

Research Progress in High Spatial-Temporal Near-Field Characterization of Dynamical Evolution of Plasmon Fields Using PEEM

Xinwei Tian, Boyu Ji, Aoran Feng, Siliang Liu, Cheng Tang, Xiaoyuan Lv, Jingquan Lin*

Ultrafast Optics Laboratory, Changchun University of Science and Technology, Changchun Jilin
Email: linjingquan@cust.edu.cn

Received: May 9th, 2019; accepted: May 24th, 2019; published: May 31st, 2019

Abstract

Plasmon is widely used in research fields such as sensing, photovoltaic, photocatalysis and photo-detection for its characteristics of super-diffraction limit convergence and high near-field enhancement. Ultrafast plasmon field formed by ultrafast light-irradiated metal nanostructures not only has traditional plasmon characteristics, but also has very small time-scale characteristics, which provides an effective method for searching and manipulating the interaction between light and matter at femtosecond and nanoscale. Since the dynamical evolution process of the plasmon field directly affects the performance of plasmon sensing and detecting devices as well as the photocatalytic effect, directly near-field characterization of the dynamic evolution of the plasmon field will help the exploration and revealing of the interaction between plasmon and matter in microscopic scale, which is of great significance for the design and optimization of plasmonic nano-photoelectric devices. This paper reviews the advances in high spatial resolution near-field characterization of dynamical evolution of plasmon fields using ITR-PEEM.

Keywords

Interference Time Resolved Photoemission Electron Microscopy, Ultrafast Plasmons, Dynamical Evolution of Plasmons, Dephasing Time

利用PEEM对等离激元场动力学演化的高时空分辨近场表征研究进展

田欣蔚, 季博宇, 丰傲然, 刘思亮, 唐 桢, 吕孝源, 林景全*

长春理工大学超快光学实验室, 吉林 长春

*通讯作者。

文章引用: 田欣蔚, 季博宇, 丰傲然, 刘思亮, 唐桢, 吕孝源, 林景全. 利用 PEEM 对等离激元场动力学演化的高时空分辨近场表征研究进展[J]. 应用物理, 2019, 9(5): 274-286. DOI: [10.12677/app.2019.95033](https://doi.org/10.12677/app.2019.95033)

Email: linjingquan@cust.edu.cn

收稿日期: 2019年5月9日; 录用日期: 2019年5月24日; 发布日期: 2019年5月31日

摘要

等离激元因具有超衍射极限汇聚、高近场增强等特性, 因此被广泛应用于传感、光伏、光催化和光电探测等研究领域。超快光辐照金属纳米结构形成的超快等离激元场不仅拥有传统等离激元特性, 还具有了极小时间尺度特性, 为人们在飞秒、纳米尺度探寻与操控光与物质的相互作用提供了一条有效途径。由于等离激元场的动力学演化过程直接影响到等离激元传感、探测等器件的性能以及光催化效果, 因此对等离激元场动力学演化的直接近场表征将有助于人们从微观尺度探寻和揭示等离激元与物质的相互作用过程, 对于设计和优化等离激元纳米光电器件等具有重要意义。本文综述了利用ITR-PEEM对等离激元场动力学演化的高时空分辨近场表征的研究进展。

关键词

干涉时间分辨 - 光辐射电子显微术, 超快等离激元, 等离激元动力学演化, 去相位时间

Copyright © 2019 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

等离激元(surface plasmons, SPs), 包括传导型表面等离极化激元(surface plasmon polaritons, SPPs)和非传导型局域等离激元(Localized surface plasmons, LSPs), 因其具有超衍射极限汇聚、极高的近场增强效应和新颖的色散特性[1] [2] [3] [4] [5], 在表面增强拉曼散射、传感和辅助光化学反应等应用领域有巨大的潜在价值[6] [7], 已成为纳米光子学领域的一大热点。近年来, 随着超快激光技术的不断发展, 利用飞秒激光辐照纳米结构产生的超快等离激元场, 使人们能够在飞秒、纳米尺度操控光与物质的相互作用, 并实现超快光的超衍射极限聚焦, 为超高速通讯器件和超快纳米等离激元芯片等打下了坚实的基础[8]。为了能够推优化并进一步扩展超快等离激元在各个领域的实际应用, 首要任务就是对等离激元的物理本质有充分的理解。其中, 很重要的一个方面就是对其时空演化过程进行准确的表征。

Heilweil 和 Hochstrasser 论证了均匀线宽和去相位时间之间存在如下关系[9]:

$$\nu = \frac{h}{2\pi T_2} \quad (1)$$

其中, h 为普朗克常数, T_2 为去相位时间, ν 为均匀线宽。该工作成功将去相位时间的概念引入等离激元领域, 并且利用去相位时间就能够反映等离激元的寿命。以往研究常采用表征大量纳米结构样品远场光谱(如散射谱或消光谱)谱线宽度的方式, 推算出样品所支持的等离激元的去相位时间[10]。由于等离激元去相位时间与该模式对应的品质因子直接相关, 因此通过测量线宽的手段来表征等离激元去相位时间在生物探测与传感领域被广泛采用[11]。同时这些研究对于人们认识、理解和利用 SPs 也起到了巨大的推动作用[12]。

然而, 由于制备出的每个独立样品在形貌、尺寸、缺欠程度等方面都会存在一定程度上的差异, 进而会使得每个样品的光学响应存在一定偏差。因此这种测量大体量样品集体光学响应的方式不可避免地

会导致谱线的非均匀展宽[13]。这就使得此种方式获得的去相位时间与真实的纳米结构的相位时间之间存在差异。此外,此种方式仅能获得对应模式的去相位时间而无法给出等离激元的时间演化信息。

随着科学技术的发展,人们开始对极小时空尺度上表征 SPs 的动力学演化产生了迫切的需求。2005年,Petek 等人创新性地干将干涉时间分辨光辐射电子显微术(interference time resolved photoemission electron microscopy, ITR-PEEM)应用于 SPs 的动力学演化研究中[14]。由于 ITR 信号来自于两束光分别激发的 SPs 的干涉叠加,因此 ITR 信号中包含了 SPs 动力学演化的原始信息。此外,得益于 PEEM 的高空间分辨能力(带有像差校正功能的 PEEM 的空间分辨率已经可达到 2 nm 以下),使得人们利用 ITR-PEEM 技术能够在极小的时空尺度上研究 SPs 的动力学演化过程。目前,利用 ITR-PEEM 技术表征 SPs 的动力学演化成为了人们的研究热点,受到了人们的广泛关注[15]。目前,对于等离激元近场进行表征的手段十分丰富,如扫描近场光学显微镜,电子能量损耗显微镜,阴极射线显微镜等。与以往探测手段相比,PEEM 具有其自身的特点:由于其工作机制为光激发-电子探测,因此在获得高空间近场分辨的同时,可以保留物质态密度和等离激元自身的一些关键信息[6]。同时,这种电子成像方式也使得 PEEM 能够对一些无辐射的等离激元暗模式进行直接的成像[16]。此外,光激发方式使得 PEEM 能够兼容如马赫曾德干涉仪等装置,使其具有超快时间分辨能力(ITR-PEEM),并且可以实现全视场数据的同时提取,在加快了实验数据提取速度的同时,也保证了获取空间演化信息的准确性。PEEM 与以往探测工具相互补充,已经成为了人们研究等离激元的有力工具。本文首先介绍了等离激元动力学演化所涉及的基本物理过程以及适用于 ITR-PEEM 方法获得等离激元去相位时间的物理模型,然后综述了利用 ITR-PEEM 手段表征单一纳米结构以及耦合纳米结构中等离激元动力学演化的研究进展,最后展望了利用 ITR-PEEM 进行等离激元动力学演化表征研究的发展前景。

