

## 第1章 绪论

### 1.1 引言

1905年，爱因斯坦发表了《关于光的产生和转化的一个启发性观点》的学术论文，有力的支持了普朗克的“能量子”假说，并且首次提出了“光量子”（light quantum）的概念<sup>[1]</sup>。1926年，物理化学家吉尔伯特·路易士在他的一个假设性理论中赋予了“光量子”一个新的现代名称——“光子”（photon）<sup>[2]</sup>。在路易士的理论中，photon指的是辐射能量的最小单位，其“不能被创造也不能被毁灭”。尽管当时路易士的假设性理论与大多数实验结果相违背从而未得到公认，photon这一名称却很快被很多物理学家所采用。

光子是传递电磁相互作用的基本粒子，是一种规范玻色子。与大多数基本粒子（如电子）相比，光子的静止质量为零，这意味着其在真空中的传播速度是光速。与其他量子一样，光子具有波粒二象性：光子能够表现出经典波的折射、干涉、衍射等性质。相比于电子，光子在信息处理和传输等领域有着更大的潜在优势和自由度。因此有科学家曾预言，“光子技术将引起一场超过电子技术的产业革命”，并“将给工业和社会带来比电子技术更为巨大的冲击”。然而在过去的几十年里，集成电子学的发展方兴未艾。如今，32nm制程下的金属栅极晶体管的栅极长度仅为30纳米，并且栅极间距也缩小到了100nm以下。这些改进对于缩小集成电路尺寸、提高晶体管的性能至关重要。相比之下，典型的光学器件（例如全光耦合器以及各种掩埋型矩形光波导等）由于受到光学衍射极限的限制，其横向尺寸一般仍在微米或者亚微米量级上，这严重制约了光学器件的集成度，并且在无形中提高了器件的制作成本。从集成电子学的发展史来看，减小光学器件的特征尺寸以及提高其集成度，将是推动光子技术和集成光学发展的关键。

纳米光学（Nano-optics or Nanophotonics）便是在这样的背景下产生的一门交叉前沿科学<sup>[3]</sup>。纳米光学指的是在光学近场条件下，利用纳米量级的光学器件与光学近场之间的局域电磁相互作用来实现对光学信息的处理和调制。在纳米光学中，传统的干涉、衍射概念不再适用，取而代之的是一些全新的概念。相比于电子器件，纳米光学器件在信息传输速度，存储能力，并行处理能力和抗干扰能力

等方面有着无可比拟的优势，代表了未来器件的发展方向。有鉴于此，对纳米光学的研究也已经列入了国家中长期的科技发展规划。

在纳米光学中，有一个很庞大的分支学科，称为“表面等离子体光学”（Plasmonics），旨在研究光子与纳米金属结构表面共振产生的表面等离子体（Surface Plasmons, SPs）的特性及其在纳米光学器件和相关纳米技术中的各种潜在应用<sup>[4]</sup>。究其本源，表面等离子体是一种基于外界电磁辐射和金属表面传导电子相互作用，从而在金属和介质交界面处产生的电子集群振荡。相比于自由空间的光波，亚波长特性和非辐射特性是表面等离子体的两个重要特征，也是其在纳米尺度上实现电磁能量局域增强的前提。近年来，随着纳米尺度下加工和表征技术的不断发展，表面等离子体激起了研究人员们极大的研究兴趣，各种基于表面等离子体特性的新颖光学效应层出不穷，例如超分辨率成像<sup>[5-23]</sup>，新型发光二极管<sup>[24-35]</sup>，微尺度纳米激光<sup>[36-42]</sup>等。除此之外，表面等离子体的相关特性还在许多交叉学科例如高密度光学存储，高效率光电转换，生物光子学等领域内显示出了极具潜力的应用前景。因此，对表面等离子体特性的研究具有十分重要的现实意义，它将为高集成度，高性能的纳米光学器件和相关纳米技术取得突破性进展提供必要的契机。

在本章中，我们先简单回顾一下表面等离子体研究的历史背景以及近些年来在此领域内取得的重要进展，然后在此基础上阐明我们的研究目标和主要研究内容，最后介绍本论文的章节安排。

## 1.2 表面等离子体研究的历史背景及概况

首先我们将目光放回到一个世纪前。1902年，Wood在金属光栅的反射光谱中观察到了和表面等离子体有关的异常吸收峰（也称为Wood异常）<sup>[43]</sup>。不过限于当时的知识背景，这一现象并没有和金属表面的电磁波联系起来。直到大约40年以后，才由Fano首次提出了Wood现象和沿着金属表面传播的电磁波共振有密切关系<sup>[44]</sup>。随后Hessel和Oliner也提出了相同的观点，从而证明了Wood异常现象是由金属表面的电磁波共振激发而引起的<sup>[45]</sup>。在1968年，Otta利用衰减式全内反射（attenuated total reflection, ATR）方法在可见光波段内激发了金属

的表面波<sup>[46]</sup>。同年, Kretschmann 和 Raether 改进了 Otta 结构, 利用 Kretschmann 结构同样在可见光波段成功地激发了金属的表面波, 同时“表面等离子体(Surface Plasmon)”这一说法也被统一用来描述这些极化的金属表面波<sup>[47]</sup>。

1984 年, 世界上第一台近场光学扫描显微镜 (Near-field scanning optical microscope, NSOM) 在苏黎世 IBM 研究中心诞生。近场光学扫描显微镜的出现, 使近场探测金属表面能量分布成为可能, 从而使表面等离子体研究进入了一个崭新的时期, 出现了大量表征表面等离子体特性的实验性成果, 并由此逐渐形成了控制表面等离子体传播行为的二维表面等离子体光学<sup>[48]</sup>。

1998 年, Ebbesen 发表了关于金属小孔阵列异常透射的著名论文<sup>[49]</sup>, 打破了经典理论中对小孔能量透射的解释, 在国际范围内引起了对表面等离子体亚波长金属结构研究的广泛兴趣。2003 年, 《Nature》专门发表了 Ebbesen 等撰写的综述性评论文章“Surface Plasmon Subwavelength Optics”<sup>[50]</sup>, 对表面等离子体在周期结构中的能带特性和基于表面等离子体的纳米光学器件原理进行了评述, 并正式提出了表面等离子体亚波长光学 (SPSO) 这一全新的学科概念。从科学技术的发展来看, 近场光学理论的日益完善和纳米加工表征技术的不断进步使得这一学科的出现具有其必然性。至此, 对表面等离子体的研究达到了一个全新的高度, 各种学科间的交叉应用不断涌现。

### 1.3 表面等离子体的研究进展

由于表面等离子体研究领域正处于一个飞速发展的黄金时期, 很难将所有技术进展一并概括, 因而这里我们仅选取一些具有代表意义的研究成果加以介绍, 以期让读者对表面等离子体相关的纳米光学器件及纳米技术研究现状和前景有一个基本的概念和认识。

#### 1.3.1 超分辨光学成像

光学成像的分辨率要受到衍射极限的限制。衍射极限起源于光的波动本性及电磁波的传输特性, 但衍射极限也并非是不可逾越的屏障。2005 年, 加州大学

伯克利分校的研究小组利用超透镜 (Superlens) 结构实现了 365nm 波长下的超分辨成像<sup>[8]</sup>。图 1.1 (a) 给出了超透镜成像的基本结构示意图。其中 35nm 厚的银膜被用作为超透镜沉积在 40nm 厚的 PMMA 缓冲层上。当 TM 偏振态的入射光波经过物掩模散射后, 其透过银膜所成的像便记录在了银膜上方的光刻胶中, 类似于光刻的曝光过程。图 1.1 (b) ~ (d) 给出了超透镜成像的实验结果。其中图 1.1 (b) 是用聚焦离子束加工出的物掩模, 字母的线宽约为 40nm, 远小于入射光波长 365nm。图 1.1 (c) 和 (d) 分别给出了包含和不包含银膜时光刻胶中得到的图形。我们可以明显看到当使用银膜超透镜时, 曝光得到的图形线宽非常接近原来的物掩模, 约为 90nm, 突破了 365nm 波长的衍射极限。而不使用超透镜时, 其曝光图形线宽由于受到衍射限制, 约为 360nm, 远大于物掩模。同年, 新西兰的坎特伯雷大学 Blaikie 小组也进行了类似的试验并得到近似的试验结果<sup>[9]</sup>。

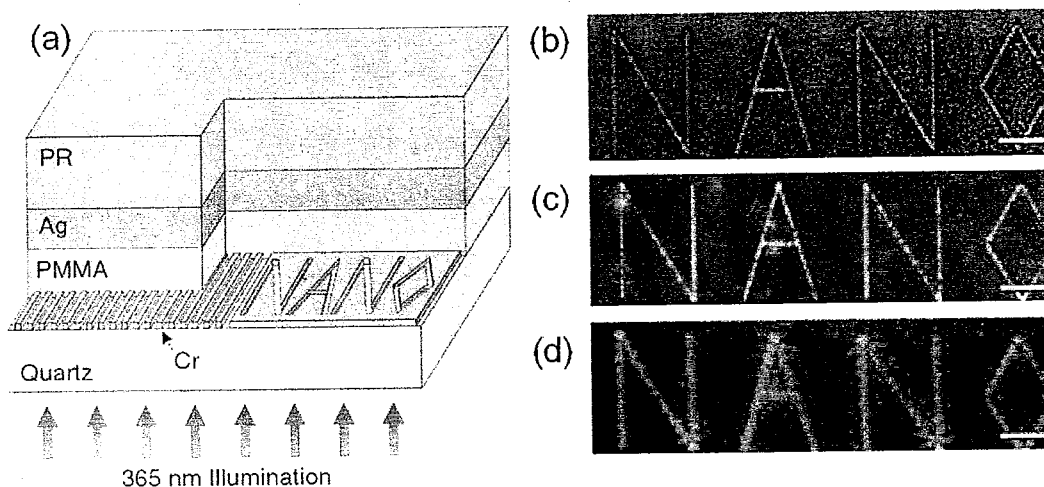


图 1.1 (a) 超透镜成像基本结构示意图; (b) Superlens 超分辨成像实验中用的物掩模; (c) 加入银膜层的成像效果; (d) 没有银膜层的成像效果。引自文献<sup>[8]</sup>

### 1.3.2 表面等离子体增强型发光二极管

尽管氮化镓 (InGaN) LED 已经迈入了商用化进程, 但是其发光效率仍然受到了很大的限制, 从而不能完全代替传统的发光装置——白炽灯泡。基于此, 加州理工学院的研究人员设计了一种表面等离子体增强型的 InGaN 量子阱发光器件。他们利用表面等离子体来增强半导体的自发辐射速率, 从而提高器件的内

量子效率和发光效率<sup>[26]</sup>。

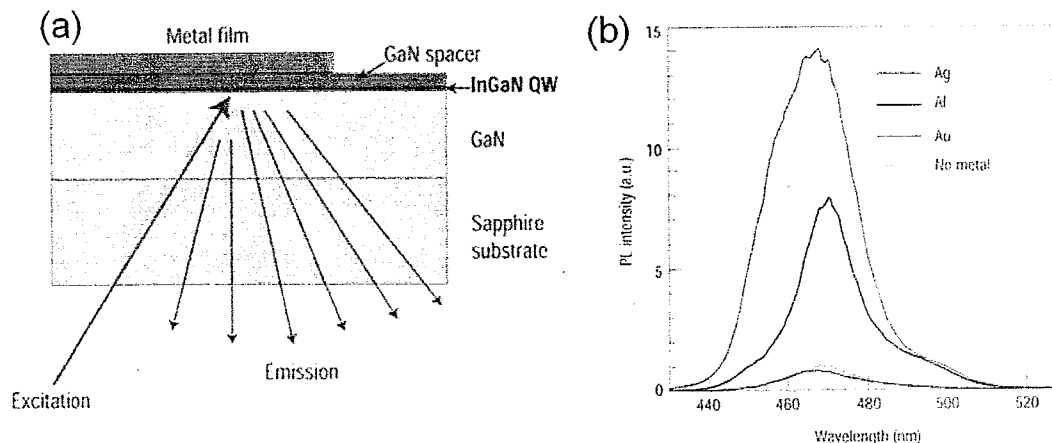


图 1.2 (a) 表面等离子体增强型 InGaN 量子阱发光器件结构示意图, 其中 GaN 间隔层厚度为 10nm, 金属膜材料分别为金, 银和铝; (b) 不加金属薄膜和加不同金属薄膜 (金, 银和铝) 情况下器件光致发光能量对比曲线。引自文献[26]

图 1.2 (a) 给出了这种 InGaN 量子阱发光器件的结构示意, 从光致发光能量分布曲线图 1.2(b) 可以看出对于镀有银膜的器件, 其能量峰值大约出现在 470nm 波长处, 约为没有金属膜结构的 14 倍。光致发光效率得到提高的原因可以用表面等离子体的耦合效应来解释。当 InGaN 量子阱中激起的电子-空穴对能量和金属表面的等离子能量相似时, 电子-空穴对便会在金属和半导体的交界面上形成一种电子振荡, 也就是耦合激发了表面等离子体, 从而增加了自发辐射速率。从图 1.2 (b) 也可以看出相比于金膜和铝膜, 银膜有最好的发光增强效果, 这是因为银和氮化镓 (GaN) 的结构组合中银的等离子体能量 ( $\hbar\omega_{sp}$ ) 约为 3eV, 非常适合在蓝光波段实现表面等离子体共振从而得到最大发光增强因子。将表面等离子体的增强效应用于发光器件对于制造高发光效率的新型固态光源有着极其重要的意义。

### 1.3.3 微尺度表面等离子体激光

光子集成电路 (Photonic circuitry) 的特征尺寸一般为纳米量级。在这么小的

集成电路中,普通的激光光源已经不再适用。因而如何设计出元件尺寸远小于工作波长范围的激光器对于将来光子集成电路的实用化显得尤为重要。表面等离子体具有很强的空间局域特性,从理论上讲可以用来设计微尺度的谐振腔从而大大减小激光器的体积。

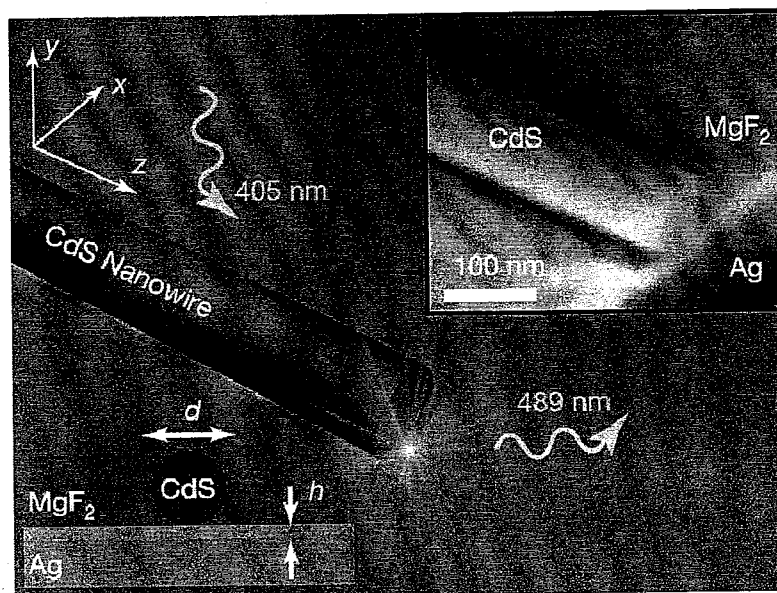


图 1.3 表面等离子体纳米激光器结构示意图。其中 CdS 纳米线的直径约为 100nm,氟化镁层的厚度为 5nm。引自文献[39]

2009年,加州大学伯克利分校的研究小组利用硫化镉(CdS)纳米线制作出了一个迄今为止最小的半导体激光器<sup>[39]</sup>。整个表面等离子体半导体激光器结构如图 1.3 所示,一根直径约为 100nm 的硫化镉纳米线和银基底被一层厚度约为 5nm 的氟化镁隔开。这种结构支持一种新的混合表面等离子体模式(hybrid plasmon mode),其模式尺寸可以小于工作波长的百分之一<sup>[51]</sup>。当用 405nm 波长的入射光泵浦硫化镉纳米线之后,硫化镉产生的波长约为 489nm 的激子谱线便局域在氟化镁层之间传播。由于产生的激光能量主要以混合表面等离子体模式在氟化镁这一低损耗介质层之中传播,相比于一般纳米线激光器其传播损耗很小,因而实用性大大增加。此外由于氟化镁层厚度极小(约为激光波长的百分之一),因而此种半导体激光器为探索光与物质极限相互作用提供了可能,开创了光子集成电路,量子信息技术,操控和表征 DNA 分子等领域研究的新途径。

### 1.3.4 表面等离子体光存储器件

信息产业的不断进步对数据存储和传输的能力提出了越来越高的要求。传统的 DVD 和 CD 以二维方式将数据存储在其表面，而全息光盘则是以三维方式存储数据。2009 年，澳大利亚斯温伯恩科技大学的研究人员提出了一种五维光学材料，能在多个维度存储数据，并对激光的不同波长和偏振作出响应<sup>[52]</sup>。该种新型光学响应材料可使现今 DVD 大小的光盘的存储容量提高 4 个数量级。

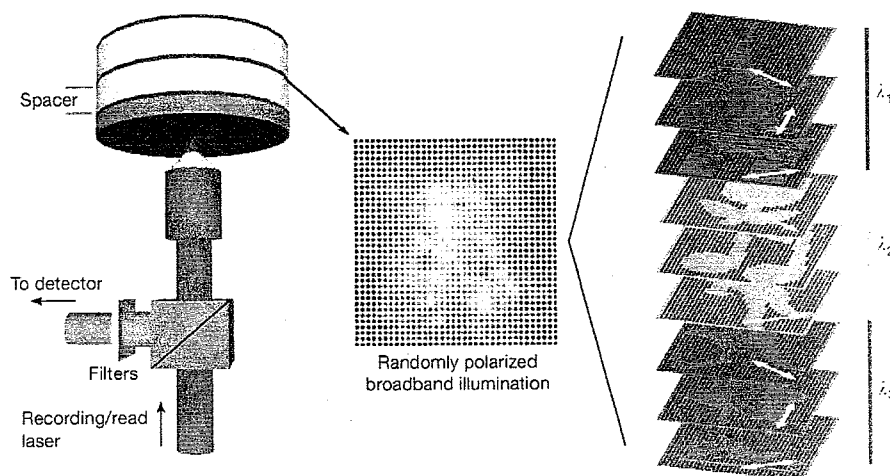


图 1.4 五维表面等离子体光存储技术示意图。引自文献[52]

