

表面等离子体亚波长光学前沿进展*

张斗国 王沛 焦小瑾 唐麟 鲁拥华 明海†

(中国科学技术大学物理系 合肥 230026)

摘要 目前表面等离子体激元(surface plasmon polaritons, SPPs)在光存储、光激发、显微术以及生物光子学等领域中的应用前景受到了广泛的关注. 文章介绍了 SPPs 的基本性质和表面等离子体亚波长光学(surface plasmons subwavelength optics)研究中的热点问题及发展方向.

关键词 亚波长光学 表面等离子体激元 纳米光子器件

Progress in surface plasmon subwavelength optics

ZHANG Dou-Guo WANG Pei JIAO Xiao-Jin TANG Lin LU Yong-Hua MING Hai†

(Department of Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract Now great attention is being paid to the potential applications of surface plasmon polaritons (SPPs) in data storage, light generation, microscopy and bio-photonics. We review the properties of SPPs and topics of recent interest in surface plasmon subwavelength optics.

Keywords subwavelength optics, surface plasmon, nanoscale optical devices

1 引言

表面等离子体激元(surface plasmon polaritons, SPPs)就是局域在金属表面的一种由自由电子和光子相互作用形成的混合激发态^[1]. 在这种相互作用中,自由电子在与其共振频率相同的光波照射下发生集体振荡. 这种表面电荷振荡与光波电磁场之间的相互作用就构成了具有独特性质的 SPPs.

通过改变金属表面的(亚波长)结构,表面等离子体激元的性质,特别是与光的相互作用,也随着变化. 表面等离子体激元为发展新型光子器件、宽带通讯系统、尺度远小于现在能够达到水平的微小光子回路、新型光学传感器和测量技术提供了可能^[2,3]. 目前,表面等离子体亚波长光学成为光学和光子学中迅速发展的研究方向之一.

本文中我们介绍 SPPs 的基本性质、激发方式,特别介绍它在亚波长光学中的热点问题以及 SPPs 研究的发展方向^[4].

2 表面等离子体激元的基本性质及其激发方式

图 1 所示的是在金属薄膜界面上沿 x 方向传播的 SPPs,其电场方程表示为^[1]

$$E_{\text{sp}}(x, z) = E_0 e^{ik_{\text{sp}}x - k_z|z|}, \quad (1)$$

上式表明在垂直于金属表面的方向电场强度是呈指数衰减的,对应于 SPPs 的表面局域特性. SPPs 另一个独特的性质是近场增强,场增强的程度取决于金属的介电系数、表面粗糙程度引起辐射损耗以及金属薄膜的厚度. 在理想平滑表面最大可能的增强可表述为^[1]

$$\left| \frac{E_{\text{sp}}^{z=0}}{E_{\text{light}}} \right|^2 = \frac{2}{\varepsilon_i} \frac{|\text{Re}\varepsilon_m|^2}{|\text{Im}\varepsilon_m|} \frac{a}{1 + |\text{Re}\varepsilon_m|}, \quad (2)$$

* 国家自然科学基金(批准号:90206002,10474093)、中国高技术研究发展计划(批准号:2002AA313030)、安徽省自然科学基金(批准号:03046204)资助项目

2004-11-18 收到初稿,2005-03-07 修回

† 通讯联系人. Email: minghai@ustc.edu.cn

其中 $a^2 = |\text{Re}\epsilon_m|(\epsilon_s - 1) - \epsilon_s E_{\text{light}}$ 是入射光的强度 ϵ_s 是金属薄膜下面的介质的介电常数. 比如, 当用红光照射 60nm 厚的银膜激发 SPPs 时, 电场强度可以提高两个数量级以上^[1].

