

# 泵浦光激发下金刚石纳米柱内部光场的研究<sup>\*</sup>

谭心<sup>†</sup>, 陈成斌, 贺占清, 张博晨

内蒙古科技大学机械工程学院, 内蒙古 包头 014010

收稿日期: 2021-02-21; 接收日期: 2021-03-26

**【摘要】** 金刚石纳米柱是实现色心单光子源增强的有效结构, 而纳米柱结构尺寸决定泵浦光对色心的激发强度. 本文为提高其激发效率, 采用时域有限差分法(Finite Difference Time Domain, FDTD)研究金刚石纳米柱的光学性质. 通过仿真分析了纳米柱直径和高度对内部电场强度的影响. 结果表明, 在泵浦光波长为 532 nm 时, 纳米柱内部中轴线上场强受尺寸变化影响较大, 当直径不变、改变高度时, 场强最大值随高度周期性变化, 周期约为 150 nm; 当高度不变、改变直径时, 场强最大值也随直径周期性变化, 周期约为 150 nm. 通过研究不同波长的泵浦光对金刚石纳米柱内部中轴线上电场分布的影响发现, 不同波长的泵浦光对纳米柱内部中轴线上最强场强对应的纳米柱尺寸有较大影响, 但对于纳米柱最大场强随纳米柱尺寸变化的趋势几乎没有影响. 本文通过研究上述内容, 较为全面地掌握了纳米柱尺寸及泵浦光对纳米柱内部电场强度的影响规律, 找到了纳米柱内部中轴线上最强场强位置, 确定了激发色心的效率最高值所在位置, 为金刚石纳米柱单光子源的制备提供理论指导.

**关键词:** 金刚石纳米柱, 色心, FDTD, 泵浦光

**PACS:** 703. 50. De, 42. 25. Gy

**DOI:** 10. 13380/j. ltpl. 2021. 01. 007

## Study on the Internal Light Field of Diamond Nanocolumns Excited by Pumped Light

TAN Xin, CHEN Chengbin, HE Zhanqing, ZHANG Bochen

*Inner Mongolia University of Science & Technology, Inner Mongolia Baotou 014010*

Received date: 2021-02-21; accepted date: 2021-03-26

**【Abstract】** Diamond nanocolumns are effective structures for color center single photon source enhancement, and the size of the nanocolumns determines the excitation intensity of the pumped light to the color center. In order to improve the excitation efficiency, the optical properties of diamond nanocolumns were studied by Finite Difference Time Domain (FDTD) method. The effect of diameter and height on the internal electric field intensity was analyzed by simulation. The results show that when the wavelength of pumping light is 532 nm, the field intensity of the inner axis of the nanometer column is greatly affected by the size change. The maximum field intensity changes periodically with the diameter or the height, in a magnitude of 150 nm. Focusing on the electric field distribution on the inner axis of diamond nanocolumns, it is found that the pump light with various wavelengths has a significant influence on the size of the nanocolumns. However, the influence can be minimal with regard to the trend of the maximum field intensity. This paper thoroughly investigated the influence of the nanocolumns' size as well as pump

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金项目(批准号:61765012)、内蒙古自然科学基金(批准号 2019MS05008)、国家重点研发计划(批准号:2017YFF0207200, 2017YFF0207203)和内蒙古自治区科技创新指导项目(批准号:2017CXYP-2, KCBJ2018031)资助课题.

<sup>†</sup> heart\_tan@126.com

light on the internal electric field intensity. It also found the position where the internal field strength and the efficiency of the excitation color center reach the peak. This would provide sufficient theoretical guidance for the preparation of nanometer column single photon source in the future.