2. 等离激元动力学理论

2.1. 等离激元的动力学过程

如图 1(a)所示,以金属纳米粒子为例描述了等离激元的去相位过程。当所选用的金属纳米粒子的尺寸远远小于激发光波长时,电磁场与纳米粒子之间的相互作用可用简化的准静态近似法分析,即静电偶极近似。当入射光照射到纳米粒子上时,如果入射光频率与纳米粒子的表面电子的自由振荡频率相匹配时,就会产生局域表面等离激元共振(LSPR)现象。LSPs 被激发后会以辐射和非辐射的形式进行衰减,其中辐射形式会向外发射光子,而非辐射形式主要表现为对入射光的吸收。受阻尼效应的影响,相位相同的等离激元会逐渐失谐,即所谓去相位,去相位时间的 1/2 则为等离激元的寿命,其中阻尼效应与纳米粒子的尺寸直接相关。对于尺寸较小的纳米粒子,当其尺寸小于电子的平均自由程时,电子与纳米粒子间的弹性散射起主要作用,但是当尺寸进一步减小至 10 nm 以下时,必须额外考虑化学界面衰减过程[1];当纳米粒子的尺寸较大时,辐射衰减占据主导地位。以上理论可用下列公式表示[17]:

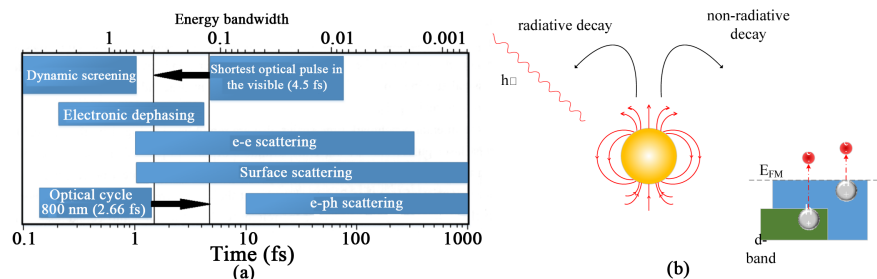


Figure 1. (a) Overall dephasing process of SPPs [18]; (b) Radiative and non-radiative damping of LSPs [19]
图 1. (a) 表面等离激元去相位过程示意图[18]; (b) 局域表面等离激元辐射衰减和非辐射衰减[19]

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T} + \frac{1}{T_2^*} \quad (2)$$

其中, T_2 表示等离子激元的去相位时间, T 表示辐射衰减和非辐射衰减的时间, T_2^* 代表由弹性碰撞引起的去相位时间, 即此过程不会影响能量的衰减时间。

当入射光激发表面等离子激元后, 光子能量传递给等离子激元, 然后经过非辐射衰减过程, 能量又转移给电子, 使电子从低能级向高能级跃迁, 等离子激元变为激发态。此时电子之间发生散射作用, 等离子激元激发态形成的非热平衡状态变成费米-狄拉克分布。这一过程的时间往往在百飞秒量级[20]。之后, 电子-电子间的散射作用将能量重新释放到外界, 等离子激元的衰减过程结束并回到平衡状态。

2.2. 超快等离子激元动力学演化计算理论模型

2.2.1. 简单谐振子模型

B. Lamprecht 课题组在 1999 年证实了阻尼谐振子模型可用于表征超快 LSPs 的动力学特性[21], 其中, 体等离子激元场遵循以下公式[22]:

$$E_{pl}(t) \propto \int_{-\infty}^t K(t^*) e^{-\gamma(t-t^*)} \sin[\omega_0(t-t^*)] dt^* \quad (3)$$

其中, $\omega_0 = 2\pi/\lambda_{res}$, $\gamma = 1/2\tau$, λ_{res} 为对应于共振频率 ω_0 的共振波长, c 是光速, τ 是谐振子能量的衰减时间, 即等离子激元的去相位时间。在上式中, $K(t^*)$ 代表激发光场, 且 $K(t^*) \propto E_{pulse}(t) + E_{pulse}(t+t')$, 其中, $E_{pulse}(t)$ 指的是泵浦光光场, $E_{pulse}(t+t')$ 指的是探测光光场, t' 则代表两束光的延时。

基于以上公式, 通过改变谐振子能量的衰减时间 τ , 并利用三次谐波强度计算公式,

$$I^{(3\omega)} \propto \int |E_{pl}(t)|^6 dt \quad (4)$$

可以求得等离子激元场的三次谐波强度, 通过设置谐振子能量的衰减时间, 可以最终实现实验所得三次谐波自相关曲线和计算所得三次谐波曲线拟合, 拟合结果最好情况下所设置的 τ 值即为等离子激元的去相位时间。

2.2.2. 多模式耦合谐振子模型

研究模式耦合情况下的等离子激元动力学, 可以用耦合谐振子模型来进行理论计算。通常可表示为以下两个微分方程[23]:

$$\partial_t^2 E_1^{loc}(t) + 2\gamma_1 \partial_t E_1^{loc}(t) + \omega_1^2 E_1^{loc}(t) + \kappa E_2^{loc}(t) = E_{laser}(t) \quad (5)$$

$$\partial_t^2 E_2^{loc}(t) + 2\gamma_2 \partial_t E_2^{loc}(t) + \omega_2^2 E_2^{loc}(t) + \kappa E_1^{loc}(t) = 0 \quad (6)$$

其中, $E_1^{loc}(t)$ 和 $E_2^{loc}(t)$ 分别代表两个谐振子位移产生的局域电场, ω_1 和 ω_2 分别代表两个谐振子的共振频率, γ_1 和 γ_2 分别为两个谐振子的阻尼系数。上述两个公式用耦合常数 κ 描述了两个耦合谐振子组成的系统。值得注意的是其中一个谐振子是由外场激发的, 而另一个只是通过耦合常数 κ 激发的[24]。利用傅里叶变换可以实现公式(5)(6)的去耦, 进而得到下列响应函数:

$$R_1(\omega) = \frac{-(\omega_2^2 + 2\gamma_2 i\omega - \omega^2)}{\kappa^2 - (\omega_2^2 + 2\gamma_2 i\omega - \omega^2)(\omega_1^2 + 2\gamma_1 i\omega - \omega^2)} \quad (7)$$

$$R_2(\omega) = \frac{\kappa}{\kappa^2 - (\omega_2^2 + 2\gamma_2 i\omega - \omega^2)(\omega_1^2 + 2\gamma_1 i\omega - \omega^2)} \quad (8)$$

总的响应函数 $R(\omega)$ 表示为 $R_1(\omega)$ 和 $R_2(\omega)$ 的线性叠加[25], 即:

$$R(\omega) = a_1 R_1(\omega) + a_2 R_2(\omega) \quad (9)$$

局域电场的计算公式可表示为:

$$\begin{aligned} E_{loc}(t, \tau) &= E_{laser}(t) * R(t) = (E(t) + E(t - \tau)) * R(t) \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} E(\omega) R(\omega) (1 + e^{-i\omega\tau}) e^{i\omega t} d\omega \end{aligned} \quad (10)$$

