arXiv:2304.02537v2 [cond-mat.mes-hall] 3 May 2023

金基底上范德华纳米天线中的高 Q 混合米氏-等离激元共振

Sam A. Randerson[1]*、Panaiot G. Zotev[1], Xuerong Hu[1], Alexander J. Knight[1], Yadong Wang[1],Sharada Nagarkar[1], Dominic Hensman[1],Yue Wang[2],和 Alexander I. Tartakovskii[1]**

[1]谢菲尔德大学物理与天文学系，谢菲尔德，S3 7RH，英国[2]约克大学物理、工程与技术学院物理系，

英国约克，YO10 5DD

*sranderson1@谢菲尔德.ac.uk **a.tartakovskii@谢菲尔德.ac.uk

摘要

已有研究表明，介电纳米谐振器能够避免等离激元器件相关的严重光学损耗，但其共振的限域较弱。通过构建由介电材料和金属材料组成的杂化系统，可以保留介电共振的低损耗特性，同时利用金属对模式调谐进行额外控制，并实现更强的模式限域。尤其是，多层范德华材料正逐渐成为与金属集成的有前景候选材料，这得益于其较弱的吸引力，使其无需晶格匹配即可沉积于此类基底上。在此，我们将层状高折射率 WS_2 剥离并置于金基底上，制备并对金基杂化纳米天线系统进行光学表征。我们通过实验观察到米氏共振、法布里–珀罗模式，以及由纳米天线激发并进入基底的表面等离激元极化激元发生杂化。实验测得的杂化 Mie-等离子体模式品质因数，是二氧化硅上纳米天线中米氏共振品质因数的 19 倍；我们还观察到超腔模式的特征，其品质因数为 263 ± 28，源于高阶无辐射模式与法布里–珀罗等离激元模式之间的强模耦合。我们进一步模拟了带有六方氮化硼间隔层的金基 WS_2 纳米天线，计算得到的电场增强超过 2600，珀塞尔因子为 713。我们的研究结果表明，置于金上的介电纳米光子结构会产生显著的光学响应变化，为利用易于制备的器件开展纳米光子学研究和传感开辟了新的可能性。

在过去十年中，过渡金属二硫属化物（TMD）单层因其直接带隙跃迁和有用的光电性质而吸引了大量研究努力 [1], ，使得块体材料在很大程度上被忽视。最近，利用块体过渡金属二硫属化物承载米氏共振的纳米谐振器 [2] 引起了兴趣，然而这些研究主要集中在低折射率介电基底（如SiO_2 [3–6]）上制造此类结构。过渡金属二硫属化物纳米天线-金属杂化系统尚未得到彻底探索，先前工作主要由数值模拟主导。第一个被数值表征的是介电

纳米线置于金属基底之上，由Oulton *et al.* [7], 完成，由此预测了介质-等离激元混合模式。此后，已考虑多种介质-金属纳米器件，从金属纳米颗粒-TMD单层系统 [8, 9], 到由硅和金同轴层组成的混合纳米天线 [10, 11]。此外，Yang *et al.* [12]对位于银基底上方数纳米处的介质纳米天线进行了数值分析。他们的工作显示介质-等离激元混合模式 [12]，品质因数（Q）高达 $\sim 10^3$ ，珀塞尔增强达 > 5000，并在纳米天线-基底间隙中具有强电场局域。Shen *et al.* [13] 在此基础上，模拟了置于间隙中的hBN-WSe_2 异质结构并实现了强光-物质耦合。迄今实验工作仅限于金属基底上的硅基纳米谐振器。2018年，Xu *et al.* 在金基底上制备了硅纳米盘，实现了环形偶极模式[14]。该环形偶极模式用于将三次谐波产生增强两个数量级，相较于同一纳米盘置于绝缘基底上。Maimaiti *et al.* 制备了类似器件，由金基底上的多晶硅纳米盘组成，但在纳米盘与基底之间引入了Al_2O_3 间隔层[15]。这导致间隔层中电场增强超过40，模拟中垂直取向偶极子的珀塞尔因子达300。在实验中，他们展示了荧光增强，以及对耦合分子的表面增强拉曼光谱，信号比单纯等离激元纳米盘更稳定。最后，且与本研究最相关的是，Dmitriev *et al.* 在金上制备了硅纳米环，其间嵌入量子发射体层 [16]。他们在暗场光谱中观察到纳米环的米氏共振，以及耦合发射体垂直于基底的强方向性。

过渡金属硫族化合物（TMDs）凭借更高的折射率 [17], , 在产生强模式限域方面成为硅基纳米光子学的有吸引力的替代方案，同时在可见光波长范围的很大一部分内没有吸收 [18]。此外，通过从块体过渡金属二硫属化物中简单剥离 [19]，即可获得制造纳米天线所需的高晶体质量薄膜（厚度从单层到 $\sim 500\,\mathrm{nm}$）。此外，由于其固有的范德华吸引力 [1]，它们可以剥离到多种其他材料上。这避免了晶格匹配要求以及在分子束外延腔室中生长等难题；使用其他传统介质材料（如砷化镓和磷化镓）制造纳米天线时，往往会遇到这些问题。因此，使用过渡金属硫族化合物为设计和制造各种厚度的介质-金属混合结构开辟了新的可能性，从而能够在纳米尺度上对光子学和等离激元共振进行先进调控。

在本研究中，我们在金基底上制备了 WS_2 纳米天线，并通过实验暗场光谱表征其光学响应，结果与有限差分时域（FDTD）模拟高度吻合。我们仔细考察了此类器件中的米氏共振和无极共振，并观察到其模式结构相较于二氧化硅上的纳米天线发生了显著变化，且品质因数有所提高。我们结合模拟和实验散射型扫描近场光学显微镜（s-SNOM），确认了混合米氏-等离激元模式的存在；这些模式 [20], 可以增强由受光照射的纳米天线激发的表面等离激元极化激元（SPPs）。我们观察到这些模式呈现法诺线型，不同于米氏模式所对应的洛伦兹线型，从而确认了混合共振的判定。实验表明，只需改变纳米天线的几何形状，就能轻松将其调谐至不同波长。这些混合模式的实验品质因数最高可达 94，约为二氧化硅上纳米天线中米氏模式的 20 倍 [21], , 凸显了其潜力

在开关和传感中的应用 [22–25]。

我们进一步通过实验和模拟，探究了金基底上 WS_2 纳米天线中的高阶阿纳波尔模式（HOAM）与法布里-珀罗-等离激元（FPP）模式之间的强模耦合。此类共振可通过调谐，在散射光谱中实现反交叉，实验测得的最小能量劈裂为 48 ± 5 meV。在反交叉点，我们观察到高度局域的超腔模式特征[26], ，其品质因数为 263 ± 28；该模式源于混合纳米天线结构外部 HOAM 与 FPP 模式的相消干涉。这为在有限尺寸的纳米光子器件中实现超腔模式提供了首批实用方案之一。

最后，我们对一种新型结构进行了建模：将 WS_2 纳米天线置于厚度为 5 nm、附着在金基底上的六方氮化硼层之上。利用该器件，我们通过数值计算实现了强烈的电场增强，在纳米天线与金之间的六方氮化硼间隔层中，增强倍数最高可达 2647。基于此，我们计算得出，对于六方氮化硼中垂直于基底极化的偶极子，Purcell 增强最高可达 713。这种构型有望增强耦合的单光子发射体（SPE）的发射，或增强置于间隙中的过渡金属硫族化合物异质结构内的层间激子和莫尔激子 [27, 28] 。

结果

样品制备 我们使用成熟的纳米加工技术（见方法部分）在金基底上实现了WS_2 纳米天线。我们首先通过两种方法制备金薄膜基底：在带有钛或镍黏附层的硅基底上电子束蒸发金，以及模板剥离 [29]。我们分别测量了低至1.2 nm和0.7 nm的均方根粗糙度值，然后将块体WS_2 [19]直接机械剥离到金上。每次剥离过程中都发现了不同厚度的薄片，使用原子力显微镜（AFM）进行测量，然后选择厚度与我们纳米天线制备模拟相匹配的薄片。随后在样品上旋涂正性光刻胶，使用电子束光刻（EBL）图案化半径从100到400 nm递增的圆形阵列。然后我们进行反应离子刻蚀（RIE）以去除多余的WS_2，留下纳米天线。我们使用带有SF_6 气体的各向同性刻蚀配方（压力和直流偏压详见方法部分）来实现具有六边形几何结构的纳米天线。等离子体中的氟自由基对WS_2 晶体扶手椅轴的刻蚀速度远快于锯齿轴，使相邻的刻蚀纳米结构晶面彼此成120° [6, 17, 30]。通过扫描电子显微镜（SEM）测量的纳米天线真实半径小于光刻胶图案中的半径，这是由于各向同性刻蚀过程略微减小了其横向尺寸。金基底对SF_6化学惰性。这意味着它充当天然刻蚀停止层，不像SiO_2, 会与WS_2, 一起被刻蚀，从而使纳米天线位于基底材料的小基座上。在这里，使用金消除了这个问题。图1(a)-(d)说明了制备过程，图1(e)显示了最终纳米天线的光学和SEM图像。

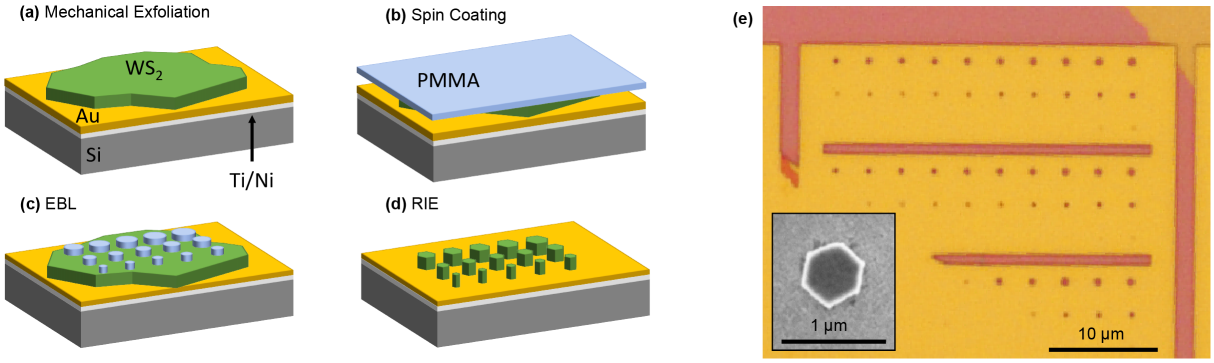

图 1：**WS_2 金基底上 WS 纳米天线的制备与成像。(a)-(d)** 金基底上 WS_2 纳米天线的标准纳米加工技术。材料厚度未按比例绘制。**(e)** 纳米天线按半径递增排列成每组 30 个的阵列的光学图像。较小的纳米天线不可见。插图为扫描电子显微镜图像，展示了纳米天线的六边形形状。

WS的暗场光谱$_2$ 金上的纳米天线 为了光学表征我们制备的样品，我们对金上的单个WS_2 纳米天线（单体）进行了暗场光谱测量。我们测量了三种不同高度的纳米天线（通过AFM测量为41、78、180 nm），每种高度有一系列半径，并在图2(a)-(c)中绘制了归一化散射强度。面板(d)-(f)显示了使用时域有限差分法对相同高度和半径范围模拟的散射截面，表现出良好的一致性。注意，面板(c)和(f)对应于间隙约为500 nm的双纳米天线（二聚体）。我们预计单体和二聚体之间的散射强度不会有显著变化，尤其是对于如此大的间隙尺寸 [6]。

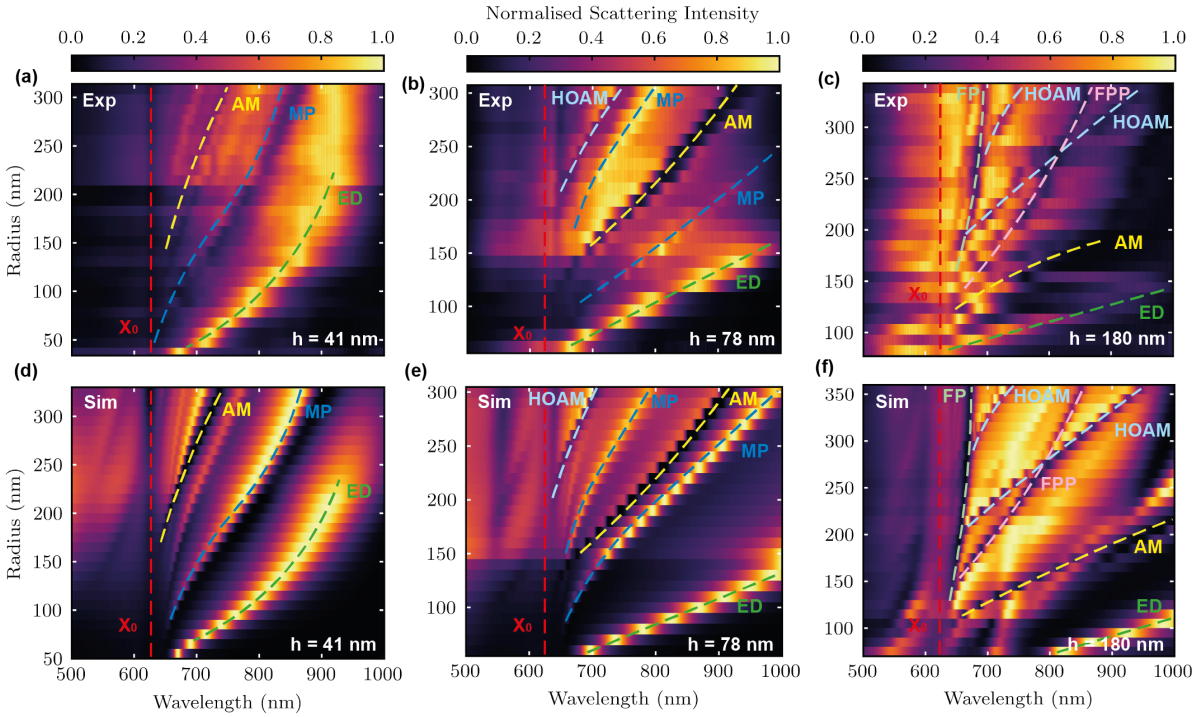

图 2：**WS_2 金基底上纳米天线的光学表征。(a)-(c)** 通过对金基底上高度分别为 41、78 和 180 nm 的纳米天线进行暗场光谱实验，获得的归一化散射截面。**(d)-(f)** 对与实验中相同几何结构的 WS_2 纳米天线进行模拟所得的归一化散射截面。左列和中列显示单个柱体（单体）的数据，右列则对应间距为 475 nm 的双柱体（二聚体）。ED 表示电偶极模式，AM 和 HOAM 分别表示无极子模式和高阶无极子模式。MP、FP 和 FPP 分别表示 Mie-等离子体模式、法布里-珀罗模式和法布里–珀罗等离激元模式。X_0 表示 WS_2 激子。

