

分类号: TN249

密 级: 公开

学校代码: 10363

学 号: 2220320104



安徽工程大学

Anhui Polytechnic University

硕士学位论文

题目 基于暗态 LSPR 蝶形纳米天线的
近场增强研究

论 文 作 者	丁青秀
指 导 教 师	黄登朝
学 科 (专 业)	电子信息
研 究 方 向	纳米天线

论文提交日期: 2025 年 5 月 31 日

分类号：TN249

单位代码：10363

密 级：公开

学 号：2220320104

题 目 基于暗态 LSPR 蝶形纳米天线近场增强研究

题 目 Near-Field Enhancement via Dark-Mode
Localized Surface Plasmon Resonance in
Bowtie-Shaped Nanoantennas

学生姓名： 丁青秀

指导教师： 黄登朝

专 业： 电子信息

研究方向： 纳米天线

论文答辩日期： 2025 年 5 月 7 日

安徽工程大学学位论文原创性声明

本人郑重声明：我恪守学术道德，崇尚严谨学风。所呈交的学位论文，是本人在导师的指导下，独立进行研究工作所取得的成果。除文中已明确注明和引用的内容外，本论文不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的作品及成果的内容。论文为本人亲自撰写，我对所写的内容负责，并完全意识到本声明的法律后果由本人承担。

学位论文作者签名：

日期： 2025 年 5 月 29 日

安徽工程大学学位论文版权使用授权书

学位论文作者完全了解学校有关保留、使用学位论文的规定，同意学校保留并向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子版，允许论文被查阅或借阅。本人授权安徽工程大学可以将本学位论文的全部或部分内容编入有关数据库进行检索，可以采用影印、缩印或扫描等复制手段保存和汇编本学位论文。

保密 ☐，在 ____ 年解密后适用本版权书。

本学位论文属于

不保密 ☒。

学位论文作者签名：

指导教师签名：

日期： 年 月 日

日期： 年 月 日

基于暗态 LSPR 蝶形纳米天线近场增强研究

摘 要

传统金属蝶形纳米天线因等离子体强共振模式的高辐射损耗与量子隧穿效应，导致近场增强性能受限。针对这一瓶颈，本研究提出基于 Fano 共振的金属-介质-金属蝶形纳米天线结构，通过填充高折射率材料以及在纳米间隙中放置金属纳米棒阵列实现暗态等离子体模与偶极子共振模有效耦合并形成 Fano 共振，该设计方法大幅提升结构中近场增强效应的同时也一定程度抑制散射损失，为拉曼散射增强技术基底设计提供了新的方向。

首先通过横向堆叠方式在金属蝶形纳米天线中横向填充高折射率材料形成金属-介质-金属蝶形纳米天线（Transverse Stacking Metal-Insulator-Metal Bowtie Nanoantenna I, TMIM-BNA I），并在其纳米间隙中引入银纳米棒阵列，激发偶极子共振与暗等离子体模式的耦合，显著提升品质因子（Q 值）并降低了散射损耗。在仿真软件 CST Studio 中利用三维有限元（Finite Element Method, FEM）方法仿真表明，TMIM-BNA I 在可见光波段（508 nm）的 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 达 7.1×10^{12} ，较传统 Ag-BNA 提升 6000 倍。进一步将 TMIM-BNA I 纳米间隙中银纳米棒阵列替换成带缺口的纳米棒阵列，构成 TMIM-BNA II 结构，此结构通过破坏几何对称性，其散射截面仅为 10 nm-Ag-BNA 的 85%，验证了暗模式对辐射损耗的抑制作用。

在优化横向堆叠 TMIM-BNA 结构的基础上，提出了纵向堆叠型金属-绝缘体-金属蝶形纳米天线（Longitudinal Stacking Metal-Insulator-Metal Bowtie Nanoantenna I, LMIM-BNA I）。通过精确控制介质层（Ge）的垂直占比为 50%（即 $h_4/h=0.5$ ），在保证足够金属-介质界面的同时，实现了最佳的相位匹配条件。当介质层完全居中时（ $h_3=h_5=20$ nm, $h_4=40$ nm），电场增强因子达到最大值。LMIM-BNA I 的 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 达 8.0×10^{15} 。在 LMIM-BNA I 的缺口纳米棒基础上，LMIM-BNA II 在纳米棒内部引入介电材料，打破了结构沿 z 轴的对称性。这种设计同时激发了电偶极亮模式和高阶多极暗模式，在 560 nm 和 789 nm 波长处分别形成了显著的增强峰。特别值得注意的是，这两个增强峰与散射光谱中的谷值波长严格对应，验证了 Fano 共振的干涉机制。相位分析显示，在增强峰位置，热点区域的电场相位呈现 180 度反转（ $\Delta\varphi \approx \pi$ ），这是亮-暗模式耦合的直接证据。在可见光波段（560 nm），电场增强因子 $|E/E_0|$ 达到 4743，是传统同结构 Ag-NBNA 的 25 倍；在近红外波段（789 nm），增强因子进一步提升至 9211，达到传统结构的 50 倍。通过优化介质层垂直占比（50%）、基底厚度（80 nm）及纳米棒排列密度等参数影响，LMIM-BNA II 在特定波长下 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 突破

6.6×10^{16} 。

本研究通过结构创新与多物理场耦合机制解析，突破了传统纳米天线的近场增强极限。横向堆叠结构通过介电层诱导相位反转与多极子耦合，显著扩展热点区域；纵向堆叠结构利用 Fano 共振实现能量局域化与辐射损耗的协同优化。研究成果为高灵敏度表面增强拉曼光谱（Surface Enhanced Raman Spectroscopy, SERS）、单分子检测及量子光源设计提供了新范式，同时为纳米光子器件的跨尺度集成与动态调控奠定了技术基础。

关键词：暗等离子体模式；蝶形纳米天线；近场增强；金属-介质-金属结构；Fano 共振

Abstract

Conventional metal bowtie nanoantennas have limited near-field enhancement performance due to the high radiation loss and quantum tunneling effect of dipole-dipole resonance mode. To address this bottleneck, this study proposes a metal-dielectric-metal bowtie nanoantenna structure based on dark plasmon modes. The breakthrough of the near-field enhancement mechanism is realized by adding high refractive index materials and nanorod arrays to the metal nanoantennas in the transverse or longitudinal direction.

The transversely stacked metal-dielectric-metal bowtie nanoantenna (TMIM-BNA I) is filled with a high refractive index material in the transverse direction of the metal bowtie nanoantenna and introduces arrays of silver nanorods in its nano-gap, which excites the coupling of dipole resonance and dark plasma modes to significantly enhance the quality factor (Q-value) and reduce the scattering loss. Simulations in the simulation software CST Studio using the three-dimensional finite element method (FEM) show that the SERS enhancement factor $|E/E_0|^4$ of TMIM-BNA I in the visible band (508 nm) reaches 7.1×10^{12} , which is a 6000-fold enhancement over the conventional Ag-BNA. The silver nanorod arrays in the nanogap of TMIM-BNA I are further replaced with notched nanorod arrays to form the TMIM-BNA II structure, which has a scattering cross-section of only 85% of that of the 10 nm-Ag-BNA by breaking the geometrical symmetry, which verifies the suppression of radiative loss by the dark mode.

Based on the optimization of the lateral stacked TMIM-BNA structure, a longitudinal stacking metal-insulator-metal bowtie nanoantenna (LMIM-BNA I) was proposed. By precisely controlling the vertical proportion of the dielectric layer (Ge) at 50% ($h_4/h = 0.5$), while ensuring sufficient metal-dielectric interfaces, the optimal phase matching condition was achieved. When the dielectric layer was completely centered ($h_3 = h_5 = 20$ nm, $h_4 = 40$ nm), the electric field enhancement factor reached its maximum value. The SERS enhancement factor $|E/E_0|^4$ of LMIM-BNA I reached 8.0×10^{15} . Based on the notch nano-rod of LMIM-BNA I, LMIM-BNA II introduced dielectric materials inside the nano-rod, breaking the symmetry along the z-axis of the structure. This design simultaneously excited the electric dipole bright mode and the high-order multipole dark mode, forming significant enhancement peaks at 560 nm and 789 nm wavelengths. Particularly noteworthy is that these two enhancement peaks strictly correspond to the valley wavelengths in the scattering spectrum, verifying the Fano resonance interference mechanism. Phase analysis shows that at the

position of the enhancement peak, the electric field phase at the hot spot region exhibits a 180-degree inversion ($\Delta\phi \approx \pi$), which is direct evidence of the coupling of bright-dark modes. In the visible light band (560 nm), the electric field enhancement factor $|E/E_0|$ reaches 4743, which is 25 times that of the traditional Ag-NBNA structure; in the near-infrared band (789 nm), the enhancement factor further increases to 9211, reaching 50 times that of the traditional structure. By optimizing parameters such as the vertical proportion of the dielectric layer (50%), the base thickness (80 nm), and the density of nano-rod arrangement, the SERS enhancement factor $|E/E_0|^4$ of LMIM-BNA II exceeds 6.6×10^{16} at specific wavelengths.

In this study, the near-field enhancement limit of conventional nanoantennas is broken through structural innovation and multi-physics field coupling mechanism analysis. The transverse stacked structure significantly extends the hot spot region by inducing phase inversion and multipole coupling through the dielectric layer, while the longitudinal stacked structure utilizes the Fano resonance to achieve the synergistic optimization of energy localization and radiation loss. The research results provide a new paradigm for high-sensitivity Surface Enhanced Raman Spectroscopy (SERS), single-molecule detection, and quantum light source design, and lay a technical foundation for cross-scale integration and dynamic regulation of nanophotonic devices.

Key words: Dark Plasmon Modes; Metal-Dielectric-Metal Structure; Bowtie Nanoantenna; Near-field Enhancement; Fano Resonance

目 录

摘要	IV
Abstract	VI
目录	VIII
第一章绪论	1 -
1.1 课题研究的背景及意义	1 -
1.2 研究现状	3 -
1.2.1 国内研究现状	3 -
1.2.2 国外研究现状	4 -
1.3 光学纳米天线的原理及特点	6 -
1.3.1 基本原理	6 -
1.3.2 结构特点	6 -
1.4 主要研究内容	7 -
第二章 光学天线的基本理论及研究方法	9 -
2.1 引言	9 -
2.2 表面等离子体共振	9 -
2.2.1 表面等离子激元形成条件	10 -
2.2.2 局域表面等离子体共振	12 -
2.3 暗态局域表面等离子体共振	15 -
2.3.1 暗态局域表面等离子体共振的物理机制	15 -
2.3.2 暗态局域表面等离子体共振的物理特性及优势	16 -
2.4 Fano 共振	17 -
2.4.1 Fano 共振的形成机制	17 -
2.4.2 Fano 共振的物理特性	18 -
2.5 电磁场数值研究方法	18 -
2.5.1 有限元法 (FEM)	18 -
2.5.2 仿真软件建模	20 -
第三章 横向 MIM-BNA 结构与近场增强机理研究	22 -
3.1 引言	22 -
3.2 基础结构 (TMIM-BNA I)	23 -
3.3 数值模拟	24 -
3.3.1 结构设计与模拟验证	25 -
3.3.2 关键参数调控机制	26 -

3.4 小结	- 31 -
第四章 纵向堆叠 MIM-BNA 的设计与仿真	- 33 -
4.1 引言	- 33 -
4.2 基础结构 (LMIM-BNA)	- 34 -
4.2.1 纳米天线结构设计与创新机制	- 34 -
4.2 关键参数	- 34 -
4.3 数值模拟	- 35 -
4.3.1 结构设计与模拟验证	- 36 -
4.3.2 关键参数调控机制	- 38 -
4.4 结构优化	- 40 -
4.5 小结	- 43 -
第五章 总结与展望	- 45 -
5.1 研究工作总结	- 45 -
5.2 研究的创新点与不足	- 46 -
5.2.1 创新点	- 46 -
5.2.2 不足	- 46 -
5.3 未来研究展望	- 47 -
参考文献	- 49 -
附件 1: 相关数据	- 55 -
附件 2: 攻读硕士学位期间取得的学术成果	- 60 -

第 1 章 绪论

1.1 课题研究的背景及意义

光学纳米天线的概念源于对传统天线在光频段的拓展。传统天线在射频和微波领域已得到广泛应用，用于发射和接收电磁波，实现无线信息的传输。随着纳米科技的兴起，科学家们开始探索在纳米尺度下操纵光的可能性，光学纳米天线应运而生。1985 年，Wessel 教授^[1]发现金属小颗粒具有接收和发射电磁波的性质，类似于传统天线，最早提出了光天线的概念。1997 年，Grober^[2]进一步构想了平面蝶形结构天线作为近场探针，标志着光学纳米天线研究进入系统化阶段。此后，相关研究不断涌现，纳米结构的电磁特性研究迅速展开。2003 年，K.B.Crozier^[3]小组制作的金属薄膜条阵列对红外波段的光有较强的局域和增强效应。2004 年，W.E.Moerner^[4]等人设计的金属蝶形结构天线得到了 10 个量级的场增强。这些研究成果展示了光学纳米天线在调控光场方面的巨大潜力，使其逐渐成为纳米光学领域的研究热点。

光学纳米天线能够突破传统光学的衍射极限，将光场局域在纳米尺度范围内，实现光与物质在纳米尺度上的高效相互作用。这种独特的能力使得光学纳米天线在众多领域展现出重要的应用价值。在生物医学领域^{[5][6]}，它可用于生物分子的检测与成像，实现对生物分子的高灵敏度、高分辨率探测，有助于疾病的早期诊断和治疗；在通信领域^[7]，光学纳米天线有望实现高速、高效的光通信，提升通信系统的性能和容量；在光催化领域^{[8][9]}，它能够增强光催化反应效率，促进能源的高效转化和利用。光学纳米天线的出现，为解决许多传统光学领域难以突破的问题提供了新的途径和方法，对推动现代科技的发展具有重要意义。

金属纳米结构作为纳米光子学研究领域的重中之重，其蕴含的局域表面等离子体共振^[10]（localized surface plasmon resonance, LSPR）特性恰似一把具有魔力的钥匙，解锁了光与物质深度互动的全新模式。当特定波长的光照射到金属纳米结构表面时，局部电磁场急剧增强，将光学信号显著放大。这一神奇特性使得人类得以在亚波长尺度下对光进行精雕细琢，精准且巧妙地调控光的传播、散射与吸收等行为，为众多前沿技术突破了传统光学的“分辨率瓶颈”^{[11][12]}。

蝶形纳米天线（Bowtie Nanoantenna, BNA）因其独特的双锥对顶构型（图 1.1a）^[13]，在亚波长尺度下展现出卓越的近场增强能力，逐渐成为突破光学衍射极限、实现光-物质强相互作用的核心载体。研究表明，通过优化 BNA 的几何参数（如间隙宽度 d 、尖端曲率半径 r ），可使其 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 达到 10^{16} - 10^{25} 个量级^[13-18]。这种强局域效应为单分子拉曼检测^[5,6]、超分辨成像^[25]及纳米光刻^[29]等前沿技术提供了物理基础。例如，陈浩团队通过调控柱支撑 BNA

（Pillar-supported BNAs, p-BNAs）的阵列周期与高度，实现了 1.6×10^4 的场增强^[13]；王彬团队设计的 Al-BNA 阵列（图 1.1b）更在紫外-红外宽谱范围内展现出可调谐的 LSPR 特性^[19]。然而，世间万物皆有两面性，传统金属纳米结构亦不例外。传统金属蝶形纳米天线面临两大瓶颈：其一，当纳米间隙缩减至临界尺寸（ $d < 1 \text{ nm}$ ）时，量子隧穿效应导致电场增强饱和^[17]，严重制约近场局域性能；其二，偶极-偶极共振模式的高辐射损耗（散射效率 $> 60\%$ ）^[19]显著削弱能量利用效率。此矛盾凸显了单纯依赖几何尺度缩减策略的局限性。

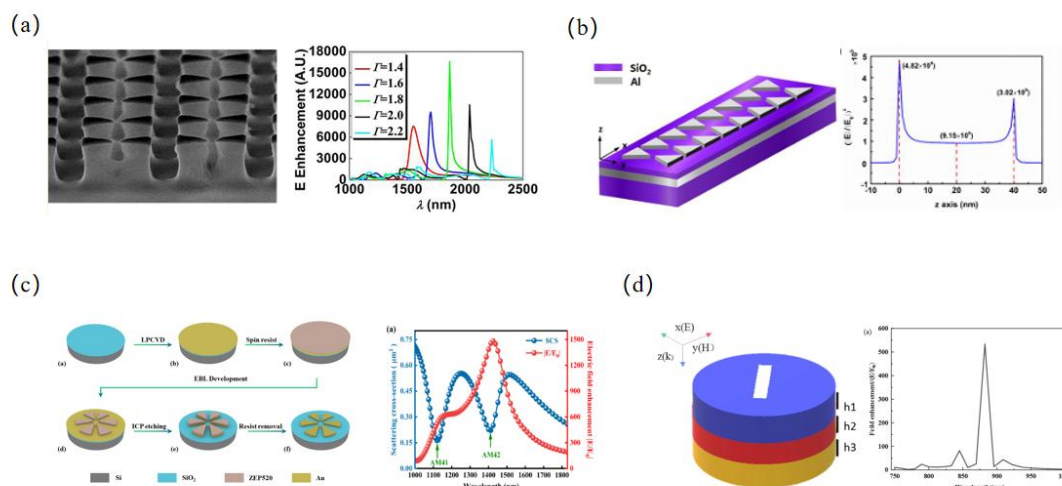


图 1.1: (a)蝶形纳米天线阵列^[13]；(b)Al-BNA 阵列^[24]；(c)介质-金楔形六聚体天线^[22]；(d)三层复合纳米圆盘结构^[23]。

近年来，暗态局域表面等离子共振（Dark-mode LSPR）^[20]概念的提出为突破这一困境提供了新思路。该模式存在于宽纳米间隙结构内，具有低耦合特性，属于弱等离子体模式，却有着高光学品质因数（ Q ）与低散射损耗^[21]的突出优势。通过构建金属-介质-金属（metal-insulator-metal, MIM）复合结构（图 1.1c-d）^[22,23]，利用介质层诱导的多极子耦合效应（如电四极、磁偶极），可显著提升体系品质因子并抑制辐射损耗。例如，王德宝团队设计的纳米环-七聚体复合天线通过激发 Anapole 模式，实现了 1482 倍的电场增强^[22]；王语团队采用 Au-Si-SiO₂ 异质结构，使近场局域强度提升 500 倍^[23]。正是得益于上述这些发现，在纳米间隙区域内成功聚集了高强度的能量，进而形成了显著的“热点”，并且精准测算出该区域呈现出较高的 Q/V 值。毫无疑问，这些创新性成果为纳米光子器件打破传统设计理念的束缚，迈向更具创意、更高性能的创新设计之路指明了清晰的方向，有望为纳米光子学领域带来一场意义深远的变革。

1.2 研究现状

1.2.1 国内研究现状

近年来，我国在蝶形纳米天线的研究已形成“基础理论-结构创新-器件应用”的全链条体系，其技术演进呈现出从远场调控向近场增强、从单一模式向多物理场耦合的转变趋势^[19,24-28]。

在国内研究中，双蝶形金属纳米光天线的远场调控已取得进展，但其技术核心在于如何通过局域表面等离激元（Localized Surface Plasmons, LSPs）实现近场-远场的协同优化。2015 年王冰^[24]等通过时域有限差分法（Finite-Difference Time-Domain, FDTD）发现，天线几何参数（如长度、夹缝角度）可调控 LSPs 模式并影响远场旁瓣，但近场增强与暗态 LSPR（如四极子模式）的关联机制仍不明确。现有研究多聚焦单一参数的影响，而多参数耦合下的 LSPs 动态响应及其对近场局域化的调控潜力尚未系统解决，这需进一步探索金属-介质界面的量子效应与宏观设计的矛盾。值得注意的是，陈杨（2016）^[25]在领结形纳米孔光学天线的研究中提出背面刻蚀方法，通过抑制非陡直侧壁效应将间隙尺寸压缩至 5nm 以下，揭示了 10nm 尺度下 LSPs 局域场增强与结构精度的强关联性。

随着研究深入，暗态 LSPR 的激发与调控机制成为焦点。2017 年，焦蛟团队^[26]开发的 V 形纳米天线通过双共振模式实现了 $0-2\pi$ 全相位调控，但其明态共振主导的设计导致欧姆损耗高达 40%，暴露出传统对称结构在暗态模式激发效率上的固有缺陷。刘媛媛^[27]在 2019 年提出的多缝隙蝶形结构通过光栅耦合拓宽吸收带宽至 400-1800nm，但缝隙引入的辐射损耗使暗态模式品质因子 Q 值被限制在 10^2 量级，凸显了宽带响应与品质因子之间的权衡难题。这些研究共同指向一个核心矛盾：暗态模式的高效激发需突破对称性限制，而现有结构对非辐射态与辐射态耦合的调控能力不足。这些技术问题的本质在于：1）暗态模式的高效激发需突破对称性限制，现有结构对非辐射态与辐射态耦合的调控不足；2）近场增强受限于多物理场（如等离激元-激子）耦合效率，传统单一材料或简单几何优化难以实现亚波长尺度下的能量定向压缩。

在材料体系创新方面，混合结构展现出独特优势。2021 年，马娜设计的混合微腔虽实现 $10^{-6}(\lambda/n)^3$ 的超小模式体积，但金属-介质界面处的模式杂化导致暗态激发效率不足 30%，揭示了多界面耦合引发的能量耗散问题。2023 年，王语^[23]通过设计金-硅复合蝶形结构，利用 Super-dipole 模式的相长干涉将电场增强提升至 100 倍，但金属介电函数虚部导致实际值显著低于理论预测，证实了材料本征损耗的根本限制。中国科学技术大学团队^[79]在非弹性电子隧穿激发 SPP 的研究中发现，电学激发路径的量子效率（ $\sim 0.1\%$ ）受限于隧穿电子与等离激元模式的动量匹配程度，这一发现为突破光学激发效率瓶颈提供了新思路。2024 年，蒋

忠君^[41]通过银-光刻胶-银共振腔结构实现了倏逝波分量的共振放大，其研究揭示了金属-介质界面模式杂化的本质矛盾：多界面耦合导致的能量耗散使理论增强因子与实际值偏差超过 50%，这一发现为理解暗态激发效率不足 30%的物理根源提供了重要依据。近期，王德宝^[80]设计的金属-介质复合纳米天线通过避雷针效应和 Anapole 模式耦合，虽实现了 1482 倍的电场增强，但金属-介质界面的非辐射损耗导致暗态模式纯度不足 30%，表明多极子干涉与材料本征损耗的权衡尚未突破。

当前研究面临两大技术瓶颈：一是加工层面，5nm 间隙的批量制备良率不足 60%，原子尺度粗糙度引发的欧姆损耗制约器件规模化；二是物理机制层面，暗态 LSPR 的动态调控与多物理场（等离激元-激子-光子）耦合模型尚不完善。未来突破方向应聚焦：(1)非对称异质结设计，通过能带工程调控载流子动力学；(2)超表面相位匹配技术，实现亚波长尺度下的损耗抑制与模式纯度协同优化；(3)跨尺度加工工艺创新，平衡结构精度与制备效率的矛盾。这些研究将为量子光源、超分辨成像等前沿应用提供关键技术支撑。

