二维典型纳米结构的非局域化光学特性研究

陈晨^①, 方明^①, 黄志祥^{①*}, 吴先良^{①②*}

① 安徽大学电子信息工程学院, 智能计算与信号处理重点实验室, 合肥 230039;

② 合肥师范学院电子信息工程学院, 合肥 230061

* E-mail: zxhuang@ahu.edu.cn; xlwu@ahu.edu.cn

收稿日期: 2015-02-10; 接受日期: 2015-05-04

国家自然科学基金(批准号: 51277001, 61471001)、教育部新世纪优秀人才支持计划(编号: NCET-12-0596)、教育部博士学科点专项基金(编号: 20123401110009)和安徽省自然科学基金(编号: 2013SQRL065ZD, 1508085JGD03, 1508085QF130)资助项目

摘要 由于量子效应的存在, 纳米尺度结构所具有的特性很难完全基于经典力学来解释, 其光学特性也难以采用经典方法得到. 随着时域有限差分(FDTD)方法的发展, 其在光学领域中的应用变得越来越广泛. 论文基于 FDTD 方法研究了典型二维纳米结构的非局域光学特性, 得到了不同纳米尺度结构的局域和非局域性光学特性存在的条件, 分析了结构形状对其消光截面特性的影响. 计算与分析结果表明随着纳米结构尺寸的减小及形状的突变, 结构的非局域性越明显. 我们的理论及结果可为实际小尺度纳米器件的设计提供参考依据.

关键词

纳米结构
时域有限差分
光学特性
非局域性

1 引言

随着实验技术的发展和纳米科学研究领域的拓展, 可以制造和研究更加精细的纳米结构. 其中, 纳米结构的光学特性就是一个研究的重点. 研究表明, 量子力学的作用在尺寸较小的纳米结构(一般小于 10 nm)中可以导致不寻常的光学特性. 这种异常吸收特性在纳米薄片和纳米颗粒中早已被证实^[1,2]. 纳米结构的光学响应高度依赖于系统, 最明显的就是贵金属(金、银)纳米颗粒与光之间的相互作用, 这种相互作用导致了其频率色散的光学响应, 使得导电电子在纳米颗粒的表面上产生局域表面等离子体共振(LSPR). 当入射光照射在金属纳米结构表面上, 且其频率在可见光或近红外区时, 金属表面的自由电子在外部场作用下产生振荡, 产生一种表面束缚的电磁波, 称作表面等离子体(SPP).

金属纳米粒子由于其具有突出的小尺寸效应、表面效应、量子尺寸效应, 使其在表面等离子体共振方面具有很高的研究价值^[3]. 等离子体基于金属界面及结构中的电磁辐射与载流子之间的相互作用, 对亚波长尺度范围的光近场有局域场增强作用. 场局域增强效应可应用于集成光电子器件设计、非线性光学研究、超衍射极限光印刷术、生物传感及探测、太阳能电池等多个金属领域^[4-8].

在微纳米结构中, 吸收截面、散射截面和消光截面是反映其光学特性的一个主要参数. 当电磁波穿透一个微小颗粒时, 会因为散射和吸收现象的存在, 对于不同频率的光谱产生衰减作用. 在 Mie 理论中, 简单的消光截面就是吸收截面和散射截面之和, 是纳米结构对不同频率的光吸收和反射特性综合反应.

金属纳米结构的分析和计算, 是一个经典的电动力学问题. 要研究纳米粒子的形状、尺寸及耦合在

引用格式: 陈晨, 方明, 黄志祥, 等. 二维典型纳米结构的非局域化光学特性研究. 中国科学: 技术科学, 2015, 45: 825-833

Chen C, Fang M, Huang Z X, et al. Study the nonlocal optical properties of typical two-dimensional nanostructures (in Chinese). Sci Sin Tech, 2015, 45: 825-833, doi: 10.1360/N092014-00282

