论 文

金属-电介质纳米核壳结构的零背向散射特性

李艳^{1,2}, 许坤^{1,2}, 丁佩^{1,2*}, 杜银霄^{1,2}, 陈雷明^{1,2}, 曾凡光^{1,2}, 陈卓^{3*}, 王振林³

1. 郑州航空工业管理学院理学院, 郑州 450046;

2. 河南省航空材料与应用技术重点实验室, 郑州 450046;

3. 南京大学物理学院, 南京 210093

* 联系人, 丁佩, E-mail: dingpei@zzia.edu.cn; 陈卓, E-mail: zchen@nju.edu.cn

收稿日期: 2016-11-10; 接受日期: 2017-01-05; 网络出版日期: 2017-04-13

国家自然科学基金(编号: 11404291, 61274012, 51472221)、航空科学基金(编号: 2014ZF55013, 2015ZF55013)、河南省高校科技创新人才支持计划(编号: 17HASTIT016)和河南省科技创新杰出人才(编号: 164200510006)资助项目

摘要 本文基于Mie散射理论, 设计并研究了具有高定向、可调谐零背向散射特性的“金属-低介电-高介电”纳米核壳结构. 分析了低介电层的厚度和折射率对偶极电、磁共振位置及强度的影响, 发现将偶极电和磁共振在光谱上调节到重合, 满足第一Kerker条件, 可以实现零背向散射和显著增强的前向散射. 进一步说明通过改变核壳结构的内核厚度和外半径或高介电层的折射率, 能够实现零背向散射波长的可调谐. 研究结果将对设计基于零背向散射的纳米结构和器件有重要的指导意义.

关键词 Mie散射, 零背向散射, 电磁共振, 纳米核壳结构

PACS: 73.22.Dj, 75.75.+a, 78.35.+c

1 引言

近年来, 亚波长尺寸颗粒的光散射^[1]问题再次引起人们的广泛关注, 在隐身^[2,3]、光学标记^[4]、透明显示^[5]、定向散射^[6-12]等方面都取得了丰硕的研究成果. 其中, 实现对光散射的控制, 例如压制背向散射, 提高前向散射尤其引人注目. 定向散射在纳米光学天线^[13,14]、生物传感^[15,16]、光发射装置^[17]、光伏设备^[18]等方面都具有重要的应用价值.

早在1983年, Kerker等人^[6]在研究磁性小球的光散射效应中, 提出磁性颗粒支持的电模式和磁模式通过

相互作用能够实现对光散射方向的控制, 当颗粒的相对介电常数 ϵ 和磁导率 μ 相等时, 该磁性颗粒支持的同阶电磁模式振幅相等, 相位相同, 此时背向散射为零, 即第一Kerker条件. Kerker条件是研究定向散射的重要理论指导. 然而由于自然界磁性材料的缺乏, 光学波段材料的相对磁导率均为1, 利用磁性材料构建光学波段的零背向散射几乎不可能.

最近, 随着人们对人工超材料研究的不断深入, 利用开口环^[19]、银三聚体^[20]等人工结构可以产生强的磁响应, 它和结构本身的电响应相互作用能够实现光学波段的定向散射. 但金属材料自身的欧姆损耗, 限制

引用格式: 李艳, 许坤, 丁佩, 等. 金属-电介质纳米核壳结构的零背向散射特性. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2017, 47: 084208
Li Y, Xu K, Ding P, et al. Zero-backward scattering by Metallo-Dielectric core-shell nanostructures (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2017, 47: 084208, doi: 10.1360/SSPMA2016-00485

了金属超结构在光波段的性能和应用. 近期, 理论和实验不断证明具有高介电常数(High Permittivity, HP)的介电材料在近红外和可见光范围也能激发强磁共振^[21–26], 为光学波段定向散射的实现和应用带来了新的希望. 人们利用HP材料, 通过构建偶极近似下的第一Kerker条件, 即振幅相等, 相位相同的偶极电磁Mie系数($a_1=b_1$)^[27], 实现了可见^[9,28,29]、近红外^[7]以及微波波段^[10]的零背向散射. 对于单个HP颗粒(折射率 $n\sim 3-4$), 偶极近似成立, 其他的高阶项都可以忽略($a_l=b_l=0, l>2$), 很容易构建 $a_1=b_1$. 但这时零背向散射满足的波长位置处于非共振区域, 在实现零背向的同时, 前向散射也被压制^[28,29].

为了克服这个缺陷, 最近理论上通过在HP纳米球结构中引入金属核, 形成金属-高介电(M-HP)核壳结构, 利用核壳结构显著的共振波长可调节性, 可将偶极电和磁模式的共振波长调至几乎重叠^[27]. Liu等人^[7,8]分别在2012和2014年, 利用该方法实现了高性能的定向散射. 利用M-HP柱形纳米核壳结构实现了120°和240°方向的零散射也有报道^[30]. 尽管利用M-HP的单壳层结构容易实现偶极电磁共振位置的重叠, 但同时满足共振大小也相等仍然十分困难.

为了便于将颗粒的电磁共振位置和大小调节到重叠, 实现高性能的宽带零背向散射和强的前向散射, 我们在M-HP核壳结构中引入具有低介电常数(Low Permittivity, LP)的纳米壳层, 即“金属-低介电-高介电”(M-LP-HP)核壳结构. 该结构中, 金属核支持强的电共振, HP壳层保证了偶极近似的成立, 同时支持强的磁共振, 中间的LP层在调节结构偶极电共振和磁共振位置以及大小方面具有重要作用, 可使电和磁共振模式在光谱上完全重叠, 满足偶极近似下的第一Kerker条件. 本文详细研究了改变LP壳层厚度或折射率对偶极电、磁共振强度以及位置的影响, 证明在一个合适的LP层厚度和折射率情况下可实现光谱上重叠的电模和磁模共振, 得到零背向散射和增强的前向散射. 最后进一步说明该结果具有波长可调谐性, 通过改变M-LP-HP核壳结构中金属核半径和结构外半径或改变M-LP-HP核壳结构中HP层的折射率, 能够将零背向散射调节到其他波长范围. 本文的研究结果将为实现零背向散射提供更灵活的构建方法, 在纳米激光器、光伏设备及纳米天线等方面有重要的应用价值.