在平滑表面传播的 SPPs 的色散关系表达式是:

$$k_{\text{sp}}^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \frac{\epsilon_i \epsilon_m}{\epsilon_i + \epsilon_m}, \quad i = 1, 2. \quad (3)$$

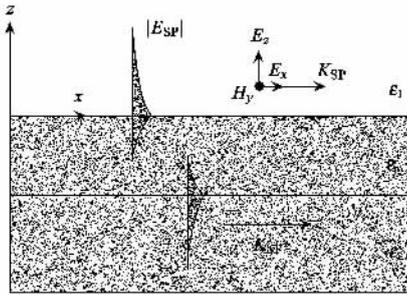


图1 在金属介质界面上传播的 SPPs^[1]

图2 所示的就是 SPPs 和光子的色散曲线, 由图可以看出 SPPs 的波矢大于光子波矢, 所以在光滑平面上无法直接和光耦合. 这也说明 SPPs 的短波长特性.

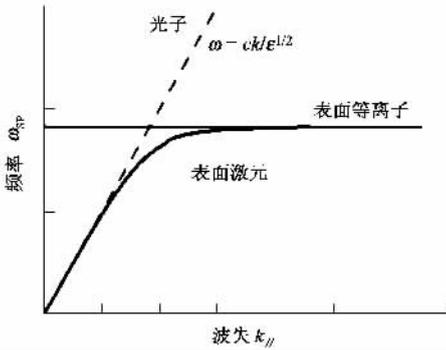


图2 SPPs 的色散曲线和光波的色散曲线^[1]

要使光子和 SPPs 的波矢相匹配可以利用全内反射中的光子隧道效应(Kretschmann 结构或者 Otto 结构)或者利用衍射效应(如图3所示^[5]).

图3(a)所示的是 Kretschmann 结构, 入射光以大于全内反射角的角度入射到棱镜金属的界面, 当满足 $k_{\text{sp}} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_{\text{prism}}} \sin\theta$ 时, 即可有效地激发 SPPs.

图3(b)是双层 Kretschmann 结构, 在两个界面均可激发 SPPs. 图3(c)所示是对应于金属薄膜很厚的情况下激发 SPPs 所采用的 Otto 结构, 这种结构的共振条件和 Kretschmann 结构一样. 图3(e)所示是利用近场衍射效应激发 SPPs. 匹配条件是:

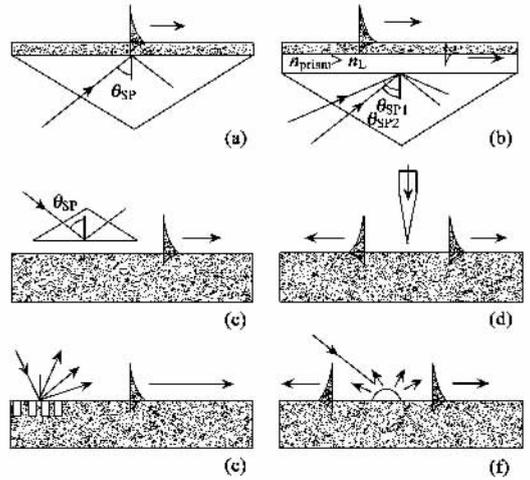


图3 激发 SPPs 的结构图^[5] (a) Kretschmann 结构 (b) 双层 Kretschmann 结构; (c) Otto 结构 (d) 利用 NSOM 探针激发; (e) 光栅衍射激发 (f) 粗糙表面的激发

$$k_{\text{sp}} = \frac{\omega}{c} n_s (\sin\theta) u_{xy} \delta_p \pm p \frac{2\pi}{D} u_x \pm q \frac{2\pi}{D} u_y, \quad (4)$$

式中 u_{xy} 是入射光方向的单位矢量, u_x, u_y 分别是周期性结构的单位矢量, θ 是入射角. 对于 P 偏振光 $\delta_p = 1$, 对于 S 偏振的 $\delta_p = 0$, n_s 是与金属接触的介质的介电常数. D 是周期(我们默认 x 方向和 y 方向的周期是一样的). p, q 是整数, 对应于不同的衍射级次. 对于粗糙的表面, 可以不需要其他特别的结构就可以激发 SPPs, 如图3(f)所示. 这是因为在近场区域内的衍射场包含了所有的波矢. 这是一种非共振激发 SPPs 的方法, 激发效率低. 近场扫描光学显微镜(NSOM)的探针可以在给定表面上的任意一点激发 SPPs, 如图3(d)所示, 这种激发方式既可以理解为是由于隧道效应产生的也可以认为是衍射效应引起的.

