

表面等离子激元强弱耦合的频域和时域研究

宋瀚法 胡小永[†]

北京大学物理学院人工微结构和介观物理重点实验室, 北京 100871; [†] 通信作者, E-mail: xiaoyonghu@pku.edu.cn

摘要 从频域和时域两个维度研究表面等离子激元耦合系统在强耦合与弱耦合区域的特性, 在理论上研究给定参数的表面等离子激元耦合系统的本征频率、损耗以及亮暗模式随耦合强度的演化。在频域上对门结构在强耦合区域的杂化模式特征、散射光谱特性、偶极子与四极子模式的劈裂情况进行数值计算; 在时域上, 由于激发出两个不同频率的杂化模式叠加形成拍频, 利用拍频信号周期可以精确地给出杂化模式的频率, 得到散射光谱对应的频率不是精确的模式频率的结论。通过扫描耦合距离观察模式演化, 找到奇异点所处区域, 通过系统的频域响应拟合, 确定奇异点的位置。在弱耦合区域, 时域计算给出亮暗模式分别按自身衰减速率衰减的预期结果。

关键词 局域表面表面等离子激元; 强耦合; 弱耦合; 奇异点; 耦合模方程

Study on Strong and Weak Coupling for Surface Plasmon Resonance in Both Frequency and Time Domain

SONG Hanfa, HU Xiaoyong[†]

State Key Laboratory for Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871; [†] Corresponding author, E-mail: xiaoyonghu@pku.edu.cn

Abstract A study is proposed creatively on the strong and weak coupling properties of plasmon coupling systems in both frequency domain and time domain. Theoretically, calculations on the eigen-frequencies, decay rates and the evolutions of bright and dark mode with respect to the strength of coupling under a certain system are performed. Numerically, in the frequency domain calculations on the features of hybridized modes and scattering spectrum and also the splitting phenomenon of bright and dark modes are performed. In the time domain, the periodicity of the beat pattern from the hybridized modes with a difference in frequency is utilized to determine the precise eigen-frequencies of the hybridized modes. From the time domain calculations, the precise eigen-frequencies are close but do not absolutely correspond to the two peaks of the scattering spectrum. By sweeping the coupling distance and measuring the mode evolution, the area where the exceptional point exists is found and specified by fitting to the frequency domain response. In the weak coupling domain, time domain calculations show as expected that both the bright mode and dark mode decay with their individual decay rates.

Key word localized surface plasmon polartion; strong coupling; weak coupling; exceptional point; coupled mode equation

由于局域表面等离子激元(localized surface plasmon resonance, LSPR)的存在, 贵金属纳米粒子可以将光场局域在深亚波长的尺度上, 并且有巨大的近场增强^[1]。基于局域表面等离子激元的强局域性, 人们提出许多相关应用, 如超小光子回路^[2]、表面增强拉曼光谱^[3]和生物传感器^[4]等。在这些应用中,

共振频率作为系统最重要的参量, 受很多因素的影响, 如所处介质环境的折射率^[5]、入射光偏振态^[6]、纳米粒子的种类形状和大小^[7]以及由耦合引起的本征频率漂移^[8]。当两个或多个纳米粒子相互靠近到几十纳米量级时, 将会形成杂化模式, 即表面等离子激元耦合^[9]。与本征模式相比, 杂化模式会有频率

的移动, 这个移动的大小和方向与耦合强度相关。对于非厄米(开放)系统, 两个本征模式在“奇异点”(EP)相互合并, 成为两个简并模式^[10], 这意味着它们的本征值实部和虚部都完全相同。奇异点也就是强弱耦合区的临界点。表面等离激元耦合系统是典型的非厄米系统, 可以用来研究强耦合与弱耦合区域模式的性质。非厄米耦合系统性质的研究对PT对称性的研究^[11]和非厄米物理的研究^[12]有重要意义, 如利用增益损耗的空间调制实现的单模激光器^[13]。

