直写激光制备的中红外等离激元金属-绝缘体-金属纳米贴片天线中的多模振动强耦合

Nicholas V. Proscia[1], Michael A. Meeker[1], Nicholas Sharac[1,¥], Frank K. Perkins[2], Chase T. Ellis[2], Paul D. Cunningham[2], Joseph G. Tischler [2,†]

[1]美国海军研究实验室博士后研究员，华盛顿特区 20375，美国。[2]美国海军研究实验室，华盛顿特区 20375，美国。[¥]现任职于 Rigetti Computing，加利福尼亚州弗里蒙特 94538

[†]现任职于俄克拉荷马大学 Homer L. Dodge物理与天文学系，俄克拉荷马州诺曼 73019，美国

关键词：纳米光子学、光-物质相互作用、3D打印、振动强耦合、等离激元学、纳米贴片天线，

金属-绝缘体-金属（MIM）等离激元结构能够将电磁波限制在深亚波长范围内，从而实现强光-物质相互作用，并有望应用于非线性光学和片上光子电路。此外，将中红外振动跃迁与光学腔强耦合，为改变和调控材料的化学反应性提供了一种途径，也可能实现高灵敏度化学检测技术。在此，我们通过实验和理论研究了3D打印的纳米尺度、各向异性L形MIM等离激元腔的中红外光学特性。我们观察到L形腔的两种偶极模式与聚合物介质之间存在振动-等离激元强耦合。所得的三种极化激元模式可由多模耦合振子模型准确描述，我们利用该模型预测极化激元行为随腔臂长度的变化。与常见的电子束光刻相比，3D打印技术具有节省时间和成本的优势，并提供了一种高度易用且灵活的方式，可打印任意形状、纳米尺寸的中红外等离激元腔，以产生强光-物质相互作用，适用于各种光子学或光化学应用。

引言

由贵金属、其纳米结构及超材料所支持的表面等离激元模式，如今已被广泛用于影响光-物质相互作用。由此产生的局域电磁场约束和增强，可导致拉曼散射的表面增强、[1] 红外吸收，[2] 以及非线性光学现象[3]；而真空态密度的增加则会带来荧光的珀塞尔增强。[4] 金属-绝缘体-金属（MIM）等离激元结构，包括MIM波导、镜面纳米粒子、纳米间隙腔和贴片天线，已成为实现电磁辐射极端亚波长约束的多功能平台，可在从可见光到中红外的宽带范围内提供更低的损耗和高出数个数量级的更强电磁场。[5–8]这些金属-绝缘体-金属结构通过由薄介质层分隔的两个金属界面上相干局域表面等离激元模式的相互激励而工作，从而基于麦克斯韦方程组产生深度亚波长等离激元模式。这些模式的阻尼率低于单界面表面等离激元极化激元（SPP），[9,10] 当其中一个或两个界面的尺寸有限时，可形成没有截止波长的超小体积腔。[11] 由于场强提高了数个数量级，金属-绝缘体-金属结构为增强光-物质相互作用相关的诸多有趣应用提供了可能，包括用于化学传感、[12–14] 量子光源、[15,16]激光器、[17] 高速发光二极管、[18] 以及利用与物质的手性相互作用。[19,20]

当光-物质相互作用足够强，使光子系统与材料系统之间的能量交换速率快于能量耗散速率时，系统之间的这种相互作用被称为处于强耦合区。[21,22] 在该区域中，光与物质态的性质发生杂化，产生称为极化激元的新型准粒子[23]，其具有任一组成系统中均不存在的新颖行为。利用强耦合构建新的物理系统，已被证明在基础研究的许多领域具有极高价值。[24,25] 尽管过去的大部分工作都集中于调控电子跃迁，[23, 26–29] 近年来，许多研究工作聚焦于将振动模式与光子和等离激元结构耦合[30–35]，以实现振动强耦合（VSC）。此类研究的目标包括实现超灵敏生物与化学传感器[36]、改变材料的化学性质、促进聚合物的超分子组装[37]，以及控制材料系统的热发射率。[33, 38–40] 由于振动模式的振子强度较低，利用局域表面等离激元共振实现振动强耦合一直较为困难。通常采用仅在一个或两个方向上受限的开放式等离激元系统，因为它们能够容纳更多振子以增强耦合强度；该强度与振子数N的平方根成正比。[41,42] 据我们所知，迄今仅有一篇关于封闭式等离激元腔系统中等离激元-振动强耦合的报道。[43]该研究采用了金属-绝缘体-金属纳米间隙贴片腔设计，因为其在保持合理Q值的同时具有超高场增强。这类金属-绝缘体-金属结构通常通过耗时的二维电子束光刻技术制备，并且限制了可实现的三维结构的复杂性。

在本研究中，我们采用三维纳米结构的激光直写，制备了具有中红外基频共振的L形金属-绝缘体-金属纳米间隙腔。这种快速且低成本的技术可用于快速原型制作，并评估任意形状和复杂度的光子系统。[44,45] 此前，各向异性L形和V形等离激元纳米颗粒及其反孔径等离激元薄膜已被证明是操控入射光近场与远场的多功能平台，可用于增强双折射、[46] 宽带偏振转换、[47,48] 光学相控阵[49] 以及圆二色性。[50] 在此，我们将这类具有两条正交振子臂的结构应用于纳米间隙金属-绝缘体-金属几何结构，从而使复合共振主要局限于绝缘体体积内。我们研究了这些L形腔随臂长和偏振角变化的特性。我们发现，每条臂的基频偶极模式都混合了两条臂的响应，形成杂化成键与反键模式。借助亚波长场增强，我们观察到L形腔的局域杂化偶极模式与丙烯酸酯基聚合物绝缘体中的羰基（-C=O）伸缩振动跃迁（CSVT）之间存在强耦合。[30] 我们将该系统建模为一个多模三振子系统，其中两个单独臂的偶极模式与聚合物绝缘体的CSVT相互作用。由于两个腔模式之间的相互作用势很大，我们发现该三振子系统的上、下极化激元分支之间出现了极大的劈裂，达1101 cm^{-1}。下极化激元分支与中极化激元分支之间104 cm^{-1} 的巨大拉比劈裂，使材料中红外振动跃迁达到强耦合区。因此，我们确立了激光直写金属-绝缘体-金属结构作为一个有前景的平台，可用于探索化学系统和等离激元系统中的振动强耦合效应。具体而言，这种制备技术可构造复杂的腔几何结构，并在绝缘体区域形成纳米级空隙，以供流体流动，从而实现用于光化学应用的微流控等离激元腔器件。

方法与材料

制备

L形纳米间隙腔采用激光直写制备，使用Nanoscribe Photonic Professional GT激光光刻系统，并通过双光子聚合实现纳米尺寸结构的3D打印。[44] 制备步骤流程图见图1a。首先，在低于10^{-8} Torr的压力下，通过电子束蒸发将150 nm厚的金膜沉积在硅衬底上，以确保金膜具有高光学质量，且厚度大于穿透深度，从而使其在目标波长范围内完全反射。随后，将Nanoscribe专有光刻胶IP-Dip滴涂在150 nm厚的金膜上。使用压电模式写入200 µm × 200 µm阵列，该阵列由尺寸相同的L形纳米结构构成，节距恒定为1600 nm；压电模式可校正衬底倾斜。我们打印了多个阵列，并改变L形结构的臂长，以研究其对共振能量和偏振的影响。对曝光后的IP-Dip光刻胶进行写入和显影后，通过电子束蒸发在其顶部沉积70 nm厚的金膜，形成L形金属-绝缘体-金属纳米间隙腔。L形腔的形状和尺寸如图1b所示。沿各轴的臂长分别独立变化，标称长度从600 nm到1400 nm，步进为~200 nm。L形结构的宽度保持为 300 ± 15 nm的标称值。如图1c-d所示，通过扫描电子显微镜（SEM）和原子力显微镜（AFM）确认了其形状和尺寸。

