

金属薄膜亚波长近场成像特性研究 *

李明宇[†] 顾培夫 张锦龙 郑臻荣 刘 旭

(浙江大学现代光学仪器国家重点实验室 杭州 310027)

(2007 年 11 月 6 日收到 2007 年 11 月 19 日收到修改稿)

采用基于等离子体物理模型的时域有限差分方法模拟了金属薄膜近场成像特性,采用薄膜传输矩阵方法计算了金属薄膜对倏逝波分量的放大作用,实现了周期为 $1 \mu\text{m}$ 的 Cr 光栅的成像实验,验证了平板金属薄膜的模拟成像特性。

关键词:时域有限差分,金属薄膜,近场亚波长成像,传输矩阵方法

PACC: 7820B 7360D

1. 引 言

自从 2000 年 Pendry 提出金属可用来替代负折射率材料制作完美透镜^[1]以来,很多研究者都对金属的亚波长成像进行了理论和实验工作^[2-7]。2004 年 Melville 等利用金属银的薄膜结构,在以硅为基板的感光物质上维持近场的距离,利用紫外曝光技术进行了成像实验^[8-10],首先从实验上验证了 Pendry 的结论。由于 H 偏振光(磁场分量仅在 z 方向)入射时对垂直于金属界面的电场分量不连续,产生表面电荷,所以银薄膜透镜可被激发出表面等离子波。激发出的表面等离子波的波矢比自由空间的波矢大,在近场区域保留倏逝波的信息,因此大幅提升了光学分辨率。

本文利用时域有限差分方法(FDTD)模拟了光通过银薄膜结构平面透镜所形成电场的空间分布,采用薄膜传输矩阵方法计算了倏逝波的透射率,从而解释了超分辨成像的物理原因。通过实验证明了金属超透镜的超分辨能力。利用金属薄膜透镜可以突破衍射极限,为微光学技术开创了一种新的超分辨近场成像方法。

2. 原 理

用 FDTD 方法模拟光在金属-介质中的传播情

况,要考虑金属材料的色散。金属的色散形式可用 Drude 模型表示^[11-15],并可改写为如下的形式:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_r \left(\epsilon_r - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + i\Gamma_e)} \right), \quad (1)$$

$$\mu(\omega) = \mu_0 \left(\mu_r - \frac{\omega_{pm}^2}{\omega(\omega + i\Gamma_m)} \right), \quad (2)$$

(1)式和(2)式包括了金属、介质以及负折射率材料的情况,这使得 FDTD 差分方程对金属和介质有相同的差分方程形式,便于编程计算。引入变量 P, M :

$$P = -\epsilon_0 \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + i\Gamma_e)} E, \quad (3)$$

$$M = -\mu_0 \frac{\omega_{pm}^2}{\omega(\omega + i\Gamma_m)} H. \quad (4)$$

将 $-\text{i}\omega \rightarrow \frac{\partial}{\partial t}$ 的关系代入上面两个式子,则有

$$\frac{\partial^2 P}{\partial t^2} + \Gamma_e \frac{\partial P}{\partial t} = \epsilon_0 \omega_{pe}^2 E, \quad (5)$$

$$\frac{\partial^2 M}{\partial t^2} + \Gamma_m \frac{\partial M}{\partial t} = \mu_0 \omega_{pm}^2 H. \quad (6)$$

下面定义两个新的变量 J 和 K :

$$J = \frac{\partial P}{\partial t}, \quad (7)$$

$$K = \frac{\partial M}{\partial t}. \quad (8)$$

将(7)和(8)式代入 Maxwell 差分方程可得

* 国家博士后科学基金(批准号 20070411174)、国家自然科学基金(批准号:60478138, 60608014)资助的课题。

† 通讯联系人。E-mail: limy_opt@hotmail.com

$$\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mathbf{J}, \quad (9)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \mu_r \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} - \mathbf{K}, \quad (10)$$

$$\frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \Gamma_e \mathbf{J} = \epsilon_0 \omega_{pe}^2 \mathbf{E}, \quad (11)$$

$$\frac{\partial \mathbf{K}}{\partial t} + \Gamma_m \mathbf{K} = \epsilon_0 \omega_{pm}^2 \mathbf{H}. \quad (12)$$

从(9)–(12)式可见,当 \mathbf{J} 和 \mathbf{K} 为 0, 即 $\omega_{pe} = \omega_{pm} = \Gamma_e = \Gamma_m$ 同时为零时, 就是无色散介质的 FDTD 差分方程组. 因为只有 H 偏振态的入射光能产生表面波, 所以只需计算 H 偏振态的情况. 离散的格子如图 1 所示.

