
探针增强纳米腔中非线性和频产生的原位动态控制

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/36298.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

探针增强纳米腔中非线性和频产生的原位动态控制。 导读

近日，西班牙CIC nanoGUNE-BRTA研究中心Rainer Hillenbrand教授团队基于商业化的散射式-扫描近场光学显微镜（s-SNOM）的探针尖端，结合等离子体纳米腔，实现了非线性和频生成（Sum-Frequency Generation, SFG）的增强和原位动态控制。

研究发现，采用纳米颗粒-镜面（Nanoparticle-on-Mirror, NPoM）结构作为等离子体纳米腔，结合扫描探针尖端（如原子力显微镜尖端），形成级联场增强。探针作为宽带天线，将红外（IR）和可见光（VIS）聚焦至纳米腔间隙，实现高达14个数量级的SFG信号增强。通过调节探针与纳米腔的纳米机械间距，直接调控局部场增强（而非光强），可以有效避免样品过热，并实现高灵敏度的分子振动检测。该方法支持从太赫兹到可见光范围的宽谱场增强，无需依赖复杂设计的双共振纳米腔，适用于多种分子体系的非线性光谱研究。

该研究成果以In-operando control of sum-frequency generation in tip-enhanced nanocavities为题发表在国际顶尖光学期刊《Light: Science Applications》上。论文通讯作者为Rainer Hillenbrand教授，Philippe Roelli博士后研究员为论文第一作者和共同通讯作者。

研究背景

和频生成是一种二阶非线性光学过程，广泛用于表面和界面的单分子层灵敏表征。其原理是通过IR和VIS的共振激发，产生频率为两者之和的信号（ $\omega_{\text{SFG}} = \omega_{\text{IR}} + \omega_{\text{VIS}}$ ），从而揭示分子振动模式和界面特性。然而，传统SFG受限于衍射极限，难以实现纳米级空间分辨率。且非线性过程的信号强度与光强的平方成正比，传统SFG需高功率脉冲激光（易损伤样品），且难以实现单分子灵敏度。

等离子体纳米腔提供了一种有效的解决方案，通过金属纳米结构（如纳米颗粒-镜面结构，NPoM）的局域表面等离子体共振（LSPR），可增强局域光场，提升非线性响应。此类结构在表面增强拉曼散射（SERS）等领域已广泛应用。为实现高效SFG，需同时满足IR与VIS频段的共振（双共振腔设计），但此类结构依赖精密纳米加工，且光谱范围窄、难以适配不同分子振动模式。并且，由于腔模与振动模式的耦合效率受限于固定几何参数，导致其缺乏动态调控能力。此外，在传统方法中，金属表面的非共振非线性响应会掩盖分子信号，需要复杂光谱分离或相位调制技术。

创新研究

探针增强纳米腔中的非线性光学响应

为解决以上问题，研究团队提出一种通过尖端增强纳米腔（Tip-Enhanced Nanocavities）结合扫描探针技术。利用原子力显微镜（AFM）金属探针作为宽带近场天线，通过避雷针效应（Lightning Rod Effect）在IR与VIS频段同时增强局域场，并将光场聚焦至NPOM间隙（ $\sim 1\text{ nm}$ ），形成级联增强。基于Jablonski能级图，图1展示了尖端增强纳米颗粒-镜面（NPOM）腔内的非线性光学过程，揭示了分子振动介导的SFG与差频生成（DFG）的物理机制及调控策略。