2 理论基础和构建方法

2.1 球形颗粒的散射效率

图1示意了平面波照射下, 球形颗粒的光散射情况, 入射光沿 z 轴方向传播, 偏振沿 x 轴方向, 图中红色箭头代表散射光线, 位置由 θ 和 φ 唯一确定. 对于球形颗粒的光散射问题, Mie散射理论^[1]可得出解析解. 散射截面定义为颗粒在单位时间内散射的光能量与入射光强度的比值, 具有面积的量纲, 记作 C_{sca} ,

$$C_{\text{sca}} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2), \quad (1)$$

其中 k 为波矢, a_n 和 b_n 是Mie散射系数, a_n 代表电模式, b_n 代表磁模式, $n=1$ 对应于偶极子模, $n=2$ 对应于四极子模, $n=3$ 对应于八极子模, ..., 等. 散射截面与颗粒迎着入射光方向的投影面积之比定义为散射效率. 散射效率无量纲, 记作 Q_{sca}

$$Q_{\text{sca}} = C_{\text{sca}} / S, \quad (2)$$

其中 S 是颗粒迎着入射光的横截面积, 例如本文研究的外半径为 R_{out} 的球形颗粒, 横截面积 $S=\pi R_{\text{out}}^2$.

利用Mie散射理论能进一步得到单独某一阶电或磁模式对散射的贡献, 这对深入了解结构中一些物理机理和现象非常重要, 例如第 n 阶电(a_n)和磁(b_n)模式对散射效率的贡献为

图1 (网络版彩图)平面波照射下, 球形颗粒的光散射示意图, 入射光的传播方向沿 z 轴, 偏振沿 x 轴

Figure 1 (Color online) Scattering of an incident plane wave by a spherical particle. The plane wave propagates along the z direction with the polarization (electric field) along the x direction.

$$Q_{\text{sca}}(a_n) = \frac{2}{k^2 R_{\text{out}}^2} (2n+1) |a_n|^2, \quad (3)$$

$$Q_{\text{sca}}(b_n) = \frac{2}{k^2 R_{\text{out}}^2} (2n+1) |b_n|^2.$$

利用Mie散射理论还能进一步给出远场归一化散射强度的角分布($NSI(\theta)$), 能够更清楚地看出散射随角度的分布, 为了方便起见这里只考虑偶极近似成立的情况.

当入射光垂直于散射平面时

$$NSI_s(\theta) = \frac{1}{k^2} \left| \frac{3}{2} (a_1 + b_1 \cos \theta) \right|^2. \quad (4)$$

当入射光平行于散射平面时

$$NSI_p(\theta) = \frac{1}{k^2} \left| \frac{3}{2} (a_1 \cos \theta + b_1) \right|^2. \quad (5)$$

2.2 第一Kerker条件

早在1983年, Kerker等人^[6]在研究真空中磁性小球的光散射问题时就发现, 当磁性颗粒的介电常数 ϵ 和磁导率 μ 相等时($\epsilon=\mu$), Mie散射系数 a_n 和 b_n 必然满足

$$a_n = b_n, \quad (6)$$

此时背向散射效率

$$Q_b = \frac{1}{k^2 R_{\text{out}}^2} \left| \sum_n (-1)^n (2n+1) (a_n - b_n) \right|^2 = 0, \quad (7)$$

因此颗粒的相对介电常数 ϵ 和磁导率 μ 相等, 被称为零背向散射条件, 即第一Kerker条件. 当满足此条件时, 颗粒支持的所有相同阶次的电和磁模式系数相等且同相位震荡.

对于包含HP材料的颗粒, 偶极近似是成立的, Mie展开项中的偶极电模(a_1)和磁模(b_1)对散射谱起主导作用, 其他的高阶项都可以忽略($a_l=b_l=0, l \geq 2$), 此时背向散射效率可简化为

$$Q_b = \frac{9}{k^2 R_{\text{out}}^2} |a_1 - b_1|^2, \quad (8)$$

因此第一Kerker条件很容易通过构建 $a_1=b_1$ 来实现.

3 结果分析

3.1 M-HP核壳结构的散射特性

首先研究比较简单的M-HP核壳结构, 金属核选

用银(Ag), 介电常数取自Johnson和Christy^[31]的实验数据, 银核半径用 r_1 表示, 固定为75 nm. HP壳层选用硅(Si), 折射率 $n=3.4$, 外半径用 R_{out} 表示, 固定为170 nm. 图2(a)插图为该M-HP核壳结构的示意图, 图2(a)画出偶极电(红色实线)、磁(红色虚线)、四极电(蓝色实线)、磁(蓝色虚线), 以及前两阶电磁模(黑色实线)对散射效率的贡献谱. 从图2(a)可知, 在偶极电和磁共振附近(波长约处于1000–1400 nm), 四极及更高极电磁模式的贡献可忽略, 偶极近似成立. 此外, 电偶极 a_1 和磁偶极 b_1 散射谱的峰值分别位于1340和1117 nm, 两条谱线在我们关注的波长范围内仅存在一个交点(图2(a)中蓝色圈标记的位置). 从公式(3)可知, 此点处满足 $Q_{\text{sca}}(a_n) = Q_{\text{sca}}(b_n)$, 即 $|a_1|^2 = |b_1|^2$. 需要指出的是, $|a_1|^2 = |b_1|^2$ 并不意味着一定满足第一Kerker条件($a_1=b_1$), 因为还有可能是 $\text{Re}(a_1)=\text{Re}(b_1)$, $\text{Im}(a_1)=-\text{Im}(b_1)$ 的情况. 为了进一步说明该结构的背向和前向散射情