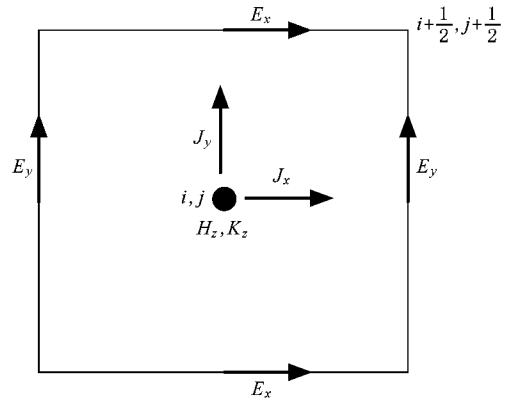


图 1 差分格子示意图

将(9)–(12)式离散化得到

$$E_x \Big|_{i, j+1/2}^{n+1} = E_x \Big|_{i, j+1/2}^n - \frac{\Delta t}{2\epsilon_0 \epsilon_r \left(i, j + \frac{1}{2} \right)} \left(J_x \Big|_{i, j}^{n+1/2} + J_x \Big|_{i, j+1}^{n+1/2} \right) + \frac{\Delta t / \Delta y}{\epsilon_0 \epsilon_r \left(i, j + \frac{1}{2} \right)} \left(H_z \Big|_{i, j+1}^{n+1/2} - H_z \Big|_{i, j}^{n+1/2} \right), \quad (13)$$

$$J_x \Big|_{i, j}^{n+3/2} = \frac{1 - \frac{1}{2} \Delta t \Gamma_e (i, j)}{1 + \frac{1}{2} \Delta t \Gamma_e (i, j)} J_x \Big|_{i, j}^{n+1/2} + \frac{\epsilon_0 \omega_{pe}^2 (i, j) \Delta t}{2 + \Delta t \Gamma_e (i, j)} \left(E_x \Big|_{i, j-1/2}^{n+1} + E_x \Big|_{i, j+1/2}^{n+1} \right), \quad (14)$$

$$E_y \Big|_{i+1/2, j}^{n+1} = E_y \Big|_{i+1/2, j}^n - \frac{\Delta t}{2\epsilon_0 \epsilon_r \left(i + \frac{1}{2}, j \right)} \left(J_y \Big|_{i, j}^{n+1/2} + J_y \Big|_{i+1, j}^{n+1/2} \right) - \frac{\Delta t / \Delta x}{\epsilon_0 \epsilon_r \left(i + \frac{1}{2}, j \right)} \left(H_z \Big|_{i+1, j}^{n+1/2} - H_z \Big|_{i, j}^{n+1/2} \right), \quad (15)$$

$$J_y \Big|_{i, j}^{n+3/2} = \frac{1 - \frac{1}{2} \Delta t \Gamma_e (i, j)}{1 + \frac{1}{2} \Delta t \Gamma_e (i, j)} J_y \Big|_{i, j}^{n+1/2} + \frac{\epsilon_0 \omega_{pe}^2 (i, j) \Delta t}{2 + \Delta t \Gamma_e (i, j)} \left(E_x \Big|_{i-1/2, j}^{n+1} + E_x \Big|_{i+1/2, j}^{n+1} \right), \quad (16)$$

$$H_z \Big|_{i, j}^{n+3/2} = H_z \Big|_{i, j}^{n+1/2} - \frac{\Delta t}{\mu_0 \mu_r (i, j)} \frac{E_y \Big|_{i+1/2, j}^{n+1} - E_y \Big|_{i-1/2, j}^{n+1}}{\Delta x} - \frac{E_x \Big|_{i, j+1/2}^{n+1} - E_x \Big|_{i, j-1/2}^{n+1}}{\Delta y} + K_z \Big|_{i, j}^{n+1}, \quad (17)$$

$$K_z \Big|_{i, j}^{n+2} = \frac{1 - \frac{1}{2} \Delta t \Gamma_m (i, j)}{1 - \frac{1}{2} \Delta t \Gamma_m (i, j)} K_z \Big|_{i, j}^{n+1} + \frac{\mu_0 \omega_{pm}^2 (i, j) \Delta t}{1 + \frac{1}{2} \Delta t \Gamma_m (i, j)} H_z \Big|_{i, j}^{n+3/2}, \quad (18)$$

(13)–(18)式是模拟带有金属-介质结构的 FDTD 离散化方程组. 从中可以看出这六个方程的系数都与频率无关.