随着纳米天线高度增加，模式结构变得愈加复杂。在高度为 41 nm 的单体这一最简单的情形下（图 2(a) 和 (d)），我们观察到散射光谱中出现多个峰值和谷值，且它们随半径增大而红移。这些被称为米氏共振 [2], ，由纳米天线 WS_2 晶体内部的束缚电荷振荡引起。例如，电偶极模式会增强远场散射，如图 2 中标记为 ED 的峰所示。暗带可识别为无极子模式（AM），它是电偶极模式与磁环形偶极子模式 [31], 发生相消干涉的结果， [32]会抑制远场散射。波长为 625 nm 处的散射谷是由 WS_2 激子吸收造成的；与此前的报道一致，我们观察到该吸收与米氏模式之间存在避免交叉[3]。我们还将其中一种模式标记为 MP，即 Mie-等离子体模式，下一节将对此进行更详细的讨论。

我们提取了图 2(a) 中整个半径范围内，高度为 41 nm 的金基底上 WS_2 纳米天线在实验中的电偶极模式和 MP 模式的品质因数。我们对电偶极模式拟合了洛伦兹函数，并对 MP 模式拟合了法诺曲线，以计算各自的 Q 因子。我们提取到，半径为 48 nm 的纳米天线的电偶极模式的最大 Q 因子为 24 ± 0.6，半径为 125 nm 的纳米天线的 MP 模式的最大 Q 因子为 94 ± 5 。此外，我们将这些 Q 因子与此前实验测得的 SiO_2 基底上 WS_2纳米天线电偶极模式的 Q 因子进行了比较，其最大值为 5 ± 0.3 [21]。比较金基底上纳米天线的 MP 模式与 SiO_2 基底上纳米天线的电偶极模式时，我们观察到 Q 因子显著提高了 19 倍。

模拟结果进一步支持了这一行为。我们从图 2(d) 中计算得出，金基底上半径为 40 nm 的纳米天线的电偶极模式的最大 Q 因子为 61 ± 0.6，金基底上半径为 100 nm 的纳米天线的多极模式的最大 Q 因子为 137 ± 1.6。将这些数值与 SiO_2 基底上纳米天线的电偶极模式的 Q 因子（$Q = 4 \pm 0.1$ [21]）进行比较后，我们发现，在模拟中，多极模式的 Q 因子是全介电系统中电偶极模式的 34 倍。

当 $h = 78$ nm 时，与 $h = 41$ nm 相比，我们观察到电偶极模式变窄，且随着半径增大，红移更加明显。模拟和实验中均可见其他模式，例如 HOAM 和两个多极模式。当高度增加到 180 nm 时，模式结构变得复杂得多。我们不仅观察到无极子模式和高阶无极子模式，而且与此前对各种介电纳米结构的模拟 [26, 33–36] 和实验 [37–40] 类似，还观察到一种法布里-珀罗（FP）模式，该模式被限制在纳米天线底部的过渡金属硫族化合物-金界面与顶部的过渡金属硫族化合物-空气界面之间。正如垂直传播的 FP 模式所预期的那样，该模式随半径变化而发生的位移很小。补充说明 1 提供了更严格的定义，并将其与法布里–珀罗模式理论进行比较。我们还观察到 HOAM 与 FPP 模式之间的反交叉 [40]，这一现象见于图 2(c) 和 (f) 所示二聚体纳米天线的实验和模拟散射光谱中。该现象出现在半径为 270 至 280 nm、波长约为 800 nm 的纳米天线中，并将在本研究后文中作更详细的探讨。

Mie-等离子体模式表征 WS_2 纳米天线在真空中和低折射率基底上的模式结构，与金基底上的情况相比有很大不同（关于基底的比较，请参见补充说明2）。为了进一步了解在WS_2-金基底纳米天线中观察到的模式的起源，

我们模拟了一个固定几何结构的单体，并改变其与金基底之间的距离。我们从20 nm开始，以1 nm为增量将纳米天线移向金基底，并计算散射截面，如图3(a)和(b)所示。单体的高度分别为41 nm和78 nm，半径分别为200 nm和290 nm，与实验研究及图2中报告的数值一致。为了表征纳米天线内的米氏共振，我们使用开源软件MENP [41]对散射光进行了严格的多极展开。通过这项分析，可以提取归因于各个米氏模式的部分散射截面，从而将这些模式对应到光谱中各自的峰和谷。该分析针对在真空中模拟的单体进行，因为展开需要均匀环境。

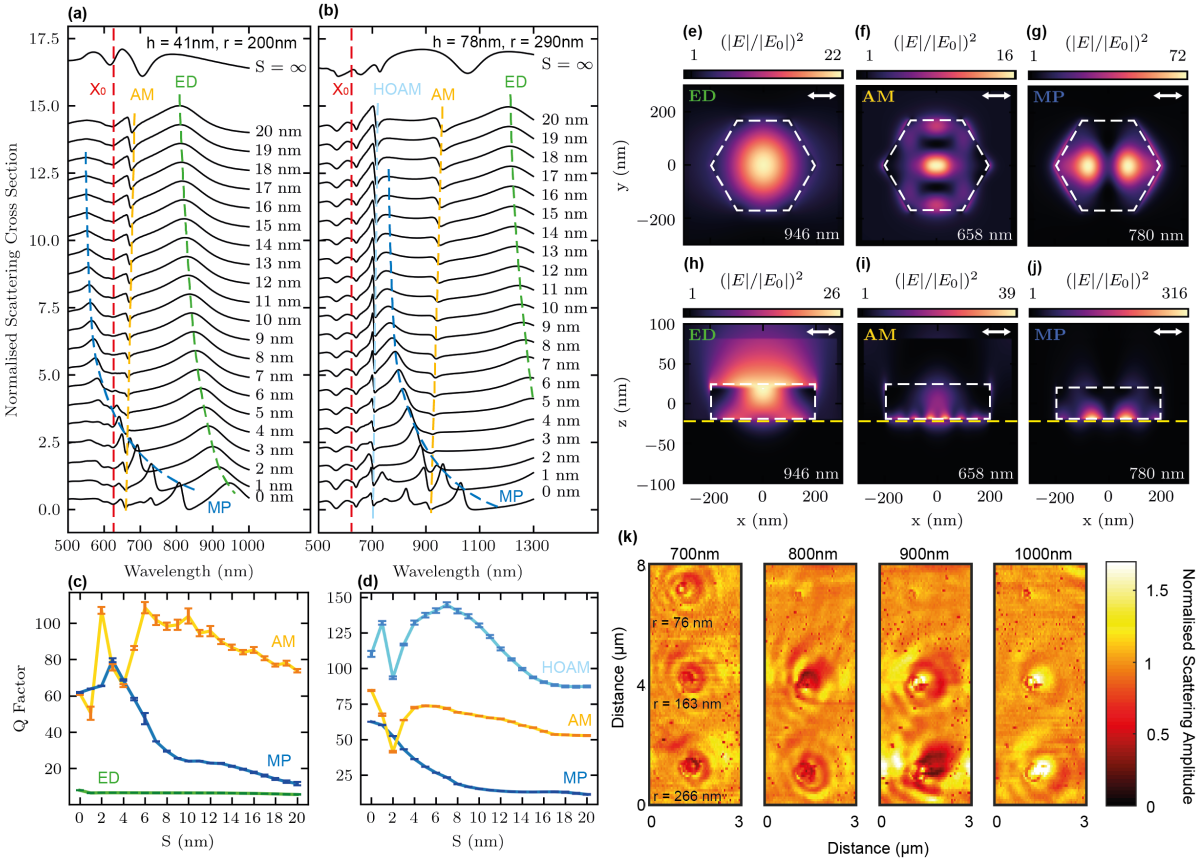

图3：**金基底上 WS_2 纳米天线中共振模式的表征。(a)，(b)** 模拟了 WS_2 纳米天线与金基底距离逐渐增大时的归一化散射截面 S。对应的几何参数分别为 h = 41 nm、r = 200 nm 和 h = 78 nm、r = 290 nm。X_0 对应 WS_2 激子，ED 对应电偶极模式，MP 对应 Mie-等离激元模式，AM 和 HOAM 分别对应无极子模式和高阶无极子模式。**(c)** 和**(d)** 展示了各模拟共振的 Q 因子随 S 的变化。AM、MP 和 HOAM 使用法诺曲线拟合，ED 模式使用洛伦兹线型拟合。误差棒表示拟合误差。**(e)-(j)** 高度为 41 nm、半径为 200 nm 的纳米天线在 S = 0 nm 时不同共振模式的电场分布。xy 视图（上图）和 xz 视图（下图）均展示了纳米天线在相应平面中间位置的截面。白色虚线表示纳米天线的边缘。右下角的数值表示入射波长。**(k)** 金基底上三个 WS_2 纳米天线在不同入射波长下的实验散射型扫描近场光学显微镜散射振幅数据，波长标注于各图上方。所有数据均以不受表面等离激元极化激元效应影响的金区域的散射振幅归一化。所有纳米天线的高度均为 41 nm，半径分别为 76 nm（上）、163 nm（中）和 266 nm（下），以供比较。

图3(a)和(b)中的绿色虚线跟踪了 S 从 20 nm 减小至 0 nm 时的电偶极模式。对于图3(a)中的纳米天线（h = 41 nm，r = 200 nm），峰值红移了 140 nm，线宽也变窄，因此品质因数从 6 提高到 8，如图3(c)所示。我们观察了图 3(h)中电偶极模式在xz平面内的电场分布，可以看到中央瓣向上突出并伸出纳米天线顶部，

随着金基底的引入，模体积比真空中的更大（见补充说明3）。因此，我们将共振红移归因于模体积增大。相反，AM 则发生蓝移。同样，考察图3(i)所示的无极点共振模体积，可以看到金基底使模式受到限域。与真空中的纳米天线相比，中央场极大值略微减少了向纳米天线外部及金中的延伸（见补充说明3），因此我们将轻微蓝移归因于这种限域。此外，当 S 减小至约 10 nm 时，光谱中出现了纯介电系统中未见的共振峰，我们将其称为 Mie-等离子体（MP） [42]。该峰比电偶极模式尖锐得多；对于 h = 41 nm 的纳米天线，当 S 从 = 4nm 变为 = 0 nm 时，该峰红移幅度更大，达到 159 nm（图3(a)）。在 h = 78 nm 的纳米天线中，MP 模式也呈现出这种行为。为便于观察，补充说明4展示了 MP 模式演化的放大图，其中还可见其与 AM 和激子的避免交叉。该模式在xz平面内的电场分布高度局域于图 3(j)所示的金-TMD界面，这表明等离激元有所贡献，因此将其命名为 Mie-等离子体模式。电偶极模式和 AM 模式也可观察到这一现象，但界面处的相对电场增强要弱得多。有趣的是，MP 模式在光谱中呈现法诺线型，这表明离散态与连续态[24, 25, 43]之间存在干涉。AM 和 HOAM 也都呈现法诺线型；而对于位于介电基底上或被真空包围的纳米天线，其线型则可用洛伦兹函数描述 [44]。补充说明2展示了相同几何结构的金基底上 WS_2 纳米天线、SiO_2 纳米天线及真空中纳米天线的散射截面，进一步证实不同基底会产生不同线型；这表明金基底引入了连续态（即等离激元）与离散态（纳米天线内部的米氏模式）之间的干涉。此外，在 SiO_2 基底上的纳米天线或真空中的情形下均未观察到 MP 模式，先前的实验或数值暗场研究 [3, 4, 6]中也未发现该模式。这些证据进一步支持：在我们的 TMD 纳米天线-金系统中，米氏模式和等离激元模式发生了杂化。

除图2中先前测得的 Q因子外，我们还注意到，在模拟中改变纳米天线与金之间的距离 S 时，AM 和 HOAM 的 Q因子甚至可以高于 MP 共振的 Q因子。如图3(c)和(d)所示。对于高度为 78 nm、半径为 290 nm 的纳米天线，MP 模式在 S = 0 nm 时达到最大品质因数 63 ± 0.1；而 AM 的最大 Q 值为 85 ± 0.4，这很可能归因于此类模式较强的横向约束。HOAM 的最大品质因数更高，为145 ± 1.7，出现在 S = 7 nm 时，这表明其模式限域更强。Q因子的低谷对应于散射光谱中不同模式相交时的 S 值，因此可能受到干涉效应的影响。虽然在图 3(c) 中，引入金基底后电偶极模式的 Q因子仅略有增加，但我们从图 3(h) 的电场分布中观察到，该模式向基底局域化。这表明电偶极模式也会与金中的等离激元发生杂化，但程度不及 MP 模式。

