

第1章 前言

1.1 衍射极限和瑞利判据

对物体进行超分辨成像一直是光学工程师追求的重要目标。但由于衍射的限制，传统光学成像系统不可能对一个理想物点实现完美成像，而是得到一个夫朗和费衍射像，就是所谓的艾里斑（Airy Disc）。这样每个物点的像是一个有限大小的弥散斑。而如果有两个这样的像斑（衍射图样）发生重叠，当二者的中心强度极大值靠的越近，画面的细节变得模糊不清而不能区分，这样就限制了系统的分辨率，弥散斑越大，分辨率就越低，如图 1-1 所示。这就是通常所说的衍射极限 [1]。1873 年，德国科学家阿贝（Abbe）根据衍射理论首次推导出衍射分辨率，即能够被光学分辨的两点间的距离总是大于波长的一半。由于衍射极限的影响，人们无法突破对特征尺寸小于二分之一波长的物体进行观测与表征，这极大的限制了人们对于周围微观事物的认知能力。

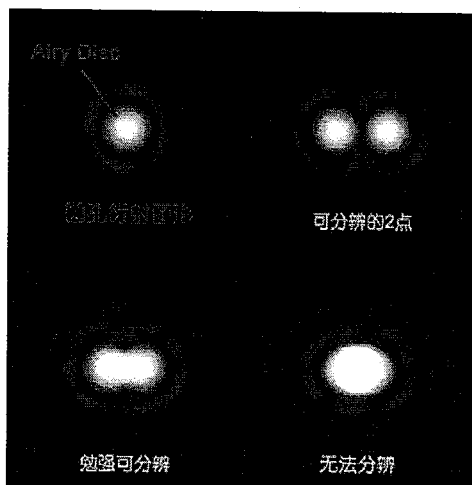


图 1-1 圆孔衍射图形以及由于衍射对分辨两个接近物的影响

判断两个物体能否被分辨，可依据瑞利判据 [2]：当两个等强度成分中一个的主强度极大恰好与另一个的第一强度极小相重合时，这两个成分应当算是刚刚被分辨开；这时，在叠加后的分布中，中点强度与极大强度之比为 $8/\pi^2 = 0.811$ ，如图 1-2 所示。

实际上，从频谱角度考虑，衍射极限就是由于物体的高频信息（精细成分）随着传播的距离呈指数迅速衰减，光学采集系统在采集平面处不能捕获这些精细成分而导致的。

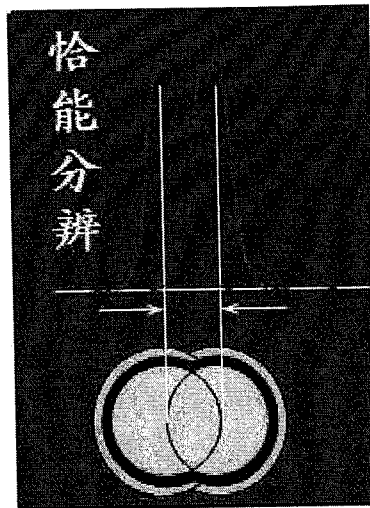


图 1-2 瑞利判据

随着对自然世界认知能力的不断增强，人们对微观世界探索与改造的欲望也随之不断加强，这就不可避免面临着衍射极限问题的挑战。由于衍射极限，传统的光学显微镜不能对微生物及更小的细胞等纳米级的结构进行观测与表征，阻碍了人们对世界的认知与改造能力。随着现代科技的迅速发展，纳米科技，诸如纳米电子学、纳米材料学、纳米生物学、纳米光学等，已成为当今的研究热点。随之发展的信息技术极大地改变了人们的思维习惯和生活方式，集成电路芯片作为信息载体，是所有电子设备的“心脏”。长期以来，人们也一直致力于集成电路芯片集成度的提高，从上个世纪 60 年代的每个芯片上仅有的几个元件发展到现在的几十亿、甚至上百亿个元件。而这些技术的发展离不开微纳加工技术。光刻技术作为主要手段的微细加工技术极大地促进了超大尺寸集成器件的快速发展。目前，芯片集成度的提高仍然遵循着摩尔定律：即每隔 18 个月，芯片上的晶体管数目就增加 1 倍。然而光刻技术也同样面临着衍射极限问题。为此，突破衍射极限的超分辨光学成像与光刻技术的研究将显得尤为重要。

近十几年来，表面等离子体（Surface Plasmons, SPs）在纳米尺度下的奇异光学现象为人们突破衍射极限进行超分辨成像带来了契机[3]。表面等离子体是存在于金属与介质界面上的表面电磁波，其模式会局限在金属表面附近，形成高度增强的近场。表面等离子体模式的局域特性正好可以被用来突破光的衍射极限问题，借此也发展出了各式各样的突破衍射极限的超分辨成像与光刻的光学装置，各类相关研究也达到空前的程度。

1.2 表面等离子体基础

1.2.1 表面等离子体的色散关系

在金属与介质（或是真空）之间形成的介面附近，金属表面的电荷密度发生集体式电偶极振荡现象（如图 1-3 所示），称为表面等离子体振荡（Surface Plasma Oscillations），若将此振荡行为量子化，称为表面等离子体激元（Surface Plasmon Polaritons, SPPs）[3]。

对于半无限大平面的金属-介质界面，金属的介电常数为 $\epsilon_1 = \epsilon_1' + i\epsilon_1''$ ，介质的介电常数为 ϵ_2 。由 Maxwell 方程得到该结构的色散曲线关系为[3]：

$$D_0 = \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} + \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} = 0 \quad (1.1)$$

$$\epsilon_i \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 = k_x^2 + k_{zi}^2, \quad i=1,2. \quad (1.2)$$

所以，该色散关系可表达为[3]：

$$k_x = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2} \right)^{1/2} \quad (1.3)$$

如果假设 $\epsilon_1'' < |\epsilon_1'|$ ，得到一个复数的波矢 $k_x = k_x' + ik_x''$ ，其中[3]

$$k_x' = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_1' \epsilon_2}{\epsilon_1' + \epsilon_2}}, \quad k_x'' = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_1' \epsilon_2}{\epsilon_1' + \epsilon_2} \right)^{3/2} \frac{\epsilon_1''}{2(\epsilon_1')^2} \quad (1.4)$$

对于实部 k_x' ，需要 $\epsilon_1' < 0$ 并且 $|\epsilon_1'| > \epsilon_2$ ，这在金属或者参杂半导体的本征频率附近可以满足这一条件；虚部 k_x'' 决定了金属内部的吸收。

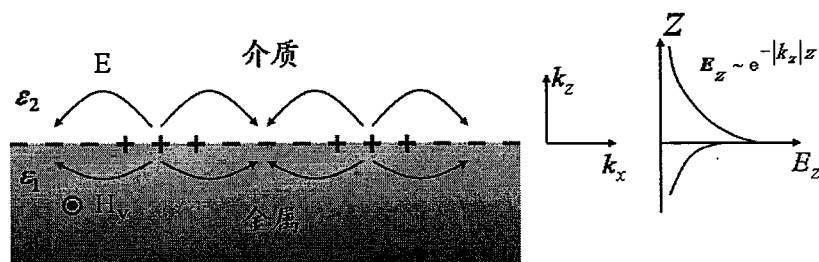


图 1-3 表面等离子体的电荷和电磁场在 x 方向传播示意图。 H_y 代表这一 p 偏振波在 y 方向的磁场，右图是电场在 z 方向呈指数形式变化。

图 1-4 是发生在空气-金属表面上的表面等离子体的色散关系图。蓝色曲线代表金属表面激发的表面等离子体波的色散关系，黑色直线代表了入射平面波的色散关系，虚直线代表了该表面等离子体波的振动频率。可以看到，当表面等离子体的频率接近共振频率 ω_{sp} 的时候，表面波的横向波矢 k_x 会达到极大值。可以发现，在同一频率下，表面等离子体的横向波矢 k_x 要比平面波大，所以一般的平面波入射到金属表面上是无法激发表面等离子体效应。若要激发金属平面上的表面等离子体，实验上可利用全反射产生倏逝波 (Evanescent Wave)，而倏逝波具有较大的 k_x 可以激发表面等离子体。另外也可以在金属表面制成光栅来产生额外的横向波矢分量来达到激发表面等离子体的目的。

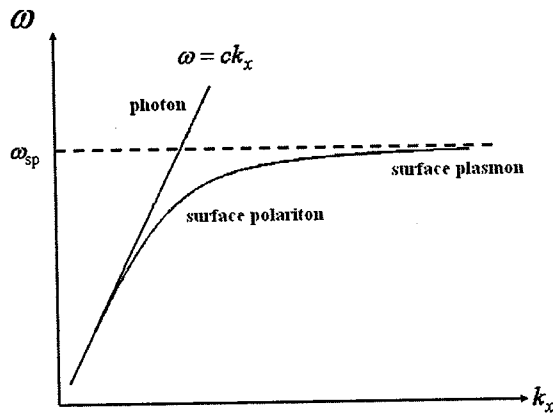


图 1-4 空气-金属表面等离子体色散关系

1.2.2 光激发表面等离子体的几种方式

如上所述，表面等离子体波矢横向分量大小(或是动量大小)，将比入射电磁波的波矢横向分量大，所以一般从介质中入射的电磁波无法激发非辐射性表面等离子体共振，因此必须借助一些耦合机制，才能使入射的电磁波获得较高的 k_x 值而达到激发表面等离子体共振的条件。对于一个给定的光子能量 $\hbar\omega$ ，必须对其波矢 $\hbar\omega/c$ 增加一个量 Δk_x 以满足能量守恒，将光子“传送”给表面等离子体。有以下三种方式可以完成用光来激发表面等离子体。

(1) 光栅耦合法 (Grating Coupler)

这种方法就是在金属表面上制作如光栅 (Grating) 等微小周期性结构作为

耦合媒介(如图 1-5 所示)。在外加电磁场作用下, 这些周期结构会造成特定波长的极化电子振荡, 而其产生的电磁场将可提供入射电磁波额外的 k_x 值, 此效应与电子在固态晶格中运动的系统类似, 入射电磁波将获得(或减损)光栅倒晶格矢量(Grating Vector) 整数倍的额外水平波矢, 当所获得的光栅倒格矢使入射光的横向波矢分量与金属表面等离子体的波矢吻合时, 即可激发金属表面等离子体共振。至于激发表面等离子体所需满足的条件则可由下列关系式来表示[3]:

$$k_{x,inc} \pm nk_{\Lambda} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}} \equiv k_{sp}, \quad n=1,2,3,\dots \quad (1.5)$$

其中 $k_{x,inc} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_2} \sin \theta$ 为入射光的横向波矢大小, 而 $k_{\Lambda} = \frac{2\pi}{\Lambda}$ 代表周期为 Λ 的光栅倒格矢大小。由式(1.5)可以看出, 对于不同频率或入射角度的激发光源, 可通过调整表面结构的周期来满足激发表面等离子体共振条件; 同时反过来说, 表面结构的周期也可影响外加电磁波所产生的表面等离子体共振频率。

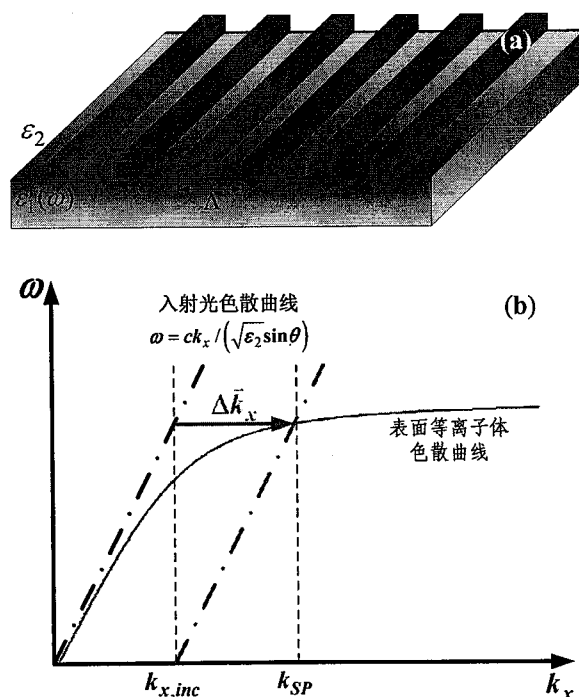


图 1-5 (a)一维光栅结构示意图; (b)光栅耦合产生的表面等离子体色散关系。

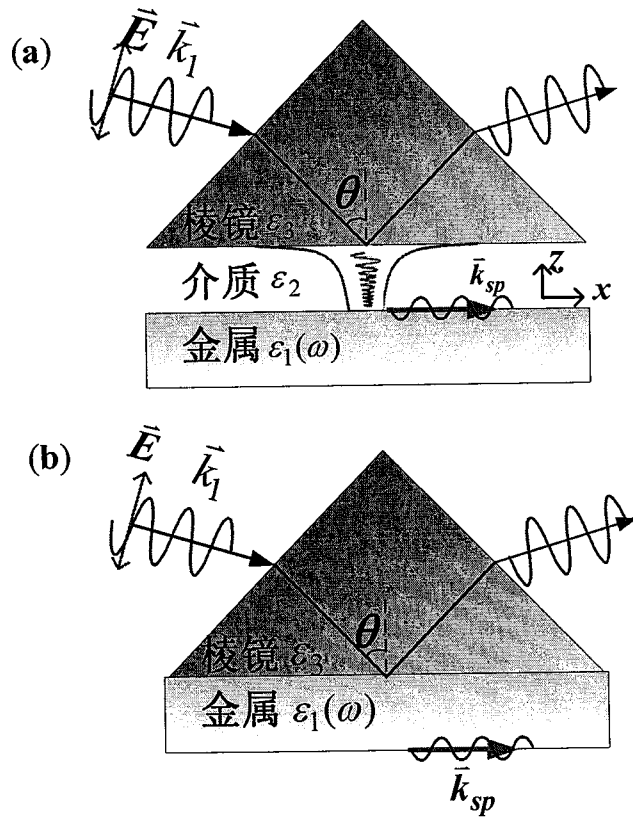
(2) 内全反射消散场 (Attenuated Total Internal Reflection, ATIR)

另一种激发表面等离子体的耦合机制, 是利用介电常数较高的介质产生内部全反射消散场(Attenuated Total Internal Reflection, ATIR)作为激发源的方式来激发

金属表面等离子体共振。由于电磁波的波矢大小满足式 $k = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_3}$ ，当电磁波通过介电常数较高的棱镜时(如图 1-6 所示)，其波矢量大小将会变得比在介质 ϵ_2 中大，若使入射光在棱镜与介质界面上产生全反射，在紧邻全反射界面附近将会有一部分消逝场透穿到介质中，由于此消逝场电磁波所具有之 k_x 大小将与全反射之电磁波的 k_x 相同，所以当棱镜与金属表面之间的距离足够小，并且发生全反射的入射光波矢横向分量符合如下表面等离子体共振条件时[3]

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_3} \sin \theta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}} \equiv k_{sp} \quad (1.6)$$

满足这种激发表面等离子体耦合机制，按照其结构的不同，又可以分为两类：一类是 Otto 结构，另一类是 Kretschmann-Raether 结构。



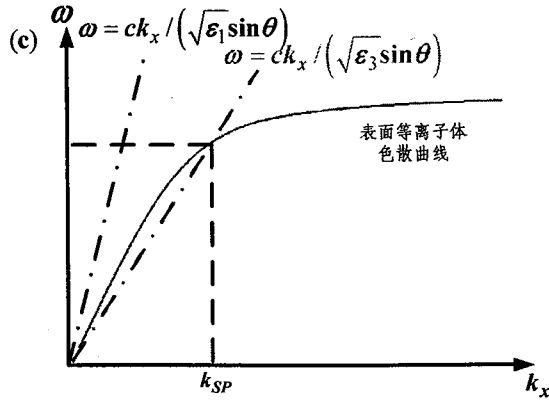


图 1-6 (a) Otto 结构; (b) Kretschmann-Raether 结构;
(c) 内全反射消散场产生表面等离子体的色散关系。

(3) 非线性四波混频自由空间直接激发 (Free-Space Excitation by Nonlinear Four-wave Mixing)

之前的两种方法都是基于借助一些特殊结构产生高频波来激发金属表面的等离子体激元，这是由于自由空间传播的光源，其频率小于等离子体波，不能够直接激发表面激元。2009 年，Jan Renger 等人提出了一种与之不同的方法，利用自由空间传播的非线性四波混频光波直接照射金属表面，也能激发金属表面等离子体激元 [4]。

非线性四波混频方法激发表面等离子体原理如图 1-7 所示。整个过程包括其中的三个入射光子的动量矢量叠加，使其穿透光锥 (Light cone) 而直接耦合表面等离子体成为可能。利用这种技术，表面等离子体可以在任意的金属表面激发，只需要在共振方向入射的两束激光脉冲的简单叠加。

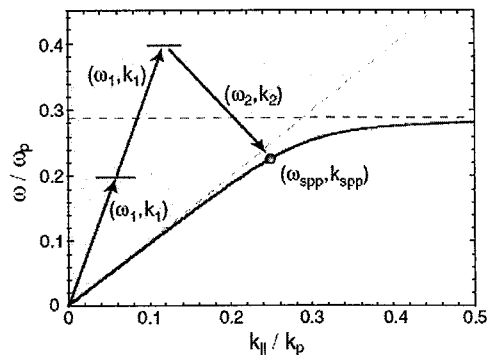


图 1-7 非线性四波混频方法激发表面等离子体原理示意图 [摘自文献 J Renger et al., Phys. Rev. Lett. 2009(103):266802]

1.3 表面等离子体光刻

近年来,随着纳米技术的发展,研究人员发现光与微纳金属结构的相互作用会产生一系列新奇的物理现象,以亚波长金属结构为代表的新型表面等离子体光学人工材料引起了人们越来越广泛的关注,用以解决光刻技术所面临的分辨率难题[5]。

表面等离子体波(SPP)的一个显著特点就是其波长比在同频率下的光波要小很多[3],而且SPP波具有近场增强的性质,有力地克服了倏逝波弱场的缺点,也能够提高光刻的分辨率,得到尺寸更小的线条。从理论上讲,表面等离子体波的波长可以在软X射线的波段内,因此用来实现纳米光刻在原理上是可行的。这样人们可以利用表面等离子体波在光刻方面有所作为。

2004年,Luo等人利用图1-8(a)的实验结构,实现了超分辨的表面等离子体光刻图形[6]。传统光源(436nm)照射在石英上,石英下面是金属银光栅作为掩模,光刻胶和晶圆基底片作为一个整体和上面的掩模部分中间隔一薄层空气。图1-8(b)是利用时域有限差分法模拟这种结构产生光刻条纹的光强分布,掩模周期300nm,厚度和缝宽均为60nm。可以看到,对于设计好的掩模,在其入射面上激发了表面等离子体波并发生干涉,形成了明暗相间、周期为100nm的干涉条纹,这是由于在掩模上表面激发了波长更小的表面等离子体波之间的干涉,光强较强的部分可以看作是物光强(如图1-8b);在其下表面光刻胶内有同样周期的干涉条纹,这里光强较强的部分可以看作物光强对应的像(如图1-8b)。图1-8(c)是通过实验在光刻胶内刻出了半周期为50nm的线条。

在这一工作中,设计这样结构的掩模使其在上表面发生干涉的目的是为了生成尺寸更小的物(半周期为50nm),因为要想在这样的掩模上制作半周期为50nm的物体有很大的难度;由于金属掩模中的缝宽相应于其周期而言要小很多,可以把金属掩模近似看成一个金属薄平板,掩模上表面纳米级的物光强在其下表面光刻胶内一比一的得到恢复,实现表面等离子体超分辨成像。这一SPP光刻工作的重要性体现在两个方面:一是实验证明了SPP波长确实要比入射光波波长小;二是通过实验验证了SPP的超分辨成像。正因为此,这一工作可以看作表面等离子体光刻的原形,在随后相关的表面等离子体光刻研究中得到广泛的引用。

文献[6,7]的表面等离子体光刻的主要思想是基于表面等离子体光学的独特性质,用长波长光源照射制作有周期性的微细金属光栅掩模,激发金属表面等离子体,产生等离子体波。表面等离子体波通过掩模后,使光场发生重新分布,是放置在强光出射处的光刻胶感光。利用这种光刻技术制作高分辨图形相对简单,

所采用的曝光系统简单，无需昂贵的短波长光源和复杂的成像系统，大大减低了成本，对促进纳米科技发展具有重要的使用价值。

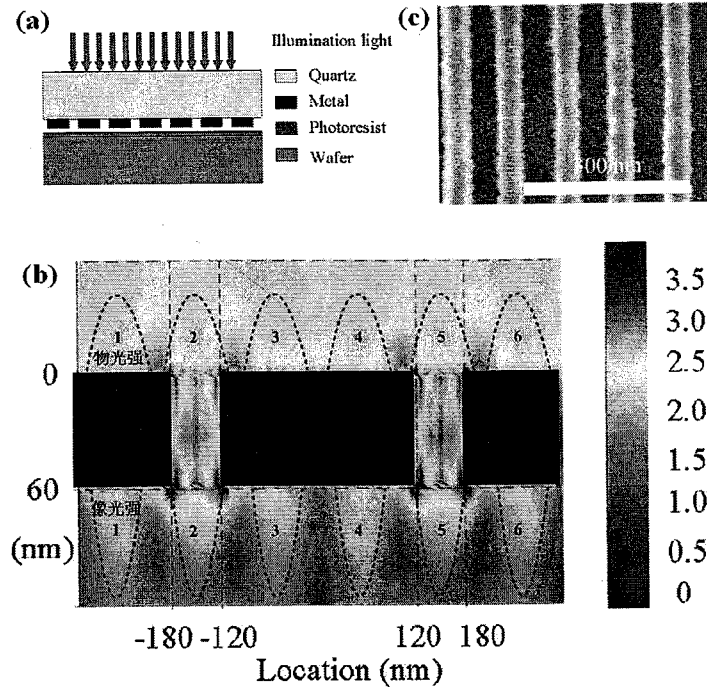


图 1-8 利用表面等离子体波光刻技术的原理结构 (a) 和数值模拟场强分布 (b) 以及刻出 50nm 线宽实验结果 (c) 。[摘自文献 X. Luo et al., Appl. Phys. Lett. 2004(84):4780-4782]

这项工作突破了传统的通过减小照明光的波长来提高光刻分辨率的思路，开启了利用长波长的光高效率、低成本的制备高分辨率纳米结构的一个新方法，随后在很多研究小组中得到了广泛的相关研究。同年美国加州大学洛杉矶分校的 Xiang Zhang [8] 也在此光刻机制上发展了二维周期结构的光刻技术（如图 1-9）。2005 年美国德州 Austin 大学的 Shao 和 Chen 也进行了类似的研究 [9-10]，在实验上用 355nm 的激光照射 100nm 线宽的金或钛掩模刻出一对一的周期性线条 [9]。2006 年中国科技大学的明海小组利用金属波导理论来设计金属光栅波导结构并模拟出频率加倍的光刻图案 [11]。2007 年新西兰 Canterbury 大学的 Blaikie 小组从反射增强的角度出发，把金属薄膜看作超级反射镜，将金属光栅激发的 SPP 增强，实现超分辨成像或超分辨等离子体干涉光刻 [12]，随后研究人员在此基础上从波导理论出发，研究了金属光栅异质波导结构并模拟出倍频的光刻图案 [13]。

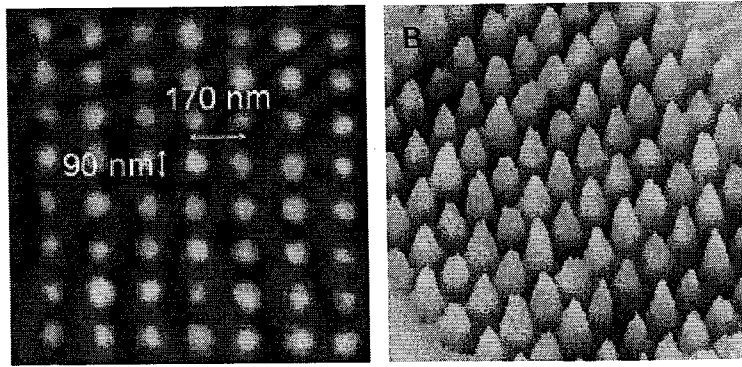


图 1-9 (a)线宽 90nm、周期 170nm 的光刻图形;(b): (a)的三维形貌图。[摘自文献 W Srituravanich et al., Nano Lett., 2004(4):1085]

随后针对表面等离子体波小波长的特性，利用表面等离子体干涉光刻或成像光刻来提高光刻图形的分辨率的研究在理论[14-34]和实验[35-42]方面得到迅速的发展。除了上述的一些表面等离子体光刻，还有其他形式的基于表面等离子体的光刻。比如利用纳米尺度金属的 Bowtie（如图 1-10）和 antenna 结构产生增强的局域表面等离子体来实现超分辨的表面等离子体光刻[43-48]，利用复合结构（如图 1-11）对能量进行可控来实现高分辨的图形[49,50]等。

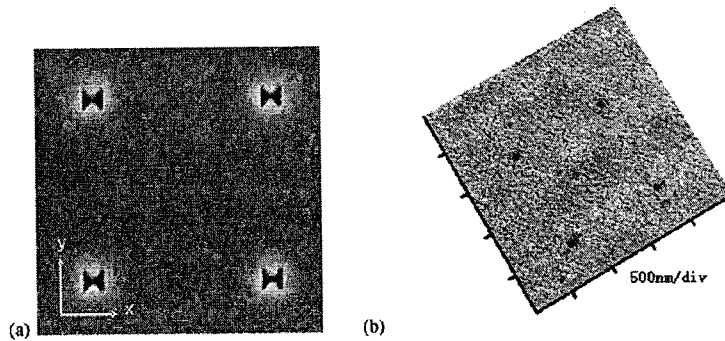


图 1-10 (a)掩模上 2×2 bowtie 阵列扫描电镜图；(b) 成像光刻的原子力显微镜形貌图 $70\text{nm} \times 80\text{nm}$ 。[摘自文献 L Wang et al., Nano Lett. 2006(6):361]

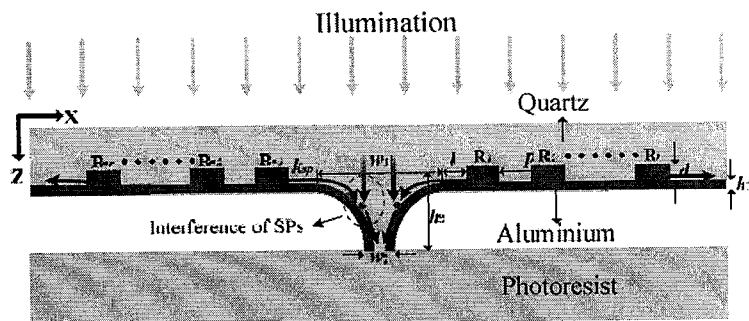


图 1-11 可控局域能量的复合结构图[摘自文献 X. Wei et al., Opt. Express 2008(16):14404]

