

金属纳米颗粒双圆环阵列的表面格点共振效应*

叶高杰¹⁾ 殷澄^{1)†} 黎思瑜²⁾ 俞强^{3)4)‡} 王贤平²⁾ 吴坚⁴⁾

1) (河海大学物联网工程学院, 常州 213022)

2) (江西师范大学物理与通信电子学院, 南昌 330022)

3) (中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所创新实验室, 苏州 215123)

4) (国防科技大学前沿交叉学科学院, 长沙 410073)

(2023 年 2 月 14 日收到; 2023 年 3 月 8 日收到修改稿)

由金属纳米粒子构成的周期性规则阵列, 可以通过粒子间的耦合来激发表面格点共振效应, 从而极大压缩单粒子的局域表面等离子体共振效应的线宽. 本文将该表面格点共振效应从二维周期性结构推广到轴对称的圆环结构中, 提出了双圆环金属纳米粒子阵列结构的电磁响应模型. 在此基础上, 得到了双圆环阵列发生表面格点共振效应的条件, 并发现当阵列结构参数满足特定条件时, 该阵列的所有偶极子分量会发生集体共振效应, 从而获得极高的近场增强因子.

关键词: 表面等离激元共振, 纳米阵列, 金属纳米粒子**PACS:** 42.25.Fx, 78.67.Bf**DOI:** 10.7498/aps.72.20230199

1 引言

金属纳米颗粒特有的局域表面等离子体共振效应 (LSPR) 能将光场耦合至纳米尺度内并产生一系列新的光学现象, 是纳米光子学研究的核心问题^[1–4]. 目前, LSPR 效应已经在很多领域内获得广泛应用, 但是常规单粒子 LSPR 的产生往往受制于较低的共振品质因子, 其共振峰的宽度通常大于 80 nm, 品质因子典型值仅为 10–20 左右^[5,6]. LSPR 的低品质因子限制其在纳米电子学、生物医学成像、量子通讯和光伏等领域的进一步推广. 为了提高 LSPR 的品质因子, 研究者们尝试改变粒子的形状以及工作介质; 此类研究虽然可以在一定程度上调节 LSPR 的共振频率, 但对于品质因子的提

高, 效果并不明显^[6]. 实际上, 基于准静态的一阶近似模型而言, 共振效应的品质因子主要取决于粒子的辐射损耗和动态去极化 (dynamic depolarization) 效应, 与粒子的形状等因素无关^[7]. 如果将金属纳米粒子排成规则的周期性阵列, 则可通过不同粒子的 LSP 模式之间的耦合将整个共振峰宽度由原先的几十纳米降低为几纳米, 极大提升了共振的品质因子^[8].

这种由周期性粒子阵列所激发的共振效应, 已然成为新的研究热点, 并被称为表面格点共振效应 (SLRs)^[6,9,10]. 例如, Kataja 等^[11] 在利用磁光效应调制金属粒子阵列的等离激元响应时, 发现通过自旋-轨道耦合效应可在矩形阵列的两个方向上激发 SLRs 模式. 另外, 将金属纳米粒子阵列和介质腔相结合, 可形成金属等离激元晶体 (MPCs), 以

* 中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: B220202018)、常州市科技计划 (批准号: CJ20210130) 和冶金工业过程系统科学湖北省重点实验室 (武汉大学) 开放基金 (批准号: Y202208) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yinch@hhu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: qyu2015@sinano.ac.cn

此构造的光学传感器能够对生物分子的相互作用进行非标记、高灵敏度探测^[12,13]. 再者, 基于 SLRs 效应, 混合石墨烯和等离子体的调制器可以实现对单层石墨烯的反射率的有效调制, 调制深度高达 20%^[14]. 殷澄等^[15] 曾研究过激发场的偏振特性对金属纳米粒子二维阵列的格点共振效应的影响; 还研究了金属纳米二聚体阵列的共振效应与结构参数的关系^[16], 通过调整二聚体 (dimmer) 中粒子的相对位置, 对整个阵列的 SLRs 效应产生了巨大影响, 从而增加对 SLRs 效应的调制能力和手段.

在此基础上, 本文率先将金属纳米粒子阵列的 SLRs 效应从二维周期性结构推广至任意轴对称结构, 并详细研究了双圆环粒子阵列的共振峰窄化特性. 文中具体讨论了结构共振效应的增强因子, 通过解析方式建立了基于结构对称性的双圆环阵列的电磁响应物理模型; 详细分析阵列结构、激发外场偏振和波长等因素对 SLRs 效应和阵列近场的影响; 研究发现双圆环金属纳米粒子阵列存在部分结构共振和整体结构共振两种模式, 将后者称为完全 SLRs 效应. 研究显示具备完全 SLRs 效应的阵列结构, 增强因子高, 空间局域场强度高, 而且其空间分布不受激发外场偏振制约, 可以产生具有特定空间分布的结构光场. 综合而言, 本研究可以为自由结构光场的产生以及调控提供一条有效路径.

2 理论部分

本文所讨论的双圆环粒子阵列模型如图 1 所示, 将构成不同圆环的两组粒子分别标识为粒子 1 和粒子 2. 区分两组粒子的标准并不是粒子本身是否相同, 而是取决于它们是否具有旋转不变性. 在旋转操作中可以相互替代的粒子视为同组粒子, 不能相互替代的粒子为不同组粒子. 即使两颗粒子本身相同, 只要它们在阵列中的“周边环境”不同, 在旋转操作中不能相互替代, 也被认为是不同组粒子. 因此, 该模型最重要的特征就是旋转对称性, 并且该特性不仅体现在阵列结构上, 也体现在对外加电磁场的要求上. 由于本文的重点是理清粒子阵列的排列方式对其共振特性的影响, 因此仅考虑最简单的球形纳米粒子. 但本文提出的解析模型也可以推广至由椭圆形粒子构成的更复杂的双圆环阵列.

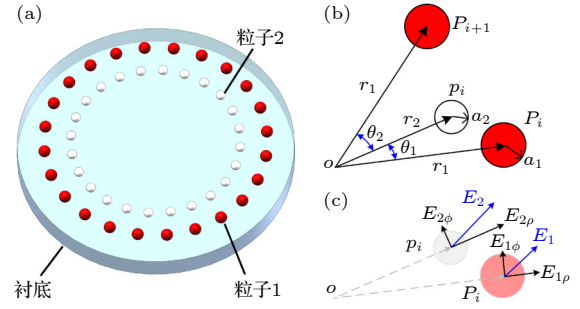


图 1 (a) 金属纳米粒子的双圆环阵列示意图; (b) 阵列结构参数图; (c) 激发场参数图

Fig. 1. (a) Schematic diagram of the double ring array of metallic nanoparticles; (b) structure diagram and the parameter definitions; (c) definition of the excitation field.