**Keywords:** Diamond nanocolumn, Color center, FDTD, Pump light

**PACS:** 03.50.De, 42.25.Gy

**DOI:** 10.13380/j.ltpl.2021.01.007

**Reference method:** TAN Xin, CHEN Chengbin, HE Zhanqing, ZHANG Bochen, Low. Temp. Phys. Lett. **43**, 0053 (2021)

## 1 引言

能够释放出单光子的源有很多,其中包括原子<sup>[1]</sup>、离子<sup>[2]</sup>、分子<sup>[3]</sup>、半导体量子点<sup>[4,5]</sup>、块体或纳米晶体中的色心、二维片结构<sup>[6]</sup>、碳纳米管<sup>[7]</sup>等单光子源. 与其他释放单光子的源相比,金刚石色心单光子源的突出优点是能够在常温下释放单光子、稳定性强、单色性好、亮度高等,目前正在被众多学者广泛研究<sup>[8-10]</sup>. Katja Beha 等人<sup>[9]</sup>研究了金刚石纳米晶体与等离子体谐振器的耦合,在不同的铝谐振腔几何形状下实现了发射—谐振腔耦合,激发态寿命缩短了 6 倍. 已有研究表明金刚石块体<sup>[11,12]</sup>中单个 NV 色心的计数率为  $4 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ ,但金刚石纳米晶体<sup>[13]</sup>中单个 NV 色心的计数率为  $2 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ ,比块体金刚石高出一个数量级. Thomas M. Babinec 等人<sup>[12]</sup>研究了将 NV 色心放置于金刚石纳米线中,能够实现比块体金刚石晶体高一个数量级的有效激发;能改变 NV 色心的远场发射,并有助于用物镜收集发射光子;可使光沿轴向从顶部纳米线面垂直发射;可缩短 NV 色心的荧光寿命. 上述内容针对于块状金刚石和纳米金刚石晶体以及纳米金刚石的形状对影响金刚石色心发光做了大量研究,但是对于使用泵浦光对色心的激发效率也是设计金刚石纳米柱单光子源需要考虑的关键步骤,本文将针对激发效率来研究纳米柱的尺寸结构和泵浦光波长对于纳米柱中电场强度分布的影响,并以此为依据来找到最优的结构尺寸和最优的位置,将 NV 色心放置于电场强度最强位置来增强色心发光.

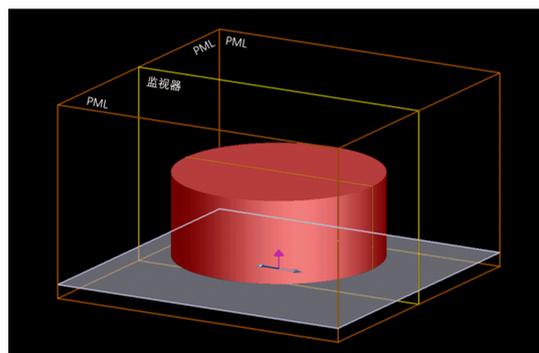
## 2 仿真建模

FDTD 方法在时域将麦克斯韦方程组进行差分近似,从而将时域微分方程的求解转换为差分方程的迭代求解. 该方法基于物理光学,从而突破了几何光学的限制,因此适用于各种纳米器件的电磁学仿真. 本文采用时域有限差分法研究了在泵浦光波长为 532 nm 时,不同尺寸的金刚石纳米柱内部的电场强度并且探究了纳米柱内部中轴线上最强电场强度及其对应的位置.

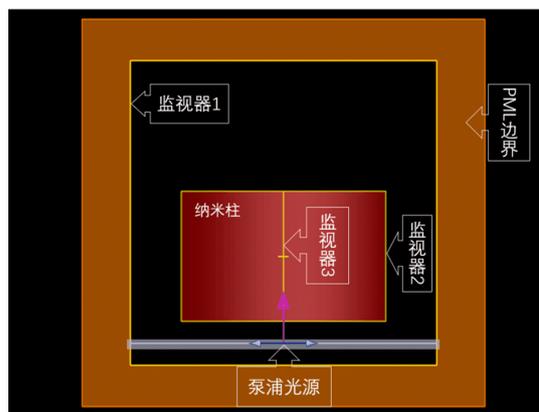
如图 1 所示,仿真模型使用的器件结构是单个的纳米柱结构,纳米柱材料为金刚石,纳米柱直径区间为 431 ~ 831 nm;纳米柱的高度区间为 83 ~ 683 nm. 使用位于纳米柱下方 100 nm 的平面波偏

振光源. 选取整个模型作为仿真对象,仿真区域的下边界固定位置为纳米柱下方 200 nm 处,上边界位置为纳米柱高度的 2 倍区域,四周边界范围为纳米柱直径的 1.5 倍区域,所有边界条件均采用完美匹配层(PML)吸收边界,完全独立整个纳米柱个体,杜绝其余外界干扰.