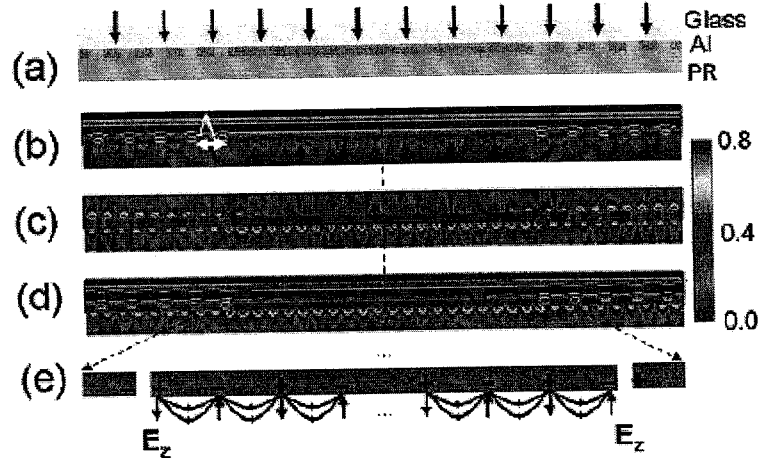
表面等离子体光刻作为一门新颖的光刻技术手段，有着十分诱人的潜在应用

前景，受到了国内外许多研究小组和世界著名公司的广泛关注。由于干涉光刻具有低成本、大面积制作微纳结构图形的优点，相信表面等离子体干涉光刻技术的发展将对光刻技术，特别是半导体加工、微细加工技术等方面产生革命性的影响。因此，这里主要详细介绍 SPP 干涉光刻的研究进展和 SPP 成像光刻研究进展。

1.4 表面等离子体干涉光刻研究进展

参考文献[6-13]是针对金属光栅作为掩模激发 SPP 的干涉光刻研究，2007 年和 2008 年，俄罗斯科学院的 Doskolovich 等提出了辅助于介质衍射光栅 (dielectric diffraction grating) 来激发其下面金属的表面等离子体，利用高阶的衍射波 (倏逝波) 以实现高分辨和高对比度的 SPP 干涉光刻，同时模拟和详细的讨论了通过改变入射波长和入射角来控制干涉条纹线宽的相关机制[14, 15]。

由公式 (1.3) 可以看到，由于表面等离子体的水平波向量是由入射光直接提供，SPP 的传播距离由其波向量的虚部决定，因此理论上这种模式具有更高的分辨率和更长的传播距离。2005 年美国加州大学伯克利分校的 Zhang 等[16]提出了利用光栅的横向波矢分量以满足激发金属表面 SPP 的要求，在金属 Al 膜表面实现 SPP 干涉光刻，如图 1-12 上图。2009 年，Luo 等[17]利用有限的几个小缝填充不同的材料以调整光路传播的位相，使得激发的表面等离子体波定向传播，以满足经过光照射后在两组缝中间的金属膜表面发生 SPP 干涉，这种方法在提高干涉条纹的对比度和增强电场强度有很明显的优势，但在小缝中填充不同的材料会给实验带来很大的挑战，如图 1-12 下图。利用这种光刻机制可以用一维光栅在入射光为 266nm 下实现周期为 90nm、特征尺寸为 40nm 的二维周期结构[16]。



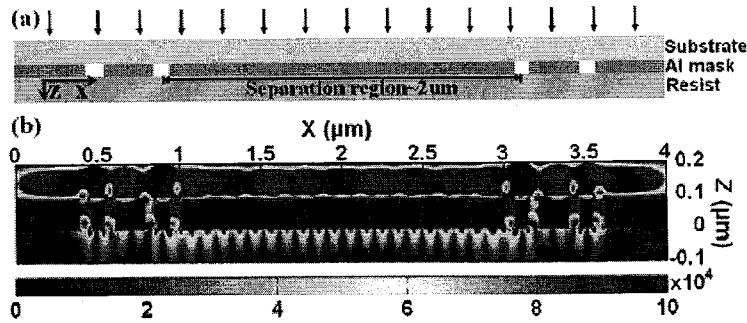


图 1-12 上图：周期光栅激发的 SPP 干涉光刻，(a)结构示意图，(b)、(c)和(d)分别是 E_x 、 E_z 和 E 分布情况。下图：填充不同材料的 SPP 干涉光刻，(a)结构图，(b)总电场分布图 [摘自文献 Z. Liu et al., Nano Lett., 2005(5):957 和 T. Xu et al., J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 2009(11): 085003]

对于光学干涉光刻技术，提高图形分辨率一直是其发展的重要目标。基于表面等离子体波的干涉光刻研究也一直朝着这个目标进行。2008 年，Luo 等人提出了利用金属-介质多层膜超透镜的滤波特性实现 SPP 干涉光刻的思想[18]。其主要思想是光通过周期性的金属掩模后，其光场会由很多个衍射级次波叠加组成，这些衍射级次的波经过设计好的金属-介质多层膜超透镜，只有某一个衍射级次 (± 1 或 ± 2) 的光波能够透过该超级透镜，从而在透镜出射面与光刻胶的界面处发生干涉，如图 1-13。这种干涉光刻的分辨率受入射光的入射方向、掩模的周期和多层膜超透镜的滤波特性共同决定的。这种光刻技术原理简单，无需复杂的光学系统，制作成本较低，缺点就是多层膜加工方面有些难度。同年，Zhang 等人也提出了这种光刻思想，并模拟了 405nm 入射光下实现周期为 50nm 的二维光刻图形 [19]。随后这种光刻技术在简化结构和提高光刻分辨力等方面得到进一步的发展 [20, 21]。

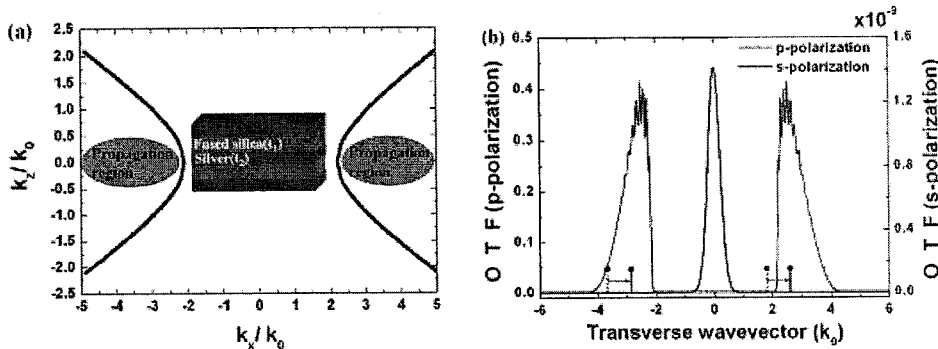


图 1-13 多层膜结构的频率等高线 (左图) 和 30 对 Ag(20nm)/SiO₂(30nm) 多层膜分别在 s 偏振和 p 偏振的 442nm 光源下的光学传递函数。[摘自文献 T. Xu et al., Opt. Express 2008(16):13579-13584]

以上几种都是辅助于光栅或者有孔结构的表面等离子体波干涉光刻机制。这

些光栅或小孔结构需要用其它的光刻技术加工得到。2006年，Guo 和 Du 等人提出借助于全内反射（ATR）激发表面等离子体的无掩模 SPP 干涉光刻[22]，如图 1-14 所示，并模拟了 441nm 入射光下实现特征尺寸为 60nm 的高对比度图形。随后，该研究小组在讨论一些包括周期、增强因子、对比度和均匀性等在内的重要参数在光刻中的关系[23]；利用波导理论分析这种无掩模 SPP 干涉光刻[24]和利用 193nm 光源提高光刻分辨率[25]。2008 年和 2010 年，新加坡南洋理工大学的 Murukeshan 小组也开展了相关的研究工作[26, 27, 37]，并利用了四路光束实现了二维干涉图样的制备。

这种光刻方法在实际应用中无需用掩模、复杂的结构和实验装置即可实现大面积干涉图样，而且干涉图样也会更为均匀，同时若在四个方向上两两垂直入射照明，可实现二维干涉图样；但这种光刻方法对光路方向的控制要求很高。

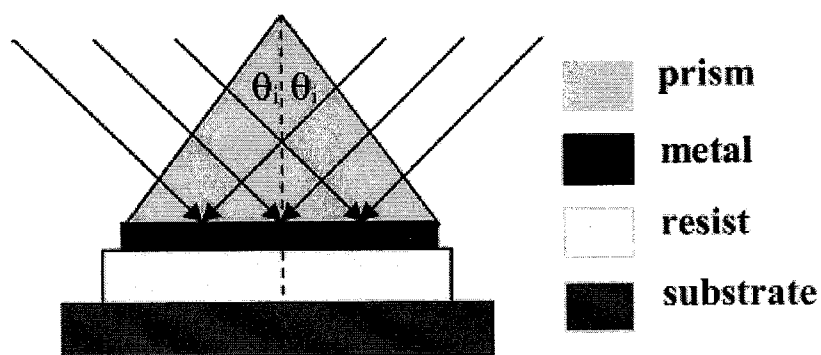


图 1-14 无掩模的 Kretschmann 型激发 SPP 的干涉光刻装置示意图。[摘自文献 X. Guo et al., Opt. Lett., 2006(31):2613-2615]

1.5 表面等离子体成像光刻

除了上面所述的表面等离子体干涉光刻外，由于具有对倏逝波强度增强的作用，SPP 还可用于成像光刻，即对微纳尺度的物体（掩模）进行一对一的超分辨成像。这涉及到光学成像的一些概念与原理，因此有必要从超级透镜的成像机制和相关概念说起。

对于传统的透镜而言，由于衍射限制，无论镜头表面如何光滑，其空间分辨率也局限在波长量级。携带物体精细信息的波在像平面被探测到的横向波矢量要比其在自由空间的光波波矢 ($k_0 = \omega/c$) 要大。这些波在光波的传播方向呈指数衰减，称之为倏逝波 (Evanescent Waves)。因此，包含物体精细特征信息的倏逝波成分不能为传统透镜（透镜材料是诸如光学玻璃之类的正折射率材料）在远场探测到，从而不能对物体进行最终完美成像，这也就是前面所述的衍射极限[1, 51]。

为了得到这些快速衰减的倏逝波，即提高空间分辨率，一个行之有效的方法

就是利用尖锐的探针在几乎贴近物体的地方扫描，这也是近场扫描光学显微镜 (Near-field Scanning Optical Microscopy, NSOM) 的工作原理[52, 53]。然而，在 2000 年，英国帝国理工学院的 J. B. Pendry 爵士在著名物理评论快报 *Physical Review Letters* 上发表文章，对突破传统衍射极限的新方法进行阐述并提出了一种“完美透镜 (Perfect Lens)”实现对物体的完美成像，如图 1-15 所示，该“完美透镜”所遵循的成像机制完全不同于传统光学的成像[54]。

“完美透镜”曾引起一些研究人员的质疑与争论[55-58]。因为 Pendry 教授提出的“完美透镜”能够完全恢复光场的近场信息的结论是在满足透镜的介电常数 ϵ 和磁导率 μ 严格等于 -1 的条件下得到的。自然界中不存在没有损耗的理想的材料，即使是人工合成的材料也不可能完全满足这一条件，负折射介质必然存在色散和吸收，因此介电常数和磁导率必然存在一个虚部。理论分析表明，“完美透镜”的分辨能力对材料参数十分敏感，即使存在一点点的偏差 (例如吸收)，都会影响“完美透镜”的分辨能力[59-64]。虽然不存在理想的“完美透镜”，但随后的理论研究与实验结构都证明了超级透镜 (Superlens) 作为“完美透镜”的替代产物，的确能够实现纳米级尺度的结构进行超分辨成像[60-73]。

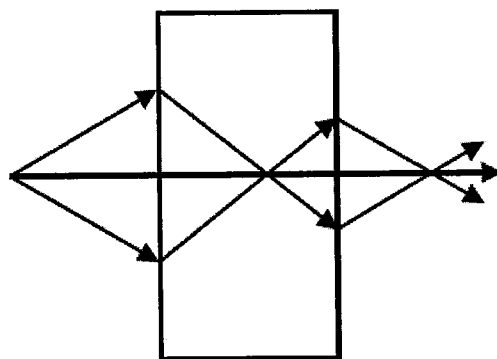


图 1-15 具有负折射率的材料使光束发生负角度的折射， $\epsilon = -1$ 和 $\mu = -1$ 时，该材料可以认为是一个完美透镜。[摘自文献 J.B. Pendry, *Phy. Rev. Lett.* 2000(85):3966-3969]

完美透镜是基于一种具有负折射率材料 (Negative Refractive Index Material, NRIM) 的薄金属板，这种“负折射”材料能够对包括倏逝波成分在内的物体所有二维傅立叶成分聚焦，从而实现对物点的完美成像。“负折射率”概念最开始是由前苏联物理学家 Veselago 于 1968 年首先提出来的[74]，他研究了物质的介电常数和磁导率同时为负数的各项同性左手材料中电磁波传播特性，预测了一些由之带来的“反常”物理现象：电场、磁场和波矢量不再服从右手定则而是满足左手定则，坡印廷矢量和波矢量方向相反，逆 Snell 折射现象[75]、逆多普勒效应[76]

和逆契伦柯夫辐射效应 [77, 78]等等。但这一预言很长一段时间都没有引起人们的足够重视，这主要是由于负磁导材料在自然界中不存在，也未能找到通过人工的方法来实现。直到上个世纪九十年代末，Pendry 教授及其合作者相继提出具有周期排列结构的细金属棒和金属谐振环（SRR）组成的人工材料，实现了等效介电常数和等效磁导率在微波波段内均为负值[79-81]。美国 Duke 大学的 D.R. Smith 教授实现了在 GHz 波段等效介电常数和等效磁导率同时为负值的“左手材料”。随后，很多研究小组相继加入研究行列，其中不乏一些研究者提出反对观点[82, 83]，认为群速度不可能超过光速，能量朝着负方向传播，违反了因果律。随后的理论推导和数值计算纠正了这些反对观点，证实了人工合成负折射材料的可行性。

目前人们对高频负磁导率材料和负折射率材料的研究达到空前的速度，Pendry 教授和其合作者证明了仅仅满足介电常数为负值的材料足以对 p 偏振的倏逝波进行聚焦 [54, 84]，如图 1-16 所示。因此，自然光在负折射率材料中的传播行为可以通过用 p 偏振光在具有负介电常数的材料（如金属）的传播进行模拟。

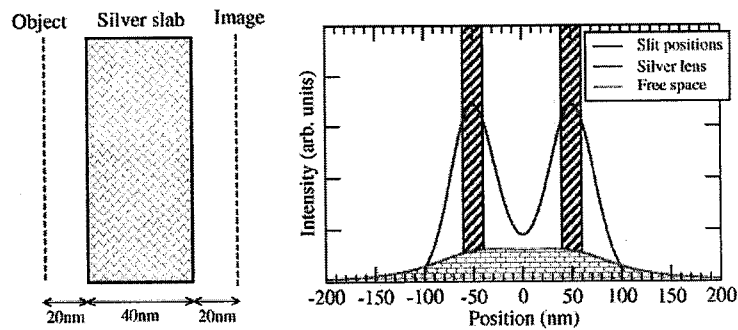


图 1-16 超透镜成像结构示意图和其超分辨成像理论结果图。

[摘自文献 S.A. Ramakrishna, Rep. Prog. Phys. 2005 (68):449-521]

2004 年，Luo[6]从理论上模拟了利用一个金属银材料掩模（Near Field Converter Mask, NFCM）进行深亚波长的成像光刻，如图所示 1-17 所示。这个金属掩模共三层，第一层是褶皱的金属银结构作为物体，在入射光平面一侧，周期为 400nm，槽宽为 150nm；第二层是很薄的一层金属银平板；第三层是半周期为 25nm 的金属银光栅。入射光经过这样的掩模后，光场在掩模的出射面重新得到分布，在出射面外的光刻胶层对掩模的第三层光栅结构实现半周期为 25nm 的超分辨缩小成像。用这种方法制作的纳米图形分辨率很高，其分辨率极限不受入射光波长限制，可称之为“超分辨”缩小成像光刻的原形。

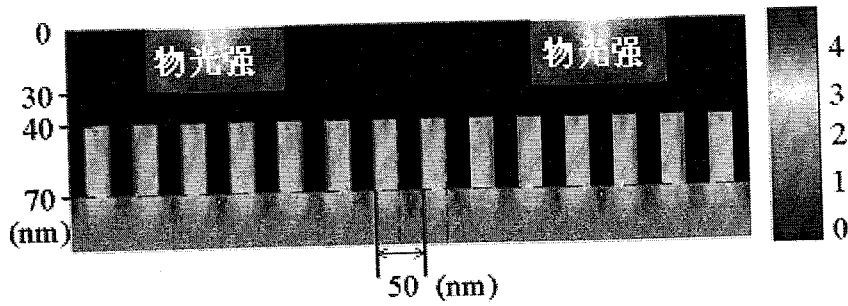


图 1-17 表面等离子体成像光刻 (半周期 25nm) 的模拟图。[摘自文献 X. Luo et al., Appl. Phys. Lett. 2004(84):4780-4782]

2005 年, 美国加州大学伯克利分校 Xiang Zhang 教授的研究小组从实验上证实了超透镜 (Superlens) 的超分辨成像[42, 85]。如图 1-18 所示, 他们利用 365nm 的紫外光源和 35nm 厚的银膜, 通过在银膜表面激发的表面等离子体, 对纳米级物体的倏逝波信息增强后, 在光刻胶上实现了对半周期为 60nm ($\lambda/6$) 的亚波长结构的超分辨成像, 其中“NANO”字样的线宽为 40nm。从实验上证实了 Pendry 教授提出的“完美透镜”概念, 从此拉开了超级透镜 (superlens) 在超分辨成像与光刻方面研究的序幕。

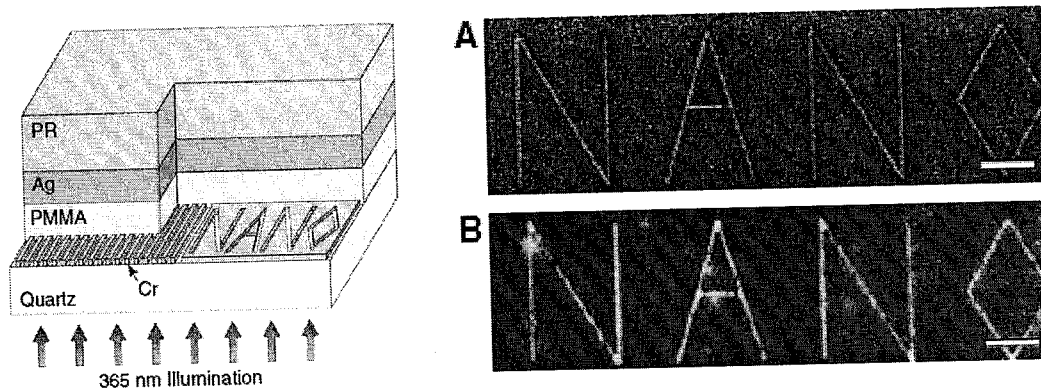


图 1-18 超级透镜成像结构图 (左图), 及成像结果对比图 (右图 A: FBI 方法制作的纳米结构; B: 超透镜成像结果) [摘自文献 N. Fang et al., Science 2005(308):534-537]

然而对于“完美透镜”, 电磁场通过这种没有损耗的理想介质时, 物体的高频傅立叶成份会在透镜近场得到极致增强。而无损耗的介质在自然界中是不存在的, 即使是通过人工的方法也是不可能制造出没有损耗的材料。Ramakrishna 及其合作者提出一种类似于文献[86, 87]中的结构, 将“完美透镜”分成透镜-介质多层膜结构而物、像之间的距离 ($2d$) 保持不变[88], 如图 1-19 所示, 依然可以实现完美成像。而随后对实际的金属-介质多层膜结构在超分辨成像领域内得到了广泛的研究, 有平板形金属-介质多层膜[8,9,19,21,88-101], 圆柱面形金属-介质多层膜组

成的 hyperlens[102-105] (如图 1-20 所示) 和非圆形的曲面金属-介质多层膜 [106-108]。

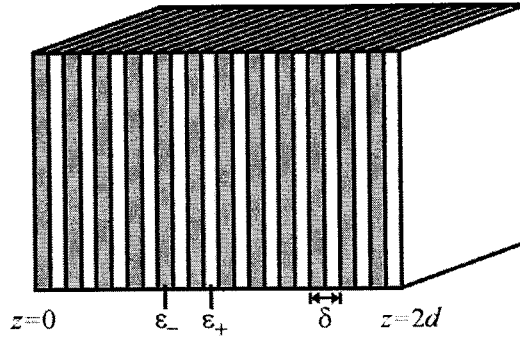


图 1-19 金属-介质多层膜结构。[摘自文献 S.A. Ramakrishna, et al., J. Mod. Opt. 2003(50):1419-1430]

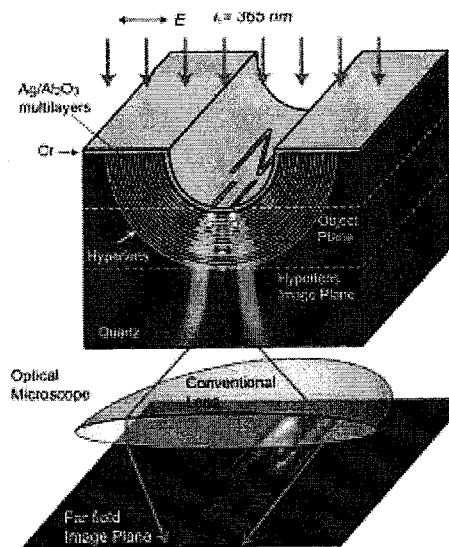


图 1-20 圆柱形 Hyperlens 实验示意图和实验结果。[摘自文献 Zhaowei Liu et al., Science 2007(315):1686]。

1.6 本文研究意义与内容安排

1.6.1 研究意义

表面等离子体光学得以迅速发展的主要原因在于其独特的光学特性。这些奇异特性为表面等离子体光学在相关研究领域提供了难得的新机遇。其在深亚波长尺度的纳米光刻技术和超分辨光学成像方面都将大有作为。随着纳米加工技术的发展, 纳米结构器件必将成为未来集成电路的基础, 干涉光刻技术是制作纳米结构的重要技术手段, 基于表面等离子体的干涉光刻在纳米结构制备上具有重要的应用前景; 超分辨光学成像 (继而发展到声波、微波等频域范围内) 技术在航空

航天、国防、科技、医疗卫生和工业等重要领域都扮演着举足轻重的作用。因而深入的探究表面等离子体激元中新效应的物理机制及其在超分辨光刻与成像方面的应用显得尤为重要。

目前,世界各国(尤其是欧美等发达国家,包括著名公司)对表面等离子体光学的相关研究正如火如荼的展开,并取得了很多可喜的成果。而我国也正紧跟国际步伐,加大对此类关系国计民生的基础学科的研究力度。

1.6.2 本论文内容安排

本文将针对基于金属的表面等离子体奇异光学特性,深入研究表面等离子体的本质,利用严格衍射理论和傅立叶光学理论对表面等离子体光波在超分辨干涉光刻以及光学成像光刻方面的应用进行了深入的探讨与研究。

全文共分六章,各章节的主要内容安排如下:

第一章,前言部分,简要介绍一下衍射极限和瑞利判据,表面等离子体的一些超衍射特性对实现超衍射极限的超分辨干涉光刻以及成像光刻的相关研究,并介绍了国内外在这些方面的研究进展。

第二章,介绍亚波长金属结构中光传播行为的数值计算方法,包括矢量衍射理论和平面波的角谱理论,以及时域有限差分方法等。

第三章,发展了介质-金属多层膜滤波的表面等离子体干涉光刻方法。理论上模拟了在 193nm 光源照射下,利用掩模的一级衍射波透过设计好的介质-金属多层膜滤波器并发生干涉。利用这种方法可以使线宽突破 22nm,甚至 16nm 的光刻节点。

第四章,提出了基于金属光栅-介质-金属异质波导结构的等离子体共振干涉光刻方法,在 436nm 光源下实现深亚波长的光刻图形。这种干涉光刻方法不仅具有较高的分辨率($\sim\lambda/17$)优势,也能实现高质量(对比度和沟槽深度)的干涉图形,而且无需复杂和昂贵的实验设备,对促进纳米科技发展、微电子及半导体制造领域内具有积极作用。

第五章,首次提出非匹配超透镜结构,以及其在宽波段超分辨成像、光刻和对亚波长结构的莫尔效应。阐述了当超透镜在材料选择的灵活性和实现宽波段的超分辨成像与光刻的优点。并且对该非匹配超透镜在针对亚波长结构的莫尔效应进行了详细的讨论。

第六章,结束语,对本论文的工作和创新点的总结,以及对未来工作的展望。

第2章 亚波长金属结构中光学行为的数值计算方法

由于金属表面等离子体的奇异增强透射光学现象，可以借此发展来突破衍射极限实现超分辨率光学成像。因此，有必要从本质上了解金属与光波的微观相互作用机制。因此首先介绍光与金属的相互作用以及光波在亚波长结构的材料中的传播行为，在此基础上阐述了针对亚波长尺寸结构的严格衍射理论，及时域有限差分计算方法。

2.1 光与金属的相互作用

光与金属的相互作用主要是来自于光波随时间与空间作周期性变化的电场与磁场对于金属组成中的电荷所产生的影响，导致电荷密度在空间分布中的变化以及能级跃迁与极化等效应，这些效应所产生的电磁场与外来光波的电磁场耦合在一起后，所形成的作用后的光波电磁场，并以散射、吸收、折射、色散或电磁波能流的形式重新分布等方式，表现出各种不同光学现象。

当电磁波与物质作用时，物质与外加场之间的相互作用，可以用其所具有的净电荷密度（ ρ ）、净电流密度（ \bar{J} ）、电极化强度（ \bar{P} ）与磁极化强度（ \bar{M} ）等四个代表物质状态的物理量以及电磁波的 Maxwell 方程式加以描述[1]，

$$\begin{aligned} \nabla \times \bar{E} &= -\mu_0 \frac{\partial \bar{H}}{\partial t} - \mu_0 \frac{\partial \bar{M}}{\partial t}; & \nabla \cdot \bar{E} &= -\frac{1}{\epsilon_0} \nabla \cdot \bar{P} + \frac{1}{\epsilon_0} \rho \\ \nabla \times \bar{H} &= \epsilon_0 \frac{\partial \bar{E}}{\partial t} + \frac{\partial \bar{P}}{\partial t} + \bar{J}; & \nabla \cdot \bar{B} &= 0 \end{aligned} \quad (2.1)$$

其中 \bar{E} 与 \bar{H} 为电磁波的电场与磁场。由于物质内部的电或磁极化将会产生感应电场或磁场，若引入电位移（Electric Displacement, \bar{D} ）以及磁感应（Magnetic Induction, \bar{B} ）矢量表示物质内部总和的电场与磁场，其定义如下[1]：

$$\begin{aligned} \bar{D} &= \epsilon_0 \bar{E} + \bar{P} \equiv \epsilon_0 \epsilon \bar{E} \\ \bar{B} &= \mu_0 (\bar{H} + \bar{M}) \equiv \mu_0 \mu \bar{H} \end{aligned} \quad (2.2)$$

式中 ϵ 与 μ 分别代表物质相对于真空的介电常数（Dielectric Constant）与磁导率（Permeability），这两个物理量将可用以说明物质的光学性质。由式（2.2）的定义，Maxwell 方程式可简化成如下形式[1]：

$$\begin{aligned}\nabla \times \bar{E} &= -\frac{\partial \bar{B}}{\partial t}; & \nabla \cdot \bar{D} &= \rho \\ \nabla \times \bar{H} &= \frac{\partial \bar{D}}{\partial t} + \bar{J}; & \nabla \cdot \bar{B} &= 0\end{aligned}\quad (2.3)$$