图 1(b) 给出了该粒子阵列的结构参数, 其中粒子 1 和 2 分别用符号 P_i 和 p_i 表示, 这里的下标表示该粒子在圆环中的排序. 设两个圆环的粒子数都为 N , 两组粒子的半径分别为 a_1 和 a_2 , 而粒子中心到原点的距离分别为 r_1 和 r_2 . 粒子 p_i 与相邻两颗粒子 P_i 和 P_{i+1} 之间的夹角分别为 θ_1 和 θ_2 , 因此有 $\theta_1 + \theta_2 = 2\pi/N$. 根据前文的讨论, 即使粒子 1 和 2 是同种粒子, 只要满足 $r_1 \neq r_2$ 或 $\theta_1 \neq \theta_2$ 条件之一, 则该结构都属于双圆环粒子阵列. 为了避免选取不同粒子带来的额外复杂性, 后面的案例中尽量采用相同粒子组成双圆环阵列. 图 1(c) 给出了激发双圆环粒子阵列的外场的表征方法, 不失一般性, 在柱坐标系中将外加电场分解为径向分量 E_ρ 和旋向分量 E_ϕ , 写作 $|E\rangle = [E_\rho \ E_\phi]^T$. 轴对称性要求外场的两个分量 E_ρ 和 E_ϕ 都仅是 ρ 的函数, 与 φ 角无关. 例如, $|E\rangle = [1 \ 0]^T$ 表示一个纯的径向场, 而 $|E\rangle = [0 \ 1]^T$ 表示一个旋向场. 特别要注意, $|E\rangle = [1 \ \pm i]^T$ 并不是普通的圆偏振光, 而是一个具有轴对称性的圆偏光, 其每一点光场的位相都与坐标相关. 相应地, 每一个粒子的极化分量也可分解为径向 p_ρ 和旋向 p_ϕ 两个分量. 当金属纳米粒子的尺度较小时, 可采取长波近似法 (modified long-wavelength approximation) 来讨论粒子的极化特性^[17]: 粒子的极化强度与所处的实际场成正比 $\mathbf{p} = \alpha \mathbf{E}_t$, 其中 α 为粒子的极化率

$$\alpha = 4\pi\epsilon_m a^3 \frac{\epsilon_p - \epsilon_m}{\epsilon_p + 2\epsilon_m}, \quad (1)$$

式中, ϵ_p 和 ϵ_m 分别为粒子和环境介质的介电系数. 解析双圆环粒子阵列的关键, 是认识到每个粒子所处的实际场 \mathbf{E}_t 由外加电场 \mathbf{E} 和阵列中其他粒子

的场组成, 且同组粒子所处的实际场完全相同. 为了得到解析模型, 引入阵列因子 \mathbf{S} 来描述阵列粒子的近场与极化强度之间的关系, 而阵列因子 \mathbf{S} 仅由阵列的排列方式决定. 因此, 实际场 \mathbf{E}_t 可以写为

$$|\mathbf{E}_t\rangle = |\mathbf{E}\rangle + \mathbf{S}|\mathbf{p}\rangle. \quad (2)$$

考虑到双圆环阵列结构中粒子的对称性, (2) 式可详细展开:

$$\begin{pmatrix} E_{1\rho}^t \\ E_{2\rho}^t \\ E_{1\phi}^t \\ E_{2\phi}^t \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{1\rho} \\ E_{2\rho} \\ E_{1\phi} \\ E_{2\phi} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & S_{14} \\ S_{21} & S_{22} & S_{23} & S_{24} \\ S_{31} & S_{32} & S_{33} & S_{34} \\ S_{41} & S_{42} & S_{43} & S_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} p_{1\rho} \\ p_{2\rho} \\ p_{1\phi} \\ p_{2\phi} \end{pmatrix}, \quad (3)$$

式中, \mathbf{S} 矩阵的矩阵元下标 1、2、3、4 分别对应 1ρ , 2ρ , 1ϕ , 2ϕ 各个方向 (前面的数字表示粒子的种类, ρ 和 ϕ 分别表示径向和旋向, 见图 1(c)). 因此 \mathbf{S} 矩阵中的 ij 矩阵元表征了阵列中所有第 j 方向上的极化分量在阵列中任意的一个第 i 方向上所产生的场的能力. 例如 S_{23} 表示阵列中所有粒子 1 极化的旋向分量 $p_{1\phi}$ 在任意一个粒子 2 的径向方向 2ρ 上产生的场的能力. 基于经典电磁场理论, \mathbf{S} 矩阵可以用 (4) 式计算

$$S_{jk} = \frac{1}{4\pi\epsilon_m} \sum_i \frac{e^{ik_0 \mathbf{R}_i}}{\mathbf{R}_i} \hat{\mathbf{n}}_j \cdot \left\{ \mathbf{k}_0^2 (\hat{\mathbf{n}}_i \times \hat{\mathbf{n}}_{ik}) \times \hat{\mathbf{n}}_i + [3\hat{\mathbf{n}}_i (\hat{\mathbf{n}}_i \cdot \hat{\mathbf{n}}_{ik}) - \hat{\mathbf{n}}_{ik}] \left(\frac{1}{\mathbf{R}_i^2} - \frac{i\mathbf{k}_0}{\mathbf{R}_i} \right) \right\}, \quad (4)$$

式中 \mathbf{k}_0 为波矢, \mathbf{R}_i 为被考察粒子到阵列中第 i 颗粒子所在位置的矢量, $\hat{\mathbf{n}}_i$ 为位矢 \mathbf{R}_i 方向的单位矢量, 而 $\hat{\mathbf{n}}_{ik}$ 为第 i 颗粒子的第 k 个极化分量的指向. 将 $\mathbf{p} = \alpha \mathbf{E}_t$ 代入 (3) 式可得

$$|\mathbf{E}_t\rangle = \frac{1}{1 - \alpha \mathbf{S}} |\mathbf{E}\rangle, \quad (5)$$

该式给出了每个粒子处的实际场分布, 由此可以进一步得到粒子的极化强度. 在 (5) 式中, 显然当分母 $1 - \alpha \mathbf{S}$ 所对应的行列式为 0 时, 该粒子阵列的每一个极化分量在外场激发下都达到最大, 从而激发整个阵列的共振效应.