图2 (网络版彩图)M-HP核壳结构的散射特性. (a) 核壳结构总的以及前两阶电和磁模式分别对散射效率的贡献谱, 其中M-HP核壳结构示意图如插图所示, 银核半径 $r_1=75$ nm, 总外半径 $R_{\text{out}}=170$ nm; (b) 核壳结构的背向和前向散射效率谱

Figure 2 (Color online) Scattering properties of a M-HP core-shell nanoparticle. (a) Scattering efficiency spectra (both the total and the contributions from electric and magnetic moments of the first two orders, respectively) for a M-HP core-shell nanoparticle (inset) with the silver core radius $r_1=75$ nm and the outer radius $R_{\text{out}}=170$ nm; (b) backward and forward scattering efficiency spectra of the M-HP core-shell nanoparticle.

况, 图2(b)给出背向散射谱(褐色实线)和前向散射效率谱(绿色实线). 从图2(b)可看出在观察的波长范围, 背向散射均不为零, 不存在满足第一Kerker条件的点.

3.2 M-LP-HP核壳结构的散射特性

为了方便实现偶极电磁模式共振位置和大小重叠, 实现零背向散射和显著增强的前向散射, 在M-HP核壳结构基础上引入LP层形成M-LP-HP核壳结构, 结构示意图如图3(a)中插图所示. 这里银核半径和HP壳层外半径仍固定为 $r_1=75$ nm 和 $R_{\text{out}}=170$ nm, HP壳层折射率 $n=3.4$. 图3(a)为固定LP层折射率($n_1=1.55$), 改变LP层厚度 $r_2-r_1=0$ nm (黑色线), 4 nm (红色线), 8 nm (蓝色线), 以及12 nm (绿色线)时, 偶极电共振(实线)和偶极磁共振(虚线)对散射谱的贡献. 计算结果显示随着中间LP壳层厚度增加(HP壳层厚度相应减小), 偶极电共振波长发生较大蓝移, 且强度减小, 而偶极磁共振波长和强度几乎不变. 这是因为金属核支持的电偶极共振受外部环境的影响显著, 在金属核半径和结构外半

径固定情况下, LP壳层厚度增加, 相当于金属核外包裹材料的介电常数变小, 这会导致电共振的位置蓝移且强度减弱^[32]; 而对于HP壳层支持的偶极磁共振, 在该壳层厚度相对较大的情况下, 共振位置和强度几乎不受壳层内LP层的影响^[27].

图3(b)所示为固定LP层厚度 $r_2-r_1=8$ nm, 改变其折射率 n_1 分别为1.45 (绿色线), 1.5 (蓝色线), 1.55 (红色线), 1.6 (黑色线)时, 电偶极(实线)和磁偶极(虚线)模式对应的散射效率谱. 我们发现随着中间LP壳层折射率的增加, 偶极电共振波长发生红移, 强度略有增加, 但偶极磁共振波长和强度基本不变. 这是因为在核壳结构几何尺寸不变的情况下, 随着LP壳层折射率的增加, 金属核外部包裹材料的介电常数增大, 金属核的电偶极共振随之发生红移且强度增加^[32], 而壳层厚度较大的HP层的磁偶极共振几乎不受壳层内LP层的影响^[27]. 因此, 可以通过改变中间LP壳层的厚度或折射率, 将偶极电共振的大小和共振位置调节至和磁共振重叠, 满足第一Kerker条件, 从而构建出零背向散射.

图3 (网络版彩图)M-LP-HP核壳结构中电偶极和磁偶极模对散射效率的贡献谱. 这里银核半径 $r_1=75$ nm, HP壳层的外半径 $R_{\text{out}}=170$ nm, HP层折射率 $n=3.4$. (a) LP层折射率固定为 $n_1=1.55$, 厚度分别为 $r_2-r_1=0, 4, 8, 12$ nm; (b) LP层厚度固定 $r_2-r_1=8$ nm, 折射率分别为 $n_1=1.45, 1.5, 1.55, 1.6$.

Figure 3 (Color online) Contributions of electric and magnetic modes to the scattering spectra of the M-LP-HP core-shell nanoparticle. Here the radii of the silver core and the outer HP shell are fixed at $r_1=75$ nm, $R_{\text{out}}=170$ nm and $n=3.4$. (a) Refractive index of the LP shell is fixed at $n_1=1.55$, with the layer thickness set at $r_2-r_1=0, 4, 8$, and 12 nm, respectively; (b) thickness of the LP shell is fixed at $r_2-r_1=8$ nm, with the refractive index set at $n_1=1.45, 1.5, 1.55$, and 1.6 , respectively.

从图3中, 不难发现当LP壳层厚度 $r_2-r_1=8$ nm, LP壳层折射率 $n_1=1.55$ 时, 偶极电和磁共振的大小和位置均重叠, 有望实现零背向散射.