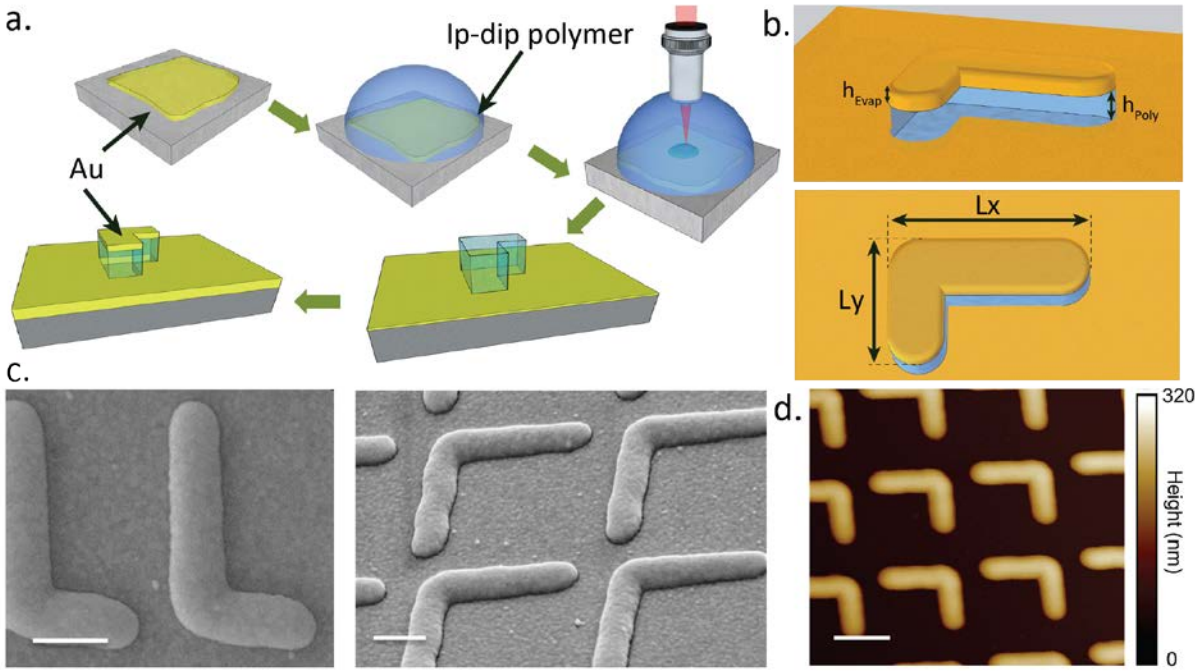


图 1：MIM L形腔的制备细节与材料表征 (a) MIM L形腔直写激光制备流程图。(b) 用于电磁仿真的最终 L形腔示意图，上：倾斜侧视图；下：倾斜俯视图。(c) 制备出的 L形腔扫描电子显微镜图像，其臂长分别为 795 nm 和 1324 nm（左）。45° 相似 L形腔的图像（右）。比例尺为 400 nm。(d) 一组相似 L形腔的AFM高度传感器图像。比例尺为 1000 nm。

最终的金属-绝缘体-金属结构如图1c-d中的扫描电子显微镜图像和补充信息图S1中的原子力显微镜图像所示。从扫描电子显微镜图像中可以看出，结构的周期性（即节距）为1570–1610 nm，标称间距为1600 nm。每条臂的标称长度以200 nm为增量，在600 nm至1400 nm之间变化。测得的长度与目标长度相差不超过100 nm。腔臂的宽度通常为290–320 nm，并随臂长增加而减小。从原子力显微镜图像中可以看出，显影后聚合物的高度为150 nm，L形腔顶部边缘的曲率半径（ROC）为50 nm。L形腔尖端的曲率半径约为宽度的一半，而腔臂外侧交点处的曲率半径为150 nm。

光学表征

使用全反射式红外显微镜（Bruker Hyperion 1000）与傅里叶变换红外光谱仪（Bruker Vertex 80v）联用，测量偏振中红外反射光谱。该显微镜配备金属线栅偏振片和36倍反射式物镜，以平均入射角为22度的偏振光照射样品。偏振片方向由计算机控制，并以5度为间隔采集不同偏振方向下的光谱，以获得所测样品的偏振响应。

数值模拟

使用有限元法（COMSOL Multiphysics 波动光学模块）进行了三维全波电磁（EM）模拟。模拟区域采用周期性Floquet边界条件，并结合周期端口注入平面波激励；衬底下方设置完全匹配层区域，以吸收所有透过金膜的光。入射角（AOI）固定为22^{o}，与测量条件一致。计算区域的截面尺寸设为1600 nm × 1600 nm，对应于制备结构的标称周期性。MIM L形腔近似为矩形平面薄膜，蒸镀金和IP聚合物层的上部边角均以50 nm的曲率半径（ROC）倒圆。根据图1c-d所示的实验扫描电子显微镜和原子力显微镜图像，臂端以150 nm的曲率半径倒圆。IP-Dip聚合物薄膜厚度设为150 nm。模拟L形腔的图像见图1b。IP-Dip、硅和金的介电常数分别取自文献[51]、[52]和[53]。

结果

图2分析了一组具有代表性的 L形腔的光学响应，其中图2c展示了由一组 L形腔组成的阵列的偏振分辨实验反射光谱，腔体尺寸为$Lx = 797$和$Ly = 1324$ nm。光谱中的每个反射谷都对应一种独特等离激元共振的吸收。通过对该结构进行电磁仿真，可以理解各模式的起源。图2 a 和 b 展示了模拟模式在初始金衬底上方 50 nm 处的面外电场（Ez）分布。L形腔模式由一系列面外偶极共振和高阶共振构成，在图2 a-b 中标记为模式 L、M、U 和 H1-H4。这些共振模式由同相局域表面等离激元共振产生，分别与金衬底界面以及覆盖在 Ip-dip 聚合物顶部、厚度为 70 nm 的蒸镀金膜界面相关。结构边缘处阻抗的变化使模式局域在横向尺寸范围内[7]。对于这些模式，电场主要垂直于衬底（Ez）；如补充信息图S3所示，显著的面内分量（Ex 和 Ey）仅出现在结构边缘的边缘场中。

图2a中的场模图展示了下极化激元（L）、中极化激元（M）和上极化激元（U）的场分布Ez分量。这些是腔的偶极模式，其中U模式与L/M模式彼此正交，这一点也由图2d中的差分反射极坐标图证实。这

与电耦合振子的解释一致：腔的每条臂都可视为一个独立振子，它们相互耦合，产生正交的成键模和反键模。[50] 在此背景下，L和M模式呈现偶极成键模的特征，即每条臂内的电荷同相振荡，导致两条臂交汇处发生相消干涉；而U模式主要呈现反键模特征，即两条臂中的电荷彼此反相振荡，在两臂交汇处产生相长干涉。场分布（图2a）和偏振图（图2d）显示，L和M模式的偶极方向相对于x轴为110^0，而U模式则近乎正交，其偶极矩相对于x轴的方向为22^0。每条臂各自的偶极等离激元共振与IP-Dip聚合物的CSVT之间的振动强耦合，使原本的成键模和反键模（见补充信息图S7）分裂为下、中、上极化激元分支（L、M和U模式）。L和M模式呈现成键模的特征，是因为在没有振动强耦合时，成键模的能量会与L和M模式相近。在振动强耦合存在时，三个振子发生杂化，L和M模式继承成键特征，而U模式则主要呈现反键特征。

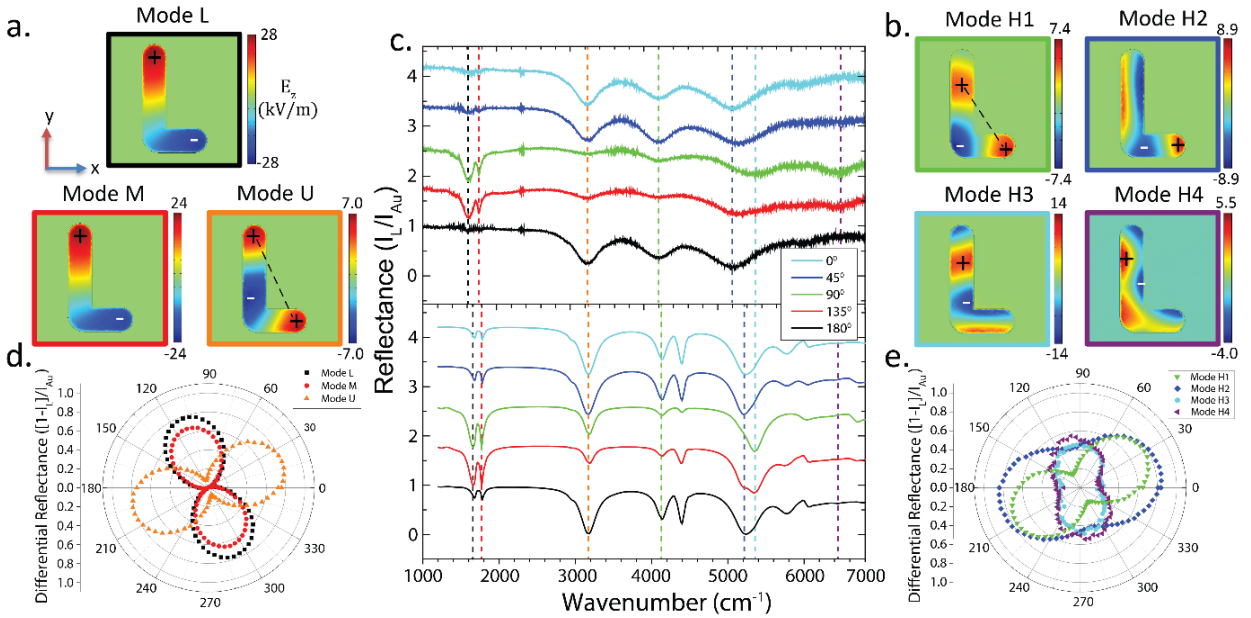


图2：L形腔共振的模式分析 （a、b）在（c）中偏振分辨反射光谱所识别模式的模拟面外电场（Ez）分布。各模式根据每个图的边框颜色进行颜色编码。（c）实验（上）和模拟（下）偏振分辨反射光谱。每次测量的偏振角标示在图例中，模式的光谱位置则由颜色编码的虚线标出。瀑布图中的光谱以0.8为增量分隔。（d、e）图（a、b、c）所示模式的实验差分反射率极坐标图。I_{Au}和I_L = 797 = 分别1324为平面金膜和臂长为*Lx* nm及*Ly* nm的L形腔阵列的反射强度。