这种新的存储设备由悬浮在玻璃基板上透明塑料板内的金纳米棒层组成，在材料的同一区域内多种数据图案可在互不干扰的情况下被读取和刻写，如图 1.4 所示。新增加的两个维度指利用光波长的“色维”和利用光偏振的“偏振维”。增加的这两维是导致光盘存储容量大幅增加的关键。他们采用该方案在同一个物理地址利用 3 种颜色和 2 个偏振方向来刻写数据，其光盘存储容量能达到 7.2TB，如果使用高重复频率激光源的话，存储速度能高达 1Gbit/s。利用双光子发光结合纵向表面等离子共振可以检测到存储信息，对比于传统的线性检测机制，这种检测方法拥有增强的波长和角度选择性，能够做到无损坏、无串话读取。该技术成功地突破了光学衍射极限，将光盘数据存储量提升了几个数量级，对光存储领域意义重大，同时也在医疗、金融、军事、安全编码和银行等需要数据加密的领域显示出了巨大的应用前景。

## 1.3.5 可见光波段的负折射率材料

前苏联科学家 Veselago 于 1968 年从纯理论角度提出了一种假想的具有负折射率的介质材料，并从理论上对这种介质材料进行了系统的研究<sup>[53]</sup>。尽管负折射率材料具有许多奇特和有趣的电磁性质，但是由于自然界中并不存在这种天然材料，因而 Veselago 的研究结果没有引起当时学术界的重视。直到几十年之后，随着人工电磁学研究的深入，人们发现可以利用亚波长结构例如金属线阵列<sup>[54]</sup>或者开口环阵列<sup>[55]</sup>来获得负的介电常数和负的磁导率，从而实现材料的负折射率效果。微波波段的负折射率材料已经利用上述的亚波长金属结构通过实验进行了验证<sup>[56]</sup>；但由于受到加工条件的限制，在可见光波段构造负折射材料还有很大难度，特别是负磁导率的构造。有鉴于此，加州理工学院的研究人员于 2010 年提出了一种新的单层环形波导阵列结构来实现可见光波段的负折射率材料<sup>[57]</sup>，如图 1.5 所示。

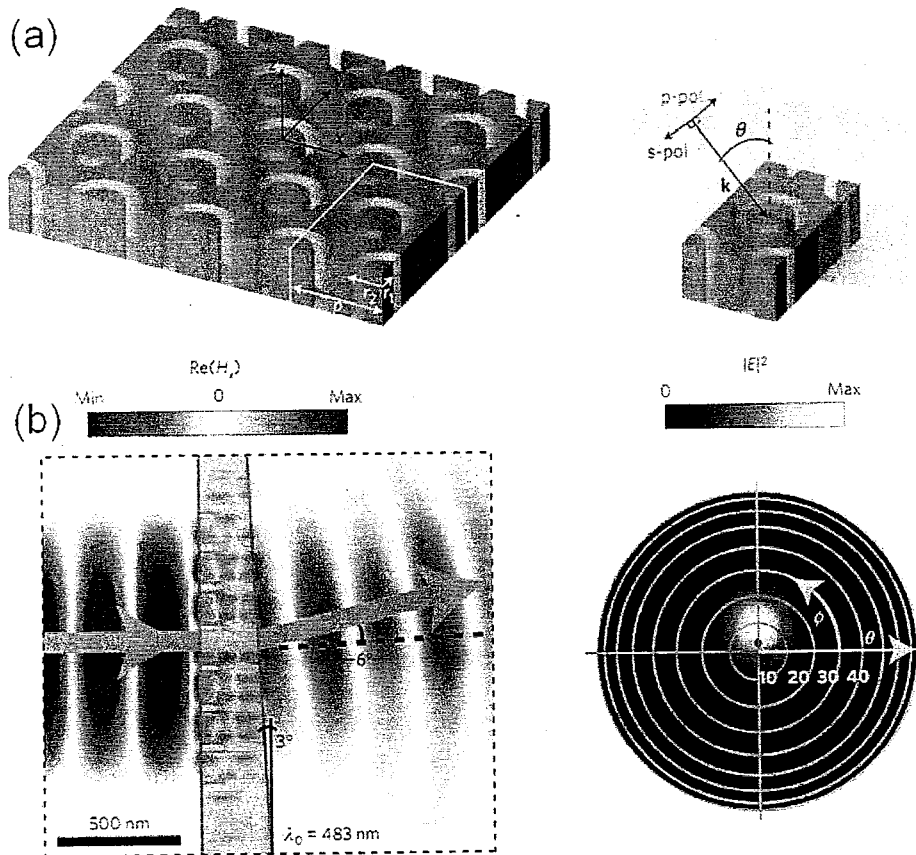


图 1.5 (a) 由银和磷化镓组成的单层环形波导阵列结构示意图；(b) 由单层环形波导阵列结构组成的“棱镜”对入射光实现负折射效果。引自文献<sup>[57]</sup>

这种由银和磷化镓组成的单层结构主要利用了环形波导中表面等离子体的模式分布存在一个反常的色散区域来实现负折射率。在此区域内，色散曲线的斜率为负值，换句话说就是在环形波导结构中电磁波的相速度和群速度相反，从而体现出负折射率的特性。图 1.5 (b) 给出了由这种环形波导结构组成的一个“棱镜”，当波长为 483nm 的入射光入射到“棱镜”表面时，可以明显的看到折射光呈现出负的折射角，从而证明这种材料具有负折射率特性。负折射率材料的概念对科学界有着强烈的冲击，从这一角度出发，研究人员又发现了许多关于负折射率材料的特异性质，例如负的古斯汉辛位移，超分辨率成像等。这方面的研究和已有的许多学科紧密相连，具有很强的学科交叉性。

通过以上的实例我们可以看到表面等离子体在纳米光学应用领域中的巨大潜在价值，这点已经为国际范围内的学者和业界人士所共识。该领域的机理和应用研究正在不断的更新和深化，从而促使这一研究领域显示出了无穷的学科生命力。

#### 1.4 本文的主要研究内容及章节安排

本文侧重研究表面等离子体亚波长金属结构在纳米光学器件及纳米光刻技术中的应用基础。通过理论推导和计算，本文详细分析了表面等离子体在亚波长金属结构中的基本电磁特性。基于这些特性，我们设计和验证了一系列纳米光学器件，并提出了三种新型的高分辨率纳米光刻方案。

全文共分 6 章，每章的内容安排如下：

第一章：绪论。首先简要介绍了表面等离子体的研究背景以及近些年来在此领域内取得的一些具有代表意义的突破性进展，然后明确了本文的主要研究内容。

第二章：表面等离子体研究的理论基础。主要讨论表面等离子体的基本电磁性质和各种光致激发方式及其特点，之后简单介绍三种在本文中用于表面等离子体电磁仿真的算法原理。

第三章：基于表面等离子体亚波长金属结构的纳米光学器件研究。利用表面等离子体在亚波长金属-介质-金属 (Metal-Insulator-Metal, MIM) 波导结构中的传播性质，设计了多种工作在可见光波段的纳米光学器件，包括金属纳米透镜，

光束偏折器, 高分辨率彩色滤光片, 并通过电子束沉积(Electron Beam Deposition)和聚焦离子束直写(Focus Ion Beam)等方法对其中的一些器件做了实验验证。

第四章: 表面等离子体亚波长金属结构在薄膜光伏技术中的应用基础研究。将表面等离子体 MIM 波导结构和薄膜光伏技术相结合, 探讨了用金属纳米光栅代替传统的铟锡金属氧化物(ITO)作为透明电极的可行性, 并利用纳米压印光刻(Nanoimprint Lithography)技术加工和测试了具有 MIM 结构的表面等离子体增强型有机薄膜太阳能电池。

第五章: 表面等离子体亚波长金属结构与纳米光刻技术的结合研究。在详细讨论了表面等离子体在单层和多层 MIM 结构中传输耦合机理的基础上, 提出了三种新型的高分辨干涉光刻技术方案, 并通过电磁仿真进行了原理性验证。

第六章: 结束语。对本论文工作的创新点进行总结以及对未来工作的展望。

## 第 2 章 表面等离子体研究的理论基础

表面等离子体是一种基于外界电磁辐射和金属表面传导电子相互作用，从而在金属和介质交界面处产生的电子集群振荡。在本章中，我们先介绍和分析表面等离子体本身的各种电磁性质，包括存在条件，色散分布，激发方式，特征常数等，为下面章节讨论基于表面等离子体亚波长金属结构的纳米光学器件和光刻技术奠定理论基础。此外，我们还在本章结尾部分简单介绍了几种在本论文中涉及到的关于表面等离子体电磁仿真的算法原理，以期读者对其有更全面的了解。

### 2.1 表面等离子体存在的基本条件

位于金属表面的自由电子在外界电磁场的作用下会产生表面电子集群运动。对于一束由介质射向金属交界面的横磁 (transverse magnetic, TM) 偏振态的电磁波来说，由于其在交界面上垂直于金属表面两侧的电场分量不连续，那么自由电子便会在金属表面处积累形成表面感应电荷密度 (如图 2.1 所示)。如果此时这些感应电荷受到外加电磁场平行于交界面的电场驱动，那么其就会沿金属表面产生振荡从而形成表面等离子体。

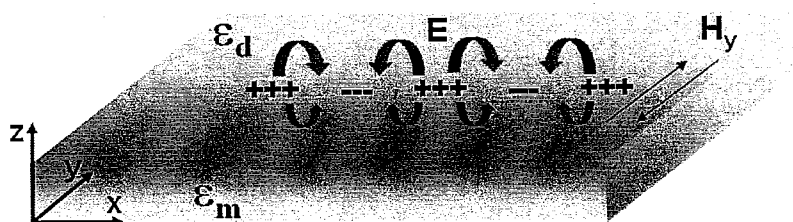


图 2.1. 金属和介质交界面处自由电子的集群振荡。

为了更好地理解表面等离子体的存在条件，我们首先来推导无限大金属和介质交界面上表面等离子体的色散方程。如图 2.1 的结构所示，假定  $z=0$  是金属介质的交界面， $z < 0$  是金属部分， $z > 0$  是介质材料部分； $\epsilon_m$  和  $\epsilon_d$  分别代表各向同性的金属和介质的介电常数。对于沿  $x$  方向传播的 TM 偏振态 (磁场方向平行于  $y$  方向，与  $xz$  面垂直) 的电磁波，其磁场和电场在介质和金属中的分布为：

当  $z > 0$  时,

$$\begin{aligned} H_1 &= (0, H_{y1}, 0)e^{i(k_x x + k_{z1} z - \omega t)} \\ E_1 &= (E_{x1}, 0, E_{z1})e^{i(k_x x + k_{z1} z - \omega t)}, \end{aligned} \quad (2.1)$$

当  $z < 0$  时,

$$\begin{aligned} H_2 &= (0, H_{y2}, 0)e^{i(k_x x - k_{z2} z - \omega t)} \\ E_2 &= (E_{x2}, 0, E_{z2})e^{i(k_x x - k_{z2} z - \omega t)}, \end{aligned} \quad (2.2)$$

其中下标 1 和 2 分别表示介质和金属区域;波矢  $k_x$ ,  $k_{z1}$  和  $k_{z2}$  满足以下色散关系:

$$\begin{aligned} k_x^2 + k_{z1}^2 &= \varepsilon_d \left(\frac{\omega}{c}\right)^2, \\ k_x^2 + k_{z2}^2 &= \varepsilon_m \left(\frac{\omega}{c}\right)^2, \end{aligned} \quad (2.3)$$

对式 (2.1) 和 (2.2) 利用无源麦克斯韦方程中的关系式  $\nabla \times \vec{H}_i = \varepsilon_{(d,m)} \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{E}_i}{\partial t}$ ,  $i=1,2$  以及交界面  $z=0$  处的电磁场边界条件 (切向磁场和电场连续, 法向电位移矢量连续) 我们可以得到:

$$\frac{k_{z1}}{\varepsilon_d} + \frac{k_{z2}}{\varepsilon_m} = 0, \quad (2.4)$$

由于  $k_{z1}$  和  $k_{z2}$  都是正数, 所以  $\varepsilon_d$  和  $\varepsilon_m$  的符号相反。由式 (2.4) 可以推得表面等离子体存在的一个基本条件: 表面等离子体只存在于两种介电常数相反的材料交界面上。在可见光波段, 一些贵金属例如金, 银, 铝和普通绝缘介质的介电常数正好满足这一条件, 因而在其交界面上可以支持表面等离子体的存在。

将式 (2.3) 代入到式 (2.4) 中, 我们便可以得到 TM 偏振态下表面等离子体在金属介质表面的色散关系:

$$k_{sp} = k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d}}, \quad (2.5)$$

由于金属存在损耗,  $\varepsilon_m = \varepsilon'_m + \varepsilon''_m i$  为复数。考虑到光频段范围内金属良导体材料

$\varepsilon'_m \gg \varepsilon''_m$ , 表面等离子体横向传播波矢  $k_x = k'_x + ik''_x$  可以简化为:

$$k'_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon'_m \varepsilon_d}{\varepsilon'_m + \varepsilon_d}}, \quad (2.6)$$

$$k''_x = \frac{\omega}{c} \left( \sqrt{\frac{\varepsilon'_m \varepsilon_d}{\varepsilon'_m + \varepsilon_d}} \right)^3 \frac{\varepsilon''_m}{2(\varepsilon'_m)^2}, \quad (2.7)$$

为了保证  $k'_x$  有意义, 除了满足前面提到的基本条件  $\varepsilon_d$  和  $\varepsilon_m$  的符号相反外, 还需要满足  $|\varepsilon'_m| > \varepsilon'_d$ , 对于大多数金属材料和工作频段在本征频率附近的掺杂半导体材料来说这一条件也是可以实现的。

接下来我们来推导横电 (transverse electric, TE) 偏振态电磁波的情况。对于 TE 偏振态 (电场方向平行于  $y$  方向, 与  $xz$  面垂直) 的电磁波, 其磁场和电场在介质和金属中的分布为:

当  $z > 0$  时,

$$\begin{aligned} H_1 &= (H_{x1}, 0, H_{z1})e^{i(k_x x + k_{z1} z - \omega t)} \\ E_1 &= (0, E_{y1}, 0)e^{i(k_x x + k_{z1} z - \omega t)} \end{aligned} \quad (2.8)$$

当  $z < 0$  时,

$$\begin{aligned} H_2 &= (H_{x2}, 0, H_{z2})e^{i(k_x x - k_{z2} z - \omega t)} \\ E_2 &= (0, E_{y2}, 0)e^{i(k_x x - k_{z2} z - \omega t)} \end{aligned} \quad (2.9)$$

同样对式 (2.8) 和 (2.9) 利用麦克斯韦方程组中的关系式  $\nabla \times \vec{E}_i = -\mu_{(d,m)} \frac{\partial \vec{H}_i}{\partial t}$ ,  $i=1,2$  以及  $z=0$  处的电磁场边界连续条件我们可以得到:

$$E_{y1}(k_{z1} + k_{z2}) = 0, \quad (2.10)$$

由于一般情况下对于非磁性材料磁导率  $\mu=1$ , 所以在推导中我们近似认为  $\mu_d = \mu_m = 1$ 。假如存在 TE 偏振态的表面等离子体, 则  $k_{z1}$  和  $k_{z2}$  都应为正数, 从而由式 (2.10) 可知  $E_{y1}$  为 0, 并可以推得  $E_{y2}$  以及各个磁场分量也都为 0, 因而不存在 TE 偏振态的表面等离子体。所以 TM 偏振态光波的激发是表面等离子体存在的另外一个基本条件。

## 2.2 表面等离子体的基本电磁特性

现在我们重新回到讨论表面等离子体的色散特性上。从式 (2.5) 可以看出, 表面等离子体在半无穷大金属介质交界面上的传播特性完全由频率和材料介电常数决定。由于不存在结构色散并且加之大部分介质的材料色散非常小, 所以表面等离子体的色散行为基本由金属的材料色散所决定。正因为这样, 在进行表面等离子体相关的数值仿真计算时, 选择一个合适的色散模型来描述金属材料对计算结果的精确度和准确性至关重要。目前, 常用的金属色散模型主要有 Drude

模型, Debye 模型和 Lorentz 模型, 且每种模型都有其自身的优势和适用范围。大量文献研究指出, 对于可见光到近红外波段, 采用 Drude 模型描述的金属介电常数和实验测得的实际值吻合度非常高, 因而在这里我们先对 Drude 模型本身的物理含义做一个简单介绍。

### 2.2.1 金属材料的 Drude 模型

Drude 模型最早是在 1900 年时由德国物理学家 Paul Drude 提出并用来描述电子在金属材料中的传输特性<sup>[58]</sup>。在 Drude 模型中, 我们认为密度为  $n$  的自由电子气在正离子的背景中运动, 且自由电子和包括原子核在内的其它粒子之间没有任何的电磁相互作用。电子在运动过程中由于受到外界电磁场的影响而产生振荡并且反作用于电子, 这种相互作用通过碰撞频率  $\gamma = 1/\tau$  来描述, 其中  $\tau$  为自由电子的弛豫时间, 其大小约等于电子的平均自由路径与费米速度的比值。

自由电子气中的电子在外界电场  $\bar{E}$  的作用下的运动方程可以由式 (2.11) 表示:

$$m \frac{d\bar{x}^2}{dt^2} + m\gamma \frac{d\bar{x}}{dt} = -e\bar{E}, \quad (2.11)$$

其中  $m$  是电子质量,  $\bar{x}$  是电子位移,  $e$  是电子电量。如果电场  $\bar{E}$  是以时谐的形式  $\bar{E} = \bar{E}_0 e^{-i\omega t}$  存在, 则式 (2.11) 有一个描述电子振动的特解  $\bar{x}(t) = \bar{x}_0 e^{-i\omega t}$ 。将解代入式 (2.11) 可以得到

$$x(t) = \frac{e}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} \bar{E}(t), \quad (2.12)$$

所以由自由电子运动引起的电极化强度可以精确表示为

$$\bar{P} = -ne\bar{x} = -\frac{ne^2}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} \bar{E}, \quad (2.13)$$