1.2.2 国外研究现状

国际学界在蝶形纳米天线的理论创新、功能拓展及跨学科应用领域始终处于引领地位，其研究范式呈现"基础研究-技术转化-产业融合"的鲜明特征^[22,29-37]。

在近场增强与局域表面等离子体共振研究中，蝶形纳米天线的耦合机制及其间隙依赖性行为揭示了技术问题的核心本质：纳米尺度下电磁场增强的物理机制受制于多尺度相互作用与相位调控的复杂平衡。2004 年 Fromm^[29]发现间隙在 16-488 nm 范围内变化时，共振波长呈现非单调偏移（先蓝移后红移），这一现象突破了传统偶极近似模型的解释范畴，证实了辐射场相位延迟（ $1/d$ ）与近场耦合（ $1/d^3$ ）的动态竞争机制。2005 年，Schuck^[30]通过双光子荧光实验观测到场增强因子达 10^3 量级，但实际测量值的离散分布暴露出制造误差（如 5 nm 级结构变形）对性能的显著影响。这一现象揭示了技术本质的另一维度：场增强的极限不仅受制于理想结构设计，更依赖于亚纳米级材料非均匀性（如晶格缺陷、表面粗糙度）与基底界面效应的协同扰动。2006 年，Sundaramurthy 团队^[31]利用蝶形天线实现 30 nm 光刻时发现，当近场强度超过临界阈值（平均功率 $>500 \mu\text{W}$ ），天线结构因热熔或电子隧穿发生不可逆损伤，导致增强因子骤降。这一现象指向暗态 LSPR 应用的终极挑战：如何平衡超高场增强（ $>10^3$ ）与非平衡态等离激元稳定性。FDTD 模拟显示，场增强区域（ $<20 \text{ nm}^3$ ）的能量密度可达入射光的

10^6 倍，但金属晶格在此条件下的非谐振动会引发局域热积累与结构形变，最终破坏共振条件。

近年来，研究重点聚焦于如何通过调控纳米结构的几何对称性破缺与等离激元模式杂化，实现暗态 LSPR 与明态模式的协同耦合，从而突破传统亮态共振的近场局域性限制。2011 年，Ko^[33]等通过周期性阵列（500 nm 间距）实现了 10^3 倍的电场增强，但其非线性响应表现出显著的模式选择性——二次谐波（Second Harmonic Generation, SHG）效率受金-基底/空气界面的对称性破缺限制，而非单纯依赖场强增强。2013 年，Shih-Che Lin 团队^[34]对轮廓蝶形天线的研究进一步表明，当轮廓厚度比 $t/R < 0.3$ 时，暗态模式激活可使电场增强提升 16%，但共振波长出现非连续跳变，表明暗态与明态耦合存在临界尺寸效应。FDTD 模拟显示，过薄的轮廓厚度会导致近场相位失配，反而降低增强因子，说明亚波长腔体虽能抑制辐射损耗，但需精确平衡模式杂化强度与介电环境敏感性（如 Johnson-Christy 模型中的频变介电函数）。2015 年，Nien^[82]团队通过引入纳米孔洞（如 Etchr50 结构）打破几何对称性，成功诱导偶极-四极子杂化模式，使电场增强提升 73%。然而，该策略受限于纳米孔尺寸与共振波长的非线性关系，导致加工误差（如 5 nm 圆角偏差）显著影响模式杂化效率。此外，周期性阵列的衍射模式（如 1,000 nm 和 1,450 nm 处的衍射峰）与局域表面等离激元共振耦合，引入传感信号串扰，凸显了亮态共振对结构周期性的依赖性矛盾。

针对表面增强拉曼光谱（Surface Enhanced Raman Spectroscopy, SERS）的生物学检测需求。2019 年，Campbell 团队^[35]制造了几个具有不同几何间距的蝴蝶结纳米天线，用于拉曼光谱中的 532 nm 波长激光线。实验验证了电子束剂量（6.5-10.3 剂量因子，对应 650–10300 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ ）对纳米天线形貌的显著调控作用：剂量增加 44.78% 时，结构尺寸（如间隙与边长）膨胀 5.9%-10.7%。针对可见光能量捕获与增强需求，Jiao 等人^[36]在 2020 年提出一种基于阶梯式蝶结-矩形纳米孔复合结构的等离子体纳米天线设计（ SiO_2 基底），该复合天线在特定波长下最大电场强度增强 $|E/E_0|^2$ 突破 9×10^4 ，且在 660-760 nm 宽谱范围内保持 $|E/E_0|^2 > 2 \times 10^4$ 的增强性能。其独特的双共振增强机制使 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 高达 2.2×10^9 ，并能在三维空间（Z 方向）均匀约束电场分布。Khalil 团队^[37]通过遗传算法优化 BNA 结构参数（臂长 $L=120$ nm，间隙 $d=15$ nm），在 $\lambda=633$ nm 处实现 $|E/E_0|^2=1.2 \times 10^5$ 的场增强，使 SERS 检测限降低至 10^{-18} M。2024 年，Yi^[83]等将 BNA-LSPR 传感器应用于子痫前期预测，通过氨基偶联法修饰 sFlt-1/PLGF 抗体，实现了无标记、高灵敏检测（检测限达 pg/mL）。该研究验证了 BNA 结构在复杂生物样本中的适用性，其 SERS 信号与 ELISA 结果高度线性相关（ $R^2=0.97$ ），为多标志物联合检测提供了可能。团队进一步指出，集成微流控技术可解决样本通量问

题，但需平衡结构对称性破缺与模式杂化效率（如临界厚度比 $t/R < 0.3$ 时相位失配风险）。

当前国际研究呈现三大发展趋势：(1)结构设计从简单几何向多功能复合结构演进；(2)加工技术向亚 10 nm 精度突破；(3)应用场景向量子计算、精准医疗等前沿领域渗透。但仍存在两大核心挑战：(1)批量制备中纳米级形貌控制与成本效益的平衡问题；(2)复杂介质环境下多物理场耦合理论的缺失，特别是在非平衡态等离子体激元动力学方面仍需建立普适性模型。这些挑战为未来研究提供了明确的方向指引。

1.3 光学纳米天线的原理及特点

1.3.1 基本原理

光学纳米天线的运作基于光与物质间复杂且精妙的相互作用机制，核心聚焦于金属纳米结构内自由电子对光的特殊响应特性。当具有特定波长、频率的光束精确照射至纳米尺度的金属构造，以蝶形纳米天线为例，光子所携带的能量会被金属中的大量自由电子迅速捕获。这一能量传递过程瞬间打破电子原有的稳态分布，促使它们产生集体振荡行为，此即为广为人知的表面等离激元共振（Surface Plasmon Resonance, SPR）现象。

在 LSPR 情景下，电子的振荡被有效限定于纳米天线的特定局部区域，如同被一个无形的约束场限制，进而引发高度局域化且能量聚集程度高的电磁场生成。暗态 LSPR 作为其中极具特色的存在，相较于辐射特性明显的传统明态 LSPR，其激发模式涉及高阶多极子间的精细交互作用，振荡特性更为复杂隐蔽。这种独特模式使得暗态 LSPR 的辐射损耗大幅降低，能够长时间将能量束缚于天线附近，仿若在微观尺度构建了一个高效的能量聚集区域，为后续显著的近场增强效应奠定了坚实基础。

1.3.2 结构特点

蝶形纳米天线在光学纳米天线范畴内展现出独有的结构魅力，可视作二聚体纳米结构的精妙变形，其显著标志为一对尖端呈对顶态势。深入探究光与该结构的相互作用，依据 Bethe 所建立的小孔衍射理论^[38]，光的透射率与波长遵循特定的数学关联，即呈现出 $T \propto \lambda^{-4}$ 的规律，这直接表明孔径越小，光的透过率越低。当基于 Synge 的设想^[39]，试图运用小孔作为光学探针达成近场超分辨成像目标时，实践中面临严峻挑战：所收集到的光信号极度微弱，由此衍生的信噪比问题成为阻碍图像质量提升的关键因素，致使成像效果大打折扣。

与之形成鲜明对比的是，蝶形纳米天线在应对此类问题时优势尽显，能够同时实现透射增强与超高分辨的卓越成效^[39]。当电场偏振沿着尖端对顶方向入射至领结型纳米天线时，天线内部瞬间被激活，引发表面电流产生，进而致使在尖端

两侧精准地生成等量异号电荷。这些聚集于尖端的电荷巧妙组合，呈现出电偶极子的特性，并再次向外辐射能量，完美阐释了孔径后方透射场得以增强的内在物理机制^[40]。并且，当光的偏振精准沿对顶方向入射到领结型天线上时，双重强化因素协同发力：一方面，得益于尖端效应，尖端处的光场强度呈爆发式增长，形成显著的局域光场增强效果；另一方面，凭借其特殊的几何架构，特定频率的电磁波与天线发生深度交互，成功激发局域表面等离子体共振现象，再度助推尖端处光场的强化，为实现高分辨成像奠定坚实基础。

本研究提出的蝶形纳米天线采用双三角金属单元对称配置的结构，通过纳米间隙（ $<10\text{ nm}$ ）内局域表面等离子体共振耦合效应，在可见光波段实现了显著的光-物质相互作用增强^[42]。

蝶形纳米天线采用两个三角形金属构件精确对准的结构设计，在其纳米间隙区域通过局域表面等离子体共振耦合效应显著增强了光-物质相互作用^[42]。该几何构型通过调控等离子体间的协同耦合作用，实现了高强度的近场局域增强特性。当入射光波矢与结构对称轴匹配时，诱导金属表面传导电子产生相干振荡，在双三角顶端形成相位同步的电荷分布，由此产生高强度近场局域效应。相较之下，传统纳米结构如球形纳米天线为例，由于各向同性散射导致电磁场能量呈空间均匀分布，而圆柱形结构虽存在轴向场增强效应，但其非对称模式特性难以实现精准的顶端等离子体耦合。蝶形纳米天线通过优化双三角构型的几何参数，实现了电磁场能量的定向汇聚，其场增强因子较球型结构提升 2 个数量级，展现出独特的近场调控优势。

综上所述，蝶形纳米天线凭借独特的几何构造，在光场操控领域大显神通，利用尖端之间区域作为关键“发力点”，实现电磁场的高效汇聚与精准调控，为光学纳米天线技术的发展注入强大动力，充分彰显这类特殊结构在光场应用中的广阔前景。

1.4 主要研究内容

本研究系统探究了金属-介电-金属蝶形纳米天线（Metal-Insulator-Metal Bowtie Nanoantenna, MIM-BNA）的结构设计与近场增强特性，针对传统金属蝶形纳米天线中存在的辐射损耗、热点局域性及量子隧穿效应等问题，提出了不同堆叠方式的复合 MIM-BNA 解决方案。

首先构建了横向堆叠金属-介电-金属蝶形纳米天线（Transverse Stacking Metal-Insulator-Metal Bowtie Nanoantenna I, TMIM-BNA I），通过在 Ag-BNA 横向引入高折射率材料（Ge）及银纳米棒阵列，形成金属-介电-金属三明治结构。研究分析了介电层诱导的偶极子共振与暗等离子体模式的耦合特性，探讨了纳米棒阵列对混合暗模式 Q 值的调控作用。通过 CST Studio 仿真软件的三维有限元

仿真，量化分析了介电层厚度、金属尖端角度、基底高度等几何参数对电场增强的影响，采用" Q/V "作为近场局域性能评价指标，在可见光波段（508 nm）将 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 从传统 10 nm-Ag-BNA 的 1.2×10^9 （仿真数据）提升至 7.1×10^{12} ，相对提升 6000 倍。进一步在 TMIM-BNA I 的基础上引入缺口银纳米棒阵列，构建了 TMIM-BNA II 结构。该结构通过破坏 Z 轴几何对称性激发暗模，其散射截面为 13nm-Ag-NBNA 的 85%（从 $1.82 \times 10^6 \text{ nm}^2$ 降至 $1.57 \times 10^6 \text{ nm}^2$ ），表现出较低的散射损耗。

为拓展跨波段近场增强能力，设计了纵向堆叠金属-介电-金属蝶形纳米天线（Longitudinal Stacking Metal-Insulator-Metal Bowtie Nanoantenna I/II, LMIM-BNA I/II）。通过引入缺口银纳米棒及介电优化填充，利用几何对称性破缺实现了亮-暗模式的 Fano 共振效应。研究分析了纵向堆叠结构中电偶极亮模式与高阶暗模式的干涉特性，LMIM-BNA I 的 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 达到 8.0×10^{15} ，LMIM-BNA II 在可见光（508 nm）与近红外（790 nm）波段分别实现了相对于 10 nm-Ag-BNA 结构 25 倍和 50 倍的电场增强。通过优化介质层垂直占比（50%）、基底厚度（80 nm）及纳米棒排列密度等参数，LMIM-BNA II 在特定波长下的 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 达到 6.6×10^{16} 。这一结果基于以下特殊条件：(1)1 nm 制造精度的纳米间隙；(2)激发波长同时匹配 Fano 共振与暗态 LSPR；(3)相位匹配优化的介电层（Ge）填充。

本研究通过系统的结构设计与机理分析，显著提升了纳米天线的近场增强性能，为等离激元光子学器件的优化与功能拓展提供了理论依据和技术参考。

第 2 章 光学天线的基本理论及研究方法

2.1 引言

随着纳米技术的飞速发展，光学纳米天线在众多前沿领域崭露头角，成为备受瞩目的研究热点之一。在这一充满活力的研究范畴中，基于暗态局域表面等离子共振的蝶形纳米天线更是以其独特的性能优势，吸引着全球科研人员的目光，为光与物质相互作用的探索开辟了全新的路径。我们将深入光学天线的核心理论根基以及前沿研究方法，犹如开启一场知识的深度探险，旨在全方位剖析暗态 LSPR 蝶形纳米天线背后隐藏的精妙物理机制，精准掌握那些能够调控其近场增强效果的关键要素。

理解光学天线的基本理论是解锁其潜在应用的首要钥匙。从 LSPR 原理出发，基于此原理，借麦克斯韦方程组推导，描述光在天线中的传播、电磁场分布及与物质相互作用，提供理论支撑。但理论推导难直观呈现光场现象，需数值模拟工具，如有限元、时域有限差分法，构建虚拟模型，将理论转为电磁场分布、近场增强效果图像，助研究者洞悉光与结构互动。

2.2 表面等离子体共振

表面等离子体激元（Surface Plasmon Polaritons, SPPs）^[43]是由介质与金属表面自由电子的振荡相互耦合所形成的现象，在红外及可见光波段中尤为活跃，能够有效地调控光与金属之间的相互作用。其电场沿垂直于金属纳米颗粒表面的方向呈指数衰减，电磁场局限于金属表面邻近区域，作为沿导体与电介质界面传播的“信息载体”，其振幅随界面距离的增加以指数形式衰减。这种特性使得 SPPs 能够敏锐地捕捉界面两侧的微小变化并将其转化为光学信号波动。作为纳米光电子学的一个关键研究领域，SPPs 吸引了来自物理、化学、材料科学和生物学等多个学科研究者的广泛关注。

表面等离子体共振（Surface Plasmon Resonance, SPR）是基于 SPPs 的光学现象，广泛应用于生物传感、材料科学和纳米技术等领域。SPR 技术的发展可以追溯到 20 世纪初，主要的进展阶段如下：1902 年，Robert W.Wood^[44]在光学实验中观察到金属表面的异常衍射现象，为 SPR 的研究奠定了基础；1941 年，Fano^[45]提出了 SPPs 的理论框架，解释了金属表面电磁波的传播特性；1968 年，Otto^[46]和 Kretschmann^[47]分别提出了两种激发 SPR 的实验方法：Otto 配置——通过棱镜与金属薄膜之间的空气间隙激发 SPR；Kretschmann 配置——通过棱镜直接与金属薄膜接触激发 SPR。由于 Kretschmann 配置更为简便且高效，成为了主流实验方法；1982 年，Bo Liedberg^[48]等人将 SPR 应用于生物传感，开发了基于 SPR 的免疫传感器，用于检测抗原与抗体之间的相互作用；1980 年代末期，SPR 技术

开始商业化，Biacore^[49]公司（现为 Cytiva 的一部分）推出了首台商用 SPR 仪器，推动了 SPR 在生物分子相互作用研究中的应用；1990 年代，SPR 技术在灵敏度、分辨率和自动化等方面取得了显著进展，广泛应用于药物筛选、蛋白质相互作用研究及生物分子动力学分析^[50,51]；2000 年代，SPR 技术进一步扩展至纳米材料^[52,53]、环境监测^[54]和食品安全^[55,56]等领域，成为跨学科研究的重要工具^[57]；2010 年代，SPR 与质谱^[58]、微流控^[59]等技术的结合，提升了其在高通量筛选和复杂样品分析中的能力^[60]；2020 年代，SPR 技术继续朝着高灵敏度、高分辨率及便携化方向发展^[61]，在精准医疗^[62]、单分子检测^[63,64]和实时监测^[65]等领域展现出巨大潜力^[66]。

从最初的理论研究到如今广泛应用，SPR 技术已经经历了百余年的发展。其高灵敏度、无标记以及实时监测等特点，使其在生物医学、材料科学和环境监测等多个领域发挥了重要作用。随着技术的不断发展，未来 SPR 有望在更多领域实现应用。

2.2.1 表面等离子激元形成条件

SPPs 是光与金属表面自由电子集体振荡耦合形成的一种电磁模式。其在光学天线中的应用，起到了至关重要的作用。为了深入理解表面等离子激元的形成机制，本节将详细讨论其形成的物理条件。

1. 金属的介电特性

金属的介电特性是 SPPs 形成与传播的物理基础，其核心可通过经典 Drude 模型进行理论描述。Drude 模型由 Paul Drude^[78]于 1900 年提出，是描述金属光学响应的经典理论框架。其核心假设为：金属中的价电子脱离原子核束缚，形成自由电子气，忽略电子间相互作用及晶格周期性势场的影响；电子与晶格缺陷、声子等发生碰撞的平均时间间隔为弛豫时间 (τ) ，碰撞导致动量随机化。该模型将金属的光学性质简化为自由电子在外加电磁场作用下的集体运动，为理解金属介电常数频散特性提供了基础。

考虑频率为 ω 的外加电场：

$$E(t) = E_0 e^{-i\omega t} \quad (2-1)$$

电子的运动方程为：

$$m_e \frac{d^2 x}{dt^2} + m_e \gamma \frac{dx}{dt} = -eE(t) \quad (2-2)$$

其中， m_e 为电子质量， $\gamma = \frac{1}{\tau}$ 为阻尼系数。假设稳态解为

$$x(t) = x_0 e^{-i\omega t} \quad (2-3)$$

代入方程得：

$$x_0 = \frac{-eE_0}{m_e(\omega^2 + i\gamma\omega)} \quad (2-4)$$

极化强度 $P = -nex$ （ n 为电子密度），结合电位移关系

$$D = \varepsilon_0 E + P = \varepsilon \varepsilon_0 E \quad (2-5)$$

可得介电函数：

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \quad (2-6)$$

其中，等离子体频率

$$\varepsilon(\omega) = \sqrt{\frac{n e^2}{\varepsilon_0 m_e}} \quad (2-7)$$

进一步考虑束缚电子贡献，修正为：

$$\varepsilon_m(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\varepsilon_p^2}{\omega(\omega + i\gamma)} \quad (2-8)$$

此处 ε_∞ 为高频介电常数，反映离子实极化响应。

将介电函数分解为实部（ ε'_m ）和虚部（ ε''_m ）：

$$\varepsilon'_m(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\varepsilon_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \quad (2-9)$$

$$\varepsilon''_m(\omega) = \frac{\omega_p^2 \gamma}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)} \quad (2-10)$$

当 $\omega \ll \omega_p$ 时， $\varepsilon'_m < 0$ ，满足 SPPs 的激发条件。虚部 ε''_m 表征光场能量转化为热量的损耗机制，与电子碰撞频率 γ 成正比。较低的虚部值有助于减少 SPPs 的传播损耗，提高其品质因子。

2. 金属-介质界面

表面等离子激元形成于金属与介质（如空气、水或玻璃）的界面处。其形成条件与界面两侧材料的介电常数密切相关：

① 介电常数匹配：在金属-介质界面处，表面等离子激元的波矢（ k_{SPP} ）满足以下关系：

$$k_{spp} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d}} \quad (2-11)$$

② 其中, k_0 为自由空间波矢, ε_m 为金属的介电常数, ε_d 为介质的介电常数。为了满足波矢匹配条件, ε_m 和 ε_d 的实部必须符号相反, 即 $\varepsilon'_m < 0$ 且 $\varepsilon'_d > 0$ 。

③ 场分布特性: 表面等离子激元的电场在金属-介质界面处呈现指数衰减特性, 即电场强度在金属和介质中均随距离界面深度的增加而迅速衰减。这种局域场特性是 SPPs 在纳米尺度上实现光场增强的基础。

3. 入射光的频率与波矢匹配

表面等离子激元的激发需要满足频率和波矢的双重匹配条件:

① 频率匹配: 入射光的频率必须与金属-介质界面的 SPPs 共振频率相匹配。共振频率由金属和介质的介电常数共同决定。

② 波矢匹配: 由于 SPPs 的波矢通常大于自由空间光波的波矢, 因此需要额外的波矢补偿机制才能激发 SPPs。常用的波矢补偿方法包括: 棱镜耦合、光栅耦合和纳米结构耦合。

4. 几何结构与对称性破缺

在基于暗态 LSPR 的蝶形纳米天线中, 几何结构和对称性破缺对表面等离子激元的形成和特性具有重要影响:

① 几何结构: 蝶形纳米天线的尖端和间隙结构能够产生强烈的局域场增强, 为 SPPs 的激发提供了有利条件。通过优化天线的臂长、间隙宽度和尖端曲率, 可以调控 SPPs 的共振频率和场分布。

② 对称性破缺: 对称性破缺是激发暗态 LSPR 的关键因素。例如, 通过引入不对称的几何排列或非均匀的材料分布, 可以打破蝶形天线的对称性, 从而激发非辐射性的暗态 SPPs 模式。

2.2.2 局域表面等离子体共振

局域表面等离子体共振是金属纳米结构中自由电子在入射光激励下产生的集体振荡现象, 其共振频率与纳米结构的几何形状、材料特性及周围介质密切相关。LSPR 在纳米光子学、生物传感、光催化等领域具有重要应用。在基于暗态 LSPR 的蝶形纳米天线研究中, LSPR 是实现近场增强的核心机制。本节将详细讨论 LSPR 的基本原理以及特性。

1. LSPR 的基本原理

LSPR 的产生源于金属纳米结构中自由电子与入射光场的相互作用, 其核心物理机制是自由电子在入射光交变电场驱动下形成集体振荡, 即局域表面等离子体振荡 (Localized Surface Plasmon Oscillations, LSPOs)。当入射光频率与自由电子集体振荡的固有频率相匹配时, 满足共振条件 (如蝶形天线的几何结构参数与介电环境共同决定的特定关系), 激发 LSPR 现象。共振时, 金属的介电函数

实部为负值，导致纳米结构表面局域电场显著增强，光场能量被局域在纳米尺度区域（如蝶形天线的尖端或间隙），增强因子可达数百倍。LSPR 的特性由材料介电响应（如金、银）和几何结构（如蝶形天线的臂长、间隙宽度及尖端曲率）共同决定，为表面增强拉曼散射和生物传感等高灵敏度应用提供了理论基础。基于麦克斯韦方程组和电磁场理论，通过求解蝶形纳米天线中的电磁场分布和共振条件，可以深入理解局域表面等离子体共振的物理特性及其近场增强效应。

麦克斯韦方程组由四个方程组成，分别描述了电场和磁场的产生、变化及其相互关系：

$$\nabla \cdot E = \frac{\rho}{\varepsilon_0} \quad (2-12)$$

$$\nabla \cdot B = 0 \quad (2-13)$$

$$\nabla \times E = -\frac{\partial B}{\partial t} \quad (2-14)$$

$$\nabla \times B = \mu_0 J + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial E}{\partial t} \quad (2-15)$$

