

太赫兹波在亚波长随机金属 Al 颗粒中的相干传播*

陈 华^{1,2)†} 汪 力¹⁾

1) 中国科学院物理研究所光物理实验室, 北京 100190)

2) 东南大学物理系, 南京 211189)

(2009 年 2 月 26 日收到, 2009 年 3 月 27 日收到修改稿)

本文报道亚波长特征尺寸的随机金属颗粒体系由于表面等离子体效应, 在太赫兹(THz)电磁波段出现的异常透射现象. 通过 THz 时域光谱实验测量, 发现 THz 波的透射强度不仅随着金属颗粒体系的厚度减小, 而且当颗粒体系的横向尺寸大于 THz 光斑时, 透射强度会随着体系横向尺寸的增大而减小, 并伴随着透射时间的延迟. 同时发现, 入射 THz 电磁场在导电粒子体系中激发的表面等离子波主要沿着体系的边界传播.

关键词: 太赫兹电磁波, 金属颗粒, 表面等离子体

PACC: 4225B, 5240D, 7830

1. 引 言

表面等离子体是金属表面自由电子和电磁波相互耦合形成的一种电磁振荡, 并能沿着金属表面传播. 在亚波长导电粒子体系中, 存在局域态和非局域态两种表面等离子体, 前者能够储存电磁波能量, 而后者能传播能量^[1,2]. Stockman 等^[3,4]从理论上证明了两种形态可以同时存在表面等离子体中, Chau 等^[5-8]在实验中观察到了太赫兹(THz)波在金属粒子中由于非局域的表面等离子体效应的相干传播及透射增强现象, 在早期 Grésillon 等也在近场探测中观察到了局域态的等离子体效应^[9,10]. 根据德努特原理, 在 THz 波段, 金属 Al 在 1 THz 的介电常数实部 $\epsilon_r = -3.3 \times 10^4$, 虚部 $\epsilon_i = 6.4 \times 10^{11}$, 当金属受到 THz 波的激发后, 在金属和空气的界面, 激发的金属自由电子随着 THz 电磁波产生共振, 从而形成表面金属等离子体波. 在一个金属颗粒体系中, 表面等离子体波通过近场效应在金属颗粒之间传播, 并且可以穿过金属粒子体系再次辐射到自由空间, 即通常所说的由金属等离子体引起的异常透射现象. Chau 等^[5]首先在 THz 波段观察到了这个现象. 他们发现随着样品厚度 L 的变化, 透射信号会以 $1/L$ 的关系衰减, 并模拟计算了 THz 波在亚波长金属粒子

体系中传播过程. 在此基础上, 我们发现当金属粒子体系的横向尺寸大于 THz 波的激发范围时, 金属表面等离子体的横向传播效应的存在, 以及对透射信号强度和透射时间的影响.

2. 实验装置及样品制备

由于大部分金属在 THz 波段是良导体, 从而使研究金属粒子的等离子体效应的尺寸从纳米量级延伸到了微米量级. 在 THz 时域光谱实验中, 我们选择的样品是尺寸在 100—130 μm , 形状无规则的金属 Al 颗粒, Al 颗粒的形状如图 1(a)所示, 放置在图 1(b)所示的样品槽中, 金属粒子的占空比为 61%. 采用对 THz 波的吸收很小的高密度聚乙烯作为样品槽的前后窗口材料, 厚度为 2 mm. 两个窗片之间的聚四氟乙烯圆环构成样品槽的侧壁. 为了避免边缘处的衍射信号进入测量系统, 在 THz 的入射面, 我们放置一个半径为 2 mm 金属孔限制 THz 电磁波的入射范围. 实验测量是在中国科学院物理研究所光物理实验室的透射型 THz 时域光谱装置上完成的^[12]. THz 波由掺钛蓝宝石飞秒激光(中心波长为 800 nm, 脉宽为 100 fs, 重复频率为 82 MHz, 平均功率 0.79 W)经过斩波器调制后激发晶面取向为(100)的 InAs 产生. 另一束经分光后的 800 nm 探测光束和通过金属颗粒样品的 THz 波共线入射到晶面取向为

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2007CB310405)和国家自然科学基金重点项目(批准号: 10834015)资助的课题.