根据电位移矢量  $\bar{D}$  与极化强度  $\bar{P}$  之间的关系  $\bar{D} = \epsilon_0 \bar{E} + \bar{P}$  我们可以得到

$$\bar{D} = \epsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}\right) \bar{E}, \quad (2.14)$$

其中  $\omega_p = \sqrt{ne^2 / (\epsilon_0 m)}$  为金属的等离子体频率（一般金属例如金，银，铝的等离子体频率都位于紫外和深紫外频率范围内）。由式 (2.14) 便可以得到金属的相对介电常数为

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}, \quad (2.15)$$

式 (2.15) 便是 Drude 模型下金属相对介电常数的表达式，其在光波频率远小于金属等离子体频率的条件下 ( $\omega \ll \omega_p$ ) 可以很好的描述金属的色散特性。不过当光波频率接近等离子体频率时，Drude 模型描述的金属介电常数和经常和实验测量值之间存在一定的偏差。这是由于在以上的推导中，我们假定金属是一种理想的自由电子模型，从而忽略了金属电子能带结构中的电子带间跃迁对介电常数带来的影响。为了解决电子带间跃迁对金属介电常数带来的影响，我们可以对 Drude 模型做一定的修正，最常用的方法就是把极化强度修改为  $\vec{P}_\infty = \epsilon_0(\epsilon_\infty - 1)\vec{E}$ ，其中  $\epsilon_\infty$  表示电子带间跃迁的贡献。修正以后的 Drude 模型为

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}, \quad (2.16)$$

这一修正后的 Drude 模型可以在高频范围内准确描述金属的介电常数。在本文中，除非特别声明，一般情况下金属的介电常数都用这种 Drude 模型来描述。

### 2.2.2 表面等离子体的色散特性

首先，根据式 (2.6) 和 (2.7) 以及 Drude 模型，我们给出在金膜和空气交界处表面等离子体的色散曲线，如图 2.2 所示。其中金的 Drude 模型参数如下： $\omega_p = 9\text{ev}$ ， $\gamma = 67\text{mev}$ ， $\epsilon_\infty = 9.84$ 。我们利用这个表面等离子体的色散分布来描述其一般的色散特性。

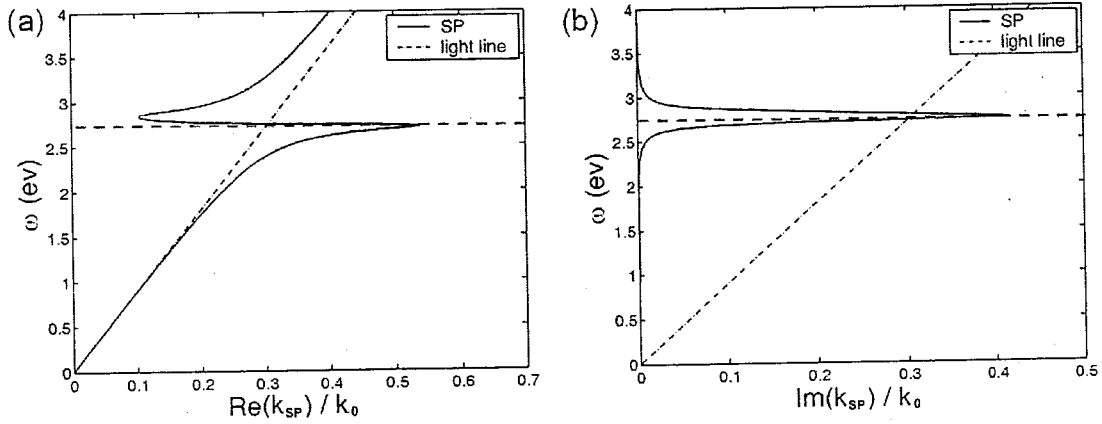


图 2.2 金膜和空气交界面处的表面等离子体色散曲线 (a) 波矢实部; (b) 波矢虚部。

从图 2.2 可以看出表面等离子体色散曲线有几个明显特征：1. 色散曲线位于光锥线右侧，也就是表面等离子体波长比介质中光波长更短；2. 当金属介电常数与介质介电常数匹配时，即  $\epsilon'_m + \epsilon_d \approx 0$ ，发生表面等离子体共振，其共振频率用  $\omega_{sp}$  表示，对应波矢趋于极大值（红色虚线处），也就是相应的表面等离子体波长达到极小值。这意味着，即便在可见光波段，也可以通过表面等离子体共振实现几十纳米波长。不过由于此时损耗最强，表面等离子体能量被局域在非常小的范围；3. 光波频率在共振频率  $\omega_{sp}$  以上时，传统的表面等离子体不再存在。而光波频率在等离子体频率  $\omega_p$  之上时，金属介电常数实部为正值，此时金属对电磁波是透明的。在光波频率介于这两者之间时 ( $\omega_{sp} < \omega < \omega_p$ )，色散曲线存在一段反常区域：其波矢随频率的增大而减小。根据群速度的定义  $v_g = d\omega/dk$  可知这一区域内模式的群速度为负值，从而可以推出其群折射率也为负值，因此我们可以利用这一特殊的色散区域来实现等效的负折射率材料<sup>[57,59-60]</sup>。

### 2.2.3 表面等离子体的特征参数

接下来我们讨论表面等离子体的几个特征参数，包括其横向波长  $\lambda_{sp}$ ，横向传播距离  $L_{sp}$  以及在金属和介质内部的纵向穿透深度  $z_m$  和  $z_d$ ，从中我们可以进一步了解表面等离子体的各种电磁性质。

首先我们根据式(2.6)我们可以推出表面等离子体波长的表达式为

$$\lambda_{sp} = 2\pi/k'_{sp} = \lambda_0 \sqrt{\frac{\epsilon'_m + \epsilon_d}{\epsilon'_m \epsilon_d}}, \quad (2.17)$$

这里的 $\lambda_0$ 为入射光在自由空间的波长。由于一般的介质材料 $\epsilon_d \geq 1$ , 所以 $\sqrt{(\epsilon'_m + \epsilon_d)/\epsilon'_m \epsilon_d}$ 总是小于1, 也就是说表等离子体的波长 $\lambda_{sp}$ 总是小于光在自由空间或者介质中的等效波长。例如在银膜和二氧化硅的交界面上, 对于自由空间波长为633nm的入射光, 其激发的表面等离子体波长 $\lambda_{sp}$ 约为410nm, 小于其在二氧化硅中的等效波长433nm。我们可以利用这一性质来实现利用长波长光波激发短波长表面等离子体的应用, 例如表面等离子体光刻以及各种亚波长功能器件。

接下来我们考虑表面等离子体的横向传播距离 $L_{sp}$ 。由于表面等离子体是在金属和介质的交界面上传播, 并且金属都存在一定的损耗, 因而表面等离子体一般都只有有限的传播距离。这里传播距离 $L_{sp}$ 定义为表面等离子体的强度衰减到初始值 $1/e$ 时所传播的距离, 其值可以由式(2.7)推出

$$L_{sp} = 1/2k''_x = \frac{\lambda_0 (\epsilon'_m)^2}{2\pi \epsilon''_m} \left( \sqrt{\frac{\epsilon'_m + \epsilon_d}{\epsilon'_m \epsilon_d}} \right)^3, \quad (2.18)$$

在可见光波段, 表面等离子体的传播长度一般为几十到几百微米。例如入射光波长为442nm和780nm时, 表面等离子体在空气和银膜界面上的传播长度分别约为 $20\mu\text{m}$ 和 $200\mu\text{m}$ 。表等离子体的传播距离直接决定了基于表面等离子体原理的纳米光学器件的最大长度, 因而式(2.18)对指导和设计纳米光学器件具有重要意义。

最后我们再来考虑表面等离子体在金属和介质交界面上的纵向穿透深度。同样的, 此处的穿透深度定义为电磁振幅降为初始值 $1/e$ 时的纵向传播距离。在金属和介质中的穿透深度 $z_m$ 和 $z_d$ 分别为

$$z_m = 1/k_{z2} = \frac{\lambda}{2\pi} \left( \frac{\epsilon'_m + \epsilon_d}{\epsilon_m'^2} \right)^{1/2}, \quad (2.19)$$

$$z_d = 1/k_{z1} = \frac{\lambda}{2\pi} \left( \frac{\epsilon'_m + \epsilon_d}{\epsilon_d'^2} \right)^{1/2},$$

由于表面等离子体是束缚在金属介质交界面传播的电磁波, 其纵向波矢 $k_{z1}$ 和 $k_{z2}$ 都是虚数, 因而其振幅在金属和介质中都呈指数形式衰减。由式(2.19)可

以看出，表面等离子体在介质中的穿透深度  $z_d$  约为波长量级，而在金属中的穿透深度则要小的多，约为波长的  $1/10 \sim 1/100$ 。例如在 633nm 波段，空气和银膜交界面处的表面等离子体在空气和银膜中的穿透深度分别为 432nm 和 22nm，从中可以看出金属对表面等离子体有很强的局域作用。

图 2.3 给出了对于不同的金属和入射光波长，表面等离子体这四个特征参数的比较。从图中可以看出对于低损耗的金属例如银，在近红外波段其表面等离子体的传播距离可以达到毫米级别，完全可以满足一般纳米光学器件例如表面等离子体光波导的功能要求。相比之下，对于高损耗金属铝虽然其传播距离降为微米级别，但是其在金属中的穿透深度却只有 10nm 左右，局域性远远好于银，可以用于某些对能量局域性要求比较高的纳米功能器件中。

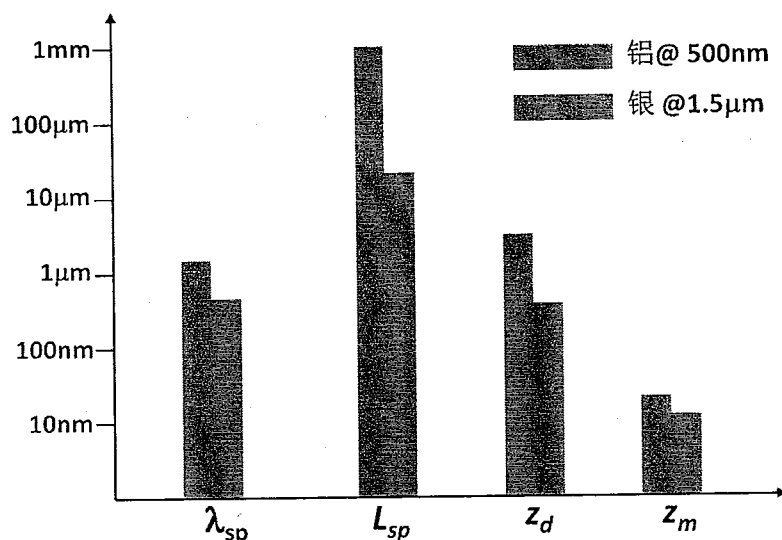


图 2.3 在金属和空气交界面处传播的表面等离子体的特征参数。其中铝和空气交界面处的入射光波长为 500nm，银和空气交界面处的入射波长为 1.5μm。

### 2.3 表面等离子体的耦合激发

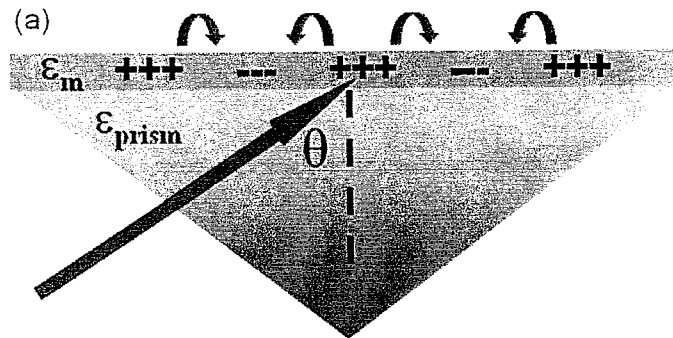
正如图 2.2 所示，表面等离子体的色散曲线位于光锥线右侧，在介质区域传输的电磁波无法激发表面等离子体。为此需要引入某种机制，减小光锥线的斜率或平移光锥线，从而使其和表面等离子体色散曲线在交汇处动量匹配，实现电磁能量耦合注入激发表面等离子体模式。常见的光学激发方式主要有三种：棱镜激发，光栅激发和表面缺陷激发。下面分别对其分析讨论。

### 2.3.1 棱镜激发

光子隧穿效应造成的衰减全反射 (ATR) 是棱镜激发表面等离子体的基本原理。相比于自由空间, 高折射率棱镜中的光锥线斜率较小, 因而可以和表面等离子体的色散曲线有交点, 满足激发条件 (如图 2.4 (b) 所示), 入射光的波矢在构成棱镜的光密材料中得到补偿。当入射光在棱镜中产生全反射并且其波矢和表面等离子体波矢相匹配时, 共振形成的电磁能量就会穿过金属薄膜从而在金属和介质的交界面上产生表面等离子体, 并且其波矢满足:

$$k_{sp} = n_p k_0 \sin \theta, \quad (2.20)$$

其中  $n_p$  为棱镜的折射率,  $\theta$  为入射角。这种方式共振激发表面等离子体时, 可以在角度反射谱中观察到很尖锐的极小值 (如图 2.4 (c) 所示), 此时入射光能量几乎全部耦合激发形成表面等离子体。偏离该角度, 反射谱强度迅速增大, 意味着大部分能量没有有效激发表面等离子体模式。另外, 金属膜厚度选择至关重要。金属膜太厚增加了耦合距离, 不利于提高激发效率。金属膜太薄则导致表面等离子体能量重新耦合到棱镜中。从图 2.4 (c) 中可以看出, 最佳银膜厚度为 50nm, 对应 95% 以上能量耦合到表面等离子体模式。棱镜激发方式简单易行, 激发效率高。但受到棱镜材料折射率有限的限制, 不能激发具有极短波长的表面等离子体。



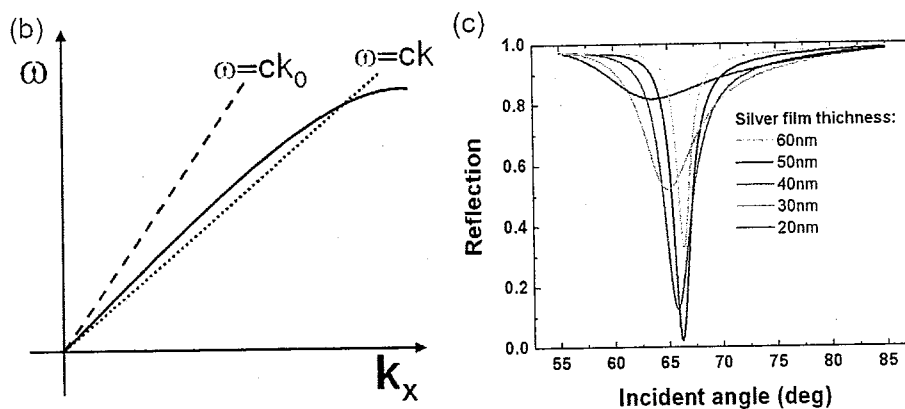


图 2.4 (a) 棱镜方式激发表面等离子体; (b) 表面等离子体的色散曲线与空气、棱镜材料的光锥线; (c) 不同银膜厚度下的反射率角谱曲线。

### 2.3.2 光栅激发

利用周期性金属光栅结构的衍射效应,可以得到附加光栅倒格矢量  $k_g$ ,使光锥线平移与表面等离子体的色散曲线相交。图 2.5 给出了光栅激发表面等离子体的结构示意图以及相应的电磁仿真结果。假设光栅常数为  $d$ ,那么激发形成的表面等离子体波矢满足:

$$k_{sp} = k_0 \sin \theta \pm 2m\pi / d, \quad (2.21)$$

其中  $m$  是光栅的衍射级次,  $\theta$  为入射角。这一方法也可以用来解释 100 年前发现的 Wood 异常:在波矢匹配条件下,大部分入射光能量通过光栅衍射转化耦合成为了表面等离子体,从而造成反射光谱中能量的缺失。

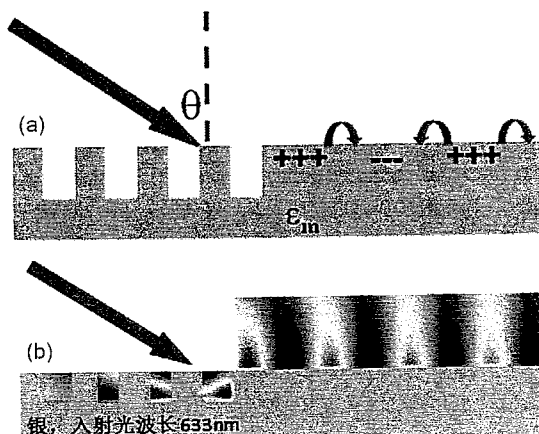


图 2.5 光栅结构激发表面等离子体 (a) 结构示意图; (b) 模拟电磁场分布。

### 2.3.3 表面缺陷激发

在实际应用中, 还有一种比较普遍的情况是利用金属表面的局部缺陷来激发表面等离子体模式。图 2.6 给出了一种最简单的情形, 单个金属表面沟槽。入射光在其附近激发局域电磁模式, 横向波矢相近的倏逝波即可被耦合到两侧金属表面形成表面等离子体。激发的表面等离子体强度依赖于沟槽的宽度和深度。