在较高波数下，结构的共振来自图2b中模式H1–H4所示的高阶等离激元模式。模式H1是另一种类反键模，在Ly臂尖端处多出一个节点，使偶极方向略微旋转至30^0（图2d）。模式H2对应于一个几乎沿x轴方向的2^{nd} 阶共振，在Ly臂宽度方向和Lx臂长方向上产生共振场振荡。模式H3是一种与模式H2几乎正交的非对称模式，在Lx臂宽度方向和Ly臂长方向上产生场振荡。模式

H4是沿x和y两个方向的高阶共振的叠加。L形腔的所有局域模式均不受入射光照明入射角的影响，这表明散射是与入射光耦合的主要机制。[43] 还有几种其他高阶模式（位于4400、5750和6050 cm^{-1}），它们在图2c（上图）的实验反射率数据中不可见，但电磁仿真在图2c（下图）中预测到了这些模式。值得注意的是，位于4400 cm^{-1} 的模式与H1几乎简并；由于制备的腔中的缺陷导致线宽展宽，它可能会在实验数据中与H1重叠。为完整起见，补充信息图S3绘出了这些高阶模式的场分布。由于这些模式不会影响CSVT与腔之间的光-物质耦合，因此本报告其余部分将不再关注它们。

系统中的多模振动强耦合发生在与腔体各臂相关的两个偶极模式（图S6c）和IP-Dip聚合物的CSVT之间，由此产生三种混合光-物质极化激元模式。图3a展示了不同Lx臂长下三种极化激元模式的实验反射光谱瀑布图。Ly臂长基本保持不变，平均长度为1300 nm；Lx臂长则以~200 nm为步进，在600 nm–1400 nm之间变化。扫描电子显微镜图像测得的臂长显示在图3a的图例中。L和M模式之间清晰可见反交叉，当*Lx*为787 nm时，两条分支之间的能量差最小（图3b）。由于L形腔体具有对称性，若改变*Ly*而非*Lx*，也可观察到类似的模式色散，见补充信息图S4。

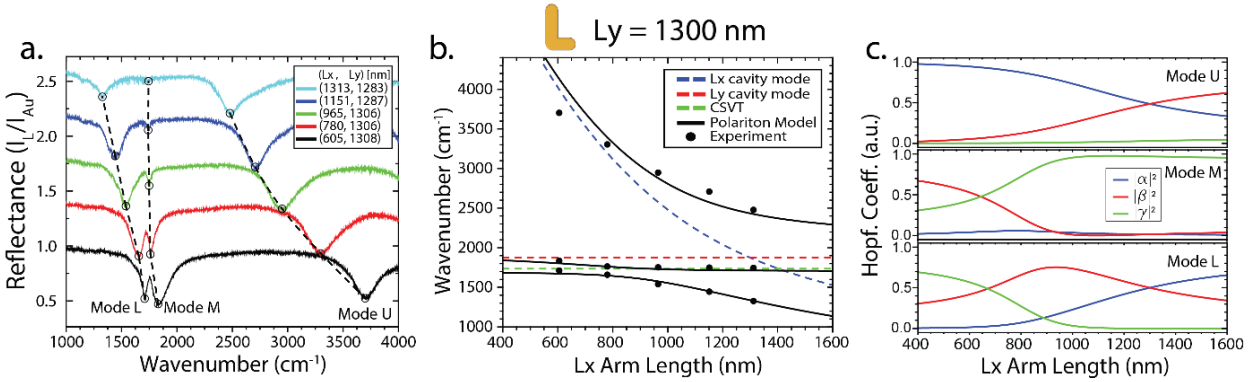


图 3： 振动-等离激元强耦合。(a) 随着 L 形腔的长宽比按*Lx*变化，在 VSC 与 IP-Dip 振动模式发生耦合的频率范围内，模式 L、M 和 U 的实验反射率。虚线是视觉参考线，表示极化激元的色散。(b) 对比 (a) 中测得的上、中、下极化激元位置（黑色圆点）与耦合三振子模型（黑线）。公式 1 预测的未耦合*Lx*（蓝色）和*Ly*（红色）模式，以及振动跃迁（绿色）以虚线表示。(c) 公式 (3) 中三振子耦合模型特征值对应的 Hopfield 系数（即特征向量）随 Lx 臂长的变化。

为了理解系统中极化激元模式（L、M 和 U）的形成，我们首先需要了解不存在 VSC 时的 L 形腔模式。如上所述，L形腔可以看作两个耦合腔。[54] 着眼于能量最低的偶极模式，此时腔的每条臂都可视为一个独立振子，我们使用简单的驻波条件，根据臂长对臂模式进行解析建模。因此，金属-绝缘体-金属间隙等离激元共振可表示为：

$$w\frac{2\pi}{\lambda}N_{eff} = m\,\pi + \phi, \quad (1)$$

其中，w 是腔的臂长，λ 是激励的自由空间波长，m 是模式阶数，ϕ 是模式在终止边界处反射时的相位差，而N_{eff}

是由$N_{eff} = k_{gap}/k_o$给出的有效模式折射率。对于较小的聚合物厚度 t，可以使用近似$\tanh(x) \cong x$其中$x = \sqrt{k_{gap}^2 - \varepsilon_d^2 k_o} * \frac{t}{2}$。间隙模式的波数$k_{gap}$则由[11]给出

$$k_{gap} = k_0 \sqrt{\varepsilon_d + \frac{1}{2}\left(\frac{k_{gap}^0}{k_o}\right)^2 + \sqrt{\left(\frac{k_{gap}^0}{k_o}\right)^2 \left[\varepsilon_d - \varepsilon_m + \frac{1}{4}\left(\frac{k_{gap}^0}{k_o}\right)^2\right]}}, \quad (2)$$

其中，k_o 为自由空间波数，ε_d 和ε_m 分别为绝缘体和金属的复介电常数，并且$k_{gap}^0 = -2\frac{\varepsilon_d}{t*\varepsilon_m}$。按照参考文献[43]中规定的方法对未耦合等离激元模式进行建模时，从参考文献ε_d 得到的ε_d 中的公式 1所获的[51]中去除了Ip-dip洛伦兹和高斯跃迁。金的ε_m 取自参考文献[53]。相位差ϕ 取决于系统的结构和材料属性，并与延伸至腔边缘之外的等离激元场范围有关。[9] 为确定该非平面系统的ϕ ，以公式 1 的ϕ 为拟合参数，将公式 1 拟合到补充信息图S6所示的单臂共振电磁模拟色散。公式 1 的最佳拟合结果绘于补充信息图S6c，其中ϕ = -7。33^0。用于描述孤立臂 Ly 和 Lx 偶极模式的色散关系以红色和蓝色虚线绘于图3b。补充信息图S7展示了在不存在Ip dip的CSVT时，两个耦合臂预期的杂化成键和反键腔模式。这些杂化模式通过 COMSOL 进行模拟，并通过双振子强耦合模型对两个独立臂模式进行预测，二者吻合良好。

产生极化激元模式 L、M 和 U 的振动强耦合，可用三个振子之间的一组线性耦合方程来描述：Lx臂的偶极腔模式 ω_x、Ly臂的偶极腔模式 ω_x，以及 IP-Dip聚合物的 CSVT ω_{vib}。图3b和图4中的强耦合系统采用标准多模耦合振子模型进行建模，该模型由一个包含 3 x 3 矩阵 M 的特征值方程给出，[35,55,56]

$$\begin{bmatrix} \omega_x[x] & V_1 & V_2 \\ V_1 & \omega_y & V_2 \\ V_2 & V_2 & \omega_{vib} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha[x] \\ \beta[x] \\ \gamma[x] \end{bmatrix} = \lambda_{L,M,U} \begin{bmatrix} \alpha[x] \\ \beta[x] \\ \gamma[x] \end{bmatrix} \quad (3)$$

其特征值为 $\lambda_{L,\ M,\ U}$，由 $\det(\boldsymbol{M} - \lambda \boldsymbol{I}) = \boldsymbol{0}$ 给出，

$$\left(\omega_x[x] - \lambda_{L,M,U}\right)\left[\left(\omega_y - \lambda_{L,M,U}\right)\left(\omega_{vib} - \lambda_{L,M,U}\right) - V_2^2\right] - V_1\left[V_1\left(\omega_{vib} - \lambda_{L,M,U}\right) - V_2^2\right] + V_2\left[V_1 V_2 - V_2\left(\omega_y - \lambda_{L,M,U}\right)\right] = 0\,. \quad (4)$$