其中， E 为电场强度， ρ 为电荷密度， ε_0 为真空介电常数， B 为磁感应强度， t 为时间， J 为电流密度， μ_0 为真空磁导率。

在无源区域（ $\rho = 0$ ）和（ $J = 0$ ），麦克斯韦方程组可以简化为波动方程。对电场 E 和磁场 B 分别取旋度并代入麦克斯韦方程组，得到：

$$\nabla \times (\nabla \times E) = -\frac{\partial}{\partial t} (\nabla \times B) \quad (2-16)$$

利用矢量恒等式 $\nabla \times (\nabla \times E) = \nabla (\nabla \cdot E) - \nabla^2 E$ 和安培-麦克斯韦定律，得到电场的波动方程：

$$\nabla^2 E - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0 \quad (2-17)$$

同理，磁场的波动方程为：

$$\nabla^2 B - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 B}{\partial t^2} = 0 \quad (2-18)$$

对于时谐场 $E(\mathbf{r}, t) = E(\mathbf{r})e^{-i\omega t}$ ，波动方程简化为亥姆霍兹方程：

$$\nabla^2 E + k^2 E = 0 \quad (2-19)$$

其中, $k = \frac{\omega}{c}$ 为波数, $c = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \epsilon_0}}$ 为光速。

金属的介电函数 $\epsilon_m(\omega)$ 是描述其光学性质的关键参数, 通常为复数:

$$\epsilon_m(\omega) = \epsilon'_m(\omega) + i\epsilon''_m(\omega) \quad (2-20)$$

其中, $\epsilon'_m(\omega)$ 和 $\epsilon''_m(\omega)$ 分别为介电函数的实部和虚部。在 LSPR 共振频率附近, $\epsilon'_m(\omega)$ 为负值, 而 $\epsilon''_m(\omega)$ 反映了金属的吸收损耗。

在金属纳米结构与周围介质的界面处, 电磁场需要满足以下边界条件:

电场的切向分量连续: $E_{t1} = E_{t2}$

电位移矢量的法向分量连续: $D_{n1} = D_{n2}$

磁场的切向分量连续: $H_{t1} = H_{t2}$

磁感应强度的法向分量连续: $B_{n1} = B_{n2}$

对于蝶形纳米天线, LSPR 的共振条件可以通过求解亥姆霍兹方程和边界条件得到。蝶形纳米天线的复杂几何结构(如尖端和间隙)能够产生强烈的局域场增强。假设蝶形纳米天线的介电函数为 $\epsilon_m(\omega)$, 周围介质的介电常数为 ϵ_d , 则共振条件可以通过数值方法(如有限元法或时域有限差分法)精确计算, 其一般形式为:

$$\epsilon_m(\omega) = f(\epsilon_d, \text{几何参数}) \quad (2-21)$$

这一条件表明, 当金属的介电函数实部为负且满足特定关系时, 会激发 LSPR 现象。

在共振条件下, 蝶形纳米天线表面的电场强度显著增强。其 SERE 增强因子可以通过数值模拟得到, 通常表示为:

$$|E|^4 = \left| \frac{E_{\text{local}}}{E_0} \right|^4 \quad (2-22)$$

2. LSPR 的特性

LSPR 最显著的特性是其在纳米结构表面附近产生的强局域电场增强。当入射光的频率与纳米结构中自由电子的集体振荡频率相匹配时, 共振效应将光场能量局域在纳米尺度区域(如蝶形天线的尖端或间隙), 导致电场强度显著增强。这种增强效应通常用增强因子(Enhancement Factor, EF)来描述, 其值可达 $10^2 \sim 10^3$,

为 SERS 和单分子检测等高灵敏度应用提供了基础。

共振频率可通过调节纳米结构的几何参数（如蝶形天线的臂长、间隙宽度及尖端曲率）或选择不同金属材料（如金、银）实现精确调控，其中银在可见光波段具有较低的吸收损耗，而金在近红外波段表现出优异的稳定性。LSPR 模式可分为辐射模式（亮态）和非辐射模式（暗态）：亮态模式通过远场辐射耦合实现光散射，而暗态模式因非辐射能量局域化具有更高的品质因子和更窄的共振线宽，适用于高灵敏度传感。蝶形纳米天线的几何对称性破缺设计可有效激发暗态 LSPR，通过优化其尖端曲率和间隙结构可进一步强化近场局域效应。此外，LSPR 对周围介质折射率变化高度敏感，其共振频率随介质环境改变而偏移，这一特性被广泛应用于生物分子检测和环境监测。通过结合远场散射光谱分析和近场电磁模拟（如 FDTD），可以深入理解 LSPR 的近场-远场耦合特性，为光场调控和器件设计提供理论依据

2.3 暗态局域表面等离子体共振

暗态局域表面等离子体共振是金属纳米结构中一种非辐射性的电磁模式，其能量主要通过近场耦合而非远场辐射耗散，具有高局域场增强、窄共振线宽和低辐射损耗等独特优势。本节结合蝶形纳米天线的几何特性，系统阐述暗态 LSPR 的物理机制及其近场调控原理。

2.3.1 暗态局域表面等离子体共振的物理机制

暗态局域表面等离子体共振其核心在于通过几何或电磁设计抑制辐射损耗，并将能量局域于纳米尺度近场区域。以下从多极子耦合及间隙效应两方面详述其物理机制：

1. 多极子耦合与能量局域化

暗态局域表面等离子体共振的本质是高阶多极子（如四极子、八极子）的电磁场耦合，其能量通过近场相互作用局域化：

① 多极子展开：对于蝶形纳米天线，其总极化率可分解为偶极子(P)、四极子(Q)等模式的叠加：

$$\alpha_{\text{total}} = \alpha_{\text{dipole}} + \alpha_{\text{quadrupole}} + \dots \quad (2-23)$$

暗态模式对应高阶多极子的主导贡献（ $\alpha_{\text{quadrupole}} \gg \alpha_{\text{dipole}}$ ）。

② Fano 共振耦合：亮态（偶极子共振）与暗态（高阶多极子共振）模式间的干涉导致非对称线型，其耦合强度由重叠积分决定：

$$k = \int E_{\text{bright}} \cdot E_{\text{dark}}^* dV \quad (2-24)$$

其中 k 为耦合系数，当 $k < \gamma_{dark}$ （暗态损耗率）时，暗态模式占据主导。

2. 亚波长间隙的电容耦合效应

蝶形纳米天线的亚波长间隙（通常 $<10\text{nm}$ ）是暗态 LSPR 激发的关键结构特征：

① 间隙电场增强：间隙内形成的电容耦合导致电场强度随间隙宽度(d)减小呈指数增长：

$$E_{gap} \propto E_0 \cdot \frac{1}{d^{1.5}} \quad (2-25)$$

当 d 从 20nm 降至 5nm 时，电场增强因子可提升约8倍。

② 非辐射能量局域：间隙内电磁场分布满足边界条件：

$$\nabla \cdot (\varepsilon E) = 0, E_{\parallel, metal} = E_{\parallel, gap} \quad (2-26)$$

其中， $E_{\parallel, metal}$ 表示金属表面处电场的切向分量， $E_{\parallel, gap}$ 为间隙介质中的切向电场。在金属内部，电场（尤其是高频光场）因趋肤效应迅速衰减，其切向分量 $E_{\parallel, metal}$ 趋近于零。因此，界面处的电场能量主要集中在介质侧（如蝶形天线的间隙区域），导致近场局域增强。

2.3.2 暗态 LSPR 的物理特性及优势

暗态 LSPR 因其独特的非辐射能量局域化机制，展现出多项区别于传统亮态 LSPR 的物理特性。这些特性使其在超灵敏传感、非线性光学增强及量子光学调控等领域具有显著优势。

暗态局域表面等离子体共振相较于传统亮态 LSPR 存在本质区别，其物理特性构成了在前沿领域发挥应用潜力的基础。独特的非辐射能量局域化机制表现得极为突出，暗态 LSPR 的电子振荡涵盖四极、八极等高阶成分的精细组合形式，促使能量以非辐射方式高效聚集于纳米结构的近场区域，切实有效地削减了远场辐射损耗，进而构建出能量高度汇聚的“热点”，与亮态 LSPR 相比，能够在近场留存更为可观的能量，为超灵敏传感、非线性光学增强等对强局域电磁场有着严苛要求的应用奠定坚实基础；同时，暗态 LSPR 对环境变化呈现出极高的敏感度，纳米结构表面一旦出现细微的物理或化学变动，诸如生物分子吸附、介质折射率的微小改变等情况，都会即时引发暗态 LSPR 共振频率产生显著的偏移，这是由于其能量局域化结构与外界环境之间存在紧密的耦合关系，凭借该特性，能够精准捕捉外界微弱信号，实现对痕量物质的精确检测以及对超精细物理过程的严密监测；此外，暗态 LSPR 还具备卓越的电磁场调控能力，依托独特的几何结

构设计以及电子振荡特性，它能够对近场电磁场的分布形态、强度大小以及极化方向等关键参数进行精准塑造，在量子光学调控进程中，通过巧妙搭建暗态 LSPR 纳米结构并促使其与量子发射体相互耦合，研究人员可依据实际需求灵活调节量子发射体所处的电磁场环境，进而达成对量子发射体辐射特性的精细操控，这对于推动量子信息科学发展、突破量子技术瓶颈具有重大意义。

暗态局域表面等离子体共振的上述物理特性彼此协同、相辅相成，使其在多学科交叉融合领域展现出极为广阔的应用前景，持续为现代光学技术迈向更高层级提供强劲动力。

2.4 Fano 共振

Fano 共振作为纳米光子学领域的核心物理现象，其本质源于量子力学中离散态与连续态之间的相干干涉效应。在金属纳米结构中，这种干涉表现为光谱响应的非对称线型，其独特性质为光场调控提供了全新维度。当入射光子能量与纳米结构的局域等离激元共振模式匹配时，离散的暗模式（如磁四极子或电八极子共振）与连续的亮模式（如电偶极子共振）通过近场耦合发生能量交换，形成典型的 Fano 线型。这种线型的尖锐度由耦合强度与模式损耗的比值决定，其品质因子（ Q 值）可达传统洛伦兹共振的数十倍，为高灵敏度传感与低阈值激光器设计奠定了基础。

2.4.1 Fano 共振的形成机制

在光学纳米天线中，Fano 共振的形成通常依赖于以下两种机制：

1. 亮模式与暗模式的耦合：亮模式（如电偶极子）因满足动量守恒条件，能够直接与远场辐射耦合，但其宽谱特性导致能量局域性较弱；而暗模式（如磁四极子）由于对称性限制无法直接激发，却具有极高的场局域能力与窄线宽特性。当二者通过纳米结构的设计实现空间重叠时，亮模式作为能量传递通道，将入射光能耦合至暗模式，形成协同共振。以蝶形纳米天线为例，其尖端区域的强场梯度可打破旋转对称性，促使电偶极子与磁四极子模式发生杂化。这种杂化在散射光谱中表现为特征性的 Fano 谷，其位置与深度可通过调节双臂长度差（ ΔL ）或间隙尺寸（ d ）精确调控。

2. 对称性破缺与多极子干涉：对称性破缺设计是诱导高阶多极子干涉的关键策略。通过引入几何非对称性（如阶梯状边缘或倾斜间隙），可激发原本禁戒的暗模式，并增强其与亮模式的耦合效率。例如，蝶形天线的尖端效应和间隙效应能够显著增强暗模式的局域场强，同时通过亮-暗模式耦合实现 Fano 共振的可调控性^[78]。

2.4.2 Fano 共振的物理特性

Fano 共振的光谱特性表现为独特的非对称线型，其物理本质源于离散态（如纳米结构的局域表面等离激元模式）与连续态（如传播的辐射场或背景散射模式）之间的量子干涉效应。这种非对称线型的形状由耦合强度和谐振频率的精细平衡决定，例如在蝶形纳米天线中，通过调节间隙尺寸或臂长比可动态调控耦合效率，从而改变共振峰的位置和线型锐度。其光谱响应可通过 Fano 公式定量描述：

$$\sigma(\omega) \propto \frac{(q + \varepsilon)^2}{1 + \varepsilon^2} \quad (2-27)$$

$$\varepsilon = \frac{\omega + \omega_0}{\Gamma / 2} \quad (2-28)$$

其中 q 为表征不对称性的 Fano 参数， ω_0 为共振频率， Γ 为线宽，该模型表明了干涉效应对光谱形态的主导作用。Fano 共振的另一个特性是其电磁场分布的高度局域化与远场散射的显著抑制。在共振频率附近，纳米结构间隙或尖端的近场电场强度可提升至入射场的 10^4 - 10^5 倍，这种极端局域化源于模式间的相长干涉；而远场散射因相消干涉被大幅削弱，形成“暗模式”特性。这种近场-远场解耦机制使其在 SERS 和超灵敏生物传感中展现出独特优势，例如通过检测共振波长偏移（灵敏度可达数百 nm/RIU）实现亚单分子层厚度的识别。

此外，Fano 共振的窄线宽特性赋予了其极高的品质因子 ($Q > 50$)，远超传统 LSPR 模式。高 Q 值源于辐射损耗的抑制：当离散模式与连续背景的干涉达到临界条件时，系统的有效阻尼率显著降低。这一特性为低阈值纳米激光器提供了物理基础——通过设计法布里-珀罗腔与 Fano 结构的耦合，可实现模式体积压缩与光子寿命延长的协同优化；同时，在光学滤波器中，高 Q 值可直接转化为超窄带滤波（半高宽 < 2 nm）和超高波长选择性，为密集波分复用（Dense Wavelength Division Multiplexing, DWDM）通信系统提供关键技术支持。

2.5 电磁场数值研究方法

在光学纳米天线的研究中，电磁场的数值模拟是理解其光学特性、优化结构设计以及预测性能的重要手段。基于暗态 LSPR 的蝶形纳米天线的近场增强研究，尤其依赖于高精度的电磁场数值计算方法。本节将详细介绍有限元法（Finite Element Method, FEM）及其在蝶形纳米天线研究中的应用，包括有限元建模的基本原理、实施步骤及其在近场增强分析中的优势。

2.5.1 有限元法

有限元法是一种基于变分原理或加权余量法的数值计算技术，其核心在于将连续物理域离散化为有限数量的几何单元（如三角形、四边形或四面体单元），

并通过局部插值函数逼近全局场分布，从而将复杂偏微分方程转化为线性代数方程组求解。该方法在光学纳米天线的研究中具有重要价值，尤其适用于处理非对称结构、异质材料及多尺度电磁耦合问题。

从数学实现角度，FEM 的基本原理可分为四个关键步骤：

1. 域离散化：这构成了有限元分析的关键起始环节。其核心操作在于，依据研究目标特性、期望达成的分析精度以及计算资源的合理配置等多方面要素，将待求解的复杂物理区域巧妙拆解为有限数量（ N 个）的几何单元，诸如三角形、四边形等常见形式。这些几何单元仿若精密拼图的碎片，彼此拼接组合，进而构建起离散化的有限元网格，为后续数值计算筑牢基础架构。

以图 2.1 所示二维圆形结构为例，可洞悉网格密度对求解准确度的影响。该圆形结构采用三角形网格布局，被施以不同网格密度划分，红色区域表征有限元法计算的微单元，浅蓝色区域呈现圆形真实面积与微单元插值对比。网格密度从四等分到十二等分递增时，浅蓝色区域稳步缩减，意味着被计算微单元扩张增大，且网格划分越精细，微单元面积与圆形真实面积偏差越小，结果越精准。由此证实，运用有限元法时，网格划分密度越大，求解结果越贴近物理实际、准确度越高。

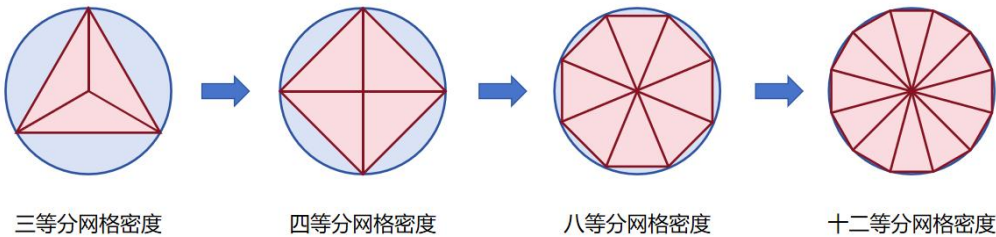


图 2.1：圆形结构的不同网格密度划分

2. 单元插值建模：当完成域离散化，构建起有限元网格后，单元插值建模便成为了后续关键步骤。在这一阶段，基于已划分好的各个几何单元，需要确定合适的插值函数。这些插值函数的选取并非随意，而是要依据所研究物理问题的本质特性。例如，对于力学问题，若涉及到结构的变形分析，可能会选用线性或二次的位移插值函数，以准确描述单元内各点位移的变化情况；在热传导问题中，则要考虑温度在单元内的分布规律，选取能合理反映温度梯度变化的插值函数。通过巧妙运用这些插值函数，将单元内未知的物理量用节点上已知或待求的物理量表示出来，从而建立起单元方程。如此一来，就能够把复杂的连续物理问题转化为在离散节点上求解的代数方程组，为后续利用计算机进行高效数值求解开辟

了道路，进一步推动有限元分析向精准求解目标物理问题迈进。

3.全局方程组装：基于单元间的连续性条件，将局部矩阵集成为全局刚度矩阵，并施加边界条件（如完美电导体边界或开放辐射边界），形成封闭的线性方程组。

4.数值求解与后处理：采用直接法（如 LU 分解）或迭代法（如共轭梯度法）求解全局方程，提取近场增强因子、品质因子（ Q 值）及远场散射效率等关键参数。

在光学纳米天线设计中，FEM 的优势体现于：

① 几何适应性：通过非结构化网格精确表征蝶形天线的尖端曲率、亚纳米级间隙等复杂形貌；

② 多物理场耦合：支持电磁场-热场-力学场的协同仿真，评估等离子体共振引发的焦耳热效应及结构形变；

③ 宽谱分析能力：结合自适应频域扫频技术，可高效获取从可见光到近红外的宽波段光谱响应。

此类特性使 FEM 成为研究暗态 LSPR 近场增强特性、优化天线结构参数（如臂长、间隙尺寸）及评估多物理场性能的有效工具。

2.5.2 仿真软件建模

在上节对 FEM 法相关理论进行阐述的基础上，基于该方法的电磁仿真软件包含了 COMSOL Multiphysics、HFSS、CST Studio Suite 等。本文选取灵活性卓越、多物理场耦合能力强劲的 CST Studio Suite 作为模拟平台，其优势详述如下：

1.在针对复杂电磁问题开展建模作业时，CST Studio Suite 所具备的灵活性得以充分彰显。对于不规则电磁结构，如带有精细纹理的雷达吸波材料表面以及复杂曲面的电磁谐振腔等，均可实现精确的几何建模，将实际场景切实转换为仿真模型。相较于传统软件，其建模流程更为简捷、高效，能显著缩减研发周期，为创新设计的落地执行提供有力支撑。

2.强大的多物理场耦合能力无疑是一大显著亮点。在现实场景中，电磁现象往往与力学、热学、流体力学等诸多领域相互交织、彼此联动。以电磁加热设备为例，电磁场的热效应会促使材料特性改变，进而反向作用于电磁分布态势。CST Studio Suite 能够有机整合多学科知识，联立不同物理场的控制方程，对多物理场交互工况实施模拟，为攻克复杂工程问题提供精准、有效的解决路径。

3.该软件所运用的求解算法兼具高效性与精确性。基于 FEM 法，采用智能的时间步长和空间步长自适应调整策略，在电磁场变化剧烈的区域自动缩减步长，以确保计算精度；而在平稳区域则适度增大步长，以达成节省资源之目的。如此，既保障了结果的可靠性，又切实提升了计算效能，为大规模电磁仿真工作筑牢根

基。

4.CST Studio Suite 的可视化呈现功能颇为突出。能够以直观且易于理解的图形图像形式展现仿真成果，诸如电磁场矢量分布、能量传输路径、散射参数波动曲线等。研究人员既能够查看静态关键帧以精准洞悉电磁状态，也可借助动态演示追踪物理量的演变轨迹，为深入剖析结果、精准诊断问题以及优化设计方案搭建稳固的视觉依托

第3章 横向 MIM-BNA 结构与近场增强机理研究

3.1 引言

传统金属蝶形纳米天线 (Ag-BNA) 通过纳米间隙中的偶极-偶极共振实现近场增强,而这种增强与金属纳米间隙的尺寸密切相关^[78]。研究表明,当纳米间隙减小至亚纳米尺度 ($<1\text{ nm}$) 时,量子隧穿效应会导致电场增强趋于饱和,同时强偶极耦合引起的辐射损耗 (散射效率 $>60\%$) 显著降低了能量局域化效率^[78]。这些现象表明,单纯减小模型体积 V 并不能无限制地提升电场增强效果。此外,强同相偶极-偶极相互作用在 Ag-BNA 中造成相当大的光散射损失^[71]。

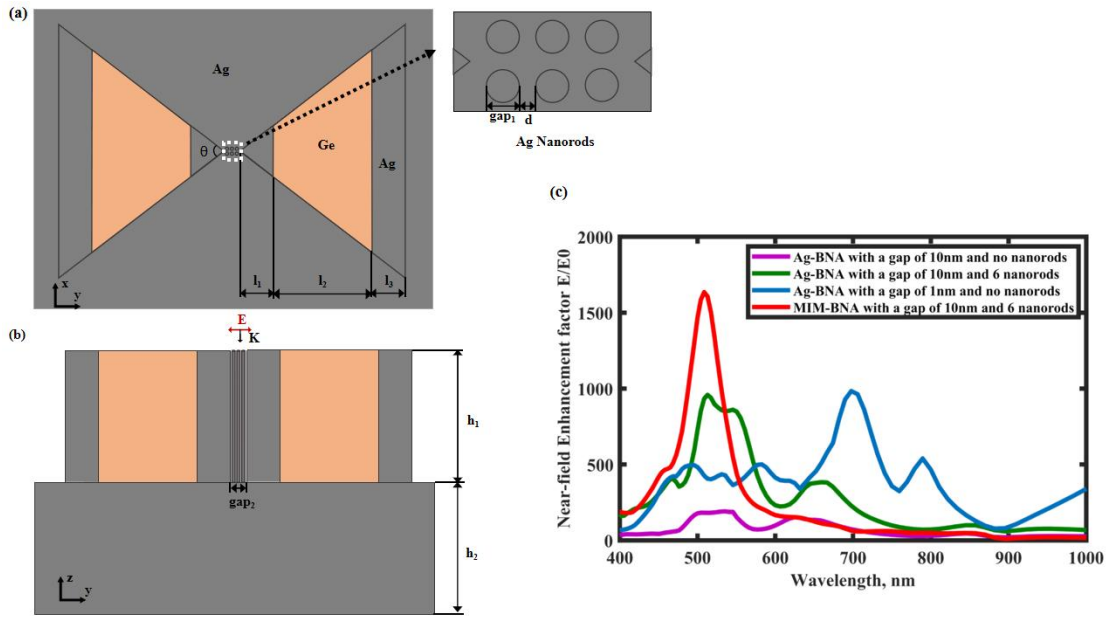


图 3.1: (a)TMIM-BNA I 的俯视图; (b)TMIM-BNA I 侧视图; (c)四种纳米结构的局域近场强度。

针对上述限制,本研究在银基底上构建了带有纳米棒的金属-介电-金属蝶形纳米结构 (Transverse Stacking Metal-Insulator-Metal Bowtie Nanoantenna I, TMIM-BNA I)。通过将高折射率材料 Ge 横向填充 Ag-BNA,并在金属-介电-金属 (Metal-Insulator-Metal, MIM) 纳米间隙中插入银纳米棒阵列,将偶极子共振与暗等离子体模式相结合。理论分析和仿真结果表明,这种设计通过介电层的引入,实现了偶极子共振与暗等离子体模式的有效耦合。特别地,银纳米棒阵列的引入显著提升了混合暗等离子体模式的品质因子 (Q 值),从而优化了电场增强性能。通过系统的参数优化, TMIM-BNA I 结构展现出优异的近场增强特性。在可见光波段 (508 nm) 获得的 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 达到 7.1×10^{12} ,相较于相同尺寸的传统 10 nm-Ag-BNA 结构提升了三个数量级。进一步研究发现,银纳米棒的数量和排列方式对暗等离子体模式的形成具有重要影响。此外,通过对结构