结合 (3) 式, 可知该双层圆环阵列发生共振的条件为

$$\Delta =$$

$$\begin{vmatrix} 1 - \alpha_1 S_{11} & -\alpha_2 S_{12} & -\alpha_1 S_{13} & -\alpha_2 S_{14} \\ -\alpha_1 S_{21} & 1 - \alpha_2 S_{22} & -\alpha_1 S_{23} & -\alpha_2 S_{24} \\ -\alpha_1 S_{31} & -\alpha_2 S_{32} & 1 - \alpha_1 S_{33} & -\alpha_2 S_{34} \\ -\alpha_1 S_{41} & -\alpha_2 S_{42} & -\alpha_1 S_{43} & 1 - \alpha_2 S_{44} \end{vmatrix} = 0. \quad (6)$$

并不是任意阵列都可以满足 (6) 式, 因此阵列完全共振的激发, 需要对阵列结构参数进行综合优化. 最后, 在求得每一种粒子的全部极化分量以后, 可以进一步计算出粒子阵列后方的场分布. 至此, 推导了双圆环粒子阵列完整的解析模型.

考虑粒子阵列的共振条件 (6) 式, 即使阵列只由球形粒子构成, 还存在两种粒子的半径 a_1, a_2 、夹角 θ_1, θ_2 和两组圆环的半径 r_1, r_2 等参数, 共振条件还是比较复杂. 为了更好地理解双圆环粒子阵列在共振时各个极化分量相互之间的耦合机制, 图 2 给出了 4 种最简单的双圆环金属纳米粒子阵列结构, 即在上述三组参数中, 仅有一组参数是不相同的.

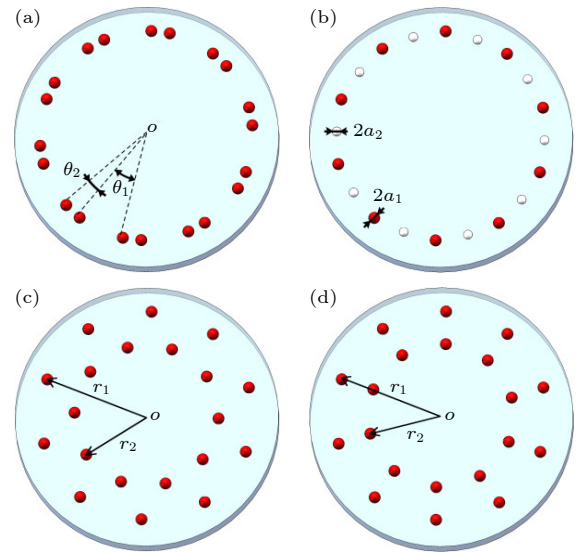


图 2 4 种特殊的双圆环金属纳米粒子阵列结构

Fig. 2. Four special arrangement of the double ring array of metallic particles.

图 2(a) 所绘的结构满足条件为 $a_1 = a_2, r_1 = r_2$ 和 $\theta_1 \neq \theta_2$, 图 2(b) 满足 $\theta_1 = \theta_2, r_1 = r_2$ 和 $a_1 \neq a_2$, 图 2(c) 和图 2(d) 则满足 $a_1 = a_2, \theta_1 = \theta_2$ 和 $r_1 \neq r_2$. 如果引入椭球形粒子或球壳结构等更加复杂的粒子结构, 可以增加对格点共振的调制手段, 但这些内容不在本文的研究范畴内, 我们仅考虑最基本的球形粒子, 而将研究重点放在阵列的排列方式上.

下面根据每一种结构的对称性来探讨对解析模型的简化.

针对图 2(a) 展示模型 1, 仔细分析可发现该模型只能简化粒子的极化率 $\alpha_1 = \alpha_2$, 外加电场 E_1 和 E_2 . 而关键的阵列因子 S 依旧是 4×4 矩阵. 针对图 2(b) 所展示的模型, 它可以看作是对单圆环粒子阵列的变形, 它的阵列因子 S 被极大简化, 自由项减少了一半.

$$S = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & S_{14} \\ S_{12} & S_{11} & S_{14} & S_{13} \\ S_{31} & S_{32} & S_{33} & S_{34} \\ S_{32} & S_{31} & S_{34} & S_{33} \end{bmatrix}. \quad (7)$$

实际上, 由于这种粒子阵列是轴对称加镜像对称的结构, 如要求外加场仅含有径向分量, 可以将阵列因子简化为 2×2 矩阵. 此时, 图 2(b) 模型中无论是粒子所处位置的实际场还是粒子的极化强度都不会含有旋向分量, 阵列因子写作

$$S = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{12} & S_{11} \end{bmatrix}. \quad (8)$$

两组粒子的极化强度可以解为

$$\begin{cases} p_{1\rho} = \frac{1/\alpha_2 - S_{11} + S_{12}}{\Delta} \alpha_1 \alpha_2 E_\rho, \\ p_{2\rho} = \frac{1/\alpha_1 - S_{11} + S_{12}}{\Delta} \alpha_1 \alpha_2 E_\rho, \end{cases} \quad (9)$$

其中,

$$\Delta = (1 - \alpha_1 S_{11})(1 - \alpha_2 S_{11}) - \alpha_1 \alpha_2 S_{12}^2, \quad (10)$$

$\Delta = 0$ 为格点共振发生的判据. 由此可清晰地推断出该情形下发生共振的物理机理. 根据文献 [6, 18], $1 - \alpha_1 S_{11} = 0$ 是只存在第一种粒子构成的圆环时发生共振的条件; 而 $1 - \alpha_2 S_{11} = 0$ 是只存在第二种粒子构成的圆环时发生共振的条件; S_{12}^2 显然是两个圆环之间的耦合项. 由此可以清楚看出, 双圆环粒子阵列的共振取决于三个因素: 两组圆环各自的共振效应和两组圆环之间的耦合效应.