表面增强拉曼散射方面的应用, 就要借助数值处理方法. 本文是基于时域有限差分方法(FDTD)来进行计算. 为了采用 FDTD 方法研究贵金属的光学特性, 我们采用了 Drude 和 Lorentz 叠加模型对贵金属的介电常数实验数据进行拟合; 结合辅助位方程方法(ADE)在 TE 模式下计算典型结构的吸收截面, 散射截面和消光截面. 与基于有限元法(FEM)采用 TM 波模式下计算典型纳米结构是有所不同的^[9]. 同时针对不同尺度纳米线的局域(local)和非局域(nonlocal)进行了数值模拟与结果分析, 同时也研究了不同纳米结构下的局域和非局域光学特性.

2 理论与计算模型

2.1 非局域特性的简介

一般来说, 当光波照射在尺寸为 d 的结构时, 波矢 $\mathbf{k}$ 与动量 $\mathbf{p}$ 的关系如下:

$$\mathbf{p} = \hbar \mathbf{k}, \quad (1)$$

其中 $\hbar$ 是普朗克常量, 波矢 $\mathbf{k}$ 的大小由 $2\pi/d$ 所决定的. 此时会产生一个能量 $E = (\hbar \mathbf{k})^2 / 2m_e$, m_e 是金属中自由电子的质量. 对于尺寸比较小的结构, 这种能量相当于光波段的能量(1~6 eV). 在 d 小于 10 nm 时, 这种结构的光学响应不仅仅是频率色散的, 也是以波矢 $\mathbf{k}$ 为变量的. 为了体现量子作用和空间色散, 需要选择一个新的介电常数的模型, 使此模型中材料每个点的极化不仅与其自身的电场有关, 还与周围的电场有关^[10].

考虑到 $\mathbf{x}$ 与其周围点的关系. 本构方程可以写为

$$\mathbf{D}(\mathbf{x}, \omega) = \varepsilon_0 \int d\mathbf{x}' \varepsilon(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) \mathbf{E}(\mathbf{x}', \omega), \quad (2)$$

这里 $\varepsilon(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega)$ 是空间色散和频率色散的函数. 在均匀介质中, $\varepsilon(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega)$ 在空间上只依赖于 $|\mathbf{x} - \mathbf{x}'|$, 故在波矢空间内, (2)式可简化为

$$\mathbf{D}(\mathbf{k}, \omega) = \varepsilon_0 \varepsilon(\mathbf{k}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega). \quad (3)$$

通过在金属色散媒质的模型中加入波矢 $\mathbf{k}$ 变量, 来模拟相关的量子效应, 结合 FDTD 方法实现对其所构造结构的电磁仿真, 不仅可以避开复杂的量子效应计算, 而且可得到纳米结构的光学特性.

2.2 金属色散模型

考虑 Drude-Lorentz 模型来拟合金的介电常数,

同时为了兼顾量子效应的存在, 考虑到(3)式中的波矢变量, 我们需要对普通的介电常数模型进行修正如下:

$$\varepsilon(\mathbf{k}, \omega) = \varepsilon_\infty + \varepsilon_{\text{inter}}(\omega) + \varepsilon_{\text{intra}}(\mathbf{k}, \omega), \quad (4)$$

其中, ε_∞ 是当频率趋于无限大时的介电常数. $\varepsilon_{\text{inter}}(\omega)$ 是由于导带和价带之间的电子跃迁而产生的, 可以用一个多级的 Lorentz 模型来表示. 而 $\varepsilon_{\text{intra}}(\mathbf{k}, \omega)$ 是由于由导带中的电子激发而产生的, $\varepsilon_{\text{intra}}(\mathbf{k}, \omega)$ 不仅需要表示金属中等离子的光学响应, 还需要体现出量子效应所产生的非局域作用, 可以用 Drude 模型来表示.

$$\varepsilon_{\text{intra}}(\mathbf{k}, \omega) = -\frac{\omega_D^2}{\omega(\omega + i\gamma) - \beta^2 k^2}, \quad (5)$$

式中 ω_D 是等离子体频率, γ 是碰撞频率, 其中 $\beta^2 = C v_F^2 / D$, v_F 是费米速率, 金和银的费米速率 1.39×10^6 m/s, D 是结构的维数, C 的取值是根据频率来决定的, 在低频区域内 $C=1$, 在高频区域内 $C=3D/(D+2)$ ^[11].

