

# 古英 简历



1970年出生于新疆石河子

88.09–92.07, 南开大学物理系, 本科

92.09–95.07, 北京大学物理系, 硕士

95.10–01.08, 香港中文大学物理系, 博士

01.10–03.08, 北京大学物理学院, 博士后

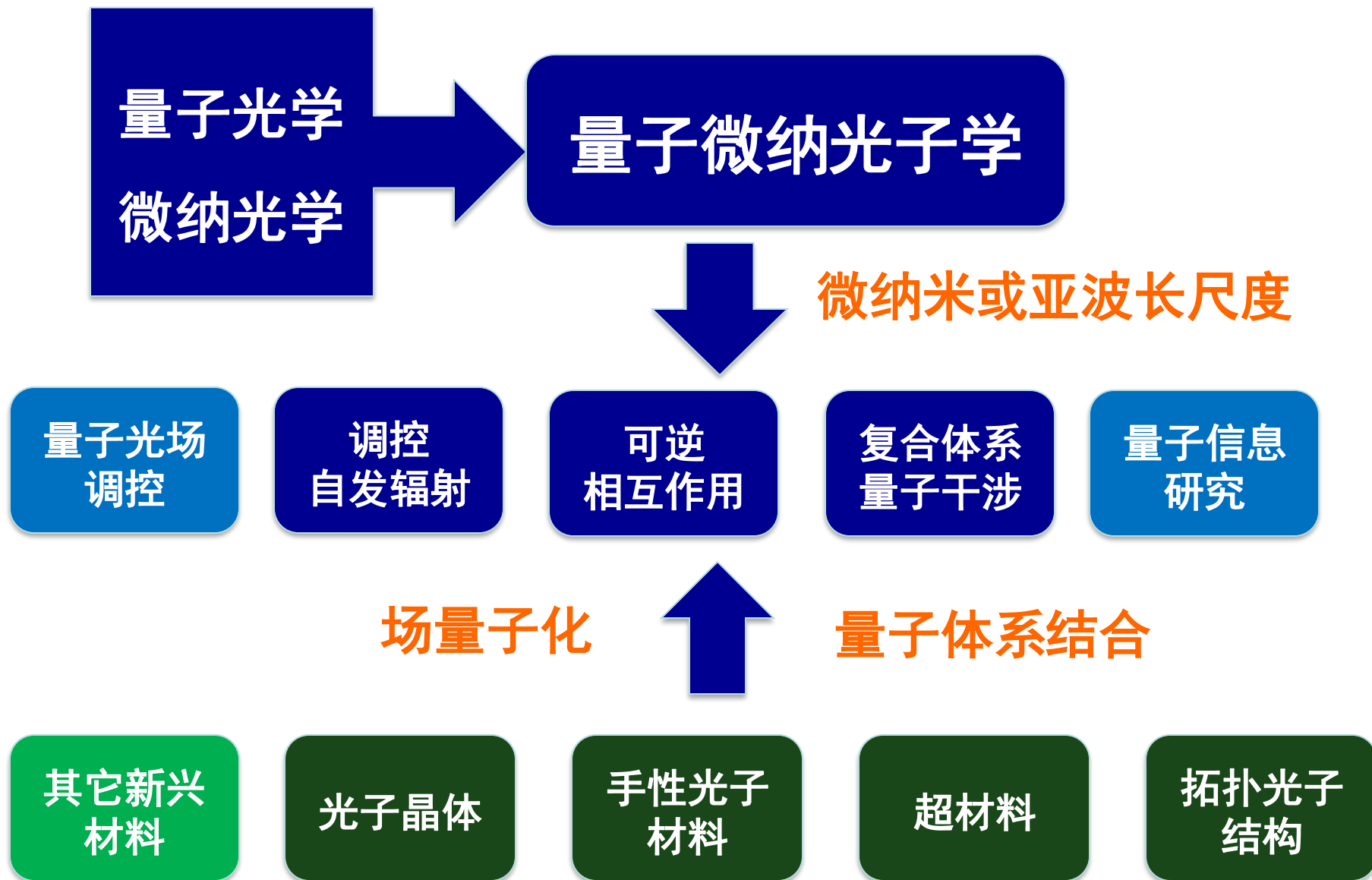
03.09–04.07, 北京大学物理学院, 讲师

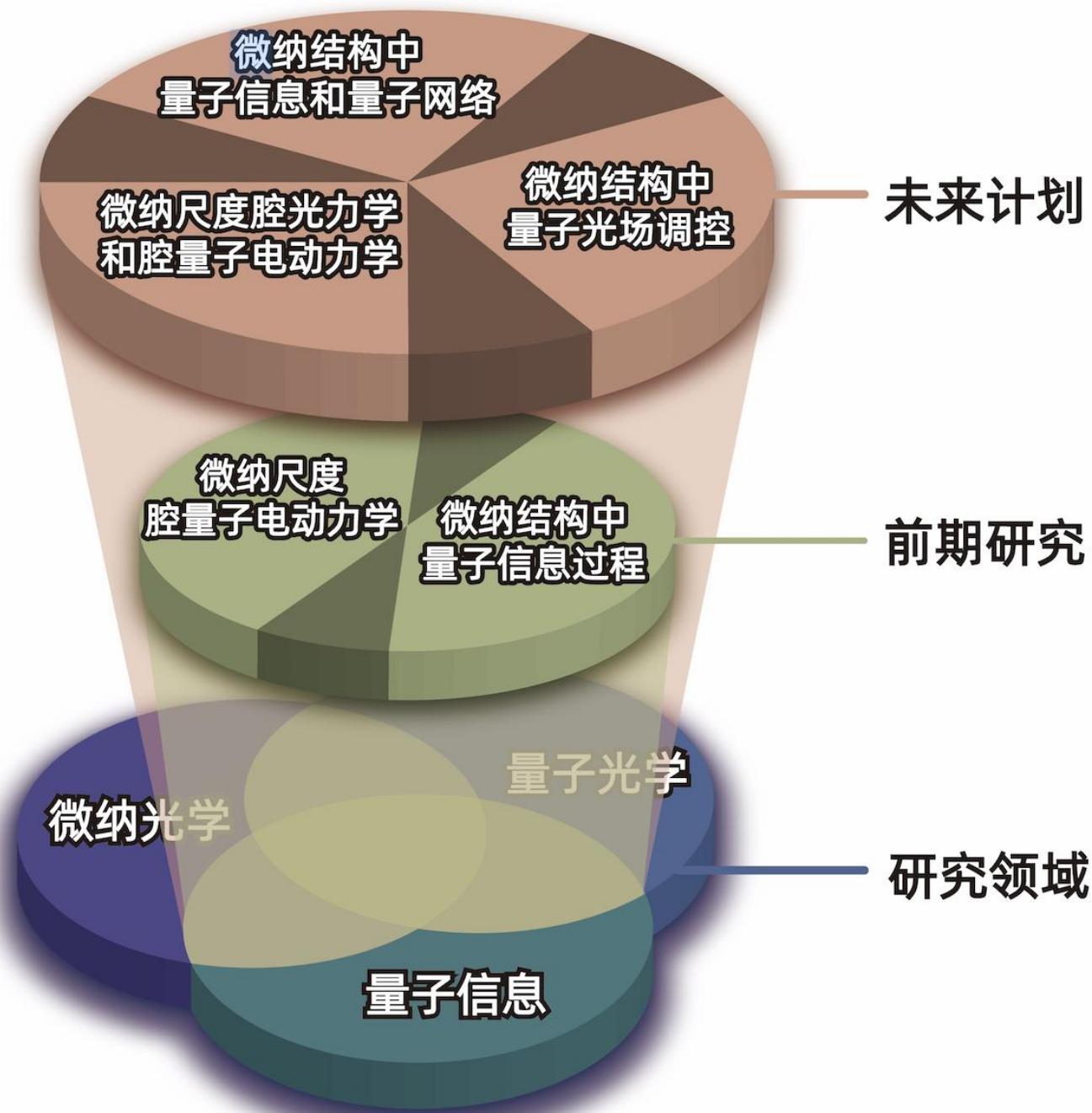
04.08 –17.07, 北京大学物理学院, 副教授

17.08 –至今, 北京大学物理学院, 博雅特聘教授

2015年, 获得国家杰出青年基金

# 研究概况





# 研究方向：微纳尺度量子光学与量子信息

致力于微纳光子学、量子光学和量子信息及其交叉领域的基础研究。

研究多种微纳光子结构及其组合中的**光学模式**，进而研究这些结构中的量子光场及其和量子体系的耦合、腔量子电动力学、量子干涉及量子信息等，揭示了微纳尺度光和量子体系相互作用的诸多新现象新效应，为芯片上量子光学和量子信息提供了新原理新思路。

在Nature nanotechnology、PRL、Chem.、nano letters、《物理》等高水平杂志发表论文百余篇，在国内外学术界产生一定的影响。

# 超材料光学

## Photonics for Metamaterials

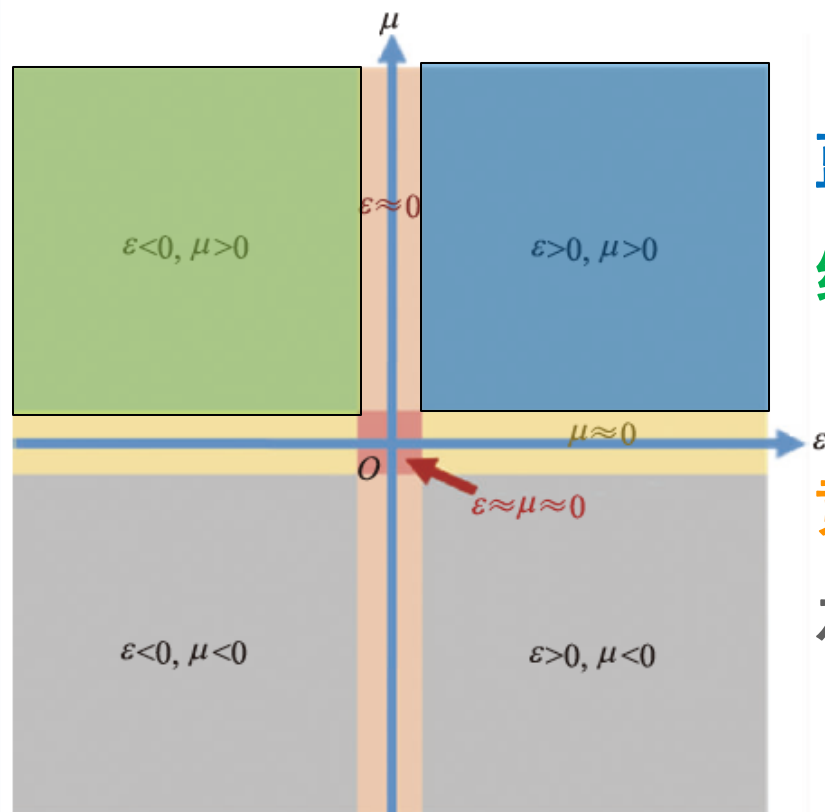
古 英 email: [ygu@pku.edu.cn](mailto:ygu@pku.edu.cn)

Tel: 62752882 物理楼 西406

基础: 光学、电动力学、一点量子光学

参数（介电常数、磁导率）在正常或异常区域（零、负数）的材料及其微纳结构的光学（可见光）性质及应用  
（提问: optics和photonics的区别和联系？）

## 介电常数和磁导率示意图



蓝色区域：常规材料

绿色区域：表面等离子激元

黄粉色区域：零折射率材料

灰色区域：磁导率为负

整个微纳光学的理论基础就是Maxwell方程

图改自“罗杰，赖耘，零折射率材料的物理与应用，物理，48卷7期，426（2019）”

## 为什么要研究微纳光学（重要性）：

光学本身就是实用性很强的学科：现实生活、工业生产、军事

诺贝尔奖：激光、全息、光纤、蓝光LED、STED等

微纳尺度上操控光 → 实用

操控光的什么性质呢？

$$\begin{aligned}\vec{E}(\vec{r}, t) &= A(\vec{r}) \cdot \cos(\vec{k} \cdot \vec{r} + \omega \cdot t + \delta_1) \cdot \vec{e}_1 \\ \vec{B}(\vec{r}, t) &= B(\vec{r}) \cdot \cos(\vec{k} \cdot \vec{r} + \omega \cdot t + \delta_2) \cdot \vec{e}_2\end{aligned}$$