对于一个没有净电荷密度与净电流密度的系统 ($\rho=0, \bar{J}=0$), 由式 (2.3) 可以推得电磁波的电场与磁场所要满足的波动方程式[1]:

$$\begin{aligned}\nabla \times (\nabla \times \bar{E}) &= -\frac{1}{c^2} \varepsilon \mu \frac{\partial^2 \bar{E}}{\partial t^2} \\ \nabla \times (\nabla \times \bar{H}) &= -\frac{1}{c^2} \varepsilon \mu \frac{\partial^2 \bar{H}}{\partial t^2}\end{aligned}\quad (2.4)$$

其中 $c = (\varepsilon_0 \mu_0)^{1/2}$ 为光在真空中的速度。假如电磁波的 \bar{E} 与 \bar{H} 随空间与时间的变化正比于 $\exp[i(\bar{k} \cdot \bar{r} - \omega t)]$ 的谐波振荡 (harmonic oscillation), 其相速度大小为 ω/k , 则由波动方程 (2.4), 可以得到波矢量的大小 k 必须满足

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon \mu \quad (2.5)$$

在此将以 Maxwell 方程和电磁波波动方程为基础, 讨论金属与电磁波的相互作用。由于金属内部具有可以任意移动的自由电子, 这些自由电子在受到外加电磁场作用时的行为, 主导了此金属的光学性质, 因此在接下来的讨论中, 主要将考虑金属中的自由电子对于外加电磁场的反应。在外加电场的作用下, 自由电子将会沿着与电场相反的方向移动而形成电流。若考虑一个自由电子密度为 N 的金属, 并假设在外加电场作用下每个电子的移动速度为 \bar{v} , 如图 2-1 所示[2]。则自由电子移动所形成的电流密度为 $\bar{J} = N(-e)\bar{v}$, 其通过截面积 \bar{a} 的电流大小为 $I = \bar{J} \cdot \bar{a}$ 。由于自由电子在运动过程中会与原子核或是晶格缺陷产生碰撞效应, 并非所有电子都是等速度的沿着同一方向移动, 且其速度也不会因外加电场的作用而不断增加, 因此对于金属内部自由电子的运动状态, 需要借助一些物理模型来加以描述, 其中 Drude 模型即为一个简单且有效的自由电子运动模型。

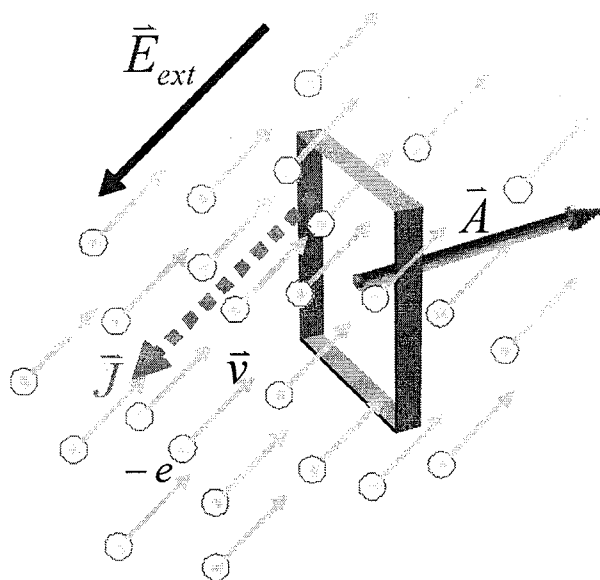


图 2-1 在外加电场作用下，金属中的自由电子移动而形成电流密度 \vec{J} 。[摘自文献 丘国斌等，物理双月刊（二十八卷二期），2006(28):472]

Drude 模型假设自由电子与其它电子或者原子核之间没有任何电磁相互作用，当受到外力（或外加电场）作用时，其运动遵循牛顿运动定律；此外，电子在运动的过程中将会与晶体中的原子核、杂质或晶格缺陷产生弹性碰撞而被散射到其它方向[3]。假设在单位时间内与原子核产生碰撞的机率为 $1/\tau$ ，这里 τ 即所谓的弛豫时间（relaxation time）或碰撞时间（collision time），其大小约等于电子平均自由路径（mean free path, l ）与费米速度（Fermi velocity, v_F ）的比值。考虑在外力 $\vec{f}(t) = -e\vec{E}_{ext}$ 作用下某一时刻 t 时，金属内所有自由电子的平均速度为 \vec{v} （如图 2-2 所示），此时每一电子之平均动量为 $\vec{P}(t) = m\vec{v}$ 。假若在时刻 $t + dt$ 时平均动量变为 $\vec{P}(t + dt)$ ，对于没有与原子核发生碰撞的电子，其平均动量约为原来的动量加上外力造成的动量变化，亦即 $\vec{P}(t) + \vec{f}(t)dt$ ，

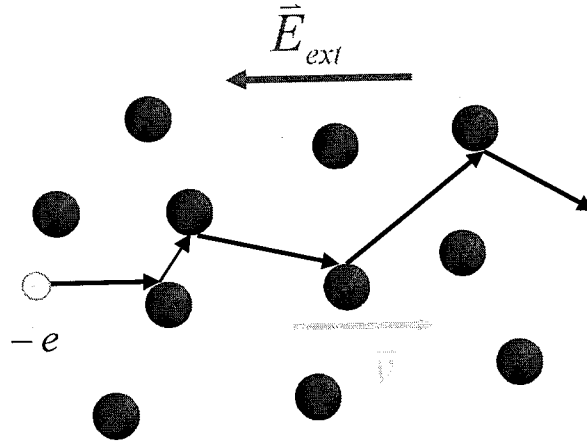


图 2-2: 外加电场作用下, Drude 模型的金属自由电子运动示意图。[本图参考自 N. W. Ashcroft, and N. D. Mermin, *Solid State Physics*, Harcourt College Publishers, 1976 page 6]。

对于与原子核发生碰撞的电子而言, 由于弹性碰撞之后电子可以被散射至任意方向, 使得这些电子原本所具有的动量在碰撞之后的平均值为零, 所以其在 $t+dt$ 时刻的平均动量约为 $\bar{f}(t)dt$, 亦即只有因外力而造成的动量变化, 而由 Drude 模型可知, 在 dt 时间内电子发生碰撞之几率为 dt/τ , 因此在 $t+dt$ 时所有自由电子的平均动量可表示为[3]

$$\bar{p}(t+dt) = (1 - \frac{dt}{\tau})(\bar{p}(t) + \bar{f}(t)dt) + \frac{dt}{\tau} \bar{f}(t)dt \quad (2.6)$$

当时间间隔 dt 趋近于无限小的时候, 式 (2.6) 可以近似改写成 (取至 dt 的一次方项) [3]

$$\frac{d\bar{p}(t)}{dt} = -\frac{1}{\tau} \bar{p}(t) + \bar{f}(t) \quad (2.7)$$

即为 Drude 模型下, 金属自由电子受外加电场作用时所满足的运动方程式。利用前面所述的电流密度 $\bar{J} = N(-e)\bar{v}$ 和 $\bar{P}(t) = m\bar{v}$ 的关系式, 可以将式 (2.7) 改写为 [3]

$$\frac{d\bar{J}}{dt} + \frac{1}{\tau} \bar{J} = \frac{Ne^2}{m} \bar{E}_{ext} \quad (2.8)$$

若考虑外加电场 (\bar{E}_{ext}) 为零的情况, 由式 (2.8) 可以得到一个形式为 $\bar{J} = \bar{J}_0 e^{-t/\tau}$ 的瞬变电流, 此电流在形成之后将会随着时间很快地衰减, 因此对于金属的电磁性质几乎不造成影响。另外, 若考虑外加电场为一静电场时, 由于外加电场不随时间变化, 所以电子相应于电场所形成的电流密度也会是不随时间变化的静电流, 亦即 $d\bar{J}/dt = 0$, 则从式 (2.8) 可以得到 $\bar{J} = (Ne^2\tau/m)\bar{E}_{ext}$, 由欧姆定律

($\bar{J} = \sigma_0 \bar{E}_{ext}$), 电流密度正比于外加电场的比例常数 $\sigma_0 = Ne^2\tau/m$, 此常数即为金属的静电导率, 由此可以看出当金属的自由电子密度越大或弛豫时间越长, 则其静电导率就越大。若考虑外加电场随时间作谐波振荡时, 亦即 $\bar{E}_{ext} = \bar{E}(\bar{r})e^{-i\omega t}$, 自由电子的运动也将形成随时间做谐波振荡的电流密度 ($J \propto e^{-i\omega t}$), 由式 (2.8) 的运动方程式可以得到[3]

$$\bar{J} = \frac{\sigma_0}{1-i\omega\tau} \bar{E}_{ext} \equiv \sigma(\omega) \bar{E}_{ext} \quad (2.9)$$

其中 $\sigma(\omega) = \sigma_0/(1-i\omega\tau)$ 为自由电子对于外加电磁场的响应所造成的电导率, 此结果说明了金属自由电子所造成的电导率将会随着外加电磁场频率的不同而改变。

在金属中除了具有自由电子之外, 亦有束缚电子的存在, 这些束缚电子对于电磁波的反应就如同介质一般, 会产生极化效应, 然而若考虑随时间做谐波振荡的电磁场对于金属的相互作用, 自由电子所形成的电流密度与束缚电子所形成的电极化强度则无太大的区别。

若束缚电子在随时间作谐波振荡的电场作用下偏离正电荷中心的位移为 \bar{r} , 相对产生的电极化强度为 $\bar{P} = N_b(-e)\bar{r}$, 其中 N_b 表示束缚电子密度, 可将电极化强度对时间微分得到[3]

$$\frac{d\bar{P}}{dt} = N_b(-e) \frac{d\bar{r}}{dt} = N_b(-e)\bar{v}_b = \bar{J}_b \quad (2.10)$$

式中 \bar{v}_b 代表束缚电子在振荡过程中的移动速度。式 (2.10) 的结果说明了随时间变化的电极化强度可视为一种电流密度 $\bar{J}_b = d\bar{P}/dt$ 。

反言之, 在随时间振荡的电场作用下, 自由电子反应所产生的电流密度也可视为一种随时间变化的电极化强度。若考虑外加电场 \bar{E}_{ext} 随时间作角频率 ω 的谐波振荡时, 式 (2.9) 可以改写成[3]

$$\bar{J} = \frac{\sigma(\omega)}{-i\omega} \frac{\partial \bar{E}_{ext}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t} \left[\frac{i\sigma(\omega)}{\omega} \bar{E}_{ext} \right] \quad (2.11)$$

对比式 (2.10) 与式 (2.11) 可以定义出自由电子所形成之电极化强度为[3]

$$\bar{P} = \frac{i\sigma(\omega)}{\omega} \bar{E}_{ext} = -\frac{Ne^2}{m} \frac{1}{(\omega^2 + i\omega\gamma_D)} \bar{E}_{ext} \quad (2.12)$$

式中 $\gamma_D \equiv \tau^{-1}$ 是 Drude 模型描述自由电子运动的碰撞频率 (collision frequency), 也可称之为阻尼系数。从式 (2.12) 的结果可以看出, 在 γ_D 很小或外加电磁波频率远大于电子的碰撞频率时, 金属中自由电子所形成的随时间振荡的电极化矢量与外加电场方向相反 (相位差 π), 因此极化产生的感应电场方向也将与外加电场反向, 并且在电磁波频率不是很大的情形时, 式 (2.12) 的极化产生的感应电场大小几乎与外加电场相同, 这个结果即造成金属内部的电场总和趋近于零, 因此电磁场能量会完全被排斥出来, 使得电磁波无法穿透到金属内部, 这一现象即为金属对于电磁波的屏蔽效应。

利用自有电子极化强度表达式和电位移矢量的定义, 可以得到 Drude 模型的相对介电常数的表达式[4]:

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{i\sigma(\omega)}{\varepsilon_0\omega} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma_D} \quad (2.13)$$

其中 $\omega_p \equiv (Ne^2/m\varepsilon_0)^{1/2}$, 此频率即为金属等离子体共振频率(plasma frequency)。

式 (2.13) 的实部与虚部可分别表示如下[4]:

$$\begin{aligned} \text{Re}[\varepsilon] &\equiv \varepsilon_R = 1 - \omega_p^2/(\omega^2 + \gamma_D^2) \\ \text{Im}[\varepsilon] &\equiv \varepsilon_I = \omega_p^2\gamma_D/[\omega(\omega^2 + \gamma_D^2)] \end{aligned} \quad (2.14)$$

在电磁波频率远大于 γ_D 的条件下, 式 (14) 中 ε_R 可近似为 $1 - \omega_p^2/\omega^2$, 从这里可以看出, 若电磁波频率小于 ω_p , 则金属介电常数的 ε_R 为一负值且 $\varepsilon_I \approx \gamma_D\omega_p^2/\omega^3 \ll |\varepsilon_R|$ 。对一般的金属而言 (如金、银、铝等), 其 ω_p 值位于紫外光频率范围, 且 γ_D 远小于可见光频率, 所以这些金属的介电常数在可见光频率范围内皆可符合上述条件。另外, 若由复数折射率的定义 $\tilde{n} = \sqrt{\varepsilon} = n + i\kappa$, (假设 $\mu = 1$) 可将金属的 n 与 κ 表示为[4]

$$\begin{aligned} n &= \left[\frac{1}{2} (\sqrt{\varepsilon_R^2 + \varepsilon_I^2} + \varepsilon_R) \right]^{1/2} \\ \kappa &= \left[\frac{1}{2} (\sqrt{\varepsilon_R^2 + \varepsilon_I^2} - \varepsilon_R) \right]^{1/2} \end{aligned} \quad (2.15)$$

除了 Drude 模型可以描述金属材料在不同频律电磁波下的光学性质外, 另外还有其他几种模型也可以描述, 比如 Debye 模型和 Lorentz 模型等。Debye

模型假设介质内所有带电粒子的运动都是非弹性的，其最适用于气体和极性分子的稀释溶液，对于金属材料而言，Debye 模型只能在某一频段内准确给出金属的介电常数。Lorentz 模型认为原子核与电子通过弹性力作用，而电荷运动则是一个类似于阻尼振荡的过程，它适用于包括金属材料在内的大部分介质。而 Drude 模型假设电子在运动过程中与原子核、杂质和晶格缺陷发生弹性碰撞，一般用在金属导体材料中。由于在低能条件下，Drude 模型能够准确给出金属材料的介电常数，对于本文中光波段内的相关研究是很合适的。

2.2 矢量衍射理论方法简介

对于具有波长量级或者亚波长量级的微周期结构，以及浮雕深度达到几个波长量级的二元光学器件时，不宜在标量衍射理论的范畴内讨论，而必须采用严格的矢量衍射理论进行分析。矢量衍射理论基于电磁场理论，须在适当的边界条件上严格地求解 Maxwell 方程组，已经发展的几种有关的设计理论，如积分法、微分法、模态法和耦合波法。前两种方法虽然可以得到精确解，但很难理解和实现，并且需要复杂的数值计算。比较而言，模态法和耦合波方法的数学相对简单，实现也较容易。这两种方法都是在相位调制区将电磁场展开，所不同的是它们的展开形式。耦合波法将电磁场按照衍射级次展开，而模态法则是将电磁场按模式展开。耦合波方法涉及到的是数学理论较为简单，给出的是可观测的衍射各级次的系数，而不是电磁场模式系数。因此，关于严格矢量衍射理论，近年来的研究主要集中在严格耦合波分析方法和模式分析方法上。本节主要针对具有亚波长的多层膜结构讨论严格耦合波分析方法，简要介绍一下模式分析方法。

2.2.1 严格耦合波分析方法

严格耦合波分析方法 (Rigorous Coupled-wave Analysis Method, RCWA) 是目前被广泛使用的一种矢量衍射计算方法。1981年由 M. Moharam [5] 首先提出并用于特殊情况，后来逐渐推广到任意各向同性光栅情况；九十年代在稳定性、收敛性和计算效率方面得到不断的改善，形成了改进了的严格耦合波分析方法。该分析方法的基本思想是：首先对求解的结构水平分层，然后对每一分层结构求解其对应的 Maxwell 方程组。利用 Floquet 解来表示每一分层基本模式场的横坐标 (x) 解，就得到耦合波方程，通过求解耦合波方程，最后就得到每一分层的基本模式场，再利用边界条件以及入射波的已知条件求出整个电磁场的分布，这就是严格耦合波分析方法。该方法由于其思想简单清晰，容易计

算, 能对任意面形、任意厚度和任意入射的光栅结构问题求解, 是目前解决一维各向同性光栅的最为广泛的方法之一。下面主要针对求解亚波长尺度的多层膜结构的反射系数和透射系数的传输矩阵方法来讨论这种分析方法。

1) TE 偏振情况[6, 7]

首先考虑 TE 偏振平面波对各向同性多层膜结构的反射和透射情况。自由空间中波长为 λ_0 的平面波, 以 θ 角入射到 L 层的多层膜上, 各层的折射率分别是 n_1, \dots, n_L , 厚度分别是 d_1, \dots, d_L , 如图 2-3 所示。入射、反射和各层区域的归一化电场 (y 方向) 可以描述如下[7]:

$$\begin{aligned} E_0 &= [\exp(-jk_{1,z}z) + R\exp(jk_{1,z}z)]\exp(-jk_x x), \quad z \leq 0, \\ E_l &= \{P_l \exp[-k_0 \gamma_l (z - D_{l-1})] \\ &\quad + Q_l \exp[k_0 \gamma_l (z - D_l)]\} \exp(-jk_x x), \quad D_{l-1} \leq z \leq D_l, \\ E_l &= T \exp\{-j[k_x x + k_{11,z} (z - D_L)]\}, \quad z \geq D_L. \end{aligned} \quad (2.16)$$

$$\begin{aligned} k_x &= k_0 n_1 \sin \theta, \\ k_{1,z} &= k_0 n_1 \cos \theta, \\ k_{11,z} &= k_0 [n_{11}^2 - n_1^2 \sin^2 \theta]^{1/2}, \\ \gamma_l &= j[n_l^2 - n_1^2 \sin^2 \theta]^{1/2}, \quad l=1, 2, \dots, L, \\ D_l &= \sum_{p=1}^l d_p, \end{aligned} \quad (2.17)$$

其中, R 和 T 分别代表电场的反射和透射振幅, P 和 Q 分别代表各层膜的电场振幅, 入射光的波矢大小 $k_0 = 2\pi/\lambda$, 入射和反射区域媒质的折射率分别是 n_1 和 n_{11} 。值得一提的是, 对于一个无损耗区域, 当 $n_l > n_1 \sin \theta$ 时, γ_l 是一个纯虚数; 当 $n_l < n_1 \sin \theta$ 时, γ_l 是一个纯实数。而对于一有损耗的区域 (其折射率为复数), γ_l 是复数。可以通过电场和磁场切向分量在各层之间的边界条件获得光经过多层膜的反射和透射振幅。在入射区和第一层膜的边界上 ($z=0$) [7]

$$\begin{aligned} 1 + R &= P_1 + Q_1 \exp(-k_0 \gamma_1 d_1), \\ j(k_{1,z}/k_0)(1 - R) &= \gamma_1 [P_1 - Q_1 \exp(-k_0 \gamma_1 d_1)]; \end{aligned} \quad (2.18)$$

在第 $l-1$ 层和第 l 层的边界上有[7]:

$$\begin{aligned} P_{l-1} \exp(-k_0 \gamma_{l-1} d_{l-1}) + Q_{l-1} &= P_l + Q_l \exp(-k_0 \gamma_l d_l), \\ \gamma_{l-1} [P_{l-1} \exp(-k_0 \gamma_{l-1} d_{l-1}) - Q_{l-1}] &= \gamma_l [P_l - Q_l \exp(-k_0 \gamma_l d_l)]; \end{aligned} \quad (2.19)$$

同理，在最后一层第 L 层和出射区域的交界面上有[7]:

$$\begin{aligned} P_L \exp(-k_0 \gamma_L d_L) + Q_L &= T, \\ \gamma_L [P_L \exp(-k_0 \gamma_L d_L) - Q_L] &= j(k_{II,z} / k_0) T. \end{aligned} \quad (2.20)$$

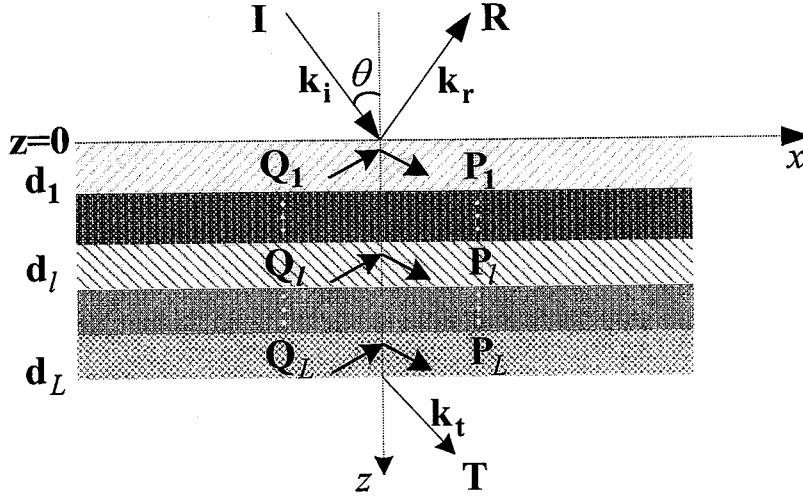


图 2-3 各向同性多层膜的反射系数和透射系数结构示意图

由上可以看出，在每一个边界上要求解两个方程满足电场和磁场匹配，所以对于要讨论的有 L 层的多层膜结构，共将产生 $2(L+1)$ 个方程。对整个方程组用常规的方法就可以同时得到 R 和 T ，而不会出现因为任何某一层膜、任何膜层厚度、或任意折射率值而带来数值计算的不稳定性。然而，在膜层数目 L 很大时，导致要求解的方程数目增加，这种计算方式将大大影响到计算的效率。因此，必须改进这种计算方法。然而，这些改进会引入如下所述的额外的数值不稳定性。具体如下：

通常地，用传输矩阵方法可以减少由于同时求解方程 (2.17) — (2.19) 带来的繁琐计算维数。在传输矩阵方法中，用方程 (2.20) 决定透射系数 T 项中的场振幅 P_L 和 Q_L [7]:

$$\begin{bmatrix} P_L \\ Q_L \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \exp(-k_0 \gamma_L d_L) & 1 \\ \gamma_L \exp(-k_0 \gamma_L d_L) & -\gamma_L \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 1 \\ jk_{II,z} / k_0 \end{bmatrix} T, \quad (2.21)$$

代入方程 (2.19) 中得到场振幅 P_{L-1} 和 Q_{L-1} [7]:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} P_{L-1} \\ Q_{L-1} \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \exp(-k_0\gamma_{L-1}d_{L-1}) & 1 \\ \gamma_{L-1} \exp(-k_0\gamma_{L-1}d_{L-1}) & -\gamma_{L-1} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 1 & \exp(-k_0\gamma_L d_L) \\ \gamma_L & -\gamma_L \exp(-k_0\gamma_L d_L) \end{bmatrix} \\ &\times \begin{bmatrix} \exp(-k_0\gamma_L d_L) & 1 \\ \gamma_L \exp(-k_0\gamma_L d_L) & -\gamma_L \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 1 \\ jk_{II,z}/k_0 \end{bmatrix}^T \end{aligned} \quad (2.22)$$

对其它膜层也作同样处理, 得到[7]:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} 1 \\ jk_{I,z}/k_0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 1 \\ -jk_{I,z}/k_0 \end{bmatrix} R &= \prod_{l=1}^L \begin{bmatrix} 1 & \exp(-k_0\gamma_l d_l) \\ \gamma_l & -\gamma_l \exp(-k_0\gamma_l d_l) \end{bmatrix} \\ &\times \begin{bmatrix} \exp(-k_0\gamma_l d_l) & 1 \\ \gamma_l \exp(-k_0\gamma_l d_l) & -\gamma_l \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 1 \\ jk_{II,z}/k_0 \end{bmatrix}^T. \end{aligned} \quad (2.23)$$

从公式 (2.23) 可以注意到每一层都包含了一个倒置矩阵。在任意一层膜中, 如果 $\gamma_l d_l$ 很大并且是正值 (损耗介质或者倏逝波), 矩阵左列部分所有的矩阵元将实际上是零值。由于计算机数值表征的有限精度, 这种病态矩阵的倒置所产生很大的值矩阵元没有充分的数值精度来表征, 从而产生数值不稳定性。数值溢出是数值错误的一种极端特例。因此, 尽管反射-透射问题在原理上是稳定的, 对于损耗介质或内全反射情况, 甚至是简单的多层 (或单层) 膜结构, 这种传输矩阵方法可能产生错误的结果 (或没有结果)。

为了改善由于倒置矩阵带来的计算中出现的数值不稳定性, M.G. Moharam 提出了增强数值稳定性的传输矩阵方法。该方法考虑公式 (2.23) 中最后一个因子[7]

$$\begin{aligned} &\begin{bmatrix} 1 & \exp(-k_0\gamma_L d_L) \\ \gamma_L & -\gamma_L \exp(-k_0\gamma_L d_L) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(-k_0\gamma_L d_L) & 1 \\ \gamma_L \exp(-k_0\gamma_L d_L) & -\gamma_L \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} f_{L+1} \\ g_{L+1} \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} 1 & \exp(-k_0\gamma_L d_L) \\ \gamma_L & -\gamma_L \exp(-k_0\gamma_L d_L) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(-k_0\gamma_L d_L) & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \gamma_L & -\gamma_L \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} f_{L+1} \\ g_{L+1} \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (2.24)$$

其中 $f_{L+1} = 1$, $g_{L+1} = jk_{II,z}/k_0$ 。注意矩阵的倒置被分解成两个矩阵相乘。这两个相乘矩阵的右矩阵的倒置在数值上是稳定的。公式 (2.24) 的右边部分可以写为[7]

$$\begin{bmatrix} 1 & \exp(-k_0\gamma_L d_L) \\ \gamma_L & -\gamma_L \exp(-k_0\gamma_L d_L) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(-k_0\gamma_L d_L) & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} a_L \\ b_L \end{bmatrix}^T \quad (2.25)$$

其中

$$\begin{bmatrix} a_L \\ b_L \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \gamma_L & -\gamma_L \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} f_{L+1} \\ g_{L+1} \end{bmatrix}.$$

当其对角元 $\exp(-k_0\gamma_L d_L)$ 很小的时候, 上述公式中的倒置矩阵将处于病态。很明

显, 对于这个简单的 (2×2) 对角矩阵, 能通过解析的方法得到精确的倒置矩阵解。然而, 由于在计算机数值表征有限精度中出现的数值断点, 这个倒置矩阵仍然将存在一个很大数值的矩阵元而没有充足的数值精度去表征。这个数值错误将导致在反射和透射振幅的计算中的数值不稳定。可以通过采用取代 $T = \exp(-k_0 \gamma_L d_L) T_L$ 来避免这个不稳定问题。公式 (2.21) 中的最后项可以简化为 [7]