这里 $\omega_x[x]$ 是根据公式 1 得到的 Lx臂等离激元模式色散随 Lx臂长的变化；ω_y 是Ly臂在平均长度为 1126 nm 时等离激元模式的能量；ω_{vib} 是以波数表示的 CSVT 能量。耦合强度由 $V_{1、2}$确定，它们分别是模式 $\omega_x[x]$ 与ω_y，以及$\omega_x[x]$ 或 ω_y 与ω_{vib} 之间的相互作用势。鉴于腔的厚度均匀，ω_x 和ω_y 被假定与ω_{vib}具有相同的相互作用势，即 V$_2$。特征向量 $\alpha[x]$、$\beta[x]$、$\gamma[x]$ 是与$\omega_x[x]$、ω_y、 ω_{vib}对应的极化激元系统的霍普菲尔德系数，用于描述每个极化激元模式中振动或等离激元特性所占的比例。通过将三个特征值 $\lambda_{L、M、U}$ 拟合到图

3 $V_{1\,2}$ 541 $^{-}$a 和 [1] 82 $^{-1}$ b 所示各极化激元分支的测得的共振，我们发现相互作用势 分别等于 cm 和 cm。根据我们的三耦合振子模型，极化激元分支（模式）L-M 和 U-L 之间的拉比劈裂分别为 104 和 1101 cm^{-1}，对应的 Lx臂长分别为 787 和 1290 nm。对于Ly = 1300 ，极化激元 M-U 之间的拉比劈裂出现在模型所确定范围之外的 Lx臂长处，该范围由ω_y 与

ω_{vib}。通过相干超快光谱直接测量与这些劈裂值相关的拉比振荡，超出了本研究的范围。

图3c中的霍普菲尔德系数显示了原始未耦合模式对各极化激元分支的加权贡献随Lx臂长的变化。当Lx臂长增加时，U 极化激元从几乎纯粹的ω_x 模式转变为ω_y ，并带有少量ω_{vib}的贡献。M 极化激元则从具有显著ω_y 模式特征转变为主要是 ω_{vib} ，其中 ω_x 模式仍占据较小的贡献。L 极化激元则从主要表现为ω_{vib} 特征，演变为腔模的组合，并最终在更大的臂长下趋近于纯粹的ω_x 性质（未显示）。

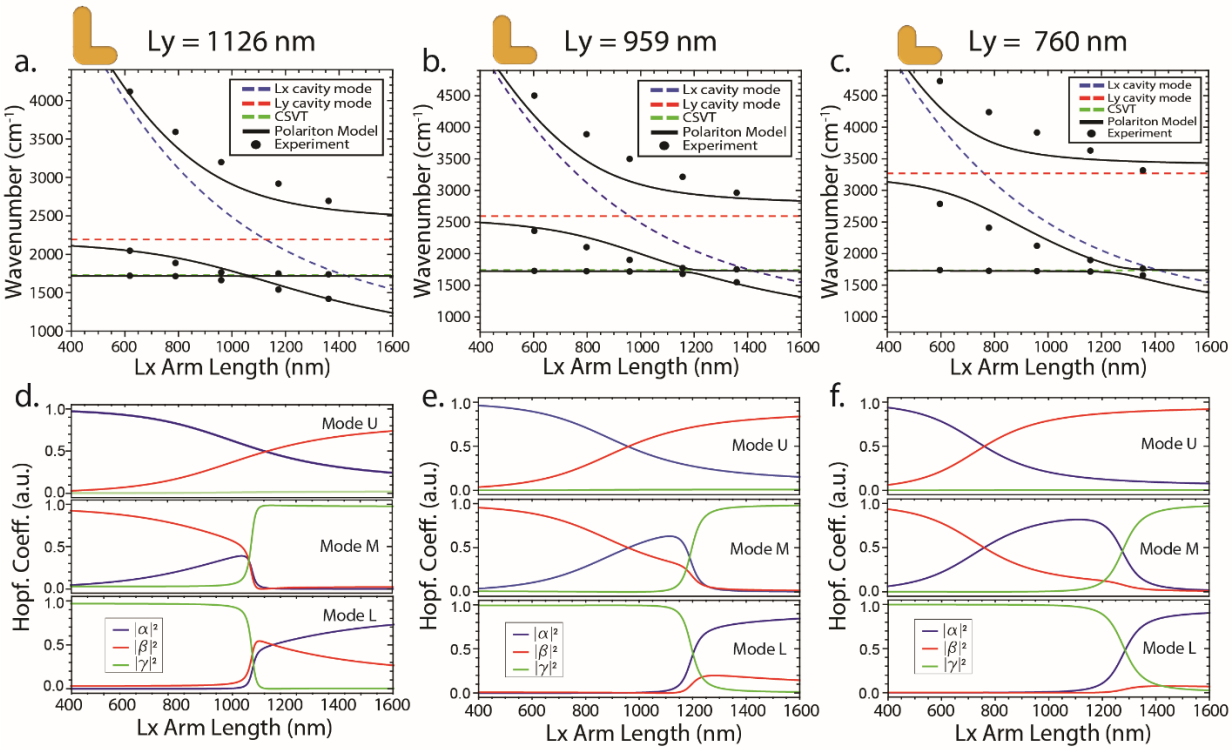


图4： 不同Ly臂长下的多模耦合。（a-c）三种不同平均Ly臂长下，上、中、下极化激元的实验测量位置（黑色圆圈）以及耦合三振子模型（黑线）：（a）1126 nm，（b）960 nm，（c）760 nm。由公式 1预测的未耦合Lx（蓝色）和Ly（红色）模式，以及振动跃迁（绿色）以虚线表示。（d-f）公式（3）中耦合三振子模型的霍普菲尔德系数随Lx臂长的变化，分别对应三种不同的平均Ly臂长：（d）1126 nm，（e）959 nm，（f）760 nm。

为了进一步理解组成模式（ω_x、 ω_y、 ω_{vib}）之间的相互作用以及极化激元分支的行为，我们将耦合振子模型应用于若干不同的 Ly 臂长，并采用图3中得到的 $V_{1、2}$ 值，其中 Ly = 1300。图4a展示了不同 Ly 值下，实验测得和模型计算的模色散随 Lx 的变化；补充信息图 s8 展示了反射率数据。聚焦于 L 和 M 极化激元的行为可以发现，随着 Ly 减小，反交叉点向更大的 Lx 臂长方向移动。当 L-M 反交叉点出现在较对称的 L形腔中时，L-M 极化激元之间的拉比劈裂较小（图4a中 Ly = 1126 nm 时为 15 cm^{-1}）；随后，随着 L-M 反交叉点出现在各向异性更强的 L形腔几何结构中，拉比劈裂再次增大（图4b、c中 Ly 分别为 = 959 nm 和 = 760 nm 时，为 53 cm^{-1} 和 101 cm^{-1}）。Ly = 1126 时拉比劈裂较小，是因为

ω_x 和 ω_y 在*Ly* = *Lx* = 1095nm 时共振，因此 U-M 极化激元几乎在与 L-M 极化激元反交叉点相同的条件下发生反交叉。由于 V> ₂, V，

U 模对 M 模施加“压力”，并将其推回 L 模方向。因此，在 $\omega_y > \omega_{vib}$ 的特定范围内，各向异性 L 形结构会使 L-M 极化激元产生更大的拉比劈裂；而在 $\omega_y < \omega_{vib}$ 时则不成立。通过考察最终形成的极化激元模式（尤其是 L 和 M 分支）如何取决于三个组成的等离激元模式和振动模式，我们可以看出，只有采用多模耦合模型才能全面理解该系统；常用的双振子模型是不够的。

从图 3c 和图 4(d-e) 可以看出，随着*Lx*和*Ly*的变化，各极化激元分支的特征如何改变。随着长度*Ly*减小（即 ω_y 能量升高），U 极化激元的特征会从主要为 $\omega_x \rightarrow \omega_y$ 模逐渐转变，其中 $\omega_y = \omega_x$ 决定了这一转变点。此外，对于较长的*Ly*，ω_{vib} 的贡献（尽管较小）会增加，因为在此范围内，ω_y 通常构成 U 极化激元能量的下限，因此它可以更接近 ω_{vib}。对于较长的 Ly 臂长，随着*Lx*变长，M 极化激元的特征会从主要呈 $\omega_y \rightarrow \omega_{vib}$ 性质发生转变；而对于较短的*Ly*，ω_x 的贡献逐渐增加，因此其演变过程主要呈 $\omega_y \rightarrow \omega_x \rightarrow \omega_{vib}$ 特征。改变*Ly*对 L 极化激元特征的影响几乎相反。对于较长的*Ly*，其特征会依次经历全部三种耦合模式（$\omega_{vib} \rightarrow \omega_y \rightarrow \omega_x$），随后在较短的*Ly*下逐渐转变为主要呈 $\omega_{vib} \rightarrow \omega_x$。L 和 M 极化激元表现出这种行为，是因为 ω_{vib} 与 ω_y。之间的能量间隔。当 Ly 较长，使得 ω_y 的能量接近 ω_{vib} 时，L-M 极化激元的拉比劈裂主要源于这两种模式之间的相互作用。此时，ω_x 的作用较小，仅当*Lx*较长、ω_x 与其他共振之间的能量差较小时才有所贡献。对于 Ly 较短、使得 ω_y 的能量与 ω_{vib} 相距较远的情况，L-M 极化激元的拉比劈裂主要源于模式 ω_x 和 ω_{vib} 之间的相互作用，而 ω_y 仅在*Lx*较小时对 M 模有所贡献，此时 ω_x 的能量相对于其他共振发生失谐。综上所述，通过调节 L形腔的不同长宽比，可以调控这些模式的行为和特征。

