

碳纳米管薄膜周期结构的太赫兹表面等离子波特性研究*

王 玥^{1)2)3)†} 贺训军¹⁾ 吴昱明⁴⁾ 吴 群²⁾³⁾ 梅金硕¹⁾
李龙威¹⁾ 杨福杏¹⁾ 赵 拓¹⁾ 李乐伟⁴⁾

1) (哈尔滨理工大学电子科学与技术系, 工程电介质及其应用技术教育部重点实验室, 哈尔滨 150080)

2) (哈尔滨工业大学电子与信息工程学院, 哈尔滨 150001)

3) (东南大学毫米波国家重点实验室, 南京 210096)

4) (新加坡国立大学电子与计算机工程系, 新加坡 119260)

(2010年12月14日收到; 2011年1月5日收到修改稿)

在获得太赫兹波段碳纳米管薄膜的介电特性基础上, 利用数值 THz 时域光谱技术研究了碳纳米管薄膜栅周期结构的表面等离子激元的传播特性和局域化现象. 研究表明, 在栅周期为 $168 \mu\text{m}$ 时, 频率在 $0.5\text{--}2.5 \text{ THz}$ 之间出现两个等离子模式的共振峰值, 分别位于 0.99 THz 和 1.95 THz , 这与理论计算结果相符合. 数值计算的表面等离子激元传播距离与理论预测值相一致, 达到了 $146 \mu\text{m}$. 此外, 分析了栅厚度与栅宽度变化对表面等离子波特性的影响.

关键词: 太赫兹, 碳纳米管, 表面等离子波

PACS: 73.20.Mf, 78.67.-n

1. 引言

随着微/纳加工科学与技术的不断发展, 导体/介质界面的电磁特性重新引起了人们的极大关注^[1-5]. 当电磁波作用到导体/介质的界面时, 导体中的自由电子与电磁波相互作用, 导致自由电子浓度涨落. 当入射电磁波的频率与引起自由电子的集体振荡频率一致时, 便产生了强烈限制在金属表面传播、在垂直表面的方向上能量急剧衰减的具有独特性质的表面等离子激元 (surface plasmons polaritons, SPPs). 由于 SPPs 具有限制和增强场作用, 使它在近场光学^[6]、表面等离子波导^[7]、集成表面等离子光路^[8]、生物/化学传感器^[9]、纳米等离子光刻^[10] 以及表面等离子光子学^[11] 等领域具有广阔的应用前景和应用价值.

在太赫兹波段, 利用局域化的 SPPs 可以实现超高灵敏的成像和生物传感功能^[12,13]. 然而, 特定频

率下的 SPPs 取决于导体的本征等离子频率. 尽管所有的导体都能支持 SPPs, 但是, 由于普通金属的自由电子浓度非常大, 决定其等离子频率处于电磁波谱中的可见光和紫外区域. 而在远红外与 THz 波段, 金属表现为良导体, 其表面对 SPPs 的限制是非常弱的, 局域化 SPPs 退化为非局域化的 Sommerfeld-Zenneck 波^[14]. 在 THz 波段, 为了增强金属对 SPPs 的限制, 一种方法是在金属表面制作周期性的亚波长孔或凹槽结构. 但是在截止波长附近具有非常高的群速色散, 这不利于亚皮秒 THz 脉冲的传播^[15]. 另一种方法是利用半导体材料取代金属实现对 SPPs 的限制, 这是由于半导体材料载流子浓度比金属中自由电子浓度低 2—3 个数量级, 因此半导体具有比金属低的多的等离子频率, 可以将紫外和可见光波段降低到 THz 波段. 而且, 半导体材料可通过掺杂、电、光、热以及磁场等不同作用形式获得不同的载流子浓度, 从而获得可调等离子频率, 实现太赫兹波段 SPPs 的限制. 虽然采用半导体

* 国家自然科学基金 (批准号: 60971064, 51005001), 毫米波国家重点实验室项目 (批准号: K201006), 黑龙江省教育厅科学技术项目 (批准号: 11531055) 和哈尔滨理工大学青年科学基金 (2009YF025, 2009YF026) 资助的课题.

† E-mail: wshte@126.com

材料可以使 SPPs 的色散和传播得到很好的改善,但是只有在禁带边缘获得较低的 SPPs 群速.