高度、尖端角度和折射率等参数的调控研究，为高性能纳米光子器件的设计提供了重要的理论依据。

这种新型 MIM 结构的设计思路，为解决传统等离子体纳米结构中量子隧穿效应和辐射损耗等问题提供了有效的技术途径。研究结果不仅拓展了对等离子体耦合机制的认识，也为开发高性能纳米光子器件奠定了重要基础。

3.2 基础结构 (TMIM-BNA I)

我们的研究包括构建一个传统的具有 10 nm 间隙的 Ag-BNA 纳米结构 (10 nm-Ag-BNA)，并测量其电场增强。虽然某些“热点”由于偶极-偶极耦合而表现出显著的电场增强，但整体增强效应仍然有限。然而，在 Ag-BNA 纳米结构中，电场增强效应与金属纳米间隙宽度密切相关：随着间隙宽度减小，电磁场增强会集中分布在更狭小的空间区域。当纳米间隙缩减至 1 nm 临界阈值时，电子隧穿效应开始显现，这种量子效应通过缩小模型有效体积 V 的方式制约了电磁场的进一步局域增强。因此，我们提出通过提升体系品质因数 Q 的策略来实现更显著的电场增强效应。为量化谐振腔内的电场强度，我们采用 Q/V 比值评估纳米结构的电场增强性能。针对 Ag-BNA 纳米结构中 10 nm 宽间隙的电场增强需求，我们提出一种创新性结构设计：在纳米间隙内定向排布多个半径 1 nm、高度与 Ag-BNA 匹配的纳米棒阵列（含银纳米棒的 10 nm-Ag-BNA）。该构型通过激发暗等离子激元模式，在维持宽纳米间隙的前提下，使体系品质因数 Q 得到了提升，同时实现局部电场强度高达的显著增强。

前期研究表明，MIM 纳米结构可有效激发暗等离子激元模式。基于此，我们通过在 MIM 纳米间隙内插入多个银纳米棒，实现了暗等离子激元模式与偶极共振的耦合作用。这种银纳米棒增强型 TMIM-BNA I 结构能有效激发具有高 Q 值的混合暗等离子激元模式，从而显著提升局域电场强度。该增强效应不仅维持了可见光波段内最大电场强度，同时扩展了“热点”区域范围并增强电场效应强度。

如图 3.1a 所示，蝶形纳米天线由两个对称的等腰三角形构成，其顶角为 θ ，总长度为 l （对于 TMIM-BNA I， l 为 l_1 、 l_2 与 l_3 之和）。TMIM-BNA I 的三角形结构由长度分别为 l_1 、 l_2 和 l_3 的水平堆叠的 Ag/Ge/Ag 层组成，高度为 h_1 ，与基底高度 h_2 一致。TMIM-BNA I 结构在纳米间隙 gap_2 内嵌入直径为 d 的 Ag 纳米棒阵列（高度与 TMIM-BNA I 一致）数量用 N 表示。Ag 和 Ge 的光学特性参数引自 Drude 模型^[78]的研究。如参考文献^{[73][74]}所述，TMIM-BNA I 纳米天线的制造过程包括使用聚焦离子束（Focused Ion Beam, FIB）纳米制造和电子束光刻（Electron Beam Lithography, EBL）来制造更大的混合二聚体结构。为了制备这些纳米天线中的纳米棒，采用了模板辅助方法。文献^[75]介绍了一种方法，通过将快速干蚀刻与精确光刻技术相结合，可在晶圆级大规模制造出均匀的 5

nm 以下间隙。表 3.1 列出了相关参数。

表 3.1: 四种纳米结构的具体参数。

结构	gap_1 (nm)	gap_2 (nm)	θ (deg)	L (nm)	l_1 (nm)	l_2 (nm)	l_3 (nm)	h_1 (nm)	D (nm)	N
TMIM-BNA I	1	10	75	100	20	60	20	80	2	6
含银纳米棒的 10 nm-Ag-BNA	1	10	75	100	/	/	/	80	2	6
1nm-Ag-BNA	/	1	75	100	/	/	/	80	/	/
10 nm-Ag-BNA	/	10	75	100	/	/	/	80	/	/

3.3 数值模拟

本研究采用 CST Studio Suite 2023 软件平台进行全波电磁仿真计算，基于三维有限元法对 TMIM-BNA I 结构的电磁特性进行系统分析。在仿真设置方面，我们建立了精确的数值模型并进行了多层次的优化配置。

在计算域设置方面，我们将背景介质设为真空环境（相对介电常数 $\epsilon=1.0$ ），采用六面开放边界条件（Open add space）。同时设置了 8 层完美匹配层（Perfectly Matched Layer, PML），确保边界效应最小化。时域求解器采用自适应时间步长算法，最小时间步长设置为 0.1 fs，以保证时域计算的精确性。我们的主要目的是分析近场强度的时空分布。网格划分方案采用多级自适应策略。全局基础网格尺寸设为 8 nm ($\lambda_{\min}/50$)，曲面区域采用曲率自适应网格，曲率因子设置为 0.25。在关键区域进行特殊处理：金属-介质界面处设置 0.2 nm 的法向网格；纳米间隙区域经过三重自适应加密，从初始 0.4 nm 加密至最终 0.05 nm，收敛误差控制在 1%以内；纳米棒表面采用圆柱坐标系网格，径向分辨率达到 0.1 nm。激励源配置方面，我们设置 TE 模式平面波沿-z 轴垂直入射，极化方向平行于结构短轴（x 方向）。光谱范围覆盖 400-1000 nm，采样间隔为 2 nm，功率密度归一化为 1 W/m²。为全面捕获电磁响应特性，我们部署了多种监测器：近场探头记录 $|E/E_0|$ 场增强分布，散射场积分器计算总散射截面，相位监测器沿 y 轴以 0.2 nm 间隔采样，能流监测器计算坡印廷矢量分布。为验证计算收敛性，我们进行了网格独立性测试，确认当网格加密至 0.05 nm 后，电场强度计算结果变化小于 1%，确保了计算结果的可靠性。这种精细化的仿真设置为我们后续的电磁特性分析提供了坚实的数据基础。

如图 3.1 c 所示，我们模拟了四种纳米结构的电场增强效应。相较于依赖强偶极-偶极相互作用的三种 Ag-BNA 结构，TMIM-BNA I 在约 508 nm（可见光波段）处展现出 7.1×10^{12} 的 SERS 增强因子。与 10 nm-Ag-BNA 相比，TMIM-BNA I 结构 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 提升约 6000 倍；相较于嵌入银纳米棒的 10 nm-Ag-BNA，其最大电场强度 $|E/E_0|$ 增加了约 600。

3.3.1 结构与模拟验证

本研究通过 CST Microwave Studio 时域仿真系统对比了三种纳米结构的近场增强特性：10 nm-Ag-BNA（银蝶形纳米天线）、含银纳米棒的 10 nm-Ag-BNA 以及 TMIM-BNA I。仿真模型基于图 3.2 a-c 所示的几何构型，其中纳米间隙宽度固定为 10 nm，且间隙内所有纳米棒尺寸保持一致，以确保对比的公平性。

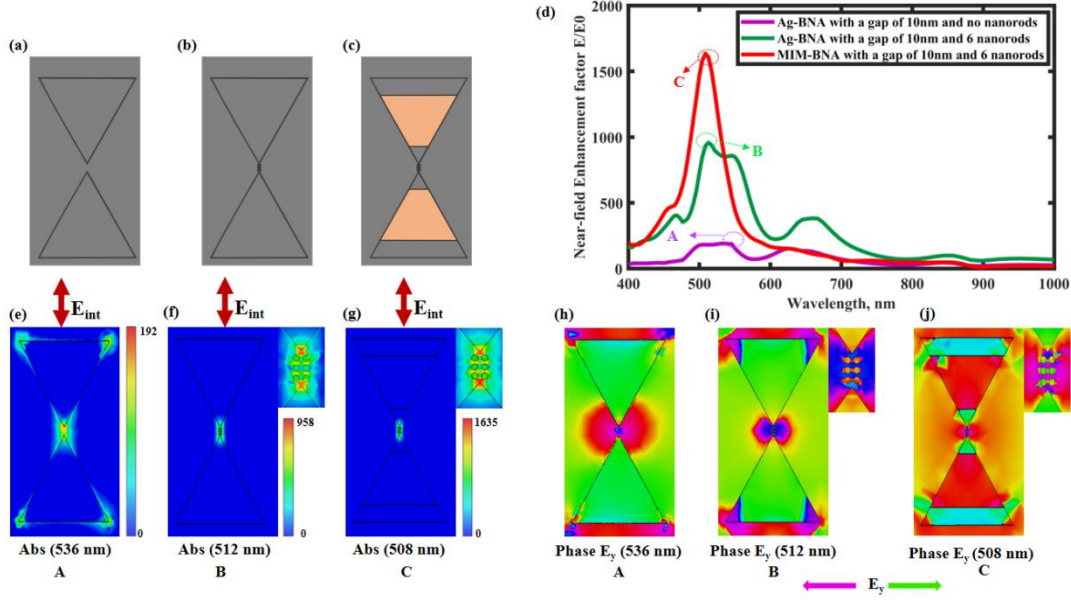


图 3.2: CST 模拟的结构和结果。(a)10 nm-Ag-BNA, (b)含银纳米棒的 10 nm-Ag-BNA, (c)TMIM-BNA I。(d)在相同的间隙宽度为 10 nm 时,三种纳米天线的电场增强。在电场增强峰值波长下,10 nm-Ag-BNA (e)、含银纳米棒的 10 nm-Ag-BNA (f) 和 TMIM-BNA I (g) 的近电场分布,以及 10 nm-Ag-BNA (h)、含银纳米棒的 10 nm-Ag-BNA (i) 和 TMIM-BNA I (j) 沿 y 轴的相位。

为定量评估各结构的性能差异,图 3.2 d 提取了三种结构在特定共振波长(标记为 A、B、C)下的峰值电场增强因子 $|E/E_0|$,我们进一步计算了其对应的 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$,具体数据详见附件 1。此外,图 3.2 e-g 展示了对应波长下的最大近场电场分布。10 nm-Ag-BNA 在波长 A (536 nm) 处表现出典型的偶极局域表面等离激元共振 (LSPR), 峰值 $|E/E_0| \approx 187.3$, 对应 $|E/E_0|^4 \approx 1.2 \times 10^9$, 其增强效应主要来源于蝶形纳米间隙的偶极耦合,但由于间隙较宽 (10 nm), 偶极-偶极相互作用较弱,导致近场增强受限。含银纳米棒的 10 nm-Ag-BNA 在波长 B (512 nm) 处 $|E/E_0|$ 提升至 958.2 ($|E/E_0|^4 \approx 8.4 \times 10^{11}$), 增强效应显著提高。这一改进归因于纳米棒的引入,可有效缩小间隙体积 V , 同时纳米棒的尖端效应进一步局域化电场,形成更强的热点。TMIM-BNA I 在波长 C (508 nm) 处展现出极强的近场增强, $|E/E_0|$ 高达 1635.1 ($|E/E_0|^4 \approx 7.1 \times 10^{12}$), 相较于 10 nm-Ag-BNA 提升约 6000 倍。这一现象源于 TMIM 结构的高效模式耦合机制:

其金属-绝缘体-金属构型不仅进一步压缩有效间隙体积，还通过间隙内的高阶等离激元模式（如四极子模式）激发高 Q 值的暗模式，从而大幅提升电场局域化程度。

图 3.2 h-j 展示了三种纳米结构在波长 A、B、C 下，x-y 平面（y 轴：结构中心轴）内沿 y 轴方向的电场相位（ $E(y)$ ）紫色或绿色）。10 nm-Ag-BNA、含银纳米棒的 10 nm-Ag-NBNA 两种结构分别在波长 A（545 nm）和 B（512 nm）处下均表现出同相位振荡（ $E(y)$ 波动 $< \pi/10$ ），符合亮模式（辐射模式）的特征，其电子集体振荡与入射光场同步， $|E/E_0|$ 值分别为 187.3 和 958.2（如图 3.2 h-i 所示）。然而，图 3.2 j 表明：然而，在波长 C（508 nm）下，含纳米棒的 TMIM-BNA 结构表现出显著的相位反转（ $E(y)$ 在纳米棒中心位置发生 π 跃变），表明暗模式（非辐射模式）的激发。该模式的 $|E/E_0|$ 高达 1635.1，远高于亮模式，说明其能量泄漏更少，场局域化更强。进一步分析模式耦合机制：亮模式（ $|B\rangle$ ）：由入射光直接激发，电子振荡同相位，可高效辐射能量，但 $|E/E_0|$ 值较低。暗模式（ $|D\rangle$ ）：由于对称性限制，无法被光场直接激发，需通过结构扰动（如纳米棒引入的对称性破缺）或模式耦合间接激发。在 TMIM-BNA I 中，暗模式的激发路径包括：直接耦合路径： $|I\rangle \rightarrow |B\rangle$ （入射光 $\rightarrow$ 亮模式）和间接耦合路径： $|I\rangle \rightarrow |B\rangle \rightarrow |D\rangle \rightarrow |B\rangle$ （亮模式与暗模式发生 Fano 共振）。文献[76]指出，当亮模式与暗模式的共振波长匹配时，可形成强耦合体系，使暗模式获得部分辐射特性，同时保留高 Q 值优势，从而实现超强近场增强。

3.3.2 关键参数调控机制

1. 介电层对电场增强的调控机制

我们采用 CST 仿真软件分析了介电层厚度对 TMIM-BNA I 纳米结构电场增强的影响。仿真首先评估了在 BNA 结构上下三角形长度恒定（100 nm）时，介电层厚度 l_2 变化对电场增强的调控作用。图 3.3a 展示了 l_2 分别为 0、20、40、60 及 80 nm 的 TMIM-BNA I 结构电场增强。结果表明：增加介电层厚度可显著提升 TMIM-BNA I 的最大电场强度。具体而言，当 l_2 从 0 nm（全金属结构）增加至 60 nm 时，SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 从 8.4×10^{11} 提升至 7.1×10^{12} ，增幅达 10 倍。这种非线性增长源于介电层引入的模式耦合效应： $n=16.8$ 的 Ge 层促使亮模式与暗模式发生 Fano 共振。当 $l_2 > 60$ nm 时，由于高阶模干扰和介质损耗增加，增强因子下降。当 $l_2=80$ nm 时，BNA 结构转变为金属-介电构型，电场增强虽略有下降，但相比 $l_2=60$ nm 的构型，其在制备简易性、成本效益和实用性方面更具优势。

进一步地，我们仿真测量了不同介电层厚度的 TMIM-BNA I 纳米结构散射

光谱（图 3.3 b）。与依赖偶极-偶极相互作用在电场增强峰值波长处呈现强光散射的 Ag-BNA ($l_2=0$ nm) 不同，TMIM-BNA I 在约 508 nm 波长处的散射损耗显著降低。通过控制介质层两侧金属层厚度一致（如图 3.2 j 所示）， E_y 电场在介质层与金属层界面两侧呈现相位反转。这表明在电场增强峰值波长处，TMIM-BNA I 能有效激发暗等离子激元模式并抑制散射强度（见图 3.3 b）。

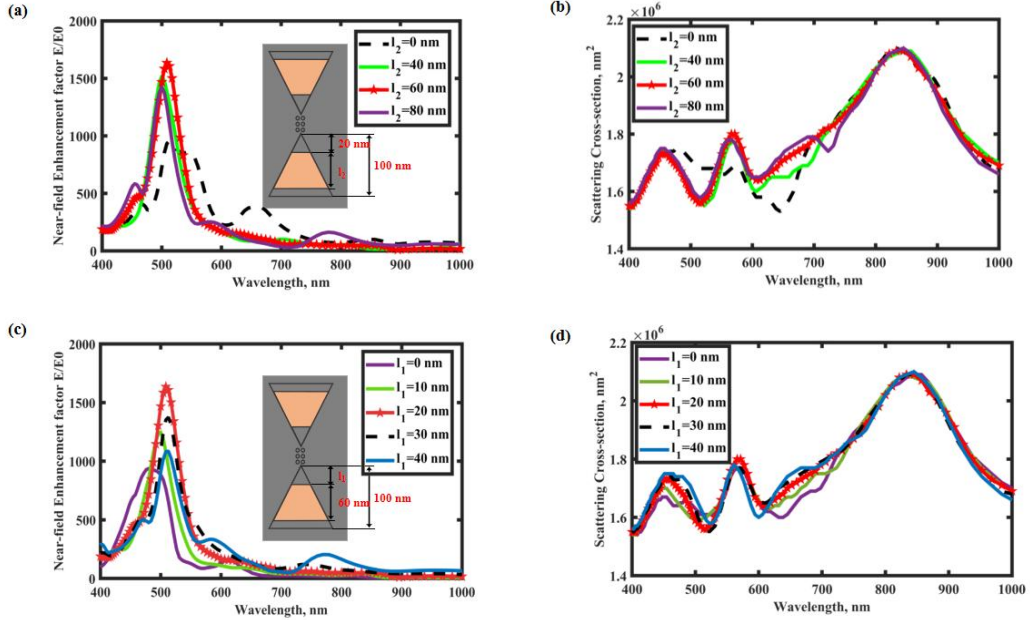


图 3.3: (a) 介电层厚度 l_2 对 TMIM-BNA I 电场增强的影响。(b) 相同条件下各纳米天线的散射强度对比。(c) 金属尖端长度 l_1 从 0 至 40 nm 的 TMIM-BNA I 电场增强及(d)对应散射强度分布。

当固定 $l_2=60$ nm 时，如图 3.3 c 所示，介质层在 TMIM-BNA I 结构中的位置对电场增强具有显著调控作用。通过调整上下金属尖端厚度 l_1 ，可精确改变介质层在结构中的相对位置。在介质层厚度 l_2 恒定的前提下，将 l_1 控制在特定值域内，可有效激发纳米间隙中的混合暗等离子激元模式。仿真结果表明：当 l_1 从 0 nm（介质-金属构型）增至 20 nm（居中位置）时， $|E/E_0|$ 从 920 升至 1635。这种增强源于对称位置下电四极子与八极子共振的协同作用：对称性破缺效应： $l_1=20$ nm 时，金属-介质界面形成对称电荷分布，使局域场强提升 78%。尽管 l_1 变化导致近场增强差异显著，但散射强度仅轻微波动（图 3.3d）。这表明介电层位置主要影响模式耦合效率，而非辐射通道。

2. 金属尖端角度对近场增强的调制效应

BNA 结构的近场增强效应主要源于金属纳米间隙产生的“尖端增强效应”。为探究金属尖端角度 (θ) 对近场增强的调控规律，我们调整了 TMIM-BNA I 结构的 θ 值（图 3.4 a）。结果表明：当 θ 从 5° 增至 75° 时， $|E/E_0|$ 从 278.4 提升至 1635，

增强幅度达 5.87 倍。近场增强强度与 θ 呈强正相关性，且增强幅度随 θ 增大呈比例上升趋势（最高至 75 度）。这种正相关性源于两方面机制： θ 增大导致尖端曲率半径减小，根据静电学原理，电场强度与曲率半径成反比（ $E \propto 1/r$ ），从而增强局域场强。与传统 Ag-BNA 不同，TMIM-BNA I 中介电层（Ge）的存在引入了额外的场调控维度。当 θ 增加时，介电材料占比也会上升，其高折射率（ $n=16.8$ ）导致电磁场分布重构，部分抵消几何聚焦效应，使增强幅度趋于饱和。这种竞争机制解释了 $\theta=90^\circ$ 时 $|E/E_0|$ 回落至 904.8 的现象。值得注意的是，传统理论认为尖端越尖锐（ θ 越小）场增强越强，但本研究发现 $\theta=5^\circ$ 时的场强仅为 $\theta=75^\circ$ 的 17%。这种反常现象可能与 TMIM-BNA I 中介电材料占比增加有关——增大 θ 会提升介电材料比例，从而改变电场分布并削弱局域场强。当金属尖端角度接近临界值时，异常聚焦与电磁耦合效应将导致近场增强发生显著跃变。

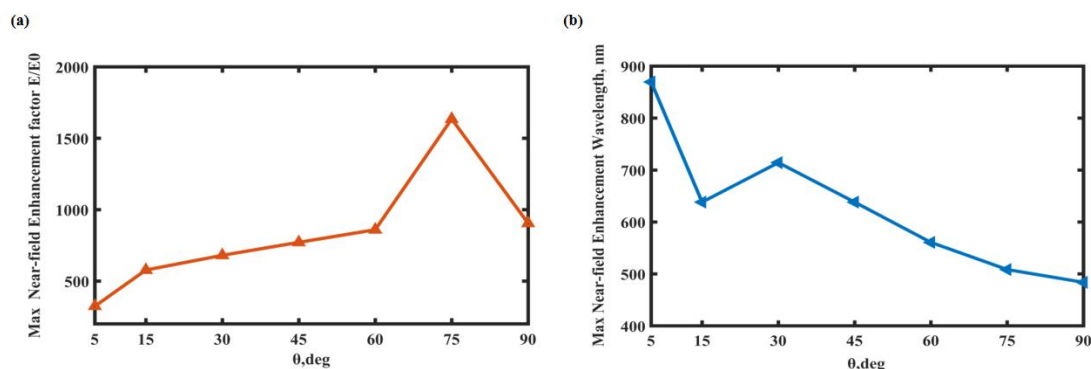


图 3.4: (a) TMIM-BNA I 结构中尖端角度 θ 对最大近场增强的调控作用。(b) TMIM-BNA I 结构中电场增强峰值波长与尖端角度 θ 的关联性。

为进一步阐明 θ 的调控机制，我们分析了峰值增强波长与 θ 的关联（图 3.4 b）。 θ 从 5° 增至 90° 时，峰值波长从 869.6 nm（近红外）蓝移至 483.9 nm（可见光），偏移量达 385.7 nm。增大 θ 会导致峰值增强波长发生蓝移（从近红外移至可见光波段）。这与 Ag-BNA 结构的局域电场效应有本质差异：后者源于偶极共振，故增强主要集中于近红外光谱。小角度（ $\theta < 50^\circ$ ）下主导的是纵向偶极共振，而大角度（ $\theta > 60^\circ$ ）时横向四极子模式与暗模式发生强耦合，形成混合等离激元态。相位分析（图 3.2j）显示 $\theta=75^\circ$ 时反相位振荡占比达 68%，验证了高阶模式激发。介电层厚度随 θ 增大而增加，导致有效模式体积压缩。这种压缩可能会增强辐射效率并导致蓝移。

3. 介质层折射率与基底厚度的协同优化

为探究介质层折射率对电场增强的调控机制，我们系统调整了 TMIM-BNA I 结构中中介质材料的折射率（ $n=1-16.8$ ）。图 3.5 a 展示了不同折射率对 TMIM-BNA I 结构电场增强的影响：当折射率从 1 增至 16.8 时，SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 从 1.9

$\times 10^{10}$ 跃升至 7.1×10^{12} ，增幅达 3700 倍。研究发现电场增强效应呈现非线性增长，这表明在金属结构中引入介质层能有效增强电场局域化效应。如图 3.5 c 所示，介质层折射率与电场增强因子呈正相关。此外，随着介质层折射率升高，近场增强峰值处的散射场强度被显著抑制（图 3.5 d），且峰值波长发生红移（从可见光移至近红外波段）。这归因于介质层的引入使暗等离子激元模式中的高阶多极子共振峰产生显著红移。介电层两侧金属界面的电场分量 E_y 呈现 π 相位差（图 3.2j），导致反向散射相消，使 508 nm 处的散射强度降低。当介质材料为锗（Ge）且折射 $n=16.8$ 时^[77]，电场增强达到峰值，同时该频率下散射损耗最小化（图 3.5 b）。