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} f_L \\ g_L \end{bmatrix} T_L &= \begin{bmatrix} 1 & \exp(-k_0 \gamma_L d_L) \\ \gamma_L & -\gamma_L \exp(-k_0 \gamma_L d_L) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_L \\ b_L \exp(-k_0 \gamma_L d_L) \end{bmatrix} T_L \\ &= \begin{bmatrix} a_L + b_L \exp(-2k_0 \gamma_L d_L) \\ \gamma_L [a_L - b_L \exp(-2k_0 \gamma_L d_L)] \end{bmatrix} T_L. \end{aligned} \quad (2.26)$$

对其它层同样采取公式 (2.24) 的处理方法, 得到 [7]

$$\begin{bmatrix} 1 \\ jk_{1,z}/k_0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 1 \\ -jk_{1,z}/k_0 \end{bmatrix} R = \begin{bmatrix} f_1 \\ g_1 \end{bmatrix} T_1, \quad (2.27)$$

所以 T 和 T_1 之间的关系改为 [7]

$$T = \exp(-k_0 \gamma_L d_L) \cdots \exp(-k_0 \gamma_l d_l) \cdots \exp(-k_0 \gamma_1 d_1) T_1 \quad (2.28)$$

可以通过求解公式 (2.25) 和 (2.26) 可以得到 a_l, b_l, f_l 和 g_l 。方程 (2.27) 可以很容易且不会附带任何数值不稳定性求解出 R 和 T (通过 T_1)。这个改进的传输矩阵方法是一个高效的且稳定的数值计算方法。由于只包含一个简单的 (2×2) 标量矩阵, 上面的公式可以通过一些简单的处理就能得到。

2) TM 偏振情况

和 TE 偏振情况类似, TM 偏振光 (即 p 偏振光) 经过多层膜的反射和透射系数计算方法类似于公式 (2.17) - (2.23); 但是, γ_l 的形式改为 γ_l/n_l^2 (公式中的质数部分除外); $k_{1,z}$ 和 $k_{II,z}$ 将分别改为 $k_{1,z}/n_1^2$ 和 $k_{II,z}/n_{II}^2$ 。 R 和 T 代表反射和透射磁场分量 (归一化于 y 方向的入射平面)。TE 偏振情况下的数值不稳定性同样出现在 TM 偏振情况, 同样需要上述的改进的传输矩阵方法 [6, 7]。这里不再赘述。

为提高这种方法在计算时的速度以及收敛特性, 人们一直在进行研究与探

讨, 关于这方面的研究, 详细情况可参考文献[7, 8]。二维光栅结构的耦合波分析方法可以参见文献[9, 10]。

2.2.2 模式分析方法

模式方法 (Modal method) 与耦合波分析方法的物理思想基本类似, 该方法将每一分层的电磁场按照本征模式展开, 由边界条件求出本征模式的振幅系数, 从而确定整个电磁场。有关这方面的详细讨论, 感兴趣的读者可参见文献[11-13], 这里不再作详细说明。

2.3 平面波的角谱理论

平面波的角谱理论[14]就是波场的平面波分解。对任意平面的光场分布作傅立叶分析, 则各个空间傅立叶分量可以看作是沿不同方向传播的平面波; 在任意一其它点上的复振幅是经过一定相移后的平面波之和。

2.3.1 角谱及其物理含义

如图 2-4 所示, 考虑一个单色光源系统把一个沿 z 方向传播的平面波投射到 xy 平面上。令此平面上的光场分布为 $u(x, y, 0)$, 下面求出它引起的坐标 (x, y, z) 的 P 点的光场 $u(x, y, z)$ 。

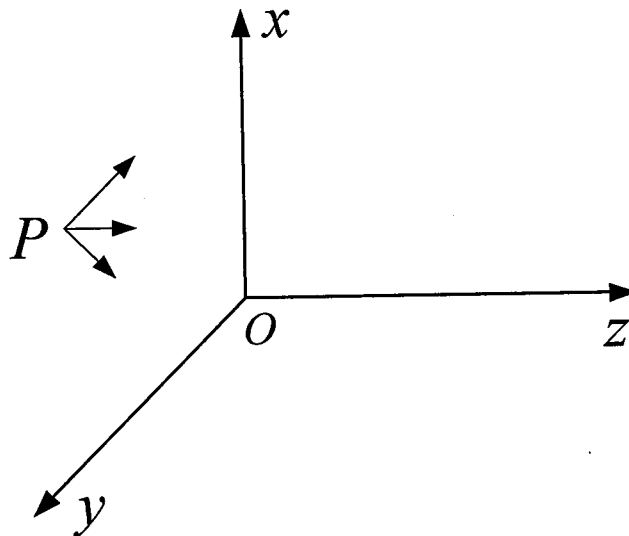


图 2-4 计算平面波角谱的坐标系

假定在 x, y 平面上函数 u 存在二维傅立叶变换[14]

$$U_0(f_x, f_y) = \iint_{-\infty}^{+\infty} u(x, y, 0) \exp[-i2\pi(f_x x + f_y y)] dx dy \quad (2.29)$$

其逆变换为[14]

$$u(x, y, 0) = \int \int_{-\infty}^{+\infty} U_0(f_x, f_y) \exp[i2\pi(f_x x + f_y y)] df_x df_y \quad (2.30)$$

那么以方向余旋 (α, β, γ) 传播的单位振幅的平面波方程为[14]:

$$u_0(x, y, z) = \exp[i\frac{2\pi}{\lambda}(\alpha x + \beta y + \gamma z)] \quad (2.31)$$

其中 λ 是波长。因此在 $z=0$ 平面上,可以把复指数函数 $\exp[i\frac{2\pi}{\lambda}(\alpha x + \beta y)]$ 看成是以方向余旋 $\alpha = \lambda f_x, \beta = \lambda f_y$ 和 $\gamma = (1 - \alpha^2 - \beta^2)^{1/2}$ 传播的平面波,其复振幅就是 $U_0(f_x, f_y) df_x df_y$ 在 $f_x = \frac{\alpha}{\lambda}, f_y = \frac{\beta}{\lambda}$ 处的值。由此,函数 $U_0(f_x, f_y)$ 称为扰动 $u(x, y, 0)$ 的角谱。

2.3.2 角谱的传播

令 $U(f_x, f_y; z)$ 代表 $u(x, y, z)$ 的角谱,即[14]

$$U(f_x, f_y; z) = \int \int_{-\infty}^{+\infty} u(x, y, z) \exp[-i2\pi(f_x x + f_y y)] dx dy \quad (2.32)$$

只要能找到 $U(f_x, f_y; z)$ 与 $U_0(f_x, f_y)$ 之间的关系,就可以得知波动传播对扰动的角谱效应。由于 u 可以写成[14]

$$u(x, y, z) = \int \int_{-\infty}^{+\infty} U(f_x, f_y; z) \exp[i2\pi(f_x x + f_y y)] df_x df_y \quad (2.33)$$

此外,在所有无源的点上必须满足亥姆霍兹方程

$$(\nabla^2 + k^2)u = 0 \quad (2.34)$$

其中 ∇ 是哈密顿算子,在直角坐标系中 $\nabla = \mathbf{e}_x \frac{\partial}{\partial x} + \mathbf{e}_y \frac{\partial}{\partial y} + \mathbf{e}_z \frac{\partial}{\partial z}$, \mathbf{e}_x 、 \mathbf{e}_y 和 \mathbf{e}_z 分别是沿 x, y 和 z 轴的三个单位基矢量;定义 $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ 为波数。综合式(2.33)和式

(2.34),可得 U 必须满足微分方程[14]:

$$\frac{d^2}{dz^2} U(f_x, f_y; z) + (2\pi)^2 [\frac{1}{\lambda^2} - f_x^2 - f_y^2] U(f_x, f_y; z) = 0 \quad (2.35)$$

该方程的一个基本解可写成以下形式[14]

$$U(f_x, f_y; z) = U_0(f_x, f_y) \exp[i2\pi(1/\lambda^2 - f_x^2 - f_y^2)^{1/2} z] \quad (2.36)$$

这一结果表明,当方向余旋 $(\lambda f_x, \lambda f_y)$ 满足 $(\lambda f_x)^2 + (\lambda f_y)^2 < 1$ 时,传播一段距离 z

的效应只是改变了各个角谱分量的相对相位。而当 $(\lambda f_x)^2 + (\lambda f_y)^2 > 1$ 时，式 (2.36) 中的平方根是虚数，可写成[14]

$$U(f_x, f_y; z) = U_0(f_x, f_y) \exp[-\mu z] \quad (2.37)$$

式中 $\mu = 2\pi[f_x^2 + f_y^2 - 1/\lambda^2]^{1/2}$ 。由于 μ 是一个正实数，其波动分量随传播而急剧衰减。这样的角谱分量称为倏逝波。利用傅立叶逆变换，可在 (x, y, z) 处观测的扰动由初始角谱表示为[14]

$$u(x, y, z) = \int \int_{-\infty}^{+\infty} U_0(f_x, f_y) \exp[i2\pi(\frac{1}{\lambda^2} - f_x^2 - f_y^2)^{1/2} z] \cdot \exp[i2\pi(f_x x + f_y y)] df_x df_y \quad (2.38)$$

2.4 时域有限差分法

时域有限差分法 (Finite-difference time-domain method, FDTD) 是一种在时域中求解的数值计算方法，求解电磁场问题的 FDTD 方法是基于在时间和空间域内对 Maxwell 方程的有限差分离散化——以具有两阶精度的中心有限差分格式来近似地代替原来微分形式的方程。FDTD 算法是 K. S. Yee 于 1966 年在其论文《Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media》[15]中提出的，其基本思想是：FDTD 计算域空间节点采用 Yee 元胞的方法，同时电场和磁场节点空间与时间上都采用交错抽样；把整个计算域划分成包括散射体的总场区以及只有反射波的散射场区，这两个区域是以连接边界相连接，最外边是采用特殊的吸收边界，同时在这两个边界之间有个输出边界，用于近场和远场之间的转换；在连接边界上采用连接边界条件加入入射波，从而使入射波限制在总场区域；在吸收边界上采用吸收边界条件，尽量消除反射波在吸收边界上的非物理性反射波。

时域有限差分法是在适当的边界和初始条件下解有限差分方程，使电磁波的时域特性直接反映出来，直接给出非常丰富的电磁场问题的时域信息，用清晰的图像描述复杂的物理过程。网格剖分是 FDTD 方法的关键问题，Yee 提出采用在空间和时间都差半个步长的网格结构，通过类似蛙步跳跃式的步骤用前一时刻的电磁场值得到当前时刻的电磁场值，并在每一时刻上将此过程应用在整个空间，于是可得到整个空间域中随时间变化的电磁场的解。这些随时间变化的电磁场解是再用 Fourier 变换后变到相应频域中的解。

时域有限差分法的一个重要特点是在需要计算电磁场的全部区域建立 Yee 氏网格计算空间。本质上, 电磁场传播的物理空间是无限大的开放系统。由于 FDTD 计算时, 每个单元网格上的六个场分量均需在任一时间步上存储以供下一时间步使用。因此所取问题空间越大, 要求存储量越大。因此在实际计算中总是在某处把网格空间截断, 使网格空间成为有限的。FDTD 差分方程是中心差商的, 也需要特别的适合于截断边界网格点计算的计算公式。因此必须采用一种截断边界网格点的特殊计算方法, 能够保证边界场的计算精度, 还能大大消除非物理因素引起的入射到截断边界的反射, 使有限网格空间能够模拟电磁波在无限空间中的传播, 并且允许计算网格空间的边界能更接近辐射源或散射体表面。这种算法就是吸收边界条件(Absorbing Boundary Conditions, ABCs)[16]。

吸收边界条件一直是 FDTD 最活跃、最重要的研究领域。目前, 比较常用的吸收边界方法分两类: 一类是在边界求解不反射的微分方程而导出; 另一类是在截断边界设置一层假想的可以吸收入射波的衰减材料而导出方法, 称为 Perfect Matched Layer(PML)。PML 是目前最精确的吸收边界条件[17]。

PML 吸收边界条件的基本思想是通过在 FDTD 区域截断边界处设置一种特殊介质层, 该层介质的波阻抗与相邻介质波阻抗完全匹配, 因而入射波将无反射地穿过分界面而进入 PML 层。并且, 由 PML 层为有耗介质, 进入 PML 层的入射波将迅速衰减, 即使 PML 为有限厚度, 它对于入射波仍然有很好的吸收效果, 其反射系数一般在 10^{-4} 量级。

在 FDTD 方法提出之后, 随着计算技术, 特别是电子计算机技术的发展, FDTD 方法得到了长足的发展, 在电磁学, 电子学, 光学等领域都得到了广泛的应用。时域有限差分法具有如下的优点:

1. 应用非常广泛。时域有限差分法能够模拟各种复杂的电磁结构, 不论是电磁波的散射、辐射, 还是透射或吸收, 也不论是瞬态问题还是稳态问题, 只要能正确地对源和结构进行模拟, 时域有限差分法就能应用于此。

2. 方法简单直观。由于时域有限差分法直接从麦克斯韦方程组出发, 各物理量天然满足麦克斯韦方程组, 不需要任何导出方程, 这就避免了使用更多的数学工具, 使其成为所有电磁场计算方法中最简单的一种。又由于能直接在时域中模拟电磁波的传播及其与物体作用的物理过程, 所以这是一种非常直观的方法。

3. 直接时域计算。时域有限差分法直接将含时间变量的麦克斯韦旋度方程

在 Yee 氏网格空间中转换为差分方程;在每一时间步计算网格空间各点的电场和磁场分量,随着时间步的推进,能直接模拟电磁波的传播及其与物体的相互作用过程。在时间上给研究者以清晰的描述。

4. 计算程序的通用性。由于麦克斯韦方程组是时域有限差分法计算任何问题的数学模型,其基本差分方程对不同的问题是不变的。此外,吸收边界条件和连接条件对很多问题是可以通用的,而计算对象的模拟则可通过给网格赋予参数来实现,与以上各部分没有直接联系,可以独立进行。因此,时域有限差分法计算程序对广泛的电磁场问题具有通用性,对不同的问题或不同的计算对象只需修改相关的部分。

5. 节约存储空间和计算时间。在时域有限差分法中,每个网格点上的电磁场分量及其上一时间步的值是必须存储的,此外,还有描述各网格电磁性质的参数以及吸收边界条件和连接条件的有关参量(一般都是空间网格总数 N 的整数倍)。所以,时域有限差分法所需的存储空间和所需的主要计算时间都与 N 成正比,比矩量法等计算方法更节省资源。

2.5 本章小结

本章详细讨论了光与物质之间的相互作用机制,简要介绍了严格的电磁耦合理论和时域有限差分这一数值计算方法,为分析亚波长结构的电磁理论分析奠定一定的理论基础。其中着重介绍了亚波长尺寸的多层膜结构在 p 偏振光情况下的严格耦合波理论。为了使读者能够更好的理解本论文第五章的超分辨光学成像的计算处理方法,本章还详细介绍了平面波的角谱及其传播理论。

第3章 金属-介质多层膜的表面等离子体超分辨干涉光刻

3.1 引言

随着纳米科学技术,尤其是半导体制造工业的快速发展,人们对纳米尺寸图形的需求日益迫切。由于其具有低成本、可大面积加工的特点,干涉光刻技术对于实现高分辨率条纹而言是一种有效的技术手段。然而,传统光刻技术受到衍射受限的制约,其分辨率只能达到照明光源波长的一半。为了改善干涉光刻的分辨率,一个直接的办法就是利用波长较小的光源,譬如深紫外或者极紫外[1-2]激光光源,并且浸没在高折射率材料和流体中。目前利用 157nm 浸没式光刻,可以得到半周期 22 纳米的光栅图形[3],但这种方法的主要缺点就是系统复杂,相应的成本高。

基于上面提到的运用短波长光源的原理,表面等离子体波将是一个很好的替代光源,这是因为表面等离子体波[4]的波长要比真空中同频率光的波长小很多。过去的十余年中,由于表面等离子体通过金属薄膜产生了各种奇异的光学现象,越来越多的研究致力于基于表面等离子体技术来突破衍射极限提高光刻分辨率[5-8]。文献[7]和[8]阐述了一个光刻机制:通过设计平板金属-介质多层膜的超级透镜决定掩模和光刻图形比例关系,理论上实现了周期为 50nm 的干涉图样[8]。Murukeshan 最近报道了利用在一个激励金属粒子表面系统产生亚 30nm 的等离子体光刻图形[9]。下一步光刻的目标将集中在实现突破线宽为 22nm 甚至 16nm 的光刻节点。

本章中,设计了一个介质-金属多层膜(dielectric-metal multilayer, DMM)结构作为一个滤波器,只允许一部分频率范围增强的倏逝波通过[10]。考虑到现代光刻制备过程中主要利用的是正光刻胶,其对比度的要求大于 0.4,利用这种介质-金属多层膜在 p 偏振的 193nm 光源下实现特征尺寸小于 21.5nm 的图形。另外,如果在实验室条件下[11],可以采用负光刻胶,这样利用这种多层膜结构可以制备特征尺寸为 16.5nm,其对比度约为 0.2,满足负光刻胶的最低要求。即使用较少的多层膜层数(比如四层)和正光刻胶,也可以利用这种方法实现深亚波长特征尺寸的制备,因此,这样可以尽可能地减少由于制备多层膜结构而带来的实验误差。值得一提的是利用这种多层膜结构可以实现突破线宽为 22nm 甚至更小尺寸的光刻节点。

3.2 结构示意图和工作原理

对一个周期为 Λ 的铬掩模，入射光波通过该掩模后可以分解为一系列衍射平面波的叠加。这里定义 x 为掩模光栅方向， z 为照明光的波矢方向（如图 3-1）。衍射波遵循光栅方程

$$k_x = k_0 \sin \theta + \frac{2\pi m}{\Lambda}, \quad (3.1)$$

其中 k_x 是横向透过波矢， k_0 和 θ 分别是入射波矢和入射角， m 是正整数，代表衍射级数。本章中，只考虑入射光垂直照射，所以方程 (3.1) 可以简化为 $k_x = 2\pi m / \Lambda$ ，也就是说，衍射波矢只取决于衍射级数和掩模的周期。

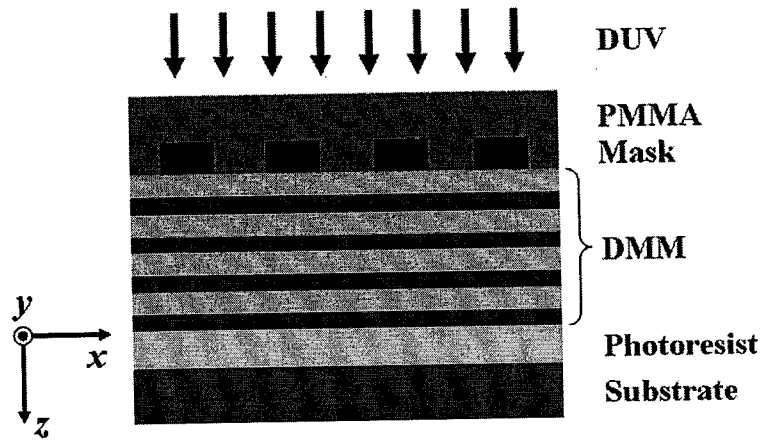


图 3-1 用于等离子体干涉光刻的介质-金属多层膜结构示意图

在这种干涉光刻方法中，需要一个特殊器件，其只允许很小范围的倏逝波透过。然而，自然界中不存在这样的器件；但它可以通过人工合成材料来实现。这是由于人工合成的材料拥有一些自然界材料本身不具备的独特性质[10, 12-14]。介质-金属多层膜结构已经被设计作为其他特殊用途的各种人工合成材料[10, 15]，可以满足本章中的需要。为了满足本研究对介质-金属多层膜人工材料的要求，对于 p 偏振波，介质-金属多层膜结构的色散关系是[10]

$$\frac{k_x^2}{\epsilon_{\text{eff},z}} + \frac{k_z^2}{\epsilon_{\text{eff},x}} = k_0^2 \quad (3.2)$$

其中， $\epsilon_{\text{eff},x} = f\epsilon_m + (1-f)\epsilon_d$ ， $\epsilon_{\text{eff},z} = (\epsilon_m\epsilon_d)/((1-f)\epsilon_m + f\epsilon_d)$ 。 ϵ_m, ϵ_d 和 f 分别是金属和介质的介电常数以及金属膜所占的比例因子。当 $\epsilon_{\text{eff},z} > 0$ ， $\epsilon_{\text{eff},x} < 0$ 时，

其频率等高线如图 3-2 所示,这个等高线表明该多层膜结构只支持波矢大于 k_m 的入射波通过,可以满足本章对于多层膜器件的要求。

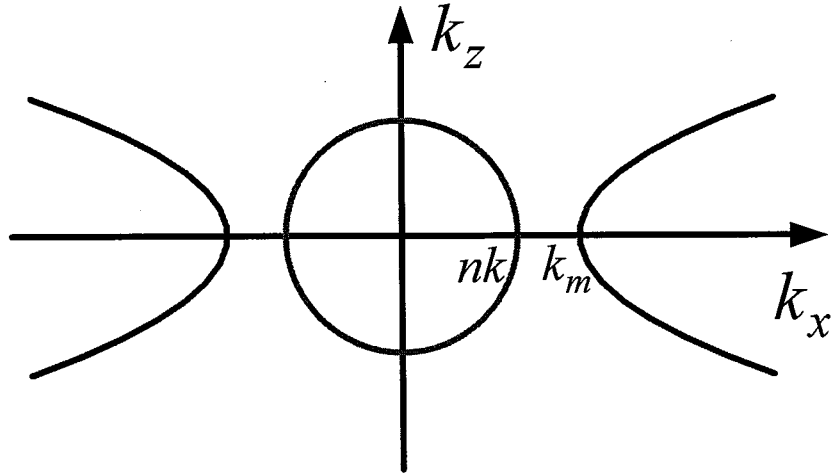


图 3-2 满足本章中需要的金属-介质多层膜的频率等高线图。

另外,设计这种多层膜结构在不同的波长范围工作,金属的选择也十分关键。一般地,金属 Au 不适合等离子体光刻,这是由于 Au 的等离子体频率 ω_{sp} 在可见光区域。而金属 Ag 和 Al 的等离子体频率在紫外区域,它们是等离子体光刻中很好的备选材料。由于金属 Al 在 193nm 激光光源下有相对较小的能量损耗,所以本章中选择 Al 作为多层膜中的金属材料。

本章设计的 DMM 结构是一个 8 对的 GaN (10 nm) 和 Al (12 nm) 多层膜。用严格耦合波分析方法 (Rigorous Coupled-Waves Analysis method, RCWA) [16] 计算了这种结构在 p 偏振的在紫外光 193nm 波长下的透过系数与横向波矢 k 的关系 (如图 3-3)。用 Drude 模型 $\epsilon_r(\omega) = \epsilon_\infty - \omega_p^2 / [\omega(\omega + iV_c)]$ 表征金属 Al 的介电常数,其中 $\epsilon_\infty = 1.0$, $\omega_p = 2.4 \times 10^{16}$ rad/s, $V_c = 1.1 \times 10^{15}$ rad/s, 这些是通过拟合实验值 [17] 得到的。介质 GaN 的介电常数为 1.295 [18]。多层膜下面的光刻胶的介电常数为 2.89。由图 3-3 的介质-金属多层膜的振幅透过函数可以看出,只有掩模某一衍射级次的高频波矢能够通过,而其他衍射级次波的透过可以忽略不计,从而在多层膜与光刻胶界面产生表面等离子体干涉条纹。

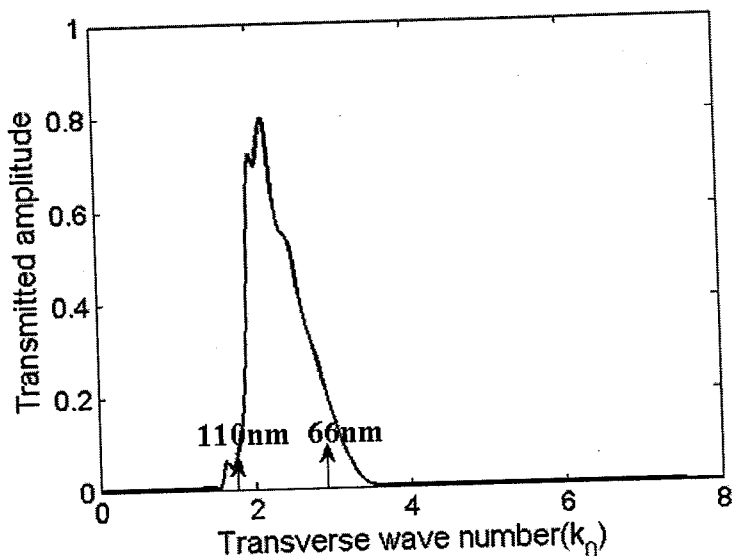


图 3-3 8 对 GaN(10nm)/Al(12nm)多层膜结构对 p 偏振的 193nm 光源的振幅透过函数, 箭头所示的是掩模周期对应的一级衍射级次的波矢。

3.3 数值模拟结果和讨论

这里讨论掩模的第一级衍射级次波通过这个多层膜滤波器。由图 3-3 可知, 周期为 86nm 的光栅掩模对应一个较高的透过系数。于是利用 FDTD 方法和上面设计好的多层膜结构对周期为 86nm 的掩模的电场分布进行模拟分析。 x 方向边界条件是完美电导体, z 方向的边界条件是完美匹配层。模拟分析时, 入射光强度设为 1, x 和 z 方向的网格大小为 0.2nm。掩模是半周期为 43nm, 厚度为 40nm 的铬光栅, 仅有 ± 1 级次的衍射波通过设计好的多层膜结构。图 3-4 (a) 显示的是模拟的在光刻胶区域内总电场强度 ($E^2 = E_x^2 + E_z^2$) 分布情况。很明显, 形成的干涉图形尺寸是 21.5nm。为了满足光刻制备的条件, 图 3-4 (b) 显示了在距多层膜与光刻胶界面三个不同距离处的归一化总电场强度分布: 0nm(红色), 10nm(蓝色)和 20nm(黑色)。强度可见度(或对比度) $V = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min}) \approx 0.4$, 这很好的满足了现代光刻制备过程中对正光刻最低对比度要求 (~ 0.4)。

对于 p 偏振光而言, 由于 E_x 和 E_z 存在一个 π 相位的偏移, 为了得到足够光刻工艺所需的强度对比度, E_z/E_x 的比值要必须足够大(或足够小)。而 $E_z/E_x = -k_x/k_z$ 。对较大值的横向波矢(倏逝波), $k_z = i\sqrt{k_x^2 - \epsilon_{PR}k_0^2}$ 。于是形成的干涉条纹的强度可见度 V 可以简化为,

$$V = \left| \frac{E_z^2 - E_x^2}{E_z^2 + E_x^2} \right| = \frac{\epsilon_{PR} k_0^2}{2k_x^2 - \epsilon_{PR} k_0^2} \quad (3.3)$$

其中 ϵ_{PR} 是光刻胶的介电常数。那么由公式 (3.3)，为了满足常用负光刻胶的最低对比度要求[11]，结合这种多层膜结构的滤波特性，得到掩模临界周期为 66nm，其对应的一级衍射级次可以通过该多层膜。图 3-4 (c) 显示的是用 FDTD 方法对半周期为 33nm，厚度为 40nm 的掩模在光刻胶区域内的总电场强度分布。图 3-4 (d) 是在距离多层膜-光刻胶界面 0nm (红色)，10nm (蓝色) 和 20nm (黑色) 处归一化的总电场强度分布。正如所预期的，通过模拟，形成了线宽为 16.5nm 的干涉条纹，其对比度模拟值为 0.2007，与理论计算 (公式 3.3) 得到的结果 (0.2033) 吻合很好。随着掩模周期越来越小，干涉条纹对比度会变得很差而不能满足光刻的最基本需求。由于倏逝波随着传播路程呈指数衰减，形成条纹绝对强度也会在光刻胶内随着传播距离而迅速衰减，这可以通过图 3-4 (b) 和图 3-4 (d) 的模拟结果看出其趋势。