为了探索太赫兹波段表面等离子波的传播和局域化特性,本文利用有限积分方法研究了 THz 波段碳纳米管薄膜与介质界面的 SPPs 特性. 碳纳米管薄膜的等效介电参数和导电性能是通过等效介质近似理论拟合实验数据^[16]获得. 结果发现,碳纳米管薄膜在太赫兹波段的特性与金属在可见光的特性很相似,其等离子体频率在 THz 波段. 这为研究太赫兹波段 SPPs 器件奠定一定基础.

2. 碳纳米管薄膜的等效介质理论

表面等离子波的性质在很大程度上取决于导体和介质的介电特性. 特别是导体的介电函数在频率不同时,其差异很大. 碳纳米管可看成是由石墨片层卷曲而成的无缝圆柱状结构,是近乎理想的一维系统,它的长径比能达到 10^4-10^7 . 理论和实验已经证实碳纳米管的电学特性与其结构密切相关. 由于碳纳米管中碳原子之间是 sp^2 杂化,而且每个碳原子有一个未成对电子位于垂直于石墨片层的轨道上,因此碳纳米管具有良好的导电能力. 根据其卷曲形成的管半径和卷曲方向的不同,碳纳米管电学特性可表现为金属导体性和半导体性. 实验中制备的碳纳米管中有 30% 的是金属性,其余的表现则为半导体性. 世界上没有任何一种物质,在调制它的导电性能时可以做到如此的随心所欲. 然而,实验中制备出的碳纳米管,往往是金属性和半导体性碳纳米管的混合物. 因此碳纳米管薄膜的介电特性不能用简单的 Drude 模型 $\epsilon_m = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}$ 解释. 在本文中,我们采用 Drude-Lorentzian 模型^[17]来描述碳纳米管薄膜的介电函数

$$\epsilon_m(\omega) = \epsilon_{\text{SWNT}}^\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} - \sum_n \frac{\omega_{p,n}^2}{(\omega^2 - \omega_n^2) + i\omega\gamma_n}, \quad (1)$$

式中 $\epsilon_{\text{SWNT}}^\infty$ 代表高频介质的介电常数;第二项是 Drude 模型,表示介质中金属性碳纳米管的非局域化电荷贡献, ω_p, γ 分别是等离子频率和自由电子的阻尼率;第三项是 Lorentz 谐振子,表示半导体性碳纳米管的局域化电荷振动, $\omega_{p,n}, \omega_n, \gamma_n$ 分别是中心频率,谱线宽度和谐振子振荡强度. 此外,实际制备

的碳纳米管薄膜中,金属性和半导体性碳纳米管不能 100% 完全占据薄膜体积,其间隙中充满了空气作为整个薄膜的背景介质,这更增加了研究碳纳米管薄膜介电函数的难度. 而在(1)式中,没有体现除碳纳米管之外的填充介质特性,因此,还须结合 Maxwell-Garnett 模型来描述碳纳米管薄膜的等效复介电函数 ϵ_{eff} , 可表示为

$$\epsilon_{\text{eff}}(\omega) = \epsilon_h \frac{(1+2f)\epsilon_m(\omega) + 2(1-f)\epsilon_h}{(1-f)\epsilon_m(\omega) + (f+2)\epsilon_h}, \quad (2)$$

其中 f 为等效介质中碳纳米管填充因子, ϵ_h 是背景介质介电常数. 由(1)式可知,上述等效介电函数表示为复介电形式,表示为 $\epsilon_{\text{eff}}(\omega) = \epsilon_r + i\epsilon_i$. 并由

$$\epsilon_{\text{eff}}(\omega) = \epsilon^\infty + i \frac{\sigma}{\omega\epsilon_0}$$

可得到介质的等效电导率.

图 1 中显示了碳纳米管薄膜等效电导率的理论计算值和实验数据对比结果. 从图 1 中可以看出,当频率大于 0.4 THz 时,理论计算和实验数据符合得很好.