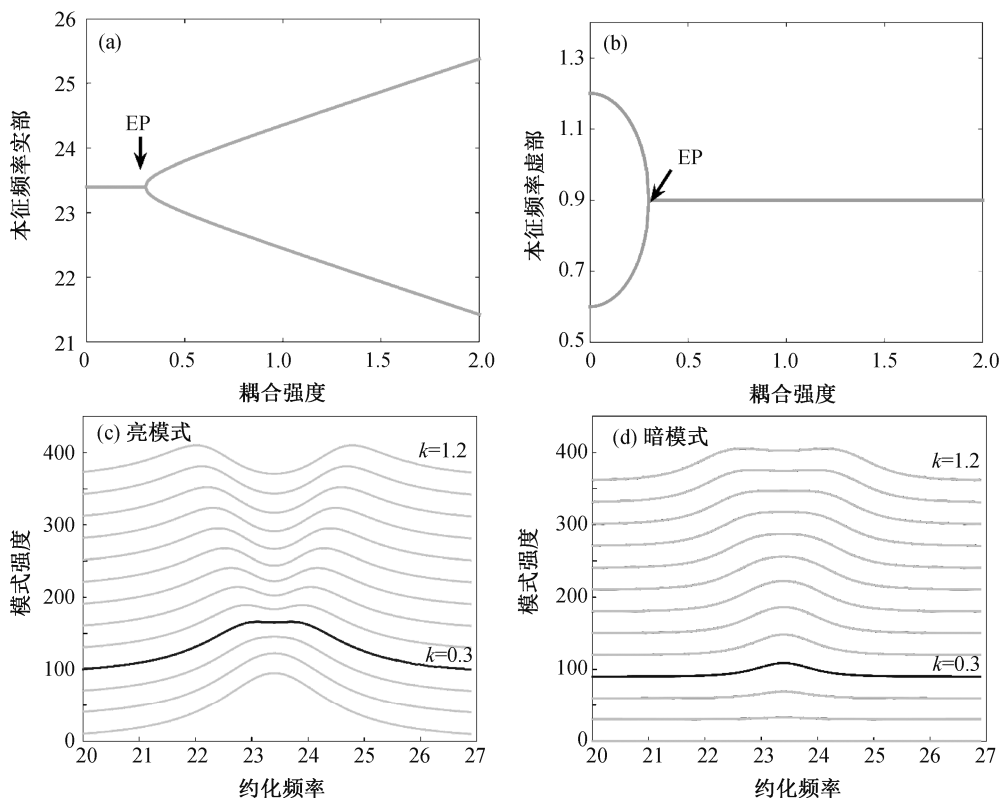
门型结构属于表面等离激元耦合结构中的典型结构之一, 由一个可以与自由空间光直接耦合的低Q值亮态原子(偶极模式)和不能与自由空间光直接耦合的高Q值暗态原子(四极模式)组成, 这种系统可以实现电磁诱导透明现象^[14]。除平面的结构外, 还有研究者提出三维层叠的门型结构, 从而通过辐射场耦合实现电磁诱导吸收现象^[15]。2016年, Yu等^[16]提出在门型结构中杂化的表面等离激元模式占据主导地位。他们还提出通过调控亮原子与暗原子

的距离来调控耦合强度, 从而实现从弱耦合到强耦合的控制, 但没有给出判断强弱耦合的定量标准和判据以及奇异点的位置。强耦合系统的模式劈裂现象和反交叉现象在诸多体系(如微腔众多的光子-光子^[17]和光子-激子^[18])中有所报道, 但对于表面等离激元耦合体系的研究大多局限在频域上。

本文首次在时域和频率两个维度上, 对表面等离激元耦合系统在强耦合与弱耦合两个区域的特性进行细致的研究, 给出频域上难以得到的结果, 并且可以从另一个角度印证频域结果, 丰富了这个领域的研究手段。此外, 对表面等离激元耦合体系时域的实验研究还较少, 我们提出利用宽谱的超短脉冲激发两个杂化模式, 从而探测近场的拍频信号, 实现时域上对表面等离激元耦合系统的表征。

1 理论模型

利用耦合模理论^[19]可以系统地定量研究门型结构这种非厄米体系的模式演化特征。一个共振频率为 ω_0 , 本征损耗为 γ_1 的偶极子与一个相同共振频



耦合强度从 0 依次增加 0.1 到 1.2, 亮暗模式的约化频率为 23.4, 本征损耗分别为 1.2 和 0.6, 入射光激发强度设为 10。为了表示方便, 约化频率定义为 $2\pi f \times 10^{-14}$, f 为国际单位制下的频率