为进一步表征纳米天线并验证其与等离激元的模式杂化，我们对金基底上高度为41 nm的WS_2 纳米天线阵列进行了散射型扫描近场光学显微镜成像，波长范围为700–1000 nm。散射型扫描近场光学显微镜通过照明的原子力显微镜探针对样品的近场响应进行探测，并利用干涉测量技术解析探针-样品相互作用所散射光的振幅和相位。

区域。随后可如图3(k)所示，将探针沿样品扫描，记录每个位置处探针-样品相互作用产生的近场散射振幅，可见纳米天线周围形成了波纹。这些波纹是针尖照明源与金上的表面等离激元极化激元（SPPs），或与样品特征结构散射光相互干涉的结果 [12, 45–52]。当探针在样品上移动时，对散射型扫描近场光学显微镜信号的贡献会发生相长或相消干涉。这会使散射光的振幅呈现明暗相间的条纹图样，表现为波纹。这种现象有多种产生机制，各自形成不同的干涉图样 [45–47, 52]。然而，对于金基底上的纳米天线，有两种主要机制。第一种是尖端激发的表面等离激元极化激元。当入射光到达尖端时，会强烈局域在针尖尖端。强烈的近场增强，加上光子和等离激元波矢的匹配，会激发探针激发的等离激元，使其沿径向向金中传播 [53]。这些表面等离激元极化激元随后可被附近结构反射，并与返回探针处的入射光发生干涉。第二种机制是纳米天线在受到照明时激发的表面等离激元极化激元 [53], ，它们传播至探针并与入射光发生干涉。图3(k)中的波纹图样体现了这两种效应的共同作用。

随着入射波长变化，所产生的表面等离激元极化激元的波长会依据其色散关系发生变化，从而改变波纹强度极大值之间的距离。从图3(k)可以看出，波纹极大值之间的距离随激发激光波长增加而增大，但不随纳米天线半径变化。在补充说明5中整列纳米天线的散射型扫描近场光学显微镜图像也呈现出这一现象。相比之下，波纹的振幅与纳米天线尺寸和入射波长密切相关。将图3(k)中的散射型扫描近场光学显微镜数据与图2(a)中相同纳米天线的暗场光谱进行比较（直接对比见补充说明5），可以发现表面等离激元极化激元波纹的振幅与相应暗场光谱中的峰值相关。在较短波长下，例如700 nm，最小纳米天线（r = 76 nm）产生的波纹振幅最高，其次是半径为 r = 163 nm 的纳米天线。这与我们的实验暗场数据一致：半径为 r = 76nm 的纳米天线在约700 nm处呈现出明显的共振电偶极模式，而半径为 r = 163 nm 的纳米天线则呈现 MP 模式（见补充说明5）。当入射波长增至800 nm时，半径为 r = 76 nm 的纳米天线在散射型扫描近场光学显微镜图像中的共振减弱，而半径为 r = 163nm 的纳米天线则呈现出更强的表面等离激元极化激元干涉图样，我们将其归因于 MP 模式的激发。在900 nm照明下，半径为 r = 163 和266 nm的纳米天线均呈现出明显的表面等离激元极化激元波纹，这与暗场数据中电偶极模式的红移相一致（见补充说明5）。最后，在1000 nm照明波长下，所有纳米天线周围的表面等离激元极化激元干涉图样振幅都显著降低，这与暗场光谱中整体散射的低谷相对应（图2(a)）。这一观察表明，金基底上的范德华纳米天线既能将光散射至远场，也能将光耦合至可在近场探测的表面等离激元极化激元。通过激发多种米氏共振（例如纳米天线内部的电偶极模式和多极模式），还可以进一步增强此类表面等离激元极化激元，从而为米氏模式和等离激元模式之间的耦合提供进一步证据。

我们没有在远离纳米天线的金区域观察到表面等离激元极化激元波纹（见补充说明 6），因为在这种情况下，基底上没有可用于激发表面等离激元极化激元的结构。这里只有尖端激发的表面等离激元极化激元，它们从尖端径向向外传播，且没有可供其反射的边缘。因此，没有表面等离激元极化激元与

尖端处的入射光发生干涉，因此散射型扫描近场光学显微镜图像呈现均匀分布。在补充说明 6 中，我们还展示了样品的一个区域，其中金上残留着制造纳米天线过程中形成的光刻胶柱，高度为 25–35 nm。我们观察到光刻胶柱的光学响应可以忽略不计，这可归因于其较低的折射率 1.49 [54]。因此，我们预计尖端激发的等离激元大多会透过此类结构，只有少量反射回尖端。此外，照射到光刻胶柱上的光预计不会产生良好局域的光子共振，这与 WS_2 纳米天线不同。这一观察结果进一步支持了我们先前的说法，即只有高折射率的 WS_2 纳米天线才能通过强局域的米氏-等离激元杂化共振激发表面等离激元极化激元。

WS金基底纳米天线中的超腔模式$_2$ 除先前讨论的等离激元杂化外，通过调节金基底上 WS_2 纳米天线的半径，我们在实验和模拟中均观察到高度局域、非辐射超腔模式的特征。这是由于纳米天线外两种不同光子模发生相消干涉，从而形成极度局域的模式；理论上，其品质因数可增至无穷大 [26]。这与 Friedrich-Wintgen连续谱中的束缚态（BIC）[55], 类似，但对应的是纳米天线这类有限尺寸结构。我们从图2(c)中观察到 HOAM 与 FPP 模式之间的反交叉，这表明了该模式的存在。在图4(a)中，我们通过将这两种模式拟合到耦合振子模型，进一步深入研究了这一行为。

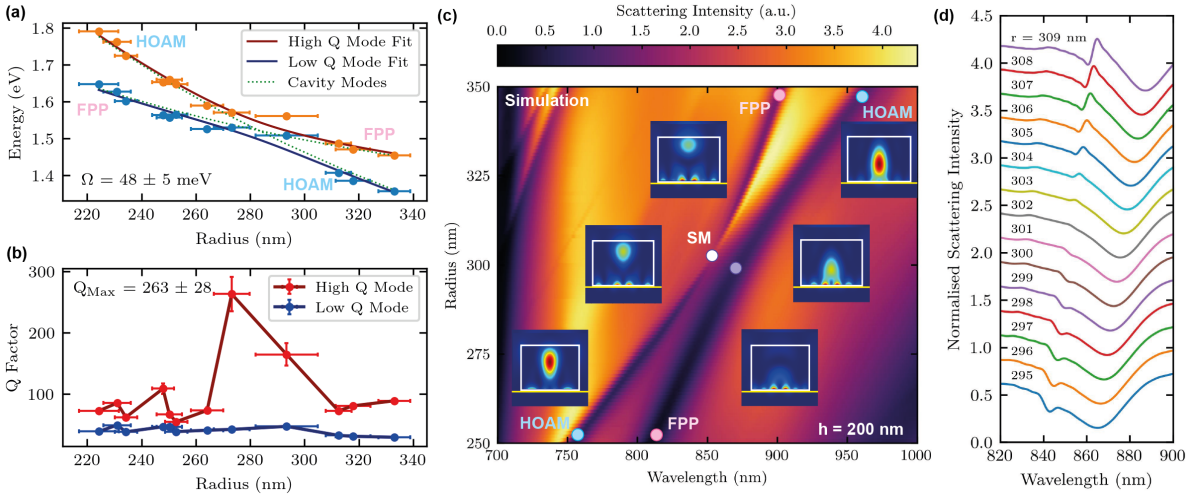

图4：**WS二聚体纳米天线超腔模式表征$_2$，高度为180 nm、间距为475 nm，位于金基底上。(a)** 实验测得的反交叉 HOAM 和 FPP 模式峰中心位置，并以耦合振子模型拟合，得到最小能量劈裂为 48 ± 5 meV。误差棒表示纳米天线半径测量值的不确定性。**(b)** 两种模式的品质因数随半径的变化。误差棒表示半径测量值的不确定性以及拟合误差。品质因数由各峰的中心波长除以其相应的半峰全宽计算得到。**(c)** 金基底上高度为200 nm的 WS_2 二聚体在不同半径下的模拟散射光谱，半径每次递增1 nm。粉色和蓝色圆圈分别表示 FPP 模式和 HOAM。中央白色圆圈标示高品质因数超腔模式（SM）的位置，紫色圆圈对应低品质因数有损模。其余插图显示了散射光谱中对应圆圈所示位置处，单个纳米天线中心沿xz平面的电场分布。白框标出纳米天线的边缘，黄色线表示金基底的位置。**(d)**不同半径下**(c)** 中归一化模拟散射光谱的瀑布图，显示当纳米天线半径对应于两种模式之间最小波长劈裂（r = 302 nm）时，高品质因数模式受到抑制。

首先，我们使用双 Fano 公式拟合 HOAM 和 FPP 峰，以考虑各个模式与等离激元的杂化，详情见补充说明7。随后，我们提取峰中心位置，并按照图4(a)所示，以纳米天线半径为横轴、能量为纵轴绘制数据。误差棒表示

每个纳米天线半径的测量不确定性，其中 r = 293 nm 处的一个数据点误差尤为显著。我们将这一不确定性归因于该纳米天线的制造缺陷：扫描电子显微镜成像显示，与其他纳米天线相比，它的六边形横截面更不规则，因此半径的测定可靠性较低。拟合得到的峰能量误差可以忽略不计。随后，我们将峰中心位置拟合到耦合振子模型中，得到上、下能量分支，分别以红线和蓝线表示。我们将它们分别称为高、低品质因数模式。绿色虚线表示未耦合的 HOAM 和 FPP 模式，以供参考。通过拟合，我们得到最小能量劈裂为 48 ± 5 meV。该值大于未耦合模式的半线宽之和（34 ± 1 meV），因此确认存在强模耦合 [36]。

此外，我们计算了每个峰的品质因数，并在图4(b)中绘制了其随纳米天线半径的变化。低品质因数模式基本保持不变，而高品质因数模式在半径为273 nm时显著增大。该半径对应于图4(a)中最接近反交叉的位置。我们观察到最大品质因数为263 ± 28；比本研究前文报道的电偶极模式高一个数量级。品质因数的急剧增加以及强模耦合的出现，都是超腔模式的特征。我们预计，通过制造半径调整精度达到1 nm、优化程度更高的结构，可获得更高的品质因数；这与补充说明7中详述的仿真结果一致。

为了更好地理解反交叉附近的模式行为，我们对高度为200 nm、位于金上的WS_2 纳米天线进行了FDTD仿真，研究半径为250至350 nm的结构，并采用更精细的1 nm半径步长，如图4(c)所示。选择更大的高度是为了使反交叉红移，从而避开散射光谱中的其他模式，便于拟合。仿真光谱清晰地再现了反交叉现象，我们提取出的能量劈裂为 37.5 ± 0.3 meV（见补充说明7），与实验观察结果一致。我们还模拟了图4(c)中彩色圆圈标记位置处纳米天线内的电场分布。在远离反交叉的位置，FPP 模式在xz平面内呈现出明显的极大值和极小值，这符合垂直限制在纳米天线内的法布里–珀罗模式的预期[36]。不过，我们也观察到该模式与金-WS_2 边界处等离激元模式的杂化，类似于本研究前文所述的多极模式。此外，在模拟和实验中，我们都没有在SiO_2 基底上的WS_2 纳米天线中观察到该模式 [21]。因此，我们将这一共振归因于混合法布里-珀罗-等离激元模式，其形成源于WS_2-金界面的反射以及该界面处的表面等离激元极化激元。对于较小半径，FPP 模式主要呈现等离激元特征，电场极大值位于纳米天线底部。相比之下，HOAM电场分布高度局域于纳米天线中心，与等离激元的杂化很弱。随着半径增大，FPP 模式的电场分布与HOAM的电场分布发生杂化，形成标记为SM的超腔模式。继续增大纳米天线半径后，HOAM恢复到与反交叉前相似的电场分布，其中心电场极大值局域在更靠近金界面的位置。然而，FPP 模式的电场极大值则向纳米天线顶部移动，同时底部仍保留其特征性的等离激元电场分布。

我们进一步研究了调节纳米天线半径时高品质因数模式的抑制现象。图4(d)展示了图4(c)中半径接近反交叉时对应的各条模拟散射光谱。尽管

高波长处的低品质因数模式基本保持不变，但在半径为302 nm时，低波长处的高品质因数模式几乎不可见。这种散射抑制对应于 HOAM 与 FPP 模式近乎完全发生相消干涉的情形，从而在纳米天线内部形成高度局域的共振。因此，我们的模拟进一步为实验中观察到的混合 WS_2-金纳米天线中的超腔模式提供了证据。