3 当前表面等离子体亚波长光学研究的热点问题

3.1 SPPs 光场的探测方法研究

目前 SPPs 的性质和金属表面结构之间的关系不是很清楚, 而与 SPPs 相关的器件就是利用 SPPs 在金属表面的传播行为和光场分布特性制成的, 因此更详细地了解 SPPs 的传播行为是非常有必要的. 由于 SPPs 是局域在金属表面且涉及到亚波长尺度的结构, 因此传统的光学检测手段无法探测 SPPs 的传播和分布. 目前探测 SPPs 光场分布最好的手段是

利用光子扫描隧道显微镜(PSTM)或者处于接收模式的近场扫描光学显微镜(NSOM). 如图 4 所示就是用 PSTM 探测到的金属颗粒的相互作用的光场分布图和数值模拟的结果^[6]. 如果在金属的表面制作一些特定结构就可以控制 SPPs 的传播. 比如说合适的金属长条可以用来做 SPPs 波导, 又比如在周期性调制的光子表面上引入线缺陷就可以用来制作 SPPs 波导. 图 4 所示的排成一条线的金属颗粒就可以用来传 SPPs^[6].

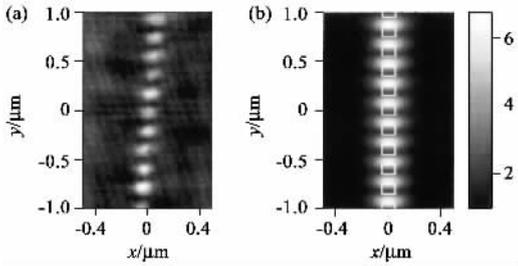


图 4 (a)PSTM 探测的金属颗粒之间相互作用形成的光场分布 (b)FDTD 数值模拟的结果^[9]

3.2 SPPs 带隙结构的研究

最近 15 年来光子晶体的研究成为光子学的一个热点问题. 这些有关光子晶体的器件主要是由一些半导体或者绝缘材料制成的. 利用这些材料制成的波长量级的结构可以用来控制光与物质的相互作用. 金属材料也可以是用来制作光子带隙结构, 如图 5(a)所示^[7], 金属表面上波长量级的周期性结构可以用来改变在其上传播的 SPPs 的性质. 当这种结构的周期小于 SPPs 模的有效波长的一半时, SPPs 的散射将会产生 SPPs 行波和 SPPs 禁带, 色散曲线将会不连续, 如图 5(b)所示. 对于频率处在色散曲线的带隙范围内的, SPPs 模式密度等于零, 也就是说在这个频率不能产生 SPPs, 而在带隙边缘, SPPs 模式的色散曲线是平滑的, 也就是说 SPPs 模式密度很高, 对应着在金属表面电场强度得到了增强. 纳米量级的金属颗粒阵列的局域表面等离子激元也可能产生这种光子带隙现象^[8]. 金属颗粒的 SPPs 带隙模式的频率和宽度与它的形状、大小、材料、周围介质有关, 因此可以用来发展新型传感器^[9].

3.3 金属微孔结构和狭缝阵列结构的研究

1998 年, Ebbesen 在 Nature 上发表了亚波长金属小孔阵列结构的异常透过现象的文章^[10], 实验结果表明, 该结构的透过光强不仅远高于经典衍射理论计算结果, 而且大于按照小孔所占金属表面的面积比的计算结果, 这就意味着照在小孔之间的光也

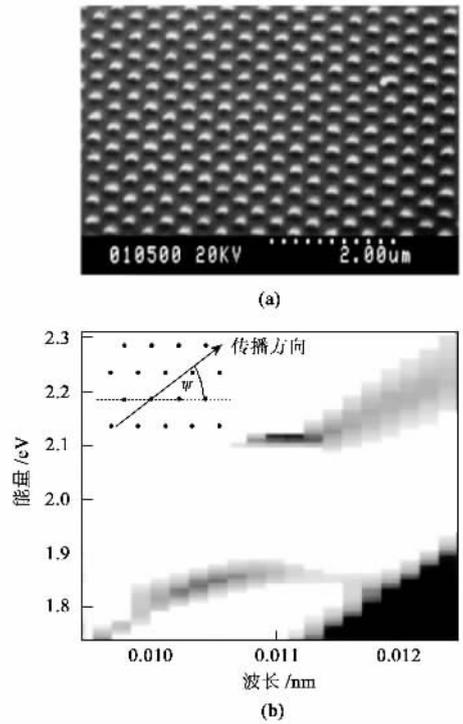


图 5 (a)金属带隙材料结构 (b)色散曲线^[6]