传输、局域（增强）、聚焦、分束、存储等

如何操控？

材料设计、结构设计，或者两者结合

微纳光学，尤其是其中的超材料光学

就是在微纳尺度（亚波长）上操控（经典或量子）光场及其应用

# 课程简介和章节设置

## 第一章 表面等离子激元基础

### 1.1 特鲁德模型 (Drude model)

### 1.2 金属界面的表面等离子激元

### 1.3 平面表面等离子激元波导

### 1.4 Mie 理论

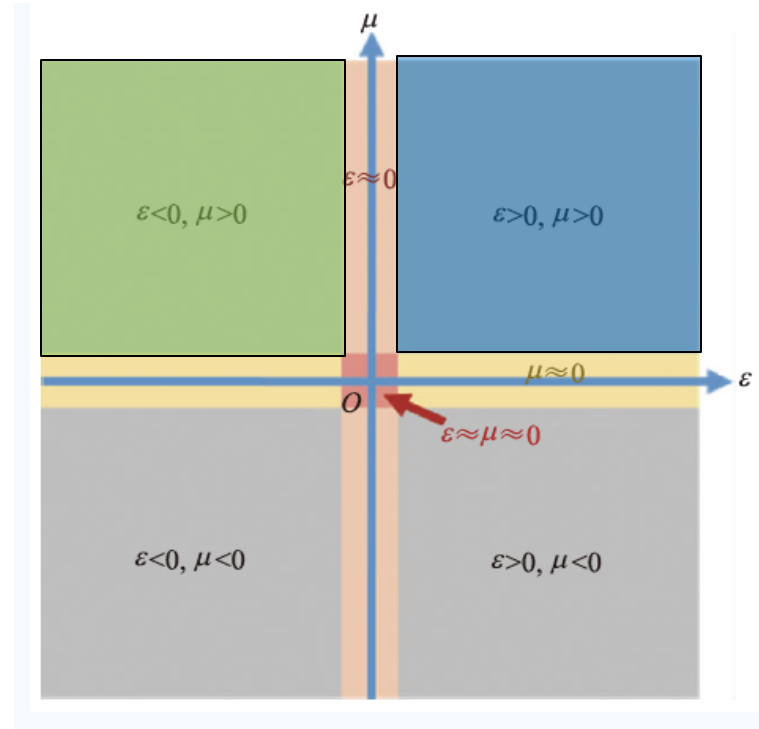
### 1.5 金属纳米球壳的Mie共振

## 第二章 表面等离子激元前沿及应用

### 2.1 表面等离子激元前沿

### 2.2 表面等离子激元的应用

## 第三章 微纳光学理论方法



# 章节设置

## 第四章 超表面及零折射率材料

### 4.1 零折射率材料及其应用

### 4.2 超表面及其应用

## 第五章 量子微纳光学

### 5.1 分子荧光

### 5.2 纳米结构近场区域偶极子弛豫系数

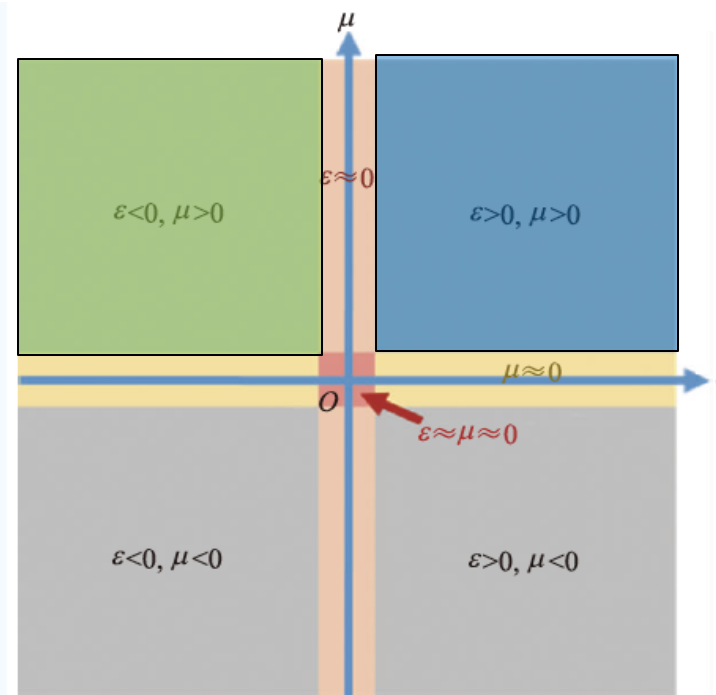
### 5.3 SPP增强分子荧光的前沿进展

### 5.4 SPP 的量子性

### 5.5 基于超表面的量子性质

### 5.6 基于拓扑光子结构的量子性质

### 5.7 微纳尺度腔量子电动力学及应用



## 作业及考试：

30分作业（见39页，选其一做） + 70分闭卷笔试

其中：《超材料光学》占1/3

Report：10分

阅读 20 篇以上文献后，亲自总结的5~8页的完整综述  
完整：

题目、摘要、章节（层状）、结论与展望、参考文献

要求：

独立撰写、交作业时间（5月15日前完成）

邮件发给：ygu@pku.edu.cn

# 第一章 表面等离激元基础

## 1.1 特鲁德模型 (Drude model)

## 1.2 金属界面的表面等离激元

## 1.3 平面表面等离激元波导

## 1.4 Mie 理论

## 1.5 金属纳米球壳的Mie共振

# 最早的表面等离子激元现象

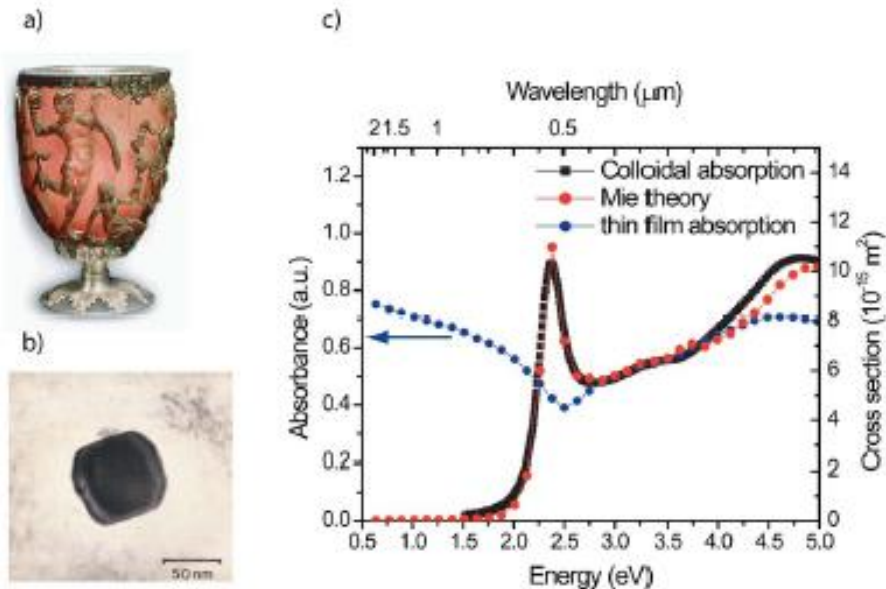


Fig. 1(a) by example of the Lycurgus cup (Byzantine empire, 4th century A. D.). The glass cup, on display in the British Museum, shows a striking red color when viewed in transmitted light, while appearing green in reflection. This peculiar behavior is due to small Au nanoparticles embedded in the glass [Fig. 1(b)], which show a strong optical absorption of light in the green part of the visible spectrum [Fig. 1(c)].

# 表面等离激元 plasmonics

研究： 金属和介质表面以及纳米金属颗粒  
的光学性质或光学响应

解读： **Surface plasmon polariton (SPP)**

**Surface:** 金属和介质的界面

**Plasmon:** 金属界面自由电子的集体振荡，  
借用等离子的概念

**Polariton:** 模式

属于： **Mesoscopic optics, nano optics,  
nano photonics, near field optics**

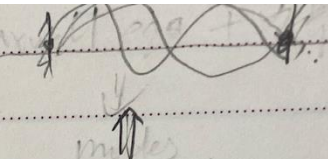
# 模式的概念

## 弹性模式

## 电磁模式

对金属来说，通常有

\* 弦问题



\* 弦问题的 modes  $\varphi_i$

$$\begin{cases} \psi_1 = \sum_i p_i \varphi_i \\ \psi_2 = \sum_i q_i \varphi_i \end{cases}$$

弹性方程 + 边界条件

\* modes, 它们之间是独立的  
它们都在

\* 电磁问题 (类似弦问题)

Maxwell equations + 边界条件

的解:

modes  $E_i$

\* 电磁 modes  $E_i$  也一样, 它们之间是独立的  
它们都在

① 对于表面等离子体来说, 由于金属

自由电子的 modes  $\rightarrow$  金属对电磁波的响应  $(n, \epsilon)$

$\rightarrow$  表面等离子体波

\* 另一个角度  $\epsilon(\omega) = n^2$

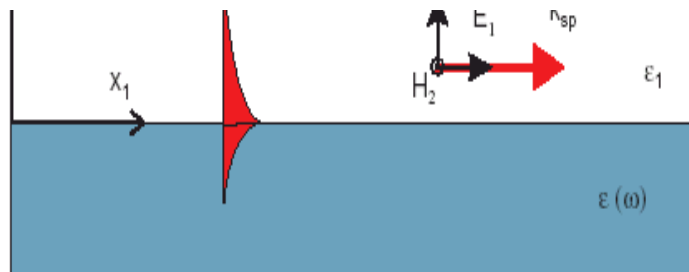
$$n = n_1 + i n_2$$

通常  $n_1 < 0$   $n_2 > 0 \Rightarrow \text{Re}(\epsilon(\omega)) < 0$

# Difference between surface plasmon (SP) and surface plasmon polaritons (SPP)

"a trapped surface mode which has electromagnetic fields decaying into both media but which, tied to the oscillatory surface charge density, propagates along the interface"

*R. J. Sambles 1991*



"we are dealing with a resonant excitation of a coupled state between the plasma oscillations and the photons, i.e., the plasmon surface polariton"

*W. Knoll 1991*

# 1.1 特鲁德模型 (Drude model)

## A. Dielectric constant $\epsilon(\omega)$

Frequency dependent, Drude free electrons model

Plasma: a medium with equal contribution of positive and negative charges, of which at least one charge type is mobile

加上电场  $\vec{E} = \vec{E}e^{i\omega t}$  后, 其振幅分量在金属表面上

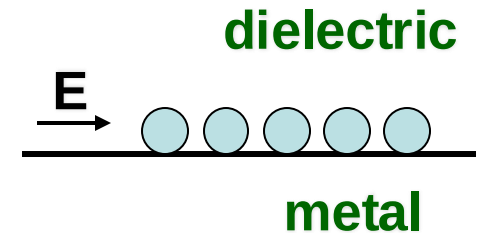
电子受力 (  $x \ll l_{\text{自}}$  )  $m \frac{d^2 x}{dt^2} = -e\vec{E}$

由于电子随EM field 以  $\omega$  振荡,

可令  $x = xe^{i\omega t}$

$$\text{则 } -\omega^2 mx = -eE \quad x = eE / m\omega^2$$

那么 dipole moment of one electron  $P_1 = -ex = -e^2 E / m\omega^2$



若电子密度是 $n$ ，则  $P(\omega) = nP_1 = -ne^2 E / m\omega^2$

目的是求  $\epsilon_m(\omega)$      Drude model of free electron

$$\epsilon_m(\omega) = \frac{D(\omega)}{E(\omega)} = \frac{E(\omega) + 4\pi P(\omega)}{E(\omega)} = 1 - \frac{4\pi ne^2}{m\omega^2}$$

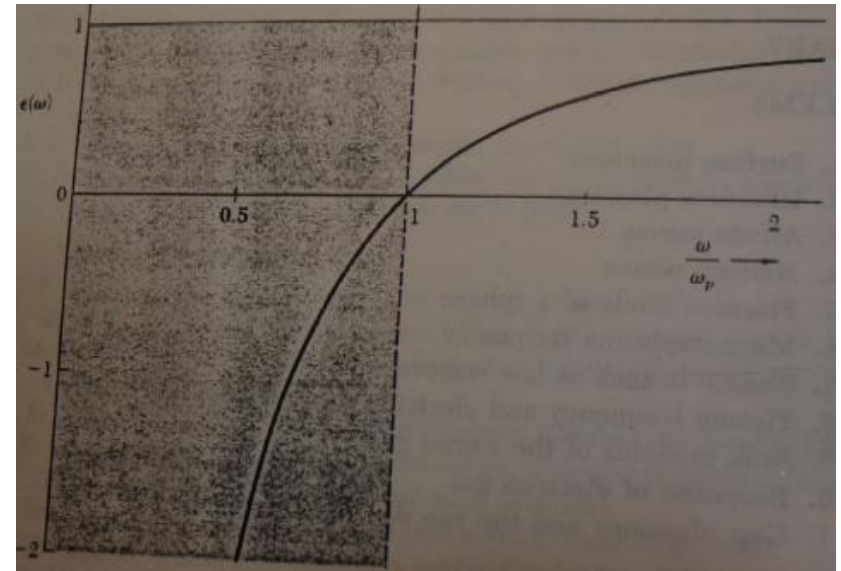
随 $\omega$ 变化， $\epsilon_m(\omega)$ 可正可负

$\epsilon_m(\omega) = 0$  时的 $\omega$

叫做 plasma frequency

$$\omega_p^2 = \frac{4\pi ne^2}{m}$$

$\omega_p$  主要和电子密度 $n$  相关



## B. 金属中的色散关系

由Drude model 可知  $\epsilon_m(\omega) = \epsilon_m(\infty) \left[ 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \right]$

考虑到电子不是free，而做的一个修正

考虑到损耗写成:  $\epsilon_m(\omega) = \epsilon_m(\infty) \left[ 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} \right]$

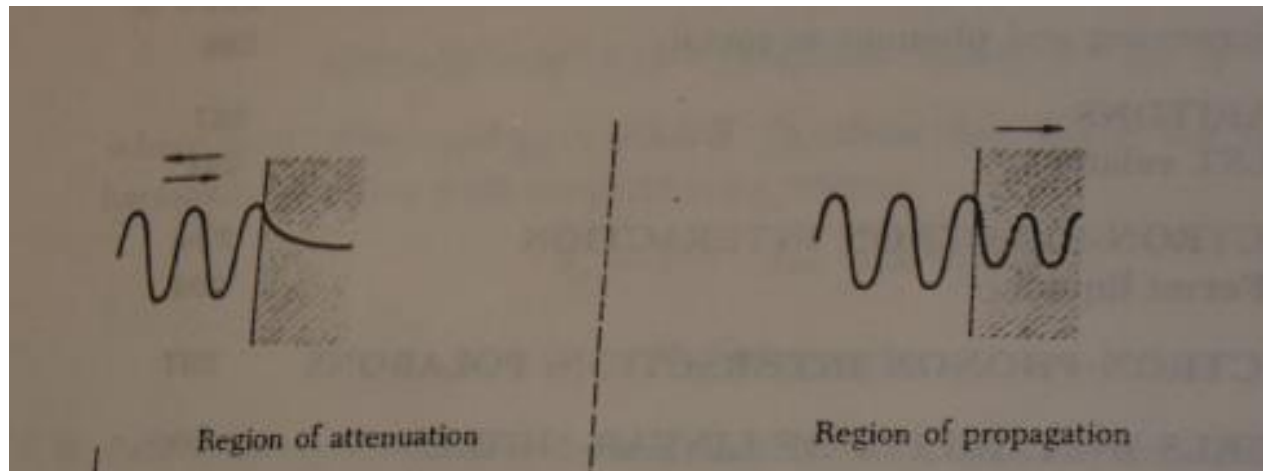
将  $\begin{cases} D = \epsilon_m(\omega)E \\ E = E_0 e^{ik_z z + i\omega t} \end{cases}$  代入传播方程  $\frac{\partial^2 D}{\partial t^2} = c^2 \nabla^2 E$

无损耗时，得到

$$\epsilon(\infty)[\omega^2 - \omega_p^2] = c^2 k_z^2 \quad \text{又知道传播因子是 } e^{ik_z z}$$

$$\varepsilon(\infty)[\omega^2 - \omega_p^2] = c^2 k_z^2$$

当 $k_z$ 是实数时，光传过去了，  
 $\omega > \omega_p \Rightarrow \varepsilon_m > 0$ ，等离子体频率以上



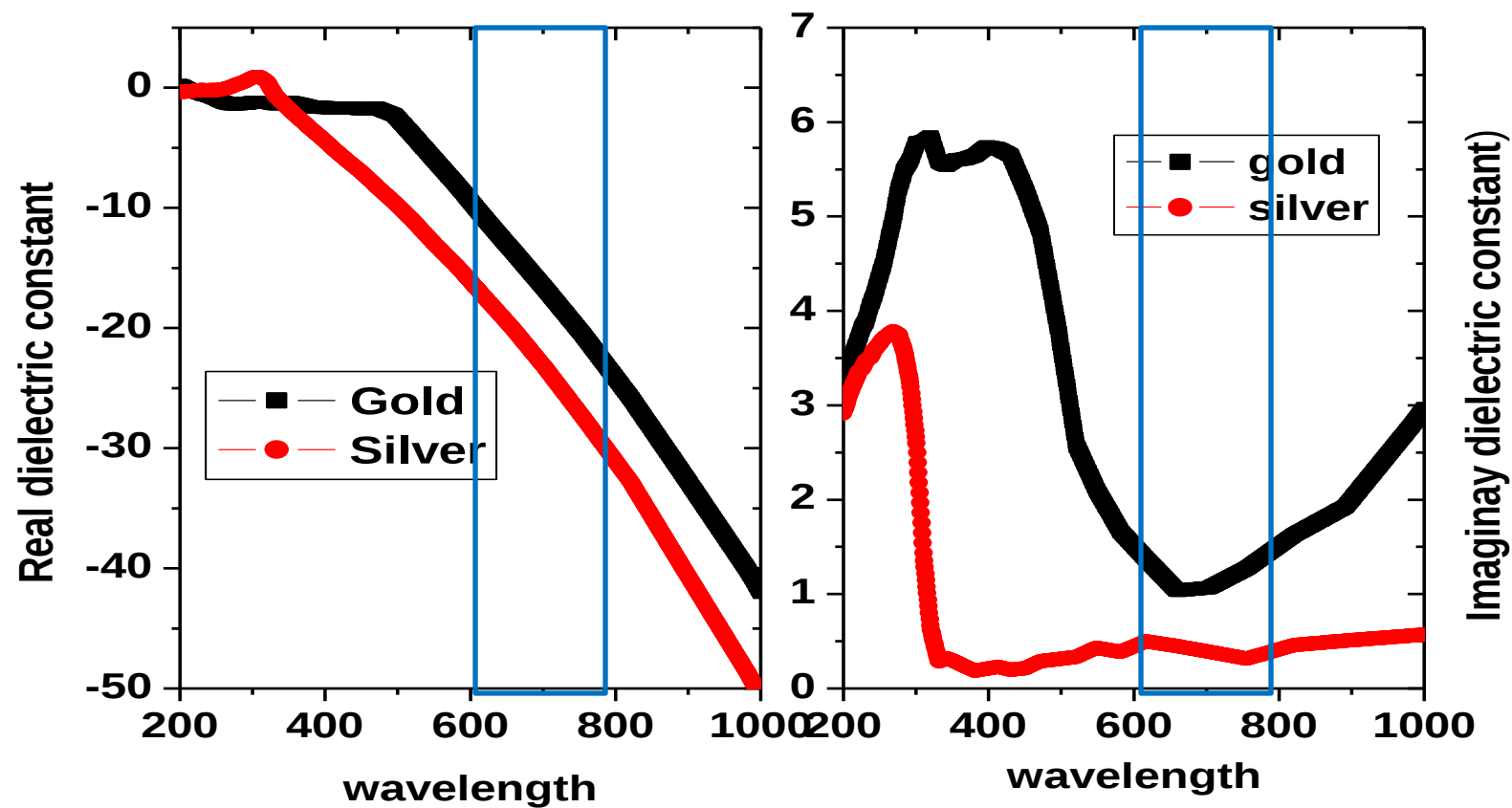
当 $k_z$ 是复数时，传不过去，趋肤效应  
 $\omega < \omega_p \Rightarrow \varepsilon_m < 0$ ，等离子体频率以下

[Introduction to solid state physics](#), Chapter 10, Charles Kittel, Seventh Edition.