图 1 本征值实部(a)和虚部(b), 以及亮模式(c)和暗模式(d)随耦合强度的变化
Fig. 1 Variation of the real (a) and imaginary (b) part of eigen-value according to coupling strength, and evolution of bright (c) and dark (d) mode against coupling strength

率, 本征损耗为 γ_2 的四极子模式的耦合可用如下公式描述:

$$\begin{bmatrix} -\omega + \omega_1 - i\gamma_1 & -\kappa \\ -\kappa & -\omega + \omega_2 - i\gamma_2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} g \\ 0 \end{bmatrix} E_0, \quad (1)$$

其中, κ 是耦合强度, g 是入射光耦合到偶极子模式的激发强度, E_0 代表入射光场, A_1 和 A_2 分别代表偶极模式和四极模式的复振幅。在弱耦合情况 ($\kappa < \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2}$) 下, 通过式(1)可以得到模式本征频率与耦合强度的关系为

$$\omega = \omega_0 + i(\gamma_1 + \gamma_2)/2 \pm i\sqrt{\frac{(\gamma_1 - \gamma_2)^2}{4} - \kappa^2}. \quad (2)$$

可以看到, 在弱耦合情况下, 本征值的实部(本征频率)并不发生变化, 而本征值的虚部(损耗(模式寿命))随着耦合强度发生变化。在强耦合情况 ($\kappa > \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2}$) 下, 此关系为

$$\omega = \omega_0 \pm \sqrt{\kappa^2 - \frac{(\gamma_1 - \gamma_2)^2}{4}} + i(\gamma_1 + \gamma_2)/2. \quad (3)$$

在强耦合区, 本征值的虚部保持不变, 而实部发生劈裂, 并且这种劈裂随着耦合强度的增大而增

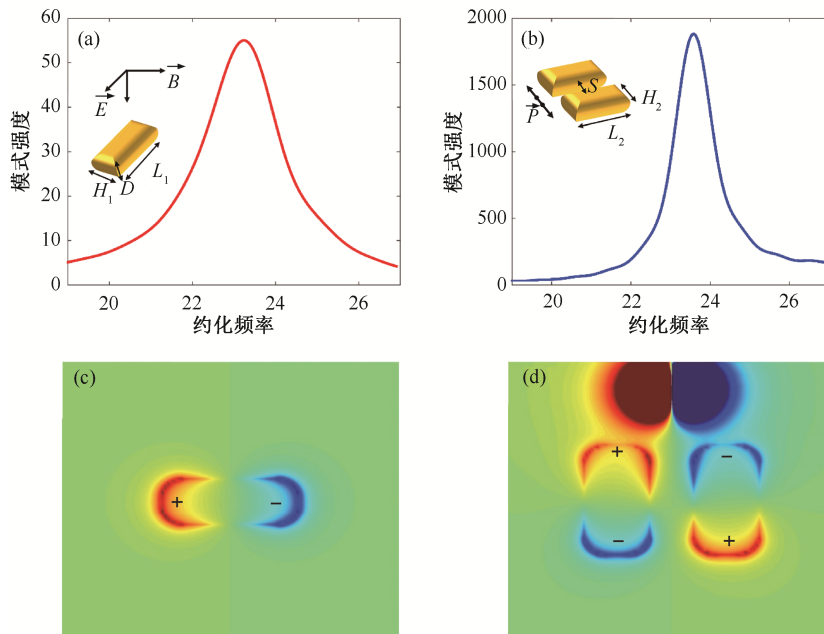
大。奇异点发生在 ($\kappa = \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2}$) 的情况下, 容易验证

两模式本征值的实部相等, 虚部亦然, 模式简并。

图 1(a)和(b)为一个确定的耦合系统的本征值实部和虚部随耦合强度的变化关系。具体到亮暗模式自身的变化趋势, 如图 1(c)和(d)所示。可以看到在 $\kappa=0$ 的情况下, 由于没有耦合, 亮模式是一个标准的洛伦兹线型, 而暗模式不能被激发。在 κ 逐渐增大到 0.3 的过程中(弱耦合区), 可以看到亮模式有逐渐演化出两个峰的趋势, 而暗模式逐渐增强, 还是单峰。在 κ 超过 0.3 达到强耦合区域继续增加的过程中, 亮模式的劈裂逐渐增大, 而暗模式也逐渐演化出两个峰, 准确地说, 此时不存在亮暗模式, 取而代之的是两个不同频率的杂化模式^[20]。