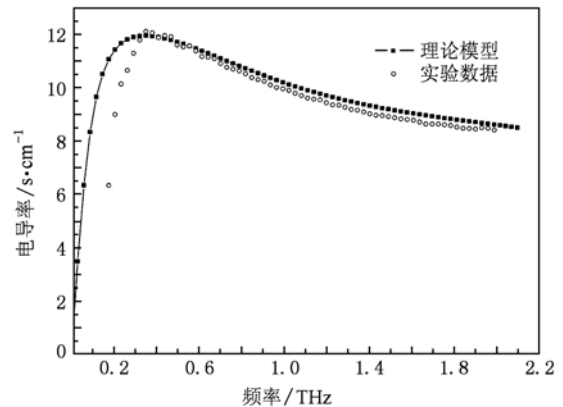


图 1 碳纳米管薄膜的等效电导率的理论计算与实验数据对比

图 2 中显示了碳纳米管薄膜在 THz 波段的介电特性,从图中可以看出,碳纳米管薄膜的介电特性与贵金属在可见光波段的介电特性很相似. 普通金属在紫外和可见光波段有 $-\epsilon_r/\epsilon_i \gg 1$. 然而,在 THz 波段,贵金属的介电常数急剧增加,并且有 $-\epsilon_r/\epsilon_i < 1$. 而碳纳米管薄膜的介电常数在 THz 波段也表现为 $-\epsilon_r/\epsilon_i < 1$. 表 1 中对比了文献中的银、铝、铅^[18]与本文计算的碳纳米管薄膜在 THz 波段的介电特性 ($-\epsilon_r/\epsilon_i$), 可以看出,碳纳米管薄膜仅次于银在 THz 波段具有良好的导电性能,这种特性更加有利于增强 SPPs 的局域化和传播特性.

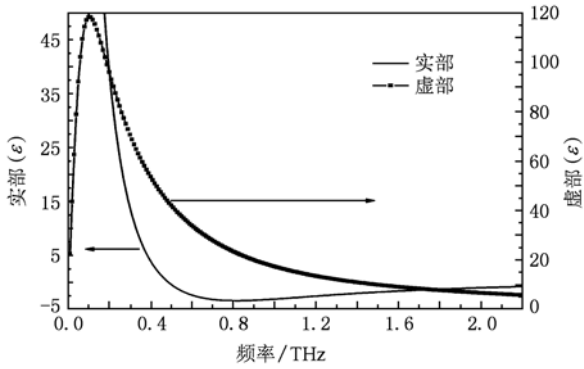


图2 碳纳米管薄膜的等效介电函数实部和虚部

表1 银,铝,铅与碳纳米管薄膜在 THz 波段的介电特性对比

频率/THz	材料 ($-\epsilon_r/\epsilon_i$)			
	银	碳纳米管膜	铝	铅
0.55	0.12	0.042	0.03	0.01
1.0	0.218	0.179	0.052	0.02
1.2	0.244	0.189	0.065	0.026

3. 碳纳米管薄膜表面的 SPPs 特性

本文计算所用模型如图 3 所示,碳纳米管薄膜采用一维栅周期结构夹在空气和衬底材料之间. 栅的周期、宽度、厚度分别为 p, w 和 h . THz 波沿负 z 方向垂直入射,入射波的频率范围为 0.5—2.5 THz. 衬底的介电常数为 $\epsilon_d = 3.18$. 当频率为 1.0 THz 时,由图 2 得到的等效介电常数为 $\epsilon_{\text{eff}} = -3.107 + i17.29$.

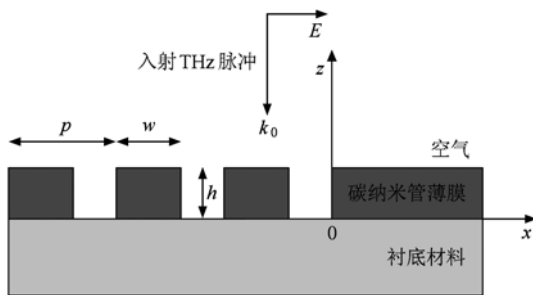


图3 一维碳纳米管薄膜/介质结构

由于 SPPs 沿着导体/介质表面传播,在垂直于界面方向上必须存在电场分量,因此,TE 极化波不能在导体/介质表面激发 SPPs. 仅仅 TM 电磁波在界面处激发 SPPs,在图 3 所示的介质和碳纳米管薄膜中,其场分布分别为

$$E_d = \begin{pmatrix} E_{xd} \\ 0 \\ E_{zd} \end{pmatrix} \exp[ik_{sp}x + k_{zd}z - i\omega t],$$

$$H_d = \begin{pmatrix} 0 \\ H_{yd} \\ 0 \end{pmatrix} \exp[ik_{sp}x + k_{zd}z - i\omega t], \quad (\text{介质}), \quad (3)$$