3. 金属薄膜成像特性的模拟

本文模拟的结构如图 2 所示. 图中入射介质是玻

璃基板(substrate), 出射介质为感光胶 PR ; Cr 光栅的周期为 120 nm, 占空比为 1:1. Cr 厚度 50 nm, SiO₂ 厚度 40 nm, Ag 薄膜 35 nm. 当入射光波长为 365 nm 时, 基板的介电系数 $\epsilon_{sub} = 2.3104$, Cr 的介电常数为 $\epsilon_{Cr} = -8.55 + i8.96$, 感光胶和 SiO₂ 的介电系数均为 $\epsilon_{SiO_2} = 2.4$, Ag 的介电系数为 $\epsilon_{Ag} = -2.4012 + i0.2488$. 对 H 偏振态入射光, 我们分别模拟了有 Ag 薄膜和没有 Ag 薄膜两种情况, 光强度分布如图 3 所示.

图 3 的 x 方向上大于 225 nm 是玻璃介质, 从 175–224 nm 为金属 Cr 光栅, 小于 99 nm 是感光胶. 图 3(a) 中 x 方向上从 100–174 nm 为 SiO₂, (b) 中 x 方向上从 100–134 nm 为 Ag 薄膜, 从 135–174 nm 为 SiO₂.

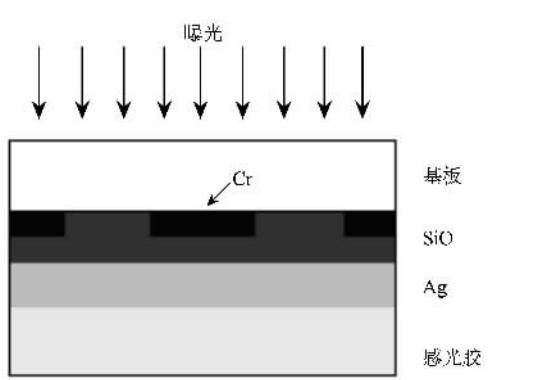


图2 金属薄膜成像结构示意图

从图3(a)中可见在感光胶层中光栅图样的对比度很低.而在图3(b)中可见在Ag薄膜的前后表面都有很强的表面波形成,在Ag膜与感光胶层的交界面形成对比度很强的光栅,光栅周期为120 nm,显然图3(b)中实现了亚波长成像.

采用薄膜的传输矩阵方法,计算了图3两种情况下的透射率,即有Ag膜(实线H)和没有Ag膜H偏振态的透射率(虚线H'),如图4所示.作为对比,图4中还计算了有Ag膜时E偏振态的透射率,其中 k_0 是真空中的波矢.从图4可以看到,如果要实现亚波长成像,必须使包含物体较高的空间频谱分量,即倏逝波分量的信息传递到像面.因为入射介质的介电系数为2.4,所以当 $k_y/k_0 = \sqrt{2.4}$ 时,对应于切向入射,其透射率为0;当 k_y 继续增大对应倏逝波分量,因为金属薄膜产生了表面等离子波,这使得一部分空间频谱的高频分量放大;而E偏振态不能产生表面等离子波,倏逝波分量的透射率为0,不能实现亚波长成像.而没有Ag薄膜的情况下也不能产生表面等离子波,虽然在 $k_y/k_0 < \sqrt{2.4}$ 的传播分量全部透过,但是倏逝波分量透射率均为0,因此也不能实现亚波长成像.