当amplitude of E 衰减到 $e^{-1}$ 时, skin depth:  $\delta = \frac{1}{|k_z|}$   
其中,  $\omega$ 越小, 衰减越快,  $\delta$ 越薄

有了以上的准备工作后, 可以讨论surface plasmon了,  
以下的研究关注metal 的 $\epsilon_m < 0$ 的区域

## 金和银的介电常数值



Optical Constants of the Noble Metals PRB, 6, 4370 (1972).

P. B. Johnson and R. W. Christy

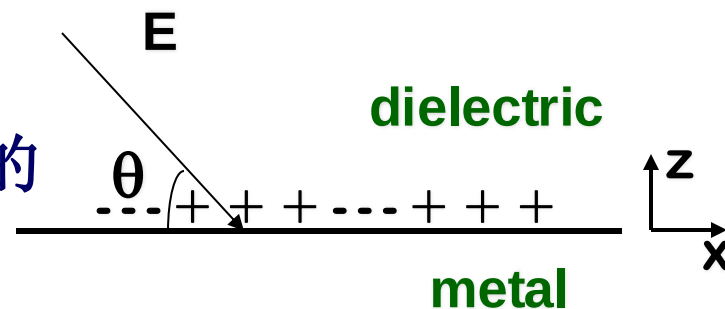


## 1.2 金属界面的表面等离子激元

**Surface plasmon polariton (SPP):** P-polarized EM field 以  $\theta$  角入射到 metal 和 dielectric 界面上时, 出现 metal 表面自由电子的集体 oscillation, 通常, 这种 oscillation 或由 oscillation 引起的 EM field mode, 叫 SPP; 在 x 方向以表面波形式传播, 在 z 方向指数衰减。

以下关注 **SPP** 出现的条件:

- S 光还是 P 光 ?
- $\theta$  角表示  $k_z$  和  $k_x$  同时存在, 它们间的关联和作用 ?
- $\epsilon_d$  和  $\epsilon_m$  间的关系如何?
- SPP 的色散关系是怎样的 ?
- SPP 的传播长度 ?
- SPP 在金属和介质中的倏逝行为?



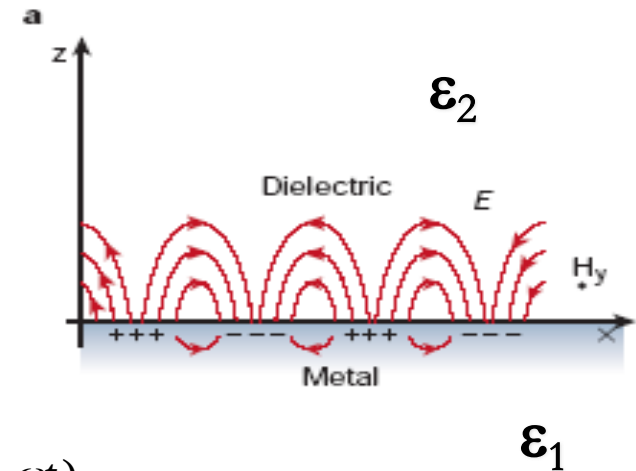
23

以上问题是在 *maxwell* 方程的框架下并结合金属性质而解决的

# A. Dispersion relations of SPP

## Model setup

**P-polarized EM wave**入射到金属和介质表面上，介质是 $\epsilon_2$ ，金属是 $\epsilon_1$



$$z > 0, H_2 = (0, H_{y_2}, 0)e^{i(k_{x_2}x + k_{z_2}z - \omega t)}$$

$$E_2 = (E_{x_2}, 0, E_{z_2})e^{i(k_{x_2}x + k_{z_2}z - \omega t)}$$

$$z < 0, H_1 = (0, H_{y_1}, 0)e^{i(k_{x_1}x - k_{z_1}z - \omega t)}$$

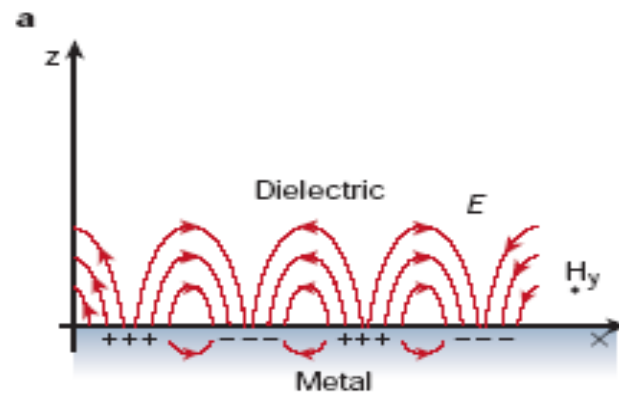
$$E_1 = (E_{x_1}, 0, E_{z_1})e^{i(k_{x_1}x - k_{z_1}z - \omega t)}$$

求解过程:

由Maxwell 方程得

$$\begin{cases} \nabla \times H_i = \frac{\varepsilon_i}{c} \frac{\partial E_i}{\partial t} \\ \nabla \times E_i = -\frac{1}{c} \frac{\partial H_i}{\partial t} \\ \nabla \cdot (\varepsilon_i E_i) = 0 \\ \nabla \cdot H_i = 0 \end{cases}$$

由边条件



$$\begin{cases} k_{z1} H_{y1} = \frac{\omega}{c} \varepsilon_1 E_{x1} \\ k_{z2} H_{y2} = -\frac{\omega}{c} \varepsilon_2 E_{x2} \end{cases} \quad (1)$$

$$\begin{cases} E_{x1} = E_{x2} \\ H_{y1} = H_{y2} \\ \varepsilon_1 E_{z1} = \varepsilon_2 E_{z2} \end{cases} \quad (2)$$

由 (1) 和 (2) 可得

$$\begin{cases} k_{x1} = k_{x2} = k_x & \text{(A)} \\ \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{z2}}{\varepsilon_2} = 0 & \text{(B)} \end{cases}$$

由传播方程

$$\frac{\partial^2 D}{\partial t^2} = c^2 \nabla^2 E \quad \longrightarrow \quad \boxed{\varepsilon_i \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 = k_x^2 + k_{zi}^2} \quad \text{(C)}$$

由以上 (A) , (B) 和 (C) , 化简可得  
dispersion relation

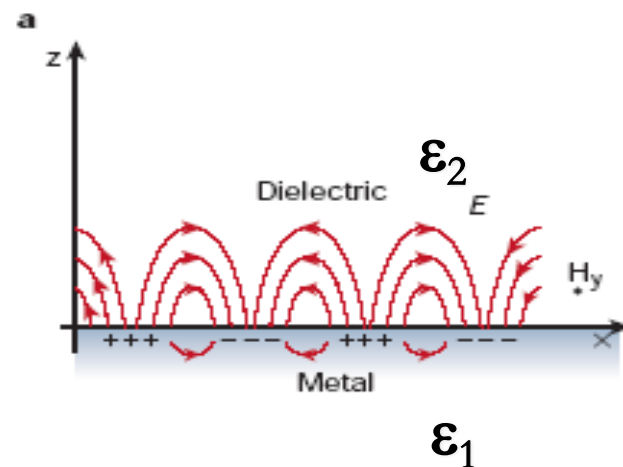
$$\boxed{k_x = \frac{\omega}{c} \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \right)^{1/2}}$$

知道了dispersion relation

$$k_x = \frac{\omega}{c} \left( \frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2} \right)^{1/2}$$

讨论SPP出现的条件

令  $\epsilon_1 = \epsilon_1' + i\epsilon_1''$  则  $k_x = k_x' + ik_x''$   
 $\epsilon_2$ 和  $\omega$ 都是实的

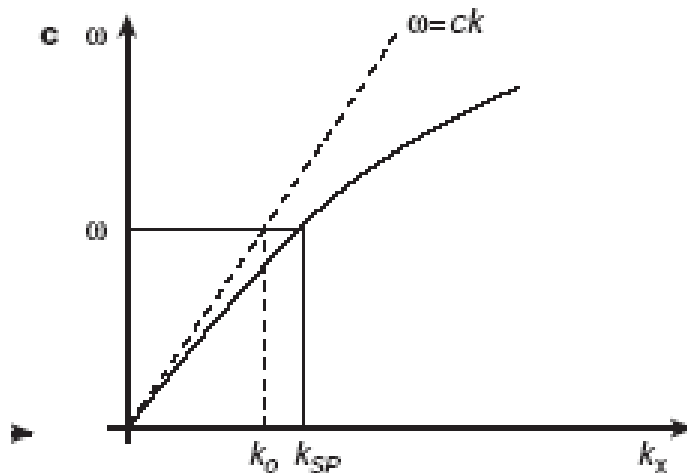


我们有

$$\begin{cases} k_x' = k_{sp} = \frac{\omega}{c} \left( \frac{\epsilon_1' \epsilon_2}{\epsilon_1' + \epsilon_2} \right)^{1/2} & (\star) \\ k_x'' = \frac{\omega}{c} \left( \frac{\epsilon_1' \epsilon_2}{\epsilon_1' + \epsilon_2} \right)^{3/2} \frac{\epsilon_1''}{2(\epsilon_1')^2} & (\text{推导繁琐}) \end{cases}$$

由于 $k_x'$  是实数，可以得到  $\varepsilon_1' < 0, |\varepsilon_1'| > \varepsilon_2$  ← SP出现的条件

在以上条件下，由（★）可得下图



可以看到：SP的波失大于光在介质中波失，直接用光不能激发出表面等离激元。

最后，将 $k_x'$   $k_x''$ 代入以上（C），得到  $k_{zi}^2 < 0$  （自己推一下），即z方向是倏逝波

## B. Properties of SPP

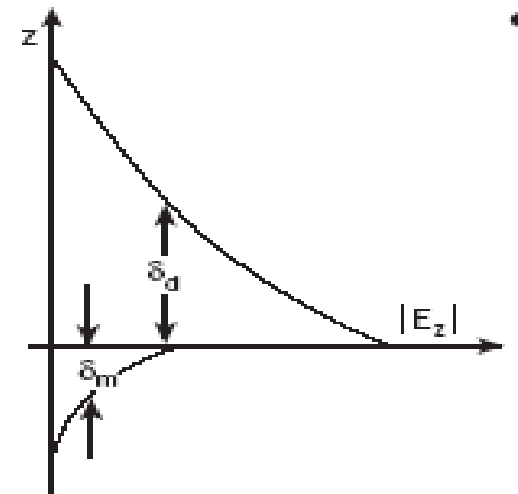
### Spatial extension of SPP fields

Here  $k_{z1}$  and  $k_{z2}$  are imaginary, skin effect in dielectric and metal can be calculated.

When  $E$  decays into  $Ee^{-1}$ ,  $z_i = \frac{1}{|k_{zi}|}$

In metal 
$$z_1 = \frac{\lambda}{2\pi} \left| \frac{\epsilon_1' + \epsilon_2}{\epsilon_1'^2} \right|^{1/2}$$

In dielectric 
$$z_2 = \frac{\lambda}{2\pi} \left| \frac{\epsilon_1' + \epsilon_2}{\epsilon_2^2} \right|^{1/2}$$



For example,  $\lambda=600\text{nm}$ , for silver,  $z_1=23\text{ nm}$ ,  $z_2=371\text{ nm}$   
for gold,  $z_1=29\text{ nm}$ ,  $z_2=281\text{ nm}$

For example,  $\lambda=1000\text{nm}$ , for silver,  $z_1=22\text{ nm}$ ,  $z_2=1122\text{ nm}$   
for gold,  $z_1=24\text{ nm}$ ,  $z_2=1020\text{ nm}$

## Propagation length of SPP

Along a smooth surface, SP's intensity decreases as  $e^{-2k_x''x}$

The propagation is defined as  $L_i \rightarrow E^2 e^{-1}$ , 
$$L_i = \frac{1}{2k_x''}$$

For examples,  $\lambda=600\text{nm}$ , for silver,  $L_i= 50.7 \text{ um}$   
for gold,  $L_i= 4.9 \text{ um}$

For examples,  $\lambda=1000\text{nm}$ , for silver,  $L_i= 698.1 \text{ um}$   
for gold,  $L_i= 91.7 \text{ um}$

# S-polarized wave (TE) 不能产生 SPP

For  $x_3 > 0$

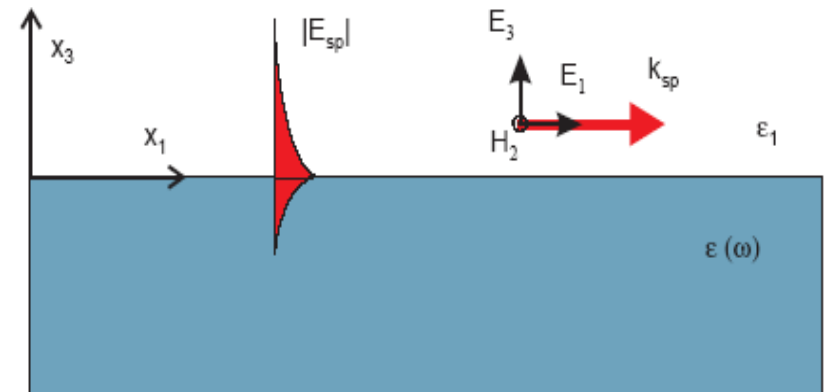
$$\mathbf{E}^>(\mathbf{x}; t) = (0, A, 0)e^{ikx_1 - k_3^{(1)}x_3 - i\omega t}$$

$$\mathbf{H}^>(\mathbf{x}; t) = A \frac{c}{i\omega} (k_3^{(1)}, 0, ik)e^{ikx_1 - k_3^{(1)}x_3 - i\omega t}$$

For  $x_3 < 0$

$$\mathbf{E}^<(\mathbf{x}; t) = (0, B, 0)e^{ikx_1 + k_3^{(m)}x_3 - i\omega t}$$

$$\mathbf{H}^<(\mathbf{x}; t) = B \frac{c}{i\omega} (-k_3^{(m)}, 0, ik)e^{ikx_1 + k_3^{(m)}x_3 - i\omega t},$$



When  $x_3 = 0$ ,  $E_2$ 连续  $\rightarrow A = B$

$H_1$ 连续  $\rightarrow A \frac{c}{i\omega} k_3^{(1)} = -B \frac{c}{i\omega} k_3^{(m)}$

$\rightarrow$  要求  $k_3^{(1)} > 0, k_3^{(m)} > 0 \rightarrow A = B = 0$  无解

# 1.3 平面表面等离激元波导

IMI (insulator-metal-insulator) waveguide

This geometry offers good propagation results for a SP waveguide.