2 结果分析和讨论

时域有限差分(finite-difference time-domain, FDTD)算法可以对光场在微结构中的瞬态和稳态性质进行数值计算^[21]。通过设计金纳米棒的几何参数, 可以使得偶极子与四极子的共振频率相当接近, 如图 2(a)和(b)所示, 平面波激发的偶极模式与偶极子激发的四极模式的简化共振频率分别为 23.3 和



(a) 平面波激发的偶极模式强度, 偏振平行金纳米棒的长边方向; (b) 偶极子激发的四极模式强度, 偶极子偏振在结构面内垂直纳米棒长边方向; (c) 偶极子在共振频率的电荷分布; (d) 四极子在共振频率的电荷分布。 $L_1=122$ nm, $H_1=50$ nm, $L_2=120$ nm, $H_2=60$ nm, $D=30$ nm, $S=50$ nm, 考虑实际的微纳制备情况, 对金纳米棒加半径为 20 nm 的倒角

图 2 偶极模式强度和四极模式强度及其在共振频率的电荷分布

Fig. 2 Strength of dipolar and quadrupolar mode under plane wave excitation with polarization parallel to the long axis of nanorod and their charge distribution at resonance frequency

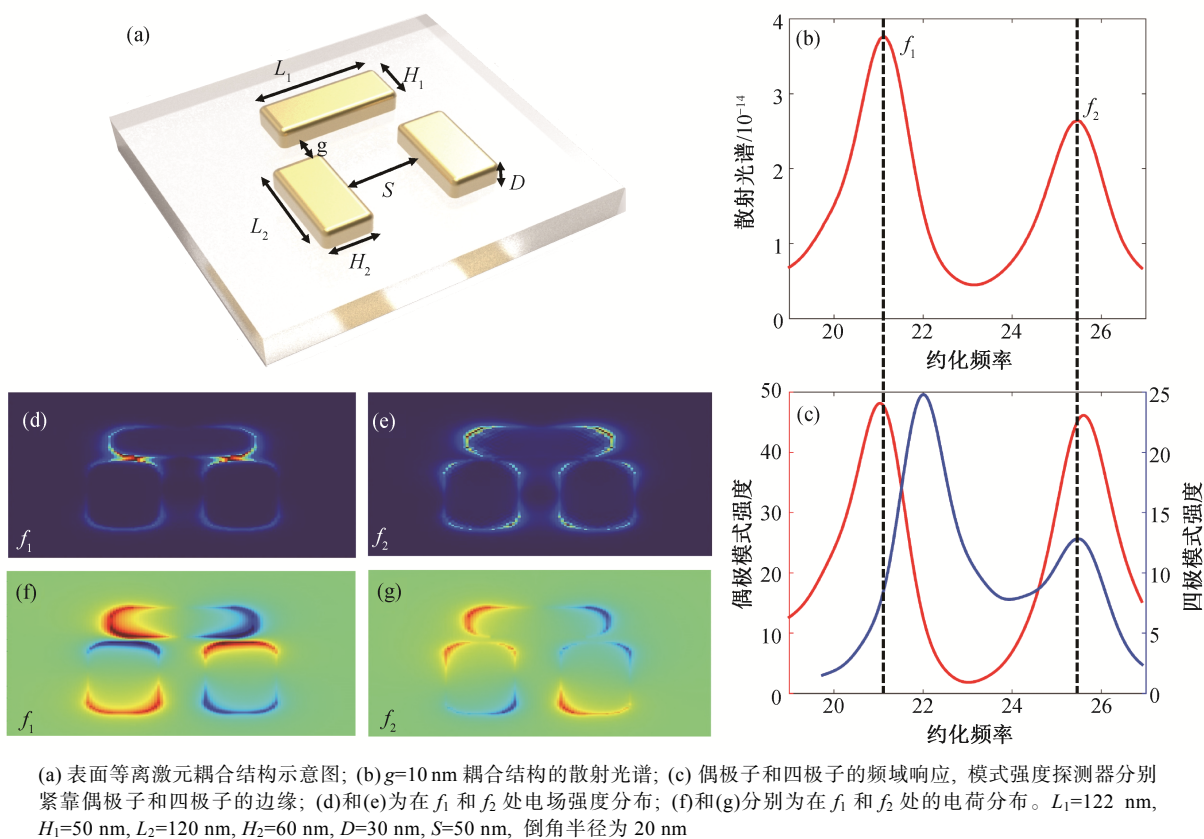


图3 表面等离激元耦合结构
Fig. 3 Schematics of plasmon coupling system

23.5, 可以近似地视为重合, 通过洛伦兹拟合它们的近场响应可以分别得到本征损耗分别为1.2和0.6。图2(c)和(d)分别呈现偶极子和四极子在共振波长处的电荷分布, 可以证明模式的正确性。