WS 层之间的电场局域$_2$ 纳米天线与金图3(j)所示的 TMD-金属界面处强烈的电场局域促使我们进一步研究该位置发射体的 Purcell 增强。我们模拟了图 5(a)所示、位于厚度为 5 nm 的六方氮化硼层内的电场分布，该层夹在 WS_2纳米天线与金基底之间。选择六方氮化硼是因为它在可见光波长范围内具有透明性 [56], 、折射率较低（2. 2 [57], ），且含有单光子发射缺陷，这些缺陷可在约 550–850 nm 的不同波长处辐射 [58–61]。图 5(b) 和 (c) 展示了纳米天线高度为 60 nm、半径为 210 nm 时的结果。我们针对 hBN 单光子发射体此前报道的波长范围，对几何结构进行了优化，以使六方氮化硼层内的珀塞尔因子达到最大。计算得出，在波长为 773 nm（MP 模式）时，六方氮化硼间隔层内的最大电场增强为 2647；这比电偶极模式下纳米天线内的最大电场高两个数量级（图3(h)），也比直接置于金基底上的纳米天线内部 MP 模式的电场高一个数量级（图 3(j)）。基于这些计算，我们对置于六方氮化硼内、模拟单光子发射体的偶极发射体进行了珀塞尔因子的空间映射（见图 5(a)）。映射结果如图 5(e) 和 (f) 所示，其中偶极子分别垂直于基底（沿 z 方向）和与基底平行（沿 x 方向）取向。

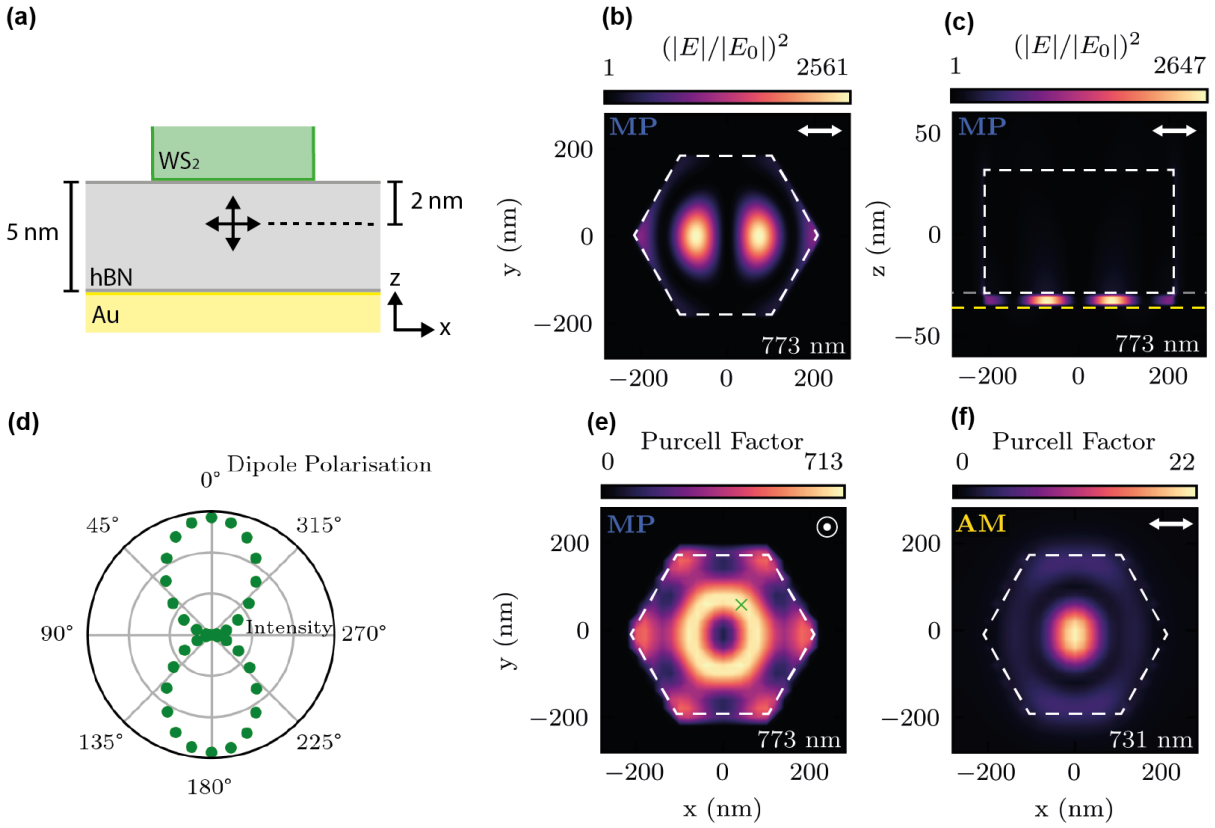

图5：**模拟六方氮化硼层中的电场和珀塞尔因子分布，该层位于 WS_2 纳米天线与金基底之间。(a)** 六方氮化硼间隔层示意图，显示用于模拟珀塞尔因子的偶极子所在的 z 位置。交叉箭头表示所考虑的两种偏振方向。纳米天线高度为 60 nm，半径为 210 nm。**(b)**、**(c)** 分别表示在 xy平面内以及穿过纳米天线中心的 xz平面内，以 773 nm 平面波照射时纳米天线-基底间隙中的电场分布。白色虚线表示纳米天线的边缘，黄色表示金-六方氮化硼界面，灰色表示六方氮化硼的顶面。**(d)** 偶极子位于**(e)**中绿色十字标记的位置时，其总发射强度在 550–850 nm 波长范围内随偏振方向的变化。偶极子在 xz平面内旋转了 360°。**(e)**、**(f)** 分别为偶极子垂直于基底（沿 z 方向偏振）和平行于基底（沿 x 方向偏振）时，在与**(b)**相同平面内的最大珀塞尔因子分布图。偶极子的波长分别设为 773 nm 和 731 nm，对应 MP 模式和 AM 模式。

根据图 5(e)，我们计算得出，当偶极子偏振方向垂直于基底、发射波长为 773 nm（MP 模式）时，珀塞尔因子的最大值为 713，比此前报道的相同间隙尺寸下金基底上方硅纳米天线的结果高两倍以上 [15]。与图 5(f) 中偏振方向平行于基底的偶极子相比，其最大珀塞尔因子低得多，仅为 22，出现在 731 nm（AM）处。如图5(d)所示，我们对偶极子在 550–850 nm 波长范围内、不同偏振方向下向所有方向发射的总强度进行了积分。偶极子位于图 5(e) 中珀塞尔因子最大值所在的位置（以绿色十字标记），其偏振方向在 xz平面内旋转。我们观察到，纳米天线-基底间隙内的偶极子取向对发射强度有显著影响，这表明偶极子垂直取向的结构有望实现特定的增强。例如，异质和同质双层过渡金属硫族化合物中可观察到层间激子，其电子和空穴分别位于相邻层中 [62]。因此，我们预测，将过渡金属硫族化合物异质结构置于纳米天线-金间隙中，可使激子发射增强达到类似结构中层内激子的 32 倍；在后者中，激子位于与基底平行的平面内。

结论

在本研究中，我们制备并表征了一种由 WS_2

纳米天线构成的介质-金属混合纳米光子系统，该系统位于金基底上。由于 TMD 薄膜与基底之间存在范德华力，这类基于TMD的纳米天线可以利用标准纳米加工技术轻松制备于金属上；此外，金还可在反应离子刻蚀过程中充当天然的刻蚀停止层。随后，我们通过模拟研究了结构中的共振Mie模式，并在实验暗场光谱中观察到极佳的一致性。我们证明，只需改变纳米天线半径，即可将所识别的所有共振模式调谐至不同波长；而增加纳米天线高度则可引入额外的高阶模式。在金基底上的 WS_2 纳米天线中观察到了法诺共振，而在 SiO_2, 上的相同结构中并未观察到该现象。通过模拟和实验，我们将其确定为米氏模式与表面等离激元极化激元的杂化。这些模式与远场耦合，如暗场光谱所测得的结果所示，并在散射式扫描近场光学显微成像中产生可在近场探测到的表面等离激元极化激元。随着纳米天线半径增大，表面等离激元极化激元的强度呈现共振行为，并随模式红移而变化，进一步支持了我们关于杂化 Mie-等离子体模式的论断。这类杂化Fano共振还具有较高的 Q因子；在实验中，其 Q因子几乎是置于低折射率 SiO_2 基底上的纳米天线中米氏模式的 20 倍 [21]„ 从而能够应用于开关和传感 [22–25]。

我们进一步通过实验和模拟，证明了金基底上 WS_2 纳米天线中的 Mie 模式与法布里–珀罗等离激元模式之间存在强模耦合。我们计算得出的最小能量劈裂为 48 ± 5 meV。通过仔细调节纳米天线的几何结构，我们在反交叉点发现了准BIC超腔模式的特征，包括实验品质因数显著提升至 260 以上，以及模拟中散射几乎完全受到抑制。据我们所知，使用金基底为在实验中实现范德华纳米天线的超腔模式提供了首批切实可行的方法之一。

最后，我们在模拟中观察到，在所研究的 WS_2 纳米天线与金基底之间的纳米尺度间隙中，电场增强超过 2600。对于填充了 5 nm 厚六方氮化硼的间隙，我们计算得出，位于六方氮化硼中且偏振方向垂直于基底的发射体，其珀塞尔因子为 713；这一数值是偏振方向平行于基底时的 32 倍。这为增强置于这一纳米尺度间隙中的发射体提供了机会，例如过渡金属硫族化合物中的单光子发射体 [63–74] 和六方氮化硼中的单光子发射体 [58–61], ，以及 TMD双层 [62]和范德华异质结构 [75–80]中的层间激子。

我们通过实验表明，等离激元和介电机制的优点可以兼得，而且只需改变纳米天线几何形状，就能轻松调节米氏-等离激元共振以满足任何特定应用的需求，从而获得此前在纯介电纳米天线中从未观察到的高品质因数。我们相信，混合纳米天线系统将为未来的纳米光子结构和谐振器开辟更多途径，并可立即应用于范德华异质结构中的单光子发射体和光致发光增强。将该系统与波导、光子晶体和光栅等其他光子器件耦合，可带来近乎无限的组合方式，使过渡金属硫族化合物与金属能够协同用于制造具有强场限域和低损耗的纳米光学电路。

方法

FDTD 仿真为了预测纳米天线内部及周围光的行为，我们使用 Ansys 的 Lumerical 软件包进行 FDTD仿真。

散射模拟图 2 中的散射截面是通过模拟半无限金基底上不同几何结构的 WS_2 纳米天线计算得出的。为尽可能贴近暗场实验，我们使用了总场散射场（TFSF）平面波源，该光源会从其作用区域之外扣除入射波。这样，位于纳米天线上方的功率监测器测得的就只有远场中的散射光。入射波被设定为沿垂直于基底的方向传播，并沿 x 轴偏振。$x = 0$ 面和 $y = 0$ 面分别采用反对称和对称边界条件，以减少模拟所需的时间和内存。

场分布为直观呈现纳米天线内部及周围的电场和磁场分布，我们使用了频域场与功率监测器，在选定频率下执行离散傅里叶变换（DFT）。在散射模拟中，监测器被设置为穿过纳米天线中部、沿不同平面分布的二维表面，并返回相对于入射真空波归一化的电场和磁场强度。

珀塞尔因子计算我们将一个偶极发射体置于 WS_2 纳米天线与金基底之间的六方氮化硼间隔层中，以模拟单光子发射体（SPE）。波长范围设为 550 - 850 nm，偶极子在 xz平面内旋转，以考察不同的偏振方向。随后，将系统的总积分功率除以同一偶极子在真空中的总积分功率，计算珀塞尔因子。

基底制备金基底采用以下两种方法制备：模板剥离（用于图 2(a) 所测量的结构）；或在硅晶圆上电子束蒸发约 150 nm 厚、纯度为 99.99% 的金层，硅晶圆上预先沉积了 10 nm 厚的钛层（用于图 2(b) 所测量的结构）或镍层（用于图 2(c) 所测量的结构），以增强金层的附着力。这些基底的均方根粗糙度分别低至 0.7 nm、1.2 nm 和 2.5 nm。

TMD剥离 HQ-graphene 提供的块体 WS_2 晶体经手工机械剥离，转移至金基底上。将温度设为 105 °C，以确保薄片附着良好。记录了厚度均匀、尺寸为 $50\ \mu$m 及以上的薄片，用于后续图案化。

电子束光刻 首先将正性光刻胶（ARP-9，AllResist GmbH）以 3500 rpm 的转速旋涂到样品上 60 s，随后在 180°C 下加热 2 分钟。然后使用 Raith GmbH Voyager 系统进行电子束光刻，加速电压为 50 kV，束流为 560 pA。图案由光刻胶上的不同半径圆形阵列构成，覆盖多个 WS_2 薄片。

反应离子刻蚀 采用化学刻蚀工艺制备六边形纳米天线几何结构。使用 SF_6 气体，在 0.13 mbar 压力和 50V 直流偏压下进行等离子体刻蚀，刻蚀时间为 40 s。块体 WS_2 的扶手椅型晶轴比锯齿型晶轴刻蚀得更快，因此两者之间形成 120° 夹角，进而形成六边形柱 [30]。金基底的刻蚀速度远低于 WS_2, ，因此可作为天然刻蚀停止层，使纳米天线留在平坦的金表面上，而非基底材料的基座上。随后使用温热的 1165 光刻胶去除剂去除残留光刻胶，再依次浸泡于丙酮和异丙醇中，每次 5 min。最后进行 20 min 紫外臭氧处理，以去除任何残留有机碎屑。