Dispersion relation:

Metal slab thickness: **d**     *作业之一：推导三层金属波导的 SPP*

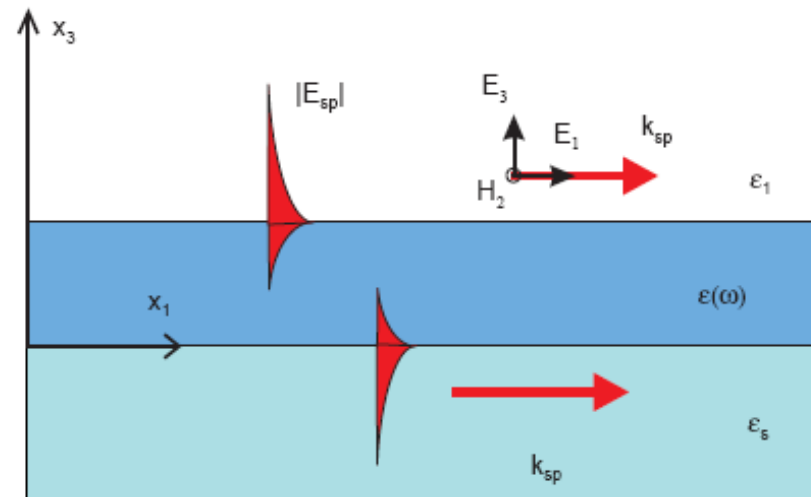
$$\left[ \frac{\epsilon(\omega)}{\epsilon_1} \frac{k_3^{(1)}}{k_3^{(m)}} + 1 \right] \left[ \frac{\epsilon(\omega)}{\epsilon_s} \frac{k_3^{(s)}}{k_3^{(m)}} + 1 \right] = \left[ \frac{\epsilon(\omega)}{\epsilon_1} \frac{k_3^{(1)}}{k_3^{(m)}} - 1 \right] \left[ \frac{\epsilon(\omega)}{\epsilon_s} \frac{k_3^{(s)}}{k_3^{(m)}} - 1 \right] e^{-2k_3^{(m)}d}$$

Symmetric structure

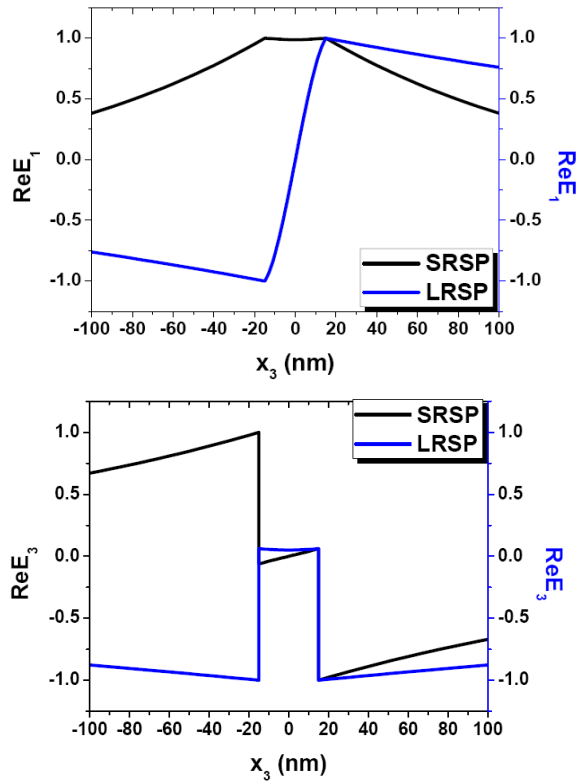
$$\epsilon_1 = \epsilon_s = 1 \quad k_3^{(s)} = k_3^{(1)}$$

even mode  $\epsilon(\omega) \frac{k_3^{(1)}}{k_3^{(m)}} = -\coth \frac{1}{2} k_3^{(m)} d$

odd mode  $\epsilon(\omega) \frac{k_3^{(1)}}{k_3^{(m)}} = -\tanh \frac{1}{2} k_3^{(m)} d$



air/Ag/air,  $\lambda=600\text{nm}$

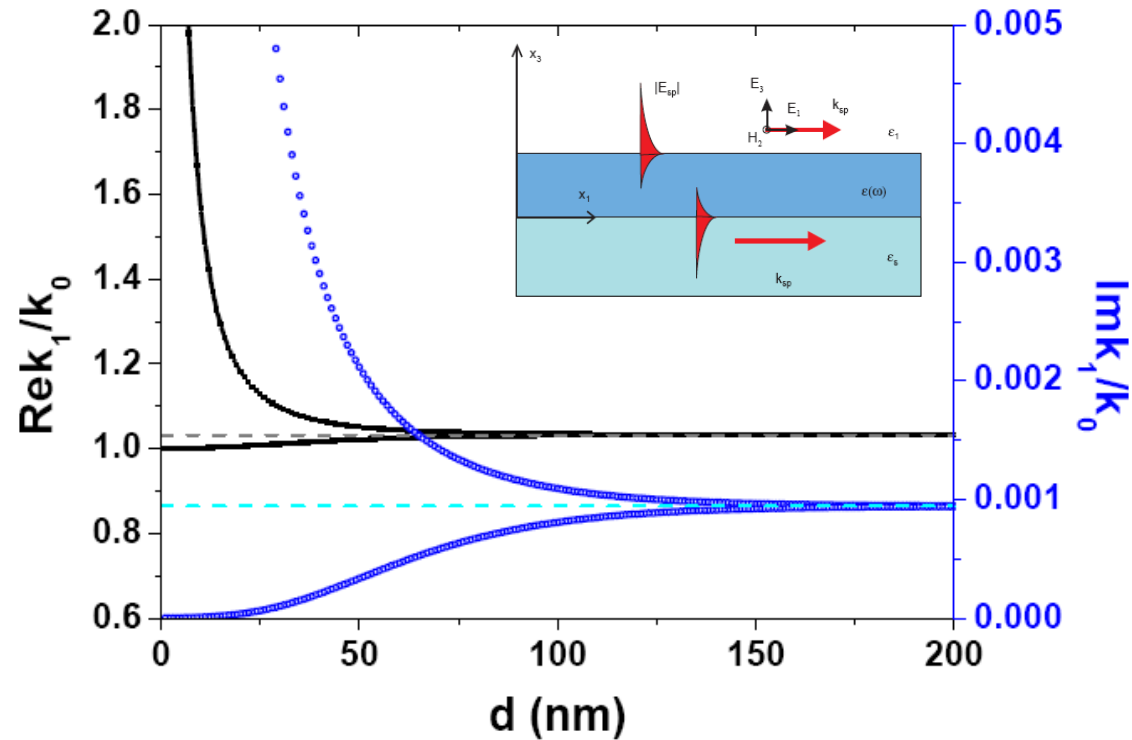


Case 1:  $d=30\text{nm}$ ,  $L_0=50\mu\text{m}$

$L_s=11.1\mu\text{m}$ ,  $L_L=476.3\mu\text{m}$

Case 2:  $d=50\text{nm}$

$L_s=22.6\mu\text{m}$ ,  $L_L=143.3\mu\text{m}$



Explanation:

Coupling of SPs  
split into the short range SP  
(even mode) and the long range  
SP (odd mode).

# Asymmetric IMI waveguide

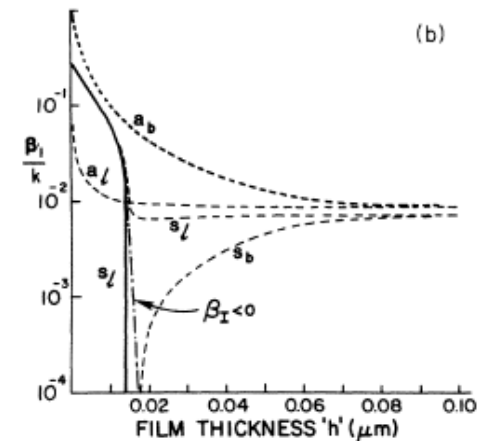
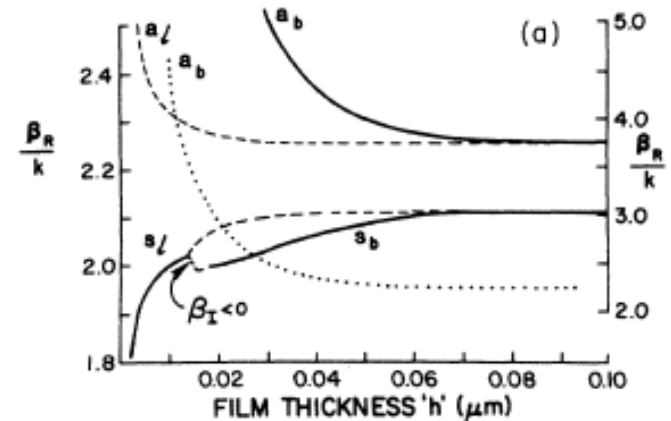
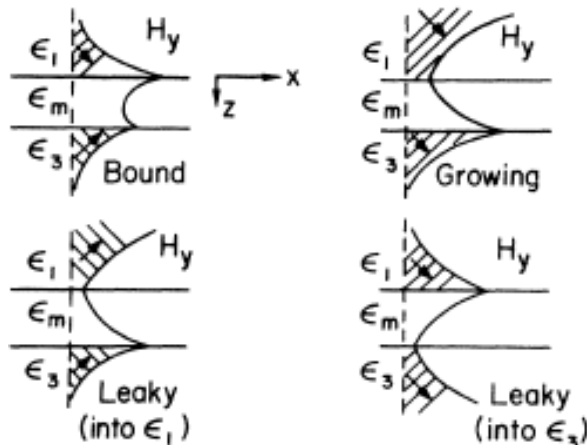
Range extension:  
The propagation length of LRSP  
can be highly increased.

Results:

Cutoff

**Bound mode:** the field envelope is exponentially damped .

**Leaky mode:** the field is exponentially increasing ( ? ) away from the interface.



632 nm, silver  
 $n_1=2.0$ ,  $n_3=1.9$ ,  
 $\epsilon_m = -19 + 0.53i$

[Surface-polariton-like waves guided by thin, lossy metal films,](#)

J.J. Burke, G. I. Stegeman, Phys. Rev. B 33 (1986) 5186

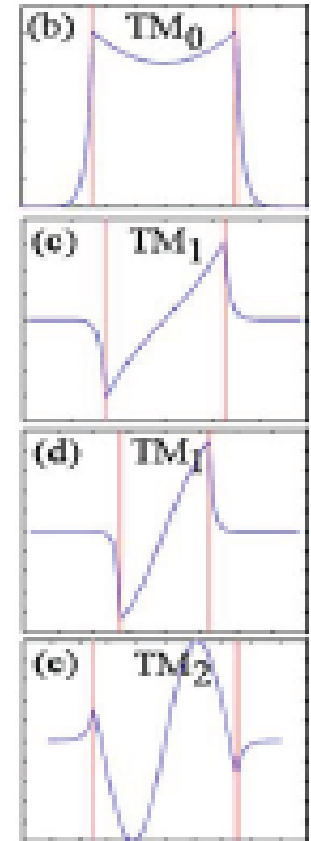
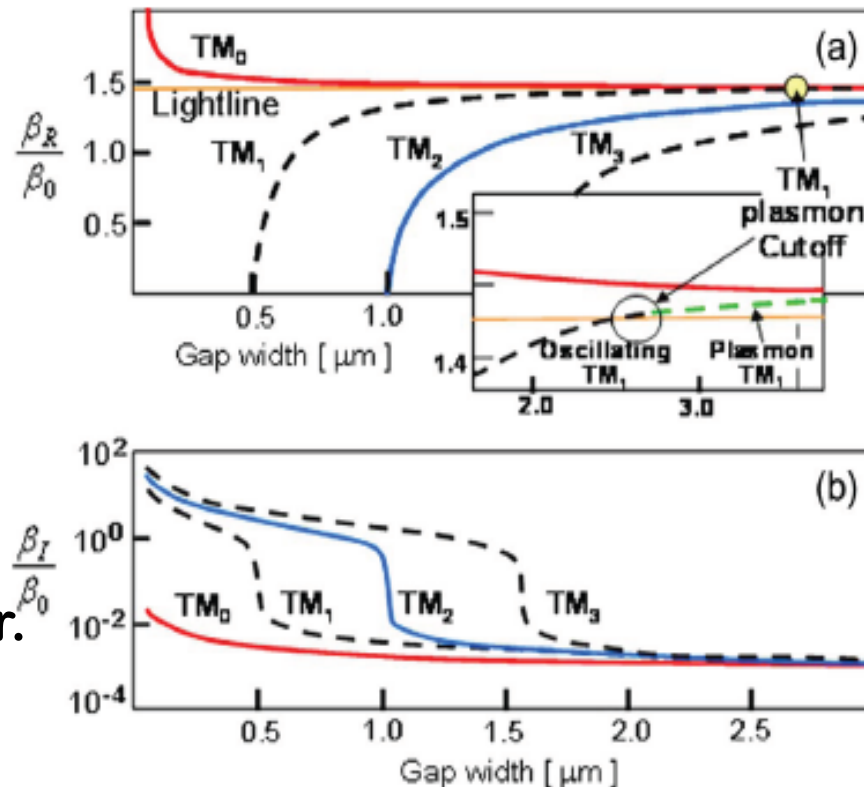
# MIM (metal-insulator-metal) waveguide

Nano-scale light confinement



## Explanation:

Two coupled SPPs mediated by dielectric layer.



The transverse modal dimension is determined by the gap thickness.

H field profile  
 $\lambda=1550\text{nm}$

# Planar heterostructures

To support the **long-range SPs** in asymmetric environment.

## Results:

LRSP in an asymmetric structure

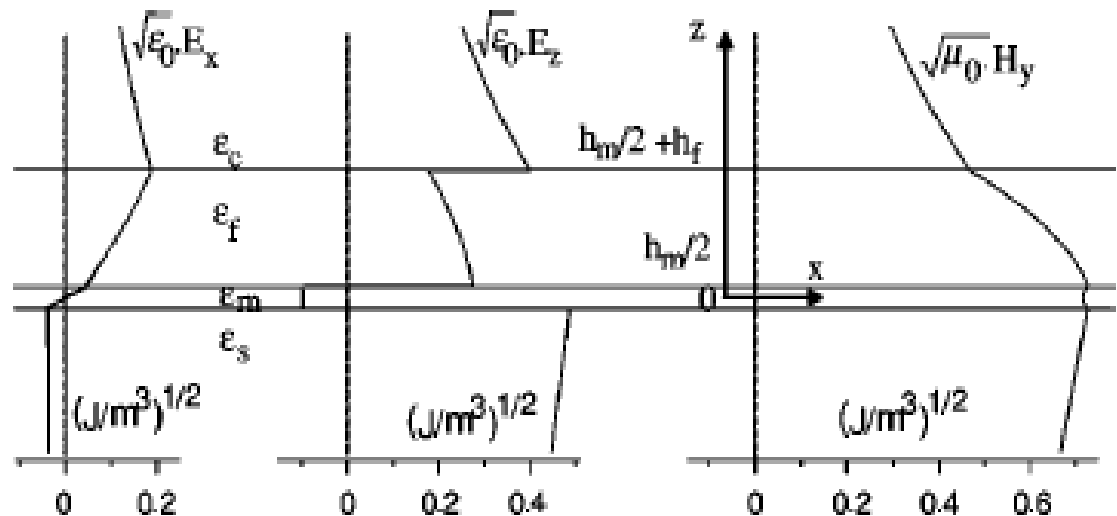
## Nonsymmetrical structure

cover **water** ( $n=1.33$ )

film **Si<sub>2</sub>N<sub>4</sub>** ( $n=2$ ) 53.9nm

copper **10nm**

substrate **glass** ( $n=1.5$ )



## Explanation:

Use the multilayer structures to yield the lowest loss.