和

$$E_m = \begin{pmatrix} E_{xm} \\ 0 \\ E_{zm} \end{pmatrix} \exp[ik_{sp}x + k_{zm}z - i\omega t],$$

$$H_m = \begin{pmatrix} 0 \\ H_{ym} \\ 0 \end{pmatrix} \exp[ik_{sp}x + k_{zm}z - i\omega t], \quad (\text{碳膜}), \quad (4)$$

其中 k_{sp} 是表面等离子波矢, k_{zm}, k_{zd} 分别是碳纳米管薄膜和介质中的波矢. 由连续性边界条件可得介质和碳纳米膜中的波矢满足如下关系:

$$k_{sp}^2 + k_{zd}^2 = \epsilon_d(\omega/c)^2,$$

$$k_{sp}^2 + k_{zm}^2 = \epsilon_{\text{eff}}(\omega/c)^2, \quad (5)$$

求解(5)式,可以得到 SPPs 的色散关系

$$k_{sp} = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_{\text{eff}}\epsilon_d}{\epsilon_{\text{eff}} + \epsilon_d}}, \quad (k_0 \text{ 是自由空间波矢}). \quad (6)$$

由 $\epsilon_{\text{eff}} = -3.107 + i17.29$ 可知,碳纳米管薄膜的介电常数实部与衬底介质的介电常数符号相反,与金属在可见光的特性完全相同,这说明在碳纳米管薄膜与介质的表面处可以产生表面等离子波. 而且,由(6)式决定的表面等离子波矢 k_{sp} 大于同频率下自由空间波矢 k_0 . 这也导致了入射电磁波动量与产生的表面等离子波的动量不守恒. 因此,通过碳纳米管薄膜的栅结构以达到动量匹配目的,从而在界面处产生 SPPs.

图 4(a), (b) 中分别是碳纳米管薄膜栅周期 $p = 168 \mu\text{m}, w = 118 \mu\text{m}$ 和 $h = 30 \mu\text{m}$ 时表面 SPPs 在不同位置处 z 方向和 x 方向的相对场强. 从图中可以看出,明显的共振峰值位于 $9.94 \times 10^{11} \text{ Hz}$, 其相应的真空中激发波长为 $301.8 \mu\text{m}$. 而由(6)式计算得到的共振激发波长理论值为 $300 \mu\text{m}$, 这与数值计算结果符合得很好. 值得注意的是,从图 4(b) 中可以看出,随着离开栅边缘的距离增加, SPPs 沿 x 方向的共振峰强度变化很小,而在(a)中 z 方向的强度

下降比较明显,证实了SPPs沿 x 方向传播能量衰减

距离较长并且在 z 方向出现强烈的局域化现象.

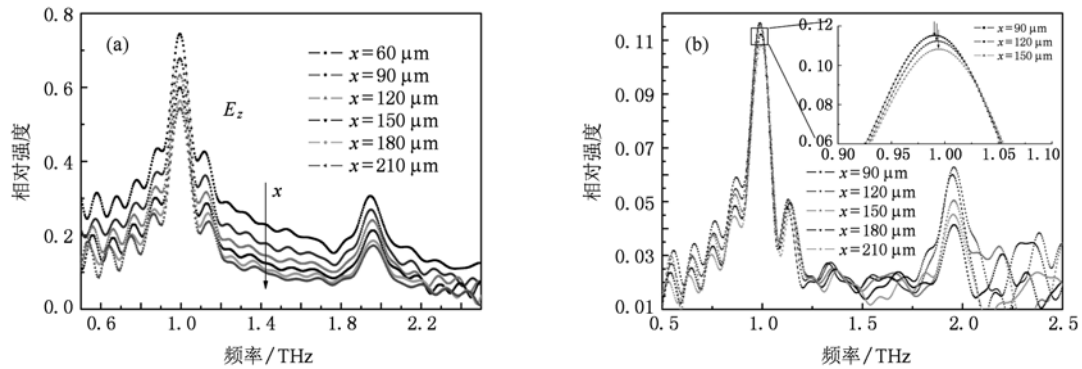


图4 碳纳米管薄膜/介质表面 SPPs 的场强分布 (a) z 方向场强;(b) x 方向场强,其中插图显示了随着离开栅边缘距离的增加,峰值下降幅度很小

对于二维周期性栅结构,入射电磁波与表面等离子波耦合的条件为 $k_{sp} = q \pm mk_x \pm nk_y$, 这里 q 是入射电磁波在栅平面的波矢分量, m 和 n 是整数, k_x 和 k_y 分别是二维等周期方阵的栅动量波矢, 并且有 $k_x = k_y = \frac{2\pi}{p}$ (p 是栅周期). 在图 3 所示结构中, 当 THz 波正入射时, 有 $k_{sp} = \pm m \frac{2\pi}{p}$. 因此, 表面等离子波的共振激发波长 λ_{rsp} 为

$$\lambda_{rsp} = \frac{p}{\sqrt{m^2} \sqrt{\frac{\epsilon_{eff}\epsilon_d}{\epsilon_{eff} + \epsilon_d}}}$$