讨论

MIM L 型腔模与 IP-Dip 聚合物的 CSVT 之间的等离激元-振动耦合，从根本上将这两个独立系统改造为一个全新的混合光-物质系统，其三个极化激元本征模由式 3 给出。评估多个耦合振子的耦合强度，不如评估简单双振子系统的情形直接。U 极化激元带与 L 极化激元带之间 1101 cm^{-1} 的拉比劈裂显然符合所提出的强多模耦合判据[57]，因为它大于极化激元分支线宽的加权平均值，即 ~ 250 cm^{-1}。事实上，这也符合超强耦合的大多数判据，因为拉比劈裂与裸腔频率处于同一量级，约化耦合强度为 >10%，且约化耦合强度与协作因子的几何平均值大于 1。然而，U-L 拉比劈裂可能并不能代表光-物质耦合；鉴于在这一臂长下 U 极化激元和 L 极化激元均以等离激元特性为主，因此更恰当地说，它主要由等离激元-等离激元耦合主导。

如果我们改为根据L-M拉比劈裂来判断等离激元-振动耦合，因为这些模式保留了最显著的振动模特性，那么可以看到，拉比劈裂大于极化激元线宽，因此该系统或许更适合用强耦合区来描述。文献中基于耦合相互作用势、拉比劈裂和线宽的大小，采用了多种强光-物质耦合判据。在没有阻尼的情况下，基于简单双耦合振子模型的较宽松判据是：相互作用势的两倍应大于平均线宽。然而，仅满足这一判据并不会产生可见的拉比劈裂。

由于展宽会减小观测到的拉比劈裂，因此可见性的条件是拉比劈裂大于平均线宽。[26]当L和M模式分别主要表现为CSVT特性和等离激元特性时，它们的线宽分别为33 cm^{-1} 和163 cm^{-1}。因此，对于Ly=1300 nm和Ly=750 nm的腔体，平均线宽（98 cm^{-1}）小于拉比劈裂（104 cm^{-1} 和101 cm^{-1}）。[27] 因此，这些系统满足强光-物质耦合的判据。通过这一演示可以看出，如果针对所关注的振动跃迁进行适当调谐，该3D打印MIM L形腔便能够实现强等离激元-振动耦合。

此处采用的独特 MIM L形腔几何结构具有诸多优点。电磁辐射受到亚波长约束，随后场强增强，因此与开放式腔体设计相比，只需较少数量的分子振动振子，便可与 IP-Dip聚合物的 CSVT 实现更强耦合。[43] 与电子束光刻不同，这些腔体采用 3D 打印制成，能够构建复杂的腔体结构，例如在绝缘体区域中形成纳米级空隙以供流体流动，这与参考文献 [58]讨论的微流控法布里-珀罗腔方案类似。因此，尽管在制备过程中使用的 Ip-Dip 聚合物与 CSVT 的强耦合本身可能不具备技术应用价值，但可以设想利用与其他跃迁的强耦合来灵敏检测分析物，或影响流经该 3D 结构的溶液中的化学反应。本文研究的 MIM L形腔体积为 ~60 阿升，可为超低体积传感提供平台，用于检测独特的振动指纹。VSC 使振动特征占主导的极化激元从等离激元共振中借得振子强度，使其吸光度提高 5 倍，这一特性可用于化学或生物检测。强耦合还使人们能够可逆地调控腔内材料体系的光化学响应和反应速率[58] ；不同于由标准光化学控制的反应，基于 VSC 的化学反应发生时无需光子即可改变，因为该反应源于真空场的涨落。[38]此外，由于 MIM 模式与角度无关，且其在动量空间中的色散平坦，因此化学应用可在非垂直入射条件下进行，而具有色散的其他腔体则仅适用于垂直入射。[58,59]若能将低维半导体的子带间跃迁等中红外跃迁材料引入腔中，也有望实现相关的非线性光学应用。[60]

本研究关注的两个等离激元模式是新型 MIM L形腔的杂化成键与反键模式。我们发现，极化激元模式可以由公式 3 中的强耦合振子模型准确建模，其中每个臂的贡献共振由公式 1 中的关系给出。尽管在本报告中，振动强耦合需要纳入与 CVST 相关的第三个振子，但在不存在此类光-物质耦合的情况下，L形腔可以使用双耦合振子模型进行描述，该模型仅考虑每个臂的腔模。L形结构是最简单的面内各向异性结构之一，已被用于调控光的偏振以及对圆偏振光的手性响应。[46–50] 由于 L形腔的等离激元模式由两个臂的耦合正交模式组成，因此可以预期，当两个臂具有各向异性时，L形腔能够表现出圆二色性行为。[61] 因此，这种腔几何结构有望与手性振动模式耦合，从而选择性地检测或改变手性对映体对中某一立体异构体的行为。因此，识别并理解这些或类似激光打印结构的任何手性响应，是本研究未来的一个方向。

结论

总之，我们展示并表征了纳米尺度直写激光打印的金属-绝缘体-金属等离激元纳米间隙腔系统中的中红外多模振动强耦合。这种制备方案经济实惠、易于实施，可用于制造并快速评估中红外纳米尺寸等离激元腔；这类腔能够在深亚波长体积内实现强光-物质相互作用。

所采用的3D打印技术可支持复杂的腔体设计，包括带有空腔、可引入溶液样品以用于微流控平台的设计。通过解析方法和电磁仿真分析L形腔的电磁响应后，我们发现，基态偶极模是两臂各自响应的叠加，并且可以用双耦合振子模型很好地描述。腔内聚合物的CSVT带来的额外耦合需要采用多模耦合振子模型来描述，由此产生了观测到的L和M极化激元之间的振动强耦合，以及L/M与U极化激元之间的超强耦合。这些多功能光学腔具有各向异性多模光学响应，因此有望通过振动强耦合以新颖方式改变和控制材料的化学反应性。例如，这些结构可为特定手性立体异构体提供强手性场，用于检测或选择性手性振动强耦合介导化学。此外，该平台还可用于宽带范围内的超灵敏化学检测，因为L形腔在保持低模体积的同时，支持从中红外延伸至近红外的等离激元模式。

致谢

作者感谢Igor Vurgaftman博士就强耦合问题提供富有帮助的讨论。本研究得到了美国海军研究办公室的支持，资助通过美国海军研究实验室（NRL）和NRL纳米科学研究所的核心项目提供。本研究开展期间，N.V.P.、M.A.M.和N.S.在美国海军研究实验室获得了NRC研究助理奖。

参考文献

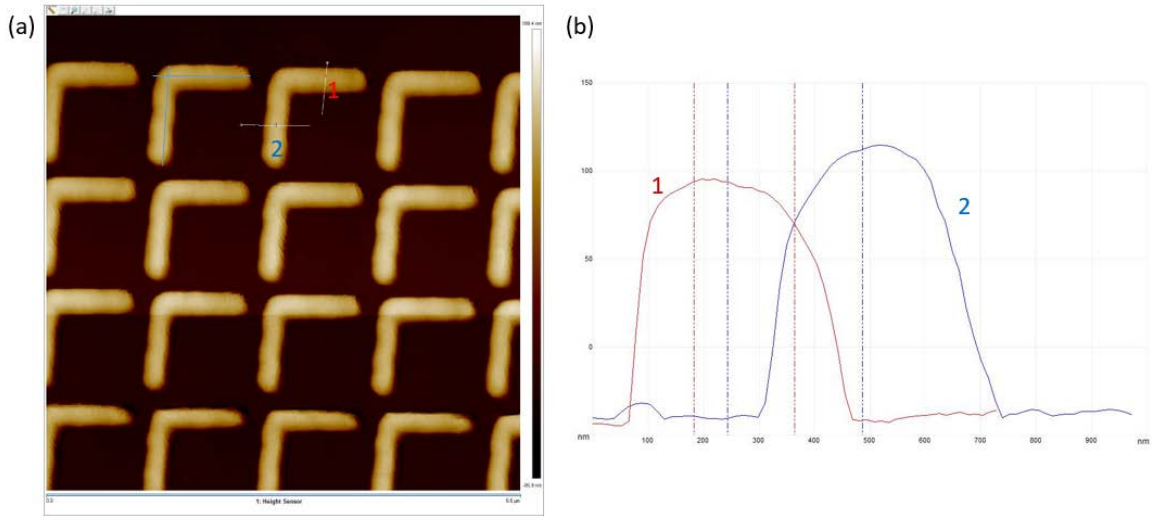
(1) Moskovits, M. 表面增强光谱学。《现代物理评论》 **1985年**, *57* (3), 783–823. (2) Osawa, M. 表面增强红外吸收。收录于《近场光学与表面等离激元极化激元》；Springer Berlin Heidelberg：Berlin, Heidelberg, 2001；第163–187页。(3) Chen, C. K.; De Castro, A. R. B.; Shen, Y. R. 表面增强二次谐波产生。《物理评论快报》 **1981年**, *46* (2), 145–148. (4) Gontijo, I.; Boroditsky, M.; Yablonovitch, E.; Keller, S.; Mishra, U. K.; DenBaars, S. P.; Krames, M. InGaN量子阱光致发光与银表面等离激元的耦合。《物理评论*B*辑》**1999年**, *60* (16), 100–101. (5) Kinsey, N.; Ferrera, M.; Shalaev, V. M.; Boltasseva, A. 探讨用于集成混合系统的纳米光子学：采用传统及替代材料的等离激元互连和调制器综述 [特邀]。《美国光学学会志*B*辑》 **2015年**, *32* (1), 121. (6) Tserkezis, C.; Esteban, R.; Sigle, D. O.; Mertens, J.; Herrmann, L. O.; Baumberg, J. J.; Aizpurua, J. 等离激元天线与腔模杂化：镜面纳米颗粒间隙的极限光学。《物理评论*A*辑：原子、分子与光学物理》**2015年**, *92* (5), 1–6. (7) Baumberg, J. J.; Aizpurua, J.; Mikkelsen, M. H.; Smith, D. R. 超薄金属间隙带来的极限纳米光子学。《自然·材料》。2019年，第668–678页。(8) Fang, Y.; Sun, M. 纳米等离激元波导：迈向集成纳米光子电路的应用。《光：科学与应用》。2015年，第294页。(9) Nielsen, M. G.; Gramotnev, D. K.; Pors, A.; Albrektsen, O.; Bozhevolnyi, S. I. 连续层间隙等离激元谐振器。《光学快报》 **2011年**, *19* (20), 19310. (10) Economou, E. N. 薄膜中的表面等离激元。《物理评论》 **1969年**, *182* (2), 539. (11) Bozhevolnyi, S. I.; Søndergaard, T. 慢等离激元谐振纳米结构的一般性质：