3.3 M-LP-HP核壳结构的零背向散射

接下来我们说明当HP层折射率、外半径以及银核半径固定时($n=3.4$, $R_{\text{out}}=170$ nm, $r_1=75$ nm), 通过改变LP层的厚度和折射率, 总能找到合适的LP层厚度和折射率组合(r_2-r_1 , n_1)使得背向散射为零. 由图3可知, 该结构的磁偶极共振波长在 $\lambda=1117$ nm (相应M-HP核壳结构的磁偶极共振位置, 见图2(a), 文章的后续部分, 均利用M-HP核壳结构来确定磁偶极共振位置)附近. 图4(a)展示了该波长下背向散射效率随着LP层厚度和折射率变化的二维谱. 为了便于观察, 将 $Q_b<0.1$ 的情况定义为零背向散射, 并在图4(a)中用黑颜色来表示(文章的后续部分, 均按照这个标准定义零背向散射), 从图中能够明显看出当LP层折射率 $n_1<2.12$, 厚度在 $4\text{ nm}<r_2-r_1<56$ nm区间, 均能找到合适的参数组合使得背向散射在 $\lambda=1117$ nm处为零. 特别是当折射率 $n_1=1.99$ 时(图4(a)中白色虚线所示), LP层厚度取值在 19 nm (点B1) $<r_2-r_1<45\text{ nm}$ (点B2)范围内都可实现零背向散射, 从图4(c)中能更清楚地看出在此26 nm的LP层厚度区间内背向散射均为零, 前向散射也达到了15以上. 这在实验的实现方面, 将容许一个较大的LP厚度

加工误差. 另外, 从二维前向散射效率谱(图4(b))中进一步发现, 在LP层厚度较小的情况下, 满足零背向散射的同时前向散射效率也较强. 图4(a)中点B3($r_2-r_1=8$ nm, $n_1=1.55$)标记一个零背向散射满足的同时前向散射效率也较大的位置.

接下来我们进一步说明图4(a)中点B3对应结构的零背向散射源自偶极电和磁共振位置和大小重叠, 且满足第一Kerker条件. B3对应结构的散射效率谱如图5(a)所示, 其中各阶模式对散射效率的贡献在图中用不同曲线显示. 图5(b)给出该结构背向散射(褐色实线)和前向散射(绿色实线)的效率谱. 图5(a)和(b)表明, 在波长1117 nm附近, 偶极电和磁模式对散射的贡献几乎是完全重叠的, 此时不但实现了零背向散射, 前向散射也达到极大值. 具体来说, 在波长1083 (图5(b)中B4点)–1138 nm (B5点), 即55 nm的带宽范围内, $Q_b<0.1$; 在F1点所示位置, 前向散射效率达到峰值, $Q_{\text{F}}\approx 38$, 如图5(b)所示.

为了证实图5(b)中零背向散射的实现源自第一Kerker条件的满足, 我们在图5(c)和(d)中分别给出Mie散射系数 a_1 和 b_1 的实部和虚部, 从图中能够明显看出 a_1 和 b_1 的实部和虚部在波长1117 nm附近相交或重叠, 满足 $a_1=b_1$, 并且在1083–1138 nm波长范围内(图中阴影区域), a_1 和 b_1 的实部和虚部差值均很小, 因此实现了一个带宽55 nm的零背向散射. 需要说明的是, 和用单纯的

图4 (网络版彩图)固定M-LP-HP核壳结构的外半径 $R_{\text{out}}=170$ nm, 银核半径 $r_1=75$ nm, HP层折射率 $n=3.4$, 在结构的磁偶极共振波长位置, 背向(a)和前向(b)散射效率随LP层厚度和折射率变化的二维谱. 图(a)中黑色区域代表 $Q_b<0.1$ (as is the case for the rest of the paper). The dashed white line corresponds to that the refractive index of the LP shell is $n_1=1.99$. The marked points B1 and B2 defined the value range of the thickness of the LP shell, in which the zero-backward scattering is obtained. The point B3 marked a zero-backward and strong forward scattering; (c) backward (blue curve) and forward (olive curve) scattering efficiency versus the LP layer thickness for the M-LP-HP core-shell nanoparticles with $n_1=1.99$.

Figure 4 (Color online) 2D map of the backward (a) and forward (b) scattering efficiency of the M-LP-HP core-shell nanoparticle ($R_{\text{out}}=170$ nm, $r_1=75$ nm and $n=3.4$) as a function of the LP layer thickness and refractive index at the dipolar magnetic resonance wavelength. The dark-colored area in (a) represents the case of backward scattering efficiency less than 0.1 (as is the case for the rest of the paper). The dashed white line corresponds to that the refractive index of the LP shell is $n_1=1.99$. The marked points B1 and B2 defined the value range of the thickness of the LP shell, in which the zero-backward scattering is obtained. The point B3 marked a zero-backward and strong forward scattering; (c) backward (blue curve) and forward (olive curve) scattering efficiency versus the LP layer thickness for the M-LP-HP core-shell nanoparticles with $n_1=1.99$.

图5 (网络版彩图)M(Ag, $r_1=75$ nm)-LP ($n_1=1.55$, $r_2-r_1=8$ nm)-HP ($n=3.4$, $R_{\text{out}}=170$ nm)核壳结构的散射特性. (a)结构总的以及前两阶电和磁模式分别对散射效率的贡献谱; (b) 背向和前向散射效率谱; (c) Mie散射系数 a_1 和 b_1 的实部; (d) Mie散射系数 a_1 和 b_1 的虚部

Figure 5 (Color online) Scattering of a M-LP-HP core-shell nanoparticle. Here the radii of the silver core and the outer HP shell ($n=3.4$) are fixed at $r_1=75$ nm and $R_{\text{out}}=170$ nm, respectively. The thickness of the middle LP layer ($n_1=1.55$) is $r_2-r_1=8$ nm. (a) Scattering efficiency spectra of the total and the respective contribution of the first two orders electric or magnetic moment; (b) backward and forward scattering efficiency spectra; (c) real parts of the Mie terms a_1 and b_1 ; (d) imaginary parts of the Mie terms a_1 and b_1 .