能通过某种方式耦合到金属膜的另一边. 对于这种增强的一般的解释是: 当光照射在这些亚波长小孔的表面发生衍射和散射, 将会在其上产生倏逝场, 这些倏逝场一部分由于隧道效应穿透到小孔的另一面, 在另外一面倏逝场将会被散射, 这样将会形成传播场, 在这里 SPPs 的近场增强特性对倏逝场的衰减进行了补偿, 有效地提高了能量的传输效率. 在金属薄膜足够薄的时候, 金属上下表面的 SPPs 将会发生重叠并通过小孔发生相互作用. 但是现在关于这种透过增强的机理还不是十分清楚, SPPs 在其中的作用还有不同的解释.

2002 年, Ebbesen 又在 Science 上发表了利用准周期金属微结构控制出射光束质量的实验文章^[11]. 这种结构如图 6 所示: 图 6(a)所示的是小孔, 在小孔的周围刻有周期性的同心圆沟槽结构, 该周期性结构与特定波长的入射光相互作用激发 SPPs, 由此产生透过增强效应. 在出射端刻有同样的周期性结构, 透过小孔的光有很好的方向性. 图 6(b)所示的结构是在金属膜中间刻一长条, 在入射面和出射面长条两边都刻有光栅, 这种准周期性金属微结构可以很好地控制出射光的能量和方向性. 图 6(c)所示是数值模拟的两边有周期性沟槽的单个长条出射光场分布, 沟槽的周期是 500nm, 沟槽深 100nm, 宽 40nm, 从图中我们可以看到从长条出射的光束方向

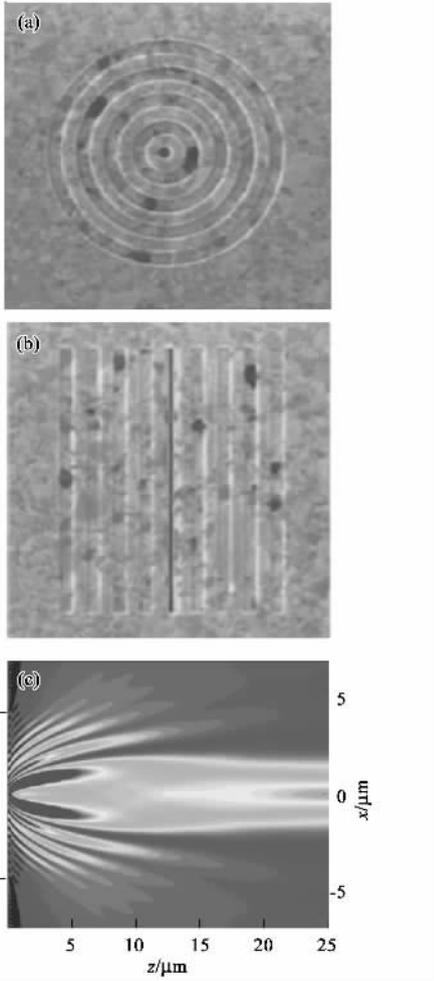


图6 (a)单个小孔结构 (b)单个长条 (c)经过单个长条的光束准直效应^[13]

性和强度都很好,因此可以作为一个新型的光源,在高密度磁光存储以及近场探测中都有很好的应用。

最近,我们研究小组利用时域有限差分法对金属狭缝阵列结构的透过机理进行了系统深入的分析。首次发现了表面等离子体谐振模式中存在的类Fabry-Perot效应,揭示了表面等离子体谐振模式和波导谐振模式两种透过增强机制在物理本质上的-致性,全面描述了SPPs对该结构近、远场光学特性和能量耦合传输过程的影响^[12]。