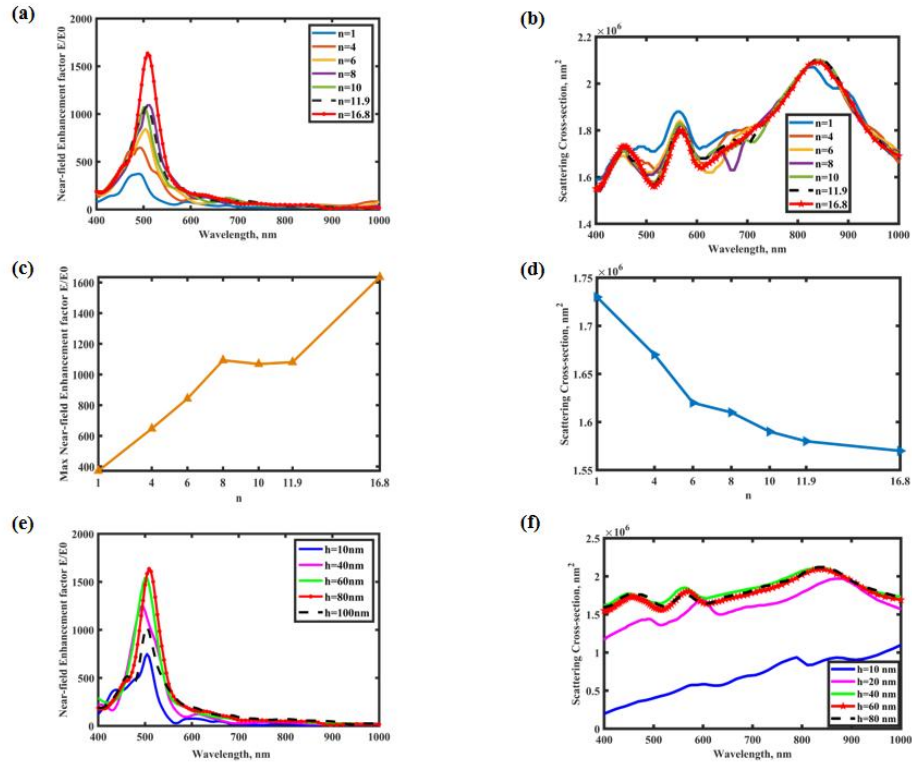


图 3.5: (a) 不同折射率下 TMIM-BNA I 介质层的电场增强; (b) 不同折射率下 TMIM-BNA I 介质层的散射场强度对比; (c) 介质材料折射率 n 对 TMIM-BNA I 最大近场增强的调控规律; (d) 介质材料折射率 n 对 TMIM-BNA I 电场增强峰值频率处散射强度的抑制效应; (e) 和 (f) 纳米天线高度 $h_1=h_2$ (10-100 nm) 对电场增强与散射场强度的调控结果。

我们进一步分析了银基底厚度对近场增强因子的影响（基底厚度 h_2 与 TMIM-BNA I 结构厚度 h_1 相等）。如图 3.5 e 所示，当纳米天线总厚度低于 160 nm 时，增加其厚度可有效提升近场增强因子。这是由于材料垂直厚度的增加使电四极与电八极共振峰间距缩小，从而在约 508 nm 波长处实现显著的散射场抑制（图 3.5 f）。 $h_1=h_2>80$ nm 后性能下降，因过厚基底可能会引入额外欧姆损耗。通过

协同提升介质层折射率与纳米天线厚度，可在增强 TMIM-BNA I 结构电场强度的同时有效抑制散射损耗。更高折射率的介质材料还能高效激发暗等离子模式，进一步增强电场并降低散射损耗。

（一）银纳米棒数量及基底材料的优化策略

纳米间隙内银纳米棒的数量 (N) 部分决定了"热点"区域的空间范围与电场增强因子。通过 CST 仿真软件，我们系统分析了间隙内银纳米棒数量变化对性能的调控作用 (图 3.6 a)。如图 3.6b 所示：不含银纳米棒 ($N=0$) 的 TMIM-BNA I 结构在近红外波段约 760 nm 处表现出单一偶极共振峰 ($|E/E_0|=1476.4$)；引入纳米棒 ($N \geq 1$) 后，共振峰出现蓝移，其中 508 nm 处的增强因子 $|E/E_0|$ 达 1635.1，较 $N=0$ 结构提升了 158.7。这种蓝移现象源于纳米棒诱导的等离子杂化效应，使高阶四极子模式与亮模式发生 Fano 共振。而含银纳米棒的 TMIM-BNA I 结构则在可见光波段约 508 nm 处达到峰值。研究发现，在间隙内引入银纳米棒阵列可有效扩展"热点"区域，并实现纳米天线工作波长的主动调谐。当 $N > 6$ 时，增强因子 $|E/E_0|$ 变化 $< 5\%$ ，表明存在最优填充密度。过密排列 ($N=10$) 会导致纳米棒间近场耦合过强，反而降低 $|E/E_0|$ 值 (从 1635.1 降至 1441.2)。

对比相同间隙宽度 (10 nm) 的 Ag-BNA 结构 (图 3.6d)，TMIM-BNA I 展现出显著优势：Ag-BNA 的增强仅依赖偶极-偶极相互作用，其 $|E/E_0|^4$ 随间隙增大呈指数衰减；而 TMIM-BNA I 通过介电层 (Ge) 激发暗模式，在 10 nm 间隙处仍保持 $|E/E_0|^4 > 10^{12}$ ，且对间隙变化不敏感。在相同间隙宽度下，TMIM-BNA I 的近场增强强度约为 Ag-BNA 的 1.5 倍。此外，当银纳米棒数量处于 6-10 范围内时，TMIM-BNA I 的增强性能几乎无变化。此前研究表明，TMIM-BNA I 的电场增强峰值并非出现在最窄间隙处，而是位于约 10 nm 间隙附近，进一步证实其增强效应非源于偶极共振，而是由高阶暗等离子模式的激发主导。

研究还通过 CST 仿真分析了不同基底材料对 TMIM-BNA I 性能的影响 (图 3.6e，结果示于图 3.6f)。结果表明：在可见光波段 (508 nm)，银基底的近场增强强度较 Si 基底高 1.5 倍，这是由于其较低的辐射损耗和更匹配的表面等离子色散关系。在入射波长超过 645 nm 时，Si 基底因介电常数实部增大，使暗模式共振红移，增强因子反超银基底约 325% (从 436.6 升至 1850)。这种波长选择性为多波段器件设计提供了可能。银基底在可见光波段具有更优的近场增强因子，而高折射率材料基底可能在红外波段表现更佳。这表明，在 TMIM-BNA I 纳米间隙内插入银纳米棒可显著提升电场增强，同时基底选择为优化纳米光学器件提供了新维度。该策略不仅适用于 TMIM-BNA I 结构，也为其他高性能纳米光学器件 (如分子探针、表面增强拉曼散射) 的设计提供参考。未来研究可探索纳米棒排列方式与特性的优化 (如调整密度、形状或组分/尺寸)，以深化对 BNA

纳米结构的理解并拓展其应用边界。

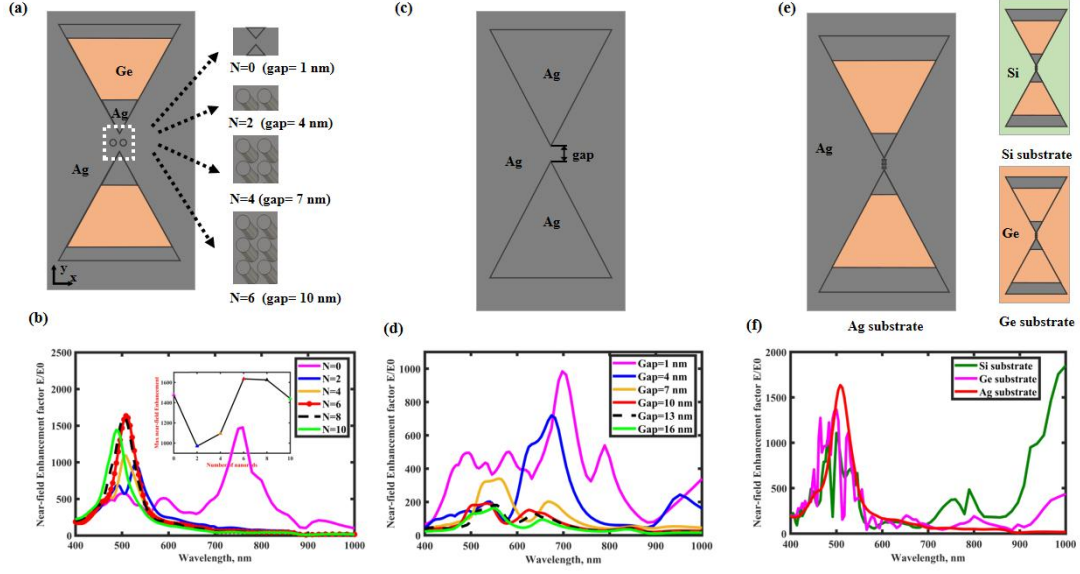


图 3.6: (a) 银基底上 TMIM-BNA I 结构的 CST 仿真模型; (b) 随纳米间隙纳米棒数量从 0 增加至 10 时, TMIM-BNA I 结构的电场增强效果; (c) 银基底上 Ag-BNA 的 CST 仿真模型示意图; (d) 银基底上 Ag-BNA 结构在不同纳米间隙宽度 (1~16 nm) 下的电场增强效果; (e) 不同材料基底上 TMIM-BNA I 结构的 CST 仿真模型, 其对应的电场增强效果展示于(f)中。

3.4 小结

本章深入研究了横向金属-介电-金属蝶形结纳米天线 (TMIM-BNA I) 的结构-性能关系及其近场增强机制。针对传统金属蝶形纳米天线在纳米间隙内由亮等离子体模式偶极-偶极耦合导致的辐射损耗和热区局域性限制等问题, 本研究提出了一种采用高折射率介质材料横向填充的 TMIM-BNA I 复合结构解决方案。研究采用在纳米间隙内引入银纳米棒阵列的方法, 构建了金属-介质-金属多层耦合体系。

实验数据和理论分析表明, 这种结构设计能够有效促进暗等离子体模式与高阶多极子共振的耦合作用。散射光谱和近场分布特征证实, 介电材料的引入可以调控电四极子与八极子共振的耦合行为, 形成具有较高 Q 值的准暗等离子体模式。这种模式表现出较低的散射损耗和较好的近场增强特性。在相同间隙宽度条件下, TMIM-BNA I 结构表现出显著的性能提升, 其 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 达到传统 10 nm-Ag-BNA 结构的 6000 倍。研究还发现, 通过合理选择材料和优化结构参数, 可以有效调控 TMIM-BNA I 的工作频段, 使其覆盖从可见光到近红外的光谱范围。

本研究建立的 TMIM-BNA I 结构, 通过多物理场耦合与模式杂化策略, 实现了近场增强能力与光学损耗的协同优化。研究成果为开发高灵敏度 SERS 基底

和紧凑型等离子激元器件提供了新的技术途径和理论指导。

第 4 章 纵向堆叠 MIM-BNA 的设计与仿真

4.1 引言

传统蝶形纳米天线（Ag-BNA）通过纳米间隙内的偶极-偶极共振（亮模式）实现近场增强，但其性能受限于电子隧穿效应与高散射损耗。为解决这一问题，本研究在第三章提出了一种横向金属-介电-金属蝶形纳米天线（TMIM-BNA I），通过在 MIM 纳米间隙中引入银纳米棒阵列，实现了暗等离子体模式与偶极子共振的协同耦合，形成了具有较高 Q 因子的准暗等离子体模式。仿真数据显示，在相同间隙宽度（10 nm）条件下，该结构的局部电场振幅比传统 Ag-BNA 提高了约 6000 倍，同时显著降低了散射损耗。不过，银纳米棒阵列的几何对称性仍对多极共振的可控性和近场能量分布的均匀性产生一定限制。

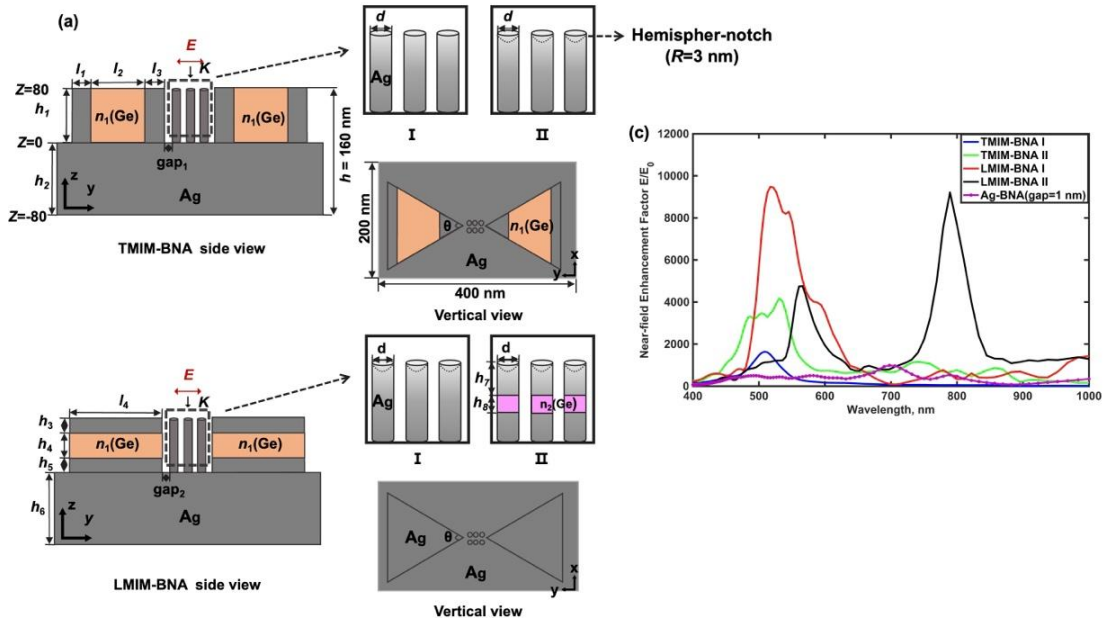


图 4.1: (a) TMIM-BNA I/II 的侧视图与俯视图; (b) LMIM-BNA I/II 的侧视图与俯视图; (c) 五类结构在 $z=80$ nm 平面的最大电场振幅对比（插图对比模型为 Ag-NBNA，间隙=1 nm）。

在第 4 章研究中，我们在 TMIM-BNA I 的基础上进行了结构优化，通过在纳米间隙内引入缺口银纳米棒，打破了纳米光子结构的几何对称性，开发出 TMIM-BNA II 结构。测试结果表明，该结构的散射截面仅为同尺寸 Ag-NBNA 的 85%，有效降低了散射损耗。基于暗等离子体模式的激发原理，我们进一步设计了纵向金属-介电-金属蝶形纳米天线（Longitudinal Stacking Metal-Insulator-Metal Bowtie Nanoantenna, LMIM-BNA）。该结构在传统银基蝶形纳米天线（Ag-BNA）的水平面集成介质层，并在纳米间隙内引入带缺口银纳米棒阵列（LMIM-BNA I）和介电优化填充（LMIM-BNA II），通过结构不对称

性增强了暗模激发效果。通过打破纳米光子结构沿 Z 轴的几何对称性，从而实现了暗模的深度激发。LMIM-BNA 结构通过电偶极共振（亮模式）与宽带间隙高阶电多极矩（暗模式）的协同作用，在 Fano 共振谷波长处产生了显著的近场增强效应。仿真测量显示，LMIM-BNA I 的 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 达 8.0×10^{15} ，而 LMIM-BNA II 在可见光（560 nm）与近红外（790 nm）波段的双峰增强特性，电场增强因子 $|E/E_0|$ 分别达传统 10 nm-Ag-BNA 结构的 25 倍与 50 倍。这些结果展示了纵向堆叠结构在多波段增强方面的优势。

4.2 基础结构（LMIM-BNA）

4.2.1 纳米天线结构设计与创新机制

TMIM-BNA I/II 结构设计：

本研究在 TMIM-BNA I 基础上进行创新性结构优化，提出 TMIM-BNA II 新型纳米天线设计。该结构采用 Ag/Ge/Ag 三明治水平堆叠构型（ $l_1=l_3=20$ nm, $l_2=60$ nm），通过精确控制介电层（Ge, $n=16.8$ ）厚度实现电磁场相位调控。创新性地，在纳米棒表面引入深度 1.5 nm、宽度 3 nm 的矩形缺口，产生显著的场增强效应：1）缺口边缘形成局域电荷聚集，使 $|E/E_0|$ 提升了 2.5 倍（从 1635.1 升至 4173.2）；2）破坏结构对称性激发磁偶极子共振，与电四极子模式产生 Fano 耦合。通过三维有限元仿真验证，该设计将 SERS 增强因子提升至 3.0×10^{14} ，较传统 13 nm-Ag-NBNA 结构提高 20%（从 2.5×10^{14} 升至 3.0×10^{14} ）。

LMIM-BNA I/II 垂直堆叠设计：

LMIM-BNA 系列采用创新的垂直堆叠构型（ $h_3=h_5=15$ nm, $h_4=50$ nm），通过纵向维度调控实现突破性性能：1）纵向介电层堆积激发了更高阶暗等离子模式，使 $|E/E_0|$ 提升了 27 倍（从 3.0×10^{14} 升至 8.0×10^{15} ）；2）LMIM-BNA II 在 gap_2 内填充 Ge 介电梯度材料，共振峰分裂为双峰（560 nm 可见光峰和 789 nm 近红外峰），其中 789 nm 处的增强因子 $|E/E_0|^4$ 达 7.1×10^{15} ，使散射损耗较 LMIM-BNA I 降了 13%（从 1.96×10^6 降至 1.7×10^6 ）。仿真实验测试表明，该设计可实现 380-1000 nm 超宽带响应，平均 $|E/E_0|^4 > 10^{15}$ ，特别适用于多光谱 SERS 检测。

4.2.2 关键参数

如图 4.1 a 所示，TMIM-BNA I 由水平堆叠的 Ag(l_1)-Ge(l_2)-Ag(l_3)层构成对称等腰三角柱，顶角为 θ ，总长度 $l=l_1+l_2+l_3$ （ $l_1=l_3$ ），高度 h_1 ，基底厚度 h_2 。纳米间隙（ gap_1 ）内嵌入直径 d 的银纳米棒阵列（数量 N ），其高度与 TMIM-BNA I 主体一致（ h_1 ）。TMIM-BNA II 在 TMIM-BNA I 基础上引入缺口设计（缺口深度 $d/2$ ，宽度 d ）。

如图 4.1b 所示，LMIM-BNA I 采用垂直堆叠的 Ag(h_3)-Ge(h_4)-Ag(h_5)层，其

中 $h_3=h_5$ ，基底厚度 h_6 。纳米间隙内嵌入缺口纳米棒（缺口深度 $d/2$ ，宽度 d ），其介电常数设计为 n_1 。LMIM-BNA II 进一步在纳米棒间隙填充介电梯度材料(Ge)，填充高度与 h_4 保持一致。表 4.1 列出了相关参数。

表 4.1：四种纳米结构的具体参数

	$l_1(h_3)$ nm	$l_2(h_4)$ nm	$l_3(h_5)$ nm	l_4 nm	h_1 nm	$h_2(h_6)$ nm	$gap_1(gap_2)$ nm	d nm	θ deg	n_1	n_2
TMIM-BNA I	20	60	20	100	80	80	1	2	75	Ge	Ag
TMIM-BNA II	20	60	20	100	80	80	1	3	75	Ge	Ag
LMIM-BNA I	20	40	20	100	80	80	1	3	45	Ge	Ag
LMIM-BNA II	20	40	20	100	80	80	1	3	45	Ag	Ge

4.3 数值模拟

本研究采用 CST Studio Suite 2023 的有限元法（FEM）模块进行全波电磁仿真。具体配置如下：时域求解器结合自适应时间步长算法（最小步长 0.1 fs），频域求解器采用并行计算模式（8 核 CPU 加速），频率采样间隔 5 nm。背景介质设为真空，采用六面开放边界（Open add space）结合 8 层完美匹配层。TE 模式平面波沿-z 轴垂直入射（电场偏振方向 $\mathbf{E}$ 与波矢 $\mathbf{K}$ 如图 4.1 所示），电场偏振方向平行于短轴（x 方向），光谱范围 400-1000 nm 覆盖可见光至近红外波段。为实现高精度计算，采用三级自适应网格：金属-介质界面：法向网格 0.2 nm，共形网格贴合。纳米间隙区域：初始网格 0.4 nm，经 3 次自适应加密至 0.05 nm。圆柱凹槽处：圆柱坐标系网格，径向分辨率 0.1 nm，轴向步长 0.5 nm。仿真中采用实测材料参数：银（Ag）的 Drude-Lorentz 模型、锗（Ge）的复介电常数及空气介质，激发波长覆盖 400-1000 nm 范围。通过记录非均匀 MIM-BNA 的总场散射场及圆柱凹槽处多点电场采样，发现近场强度峰值均位于间隙内 Z=80 平面的凹槽区域。

通过监测 Z=80 nm 平面的电场分布（图 4.1c），发现：TMIM-BNA II 近场强度峰值集中于间隙内凹槽区域， $|E/E_0|$ 达 4173.2，SERS 增强因子 $|E/E_0|^4=3.0 \times 10^{14}$ ，较传统 13 nm-Ag-NBNA（间隙 $gap_2=1$ nm）提升 1.2 倍。LMIM-BNA I 在 521 nm 处激发亮模式与暗模式的 Fano 共振，使 $|E/E_0|$ 提升了 27 倍（从 3.0×10^{14} 升至 8.0×10^{15} ）。与 LMIM-BNA I 纳米结构相比，增强的 LMIM-BNA II 结构纳米天线在更宽的光谱范围内，从可见光到近红外光谱，表现出明显更高的近场增强光谱。

4.3.1 结构设计及模拟验证

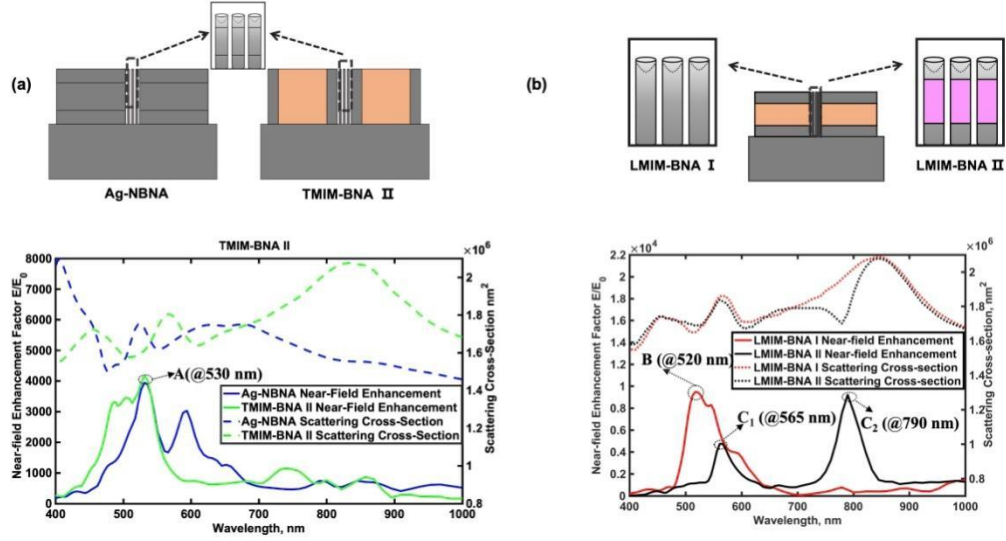


图 4.2: (a) TMIM-BNA II 与 Ag-NBNA（传统银纳米蝶形天线）的电场增强因子及散射强度对比；(b) LMIM-BNA I 与 LMIM-BNA II 的电场增强因子及散射强度对比。