# Planar heterostructures

## Sub-wavelength SP mode

### Conductor-gap-dielectric system:

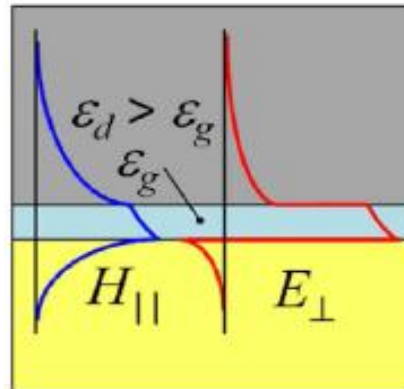
metal **Au**

nanoscale gap **SiO<sub>2</sub>**,  $n_g=1.44$

high-index dielectric **Ge**,  $n_d=4.26$   
(waveguide 250nm)

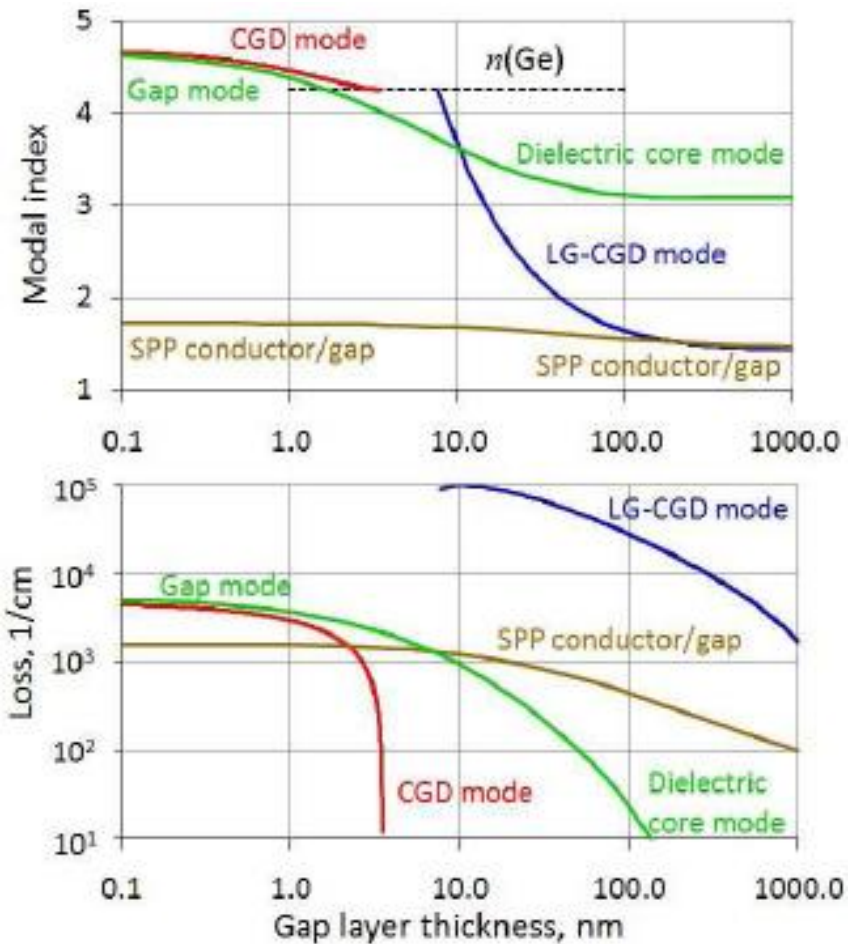
### Results:

The ultrasmall loss guided mode exists below the cutoff thickness.



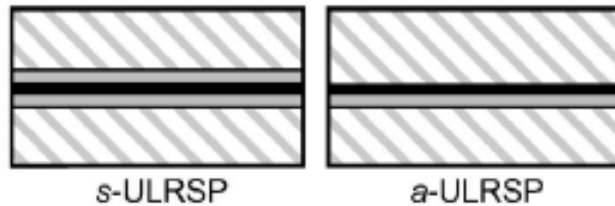
### Explanation:

SPPs at the conductor-dielectric interface modified by the presence of an ultrathin, low-index gap layer are an intrinsic property of the gap.



# Planar heterostructures

## Ultra-long range SP mode



### waveguide:

metal thickness **Au 20nm**

low-index inner dielectric **d,  $n_1$**

high-index cladding  **$n_2$**

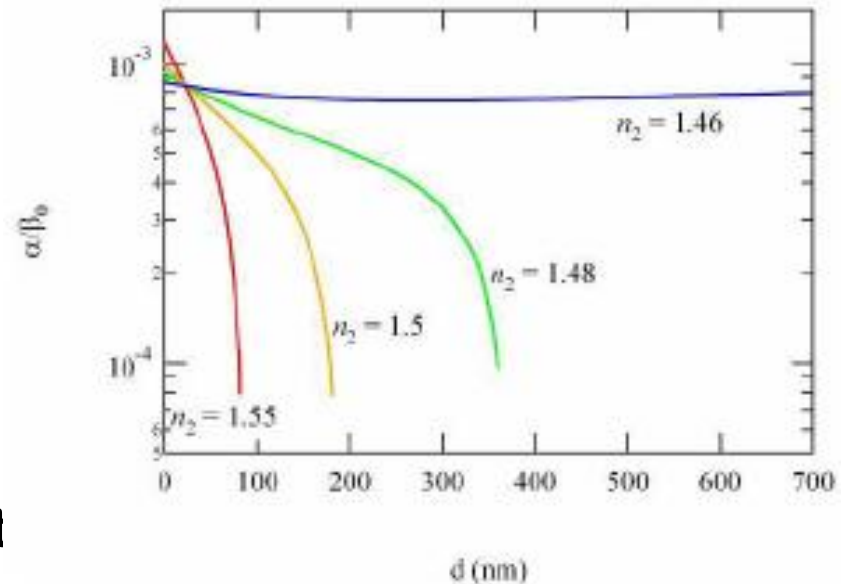
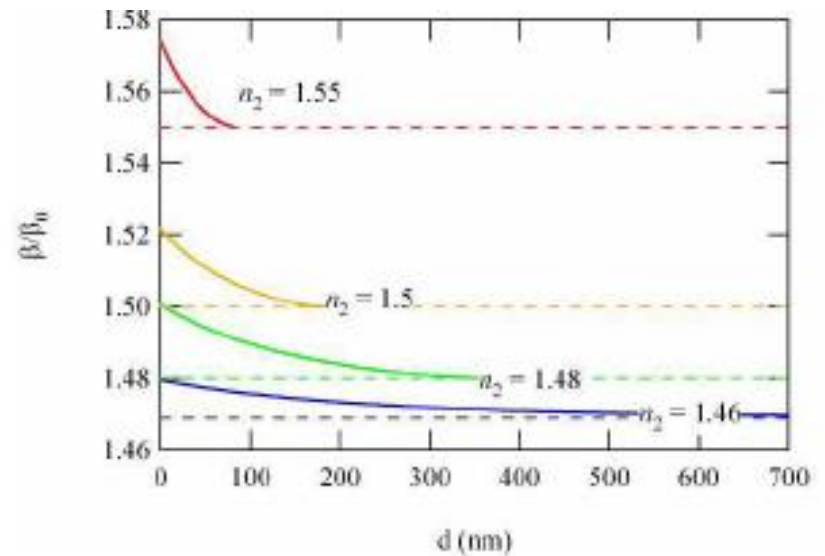
### Results:

cutoff

attenuation

### Explanation:

Achieved by placing low-index dielectric layers next to the metal



[Characteristics of ultra-long range surface plasmon waves at optical frequencies](#)

R. Adato, J.P. Guo, Opt. Express 15 (2007) 5008

## 作业（任选其一）：

### 1. 推导三层金属波导的 SPP（题目自拟）

**要求：**完整的report、图文并茂

**包括：**题目、摘要、背景、问题描述清楚

推导过程、色散关系、讨论、结论、文献

**讨论：**倏逝波、电磁场分布、

传播长度、穿透深度、可能的应用

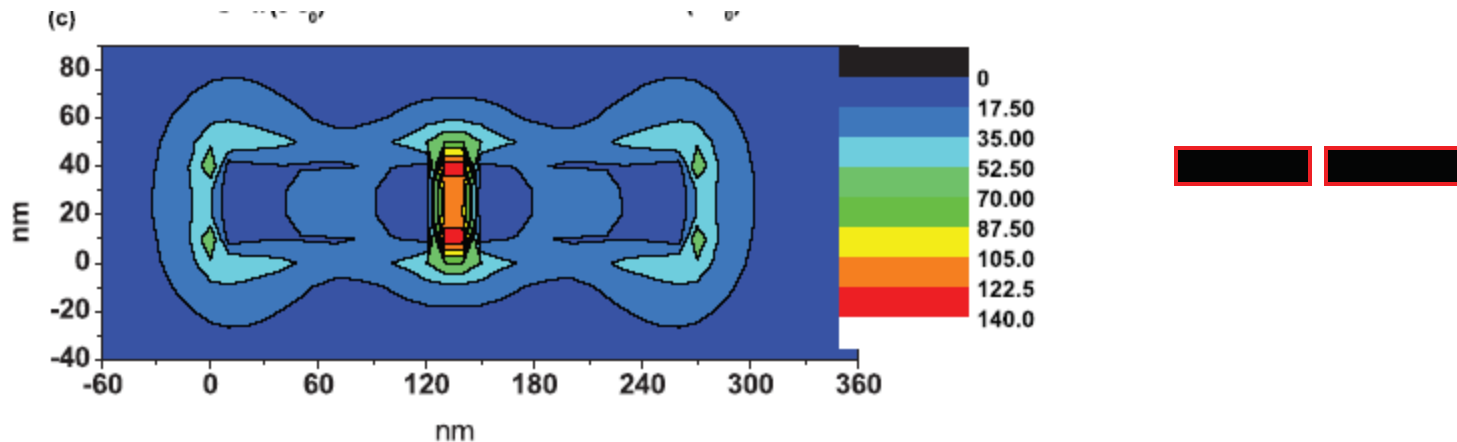
### 2. 见第10页的要求



# Surface plasmon resonance (SPR) 的概念

## Or Localized SPP

In the isolated metallic nanostructures, due to the collective oscillations of free electrons, SPRs are excited accompanied with the enhancement of optical near field.

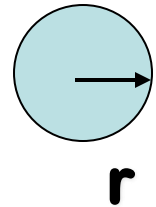


Determined by the geometry, incident light  $\omega$ , metallic dielectric permittivity, dielectric environment

# SPR 的尺度 或 纳米金属的尺度

0~10 nm: 金属的介电常数是位置依赖的,  $\epsilon(\omega, \mathbf{r})$   
(微观) 量子效应出现, 用量子方法处理

10nm~几个  $\mu\text{m}$ : 金属的介电常数是常数,  $\epsilon(\omega)$   
(介观) collective resonances of free electrons  
maxwell 方程的框架下处理



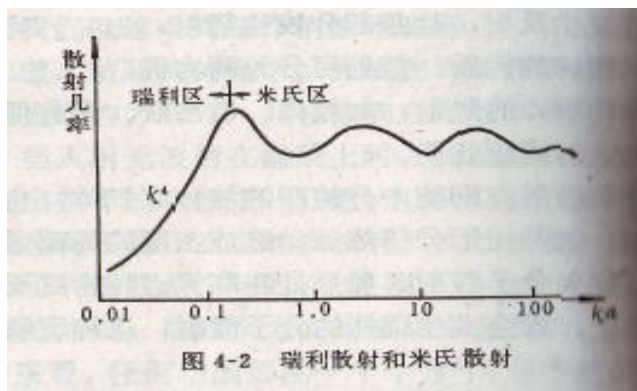
大于几个  $\mu\text{m}$  或 10 个波长:  
(宏观) 通常的几何光学和波动光学

5~10nm 是量子还是经典, 也就是微观到介观如何过渡?  
2012年已有文章研究。

Nature, 483, 417 (2012, Microscopy Plasmons go quantum); nature, 483, 421 (2012, Quantum plasmon resonances of individual metallic nanoparticles).

## Mie 散射和Rayleigh散射的区别

**瑞利散射定律：**1871年，L. Rayleigh 指出细小质点的散射光强与 $\lambda^4$ 成反比。解释了天空呈蓝色，日出日落是橙红色。



光学，下册，  
赵凯华，钟锡华著，  
北京大学出版社

**米散射定律：**1908年和1909年，G. Mie 和 P. Debye 计算了球形物体的电磁波散射，发现 $ka < 0.3$ 时，瑞利散射适用。可计算任意大球形物体的散射问题。

这里我们关心波长或亚波长量级以内金属球的散射及吸收

## 1.4 Mie 理论

**Mie 理论是Gustav Mie et al.在1908年提出，可以解决球和球对称问题中的散射、吸收和消光**

**通过求解 满足球边界条件的Maxwell 方程，可将电磁场按照球谐函数进行多级展开**

**球形金属纳米结构的表面等离激元共振可以理解为激发了球形结构的多极电子集体振荡模式**

**对光波段的SPR来说，通常研究几十到几百纳米的金或银小球、椭球和球壳等。目前，它们的制备、表征、SPR性质和应用都已广泛研究。**

## Mie theory

在均匀的各向同性介质中，波动方程如下：

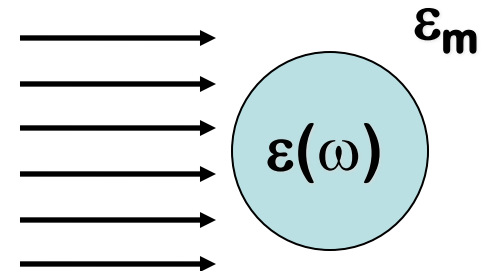
$$\nabla^2 \mathbf{E} + k^2 \mathbf{E} = 0, \nabla^2 \mathbf{H} + k^2 \mathbf{H} = 0$$

其中 $k^2 = \omega^2 \epsilon \mu$ ，并且满足散度为零

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0, \nabla \cdot \mathbf{H} = 0$$

E和H间的关系：

$$\nabla \times \mathbf{E} = i\omega\mu\mathbf{H}, \nabla \times \mathbf{H} = -i\omega\epsilon\mathbf{E}.$$



以下的求解过程就是构造出标量函数 $\psi$ ，常数矢量 $\mathbf{c}$ ，以及符合波动方程的矢量 $\mathbf{M}$ 和 $\mathbf{N}$ ，先算出**本征模式**，然后加上外光场和边界条件后找到符合问题要求的解

矢量函数M满足:

$$\mathbf{M} = \nabla \times (\mathbf{c}\psi) = -\mathbf{c} \times \nabla \psi.$$

$$\nabla \cdot \mathbf{M} = 0$$

根据M的公式

$$\nabla^2 \mathbf{M} + k^2 \mathbf{M} = \nabla \times [\mathbf{c}(\nabla^2 \psi + k^2 \psi)]$$

要求  $\nabla^2 \psi + k^2 \psi = 0$  , M和E, H的性质才能对应上。

根据E和H间的联系, 构造出另一散度为零的矢量函数N

$$\mathbf{N} = \frac{\nabla \times \mathbf{M}}{k}$$

N也满足波动方程

$$\nabla^2 \mathbf{N} + k^2 \mathbf{N} = 0$$

和

$$\nabla \cdot \mathbf{N} = 0$$

并且M和N有关系

$$\nabla \times \mathbf{N} = k\mathbf{M}$$

因此M和N满足电磁场E和H间的关系，并且问题的求解化简到求满足边界条件的标量函数  $\psi$ 。

由于体系的球对称性，可令  $\mathbf{M} = \nabla \times (\mathbf{r}\psi)$

则球坐标系下的标量方程可写为

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial \psi}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin \theta \frac{\partial \psi}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \phi^2} + k^2 \psi = 0$$