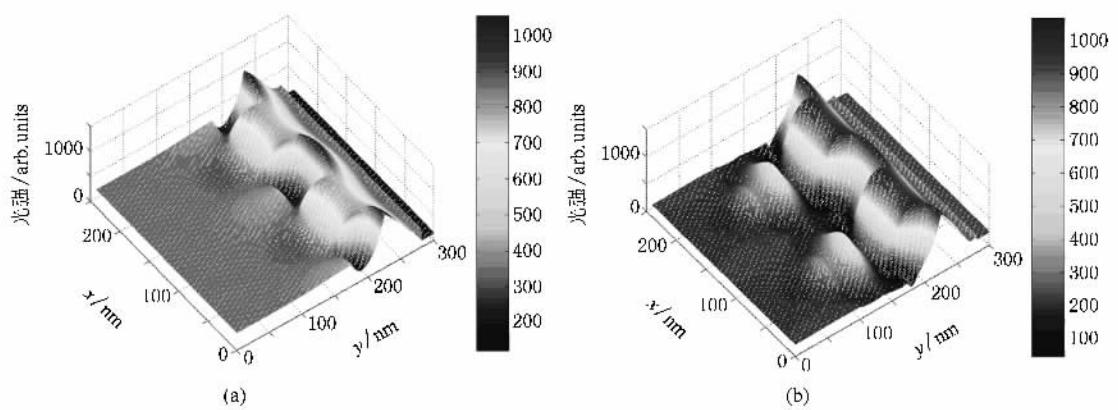


图3 金属薄膜成像模拟结果 (a)没有Ag薄膜的情况 (b)有Ag薄膜的情况

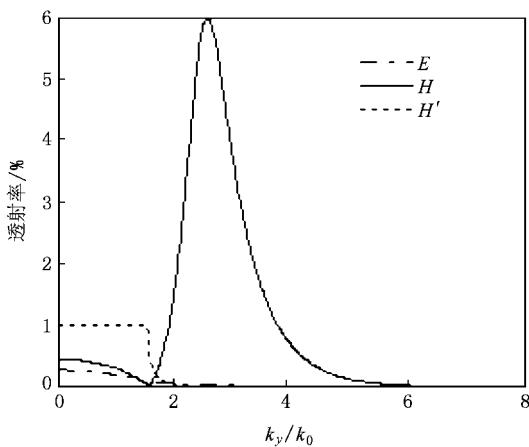


图4 空间频谱透射率

4. 实验步骤

制作过程如图5所示.第一步 在面积为 $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$,厚度为3 mm的石英玻璃基板上旋涂约500 nm的光刻胶,用激光干涉的方法制作周期为 $1\text{ }\mu\text{m}$ 的光栅.第二步 在国投南光有限公司生产的ZZS700-8/G型箱式真空镀膜机上以光刻胶光栅为基板用电子束蒸发约150 nm的Cr薄膜,蒸发时背景真空 $3 \times 10^{-3}\text{ Pa}$,基板温度 20°C ,蒸发速率为 9 nm/s .第三步 用丙酮将光刻胶去掉,得到Cr的光栅.第四步 为了获得比较平的间隔层,在真空度为 $3 \times 10^{-3}\text{ Pa}$ 时用电子束蒸发 SiO_2 薄膜, SiO_2 薄膜厚度超过 $2\text{ }\mu\text{m}$ 就可将

光栅填平。第五步:用中科院微电子所生产的ICP-98C型高密度等离子体刻蚀机刻蚀 SiO_2 薄膜到距离光栅约50 nm,刻蚀气体采用 CF_4 (48 sccm), O_2 (3 sccm)和 He (6 sccm),RF1正向功率140 W,反馈功率8 W,RF2正向功率13.5 W,反馈功率1.2 W。第六步:在刻蚀过的 SiO_2 薄膜上镀制Ag薄膜约80 nm。第七步:在Ag膜表面旋涂由苏州瑞虹公司生产的负胶,型号RZJ-220,100℃下烘烤30 min。最后采用Hg灯曝光约30 s后显影、定影、烘烤。