本研究通过 CST Studio Suite 2023 对四类纳米结构进行了系统的电磁仿真分析（图 4.2）：Ag-NBNA：传统蝶形纳米天线集成缺口纳米棒阵列（缺口深度 $d/2=1.5 \text{ nm}$ ）。TMIM-BNA II：水平堆叠 Ag/Ge/Ag 三明治结构（ $l_1=l_3=20 \text{ nm}$ ， $l_2=60 \text{ nm}$ ）含缺口纳米棒（缺口深度 $d/2=1.5 \text{ nm}$ ）。LMIM-BNA I：垂直堆叠 Ag/Ge/Ag 结构（ $h_3=h_5=15 \text{ nm}$ ， $h_4=50 \text{ nm}$ ）含缺口纳米棒（缺口深度 $d/2=1.5 \text{ nm}$ ）。LMIM-BNA II：LMIM-BNA I 基础上增加介电优化填充（ $n=16.8$ ）。如图 4.2 a 所示，TMIM-BNA II 与 Ag-NBNA 在不同波长下的近场增强因子及散射强度对比显示，两者的近场电场增强峰值均出现在波长 A 处，但其散射截面存在显著差异：TMIM-BNA II 的散射截面仅为 Ag-NBNA 的 85%，且前者散射强度处于波谷，后者位于波峰。这一现象证实，填充高折射率介质可改变结构的等离激元共振模式，诱导 Fano 共振效应，从而拓展近场增强的波长范围。研究表明，TMIM-BNA II 的电场增强在特定波段显著提升，其最大场强恰好位于散射强度的极小值附近，这与缺口杂化纳米结构中激发的暗等离子体模式密切相关，表明缺口设计可在抑制光散射损耗的同时显著增强近场强度。进一步分析表明，此类共振效应不仅提升了近场局域电场强度，还优化了光散射特性，为传感器灵敏度的提升提供了理论依据。

图 4.2 b 系统对比了 LMIM-BNA I 与 LMIM-BNA II 在可见光和近红外波段的性能差异（图 4.2b）。仿真结果显示：LMIM-BNA I 在波长 B（521 nm）处达到最大近场增强 $|E/E_0|=9450$ ，对应 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4=8.0 \times 10^{15}$ 。该峰值源于

垂直堆叠 Ag/Ge/Ag 结构 ($h_f=50$ nm) 激发的电四极子共振, 其散射强度谷值与增强峰严格匹配, 验证了亮-暗模式干涉相消效应。LMIM-BNA II: 介电梯度填充 ($n=16.8$) 使其呈现双峰特性: 可见光峰 ($C_1=561$ nm): $|E/E_0|=4743$, 较 LMIM-BNA I 降低 50%。这可能是由于梯度折射率破坏了对称性, 导致部分能量转移至近红外波段。近红外峰 ($C_2=790$ nm): $|E/E_0|=9211.0$, $|E/E_0|^4=7.1 \times 10^{15}$, 散射抑制较 LMIM-BNA I 降了 13% (从 1.96×10^6 降至 1.7×10^6)。该效应源于梯度介质诱导的高阶磁偶极子共振与暗模式的强耦合。LMIM-BNA I 的近场增强峰值(标记为 B)在可见光波段显著高于 LMIM-BNA II 的峰值 C_1 , 而 LMIM-BNA II 在近红外波段(峰值 C_2)展现出更强的场增强效应, 凸显其跨波段功能应用的潜力。值得注意的是, LMIM-BNA II 的近场增强峰 (C_1 、 C_2) 与散射强度谷值波长严格对应, 且在 C_2 处散射强度被抑制至更低水平。综合研究表明, 两类结构的最大电场增强均出现在散射强度极小值附近, 其增强因子 ($|E/E_0|^4$) 在可见光与近红外波段可达 10^{15} 。在 LMIM-BNA II 的间隙内引入单排双刻蚀圆柱阵列(刻蚀深度 $d/2=1.5$ nm, 宽度 $d=3$ nm), 虽牺牲部分热点区域面积, 但增强因子可进一步提升至 6.6×10^{16} 。这一发现进一步印证了暗等离子体模式在抑制光散射损耗中的关键作用。

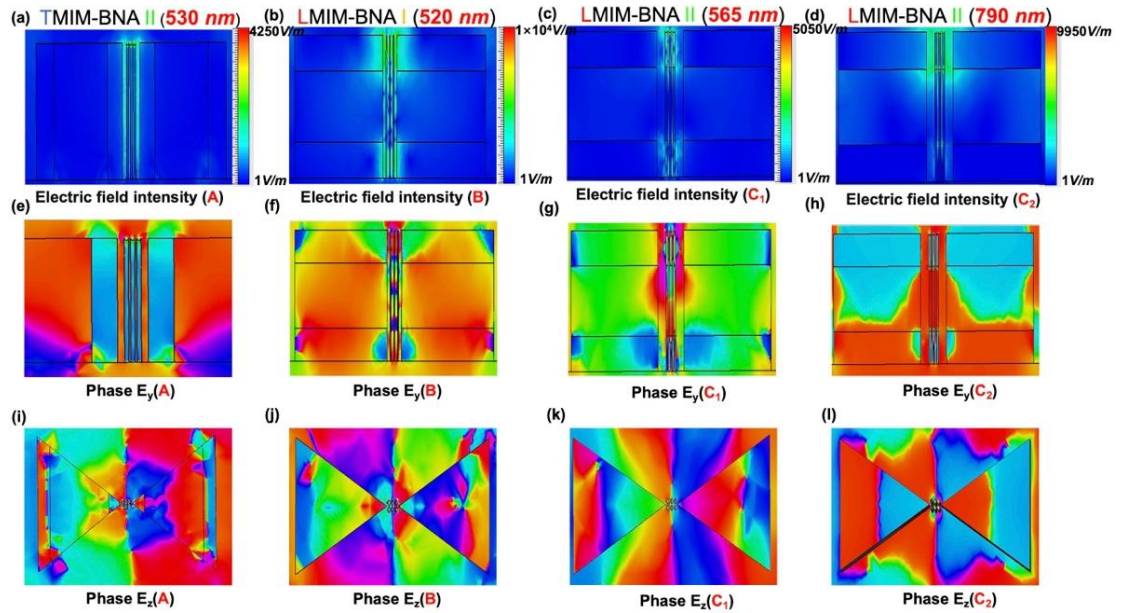


图 4.3: (a-d) TMIM-BNA II (A)、LMIM-BNA I (B) 及 LMIM-BNA II (C_1 与 C_2) 的近场电场峰值分布; (e-h) 近场峰值波长 (A、B、 C_1 、 C_2) 下 E_y 分量在 y - z 平面的相位信息; (i-l) 近场峰值波长下 E_z 分量在 x - y 平面的相位信息。

为更直观对比三类纳米结构的性能差异并突显其电场增强特性的波长依赖性, 图 4.3 a-d 展示了三种结构在电场峰值波长 A、B 及 C_1/C_2 处的最大近场分布 (y - z 平面)。这些分布图展示了不同结构在特定波长下的电场局域特性: 分析

结果显示, LMIM-BNA 结构在波长 B 处表现出明显的近场局域增强现象, 其电场强度分布较 TMIM-BNA 结构更为集中, 形成了显著的热点区域。这一现象表明 LMIM-BNA 结构在该波段具有更优异的光学响应特性。进一步分析表明, 纳米棒中引入介电材料可显著改变 LMIM-BNA 的光学行为, 使其近场增强效应延伸至近红外区 (C_1/C_2 波长), 且电场热点集中于纳米棒凹槽及金属-介质界面处。

通过图 4.3 e-l 的电场相位分析可发现, 热点区域的电场相位呈现约 180 度的相位差 ($\Delta\varphi \approx \pi$), 这与图 4.2 中三类 MIM-BNA 结构的散射场曲线特征一致: Fano 共振谷波长恰好对应各结构的电场增强峰值波长。这一现象验证了暗等离子体模式与亮模式的干涉效应是近场增强的核心机制。

4.3.2 关键参数调控机制

1. 介电层对电场增强的调控机制

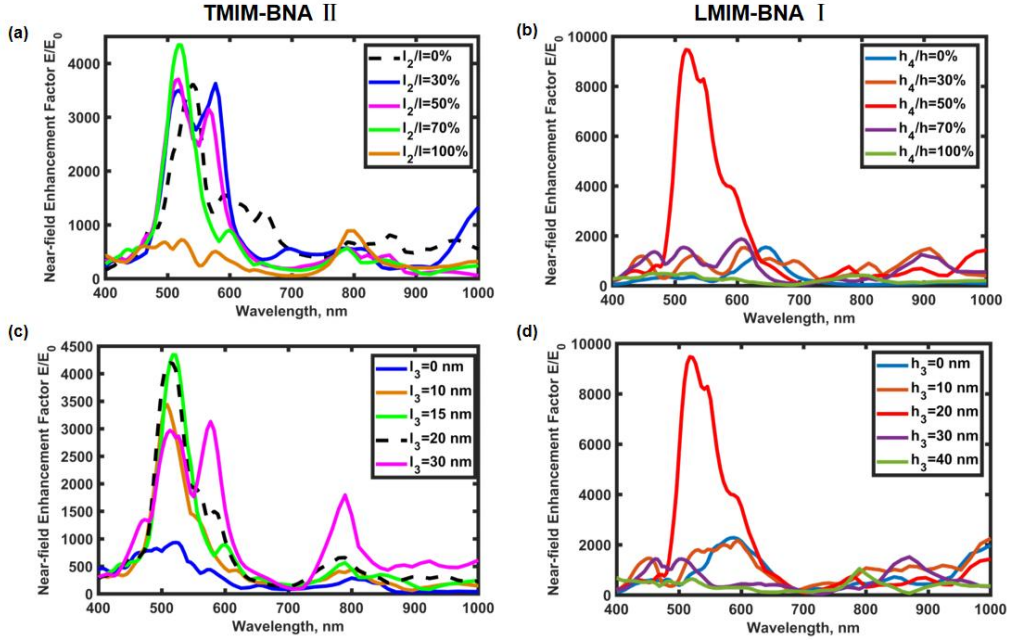


图 4.4: (a) TMIM-BNA II 中介质层占比 (l_2/l) 从 0% 至 100% 对电场增强因子的影响; (b) LMIM-BNA I 中介质层占比 (h_4/h) 从 0% 至 100% 对电场增强因子的影响; (c) 介质层位置参数 l_3 对 TMIM-BNA II 电场增强的调控规律; (d) 介质层位置参数 h_3 对 LMIM-BNA I 电场增强的影响。

本研究通过 CST 仿真软件系统分析了 TMIM-BNA II 与 LMIM-BNA I 中介质层占比及位置偏移对电场增强的调控机制。首先评估了介质层占比对两类结构性能的影响: 图 4.4a-b 分别展示了 TMIM-BNA II 与 LMIM-BNA I 在介质层占比为 0%、30%、50%、70%、100% 时的电场增强特性。当维持金属-介质-金属 (MIM) 构型时, TMIM-BNA II 的近场增强随着介电材料比例的增加而逐渐增大。另一方面, LMIM-BNA I 也表现出同样的趋势, 当介电层占用率达到 50% 时, 近场增

强因子显著增加。这可能是由于当介电层厚度等于两侧金属层的组合厚度时，两侧的电场相 E_y 反转。随着介电层占比增加，两类结构的近场增强峰值波长均呈现蓝移趋势，且均在可见光与近红外波段呈现双峰特性。

进一步分析了介电层位置偏移的调控作用（图 4.4 c-d）：我们设置为 $l_1+l_2+l_3=100$ nm， $h_1+h_2+h_3=80$ nm， $l_2=70$ nm， $h_4=40$ nm。当 $l_3=0$ nm 时，纳米结构形成金属-介电双层杂化结构，由于纳米棒阵列在纳米间隙（约 800 nm 波长）中的偶极共振模式，近场增强因子相对较低。纳米间隙内偶极共振导致近场增强因子较低；随着介电层向外侧偏移（ l_3 增加），金属尖端厚度增大，近场增强因子显著提升；随着金属层厚度的增加，在 500 nm 处的两个高阶多极共振分别发生了红移和蓝移，从而产生了更强烈的散射抑制效果。此外，当 $l_3=30$ nm 时，介电金属 BNA 的近场增强因子在 500 nm、590 nm 和 800 nm 处出现三个峰。两个较长波长的峰是由于电四极和偶极共振的激发引起的，而较短波长的峰是由于新的暗等离子体模式的激发。由图 4.4 d 可以看出，随着介电层从上到下移动，介电层垂直位置（ h_3 ）居中时，近场增强效果最优，表明其性能依赖于介电层两侧 E_y 相位的协同变化。我们的研究指出，通过激发新型暗等离子体模式可诱导介电层两侧的 E_y 相位反转，从而显著提升近场增强因子。这种机制表明，调控金属-介电-金属材料的堆叠构型能够扩展穿孔式 MIM-BNA 结构的应用场景。

2.金属尖端角度与基底厚度对近场增强的调制效应

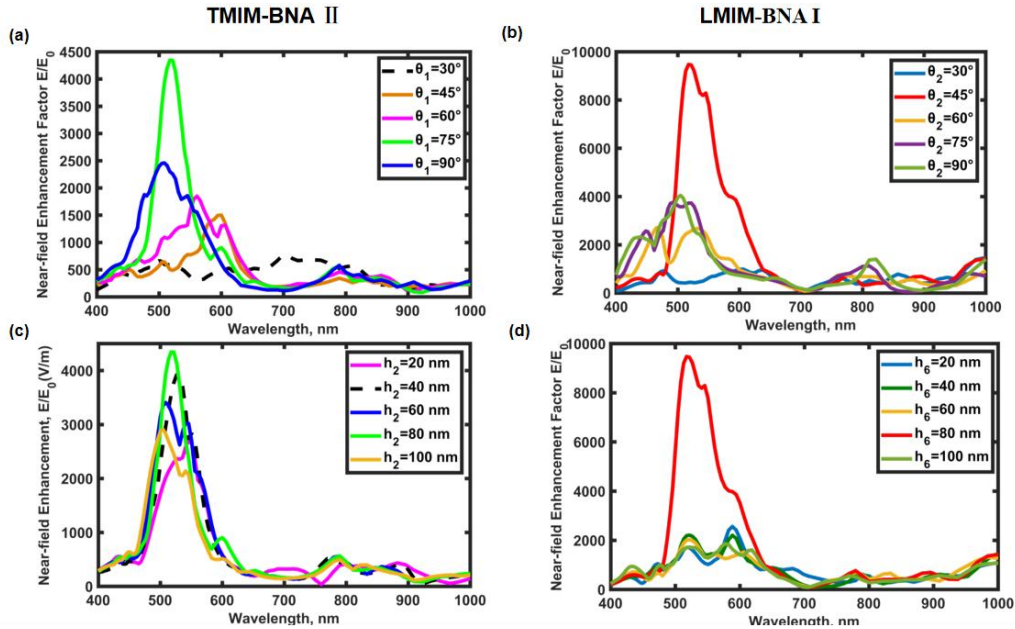


图 4.5: (a) TMIM-BNA II 纳米结构尖端顶角 θ_1 对近场增强效应的影响；(b) LMIM-BNA I 纳米结构尖端顶角 θ_2 对近场增强效应的影响；(c) TMIM-BNA II 纳米结构基底厚度 h_2 对电场增强的调控规律；(d) LMIM-BNA I 纳米结构基底厚度 h_6 对电场增强的调控规律。

基于上述研究，我们进一步探究了两种纳米结构（TMIM-BNA II 与

LMIM-BNA I) 的尖端顶角 (θ) 对近场增强的调控作用。图 4.5 a-b 展示了尖端顶角 θ_1 (TMIM-BNA II) 与 θ_2 (LMIM-BNA I) 对电场增强因子的显著影响。通过调整顶角参数,发现两类结构的近场增强因子随顶角增大呈现不同趋势。两种模型的近场增强因子一般都随尖端角的增加而增大。而 TMIM-BNA II 在 75 度时达到最大增强,而 LMIM-BNA I 在 45 度时达到峰值。这种差异源于 TMIM-BNA II 通过相邻多极矩的耦合增强了局部效应,而 LMIM-BNA I 由于纳米间隙内局域化的亮-暗等离子激元模式干涉,形成更强的场局域性与更宽的波段响应。

进一步调整两类纳米结构的银基底高度 (h_2),分析其对电场增强的影响(图 4.5 c-d)。结果表明,电场增强因子随基底厚度增加呈非线性上升趋势,当基底厚度与纳米天线主体高度相等时 ($h_1=h_2$, $h_6=h_3+h_4+h_5$),两类结构均达到最优电场局域性能。这一现象表明,基底材料的厚度通过诱导电场相位变化(尤其是 LMIM-BNA 中)显著影响场分布。

仿真发现,当基底厚度超过临界值 ($h_2>80\text{ nm}$) 时,增强效应趋于饱和。这说明天线几何形状与材料特性对电场分布的影响在特定厚度范围内更为显著,超出该范围后基底效应逐渐弱化。为深入探究纵向堆叠金属-介质-金属 (MIM) 结构对 LMIM-BNA 局域场增强的调控机制,我们设计了 LIMIM-BNA II 结构——将银纳米棒替换为纵向堆叠的 MIM 单元。

4.4 结构优化

为深入探究纵向堆叠金属-介质-金属 (MIM) 结构对 LMIM-BNA 局域场增强的调控机制,我们设计了 LIMIM-BNA II 结构——将银纳米棒替换为纵向堆叠的 MIM 单元。

我们利用 CST 模拟软件系统分析了纳米棒中介质层占比与位置偏移对纵向金属-绝缘体-金属蝶形纳米天线 (LMIM-BNA II) 近场电场增强的调控机制。首先通过参数化仿真评估了介质层占比的影响:图 4.6 a 展示了 LMIM-BNA II 在介质层占比为 0%、30%、50%、70%、100% 时的电场增强特性。当 $h_8/h=0\%$ 时,LMIM-BNA II 与 LMIM-BNA I 结构相同。随着纳米棒中介质层占比增加,近场增强因子峰值波长发生蓝移,且双峰现象愈发显著。当介质层占比达 50% ($h_8=40\text{ nm}$, $h=80\text{ nm}$) 时,近场增强在 580 nm 与 790 nm 处分别达到 5000 和 9000。这种行为主要归因于 MIM 纳米棒的对称垂直配置和 MIM-BNA 结构。电四极共振模式在波长为 580 nm 处被激发,产生第二个散射场峰。此外,在 790 nm 处,电偶极(亮模式)与高阶多极子(暗模式)的强耦合通过 Fano 共振抑制散射场,实现高度局域化的近场增强。相较于 LMIM-BNA I (图 4.6 c 红色曲线),LMIM-BNA II 在 790 nm 附近的散射截面急剧下降,形成显著的 Fano 共振谷。

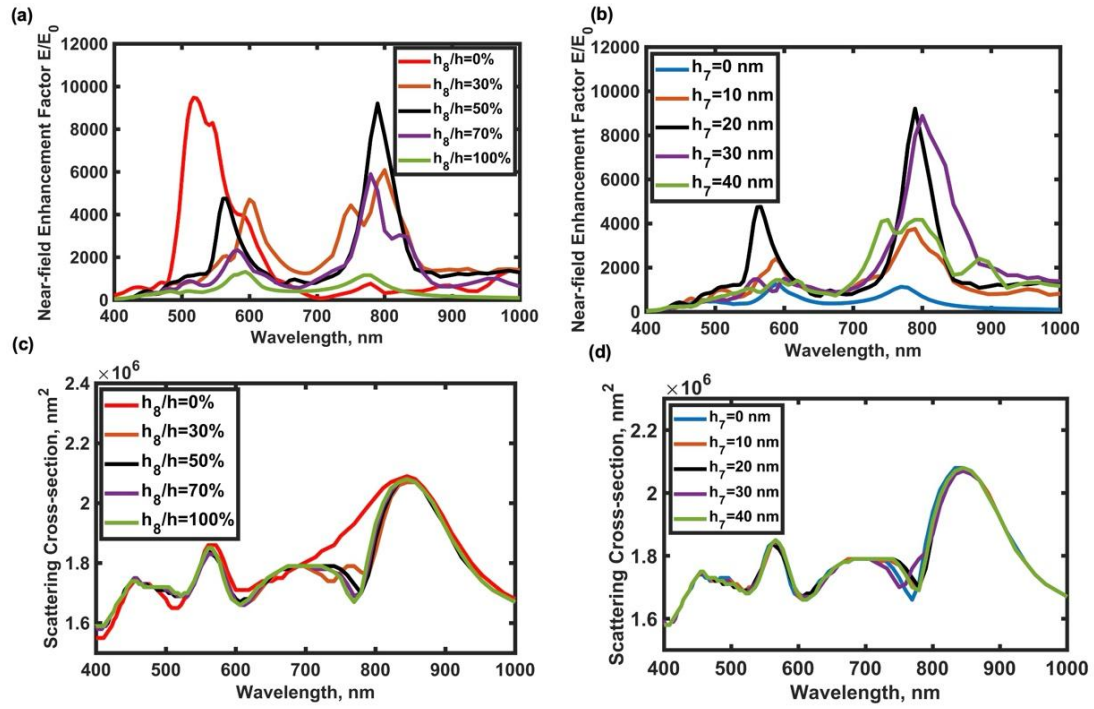


图 4.6: (a) LMIM-BNA II 中介质层占比 (h_8/h) 从 0% 至 100% 对电场增强因子的影响; (b) 介质层位置参数 h_7 对 LMIM-BNA II 电场增强的调控规律; (c) LMIM-BNA II 中介质层占比 (h_8/h) 从 0% 至 100% 的散射截面变化; (d) 介质层位置参数 h_7 对 LMIM-BNA II 散射截面的调控规律。

进一步分析了介质层位置参数 h_7 对电场分布与散射特性的调控作用 (图 4.6 b,d)。在 $h=80$ nm、 $h_8=40$ nm 条件下: $h_7=0$ nm (介质层位于纳米棒顶端) 时, 自上而下的介质-金属构型无法激发纳米棒内部的局域表面等离子共振 (LSPR); h_7 逐渐向基底偏移: 纳米棒表面穿孔处开始形成 LSPR, 且随偏移量增加愈发显著, 近场增强因子同步提升, 表明介质层位置与电场局域能力高度相关。

本研究探究了银基底厚度及纳米棒中介质材料对纵向金属-绝缘体-金属蝶形纳米天线 (LMIM-BNA II) 结构电场增强的调控机制。如图 4.7 a-b 所示, 通过调节银基底厚度与介质层折射率 n_2 , 可显著优化电场局域性: 随着基底厚度的增加, 近场增强的峰值波长发生了偏移, 而介电折射率的变化并不影响峰值波长的位置。当基底厚度和介电折射率与 MIM-BNA 结构相匹配时, 近场增强因子达到其最大值。在 LMIM-BNA II 结构中, 基底厚度增加促使电磁场进一步局域于纳米间隙内, 这种增强的局域化效应促进了电偶极共振模式与电四极共振模式间的能量转移, 导致散射峰蓝移 (图 4.6 c)。相较于 LMIM-BNA I, 该结构通过调控纳米棒中介质层占比 (h_8/h), 可使近场增强效应从可见光拓展至近红外波段, 这种可调性拓宽了其在多光谱传感与光电器件中的应用潜力。