综合, 介电常数的拟合公式为

$$\varepsilon(\mathbf{k}, \omega) = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{\Delta \varepsilon_{Lj} \omega_{Lj}^2}{\omega_{Lj}^2 - \omega(\omega + i2\delta_{Lj})} - \frac{\omega_D^2}{\omega(\omega + i\gamma) - \beta^2 k^2}, \quad (6)$$

其中 Lorentz 模型个数的选择, 根据材料在带间电子跃迁发生的次数决定. 论文研究频率范围是 1~6 eV, 为了精确匹配此频带内金和银的带间跃迁频率, 选用 2 个 Lorentz 模型拟合, 介电常数的参数数值如表 1 所示^[12]. (6)式中修正后的介电常数是 $\mathbf{k}$ 和 ω 的函数.

表 1 给出了模型中金和银参数的具体数值. 当 $k=0$ 时, 给出了金和银的介电常数的拟合参数与实验数据^[12]的对比, 也就是计算金纳米线和银纳米线局域特性采用的介电常数, 如图 1 所示. 当 $k \neq 0$ 时, 采用金纳米线局域特性的拟合参数进行拟合. 如图 2 所示, 当 $\beta k \ll \omega$ 时, $\varepsilon(\mathbf{k}, \omega)$ 可以看成只是 ω 的函数, 与局域性的模型类似. 当 βk 从下方趋近于 ω 时, $\varepsilon(\mathbf{k}, \omega)$ 实部的值快速从负值变成正值. 图中 $\beta k = \omega$ 用一条亮线表示. 图 2 表明在 $\beta k \approx \omega$ 时, $\varepsilon(\mathbf{k}, \omega)$ 实部的值发生快速变化, 将会发生异常吸收.

2.3 FDTD 迭代公式

时域麦克斯韦方程为

表 1 金和银的介电常数参考值

参数	ε_∞	$\Delta\varepsilon_L$	$\Delta\varepsilon_{L2}$	δ_{L1} (eV)	δ_{L2} (eV)	ω_{L1} (eV)	ω_{L2} (eV)	ω_D (eV)	γ (eV)
金的数值	3.599	2.912	1.272	1.541	0.525	0.4693	3.112	8.812	1.541
银的数值	2.365	0.315	0.868	0.28	0.5482	4.380	5.183	8.738	0.075

图 1 局域特性下金和银的介电常数的拟合参数与实验数据对比

(a) 金的实部; (b) 金的虚部; (c) 银的实部; (d) 银的虚部

图 2 非局域模型中金的介电常数

(a) 实部; (b) 虚部

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{D}(t) + \mathbf{J}(t) = \nabla \times \mathbf{H}(t), \quad (7)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B}(t) = -\nabla \times \mathbf{E}(t), \quad (8)$$

在确定了介电常数的模型以后, 将(3)和(6)式带入到麦克斯韦方程组(7)中, 并做傅里叶变换, 将时域偏微分方程变成频域方程, 得到如下公式:

$$-i\omega\varepsilon_0\varepsilon_\infty\mathbf{E}(\mathbf{k},\omega) + \sum_j \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{k},\omega) + \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{k},\omega) = i\mathbf{k} \times \mathbf{H}(\mathbf{k},\omega), \quad (9)$$

其中,

$$\mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{k},\omega) = -i\omega\varepsilon_0 \frac{\Delta\varepsilon_{Lj}\omega_{Lj}^2}{\omega_{Lj}^2 - \omega(\omega + i2\delta_{Lj})} \mathbf{E}(\mathbf{k},\omega), \quad (10)$$

$$\mathbf{J}_{HD}(\mathbf{k},\omega) = i\omega\varepsilon_0 \frac{\omega_D^2}{\omega(\omega + i\gamma) - \beta^2 k^2} \mathbf{E}(\mathbf{k},\omega), \quad (11)$$