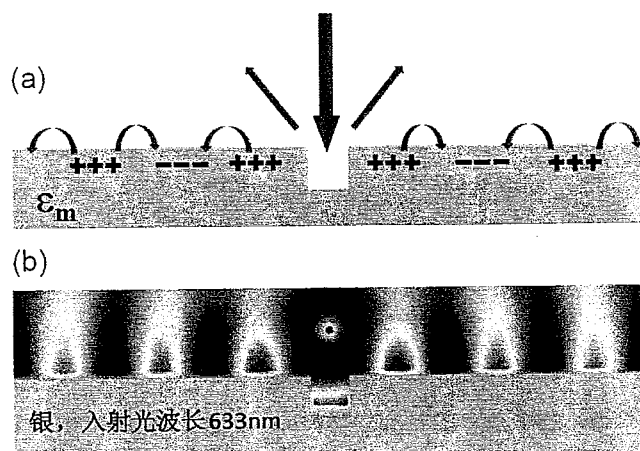


图 2.6 金属表面缺陷激发表面等离子体 (a) 结构示意图; (b) 模拟电磁场分布。

### 2.4 表面等离子体的数值模拟方法

解析法和数值法是求解电磁问题的两大类基本方法。解析法主要是通过建立和求解偏微分方程和积分方程来解决实际问题。然而由于大部分电磁问题的边界条件都比较复杂, 即使通过近似得到解析模型, 其求解能力也十分有限, 这一点对于本文所关注的表面等离子体亚波长金属结构来说尤为突出。另一方面, 随着近年来计算机性能的迅速提高, 数值方法在求解电磁问题中的地位显得日益重要。它通常以差分代替微分, 以有限求和代替积分, 这样就将问题化为求差分方程或代数方程的问题, 从而可以通过高性能计算机的处理求解许多解析方法难以解决的复杂电磁问题。同时, 数值方法的应用也使得针对实际问题处理的思想方法有了明显的改变: 过去是尽量简化物理和数学模型以求得解, 而现在的标准则是选择更复杂的模型以保证解的精确度。

通常来说, 常用电磁场的数值方法根据所用算法原理的不同分为: 有限元法 (Finite Element Method) [61-63], 时域有限差分法 (Finite Difference Time Domain Method) [64-65], 散射矩阵法 (Scattering Matrix Method) [66], 复合多极子法

(Multiple-Multipole Method) [67-69] 和离散偶极子近似 (Discrete Dipole Approximation) [70-71]。对于本文中用到到的前三种数值模拟方法, 下面我们将逐一给出其简单介绍。

#### 2.4.1 有限元法

有限单元法最初是在二十世纪五十年代作为处理固体力学问题的方法而出现的, 在 1945~1955 这十年间发展起来的结构分析矩阵法可以说是它的雏形。有限元法电磁计算主要基于边值问题的微分方程离散化处理。有限元法将由偏微分方程表征的连续函数所在的封闭场域划分为有限个小区域, 每个小区域用一个选定的近似函数来代替。由此, 整个场域上的函数便被离散化, 因而可以得到一组近似的代数方程, 联立求解后可以得到该场域中函数的近似数值。

在处理二维问题时, 由于三角形具有较大的自由度进行拼接, 所以这些划分的小区域一般为三角形。特别对于不规则的边界形状, 这样的处理很方便。除此之外, 它还能适合于场域内函数变化剧烈程度差别较大的情况, 特别适合于场域内介质种类较多, 交界形状复杂的情况。每个小区域上所采用的近似函数一般为线性函数, 如二维场情况下是坐标的双线性函数。

有限元最主要的特点是根据该方法编制的软件系统对各式各样的电磁计算问题具有很强的适应性, 通过预处理过程能有效建立方程并求解。它所形成的代数方程具有系数矩阵对称正定, 稀疏等特点, 所以求解快捷, 收敛性好, 占用计算机内存量也较少。这些正是有限元法能成为电磁仿真计算机辅助设计核心模块的优势所在。当然有限元法也存在一些缺点, 最主要的就是对于形状和分布复杂的三维问题, 由于其变量多, 剖分细, 因而往往对计算机内存有很高的需求。特别是对于包含开域自由空间的电磁计算问题, 其建模及求解比较困难。早期对于开域问题的处理方法是把离主要场区较远的开域处场强设为零, 但其误差较大, 已不能满足精确计算的要求。目前对于开域问题的处理方法主要包括采用有限元法与边界元法相结合的混合法, 膨胀技术 (Balloonning Technique), 等效边界变化和渐进边界条件等。通过这些方法, 可以将感兴趣区域内的场量求解精度进一步提高, 同时也使有限元法电磁计算的适用范围进一步拓展。

## 2.4.2 时域有限差分法

时域有限差分法最早是由 K. S. Yee 于 1966 年在其论文《Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media》中提出的<sup>[64]</sup>，其模型基础就是电动力学中最基本的麦克斯韦方程。时域有限差分法对电磁场  $E$ ,  $H$  分量在空间和时间上采取交替抽样的离散方式，每一个  $E$  (或  $H$ ) 场分量周围有个  $H$  (或  $E$ ) 场分量环绕，由此形成如图 2.7 所示的 Yee 氏网格。应用这种离散方式将含有时间变量的麦克斯韦旋度方程转化为一组差分方程，并在时间轴上逐步推进求解电磁场。时域有限差分法在计算中将介质参数赋给了空间中的每一个 Yee 氏网格，因而这一方法可以处理复杂形状和非均匀介质物体的电磁散射和辐射问题。

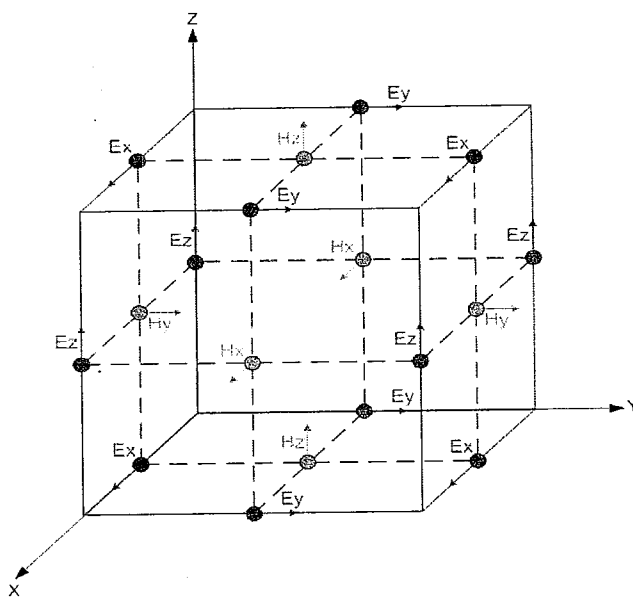


图 2.7 时域有限差分法中的 Yee 氏网格。

时域有限差分法在计算时需要在所有的电磁场区域建立 Yee 氏网格。考虑到计算机有限的存储空间，我们必须要把网格空间截断使之成为有限的区域。这会造成边界处产生非物理的电磁波反射，从而严重影响计算的准确性。因此我们必须选择适当的计算方法处理截断边界，保证边界场计算的必要精度和消除非物理因素引起的截断边界的波反射，使得用有限的网格空间就能模拟电磁波在无限空间中的传播。一种简单而有效的方法就是在截断处加入吸收边界条件，使传播到截断边界的波被完全吸收而不产生任何反射。Berenger 在 1994 年提出了完全匹

配层 (Perfect Matched Layer, PML) 的概念<sup>[72]</sup>, 可以很好的处理截断边界的问题。PML 的波阻抗和相邻介质的波阻抗完全匹配, 因而入射波可以无反射的穿过分界面进入 PML 之中。因为 PML 为有损介质, 所以穿越其中的电磁波能量将迅速衰减。尽管在实际计算中 PML 的厚度有限, 不过其还是对入射波有很好的吸收效果。

相比于其他数值计算方法, 时域有限差分法有以下特点:

1. 适用于分析系统谐振点附近的很宽频带响应;
2. 可以分析任意三维形状的问题;
3. 适用于研究理想导体, 实际金属和绝缘介质等各类物体在电磁波作用下的效应;
4. 适用于分析任意类型的响应, 包括远场和近场, 如散射场, 天线方向图, 雷达散射截面, 表面波, 电流, 功率密度, 穿透, 内耦合等。

正因为这些特点, 如今时域有限差分法已经在各种电磁研究的领域内取得广泛的应用。各种商用化的时域有限差分软件也发展的十分成熟, 例如 Opti-FDTD, FDTD-Solution, R-Soft 等, 无论在计算可靠性还是精确性上都有很好的表现。

### 2.4.3 散射矩阵法

散射矩阵 (S-matrix) 的概念最初是由 John Archibald Wheeler 于 1937 年在其论文《On the Mathematical Description of Light Nuclei by the Method of Resonating Group Structure》中提出的<sup>[66]</sup>。与有限元和时域有限差分法等数值求解麦克斯韦方程组不同, 作为一种严格耦合波分析理论方法 (Rigorous coupled wave analysis, RCWA), 散射矩阵以周期结构下电磁本征传输模式分析为基础。不仅可以分析本征模式传输、色散行为, 也可方便计算各种模式之间的耦合转换, 如求解自由空间的反射谱、透射谱、各衍射级系数等。

散射矩阵基本思想是建立在每层传输矩阵和结构色散矩阵之间的递推公式上,

$$S_{11}^{n+1} = -(S_{12}^n M_{21}^{n+1} - M_{11}^{n+1})^{-1} S_{11}^n \quad (2.22-a)$$

$$S_{12}^{n+1} = -(S_{12}^n M_{21}^{n+1} - M_{11}^{n+1})^{-1} (M_{12}^{n+1} - S_{12}^n M_{22}^{n+1}) \quad (2.22-b)$$

$$S_{21}^{n+1} = S_{21}^n + S_{22}^n M_{21}^{n+1} S_{11}^{n+1} \quad (2.22-c)$$

$$S_{22}^{n+1} = S_{22}^n M_{22}^{n+1} + S_{22}^n M_{21}^{n+1} S_{12}^{n+1} \quad (2.22-d)$$

其中,  $S^{n+1}$ ,  $S^n$  分别为第  $n+1$  层和第  $n$  层的散射矩阵,  $M^{n+1}$  为第  $n+1$  层的传输矩阵。利用递推公式对每一结构层计算, 最终得到整个结构的电磁场各级透射和反射效率。准确的描述各传输层的本征模式, 是实现散射矩阵算法的关键环节。对于均匀空间层, 其本征模式可以简单的描述为各种方向上平面波的集合。对周期调制空间, 需要求解对应的本征方程。

$$(\hat{\varepsilon} - \hat{k}_x \hat{\mu} \hat{k}_x)[e_y] = \hat{k}_z^2 \hat{\mu}'[e_y] \quad (2.23-a)$$

$$(\hat{\mu} - \hat{k}_x \hat{\varepsilon} \hat{k}_x)[h_y] = \hat{k}_z^2 \hat{\varepsilon}'[h_y] \quad (2.23-b)$$

其中,  $\hat{\varepsilon}$ 、 $\hat{\mu}$  分别为介电常数与磁导率傅立叶展开级数构成的对角线矩阵,  $\hat{\varepsilon}'$ 、 $\hat{\mu}'$  是根据校正原则得到的对角线矩阵, 以保证在处理金属高色散材料时的收敛性。 $\hat{k}_x$  和  $\hat{k}_z$  是各级横向波矢和待求的本征法向波矢,  $[e_y]$  和  $[h_y]$  分别是待求的 TE 和 TM 偏振入射的本征模式向量。

在完成了散射矩阵方法的相关理论分析和解析公式推导后, 我们编写了相应计算程序模块。利用该程序可以计算模拟各种角度和偏振态的电磁场入射到多层, 周期性的亚波长金属介质复合结构上所产生的电磁行为。

## 2.5 本章小结

本章从理论角度出发, 介绍了表面等离子体包括存在条件, 激发方式, 特征参数等在内的各项基本电磁特性, 为下面章节详细讨论基于表面等离子体原理的纳米光学器件和光刻技术作了理论铺垫。除此之外, 我们还简单介绍了本文中用到的进行表面等离子体相关结构电磁仿真的一些算法, 包括有限元法, 时域有限差分法和散射矩阵法, 以期读者对这些仿真算法的基本原理有所了解。

### 第3章 基于表面等离子体亚波长金属结构的纳米光学器件研究

从上一章的基本理论介绍中我们可以看出表面等离子体的特殊电磁性质，诸如亚波长特性，场能量局域特性等赋予了其在纳米光学器件应用方面的无穷潜力。加之近年来微纳加工技术的成熟发展，使亚波长金属结构的制作成为可能，因而国际上对基于表面等离子体亚波长金属结构的纳米光学器件的研究已成为当前热点。本章我们将以表面等离子体亚波长金属结构为基础，详细分析和介绍我们在纳米光学器件方面作出的各项研究成果。本章内容主要分为以下三部分：

1. 讨论和分析电磁波在表面等离子体亚波长金属波导中的传输行为，推导和总结其传播规律。
2. 介绍我们根据上述表面等离子体亚波长金属波导对光波的相位调制特性而设计出的具有亚波长成像功能的金属纳米透镜和能控制光束传播方向的表面等离子体光束偏折器，并给出了电磁仿真验证结果。
3. 介绍我们将亚波长金属波导堆栈结构演化成表面等离子体纳米共振器，利用其在可见光波段的波长选择特性而设计出的高分辨率透射式和反射式表面等离子体彩色滤光片，并讨论了在器件加工过程中我们采用的两种不同的制作工艺和相关实验测试结果。

#### 3.1 电磁波在表面等离子体亚波长金属波导中的传播

根据结构形式，表面等离子体亚波长金属波导一般可以分为两类<sup>[73-75]</sup>。一类是将一条介质带嵌入在金属背景之中，形成金属--介质--金属 (Metal-Insulator-Metal, MIM) 结构，简称 MIM 波导，此时电磁波能量通过介质缝隙传播。另一类则与之相反，为一条金属带嵌入在介质背景之中，形成介质--金属--介质 (Insulator-Metal-Insulator, IMI) 结构，简称 IMI 波导，此时电磁波能量通过金属带传播。下面我们将分别讨论电磁波在这两种不同结构波导中的传播特性。

### 3.1.1 MIM 波导

MIM 波导的基本结构示意图如图 3.1 所示, 其中灰色区域为金属材料, 蓝色区域为厚度为  $d$  的介质材料。考虑到实际应用, 此处我们仅关心 MIM 波导两边为同一种金属的对称情况。对于 TM 偏振态的电磁波 (TE 偏振态的电磁波由于不能激发表面等离子体所以在 MIM 波导中的传播特性与传统波导相似, 因而此处我们不做分析), 其电磁场各个分量在 MIM 波导的介质层中的分布为:

$$E_x^{dielectric} = e^{-ik_{z1}z} \pm e^{ik_{z1}z}, \quad (3.1-a)$$

$$E_z^{dielectric} = \left(\frac{k_x}{k_{z1}}\right)(e^{-ik_{z1}z} \mp e^{ik_{z1}z}), \quad (3.1-b)$$

$$B_y^{dielectric} = \left(\frac{-\omega\epsilon_d}{ck_x}\right)(e^{-ik_{z1}z} \mp e^{ik_{z1}z}), \quad (3.1-c)$$

而在金属中的分布为:

$$E_x^{metal} = (e^{-ik_{z1}d/2} \pm e^{ik_{z1}d/2})e^{ik_{z2}(z-d/2)}, \quad (3.2-a)$$

$$E_z^{metal} = \left(\frac{\epsilon_d k_x}{\epsilon_m k_{z1}}\right)(e^{-ik_{z1}d/2} \mp e^{ik_{z1}d/2})e^{ik_{z2}(z-d/2)}, \quad (3.2-b)$$

$$B_y^{metal} = \left(\frac{-\omega\epsilon_d}{ck_x}\right)(e^{-ik_{z1}d/2} \mp e^{ik_{z1}d/2})e^{ik_{z2}(z-d/2)}, \quad (3.2-c)$$

其中下标 1 和 2 分别表示介质和金属区域,  $\epsilon_d$  和  $\epsilon_m$  分别为介质和金属的介电常数。利用电磁场边界连续条件, 我们可以得到以下结果:

$$\epsilon_d k_{z2} + \epsilon_m k_{z1} \tanh\left(\frac{-ik_{z1}d}{2}\right) = 0, \quad (3.3-a)$$

$$\epsilon_d k_{z2} + \epsilon_m k_{z1} \coth\left(\frac{-ik_{z1}d}{2}\right) = 0, \quad (3.3-b)$$

其中  $k_z$  符合动量守恒关系式  $k_{z,1,2}^2 = \epsilon_{d,m}(\omega/c)^2 - k_x^2$ 。由表达式可知式 (3.3-a) 和 (3.3-b) 分别对应两种不同的模场分布形式, 其中 (3.3-a) 对应奇模 (anti-symmetric modes, 非对称模式), (3.3-b) 对应偶模 (symmetric modes, 对称模式)。图 3.1 给出了两种模场分布的示意。需要特别注意的是此处给出的非对称和对称模场分布是指切向电场分量  $E_x$ , 如果换为磁场  $H_y$ , 则奇偶对称性需

要互换。

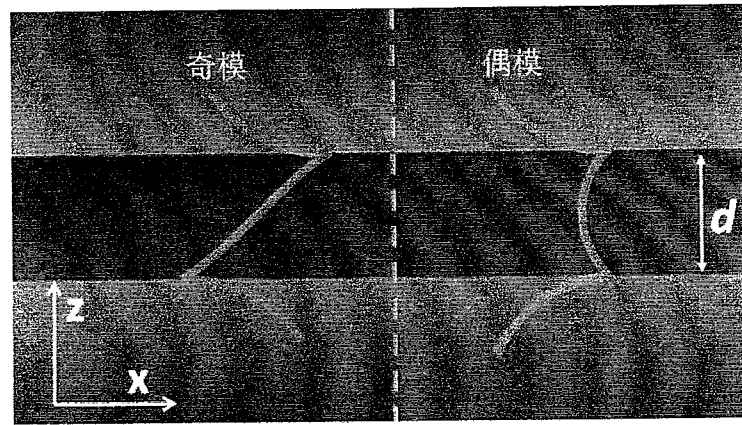


图 3.1 切向电场分量在 MIM 波导中的两种模场分布示意。

通过求解式 (3.3-a) 和 (3.3-b)，我们计算得到了 MIM 波导中表面等离子体的色散分布。图 3.2 给出了由银和二氧化硅构成的 MIM 波导中表面等离子体的色散分布，其中二氧化硅的厚度为 100nm。