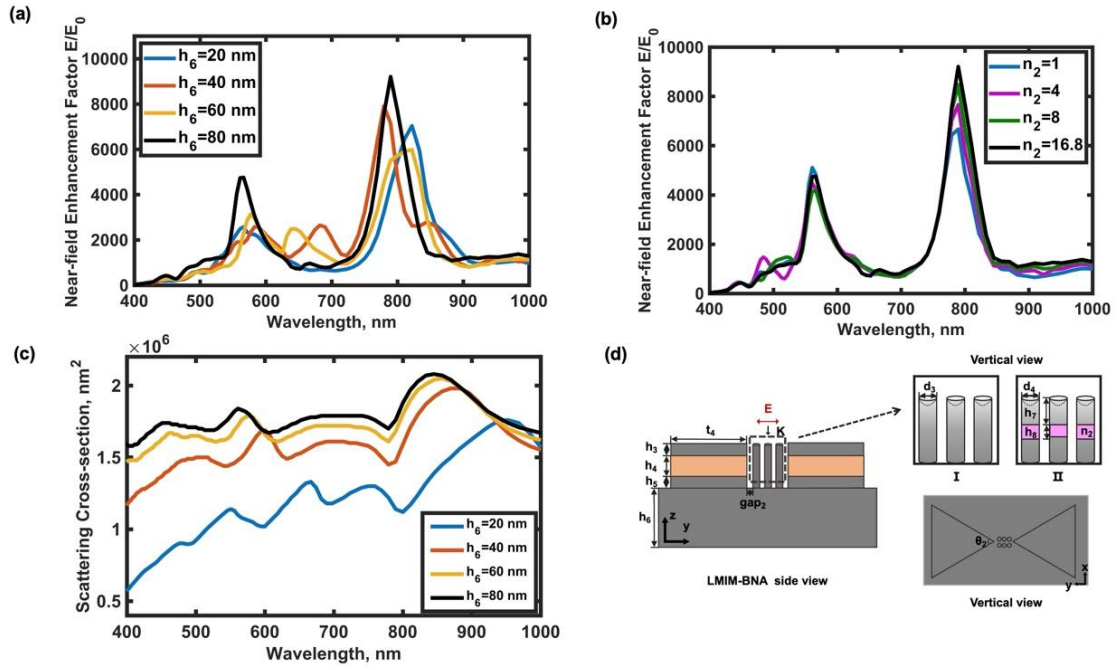


图 4.7: (a) LMIM-BNA II 基底厚度 (20-80 nm) 对电场增强特性的影响; (b) 纳米棒中介电层折射率变化对 LMIM-BNA II 近场增强因子的调控规律; (c) LMIM-BNA II 基底厚度 (20-80 nm) 的散射截面变化; (d) LMIM-BNA II 结构侧视图。

图 4.8 展示了纳米间隙中不同纳米棒阵列排布对局域电场效应的调控规律。我们设定单个纳米棒间隙为 1 nm，纳米棒阵列边缘与蝶形纳米天线 (BNA) 结构尖端之间的水平间距同样为 1 nm，且圆柱对称阵列的轴线与蝶形结构中心轴重合。当纳米间隙未填充纳米棒 ($n=0$) 时，近场增强因子呈现两个较小峰值，对应散射场中电四极子与偶极子共振产生的响应峰。对于 2×1 纳米棒阵列 (间隙宽度增至 4 nm)，该结构在 810 nm 波长处实现了 6.6×10^{16} 的 SERS 增强因子 (图 4.8 a)。值得注意的是，与 LMIM-BNA 结构类似，近场增强因子的峰值波长与散射场中的凹陷位置精确对应，这表明该结构主要通过耦合明暗等离子体共振模式形成高 Q 值局域表面等离子体共振 (LSPR) 模式，从而产生强局域电场效应。此外，狭窄的间隙宽度压缩了 LSPR 模式体积，使 Q/V 值显著提升。随着纳米棒数量增加，对应间隙宽度呈比例增大，但近场增强因子未显著衰减仍保持较高水平，同时散射凹陷位置逐渐蓝移。因此，通过调控间隙内纳米棒数量可实现局域电场效应作用范围与波长的精确控制，这对实际表面增强拉曼散射 (SERS) 应用具有重要意义。

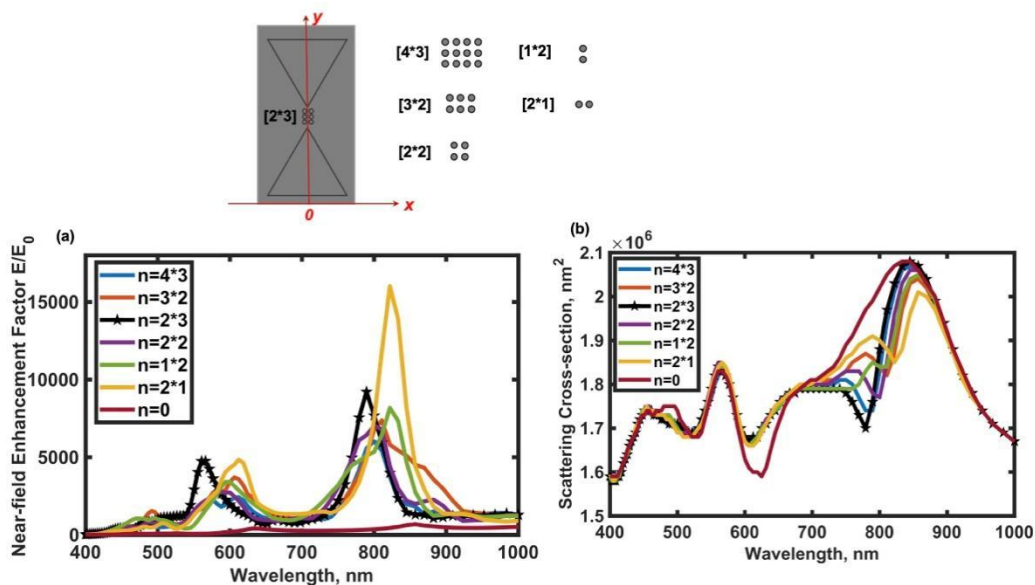


图 4.8: (a)展示了 LMIM-BNA II 纳米间隙中近场增强因子随纳米棒数量及排列方式的变化规律; (b)则呈现了该结构中散射截面随纳米棒数量及排列方式的变化趋势。圆柱对称阵列的轴线与蝶形结构中心轴重合。

4.5 小结

本章在横向金属-介电-金属蝶形纳米天线 (TMIM-BNA) 研究的基础上, 创新性地提出了纵向堆叠金属-介电-金属蝶形纳米天线 (LMIM-BNA) 结构。通过引入缺口银纳米棒阵列和介电优化填充, 该结构有效打破了纳米光子结构的几何对称性, 显著增强了暗等离子体模式的激发效率。研究表明, LMIM-BNA 结构通过电偶极亮模式与高阶暗模式的 Fano 共振耦合, 在特定波长下表现出优异的近场增强特性。

具体而言, LMIM-BNA I 在 521 nm 波长处实现了高达 9449.9 的电场增强因子 ($|E/E_0|$), 对应的 SERS 增强因子 ($|E/E_0|^4$) 达到 8.0×10^{15} 。而 LMIM-BNA II 在可见光 (560 nm) 和近红外 (790 nm) 波段分别实现了 4742.6 和 9211.0 的电场增强因子, 展现出良好的双波段增强性能。通过系统优化介质层垂直占比 (50%)、基底厚度 (80 nm) 及纳米棒排列密度等参数, LMIM-BNA II 在特定波长下的 SERS 增强因子进一步提升至 6.6×10^{16} 。

基于 CST 全波电磁仿真平台, 本章深入研究了天线几何构型 (如尖端角度、基底厚度) 和介质层空间配置 (位置占比) 等关键参数对近场增强的影响规律, 建立了多物理维度协同优化模型。研究表明, 纵向堆叠结构通过介电层的相位调控和对称性破缺设计, 有效降低了辐射损耗 (散射截面降低 15%), 同时扩展了热点区域。本章的研究为面向不同波段的表面增强拉曼光谱 (SERS) 检测

需求提供了新的纳米结构设计思路，为光场调控、超灵敏传感等光学前沿领域的研究提供了有益参考。

第 5 章 总结与展望

5.1 研究工作总结

本研究聚焦于金属-介质-金属 (MIM) 蝶形纳米天线 (BNA) 的局域电场增强机制与结构优化设计, 通过分别设计横向堆叠 (TMIM-BNA) 与纵向堆叠 (LMIM-BNA) 并在纳米间隙中添加纳米棒阵列, 系统探索了纳米光子结构的构效关系及多物理参数协同调控规律, 主要成果如下:

一、TMIM-BNA 结构的性能突破

在传统 Ag-BNA 的 10 nm 间隙内引入银纳米棒阵列 (直径 2 nm, 数量 6) 与横向 Ge 介质层 ($l_2=60$ nm), 形成 Ag-Ge-Ag 三明治构型 (图 3.1 a)。该设计通过打破几何对称性, 实现偶极子共振与暗等离子体模式的协同激发。相较于传统 Ag-BNA, TMIM-BNA I 在 508 nm 波长处的局域电场振幅 $|E/E_0|$ 从 190 提升至 1,635 (增强 8.6 倍)。通过介电-金属界面 E_y 相位反转效应 ($\Delta \phi \approx \pi$), SERS 增强因子 $|E/E_0|^4 > 10^{12}$, 为高灵敏度 SERS 基底设计奠定基础。

在 TMIM-BNA I 基础上对银纳米棒进行缺口加工 (缺口深度 1 nm, 宽度 2 nm), 进一步破坏纳米棒表面电流分布的对称性 (图 4.1 a)。缺口设计诱导纳米间隙内局域化表面等离激元 (LSP) 的二次耦合, 激发新型高阶暗模式。与 TMIM-BNA I 纳米结构相比, TMIM-BNA II 纳米天线表现出明显更高的近场增强光谱 (图 4.1 c)。而且 TMIM-BNA II 的散射截面仅为 Ag-NBNA 的 85%, 且 Ag-NBNA 散射强度处于近场增强波谷, TMIM-BNA II 位于波峰 (图 4.2 a)。

二、纵向堆叠 LMIM-BNA 的结构创新与性能优势

提出纵向堆叠的 LMIM-BNA I/II 结构, 通过纳米棒缺口设计与介电优化填充打破沿 Z 轴几何对称性, 激发电偶极亮模式与高阶暗模式的 Fano 共振。在可见光 (517 nm) 和近红外 (790 nm) 波段分别实现高达 $|E/E_0|=9000$ 倍的近场增强因子, 且增强峰与散射谷严格对应, 验证了暗模式对辐射损耗的抑制作用。系统揭示了 LMIM-BNA I 介质层占比 (50% 时双峰效应显著)、堆叠位置 (垂直居中时相位反转最优) 及基底厚度 ($h=80$ nm 时场局域性饱和) 的调控机制, 为多波段可调谐纳米光子器件提供了设计范式。

高折射率介电材料 (Ge, $n=16.8$) 通过相位延迟效应强化暗模式激发, 其 MIM 结构中的相位反转 ($\Delta \phi \approx \pi/2$)。纳米棒阵列密度优化表明, $[2 \times 1]$ 根时电场增强稳定性最佳, 在 790 nm 激发下可实现 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4 = 6.6 \times 10^{16}$, 为 SERS 基底设计提供了一种参数化优化路径。值得注意的是, 6.6×10^{16} 的增强因子仅在严格控制的纳米制造工艺下实现 (如电子束光刻精度 ± 1 nm), 其大规模应用仍面临挑战。

5.2 研究的创新点与不足

5.2.1 创新点

本研究在金属-介电-金属蝶形纳米天线（MIM-BNA）的设计与机理研究中取得重要进展。通过结构优化显著提升了传统蝶形纳米天线的性能表现。针对传统金属 BNA 的量子隧穿效应限制以及偶极共振的高辐射损耗问题，提出一种新型横向 MIM-BNA（TMIM-BNA I）复合构型，相较于传统 Ag-BNA 展现出更优近场增强性能：在银基蝶形天线横向插入介电层（Ge）并在 10nm 间隙内添加银纳米棒阵列，形成金属-介电-金属三明治结构。该设计通过耦合偶极子共振与暗等离子体模式，在可见光波段（508 nm）将 SERS 增强因子 $|E/E_0|^4$ 从传统 10 nm-Ag-BNA 的 1.2×10^9 （仿真数据）提升至 7.1×10^{12} ，相对提升 6000 倍。通过纳米棒挖孔设计优化的 TMIM-BNA II 结构，其散射截面降低至同尺寸 Ag-NBNA 的 85%（从 $1.82 \times 10^6 \text{ nm}^2$ 降至 $1.57 \times 10^6 \text{ nm}^2$ ）。

进一步提出的纵向堆叠 MIM-BNA（LMIM-BNA）设计，通过缺口纳米棒与介电层（厚度 80nm）的优化填充打破几何对称性，在单一器件中实现了亮-暗模式 Fano 共振调控。TMIM-BNA I 在可见光波段（521 nm）的增强因子达到 8.0×10^{15} ，LMIM-BNA II 在可见光（508 nm）与近红外（790 nm）波段的双峰增强特性，电场增强因子 $|E/E_0|$ 分别达传统 10 nm-Ag-BNA 结构的 25 倍与 50 倍，这为跨波段（可见光-近红外）近场增强调控提供了一种潜在的技术路径。值得注意的是，通过设计纳米棒阵列（如 2×1 阵列）与蝶形纳米天线（BNA）的耦合结构，实验观察到近场增强因子显著提升（达 6.6×10^{16} ）。这一结果基于以下特殊条件：(1) 1 nm 制造精度的纳米间隙；(2) 激发波长同时匹配 Fano 共振与暗态 LSPR；(3) 相位匹配优化的介电层（Ge）填充。

在物理机制方面，CST 仿真表明介电层可能通过相位反转效应改变电场分布（图 3.2），这一现象与暗模式耦合行为具有相关性。MIM-BNA 共振峰与散射场凹陷位置精确对应，进一步验证了明暗模式耦合对高 Q 值 LSPR 形成的促进作用。参数研究表明，（ $\theta=75^\circ$ ）金属尖端角度可使 TMIM-BNA I 产生场增强饱和现象。这一发现对传统金属纳米天线依赖尖锐间隙的设计范式提出了补充性见解。这些发现可能为纳米光子器件的设计优化提供参考，其普适性需更多实验验证。

5.2.2 不足

尽管研究取得了显著进展，但仍存在若干局限性与挑战。首先，研究的结论高度依赖数值仿真（如 CST 模拟）的结果，缺乏实验数据的直接验证。尽管仿真中采用了实测材料参数（如 Ag 的 Drude-Lorentz 模型、Ge 的复折射率），但未对实际制备的 TMIM-BNA 和 LMIM-BNA 结构进行近场光学测量（如扫描近

场光学显微镜或电子能量损失谱表征)。例如,理论预测的 1635 V/m 电场强度是否能在真实样品中实现、纳米棒阵列的排列误差是否会导致暗模式失谐等问题尚未通过实验验证。这种仿真与实验的脱节可能影响结论的可靠性,尤其是在高电场增强 ($>10^3$ V/m) 和亚纳米尺度效应(如量子隧穿)主导的极端条件下,经典电磁理论的适用性仍需实验进一步检验。

理论模型基于经典电磁理论,未充分考虑亚纳米尺度下的量子效应。当纳米间隙缩小至 1 nm 以下时,量子隧穿效应与非局域介电响应会显著改变场分布,而当前仿真未引入量子修正,可能导致高电场强度 ($>10^3$ V/m) 下的预测结果偏离真实物理场景。研究聚焦于静态结构优化,未涉及动态调控能力的开发。介质层厚度、纳米棒排列等参数均为固定设计,缺乏利用相变材料(如 VO_2)或电光介质实现实时调谐的功能,限制了其在可重构光子器件中的应用潜力。

在制造工艺方面,缺口银纳米棒阵列的 TMIM-BNA II 暗模激活依赖于结构对称性破缺的精确控制(如缺口位置、深度和曲率)。研究表明,5 nm 级的加工误差即可导致共振波长跳变或增强因子下降 30%。例如,电沉积法制备的银纳米棒阵列需通过 AAO 模板精确控制长度和间隙,而缺口引入会进一步增加工艺复杂度,需采用高分辨率电子束光刻 (EBL) 或聚焦离子束 (FIB) 技术,其成本高昂且通量低。纵向堆叠 LMIM-BNA 的介电优化填充依赖高精度原子层沉积 (Atomic Layer Deposition, ALD) 技术,而纳米棒缺口处 (<3 nm) 的材料界面均匀性难以保障,可能引发额外的散射损耗。这种工艺复杂性也制约了结构的大规模制备与产业化应用。虽然 LMIM-BNA II 实现了可见光与近红外的双波段增强,但两波段的热点空间分布存在差异:可见光增强集中于纳米棒凹槽区域,而近红外增强分布在金属-介质界面。这种空间非一致性可能对宽谱检测应用中的信号采集效率与信噪比产生不利影响,如何实现多波段热点的空间重叠仍是待解决的技术难题。

5.3 未来研究展望

本研究通过横向与纵向金属-介电-金属蝶形纳米天线 (MIM-BNA) 的结构创新,揭示了暗等离子体模式与高阶多极共振耦合的物理机制,为突破传统纳米天线的近场增强极限提供了新思路。然而,纳米光子器件的性能优化与实用化仍面临多重挑战,未来研究可从以下几个方向深入探索。

1. 基于动态材料的主动调控能力开发是提升 MIM-BNA 功能灵活性的关键方向。当前研究聚焦于静态几何参数优化,而引入活性介质(如相变材料 VO_2 、电致变色聚合物或液晶)可实现电场增强的实时调控。例如,通过热或光激励改变介质层的折射率或纳米间隙尺寸,可动态切换亮模式与暗模式的共振耦合状态,从而在传感、调制或可重构光子电路中实现“按需增强”的功能。此外,结合电

场或应变驱动的纳米机械结构变形,可能进一步拓展 MIM-BNA 在微纳机电系统 (MEMS) 中的应用潜力。

2. 宽谱响应与超快动力学特性的研究亟待深化。尽管纵向堆叠 LMIM-BNA 结构已展现多波段增强能力,但其暗模式与亮模式的超快耦合机制尚未明晰。利用飞秒泵浦-探测技术解析等离子激元共振的瞬态过程,可揭示 Fano 共振中能量转移的时空演化规律,为设计超快光开关或非线性光学器件提供理论支撑。同时,开发基于拓扑光子学或超表面的宽谱 MIM-BNA 构型,可能突破现有结构对波段选择的限制,实现从紫外到太赫兹的全光谱覆盖。

3. 在制造工艺方面,三维异构集成与原子级精度的突破是未来技术攻关的重点。当前 MIM-BNA 的制备依赖电子束光刻与聚焦离子束加工,难以实现亚 1 nm 间隙的大规模量产。探索原子层沉积 (ALD) 技术结合 DNA 自组装或分子模板法,有望在晶圆级基底上构建三维 MIM 纳米腔与分子级间隙阵列。此外,利用二维材料(如石墨烯、过渡金属硫化物)作为介电层或等离子体载体,可通过层间堆叠与界面工程进一步压缩模式体积,同时规避传统金属材料的欧姆损耗问题。

4. 理论模型的跨尺度融合与逆向设计方法的引入也将推动研究迈向更高维度。当前仿真基于经典电磁理论,未充分考虑量子隧穿、非局域效应及热载流子动力学等纳米尺度现象。发展量子修正的时域有限元算法 (FEM-Q),结合第一性原理计算与机器学习驱动的参数逆向优化,可突破“试错法”的设计局限,实现高性能 MIM-BNA 的智能生成。例如,通过神经网络建立几何参数-近场响应-远场特性的多目标映射关系,可快速筛选出满足特定增强因子、带宽或方向性要求的纳米结构。

5. 面向生物医学与清洁能源的应用拓展是 MIM-BNA 研究的重要落脚点。基于 TMIM-BNA 的高 Q 值特性,可开发单分子级别表面增强拉曼散射 (SERS) 探针,通过热点区域的空间扩展提升检测通量与重复性。在光催化领域,利用 LMIM-BNA 的宽谱近场增强效应,设计金属-半导体异质结反应器,可显著提升光生载流子分离效率与反应活性位点密度。此外,结合等离子激元热电子注入机制,MIM-BNA 有望在光伏器件、光电探测及人工光合作用系统中实现颠覆性性能突破。

MIM-BNA 的研究需从动态调控、宽谱设计、制造工艺、理论建模与应用创新等多维度协同推进,通过多学科交叉融合破解现有技术瓶颈。这不仅将深化对等离子激元-光子相互作用的科学认知,也为高灵敏度传感、紧凑型光电子器件及量子信息处理系统的实用化开辟新路径。

参考文献

- [1]Wessel, John. Surface-enhanced optical microscopy. Journal of the Optical Society of America B,1985.2(9): 1538-1541.
- [2]Grober, Robert D., Robert J. Schoelkopf, and Daniel E. Prober. Optical antenna: Towards a unity efficiency near-field optical probe. Applied physics letters,1997.70(11): 1354-1356.
- [3]Crozier, K. B., et al. Optical antennas: Resonators for local field enhancement. Journal of applied physics,2003.94(7): 4632-4642.
- [4]Moerner, W. E. Single-photon sources based on single molecules in solids. New Journal of Physics,2004.6(1): 88.
- [5]马亚群.染料敏化稀土纳米粒子 NIR- II 发光用于癌症检测和生物成像[D].西安电子科技大学,2023.
- [6]肖凡.核酸-有机发光杂化材料的合成及其生物成像和传感应用[D].哈尔滨工业大学,2022.
- [7]周妙芳.新型多路复用光纤一阵列光学天线光通信系统研究[D].电子科技大学,2023.
- [8]彭兰.二氧化钛基纳米材料的结构调控及光催化性能研究[D].北京交通大学,2019.
- [9]杨圆圆.金基双金属纳米晶的形貌可控合成及光、电催化应用[D].山东师范大学,2022.
- [10]庞智,万玲玉,黄继钦,等.金属纳米颗粒的局域表面等离子体共振与面形状关系研究[J].光散射学报,2014,26(03):307-315.
- [11]王成思,沈锡田.俄勒冈太阳石颜色成因的纳米矿物学研究[J].宝石和宝石学杂志(中英文),2024,26(S1):10-12.
- [12]程茹,李孟效,黄承志,等.单颗粒光散射显微成像技术在生化医药分析中的应用[J].分析测试学报,2021,40(06):828-835.
- [13]Chen, Hao, et al. Design, fabrication, and characterization of near-IR gold bowtie nanoantenna arrays. The Journal of Physical Chemistry C,2014.118(35): 20553-20558.
- [14]Suchitta, Aakansha, and Anuj Dhawan. Numerical investigation of plasmonic bowtie nanorings with embedded nanoantennas for achieving high SEIRA enhancement factors. Materials Research Express,2022.9(9): 096201.
- [15]Kimmitt, Nathan, and Esther A. Wertz. Tracking the coupling of single emitters to

plasmonic nanoantennas with single-molecule super-resolution imaging. ACS Photonics,2021.8(4): 1020-1026.

[16]Simeone, Daniela, et al. Tailoring electromagnetic hot spots toward visible frequencies in ultra-narrow gap Al/Al₂O₃ bowtie nanoantennas. ACS Photonics,2018.5(8): 3399-3407.

[17]Néel, N., et al. Inelastic electron tunneling into graphene nanostructures on a metal surface. Physical Review B,2017.95(16): 161410.

[18]Park, Changhoon, Seonghyeon Oh, and Jae W. Hahn. Theoretical analysis of high-efficient dielectric nanofocusing for the generation of a brightness light source. Scientific reports,2019. 9(1): 8207.

[19]王彬.金属蝶形纳米天线阵列结构的局域表面等离子共振特性及其应用研究[D].中国科学院大学(中国科学院长春光学精密机械与物理研究所),2020.