用球谐函数可给出解的完备基矢

$$\begin{aligned} \psi_{emn} &= \cos m\phi P_n^m(\cos \theta) z_n(kr) \\ \psi_{omn} &= \sin m\phi P_n^m(\cos \theta) z_n(kr) \end{aligned}$$

$z_n$ 是任意的一种球贝赛尔函数  $j_n, y_n, h_n^{(1)}, h_n^{(2)}$

由此，在球对称体系中，可以得到由 $\psi$ 的基矢表示出的多极子形式的电磁场模式

$$\mathbf{M}_{emn} = \nabla \times (\mathbf{r}\psi_{emn}), \mathbf{M}_{omn} = \nabla \times (\mathbf{r}\psi_{omn}),$$
$$\mathbf{N}_{emn} = \frac{\nabla \times \mathbf{M}_{emn}}{k}, \mathbf{N}_{omn} = \frac{\nabla \times \mathbf{M}_{omn}}{k},$$

入射平面波的电场部分  $\mathbf{E}_i = E_0 e^{ikr \cos \theta} \hat{\mathbf{e}}_x$

按以上模式展开后得

$$\mathbf{E}_i = E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\mathbf{M}_{o1n}^{(1)} - i\mathbf{N}_{e1n}^{(1)})$$

其中上角标(1)表示生成函数中的径向部分  $j_n(\rho)$ ， $\rho = kr$ 。

这里 $n=1$ 表示展开项的偶极部分， $n=2$ 表示展开项的四极部分。

相应的入射磁场为

$$\mathbf{H}_i = \frac{-k_m}{\omega\mu_m} E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\mathbf{M}_{e1n}^{(1)} + i\mathbf{N}_{o1n}^{(1)})$$

散射的电磁场 ( $\mathbf{E}_s, \mathbf{H}_s$ ) 和小球内的电磁场 ( $\mathbf{E}_1, \mathbf{H}_1$ ) 也可做同样的展开

利用边界条件  $(\mathbf{E}_i + \mathbf{E}_s - \mathbf{E}_1) \times \hat{\mathbf{e}}_r = (\mathbf{H}_i + \mathbf{H}_s - \mathbf{H}_1) \times \hat{\mathbf{e}}_r = 0$

和考虑无穷远处的渐近行为后，我们得到：

小球内的电磁场可写为

$$\mathbf{E}_1 = E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (c_n \mathbf{M}_{o1n}^{(1)} - i d_n \mathbf{N}_{e1n}^{(1)}),$$
$$\mathbf{H}_1 = \frac{-k}{\omega\mu} E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (d_n \mathbf{M}_{e1n}^{(1)} + i c_n \mathbf{N}_{o1n}^{(1)})$$

散射电磁场

$$\mathbf{E}_s = E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (i a_n \mathbf{N}_{e1n}^{(3)} - b_n \mathbf{M}_{o1n}^{(3)}),$$
$$\mathbf{H}_s = \frac{k_m}{\omega\mu_m} E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (i b_n \mathbf{N}_{o1n}^{(3)} + a_n \mathbf{M}_{e1n}^{(3)})$$

其中上角标（3）生成函数中的径向部分 $h_n$

## 小球内的电磁场系数可写为

$$c_n = \frac{\mu_1 m \psi_n(x) \xi'_n(x) - \mu_1 m \xi_n(x) \psi'_n(x)}{\mu_1 \psi_n(mx) \xi'_n(x) - \mu m \xi_n(x) \psi'_n(mx)},$$
$$d_n = \frac{\mu_1 m \psi_n(x) \xi'_n(x) - \mu_1 m \xi_n(x) \psi'_n(x)}{\mu m \psi_n(mx) \xi'_n(x) - \mu_1 \xi_n(x) \psi'_n(mx)},$$

## 散射电磁场的系数

$$a_n = \frac{\mu m \psi_n(mx) \psi'_n(x) - \mu_1 \psi_n(x) \psi'_n(mx)}{\mu m \psi_n(mx) \xi'_n(x) - \mu_1 \xi_n(x) \psi'_n(mx)},$$
$$b_n = \frac{\mu_1 \psi_n(mx) \psi'_n(x) - \mu m \psi_n(x) \psi'_n(mx)}{\mu_1 \psi_n(mx) \xi'_n(x) - \mu m \xi_n(x) \psi'_n(mx)},$$

其中  $x = k_m R = \frac{2\pi n_m R}{\lambda}$ ,  $m = k/k_m = n/n_m$ ,  $\psi_n(x) = x j_n(x)$ ,  $\xi_n(x) = x h_n^{(1)}(x)$ ,

$R$ 为球体半径。

$\mu_1$ 和 $\mu$ 是球内和球外的磁导率。

如果小球周围是非吸收介质，则 $W_i=0$ ，消光功率是吸收功率和散射功率之和， $W_{\text{ext}}=W_a+W_s$ 。

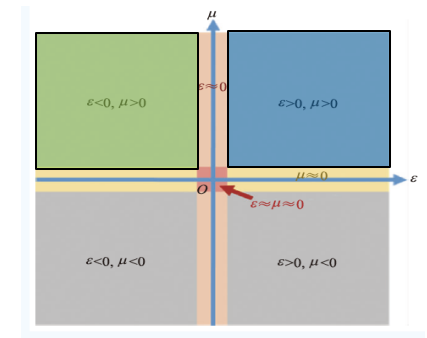
消光截面定义为：

$$\sigma_{\text{ext}} = W_{\text{ext}}/I_i$$

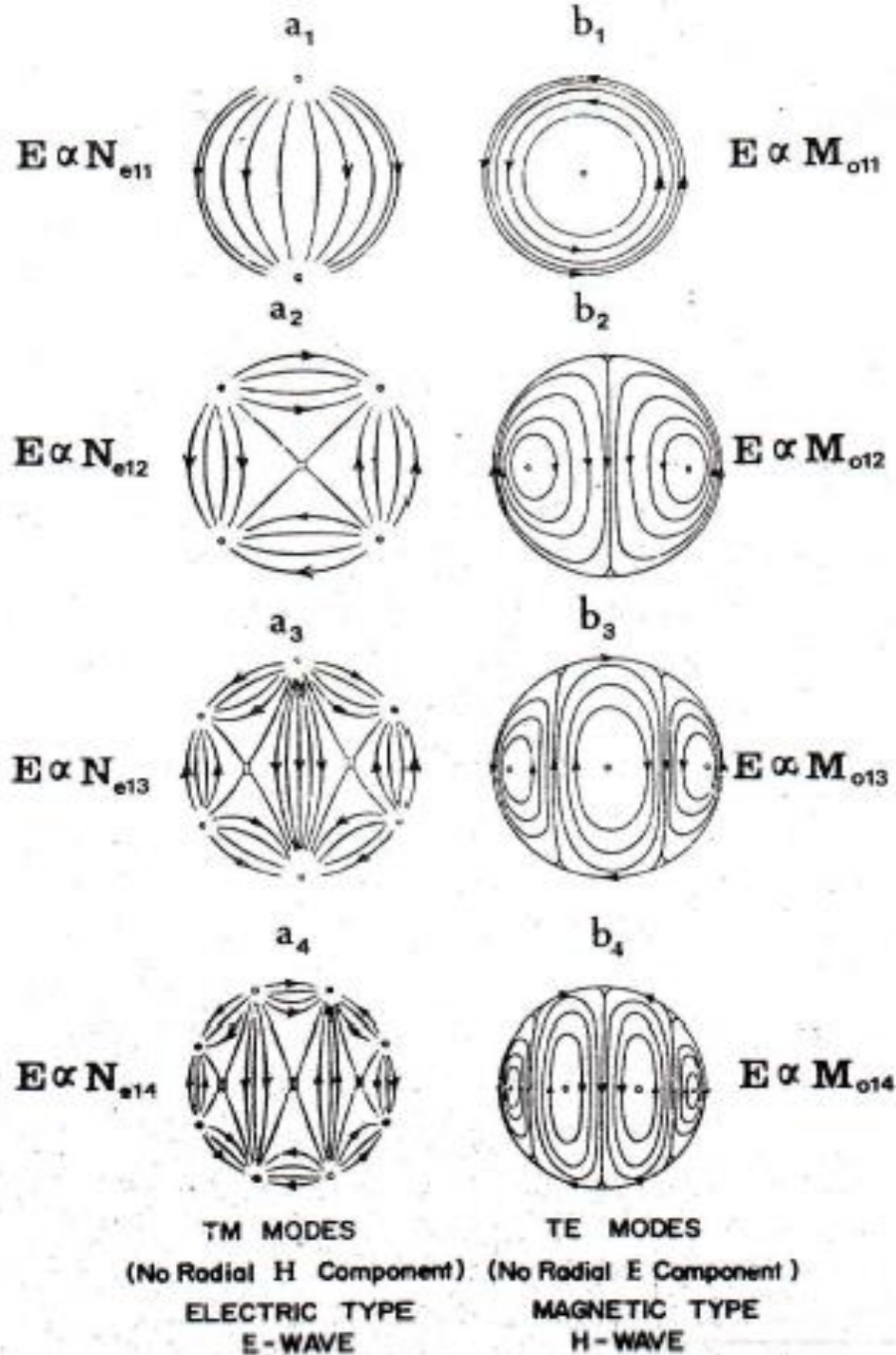
其中  $I_i$  是入射光强。

可按同样的方式定义吸收截面和散射截面  $\sigma_{\text{abs}}, \sigma_{\text{sca}}$   
将以上电磁场的具体形式代入，得到

$$\sigma_{\text{ext}} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1} (2n+1) \text{Re}\{a_n + b_n\}$$
$$\sigma_{\text{sca}} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2)$$



这里强调：Mie理论适合计算任何材料，包括金属和介质，还有零折射率材料。SPR发生时，消光较大。



## 偶极辐射的远场图

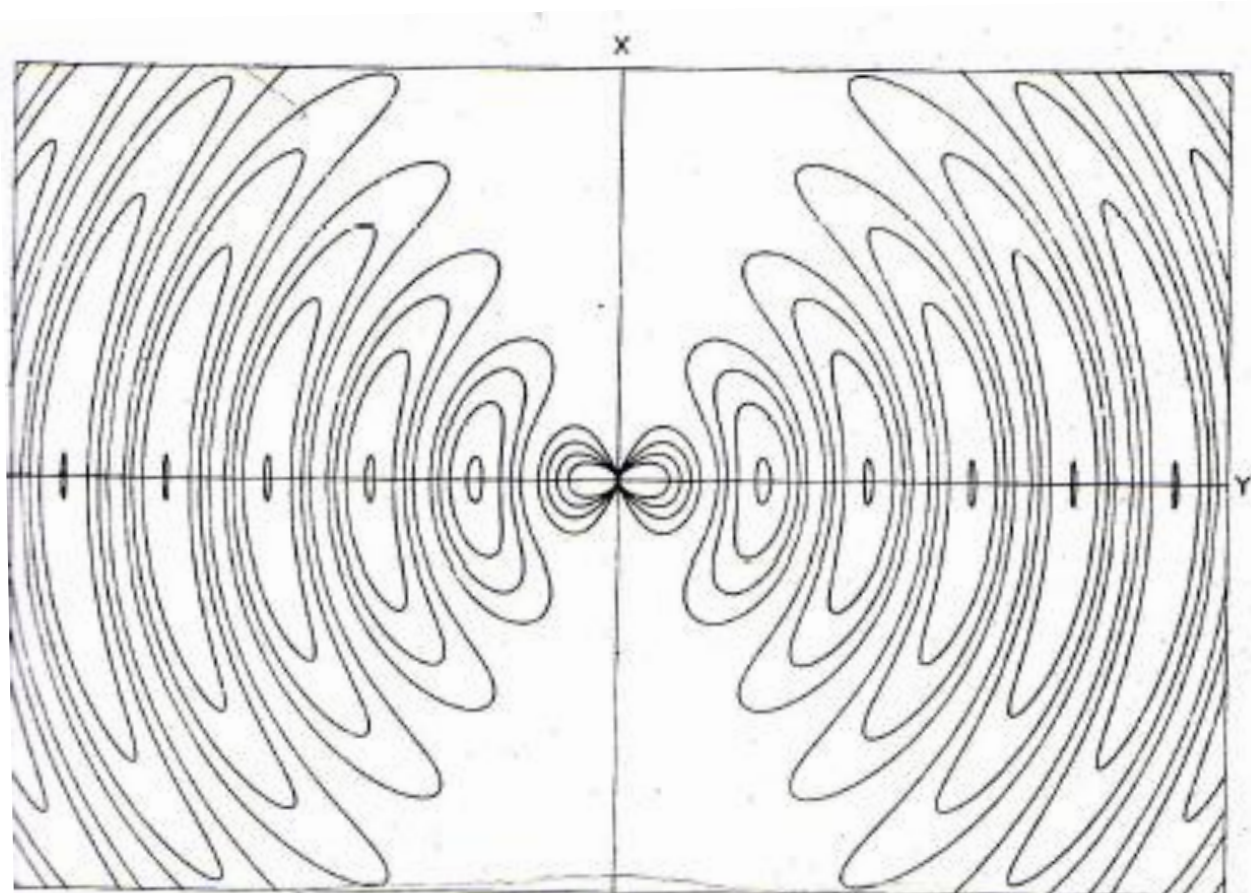


Figure 4.6. Field of an electric dipole.