本文考虑的耦合结构如图3(c)所示, 首先我考虑耦合距离 $g=10\text{ nm}$ 的情况。耦合结构的散射光谱如

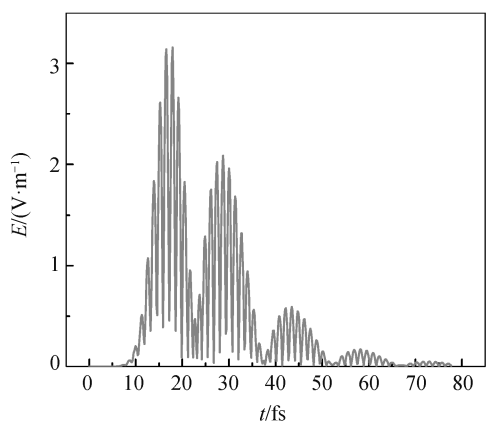


图4 偶极子模式处电场的时域演化
Fig. 4 Time evolution of electric field for a time monitor close to dipole mode

图3(a)所示, 可以看到散射谱有两个峰, 分别在约化频率 $f_1=21.1$ (890 nm), $f_2=25.5$ (740 nm)处。这两个频率对应的电场强度分布以及电荷分布如图3(d)~(g)所示, 可以看出偶极模式与四极模式发生强耦合, 从而产生两个杂化模式, 分别是低频 f_1 处的成键模式和高频 f_2 处的反成键模式。由于库仑力的作用, 电场分别呈现局域在缝隙处以及远端的情况。偶极模式与四极模式强度的频域响应如图3(b)所示, 可以看到偶极模式的两个峰与散射谱的两个峰相互对应, 比四极模式的劈裂程度大, 与之前的解析结论相互印证。事实上, 通过散射光谱以及模式的劈裂, 可以判断 $g=10\text{ nm}$ 处在强耦合区。

通过之前的频域分析, 可以得到系统处于强耦合区域的结论。但是, 由于表面等离激元模式线宽较大, 不能精确地判断两个杂化模式的频率, 只是粗略地选取两个散射峰处的频率作为杂化模式的频率, 大部分对表面等离激元耦合体系的频域研究都采用这样的方法^[14-16]。如果从时域角度分析, 则有更丰富的信息。取一个脉冲光源激发结构, 光源的

频谱以 800 nm 为中心波长, 频谱宽度为 200 nm, 脉冲时间为 10 fs 左右。在非常靠近偶极模式两端边缘处放置一个时域探测器, 得到如图 4 所示的电场时域信息, 可以非常明显地看到衰减的拍频信号。这个拍频信号正是由成键模式和反成键模式均被激发, 在空间上叠加造成的。提取出拍频信号的时间周期是 14.8 fs, 并考虑到对应的拍频电场信号模值的时间频率为 $\Delta\omega$, 计算出杂化模式的圆频率差为 4.25×10^{14} , 通过前面的频域计算结果, 得到两个散射峰的圆频率差为 $(f_1 - f_2) \times 10^{14} = 4.4 \times 10^{14}$ 。考虑到两个杂化模式是以 ω_0 为中心对称地向两侧劈裂, 可以精确地计算出两个杂化模式约化频率在 21.27 和 25.52 处, 即真正的本征频率与两个散射峰基本上对应, 但是稍有不同。频域和时域结果相互印证, 充分证明耦合处于强耦合区且有两个杂化模式, 能确切地给出两个杂化模式的频率。