高介电颗粒只能在某一个非共振的波长实现零背向散射的结果相比, 这里带宽得到了有效增宽, 但是受谐振的内在特性所限制, 带宽的增宽幅度有限, 可以考虑借助利用多个共振结构^[33]来实现宽带的零背向散射.

为了更加直观地显示M-LP-HP核壳结构的高定向散射特性, 我们在图6中给出图5(b)所标注的B4($\lambda=1083$ nm), B5($\lambda=1138$ nm)和F1($\lambda=1114$ nm)3个波长位置的散射二维角分布图. 其中红色曲线(p)为散射平面处于 $\varphi=0$ 的情况, 表示入射光平行于散射平面时的散射角分布; 蓝色曲线(s)为散射平面处于 $\varphi=\pi/2$ 的情况, 表示入射光垂直于散射平面时的散射角分布. 从图6所示3幅图中能够明显看出大部分散射光都集中在前半球, 后半球的散射都很小, 在严格的背向方向, 散射为零. 这进一步证明了利用M-LP-HP核壳结构能方便地构建出大小和振幅重叠的偶极电共振和磁共振, 满足第一Kerker条件, 实现宽带的零背向散射, 同时前向散射也得到了显著增强.

3.4 零背向散射波长的可调谐性

前面, 我们利用结构参数 $R_{\text{out}}=170$ nm, $r_1=75$ nm, $n=3.4$ 的M-LP-HP核壳结构在其磁偶极共振波长1117 nm附近实现了零背向散射. 对于这类核壳结构, 在结构外半径和HP折射率不变的情况下, 偶极磁共振位置和大小几乎保持不变, 改变LP层的厚度和折射率仅调节偶极电共振位置和大小. 根据Mie散射理论, 改变结构的尺寸和折射率均能实现偶极磁共振位置的移动^[1], 因此这部分我们将充分利用M-LP-HP核壳结构的偶极电、磁共振的可调谐性, 进一步说明改变结构的尺寸和HP层的折射率可以将宽带零背向散射调节到其他波长范围.

首先说明零背向散射的结构尺寸可调谐性. 保持HP层折射率 $n=3.4$ 不变, 固定 $R_{\text{out}}=230$ nm, $r_1=100$ nm和 $R_{\text{out}}=100$ nm, $r_1=47$ nm. 此时, 相应的磁偶极共振波长分别为 $\lambda=1489$ nm和 $\lambda=668$ nm. 图7(a), (b)和(d), (e)分

图6 (网络版彩图)与图5相同结构在不同零背向散射对应波长下散射的二维角分布图. (a) $\lambda=1083$ nm; (b) $\lambda=1138$ nm; (c) $\lambda=1114$ nm (其中红色曲线为散射平面处于 $\varphi=0$ 的情况, 而蓝色曲线为散射平面处于 $\varphi=\pi/2$ 的情况)

Figure 6 (Color online) 2D scattering patterns of the core-shell nanoparticle shown in Figure 5 at different wavelengths. (a) $\lambda=1083$ nm; (b) $\lambda=1138$ nm; (c) $\lambda=1114$ nm. Red and blue curves correspond to the case of scattering plane at $\varphi=0$ and $\varphi=\pi/2$, respectively.

别给出上述两种结构在 $\lambda=1489$ nm和 $\lambda=668$ nm位置, 背向和前向散射效率随着LP层厚度和折射率变化的二维谱. 图7(a)和(d)中的点B6和B7为在零背向散射区域中任意选取的 $r_2-r_1=8$ nm的点. 图7(c)和(f)则给出点B6和B7所代表的结构参数下的线性散射效率谱.

从图7(a)中能够明显看出, 对于外半径 $R_{\text{out}}=230$ nm的结构, 当LP层折射率 $n_1<2.3$, 厚度 $5\text{ nm}<r_2-r_1<80$ nm, 均能找到合适的参数组合使得背向散射在 $\lambda=1489$ nm处为零. 而对于外半径 $R_{\text{out}}=100$ nm的结构, 从图7(d)中能够看出当LP层折射率在 $n_1<1.6$, 厚度在 $7\text{ nm}<r_2-r_1<28$ nm区间也能找到合适的参数组合使得背向散射在 $\lambda=668$ nm处为零. 此外, 当折射率 $n_1=2.16$ 时(图7(a)中白色虚线所示), LP层厚度取值在 $25\text{ nm}<r_2-r_1<62$ nm范围内都可实现 $\lambda=1489$ nm处的零背向散射; 在折射率 $n_1=1.48$ (图7(d)中白色虚线所示), LP层厚度取值在 $11.4\text{ nm}<r_2-r_1<25.4$ nm范围内可实现 $\lambda=668$ nm处的零背向散射. 进一步对比图4针对 $R_{\text{out}}=170$ nm的计算结果, 发现随着外半径尺寸的减小, 这个容许的LP层厚度区间将减小. 另外, 从二维前向散射效率谱(图7(b)和(e))中进一步发现, 与图4结论一致, 在LP层厚度较小的情况下, 满足零背向散射的同时前向散射效率也较强.

