

线性偏振光激发的错位表面等离子体 激元纳米结构聚焦*

宋文涛¹⁾ 林 峰¹⁾ 方哲宇¹⁾ 朱 星^{1)2)†}

1) (北京大学物理学院, 北京大学人工微结构与介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

2) (国家纳米科学中心, 北京 100190)

(2010 年 5 月 11 日收到; 2010 年 5 月 12 日收到修改稿)

利用扫描近场光学显微镜观测并分析了两种表面等离子体激元纳米结构对表面等离子体激元(SPP)的激发和聚焦现象. 用线偏振光照射有半个周期相位差的环状沟槽结构与有半个周期位相差的环状狭缝结构, 得到了单点的 SPP 聚焦. 有限时域差分法的模拟结果验证了实验中观测的现象. 这两种相位错位的表面等离子体激元纳米结构, 突破了由于干涉导致的线偏振光不能得到单个聚焦点的限制. 与采用径向偏振光激发而得到单个聚焦点的方法相比, 线偏振光不需要聚焦, 也不需要将光束中心对准纳米结构的几何中心即可得到单点聚焦.

关键词: 近场光学显微术, 表面等离子体激元, 纳米聚焦, 线偏振光

PACC: 0779, 7320J, 4225J

1. 引 言

表面等离子体激元(surface plasmon polariton, 简记为 SPP)是存在于金属和介质界面的一种表面电磁场模式. 它以表面电子集体振荡波的形式在界面上传播, 而在垂直于界面的方向上, 场强呈指数衰减而局域在金属表面. 光和 SPP 之间可以通过周期性结构或全反射隐失波的方式进行波矢匹配而互相转换, 为在纳米尺度对光的操纵提供了新的手段. SPP 在近场范围内有很强的增强效应, 这一性质使其在纳米光学的许多领域中有着重要的应用. 例如高次谐波的产生^[1]、亚波长光学^[2-6]、近场成像与探测^[7]、纳米粒子操纵^[8]等. 近期有人通过用径向偏振光照射刻在金属薄膜上的环状狭缝, 即等离子激元透镜(plasmonic lens, 简记为 PL), 在近场范围内得到单个在衍射极限范围内的 SPP 聚焦点^[9-11]. 通常情况下, 一个 PL 主要由刻在不透明金属薄膜上的单个环形狭缝或多个同心环形狭缝组成. 通过用径向偏振光照射 PL, 在环状狭缝各个位置同时激发了 SPP. 激发后的 SPP 向环状狭缝的几何中心传播并在中心相干增强, 得到一个亚波长尺度的聚

焦点^[12].

但是, 这种方法得到的 SPP 聚焦点有几个缺点, 会直接影响这种纳米光源的应用. 其一, 通过透明狭缝直接透射的光比焦点的场强还要强得多, 有时甚至强一到两个数量级. 其二, 用径向偏振光照射结构时, 必须保证激发光中心刚好处在环状狭缝的圆心上, 而这对于一个直径只有大约 10 μm 的环状狭缝难以实现. 其三, 向环状狭缝外侧传播的 SPP 未被利用. 本文通过线性偏振光照射沿径向有两个不同周期的环状周期性沟槽结构克服了第一和第三个缺点, 在环状沟槽中心得到了两个增强的聚焦点. 内部的环状沟槽结构用来使垂直入射的激光转化为 SPP; 外侧环绕的沟槽周期为内部周期的一半, 作为 Bragg 反射镜将激发的 SPP 约束在里面. 为了得到单个聚焦点, 我们又采用了相位调节的方法, 将环形纳米结构的一半区域的半径增大半个周期(即成为两组半径相差半周期的半圆形沟槽), 以使原来在结构中心相干抵消的 SPP 变为相干增强, 探索形成单个聚焦点的可能性. 为了更清楚的探索这种方法的可行性, 我们采用线偏振光作为激发光源, 研究了相位错位半个周期的环状狭缝结构对 SPP 的聚焦情况.