仿真用纳米柱内部模式的最大电场强度表征不同尺寸纳米柱对光的谐振能力. 由于光源强度已经归一化,电场强度即为相对于光源场强的倍数. 仿真分别研究了纳米柱高度与直径对纳米柱结构光场强度、泵浦光波长对光场强度的影响. 在研究纳米柱结构尺寸的同时,探究了在泵浦光波长不变的情况下,不同尺寸的金刚石纳米柱内部中轴线上场强的最大值及其对应的位置.



(a) 纳米柱三维结构示意图



(b) 纳米柱仿真截面图

图 1 单个纳米柱的 FDTD 仿真模型

## 3 结果与讨论

### 3.1 结构参数对纳米柱内部光场强度的影响

纳米柱尺寸主要有两个参数,即高度与直径. 当泵浦光波长为 532 nm 时,金刚石纳米柱内部中轴线上最大电场强度与纳米柱直径和高度的关系如图

2 所示. 由图可知, 泵浦光波长一定时, 固定纳米柱直径不变, 随着纳米柱的高度的变化, 纳米柱内部中轴线上电场场强的最大值呈现出周期性波动, 周期约为 150 nm; 固定纳米柱高度不变, 随着纳米柱直径的改变, 场强最大值同样也呈现出周期性波动, 周期约为 150 nm. 同时可以发现, 电场强度随直径变化波动较小, 而随高度变化却会产生较大的波动, 这是由于纳米柱中, 纳米柱的上下端面会形成简单的法布里波腔, 从而导致随纳米柱高度的变化, 场强值波动更大. 在整个尺寸范围内, 随着纳米柱高度和直径同时变化时, 纳米柱内部中轴线上的场强最大值整体表现为一种负斜率直线的变化趋势, 同时这种变化趋势也具有周期性, 周期约为 150 nm. 因为光也是一种电磁波, 当泵浦光耦合到金刚石纳米柱内部后, 会在纳米柱内部不断震荡, 当纳米柱的结构尺寸满足该波长的泵浦光的谐振条件时, 该泵浦光在纳米柱内部干涉相长, 即该尺寸的纳米柱对泵浦光产生了增强作用, 从而在图中展现出场强不断增大; 当纳米柱的结构尺寸无法使该波长的泵浦光在纳米柱内部产生谐振作用时, 在纳米柱内部该泵浦光干涉相消, 即该尺寸的纳米柱对泵浦光产生了削弱作用, 从而在图中表现出场强不断减小, 最终在图上表现为周期性波动.

从图中的左上角可以看出, 随着高度的逐渐增加, 直径较小的纳米柱内部中轴线上的电场场强最大值逐渐变小, 即对应图中相应位置的极大值逐渐变小. 同理, 在高度较小的范围 (如 200 nm 以下) 内, 不论直径如何变化, 整体的电场场强变化不大, 都处于相对较低的状态. 若想要泵浦光在纳米柱内部干涉相长, 纳米柱尺寸必须满足该波长下谐振腔的条件. 由于纳米柱高度过小时对泵浦光会产生干涉相消的现象, 所以泵浦光在该尺寸范围内产生的场强较弱.

从图中可以看出, 纳米柱在该尺寸范围内出现多个电场强度极大值点, 如图 2 中红色圆圈标注的位置所示. 将左侧四个红色圆圈的圆心连接成一条倾斜直线, 记为  $l_1$ ; 右侧两个红色圆圈的圆心连接成一条倾斜直线, 记为  $l_2$ . 根据两条直线和电场强度极大值点可分析出, 电场强度极大值点呈现出周期性的排列, 而且位于斜率相同的平行直线上, 即纳米柱的直径和高度存在一定的高径比关系, 从该高径比关系中可以得到需要的直径和高度的数值. 从

$l_1$  直线对应的四个电场强度极大值可以看出, 当纳米柱直径为 571 nm 时,  $l_1$  直线上电场强度的极大值即是最大值, 然后逐渐减小. 类比于  $l_1$  直线,  $l_2$  直线同样满足以上描述, 当纳米柱直径为 791 nm 时, 对应  $l_2$  直线上的电场场强的极大值即为最大值, 但当纳米柱直径为 821 nm、高度为 633 nm 时对应的电场强度与  $l_2$  直线上的电场强度极大值相等. 因此, 为了进一步判断电场强度的变化趋势, 在本文所研究的范围内, 将高度 503 nm、直径 791 nm 和高度 633 nm、直径 821 nm 两点附近取场强最大值, 即本文对两点附近的纳米柱进行仿真, 精度为 1 nm.