图 2(c) 和图 2(d) 对应的模型虽然在结构形式上有所不同, 其数学表达式是一致的. 首先, 对于任意的激发场, 其阵列因子 S 并不能在形式上简化. 但如果考虑激发场仅有径向分量的特殊情形, 由于这两种模型兼具轴对称性和镜像对称性, 可以判定每一个粒子的极化也只存在径向分量, 因此由 (2) 式可以导出

$$\begin{bmatrix} p_{1\rho} \\ p_{2\rho} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1/\alpha - S_{11} & -S_{12} \\ -S_{21} & 1/\alpha - S_{22} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} E_{1\rho} \\ E_{2\rho} \end{bmatrix}, \quad (11)$$

解得

$$\begin{cases} p_{1\rho} = \frac{\alpha^2}{\Delta} [(1/\alpha - S_{22}) E_{1\rho} + S_{12} E_{2\rho}], \\ p_{2\rho} = \frac{\alpha^2}{\Delta} [(1/\alpha - S_{11}) E_{2\rho} + S_{21} E_{1\rho}]. \end{cases} \quad (12)$$

注意这个模型允许 $E_{1\rho} \neq E_{2\rho}$, 即两种粒子所处的径向外场可以不同. 式中, 阵列极化的共振判据是

$$\Delta = (1 - \alpha S_{11})(1 - \alpha S_{22}) - \alpha^2 S_{12} S_{21}. \quad (13)$$

(13) 式的物理机制与图 2(b) 的模型相似, 也可以解释为各圆环的独自共振效应与圆环之间相互作用共同影响的结果. 如果进一步允许图 2(c) 与图 2(d) 模型的内外层粒子为不同种类粒子, 则新阵列的共振条件为

$$\Delta = (1 - \alpha_1 S_{11})(1 - \alpha_2 S_{22}) - \alpha_1 \alpha_2 S_{12} S_{21}. \quad (14)$$

可以看出, (10) 式和 (13) 式都是 (14) 式的特例. 在径向场激发下, 兼具轴对称和镜像对称的阵列结构的阵列因子都降阶为 2×2 矩阵. 为了简便起见, 后文定义阵列的增强因子为

$$\beta = |1/\Delta|. \quad (15)$$

以上在双圆环金属粒子阵列解析模型的基础上, 针对一些特殊情况讨论了其发生格点共振的条件, 并且揭示共振的物理机制. 第 3 节将利用计算机对阵列的解析模型进行直接模拟, 更直观地揭示这一种全新结构中的格点共振效应. 所得到的仿真结果并非用数值手段获得. 值得注意, 本文所推导的解析模型可以推广到任意轴对称的粒子阵列结构, 只是阵列因子变得更加复杂而已.

3 模拟与讨论

由 (15) 式可知双圆环阵列的增强因子 β 与外加场无关, 仅取决于阵列的结构特征; 而双圆环阵列的近场分布则与外加场有关. 首先, 研究阵列的增强因子 β 与阵列结构的关系, 图 3(a) 给出基于单圆环粒子阵列构造双圆环粒子阵列的方案.

图 3(a) 中有一个由 $2N$ 个粒子构成的单环结构, 其半径为 r , 相邻粒子间的夹角为 $\theta = \pi/N$. 在此基础上, 通过保持序号为奇数的粒子不动, 将所有序号为偶数的粒子沿径向移动到半径为 $r - \Delta r$

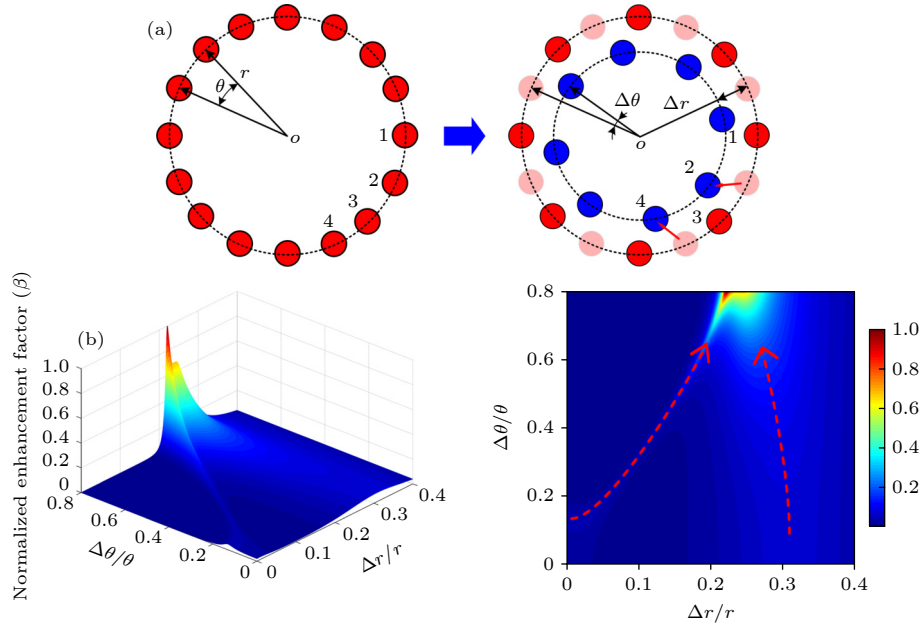


图 3 (a) 由单圆环粒子阵列构造双圆环粒子阵列; (b) 双圆环阵列的归一化增强因子随结构参数 $\Delta\theta/\theta$ 和 $\Delta r/r$ 的变化, 图中展现出两种共振结构 (用红色虚线标出) 随着 $\Delta\theta/\theta$ 变化而逐渐简并的情形. 在仿真中, 金属纳米粒子使用的是半径为 40 nm 的银球, 激发波长为 650 nm, 其他参数为 $N = 12$ 和 $r = 200$ nm

Fig. 3. (a) Transform to double ring structure from single ring array by varying two parameters $\Delta\theta/\theta$ and $\Delta r/r$; (b) normalized enhancement factor (β) as a function of the two parameters. Two resonant structures are displayed via red dashed arrows, which gradually degenerate as the $\Delta\theta/\theta$ turns large. In the calculation, the metallic particles are silver sphere of 40 nm in radius, and the incident wavelength is 650 nm, other parameters are $N = 12$ and $r = 200$ nm.

