当缝隙小于0.5 nm时,量子隧穿和非局域性则可能产生显著效应^[56–58].

3.1 二聚体结构

本文考虑的二聚体结构由两个金纳米球组成,其中大球的半径保持为40 nm,小球的半径及其与大球的间距设定为一系列不同的参数,计算结果总结如图2所示.二聚体的准正则模式来自于两个纳米球的模式杂化,模式谱构成表现出与单个纳米球(参见图1(c))相似的特征.同样在502 nm附近,模式分布出现聚集效应.从聚点出发,模式向长波移动,并且分布越稀疏,最后终止于BDP模式.纳米球相互作用强度与两球间距和尺寸比例有关.相互作用越强,成键模式能量越低,红移越显著.总体而言,两球尺寸越相近,间距越小,成键模式共振波长越长.准正则模式的谱分布还体现在Purcell因子等物理量的光谱和准正则模式重构中.与光谱共振对应单一模式的“常识”不同,我们发现图2中二聚体结构Purcell光谱在500 nm附近的主共振峰由多个准正则模式构成.不过,其中BDP模式一般占有主导地位.随着两纳米球模式耦合增

强,BDP模式红移,最终形成一个单独的峰.此时,二聚体结构的光学性质才完全由单一模式,即BDP模式刻画.以下针对BDP模式定量分析它的光场空间局域.BDP模式模场局域由等效模式体积 $\tilde{V}(\mathbf{r}, \mathbf{u})$ 表征,单位矢量 \mathbf{u} 取为沿电场方向.由于等效模式体积还与空间位置相关,图2中的插图展示了间隙附近等效模式体积的空间分布,并给出了极小值.我们发现,BDP模式的等效模式体积主要取决于球间缝隙宽度.在此基础上,减小小球半径有助于进一步压缩模式体积,提高模场局域程度.本文所考察的二聚体结构中,BDP模式的最小等效模式体积可以达到 78 nm^3 .这与我们对表面等离激元结构中光场局域程度的认知基本一致.

3.2 颗粒-镜面结构

颗粒-镜面PoM结构可以近似看作颗粒与其镜像构成的二聚体,此外因其结构易于实现,在表面增强拉曼散射、腔量子电动力学等实验^[5,59]中获得了广泛应用.对此类结构进行准正则模式分析有重要的实际意义.在我们的计算中,PoM的金颗粒为半长轴40 nm的旋转椭球,镜面为相同材料的无穷大半空间,椭球半短轴及与镜面的间距取不同参数.计算结果汇总见图3.鉴于PoM与二聚体结构的相似性,当椭球短长轴比例较大时,PoM的模式分布与球二聚体相似.不同之处在于:椭球拉长的形状使得其偶极模式较之球形时共振波长发生红移,模式耦合相互作用也更强烈,所以当椭球短长轴比例极小、尖端曲率极大时,总体模式分布大幅向长波移动.如图3(g)–(i)所示,当椭球短长轴比例为1:8时,BDP模式移动到了1000 nm附近,与其他模式完全分离,甚至更高阶模式也从主共振峰中劈裂出来.可以看出,不同阶准正则模之间发生耦合的相互作用强度不同,例如偶极模式比四极模式从主共振峰劈裂出去得更远;也正是耦合强度的差异决定了杂化劈裂出来的共振峰更可能只由单一准正则模式构成,这一点有助于我们判断表面等离激元结构中共振的模式构成.椭球短长轴比最小时,即使椭球离镜面较远,椭球尖端BDP模式的模场局域也很强烈.从等效模体积来看,不论是缩小颗粒与镜面的间距,还是减小颗粒的短长轴比率,都能使BDP模式的模场局域程度大大增加.在本文考察的参数范围内,可以将BDP模式的最小等效模体积压缩到 25 nm^3 .模式局域程度与几何构型密切相关,较小的模式体积往往出现在狭窄