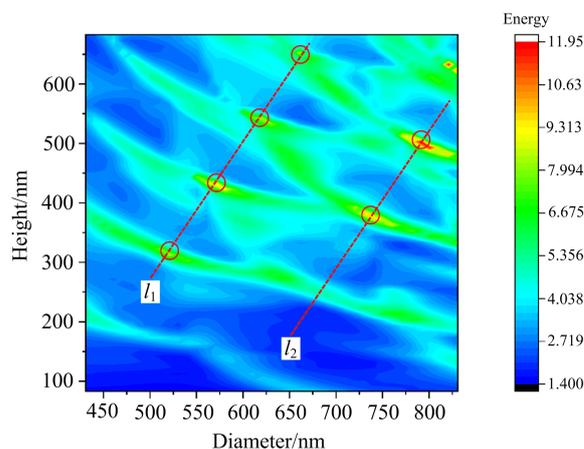


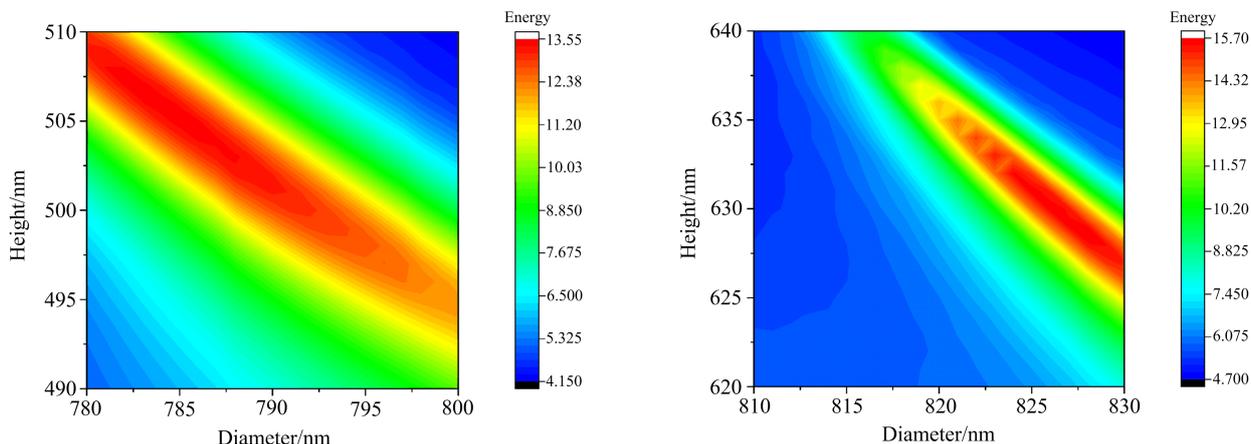
图 2 泵浦光波长 532 nm 时, 纳米柱内部中轴线上最大场强与尺寸的关系

从图 3 的两张局部范围图可以看出, 局部范围内的电场场强随尺寸的变化趋势与整体范围内的变化趋势相一致. 图 3 中的两张图都呈现出山峰状, 都属于包含电场场强极大值点的范围, 图中的电场场强呈现坡度式分布. 图 3(a) 中, 该尺寸范围内, 纳米柱内部中轴线上场强极大值为 13.512 V/m, 对应的纳米柱直径为 784 nm、高度为 506 nm; 图 3(b) 中, 该尺寸范围内, 纳米柱内部中轴线上场强极大值为 15.673 V/m, 对应的纳米柱直径为 825 nm、高度 631 nm. 对比这两个极大值可以得出结论, 当入射光波长为 532 nm 时, 纳米柱直径为 825 nm、高度为 631 nm 时, 在该纳米柱尺寸下, 可以得到该尺寸范围内纳米柱内部中轴线上电场强度最大值. 同时在一定的范围内, 纳米柱内部中轴线上电场场强最大值变化程度较小, 因此在该范围内的纳米柱尺寸均可实现较高的泵浦效率.