此前关于表面等离激元耦合系统的研究很少明确地给出系统处于强耦合或弱耦合的状态, 原因是很难通过远场散射或者消光谱给出耦合区的强弱^[16]。本文通过定量分析近场模式的频域响应谱线, 可以精确地计算出系统耦合强度, 从而判断强弱耦合。为找到耦合系统的奇异点, 需了解表面等离激元耦合系统模式强度演化随耦合强度的关系。我们利用 FDTD, 从 g 值的 10~90 nm 区间每隔 10 nm 取一个点进行计算, 得到如图 5 所示的结果。可以看到, 模式频域响应的演化规律与图 1 的理论计算几乎完全一致, 奇异点对应的耦合强度在 $g=70$

nm 附近。继续增大 g , 会使得耦合强度逐渐降低为零, 最终暗模式将完全无法被激发。

对 $g=70$ nm 结构进行细致的研究, 结构的散射光谱如图 6(a) 所示。可以看到, 与 $g=10$ nm 的结构相比, 散射谱的两个峰的距离已经很近, 通过解析表达式拟合得到的偶极模式强度如图 6(c) 所示, 拟合得到的结果是 $\kappa=0.32 \approx (1.2-0.6)/2$, 基本上处于临界耦合的状态。通过数值模拟得到的模式分布如图 6(b), 偶极模式的劈裂很小, 四极模式则呈现很好的单峰形态, 与图 1 中的解析计算结果相符。事实上, 散射光谱的谷底位置 f 几乎刚好对应四极模式的共振波长, 可以认为这个散射谷是由光在两个模式的两个不同路径的干涉相消造成的。图 6(d) 和 (e) 呈现在约化频率 f 处的电场强度以及电荷分布, 可以看到此时的四极模式较弱, 光场主要局域在偶极模式上。通过解析拟合可以得到, 在 $g=80$ nm 时的耦合强度为 0.26, 已经处于弱耦合区域。

与强耦合区域类似, 在弱耦合区域, 对 $g=90$ nm 的结构进行时域计算, 用相同的短脉冲光源激发, 在靠近偶极模式和四极模式的位置分别放置一个时间探针, 得到如图 7 所示的结果。可以看到, 此时没有出现强耦合时候的拍频现象。偶极模式和四极模式分别以相对较快和较慢的速度进行衰减, 与我们的期望完全一致。

3 结论

本文首次在频域和时域两个维度研究表面等离

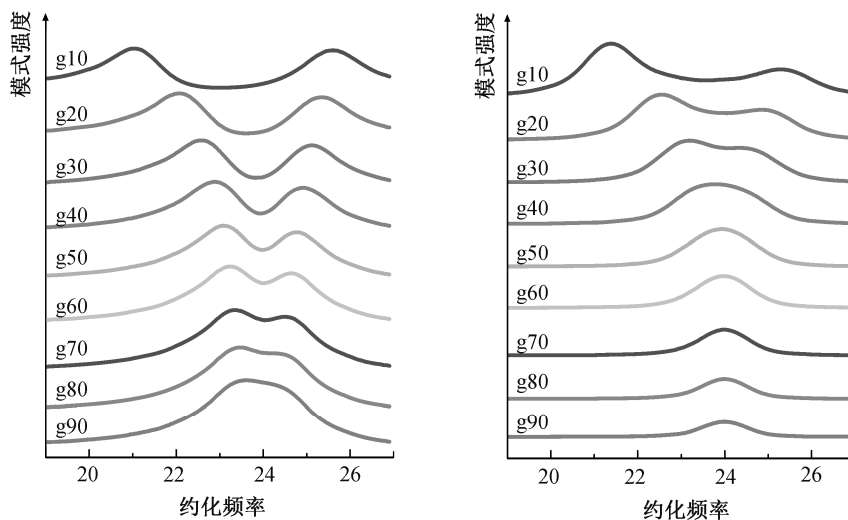
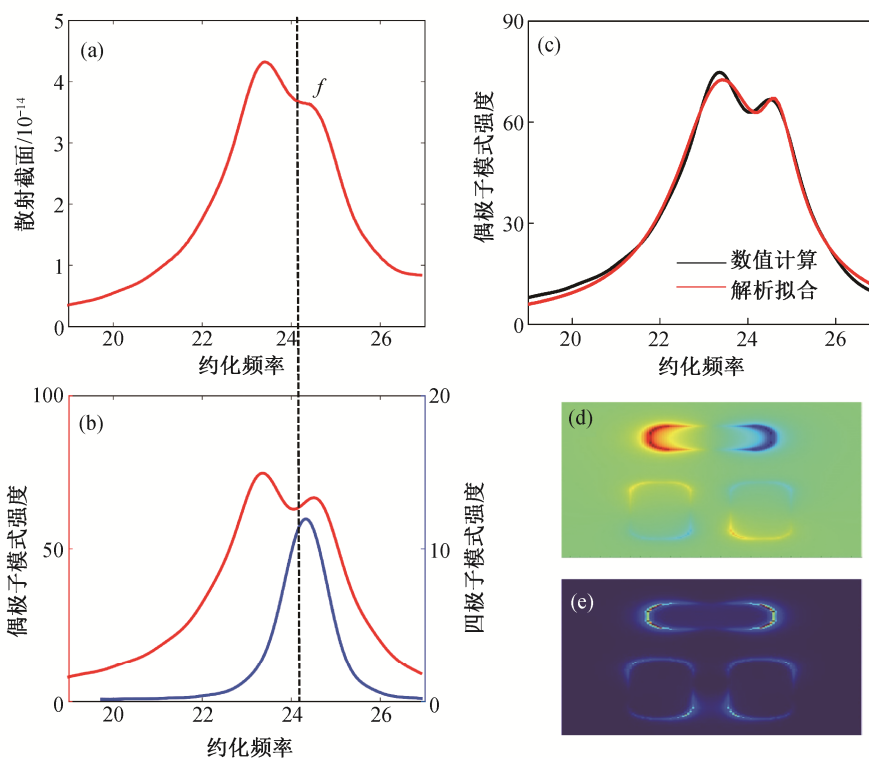