* 国家重点基础研究发展计划(批准号:2007CB936800)和国家自然科学基金(批准号:60977015)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail:zhuxing@pku.edu.cn

2. 实验和样品

样品是利用聚焦离子束刻蚀的方法在 75 nm 厚金膜表面刻蚀得到. 金膜由真空蒸镀的方法制得, 衬底为石英, 结构的参数如下: 如图 1(a) 所示的结构一为径向有两个不同周期的环状周期性沟槽结

构, 如图 1(b) 所示的结构二的上半部分半圆形沟槽半径比下半部分整体大 320 nm. 如图 1(a) 所示, 沟槽沿径向有两个不同的周期, 内部 10 个宽沟槽周期为 640 nm, 宽度为 320 nm, 用于激发 SPP. 外侧环绕的 10 个窄沟槽周期为 320 nm, 宽度为 180 nm, 用作 Bragg 反射镜, 以约束 SPP 在其内部. 沟槽的深度为 25 nm.

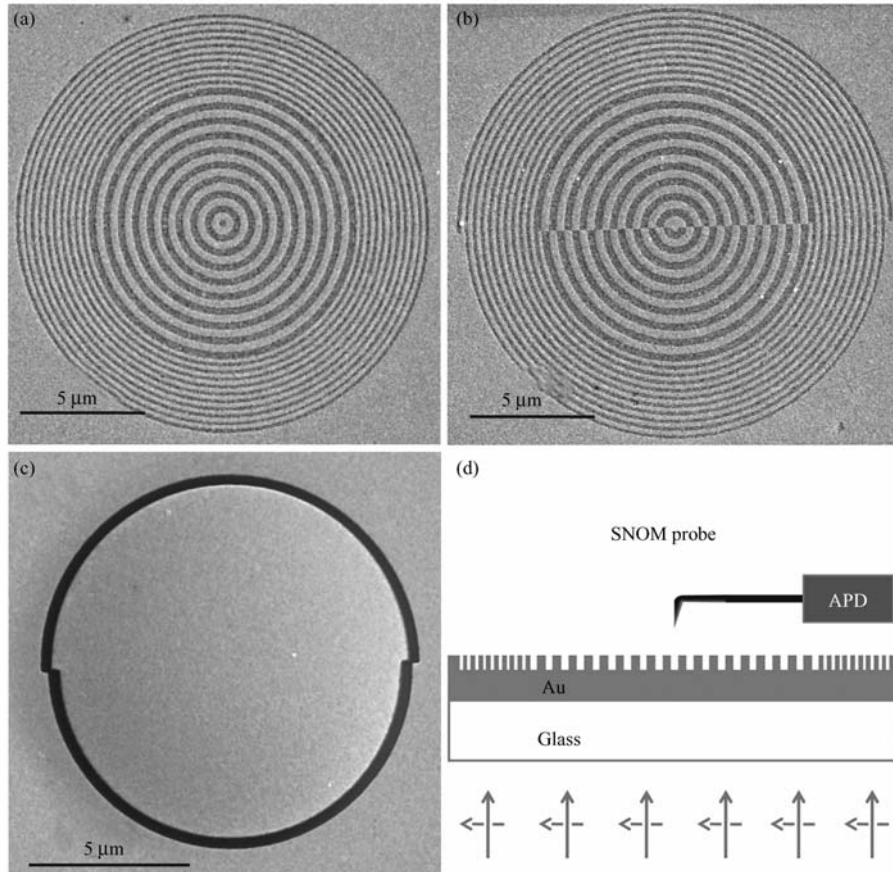


图 1 扫描电子显微镜照片和实验装置图 (a), (b) 和 (c) 为扫描电子显微镜照片, (a) 对应无位相差的周期性环状沟槽结构; (b) 对应有半个周期位相差的环状沟槽结构, 其中上半部分的沟槽半径比下半部分的沟槽半径整体大半个周期; (c) 对应相位错位半周期的环状狭缝; (d) 实验装置图, 激光从底部入射到金膜底部, 实线箭头为激光波矢方向, 虚线箭头为激光偏振方向, 由 SNOM 探针接收光学信号, 再通过 APD 转化为电信号

结构三为位相差半周期的环状狭缝, 即两个开口相对的半径不相等的同心半圆狭缝 (缝的深度为 75 nm). 两个半圆圆心重合, 上半部分的半圆形沟槽的半径比下半部分大 320 nm, 如图 1(c) 所示, 上半部分沟槽直径越为 10.6 μm , 沟槽的宽度约为 500 nm.