由于纳米柱直径为 784 nm、高度为 506 nm 时

对应的附近范围内的电场强度有较大的变化,所以分别针对于高度为 506 nm 和直径为 784 nm 的一系列纳米柱,对其内部电场分布进行进一步研究. 泵浦光波长为 532 nm, 纳米柱高度保持 506 nm 不变, 随着直径从 631 nm 增加到 831 nm, 纳米柱内部电场分布的变化规律如图 4 所示. 当纳米柱直径相对

较小时, 内部场强的最大值位于中轴线靠近纳米柱上表面的位置. 同时在纳米柱上半部分的中轴线处, 由于干涉相长的缘故, 同样有不弱的电场强度. 随着直径逐渐增大, 纳米柱上半部分中轴线处的电场场强正逐渐变大, 然而靠近上表面位置的电场正逐渐变小直至消失.



(a) 纳米柱直径为780~800 nm、高度为490~510 nm范围  
 (b) 纳米柱直径为810~830 nm、高度为620~640 nm范围  
 图 3 泵浦光波长为 532 nm 时, 局部范围内纳米柱内部中轴线最大场强与尺寸的关系

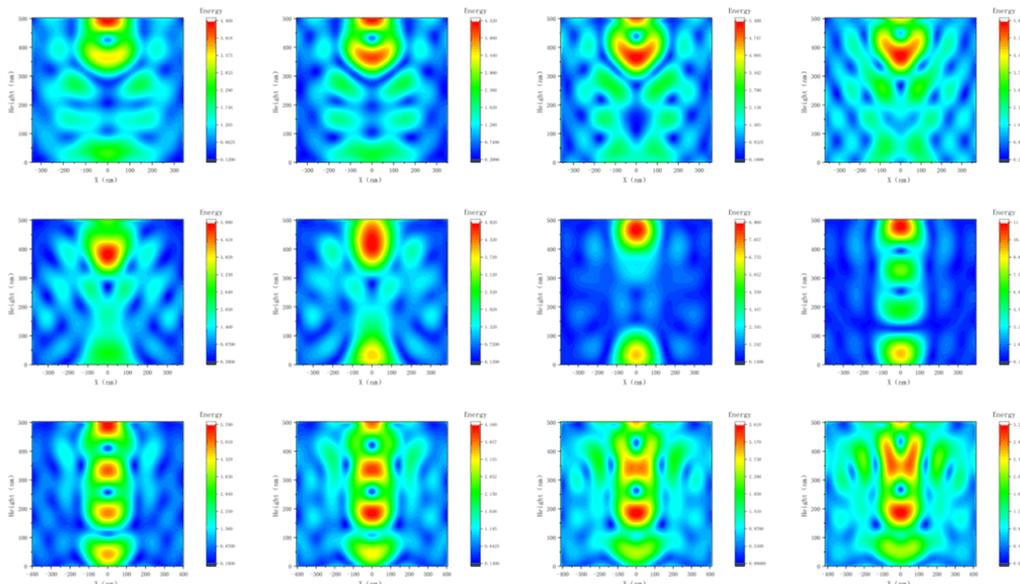


图 4 泵浦光波长为 532 nm, 纳米柱高度为 506 nm 时, 纳米柱内部场强分布随直径的变化规律

图 4 中的第二行的前三张图片, 随着直径的逐渐增大, 本来处于纳米柱中轴线上半部分最强电场位置正逐渐往纳米柱上表面移动, 同时纳米柱内部中轴线靠近下表面的位置的电场强度正逐渐增加. 纳米柱内部中轴线中间及其附近的电场强度逐渐减弱, 由于纳米柱尺寸正逐步向该波长的泵浦光所对

应的最佳尺寸靠拢, 因此多余的电场强度会因为干涉相消逐渐降低. 图 4 中第二行从第三张图到第四张图片, 中轴线上方的电场强度进一步增强, 中轴线下方的电场强度则有向上移动的趋势, 而且中轴线中部多了两个电场强度极大值, 但这两个电场强度极大值并没有使靠近上表面的电场强度减弱, 反而

此时纳米柱内部中轴线上方的电场强度达到最强,即为最大值.这是由于纳米柱直径的增加,泵浦光在纳米柱内部谐振效应加剧,产生多个极大值点,同时由于泵浦光干涉相消导致纳米柱内部除中轴线附近,以外的位置电场强度进一步降低,从而使其他部位电场强度达到最大值.