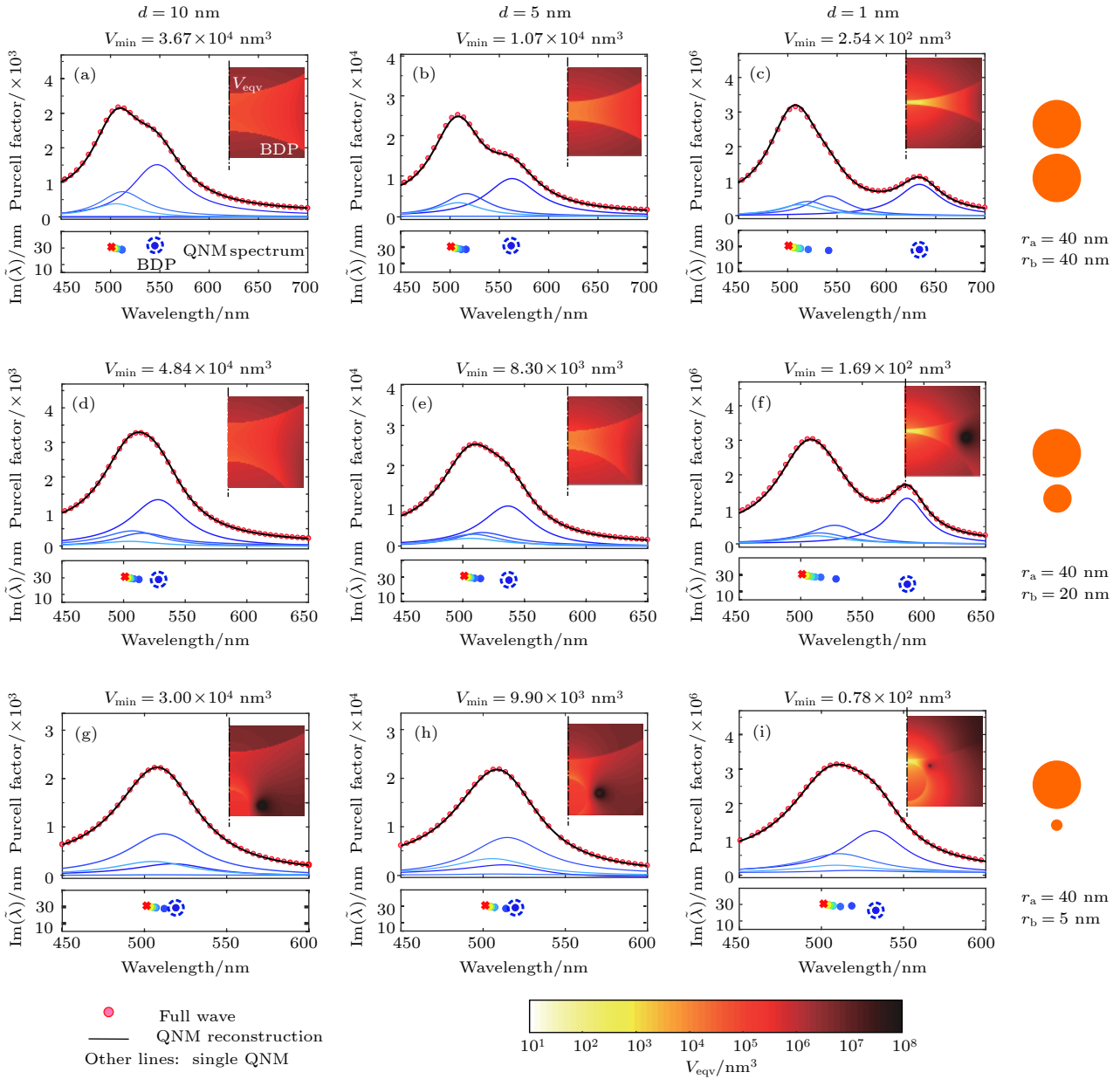


图 2 二聚体结构准正则模式及场局域分析 二聚体由 $r_a = 40$ nm 和 $r_b = 5, 20, 40$ nm 的两个金纳米球组成, 间隙宽度 $d = 1, 5, 10$ nm; 图中展示了: 准正则模式谱分布; 纳米间隙中心处轴向 Purcell 因子的准正则模式重建 (黑色实线), 红色圆圈为全波仿真结果; 纳米间隙附近 BDP 模式的等效模体积分布

Fig. 2. QNM modal analysis for dimers and the field localization of the BDP modes. The dimers consist of two spherical gold nanoparticles with $r_a = 40$ nm and $r_b = 5, 20, 40$ nm. The gap size $d = 1, 5, 10$ nm. In the figure are illustrated: the spectral distributions of the QNMs; the QNM reconstruction (black solid lines) of the Purcell factor at the gap center and in the axial direction, the full wave simulation results are indicated by red circles; the mode volume profiles of the BDP modes in the gap region.

且局部曲率较大的位置. 这为探索表面等离激元结构中光场局域的极限指明了方向.

4 “亚纳米”尺度局域光场的准正则模式分析

从前述结果可知, 表面等离激元结构中光场局域可达到 10 nm^3 量级. 近期有研究提出, 如果在

表面等离激元结构纳米间隙中存在原子凸起可以产生亚纳米尺度极端光场局域^[5,60,61], 并将其命名为“皮米腔”^[5]. 直观理解, 纳米间隙结构本身光场局域较强, 原子凸起处局部曲率极大, 因此结构中局域光场被进一步压缩符合前文从二聚体和 PoM 结果得出的规律. 不过, 该局域光场是否可以被认为是一个光学谐振腔, 其局域程度是否真正达到 1 nm^3