的圆周上, 构成一个新的粒子圆环; 再将新圆环顺时针旋转 $\Delta\theta$. 在图 3(a) 中移动前的粒子用淡红色表示, 移动后的粒子用蓝色表示. 因此, 新构成的双圆环粒子阵列与原阵列的差异可以用 $\Delta\theta/\theta$ 和 $\Delta r/r$ 两个参数来表征. 考虑到金属粒子存在一定实际大小, 在仿真中限定参数 $\Delta\theta/\theta$ 的变化范围在 0—0.8 之间, 并限定参数 $\Delta r/r$ 的变化范围在 0—0.4 之间. 图 3(b) 计算了该模型在 $N = 12$ 时的增强因子 β 随上述两个参数的变化. 由图 3(b) 可知, 双圆环阵列的格点共振的增强因子与结构参数之间关系密切. 当给定一个 $\Delta\theta/\theta$ 值的时候, 一般情况下存在两个共振峰 (见图 3(b) 中虚线标注的红色箭头), 它们可以理解为内外圆环各自的共振效应. 随着 $\Delta\theta/\theta$ 的值逐渐趋于 1, 即内外圆环的粒子间的距离逐渐缩短, 两个圆环之间的相互作用增强, 因此它们的共振峰也逐渐简并, 并且增加因子变大. 这里所展现的物理机制与 (14) 式类似. 由于同时存在径向和旋向的极化分量, 因此 \mathbf{S} 矩阵是 4×4 矩阵. 这里特别说明, 为了将专注点放在阵列结构对共振效应的影响上, 后文所有计算中所用的激发波长都是 650 nm, 金属纳米粒子都是半径为 40 nm 的银球, 而银的介电系数由修正的 Drude

模型给出^[19]

$$\varepsilon_{\text{Ag}} = \varepsilon_{\infty} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega}, \quad (16)$$

式中, 束缚电荷的贡献 $\varepsilon_{\infty} = 5$, 体等离子体共振频率 $\omega_p = 1.4 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$, 阻尼系数 $\Gamma = 3.2 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$.

为了更加清晰地揭示增强因子背后的物理, 考虑一些简单情形. 下面以图 2(c) 中的模型为例 (后文统称图 2(c) 结构), 其 \mathbf{S} 矩阵在径向光场的激发下可简化为 2×2 矩阵, 通过参数调节, 该结构也能表现出非常丰富的共振特性.

在图 2(c) 结构中单环粒子数为 N , 固定 r_2 的大小为 150 nm, 而改变两个圆环半径的比值 r_1/r_2 , 以此研究阵列的增强因子随粒子数 N 和双环半径比 r_1/r_2 的变化. 由图 4 可明显看出, 随着 N 的变化, 阵列的共振峰的数目也不断发生变化. 当单环粒子数为 13 和 18 时, 阵列展现了 4 个分离的共振峰. 当单环粒子数为 11、14 和 17 时, 一些共振峰之间开始简并. 特别注意, 当双环半径比在 1 和 2 之间时, 会出现比较窄的共振峰, 而双环半径比接近 1 或大于 2 时, 其共振峰的线宽都比较宽. 这可能是由于当双环半径比接近 1 时, 双圆环结构退化为单圆环结构, 而当半径比过大时, 两个圆环的

半径差异过大, 此时只有一种圆环的共振起主要作用, 圆环间的耦合较弱. 这些现象说明, 两个圆环之间的相互耦合会使得格点共振的线宽变窄.

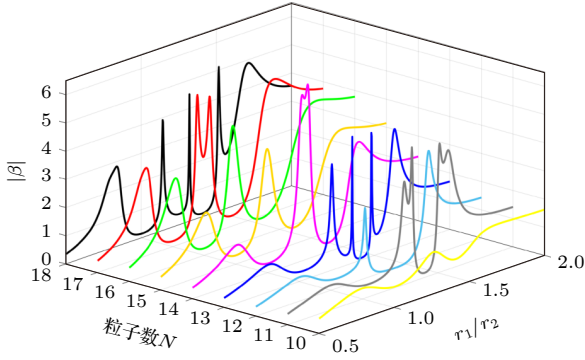


图 4 双圆环粒子阵列 (图 2(c) 结构) 的增强因子 β 随结构参数 r_1/r_2 和粒子数 N 的改变

Fig. 4. Enhancement factor β of the double ring array as shown in Fig. 2(c) as a function of the structural parameter r_1/r_2 and the particle number N of a single ring.

在图 4 的基础上, 选择单环粒子数 $N = 11, 12, 13, 14$ 四种情况来研究增强因子随激发波长的改变. 由图 5 展示的结果可知, 波长调制手段是通过改变单粒子的极化强度而影响整个阵列的增强因子, 但是对共振位置没有太大的改变. 另外, 当两个分离的共振峰的间距较小时, 随着波长改变, 两个峰可能会由于共振线宽的增加而简并在一起,

$N = 11, 14$ 的结果展现了这种情形. 从阵列结构的角度来说, 图 2(c) 结构的重要参数是两个圆环的半径比 r_1/r_2 和单环粒子数 N , 随着参数的改变, 一些结构比其他结构具有更高的增强因子, 说明这些结构更容易将激发场的能量耦合进阵列的 SLRs 模式中. 可见, 利用解析模型可以通过对结构参数的优化设计来有效地增强或抑制 SLRs 效应.

下面研究双圆环粒子阵列的近场, 虽然增强因子 β 与外激发场无关, 但阵列的近场与激发场相关, 并且随着传输距离而变化. 首先考虑在径向场激发下的简单情形, 图 6 计算了图 2(c) 和图 2(d) 两种结构的局域场分布, 并不包含激发场. 假设所有粒子所处的外场都是 $E_p = 1 \text{ V/m}$. 为使图象更加清晰明了, 设定单环粒子数仅为 6, 两个圆环的半径分别为 150 nm 和 225 nm. 虽然两种结构并不相同, 但它们的局域场展示出了一些相同特点. 首先, 图 6(a) 和图 6(e) 表现出很好的局域特性, 场强随离开阵列的距离增加指数衰减; 在紧贴粒子表面处 (图 6(b), 6(f)), 很清楚此处的场源自每一个粒子所激发出的电偶极子场, 且此时外环的近场更强, 但整个横截面上的横向能流都向阵列中心汇聚. 随着传输距离的增加为 80 nm (图 6(c), (g)), 电磁场的能量分布明显由外部转移到内部. 最终, 在传输距离到 120 nm 处 (图 6(d), (h)) 电磁场汇