随着纳米柱直径的进一步增大,纳米柱内部对泵浦光干涉相消的作用逐步降低,从而使纳米柱内部除中轴线附近之外的电场强度逐渐增大,进而导致中轴线靠近上表面的电场强度逐渐衰减,而中轴线中部的电场强度逐步增加.随着纳米柱直径的增大,纳米柱内部中轴线偏上的部分电场强度出现分裂,由于是圆柱形纳米柱,所以逐步分开的位置以中轴线为对称轴,两部分完全一致.

泵浦光波长为 532 nm 时,纳米柱直径保持 784 nm 不变,随着高度从 483 nm 增加到 683 nm,纳米柱内部电场分布的变化规律如图 5 所示.图中第一行前三张图片中,随着纳米柱高度的增加,纳米柱内部中轴线上的电场强度极大值点的个数也随之增大,而除这几个极大值点外的其余位置的电场强度则由于干涉相消则不断减小.虽然电场场强的极大值个数变多了,但由于周围的场强都被削弱了,因此

在第一行的第三张图中纳米柱内部中轴线上靠近上表面的位置,电场强度达到最大.从图 5 第一行第四张图开始,随着高度的进一步增加,纳米柱内部对波长为 532 nm 泵浦光的干涉相消作用减弱,整个纳米柱内部的电场强度随之不断变大,这是由于干涉相长作用导致的.同时,纳米柱内部中轴线上靠近纳米柱上表面的场强减弱直至消失,取而代之的则是纳米柱上半部分的另一个电场强度极大值.同时消失的还有纳米柱中轴线上下半部的场强极大值.从图 5 第二行第三张图起,上半部分的电场极大值开始分裂为左右对称的两部分,然后又逐渐合拢.纳米柱内部中轴线上其余位置的电场强度极大值呈现出同样的规律.这是由于随着纳米柱高度的增加,泵浦光在纳米柱内部的谐振效应出现分歧,即出现两条既干涉相长有干涉相消的谐振,两者在该纳米柱尺寸范围内达到平衡,因此会出现极大值点分裂的现象.随着高度增加,该现象会逐步消失.从图 5 第三行第二张图起,随着纳米柱高度的进一步增加,纳米柱内部中轴线上的电场强度极大值点的个数也不断增多,但由于每个极大值点都分担了一部分的电场强度,因此,电场强度的最大值不会再次出现.

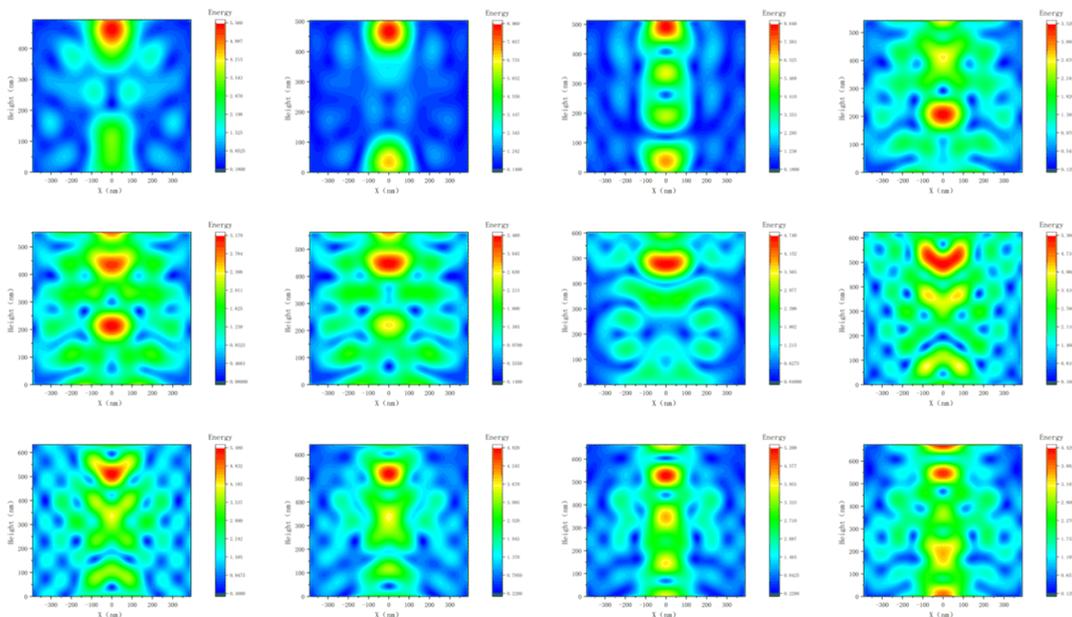
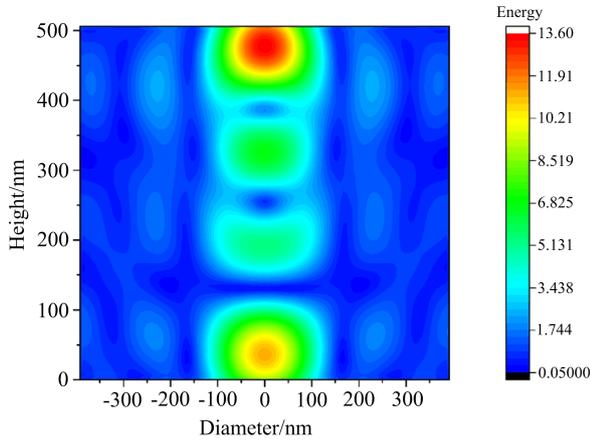