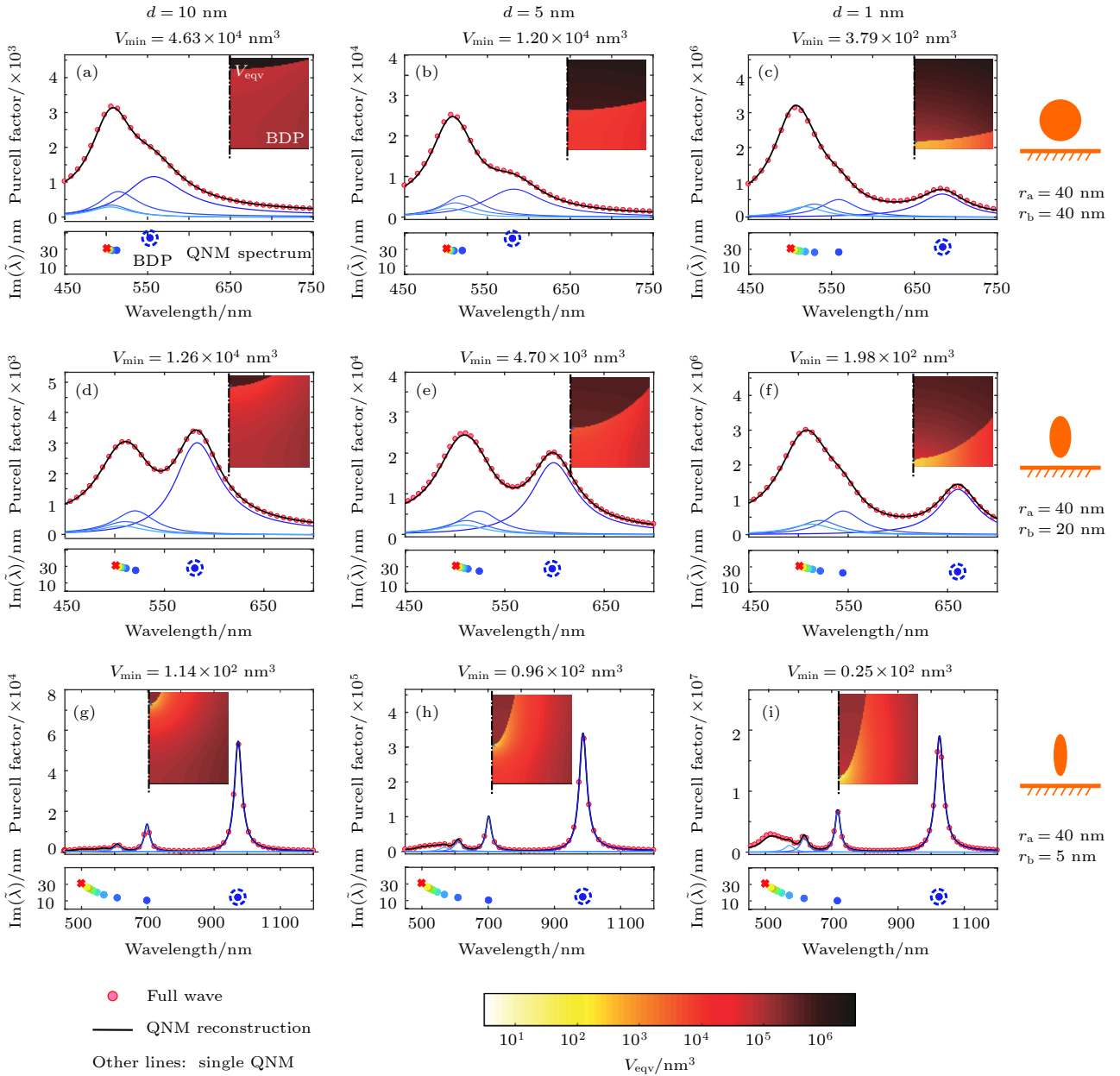


图 3 PoM 的准正则模式及场局域分析 PoM 中金颗粒为半长轴 $a = 40$ nm 的旋转椭球, 镜面为相同材料无穷大半空间, 椭球半短轴 $b = 5, 20, 40$ nm, 与镜面间距 $d = 1, 5, 10$ nm; 图中展示了: 准正则模式谱分布; 纳米间隙中心处轴向 Purcell 因子的准正则模式重建 (黑色实线), 红色圆圈为全波仿真结果; 纳米间隙附近 BDP 模式的等效模体积分布

Fig. 3. QNM modal analysis for particle-on-mirror (PoM) structures and the field localization of the BDP modes. The gold particles are ellipsoids of revolution with semi-axes $a = 40$ nm and $b = 5, 20, 40$ nm. The gap formed with gold mirrors has $d = 1, 5, 10$ nm. In the figure are illustrated: the spectral distributions of the QNMs; the QNM reconstruction (black solid lines) of the Purcell factor at the gap center and in the axial direction, the full wave simulation results are indicated by red circles; the mode volume profiles of the BDP modes in the gap region.

以下, 都需要进一步仔细的研究. 下面我们利用旋转对称体系准正则模式理论对文献 [5] 所提出的“皮米腔”结构进行模式分析.

如图 4(a) 所示, “皮米腔”结构属于 PoM 结构的一种. 其中, 颗粒为直径 80 nm 的金球, 其靠近镜面部分被切平, 切口直径 32 nm, 1.3 nm 的间隙中为相对介电常数 2.1 的介质. 间隙顶端中心处有

一高 0.3 nm 的锥形原子凸起, 锥顶曲率半径为 0.3 nm. 作为对照, 我们同时考察了图 4(a) 所示的无凸起结构. 用放置在对称轴上沿轴向偏振的偶极子从远处激励两种结构, 计算间隙中心高度处的电场增强效应, 并绘制为增强倍数对波长和径向位置的二维色图 (图 4(b)). 可以发现, 无凸起结构时, 光谱 677 nm 和 808 nm 附近有两个共振峰, 从电场符号和电荷