其中, τ 表示两束入射光的延时, 最终通过在时域上对局域电场进行积分, 可得到响应的光辐射信号, 即:

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |E_{loc}(t, \tau)|^{2n} dt \quad (11)$$

以上是通过理论计算得到的光辐射信号, 要想获得耦合情况下的等离激元去相位时间, 需要与实验结果拟合, 可通过最小二乘法拟合实现[25]:

$$F(\tau) = \sum_k^N |S(\tau_k)_{Exp} - S(\tau_k)|^2 \quad (12)$$

$$\tau_k = \tau_{min} + k\Delta\tau \quad (13)$$

2.2.3. 半解析模型

Fraggiani 课题组提出了一种基于时域共振模式扩展理论的半解析模型来处理光学纳米天线的时域动力学问题[26]。首先他们假设入射光场为 $E_{inc}(r, t)$, 经过傅里叶变换可将其从时域变换到频率, 得到 $E_{inc}(r, \omega)$, 受到入射场的作用, 纳米结构会产生散射发出电磁波 $E_{sca}(r, t)$, 再经过傅里叶变换, 并且每个入射场的无穷小频段的入射场可表示为 $E_{inc}(r, \omega)d\omega$, 对应散射则为 $E_{sca}(r, \omega)d\omega$, 将其做准正交模式(quasi-normal-mode (QNM))展开, 得到:

$$dE_{sca}(r, \omega) \approx \sum_m d\beta_m(\omega) E_m(r) \quad (14)$$

其中,

$$d\beta_m(\omega) = \frac{-\omega d\omega}{\omega - \omega_m} \iiint \Delta\varepsilon(r, \omega) E_{inc}(r, \omega) \cdot E_m(r) dr^3 \quad (15)$$

假设散射场能够作傅里叶逆变换, 这样就能得到时域散射场:

$$E_{sca}(r, t) \approx \sum_m \beta_m(t) E_m(r) \quad (16)$$

其中, 激发系数 $\beta_m(t)$ 可表示为:

$$\begin{aligned} \beta_m(t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} d\beta_m(\omega) \exp(i\omega t) \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\omega \exp(i\omega t)}{\omega_m - \omega} \iiint \Delta\varepsilon(r, \omega) E_{inc}(r, \omega) \cdot E_m(r) dr^3 d\omega \end{aligned} \quad (17)$$

这样, 由入射光激发的总场可表示为:

$$E(r, t) = E_{sca}(r, t) + E_{inc}(r, t) \quad (18)$$

作者将该计算方法同 FDTD 算法做比较, 认为该算法有几大优势: 一是该算法提供了直接控制动力学的途径——QNM 激发系数; 二是当受到几个主要的 QNM 时, 该算法能够高度精确地预测时域响应; 三是该算法所用的计算时间明显比 FDTD 短。

3. 等离子体动力学研究进展

3.1. 非耦合等离子体动力学研究

1999年 B.Lamprecht 用非谐振子模型, 遵从等离子体振荡原理, 对飞秒激光照射纳米结构的动力学响应进行了理论计算, 并将其与实验所得的二次谐波自相关曲线进行拟合, 得到了所选纳米结构的去相位时间[3]。如图 2(a)所示, 其展示的是分别用假定去相位时间为 7 fs、10 fs、13 fs 计算所得曲线和实验结果进行拟合, 可知其去相位时间约为 10 fs。但是, 此方法受限于所选择的纳米结构必须为非中心对称结构[3], 因此同年, 其课题组借助三次谐波 - 自相关(THG-ACF)方法, 采用理论和实验相结合的方式研究了金纳米柱阵列激发的等离子体在共振和非共振情况下的动力学演化, 并得到了等离子体的去相位时间, 该模型的适用范围得到进一步推广[21]。如图 2(b), 图 2(c)所示, 分别展示了在共振和非共振情况下, THG-ACF 理论计算结果和实验所得自相关函数的拟合结果。这一研究也成为了后续利用 ITR-PEEM 技术进行等离子体动力学演化研究的基础[27]。

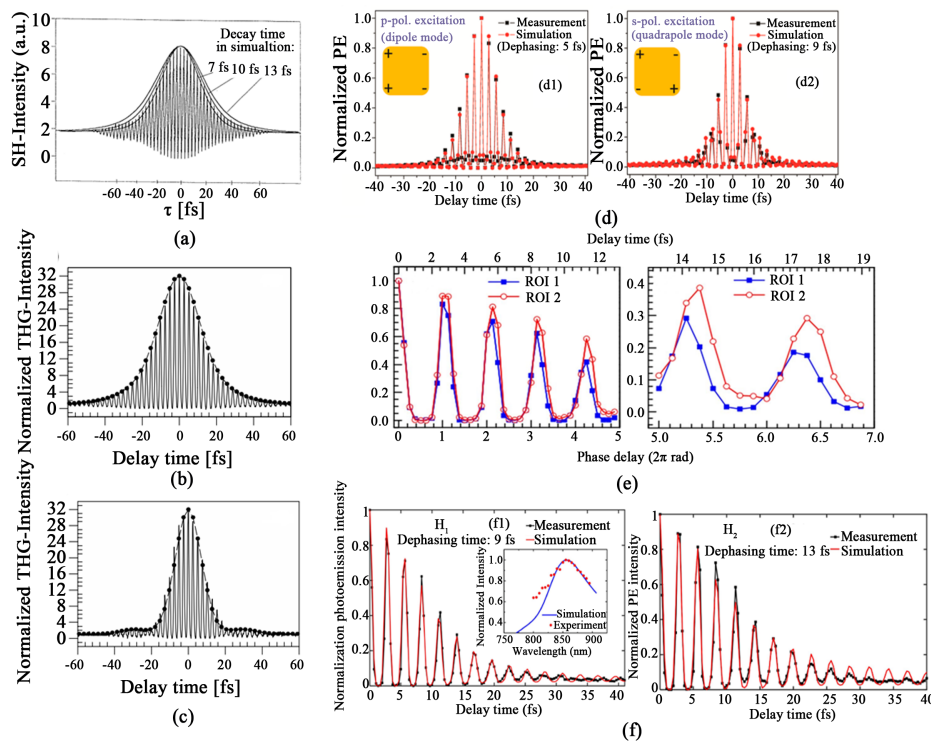


Figure 2. Plasmon dynamics under non-coupling condition. (a) fitting between the analytical model and the ACF measured from the non-centrosymmetric silver nanostructures irradiated by femtosecond laser pulse [3]; (b) fitting (resonant condition) between the analytical model and the ACF measured from the Au nanocylinder arrays irradiated by femtosecond laser pulse [21]; (c) fitting (non-resonant condition) between the analytical model and the ACF measured from the Au nanocylinder arrays irradiated by femtosecond laser pulse [21]; (d1) fitting between the analytical model and the ACF and the charge distribution on the Au nanoblock irradiated by p-polarized light [27]; (d2) fitting between the analytical model and the ACF and the charge distribution on the Au nanoblock irradiated by s-polarized light [27]; (e1) evolution of measured and simulated normalized photoemission signal from H1 spot [33]; (e2) evolution of measured and simulated normalized photoemission signal from H2 spot [33]