## 准静态近似

因为电磁场表达式中的系数 $a_n$ ,  $b_n$ 正比于 $(kR)^{2n+1}$ ,所以在 $R \ll \lambda$ 时, 只保留 $n=1$ 的偶极子项

$$\sigma_{ext}(\omega) = 9 \frac{\omega}{c} \varepsilon_m^{3/2} \frac{4\pi}{3} R^3 \frac{\varepsilon_2(\omega)}{[\varepsilon_1(\omega) + 2\varepsilon_m]^2 + \varepsilon_2^2(\omega)}.$$

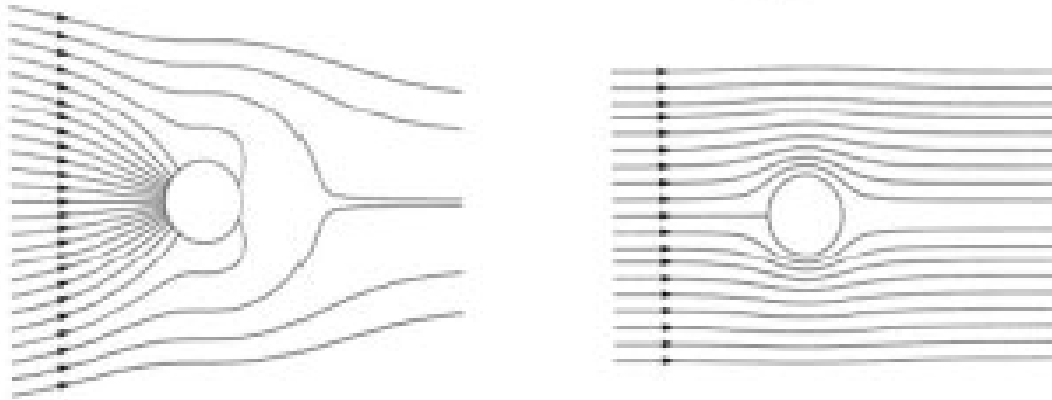
其中介质是 $\varepsilon_m$ , 金属  $\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$

对于金属小球来说, 介电常数可以取负值, 表面等离子激元共振发生在  $\varepsilon_1 = -2\varepsilon_m$  处, 与小球的大小无关。实际上, 当纳米颗粒的尺度在30纳米以内, 只有偶极共振起作用。而且此时吸收起主要消光作用。

[Absorption and scattering of light by small particles](#), C. Bohren and D. R. Huffman, 1976.  
[Optical properties of metal clusters](#), M. Vollmer, 1995

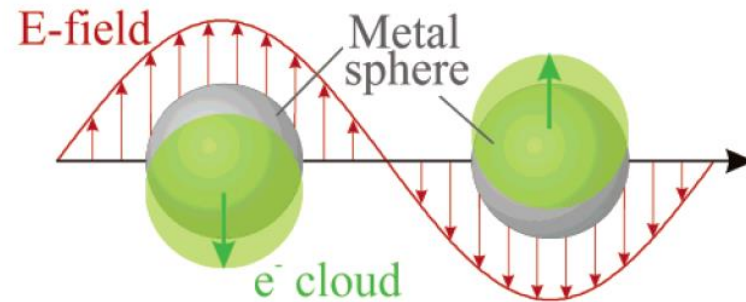
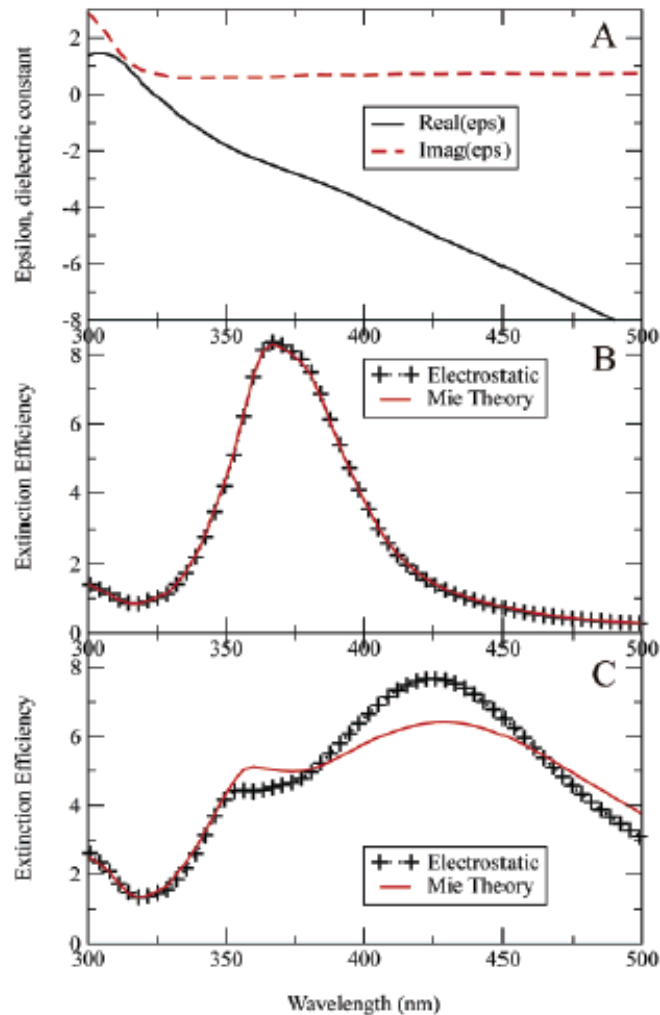
# SPR of metallic nanospheres

Mie理论可以用来计算金属小球的消光峰，这些消光峰对应一系列表面等离子激元共振（SPR）。解释为外加光场激发了小球内自由电子的集体振荡，伴随近场局域或增益。



下面简单介绍纳米金属小球的SPR性质

# Dipole and quadrupole plasmon resonances

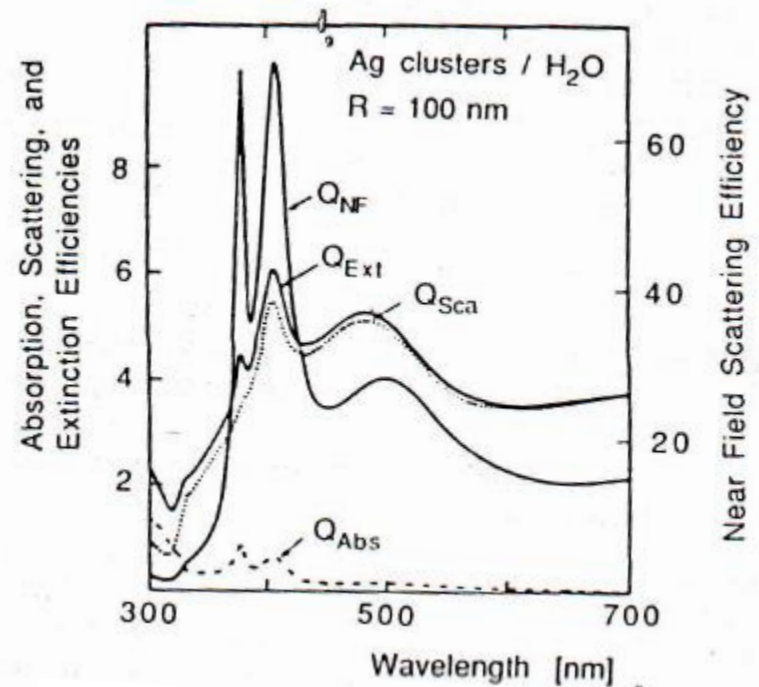
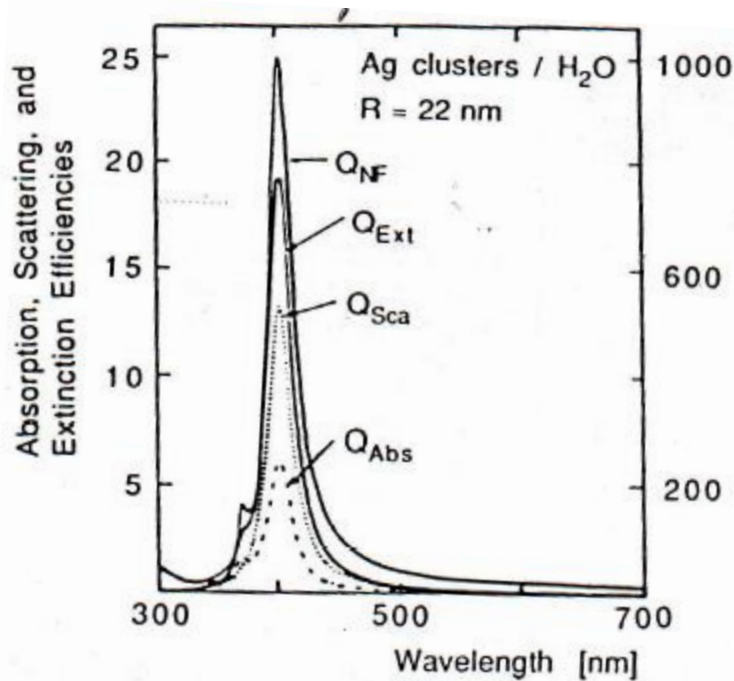


以银小球为例

先给出银的介电常数的实部和虚部，  
半径是30nm时，只有偶极共振被激发，  
半径是60nm时，四极共振也激发出来。

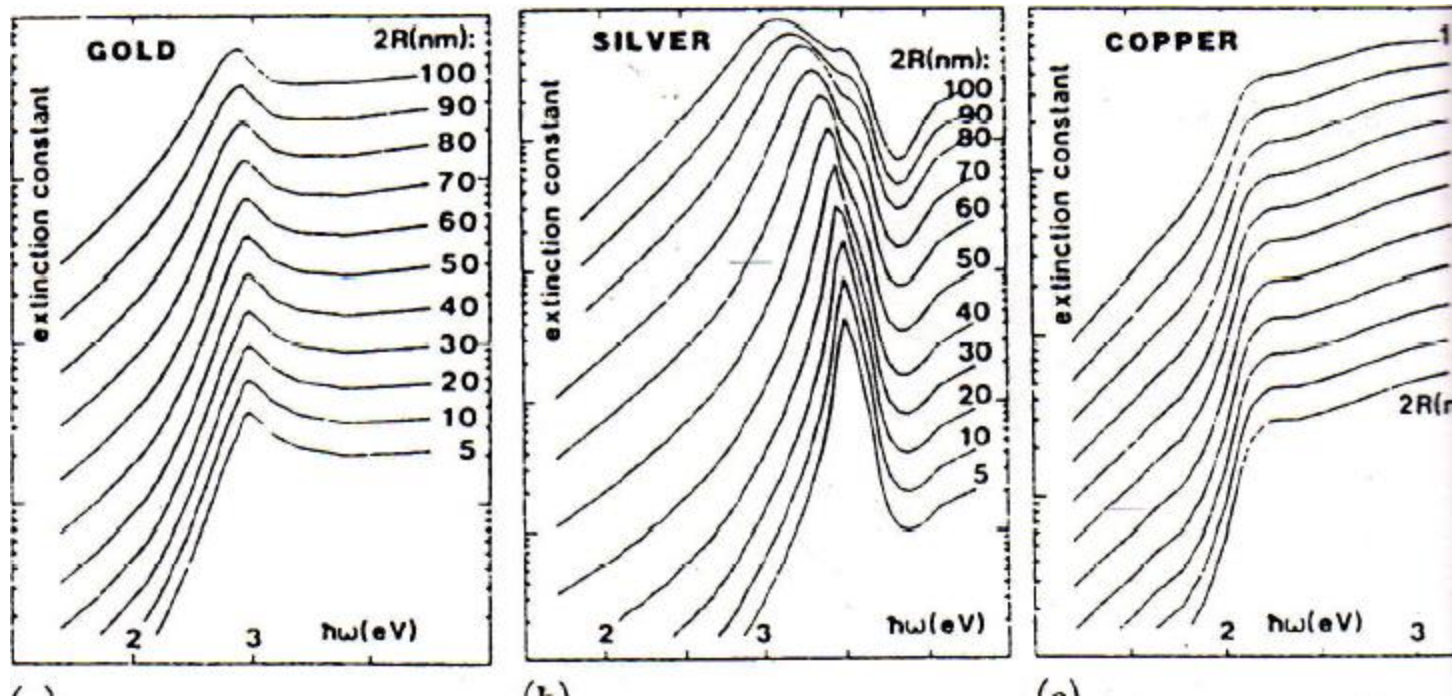
## 消光峰中吸收和散射部分对小球尺度大小的依赖

以银小球为例，在消光峰中，当尺度很小时，吸收所占比例较大，当尺度很大时，散射所占比例增大。其它金属材料和其它形状的纳米颗粒有同样性质。

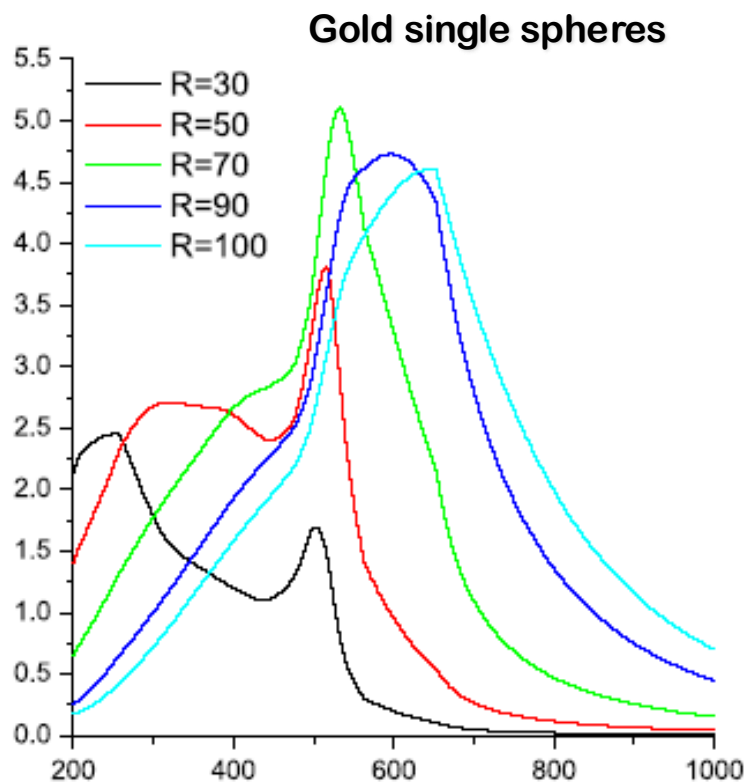


## 小球尺度变化对SPR的影响

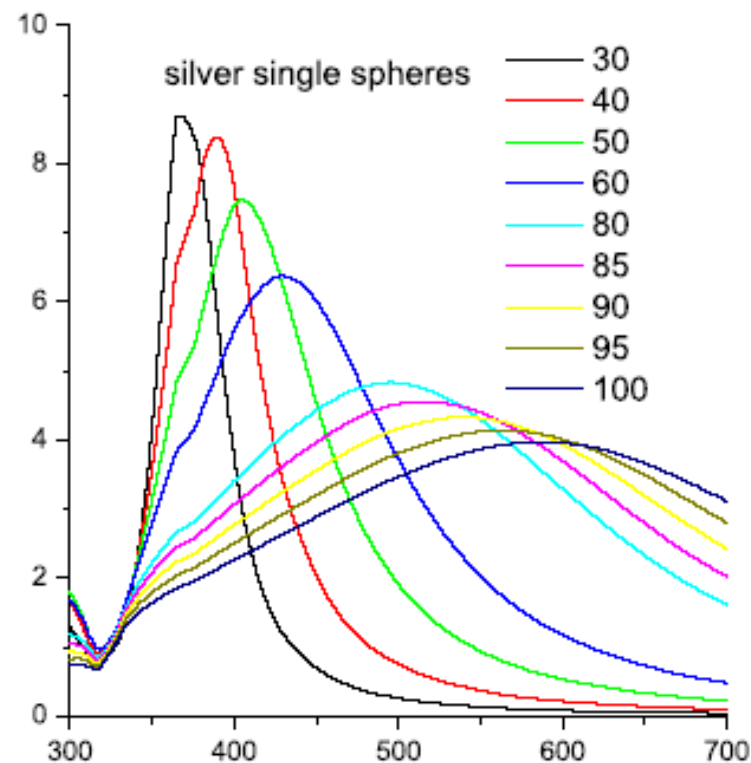
随着金银铜小球尺度的增加，共振峰红移；  
介电常数的虚部越大，共振峰半宽越大；  
银的等离子体频率高于金的。



消光峰



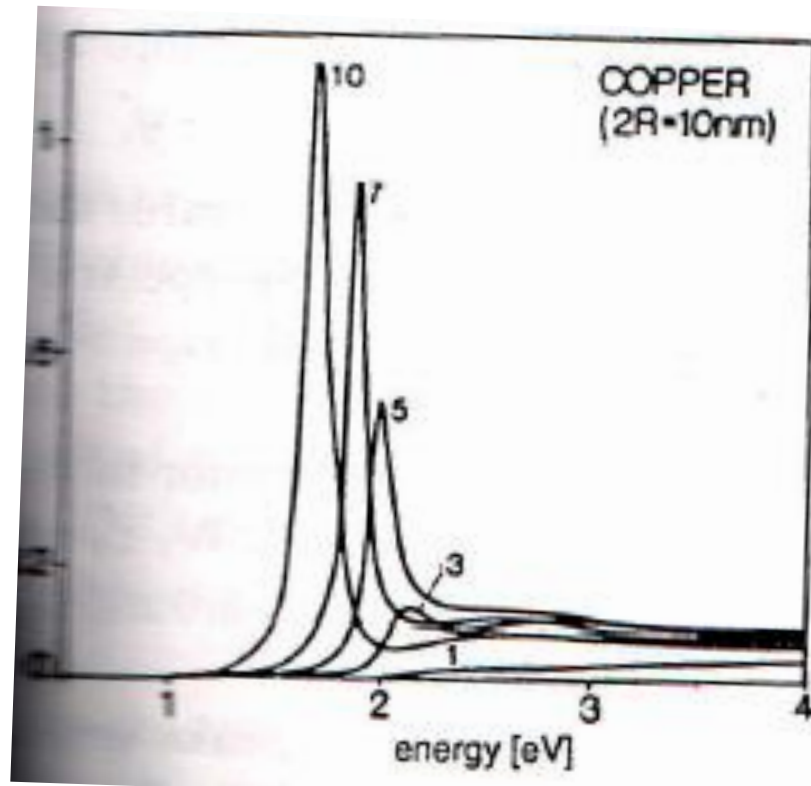
波长 (nm)