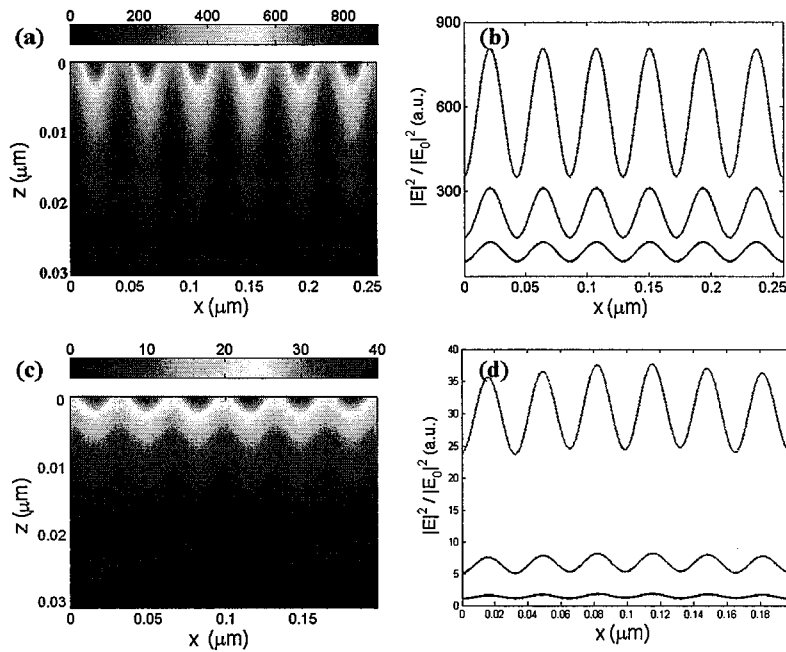


图 3-4 对应于掩模周期分别为 (a) 86nm 和 (c) 66nm 时模拟的电场强度分布。 z 方向 0 值表示多层膜和光刻胶交界面处。其相应的不同平面处 0nm (红色)、10nm (蓝色) 和 20nm (黑色) 的电场强度分布也在图 (b) 和 (d) 分别给出。

通过图 3-3 和方程 (3-3)，可以得出结论：掩模周期在 110nm 到 66nm 范围内，对应的第一级衍射波矢范围为 $1.755 k_0$ 到 $2.9242 k_0$ ，通过设计的多层膜结构可以得到条纹特征尺寸在 27.5 到 16.5 nm 范围内。图 3-5 显示的是形成的图形尺

寸与可见度和归一化电场强度的关系图。黑色正方形和红色实心圆分别对应的是理论计算和 FDTD 模拟结果。蓝色三角点代表的是在多层膜和光刻胶界面 5 纳米下平面的平均归一化电场强度值。从图 3-5 可以看出, 模拟的可见度结果与理论计算的结果符合很好, 而且归一化电场强度分布能够通过图 3-3 中的该多层膜的振幅透过系数分布得到很好的解释。

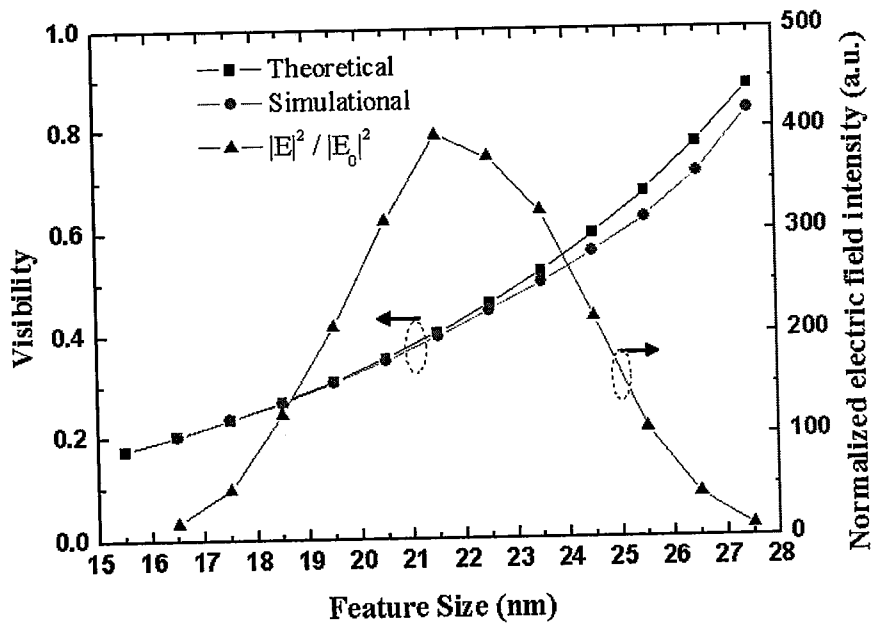
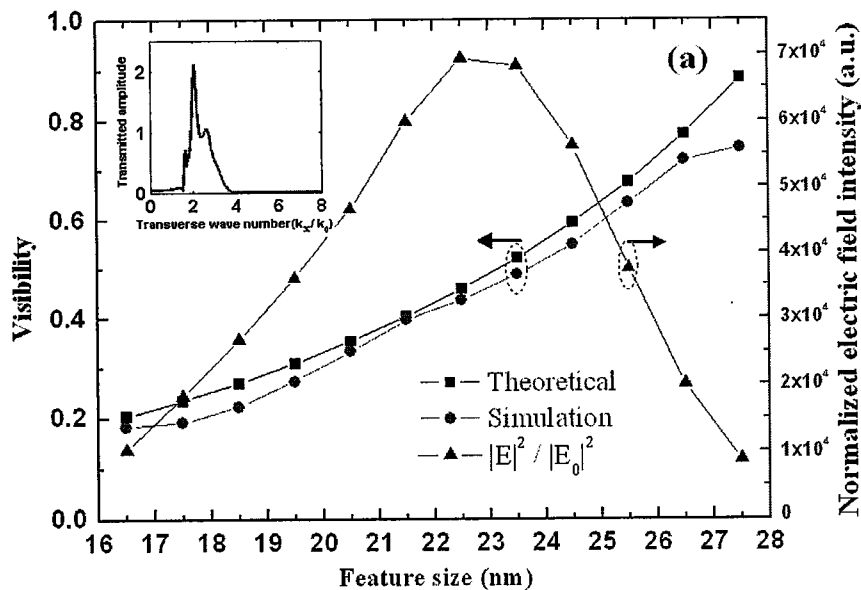


图 3-5 对本章设计的介质-金属多层膜结构, 其光刻图形的特征尺寸与对比度和归一化电场强度的关系。黑色的正方形和红色的圆点分别代表理论计算和数值模拟得到的干涉条纹对比度。蓝色三角形代表了在多层膜/光刻胶界面下 5nm 处的平均归一化强度值。

结合设计的介质-金属多层膜结构的层数和与之相应的光学传递函数, 可以预言, 随着这种多层膜层数的增多, 零级衍射波将更进一步地被过滤, 模拟的可见度值将接近理论计算结果, 但由于金属的吸收作用, 归一化的电场强度将迅速减弱。为了验证这一结论, 将分析两组不同层数的多层膜情况。一种是 4 对 GaN(10 nm)/Al(12 nm)多层膜, 而另外一种 12 对 GaN(10 nm)/Al(12 nm)多层膜。如图 3-6 分别是 (a) 4 对和 (b) 12 对多层膜时形成条纹的特征尺寸和可见度与归一化的电场强度 (在多层膜和光刻胶界面 5nm 处的平均归一化电场强度值) 关系分布。这两种结构的光学传递函数分布也给出了, 分别在各图对应的插图中。对于 4 对的这种多层膜结构, 模拟的可见度结果与理论结果有些偏差, 这是因为掩模的零级衍射波没有完全被过滤, 干涉过程中受到其影响所造成的。而对于 12 对的多层膜结构, 由于掩模的零级衍射波被很好的过滤, 对于掩模周期小于 84nm 情况, 模拟的可见度结果和理论计算结果很好地吻合, 但是对于较大周期

的掩模，模拟与计算结果的差别就逐渐拉大，这可以很好的从多层膜结构的光学传递函数得到解释。由图 3-5 和图 3-6 可以看出，对于层数较少的多层膜结构，由于相对较少的金属吸收影响，可以得到更高的归一化电场强度，这也可以通过其光学传递函数得到很好的解释。考虑到当今光刻工艺（用正光刻胶）的制作设备，4 对的这种多层膜结构就能得到对比度约为 0.4、线宽为 21.5nm 的干涉条纹。利用这种方法，可以很大程度上减少多层膜结构的制作难度，同时减少了相应的实验误差。当多层膜层数小于 4 对时，透过该结构的第零级衍射波将会给实验带来更大的影响。

接下来讨论 Cr 掩模，DMM 多层膜和光刻胶的制作。Cr 掩模可以通过电子束光刻和 lift-off 工艺制作。纳米级的薄膜沉积技术可以通过传统技术实现。1999 年，由 NiFe(10 nm)/Co(1 nm)/Cu(13 nm)/Co(10 nm)/NiFe(2nm)组成的自旋阀门多层膜结构通过直流溅射（direct current sputtering）成功的被制作出来，只不过只有 70nm 宽[19]。2006 年，一个只有 3nm 厚，但长度只有 55nm 的介质芯片被成功制作[20]。这些成功制作出来的结构，其厚度都比本章中设计的多层膜结构要薄。然而要制备出本章中所述的大面积且多层结构，对于目前的工艺也是一个巨大的挑战。在实验过程中，薄膜的品质，比如光滑度，硬度和粘度等也应当适度的被考虑，针对不同的实验情况，这些因素也应该适当的折衷。例如，由于是多层膜结构，应当增强薄膜的表面张力。如果更进一步的分析多层膜结构的光学传递函数，情况表明薄膜厚度的容忍度在 1~2nm，传统的镀膜工艺技术可以很好的解决这些问题。另外，多层膜结构的厚度与层数应该综合考虑以得到最佳效果。



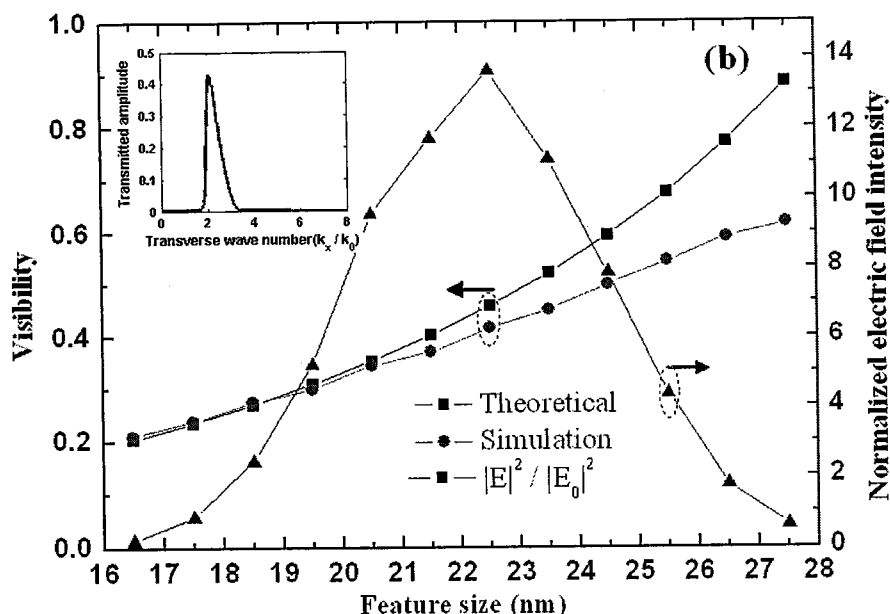


图 3-6 针对本章设计的介质-金属多层膜结构，其光刻图形的特征尺寸与对比度和归一化电场强度的关系 (a) 4 对 GaN(10 nm)/Al(12 nm) 多层膜；(b) 12 对 GaN(10 nm)/Al(12 nm) 多层膜。黑色的正方形和红色的圆点分别代表理论计算和数值模拟得到的干涉条纹对比度。蓝色三角形代表了在多层膜/光刻胶界面下 5nm 处的平均归一化强度值。其对应的在 193nm 光入射下的振幅透射函数在插图中分别给出。

3.4 本章小结

本章发展一种通过介质-金属多层膜滤波的表面等离子体干涉光刻方法，并从数值上模拟这种光刻技术。对于当今的光刻设备和正光刻胶，利用 4 对设计好的介质-金属多层膜和 p 偏振的 193nm 光源，可以得到特征尺寸小于 22nm 的光刻图形。若利用普通的负光刻胶，在实验室条件下，利用 8 对这样的介质-金属多层膜结构可以得到特征尺寸为 16.5nm 的光刻图形。这个多层膜被设计成具有一定滤波特性的滤波器，使得只有某一衍射级次的高频波通过从而在该滤波器件的出射面发生表面等离子体干涉。多层膜结构的层数带来的影响也在本章进行了详细的讨论。FDTD 数值模拟方法验证了这种光刻技术的有效性和正确性。由于半周期 22nm 的掩模可以批量生产，有理由相信通过这种光刻技术得到特征尺寸为 16nm 或者更小的结构是可能的。

第4章 金属光栅-介质-金属异质波导结构的表面等离子体共振干涉

光刻

4.1 引言

传统的光刻技术对于低成本、大面积地制作高分辨率图形是一个重要的技术手段。然而，其分辨率受到衍射原理的限制。最近，等离子体光刻[1-14]可以在宽波段内(193 ~ 442nm)实现突破衍射极限而得到更高分辨率的图形。这个方法是基于表面等离子体的波长比同样频率的光在自由空间中的波长更小的特点[15]。

由于能物体频谱信息中一定范围内的倏逝波成份起到增强作用，金属表面的表面等离子体波能够将物体的电磁波信息聚焦到金属的另一面，从而突破衍射极限实现超分辨成像[16-18]。另外也从理论上[19-20]和实验上[5]，在和物体同侧的金属表面附近得到纳米尺度的图样，这得益于反射和由于金属表面等离子体对倏逝波的增强作用。

另一方面，为制备亚波长周期的图形，各种各样基于表面等离子体激元的干涉光刻方法[8-9, 11-13]相继提出。其中的很多方法所形成的干涉条纹的最高分辨率在 $\lambda/10 \sim \lambda/12$ [8-9, 12-13]。正如文献[20]所述，从高折射率材料中产生的一对相向传播的倏逝波，受金属表面的表面等离子体作用其强度得到增强，并形成明显的亚波长干涉条纹。本章中，利用金属光栅波导异质结构，研究其实现超分辨表面等离子体的共振干涉光刻。这里金属光栅波导异质结构激发的表面等离子体激元受金属光栅的影响很大，包括传播常数和干涉条纹对比度。运用时域差分法模拟得到高对比度的深亚波长($\sim \lambda/17$)的干涉条纹。本章也讨论了条纹分辨率和光刻胶厚度之间的关系。另外，为了尽可能的避免金属污染等因素，按照实验条件模拟，得到了高品质（对比度和深度）的干涉条纹。

4.2 金属光栅异质波导结构

图 4-1 是用金属光栅异质波导结构实现等离子体干涉光刻装置示意图，与之前的文献[5, 19-20]的结构类似。 p 偏振的入射光从底部照射铬掩模，铬掩模可以在石英层上通过电子束光刻和 lift-off 工艺制作。光刻胶 (PR)涂甩在金属膜

(银或者铝)上,金属膜在石英基底上。需要注意的是在金属掩模中的缝隙内填充的是同样的光刻胶。从下面的讨论中得知,本章中的条件下金属的趋肤深度小于 30nm,因此可以设计金属膜的厚度小于光刻胶膜层的厚度。这样,在光刻图形显影后,可以采用 bi-layer 工艺可以将光刻胶图形转移到石英基底上。详细地,在光刻胶形成图形后,可以通过粒子束刻蚀技术将该图形转移到下面的金属膜内,然后再经过一次反应离子刻蚀技术将图形从金属层转移到下面的石英基底上。运用这种处理方法将使这种光刻技术有可能用在半导体制造上。

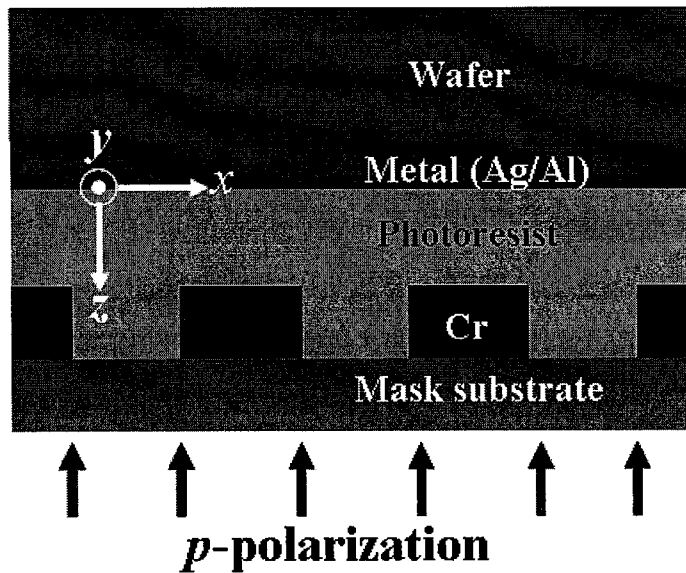


图 4-1 金属光栅-介质-金属共振干涉光刻的结构示意图。

对于一个周期的掩模,由掩模产生的波可分解成一系列衍射级次的平面波。其中高频的倏逝波离开掩模后,将随着传播的距离呈指数衰减。但是它们将会由于金属-介质界面的表面等离子体而得到显著增强。一般的,越高衍射级次的倏逝波,其衰减的越快。尽管高衍射级次波与第一级衍射级次一样可以实现干涉光刻,但在对异质结构尺寸的确定上较为复杂。因此本章中只针对第一级衍射级次之间的干涉。

简单起见,考虑铬掩模作为一个金属板,于是金属光栅波导异质结构结构可以近似看成一个金属-介质-金属波导异质(MIMH)结构,如图 4-2 所示。

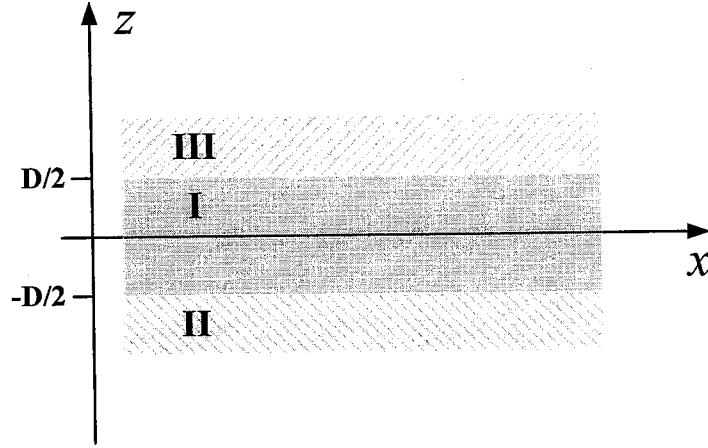


图 4-2 金属-介质-金属波导结构。

对于 $z > D/2$ (介质 III 内), 场的分量[21]

$$\begin{aligned} H_y &= A e^{i\beta x} e^{-k_3 z} \\ E_x &= iA \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_3} k_3 e^{i\beta x} e^{-k_3 z} \\ E_z &= -A \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_3} e^{i\beta x} e^{-k_3 z} \end{aligned} \quad (4.1)$$

对于 $z < -D/2$ (介质 II 内), 场的分量[21]

$$\begin{aligned} H_y &= B e^{i\beta x} e^{k_2 z} \\ E_x &= -iB \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_2} k_2 e^{i\beta x} e^{k_2 z} \\ E_z &= -B \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_2} e^{i\beta x} e^{k_2 z} \end{aligned} \quad (4.2)$$

在芯层区域 $-D/2 < z < D/2$ (介质 I 内), 模式局域在上、下两界面之间耦合, 产生场的分量[21]

$$\begin{aligned} H_y &= C e^{i\beta x} e^{k_1 z} + D e^{i\beta x} e^{-k_1 z} \\ E_x &= -iC \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} k_1 e^{i\beta x} e^{k_1 z} + iD \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} k_1 e^{i\beta x} e^{-k_1 z} \\ E_z &= C \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} e^{i\beta x} e^{k_1 z} + D \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} e^{i\beta x} e^{-k_1 z} \end{aligned} \quad (4.3)$$

由边界条件可知, 在 $z = D/2$ 处, H_y 和 E_x 的连续性得到如下四个线形的耦合方程[21]

$$\begin{aligned} A e^{-k_3 D/2} &= C e^{k_1 D/2} + D e^{-k_1 D/2} \\ \frac{A}{\varepsilon_3} k_3 e^{-k_3 D/2} &= -\frac{C}{\varepsilon_1} k_1 e^{k_1 D/2} + \frac{D}{\varepsilon_1} k_1 e^{-k_1 D/2} \end{aligned} \quad (4.4)$$

同理，在 $z = -D/2$ 处[21]，

$$\begin{aligned} B e^{-k_2 D/2} &= C e^{-k_1 D/2} + D e^{k_1 D/2} \\ -\frac{B}{\varepsilon_2} k_3 e^{-k_3 D/2} &= -\frac{C}{\varepsilon_1} k_1 e^{-k_1 D/2} + \frac{D}{\varepsilon_1} k_1 e^{k_1 D/2} \end{aligned} \quad (4.5)$$

对于 p 偏振光而言，波动方程满足[21]

$$\frac{\partial^2 H_y}{\partial z^2} + (k_0^2 \varepsilon - \beta^2) H_y = 0 \quad (4.6)$$

由上面的公式，可以得到这种波导异质结构的色散关系 [21]，

$$\begin{aligned} e^{-2k_1 D} &= \frac{k_1/\varepsilon_1 + k_2/\varepsilon_2}{k_1/\varepsilon_1 - k_2/\varepsilon_2} \frac{k_1/\varepsilon_1 + k_3/\varepsilon_3}{k_1/\varepsilon_1 - k_3/\varepsilon_3}, \\ k_i^2 &= k_x^2 - k_0^2 \varepsilon_i, \quad i=1,2,3. \end{aligned} \quad (4.7)$$

其中下标 $i = 1, 2,$ 和 3 分别代表光刻胶层，金属膜层和铬金属层。 D 是光刻胶的厚度。 k_0 是入射光波矢。Drude 模型 $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty - \omega_p^2 / [\omega(\omega + iV_c)]^{-1}$ 用来表征金属铬和银的介电常数，其中对金属铬而言 $\varepsilon_\infty = 3.2$, $\omega_p = 2.2 \times 10^{16}$ rad/s, $V_c = 3.8 \times 10^{15}$ rad/s, 对于金属银而言 $\varepsilon_\infty = 6.0$, $\omega_p = 1.5 \times 10^{16}$ rad/s, $V_c = 7.73 \times 10^{13}$ rad/s。本章中，光刻胶 (Negative Photoresist NFR 105 G from JSR Micro) 的折射率为 1.7。金属的趋肤深度可以定义为[15]

$$\delta_m = \left((\varepsilon'_m + \varepsilon_d) / \varepsilon_m'^2 \right)^{1/2} / k_0 \quad (4.8)$$

其中 ε'_m 是金属介电常数的实部， ε_d 是介质的介电常数（本章中是指光刻胶）。

因此金属膜层的厚度可以通过公式 (4.8) 决定。

4.3 数值模拟结果和讨论

4.3.1 金属光栅异质波导结构的亚波长光刻技术

图 4-3 是通过计算 Cr/PR/Ag 异质波导结构的色散关系，分别对应不同的光刻胶厚度 30nm（虚点线），60nm（实线）和 80nm（虚线）。从这些色散曲线可以看到，随着光刻胶厚度的减少，表面等离子体的共振频率增加，并且将会聚于 376nm 附近，这个表面等离子体共振频率满足条件 $|\varepsilon_{Ag}| \approx \varepsilon_{PR}$ 。这将导致一个宽波段内的倏逝波增强，是由于在光刻胶/金属界面表面等离子体激发所造成的，而这也正是超分辨成像的一个关键因素。然而，对于本章的金属光栅波导

异质结构结构，这个共振频率不是一个理想的条件，这是因为会有很多级的衍射级次在此频率出得到增强，这样在光刻胶和金属界面出就会有众多衍射级次的波之间的干涉，导致不规则的电场分布。因此，这里选择汞灯 g 线 (436 nm) 来实现深亚波长干涉图形。

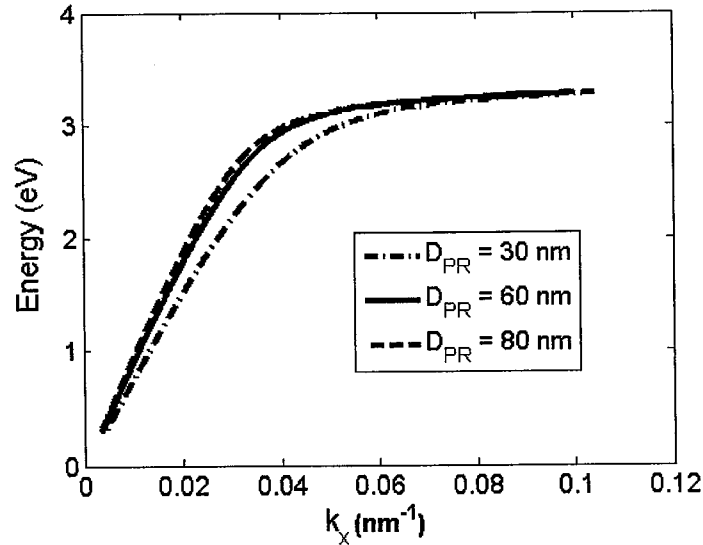


图 4-3 光刻胶厚度分别为 30、60 和 80nm 时波导的色散曲线关系。

图 4-3 表明，对于入射光 436nm，光刻胶厚为 60nm 的结构，共振表面等离子体波在 $2.7k_0$ 附近，对应于掩模的周期为 160nm 的第一级衍射波。于是首先讨论周期为 160nm 的掩模的第一级衍射波的干涉情况。利用 FDTD 方法模拟，其中材料的介电常数都是由实验测量得到的值。银和铬在 436nm 时的介电常数分别是 $-5.922+0.642i$ [22]和 $-11.41+12.84i$ 。银层的厚度是 30nm，远大于其趋肤深度 20nm 左右。图 4-4 (a) 是通过 FDTD 方法计算的这种光刻结构的总电场分布。在本章的模拟分析中， x 方向边界条件是完美电导体， z 方向的边界条件是完美匹配层。入射光强度设为 1， x 和 z 方向的网格大小均为 0.5nm。垂轴的 0 值代表光刻胶/银层界面。正如所预期的，半周期为 40nm 的光栅图形在光刻胶区域形成。其在 $z=0, 10, 20, 30$ 和 40nm 处的强度对比度 $V = (|E|_{\max}^2 - |E|_{\min}^2) / (|E|_{\max}^2 + |E|_{\min}^2)$ ，分别为 0.332, 0.393, 0.367, 0.286 和 0.274，远远大于普通负光刻胶所需最低要求(0.2) [23]。作为对比，将光刻胶下面的金属层和石英基底全部换成光刻胶，并模拟了其总的电场强度分布 (如图 4-4 (b) 所示)。结果表明，这种情况没有等离子体干涉图形产生，且电场强度远小于本章设计的多层膜时的结果。