图 2. 非耦合情况等离子体动力学。(a) 解析模型和飞秒激光照射下的非对称银纳米结构所测自相关函数拟合[3]; (b) 解析模型和飞秒激光照射下的金纳米柱阵列所测自相关函数拟合情况(共振情况)[21]; (c) 解析模型和飞秒激光照射下的金纳米柱阵列所测自相关函数拟合情况(非共振情况)[21]; (d1) p 偏振光情况下, 解析模型和自相关函数的拟合情况和金纳米块的电荷分布[27]; (d2) s 偏振光情况下, 解析模型和自相关函数的拟合情况和金纳米块的电荷分布[27]; (e1) 测量的和模拟的 H1 点的归一化光辐射信号演化[33]; (e2) 测量的和模拟的 H1 点的归一化光辐射信号演化[33]

为实现多模式耦合条件下的等离子体动力学表征, 首先就要实现多个模式的等离子体的激发。等离子体的模式可分为偶极模式和多极模式, 由于在垂直入射情况下, 用线偏振光只能激发偶极模式, 为了探究偶极模式和多极模式之间的耦合作用对动力学过程的影响, 需要通过相位迟滞或破坏纳米结构的对称性来实现多极模式的激发[28] [29] [30] [31]。基于非线性多光子 PEEM, 北海道大学 Misawa 课题组 Sun Quan 等人利用 ITR-PEEM 表征了金纳米块动力学演化过程, 并借助谐振子模型首次实验获得了暗模式(四极模式)的去相位时间[27]。如图 2(d1), 图 2(d2)所示, 该课题组发现在对称金纳米块中, 四极模式的去相位时间(9 fs)比偶极模式的(5 fs)更长, 且表现出更强的近场增益。该研究成果为后来的多模式及多模式耦合条件下的等离子体动力学研究奠定了基础。特别是, 利用非线性多光子 PEEM 技术的高空间分辨特性, 他们能够实现等离子体动力学演化的空间实时成像, 为更深刻的理解等离子体演化过程做了铺垫。Lin 课题组利用 7fs 激光脉冲结合泵浦-探测三光子 PEEM 技术, 分别用 *s* 偏振和 *p* 偏振光对金蝶形结构激发的超快等离子体近场热点进行直接成像激发他们选取了蝶形结构上的两点 ROI1 和 ROI2, 发现在延时 $\tau_d < 13$ fs 时, 两点的自相关函数的相位差为零, 而当 13 fs $< \tau_d < 32$ fs 时, ROI2 的相位明显落后于 ROI1, 而当延时继续增大时, 光辐射信号变得极弱造成两点的相位差难以分辨。因此他们认为等离子体的激发主要是由于延时在 13 fs 内的泵浦光和探测光的相干叠加造成的, 一段时间后, 等离子体的频率就恢复其本身的共振频率[32]。如图 2(e)所示为延时为 13fs 之前和延时在 13 fs 到 19 fs 的归一化光辐射强度曲线, 可见两曲线在延时为 0~13 fs 时相位相同, 而在延时大于 13fs 情况下出现明显相位差。以该研究为基础, 该课题组之后利用时间分辨 PEEM 和谐振子模型相结合, 得到了金蝶形结构上不同点的去相位时间[图 2(f)]。并且他们论证了实验中得到的 PEEM 信号能够直接用来比较蝶形结构上不同点激发的等离子体的频率。值得一提的是, 利用实验得到的 PEEM 信号, 他们发现等离子体场起初按照激光光的频率振荡, 但由于等离子体的自激振荡和受迫振荡之间的竞争, 在经过短时间的频率起伏后, 最终等离子体场按其本征频率振荡, 揭示了等离子体的频率随时间变化并最终回到其本征频率的原因[33]。

3.2. 耦合等离子体动力学研究

由于在实际应用的纳米系统中, 常常出现多个等离子体模式耦合的情况, 所以对多模式耦合情况下的动力学开展研究, 能够有效推动等离子体的实际应用。不仅如此, 多个模式等离子体的耦合作用将影响等离子体去相位时间, 进而影响器件间的长距离能量与信息传输。同时, 随着去相位时间的延长, 近场增强效应更加显著, 这将为等离子体在传感方面的应用起到重要作用。因此, 在成功将谐振子模型应用于单模式等离子体之后, 研究人员将该模型应用于多模式耦合情况下等离子体动力学研究。

3.2.1. LSP 和 SPP 耦合

传播型的 SPPs 和非传播型的 LSPs 之间的耦合作用能够延长 SPPs 的传播距离, 进而实现器件间的长距离光能转换, 从而推动等离子体在光通信等领域的应用; 同时, 由于传播型 SPPs 不能单独提高近场增益, 所以通过 LSP 和 SPP 之间的耦合, 能够有效提高近场增益。Zentgraf 课题组研究了光子晶体平板结构阵列中的波导等离子体动力学演化过程, 发现由于 LSP 和光学波导模式之间的强耦合作用, 等离子体的去相位速率发生了剧烈改变[34]。通过实验, 该组研究人员证明了在强耦合机制下存在超快耦合振子的拍现象, 如图 3(a)所示。图中为理论计算结果和实验所测 ACF 的拟合结果, 实验通过改变阵列参数得到三条不同的 ACF 曲线, 其中最下方的 ACF 中看到了明显的拍现象, 在理论上通过引入耦合谐振子模型实现了理论与实验结果的完美拟合, 证明了耦合谐振子模型在解决此类问题时的高精确性, 为之后的研究奠定了良好的基础。后续, 更多相关研究开始出现。基于简单阻尼洛伦兹谐振子模型, Utikal 课题组针对纳米线光子晶体超晶格中的动力学演化过程进行了研究, 发现了非常复杂的三次谐波信号, 并通过改变纳米线晶格的晶胞, 实现了对等离子体动力学和去相位过程, 实现了将等离子体的去相位时间

延长至 60 fs [35]。然而, 该模型用洛伦兹线型简化了消光谱上实际存在的 Fano 线型[36]。近年来, 等离激元学逐渐被推广到具有周期性结构的磁性构件——磁光子晶体中[22], 在光频范围内提供了电四极矩和磁偶极矩, 形成磁共振。Geiselmann 研究组针对金双线结构, 在理论上和实验上研究了非对称 LSP 和平面波导等离激元(WPP)杂化对动力学的影响, 通过改变晶格周期和纳米线的横截面积, 实现了对磁等离激元的动力学的调控, 并将去相位时间延长至 80 fs [37]。同时, 该研究组也测量了无 WPP 模式下等离激元的去相位时间。如图 3(b)所示为不同晶格周期情况下实验测量和理论计算的实验结果曲线, 最右边为无 WPP 模式下的实验与理论对比结果。除了设计波导结构实现更高的近场增益, 研究者也从耦合长度方面出发, 通过设计特定结构, 实现等离激元的长程耦合。Aeschlimann 课题组通过设计两个能够在可寻址的、被约两倍波长长度分开的长程耦合回音壁模式(WGM)谐振器, 实现了比相同效率情况下的自由空间耦合长度还要长 10 nm。他们在谐振器中构造了两个天线, 图 3(c1)和图 3(c2)所示分别为阴影天线和激发天线相关信号的测量和模拟结果。另外, 与一维等离激元波导结构相比, 该结构将能量转换率提高了两个数量级, 为量子发射器的长程强耦合提供了直接实现的方法[38]。Aeschlimann 课题组的研究尽管利用 ACF 能够提供有关去相位的信息[39], 但是并不能实现等离激元的可视化, 因此 Yang 课题组利用多层结构的阵列实现了 LSP 和 SPP-Bloch 波的强耦合, 并通过 PEEM 分别在频域和时域研究了该耦合系统的近场光学性质, 通过观察频域曲线峰的相对高度能够得到耦合程度, 而通过时域演化曲线能够得到该系统的去相位时间[40]。如图 3(d1)和图 3(d2)分别为实验测量和理论计算所得的时域光辐射信号曲线。