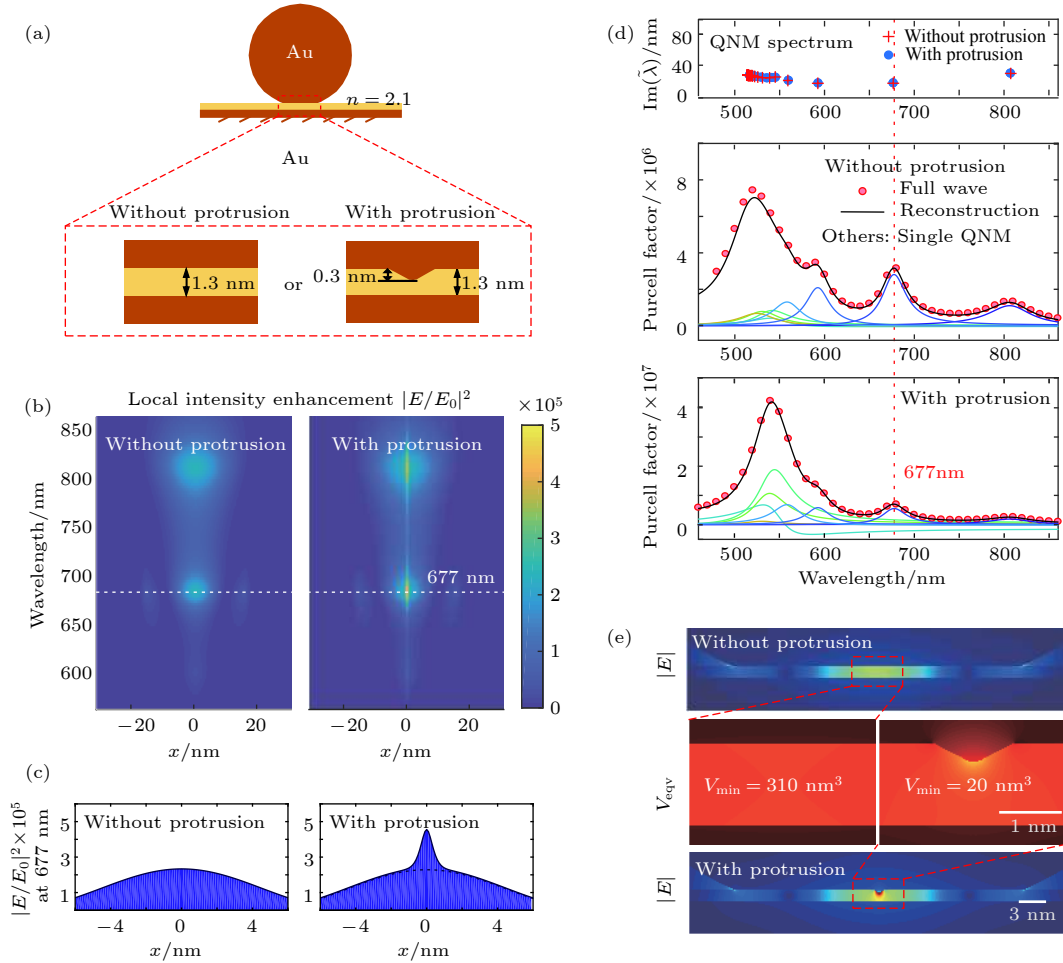


图 4 PoM 纳米间隙中原子凸起结构对光场局域的影响和准正则模式分析 (a) 存在与不存在原子凸起时的结构示意图; (b) 纳米间隙中心高度位置的局域场增强效应, 激励源为镜面上方 716 nm 处轴向偶极子; (c) BQP 谐振波长处纳米间隙中心高度的局域场增强效应; (d) PoM 结构的准正则模式谱分布以及纳米间隙中心处轴向 Purcell 因子的准正则模式重建; (e) BQP 模式的归一化模场和等效模式体积

Fig. 4. The effects of the atomistic protrusion on the field localization in the nano-gap of the particle-on-mirror (PoM) structure and the QNM modal analysis: (a) Schematic diagrams of the PoM structures with and without the atomistic protrusion; (b) the local field enhancement at the half height in the gap when excited by an axially polarized dipole 716 nm above the mirror; (c) the cross section of the local field enhancement in (b) at the resonance wavelength of the BQP mode; (d) the spectral distributions of the QNMs and the QNM reconstruction of the Purcell factor at the gap center and in the axial direction; (e) the normalized modal profile of the BQP mode and its mode volume map in the gap region.

分布来看, 分别对应无凸起 PoM 的成键四极模式 (bonding quadruple plasmon, BQP) 和 BDP 模式. 引入原子凸起后, 原有共振峰并没有发生变化, 而色图中间出现了一条宽度约 0.8 nm 的亮线 (图 4(b)). 这时, 若考察 BQP 模式中心频率处散射光场, 可以看到一个体积 1 nm^3 以下的热点 (图 4(c)). 文献 [5] 的作者将此热点视为单一模式, 在此假设基础上考察了热点光场与分子振动的耦合, 从拉曼光谱测量信息和量子光学模型推算得出, 此“模式”的模式体积在 1 nm^3 以下. 因此, 他们将此间隙中原子凸起结构称为“皮米腔”.

准正则模式分析显示, 引入原子凸起前后 PoM

准正则模式分布并未发生显著变化 (图 4(d)), 原子凸起的引入也没有导致新的准正则模式出现. 因此, 尽管模式本身发生了一定变化, 新出现的局域光场仍是原有准正则模式相互作用的结果. 从间隙中心位置轴向 Purcell 光谱 (图 4(d)) 来看, 引入原子凸起前后 BQP 模式本征频率附近都出现了分立的光谱共振峰. 然而, 从准正则模式分解来看, 两个共振峰的物理内涵却有很大不同. 无原子凸起时, 共振峰主要由 BQP 模式贡献, 对应的光场和相关物理过程可由 BQP 模式单独描述. 而引入原子凸起后, 共振峰的模式构成变得复杂. 从图 4(d) 可见, 至少有其他三个模式的 Purcell 因子和