3.4 SPPs在纳米光刻中的应用

由于光学衍射极限的存在,传统的光学刻写方法无法刻出超衍射极限的精细结构。采用近场光学的方法则可以突破衍射极限,刻出超精细结构。2004年,Luo提出了表面等离子体干涉纳米光刻技术(surface plasmon resonance interference nanolithography technique, SPRINT),该技术利用具有短波特性的SPPs的干涉效应产生超精细光场进行刻写。图7

(a)所示的就是SPRINT的结构示意图^[13],入射光的波长是436nm,在石英衬底上有一层周期是300nm金属光栅,当入射光的波长满足一定的条件时,将会在金属光栅上激发SPPs,SPPs相互干涉形成周期比金属光栅小的另一套光场光栅。图7(b)所示的就是用时域有限差分法模拟SPPs干涉的结果,干涉效应形成的光场光栅周期为100nm,小于波长的一半(218nm)。图7(c)是利用该结构所做的实验结果,由图可见刻出光栅的周期为100nm,说明该结构可以突破衍射极限。

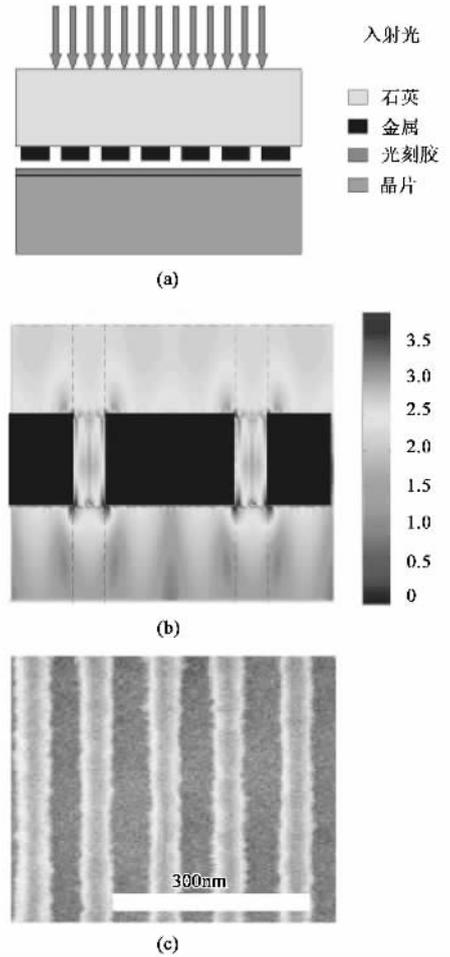


图7 (a)利用SPPs干涉光刻结构图 (b)数值模拟的结果 (c)实验的结果^[14]

我们研究小组对这种结构进行了系统深入的数值模拟分析,发现该技术对光栅和光刻胶之间的间隙有苛刻的要求,增加了实用难度。2004年又有学者提出利用金属银膜的完美透镜效应进行光刻的技术^[14]。图8(a)所示的是利用银膜在特性波长下的完美透镜特性制成的光刻结构,图8(b)所示的是利用时域有限差分法模拟这种银膜对倏逝场的聚焦特

性. 这种结构对光栅和光刻胶之间的间隙要求不是很苛刻. 基于此, 我们提出了一种新型近场超分辨光刻技术——SPPs 干涉完美成像技术的设计方案, 数值模拟的结果表明该结构不仅能保持很高的空间分辨率也具有更好的空间容忍度^[15].