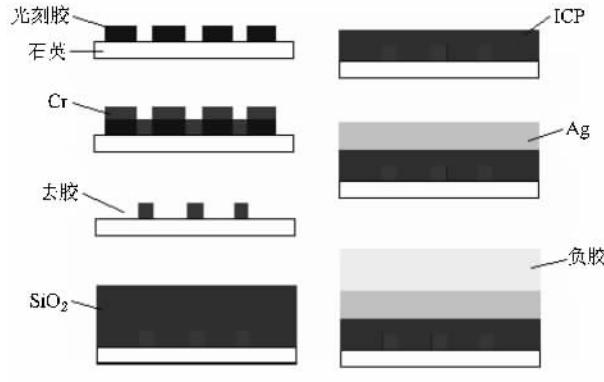


图5 金属薄膜近场成像实验过程示意图

5. 实验结果

图6显示了石英玻璃基板上的光刻胶光栅结构,周期是 $1 \mu\text{m}$,占空比1:1。从图7可见,Cr光栅基

本保持了光刻胶光栅的周期,Cr光栅深度约150 nm。图8是在Cr光栅结构上沉积 SiO_2 ,ICP刻蚀 SiO_2 到需要的厚度后,镀制Ag膜后的表面形貌。从图8可见金属薄膜十分平坦,没有光栅结构。然而,当Ag膜上镀负胶后,经曝光即产生Cr的光栅结构,图9表示了 $1 \mu\text{m}$ 周期的光栅曝光的结果。掩膜板上的Cr光栅结构已呈现在感光胶上,这是Ag膜表面等离子波引起的亚波长近场成像。

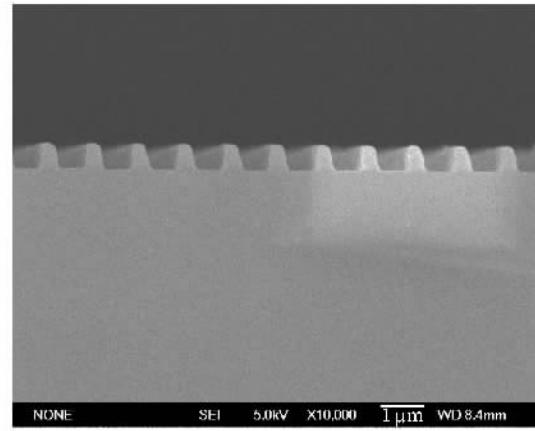


图6 光刻胶光栅截面 SEM 图

因为曝光、显影和定影的各种参数以及曝光时入射光偏振态的选取都会对图形的轮廓和对比度产生很大的影响,因此进一步的实验仍然需要对曝光实验条件的参数进行探索,以达到最优化的实验结果。

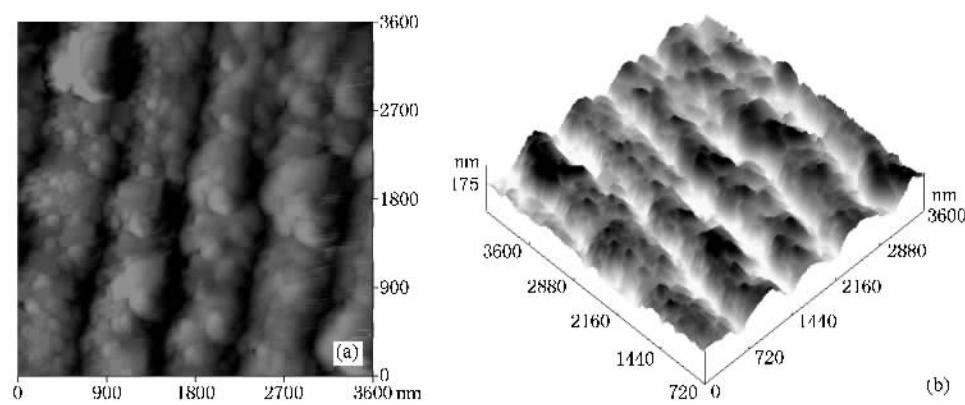


图7 Cr光栅 (a)为AFM表面图 (b)为Cr光栅三维立体图

6. 结论

提出了一种计算等离子体模型的时域有限差分

方法,此方法可以用于计算光在金属-介质和负折射率材料中的传播情况。通过数值模拟发现了作为单负材料(介电常数的实部为负数,磁导系数仍为正数的材料)的金属-介质在H偏振态的入射光下同样

可以实现亚波长成像,并用传输矩阵方法计算了倏逝波的透射率. 实验上初步证明了金属薄膜的亚波长近场成像现象. 今后的工作要在光栅结构和金属薄膜厚度上优化,以便能在很宽的频谱范围内实现亚波长成像.