当 $m = \pm 2$ 时, 理论计算的共振频率为 1.98 THz, 这与图 4(a), (b) 中第二峰值位于 1.95 THz 相符合.

图 5 给出了入射的瞬态 THz 时域信号和碳纳米管薄膜与介质表面探测点时域信号的对比结果, 其中, 探测点 1 与 2 之间的距离是 30 μm . 从中可以看出, 信号通过碳纳米管薄膜后幅度降低, 这主要由 THz 波段碳纳米管薄膜的等效介电函数的虚部引起的电磁波能量损失. 探测点 1 和 2 的信号波形受到栅周期调制而改变了传播周期. 二者之间的时间延迟为 195.6 fs, 因此得到 SPPs 沿着表面传播的速度为 $0.51c$ (c 为真空光速). 理论计算 SPPs 沿 x

方向的传播速度为 $c_{sp} = \frac{\omega}{k_{sp}} = c \sqrt{\frac{\epsilon_{eff}\epsilon_d}{\epsilon_{eff} + \epsilon_d}}$, 由此得到 SPPs 在碳纳米管与介质表面的传播速度为 $0.55c$, 这与数值计算结果相差 7%, 主要原因是由计算时有限元网格划分的密度引起的.

图 6(a) 中显示了沿 x 方向 SPPs 的 E_x 和 E_z . 由此得到的 SPPs 传播长度为 $L_{sp} = 150.2 \mu\text{m}$, 而由理

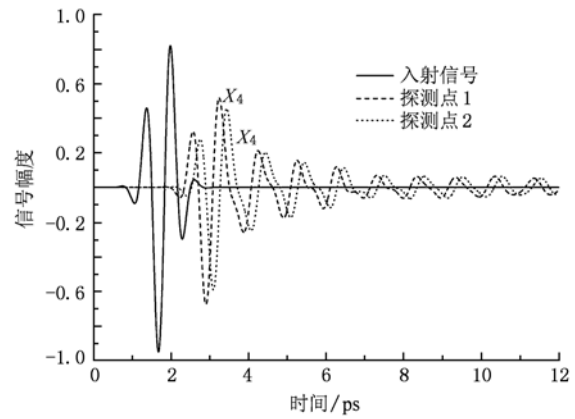


图5 碳纳米管薄膜与介质表面 THz 时域信号与入射信号对比

论 $L_{sp} = \frac{1}{2\text{Im}(k_{sp})} = \frac{c}{\omega} \left(\frac{\epsilon_r + \epsilon_d}{\epsilon_r \epsilon_d} \right)^{3/2} \frac{(\epsilon_r)^2}{\epsilon_i}$ 计算得到

的 SPPs 传播长度为 146.1 μm . SPPs 在介质中的衰减长度 L_d 由 (5) 式中的 k_{zd} 决定, $L_d = \frac{1}{|k_{zd}|} = \frac{1}{k_0$

$\sqrt{\frac{\epsilon_r + \epsilon_d}{\epsilon_d^2}} = 62.4 \mu\text{m}$, 从图 6(b) 中数值结果估计的

衰减长度为 64 μm . 由此可见, L_{sp} 和 L_d 的长度分别决定了基于 SPPs 的等光子学器件的最大尺寸, 同时 L_{sp}/L_d 比值决定了 SPPs 器件的集成度.

以上结果显示了理论计算与数值结果符合得很好, 也证实了模型结构设计的合理性和数值计算的有效性.