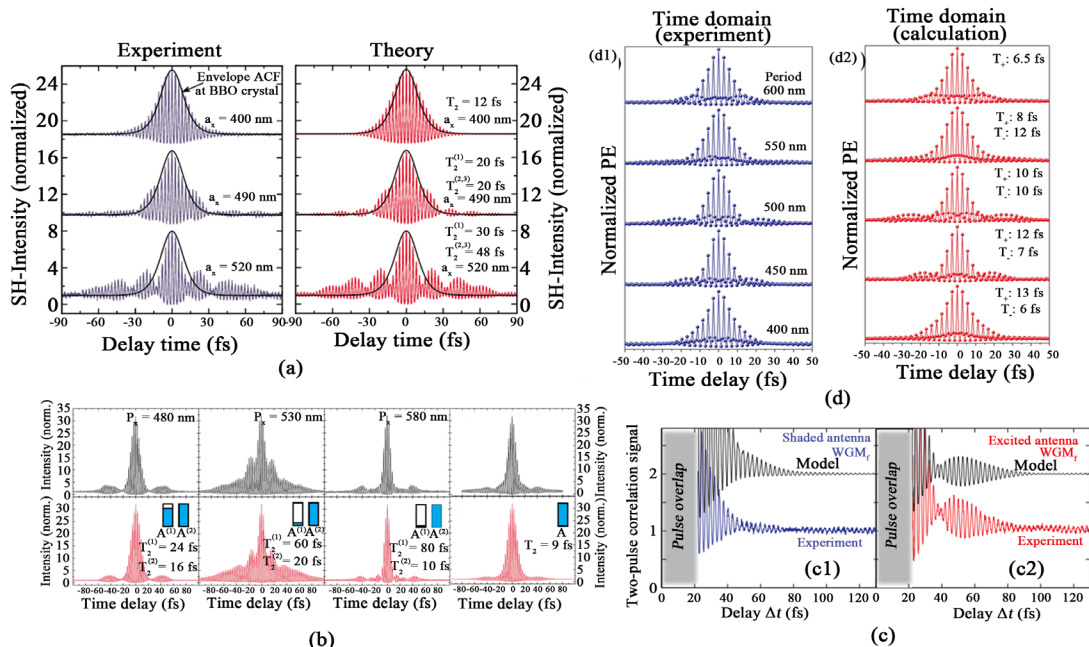


Figure 3. Plasmon dynamics under LSP-SPP coupling condition. (a) measured second-order interferometric autocorrelation functions for different grating periods of the nanoparticle arrays and fitted ACFs with the obtained dephasing time [34]; (b) measured (black curve) and calculated (red curve) nonlinear ACFs of different arrays on the waveguide; [37] (c1) correlation photoemission signals for shaded antennas [38]; (c2) correlation photoemission signals for excited antennas [38]; (d1) normalized PE intensity curves against the time delay in the time domain obtained by PEEM measurements [40]; (d2) calculated PE signals with the best fitted dephasing time [40]

图 3. LSP-SPP 耦合等离激元动力学。(a) 纳米阵列不同光栅周期下测得的二阶干涉自相关函数和用得到的去相位时间拟合得到的自相关函数[34]; (b) 波导上不同阵列的测量(黑色曲线)和计算(红色曲线)得到的非线性 ACF [37]; (c1) 阴影天线相关光辐射信号的测量和模拟结果[38]; (c2) 激发天线相关光辐射信号的测量和模拟结果[38]; (d1) 从 PEEM 测量获得的关于延时的时域归一化光辐射强度曲线[40]; (d2) 用最佳的去相位时间计算得到的光辐射强度曲线[40]

3.2.2. LSP 和 LSP 耦合

非传播型的 LSP 之间的耦合能够有效提高近场增益,同时,随着近年来对等离子激元 Fano 共振的研究展开,由 LSP 明模式和暗模式形成的 Fano 共振由于极高的近场增强效应和极高的 Q 值和灵敏度而受到广泛关注和研究[41] [42],进一步推动了等离子激元在传感等方面的应用。LSP 的激发与纳米结构的形状、尺寸和周围的介电环境均有关系[4] [43],通过对纳米结构的形状、尺寸等参数进行调节,可以实现对等离子激元激发的调控,并有望实现多模式 LSP 的激发和耦合作用。Marsell 课题组针对银米形纳米结构,用 5.5fs 超短脉冲分别对三种不同尺寸(350 nm, 500 nm, 600 nm)纳米结构激发的等离子激元动力学进行研究,通过对其模拟的吸收谱结果进行分析发现,对于 600 nm 场米形结构,在激光的光谱范围内有两个等离子激元模式。进一步对该尺寸动力学演化曲线进行分析,发现明显的拍频现象,与 500 nm 结构形成鲜明对比,如图 4(a1)和图 4(a2)所示。另外,在几个强度最大的周期里,米形结构上不同点激发的等离子激元的瞬时频率不同,研究者用两种效应的结合来解释该现象,即由激发场的相位变化所引起的等离子激元迟滞效应和奇偶模式等离子激元的相干叠加[44]。在此研究基础上,该课题组对蝶形结构的形状和尺寸对等离子激元动力学的影响展开研究,发现实验中不同尺寸的蝶形结构所激发等离子激元的动力学演化曲线是不同的。而值得注意的是,即使是基本相同的结构,其激发的动力学也有明显不同,经过模拟,他们认为其主要原因在于在蝶形结构制备过程中所造成的结构侧面的形状不同[45]。如图 4(b)所示为具有形状相似但侧面形状不同的蝶形结构及其对应的自相关曲线。针对简单的纳米三角结构,Imaeda 课题组利用透射测定法发现平面内激发和平面外激发的等离子激元是同时产生的,并且两者会在光谱上和空间上发生相干叠加。同时,借助时间分辨自相关测量法得到自相关函数,他们发现由于去相位过程,等离子激元的自相关曲线宽度比激发脉冲场的宽,而且通过相关宽度发现平面外模式的去相位时间比平面内模式的更长[46]。