图 5 泵浦光波长为 532 nm,纳米柱直径为 784 nm 时,纳米柱内部场强分布随高度的变化规律

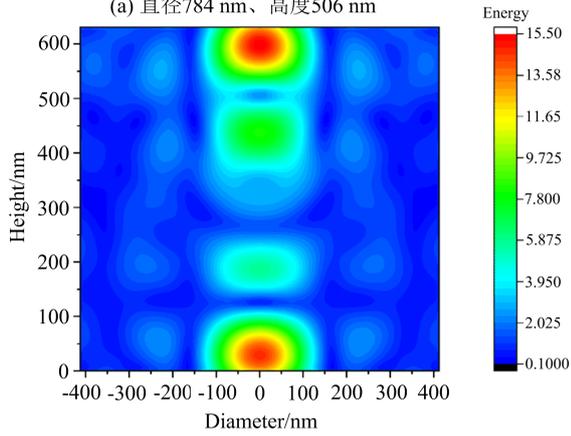
由于电场强度的一个极大值点所在的范围内,纳米柱内部电场分布变化如上述所介绍的,所以可以推理出,其他极大值点所在的范围,纳米柱内部电

场强度同样满足上述描述.

如图 6 所示,(a)(b)展示了当纳米柱分别位于图 3(a)(b)中对应的电场强度极大值时的轴向剖面



(a) 直径784 nm、高度506 nm



(b) 直径825 nm、高度631 nm

图6 入射光波长为 532 nm 时, 纳米柱轴向剖面电场分布示意图

图. 这两幅图清晰地展现出该尺寸下纳米柱内部电场场强的分布. 通过对于图 4 和图 5 的描述和分析, 可以判断出图 6(b)即为纳米柱在该尺寸范围内存在电场强度最强的尺寸. 即当入射光波长为 532 nm, 纳米柱直径为 825 nm、高度为 631 nm 时, 最强场强为 15.673 V/m, 此时最强场强位于纳米柱内部中轴线处距离纳米柱底部 599 nm 处.

### 3.2 泵浦光波长对纳米柱内部光场强度的影响

对比泵浦光波长分别为 532 nm 和 632 nm 下纳米柱尺寸对最大值场强的影响, 对应的分别为图 2 和图 7. 纳米柱内部中轴线上的电场强度在一定范围内呈现出近乎一致的规律性变化. 随着纳米柱尺寸的变化, 纳米柱内部中轴线上的电场强度最大值则呈现出同样的负斜率直线变化趋势. 同时, 变化趋势的高度差在两幅图中均大约为 150 nm.