(10)和(11)式当作求解电磁场迭代公式的辅助位方程, 结合傅里叶逆变换可将(10)和(11)式变成时域偏微分方程.

$$\begin{aligned} & \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{x},t) + 2\delta_{Lj} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{x},t) + \omega_{Lj}^2 \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{x},t) \\ & = \varepsilon_0 \Delta\varepsilon_{Lj} \omega_{Lj}^2 \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}(\mathbf{x},t), \end{aligned} \quad (12)$$

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{x}, t) + \gamma \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{x}, t) - \beta^2 \nabla^2 \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{x}, t) \quad (13)$$

$$= \varepsilon_0 \omega_D^2 \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}(\mathbf{x}, t).$$

根据(12)和(13)式, 可得到 $\mathbf{J}_{HD}$ 和 $\mathbf{J}_{Lj}$ 的迭代公式

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{x})^{n+1} &= \alpha_{Lj} \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{x})^n + \varepsilon_{Lj} \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{x})^{n-1} \\ &+ \eta_{Lj} \frac{\mathbf{E}(\mathbf{x})^{n+1} - \mathbf{E}(\mathbf{x})^{n-1}}{2\Delta t}, \end{aligned} \quad (14)$$

其中

$$\alpha_{Lj} = \frac{2 - \omega_{Lj}^2 \Delta t^2}{1 + \delta_{Lj} \Delta t}, \quad (15)$$

$$\varepsilon_{Lj} = -\frac{1 - \delta_{Lj} \Delta t}{1 + \delta_{Lj} \Delta t}, \quad (16)$$

$$\eta_{Lj} = \frac{\varepsilon_0 \Delta \varepsilon_{Lj} \omega_{Lj}^2 \Delta t^2}{1 + \delta_{Lj} \Delta t}. \quad (17)$$

同样, $\mathbf{J}_{HD}$ 的迭代公式为

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{x})^{n+1} &= \alpha_{HD} \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{x})^n + \varepsilon_{HD} \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{x})^{n-1} \\ &+ \eta_{HD} \frac{\mathbf{E}(\mathbf{x})^{n+1} - \mathbf{E}(\mathbf{x})^{n-1}}{2\Delta t}, \end{aligned} \quad (18)$$

$$\alpha_{HD} = \frac{4 + 2\Delta t^2 \beta^2 \nabla^2}{2 + \gamma \Delta t}, \quad (19)$$

$$\varepsilon_{HD} = -\frac{2 - \gamma \Delta t}{2 + \gamma \Delta t}, \quad (20)$$

$$\eta_{HD} = \frac{2\varepsilon_0 \omega_D^2 \Delta t^2}{2 + \gamma \Delta t}. \quad (21)$$

进一步, 可将(9)式结合傅里叶反变换转换到时域中, 并作差分处理, 得到

$$\begin{aligned} \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \frac{\mathbf{E}(\mathbf{x})^{n+1} - \mathbf{E}(\mathbf{x})^n}{\Delta t} &+ \sum_j \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{x})^{n+1/2} \\ &+ \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{x})^{n+1/2} = \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{x})^{n+1/2}. \end{aligned} \quad (22)$$

将由(14)和(18)式中迭代所得 $\mathbf{J}_{HD}$ 和 $\mathbf{J}_{Lj}$ 带入, 即可得到电场的迭代公式为

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{x})^{n+1} &= \frac{1}{\zeta_1 + \zeta_2} \left[\zeta_1 \mathbf{E}(\mathbf{x})^n + \zeta_2 \mathbf{E}(\mathbf{x})^{n-1} \right. \\ &\left. + \nabla \times \mathbf{H}^{n+1/2} - \mathbf{J}_T(\mathbf{x})^{n,n-1} \right], \end{aligned} \quad (23)$$