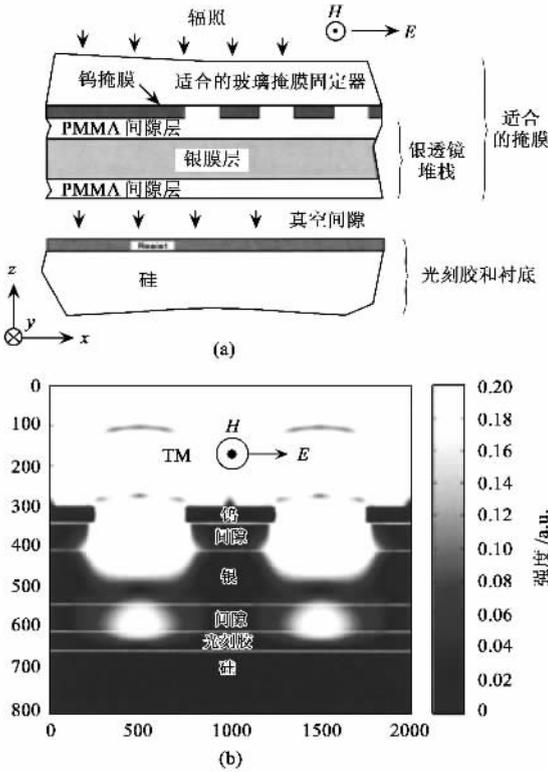


图 8 (a) 利用银膜超透镜效应的光刻结构 (b) 数值模拟的结果^[15]

4 表面等离子体亚波长光学的其他发展方向

SPPs 除了在小尺度光子回路上有很好的应用外, 在其他的光子技术方面也有很好的应用前景. 最显著的就是在光的产生方面, 比如在有机发光二极管、量子阱激光器光子等器件中的应用^[16-18], 这些都是表面等离子体亚波长光学的发展方向. 另外, 由于 SPPs 将光的能量聚集在亚波长结构中会引起电

场强度的增强, 从而会产生非线性现象, 因此可以利用这个效应发展近场非线性光学^[19, 20]. 如利用非线性现象制作纳米量级的光学开关, 又如, 用于探测新分子的近场拉曼光谱仪经常利用表面等离子体共振增强效应来增强光信号^[21]. 同时负折射率介质是当前国际研究的热点问题, 研究发现, 这种特殊物质的一些奇特性质可以利用金属材料来实现, 并且和 SPPs 密切相关, 这也为 SPPs 研究和应用开辟了一条新道路^[22].

参 考 文 献

[1] Raether H. Surface Plasmons. Ed. Hohler G. Springer, Berlin, 1988

[2] Hecht B, Bielefeldt H, Novotny L *et al.* Phys. Rev. Lett., 1996, 77 : 1889

[3] Pendry J. Science, 1999, 285 : 1687

[4] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W. Nature, 2003, 424 : 824

[5] Zayats A V, Smolyaninov I I. J. Opt. A. 2003, 5 : S16

[6] Krenn J R *et al.* Phys. Rev. Lett., 1999, 82 : 2590

[7] Kitson S C, Barnes W L, Sambles J R. Phys. Rev. Lett., 1996, 77 : 2670

[8] Ed. Schiller D. Special issue : Optical Properties of Nanoparticles. Appl. Phys. B. 2001, 73

[9] Schultz D A. Curr. Opin. Biotechnol. 2003, 14 : 13

[10] Ebbesen T W, Lezec H J, Ghaemi H F *et al.* Nature, 1998, 391 : 667

[11] Lezec H J *et al.* Science, 2002, 297 : 1895

[12] Jiao X, Wang P, Ming H *et al.* Appl. Phys. B 2005, in press

[13] Luo X G *et al.* Appl. Phys. Lett., 2004, 84 : 4780

[14] David O S *et al.* Appl. Phys. Lett., 2004, 84 : 4403

[15] Jiao X J, Wang P, Ming H *et al.* 2005, submitted

[16] Andrew P, Kitson S C, Barnes W L. J. Mod. Opt. 1997, 44 : 395

[17] Westphalen M, Kreibig U, Rostalski J *et al.* Sol. Energy Mat. Sol. Cells 2000, 61 : 97

[18] Tredicucci A *et al.* Appl. Phys. Lett., 2000, 76 : 2164

[19] Coutaz J L, Neviere M, Pic E *et al.* Rev. B, 1985, 32 : 2227

[20] Tsang T Y. F. Opt. Lett., 1996, 21, 245

[21] Kneipp K *et al.* Phys. Rev. Lett., 1997, 78 : 1667

[22] Kik P G, Maier S A, Atwater H A. Phys. Rev. B, 2004, 69 : 45418