BQP 模式可比拟, 而且其中一个模式的 Purcell 因子为负数. 因此, 原子凸起附近局域光场与分子振动的耦合实际上包含了多个本征模式的效应, 其过程不应当用单一光学模式建模分析. 进一步考察 BQP 模式的模场 (图 4(e)) 和间隙中心区域模体积分布, 我们发现原子凸起极大地改变了间隙中心区域模场, 造成了一个横向尺寸小于 1 nm 的热点. BDP 等其他准正则模式也存在类似现象. 因此, 图 4(b) 中的中心亮线是准正则模式模场局域热点的体现. 模场热点的出现, 表明模场被压缩, 模式体积相应减小. 然而, 根据图 4(e), BQP 模式的等效模体积分从 310 nm³ 压缩到 20 nm³, 远未达到 1 nm³ 以下的模式体积. 以上分析表明, 热点尺寸并不完全反映模式体积和模场局域程度. 从图 4(e) 还可看出, 光场在热点以外区域分布几乎不受原子凸起影响, 原子凸起对模场的压缩是有限的. 我们注意到, 文献 [60] 指出原子尺度局域热点有来自避雷针效应这一非共振现象的贡献, 区别于单纯表面等离子体共振模式, 在一定程度上与本文定性表述相似. 综上所述, 文献 [5] 提出的“皮米腔”结构并不是真正的皮米腔. 有没有可能获得以及如何获得模体积分在 1 nm³ 以下的本征模式, 仍然是有待探索的问题.

5 结论

本文基于准正则模理论完善了描述表面等离子体结构中光场局域的理论方法, 指出表面等离子体共振一般并不等同于结构的单一本征模式, 光场局域是多个本征模式叠加的结果. 对本征模式定义了等效模式体积, 用来表征其光场局域以及局域光子态密度. 对于只由单一本征模式构成的表面等离子体共振, 其场局域效应可完全由此本征模式特征所描述. 针对二聚体和颗粒-镜面两种典型表面等离子体结构, 发现利用表面等离子体效应可以将光场压缩到 100—10 nm³ 量级. 此外, 在表面等离子体结构纳米间隙内引入原子凸起, 可进一步压缩局域光场. 从局域光场热点空间分布来看, 其尺寸似乎达到了 1 nm³ 以下. 但是, 凸起附近光场热点往往仅是空间分布更广的本征模式模场的一部分, 该模式的模式体积仍停留在 10 nm³ 量级. 本文从模式分析的角度给出了正确刻画和理解表面等离子体结构中的光场局域的方法, 对于进一步探索光场

局域和光与物质耦合强度的极限具有重要的指导意义.

附录 A 金的色散模型

正文计算所用金的相对介电常数色散模型如 (A1) 式所示 [62]:

$$\epsilon_{\text{Au}}(\omega) = \epsilon_{\infty} - \frac{\omega_{\text{d}}^2}{\omega^2 + i\omega\gamma_{\text{d}}} - \Delta\epsilon \frac{\omega_{\text{p}}^2}{\omega^2 - \omega_{\text{p}}^2 + 2i\omega\delta_{\text{p}}}, \quad (\text{A1})$$

式中参数分别为: $\epsilon_{\infty} = 5.90$, $\Delta\epsilon = 1.27$, $\omega_{\text{d}} = 12.97$ PHz, $\gamma_{\text{d}} = 0.0411$ PHz, $\omega_{\text{p}} = 4.30$ PHz, $\delta_{\text{p}} = 0.374$ PHz, (A1) 式前两项为表征金属自由电子的德鲁德模型, 第三项为刻画电子带间跃迁的洛伦兹修正项.

附录 B 金属球本征模式的解析计算

球形结构的电磁场格林函数可表示为矢量球谐函数的级数展开 [63]:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) &= \hat{\mathbf{G}}_{\text{f}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) + \hat{\mathbf{G}}_{\text{s}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega), \quad (r > a) \\ \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) &= \hat{\mathbf{G}}_{\text{i}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega), \quad (r < a), \end{aligned} \quad (\text{B1})$$

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{G}}_{\text{f}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) &= \frac{\text{i}}{4\pi k} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l d_{lm} \left[\mathbf{N}_{l,-m}^{(1)}(k, \mathbf{r}) \mathbf{N}_{lm}^{(3)}(k, \mathbf{r}') \right. \\ &\quad \left. + k^2 \mathbf{M}_{l,-m}^{(1)}(k, \mathbf{r}) \mathbf{M}_{lm}^{(3)}(k, \mathbf{r}') \right], \end{aligned} \quad (\text{B2})$$

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{G}}_{\text{s}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) &= \frac{\text{i}}{4\pi k} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l d_{lm} \left[\alpha_{lm} \mathbf{N}_{l,-m}^{(3)}(k, \mathbf{r}) \mathbf{N}_{lm}^{(3)}(k, \mathbf{r}') \right. \\ &\quad \left. + \beta_{lm} k^2 \mathbf{M}_{l,-m}^{(3)}(k, \mathbf{r}) \mathbf{M}_{lm}^{(3)}(k, \mathbf{r}') \right], \end{aligned} \quad (\text{B3})$$

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{G}}_{\text{i}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) &= \frac{\text{i}}{4\pi k} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l d_{lm} \left[\lambda_{lm} \mathbf{N}_{l,-m}^{(1)}(k_1, \mathbf{r}) \mathbf{N}_{lm}^{(3)}(k, \mathbf{r}') \right. \\ &\quad \left. + \mu_{lm} k^2 \mathbf{M}_{l,-m}^{(1)}(k_1, \mathbf{r}) \mathbf{M}_{lm}^{(3)}(k, \mathbf{r}') \right], \end{aligned} \quad (\text{B4})$$