图 5 偶极模式强度(a)和四极模式强度(b)与耦合距离的关系
Fig. 5 Intensity of dipole (a) and quadrupole (b) mode against coupling distance



(a) $g=70\text{ nm}$ 耦合结构散射光谱; (b) 偶极模式和四级模式频域响应; (c) 解析公式对偶极频域响应拟合得到耦合强度; (d) f 处电荷分布; (e) f 处电场强度分布

图6 $g=70\text{ nm}$ 耦合结构散射光谱

Fig. 6 Scattering spectrum for $g=70\text{ nm}$ structure

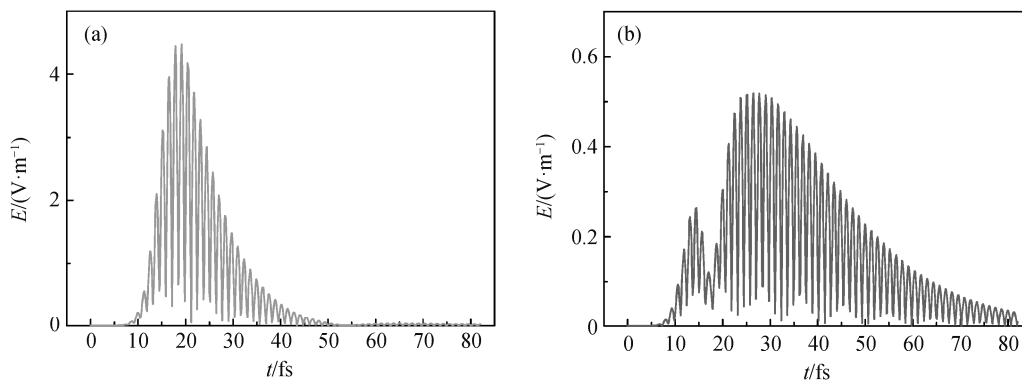


图7 偶极模式(a)和四极模式(b)的时域演化

Fig. 7 Time evolution of dipole (a) and quadrupole (b) mode

激元系统强耦合与弱耦合情形下的特性。我们首先解析计算一个给定的耦合系统本征值实部和虚部随耦合强度的演化规律, 并且得到不同耦合强度下的亮暗模式的演化情况, 得到奇异点处模式简并以及亮暗模式此时的分布特征。在频域上利用 FDTD 数值, 模拟门结构在小耦合距离(10 nm)情形下的光谱特性以及场分布特征, 从频域上确认其处于强耦合