暗场光谱使用配备圆形光束挡板的 Nikon LV150N 显微镜进行暗场光谱测量：照射样品，同时滤除反射光，仅收集散射光。

光束挡板位于照明光源（钨卤素灯）与暗场物镜（50 倍，数值孔径为 0.8）之间。所用光束挡板的直径略小于光束直径，因此挡掉了中央部分，只有外环光经环形镜反射后进入物镜。样品受到大倾角照明，光因此从样品散射出来。随后，物镜收集垂直方向散射的光，使其穿过环形镜上的空穴，射向光纤耦合器前的 50 μm 针孔。针孔确保只有相对于法线方向小角度散射的光能够传播到多模光纤直径为 100 μm 的纤芯中。另一个光纤耦合器随后将光束送入自由空间光路，沿光路设置的两个消色差透镜用于尽量减少光束偏移。最后，使用一个消色差透镜将光束聚焦到 Princeton Instruments 光谱仪的狭缝上，在此处波长分量被分离并由电荷耦合器件检测。

s-SNOM 采用商用 neaspec 模块化散射型扫描近场光学显微系统，配合 Coherent Chameleon Compact OPO-Vis 脉冲激光器，对样品在纳米尺度上的近场散射进行了探测。该技术将尖锐的原子力显微镜探针与入射辐射结合，在探针-样品界面处强烈限制近场，并测量散射光的相位和振幅。使用 s-SNOM 系统中的抛物面镜，将激光对准镀有铂铱合金（PtIr）的悬臂探针（NanoWorld Arrow NCPt），其曲率半径小于 25 nm。光束与探针成 60° 角，并平行于入射面偏振（p偏振），以最大化沿探针轴方向的分量。探针尖端处产生了强烈受限的近场，随后该近场与下方扫描经过的样品相互作用。针对光斑尺寸（数微米）远大于探针尺寸所产生的背景散射信号，采用 neaspec 专利的伪外差干涉系统予以抑制。通过振荡镜引入相位调制的参考光束与散射信号在探测器处发生干涉，由此形成频率为 $n\Omega + m\Delta$ 的边带，其中 Ω 为探针的轻敲频率，而 Δ 为参考镜的调制频率。随后，探测器锁定在轻敲频率及边带频率的谐波上，以消除背景信号。通过伪外差检测，同时测量了散射光的振幅和相位。

本报告中的散射型扫描近场光学显微镜测量采用了 Ω 的 3rd （图3(k)和补充说明5）或 4th （补充说明 6）谐波以及第一侧带进行解调，以尽可能降低背景，同时仍保持良好的信噪比。

致谢

S.A.R.、P.G.Z.、X.H.、A.J.K.、S.N.、D.H. 和 A.I.T. 感谢欧洲石墨烯旗舰项目在资助协议编号 881603 项下提供的支持，以及英国工程与自然科学研究委员会的资助 EP/S030751/1、EP/V006975/1、EP/V006975/1 和 EP/V026496/1。Yadong Wang 和 A.I.T. 感谢英国研究与创新署研究员奖学金 TWIST-NANOSPEC EP/X02153X/1 的支持。Yue Wang 感谢英国皇家工程院授予的研究员奖学金（TOAST）。S.A.R.、P.G.Z.、S.N. 和 D.H. 感谢谢菲尔德大学信息技术服务部门提供高性能计算服务。

作者贡献

Yue Wang 制备了金薄膜基底。S.A.R. 将块体 WS_2 剥离到金基底上，并使用原子力显微镜测定薄片厚度。Yue Wang 和 X.H. 将 WS_2 薄片图案化并刻蚀成六边形

纳米天线，采用电子束光刻和反应离子刻蚀。S.A.R. 和 Yadong Wang 使用扫描电子显微镜表征了纳米天线半径。S.A.R. 和 P.G.Z. 测量了所有纳米天线的暗场光谱并分析了结果。S.A.R. 和 A.J.K. 使用散射式扫描近场光学显微成像在不同波长下表征了纳米天线。S.A.R.、P.G.Z.、S.N. 和 D.H. 均参与了散射光谱、电场分布和珀塞尔因子的 FDTD仿真。S.A.R.、P.G.Z. 和 A.I.T. 撰写了手稿。A.I.T. 管理了整个项目。

参考文献

[1] Mak, K. F. & Shan, J. 二维半导体过渡金属二硫属化物的光子学与光电子学。*NaturePhotonics* **10**, 216–226（2016年）。

[2] Mie, G. 浑浊介质光学研究，特别是胶态金属溶液。*Annalen der Physik* **330**, 377–445（1908年）。

[3] Verre, R. 等。 过渡金属二硫属化物纳米盘作为高折射率介质米氏纳米谐振器。*NatureNanotechnology* **14**,679–683（2019年）。

[4] Green, T. D. 等。 高折射率过渡金属二硫属化物米氏纳米谐振器中的光学材料各向异性。*Optica* **7**, 680–686（2020年）。

[5] Busschaert, S. 等。 过渡金属二硫属化物谐振器用于增强二次谐波信号。*ACS Photonics* **7**, 2482–2488（2020年）。

[6] Zotev, P. G. 等人 用于定制光与物质相互作用的过渡金属二硫属化物二聚体纳米天线。*ACS Nano* **16**, 6493–6505(2022年).

[7] Oulton, R. F., Sorger, V. J., Genov, D., Pile, D. & Zhang, X. 一种用于亚波长限制和长距离传播的混合等离激元波导。 *Nature Photonics* **2**, 496–500 (2008年).

[8] Kleemann, M.-E. 等人 室温下WSe_2 在超紧凑等离激元纳米腔中的强耦合。*Nature Communications* **8**, 1–7 (2017年).

[9] Liu, Y. 等人 二维过渡金属二硫属化物与等离激元-光学混合谐振器之间的强耦合。 *Physical Review B* **104**,205118 (2021年).

[10] Shibanuma, T., Grinblat, G., Albella, P. & Maier, S. A. 金属–介质混合纳米天线的高效三次谐波产生。*NanoLetters* **17**，2647–2651（2017年）。

[11] Sun, S. 等。通过金属–介质混合纳米天线增强随机取向发射体的定向荧光发射。*The Journal of Physical ChemistryC* **123**，21150–21160（2019年）。

[12] Yang, Y., Miller, O. D., Christensen, T., Joannopoulos, J. D. &Soljacic, M. 低损耗等离激元介电纳米谐振器。*NanoLetters* **17**, 3238–3245 (2017年)。

[13] Shen, S. 等. 在与介质-金属纳米谐振器耦合的 WSe_2 单层中，将磁性米氏-激子相互作用从中间耦合区调节至强耦合区。Physical Review B 105, 155403 (2022年)。[14] Xu, L. 等. 通过镜面增强的环面偶极子谐振器提升三次谐波产生。Light: Science & Applications 7, 1–8 (2018)。[15] Maimaiti, A., Patra, P. P., Jones, S., Antosiewicz, T. J. & Verre, R. 镜面上的低损耗混合高折射率介电粒子，实现极端光限制。Advanced Optical Materials 8, 1901820 (2020)。[16] Dmitriev, P. A. 等. 具有多重共振的混合介电-等离激元纳米天线，用于亚波长光子源。ACS Photonics 10, 582–594 (2023)。[17] Munkhbat, B., Küçüköz, B., Baranov, D. G., Antosiewicz, T. J. & Shegai, T. O. 用于先进纳米光子学的纳米结构过渡金属二硫属化物多层膜。预印本，https://arxiv.org/abs/2202.04898 (2022年)。[18] Munkhbat, B., Wróbel, P., Antosiewicz, T. J. & Shegai, T. O. 通过光谱椭偏法测得的若干多层过渡金属二硫属化物在 300–1700 nm 范围内的光学常数：高折射率、各向异性与双曲性。ACS Photonics 9, 2398–2407 (2022年)。[19] Novoselov, K. S. 等. 二维原子晶体。美国国家科学院院刊 102, 10451–10453 (2005)。[20] Decker, M., Pertsch, T. & Staude, I. 金属-介质混合纳米谐振器中的强耦合。英国皇家学会哲学汇刊A辑：数学、物理与工程科学 375, 20160312 (2017年)。[21] Zotev, P. G. 等. 用于纳米光子学应用的范德华材料。预印本，https://arxiv.org/ abs/2208.06249 (2022年)。[22] Lee, E., Seo, I. C., Lim, S. C., Jeong, H. Y. & Jun, Y. C. 中红外光谱区尖锐法诺共振的主动开关与调谐。《光学快报》24, 25684–25696 (2016年)。[23] Chen, J., Gan, F., Wang, Y. & Li, G. 基于法诺共振的等离激元传感与调制。Advanced Optical Materials 6, 1701152 (2018)。[24] Miroshnichenko, A. E., Flach, S. & Kivshar, Y. S. 纳米尺度结构中的法诺共振。Reviews of Modern Physics 82, 2257 (2010年)。[25] Limonov, M. F., Rybin, M. V., Poddubny, A. N. & Kivshar, Y. S. 光子学中的法诺共振。Nature Photonics 11, 543–554 (2017年)。[26] Rybin, M. V. 等. 亚波长介电谐振器中的高Q超腔模。Physical Review Letters 119, 243901 (2017年)。[27] Tran, K. 等. 范德华异质结构中莫尔激子的证据。Nature 567, 71–75 (2019年)。

[28] Huang, D., Choi, J., Shih, C.-K. & Li, X. 半导体莫尔超晶格中的激子。*Nature Nanotechnology***17**, 227–238（2022年）。[29] Ederth, T. 具有 0.4 纳米均方根粗糙度、适用于力测量的模板剥离金表面：在 20–100 纳米范围内测量卡西米尔力的应用。*Physical Review A***62**, 062104（2000年）。[30] Danielsen, D. R.等 通过各向异性刻蚀对二维材料进行超分辨率纳米光刻。《*ACS*应用材料与界面》**13**, 41886–41894（2021年）。[31] Afanasiev, G. & Stepanovsky, Y. P. 基本时变环面源的电磁场。《物理学杂志*A*：数学与一般物理》**28**, 4565（1995年）。[32] Miroshnichenko, A. E.等 介电纳米粒子中的非辐射反环形偶极模式。*Nature Communications***6**, 1–8（2015年）。[33] Bordo, V. 圆柱形纳米线中法布里-珀罗型电磁模式的模型。*Physical ReviewB* **81**, 035420（2010年）。[34] Landreman, P. E., Chalabi, H., Park, J. & Brongersma, M. L. 矩形介电纳米线光学谐振器中米氏共振的法布里-珀罗描述。《光学快报》**24**, 29760–29772（2016年）。

[35] Abujetas, D. R., Mandujano, M. A., Méndez, E. R. & Sánchez-Gil, J.A. 单根半导体纳米棒中的高对比度法诺共振。*ACS Photonics* **4**，1814–1821（2017年）。

[36] Bogdanov, A. A. 等连续态中的束缚态与强模耦合区间中的法诺共振。《先进光子学》**1**，016001（2019年）。

[37] Friedler, I.等固态单光子源：纳米线天线。《光学快报》**17**，2095–2110（2009年）。

[38] Sun, L., Ren, M.-L., Liu, W. & Agarwal, R. 解析半导体纳米结构波导和激光器中法布里-珀罗模式的宇称与阶次：重访杨氏干涉实验。*Nano Letters* **14**, 6564–6571 (2014).[39] Frolov, A. Y. *et al.* 全介质纳米天线中光学法布里-珀罗模式的近场映射。*Nano Letters***17**, 7629–7637 (2017).[40] Gromyko, D. A. *et al.* 金属-介质光栅中因表面等离激元垂直法布里-珀罗模式而观测到的拉曼散射强局域场增强。*Physical ReviewApplied* **17**, 024015 (2022).[41] Hinamoto, T. & Fujii, M. MENP：用于纳米光子学的多极展开开源MATLAB实现。*OSA Continuum* **4**, 1640–1648 (2021).[42] Liu, T., Xu, R., Yu, P., Wang, Z. & Takahara, J. 基于米氏共振的超结构中的多极与多模工程。*Nanophotonics* **9**, 1115–1137 (2020).

[43] Fano, U., Pupillo, G., Zannoni, A. & Clark, C. W. 稀有气体在电弧光谱极限处的吸收光谱。美国国家标准与技术研究院研究杂志 110, 583 (2005).[44] Svyakhovskiy, S. E., Ternovski, V. V. & Tribelsky, M. I. 无极子：其诞生、生命与消亡。《光学快报》 27, 23894–23904 (2019).[45] Huber, A., Ocelic, N. & Hillenbrand, R. 通过近场红外显微术研究表面声子极化激元的局域激发与干涉。Journal of Microscopy 229, 389–395 (2008).[46] Bozhevolnyi, S. I. 表面极化激元场的近场映射。Journal of Microscopy 202, 313–319 (2001).[47] Kaltenecker, K. J. et al. 单晶金片：表面等离激元的高质量平台。Nanophotonics 9, 509–522 (2020).[48] Yang, J., Hugonin, J.-P. & Lalanne, P. 辐射波与导波的近场到远场变换。ACS Photonics 3, 395–402 (2016).[49] Luan, Y. et al. 硫化锡中各向异性波导激子极化激元的成像。Nano Letters 22, 1497–1503 (2022).[50] Babicheva, V. E. et al. 少层MoS_2中的近场表面波。ACS Photonics 5, 2106–2112 (2018).[51] Zhang, C., Hugonin, J.-P., Greffet, J.-J. & Sauvan, C. 纳米贴片天线的表面等离激元发射：通过模式杂化实现增强。ACS Photonics 6, 2788–2796 (2019).[52] Walla, F. et al. 使用非旋转对称探针尖端的散射型扫描近场显微镜在金属薄膜上各向异性激发表面等离激元。Nanophotonics 7, 269–276 (2018).[53] Novotny, L. & Hecht, B. 《纳米光学原理》（剑桥大学出版社，剑桥，2012）。[54] Zhang, X., Qiu, J., Li, X., Zhao, J. & Liu, L. 聚合物在可见光和近红外波段的复折射率测量。Applied Optics 59, 2337–2344 (2020).[55] Friedrich, H. & Wintgen, D. 干涉共振与连续谱中的束缚态。Physical Review A 32, 3231 (1985).[56] Nguyen, D. C. et al. 透明基底上六方氮化硼的可见性。《纳米技术》 31, 195701 (2020).[57] Gorbachev, R. V. et al. 寻找单层氮化硼：光学与拉曼特征。《Small》 7, 465–468 (2011).[58] Tran, T. T. et al. 六方氮化硼中点缺陷的稳健多色单光子发射。ACS Nano 10, 7331–7338 (2016).[59] Jungwirth, N. R. et al. 六方氮化硼中单个缺陷波长可选零声子发射的温度依赖性。Nano Letters 16, 6052–6057 (2016).