[20]Chang, Chiao-Yun, et al. Flexible localized surface plasmon resonance sensor with metal - insulator - metal nanodisks on PDMS substrate. Scientific reports,2018.8(1): 11812.

[21]Huang, Yu, et al. Hybridized plasmon modes and near-field enhancement of metallic nanoparticle-dimer on a mirror. Scientific reports,2016.6(1): 30011.

[22]王德宝.金属/高介质复合纳米天线设计及传感特性研究[D].东北石油大学,2024.

[23]王语.硅基复合结构纳米天线的多极共振特性研究[D].东北石油大学,2023.

[24]王冰,金杰,侯梓叶.双蝶形金属纳米光天线的远场特性研究[J].激光与光电子学进展,2015,52(02):189-194.

[25]陈杨.领结形纳米孔光学天线的设计及应用[D].中国科学技术大学,2016.

[26]焦蛟,罗先刚,赵青.基于 V 形纳米天线的平面透镜设计与制备[J].光学学报,2017,37(07):257-263.

[27]刘媛媛,李康康,田晓梦,等.多缝隙蝶形偶极子纳米天线的设计及吸收特性[J].光学学报,2019,39(02):358-367.

[28]马娜,江萍,匡年奇,等.蝶形纳米天线调控的超高品质光子-等离子共振混合微腔[J].激光与光电子学进展,2023,60(15):347-354.

[29]Fromm, David P., et al. "Gap-dependent optical coupling of single "bowtie" nanoantennas resonant in the visible." Nano letters,2004.4(5): 957-961.

[30]Schuck, P. J., et al. Improving the mismatch between light and nanoscale objects with gold bowtie nanoantennas. Physical review letters,2005.94(1): 017402.

[31]El Eter, Ali, et al. Fiber-integrated optical nano-tweezer based on a

bowtie-aperture nano-antenna at the apex of a SNOM tip. *Optics express*,2014.22(8): 10072-10080.

[32]Schuck P J, et al.Improving the mismatch between light and nanoscale objects with gold bowtie nanoantennas.*Physical review letters*,2005.94(1):017402.

[33]Ko, Kaspar D., et al. "Nonlinear optical response from arrays of Au bowtie nanoantennas." *Nano letters*,2011.11(1): 61-65.

[34]Nien, Li-Wei, et al. "Giant electric field enhancement and localized surface plasmon resonance by optimizing contour bowtie nanoantennas." *The Journal of Physical Chemistry C* 117.47 (2013): 25004-25011.

[35]Campbell, Caroline, et al. A comparison of simulated and fabricated gold bowtie nanoantennas for molecular fingerprinting. *Nanoscale Imaging, Sensing, and Actuation for Biomedical Applications XVI*,2019.42(47):10891.

[36]Campbell, Caroline, Abigail Casey, and Gregory Triplett. The effect of electron dose on positive polymethyl methacrylate resist for nanolithography of gold bowtie nanoantennas. *Heliyon*,2022.8(5).

[37]Jiao, Lipeng, et al. Staircase bowtie nanoantenna and rectangular nanoaperture arrays with huge intensity enhancement as SERS substrates. *Optics Communications*,2020.474: 126065.

[38]Khalil, Usman Khan, et al. Design and optimization of bowtie nanoantenna for electromagnetic field enhancement. *The European Physical Journal Plus*,2021.136: 1-13.

[39]Bethe, Hans Albrecht. Theory of diffraction by small holes. *Physical review*,1944.66(7-8): 163.

[40]Synge, EdwardH. XXXVIII. A suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*,1928.6(35): 356-362.

[41]Wang, Liang, and XFXu. High transmission nanoscale bowtie-shaped aperture probe for near-field optical imaging. *Applied Physics Letters*,2007.90(26).

[42]蒋忠君.表面等离激元的光学/电学激发及其应用研究[D].中国科学技术大学,2023.

[43]Mivelle, Mathieu, et al. Ultrabright bowtie nanoaperture antenna probes studied by single molecule fluorescence. *Nano letters*,2012.12(11): 5972-5978.

[44]Shalaev, Vladimir M., and Satoshi Kawata. *Nanophotonics with surface plasmons*. Elsevier, 2006.

- [45]Zhang, Junxi, Lide Zhang, and Wei Xu. Surface plasmon polaritons: physics and applications. *Journal of Physics D: Applied Physics*,2012.45(11): 113001.
- [46]Wood, Robert Williams. XLII. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*,1902.4(21): 396-402.
- [47]Fano, Ugo. The theory of anomalous diffraction gratings and of quasi-stationary waves on metallic surfaces (Sommerfeld' s waves). *Journal Of The Optical Society Of America*,1941.31(3): 213-222.
- [48]Otto, Andreas. Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei*,1968.216(4): 398-410.
- [49]Kretschmann, Erwin, and Heinz Raether. Radiative decay of non radiative surface plasmons excited by light. *Zeitschrift für Naturforschung A*,1968.23(12): 2135-2136.
- [50]Bo Liedberg, Claes Nylander, and Ingemar Lunström. Surface plasmon resonance for gas detection and biosensing. *Sensors and actuators*,1983.4: 299-304.
- [51]Jönsson U, Fägerstam L.et al. Real-time biospecific interaction analysis using surface plasmon resonance and a sensor chip technology. *Biotechniques*,1991.11(5): 620-627.
- [52]Fägerstam, Lars G., et al. Biospecific interaction analysis using surface plasmon resonance detection applied to kinetic, binding site and concentration analysis. *Journal of Chromatography A*,1992.597.(1-2): 397-410.
- [53]Homola, Jiří, Sinclair S. Yee, and Günter Gauglitz. Surface plasmon resonance sensors. *Sensors and actuators B: Chemical*,1999.54(1-2): 3-15.
- [54]Anker, Jeffrey N., et al. Biosensing with plasmonic nanosensors. *Nature materials*,2008.7(6): 442-453.
- [55]Willems, Katherine A., and Richard P. Van Duyne. Localized surface plasmon resonance spectroscopy and sensing. *Annu. Rev. Phys. Chem*,2007.58(1): 267-297.
- [56]Mauriz, Elba, et al. Real-time detection of chlorpyrifos at part per trillion levels in ground, surface and drinking water samples by a portable surface plasmon resonance immunosensor. *Analytica Chimica Acta*,2006.561(1-2): 40-47.
- [57]Baeumner, Antje J., et al. A generic sandwich-type biosensor with nanomolar detection limits. *Analytical and Bioanalytical Chemistr*,2004.378(6): 1587-1593.
- [58]Tüdös, Anna J., Elly R. Lucas-van den Bos, and Edwin CA Stigter. Rapid surface plasmon resonance-based inhibition assay of deoxynivalenol. *Journal of agricultural*

and food chemistry,2003.51(20): 5843-5848.

[59]Piliarik, Marek, and Jiří Homola. Surface plasmon resonance (SPR) sensors: approaching their limits. *Optics express*,2009.17(19): 16505-16517.

[60]Canez, Carlos R., et al. Trimethylation enhancement using ¹³C-diazomethane (¹³C-TrEnDi): increased sensitivity and selectivity of phosphatidylethanolamine, phosphatidylcholine, and phosphatidylserine lipids derived from complex biological samples. *Analytical Chemistry*,2016. 88(14): 6996-7004.

[61]Yager, Paul, et al. Microfluidic diagnostic technologies for global public health. *Nature*,2006.442(7101): 412-418.

[62]Zeng, Shuwen, et al. Nanomaterials enhanced surface plasmon resonance for biological and chemical sensing applications. *Chemical Society Reviews*,2014. 43(10): 3426-3452.

[63]Zhou, Siqin, et al. Recent advance on fiber optic SPR/LSPR-based ultra-sensitive biosensors using novel structures and emerging signal amplification strategies. *Optics & Laser Technology*,2024.175: 110783.

[64]Zhou, Siqin, et al. Recent advance on fiber optic SPR/LSPR-based ultra-sensitive biosensors using novel structures and emerging signal amplification strategies. *Optics & Laser Technology*,2024.175: 110783.

[65]Akkilic, Namik, Stefan Geschwindner, and Fredrik Höök. Single-molecule biosensors: Recent advances and applications. *Biosensors and Bioelectronics*,2020.151: 111944.

[66]Huang, Songfeng, et al. Recent advances in surface plasmon resonance microscopy. *Chemosensors*,2022.10(12): 509.

[67]Singh, Abhinay Kumar, et al. Surface plasmon resonance based - optical biosensor: Emerging diagnostic tool for early detection of diseases. *Journal of Biophotonics*,2023.16(7): e202200380.

[68]Altug, Hatice, et al. Advances and applications of nanophotonic biosensors. *Nature nanotechnology*,2022.17(1): 5-16.

[69]Drude, Paul. On the electron theory of metals. *Ann. Phys*,1900.1(3): 566-613.

[70]王冰.纳米尺度金属光学天线的近场与远场特性研究[D].天津大学,2016.

[71]Simeone, Daniela, et al. Tailoring electromagnetic hot spots toward visible frequencies in ultra-narrow gap Al/Al₂O₃ bowtie nanoantennas. *ACS Photonics*,2018.5(8): 3399-3407.

[72]Néel, N., et al. Inelastic electron tunneling into graphene nanostructures on a

- metal surface. *Physical Review B*,2017.95(16): 161410.
- [73]Park, Changhoon, Seonghyeon Oh, and Jae W. Hahn. Theoretical analysis of high-efficient dielectric nanofocusing for the generation of a brightness light source. *Scientific reports*,2019.9(1): 8207.
- [74]Johnson, Peter B., and R-WJPrB Christy. Optical constants of the noble metals. *Physical review B*,1972.6(12): 4370.
- [75]Fürjes, Péter. Controlled focused ion beam milling of composite solid state nanopore arrays for molecule sensing. *Micromachines*,2019.10(11): 774.
- [76]Paras, et al. A review on low-dimensional nanomaterials: nanofabrication, characterization and applications. *Nanomaterials*,2022.13(1): 160.
- [77]Wang, Chongwen, et al. Polyethylenimine-interlayered core-shell-satellite 3D magnetic microspheres as versatile SERS substrates. *Nanoscale*,2022.7(44): 18694-18707.
- [78]Chikkaraddy, Rohit, et al. Boosting optical nanocavity coupling by retardation matching to dark modes. *ACS photonics*,2023.10(2): 493-499.
- [79]Johnson, Peter B., and R-WJPrB Christy. Optical constants of the noble metals. *Physical review B*,1972. 6(12): 4370.
- [80]彭伟锋.基于表面等离激元的纳米天线增强光谱信号性能分析[D].燕山大学,2024.
- [81]王德宝.金属/高介质复合纳米天线设计及传感特性研究[D].东北石油大学,2024.
- [82]Nien, Li-Wei, et al. "Optimized sensitivity and electric field enhancement by controlling localized surface plasmon resonances for bowtie nanoring nanoantenna arrays." *Plasmonics*,2015.10(5): 553-561.
- [83]Yi, Ke, et al. "Bowtie Nanoantenna LSPR Biosensor for Early Prediction of Preeclampsia." *Biosensors*,2024.14(7): 317.

致谢

行文至此，意味着三年研究生生涯即将画上句点。在此向所有给予我支持与帮助的人致以最诚挚的谢意。

盛行千里，不忘师恩。由衷的感谢我的导师黄登朝，感谢黄老师在我研究生生涯对我的指导与帮助。在读研期间，黄老师以渊博的专业知识和平易近人的处世态度让我受益良多。在我做学术遇到困难时，为我指引方向。在我为未来感到迷茫时，给予我许多的人生建议。黄老师平易近人，总能以最自然的方式化解师生间的距离感。从文献精读到论文撰写的全程指导，黄老师严谨的治学态度和创新科研思维使我受益终身。三年接触下来，黄老师对我的影响不仅仅是学术上要脚踏实地，同时还有为人处世的想法以及生活与规划的建议，以严谨而又乐观的态度激励我不断成长。感谢基于我帮助的所有老师以及课题组的小伙伴们，山水一程有幸相遇。愿老师工作顺利、身体健康，愿课题组越来越好，蒸蒸日上。

父母之恩，常记于心。感谢我的父母对我无限的支持，让我能够安心学习。求学二十载，父母给我朴实又真挚的爱，让我站在父母的肩膀上看到了更大的世界。现在我会努力成为父母的依靠，愿我的父母以后永远健康平安。

途有好伴，不觉长远。感谢“六一俱乐部”的所有朋友们，一路走来幸得朋友们一直陪伴在我身边。特别感谢我最好的朋友程思远同学，给予我无限包容、安慰和鼓励。希望我的朋友们都能在各自的领域闪闪发光，愿能成为自己想成为的人。愿大家前途似锦，万事胜意。

附件 1：相关数据

表 1：纳米结构电场增强峰值相关数据

纳米结构	波长/nm	最大近场增强 $ E/E_0 $	SERS 增强因子 $ E/E_0 ^4$	散射截面/nm ²
1 nm-Ag-BNA	697.684	983.4	9.4×10^{11}	/
10 nm-Ag-BNA	545.455	187.3	1.2×10^9	/
10 nm-Ag-NBNA	512.821	958.2	8.4×10^{11}	1.64×10^6
TMIM-BNA I	508.475	1635.1	7.1×10^{12}	1.64×10^6
13 nm-Ag-NBNA	530.973	3988.3	2.5×10^{14}	1.82×10^6
TMIM-BNA II	530.973	4173.2	3.0×10^{14}	1.57×10^6
LMIM-BNA I	521.739	9449.9	8.0×10^{15}	1.61×10^6
LMIM-BNA II	560.748	4742.6	5.1×10^{14}	1.81×10^6
LMIM-BNA II	789.474	9211.0	7.1×10^{15}	1.72×10^6
[2*1]-LMIM-BNA II	821.92	16011.2	6.6×10^{16}	1.85×10^6

表 2：纳米结构相关数据

波长 /nm	1 nm-Ag- BNA	10 nm-Ag- BNA	10 nm-Ag- NBNA	TMIM- BNA I	TMIM- BNA II	LMIM- BNA I	LMIM- BNA II	[2*1]-L MIM-B NA II
375.00	67.1	17.9	92	188.2	179.9	115.1	14.4	13.9
377.36	67.8	17.2	91.8	186.1	178.9	119.6	15	14.5
379.75	67.8	16.5	90.7	184.2	176.8	123.3	15.6	15.1
382.17	67.1	15.8	88.5	182.3	173.8	131.7	16.4	15.7
384.62	66	15.2	85.7	180.9	176.8	138.8	17	16.4
387.10	65.6	15.7	82.7	180.3	198.3	146.5	17.6	17.3
389.61	66.1	17.9	90.8	181.7	223.3	154.3	18.7	18.9
392.16	66.4	21	102.3	183.8	245	159	20.6	21.2
394.74	66.6	24.6	113.9	185.6	258	160.1	23.2	24.3
397.35	66.4	28.5	135	186.8	261.5	167.6	26.4	27.3
400.00	66.6	32.4	153.8	188.1	257.1	202.5	29.7	30.4
402.68	68.2	36	161.3	184.4	254.5	234.7	36.9	33.5
405.41	71	38.6	162.1	180.7	245.5	260.9	45.4	39.3
408.16	74.4	40.1	172.9	180.7	231.3	285.3	53.7	46
410.96	78.4	40.2	182.8	180.7	225	313.3	61.8	52.1

413.79	84.3	40	191.6	182.1	267.7	348.6	70.1	59.4
416.67	91.6	40	201.4	187	318.9	395.8	79.8	69.8
419.58	101.3	39.3	208.6	198.4	373.5	447	88.3	79.7
422.54	116.1	39.5	213.4	211.4	429.4	496.5	98.5	103
425.53	132.1	40.1	216.9	226.8	483.3	539.4	119.2	132.7
428.57	149.4	40.7	219.9	244.9	526.8	570.9	140.9	163.1
431.65	167.7	41.5	224.4	265.2	553.4	589	195.9	188.7
434.78	187.5	42.3	231.7	288.1	567	597.2	257.8	209.6
437.96	208.4	43.2	242.6	312.5	569.6	594.4	317.3	225.3
441.18	230.3	43.7	256.2	337.6	683.6	579.4	366.6	236.8
444.44	256.9	43.5	273.6	366.1	814.4	553.4	405.7	248.7
447.76	288.9	42.5	293.5	397.7	959.3	520.6	424.4	260.9
451.13	321.9	42.4	313.6	427.2	1095.6	499.6	412.1	268.4
454.55	352.8	46.7	335.2	450.7	1209.8	511.4	376.8	271
458.02	378.7	49.9	359.1	464.7	1283.8	566	327.8	273.3
461.54	399.4	52.5	384.1	471.3	1429.4	657.8	284	306.2
465.12	414.1	54.9	402.4	481.1	1619.8	753.3	295.7	341.3
468.43	421.8	57.6	404.2	508.5	1855.1	811.5	387.9	373.3
472.44	421.3	60.5	385.4	559.7	2192.6	813.6	520	396.1
476.19	441.7	65.2	353.9	630.8	2623.9	758.6	650.3	458.4
480.00	469.4	82	362.8	717.4	3033.1	874.2	748.1	522.7
483.87	484.6	102.4	383.6	846.5	3278.3	1397.3	804.2	525.3
487.80	491.9	125.4	427.6	990.3	3314.2	2151.2	832.5	473.5
491.80	495.2	147.9	499.7	1146.4	3187.6	3066.7	854.3	480.6
495.87	494.6	166.1	596	1304.5	3250.7	4156.4	897.5	507
500.00	482.6	178.2	728.5	1468.1	3392.2	5700	991.8	628.3
504.20	457.3	181.9	852.1	1584.3	3463.5	7232.5	1083.2	726.9
508.47	426.6	181.8	933.1	1635.1	3418.2	8460.2	1127.1	750.6
512.82	406.1	181.2	958.2	1607.2	3275.5	9205.1	1136.4	680.3
517.24	402.4	181.7	939.5	1502	3447.6	9475.5	1152.2	537.3
521.74	411.1	183.7	896.9	1341.3	3617.5	9449.9	1188.2	440.9
526.32	424.6	186.9	875.6	1159.2	3935.5	9222.2	1216.4	369
530.97	435.1	190.1	857.4	985.9	4173.2	8767.4	1213.7	462.2

535.71	428.4	191.2	850.2	831	4030	8298.2	1225.1	596.8
540.54	393.4	187.3	854.2	687.4	3558.5	8188.5	1383.1	745.2
545.45	364.5	187.3	860.2	549.9	2896.6	8294.5	1920.9	984.3
550.46	375.7	151.4	847.7	437.1	2257.2	7793.4	2915.8	1279.5
555.56	393.7	124.8	804.7	358.1	1761.2	6781.1	4045.5	1153.8
560.75	416.9	101.3	730.9	307.8	1433.5	5801.5	4742.6	1776.9
566.04	445.1	83.8	630.4	270.7	1234.5	5041.5	4756.7	2041.8
571.43	474.9	74	520.9	242.6	1064.7	4499.1	4251.8	2345.5
576.92	497.3	71.1	425.7	222.7	927	4169.8	3629.8	2561.6
582.52	500.9	72.9	350.8	208.8	818.6	4015.5	3074.3	2847.2
588.24	481.2	77.8	295.1	195.6	749.4	3978.8	2639.1	3527.6
594.06	445.3	86.1	254.7	179.1	727.4	3867.3	2263.8	4056.8
600.00	413.3	98	231.3	166.2	732.5	3517.9	1940.5	4319.3
606.06	396.8	113.1	223.1	159.8	732.7	2990.4	1685.1	4514.4
612.24	393	129.7	225.8	156.2	713.1	2489.8	1483.4	4839.2
618.56	392.3	144.1	237.2	153.9	676.4	2111.4	1356.9	4635.9
625.00	377.6	152.5	263.8	152.7	636.9	1707.1	1252.1	3849.2
631.58	339.6	148.4	305	149.5	623.4	1293.2	1080.1	2817.8
638.30	378.5	139.7	347.5	142.4	633.6	967.9	824.2	2037.3
645.16	418.9	135.3	373	132.1	646.6	895.6	741.7	1817.9
652.17	454.7	134.3	378.5	121.3	653	809.8	719	1635.9
659.34	509.7	129.9	383	111.5	668.7	696.9	911	1778.8
666.67	579.1	119	380.6	104.6	691.6	547.8	966.7	1385.6
674.16	641.4	106	352.3	99.4	715.3	404.7	894.6	1351.3
681.82	796.9	93.8	309.5	91.7	728	284.2	815.8	1348.5
689.66	927.5	83.1	267.4	78.1	705.5	177.1	784.4	1347.2
697.67	983.4	73.3	228.2	63.8	655.7	105.8	800.6	1351.5
705.88	962.9	65	195.3	57.9	668.7	79.4	920.2	1390.3
714.29	860.6	57.8	168.3	58	789.9	109.2	1020	1454.5
722.89	712.5	51.5	146.8	59.4	963.6	175.2	1117.8	1496.2
731.71	565.6	45.9	128.3	60.6	1115.1	240	1266.9	1487.1
740.74	442.2	40.8	111.7	61.5	1150.6	305.7	1585.7	1407
750.00	356.6	36.6	98.1	60.1	1118.8	373.7	2201	1609

759.49	324.3	33.2	87.3	55.8	1056.3	486.1	3254	1984.7
769.23	383	30.7	79.1	51	878.3	647.5	4977.9	2519.2
779.22	471.5	29.2	73.1	48.8	675.7	765.6	7558.2	3386.8
789.47	539.5	28.9	70.3	49.6	664.1	557.2	9211	4851.4
800.00	465.8	30.2	71.3	49.3	761.5	323.3	7679.7	7117.9
810.81	352	33.1	75.6	47	618.7	349.9	5935.1	11847. 7
821.92	272	37.5	82.9	45.9	466.5	406	3991	16011. 2
833.33	213	42.6	91.9	47.6	589.8	407.1	2363.3	13884. 1
845.07	167	45.7	99.4	48.4	749.4	400	1452.4	8121.5
857.14	128.9	41.8	99.2	47.2	864.7	423.4	1307.8	4412.3
869.57	96.8	31.3	85.4	37.5	798.8	518.7	1293.8	2946.3
882.35	77.1	22	66.4	17.5	449.4	661.1	1085.1	1829.1
895.52	80.2	19.7	59.6	9.2	197.5	691.7	1147.9	1396.2
909.09	105.2	22.3	65	13.8	286.3	557.1	1230.5	1343.1
923.08	139.4	25.3	71.8	17	293.5	421.1	1190.1	1334.5
937.50	175.8	27.2	75.6	19.3	237.8	411.8	1258.6	1329.4
952.38	212.5	28	76.4	20.1	227.8	674.7	1240.7	977.5
967.74	251.9	27.8	74.6	19.4	223.4	1113.1	1304.7	908.3
983.61	293.6	27.1	71.7	18	157.7	1360.2	1375.6	962
1000.0 0	339.4	26.2	68	16.7	162.3	1429.2	1288.1	911.3

附件 2：攻读硕士学位期间取得的学术成果

发表论文：

- (1) Huang Dengchao, **Ding Qingxiu**, Guan, Guan Huaizhi, Li Wei, Guan Rulin, Wang Cheng, Li Yaqiong, Xu Binzi, Gao Wengen, Yang Kang. "Manipulating Fano Resonance Using Notch Nanogap Nanoantenna for SERS Detection." ACS Applied Nano Materials, 2025, 15(8):7552-7562
- (2) **Ding Qingxiu**, Huang Dengchao, Liu Shilin, Xu Binzi, Zheng Yang, Guan Rulin, Chen Xiaohui, Liu Luwei, and Wang Kai. "Manipulating near-field enhancement using hybrid bowtie nanoantenna for SERS." Japanese Journal of Applied Physics, 2025, 64 (1): 015001.