纳米天线与谐振器。《光学快报》2007, 15 (17), 10869. (12) Duffett, G.; Wirth, R.; Rayer, M.; Martins, E. R.; Krauss, T. F. 金属-绝缘体-金属纳米谐振器——用于实现高表面灵敏度的强局域模式。《纳米光子学》2020, 9 (6), 1547–1552. (13) Liu, N.; Mesch, M.; Weiss, T.; Hentschel, M.; Giessen, H. 红外完美吸收体及其作为等离激元传感器的应用。《纳米快报》2010, 10 (7), 2342–2348. (14) Cattoni, A.; Ghenuche, P.; Haghiri-Gosnet, A. M.; Decanini, D.; Chen, J.; Pelouard, J. L.; Collin, S.Λ3/1000 采用软紫外纳米压印光刻制备的用于生物传感的等离激元纳米腔。《纳米快报》2011, 11 (9), 3557–3563. (15) Luo, Y.; Shepard, G. D.; Ardelean, J. V.; Rhodes, D. A.; Kim, B.; Barmak, K.; Hone, J. C.; Strauf, S. 单层 WSe 2 中位点可控量子发射体与等离激元纳米腔的确定性耦合。《自然·纳米技术》2018, 13 (12), 1137–1142. (16) Greffet, J. J.; Laroche, M.; Marquier, F. 纳米天线与单量子发射体的阻抗。《物理评论快报》2010, 105 (11), 117701. (17) Hill, M. T.; Marell, M.; P Leong, E. S.; Smalbrugge, B.; Zhu, Y.; Sun, M.; van Veldhoven, P. J.; Jan Geluk, E.; Karouta, F.; Oei, Y.-S.; Nötzel, R.; Ning, C.-Z.; Smit, M. K.; Zia, R.; Selker, M. D.; Catrysse, P. B.; Brongersma, M. L. 金属-绝缘体-金属亚波长等离激元波导中的激光发射。《光学快报》2009, 17 (13), 11107. (18) Rose, A.; Hoang, T. B.; McGuire, F.; Mock, J. J.; Ciracì, C.; Smith, D. R.; Mikkelsen, M. H. 利用可调谐等离激元纳米贴片天线控制辐射过程。《纳米快报》2014, 14 (8), 4797–4802. (19) Huang, J.; Akselrod, G. M.; Ming, T.; Kong, J.; Mikkelsen, M. H. 利用等离激元纳米腔调控二维半导体的发射光谱。《ACS 光子学》2018, 5 (2), 552–558. (20) Sun, J.; Hu, H.; Pan, D.; Zhang, S.; Xu, H. 利用单个等离激元纳米腔的局域手性，选择性地耗尽单层 MoS2 中的谷极化激子。《纳米快报》2020, 20 (7), 4953–4959. (21) Weisbuch, C.; Nishioka, M.; Ishikawa, A.; Arakawa, Y. 半导体量子微腔中耦合激子-光子模分裂的观测。《物理评论快报》1992, 69 (23), 3314–3317. (22) Agranovich, V. M.; Litinskaia, M.; Lidzey, D. G. 含无序有机半导体的微腔中的腔极化激元。《物理评论B辑》2003, 67 (8), 085311. (23) Liu, X.; Galfsky, T.; Sun, Z.; Xia, F.; Lin, E. C.; Lee, Y. H.; Kéna-Cohen, S.; Menon, V. M. 二维原子晶体中的强光-物质耦合。《自然·光子学》2014, 9 (1), 30–34. (24) Yu, X.; Yuan, Y.; Xu, J.; Yong, K. T.; Qu, J.; Song, J. 微腔结构中的强耦合：原理、设计与实际应用。《激光与光子学评论》2018，第1–19页。(25) Kwek, L.-C.; Auffeves, A.; Gerace, D.; Richard, M.; Portolan, S.; Santos, M. F.; Miniature, C. 强光——从原子到固态系统；World Scientific Publishing Company, 2013。(26) Khitrova, G.; Gibbs, H. M.; Kira, M.; Koch, S. W.; Scherer, A. 半导体中的真空拉比分裂。《自然·物理》2006，第81–90页。(27) Törmö, P.; Barnes, W. L. 表面等离激元极化激元与发射体之间的强耦合：综述。《物理学进展报告》2015, 78, 013901. (28) Baranov, D. G.; Wersäll, M.; Cuadra, J.; Antosiewicz, T. J.; Shegai, T. 用于强光-物质相互作用的新型纳米结构与材料。《ACS 光子学》2018, 5 (1), 24–42.

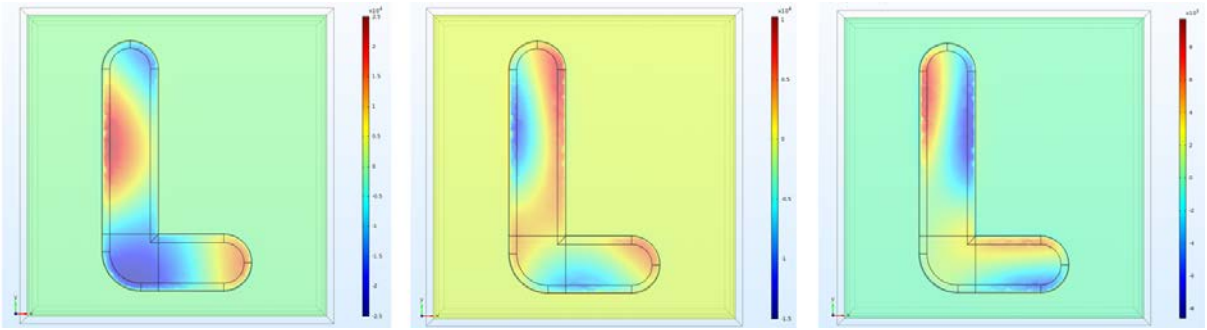
(29) Gómez, D. E.; Vernon, K. C.; Mulvaney, P.; Davis, T. J. 半导体纳米晶体中的表面等离激元介导强激子-光子耦合。《纳米快报》2010, 10 (1), 274–278. (30) Long, J. P.; Simpkins, B. S. 分子振动与法布里-珀罗光学腔之间的相干耦合：在强耦合极限下形成杂化态。《ACS 光子学》2015, 2 (1), 130–136. (31) Memmi, H.; Benson, O.; Sadofev, S.; Kalusniak, S. 表面等离激元极化激元与分子振动之间的强耦合。《物理评论快报》2017, 118 (12), 126802. (32) Wang, J.; Yu, K.; Yang, Y.; Hartland, G. V.; Sader, J. E.; Wang, G. P. 室温下等离激元谐振器中的强振动耦合。《自然·通讯》2019, 10 (1). (33) Chervy, T.; Thomas, A.; Akiki, E.; Vergauwe, R. M. A.; Shalabney, A.; George, J.; Devaux, E.; Hutchison, J. A.; Genet, C.; Ebbesen, T. W. 强耦合区中的振动极化激元红外发射。《ACS 光子学》2018, 5 (1), 217–224. (34) Dunkelberger, A. D.; Spann, B. T.; Fears, K. P.; Simpkins, B. S.; Owrutsky, J. C. 耦合振动-腔极化激元中的弛豫动力学变化与相干能量交换。《自然·通讯》2016, 7. (35) Ahn, W.; Vurgaftman, I.; Dunkelberger, A. D.; Owrutsky, J. C.; Simpkins, B. S. 由光学腔内分子的空间分布控制的振动强耦合。《ACS 光子学》2018, 5 (1), 158–166. (36) Folland, T. G.; Lu, G.; Bruncz, A.; Nolen, J. R.; Tadjer, M.; Caldwell, J. D. 振动与近零介电常数波导模式的耦合。《ACS 光子学》2020, 7 (3), 614–621. (37) Joseph, K.; Kushida, S.; Smarsly, E.; Ihiawakrim, D.; Thomas, A.; Paravicini-Bagliani, G. L.; Nagarajan, K.; Vergauwe, R.; Devaux, E.; Ersen, O.; Bunz, U. H. F.; Ebbesen, T. W. 振动强耦合下共轭聚合物的超分子组装。《应用化学国际版》2021, 60 (36), 19665–19670. (38) Hutchison, J. A.; Schwartz, T.; Genet, C.; Devaux, E.; Ebbesen, T. W. 通过与真空场耦合改变化学能量景观。《应用化学国际版》2012, 51 (7), 1592–1596. (39) Thomas, A.; George, J.; Shalabney, A.; Dryzhakov, M.; Varma, S. J.; Moran, J.; Chervy, T.; Zhong, X.; Devaux, E.; Genet, C.; Hutchison, J. A.; Ebbesen, T. W. 振动与真空电磁场耦合条件下的基态化学反应性。《应用化学国际版》2016, 55 (38), 11462–11466. (40) Braun, A.; Maier, S. A. 用于表面增强红外光谱传感器的多功能激光直写光刻技术。《ACS传感器》2016, 1 (9), 1155–1162. (41) Verdelli, F.; Schulpen, J. J. P. M.; Baldi, A.; Rivas, J. G. 利用扩展超表面上的表面晶格共振，在红外和拉曼光谱中追踪振动极化激元指纹。《物理化学杂志C》2022, 19, 18. (42) Menghrajani, K. S.; Nash, G. R.; Barnes, W. L. 表面等离激元与振动的强耦合及表面等离激元禁带的存在。《ACS 光子学》2019, 6 (8), 2110–2116. (43) Dayal, G.; Morichika, I.; Ashihara, S. 单谐振器尺度下亚波长纳米间隙贴片天线中的振动强耦合。《物理化学快报》2021, 12 (12), 3171–3175. (44) Deubel, M.; Von Freymann, G.; Wegener, M.; Pereira, S.; Busch, K.; Soukoulis, C. M. 用于电信的三维光子晶体模板的激光直写。《自然·材料》2004, 3 (7), 444–447. (45) Dietrich, P. I.; Blaicher, M.; Reuter, I.; Billah, M.; Hoose, T.; Hofmann, A.; Caer, C.; Dangel, R.;