式中 $\hat{\mathbf{G}}_{\text{f}}$ 为自由空间格林函数, $\hat{\mathbf{G}}_{\text{s}}$ 为球外散射格林函数, $\hat{\mathbf{G}}_{\text{i}}$ 为球内总格林函数, 坐标系原点取球心位置; a 为球的半径, k 和 k_1 分别为球外和球内波数, $d_{lm} = \frac{2l+1}{l(l+1)} \frac{(l-|m|)!}{(l+|m|)!}$ 为与指标 l 和 m 相关的常数. 矢量球谐函数的定义为:

$$\mathbf{N}_{lm}^{(c)} = \left[\frac{l(l+1)}{r} z_l^{(c)}(kr) \hat{r} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r z_l^{(c)}(kr) \right) \left(\hat{\theta} \frac{\partial}{\partial \theta} + \hat{\phi} \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \phi} \right) \right] P_l^{|m|} e^{im\phi}, \quad (\text{B5})$$

$$\mathbf{M}_{lm}^{(c)} = z_l^{(c)}(kr) \left(\hat{\theta} \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} - \hat{\phi} \frac{\partial}{\partial \phi} \right) P_l^{|m|} e^{im\phi}, \quad (\text{B6})$$

式中 $z_l^{(c)}(kr)$ 代表球 Bessel 函数族. 当 $c = 1$ 时, $z_l^{(c)}(kr) = j_l(kr)$, 为球 Bessel 函数; 当 $c = 3$ 时, $z_l^{(c)}(kr) = h_l^{(1)}(kr)$, 为第一类球 Hankel 函数. 球壳外径向函数取为第一类球 Hankel 函数, 保证光场满足索末菲辐射边界条件. (B2)—(B4) 式中各展开系数由球壳上边界条件, 即 $\mu \mathbf{n} \times \hat{\mathbf{G}}$ 和 $\mathbf{n} \times (\nabla \times \hat{\mathbf{G}})$ 的连续性确定, 此处 \mathbf{n} 为球壳上单位法向矢量. 可以得到各系数表达式为:

$$\alpha_{lm} = -\frac{n\psi_l^{(1)}(x_1)\psi_l^{\prime(1)}(x) - \psi_l^{\prime(1)}(x_1)\psi_l^{(1)}(x)}{n\psi_l^{(1)}(x_1)\psi_l^{\prime(3)}(x) - \psi_l^{\prime(1)}(x_1)\psi_l^{(3)}(x)}, \quad (\text{B7})$$

$$\lambda_{lm} = +\frac{i}{n\psi_l^{(1)}(x_1)\psi_l^{\prime(3)}(x) - \psi_l^{\prime(1)}(x_1)\psi_l^{(3)}(x)}, \quad (\text{B8})$$

$$\beta_{lm} = -\frac{\psi_l^{(1)}(x_1)\psi_l^{\prime(1)}(x) - n\psi_l^{\prime(1)}(x_1)\psi_l^{(1)}(x)}{\psi_l^{(1)}(x_1)\psi_l^{\prime(3)}(x) - n\psi_l^{\prime(1)}(x_1)\psi_l^{(3)}(x)}, \quad (\text{B9})$$

$$\mu_{lm} = +\frac{in}{\psi_l^{(1)}(x_1)\psi_l^{\prime(3)}(x) - n\psi_l^{\prime(1)}(x_1)\psi_l^{(3)}(x)}, \quad (\text{B10})$$

式中 $x = ka$, $x_1 = k_1 a$, $n = \sqrt{\epsilon}$ 为金属折射率, $\psi_l^{(c)}(x) = xz_l^{(c)}(x)$ 为 Riccati-Bessel 函数, $\psi_l^{\prime(c)}(x)$ 为其导数. 从 (B7)—(B10) 式可见, 系数与指标 m 无关.

根据关系式 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \omega^2 \mu \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{p}_0$, 格林函数 (B1) 式表示 \mathbf{r}_0 处电偶极子 \mathbf{p}_0 所激发的电场. 当激励频率 ω 趋近级数 (B2)—(B4) 中系数 α_{lm} 和 λ_{lm} 分母零点, 两系数发散时, 电磁场被激发到由矢量球谐函数 $\mathbf{N}_{lm}^{(c)}$ 刻画电场准正则模式 (TM 模, 磁场径向分量为零), 其本征频率特征方程为

$$n\psi_l^{(1)}(x_1)\psi_l^{\prime(3)}(x) - \psi_l^{\prime(1)}(x_1)\psi_l^{(3)}(x) = 0. \quad (\text{B11})$$

同理, 当激励频率 ω 趋近系数 β_{lm} 和 μ_{lm} 分母零点时, 电磁场被激发到由矢量球谐函数 $\mathbf{M}_{lm}^{(c)}$ 刻画磁场准正则模式 (TE 模, 电场径向分量为零), 相应本征频率特征方程为

$$\psi_l^{(1)}(x_1)\psi_l^{\prime(3)}(x) - n\psi_l^{\prime(1)}(x_1)\psi_l^{(3)}(x) = 0. \quad (\text{B12})$$

由此可见, 金属球的准正则模式可以分为电场模式和磁场模式两类, 每一类模式都可通过指标 l 和 m 进行标定. 一般而言, 特征方程 (B11)—(B12) 的根 $\tilde{\omega}$ 为复数. 由于特征方程 (B11)—(B12) 与指标 m 无关, 相同 m 指标的电场模式和磁场模式本征频率简并. 对于正文所考虑的金纳米球结构, 在光频段附近, 只存在电场模式. 因此, 正文图 1(b) 所

示准正则模式谱完全由矢量球谐函数 $\mathbf{N}_{lm}^{(c)}$ 构成.