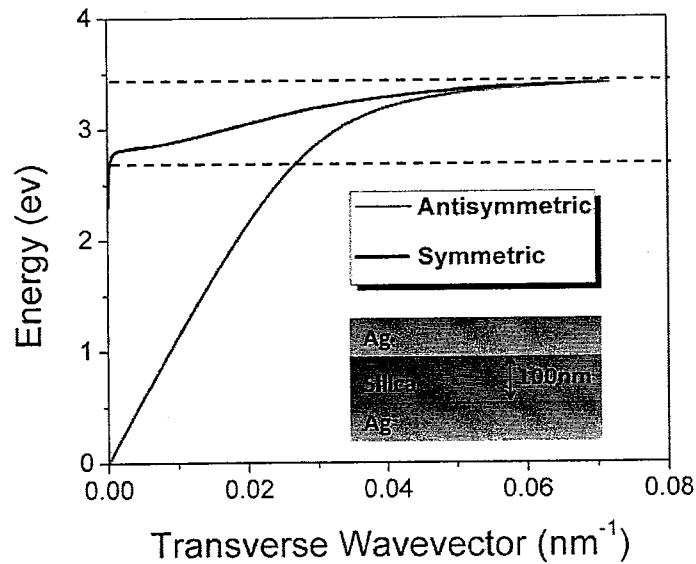


图 3.2 TM 偏振态下的电磁波在银和二氧化硅构成的 MIM 波导中的色散分布，其中二氧化硅的厚度 100nm。

从图 3.2 可以看出，在 MIM 波导中，表面等离子体的偶模对应于低频横向波矢量  $k_x$ ，并且偶模在小于 2.8eV 的低频段有截止现象。相比之下，奇模不但对应于高频波矢量  $k_x$ （也就是对应于更短的表面等离子体波长），而且其没有截止频

率，在很宽的频带之内都存在这种模式。

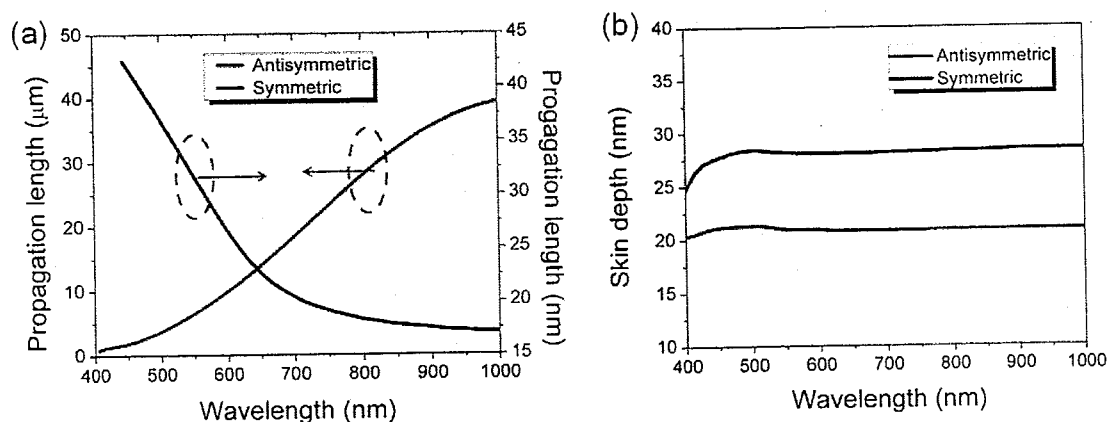


图 3.3 TM 偏振态下的电磁波在银和二氧化硅构成的 MIM 波导中的 (a) 传播距离; (b) 在金属衬底中的穿透深度。

图 3.3 (a) 和 (b) 分别给出了 MIM 波导中表面等离子体奇模和偶模的传播距离以及在金属衬底中的穿透深度。从图中可以看出，在可见光及近红外波段，奇模的传播长度可以达到微米量级，远远大于偶模。这可以利用上面提到的偶模的截止特性来解释。而对于在金属衬底中的衰减深度，两种模式则表现出相类似的特性，其衰减深度都小于  $1/20$  的工作波长，这也同时印证了 MIM 波导对电磁能量的传输具有良好的空间约束性。

### 3.1.2 IMI 波导

对于 IMI 波导模式的求解，我们仍然可以参照式 (3.1) ~ (3.3)，只需要将其中金属和介质的介电常数  $\epsilon_d$  和  $\epsilon_m$  互换即可。利用类似的求解方法，我们计算得到了仍然由银和二氧化硅构成的 IMI 波导的色散分布，如图 3.4 所示，其中银膜的厚度为 50nm。

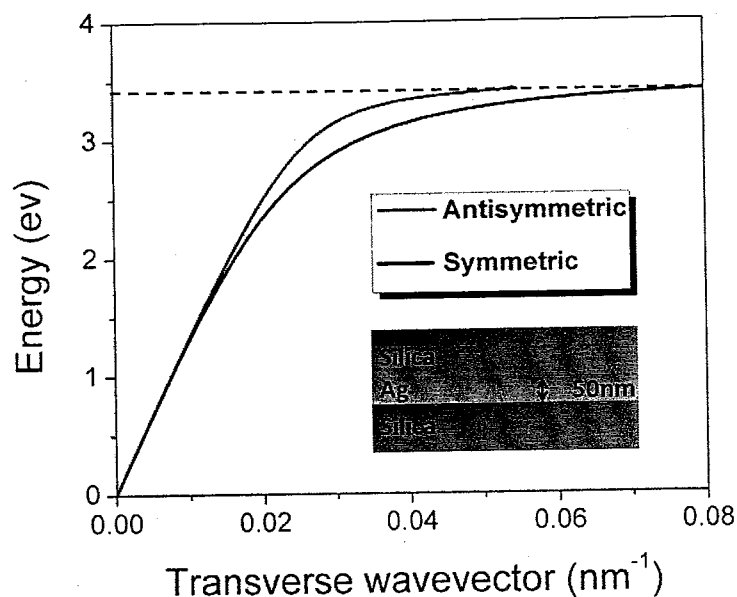


图 3.4 TM 偏振态下的电磁波在银和二氧化硅构成的 IMI 波导中的色散分布，其中银膜的厚度为 50nm。

从图 3.4 的 IMI 波导色散分布中我们可以看出，相比于 MIM 波导，IMI 波导的两个模式都不存在截止频率。这是由于在 IMI 波导中，电荷屏蔽效应使得金属传输层中心处场强为最小，从而保证了在两个金属介质交界面上传播的电磁波相位相同，因而使得奇偶两个模式都不存在截止。由此我们知道 IMI 波导支持在宽频段的电磁能量传输。

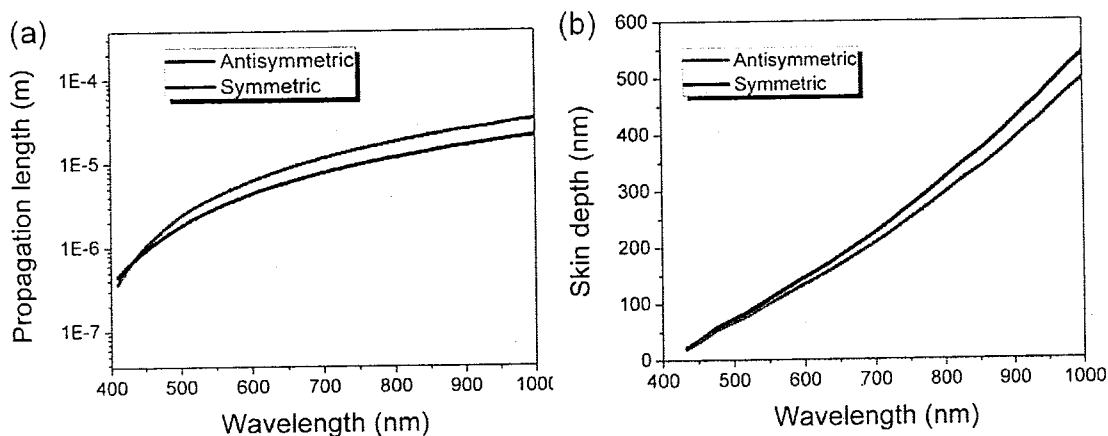


图 3.5 TM 偏振态下的电磁波在银和二氧化硅构成的 IMI 波导中的 (a) 传播距离；(b) 在介质衬底中的穿透深度。

图 3.5 (a) 和 (b) 分别给出了 IMI 波导中表面等离子体奇模和偶模的传播

距离以及在介质衬底中的穿透深度。从图中我们可以看出,IMI波导很好的支持了表面等离子体的长距离传播,因而其传播距离远远超过了MIM波导。特别在近红外波段,当银膜厚度满足一定条件时,奇模的传播距离甚至可以达到厘米级别,因而其被称作为长程表面等离子体<sup>[76-78]</sup>。但是IMI波导这一长距离电磁能量传播特性却是以损失空间约束性为代价的。从图3.5(b)中我们可以看出,相比于MIM波导,表面等离子体的奇模和偶模在IMI波导衬底中的穿透深度要大的多,基本为波长量级,这在很大程度上制约了纳米光学器件的体积尺寸。

从上面分析的MIM和IMI两种表面等离子体波导模式中我们可以看出,波导结构对电磁波的空间约束能力与其对应的损耗和传播距离密切相关。IMI波导牺牲了对电磁波的空间约束力换来了较小的损耗和较长的传播距离;而MIM波导则是以较大的能量损耗为代价得到了对电磁波很强的空间约束力。因此如何权衡传播距离和空间约束性两者之间的关系对于设计纳米光学器件有很重要的现实意义。

在本文中,我们所关心的都是基于表面等离子体亚波长特性的纳米光学器件和相关的纳米技术,因而我们更在意结构本身对电磁波的空间约束能力。MIM波导结构虽然损耗比较大,但是它却提供了一条能真正实现对电磁能量亚波长空间约束的有效途径,并且其支持的表面等离子体模式的传播长度也基本可以满足大多数情况下纳米光学器件的需求,因而本文中大部分工作都是围绕MIM波导结构中的表面等离子体模式展开的。

### 3.2 金属纳米透镜

透镜是光学系统中最重要元件之一。传统透镜一般都由透明物质制成,表面成球面状,根据折射定律来实现对入射光的会聚,发散等控制功能。伴随着集成光学的快速发展,传统透镜由于体积,性能等各方面因素的制约,其在微纳光学系统中的应用遇到了前所未有的挑战。如何设计出体积更小,集成度更高,性能更好的光学透镜便成为了当前光学领域内研究的热点。

2004年,Sun和其合作者提出了利用不同长度的金属纳米缝隙来控制电磁波光学位的设想,以此来实现类似于传统凸面透镜的光束聚焦功能<sup>[79]</sup>。随后,

Shi 等人发现利用不同宽度的金属纳米缝隙同样可以对入射光的相位进行调制, 从而进一步扩展了金属纳米缝隙的光学调制功能<sup>[80]</sup>。这里我们便是利用在金属薄膜上不同宽度的纳米缝隙来控制入射光光学相位从而构成一个可以实现点对点亚波长成像的金属透镜。

从根本上讲, 金属纳米缝隙就是一个典型的 MIM 波导结构。当 TM 偏振态的入射光入射到纳米缝隙的入口处, 便激发起表面等离子体模式使电磁能量在纳米缝隙中传播。图 3.6 (a) 给出了使用 FDTD 算法模拟的电磁波在长度为  $2\mu\text{m}$ , 宽度  $w$  分别为  $10\text{nm}$ ,  $30\text{nm}$  和  $50\text{nm}$  的银膜缝隙中传播的磁场分布。其中缝隙中的介质为空气(折射率  $n=1$ ), 入射光波长为  $633\text{nm}$ , 银的介电常数选自文献[81]。从磁场分布可以看出, 表面等离子体在不同宽度的纳米缝隙中拥有不同等效波长  $\lambda_{sp}$ , 也就是对应于不同的复传播常数  $k_{sp}$  ( $\text{Re}(k_{sp}) = 2\pi/\lambda_{sp}$ )。  $k_{sp}$  的实部和虚部分别决定了缝隙内表面等离子体的相速度和传播损失部分。缝隙的宽度越小, 传播常数  $k_{sp}$  越大。

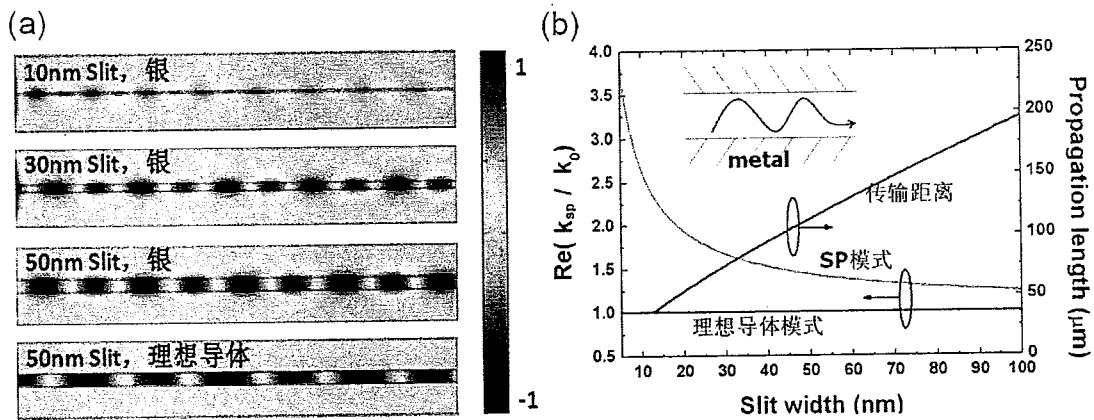


图 3.6 (a) FDTD 仿真模拟的宽度分别为  $10\text{nm}$ ,  $30\text{nm}$  和  $50\text{nm}$  的缝隙中电磁波传播的磁场分布。缝隙长度统一为  $2\mu\text{m}$ , 金属为银和理想导体, 缝隙内介质为空气, 入射光波长为  $633\text{nm}$ ; (b) 表面等离子体传播常数和传输距离与缝隙宽度的关系。

由于我们考虑的纳米缝隙宽度较小 ( $w < 100\text{nm}$ ), 由 3.1.1 节讨论的 MIM 波导性质可知表面等离子体的偶模在这种情况下类似倏逝波, 衰减很快, 因而此时电磁能量主要依靠表面等离子体的奇模在波导缝隙中传播, 其传播常数  $k_{sp}$  可以

由式 (3.3-a) 推出:

$$\tanh(\sqrt{k_{sp}^2 - k_0^2 \epsilon_d} w/2) = \frac{-\epsilon_d \sqrt{k_{sp}^2 - k_0^2 \epsilon_m}}{\epsilon_m \sqrt{k_{sp}^2 - k_0^2 \epsilon_d}}, \quad (3.4)$$

其中  $k_0$  是光在自由空间中的波矢,  $\epsilon_m$  和  $\epsilon_d$  分别是金属和缝隙中介质的介电常数,  $w$  是缝隙的宽度。由式 (3.4) 我们可以清楚的看到缝隙中表面等离子体的传播常数  $k_{sp}$  和缝隙宽度  $w$  有直接的关系, 因而我们可以利用缝隙宽度  $w$  来调制缝隙中表面等离子体的传播常数  $k_{sp}$ , 进而控制其光学相位  $\phi$ 。

通过求解式 (3.4), 我们得到了工作在 633nm 波长的纳米缝隙的宽度与表面等离子体传播常数和传播距离之间的函数关系, 如图 3.6 (b) 所示。此处我们定义缝隙内的等效折射率  $N_{eff} = \text{Re}(k_{sp} / k_0)$ 。当缝隙宽度变小时, 传播常数和等效折射率不断变大, 这与图 3.6 (a) 给出的数值仿真结果一致。当缝隙宽度减小到 20nm 以下时, 由于更多的能量在金属层中传输, 传播常数急剧增加, 同时损耗加剧, 传播距离变短。

还有一点值得关注的是在图 3.6 (a) 和 (b) 中, 我们给出了由理想导体构成的纳米缝隙的情况。在理想导体中, 由于没有表面电荷的积累, 因而其不支持激发表面等离子体, 所以在由理想导体构成的 MIM 波导中也就不存在表面等离子体模式。从图中我们可以看出, 相比于银膜中的纳米缝隙, 其电磁波传播常数变小, 波长变长, 缝隙中的等效折射率始终为 1。这也从侧面印证了金属纳米缝隙中的表面等离子体在电磁波光学相位调制过程中起到了关键作用。

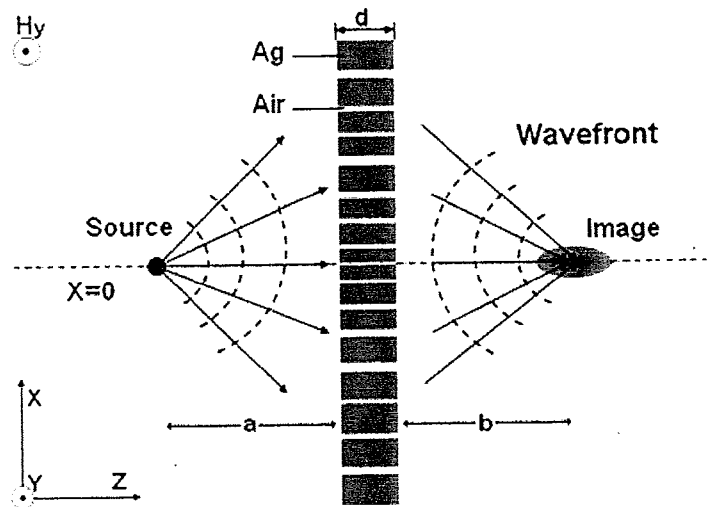


图 3.7 金属纳米透镜的结构示意图。

在有了上述背景知识的基础上，下面我们便开始介绍如何设计具有点对点亚波长成像功能的金属纳米透镜。图 3.7 给出了金属纳米透镜的基本结构示意图，其中透镜由银膜和空气缝隙构成， $d$  为银膜厚度（也就是缝隙的长度）， $a$  和  $b$  分别为物距和相距，整个透镜以  $x=0$  为中心轴而对称。

金属纳米透镜的成像基本原理如下：当 TM 偏振态的光波从物点发出后入射到银膜的纳米缝隙入口时，会激发表面等离子体以传播常数  $k_{sp}$  在长度为  $d$  的缝隙中传播。之后表面等离子体在缝隙的出口处经过散射会重新转化为自由空间的光波。如果此时出射面上光波的光学相位满足一定的条件，则所有的光波便会重新会聚到像点上。金属透镜在成像过程中所起的作用就是利用不同宽度的纳米缝隙来控制表面等离子体在其中传播时所经历的光学相位延迟。

在一个以物距和像距分别为  $a$  和  $b$  的成像过程中，金属透镜上每一个特定位置  $x$  处所需要的光学相位延迟  $\Delta\phi(x)$  必须满足以下几何关系式：

$$\Delta\phi(x) = 2n\pi + \Delta\phi(0) + \frac{2\pi}{\lambda}(a+b - \sqrt{a^2+x^2} - \sqrt{b^2+x^2}), \quad (3.5)$$