实验光路如图 1(d) 所示, 采用扫描近场光学显微系统, 由以下几部分组成, 以色列 Nanonics 公司的扫描头 NSOM-100 置于一台倒置在 Olympus 公司生产的 IX70 显微镜上, 控制系统 RHK 公司生产的

SPM-100, 雪崩式光电二极管探测器 (APD, 探测波长范围 400—800 nm). 实验所用的近场扫描探针是由 Nanonics 公司提供的悬臂式镀金光纤探针, 探针尖端开孔 100 nm. 半导体激光器产生的波长 671 nm 的一束线偏振光经过反射镜从样品底部垂直照射到样品上, 光斑直径约为 1.5 mm. 光学信号用上述探针收集通过光纤传到 APD 探测器, APD 探测器通过光电效应把光信号转化为电信号输入到控制系统中. 近场光学探针可以对样品扫描成像, 可以同时得到样品的形貌像和近场光学像.

3. 结果与讨论

由于动量与能量同时匹配的条件不能满足,空气中自由传播的光不能直接激发 SPP. 我们利用周期性结构使光与 SPP 匹配,从而激发 SPP. 这种激发方法光与 SPP 的最佳匹配条件遵循如下式:

$$\frac{\omega}{c} \sin \theta \pm n \frac{2\pi}{a} = k, \quad (1)$$

其中 a 是沟槽周期, k 为 SPP 波矢, θ 为激光入射角. 实验中 $\theta = 0$, 这样得到内部宽沟槽的周期应为空气与金界面上的 SPP 波长^[11].

$$\lambda_{\text{spp}} = \lambda_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_r + 1}{\varepsilon_r}}, \quad (2)$$

λ_0 为激发光的波长, ε_r 是金相对折射率的实部. 对于 671 nm 的入射光, SPP 的波长约为 640 nm. 这样内部宽沟槽的周期为 640 nm, 可以与 671 nm 的光达到最佳耦合效率; 外部窄沟槽的周期应为

320 nm, 可以作为 640 nm SPP 的 Bragg 反射镜, 把内部宽沟槽激发的 SPP 局域在其内部, 以增强聚焦的效果^[13-17].

膜的厚度应保证部分光透过金膜, 并且在上表面激发 SPP, 同时挡住过多的透射光以降低背景光强度. 根据有限时域差分方法的理论模拟结果, 膜的厚度选择为 75 nm, 沟槽深度为 25 nm.

图 2 为结构一与结构二在 671 nm 激光照射下, 距上表面大约 1 μm 的二维光强分布 (选择这个高度是为了避免探针对结构的破坏). 图 2(a) 为结构一上方的光强分布, 在中心处得到了两个聚焦点. 由于只有垂直于沟槽的分量才能激发 SPP, 两个聚焦点沿激发光偏振方向分布. 图 2(b) 为结构二上方的光强分布, 在中心处得到了单个聚焦点. 为了确认聚焦点的大小, 我们在沟槽结构中心进行了局部精细测量, 得到了图 2(c) 的结果. 从图 2(c) 可以清楚地看出中心只有一个聚焦点, 焦点的半高宽小于 200 nm.