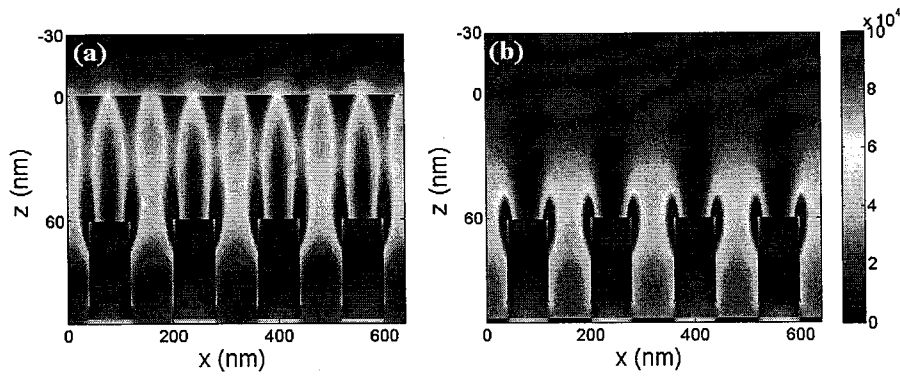


图 4-4 FDTD 数值模拟电场分布（同一刻度）。(a) 光刻胶下面有金属层的情况；(b) 光刻胶下面的金属层和石英基底全部被光刻胶取代时的情况。

一般情况下，对于金属光栅结构，只有当金属的占空比越大时，用上述的金属-介质-金属波导理论可以近似的描述本章设计的结构。本章中图 4-4 (a) 可以看到，金属的占空比为 0.5 时，光刻胶层内的电场分布也能很好的符合预期的要求，表明这种情况下对占空比的要求并不是那么的苛刻。为了说明这一点，进一步的减小金属的占空比。图 4-5 所示的是当掩模结构的周期不变，金属的占空比为 0.4 时的电场分布，模拟结果表明用波导理论近似解释此种情况时，对金属的占空比要求不用那么的苛刻。

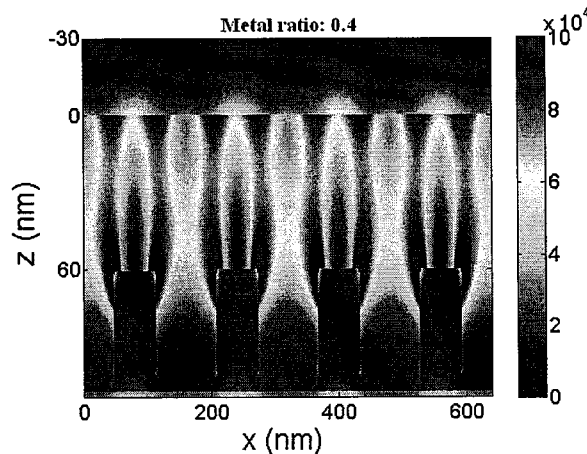


图 4-5 金属光栅中金属占空比为 0.4 时的电场分布情况。

对于设计的结构，光刻胶的厚度取决于金属对倏逝波的增强能力和掩模的周期以满足第一级衍射波的干涉。在 436nm 入射光下，磁场增强因子（取对数，入射面是掩模/光刻胶界面）与光刻胶的厚度和横向波数之间的关系由增强传输矩阵方法计算得到（如图 4-6 (a) 所示）。入射光的振幅设为 1。银膜的厚度为 30nm。计算结果表明当光刻胶的厚度大于 70nm 时，该结构对应的表面等离子体共振频率在 $2.4k_0$ 附近，增强振幅随着光刻胶厚度的增加而减弱。增强的倏逝

波的带宽随着光刻胶厚度的减小而增加。然而对于光刻而言，光刻胶的厚度小于 20nm 已经没有实际意义。和改进的传输矩阵方法 (Enhanced Transmitted Matrix Approach, ETMA) [24]的计算结果相比，还利用近似的金属-介质-金属异质波导 (MIMHs) 色散公式 (1) 计算了该结构的共振表面等离子体频率的波数和光刻胶的厚度之间的关系 (如图 4-6 (a) 的蓝色 “+” 所示)。从图 4-6 (a)，满足掩模的第一级衍射波的传播区域取决于光刻胶的厚度，因此有必要在光刻胶厚度和掩模周期的选择上折衷以满足等离子体干涉光刻。从 MIMHs 计算结果来看，30nm 厚的光刻胶和 30nm 厚的金属银膜结构能满足波数为 $\sim 2k_0$ 的倏逝波传播，相应于掩模周期为 136nm 的一级衍射波。于是利用这种 30nm 厚的光刻胶结构，可以形成深亚波长的周期结构。图 4-6 (b) 显示的是用 FDTD 方法计算得到总的电场强度分布。高对比度、周期为 34nm 的干涉条纹在光刻胶区域内形成。在 $z = 0, 10$ 和 20 nm 处的强度对比度分别为 0.489, 0.62 和 0.71，完全满足普通负光刻胶最低对比度要求 (0.2) [23]。

然而，从 ETMA 计算得到的结果看 (图 4-6 (a))，存在一定宽度范围倏逝波，其横向波数 k_x 得到了增强。最大值在 $4.3k_0$ ，对应于周期为 100nm 的掩模的一级衍射波。同样地，图 4-6 (c) 显示的是由 FDTD 方法计算得到的总电场强度分布，生成了特征尺寸为 25nm 的深亚波长 ($\sim \lambda/17$) 光刻图形。同时也给出了沿光刻胶/银膜界面 20nm 区域的总电场强度分布 (如图 4-6 (c) 的插图)。在光刻胶区域内，沿 $z = 0$ (红色), 10 (蓝色) 和 20 nm (黑色) 的电场强度分布如图 4-6 (d) 所示。在 $z = 20 \text{ nm}$ 平面处的电场强度明显增加，可以认为这是受到掩模的影响。在 $z = 0, 10$, 和 20 nm 处的强度对比度分别是 0.257, 0.574 和 0.358，完全满足普通负光刻胶最低对比度的要求 (0.2) [23]。因此这种光刻机制能够制作出高对比度且深亚波长分辨率的图样。另外，由于表面等离子体共振频率的作用，图 4-6 (b) 的电场强度要大于图 4-6 (c) 的情况。

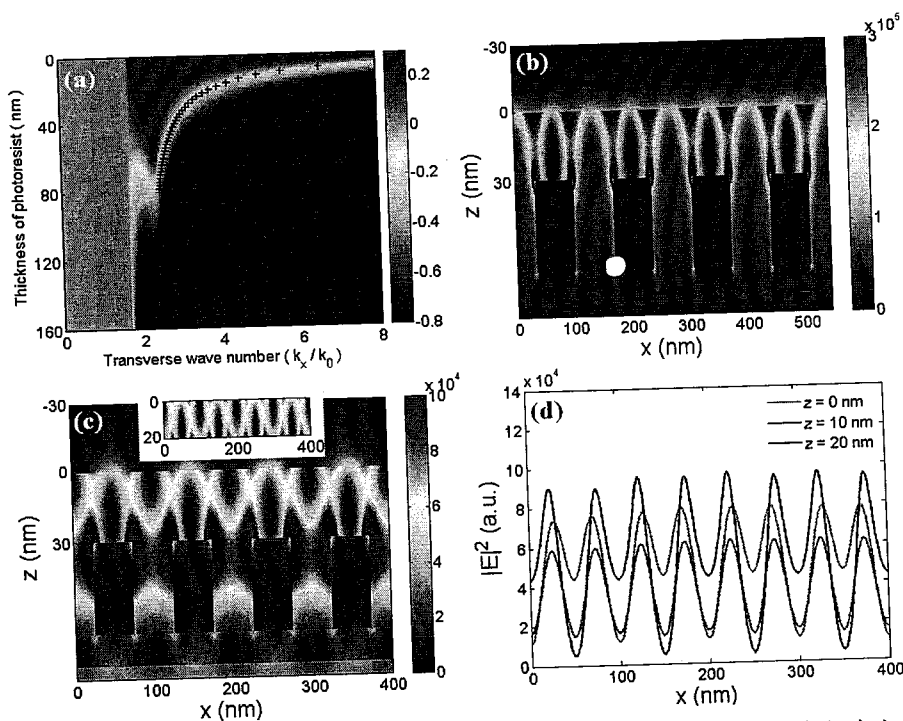
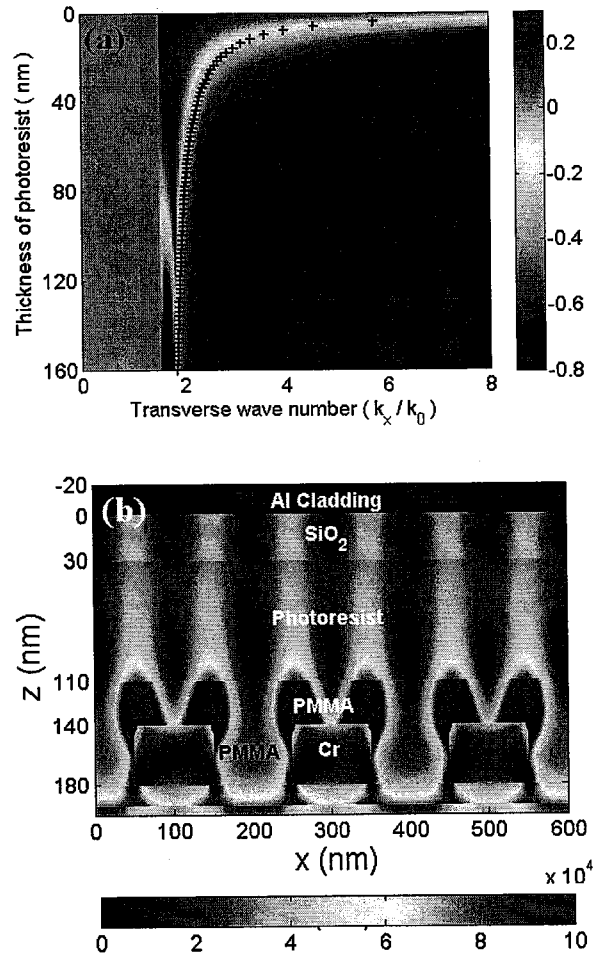


图 4-6 (a) 本章设计的结构的增强因子 (取对数) 与光刻胶的厚度和横向波矢在 436nm 光源下的关系, 金属银层厚度为 30nm。用金属-介质-金属异质波导结构的方法计算得到的光刻胶厚度与横向波矢之间的关系也在图中给出 (蓝色的“+”表示)。计算总的电场强度分布, 对应于掩模周期分别为 (b) 136nm 和 (c) 100nm。其中对于掩模周期为 100nm 情况时, 在光刻胶 20nm 范围内其总的电场强度分布也在图 (c) 的插图内。(d) 图 (c) 中光刻胶内不同平面处 0nm (红色)、10nm (蓝色) 和 20nm (黑色) 干涉条纹的强度分布。

4.3.2 高质量的成像干涉光刻

尽管上面的光刻机制非常适合应用于许多纳米尺度器件的制备, 可是众所周知, 在一些情况下, 会存在金属污染的可能, 比如实验过程中金属与光刻胶之间紧密接触。因此, 为了得到高品质的干涉图样, 研究模拟了一个基于实验的例子, 用 30nm 厚的 SiO_2 (介电常数在 365nm 下为 2.174[22]) 插入金属膜和光刻胶之间以避免金属的氧化和金属污染问题。图 4-7 (a) 是计算得到的在 365nm 光源下, Al 膜的增强因子 (取对数, 入射面是掩模/光刻胶) 与光刻胶厚度和横向波数的关系。365nm 下 Al 的介电常数是 $-19.66+4.4i$ [22], 其趋肤深度约为 12nm。设定 Al 膜的厚度为 20nm。另外对金属光栅波导异质结构在 365nm 入射光下, 利用近似的 MIM 波导异质结构色散公式给出了其共振表面等离子体的波数与光刻胶厚度之间的关系 (图 4-7 (a) 的蓝色“+”)。结果表明用金属 Al 的结构允许光刻胶的厚度大于 100nm 也能发生表面等离子体 (在 $1.8k_0$ 附近) 干涉光刻。为了进一步减少污染因素, 30nm 厚的 PMMA (在 365 nm 下其介电常数 = 2.301) 放置在掩模和光刻胶之间, 以避免掩模与光刻胶的直接

接触后对掩模的污染。对这样的结构进行 FDTD 模拟，其中 Cr 掩模的周期是 200nm，厚度 40nm。光刻胶的厚度是 80nm。图 4-7 (b) 是模拟的这种结构总的电场强度分布。正如所预料的，由掩模第一级衍射波之间的干涉形成了高质量的规则周期性图形，图形特征尺寸 50nm，深度 8 μ m。在 $z=30$ 到 110nm 之间每间隔 10nm 处的强度对比度也在图 4-7(c)中表明。最低的对比度为 0.36，完全满足负光刻胶的最低要求(0.2) [23]。



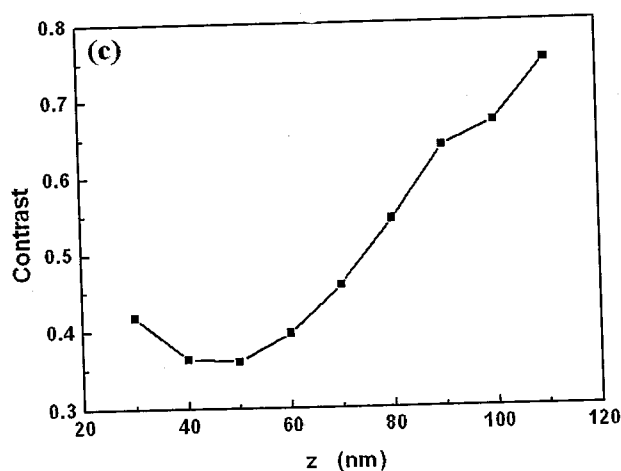


图 4-7 本章设计的结构的增强因子（取对数）与光刻胶的厚度和横向波矢在 365nm 光源下的关系，金属 Al 层厚度为 20nm。用金属-介质-金属异质波导结构（MIMHS）的方法计算得到的光刻胶厚度与横向波矢之间的关系也在图中给出（蓝色的“+”表示）。(b) 在 365nm 入射光下，对于设计的异质波导结构的电场分布，其中金属 Al 层、SiO₂、光刻胶和 PMMA 的厚度分别为 20nm，30nm，80nm 和 30nm。掩模的周期为 200nm。(c) 在 SiO₂/Al 界面下 30 纳米到 110nm 之间每隔 10nm 处的对比度。

4.3.3 与透过干涉光刻情况比较

值得注意的是，与这种反射式的干涉光刻相比，一维光栅透过光刻情况得到的条纹对比度要低很多。一维透过型光刻的对比度可以由下面的公式表示 [14]:

$$V = \frac{\varepsilon_{\text{PR}} k_0^2}{2k_x^2 - \varepsilon_{\text{PR}} k_0^2} \quad (4.9)$$

其中 ε_{PR} 是光刻胶的介电常数， k_x 和 k_0 分别是透过横向波矢和入射光波矢。

对于透过型光刻情况，由公式 (4.39)，用 100nm 周期的掩模，在 436nm 光照下，为了得到线宽为 25nm 图形，其对比度只能为 0.08，这个对比度值根本无法满足光刻的要求。因此，本章提出的基于金属光栅的波导异质结构的干涉机制在提高光刻分辨率上更实用。

类似的，也可以利用一维衍射光栅的更高衍射级次或者二维圆形衍射光栅来获得相应的干涉图样。在这些情况中，光栅的狭缝相比于光栅的周期要足够窄，这些情况的详细问题将在以后的工作中进一步的研究。

4.4 本章小结

本章分析了基于金属光栅波导异质结构（MGWHS）的表面等离子体激元

共振干涉光刻机制。掩模的倏逝波成份被金属光栅波导异质结构激发的表面等离子体激元增强,选择合适的掩模周期使得掩模的第一级衍射波与增强的倏逝波共振,得到一级干涉图样。光刻胶的厚度要考虑掩模的周期以实现深亚波长光刻图形的形成。在436nm的入射光下,利用周期为100nm的Cr掩模得到半周期为25nm的图样。同时也根据实验情况,避免实验过程中金属被氧化和污染,模拟了在365nm情况下得到了半周期为50nm高对比度和深沟槽的图形。由于该结构中金属膜的厚度小于光刻胶的厚度,所以可以通过bi-layer工艺将光刻胶区域的图形转移到金属膜下面的石英基底上。这种光刻机制将有可能用于半导体制造。有理由相信,这种方法有望为人们提供利用更加简单的装置来实现低成本大面积深亚波长图形的制作。

类似的一维或二维衍射光栅将有希望利用这种地机制来实现相应的表面等离子体干涉图形。

第5章 非匹配超透镜及其宽波段超分辨成像光刻

5.1 引言

Pendry 在 2000 年首次提出完美透镜概念[1], 并从数学上推导其可以由具有负折射率[2]的平板材料实现。对于 p 偏振光, 由于静电限制, 具有负介电常数的金属平板有能力从平板的入射面到出射面, 将宽带范围的倏逝波信息充分的传递过去, 这也是超透镜突破衍射极限实现超分辨成像光刻的关键所在。Ramakrishna 随后设计了另外一种超透镜, 这种超透镜是基于一个金属-介质的多层膜结构, 它是为了减少由于金属平板的内部吸收而设计的[3]。Cai 提出一种可调的基于一个各项同性的金属-介质合成薄膜的超透镜, 它能在可见光和近红外区域内实现[4]。在实验上, 用银膜超透镜[5-6]和单晶 SiC 超透镜[7]在不同的波段内都可以实现超分辨光学成像。然而, 这些超透镜都是基于透镜和周围介质介电常数匹配($\text{Re}(\epsilon_m) \approx -\epsilon_d$)情况, 其中 ϵ_m 和 ϵ_d 分别是金属和介质的介电常数。由于自然界中材料的有限性, 这将限制这种超透镜的应用范围。最近, 一些工作转向金属和其周围介质的介电常数不匹配的情况[8-11]。Wang 报道了不匹配时实现亚波长成像的理论研究, 但是这发生在等效的横向介电常数趋于 0 而纵向趋于无穷大[11]。Bloemer 最近设计一种宽波段的超透镜, 它是一个金属-介质多层膜组成的光子晶体带隙结构, 它是基于一系列的 Ag/GaP/Ag 法-玻腔 (Fabry-Pérot cavity) 之间的强烈的耦合作用[10]。通过本章的研究表明, 可以用另外一种更加简单的结构来实现宽波段的超透镜效应。本章中, 将介绍一种介质-金属-介质结构的非匹配超透镜, 并详细分析和讨论这种非匹配超透镜在较宽频域的光波范围内实现对亚波长物体的超分辨成像。

5.2 非匹配超透镜

本章提出的非匹配超透镜 (Unmatched superlens, UMSL) 是由单个介质-金属-介质结构单元组成的, 如图 5-1 所示。金属薄膜被两个具有相同材料和厚度的介质包围, 类似于 Pendry [1] 起初提出的超透镜。亚波长尺寸的线源物体放置在接近非匹配超透镜的入射面, 像的观察面透镜出射面的上方某一个距离 z 处。其中金属和介质的介电常数在工作波长 λ_0 下是不匹配的 (即 $\text{Re}(\epsilon_m) \neq -\epsilon_d$)。

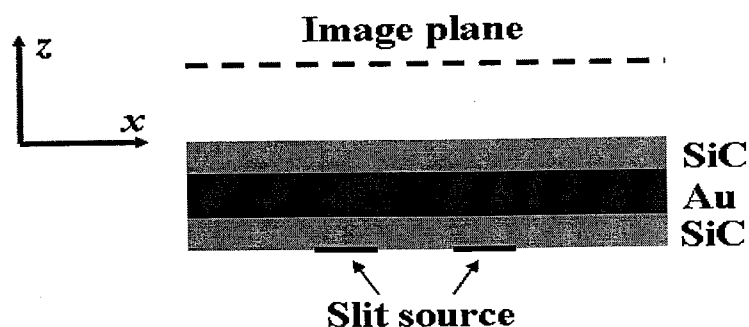


图 5-1 介质-金属-介质形成的非匹配超透镜的结构示意图，在 xy 平面无限延展。

在金属-介质界面，表面等离子体激元 (Surface Plasmon Polaritons, SPPs) 会由于入射的 p 波 ($k > nk_0$) 和界面集体振荡的自由电子之间的耦合而存在。金属膜表面产生的表面等离子体波 (SPs) 可以对倏逝波起增强作用，这已经在之前的实验工作中得到了验证[12]。非匹配超透镜的振幅透过因子 (Transmission Factor) 可以通过改进的矩阵传输方法来计算得到[13]。本章中，金属和介质分别是 Au 和 SiC。可以利用 Drude 模型 $\varepsilon_r(\omega) = \varepsilon_\infty - \omega_p^2 / [\omega(\omega + iV_c)]$ 来描述金属的介电常数，其中对于金属 Au 而言，参数 $\varepsilon_\infty = 9.0$, $\omega_p = 1.3673 \times 10^{16}$ rad/s, $V_c = 1.0027 \times 10^{14}$ rad/s。SiC 的介电常数可参考文献[14]。

首先讨论在空气中 Au 和 SiC 实现非匹配超透镜的厚度关系。这里初步选择入射波波长为 633nm 的 p 偏振光源。图 5-2 中，计算了半周期为 80nm 的光栅通过该非匹配超透镜的透过因子，分别固定 SiC 为 10nm, 15nm 和 20nm 来选择金属 Au 分别对应的最佳厚度。显然，Au 的最佳厚度来自于光的波长，物体的周期以及 SiC 的厚度。由图 5-2 可以看到，随着介质 SiC 厚度的减小，Au 的最佳厚度随之减小，同时整个非匹配超透镜相应的透过因子会增加，这与文献[5]在金属厚度的选择上是一致的。综合考虑到目前实验室的加工工艺水平和对成像质量的要求，选定 SiC 和 Au 的厚度分别为 15nm 和 22nm。

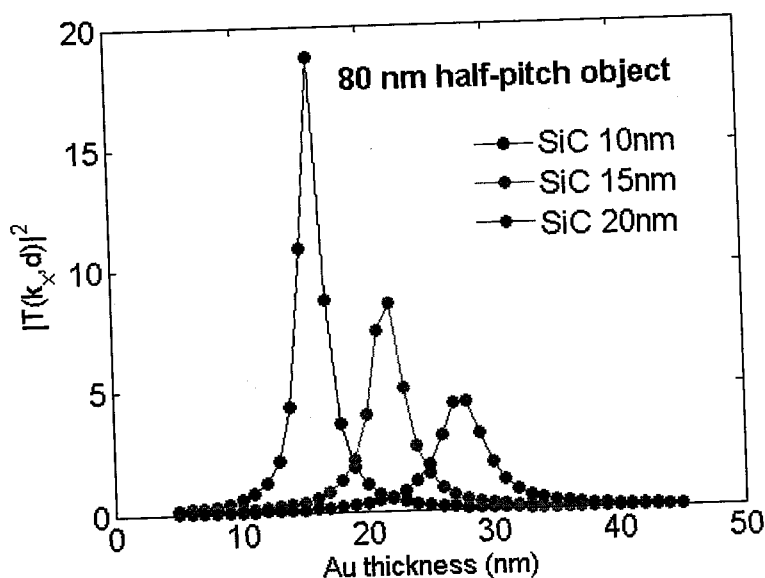


图 5-2 对于半周期为 80nm 的物体，分别固定三个不同的 SiC 厚度（10nm，15nm 和 20nm），对应不同的金属 Au 厚度的透过因子分布（入射光为 633nm 的 p 偏振波）。

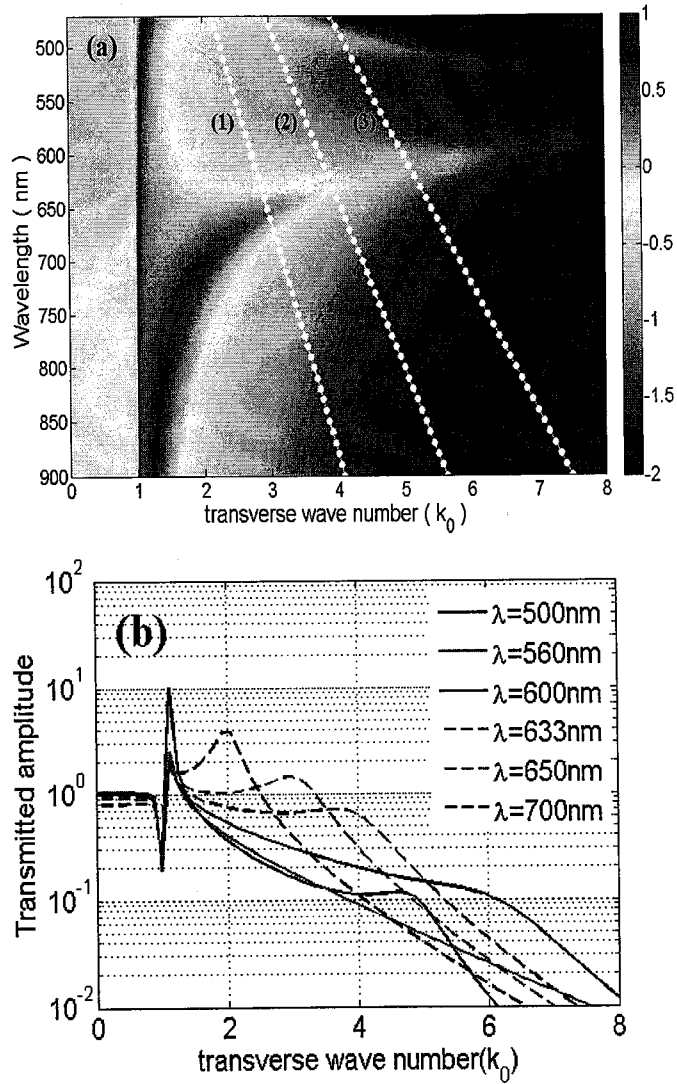
5.3 非匹配超透镜的宽波段超分辨成像光刻

5.3.1 非匹配超透镜的光学传递函数

光学传递函数（Optical Transfer Function, OTF）是评价光学成像系统质量所使用的一个非常重要的物理量，它使用人们在电路理论中早已熟悉的“频谱”语言，为全面地客观的像质评价工作提供了一个统一的标准和有力的手段。按照定义，它是像面强度分布与物面强度分布的频谱比值[15]。对设计的这个非匹配超透镜，也同样需要用光学传递函数来评价它的成像质量。图 5-3 是入射波长和横向入射波矢通过这种不匹配超透镜的磁场振幅透过因子（取对数，设入射光磁场振幅为 1）。和单层金属薄板一样，该非匹配超透镜存在两个表面波模式。可以看到这两种模式在 560nm 附近处（此时 Au 和 SiC 的介电常数匹配，产生共振表面等离子体激元）趋于重合。在两个模式色散曲线附近，Au 膜对倏逝波信息的传输起到了增强的作用。图 5.3 (a) 也显示了在光波段 500nm ~ 650 nm 内，传播波的振幅没有明显地抑制或增强。一般地，对倏逝波增强效果会随着横向波数的增加而减少，但是可在这两个 SPP 模式的横向波数内存在一个有效的对倏逝波信息复原范围。另外值得一提的是，可以通过调节金属和介质的厚度来改变对倏逝波增强的波矢 k 的范围。