其中  $n$  为整数。而表面等离子体在长度为  $d$  的缝隙中传播时经历的相位延迟则满足：

$$\Delta\phi = \text{Re}(k_{sp})d + \mathcal{G}, \quad (3.6)$$

其中附加相位因子  $\mathcal{G}$  是由在缝隙入口和出口处的多重反射造成的，其值可由下式算出：

$$\mathcal{G} = \arg\left[1 - \left(\frac{1 - k_{sp}/k_0}{1 + k_{sp}/k_0}\right)^2 \exp(j2k_{sp}d)\right], \quad (3.7)$$

通过联立求解式 (3.4) ~ (3.7)，我们便可以计算出金属透镜表面任意  $x$  位置处所需要的缝隙宽度  $w$ 。

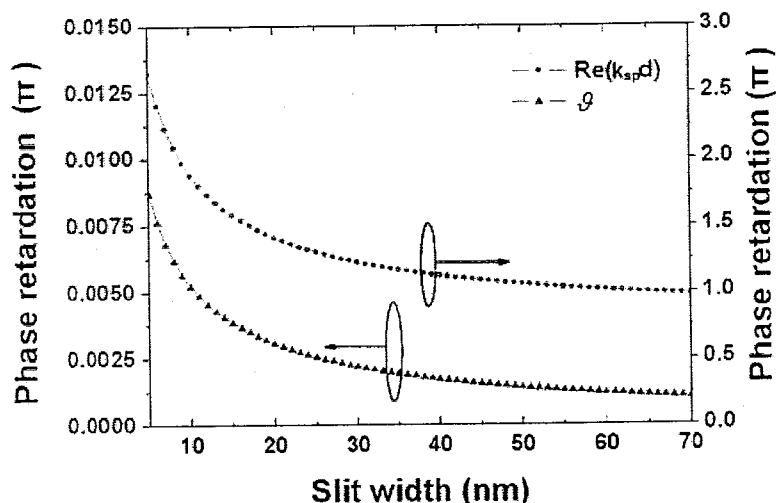


图 3.8 不同缝隙宽度所对应的光学相位延迟。其中红色标记代表由式 (3.6) 中因子  $\text{Re}(k_{sp})d$  产生的相位延迟，蓝色标记代表由附加相位因子  $\varphi$  所产生的相位延迟。

图 3.8 给出了不同缝隙宽度所产生的相位延迟分布。此处我们设定工作波长为  $810\text{nm}$ ，银膜的厚度  $d$  为  $300\text{nm}$ 。从图中可以看出对于宽度分布在  $10\text{nm} \sim 70\text{nm}$  之间的缝隙， $300\text{nm}$  厚度的银膜已经可以提供足够的光学相位延迟调制范围 ( $1 \sim 2\pi$ )。此外，相比于因子  $\text{Re}(k_{sp})d$ ，附加相位因子  $\varphi$  所产生的相位延迟很小 (约小于  $\text{Re}(k_{sp})d$  因子两个数量级)，所以表面等离子体在缝隙中传播时经历的相位延迟主要是由其传播常数决定的，因而式 (3.6) 可以简化为  $\Delta\phi = \text{Re}(k_{sp})d$ 。

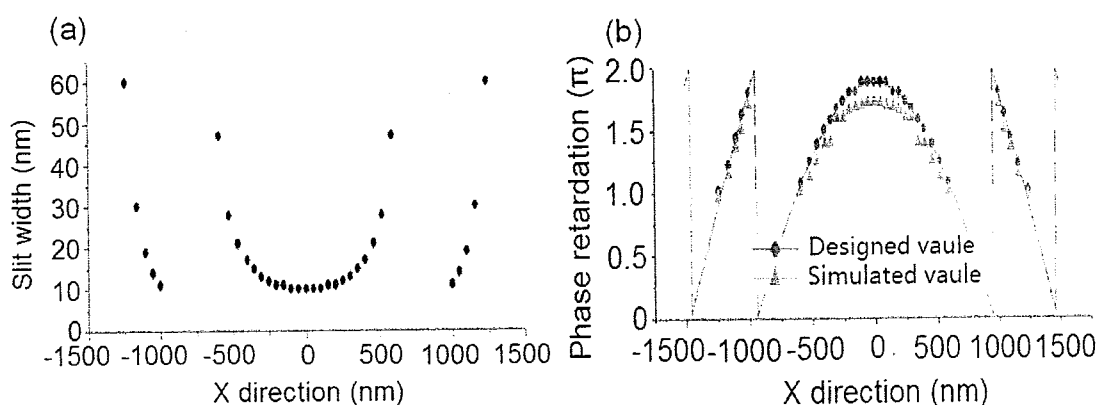


图 3.9 (a) 设计得到的金属透镜任意  $x$  位置处缝宽分布图；(b) 在缝隙处相位延迟的理论数值和 FDTD 仿真所得到的数值对比。

为了验证理论设计的准确性，下面我们给出一个成像实例。我们选取工作波

长为 810nm 的近红外光，物距和像距都设为  $1\mu\text{m}$ ，银膜透镜厚度为 300nm，缝宽分布在  $10\text{nm}\sim 60\text{nm}$  之间。根据式 (3.4) ~ (3.7) 的计算，我们得到了金属透镜表面任意  $x$  位置处缝隙的宽度分布，如图 3.9 (a) 所示。此处为了简化透镜的设计，我们不考虑相邻两个缝隙之间的耦合作用，因而相邻两个缝隙之间的取样间隔至少应该大于表面等离子体在银衬底中的穿透深度以保证近似过程的准确性（在工作波长为 810nm 时，此穿透深度约为 24nm）。图 3.9 (b) 给出了对应于不同缝宽所产生的相位延迟的理论值（通过式 (3.4) ~ (3.7) 求解得到）和 FDTD 电磁仿真值之间的对比。我们可以看到两者之间的吻合度非常高，这也进一步验证了理论设计的准确性。

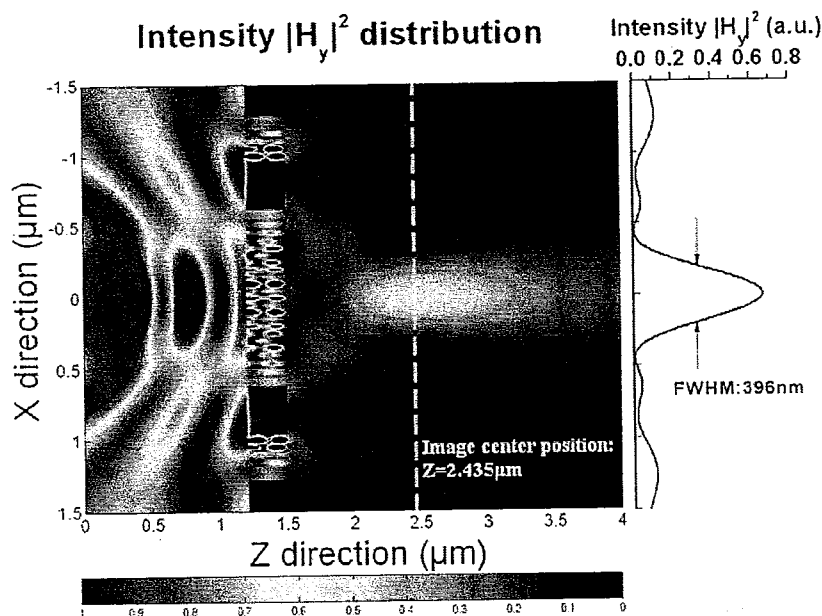


图 3.10 FDTD 仿真得到的成像磁场强度分布。其中点光源设定在  $(x=0, z=0.2\mu\text{m})$  处，金属透镜分布在  $z=1.2\mu\text{m}$  和  $z=1.5\mu\text{m}$  之间，入射光为波长为 810nm 的 TM 偏振光。右边的场强截面曲线处于像点中心  $z=2.435\mu\text{m}$  处。

图 3.10 给出了 FDTD 仿真得到的金属纳米透镜成像过程中的磁场强度分布。我们在仿真过程中设定  $x$  和  $z$  方向上的单元网格尺寸都为 2nm，以保证仿真结果的精确性。仿真区域的边界条件全部设为完美匹配层 (PML) 以消除边界反射对计算结果的影响。从仿真结果可以清晰地看到，在物距为  $1\mu\text{m}$  的情况下，最终像点的中心位置距离金属透镜出射面  $0.935\mu\text{m}$ ，非常接近我们的设计值  $1\mu\text{m}$ 。此

处约为 6% 的像距偏差主要来自于在设计过程中被我们忽略的相邻缝隙之间的耦合。另外,从像点中心位置处的场强截面可以看出,像点的半高全宽(Full-width at half-maximum, FWHM)为 396nm,约为入射光波长的一半,且旁瓣很小,说明这种金属纳米透镜除了体积很小之外,分辨率也较一般的传统透镜要好。

以上我们只是给出了一个设计实例,实际上这种金属纳米透镜可以根据设计要求实现任意物距和像距的亚波长成像。加之其体积和集成度以及分辨率上的优势,我们相信其在微纳光学系统中具有巨大的应用潜力。

### 3.3 表面等离子体光束偏折器

在光学系统中,光束偏折器是另外一个常用的关键元件。光束偏折器可以控制入射光在空间上的传播方向,使出射光以一定的角度偏折从而达到光束控制的目的。光束偏折器在光点检流计、转镜式高速摄影机、光学图像记录及显示等各个方面都有着广泛的应用。传统的光束偏折器通常用转动反射镜(或多面反射体)以改变光束至镜面的入射角,达到使反射光束偏转的目的。由于采用了机械的转动方式,传统光束偏折器的器件尺寸都比较大,很难直接将其用于微纳光学系统的光路控制之中。有鉴于此,这里我们基于表面等离子体的金属纳米缝隙结构提出了一种新的光束偏折器件,其基本结构如图 3.11 所示。

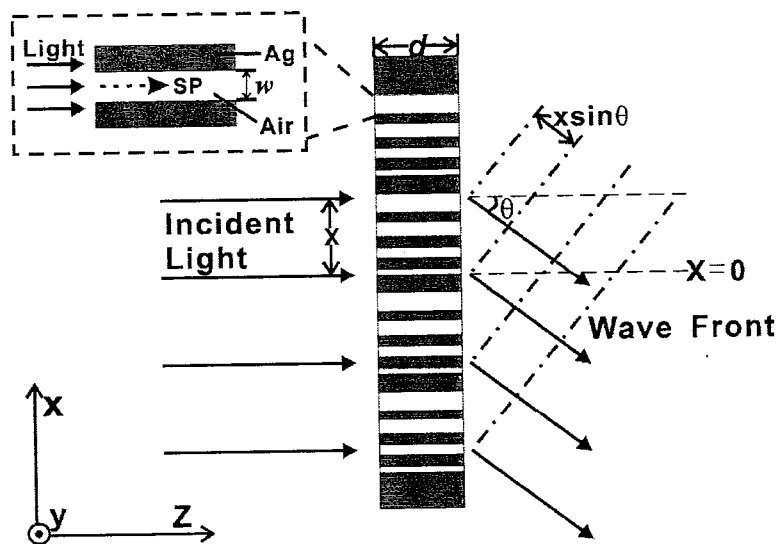


图 3.11 表面等离子体光束偏折器示意图

与上一节提到的金属纳米透镜原理类似，表面等离子体光束偏折器也是基于金属纳米缝隙结构对在其中传播的表面等离子体的光学相位控制来实现最终的光束偏折目的。如图 3.11 所示，当 TM 偏振态的平行光束入射到偏折器表面时，激发起的表面等离子体便会以传播常数  $k_{sp}$  在长度为  $d$  的纳米缝隙中传播。在经历了相位延迟  $\Delta\phi = \text{Re}(k_{sp}d)$  之后，表面等离子体在缝隙的出射面经过散射重新转化为光波。如果此时整个偏折器出射面上的光波相位满足一定的条件，则出射光便会以一定的角度偏折从而实现控制光束空间传播方向的功能。

假设预想的偏折角度为  $\theta$ ，则偏折器出射面上任意  $x$  位置处的光波相位应该满足：

$$\Delta\phi(x) = 2n\pi + \Delta\phi(0) - \frac{2\pi}{\lambda} \cdot x \cdot \sin\theta, \quad (3.8)$$

其中  $n$  为整数。与金属纳米透镜的球形波前相位不同，由于偏折器出射面上光波对应于平行波前相位(如图 3.11 所示)，所以偏折器上的纳米缝隙为周期性分布。下面给我们给出 4 个不同偏折角度 ( $30^\circ$ ， $45^\circ$ ， $60^\circ$  和  $80^\circ$ ) 的设计实例，以此证明这种光束偏折器可以实现从小角度到大角度的任意光束偏折。我们将工作波长选定在  $650\text{nm}$ ，银膜厚度为  $500\text{nm}$ 。通过联立求解式 (3.4) 和 (3.8)，我们可以得到不同偏折角度所对应的偏折器表面纳米缝隙的分布，如图 3.12 所示。

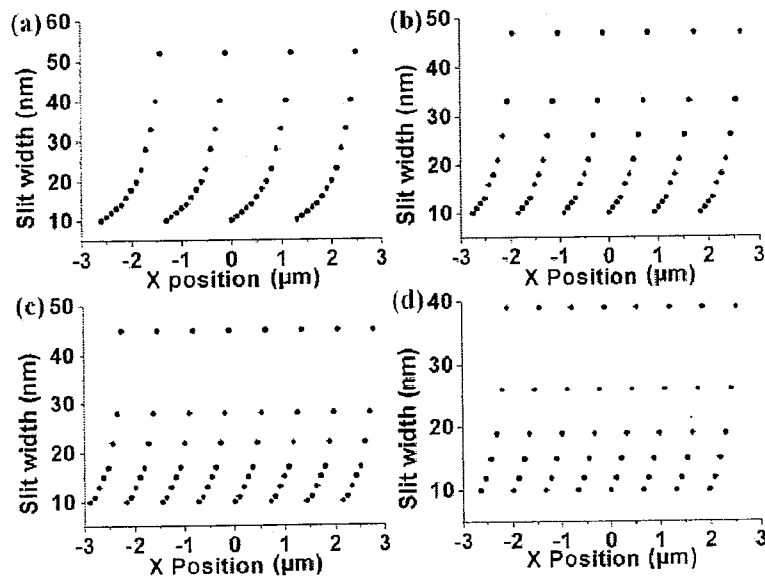


图 3.12 不同偏折角度所对应的偏折器表面纳米缝隙的分布 (a)  $30^\circ$  (b)  $45^\circ$  (c)  $60^\circ$  (d)  $80^\circ$ 。

接下来我们利用 FDTD 电磁仿真来验证上述 4 个不同的偏折器对入射光的偏折效果。整个仿真区域为  $6\mu\text{m}\times 3\mu\text{m}$ ， $x$  和  $z$  方向上的单元网格大小为  $2\text{nm}$ ，仿真区域的边界都为完美匹配层 (PML)。光束偏折器的入射面和出射面分别位于  $z=0.2\mu\text{m}$  和  $z=0.7\mu\text{m}$  处。图 3.13 给出了仿真得到的上述 4 个不同的光束偏折器出射光的相位分布。从理论上讲，实际的偏折角度  $\theta$  可以根据相位场分布和以下公式算出：

$$\theta = \arcsin(\lambda N / D), \quad (3.9)$$

其中  $\lambda$  为自由空间波长， $N$  为图 3.13 中给出的在偏折器出射面上的等相位条纹数目（对应于这 4 个光束偏折器， $N$  分别约为 4.5, 6.5, 8 和 9）， $D$  为光束偏折器的口径（此处 4 个偏折器口径都为  $6\mu\text{m}$ ）。利用式 (3.9) 计算出来的实际偏折角度和理论设计值十分接近。

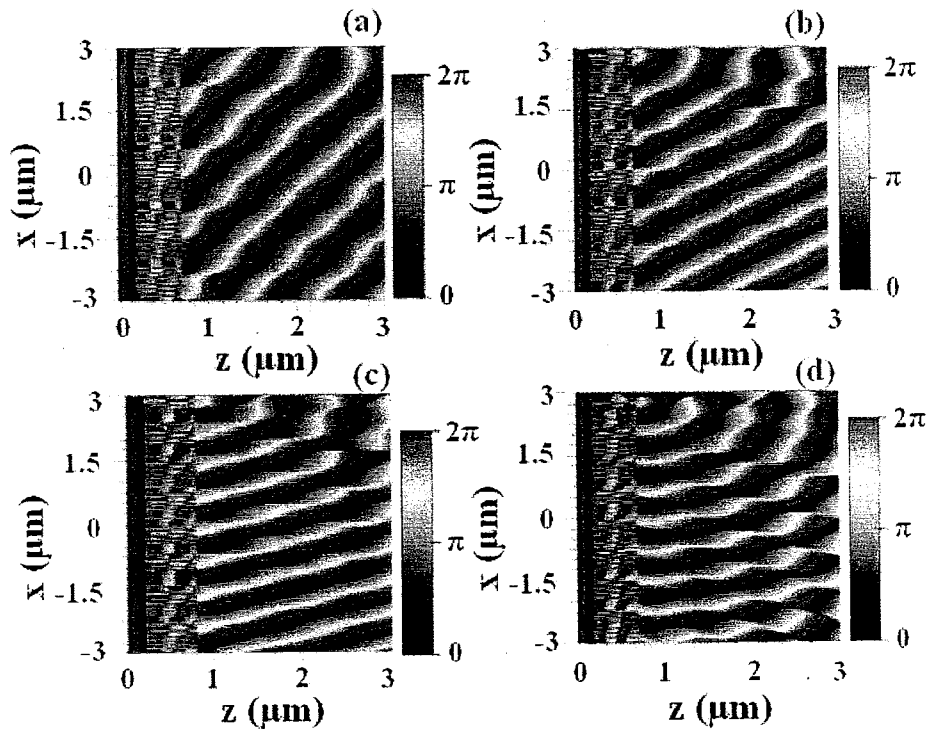


图 3.13 不同偏折角度所对应的偏折器出射光位相的场分布 (a)  $30^\circ$  (b)  $45^\circ$  (c)  $60^\circ$  (d)  $80^\circ$ 。