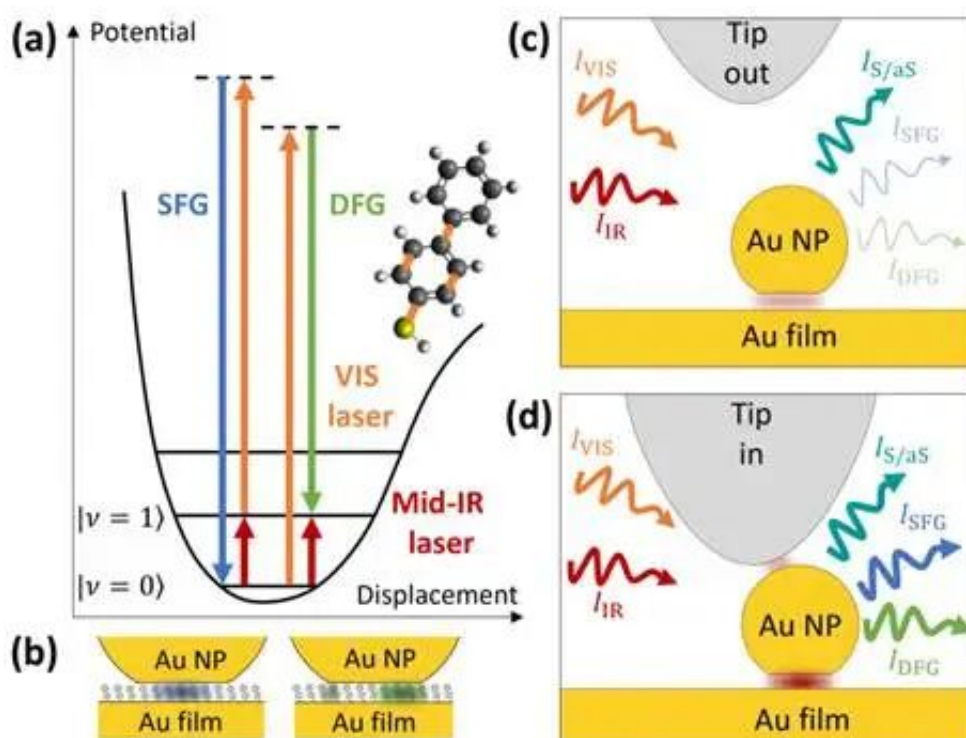


图1. 探针增强NPOM腔内的非线性光学（图源fig.1）。

基于s-SNOM探针实现纳米腔增强SFG的原位动态操控

研究团队通过实验-模拟闭环验证了尖端增强NPOM腔的级联场调控机制，证明了SFG纳米成像的技术可行性。其核心价值在于将机械自由度引入非线性光学，通过纳米机械定位尖端实现信号调控，为单分子传感和动态光子器件提供了范式突破。其中，探针尖端作为宽带IR天线，通过级联近场增强（避雷针效应和等离子体共振）实现SFG信号的纳米尺度激发与调控。其中，SFG信号强度与尖端位置强相关，为纳米机械控制非线性光学响应提供了直接证据。并且，无需双共振腔设计，通过单一尖端实现宽IR频段（ $1080\text{--}1585\text{ cm}^{-1}$ ）的SFG增强。此外，利用高阶谐波解调（S3）结合位置依赖信号提取，有效抑制非共振背景（如金表面非线性响应）。

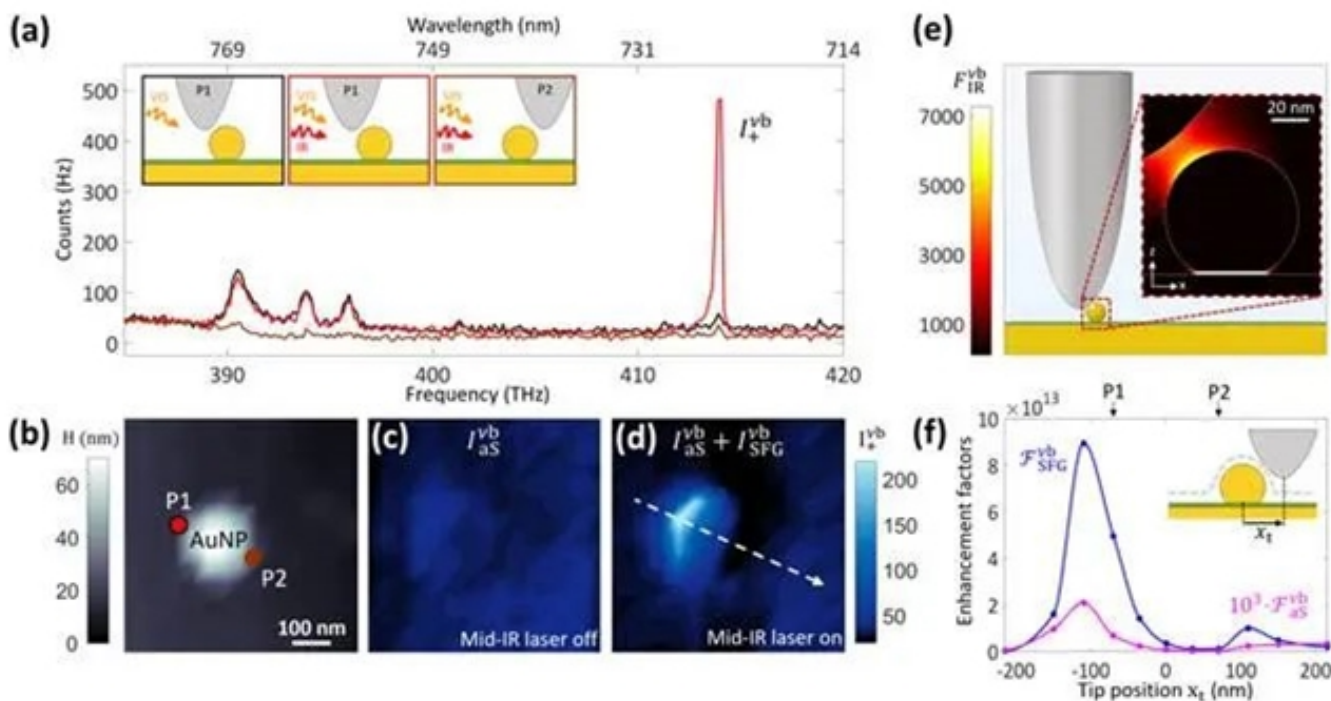


图2. 探针控制的纳米腔增强SFG（图源fig.2）。

总结与展望

本文通过探针增强纳米腔技术，基于s-SNOM实现了连续波激光激发下高效、可控的SFG信号生成，为非线性纳米光学提供了新范式。其核心价值在于原位动态调控局域场增强与宽谱适用性，为分子振动光谱学、单分子传感和光子学器件开发开辟了重要路径。（来源：LightScienceApplications微信公众号）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41377-025-01855-5>

作者：Rainer Hillenbrand 来源：《光：科学与应用》

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发