Bernasconi 课题组针对简单银纳米棒结构,利用二次谐波和全波数值方法,对飞秒激光照射该结构激发的等离子激元的远场时域动力学展开研究。他们首先研究了线性响应,用以建立方法,发现观察到行为类似阻尼谐振子的单个本征模是有可能的。然后,他们研究了非线性散射场,首先,他们研究了纵四极模式在非线性频率下共振的情况,发现纵四极模式和横偶极模式在激发脉冲依然存在时发生干涉。最终,他们通过详细的模式分析,他们发现非线性辐射的多极特性受到脉冲的中心频率和宽度的极大影响,为线性和非线性 LSP 动力学的研究提供了新思路:通过改变入射光参数来实现不同的 LSP 动力学响应。如图 4(c)所示,该图展示的是对线性和非线性辐射的多极分析[47]。Ueno 课题组设计了一种金-氧化铝-金结构,利用上层和下层金结构产生的等离子激元之间的耦合激发了等离子激元暗模式,实现了 3 倍于金纳米棒结构的去相位时间,并且通过改变多层结构的大小,证明了近场增强的大小取决于去相位时间的长短,随着去谐程度的减小,等离子激元的去相位时间延长,就会造成更强的近场增强,并发现随着结构尺寸的增加,其去相位时间增加[1],如图 4(d)所示。Lin 课题组针对三个金纳米棒构成的石门结构,利用 7 fs 激光脉冲结合 PEEM 对该结构激发的超快等离子激元进行了直接成像,并且他们发现由于宽谱超快激光脉冲的激发,在结构的末端出现了多个等离子激元模式,在光辐射信号曲线上表现为拍频现象,如图 4(e)所示。并且,通过控制泵浦光和探测光之间的延时,他们实现了对在该复杂系统的激发热点的控制,即实现了对等离子激元动力学的控制[48]。

从以往的研究可以看出,由于 PEEM 对极小时空尺度的可探测性、对纳米结构的无损伤性以及近场的无干扰性,近年来研究者正越来越多的依托 PEEM 为代表的新技术,从对耦合情况下的动力学的极小时空尺度演化的表征出发,通过不断的设计和优化结构,来实现对 LSP-SPP 或 LSP-LSP 之间的耦合程度的控制,来达到更大的耦合长度,更长的去相位时间,或更高的近场增强效应,为新一代纳米光电子器件的研发奠定理论基础。

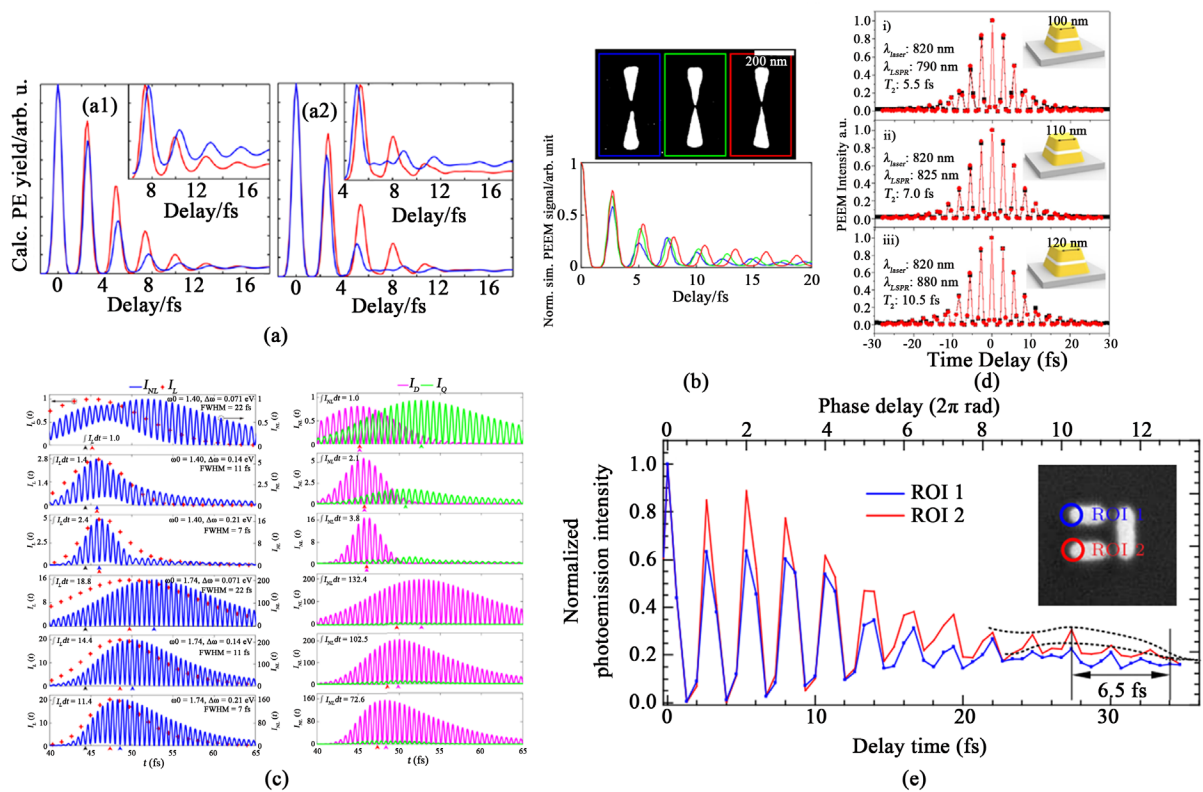


Figure 4. Plasmon dynamics under LSP-LSP coupling condition. (a1) normalized near field autocorrelation trace at the two ends of nanorice with 500 nm length [44]; (a2) normalized near field autocorrelation trace at the two ends of nanorice with 600 nm length [44]; (b) SEM image of bowties with similar shape but slightly different lateral shape and corresponding autocorrelation traces [45]; (c) multipolar analysis of the linear and nonlinear radiations. The red symbol and blue curve on the left part refer to linear and nonlinear scattered intensity respectively, and the pink and green curve on the right part refer to dipolar and quadrupolar components of the nonlinear scattered intensity [47]; (d) the PEEM correlation curve (the black line) and the numerical simulations of the time-resolved nonlinear photoemission signal (the red line) [1]; (e) evolution of the photoemission signals against delay time obtained from the two ends of the dolmen [48]

图 4. LSP-LSP 耦合等离子体动力学。(a1) 模拟得到的 500 nm 长米形结构光电子辐射的归一化近场自相关曲线，红色和蓝色曲线分别代表米形结构的两个端点的归一化近场自相关曲线[44]；(a2) 600 nm 长的米形结构的归一化近场自相关曲线[44]；(b) 形状相似、侧面形状稍有不同蝶形的 SEM 图和相应的自相关曲线[45]；(c) 对线性和非线性辐射的多极分析，其中左半部分的红色符号和蓝色曲线分别代表线性和非线性散射强度，右半部分的绿色曲线和粉色曲线分别代表非线性散射强度的偶极和四极分量[47]；(d) 实验中 PEEM 得到的自相关曲线(黑色线)和计算得到的时间分辨非线性光辐射信号(红色线) [1]；(e) 从石门结构末端测得的光辐射信号随着延时的演化[48]