[60] Castelletto, S., Inam, F. A., Sato, S.-i. & Boretti, A. 六方氮化硼：单光子源和自旋–光子界面新兴材料平台综述。《Beilstein纳米技术杂志》11, 740–769 (2020).[61] Sajid, A., Ford, M. J. & Reimers, J. R. 六方氮化硼中的单光子发射体：研究进展综述。《物理学进展报告》83, 044501 (2020).[62] Louca, C. et al. MoS_2 双层中偶极激子和极化激元的非线性相互作用。预印本，网址：https: //arxiv.org/abs/2204.00485 (2022).[63] Sortino, L. et al. 与介电纳米天线耦合的二维半导体中具有增强量子效率的明亮单光子发射体。Nature Communications 12, 1–9 (2021).[64] Kumar, S. et al. 单层WSe_2中局域激子的共振激光光谱学。Optica 3, 882–886 (2016).[65] Srivastava, A. et al. 单层WSe_2中的光学活性量子点。Nature Nanotechnology 10, 491–496 (2015).[66] Koperski, M. et al. 从剥离的WSe_2结构中获得的单光子发射体。Nature Nanotechnology 10, 503–506 (2015).[67] Kumar, S., Kaczmarczyk, A. & Gerardot, B. D. 应变诱导的单层和双层WSe_2中量子发射体的空间与光谱隔离。Nano Letters 15, 7567–7573 (2015).[68] Luo, Y. et al. 单层WSe_2 中位点可控量子发射器与等离激元纳米腔的确定性耦合。Nature Nanotechnology 13, 1137–1142 (2018).[69] Blauth, M. et al. 将离散量子发射器WSe_2 中的单光子耦合至光刻定义的等离激元狭缝波导。Nano Letters 18, 6812–6819 (2018).[70] Tripathi, L. N. et al. 金属表面上应变诱导的WSe_2 单层量子光源中的自发发射增强。ACS Photonics 5, 1919–1926 (2018).[71] He, Y.-M. et al. 单层半导体中的单量子发射器。Nature Nanotechnology 10, 497–502 (2015).[72] Tonndorf, P. et al. 原子级薄半导体中局域激子的单光子发射。Optica 2, 347–352 (2015).[73] Palacios-Berraquero, C. et al. 原子级薄半导体中的大规模量子发射器阵列。Nature Communications 8, 1–6 (2017).[74] Branny, A., Kumar, S., Proux, R. & Gerardot, B. D. 二维半导体中的确定性应变诱导量子发射器阵列。Nature Communications 8, 1–7 (2017).

[75] Hong, X. 等。 原子级薄MoS_2/WS_2 异质结构中的超快电荷转移。*NatureNanotechnology***9**, 682–686 (2014).

[76] Chen, H. 等人 原子级薄MoS_2/WS_2 异质结构中层间热激子的超快形成。*NatureCommunications* **7**, 1–8 (2016年).

[77] Miller, B. 等人 范德华异质结构中长寿命的直接和间接层间激子。*Nano Letters***17**, 5229–5237 (2017年).

[78] Kunstmann, J.等人 过渡金属二硫化物范德华异质结构中的动量空间间接层间激子。*Nature Physics* **14**, 801–805 (2018).

[79] Merkl, P. 等人 范德华异质结构中激子相之间的超快转变。*Nature Materials***18**, 691–696 (2019年).

[80] Kamban, H. C. 和 Pedersen, T. G. 范德华异质结构中的层间激子：结合能、斯塔克位移和场致解离。*Scientific Reports* **10**，1–10（2020年）。

arXiv:2304.02537v2 [cond-mat.mes-hall] 3 May 2023

补充信息：金基底上范德华纳米天线中的高 Q 混合米氏-等离激元共振

Sam A. Randerson[1]*、Panaiot G. Zotev[1], Xuerong Hu[1], Alexander J. Knight[1], Yadong Wang[1],Sharada Nagarkar[1], Dominic Hensman[1],Yue Wang[2],和 Alexander I. Tartakovskii[1]**

[1]谢菲尔德大学物理与天文学系，谢菲尔德，S3 7RH，英国[2]约克大学物理、工程与技术学院物理系，约克，YO10 5DD，英国

*sranderson1@sheffield.ac.uk **a.tartakovskii@sheffield.ac.uk

补充说明 1：

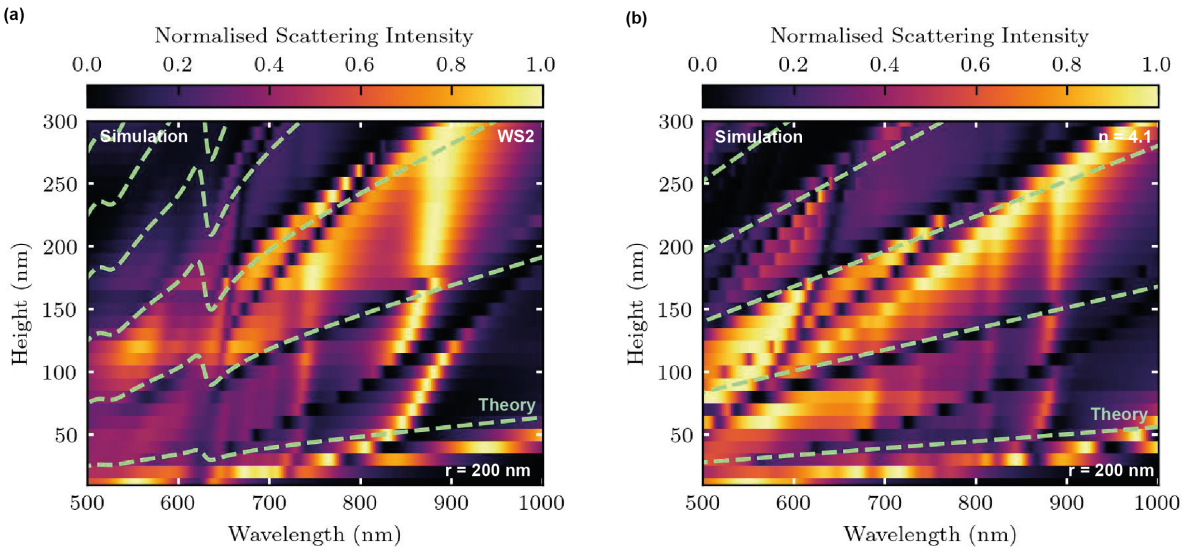

图 1：**比较了金基底上不同高度的六边形单体的法布里-珀罗模式理论与有限差分时域数据。（a），（b）**分别对应采用 WS_2, 的折射率和恒定折射率 4.1 的单体。所有半径均设为 200 nm。浅绿色虚线表示理论预测的法布里-珀罗模式位置。

为了在腔内产生法布里-珀罗（FP）共振，波在腔内的往返相位累积必须等于 2π 弧度的整数倍（m）。如果将我们的腔视为金基底上的介电纳米天线，则可得到以下方程

$$2\beta H + \phi_b + \phi_t = 2m\pi, \tag{1}$$

其中， β 是波在高度为 H 的纳米天线中的相位常数，$\phi_{b,\ t}$ 分别是波在纳米天线底部和顶部表面反射时的相位变化。我们假设金是理想电导体，因此在金-WS_2 边界处的反射相位变化为 π。相比之下， $\phi_t = 0$当波从外部（即真空）折射率低于纳米天线内部的边界反射时。相位常数随后可由下式计算

$$\beta = \omega \sqrt{\frac{\mu\epsilon}{2}\left(\sqrt{1+\left(\frac{\sigma}{\omega\epsilon}\right)^2}+1\right)} \tag{2}$$

其中， w 是真空角频率， μ 和 ϵ 分别是 WS_2 的绝对磁导率和介电常数，而 σ 是其电导率。然后在方程 1 中令 H ，即可预测总往返相位等于 $2m\pi$时的波长，如图 1 所示。

对于金基底上的 WS_2，和折射率恒定（n = 4.1）单体，我们的 FP 模式模型（图 1 中的绿色虚线）与 FDTD仿真中的暗模吻合良好。对于 n = 4.1 单体，散射光谱和理论均显示，FP模式随纳米天线高度增加而线性红移。图 1(a) 考虑 WS_2 时，625 nm 处的激子会使许多模式变得无法分辨。然而，在该波长之后，该模式也会随纳米天线高度增加而线性红移。理论对此预测准确：在激子吸收附近可见一个非对称特征，随后波长随纳米天线高度线性增加。值得注意的是，散射光谱中的模式相较于理论发生了蓝移。这很可能归因于纳米天线有限尺寸导致的 FP 模式横向约束。所用的 FP 模式模型考虑的是无限平面介质，因此未纳入纳米天线引起的边缘效应。

补充说明2：

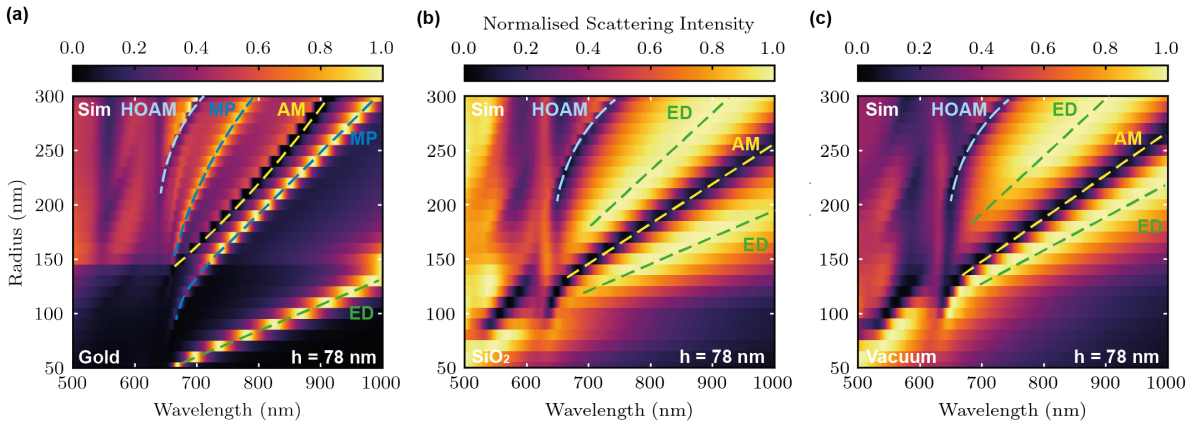

图2：**WS_2 高度为78 nm、采用不同基底的六边形单体纳米天线在模拟中的归一化散射强度。(a)、(b)和(c)** 分别对应金、SiO_2 和真空基底，半径范围相同。ED表示电偶极模式，MP表示Mie-等离激元模式，AM和HOAM分别表示环形偶极模式和高阶无极点模。

如图 2 所示，与置于 SiO_2 基底上的 WS_2 纳米天线相比，我们预期置于金基底上的 WS_2 纳米天线具有截然不同的模式结构。使用金时，亮模的线宽窄得多，表明其共振具有更高的品质因数。此外，使用金基底时，暗模（即无极子）呈现法诺线型；而在 SiO_2 基底和真空中则呈洛伦兹线型。法诺曲线表明离散态与连续态（米氏模式和等离激元）之间存在干涉；介电基底上未观察到这种线型，进一步印证了这一点。还值得注意的是，与 SiO_2 相比，使用金基底时 AM 模式和 HOAM 模式发生了蓝移。这表明模式受到限域，这很可能是由于金基底将大量光反射回纳米天线，而 SiO_2 基底则不会。相反，引入金基底后，电偶极模式发生红移，这可以用正文图 3(h) 所示的模体积增大来解释。图 2(c) 展示了真空中的 WS_2 纳米天线作为对比。由于可见光波长范围内真空的折射率较低，其散射强度与 SiO_2 基底情形非常相似 [1]。