† E-mail: chenhu@seu.edu.cn

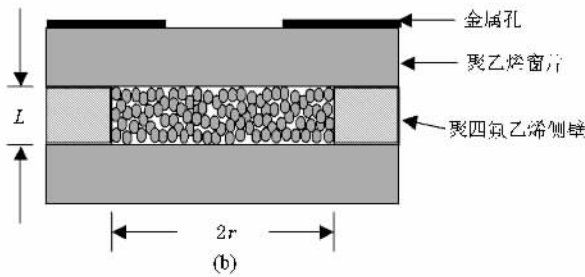
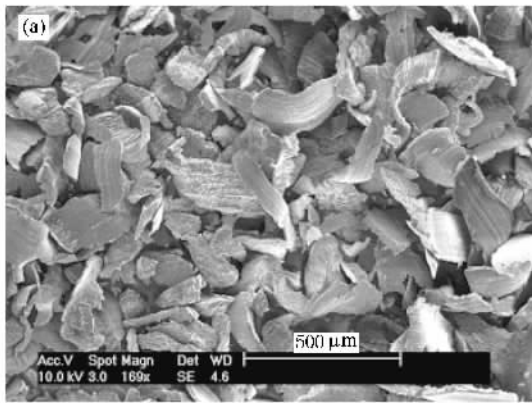


图 1 Al 颗粒的 SEM 图像与样品槽示意图 (a) Al 颗粒的 SEM 扫描图像, (b) 样品槽示意图

(110) 的电光晶体 ZnTe. THz 波的电场通过线性电光效应调制电光晶体 ZnTe 的折射率椭球, 当探测脉冲和 THz 脉冲在时间上重合时, 探测脉冲的偏振态由线偏振变成椭圆偏振, 随后通过 $1/4$ 波片和偏振棱镜检测被调制后的探测脉冲的偏振态, 并扫描 THz 脉冲和探测脉冲的相对时间延迟, 即可得到 THz 脉冲的时域电场波形. 全部 THz 辐射信号的产生和探测部分置于真空室中, 以消除空气中水蒸气对于光谱测量的影响. 经过调制后的探测光信号由平衡二极管测量, 经锁相放大器读出后输入计算机.

3. 结果和讨论

在实验中, 入射 THz 波的光斑半径为 3 mm. 图 2 为两个不同样品尺寸下的 THz 波透射测量结果. 图 2(a) 为样品槽的横向半径为 $r = 1.0$ mm 时, THz 波的透射时域波形, 图 2(b) 为样品槽的横向半径为 $r = 5.0$ mm 时的透射时域波形. 亚波长的金属颗粒受到 THz 波的辐射时, 在金属和空气界面, 激发的金属自由电子和 THz 波产生共振, 形成等离子体波. 等离子体波在金属颗粒之间通过特殊的近场耦合模式传递能量^[5], 在金属颗粒体系的另一界面, 这种表面等离子体振荡再次耦合到自由空间. 很明显, 随着