其中,

$$\zeta_1 = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_\infty}{\Delta t}, \quad (24)$$

$$\zeta_2 = \frac{1}{4\Delta t} \left(\sum_j \eta_{Lj} + \eta_{HD} \right), \quad (25)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_T(\mathbf{x})^{n,n-1} &= \frac{1}{2} \left\{ \sum_j \left[(\alpha_{Lj} + 1) \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{x})^n + \varepsilon_{Lj} \mathbf{J}_{Lj}(\mathbf{x})^{n-1} \right] \right. \\ &\left. + (\alpha_{HD} + 1) \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{x})^n + \varepsilon_{HD} \mathbf{J}_{HD}(\mathbf{x})^{n-1} \right\}. \end{aligned} \quad (26)$$

得到电场的迭代公式以后, 类似可以得到磁场的迭代公式

$$\mathbf{H}(\mathbf{x})^{n+1/2} = \mathbf{H}(\mathbf{x})^{n-1/2} - \frac{\Delta t}{\mu_0} \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{x})^n. \quad (27)$$

2.4 消光截面计算

在 Mie 理论中, 把散射截面和吸收截面的和称作消光截面. 消光截面在微纳米结构中是一种重要的光学性质^[13]. 加入一个合适的激励源后, 我们可以将时域的总场值变换到频域范围.

$$\mathbf{E}(\omega) = \int_0^\infty dt \exp(i\omega t) \mathbf{E}(t), \quad (28)$$

$$\mathbf{H}(\omega) = \int_0^\infty dt \exp(i\omega t) \mathbf{H}(t). \quad (29)$$

在 FDTD 算法中, 散射场的值是不能直接得出的, 必须先保存入射场 $\mathbf{E}_{\text{inc}}(t)$ 和 $\mathbf{H}_{\text{int}}(t)$ 的值, 并对其做傅里叶变换.

$$\mathbf{E}_{\text{inc}}(\omega) = \int_0^\infty dt \exp(i\omega t) \mathbf{E}_{\text{inc}}(t), \quad (30)$$

$$\mathbf{H}_{\text{inc}}(\omega) = \int_0^\infty dt \exp(i\omega t) \mathbf{H}_{\text{inc}}(t). \quad (31)$$

此时, 散射场可以通过下式计算得出

$$\mathbf{E}_{\text{sca}}(\omega) = \mathbf{E}(\omega) - \mathbf{E}_{\text{inc}}(\omega), \quad (32)$$

$$\mathbf{H}_{\text{sca}}(\omega) = \mathbf{H}(\omega) - \mathbf{H}_{\text{inc}}(\omega). \quad (33)$$

对于二维纳米结构, 光学截面是其单位长度的一种光学特性的体现, 散射截面可以从下式得到:

$$\sigma_{\text{sca}}(\omega) = \frac{P_{\text{sca}}(\omega)}{I_{\text{inc}}(\omega)}, \quad (34)$$

P_{sca} 代表每个单位长度的散射能量, 而 I_{inc} 代表每个单位面积入射场通量(能量)的大小. 式中

$$P_{\text{sca}}(\omega) = r_\infty \int_0^{2\pi} d\varphi \mathbf{S}_{\text{sca}}(\omega) \cdot \mathbf{r} |_{r=r_\infty}, \quad (35)$$

$$\mathbf{S}_{\text{sca}}(\omega) = \frac{1}{2} \text{Re} [\mathbf{E}_{\text{sca}}(\omega) \times \mathbf{H}_{\text{sca}}^*(\omega)], \quad (36)$$

同理, 吸收截面的公式为

$$\sigma_{\text{abs}}(\omega) = \frac{P_{\text{abs}}(\omega)}{I_{\text{inc}}(\omega)}, \quad (37)$$

式中

$$P_{\text{abs}}(\omega) = r_{\infty} \int_0^{2\pi} d\phi \mathbf{S}_{\text{abs}}(\omega) \cdot \mathbf{r} \big|_{r=r_{\infty}}, \quad (38)$$

$$\mathbf{S}_{\text{abs}}(\omega) = \frac{1}{2} \text{Re}[\mathbf{E}(\omega) \times \mathbf{H}^*(\omega)], \quad (39)$$