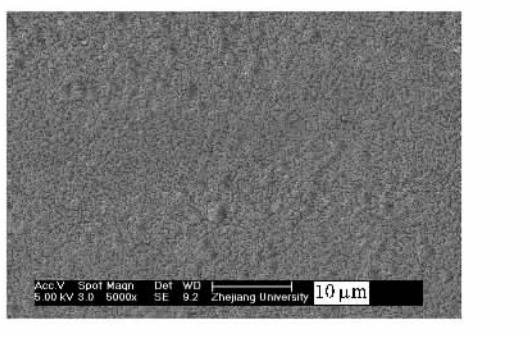


图8 镀制 Ag 后的表面 SEM 图像

金属薄膜的表面等离子共振效应为新一代高分辨、高灵敏度的信息观测手段的建立、为发展纳米光子传感器奠定了理论与实验基础,在医学仪器成像系统、光学扫描和光纤等很多领域具有广泛的应用前景.

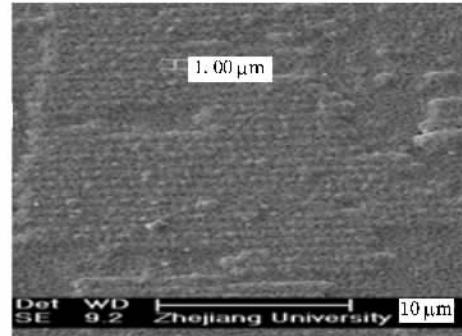


图9 曝光后光刻胶 SEM 图像

- [1] Pendry J B 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966
- [2] Fang N ,Lee H ,Sun C ,Zhang X 2005 *Science* **308** 534
- [3] Andrew P , Barnes W L 2004 *Science* **306** 1002
- [4] Xie Y ,Zakharian A R ,Moloney J V ,Mansuripur M 2005 *Opt. Express* **13** 4485
- [5] Liu Z W ,Wei Q H ,Zhang X 2005 *Nano Lett.* **5** 957
- [6] Sun Z ,Jung Y S ,Kim H K 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 3021
- [7] Barnes W L ,Dereux A ,Ebbesen T W 2003 *Nature* **424** 824
- [8] Melville D O S ,Blaikie R J ,Wolf C R 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4403

- [9] Blaikie R J ,Melville D O S 2005 *J. Opt. A-Pure Appl. Opt.* **7** s176
- [10] Melville D O S ,Blaikie R J 2005 *Opt. Express* **13** 2127
- [11] Ziolkowski R W 2003 *Opt. Express* **11** 662
- [12] Cui T J ,Kong J A 2004 *Phys. Rev. B* **70** 205106
- [13] Alu A ,Engheta N 2003 *IEEE T ANTENN PROPAG.* **51** 2558
- [14] Loschialpo P F ,Forester D W ,Smith D L ,Rachford F J 2004 *Phys. Rev. E* **70** 036605
- [15] Young J L ,Nelson R O 2001 *IEEE T ANTENN PROPAG.* **43** 61

Study on the property of subwavelength imaging in a metal thin-film structure*

Li Ming-Yu[†] Gu Pei-Fu Zhang Jin-Long Zheng Zhen-Rong Liu Xu

(State Key Laboratory of Modern Optical Instrumentation ,Zhejiang University ,Hangzhou 310027 ,China)

(Received 6 November 2007 ; revised manuscript received 19 November 2007)

Abstract

The property of the near field subwavelength imaging in a metal thin-film structure is investigated using finite difference time domain method based on Drude model. Using the transfer matrix method ,the transmission of this structure for the evanescent wave component is given ,which illustrates the influence on the subwavelength imaging quality. In practice a Cr grating mask with $1\mu\text{m}$ period is imaged onto a photosensitive material through a silver thin film structure by utilizing the optical near-field lithography techniques.

Keywords : finite difference time domain method , metal thin-film structure , near field subwavelength imaging , transfer matrix method

PACC : 7820B , 7360D

* Project supported by the National Science Foundation for Post-doctoral Scientists of China (Grant No. 20070411174) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60478138 , 60608014).

† Corresponding author. E-mail : limy_opt@hotmail.com