Offrein, B.; Troppenz, U.; Moehrle, M.; Freude, W.; Koos, C. 面向混合光子集成的自由形状耦合元件原位三维纳米打印。《自然·光子学》2018, 12 (4), 241–247. (46) Sung, J.; Hicks, E. M.; Van Duyne, R. P.; Spears, K. 纳米粒子光谱学：圆柱形银纳米粒子有限尺寸二维阵列中的等离激元耦合。《物理化学杂志C》2008, 112 (11), 4091–4096. (47) Lévesque, Q.; Makhsiyan, M.; Bouchon, P.; Pardo, F.; Jaeck, J.; Bardou, N.; Dupuis, C.; Haïdar, R.; Pelouard, J. L. 用于宽带、高效线偏振转换的等离激元平面天线。《应用物理快报》2014, 104 (11), 111105. (48) Yang, J.; Zhang, J. 基于L形缝隙天线中磁等离激元共振激励的纳米偏振转换器。《光学快报》2013, 21 (7), 7934. (49) Blanchard, R.; Aoust, G.; Genevet, P.; Yu, N.; Kats, M. A.; Gaburro, Z.; Capasso, F. 纳米尺度V形天线建模及光学相控阵设计。《物理评论B辑》2012, 85 (15), 155457. (50) Black, L. J.; Wang, Y.; De Groot, C. H.; Arbouet, A.; Muskens, O. L. 用于超表面的耦合二聚体等离激元纳米天线中的最佳偏振转换。《美国化学会纳米》2014, 8 (6), 6390–6399. (51) Fullager, D. B.; Boreman, G. D.; Hofmann, T. Nanoscribe IP-Dip和IP-L单体经聚合后的红外介电响应，波数范围为250 Cm−1 至6000 Cm−1。《光学材料快报》2017, 7 (3), 888. (52) Li, H. H. 硅和锗的折射率及其波长和温度导数。《物理化学参考数据杂志》1980年, 9 (3), 561–658. (53) Palik, E. D. 《固体光学常数手册》；1997年. (54) Black, L. J.; Wang, Y.; De Groot, C. H.; Arbouet, A.; Muskens, O. L. 用于超表面的耦合二聚体等离激元纳米天线中的最佳偏振转换。《美国化学会纳米》2014, 8 (6), 6390–6399. (55) Savona, V.; Andreani, L. C.; Schwendimann, P.; Quattropani, A. 半导体微腔中的量子阱激子：弱耦合区和强耦合区的统一处理。《固态通讯》1995, 93 (9), 733–739. (56) Deshmukh, R.; Marques, P.; Panda, A.; Sfeir, M. Y.; Forrest, S. R.; Menon, V. M. 通过与表面等离激元强耦合改变振电跃迁的谱权重。《ACS 光子学》2020, 7 (1), 43–48. (57) Liu, Y.; Zhu, Z.; Qian, J.; Yuan, J.; Yan, J.; Shen, Z. X.; Jiang, L. 二维过渡金属二硫族化物与等离激元-光学混合谐振器之间的强耦合。《物理评论B辑》2021, 104 (20), 1–8. (58) Nagarajan, K.; Thomas, A.; Ebbesen, T. W. 振动强耦合下的化学。《美国化学会志》. 2021, pp 16877–16889. (59) Li, T. E.; Nitzan, A.; Subotnik, J. E. 集体振动强耦合对分子振动弛豫和能量转移的影响：腔分子动力学模拟的数值研究。《应用化学国际版》2021, 60 (28), 15533–15540. (60) Lee, J.; Tymchenko, M.; Argyropoulos, C.; Chen, P. Y.; Lu, F.; Demmerle, F.; Boehm, G.; Amann, M. C.; Alù, A.; Belkin, M. A. 等离激元超表面与子带间跃迁耦合产生的巨大非线性响应。《自然》2014, 511 (7507), 65–69. (61) Kong, X. T.; Khosravi Khorashad, L.; Wang, Z.; Govorov, A. O. 手性超材料吸收器和辐射热测量仪中由等离激元共振诱导的光热圆二色性。《纳米快报》2018, 18 (3), 2001–2008.

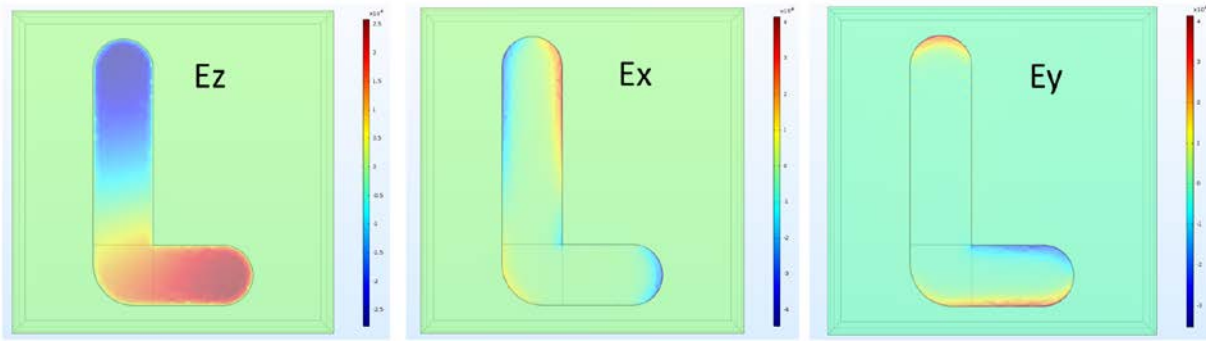
补充信息



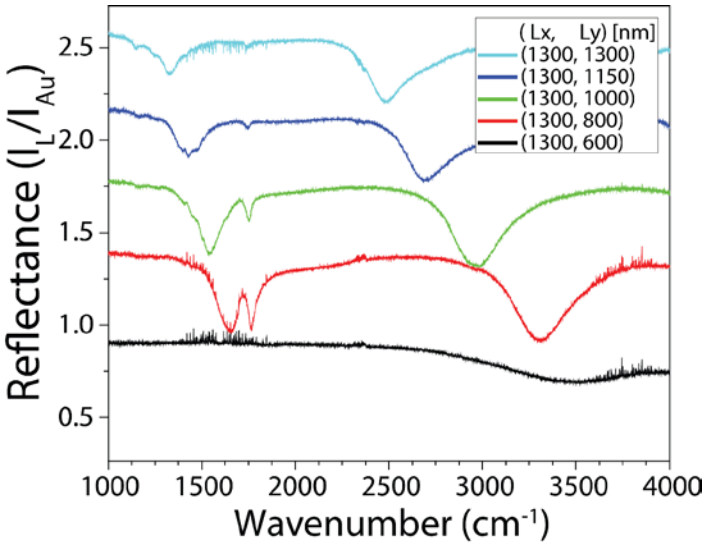
补充图 **1** | 部分 L形天线的原子力显微镜表征 (a) 部分 L形天线的原子力显微镜图像，其顶部蒸镀了 70nm 金。两个方向的臂长均为 675 nm，与图1c 中扫描电子显微镜图像来自同一样品。(b) (a) 中标出的、横跨每条臂的剖切线。