区; 在时域上, 利用两个不同频率杂化模式的叠加形成拍频信号的周期, 反推出两个杂化模式的精确频率, 从时域角度进一步印证了强耦合。增大耦合距离(70 nm), 计算光谱以及场分布特征, 并通过模式强度的频域响应以及解析拟合分别确认系统处于耦合的奇异点位置。进一步增大耦合距离到弱耦合区域(100 nm), 利用时域计算结果, 看到不同于强

耦合区域的拍频信号, 我们只能看到亮暗模式分别以各自的衰减速率衰减。本文的研究结果可以使人们在更多维度上对模式耦合体系的特性有深入的理解, 并希望此结果对相关实验工作有所启示。

参考文献

- [1] Banes Wi L, Dereux A, Ebbesen T W. Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 2003, 424: 824–830
- [2] Ozbay E. Plasmonics: merging photonics and electronics at nanoscale dimensions. *Science*, 2006, 311: 189–193
- [3] Nie Shuming, Emory S R. Probing single molecules and single nanoparticles by surface-enhanced Raman scattering. *Science*, 1997, 275: 1102–1106
- [4] Rodrigo D, Limaj O, Janner D, et al. Mid-infrared plasmonic biosensing with graphene. *Science*, 2015, 349: 165–168
- [5] Rifat A A, Mahdiraji G A, Sua Y M, et al. Highly sensitive multi-core flat fiber surface plasmon resonance refractive index sensor. *Optics Express*, 2016, 24(3): 2485–2495
- [6] Hutter E, Fendler J H. Exploitation of localized surface plasmon resonance. *Advanced Materials*, 2004, 16(19): 1685–1706
- [7] Mayer K M, Hafner J H. Localized surface plasmon resonance sensors. *Chemical Reviews*, 2011, 111(6): 3828–3857
- [8] Atay T, Song J H, Nurmikko A V. Strongly interacting plasmon nanoparticle pairs: from dipole-dipole interaction to conductively coupled regime. *Nano Letters*, 2004, 4(9): 1627–1631
- [9] Jain P K, Mostafa A. Plasmonic coupling in noble metal nanostructures. *Chemical Physics Letters*, 2010, 487: 153–164
- [10] Rüter C E, Makris K G, El-Ganainy R, et al. Observation of parity-time symmetry in optics. *Nature Physics*, 2010, 6(3): 192–195
- [11] Ge L, Stone A D. Parity-time symmetry breaking beyond one dimension: the role of degeneracy. *Physical Review X*, 2017, 4(3): 031011
- [12] El-Ganainy R, Makris K G, Khajavikhan M, et al. Non-Hermitian physics and PT symmetry. *Nature Physics*, 2018, 14(1): 11–19
- [13] Feng L, Wong Z J, Ma R M, et al. Single-mode laser by parity-time symmetry breaking. *Science*, 2014, 346: 972–975
- [14] Zhang S, Genov D A, Wang Y, et al. Plasmon-induced transparency in metamaterials. *Physical Review Letters*, 2008, 101(4): 047401
- [15] Taubert R, Hentschel M, Kästel J, et al. Classical analog of electromagnetically induced absorption in plasmonics. *Nano Letters*, 2012, 12(3): 1367–1371
- [16] Yu H, Sun Q, Ueno K, et al. Exploring coupled plasmonic nanostructures in the near field by photoemission electron microscopy. *ACS Nano*, 2016, 10(11): 10373–10381
- [17] Englund D, Majumdar A, Bajcsy M, et al. Ultrafast photon-photon interaction in a strongly coupled quantum dot-cavity system. *Physical Review Letters*, 2012, 108(9): 093604
- [18] Zheng Di, Zhang Shunping, Deng Qian, et al. Manipulating coherent plasmon-exciton interaction in a single silver nanorod on monolayer WSe₂. *Nano Letters*, 2017, 17(6): 3809–3814
- [19] Fan Shanhui, Suh Wonjoo, Joannopoulos J D. Temporal coupled-mode theory for the Fano resonance in optical resonators. *JOSA A*, 2003, 20(3): 569–572
- [20] Prodan E, Radloff C, Halas N J, et al. A hybridization model for the plasmon response of complex nanostructures. *Science*, 2003, 302: 419–422
- [21] Lovera A, Gallinet B, Nordlander P, et al. Mechanisms of Fano resonances in coupled plasmonic systems. *ACS Nano*, 2013, 7(5): 4527–4536