为了更准确的评估表面等离子体光束偏折器的偏折性能，我们计算了上述 4

个偏折器远场角谱能量分布，如图 3.14 所示。可以看出，这 4 个光束偏折器实际偏折角度分别为  $30.12^\circ$ ， $45.26^\circ$ ， $60.4^\circ$  和  $81.55^\circ$ ，与设计角度的吻合度非常高。图 3.14 中还给出了对于设计角度为  $45^\circ$  的光束偏折器，当我们减小其口径（相应的减少其纳米缝隙数目），其远场能量角谱中心位置依然保持不变（即使口径减小为工作波长的一半  $350\text{nm}$ ，其远场角谱中心值仍约为  $45^\circ$ ）。只是随着口径或者纳米缝隙数目的减少，其角谱宽度由于边缘衍射效应加重而变宽。

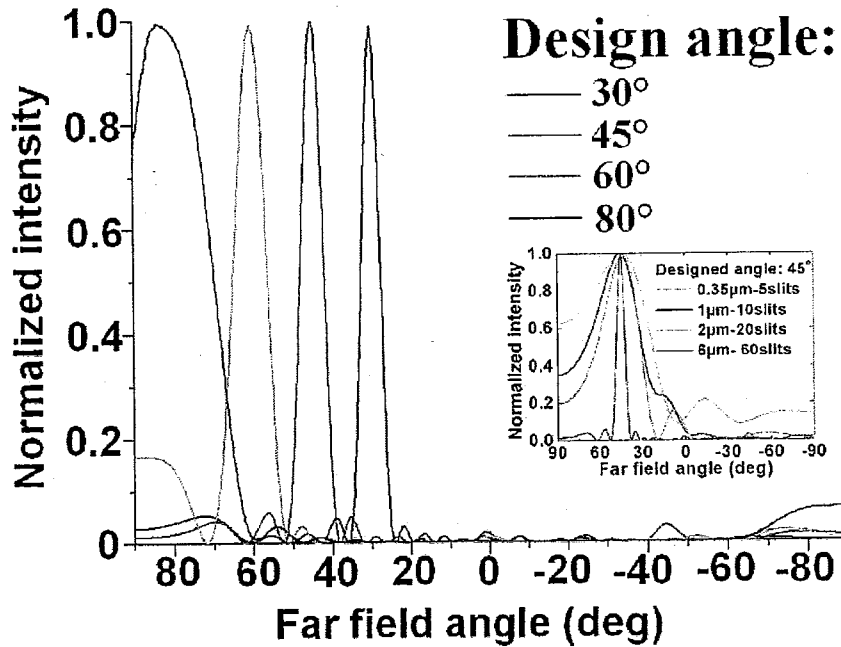


图 3.14 4 个光束偏折器的远场能量角谱分布。

在 FDTD 仿真中，我们还计算了各个光束偏折器的能量透过率。4 个光束偏折器的能量透过率分别为 47.04%，52.72%，51.74% 和 53.38%。能量透过率的主要损失来源于入射光在光束偏折器入射面上的反射。尽管其能量透过率不如传统机械式的光束偏折器，约为 50% 左右的能量透过率已经足够用于诸如光内联以及光开关等应用方向。此外，在表面等离子体光束偏折器中，我们也观测到了亚波长金属结构的异常透射现象<sup>[49]</sup>。所有纳米缝隙宽度总和约占整个光束偏折器口径的 20%，但是其能量透过率却达到了近 50%，增强因子约为 2.5 倍。所以如果我们进一步优化缝隙的宽度和分布，其光束偏折器的能量透过率可以进一步得到增强。

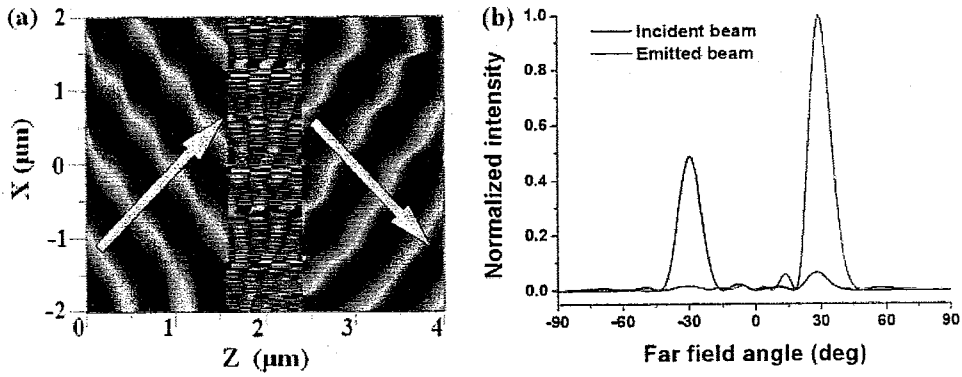


图 3.15 入射角和偏折角分别为  $30^\circ$  和  $-30^\circ$  的偏折器 (a) 仿真得到的光学位相的场分布; (b) 远场能量角谱曲线。

除了平行光垂直入射外，表面等离子体光束偏折器对于斜入射的平行光也有很好的偏折控制作用。图 3.15 给出了当入射角和设计的偏折角分别为  $30^\circ$  和  $-30^\circ$  的情况。此时光束偏折器口径为  $4\mu\text{m}$ ，厚度为  $800\text{nm}$ 。从仿真得到的光学相位分布以及远场角谱曲线我们可以清楚的看到实际的偏折角和设计值十分吻合，整个光束偏折器呈现出类似负折射界面的现象。

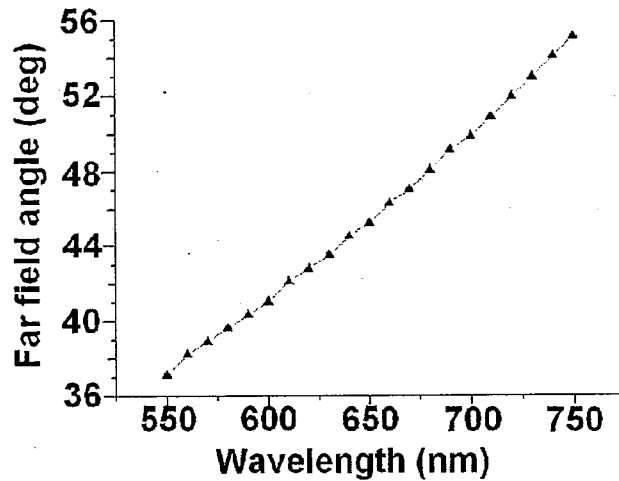


图 3.16 工作波长为  $650\text{nm}$ ，偏折角度为  $45^\circ$  的光束偏折器对其他入射光波长的响应。入射光波长范围从  $550\text{nm}$  渐变到  $750\text{nm}$ ，步长为  $10\text{nm}$ 。

最后我们讨论一下表面等离子体光束偏折器对不同入射光波长的响应。图 3.16 给出了一个实例。对于上面我们已经讨论过的工作在  $650\text{nm}$  波长，偏折角为  $45^\circ$  的光束偏折器，当入射光波长从  $550\text{nm}$  渐变到  $750\text{nm}$  时，所对应的偏折

角从  $37^\circ$  增大到  $55^\circ$ ，线性变化率约为  $0.9^\circ/10\text{nm}$ 。这说明了表面等离子体光束偏折器除了可以在光学系统中控制光束的空间传播方向以外，还能用于空间频谱的多分复用。

### 3.4 表面等离子体高分辨率彩色滤光片

近年来，受到个人电脑和平板电视市场不断扩大的刺激和推动，液晶显示 (LCD) 技术得到了极大的发展。各大厂商不遗余力的投入大量人力财力研发新型的 LCD 显示技术，使得各种高清的 LCD 显示设备进入了我们的日常生活。一般来说，一个典型的 LCD 器件一般由液晶层，透明电极层，彩色滤光片，偏振片，背光源，玻璃基片等组成，如图 3.17 所示。

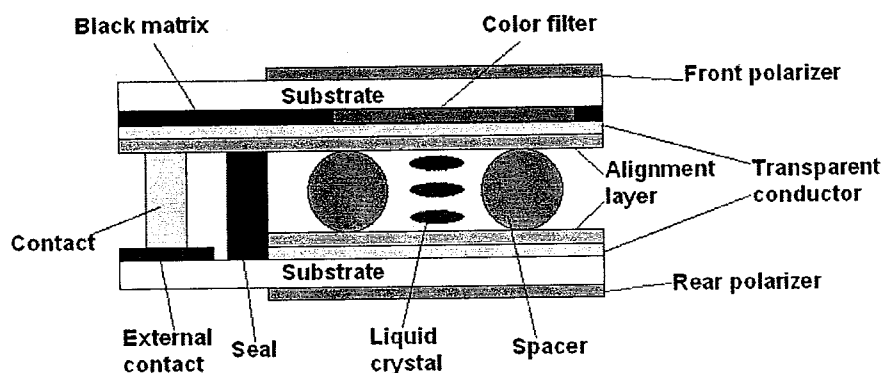


图 3.17 典型 LCD 显示器件的单元构成

在组成 LCD 器件的各个部件之中，彩色滤光片起到了关键作用，它直接关系到显示色彩的鲜艳度，单元像素点的尺寸以及最终显示的分辨率。传统的彩色滤光片一般是采用化学染料制成，因而在高温或者长时间使用之后其常常会受到诸如褪色之类不稳定的化学性质影响。并且在制造 LCD 器件时，红绿蓝三种不同的滤色片由于材料性质不同需要分批次进行加工，从而在无形中又增加了 LCD 的制造成本。统计数据表明，单彩色滤光片这一项，其在整个 LCD 器件之中所占的成本就接近  $20\%$ <sup>[82-83]</sup>。因而如何能设计出高性能，低成本彩色滤光片便成为了 LCD 器件研发中的重要一环。

这里，我们利用表面等离子体 MIM 波导结构，提出了一种新型的彩色滤光片。不同于传统的化学染料滤光片，此处我们利用纳米金属结构来实现对颜色的

选择,因而这种新型滤光片的物理和化学性质十分稳定。此外这种表面等离子体彩色滤光片同时还集成了偏振片和透明电极的功能,这将有助于大大缩减 LCD 器件的成本。根据基本功能的差别,我们设计的表面等离子体彩色滤光片可以分为透射式和反射式两种。由于大部分常用的 LCD 显示设备为背光式器件,因而其一般采用的都是透射式彩色滤光片,所以下面我们先介绍透射式表面等离子体滤光片。

### 3.4.1 透射式表面等离子体滤光片

图 3.18 给出了透射式表面等离子体滤光片的基本结构示意图,其由沉积在氟化镁 (Magnesium Fluoride) 基底上的铝 (Aluminum)/硒化锌 (Zinc Selenide)/铝三层堆栈阵列结构组成。整个堆栈阵列周期为  $P$ , 每一个独立堆栈的宽度为  $w$ 。在每一个独立的堆栈结构中, 100nm 厚度的硒化锌被两层厚度均为 40nm 的铝光栅所包裹, 形成了类似 MIM 波导的结构。底层的铝光栅可以将入射光耦合到 MIM 波导所支持的表面等离子体模式之中, 而上层的铝光栅则可以将 MIM 波导中的表面等离子体模式重新转化成光波散射到自由空间之中。因此, 这种滤光片的基本原理就是通过这样一个 MIM 堆栈阵列实现光波——所支持的表面等离子体模式——光波的转化。

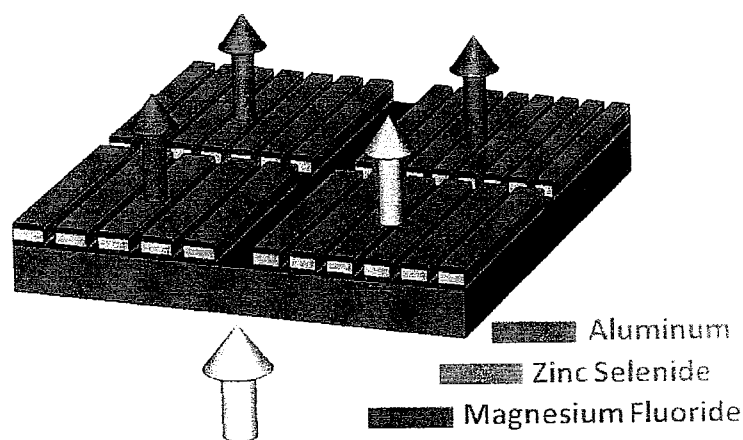


图 3.18 透射式表面等离子体彩色滤光片的基本结构示意图

对于 TM 偏振态的电磁波 (也就是电场垂直于铝光栅的方向), 其在铝/硒化锌/铝堆栈阵列中的色散分布可以通过式 (3.3) 求得, 并由图 3.19 给出。需要注

意的是这里的  $\varepsilon_d$  不等于硒化锌的介电常数  $\varepsilon_{\text{ZnSe}}$ ，而是通过等效介质理论求得，近似为  $\varepsilon_d = (P-w)/P + w\varepsilon_{\text{ZnSe}}/P$ 。这里我们仅考虑光波垂直入射到结构表面的情况，因而堆栈阵列的周期  $P$  和横向表面等离子体波矢  $k_x$  通过一级衍射存在如下关系： $k_x = 2\pi/P$ 。从色散分布曲线中我们可以看出，相比于表面等离子体偶模（蓝色曲线），奇模（红色曲线）在可见光波段（400nm~700nm）基本呈线性分布。加之前面 3.1.1 节中分析可知 MIM 波导中奇模存在着具有较长传播距离的优势，因此我们在这里利用表面等离子体奇模作为中间媒介，实现入射光波——表面等离子体模式——出射光波的转化。奇模在可见光波段近线性的分布使得我们可以非常容易的设计出任意颜色的滤光片。作为示例，在奇模色散分布曲线中的红，绿，蓝三点代表了显示系统中常用的 RGB 色彩模型中的三基色。我们可以看到三种颜色通过一级衍射分别对应不同的堆栈周期，其对应的仿真结果由图 3.19 (b) 中的实线给出。红绿蓝三基色对应的堆栈周期分别为 360nm, 270nm, 230nm，堆栈的占空比都约为 0.7 ( $w/P \approx 0.7$ )。从仿真结果可以看出，三种颜色的峰值透过率都接近和超过 50%。另一方面，TE 偏振态的入射光波由于不支持表面等离子体模式的激发，因而便没有了从光波到等离子体模式的转化过程，所以其大部分能量都在堆栈结构表面形成强反射导致其透过率很低（图 3.19 (b) 中的虚线）。

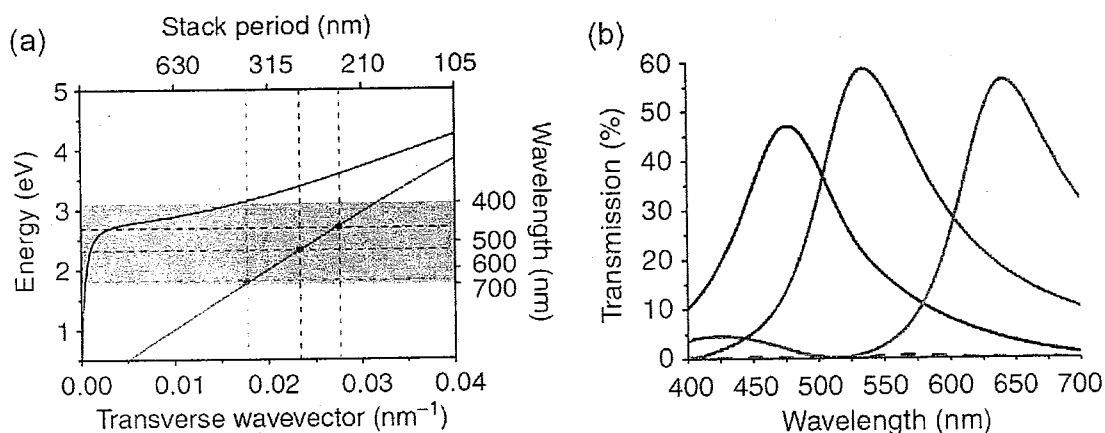


图 3.19 (a) TM 偏振态的光波在堆栈结构中的色散分布。红色曲线代表表面等离子体奇模，蓝色曲线代表偶模。红，绿，蓝三点代表色彩系统中的三基色。蓝色区域代表可见光波段；(b) 仿真得到的对应于红绿蓝三基色滤光片的透过率光谱曲线。其中实线为 TM 偏振态的入射光，虚线为 TE 偏振态的入射光。

为了更好的评估透射式表面等离子体彩色滤光片的实际滤色性能，我们采用聚焦离子束（Focus Ion Beam, FIB）直写的方法对设计好的纳米堆栈阵列结构进行加工测试。聚焦离子束直写是近年来纳米结构加工中常用的一种方法<sup>[84-85]</sup>。相比于传统的光刻技术，它具有曝光灵敏度高，没有邻近效应，可任意控制曝光深度等优点，因而非常适合加工我们设计的纳米堆栈阵列结构。整个加工流程如下图所示：首先我们利用电子束沉积的方法在氟化镁基底上依次沉积 40nm 的铝膜/100nm 的硒化锌膜/40nm 的铝膜，沉积速率为 0.5nm/s。接下来我们利用聚焦离子束直写切割样片。此处我们使用的设备是 FEI Nova Nanolab 双束 FIB 系统，切割时的加速电压为 30kV，电流变化范围从 50~100pA。图 3.20 中左下角的插图给出了加工后结构的扫描电子显微镜照片。