与上页同样的结论，只算了偶极部分的结果。

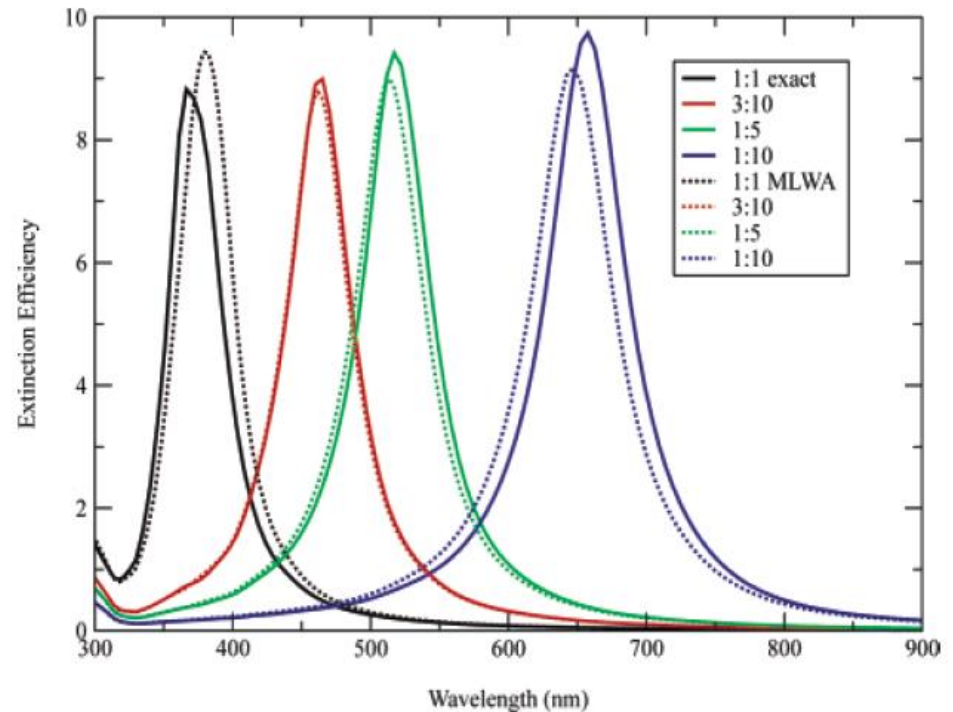
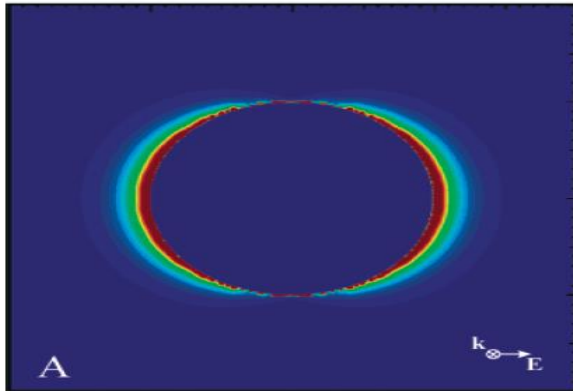
## 外界介电环境变化对SPR的影响

将铜小球放在介电常数不同的介质中，可以看到，随外界介电常数的增加，共振红移，并且强度变大。



[Absorption and scattering of light by small particles](#), C. Bohren and D. R. Huffman, 1976.  
[Optical properties of metal clusters](#), M. Vollmer, 1995.

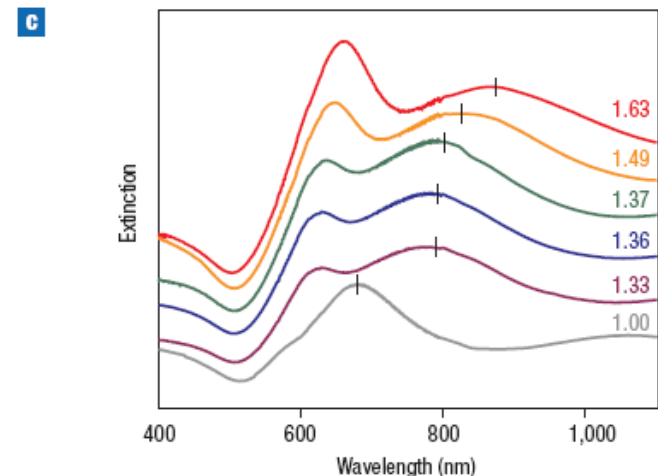
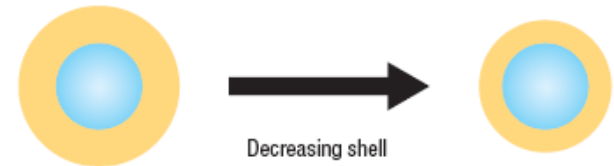
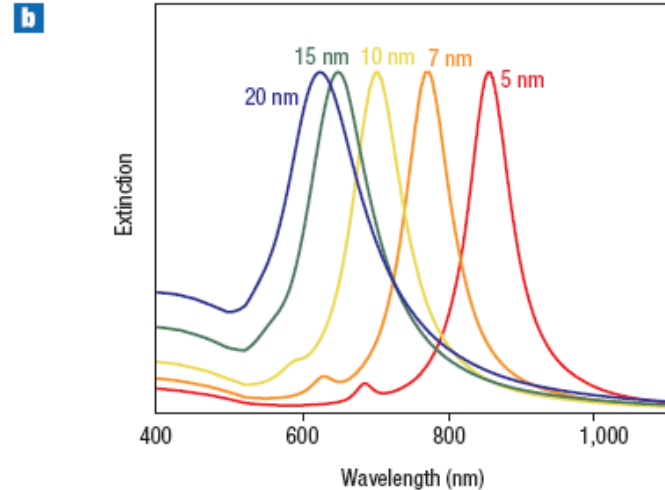
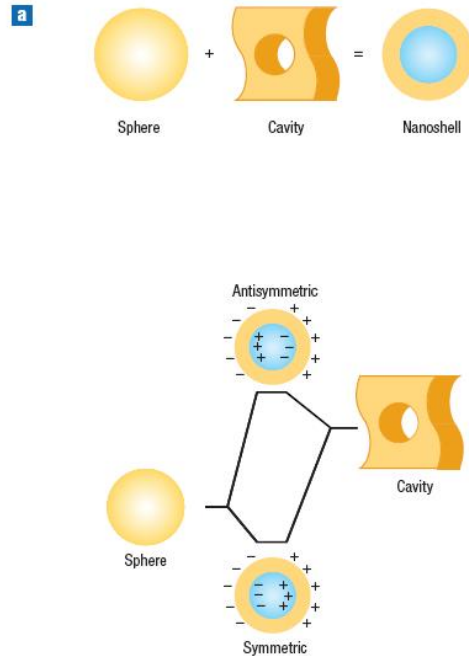
# SPR of spheroids



以纳米银椭球为例

其体积相当于半径30nm的银小球，当长短轴比例增加时，共振峰红移。

# 1.5 金属纳米球壳的Mie共振

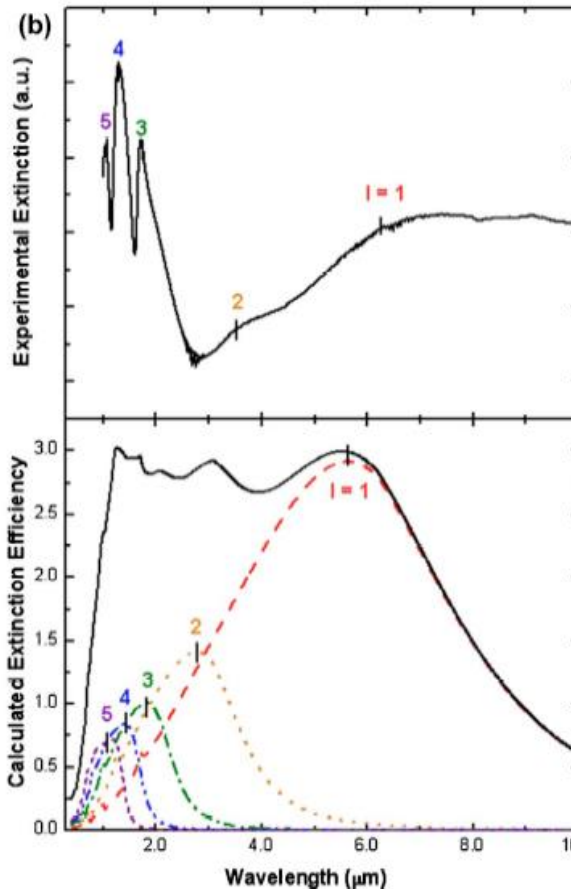
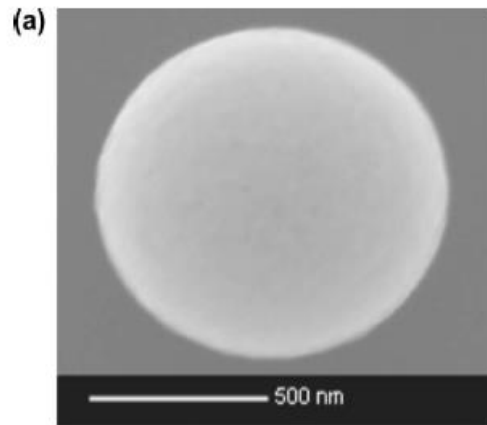


## Results:

**Gold nanoshell, Silica nanocore**

当球壳由厚变薄时，共振峰红移；  
当外界介电常数由小变大时，偶极共振峰发生红移和变宽。

# 球壳中的多重共振



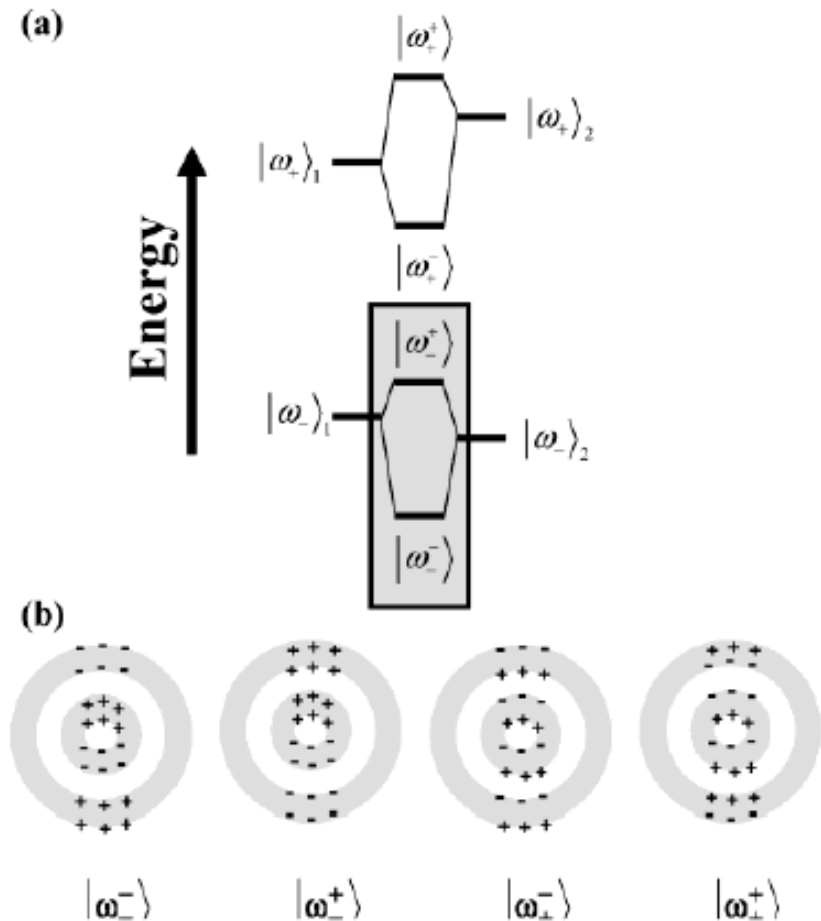
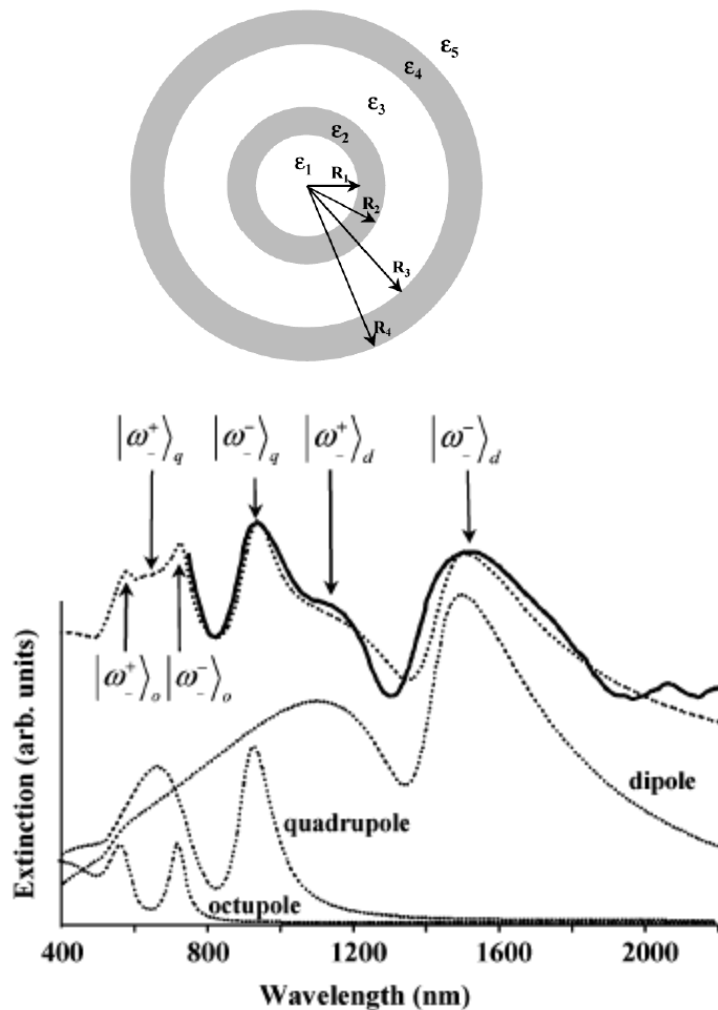
Experiment

Theory

参数: silica core-Au shell,  $r_1/r_2=482\text{nm}/510\text{nm}$

可以看到, 当纳米球壳变得远远超出准静态的范围后, 多极共振的性质体现出来。

# 多层球壳共振的杂化耦合



通过电多极模式的耦合和杂化，多重共振出现。

Plasmonic Properties of Concentric Nanoshells,

Corey Radloff and Naomi J. Halas, NANO LETTERS (2004) Vol. 4, No. 7, 1323-1327

## 总结：

用两个可以精确求解的例子，阐述了SPP和SPR的概念及其相应的物理性质

但是，绝大多数物理问题是不能精确求解的，只能用半解析方法和数值模拟的方法。后面将学习这些方法

有了概念准备后，我们看看SPP的前沿进展及其应用