从图7(c)和(f)中展示的B6和B7点对应结构的偶极电(红色实线)和磁(红色虚线)模式对散射效率的贡献谱, 以及其背向(蓝色实线)和前向(绿色实线)散射效率谱可进一步观察到: 图7(c)中的偶极电和磁共振位置和大小在光谱上重叠, 波长在1416–1526 nm的110 nm带宽内均达到零背向散射, 同时前向散射效率

达到了35以上; 图7(f)中的偶极电和磁共振位置和大小在光谱上有部分重叠, 但是仍然在波长664–682 nm的18 nm带宽内背向散射为零, 前向散射效率达到了25以上. 该结果说明我们提出的M-LP-HP核壳结构在实现零背向散射方面具有结构尺寸的可调谐性. 通过增大结构的外半径可以将零背向散射调节到更长的波段, 反之减小结构外半径能够将零背向散射调节到更短的波段.

接下来将说明改变HP层的折射率也能调谐零背向散射的波长. 这里选取HP的折射率分别为4.0和3.0, M-LP-HP核壳结构的外半径和内核半径固定为 $R_{\text{out}}=170$ nm, $r_1=75$ nm. 此时, 结构的磁偶极共振波长分别为 $\lambda=1305$ 和 $\lambda=989$ nm. 类比图7, 我们计算了上述两种HP层折射率情况下, 核壳结构在各自磁偶极共振波长位置的背向(如图8(a)和(d))和前向(如图8(b)和(e))散射效率随LP层厚度和折射率变化的二维谱. 依据二维背向散射效率谱, 我们也不难找到多组合适的LP层厚度和折射率组合使得背向散射为零. 例如, 对于 $n=4.0$ 的情况, 折射率 $n_1=2.56$ 时(图8(a)中白色虚线所示), LP层厚度取值在 $23\text{ nm}<r_2-r_1<46$ nm范围内都可实现 $\lambda=1305$ nm处的零背向散射; $n=3.0$ 时, 折射率 $n_1=1.63$ 附近(图8(d)中白色虚线所示), LP层厚度取值在 $17\text{ nm}<r_2-r_1<47$ nm范围内可实现 $\lambda=989$ nm处的零背向散射. 上述研究结果不但说明利用这种M-LP-HP核壳结构在固定波长实现零背向散射时容许结构存在一个较大的厚度误差, 对实验实现方面十分有利; 并且表明零背向散射实现时HP层折射率较大, 所对应的LP层折射率也相对较大. 此外, 从图8(c)和(f)中给出的

图 7 (网络版彩图)分别固定M-LP-HP核壳结构的外半径 $R_{\text{out}}=230$ nm, 银核半径 $r_1=100$ nm ((a)–(c)) 和 $R_{\text{out}}=100$ nm, 银核半径 $r_1=47$ nm ((d)–(f)), 在各自磁偶极共振波长下, 背向散射效率 Q_b ((a)和(d))和前向散射效率 Q_f ((b)和(e))随LP层厚度和折射率变化的二维谱. 图(a)和(d)中白色虚线对应LP层折射率 $n_i=2.16$ 和 1.48 时, 背向散射效率随LP层厚度变化的情况, 点B6和B7为黑色区域中选取的 $r_2-r_1=8$ nm的点; (c) 图(a)中B6点对应结构的偶极电(红色实线)和磁(红色虚线), 以及背向(蓝色实线)和前向(绿色实线)散射效率谱; (f) 图(d)中B7点对应结构的偶极电(红色实线)和磁(红色虚线), 以及背向(蓝色实线)和前向(绿色实线)散射效率谱

Figure 7 (Color online) 2D backward ((a) and (d)) or forward ((b) and (e)) scattering efficiency patterns at the dipolar magnetic resonance wavelengths for the core-shell nanoparticles with fixed outer and core radii ($R_{\text{out}}=230$ nm and $r_1=100$ nm) ((a)–(c)) or ($R_{\text{out}}=100$ nm and $r_1=47$ nm) ((d)–(f)) as a function of the LP layer thickness and the refractive index. In (a) or (d), the dashed white line corresponds to that the refractive index of the LP shell is $n_i=2.16$ or 1.48 . Scattering spectra of the first electric a_i (red curve), magnetic b_i (red dashed curves), backward (blue curve) and forward (green curve) for the M-LP-HP core-shell nanoparticles corresponding to the marked points B6 (marked in (a)) (c) and B7 (marked in (d)) (f).

B8和B9点(见图8(a)和(d)标注)对应结构的偶极电(红色实线)和磁(红色虚线)模式对散射效率的贡献谱图中

能够明显看出两种HP层折射率情况下实现零背向散射和高的前向散射同样源自偶极电和磁共振在光谱

图 8 (网络版彩图)固定M-LP-HP核壳结构的外半径 $R_{out}=170$ nm, 银核半径 $r_1=75$ nm, HP的折射率分别取 $n=4.0$ ((a)–(c)) and $n=3.0$ ((d)–(f)), 在磁偶极共振波长下, 背向散射效率 Q_b ((a)和(d))和前向散射效率 Q_f ((b)和(e))随LP层厚度和折射率变化的二维谱. 图(a)和(d)中白色虚线对应LP层折射率 $n_1=2.56$ 和 $n_1=1.63$ 时, 背向散射效率随LP层厚度变化的情况, 点B8和B9为黑色区域中选取的 $r_2-r_1=8$ nm的点. (c)和(f)分别为图(a)中B8点和图(d)中B9点对应结构的偶极电(红色实线)和磁(红色虚线), 以及背向(蓝色实线)和前向(绿色实线)散射效率谱

Figure 8 (Color online) 2D backward ((a) and (d)) and forward ((b) and (e)) scattering efficiency patterns as a function of the thickness and refractive index of the LP layer for the M-LP-HP core-shell nanoparticles with fixed outer and core radii ($R_{out}=170$ nm and $r_1=75$ nm) but different refractive index of the HP shells of $n=4.0$ ((a)–(c)) or $n=3.0$ ((d)–(f)) at the dipolar magnetic resonance wavelengths. In (a) or (d), the dashed white line corresponds to that the refractive index of the LP shell is $n_1=2.56$ or $n_1=1.63$. Scattering spectra of the first electric a_1 (red curve), magnetic b_1 (dashed red curves), backward (blue curve) and forward (green curve) for the M-LP-HP core-shell nanoparticles corresponding to the marked points B8 (marked in (a)) (c) and B9 (marked in (d)) (f).