从两幅图中可以看出, 纳米柱在图中的尺寸范围内, 均出现多个电场场强极大值点, 同时还能看到

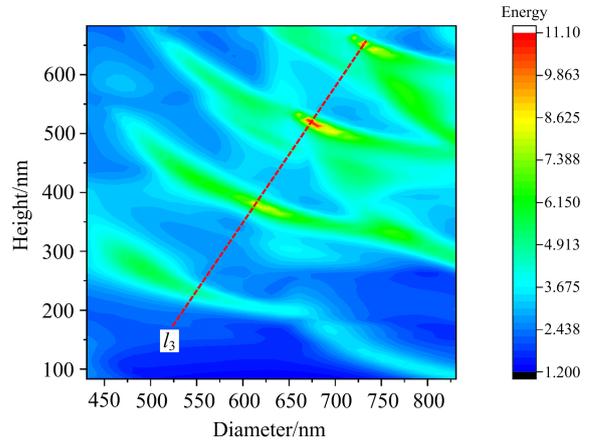


图7 泵浦光波长 632 nm 时, 纳米柱内部中轴线上最大场强与尺寸的关系

电场场强最大值点. 图 2 中电场场强的多个极大值点呈现出周期性排列, 而且几乎位于同一条直线上, 直线斜率为正, 倾斜向上, 如图 2 中的直线  $l_1$  和直线  $l_2$ ; 图 7 中电场场强的多个极大值点同样呈现出相同规律的周期性排列, 且与图 2 中直线的斜率近乎相同, 如图 7 中的直线  $l_3$ .

通过将图 2 中的直线  $l_1$  和直线  $l_2$  和图 7 中的直线  $l_3$  进行对比可以看出, 当泵浦光波长不同时, 电场强度极大值随尺寸的变化规律是相同的, 但不同的是, 极大值点的位置发生了平移, 随着波长增加, 向纳米柱小尺寸方向移动. 即泵浦光波长的改变不影响电场强度随尺寸的变化趋势, 只是做结构尺寸的平移.

## 4 结 论

本文分析了金刚石纳米柱内部中轴线上的电场强度随金刚石纳米柱尺寸及入射光波长的变化关系, 同时研究了最强电场在纳米柱中的位置及对应的纳米柱尺寸. 结果表明, 泵浦光波长一定时, 电场强度随纳米柱尺寸呈周期性变化, 并在一定范围内存在极大值和最大值; 纳米柱尺寸范围一定时, 电场强度极大值点随泵浦光波长增大而移动, 但整体趋势近乎不变. 同时, 泵浦光波长为 532 nm 时, 金刚石纳米柱内部中轴线上的最强场强为 15.673 V/m, 其对应的纳米柱直径为 825 nm、高度为 631 nm, 最强场强位于距离纳米柱底端的 599 nm 处. 将 NV 色心放置于该位置处, 可以达到增强色心发光的最佳效果.

参 考 文 献

- [ 1 ] Kimble H J, Dagenais M, Mandel L 1977 *Phys. Rev. Lett.* [J] **39** 691
- [ 2 ] Frank, Diedrich, Herbert, Walther 1987 *Phys. Rev. Lett.* [J] **58** 203
- [ 3 ] Martini F D, Giuseppe G D, Marrocco M 1996 *Phys. Rev. Lett.* [J] **76** 900
- [ 4 ] He Y M, He Y, Wei Y J, Wu D, Atatüre M, Schneider C, Sven Hfling, Kamp M, Lu C Y, Pan J W 2012 *NNANO*. [J] **8** 213
- [ 5 ] Wang H, Duan Z C, Li Y H, Chen S, Li J P, He Y M, Chen M C, He Y, Ding X, Peng C Z 2016 *Phys. Rev. Lett.* [J] **116** 213601
- [ 6 ] A. Srivastava, Sidler M, Allain A V, Lembke D S, Kis A, Imamolu A 2015 *NNANO*. [J] 10 491
- [ 7 ] Ma X, Hartmann N F, Baldwin J K S, Doorn S K, Htoon H 2015 *NNANO*. [J] **10** 671
- [ 8 ] Praver S, Su C H, Greentree A D, Aharonovich I, Castelletto S, Simpson D A 2011 *Rep. Prog. Phys.* [J] **74** 076501
- [ 9 ] Aharonovich I, Neu E 2014 *Adv. Opt. Mater* [J] **2** 911
- [10] Aharonovich I, Englund D, Toth M 2016 *Nature Photonics*. [J] **10** 631
- [11] Beveratos A, Brouri R, Gacoin T, Poizat J P, Grangier P 2001 *Phys. Rev. A* [J] **64** 061802.
- [12] Babinec T M, Hausmann B J M, Khan M, Zhang Y, Maze J R, Hemmer P R, Loncar M 2010 *NNANO*. [J] **5** 195
- [13] Ampem-Lassen E, Simpson D A, Gibson B C, Trpkovski S, Praver S 2009 *Opt. Express* [J] **17** 011287