消光截面就是散射截面和吸收截面之和:

$$\sigma_{\text{ext}}(\omega) = \sigma_{\text{sca}}(\omega) + \sigma_{\text{abs}}(\omega). \quad (40)$$

3 数值结果

此处结构是由金属金构成的纳米线(z 轴方向当作无限长). 为了达到良好吸收效果, 完全匹配层(PML)层数设置成 20 层. 网格的划分根据计算结构的尺寸具体来划分. 计算区域的划分如图 3 所示.

3.1 不同半径的纳米线

我们通过计算不同半径纳米线的消光截面, 对比半径从 1 变化到 8 nm 时的局域性和非局域性的光学特性.

图 4 中分别计算了半径为 1, 2, 4 和 8 nm 的金纳米线的结果, 其中虚线为 local 情况下的结果, 而实线为 nonlocal 结果. 在小于 10 nm 的结构中消光截面基本由吸收截面所决定的^[14]. 当金纳米线为 1 nm 时候, 在 nonlocal 效应下, 奇异吸收的峰值的带宽很大, 而在 2, 4 和 8 nm 的结构中, 奇异吸收的峰值带宽都

相对的减小. 进一步观察图 4 可知, 与 local 相比 nonlocal 中存在异常吸收现象, 这与理论预测^[15]和实验现象基本吻合.

图 4 结果说明采用的 Drude 模型可以表现量子效应存在. 加入波矢变量 $\mathbf{k}$ 后, 色散模型中波矢 $\mathbf{k}$ 和频率 ω 相互影响, 从而改变了水平方向上的等离子体激发. 随着半径的增大, 非局域作用将变的越来越不明显. 当半径为 4 nm 时, 仅有一些较小的异常吸收现象. 当半径为 8 nm 时, 异常吸收现象很难被发现. 然而, 在半径为 8 nm 时, 与局域现象相比, 我们还是可以发现共振峰带宽变宽, 能量变小, 且共振峰值发生了微小的蓝移.

图 5 是半径分别为 2 nm 结构下在 2.6 eV 处 local 和 nonlocal 的场强图. 图中场强所对应的频点为等离

图 3 FDTD 计算区域的划分

图 4 半径为 8, 4, 2 和 1 nm 的金纳米线消光截面

图5 在 2.60 eV 处, 由 $|E_0|^2$ 的归一化 $|E(\omega)|^2$ 分布
(a) local; (b) nonlocal

子体共振频率.

3.2 不同形状的纳米线

前面对比了不同半径的金纳米线的非局域现象与电场的增强现象. 而在纳米结构中, 三角形纳米线也有很广阔的研究前景. 因此对三角形的纳米线进行讨论, 研究其光学响应和电场增强现象. 选用不同边长的三角形纳米线结构, 这种结构的光学响应在以前已经被研究过^[16,17]. 但与本文使用的非局域理论有所不同.

图6结果仍选用 TE 波为入射波, 电场方向为垂直方向, 波矢方向为水平方向. 三角形纳米线的边长从 5 变换到 10 再到 40 nm, 当三角形纳米线的边长足够小时, 在 nonlocal 效应下, 会出现较多的共振峰. 随着其结构尺寸增大, 水平方向的等离子体共振仍

然存在的. 它仅有较小的作用, 影响了吸收峰值的强度和使共振峰值略微发生了蓝移. 加入波矢向量后, 使这种结构的水平方向每一点极化的不同, 水平方向的等离子共振模式变的更复杂. 所以对于有顶点和尖端的部分, 非局域的作用就越明显^[18].

图7是变长为 5 nm 的纳米线在 2.61 eV 下局域和非局域作用下发生等离子体共振时的电场图, 此时的电场强度达到最大^[19]. 对于三角结构, 由于尖端会集聚更多的电子, 所以三角形顶点电场增强的效果更明显.