为了进一步探索碳纳米管薄膜表面的 SPPs 特性, 我们研究了碳纳米管栅厚度 h 和宽度 w 不同情况下的表面等离子波特性. 由于 h 的不同会导致其电荷密度分布不同, 从而使得 SPPs 场峰值大小发生

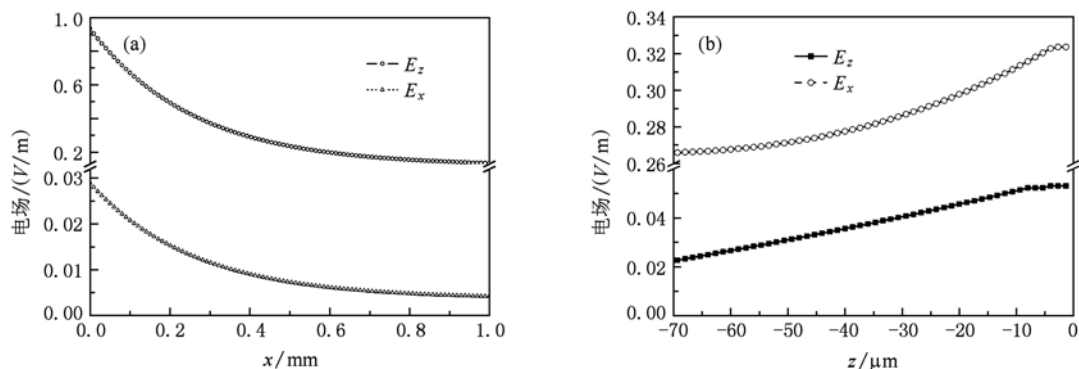


图6 介质中沿不同方向的电场幅值($f=1$ THz) (a) x 方向; (b) z 方向

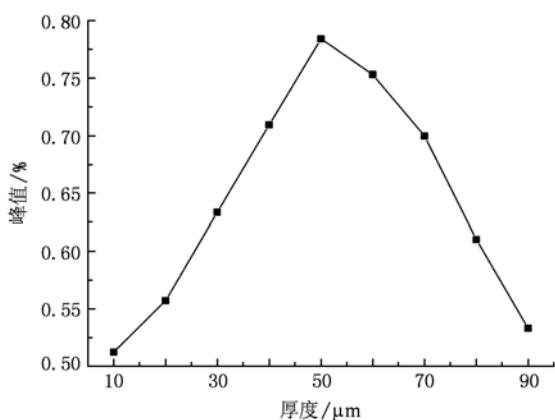


图7 碳纳米管薄膜厚度与 SPPs 峰值场强的关系

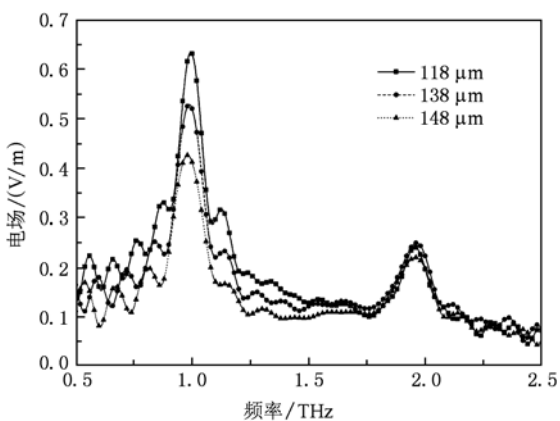


图8 不同栅宽度的 SPPs 场分布

改变,如图7中所示.从图7中可以看出,碳纳米管薄膜厚度在 $50\ \mu\text{m}$ 附近时 SPPs 场峰值达到最大,其信号透过率能达到80%,利用这一性质可以实现高灵敏度 THz 波传感器的设计.此外,不同栅宽度 w 对表面等离子波特性的影响显示在图8中.在栅周期不变情况下,随着栅宽度的增加, SPPs 场峰值会下降.当栅宽度增加25%时,导致其峰值下降21%.

4. 结 论

本文采用等效介质近似理论分析了碳纳米管薄膜在 THz 波段的介电特性,所得结果与实验结果一致.在此基础上,利用有限积分数值方法分析了 THz 波段碳纳米管薄膜与介质表面产生和传播表面等离子波的特性.结果表明,碳纳米管薄膜表面能够产生 SPPs.当碳纳米管薄膜厚度为 $50\ \mu\text{m}$,共振频率在1 THz附近时,界面处场局域化效应最明显,介质层的相对场强幅度对比度最大.在 SPPs 的有效传播长度范围内,其 E_z/E_x 高于5倍.随着碳纳米管薄膜栅宽度的增加,在其界面处的 SPPs 峰值下降.由理论计算和数值结果得到的 SPPs 传播长度,传播速率以及在介质中的衰减长度证实了数值计算的有效性.而存在的微小误差主要由网格划分的密度引起的.本文研究结果对于利用等离子波探测 THz 信号和设计 THz 传感器有重要的指导意义.