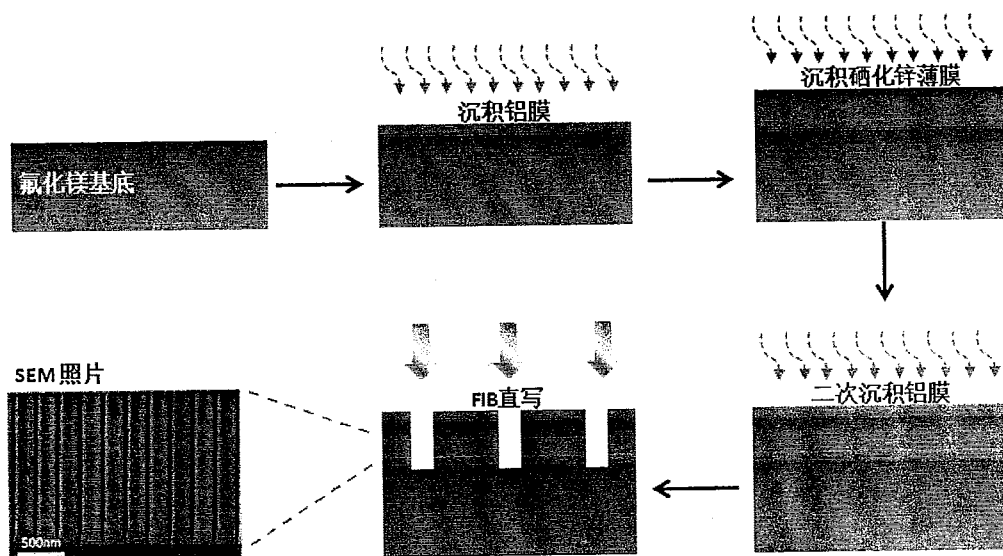


图 3.20 透射式表面等离子体彩色滤光片加工流程。左下角的插图为滤光片的扫描电子显微镜照片。

图 3.21 (a) 给出了我们加工好的 7 个不同的滤光片样片在光学显微镜下经过白光照射后观察到的图像。这 7 个样片的堆栈阵列周期分布在 200nm 到 360nm 之间，覆盖了可见光波段从紫色到红色的所有主要颜色（红橙黄绿蓝靛紫）。每个样片图形的尺寸为  $10\mu\text{m}\times 10\mu\text{m}$ 。我们测量了其中红绿蓝三基色的透过率谱线，其结果在图 3.21 (b) 中给出。可以看出，实验测得的滤光片透过率谱线和图 3.19 (b) 所示的仿真结果十分吻合。对于 TM 偏振态的入射光，三基色的透过率峰值超过 50%，透射谱的半高全宽 (FWHM) 约为 100nm。蓝色光的透过率略小

于绿色和红色光,这是由于硒化锌材料本身在短波长波段吸收损耗较强的原因造成的。表面等离子体彩色滤光片的综合透过率和现在一般商用的染料滤光片差不多,但是其厚度却要比后者薄两个数量级以上。另一方面,从透射率谱线可以清楚的看出表面等离子体滤光片对 TE 偏振态的入射光有强烈的反射作用,这点和金属线偏振器类似<sup>[86-88]</sup>。这点说明我们设计的透射式表面等离子体滤光片除了起到滤色的作用,还同时拥有偏振器的作用。加之其本身 MIM 的结构可以将上下两个金属光栅作为透明电极使用,因而一旦如果其用在 LCD 显示器件中,那么如图 3.17 中所示的独立偏振片层和透明电极层便不再需要,从而可以大幅缩减 LCD 器件成本。

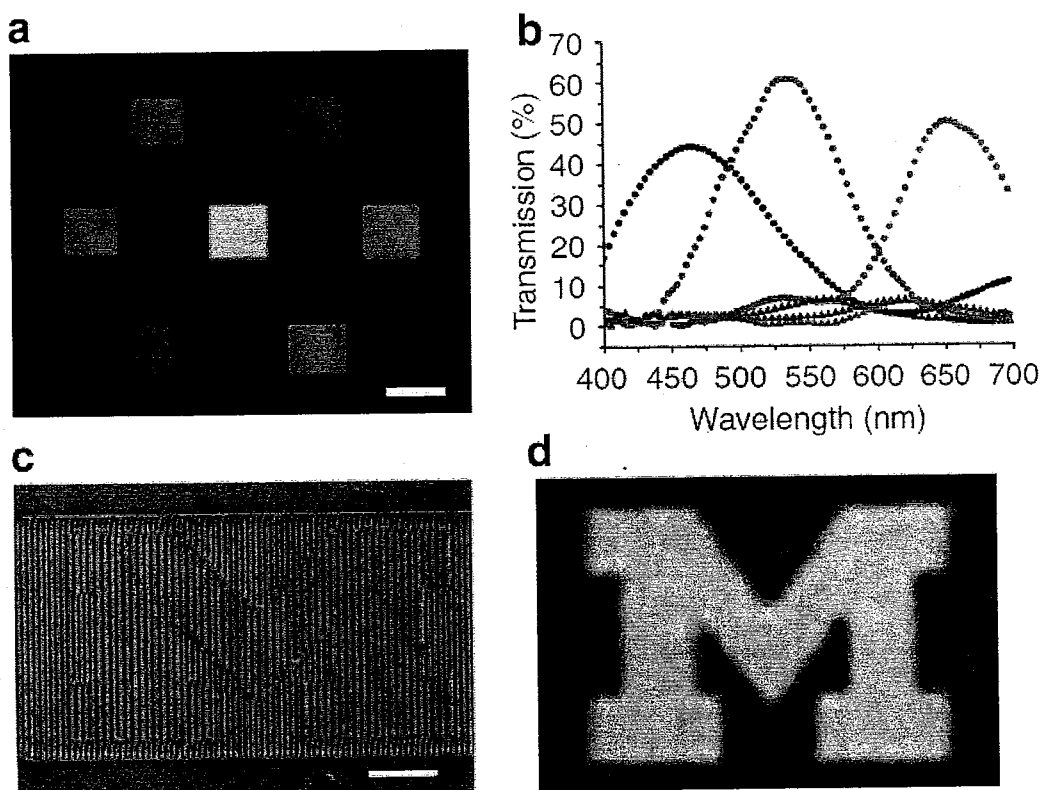


图 3.21 (a) 7 个不同周期的表面等离子体滤光片样片在光学显微镜下经过白光照射后观察到的图像。其中的比例尺为  $10\mu\text{m}$ ; (b) 实验测得的对应于红绿蓝三基色的透射率谱线。其中圆和三角图形分别代表 TM 和 TE 偏振态的入射光; (c) 由两种不同周期的堆栈阵列结构组成的字母图形“M”的扫描电子显微镜照片。比例尺为  $3\mu\text{m}$ ; (d) 对应于 (c) 中的图形在光学显微镜下经过白光照射后观察到的图像。

除了标准的方形滤光片之外，我们还可以利用不同周期的堆栈阵列结构组成任意形式的彩色图形。作为示例，我们设计了一个由两种不同周期的堆栈阵列结构组成的字母图形“M”。整个“M”图形的尺寸为  $20\mu\text{m}\times 12\mu\text{m}$ ，其中组成字母的堆栈阵列周期为  $310\text{nm}$ （对应黄色），组成背景的堆栈阵列周期为  $220\text{nm}$ （对应于深蓝色）。将其放在光学显微镜下利用白光照射后我们可以清晰的看到其彩色图像，并且在两种颜色的交界面处并没有颜色的混叠，从而证明了这种由不同周期的堆栈阵列组成的图形具有很高的边缘分辨率，而且可以扩展到超高分辨率彩色成像的应用中。

在此基础上，接下来我们再讨论一个比较深入的问题，至少多少个堆栈就可以呈现出滤色的功能？下面我们通过电磁仿真和实验来研究堆栈个数与滤色效果之间的关系。

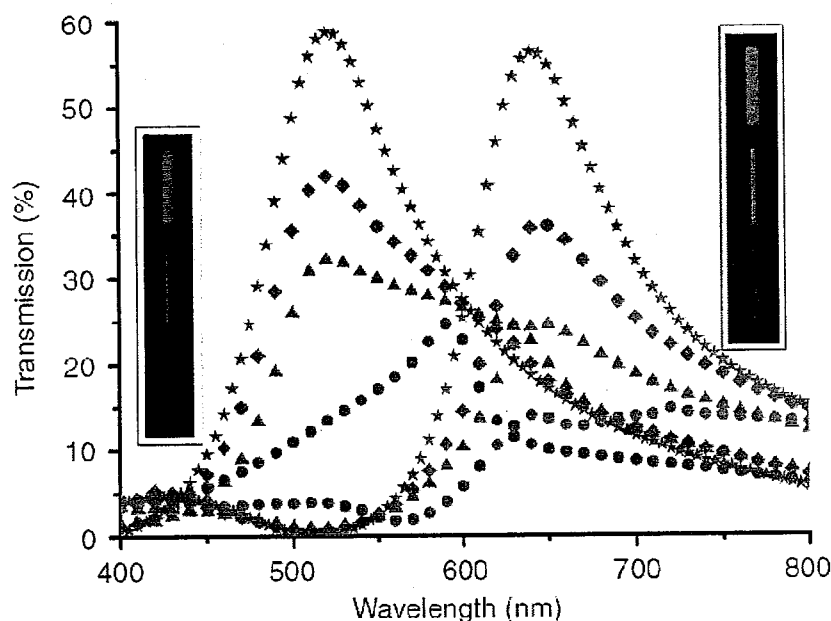


图 3.22 不同堆栈数目和滤色效果之间的关系。其中插图所示的光学显微镜下的照片从下至上分别包含 1 个、3 个和 5 个堆栈结构。曲线中圆、三角、菱形和五角星分别代表仿真得到的包含 1 个、3 个、5 个和无穷多个堆栈对应的透过率谱线。

图 3.22 给出了分别包含 1 个、3 个和 5 个堆栈结构（也就是对应 2 条、4 条和 6 条狭缝）的样片的光学显微镜照片。其中对应绿色和红色样片的堆栈宽度分别为  $190\text{nm}$  和  $260\text{nm}$ ，堆栈周期分别为  $270\text{nm}$  和  $360\text{nm}$ 。从图中我们清晰的看

到, 只有一个堆栈时样片已经出现了明显的滤色效果。随着堆栈数目的增多, 滤色效果越来越好并且能量的绝对透过率逐渐增大。这个现象可以通过堆栈中表面等离子体的微观激发机制来解释。当光入射到堆栈表面时, 光波通过狭缝耦合进入堆栈的介质层中以表面等离子体模式向两边传播。当其传播到相邻的狭缝时如果和此处激发的表面等离子体模式干涉相长, 便会使对应于此激发波长的透过率达到极大值。反之, 如果产生干涉相消, 则会在透过率谱线中产生极小值。从根本上来讲, 对于包含无穷多个周期的堆栈阵列来说, 也可以理解为滤色作用是由于多重表面等离子体模式干涉相长的叠加形成的。从宏观上来讲, 对于包含几个或者无穷多个周期的堆栈阵列来说, 其最大的区别就是后者可以通过光栅衍射实现动量匹配, 从而最大限度的耦合激发表面等离子体模式, 因而其绝对透过率较大。

从上面给出的例子和分析来看, 即使只有少数几个堆栈结构, 这种滤光片也可以有很好的滤色效果, 因而其滤色单元尺寸可以小于1个微米。一般来说, 人眼的极限分辨率在35mm焦段约为 $80\mu\text{m}$ <sup>[89]</sup>。所以这种表面等离子体滤光片可以被用于构筑“超级像素点(Super-pixel)”, 其单元尺寸远远小于人眼的分辨极限。

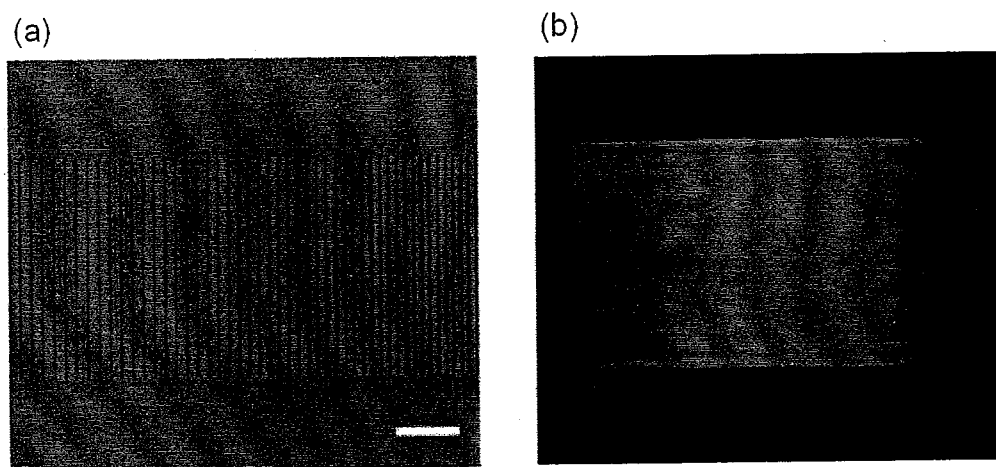


图 3.23 (a) 表面等离子体光谱仪的扫描电子显微镜照片。比例尺为  $2\mu\text{m}$ ; (b) 表面等离子体光谱仪在 TM 白光照射下的光学显微镜图像。

基于上述滤色特性, 作为应用扩展, 我们制作做出了一个工作在可见光频段的表面等离子体光谱仪, 如图 3.23 (a) 所示。这个光谱仪由周期渐变的堆栈结构构成, 从左至右其周期从  $400\text{nm}$  变化到  $200\text{nm}$ , 对应的滤色频率涵盖了整个

可见光波段。当 TM 偏振态的白光入射到样片表面时，我们可以从透射谱中看到整个器件表面光谱颜色从红色逐渐变化为蓝紫色，如图 3.23 (b) 所示。表面等离子体光谱仪可以在几微米的横向距离上将整个可见光波段的颜色分开，这比传统的分光棱镜要小好几个数量级，因而这种光谱仪可以应用于高分辨率的多光谱成像技术。

以上我们讨论的都是一维堆栈结构的情况，实际上这种堆栈结构也可以扩展为二维图形。图 3.24 (a) 给出了我们利用堆栈结构组成的一个 2 维轮辐结构。整个轮辐结构由 96 个一维堆栈构成，内外半径分别为  $3\mu\text{m}$  和  $6\mu\text{m}$ 。从内到外堆栈的环形周期约从  $200\text{nm}$  递增至  $400\text{nm}$ ，正好可以将滤色波长覆盖到整个可见光波段。图 3.24 (b) 给出了二维轮辐结构对入射光偏振态的响应。当用非偏振光照射二维轮辐结构时，整个结构呈现一个完整的彩虹环。然而，当用线偏振光照射时，整个结构在偏振方向上的颜色便会缺失，形成一个不完整的彩虹环。这是由于入射光的电场分量在偏振方向上与堆栈结构平行从而不支持表面等离子体的激发，因而其能量透过率达到极小值，这和前面讨论的 TE 偏振态的情况是类似的。此二维轮辐结构可以和成像器件相结合以提供实时的成像偏振态信息，或者其也可以用作为一个微型的检偏器。

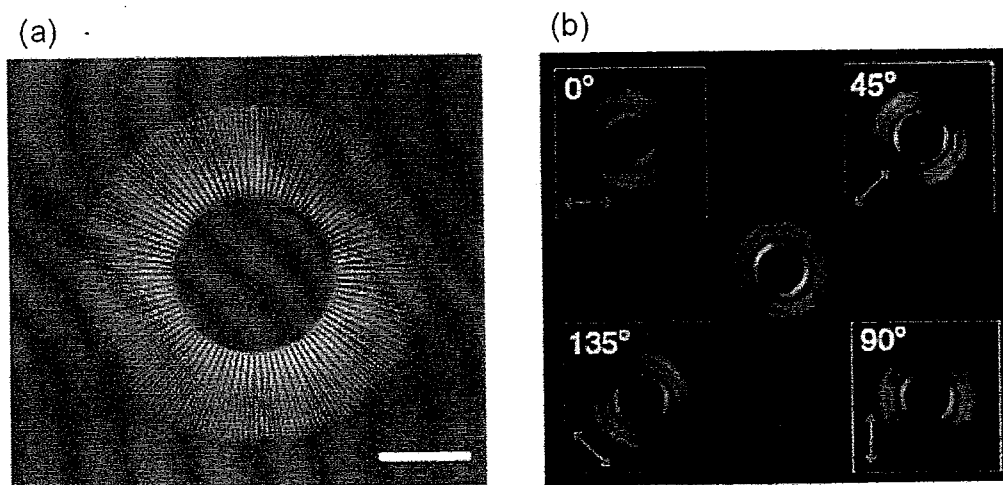


图 3.23 (a) 由堆栈结构组成的二维轮辐图形的扫描电子显微镜照片。比例尺为  $3\mu\text{m}$ ；(b) 二维轮辐图形在白光照射下的光学显微镜图像。中心处的图像为非偏振光照射，4 个边角的图像为 4 个不同偏振方向的白光照射。

最后，我们总结一下透射式表面等离子体滤光片相比于一般染料滤光片存在

的优势:

(1) 不同颜色的表面等离子体滤光片所用的材料和结构厚度完全相同, 因而在加工彩色滤光片阵列(彩色像素单元)时可以一次成形, 不同于染料滤光片由于化学材料性质不同在加工时必须分批次进行, 很大程度上缩减了加工步骤和复杂度。

(2) 表面等离子体滤光片横向和纵向上的尺寸都远小于染料滤光片, 因而其构成的器件不但轻薄, 而且对应的分辨率更高。

(3) 表面等离子体滤光片的滤色能力来源于金属结构本身, 因而其相比于染料滤光片化学性质和物理性质更加稳定, 不存在长时间使用后的褪色等问题。

基于以上特点, 我们有理由相信这种透射式表面等离子体滤光片会在未来先进的平板显示技术中发挥重要作用。

### 3.4.2 反射式表面等离子体滤光片

透射式液晶显示屏的优点是能够在昏暗情况下使用户能看到亮度均匀的屏幕, 但是整个背光面板在工作时必须一直都保持常亮, 否则屏幕就会漆黑一团, 因此在白天也得打开背光, 这对于便携式设备的电量消耗无疑是巨大的, 而且是一种浪费。近年来, 随着电子阅读器(e-Reader)和各种智能便携设备的盛行, 越来越多的目光投向了反射式显示技术。反射式显示技术主要利用周围的环境光作为主要光源, 因而在光线充足的情况下不需要背光光源便可以清晰的呈现出彩色图像。相类似的, 下面我们便开始讨论反射式表面等离子体彩色滤光片。图3.24给出了反射式表面等离子体彩色滤光片的基本结构示意图, 其类似于上一节介绍的透射式滤光片的MIM结构, 不过由于此处只有反射光而没有透射光, 所以中介质层(二氧化硅)和下层金属铝都是连续的, 只有上层金属铝为周期性光栅结构。三层材料的厚度分别为40nm/100nm/40nm。另外为了消除反射光对偏振态的依赖性, 此处我们考虑二维光栅结构并且入射光都为非偏振光。