上述介绍了单个柱纳米线和单个三角形纳米线的局域和非局域特性, 下面我们介绍 2 个柱纳米线和 2 个三角纳米线的局域特性, 结构如图8所示, 我们采用银来模拟.

如上图所示, 研究了不同距离下, 银纳米线之间的耦合作用, 结果如图9和10所示.

从图9中可以看出当两个柱纳米线距离为 5 nm 时, local 和 nonlocal 光学响应的结果是基本相同. 相比 local 中的消光截面, 仅消光截面的大小有轻微的减小, 等离子共振频率发生略微蓝移现象. 当纳米线的距离减小到 2 nm 时, 两种情况的共振频率都发生了红移现象. 随着间隙距离的减小, 2 个纳米柱之间产生耦合作用, 产生更复杂的共振模式. 同时, nonlocal 的结果相比 local 的结果发生的蓝移也在增

图6 边长为 5, 10 和 40 nm 的三角形纳米线的消光截面

图 7 2.61 eV 处 5 nm 三角纳米线场强图
(a) local; (b) nonlocal

图 8 两个柱纳米线和三角纳米线的结构与尺寸

图 9 2 个柱纳米线不同距离下的局域和非局域特性
(a) 5 nm; (b) 2 nm; (c) 1 nm; (d) 0.5 nm

加. 当距离逐渐减小时, 会产生更大的波矢向量, 使等离子体共振发生在更高的频率. Nonlocal 的作用不仅使共振发生了蓝移, 还改变了共振带宽.

在图 10 中, 2 个三角形纳米线, 在距离不断减小的情况下 nonlocal 相对于 local 不像柱纳米线存在明显的蓝移现象. 例如当距离从 5 变成 1 nm 时, 在 local 效应下, 发生了明显的红移现象, 共振峰的峰值也在变大, 而在 nonlocal 效应下, 只有一个共振峰, 在距离的减小下, 共振峰只是相对的变宽.

4 总结

金属纳米结构的光学性质是当今纳米科学研究

的热点, 金属纳米粒子在表面增强拉曼散射方面也有着很高的利用价值. 在医学诊断, 生化传感方面都取得了进步.

表面增强拉曼散射的机理源于金属纳米例子的表面等离子体特性. 通过改变粒子的形状, 尺寸和结构, 可以实现其表面等离子体共振峰在可见光范围内的可调, 从而为制作高技术含量的纳米器件创造了理论基础.

本文主要是使用 FDTD 算法求解纳米结构的非局域性光学特性. 对不同尺寸和不同形状的纳米线结构进行计算, 在理论上分析非局域作用对纳米结构光学特性的影响. 当纳米结构的半径越小其非局

图 10 2 个三角形纳米线不同距离下的局域和非局域特性

(a) 5 nm; (b) 2 nm; (c) 1 nm; (d) 0.5 nm

域特性越明显,跟局域相比也会发生明显的蓝移,共振峰也会变宽.对于比较尖锐的纳米结构,即存在尖端的纳米结构,尖端会聚集更多的电子,尖端部分的场强也会增强.加入波矢向量后,使这种结构的水平

方向每一点的极化的不同,水平方向的等离子共振模式变的更复杂.所以对于较大尺寸的结构依然存在非局域的作用,并且在有顶点和尖端的部分,非局域的作用越明显.