上的重叠.

总之, 图8说明我们提出的M-LP-HP核壳结构在实

现零背向散射方面具有HP层折射率的可调谐性. HP层折射率 $n=4.0$ 时, 零背向散射波长在1305 nm附近; 当

HP层折射率减小到 $n=3.0$ 时, 偶极磁共振波长蓝移到989 nm附近. 因此通过增大HP层的折射率可以将零背向散射调节到更长的波段, 反之减小HP层折射率能够将零背向散射调节到更短的波段. 这为将来实验上实现宽带可调谐的零背向散射提供新的思路. 这种灵活的零背向散射的折射率参数可调谐性也为引入可调谐材料, 如非线性材料^[2]、石墨烯^[34–36]来实现零背向散射带来希望, 这种可调谐性材料自身的优势能够避免结构的重新设计.

4 结论

本文基于Mie散射理论, 利用M-LP-HP核壳结构, 通过构建第一Kerker条件实现了零背向散射和高前向散射. 研究表明, M-LP-HP核壳结构满足偶极近

似, 各阶电和磁模式系数均相等($a_n=b_n$)的第一Kerker条件可简化为仅偶极电模和磁模系数相等($a_1=b_1$); LP层的引入以及对其层厚和折射率的调节, 便于在较宽波段实现偶极电模和磁模的共振波长与振幅的重叠, 这比M-HP单壳层核壳结构更容易实现零背向散射, 且具有更大的可调谐性; 同时, 由于零背向散射发生在偶极电模和磁模的共振区域, 在背向散射为零的同时前向散射也得到了极大增强. 此外, 通过改变M-LP-HP核壳结构的内核厚度和外半径或改变HP层折射率, 能够很方便地将零背向散射调节到其他波长范围. 并且当LP层折射率固定时, LP层厚度选择不同值均能实现零背向散射, 这预示着在实验方面容许一个较大的LP和HP层厚度加工误差. 我们的研究结果将为零背向散射在纳米激光器, 光发射装置, 光伏设备等的应用提供新的设计思路和方案.

参考文献

- Bohren C F, Huffman D R. Absorption and Scattering of Light by Small Particles. New York: Wiley, 1983
- Argyropoulos C, Chen P Y, Monticone F, et al. Nonlinear plasmonic cloaks to realize giant all-optical scattering switching. *Phys Rev Lett*, 2012, 108: 263905
- Monticone F, Argyropoulos C, Alù A. Layered plasmonic cloaks to tailor the optical scattering at the nanoscale. *Sci Rep*, 2012, 2: 912
- Monticone F, Argyropoulos C, Alù A. Multilayered plasmonic covers for comblike scattering response and optical tagging. *Phys Rev Lett*, 2013, 110: 113901, arXiv: 1210.4802
- Hsu C W, Zhen B, Qiu W, et al. Transparent displays enabled by resonant nanoparticle scattering. *Nat Commun*, 2014, 5: 3152
- Kerker M, Wang D S, Giles C L. Electromagnetic scattering by magnetic spheres. *J Opt Soc Am*, 1983, 73: 765–767
- Liu W, Miroshnichenko A E, Neshev D N, et al. Broadband unidirectional scattering by magneto-electric core-shell nanoparticles. *ACS Nano*, 2012, 6: 5489–5497
- Liu W, Zhang J, Lei B, et al. Ultra-directional forward scattering by individual core-shell nanoparticles. *Opt Express*, 2014, 22: 16178–16187, arXiv: 1405.0665
- Naraghi R R, Sukhov S, Dogariu A. Directional control of scattering by all-dielectric core-shell spheres. *Opt Lett*, 2015, 40: 585–588
- Geffrin J M, García-Cámara B, Gómez-Medina R, et al. Magnetic and electric coherence in forward- and back-scattered electromagnetic waves by a single dielectric subwavelength sphere. *Nat Commun*, 2012, 3: 1171
- Li Y, Wan M, Wu W, et al. Broadband zero-backward and near-zero-forward scattering by metallo-dielectric core-shell nanoparticles. *Sci Rep*, 2015, 5: 12491
- Ni Y X, Gao L, Miroshnichenko A E, et al. Controlling light scattering and polarization by spherical particles with radial anisotropy. *Opt Express*, 2013, 21: 8091–8100
- Novotny L, Van Hulst N. Antennas for light. *Nat Photon*, 2011, 5: 83–90
- King N S, Knight M W, Large N, et al. Orienting nanoantennas in three dimensions to control light scattering across a dielectric interface. *Nano Lett*, 2013, 13: 5997–6001
- García-Cámara B, Moreno F, González F, et al. Light scattering by an array of electric and magnetic nanoparticles. *Opt Express*, 2010, 18: 10001–10015
- Kabashin A V, Evans P, Pastkovsky S, et al. Plasmonic nanorod metamaterials for biosensing. *Nat Mater*, 2009, 8: 867–871
- Rodríguez S R K, Bernal Arango F, Steinbusch T P, et al. Breaking the symmetry of forward-backward light emission with localized and collective magnetoelectric resonances in arrays of pyramid-shaped aluminum nanoparticles. *Phys Rev Lett*, 2014, 113: 247401