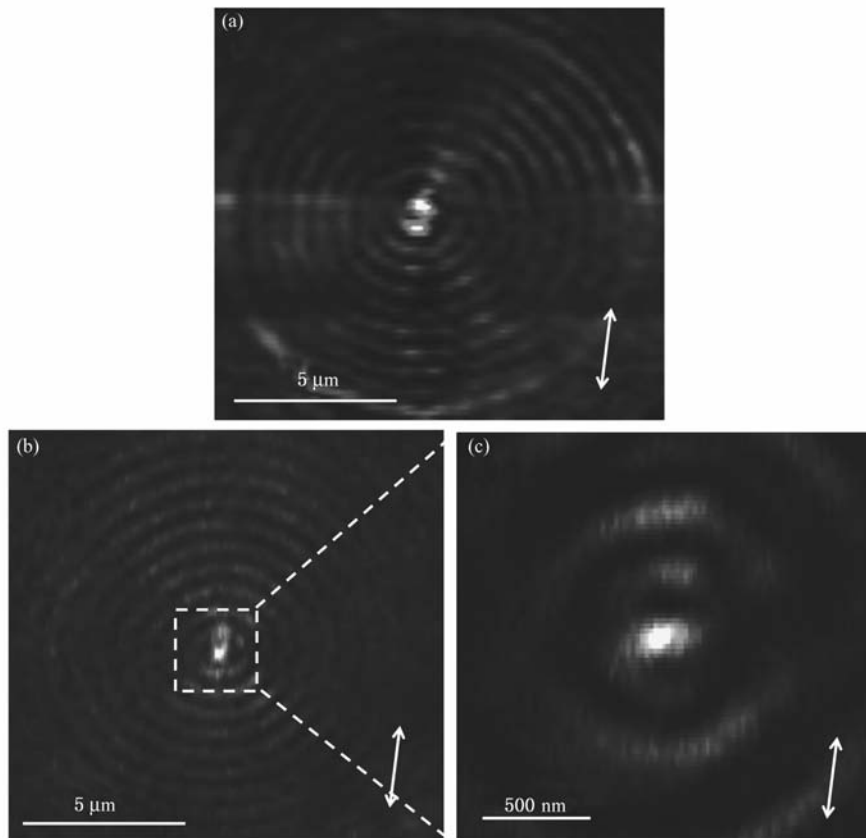


图 2 周期性环状沟槽结构上方 1 μm 处 SNOM 图, 白色箭头表征激发光偏振方向 (a) 对应结构一, (b) 对应结构二, (c) 为 (b) 中白色方框区域扫描的结果

两个聚焦点出现的原因可以如下解释: 对 SPP 能量场有贡献的有两项, 即电场垂直于表面的分量

(z 分量) 及平行于表面的分量 (r 分量). 计算结果表明, 垂直于表面的电场分量比平行于表面的分量

强了大约 30 倍^[10]. 同一沟槽圆周上每对相对应的点激发的两列 SPP 波位相相同, 同时向中心传播时由于波矢方向相反, 到达中心时电场的 z 分量指向相反的方向, 从而形成相消干涉, 成为强度的极小值. 由于只有垂直于沟槽的分量才能激发 SPP, 在沿激发光偏振方向会得到两个聚焦点. 另一方面, 由于光纤探针内传输模式的对称性, 探针探测的结果与 $|\nabla_{\perp} E_z|$ 成正比^[17, 18]. 综上所述, 线偏振光激发正圆形的结构时, 在中心一定得到一个极小值, 也就是两个聚焦点. Lerman 等^[10] 利用径向偏振光解决了这一问题. 由于径向偏振光相位随空间分布的特点, 在圆周上相对的两点激发的 SPP 具有相反的相位, 从而电场的 z 分量在中心处指向相同的方向, 进而得到一个极大值. 然而正如我们在引言中提到的, 用径向偏振光激发时必须垂直入射且激发光的中心必须对到结构的几何中心, 否则难以在中心处达到相干增强的效果, 而这在如此小的尺度是很难实现的.

利用线偏振光激发有半周期相位错位结构的方法恰恰解决了上述困难, 通过结构上的位相延迟, 达到在中心处相干增强的效果. 在错位的结构

中, 上半平面第 n 个沟槽与下半平面第 n 个沟槽之间有半个周期的半径差, 这样在相对的两点激发的 SPP 到达中心时积累的位相就相差了半个周期, 从而电场 z 分量指向相同的方向, 所有沟槽的叠加结果也为相干增强.

为了更清楚地表征位相错位半周期的效果, 我们还研究了位相错位半周期的环状狭缝结构对 SPP 的聚焦过程. 同样利用 671 nm 线偏振光照射结构三, 并用 SNOM 扫描面上表面 1 μm 处的二维光强分布. 这种结构实际上等效于从周期性沟槽中取出了其中一对, 很容易可以看出上下半圆分别的焦点均在其圆心处, 而两个半圆的圆心重合. 显而易见, 任意两个相对的点激发的 SPP 到达圆心时积累的位相差半个周期, 从而电场的 z 分量在焦点处指向相同的方向, 从而得到了单个聚焦点, 如图 3(b) 所示. 这种结构实际上是对利用径向偏振光单个环状狭缝组成的等离激元透镜的优化. 相对于径向偏振光的方法, 线偏振光不需要聚焦, 也不需要光束中心对准纳米结构的几何中心即可得到单点聚焦. 近场光学像图 3(a) 与图 4(b) 证实了我们的推测. 得到的聚焦点半高宽小于 250 nm.