4. 结束语

本文介绍了单模式和多模式情况下的等离子体动力学相关高时空近场表征研究的进展，从单模式等离子体动力学演化入手，到多模式耦合等离子体场动力学演化的表征研究。通过引入改变纳米结构的尺寸进而引入迟滞效应，设计新颖的纳米结构实现 LSP-LSP 或 LSP-SPP 之间的耦合，能够有效延长等离子体的去相位时间，从而提高近场增强强度。等离子体的近场光学特性与纳米结构的尺寸、形状和周围的介电环境有关，利用这些参数可以有效实现对等离子体动力学演化的有效调控，例如通过调节阵列参数来改变两种等离子体模式之间的耦合强度，从而控制去相位时间。当然，目前对于等离子体动力学的调控程度仍需进一步加强。并且，随着对等离子体动力学研究的深入，人们有望进一步深入揭示等离子体与物质内部电子的相互作用过程和机制，为等离子体在超快光开关、超快光子芯片、超快电子源等领域的广泛应用奠定基础。

参考文献

- [1] Ueno, K., *et al.* (2019) Control of Plasmon Dephasing Time Using Stacked Nanogap Gold Structures for Strong Near-Field Enhancement. *Applied Materials Today*, **14**, 159-165. <https://doi.org/10.1016/j.apmt.2018.12.004>
- [2] Hakala, T.K., *et al.* (2017) Lasing in Dark and Bright Modes of a Finite-Sized Plasmonic Lattice. *Nature Communications*, **8**, Article No. 13687. <https://doi.org/10.1038/ncomms13687>
- [3] Lamprecht, B., Leitner, A. and Aussenegg, F.R. (1999) SHG Studies of Plasmon Dephasing in Nanoparticles. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, **68**, 419-423. <https://doi.org/10.1007/s003400050643>
- [4] Maier, S.A. (2007) *Plasmonics: Fundamentals and Applications*. Springer, New York. <https://doi.org/10.1007/0-387-37825-1>
- [5] Barnes, W.L., Dereux, A. and Ebbesen, T.W. (2003) Surface Plasmon Subwavelength Optics. *Nature*, **424**, 824-830. <https://doi.org/10.1038/nature01937>
- [6] Sun, Q., Ueno, K., Yu, H., Kubo, A., Matsuo, Y. and Misawa, H. (2013) Direct Imaging of the Near Field and Dynamics of Surface Plasmon Resonance on Gold Nanostructures Using Photoemission Electron Microscopy. *Light: Science & Applications*, **2**, e118. <https://doi.org/10.1038/lsa.2013.74>
- [7] Hutchison, J.A., Centeno, S.P., Odaka, H., Fukumura, H., Hofkens, J. and Uji, H. (2009) Subdiffraction Limited, Remote Excitation of Surface Enhanced Raman Scattering. *Nano Letters*, **9**, 995-1001. <https://doi.org/10.1021/nl8030696>
- [8] Li, C., *et al.* (2017) Carbon Nanotubes as an Ultrafast Emitter with a Narrow Energy Spread at Optical Frequency. *Advanced Materials*, **29**, Article ID: 1701580. <https://doi.org/10.1002/adma.201701580>
- [9] Heilweil, E.J. and Hochstrasser, R.M. (1985) Nonlinear Spectroscopy and Picosecond Transient Grating Study of Colloidal Gold. *The Journal of Chemical Physics*, **82**, 4762-4770. <https://doi.org/10.1063/1.448693>
- [10] Hoggard, A., *et al.* (2013) Using the Plasmon Linewidth to Calculate the Time and Efficiency of Electron Transfer between Gold Nanorods and Graphene. *ACS Nano*, **7**, 11209-11217. <https://doi.org/10.1021/nm404985h>
- [11] Wang, F. and Shen, Y.R. (2006) General Properties of Local Plasmons in Metal Nanostructures. *Physical Review Letters*, **97**, Article ID: 206806. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.206806>
- [12] Homola, J. (2008) Surface Plasmon Resonance Sensors for Detection of Chemical and Biological Species. *Chemical Reviews*, **108**, 462-493. <https://doi.org/10.1002/chin.200818275>
- [13] Kolwas, K. and Derkachova, A. (2013) Damping Rates of Surface Plasmons for Particles of Size from Nano- to Micrometers; Reduction of the Nonradiative Decay. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, **114**, 45-55. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.08.007>
- [14] Kubo, A., Onda, K., Petek, H., Sun, Z., Jung, Y.S. and Kim, H.K. (2005) Femtosecond Imaging of Surface Plasmon Dynamics. *Nano Letters*, **5**, 1123-1127. <https://doi.org/10.1021/nl0506655>
- [15] Lange, J., *et al.* (2006) Probing Femtosecond Plasmon Dynamics with Nanometer Resolution. *Proceedings of SPIE*, **49**, 61950Z-9. <https://doi.org/10.1117/12.663097>
- [16] Ji, B., *et al.* (2017) Disclosing Dark Mode of Femtosecond Plasmon with Photoemission Electron Microscopy. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **50**, Article ID: 415309. <https://doi.org/10.1088/1361-6463/aa83a0>
- [17] Link, S. and El-Sayed, M.A. (1999) Size and Temperature Dependence of the Plasmon Absorption of Colloidal Gold Nanoparticles. *The Journal of Physical Chemistry B*, **103**, 4212-4217. <https://doi.org/10.1021/jp984796o>
- [18] Petek, H. and Ogawa, S. (1998) Femtosecond Time-Resolved Two-Photon Photoemission Studies of Electron Dynamics in Metals. *Progress in Surface Science*, **56**, 239-310. [https://doi.org/10.1016/S0079-6816\(98\)00002-1](https://doi.org/10.1016/S0079-6816(98)00002-1)
- [19] 单杭永, 祖帅, 方哲宇. 表面等离激元热电子超快动力学研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2017, 3(54): 20-30.
- [20] Link, S., Burda, C., Wang, Z.L. and El-Sayed, M.A. (1999) Electron Dynamics in Gold and Gold-Silver Alloy Nanoparticles: The Influence of a Nonequilibrium Electron Distribution and the Size Dependence of the Electron-Phonon Relaxation. *The Journal of Chemical Physics*, **111**, 1255-1264. <https://doi.org/10.1063/1.479310>
- [21] Lamprecht, B., Krenn, J.R., Leitner, A. and Aussenegg, F.R. (1999) Resonant and Off-Resonant Light-Driven Plasmons in Metal Nanoparticles Studied by Femtosecond-Resolution Third-Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, **83**, 4421-4424. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.83.4421>
- [22] Wimmer, L., Herink, G., Solli, D.R., Yalunin, S.V., Echterkamp, K.E. and Ropers, C. (2014) Terahertz Control of Nanotip Photoemission. *Nature Physics*, **10**, 432-436. <https://doi.org/10.1038/nphys2974>
- [23] Losquin, A. and Kociak, M. (2015) Link between Cathodoluminescence and Electron Energy Loss Spectroscopy and the Radiative and Full Electromagnetic Local Density of States. *ACS Photonics*, **2**, 1619-1627. <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.5b00416>
- [24] Zhang, S., Genov, D.A., Wang, Y., Liu, M. and Zhang, X. (2008) Plasmon-Induced Transparency in Metamaterials.