补充说明3：

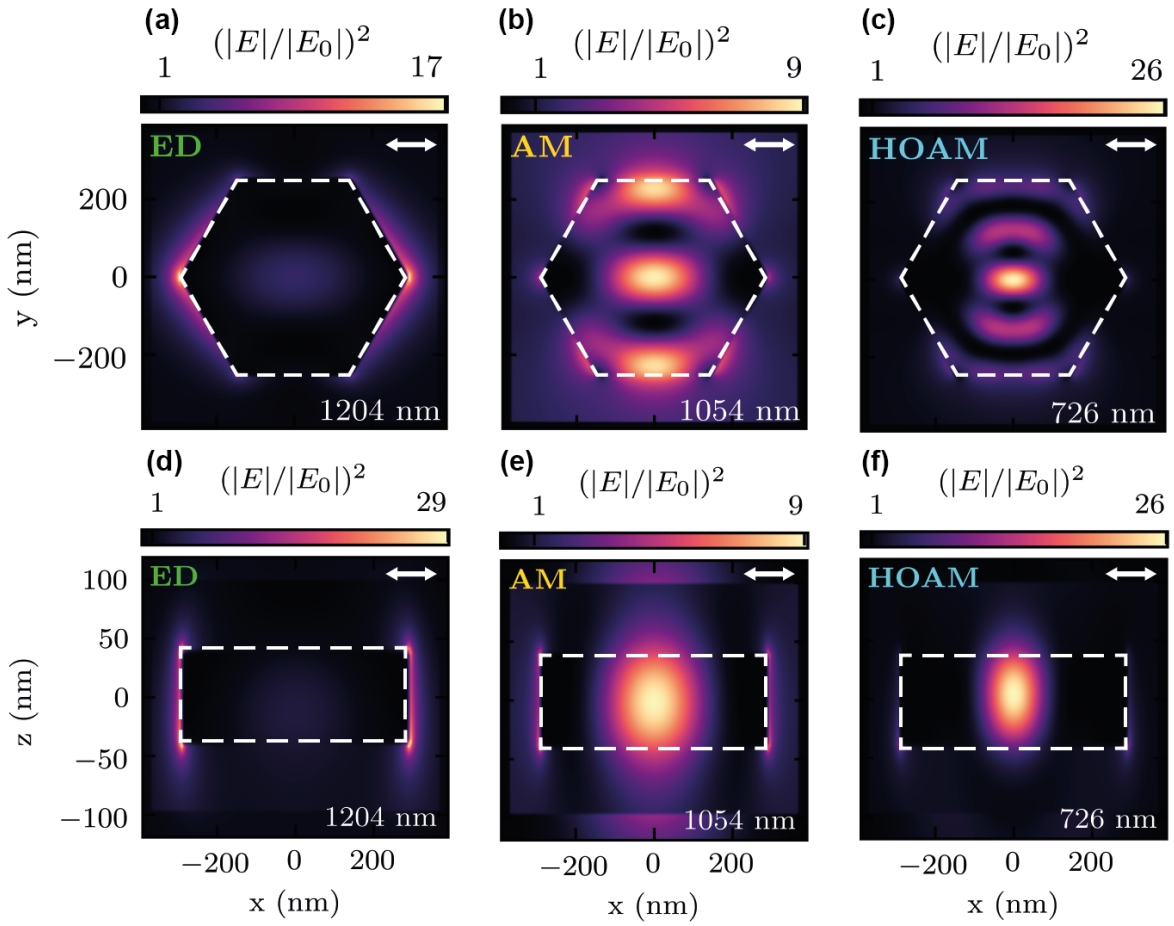

图3：**WS纳米天线内部模拟电场强度$_2$，其高度为78 nm、半径为290 nm，置于真空中时对应不同共振Mie模式。(a)、(b)**和**(c)**分别对应纳米天线中间横截面上 xy平面内电偶极模式、环形偶极模式和高阶无极点模的电场。**(d)、(e)**和**(f)** 对应相同模式在 xz平面内的分布。入射平面波沿 x 轴偏振。每个面板右下角的数值表示入射波长。

悬浮在真空中的六边形WS_2 纳米天线的电偶极模式在顶点及其周围沿入射光的偏振方向被非常强烈地限域，如图3(a)和(d)所示。纳米天线内部存在一个中心瓣，但其电场强度远弱于顶点处。在图3(b)和(e)中，我们注意到无极点共振被强烈限域在纳米天线边界内，几乎没有泄漏到周围环境。这对于HOAM也是如此，两种共振由于强限域而具有高Q因子。这些场分布用作与图3(e)-(j)中金基底上WS_2 纳米天线所示场分布的比较。由于图3中没有基底，我们看到电场瓣大多关于$z = 0$ 平面对称，从纳米天线结构的顶部和底部等量延伸。

补充说明 4：

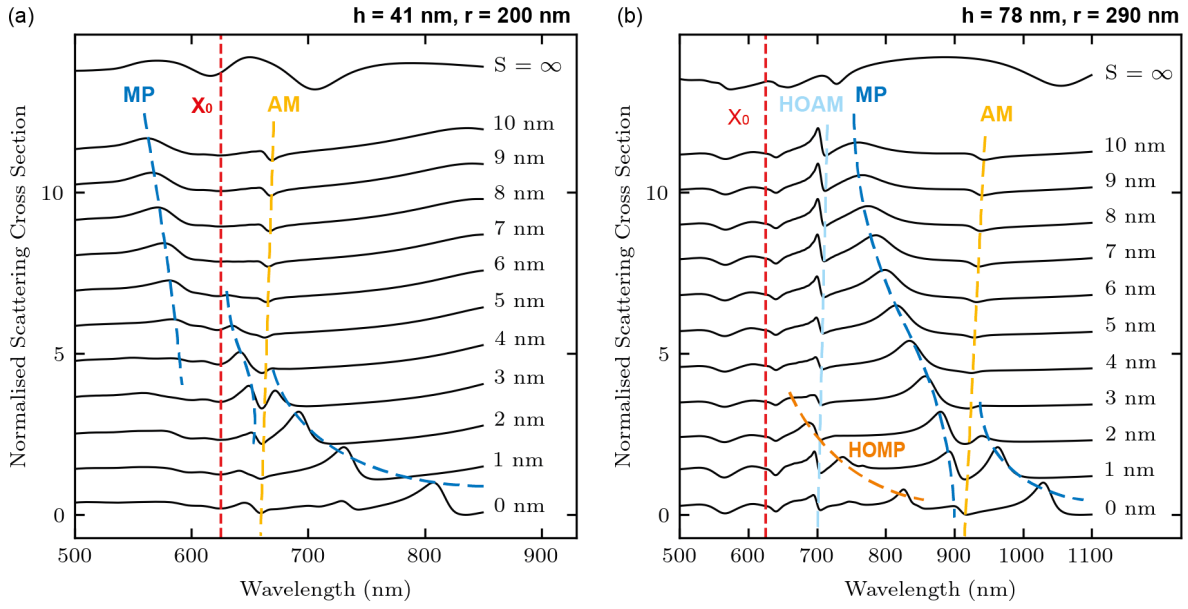

图4：**WS 纳米天线与金基底之间距离变化时的模拟散射光谱$_2$，S。（a），（b）**分别放大正文图3(a)（h = 41 nm，r = 200 nm）和(b)（h = 78 nm，r = 290 nm）中的散射光谱，以便更清楚地观察引入金基底后 MP 模式的演变。MP、HOMP、AM 和 HOAM 分别对应 Mie-等离子体模式、高阶Mie-等离激元模式、无极子模式和高阶无极子模式。X_0 对应 WS_2 激子。

这里我们展示了正文中图3(a)和(b)对于S = 0 - 10 nm的较小范围光谱。还考虑了减小的波长范围，以更详细地说明MP模式的行为。我们在图4(a)中观察到MP模式与WS_2 激子的反交叉，如先前纯Mie模式研究中所见[3]。更有趣的是，我们注意到在图4(a)和(b)中两种纳米天线几何形状与环形偶极模式进一步出现避免交叉，这可能表明两种共振之间存在强模耦合。

此外，当 S 减小至 1 nm 时，图4(b)中约 740 nm 波长处会出现另一个 Fano线型峰。当 S = 0 nm 时，峰中心移至 825 nm。这种显著的红移和法诺线型表明，WS_2 纳米天线中可以存在高阶多极模式，并且这些纳米天线位于金基底上；我们将其称为高阶Mie-等离激元模式（HOMP）。

补充说明5：

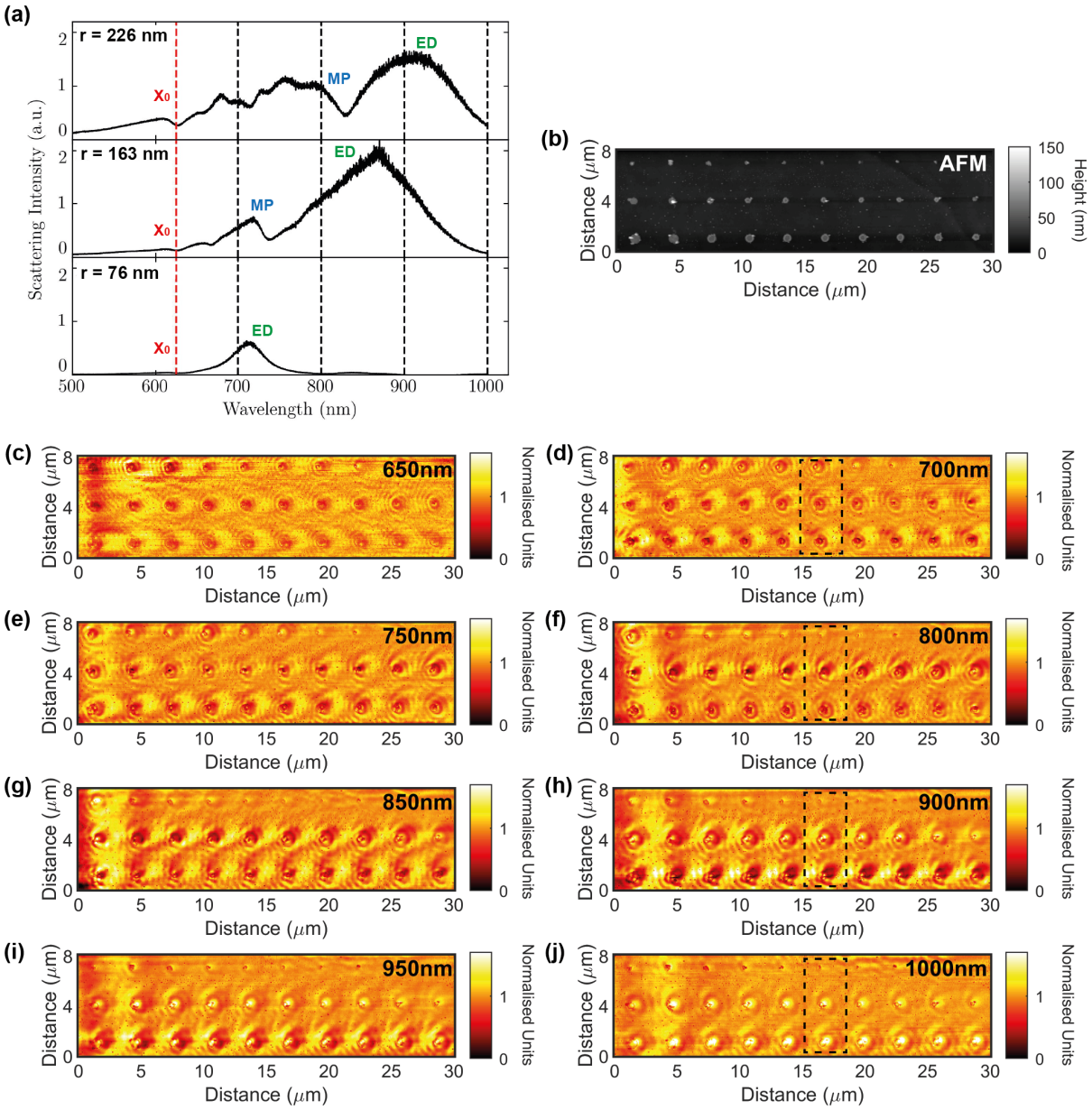

图5：**不同激发波长下，金基底上高度为 41 nm、半径逐渐增大的完整 WS_2 纳米天线阵列的额外实验散射型扫描近场光学显微镜数据，并与暗场数据进行比较。(a)**金基底上三种高度为 41 nm、半径不同的 WS_2 纳米天线的实验暗场散射强度归一化结果；这些纳米天线由图5(d)、(f)、(h)和(j)中的黑色虚线框标出。黑色竖直虚线表示散射型扫描近场光学显微镜测量所用的激发波长。红色虚线表示 WS_2 激子（X_0）。MP 和 ED 分别表示 Mie-等离子体模式和电偶极模式。**(b)** 纳米天线阵列的 AFM形貌图像。**(c)-(j)** 对应于激发波长从 650 nm 到 1000 nm、以 50 nm 为增量获取的散射型扫描近场光学显微镜图像。阵列中纳米天线的半径从右上到左下大致以 10 nm 为增量递增。黑色虚线框标出了正文图3(k)中研究的纳米天线。

我们记录了不同半径的 WS_2 纳米天线在一系列激发波长下的散射型扫描近场光学显微镜图像。最值得注意的是，我们观察到，随着纳米天线半径增大，表面等离激元极化激元波纹的强度会随纳米天线米氏模式的红移而变化。通过比较图 5(a)中各个纳米天线暗场光谱的峰位置与其对应的散射型扫描近场光学显微镜图像（图5(d)、(f)、(h)中的虚线框，以及

(j)) 在不同波长下。在暗场光谱中出现峰值的波长处，例如电偶极模式和多极模式对应的波长，我们也会在散射型扫描近场光学显微镜图像中观察到纳米天线周围强度更高的表面等离激元极化激元干涉图样。例如，在 700 nm 激发下，半径为 76 nm 的纳米天线在暗场光谱中出现对应电偶极模式的峰值，同时半径为 r = 163 nm 的纳米天线出现法诺线型磁等离激元模式。将其与图5(d)中 700 nm 下的散射型扫描近场光学显微镜图像进行比较，可以看到虚线框内的上方纳米天线（半径 76 nm）周围有明显的表面等离激元极化激元波纹，中间的纳米天线（163 nm）周围的表面等离激元极化激元稍弱，而下方纳米天线（半径 266 nm）几乎没有共振行为；这与散射光谱中各模式的强度相符。随着激发波长增大，半径较大的纳米天线呈现出强度更高的表面等离激元极化激元图样，而半径为 76 nm 的纳米天线则以较低振幅的波纹发生共振（见图5(f)和(h)）。最后，在 1000 nm 激发下，所有纳米天线周围都没有出现高强度干涉图样（图5(j)），这与三种纳米天线的暗场散射光谱均出现低谷相符。表面等离激元极化激元干涉图样的强度随米氏模式红移而变化，这一观察进一步支持了杂化Mie-等离子体模式的观点：这些模式能够从金基底上的介电纳米天线激发并增强表面等离激元极化激元。