参考文献

- 1 Toscano G, Raza S. Modified field enhancement and extinction by plasmonic nanowire dimers due to nonlocal response. *Opt Exp*, 2012, 20: 4176–4188
- 2 Ferlenghi E, Iannuzzi M. Radiative surface plasmons in silver films. *Phys Lett A*, 1970, 32: 238–239
- 3 Jonathan A, Ai Leen Koh, Jennifer A. Quantum Plasmon resonances of individual metallic nanoparticles. *Nature*, 2012, 483: 421–427
- 4 Khlebtsov B N, Khlebtsov N G. Biosensing potential of silica/gold nanoshells: Sensitivity of plasmon resonance to the local dielectric environment. *J Quant Spectrosc Ra*, 2007, 106: 154–169
- 5 Kim J H, Chung H W, Lee T R. Preparation and characterization of palladium shells with gold and silica cores. *Chem Mater*, 2006, 18: 4115–4120
- 6 Zhu M W, Qian G D, Ding G J. Plasma resonance of silver nanoparticles deposited on the surface of submicron silica spheres. *Mater Chem Phys*, 2006, 96: 489–493
- 7 Zhang J, Fu Y, Lakowicz J R. Emission behavior of fluorescently labeled silver nanoshell: Enhanced self-quenching by metal nanostructure. *J Chem C*, 2007, 111: 1955–1961
- 8 Kalele S A, Kundu A A, Gosavi S W. Rapid detection of *Escherichia coli* by using antibody-conjugated silver nanoshells. *Small*, 2006, 2: 335–338
- 9 Toscano G, Raza S, Yan W, et al. Nonlocal response in plasmonic waveguiding with extreme light confinement. *Nanophotonics*, 2013, 2: 161–240
- 10 Agarwal G S, Pattanayak D N, Wolf E. Electromagnetic fields in spatially dispersive media. *Phys Rev B*. 1974, 10: 1447–1475
- 11 Fetter A L. Electrodynamics of a layered electron gas. I. Single layer. *Ann Phys-New York*, 1973, 81: 367–393
- 12 Johnson P B, Christy R W. Optical constants of the noble metals. *Phys Rev B*, 1972, 6: 4370–4379
- 13 Aubrecht L. Nonlinear theory of acoustic wave interaction with laser discharge. *Czech J Phys B*, 1971, 19: 19–24

- 14 Gary S K, Kupka T. Propagation of light in metallic nanowire arrays: Finite-difference time-domain studies of silver cylinders. *Phys Rev B*, 2003, 68: 045415
- 15 Jones W E, Kliewer K L, Fuchs R. Nonlocal theory of the optical properties of thin metallic films. *Phys Rev*, 1969, 178: 1201–1203
- 16 Kottmann J, Martin O, Smith D, et al. Spectral response of plasmon resonant nanoparticles with a non-regular shape. *Opt Exp*, 2000, 6: 213–219
- 17 Kottmann J, Martin O, Smith D, et al. Plasmon resonances of silver nanowires with a non-regular cross section. *Phys Rev B*, 2001, 64: 235402
- 18 Kelly K, Coronado E, Zhao L L, et al. The optical properties of metal nanoparticles: The influence of size, shape, and dielectric environment. *J Phys Chem B*, 2003, 107: 668–677
- 19 Camden J P, Dieringer J A, Wang Y, et al. Probing the structure of single-molecule surface-enhanced Raman scattering hot spots. *J Am Chem Soc*, 2008, 130: 12616–12617

Study the nonlocal optical properties of typical two-dimensional nanostructures

CHEN Chen¹, FANG Ming¹, HUANG ZhiXiang¹ & WU XianLiang^{1,2}

¹ Key Laboratory of Intelligent Computing and Signal Processing, Anhui University, Hefei 230039, China;

² School of Electronic and Information Engineering, Hefei Normal University, Hefei 230061, China

Due to the existence of the quantum effect, the characteristics of nanostructure is difficult to explain entirely based on classical mechanics method. With the development of the FDTD method, its application in the field of optics is becoming increasingly widespread. In this paper, based on finite difference time domain (FDTD) method to study the nonlocal optical properties of two-dimensional structures was applied directly. The existence conditions of local and nonlocal optical characteristics under different nanometer radius, the impact of structural shapes with their extinction cross section properties were also obtained. The numerical results clearly show that with the decrease of the nanometer structure size and the shape of the structure, the non-locality becomes more pronounced. Our theory and results can provide a reference for the practical design of new nanoscale devices.

nanostructure, finite-difference time-domain, the optical properties, nonlocal

doi: 10.1360/N092014-00282