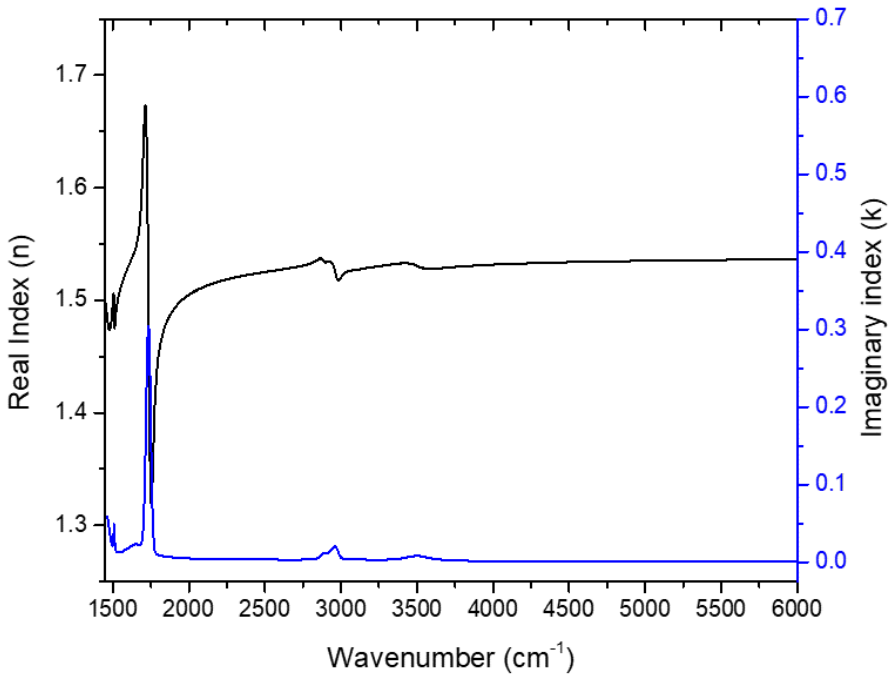
补充图 **2** | 图2 中 L形天线的模拟反射光谱——高阶模式的场模图在实验数据中未表征（5750）/未观察到（4400、6050）。



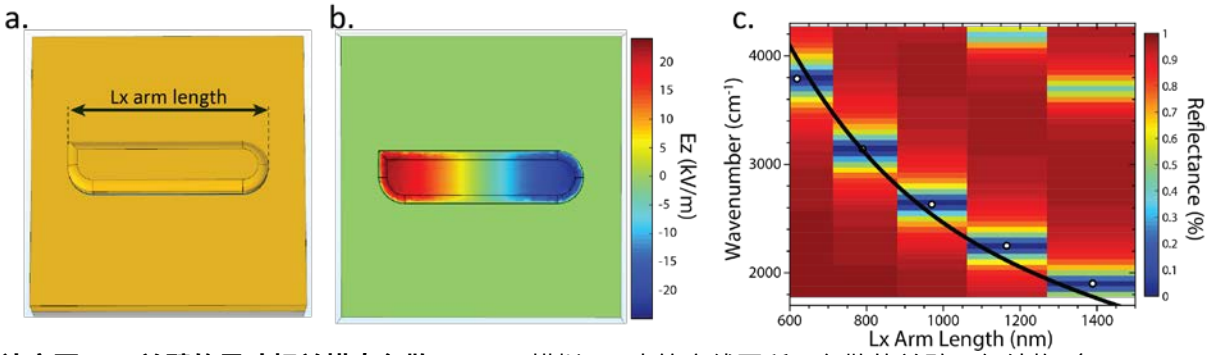
补充图 **3** | 图2中 L 模态的电场分量——A低阶模态的电场模态（Ez、Ex、Ey）图，Ez 也显示于图2a。



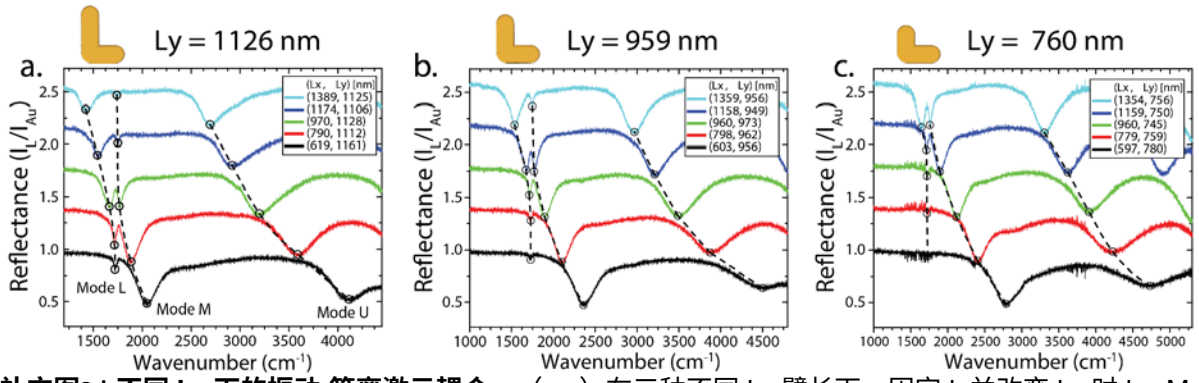
补充图 **4** | L形天线模态的尺寸依赖色散——几种不同尺寸 L形天线的反射光谱。此处 Ly 以 ~200 nm 为增量变化，而 Lx 保持基本恒定，为 ~1300 nm。模态色散与图4a类似，其中变化的是 Lx 而非 Ly。图例中给出的 Ly 距离为标称值。



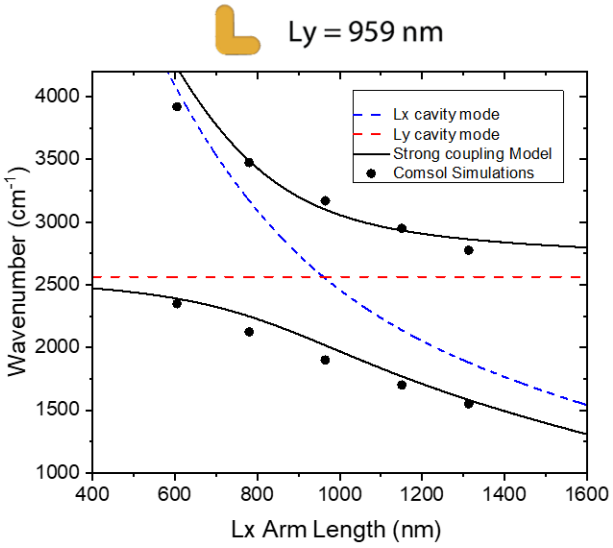
补充图 5 | IP-Dip的椭偏测量数据。根据正文参考文献 48，IP-Dip聚合物的折射率实部（黑色）和虚部（蓝色）的实验测量结果。



补充图 6 | 单臂的尺寸相关模态色散 (a) 用于模拟 (b) 中等高线图所示色散的单臂几何结构（Lx=1165 nm）。(b) Lx臂长为=1165 nm时在 2250 cm^{-1}处的场模分布。(c) 将 (a) 和 (b) 中结构的模拟反射光谱绘制为等高线图，并叠加正文公式 1 计算得到的色散。



补充图8 | 不同 Ly 下的振动-等离激元耦合。（a-c）在三种不同 Ly 臂长下，固定 L 并改变 Lx 时 L、M 和U模式的实验反射率瀑布图：（a）1126 nm，（b）959 nm，（c）760 nm。



补充图7 | 不存在 Ip-dip 振动跃迁时模拟的 L形腔成键模式和反键模式。使用 COMSOL 对不同 Lx臂长下的 L形腔模式进行模拟，同时将 Ly 臂长保持在 959 nm。黑色实线表示成键模式（下方）和反键模式（上方），它们通过双振子强耦合模型模拟得出；该模型描述了与各臂相关的未耦合 Lx 和 Ly 腔共振（虚线）。为此，将等式（3）中的等离激元-CSVT相互作用势设为 0，即 V_2=0，并移除 CSVT，ω_{vib}。因此，等式 3 中的特征值问题现在由 2×2矩阵给出，$\begin{bmatrix} \omega_x[x] & V_1 \\ V_1 & \omega_y \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha[x] \\ \beta[x] \end{bmatrix} = \lambda_{\pm} \begin{bmatrix} \alpha[x] \\ \beta[x] \end{bmatrix}$，其中 $\lambda_{\pm}$ 现在是系统的两个特征值。等离激元-等离激元相互作用势 V_1, 保持为 541 cm^{-1}，与正文图 3 和图 4 中所得数值相同。