[1] Hao P, Wu Y H, Zhang P 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 6532 (in Chinese)[郝 鹏、吴一辉、张 平 2010 物理学报 **59** 6532]
 [2] Yang J, Cao Q, Zhou C 2010 *Opt. Express* **18** 18550

[3] Chen H, Wang L 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4605 (in Chinese) [陈 华、汪 力 物理学报 2009 **58** 4605]
 [4] Song G F, Wang W M, Cai L K, Guo B S, Wang Q, Xu Y,

- Wei X, Liu Y T 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 5105 (in Chinese)
 [宋国峰、汪卫敏、蔡利康、郭宝山、王青、徐云、韦欣、刘运涛 2010 物理学报 **59** 5105]
- [5] Arnold C, Zhang Y C, Bivas J G 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 113108
- [6] Hubert A J, Keilmann F, Wittborn J, Aizpurua J, Hillenbrand R 2008 *Nano Lett.* **8** 3766
- [7] Lo S Z A, Murphy T E 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 201104
- [8] Gordon R, Brolo A G, Sinton D, Kavanagh K L 2010 *Laser & Photon. Rev.* **4** 311
- [9] Lal S, Link S, Halas N J 2007 *Nature* **1** 641
- [10] Srituravanich W, Fang N, Sun F, Luo Q, Zhang X 2004 *Nano Lett.* **4** 1085
- [11] Maier S A, Atwater H A 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 011101
- [12] Chen H T, Kersting R, Cho G C 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 1
- [13] Nagel M, Bolivar P H, Brucherseifer M, Kurz H, Bosserhoff A, Buttner R 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 154
- [14] Giannini V, Berrier A, Maier S A, Sanchez-Gil J A, Rivas J G 2010 *Opt. Express* **18** 2797
- [15] Lu Y L, Zhang W L, Qiu M 2007 *Active and passive electronic components* (Colorado: Hindawi Publishing Co) p6
- [16] Jeon T I, Kim K J, Kang C, Maeng, Son J H, An K H, Lee J Y, Lee Y H 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 5736
- [17] Bommeli F, Degiorgi L, Wachter P, Bacsá W S, Heer W A, Forro L 1996 *Solid State Communication* **99** 513
- [18] Azad A K, Zhao Y G, Zhang W L, He M X 2006 *Opt. Lett.* **31** 2637

Properties of terahertz surface plasmon polaritons on carbon nanotube film with periodic grating*

Wang Yue^{1)2)3)†} He Xun-Jun¹⁾ Wu Yu-Ming⁴⁾ Wu Qun²⁾³⁾ Mei Jin-Shuo¹⁾
 Li Long-Wei¹⁾ Yang Fu-Xing¹⁾ Zhao Tuo¹⁾ Li Le-Wei⁴⁾

1) (Department of Electrical Science and Technology, Key Laboratory of Engineering Dielectrics and Its Application, Ministry of Education, Harbin University of Science and Technology, Harbin 150080, China)

2) (School of Electronics and Information Technology, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

3) (State Key Laboratory of Millimeter Wave, Southeast University, Nanjing 210096, China)

4) (Department of Electrical and Computer Engineering, National University of Singapore 119260, Singapore)

(Received 14 December 2010; revised manuscript received 5 January 2011)

Abstract

Based on the dielectric property of carbon nanotube film, the surface plasmon polariton propagation and localization phenomena on the carbon nanotube film are investigated using THz time-domain spectroscopy technique. The simulation results show that in the gate period of 168 μ m, the resonance peaks of surface plasmon mode are at 0.99THz and 1.95 THz, which are consistent with the theoretical results. Further analysis demonstrates that both the gate thickness and the width have an important effect on the properties of surface plasmon polaritons.

Keywords: terahertz, surface plasmons wave, carbon nanotubes

PACS: 73.20.Mf, 78.67.-n

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60971064, 51005001), the Open Project Program of State Key Laboratory of Millimeter Wave of China (Grant No. K201006), the Research Foundation of Education Bureau of Heilongjiang Province (Grant No. 11531055), and the Youth Foundation of Harbin University of Science and Technology (Grant No. 2009YF025, 2009YF026).

† E-mail: wsbte@126.com