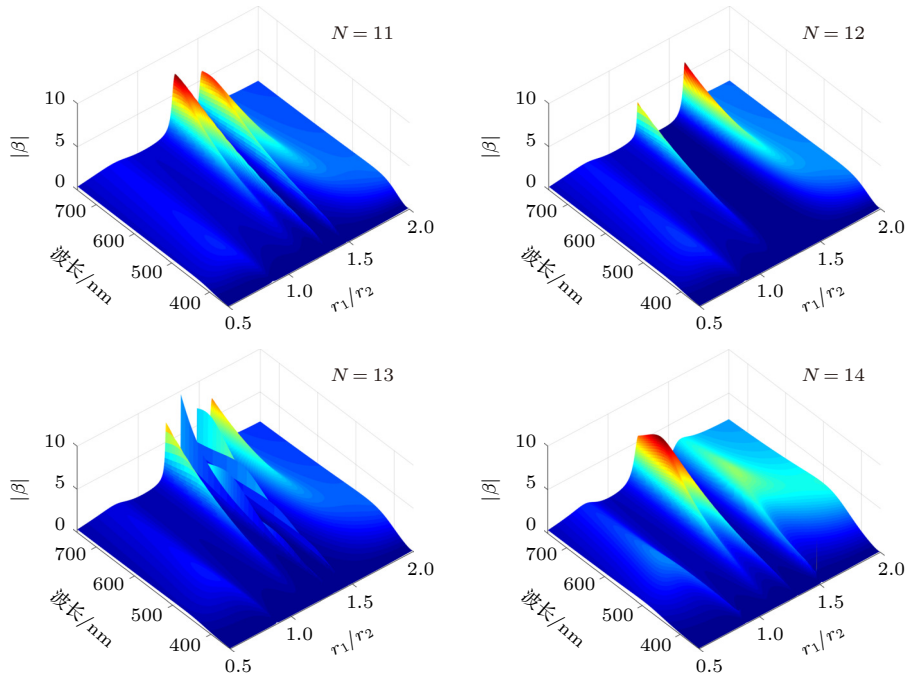


图 5 4 种基于图 2(c) 结构的双圆环阵列的增强因子 β 随结构参数 r_1/r_2 和激发波长 λ 的变化情况

Fig. 5. Enhancement factor β of the four different double ring array based on the model shown in Fig. 2(c) as a function of the structural parameter r_1/r_2 and the incident wavelength λ .

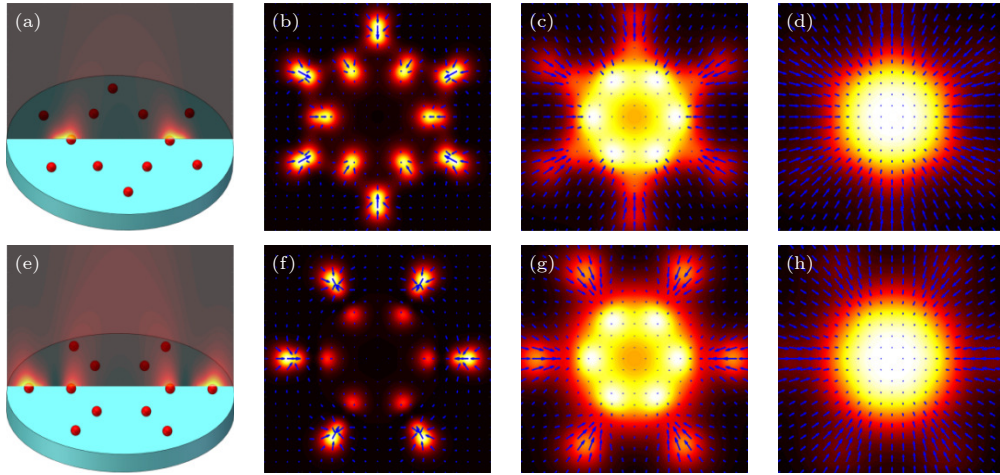


图6 两种双圆环粒子阵列结构的局域场分布 (a), (c) xz 平面上的场分布, 最大传输距离为 150 nm; (b), (f) 距离阵列 40 nm 处 xy 平面上的场分布; (c), (g) 距离阵列 80 nm 处 xy 平面上的场分布; (d), (h) 距离阵列 120 nm 处 xy 平面上的场分布. 仿真区域的边长为 600 nm, 蓝色箭头标识了横向能流的方向

Fig. 6. Radiation field of two double ring array: (a), (c) Field distribution on the xz plane, where the largest propagation distance is 150 nm; (b), (f) field distribution plot the transverse distribution on the xy plane of 40 nm away from the array; (c), (g) field distribution on the xy plane at 80 nm from the array; (d), (h) field distribution on the xy plane at 120 nm distance from the array. The simulation area is a square of 600 nm wide, and the blue arrows show the transversal energy flux.

聚成一个圆斑. 由此可知, 双圆环粒子阵列的局域场在很短距离内展现出非常精细的空间结构特性, 面对现在对各种结构光场的迫切需求, 双圆环粒子阵列显然具有很大的应用前景.

在前面的例子中, 双圆环阵列的增强因子都不大, 这是因为 $\Delta \rightarrow 0$ 的条件非常苛刻. 用图 2 所示的方法构造双圆环阵列, 假定 $N = 6$, 通过在大范围内连续调制 r_2/r_1 和 $\theta_2/(\theta_1 + \theta_2)$ 两个参数来寻找 $\Delta \rightarrow 0$ 的特殊情形. 在图 7(a) 中, 满足 $\Delta \rightarrow 0$ 条件的共振峰在由两个参数所构成的平面内仅仅表现为一个点, 而图 7(b) 表明该共振的增强因子高达 10^{10} , 并且说明 $\Delta \rightarrow 0$ 所对应的共振效应对结构参数的要求异常苛刻. 为了区分, 将满足 $\Delta \rightarrow 0$ 的共振效应称为完全的 SLRs 效应, 而将前面案例中不满足 $\Delta \rightarrow 0$ 的共振情形称为部分共振效应. 为了进行对比, 图 7(a) 中标出两组结构参数: 结构 1 所对应的参数为 $r_2/r_1 = 0.7296$ 和 $\theta_2/(\theta_1 + \theta_2) = 0.748$, 结构 2 的参数为 $r_2/r_1 = 0.78$ 和 $\theta_2/(\theta_1 + \theta_2) = 0.75$. 为了简单起见, 将结构 1 称为完全共振结构, 而结构 2 称为部分共振结构.