利用格林函数级数表达式 (B2)—(B4), 还可直接得到 Purcell 因子的级数展开. 与局域光子态密度类似, Purcell 因子与格林函数的虚部相关^[34],

$$F_p(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \omega) = \frac{6\pi c}{\omega} \text{Im}[\mathbf{u} \cdot \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}; \omega) \cdot \mathbf{u}]. \quad (\text{B13})$$

对于正文所计算的情形, 单位矢量 \mathbf{u} 的取向与位矢 \mathbf{r} 一致. 此时,

$$F_p = \frac{3}{2} \sum_{l=1}^{\infty} \left(\frac{l(l+1)}{k^2 r^2} \right)^2 \frac{2l+1}{l(l+1)} \times \text{Im} \left\{ i\psi_l^{(3)}(kr) \left(\psi_l^{(1)}(kr) + \alpha_l \psi_l^{(3)}(kr) \right) \right\}, \quad (\text{B14})$$

式中系数 α_{lm} 已略去下标 m , 简写作 α_l .

参考文献

- [1] Alvarez Puebla R, Liz Marzán L M, García de Abajo F J 2010 *J. Phys. Chem. Lett.* **1** 2428
- [2] Kuznetsov A I, Miroshnichenko A E, Brongersma M L, Kivshar Y S, Luk'yanchuk B 2016 *Science* **354** aag2472
- [3] Schuller J A, Barnard E S, Cai W, Jun Y C, White J S, Brongersma M L 2010 *Nat. Mater.* **9** 193
- [4] Polman A 2008 *Science* **322** 868
- [5] Benz F, Schmidt M K, Dreismann A, Chikkaraddy R, Zhang Y, Demetriadou A, Carnegie C, Ohadi H, de Nijs B, Esteban R, Aizpurua J, Baumberg J J 2016 *Science* **354** 726
- [6] Kern J, Großmann S, Tarakina N V, Hackel T, Emmerling M, Kamp M, Huang J S, Biagioni P, Prangsa J C, Hecht B 2012 *Nano Lett.* **12** 5504
- [7] Ciraci C, Hill R, Mock J, Urzhumov Y, Fernández Domínguez A, Maier S, Pendry J, Chilkoti A, Smith D 2012 *Science* **337** 1072
- [8] Wei H, Xu H 2013 *Nanoscale* **5** 10794
- [9] Oulton R F, Sorger V J, Genov D, Pile D, Zhang X 2008 *Nat. Photon.* **2** 496
- [10] Kleinman S L, Frontiera R R, Henry A I, Dieringer J A, van Duyne R P 2013 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15** 21
- [11] Kneipp K, Wang Y, Kneipp H, Perelman L T, Itzkan I, Dasari R R, Feld M S 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1667
- [12] Stranahan S M, Willets K A 2010 *Nano Lett.* **10** 3777
- [13] Willets K A, Wilson A J, Sundaresan V, Joshi P B 2017 *Chem. Rev.* **117** 7538
- [14] Chen W, Zhang S, Deng Q, Xu H 2018 *Nat. Commun.* **9** 801
- [15] Loo C, Lowery A, Halas N, West J, Drezek R 2005 *Nano Lett.* **5** 709
- [16] Huang X, Jain P K, Sayed I H E, Sayed M A E 2007 *Nanomedicine* **2** 681
- [17] Juan M L, Righini M, Quidant R 2011 *Nat. Photon.* **5** 349
- [18] Maragò O M, Jones P H, Gucciardi P G, Volpe G, Ferrari A C 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 807
- [19] Pelton M 2015 *Nat. Photon.* **9** 427
- [20] Tame M S, McEnery K R, Özdemir Ş K, Lee J, Maier S A, Kim M S 2013 *Nat. Phys.* **9** 329
- [21] Reiserer A, Rempke G 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 1379
- [22] Wen J, Wang H, Chen H, Deng S, Xu N 2018 *Chin. Phys. B* **27** 096101
- [23] Maier S A 2006 *Opt. Express* **14** 1957