补充说明 6：

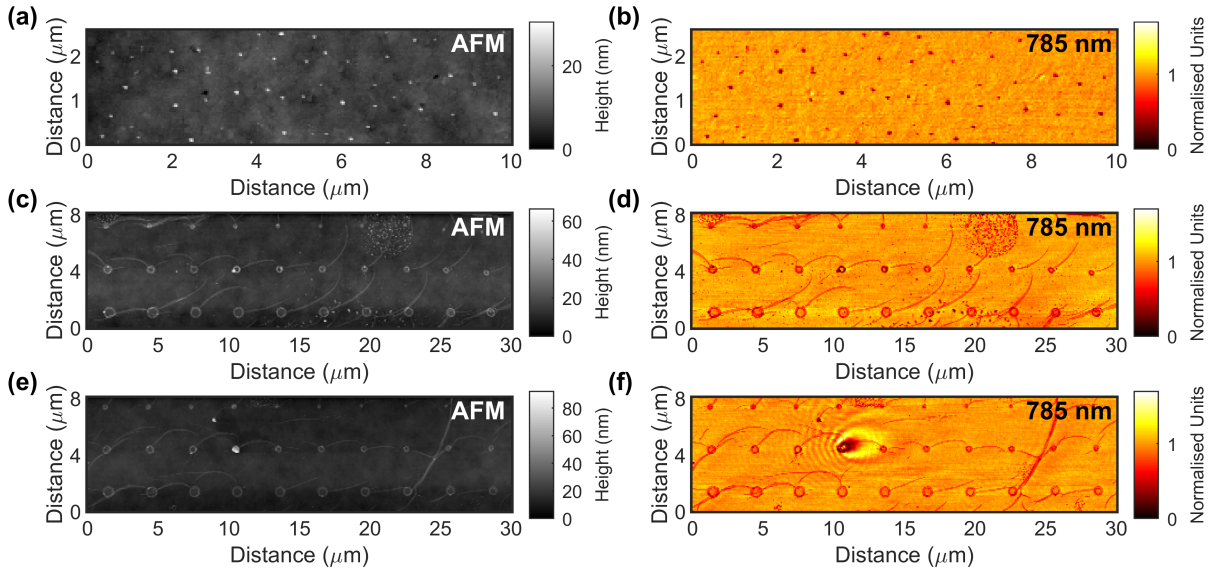

图 6：**金基底以及金基底上光刻胶柱的原子力显微镜和散射型扫描近场光学显微镜图像，采用 785 纳米激发。(a)** 和**(b)** 分别为远离任何纳米天线处金基底的原子力显微镜和散射型扫描近场光学显微镜图像。**(c)** 和**(d)** 分别为金基底上光刻胶柱的原子力显微镜和散射型扫描近场光学显微镜图像，其高度与正文图3(k)中测量的 WS_2 纳米天线相近。**(e)** 和**(f)** 分别为金基底上其他光刻胶柱的原子力显微镜和散射型扫描近场光学显微镜图像，其中保留了一个 WS_2 纳米天线，周围环绕着表面等离激元极化激元干涉图样。

图 6(b) 展示了远离 WS_2 纳米天线的金基底区域的散射式扫描近场光学显微成像；如预期，未观察到表面等离激元极化激元波纹图样。此时仍存在探针激发的等离激元，但附近没有较大的结构可供其反射回来，因此不会与入射探针的光发生干涉。当我们引入高度与图3(k)中测量的 WS_2 纳米天线相当的光刻胶柱时，在散射型扫描近场光学显微镜图像中并未观察到明显的表面等离激元极化激元图样（图 6(d)）。由于光刻胶柱的折射率较低（1.49 [4]），在可见光波长下不会产生强烈的米氏共振，因此与等离激元的耦合较弱。此外，探针激发的等离激元预计会透过这类结构，而几乎不会反射回探针。图 6(f) 中，我们对一组光刻胶柱进行了成像，其中间有一个 WS_2 纳米天线。纳米天线周围可观察到明显的表面等离激元极化激元波纹，说明结构内部的米氏共振与等离激元共振发生杂化，从而增强径向激发的表面等离激元极化激元。此处的表面等离激元极化激元图样并非圆形，因为入射光散射产生的等离激元会与探针 [5] 相互作用。这一观察进一步证实，只有高折射率的 WS_2 纳米天线才能通过与其光子共振耦合来激发表面等离激元极化激元。

补充说明7：

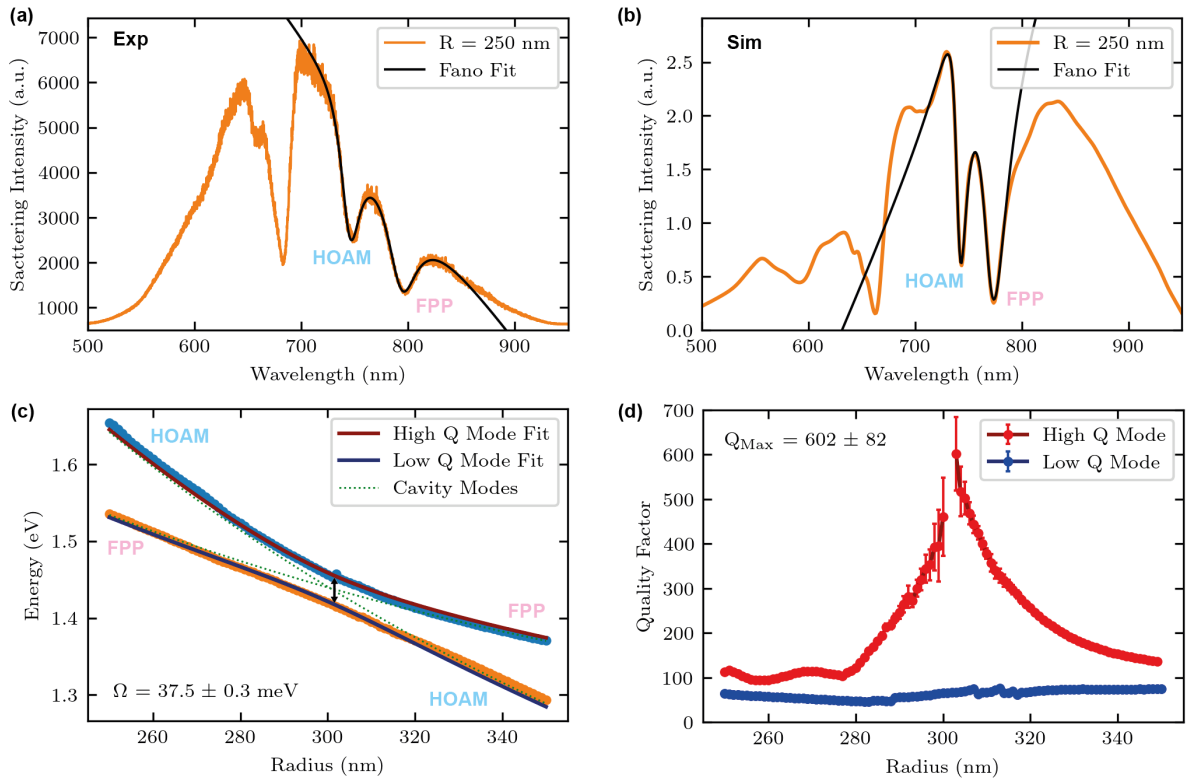

图 7：**对模拟和实验散射光谱进行 Fano 拟合$_2$ 金基底上的 WS**纳米天线。**纳米天线的**(a) 和 **(b)** 分别对应实验和模拟得到的高度为 180 nm、半径为 250 nm 的二聚体纳米天线的单独散射光谱（橙色线）。黑色线表示对高阶阿纳波尔模式（HOAM）和法布里–珀罗等离激元模式（FPP）进行的双 Fano 曲线拟合。**(c)**对高度为 200 nm、半径各异的优化纳米天线进行模拟，得到 HOAM 和 FPP 模式的峰值位置，并用耦合振子模型拟合。Ω 表示模式之间的最小能量劈裂。**(d)** 提取**(c)**中拟合的所有峰的品质因数。

为拟合正文图 2(c) 和 (f) 中观察到的高阶阿纳波尔模式（HOAM）与法布里–珀罗等离激元模式（FPP）之间的反交叉，我们采用了耦合振子模型。为此，我们首先对模拟和实验所得金基底上 WS_2 纳米天线散射光谱中对应于 HOAM 和 FPP 模式的各个峰，分别进行双 Fano 曲线拟合。图 7(a) 和 (b) 分别展示了实验和模拟中单个纳米天线的拟合示例，其高度为 180 nm，半径为 250 nm。选择这种拟合方式是因为各模式具有米氏散射-等离激元混合特性，我们观察到共振态与连续态之间存在干涉。为描述两个峰，我们采用了公式 3 中的双 Fano 公式，

$$y = mx + y_0 - |A_l| \frac{(q_l + \epsilon_l)^2}{1 + \epsilon_l^2} - |A_u| \frac{(q_u + \epsilon_u)^2}{1 + \epsilon_u^2} \tag{3}$$

其中

$$\epsilon_l = \frac{x - x_{lc}}{\Gamma_l}, \quad \epsilon_u = \frac{x - x_{uc}}{\Gamma_u} \tag{4}$$

以及$A_{l,u}$, $q_{l,u}$, $x_{l,u}$, $\Gamma_{l,u}$ 分别为较低和较高波长峰的相对振幅、不对称参数、峰中心位置和半高全宽。双重法诺曲线以黑色叠加在图7(a)和(b)中，与实验数据和模拟数据均显示出良好的一致性。我们对所有高度为180 nm、半径从220到330 nm、平均以10 nm增量变化的制备纳米天线重复了此拟合过程。然后将峰中心位置拟合到耦合振子模型，如正文图4(a)所示。然后我们模拟了相同尺寸的纳米天线，但半径步长更细，为1 nm。由于在反交叉附近光谱上存在较宽的共振，我们在拟合时遇到了困难，因此优化了纳米天线高度，以使反交叉充分红移远离该宽峰。然后模拟了高度为200 nm、半径从250到350 nm的二聚体纳米天线。散射光谱使用与实验数据相同的过程进行拟合，得到图7(c)中的图，其中理论未耦合的HOAM和FPP模式由标记为腔模的绿色虚线表示。我们观察到两个模式的明显反交叉，并将它们拟合到耦合振子模型，得到分别由红色和蓝色线描绘的上能量分支和下能量分支。由于它们在散射光谱中的相应品质因数，我们将这些线分别称为高品质因数模式和低品质因数模式。从此拟合中，我们提取出能量劈裂Ω 为37.5 ± 0.3 meV，该值大于远离反交叉最近点处HOAM和FPP模式的半线宽之和，从而确认了强模耦合。

此外，如图 7(d) 所示，将各分支的Q因子与纳米天线半径作图比较后，我们发现，低品质因子模式基本保持不变，而高品质因子模式在半径为302 nm时显著达到峰值。我们计算得出，纳米天线半径为303 nm时，最大品质因数为 602 ± 82 ；误差较大是因为散射光谱中的峰受到抑制。正文中的图4(d)展示了这一现象：由于两个光子模之间的相消干涉，在301 - 303 nm范围内很难拟合高Q峰。这种行为是Friedrich-Wintgen连续谱中的束缚态（BIC）的典型特征 [6], , 并会形成高度局域的模式；当纳米天线半径对应于模式间能量劈裂最小时，该模式的理论Q因子为无穷大。图 7(d)中的结果支持这一点：半径为302 nm时，Q因子趋于无穷大；该半径也是图 7(c)中最接近反交叉的位置。由于无穷大的Q因子本质上无法测量，根据模拟数据，我们将该模式归类为准BIC。对于有限尺寸的纳米天线，我们将其称为超腔模式 [7]。

参考文献

[1] Rodríguez-de Marcos, L. V., Larruquert, J. I., Méndez, J. A. & Aznárez, J. A. SiO_2 和Ta_2O_5 薄膜的自洽光学常数。*Optical Materials Express* **6**, 3622–3637（2016年）。[2] Choi, H., Heuck, M. & Englund, D. 用于单光子非线性效应的超小模体积自相似纳米腔设计。*Physical Review Letters* **118**, 223605（2017年）。[3] Verre, R. 等 作为高折射率介质米氏纳米谐振器的过渡金属二硫属化物纳米盘。*NatureNanotechnology* **14**, 679–683（2019年）。[4] Zhang, X., Qiu, J., Li, X., Zhao, J. & Liu, L. 聚合物在可见光和近红外波段的复折射率测量。*Applied Optics* **59**, 2337–2344（2020年）。[5] Huber, A., Ocelic, N. & Hillenbrand, R. 通过近场红外显微术研究表面声子极化激元的局域激发与干涉。*Journal of Microscopy* **229**, 389–395（2008年）。[6] Friedrich, H. & Wintgen, D. 干涉共振与连续谱中的束缚态。*PhysicalReview A* **32**, 3231（1985年）。[7] Rybin, M. V. 等 亚波长介电谐振器中的高Q超腔模。*Physical ReviewLetters***119**, 243901（2017年）。