图 5-3 (a) 中的白点线((1)-(3)) 分别代表了周期性物体半周期为 110nm, 80nm 和 60nm 的一级波数。像的分辨率和相应的结果将会在下本章进行讨论。由于传递物体的倏逝波信息可在两 SPP 模式附近得到增强，可以相信，将会在一个大的频

域范围内得到超分辨的成像结果。在图 5-3 (b) 和图 5-3 (c) 中, 分别给出了在六个不同的光波下 (500nm ~ 700nm), 这个超透镜的振幅透过因子与横向波数之间的关系以及位相分布。从图 5-3 (b) 可以看出, 在 500nm ~ 700 nm 范围内, 能得到较大增强透过因子的倏逝波信息, 人们则会认为对于周期大于 160nm 的物体来说, 超分辨的图像也可以在这个范围内得到。但是下面的工作表明这种武断的认识是不对的, 因为这里面还有位相调制和光的吸收在起作用。



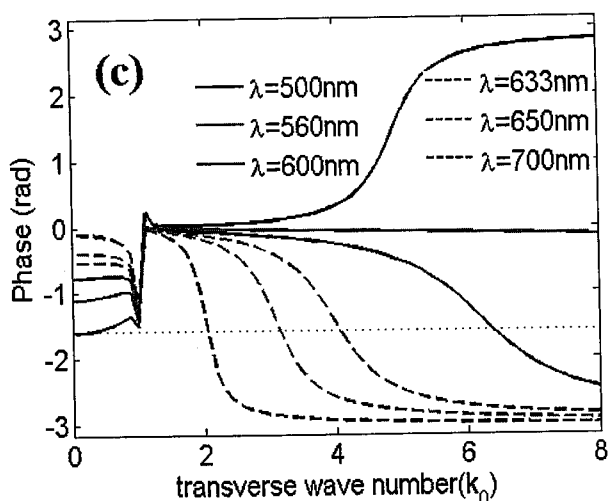


图 5-3 (a) 不匹配超透镜 SiC/Au/SiC (15nm/22nm/15nm, 周围介质是空气) 在不同入射波的振幅透过因子 (取对数)。其中白点线 ((1)-(3)) 半周期分别为 110nm, 80nm 和 60nm 物体相应于各个不同入射波的一级波数。(b) 非匹配超透镜在六个不同的入射光波 (500, 560, 600, 633, 650 和 700nm) 下的透过因子与横向入射波数的关系。(c) 非匹配超透镜在六个不同入射光波 (500, 560, 600, 633, 650 和 700nm) 的位相透过分布。

5.3.2 非匹配超透镜对单缝的成像特性

为了说明非匹配超透镜对于不同入射波长的成像效果, 运用严格衍射理论和角谱传播理论进行了数值计算。物体 (线源) 放置在该非匹配超透镜的入射面。需要指出的是, 为简单起见, 假定光的强度值在线源处为 1, 而在其他地方为 0。

首先计算入射光在 500nm ~ 700nm 范围内, 对于线宽为 50nm 的单缝成像效果, 如图 5-4 所示。像面是设置在距非匹配超透镜出射面 40nm 处。计算结果表明对于入射光 (500nm ~ 633nm), 像的半高全宽 (the full width at half maximum, FWHM) 大约是 150nm, 类高斯线形并有小的旁瓣。另外, 对于 500nm 的入射光, 旁瓣幅度有些高, 这是因为激发的 SP 模式在 $1.2k_0$ 附近有较高的共振峰, 如图 5-3 (b) 所示。对于波长大于 650nm 的光, 像的线形变宽而且旁瓣相应于主峰变得更严重。但是可以看到, 宽波段的超分辨成像能够通过这种非匹配超透镜实现。

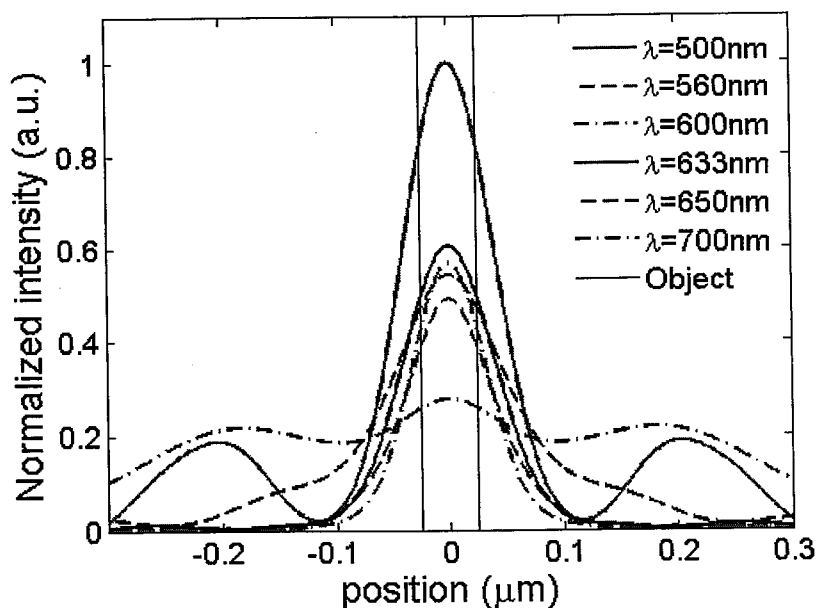


图 5-4 非匹配超透镜对线宽为 50nm 的单缝在 500nm~700nm 内不同波长下的成像结果。

接下来讨论一下像面位置的选择。作为一个例子，下面计算了两个线源（50 nm 宽，中心距 160nm）通过非匹配超透镜成像，入射光选用 500nm 和 600nm 的光源，如图 5-5 (a) 和 5-5 (b)。同样的，分别在距非匹配超透镜出射面分别位于 0nm、10nm、30nm、50nm 和 80 nm 处的计算结果，如图 5-5 所示。对于非匹配超透镜来说，能够实现超分辨成像是由于对物体的倏逝波信息的复原，所以很难明确的定义其像面的位置。通常情况下，越接近非匹配超透镜出射面的位置，其成像效果就越好，这主要是由于这些位置能包含更多的反映物体精细结构的倏逝波信息。但是一般不会使像面接近于非匹配超透镜，主要是因为实验过程中很难实现。因此，本章中选择距离非匹配超透镜 40nm 远处作为像面位置，对于入射光从 500nm ~ 650nm。

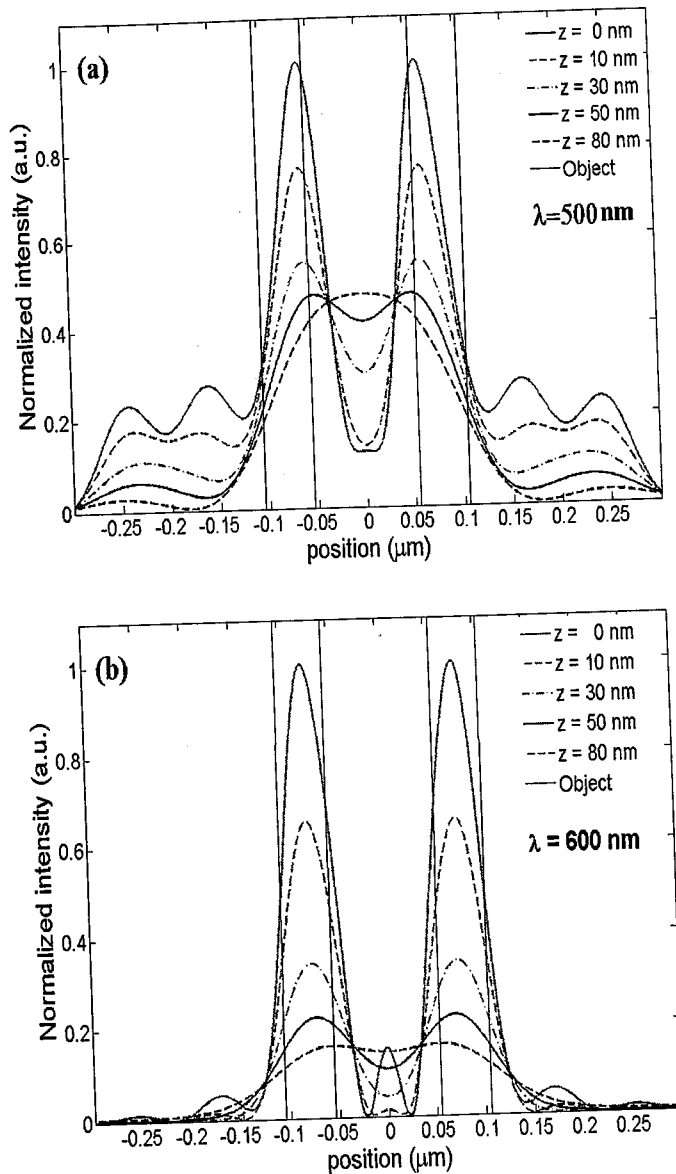


图 5-5 非匹配超透镜分别在距透镜出射面 0nm, 10nm, 30nm, 50nm 和 80nm 处的成像结果对比。物体是 50nm 的线宽, 中心间距为 160nm 的双缝。(a) 入射光源为 500 nm, (b) 入射光源为 600 nm。

5.3.3 非匹配超透镜对双缝的成像特性

现在讨论非匹配超透镜对双缝的成像特点。首先讨论一组固定线宽, 不同中心间距的双缝情况, 如图 5-6 所示。线宽为 50nm, 中心距分别为 (a) 220nm, (b) 160nm 和 (c) 120nm。作为比较, 没有非匹配超透镜的成像结果在同一个像面位置上 ($z = 40 \text{ nm}$) 也给出来了。

正如图 5-5 所示, 物体像的强度最大值位置取决于入射光波的波长, 并且其位置和物体的中心位置也并不总是吻合。这种偏差可能会给观测像时传递一些错误的信息, 尽管如此, 仍可明确断定可分辨线对 (偏移值通常小于缝间距的 1/5) 数

量和大概位置的信息。本章中采用了瑞利判据来判定两物点的分辨。两个缝线形中间低谷的强度值与峰值的比值小于 0.81, 就说这两个线源是可分辨的。

首先, 计算结果表明, 可以在宽的工作波长范围内 (从 480nm 到 650nm) 对较大的中心间距 (220nm) 双缝实现超分辨成像。当中心间距为 160nm 时, 像的对比度将下降, 成像范围大约在 500nm 到 633 nm 范围内。从图 5-3 (a) 和 (b) 可以找到其中的原因。而对于中心间距为 120nm 的双缝物体对应的倏逝波不能够有效的恢复。因此, 对于两个接近的双缝线源, 不能很好的分辨仅仅是因为很难对其倏逝波信息进行恢复。

实际上, 对成像频带评估的一个很好方法就是看表面等离子体色散曲线与需要的倏逝波横向波数线相交的位置, 如图 5-3 (a)。例如, 对于中心间距为 220nm 的两个线源, 在 450nm 到 650nm 内成像都能很好的分辨。这和图 5-3 (a) 中两个 SPP 模式之间白点线是一致的。从图 5-3 (a) 也可以得出这样的结论: 对于中心间距越小的双缝, 其对应的成像入射光的范围也越小。

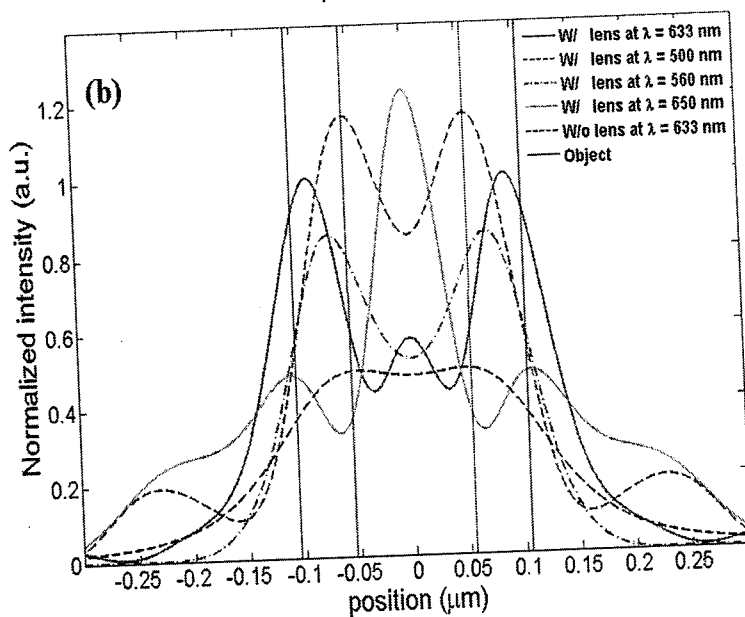
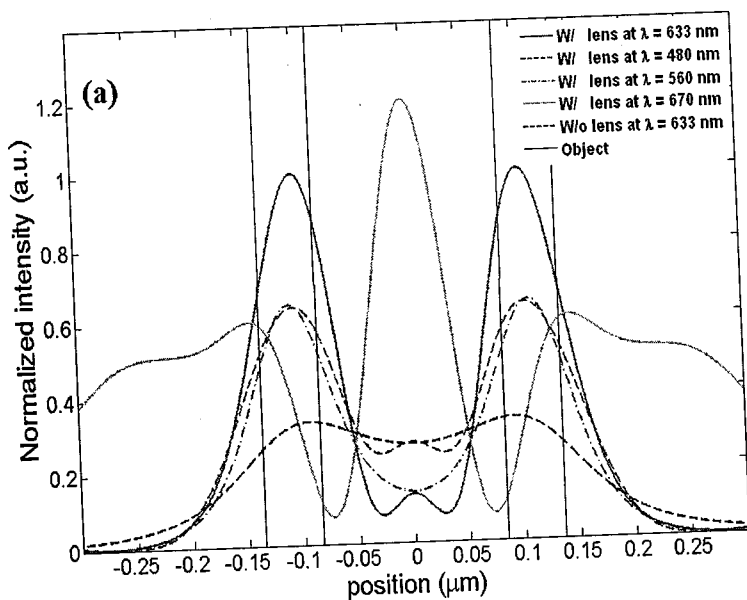
很重要的一点, 仅仅恢复物体的倏逝波信息是不能足够保证实现对物体的超分辨特性。例如, 对于 160nm 间距的双缝物体, 入射光大于 633nm 成像效果明显很差, 与图 5-3 (b) 计算的透过因子是矛盾的。这是由于非匹配超透镜的光传递函数的位相对于超分辨成像也起着重要的作用。通常地, 高质量的成像要求位相偏差相对于光学系统波前小于 $\pi/2$ 。图 5-3 (c) 表明对于 650nm 入射光, 位相调制在 $4k_0$ 附近偏差很大, 这将在本章后面详细讨论。

图 5-6 中一个明显的现象是像的强度最大值位置与物体中心位置有一定的偏差。这是由于两个邻近物体的相互影响造成的。通常, 像的最大强度值的位置和物体中心位置并不是严格的吻合。但是位置偏移效应在近场成像这里似乎很明显, 最大值达到 20nm 之多。可以认为, 大的位置偏差是由于透镜的光学传递函数并不是完美造成的。如图 5-3 (b) 所示, 对于物体的空间信息, 非匹配超透镜并不能给出统一的透过能力。物体的倏逝波信息虽然是被有效的恢复了, 但是一种过于放大的行为。所有这些因素都导致了物体成像的变形, 例如大的旁瓣和强度峰的位置出现偏差的肥大的主瓣线形轮廓。

对于图 5-6 (a) 中较大的中心间距的双缝, 这种偏差效应就不是那么明显了。当物体成像的特征 (对于一些波长和线对来说像的对比度变差) 变差时, 偏差效果也就变得明显起来。一般地, 对于不同的物体其偏移趋势不是固定不变的。比如, 对于图 5-6 (a) 和 (b) 中 633nm 光源对双缝的成像。但是当像面位置移动后, 像的偏移会有轻微的变化 (如图 5-5 所示)。可以相信, 在近场改变像面位置的影

响主要是使得像变宽和减低可见度，对物体整个像的特征轮廓影响并不是很大。

对双缝成像的另外一个比较重要的现象，就是在物体的两个主峰的中间有一个额外的最大值，就像一个肿包一样，称之为“赝象”。类似于像的强度最大值位置的偏移，出现的这个额外的最大值可能是因为倏逝波振幅和位相的不完美传递造成的。作为一个假象，额外的强度最大值不会很大以至于影响到对两个双缝线源的分辨。



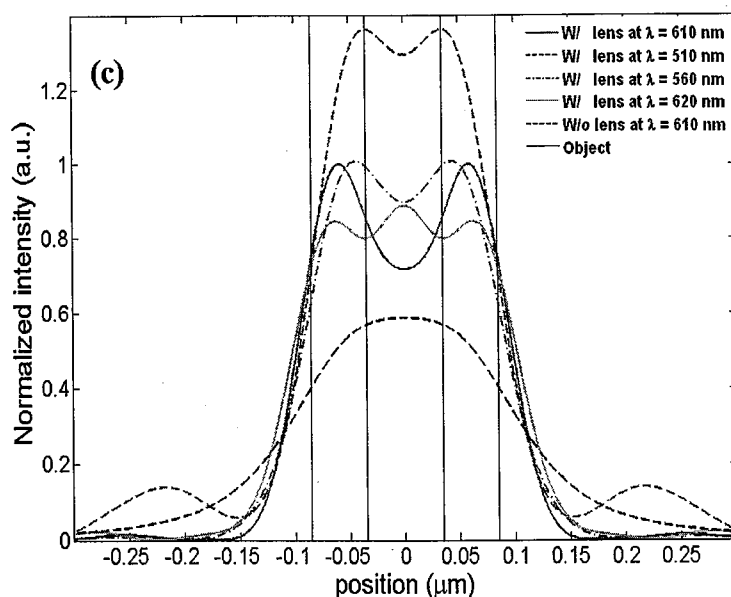
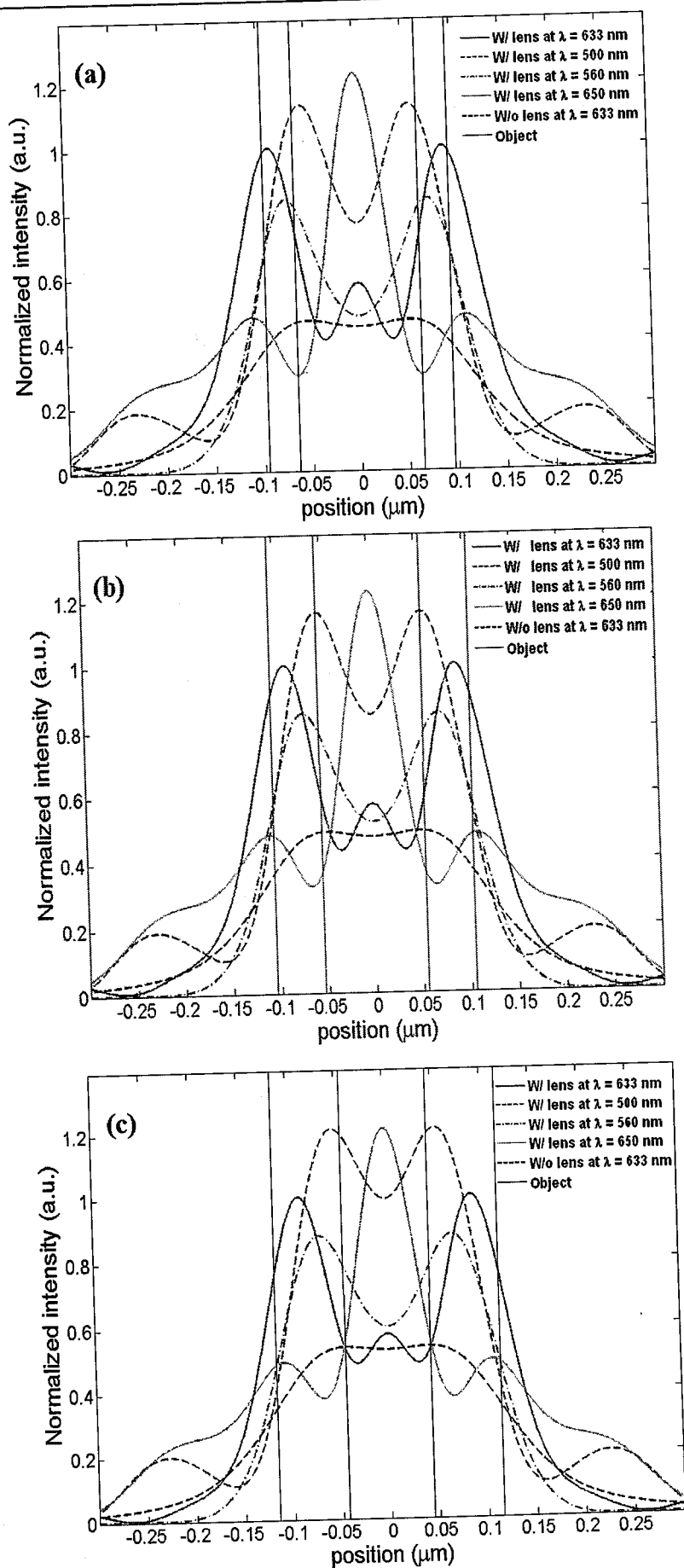


图 5-6 非匹配超透镜在不同波长的成像，在自由空间中的传播也给出加以比较。双缝线源线宽 50nm，中心间距分别为 (a) 220nm，(b) 160nm，(c) 120nm。

最后分析双缝的线宽对超分辨成像的影响。图 5-7 给出了分别在 500nm，560nm，633nm，650nm 的入射波长下，通过非匹配超透镜对三种不同线宽物体的像。这三种物体的线条宽度分别为 (a) 30nm，(b) 50nm 和 (c) 70nm，两个双缝的中心间距都是 160nm。

从这种成像行为中可以看出，当减少双缝中心间距时，像的轮廓仍然保持不变，所以双缝依然能够分辨，具有接近的对比度和类似的成像光波范围。由于非匹配超透镜的有限传输能力，使具有较大横向波矢的倏逝波不能参与成像过程。但是当双缝的线宽很大时，以至于每个单缝的像之间交叠时使得在某些波长下不能分辨这对双缝物体（如图 5-7 (d) 中所示）。也由于相同的原因（单缝之间的），像的强度最大值位置的相对偏移变得更大。这也暗示着物体的精细结构会因为远远超过透镜的最大分辨能力而变得模糊不清。



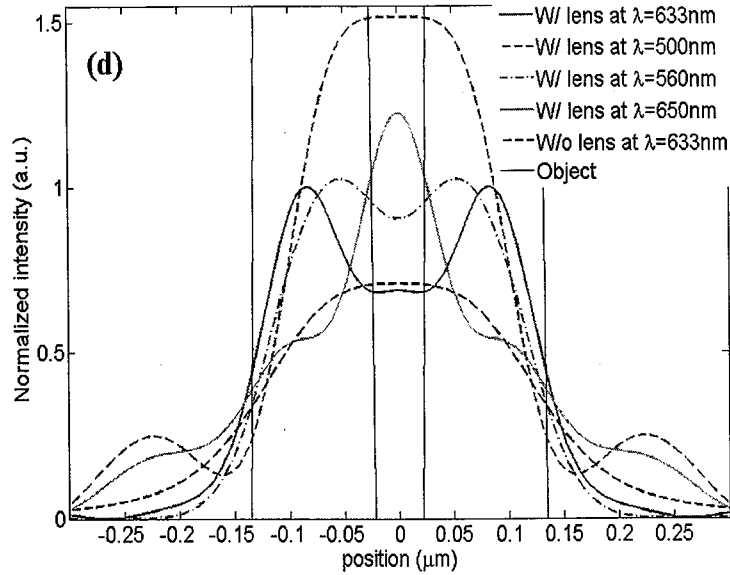


图 5-7 在四个不同入射光波情况下 (500nm, 560nm, 633nm 和 650nm), 非匹配超透镜的超分辨成像与在自由空间传播成像结果比较。双缝的中心间距是 160nm, 单缝线宽分别为 (a) 30nm, (b) 50nm, (c) 70nm 和 (d) 110nm。

最后值得注意的是, 成像的频率范围主要由两个表面等离子体色散曲线决定的。所以, 对于一个介质-金属-介质结构的非匹配超透镜来说, 固定其总厚度, 将其划分成很多个非匹配超透镜, 分层越多, 每对非匹配超透镜的厚度越小, 成像效果越好而且成像范围也越宽。然而, 这也会给加工工艺和实际应用中带来巨大挑战。

5.3.4 非匹配超透镜的相位调节对超分辨成像的影响

这里将讨论这种非匹配超透镜的相位和透射因子对超分辨成像的影响。如图 5-8 (a) ~ (d) 所示, 物体是图 5-6 (b) 中的双缝, 入射光波分别为 670nm 和 700nm 的 p 偏振光。图 5-8 (a) 和 (c) 是在入射光波长为 670 和 700 nm 的初始的 (红色) 和调制的 (蓝色) 相位曲线。相应地, 在图 5-8 (b) 和 (d) 中, 分别计算了在自由空间中对该双缝的成像、是否通过相位抑制的成像。从图 5-8 (a) 和 (b) 中不难看到, 透过该非匹配超透镜后, 物体的倏逝波部分具有微小的相位偏差, 但其仍然可以在自由空间中很好的传递可分辨的双缝图像。图 5-8 (c) 和 (d) 中的红色曲线, 由于较小范围的增强倏逝波限制了超分辨的成像, 即使相位得到了合适的调制, 仍然无法实现该双缝物体的超分辨成像。这些都明确的表明了位相和透过因子在上述超分辨成像系统中的作用。