图 7(c) 给出了在不同偏振特性的外场激发下, 在不同的传输距离处两种结构的局域场分布和横向能流分布. 其中, 各种激发外场的表达式已经在前文给出, 且激发场的振幅均设为 1 V/m. 由图 7(c) 可见, 完全共振结构所激发场强要显著高于部分共振结构, 并且显著高于激发外场的强度. 另一个显

著特征是, 部分共振结构的局域场分布随激发外场的改变而改变, 而完全共振结构局域场的强度分布则表现出明显的相似性, 即完全共振结构局域场的分布似乎与激发外场的空间偏振特性无关. 如果仔细分析横向能流分布, 会发现完全共振结构局域场的横向能流分布与激发场的偏振特性有关. 上述现象的可能解释如下: 完全共振结构具有超高的增强因子, 其结构参数必须非常精确, 略微的偏离都会产生极大影响. 因此, 这种结构极可能对某一种特定的激发模式存在最佳的耦合效率. 改变外场的偏振分布可能导致外场中含有这种特定的激发模式的分量的变化, 但是无论分量多少, 这部分激发模式都会与共振结构发生最高效率的耦合, 所产生的局域场由于高增强因子而在整个场中占据主导作用. 这就能解释为什么完全共振结构的局域场表现出相似的特性. 外场的不同分布特性导致上述特定模式的分量不同, 最终使得具有相似结构局域场的强度不同. 基于光强传输方程, 近场的横向能流分布与其空间位相分布密切相关, 且位相分布与激发场的位相分布相关, 这解释了完全共振结构的近场横向能流表现出不同的分布特性. 基于上述论证, 我们大胆推测, 即便不采用具有轴对称特性的激发外场来照射完全共振结构, 只要激发场中含有与结构对应的特定模场的成分, 也能产生与之对应的空间光场分布. 因此, 我们可以根据解析模型设计出一些完全共振结构, 在相对简单的条件下便可激发

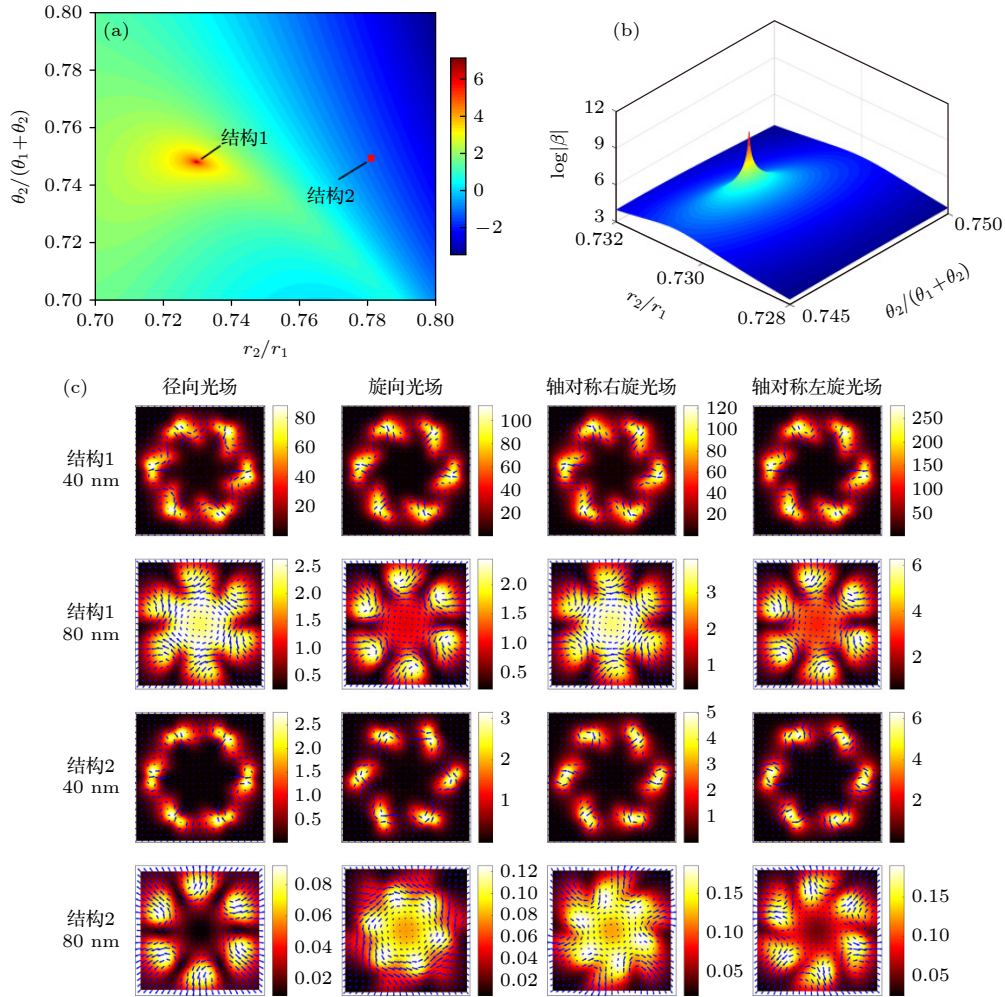


图 7 双圆环粒子阵列的共振效应 (a) 完全共振结构与作为对比的部分共振结构参数; (b) 完全共振结构的增强因子; (c) 在不同激发外场下, 两种共振结构在不同传输距离处的局域场分布与横向能流分布

Fig. 7. Resonant characteristics of the double ring particle array: (a) Structural parameters of the full resonant and partial resonant array; (b) enhancement factor of the full resonant structure; (c) radiation field of the two structures at different propagation distance under different excitation.

出固定的空间结构光场. 此外, 本文提出的模型对电磁场的响应还展现出奇异的手性^[20], 这些将在今后的研究中进行探讨.

4 结 论

本文建立了由金属纳米粒子构成的双圆环型的表面阵列结构, 作为格点共振效应的解析模型. 结合实例详细的探讨, 揭示了电磁响应与结构参数的关系; 研究其近场的空间分布与外电场的关系, 揭示了双圆环粒子结构具有丰富的空间光场调制特性. 另外, 本文的模型还可推广到具有多个圆环更复杂的阵列结构中. 特别地, 本文详细地研究了双圆环阵列的 SLRs 的增强因子, 发现完全共振结构 ($\Delta \rightarrow 0$) 对参数的要求非常严格, 其近场的强

度分布受外场的影响很小. 本文的解析模型提出了设计具备完全共振效应的金属纳米粒子双圆环阵列的方案, 可用于产生具有特定空间分布的结构光场. 本研究在功能型超表面、新型光电子器件设计、光通讯、光场调制和生物传感等领域具有一定的理论意义和实用价值.