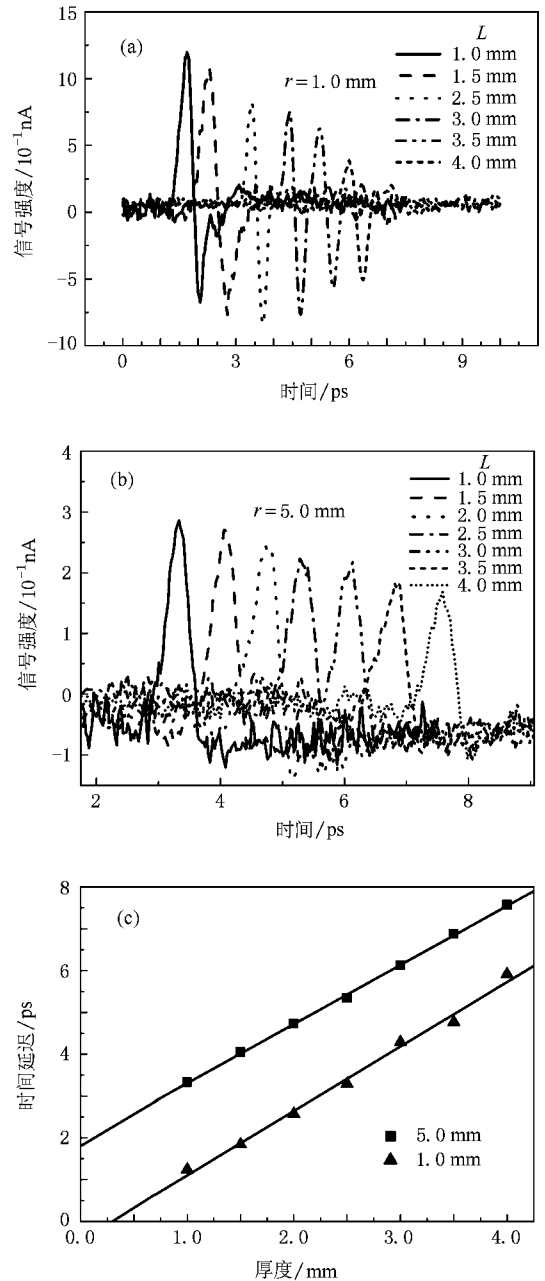


图 2 两种横向尺寸下 THz 波的透射振幅随样品厚度的变化 (a) $r = 1.0$ mm, (b) $r = 5.0$ mm, (c) 透射脉冲时间延迟

金属颗粒体系厚度的增大, 电磁波在体系中传播的损耗增加, 相应测量到的信号强度随之减小. 由于金属颗粒形状的不规则, 导致测量的时域信号的噪声严重. 相对于正常的 THz 透射光谱, 实验数据的信噪比明显偏低. 但是, 实验结果仍然可以反映电磁波在随机金属颗粒体系中的传播过程. 这里, 测量得到的时域波形和入射场波形具有高度的相似性, 所以电磁波在亚波长金属颗粒中的传播机制并非传统随机介质中发生的多次散射过程. 从图 2(c) 中 THz 波

透射信号在不同横向半径下随样品厚度 L 的时间延迟可以看出,当金属粒子体系为相同厚度不同横向半径时,半径大的体系对 THz 波有更显著的时间延迟.这表明 THz 波在金属表面不仅在透射方向上能够耦合传播,在横向也有传播.

为了考察金属表面等离子体波的横向传播对 THz 波透射信号的影响,固定样品槽的厚度 L 为 0.5 mm 不变,对 THz 波在样品槽的半径 r 取不同值时的透射信号进行了测量.如图 3 所示,当 r 由 3.5 mm 增加到 6.0 mm 时,THz 波经过金属粒子体系的透射信号逐渐减小,颗粒体系的半径 r 每增加 0.5 mm,由金属表面等离子体的横向传播效应引起的时间延迟约为 0.025 ps.当入射 THz 波能量集中在金属粒子体系的局部时,金属离子通过表面等离子体波由表面将能量传到整个体系,达到一个能量分布平衡,然后金属把能量辐射出去^[13,14].这个观察到的延迟时间可以理解为这个瞬态的能量分布时间.根据图 3 的数据,由 $\int |E(t)|^2 dt$ 可以计算出 THz 波经过不同半径的金属粒子体系后的能量值,如图 4 所示.通过简单的数据拟合,我们发现透射能量以幂指数形式衰减,从而说明了横向传播的表面等离子体波是以近场即隐失波的形式传播^[15].

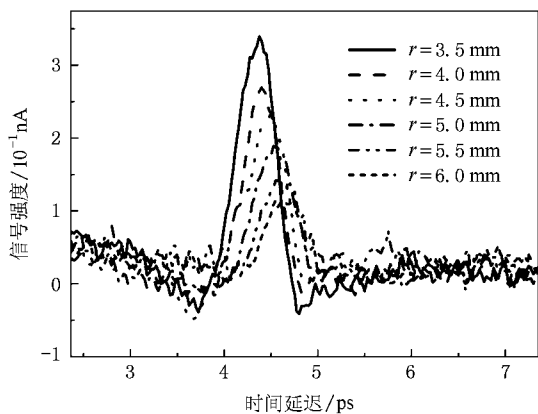


图 3 厚度为 0.5 mm 的金属颗粒体系中,THz 波透射振幅随样品半径的改变

为了进一步确认电磁波在金属粒子体系中的传播方式,我们用一个略小于金属粒子体系横向尺寸的金属 Al 片贴在样品槽的出射面(聚乙烯窗口外表面).此时,样品槽的半径 $r = 5$ mm,厚度 $d = 0.5$ mm,金属 Al 片的半径 $r = 4.0$ mm,厚度 $d = 0.5$ mm.由于 THz 电磁波能量是不能透过厚度为 0.5 mm 的金属 Al 片(THz 光在 Al 中的穿透深度为 50—100 nm

左右),用略小于出光孔径的金属 Al 片挡住出射孔后,THz 波在体系中的传播如果类似于通常的透射过程,在远场探测的 THz 波信号应当明显减小.但是 THz 信号的波形和时间延迟基本没有变化,如图 5 所示.这启示我们:通过金属粒子耦合的电磁波是沿着整个体系的边界类似于波导的方式传播并辐射到远场的.