- Physical Review Letters*, **101**, Article ID: 047401. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.047401>
- [25] Aeschlimann, M., *et al.* (2016) Determination of Local Optical Response Functions of Nanostructures with Increasing Complexity by Using Single and Coupled Lorentzian Oscillator Models. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, **122**, 199. <https://doi.org/10.1007/s00340-016-6471-3>
- [26] Faggiani, R., Losquin, A., Yang, J., Mårzell, E., Mikkelsen, A. and Lalanne, P. (2017) Modal Analysis of the Ultrafast Dynamics of Optical Nanoresonators. *ACS Photonics*, **4**, 897-904. <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.6b00992>
- [27] Sun, Q., Yu, H., Ueno, K., Kubo, A., Matsuo, Y. and Misawa, H. (2016) Dissecting the Few-Femtosecond Dephasing Time of Dipole and Quadrupole Modes in Gold Nanoparticles Using Polarized Photoemission Electron Microscopy. *ACS Nano*, **10**, 3835-3842. <https://doi.org/10.1021/acsnano.6b00715>
- [28] Hao, F., Larsson, E.M., Ali, T.A., Sutherland, D.S. and Nordlander, P. (2008) Shedding Light on Dark Plasmons in Gold Nanorings. *Chemical Physics Letters*, **458**, 262-266. <https://doi.org/10.1016/j.cplett.2008.04.126>
- [29] Esteban, R., *et al.* (2008) Direct Near-Field Optical Imaging of Higher Order Plasmonic Resonances. *Nano Letters*, **8**, 3155-3159. <https://doi.org/10.1021/nl801396r>
- [30] Zhang, Y., Jia, T.Q., Zhang, S.A., Feng, D.H. and Xu, Z.Z. (2012) Dipole, Quadrupole and Octupole Plasmon Resonance Modes in Non-Concentric Nanocrescent/Nanodisk Structure: Local Field Enhancement in the Visible and Near Infrared Regions. *Optics Express*, **20**, 2924-2931. <https://doi.org/10.1364/OE.20.002924>
- [31] Fang, Z., Cai, J., Yan, Z., Nordlander, P., Halas, N.J. and Zhu, X. (2011) Removing a Wedge from a Metallic Nanodisk Reveals a Fano Resonance. *Nano Letters*, **11**, 4475-4479. <https://doi.org/10.1021/nl202804y>
- [32] Qin, J., Ji, B., Hao, Z. and Lin, J. (2015) Probing of Ultrafast Plasmon Dynamics on Gold Bowtie Nanostructure Using Photoemission Electron Microscopy. *Chinese Physics Letters*, **32**, Article ID: 064202. <https://doi.org/10.1088/0256-307X/32/6/064202>
- [33] Qin, Y., Ji, B., Song, X. and Lin, J. (2019) Characterization of Ultrafast Plasmon Dynamics in Individual Gold Bowtie by Time-Resolved Photoemission Electron Microscopy. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, **125**, 3. <https://doi.org/10.1007/s00340-018-7112-9>
- [34] Zentgraf, T., Christ, A., Kuhl, J. and Giessen, H. (2004) Tailoring the Ultrafast Dephasing of Quasiparticles in Metallic Photonic Crystals. *Physical Review Letters*, **93**, Article ID: 243901. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.93.243901>
- [35] Utikal, T., Zentgraf, T., Kuhl, J. and Giessen, H. (2007) Dynamics and Dephasing of Plasmon Polaritons in Metallic Photonic Crystal Superlattices: Time- and Frequency-Resolved Nonlinear Autocorrelation Measurements and Simulations. *Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics*, **76**, Article ID: 245107. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.76.245107>
- [36] Fan, S., Suh, W. and Joannopoulos, J.D. (2007) Temporal Coupled-Mode Theory for the Fano Resonance in Optical Resonators. *Journal of the Optical Society of America A*, **20**, 569-572.
- [37] Geiselmann, M., Utikal, T., Lippitz, M. and Giessen, H. (2010) Tailoring the Ultrafast Dynamics of the Magnetic Mode in Magnetic Photonic Crystals. *Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics*, **81**, Article ID: 235101. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.81.235101>
- [38] Aeschlimann, M. *et al.* (2017) Cavity-Assisted Ultrafast Long-Range Periodic Energy Transfer between Plasmonic Nanoantennas. *Light: Science & Applications*, **6**, e17111. <https://doi.org/10.1038/lsa.2017.111>
- [39] Crut, A., Maioli, P., Vallée, F. and Del Fatti, N. (2017) Linear and Ultrafast Nonlinear Plasmonics of Single Nano-Objects. *Journal of Physics: Condensed Matter*, **29**, Article ID: 123002. <https://doi.org/10.1088/1361-648X/aa59cc>
- [40] Yang, J., *et al.* (2018) Manipulation of the Dephasing Time by Strong Coupling between Localized and Propagating Surface Plasmon Modes. *Nature Communications*, **9**, 4858. <https://doi.org/10.1038/s41467-018-07356-x>
- [41] Wu, C., *et al.* (2011) Fano-Resonant Asymmetric Metamaterials for Ultrasensitive Spectroscopy and Identification of Molecular Monolayers. *Nature Materials*, **11**, 69-75. <https://doi.org/10.1038/nmat3161>
- [42] Hao, F., Nordlander, P., Sonnefraud, Y., Van Dorpe, P. and Maier, S.A. (2009) Tunability of Subradiant Dipolar and Fano-Type Plasmon Resonances in Metallic Ring/Disk Cavities: Implications for Nanoscale Optical Sensing. *ACS Nano*, **3**, 643-652. <https://doi.org/10.1021/nn900012r>
- [43] Lal, S., Link, S. and Halas, N.J. (2007) Nano-Optics from Sensing to Waveguiding. *Nature Photonics*, **1**, 641-648. <https://doi.org/10.1038/nphoton.2007.223>
- [44] Mårzell, E., *et al.* (2015) Nanoscale Imaging of Local Few-Femtosecond Near-Field Dynamics within a Single Plasmonic Nanoantenna. *Nano Letters*, **15**, 6601-6608. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.5b02363>
- [45] Lorek, E., *et al.* (2015) Size and Shape Dependent Few-Cycle Near-Field Dynamics of Bowtie Nanoantennas. *Optics Express*, **23**, 31460. <https://doi.org/10.1364/OE.23.031460>
- [46] Imaeda, K., Hasegawa, S. and Imura, K. (2018) Static and Dynamic Near-Field Measurements of High-Order Plasmon

Modes Induced in a Gold Triangular Nanoplate. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, **9**, 4075-4081.
<https://doi.org/10.1021/acs.jpcllett.8b01671>

- [47] Bernasconi, G.D., Butet, J. and Martin, O.J.F. (2018) Dynamics of Second-Harmonic Generation in a Plasmonic Silver Nanorod. *ACS Photonics*, **5**, 3246-3254. <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.8b00479>
- [48] Qin, J., *et al.* (2016) Imaging Ultrafast Plasmon Dynamics within a Complex Dolmen Nanostructure Using Photoemission Electron Microscopy. *Chinese Physics Letters*, **33**, Article ID: 116801.
<https://doi.org/10.1088/0256-307X/33/11/116801>

知网检索的两种方式:

1. 打开知网页面 <http://kns.cnki.net/kns/brief/result.aspx?dbPrefix=WWJD>
下拉列表框选择: [ISSN], 输入期刊 ISSN: 2160-7567, 即可查询
2. 打开知网首页 <http://cnki.net/>
左侧“国际文献总库”进入, 输入文章标题, 即可查询

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>
期刊邮箱: app@hanspub.org