- [24] Koenderink A F 2010 *Opt. Lett.* **35** 4208
- [25] Esteban R, Aizpurua J, Bryant G W 2014 *New J. Phys.* **16** 013052
- [26] Muljarov E, Langbein W 2016 *Phys. Rev. B* **94** 235438
- [27] Sauvan C, Hugonin J P, Maksymov I S, Lalanne P 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 237401
- [28] Leung P, Liu S, Young K 1994 *Phys. Rev. A* **49** 3057
- [29] Lalanne P, Yan W, Vynck K, Sauvan C, Hugonin J P 2018 *Laser Photon. Rev.* **12** 1700113
- [30] Yan W, Faggiani R, Lalanne P 2018 *Phys. Rev. B* **97** 205422
- [31] Muljarov E, Weiss T 2018 *Opt. Lett.* **43** 1978
- [32] Franke S, Hughes S, Dezfouli M K, Kristensen P T, Busch K, Knorr A, Richter M 2018 arXiv: 1808.06392
- [33] Hughes S, Richter M, Knorr A 2018 *Opt. Lett.* **43** 1834
- [34] Novotny L, Hecht B 2012 *Principles of Nano-Optics* (Cambridge: Cambridge University Press) pp350–359
- [35] Dung H T, Knöll L, Welsch D G 1998 *Phys. Rev. A* **57** 3931
- [36] Lalanne P, Yan W, Gras A, Sauvan C, Hugonin J P, Besbes M, Demésy G, Truong M, Gralak B, Zolla F 2018 arXiv: 1811.11751
- [37] Muljarov E, Langbein W 2016 *Phys. Rev. B* **93** 075417
- [38] Bai Q, Perrin M, Sauvan C, Hugonin J P, Lalanne P 2013 *Opt. Express* **21** 27371
- [39] Dezfouli M K, Hughes S 2018 *Phys. Rev. B* **97** 115302
- [40] Dezfouli M K, Tserkezis C, Mortensen N A, Hughes S 2017 *Optica* **4** 1503
- [41] Raman A, Fan S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 087401
- [42] Demésy G, Nicolet A, Gralak B, Geuzaine C, Campos C, Roman J E 2018 arXiv: 1802.02363
- [43] Tisseur F, Meerbergen K 2001 *SIAM Rev.* **43** 235
- [44] Taflov A, Hagness S C 2005 *Computational Electrodynamics: the Finite-Difference Time-Domain Method* (Norwood: Artech House) pp517–552
- [45] Oxborrow M 2007 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **55** 1209
- [46] Chinellato O, Arbenz P, Streiff M, Witzig A 2005 *Future Gener. Comput. Syst.* **21** 1263
- [47] Jin J 2014 *The Finite Element Method in Electromagnetics* (Hoboken: Wiley-IEEE Press) pp315–371
- [48] Ho K, Leung P, van Den Brink A M, Young K 1998 *Phys. Rev. E* **58** 2965
- [49] Ge R C, Kristensen P T, Young J F, Hughes S 2014 *New J. Phys.* **16** 113048
- [50] Kristensen P T, Hughes S 2013 *ACS Photon.* **1** 2
- [51] Iranzo D A, Nanot S, Dias E J, Epstein I, Peng C, Efetov D K, Lundeberg M B, Parret R, Osmond J, Hong J Y 2018 *Science* **360** 291
- [52] Amendola V, Pilot R, Frascioni M, Marago O M, Iati M A 2017 *J. Phys. Condens. Matter* **29** 203002
- [53] Baranov D G, Wersall M, Cuadra J, Antosiewicz T J, Shegai T 2017 *ACS Photon.* **5** 24
- [54] Prodan E, Radloff C, Halas N J, Nordlander P 2003 *Science* **302** 419
- [55] Urbietta M, Barbry M, Zhang Y, Koval P, Sánchez Portal D, Zabala N, Aizpurua J 2018 *ACS Nano* **12** 585
- [56] Ciraci C 2017 *Phys. Rev. B* **95** 245434
- [57] Savage K J, Hawkeye M M, Esteban R, Borisov A G, Aizpurua J, Baumberg J J 2012 *Nature* **491** 574
- [58] Esteban R, Borisov A G, Nordlander P, Aizpurua J 2012 *Nat. Commun.* **3** 825
- [59] Chikkaraddy R, de Nijs B, Benz F, Barrow S J, Scherman O A, Rosta E, Demetriadou A, Fox P, Hess O, Baumberg J J 2016 *Nature* **535** 127
- [60] Barbry M, Koval P, Marchesin F, Esteban R, Borisov A G, Aizpurua J, Sánchez Portal D 2015 *Nano Lett.* **15** 3410
- [61] Trautmann S, Aizpurua J, Götz I, Undisz A, Dellith J, Schneidewind H, Rettenmayr M, Deckert V 2017 *Nanoscale* **9** 391
- [62] Weaver J, Frederikse H 1977 *CRC Handbook of Chemistry and Physics* (Boca Raton: CRC Press) pp12–156
- [63] Bohren C F, Huffman D R 2008 *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Hoboken: John Wiley & Sons) pp82–129

SPECIAL TOPIC—Plasmon-enhanced light-matter interactions

Quasinormal mode analysis of extremely localized optical field
in body-of-revolution plasmonic structures*Zhou Qiang Lin Shu-Pei Zhang Pu[†] Chen Xue-Wen[‡]*(School of Physics and Center for Quantum Optical Science, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)*

(Received 27 March 2019; revised manuscript received 25 April 2019)

Abstract

Surface plasmons in metallic nanostructures can confine the optical field within the region of subwavelength, even nanometer scale, and thus enhance the light-matter interaction and other physical processes, which will lead the plasmon optics to possess attractive applications in many areas. However, the “mode volume” often used to characterize field confinement in plasmonic structures is only defined phenomenologically and suffers ambiguity when applied to complex structures. In this work, we develop a theoretical method to characterize the field confinement based on quasi-normal mode analysis. We recognize the fact that a plasmonic resonance may result from many eigen-modes, which together contribute to the observed field confinement. An effective mode volume is introduced for quasi-normal modes and used to characterize the field confinement when the plasmonic resonance is dominated by a single quasi-normal mode. Two typical kinds of plasmonic structures are systematically examined, and the field confinement on the order of 10 nm^3 – 100 nm^3 is confirmed. In pursuit of the ultimate field confinement, we revisit the so-called “pico-cavity” formed by an atomistic protrusion in the nano gap of the particle-on-mirror configuration. The apparent hot spot is shown to have contributions from several quasi-normal modes. The dominant one exhibits a further squeezed mode volume compared with the scenario without the protrusion, but is still well above 10 nm^3 .

Keywords: localization of optical fields, surface plasmon, quasinormal mode analysis, body of revolution**PACS:** 71.45.Gm, 78.20.Bh, 02.70.Dh, 42.60.Da**DOI:** 10.7498/aps.68.20190434

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11874166) and the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11604109).

[†] Corresponding author. E-mail: puzhang0702@hust.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: xuwen_chen@hust.edu.cn