参考文献

- [1] Wang Q, Ren Z H, Zhao W M, Wang L, Yan X, Zhu A S, Qiu F M, Zhang K K 2022 *Nanoscale* **14** 564
- [2] Philip A, Kumar A R 2022 *Coord. Chem. Rev.* **458** 214424
- [3] Dong L, Zhang C Y, Yan L, Zhang B B, Chen H, Mi X H, Fu Z K, Zhang Z L, Zheng H R 2021 *Chin. Phys. B* **30** 077301
- [4] Wu Y, Niu J, Danesh M, Liu J, Chen Y, Ke L, Qiu C, Yang H 2016 *Appl. Phys. Lett.* **109** 041106
- [5] Hutter E, Fendler J H 2004 *Adv. Mater.* **16** 1685
- [6] Kravets V G, Kabashin A V, Barnes W L, Grigorenko A N

- 2018 *Chem. Rev.* **118** 5912
- [7] Wang F, Shen Y R 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 206806
- [8] Wang L, Wang Q, Wang T Q, Zhao W M, Yin X Y, Jiang J X, Zhang S S 2022 *Nanoscale* **14** 6144
- [9] Huang X, Zhang B, Yu B, Zhang H, Shao G 2022 *Nano Technol.* **33** 225206
- [10] Hua Y, Fumani A K, Odom T W 2019 *ACS Photonics* **6** 322
- [11] Kataja M, Hakala T, Julku A, Huttunen M, van Dijken S, Törmä P 2015 *Nat. Commun.* **6** 7072
- [12] Bauer C, Kobiela G, Giessen H 2011 *Phys. Rev. B* **84** 193104
- [13] Utikal T, Zentgraf T, Paul T, Rockstuhl C, Lederer F, Lippitz M, Giessen H 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 133901
- [14] Thackray B D, Thomas P A, Auton G H, Rodriguez F J, Marshall O P, Kravets V G, Grigorenko A N 2015 *Nano Lett.* **15** 3519
- [15] Yin C, Xu T, Chen B Y, Han Q B 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 164202 (in Chinese) [殷澄, 许田, 陈秉岩, 韩庆邦 2015 物理学报 **64** 164202]
- [16] Yin C, Lu C J, Da J, Zhang R G, Kan X F, Han Q B, Xu T 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 024201 (in Chinese) [殷澄, 陆成杰, 笪婧, 张瑞耕, 阚雪芬, 韩庆邦, 许田 2021 物理学报 **70** 024201]
- [17] Alexander M 2009 *JOSA B* **26** 517
- [18] Humphrey A D, Barnes W L 2014 *Phys. Rev. B* **90** 075404
- [19] Cai W, Shalaev V 2010 *Optical Metamaterials* (New York: Springer) p22
- [20] Martin S 2017 *Chiral Nanophotonics* (Switzerland: Springer) p43

Surface lattice resonance effect of double-ring array of metallic nano-particles*

Ye Gao-Jie¹⁾ Yin Cheng^{1)†} Li Si-Yu²⁾ Yu Qiang^{3)4)‡}

Wang Xian-Ping²⁾ Wu Jian⁴⁾

1) (College of Internet of Things Engineering, Hohai University, Changzhou 213022, China)

2) (College of Physics and Communication Electronics, Jiangxi Normal University, Nanchang 330022, China)

3) (i-Lab, Suzhou Institute of Nano-Tech and Nano-Bionics, Chinese Academy of Sciences, Suzhou 215123, China)

4) (College of Advanced Interdisciplinary Studies, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China)

(Received 14 February 2023; revised manuscript received 8 March 2023)

Abstract

Surface lattice resonances due to regular periodic array of metallic nanoparticles can be attributed to the mutual coupling between the localized surface plasmon resonances of different nanoparticles. A comparison of resonant effect between the single particle and the array shows that the resonance line width can be significantly reduced. In this paper, we extend the coupled dipole approximation to solving the electromagnetic characteristics of the particle ring structures with rotational symmetry, and propose an analytical model for the double ring array of metallic nano-particles. Furthermore, we derive the general resonant condition of the double ring array and investigate some concrete cases in detail. It shows that the full resonance of the whole array depends crucially on the structural parameters, whose enhancement factor can be extremely high. But a slight change in the structural parameter will lead the enhancement factor to decrease sharply. We also find that the radiation field of the full resonance effect will be independent of the external field, which provides us a simple approach to producing a localized optical field with complex space distribution. This proposed structure can possess potential applications in various fields such as metasurface, optoelectronics, optical manipulation, communication, and biosensing.

Keywords: surface plasmon resonance, nanoarray, metal nano-particles

PACS: 42.25.Fx, 78.67.Bf

DOI: 10.7498/aps.72.20230199

* Project supported by the Fundamental Research Funds for the Central Universities of China (Grant No. B220202018), the Science and Technology Project of Changzhou, China (Grant No. CJ20210130), the Hubei Province Key Laboratory of Systems Science in Metallurgical Process, Wuhan University of Science and Technology, China (Grant No. Y202208).

† Corresponding author. E-mail: yinch@hhu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: qyu2015@sinano.ac.cn

金属纳米颗粒双圆环阵列的表面格点共振效应

叶高杰 殷澄 黎思瑜 俞强 王贤平 吴坚

Surface lattice resonance effect of double-ring array of metallic nano-particles

Ye Gao-Jie Yin Cheng Li Si-Yu Yu Qiang Wang Xian-Ping Wu Jian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 104201 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230199

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230199>

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

后退火处理对铟锡氧化物表面等离激元共振特性的影响

Effect of annealing treatment on characteristics of surface plasmon resonance for indium tin oxide

物理学报. 2018, 67(17): 177802 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180435>

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>

表面等离激元耦合体系及其光谱增强应用

Review on surface plasmonic coupling systems and their applications in spectra enhancement

物理学报. 2019, 68(14): 147304 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190782>

基于合金介电常数的可控特性增强光子自旋霍尔效应

Enhanced photonic spin Hall effect due to controllable permittivity of alloy film

物理学报. 2018, 67(6): 064201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171824>

利用数值模拟研究表面增强相干反斯托克斯拉曼散射增强基底

Numerical simulation study of surface enhancement coherent anti-Stokes Raman scattering reinforced substrate

物理学报. 2021, 70(10): 104207 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201773>