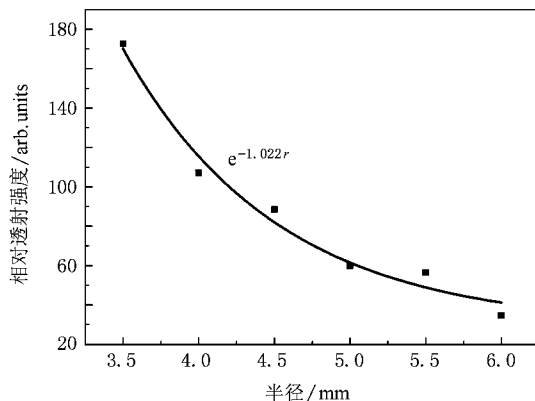


图 4 THz 波透射能量随样品半径的变化,实线为拟合结果

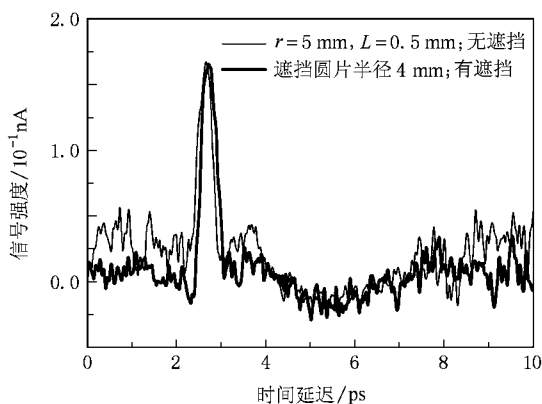


图 5 用略小于样品体系尺寸的金属 Al 片挡住出射面后,探测到的 THz 振幅,以及和没有金属 Al 片时测量结果的比较

4. 结 论

通过 THz 时域光谱测量,观察到了两种表面等离子体态的相互作用及对透射增强效应的影响.在 THz 波激发的金属离子区域和未被激发的区域之间,通过非局域态的表面等离子体以近场方式相互传递能量.在由随机排布的亚波长尺寸金属颗粒组成的圆片状体系中,等离子体波的能量主要是沿着样品槽的边界传播.具体的传播机制和细节有待进一步的研究.

- [1] Gu Y , Gong Q H 2004 *Phys. Rev. B* **69** 035105
- [2] Apalkov V M , Raikh M E , Shapiro B 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 066601
- [3] Stockman M , Faleev S , Bergman D 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 167401
- [4] Stockman M I , Pandey L N , Muratov L S , George T F 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2486
- [5] Chau K J , Dice G D , Elezzabi A Y 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 173904
- [6] Chau K J , Elezzabi A Y 2005 *Phys. Rev. B* **72** 075110
- [7] Chau K J , Elezzabi A Y 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 033903
- [8] Chau K J , Elezzabi A Y 2006 *Phys. Rev. B* **73** 085419
- [9] Grésillon S , Aigouy L , Boccara A C , Rivoal J C , Quelin X , Desmarest C , Gadenne P , Shubin V A , Sarychev A K , Shalaev V M 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 4520
- [10] Breit M , Podolskiy V A , Grésillon , Plessen S G , Feldmann J , Rivoal J C , Gadenne P , Sarychev A K , Shalaev V M 2001 *Phys. Rev. B* **64** 125106
- [11] Qu D X , Grischkowsky D , Zhang W L 2004 *Opt. Lett.* **29** 896
- [12] Sun Y M , Xia X X , Feng H , Yang H F , Gu C Z , Wang L 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 221101
- [13] Maier S A , Brongersma M L , Kik P G , Atwater H A 2002 *Phys. Rev. B* **65** 193408
- [14] Maier S A , Kik P G , Atwater H A 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 1714
- [15] Maradudin A , Wallis R , Stegeman G 1983 *Solid State Commun.* **46** 481

Coherent transmission of terahertz wave through randomly packed subwavelength-sized aluminium particles *

Chen Hua^{1,2)†} Wang Li¹⁾

¹ *Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics , Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100190 , China)*

² *Department of Physics , Southeast University , Nanjing 211189 , China)*

(Received 26 February 2009 ; revised manuscript received 27 March 2009)

Abstract

We experimentally discovered that the efficient coupling of surface plasmon wave to free-space radiation beyond the interaction zone via random metallic particles. In the experiments of terahertz wave transmission through an ensemble of randomly packed aluminium particles with sub-wavelength sizes , we observed a strong dependence of the transmission on the lateral boundary conditions. Our results showed that the processes of terahertz wave propagating in the disk-shaped samples and reemitting to the free space were resulted from surface modes excitation , which is critically affected by lateral sizes of the particle ensembles.

Keywords : terahertz wave , metallic particles , surface plasmon

PACC : 4225B , 5240D , 7830

* Project supported by the National Basic Research Program of China(Grant No. 2007CB310405) and the Key Program of the National Natural Science Foundation of China(Grant No. 10834015)

† E-mail : chenhua@seu.edu.cn