- 18 Atwater H A, Polman A. Plasmonics for improved photovoltaic devices. [Nat Mater](#), 2010, 9: 205–213
- 19 Hancu I M, Curto A G, Castro-López M, et al. Multipolar interference for directed light emission. [Nano Lett](#), 2014, 14: 166–171
- 20 Sheikholeslami S N, García-Etxarri A, Dionne J A. Controlling the interplay of electric and magnetic modes *via* fano-like plasmon resonances. [Nano Lett](#), 2011, 11: 3927–3934
- 21 Staude I, Miroshnichenko A E, Decker M, et al. Tailoring directional scattering through magnetic and electric resonances in subwavelength silicon nanodisks. [ACS Nano](#), 2013, 7: 7824–7832
- 22 Kuznetsov A I, Miroshnichenko A E, Fu Y H, et al. Magnetic light. [Sci Rep](#), 2012, 2: 492, arXiv: [1205.1610](#)
- 23 Shi L, Harris J T, Fenollosa R, et al. Monodisperse silicon nanocavities and photonic crystals with magnetic response in the optical region. [Nat Commun](#), 2013, 4: 1904
- 24 Zywiets U, Evlyukhin A B, Reinhardt C, et al. Laser printing of silicon nanoparticles with resonant optical electric and magnetic responses. [Nat Commun](#), 2014, 5: 3402
- 25 García-Etxarri A, Gómez-Medina R, Froufe-Pérez L S, et al. Strong magnetic response of submicron Silicon particles in the infrared. [Opt Express](#), 2011, 19: 4815–4826, arXiv: [1005.5446](#)
- 26 Gómez-Medina R. Electric and magnetic dipolar response of germanium nanospheres: Interference effects, scattering anisotropy, and optical forces. [J Nanophoton](#), 2011, 5: 053512
- 27 Paniagua-Domínguez R, López-Tejeda F, Marqués R, et al. Metallo-dielectric core-shell nanospheres as building blocks for optical three-dimensional isotropic negative-index metamaterials. [New J Phys](#), 2011, 13: 123017, arXiv: [1106.2045](#)
- 28 Person S, Jain M, Lapin Z, et al. Demonstration of zero optical backscattering from single nanoparticles. [Nano Lett](#), 2013, 13: 1806–1809
- 29 Fu Y H, Kuznetsov A I, Miroshnichenko A E, et al. Directional visible light scattering by silicon nanoparticles. [Nat Commun](#), 2013, 4: 1527
- 30 Liu W, Miroshnichenko A E, Oulton R F, et al. Scattering of core-shell nanowires with the interference of electric and magnetic resonances. [Opt Lett](#), 2013, 38: 2621–2624
- 31 Johnson P B, Christy R W. Optical constants of the noble metals. [Phys Rev B](#), 1972, 6: 4370–4379
- 32 Fan X, Zheng W, Singh D J. Light scattering and surface plasmons on small spherical particles. [Light Sci Appl](#), 2014, 3: e179
- 33 Liu Z, Li Z, Liu Z, et al. High-performance broadband circularly polarized beam deflector by mirror effect of multianorod metasurfaces. [Adv Funct Mater](#), 2015, 25: 5428–5434
- 34 Cheng H, Chen S, Yu P, et al. Dynamically tunable broadband mid-infrared cross polarization converter based on graphene metamaterial. [Appl Phys Lett](#), 2013, 103: 223102
- 35 Cheng H, Chen S, Yu P, et al. Dynamically tunable plasmonically induced transparency in periodically patterned graphene nanostrips. [Appl Phys Lett](#), 2013, 103: 203112
- 36 Cheng H, Chen S, Yu P, et al. Dynamically tunable broadband infrared anomalous refraction based on graphene metasurfaces. [Adv Opt Mater](#), 2015, 3: 1744–1749

Zero-backward scattering by Metallo-Dielectric core-shell nanostructures

LI Yan^{1,2}, XU Kun^{1,2}, DING Pei^{1,2*}, DU YinXiao^{1,2}, CHEN LeiMing^{1,2},
ZENG FanGuang^{1,2}, CHEN Zhuo^{3*} & WANG ZhenLin³

¹ School of Science, Zhengzhou University of Aeronautics, Zhengzhou 450046, China;

² Henan Key Laboratory of Aeronautical Material and Application Technology, Zhengzhou 450046, China;

³ School of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China

Based on the Mie theory, we propose and investigate a “metal (M)-low-permittivity (LP)-high-permittivity (HP)” core-shell nanoparticle that possesses the high directional zero-backward scattering characteristics. We analyze the effect of the LP layer on the wavelength and strength of the electric or magnetic dipolar resonance, and reveal that the zero-backward scattering and dramatically enhanced forward scattering are easy to be obtained by modulating the thickness and refractive index of the middle LP layer, which can engineer the dipolar electric and magnetic modes in the M-LP-HP core-shell nanoparticles to coincide spectrally with the same strength, thus satisfying the first Kerker condition of zero backward scattering. We also demonstrate that the zero-backward scattering can be tuned over a wide range from the near-infrared to visible by varying the metal core size and the outer radius of the HP shell or by changing the refractive index of the HP shell. Our results can provide a scientific direction for designing the nanostructures and devices based on the zero-backward scattering.

Mie scattering, zero-backward scattering, electric and magnetic resonance, core-shell nanostructure

PACS: 73.22.Dj, 75.75.+a, 78.35.+c

doi: [10.1360/SSPMA2016-00485](https://doi.org/10.1360/SSPMA2016-00485)