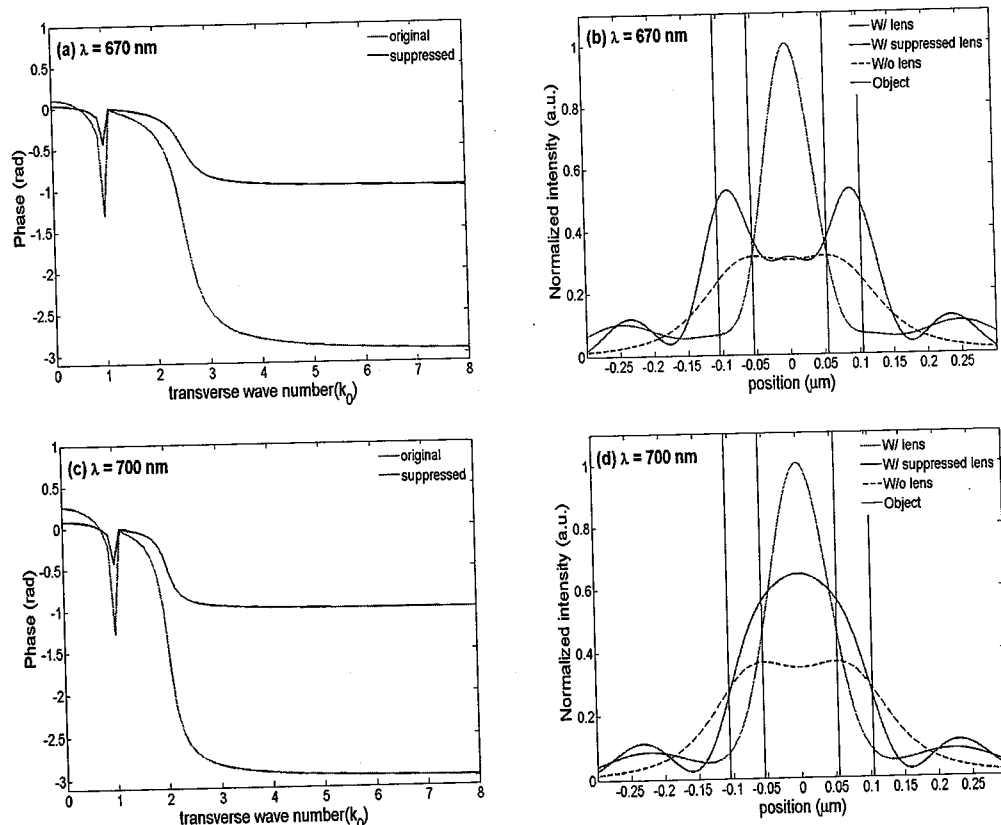


图 5-8 对线宽为 50nm，中心间距为 160nm 的双缝在 (a) 670nm 和 (c) 700nm 的入射光下的初始相位 (红色) 和调制相位 (蓝色)。(b) 和 (d) 是分别对应的在自由空间中的像以及利用非匹配超透镜的有相位调制和无相位调制得成像结果。

5.3.5 非匹配超透镜的宽波段超分辨成像光刻特性

上面研究了非匹配超透镜的宽波段的超分辨成像的特性，可以看到这种非匹配超透镜和 Pendry 教授提出的超透镜如出一辙，可以应用到超分辨成像光刻上。为了证明这点，理论上模拟了这种非匹配超透镜在宽波段内的一对一成像光刻特性。

如图 5-9 所示的成像光刻结构，以金属铬为掩模，周期为 160nm，线宽 80nm，厚度 40nm。掩模下面紧贴着设计好的非匹配超透镜，即 SiC(15nm)/Au(22nm)/SiC(15nm)，为了说明非匹配超透镜的宽波段成像光刻，简单起见，假定周围都是空气。

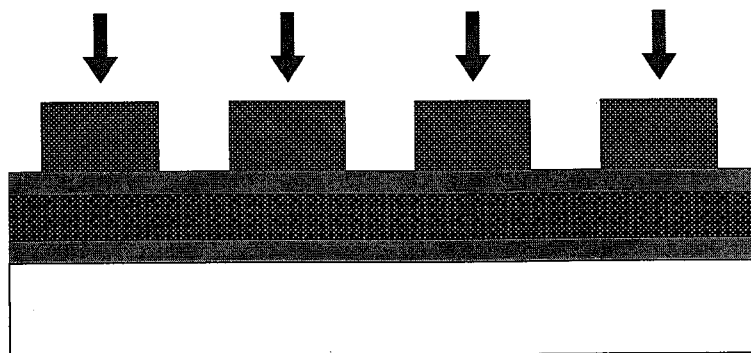


图 5-9 非匹配超透镜的成像光刻结构示意图

由图 5-3 (a) 超透镜的光学传递函数特性和上面的讨论可知,设计的非匹配超透镜将在 480~633nm 范围内可对周期为 160nm 的掩模实现一对一的成像光刻,对于不同的入射光而言,形成的干涉条纹的对比度不同。运用 FDTD 方法(计算时, x 方向边界条件是完美导体, z 方向的边界条件是完美匹配层。 x 和 z 方向的网格均为 0.5nm)分别对 p 偏振的入射光 (a) 500nm、(b) 560nm、(c) 600nm 和 (d) 633nm 照射时进行了模拟研究,其总的电场分布图如图 5-10 所示。四种情况下的距离非匹配超透镜下面 40nm 平面处形成的成像条纹的电场强度分布在图 5-11 给出。明显看到,这种非匹配超透镜能够在宽波段内(500~633nm)实现超分辨的一对一的光刻,与图 5-3 (b) 和 (c) 所示的光学传递函数表明的成像特性完全吻合。最低的对比度是 0.402,完全满足光刻的最低要求(正胶:~0.4,负胶:~0.2)。

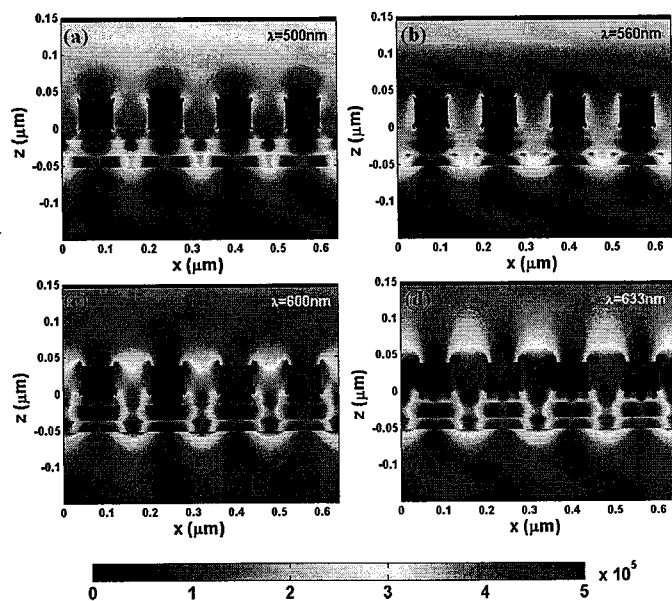


图 5-10 计算总的电场强度分布,掩模周期为 160nm,对应的 p 偏振入射光波长分别为 (a) 500nm, (b) 560nm, (c) 600nm 和 (d) 633nm。

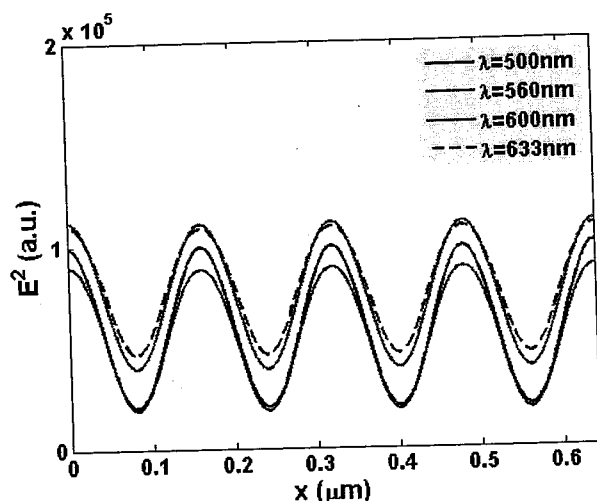


图 5-11 非匹配超透镜下面 40nm 处在不同入射光波长下的成像条纹的电场强度分布。

5.4 非匹配超透镜在莫尔效应中的应用

5.4.1 莫尔效应

莫尔条纹是由两组（或多组）一定排列规律的几何线性族的叠合产生，莫尔技术在光学计量、应力分析、三维形体测量、光学元件检测等方面具有广泛的应用。随着纳米材料制备技术的飞速发展，涌现出各种各样新颖的纳米材料、结构和器件，因而也需要发展相应的纳米检测技术和纳米测量手段。当今纳米科技的发展对纳米尺度范围的检测提出了很高的要求，为此研究了针对亚波长结构光栅的莫尔效应。

莫尔效应是当两个周期性的或准周期图案的重叠时发生的光学现象[16-18]，如图 5-12 所示。傅立叶理论的“混频”模型能够很好的解释这个效应[19]。频谱分析原理认为莫尔现象是在非相干光照明下光栅副调制光场中的一种节拍现象，可以用低于系统的原始节拍(即光栅空间节拍)的信息来解释。单块线形光栅是一种典型的周期结构的矩形光栅，其调制光场可以进行傅氏变换，即把光栅的振幅调制函数（或振幅透过率函数）分解为具有不同空间频率的三角函数基元；研究每个基元对于平行光场的作用，再根据线形叠加原理，综合个基元作用的线形和，便可得到矩形光栅的调制光场。

两个光栅之间微小的错位将会使产生很大的莫尔条纹角，所以基于莫尔效应的技术有很大的应用空间，如光学度量和光学对准 [16-26]。

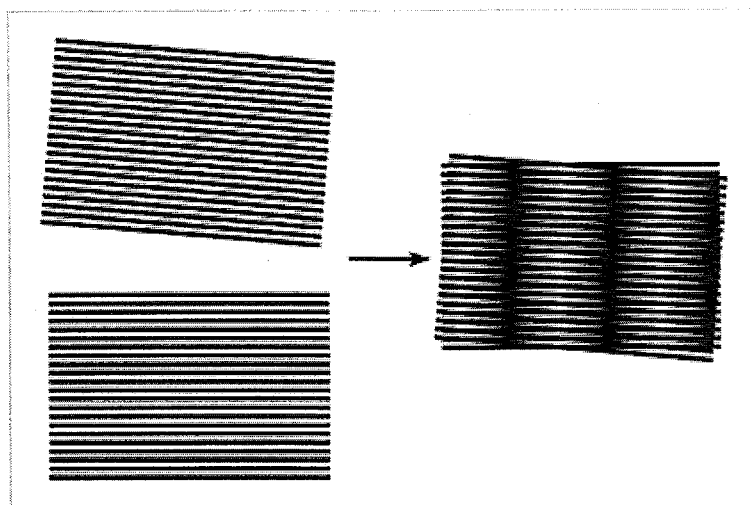


图 5-12 两个光栅叠加产生莫尔条纹示意图

一般的，简单考虑两个相互重叠的一维周期性光栅，它们朝同一个方向放置，两个光栅的周期分别为 d_1 和 d_2 。在平面波的照射下，衍射模式满足光栅方程：

$$\vec{k}_{diff}^{(m,p)} = \vec{k}_{inc} + m \frac{\lambda}{d_1} \vec{k}_0 + p \frac{\lambda}{d_2} \vec{k}_0 \quad (5.1)$$

其中 \vec{k}_{inc} 和 $\vec{k}_{diff}^{(m,p)}$ 分别是入射横向波矢和衍射横向波矢， m 和 p 分别是第一个和第二个光栅的衍射级次。当传播波至少包含两个光栅的信息时（例如： $k_{diff}^{(m,p)} < n_1 k_0$ ， $|m|$ 和 $|p| \geq 1$ ， n_1 是包围两光栅系统介质的折射率）才能够在远场观察到莫尔条纹。

众所周知，在传统的远场莫尔效应中，由于两个光栅的间距很大（通常远大于波长），倏逝波在远离光栅表面时衰减的很快，绝大部分只有传播波对莫尔条纹有贡献。因此，一般情况下，光栅的周期不能小于照明光的波长。

2007年，美国加州大学伯克利分校的 Liu et al. [27] 报道了一个对亚波长结构实现提高莫尔条纹可见度的方法。该方法利用了 superlens 原理[1, 5]，将一块 35nm 厚的金属银膜超透镜放置在两个亚波长光栅中间，利用 superlens 对倏逝波的增强作用，使增强的倏逝波参与到莫尔效应中，其结果得到了实验的证实。这种 superlens 满足 $|\varepsilon_m| \approx |\varepsilon_d|$ 条件，其中 ε_m 和 ε_d 分别代表金属和介质的介电常数。在这种情况下，倏逝波在很大的频域范围内得到和表面等离子体耦合并发生共振。Deng et al. [28] 详细讨论了亚波长光栅的几何尺寸对莫尔条纹的对比度的影响。

提出另外一种提高亚波长光栅产生的莫尔条纹可见度的方法。该方法利用非匹配超透镜[29]取代了超透镜。关于非匹配超透镜，这里简要的介绍一下它的特性。金属和介质组成的非匹配超透镜取合适的厚度将会弥补由于它们之间介电常数不匹配造成的不足，同样也可以像超透镜那样实现对物体的高频信息（即倏逝波成分）的强度起到增强效果。和超透镜一样，非匹配超透镜的上下两个表面同样存

在两个表面等离子体模式。随着金属层厚度的增加，传播波的透过振幅将会因为金属的吸收损耗而减弱。由于不受材料（诸如超透镜必须满足金属与介电常数匹配）的限制，这种非匹配超透镜将能够拓展到很多基于莫尔效应的实际应用中去。

5.4.2 非匹配超透镜的莫尔效应

在两个亚波长光栅中间放置一个合适的非匹配超透镜（如图 5-13 (a)），就能够获得可见度增强的莫尔条纹。一个 KF/Ag/KF 三层膜作为一个超透镜，包围在 PMMA ($n=1.5$) 中。铬光栅和银光栅分别用作第一个和第二个光栅。运用改进的传输矩阵方法[13]，计算了包围在 PMMA 内的 KF/Ag/KF 超透镜在 p 偏振光的照射时的磁场振幅透过因子(取对数)，如图 5-13 (b)，(c) 和 (d)。用 Drude 模型 $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty - \omega_p^2 / [\omega(\omega + iV_c)]$ 来描述铬和银的介电常数，其中对于铬来说， $\varepsilon_\infty = 3.2$ ， $\omega_p = 2.2 \times 10^{16}$ rad/s 和 $V_c = 3.8 \times 10^{15}$ rad/s 而对于银而言， $\varepsilon_\infty = 6.0$ ， $\omega_p = 1.5 \times 10^{16}$ rad/s 和 $V_c = 7.73 \times 10^{13}$ rad/s。介质 KF 的介电常数可参考文献[14]。

图 5-13 (b) 是对于一个半周期为 60nm 的物体在 376nm 的 p 偏振光入射情况下，当单个 KF 介质厚度固定在 10nm 时，改变银层薄膜的厚度时其对应的最佳振幅透过因子值。可以看到，由于表面等离子体的激发，金属银层的最佳厚度在 45nm 左右，当金属银层超过 50nm 后，增强的透过因子将会由于金属内部的吸收而迅速衰减。作为一个例子，选择一个 KF/Ag/KF (10/45/10 nm) 超透镜层在 376nm 的 p 偏振光照射，金属银和介质 KF 的介电常数不匹配 ($\varepsilon_{Ag} = -2.9506 + 0.1380i$ 和 $\varepsilon_{KF} = 1.8791$)。图 5-13 (c) 显示了在光波段 (300nm ~ 600nm) 范围内的色散关系。在 376nm 的 p 偏振光照射下，这个非匹配超透镜包括 35nm 厚的 PMMA 的透过振幅如图 5-13 (d) 所示。可以清晰的看到，被第一个光栅衍射的倏逝波能够和激发的表面等离子体耦合并有效的透过不匹配超透镜。传播波被抑制而增强的倏逝波到达第二块光栅时被其耦合成传播波，于是得到了条纹可见度得到增强的莫尔条纹。

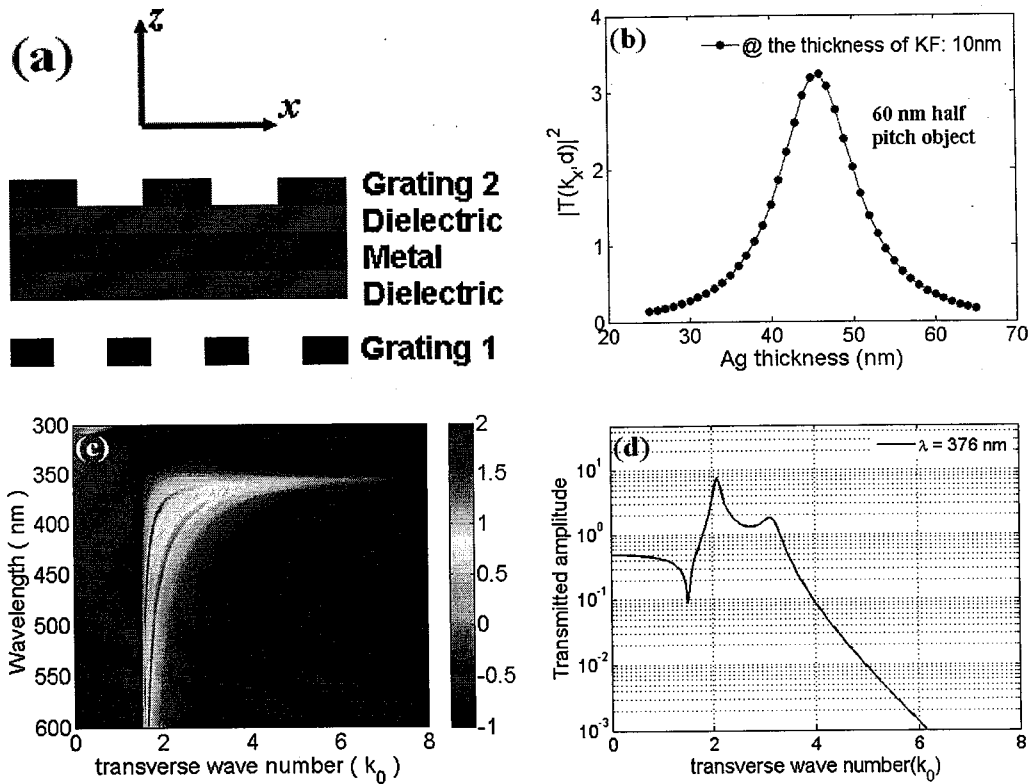


图 5-13 (a) 非匹配超透镜参与的莫尔效应结构示意图；(b) 固定介质 KF 厚度 10nm，金属 Ag 膜的厚度与透过因子的关系；(c) KF(10nm)/Ag(45nm)/KF(10nm) 的超透镜的色散关系（图中颜色代表透过因子，取对数）；(d) 在 376nm 的 p 偏振光下该非匹配超透镜的透过因子与波数的关系。

结构确定后，运用时域有限差分方法 (FDTD) 对其进行数值模拟。第一个和第二个光栅周期分别是 120nm 和 150nm，其厚度分别是 40nm 和 35nm。模拟尺寸面积是 $6 \times 1.2 \mu\text{m}^2$ 。 x 方向采用完美电导体边界条件， z 方向采用完美匹配层条件， x 和 z 方向的网格大小均为 3nm。由于磁场 (H_y) 和电场 (E_x, E_z) 的分布反映的情况是一致的，方便起见，采用磁场方向的分布。图 5-14 (a) 是单独两块光栅，间距 100nm 情况的结构图。在 376nm 的 p 偏振入射光下，其对应的磁场振幅分布如图 5-14 (e) 所示。由于两个光栅都是亚波长尺寸且间距过大，第一个 Cr 光栅产生的倏逝波振幅在远离光栅时迅速呈指数衰减，到达第二个光栅后第一个光栅的高频衍射级次的倏逝波未能参与到干涉，所以没有莫尔条纹产生 (公式 5.1)。图 5-14 (b) 是当把第二个光栅移动到与第一个光栅相距 35nm 时的情况。由于达到第二个光栅时，第一个光栅产生的倏逝波没有完全衰减，有很微弱可见度 (0.18) 的莫尔条纹产生，如图 5-14 (f) 所示。图 5-14 (c) 中，将上述设计好的非匹配超透镜放置在两个光栅之间，第一个光栅的出射面与这个非匹配超透镜的入射面的距离为 35nm，由于超透镜对第一个光栅的倏逝波的增强作用，高可见度的莫尔条纹 (0.88) 就能产生，如图 5-14 (g) 所示，产生的莫尔条纹的周期正如预期的

600nm。为了证实增强效应是由于超透镜表面等离子体的缘故，对于图 5-14 (c) 的结构改用 p 偏振光照射，结果没有任何的条纹产生 (图 5-14 (h) 所示)，这就证明了只有 p 偏振光能够在金属和介质界面耦合 SPPs 来增强倏逝波以得到高对比度的莫尔条纹。

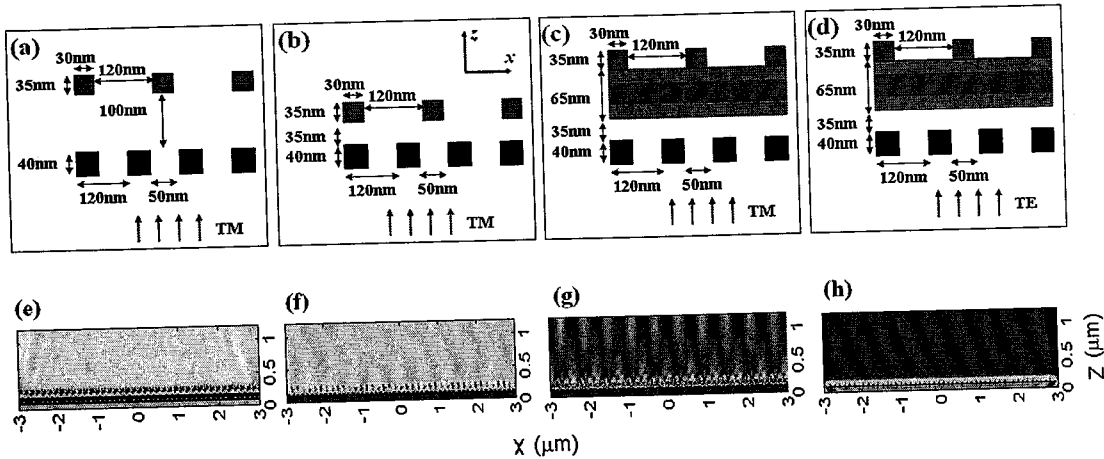


图 5-14 非匹配超透镜参与的莫尔效应的结构图与数值模拟结果。两个光栅的分别为 Cr (周期 120nm, 厚度 40nm, 线宽 70nm) 和 Ag (周期为 150nm, 厚度 35nm, 线宽 30nm)。 (a) : 两个光栅间距 100nm; (b) : 两个光栅间距 35nm; (c) : 加入非匹配超透镜, 第一个光栅与超透镜间距 35nm; (d) : 同结构 (c), 采用 TE 偏振光。 (e) ~ (f) 是对应于结构 (a) ~ (d) 的数值模拟结果。

为了找到第二个光栅最佳的尺寸——厚度和占空比，类似上面图 5-14 (c) 的情况，模拟了 (1) 固定占空比 0.2, 改变光栅的厚度从 15nm 到 85nm, 每隔 5nm 计算一次，可以看到图 5-15 (a) 显示当银光栅的厚度在 35nm 附近时，条纹的可见度最佳; (2) 固定第二个银光栅厚度 35nm, 改变金属占空比从 0.1 到 0.9, 每隔 0.1 计算一次。作为比较，没有用非匹配超透镜的情况也计算了，分别如图 5-15 (a) 和 (b) 的蓝色实心圆和红色三角形所示，可见第二个光栅的厚度为 35nm 和占空比为 0.2 时得到的条纹对比度最佳。也如预期的结果，不用超透镜的情况得到的条纹其对比度要远远低于利用超透镜的增强效应。

最后有必要指出，为了获得显著增强的莫尔条纹，选择合适厚度的非匹配超透镜，和第二个光栅得厚度以及占空比一样都很重要。



图 5-15 不同尺寸的第二个光栅获得的莫尔条纹的对比度。(a) 固定占空比 0.2, 不同的厚度; (b) 固定第二个光栅的厚度 35nm, 改变其占空比。

5.5 本章小结

首次提出非匹配超透镜的结构, 利用自己编写的程序完成了非匹配超透镜的超分辨成像, 分析了具有合适厚度的非匹配超透镜在较宽的波长范围内进行超分辨光学成像。最佳的金属厚度和介质厚度进行组合后所形成的非匹配超透镜可以对金属与介质的介电常数不匹配时所引起的成像缺点进行补偿。成像光刻的质量和频率范围主要由两种表面等离子体模式和倏逝波的传播波矢的幅度和相位调制所共同决定的。讨论了线宽和线条间隔对成像的影响。非匹配超透镜在材料选择的灵活性和宽波段实现超分辨的优点将使得其可以广泛应用于亚波长成像光刻, 生物传感等领域。

利用非匹配超透镜对倏逝波的增强作用, 讨论了非匹配超透镜在莫尔效应中的应用, 对亚波长结构的周期光栅进行面形检测等诸多领域中将有很大的应用潜力。

第6章 结束语以及对未来工作的展望

突破衍射极限, 不断提高超分辨光学成像的分辨率一直是光学工程师们致力于研究的方向。随着科学技术的不断发展, 人们渴求不断提高对微观世界的认知能力, 诸如对微纳结构的观测与表征, 在生物学领域内对微生物及更小结构单元的实时动态观测等等, 都需要突破传统的衍射极限。基于表面等离子体的超分辨光学成像技术为这一目标提供了必要的技术支持。

随着微电子及半导体产业的不断发展, 更高分辨率的纳米光刻技术显得日益重要。基于表面等离子体的干涉光刻 (Plasmonic Interference Lithography) 技术为获得亚波长甚至更小的纳米尺寸结构提供了潜在的手段。

本文深利用表面等离子体的超衍射特性, 在严格的矢量光学理论和表面等离子体光学基础上, 开展了超分辨光学成像和超分辨光刻的相关研究。论文的主要创新点归纳如下:

6.1 论文的主要创新点

1. 发展了金属-介质多层膜表面等离子体光刻技术, 利用金属-介质多层膜的滤波特性, 设计针对 193nm 光源的多层膜器件, 保证掩模的某一衍射级次频率的光波透过并发生表面等离子体干涉。理论上实现了线宽突破 22nm、甚至 16nm ($\lambda/12$) 节点的干涉图样, 这一节点指标是下一代光刻技术的重要目标之一。
2. 设计了一种基于表面等离子体共振的金属光栅异质波导结构, 利用 436nm 光源, 可以实现深亚波长 ($\sim\lambda/17$) 的光刻图形。这种光刻技术不仅具有分辨率优势, 也能实现高对比度和深度的干涉图形, 而且无需复杂和昂贵的实验设备, 这种方法对促进纳米科技发展、微电子及半导体制造具有一定的积极作用。
3. 首次提出非匹配超透镜结构, 通过设计超透镜的合理厚度来弥补由于金属与介质之间的介电常数不匹配带来的成像缺陷, 非匹配超透镜在材料选择上更加灵活。可以利用该非匹配超透镜来实现宽波段的超分辨成像光刻以及在亚波长结构的莫尔技术中的应用。

6.2 对未来工作的展望:

表面等离子体波的超衍射特性引发了研究人员的极大兴趣,并开始不断向其他相关领域交叉渗透,致使相关学科领域的迅速发展,将给现代学科与技术带来深远的革命性影响。

由于时间和条件所限,本论文只能通过理论分析和数值模拟来开展相关的超分辨成像与光刻研究,从严格矢量衍射理论和傅立叶光学出发,针对表面等离子体波,研究了多层膜结构的透射能力及其在超分辨光学成像与光刻方面的应用。作者希望本论文关于提高光刻分辨能力的多层膜干涉光刻技术和金属光栅-介质-金属波导共振干涉光刻技术,能为光学光刻技术(特别是半导体器件制造)的发展和應用起到积极的推动作用。作为今后进一步的研究工作,作者认为可以在以下几个方面进行深入的研究与改善:

- 寻找新的复合结构以实现表面等离子体超分辨干涉光刻图形技术。
- 将表面等离子体超分辨光学成像技术与生物分子学、化学等学科相结合,实现对细胞、微生物等纳米尺度的微小结构的动态行为进行实时观测。
- 对分辨率的不断追求,表面等离子体器件的制作面临着相应加工技术的挑战。因此,如何降低相关等离子体器件的加工难度也需要进一步的研究与改善。