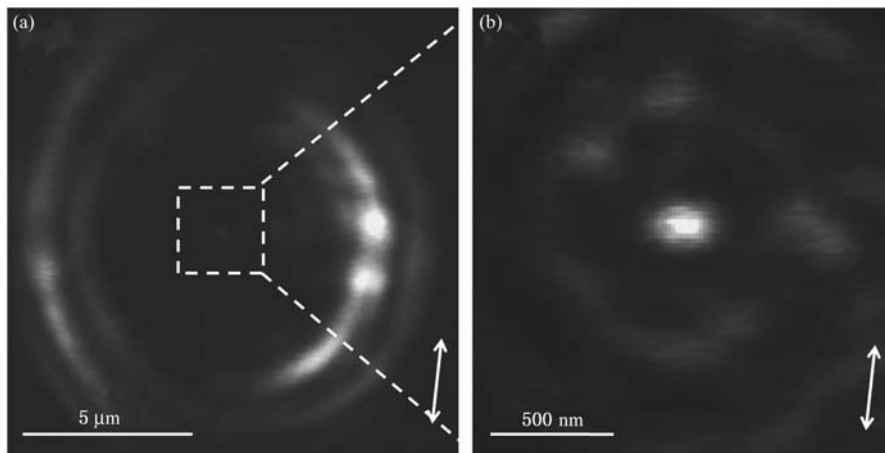


图 3 结构三 SNOM 图 (a) 为结构三上方 1 μm 处 SNOM 图, 白色箭头表征激发光偏振方向; (b) 为 (a) 中白色方框区域精细扫描的结果

为了证实上述的理论解释, 我们利用有限时域差分方法 (FDTD) 模拟了三个结构相应的过程. FDTD 的原理是直接时域解 Maxwell 方程组, 可以实现电磁场演变的实时计算模拟. 我们采用的是基于 FDTD 的商业软件 XFDTD. 模拟的模型与实验的三个结构相同, 激发光从结构底部垂直入射, 波长为 671 nm. 图 4 对应周期性环状沟槽结构的模拟结果, 电场强度的 z 分量在距上表面 1 μm 平面内的二

维分布. 图 4(a) 对应结构一的理论模拟结果, 得到两个聚焦点, 焦点的间距为 320 nm; 图 4(b) 对应结构二的理论模拟结果, 得到单个聚焦点. 模拟中焦点的半高宽均为 180 nm, 与实验结果符合很好.

为了更清楚的说明相位错位的作用, 我们同时模拟了电场 z 分量在无相位错位的单个环状狭缝上方 1 μm 处的分布. 图 5(a) 对应无错位的环状狭缝

的理论模拟结果,得到两个聚焦点,两个焦点间距为 400 nm;图 5 (b) 对应实验中的结构三的理论模

拟结果,得到单个聚焦点. 两种模型的聚焦点半高宽均为 220 nm,后者与实验结果符合很好.

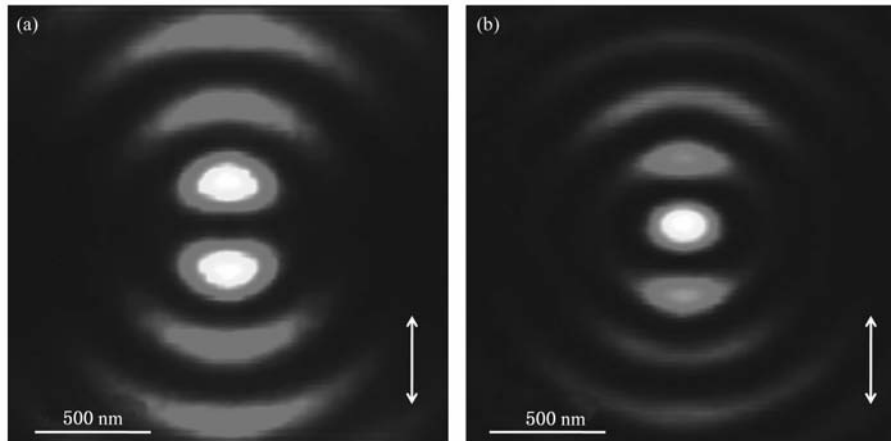


图 4 FDTD 模拟的电场 z 分量在环状沟槽结构中心正上方 $1 \mu\text{m}$ 处的二维分布,白色箭头表征激发光偏振方向 (a) 对应结构一的模拟结果, (b) 对应结构二的模拟结果

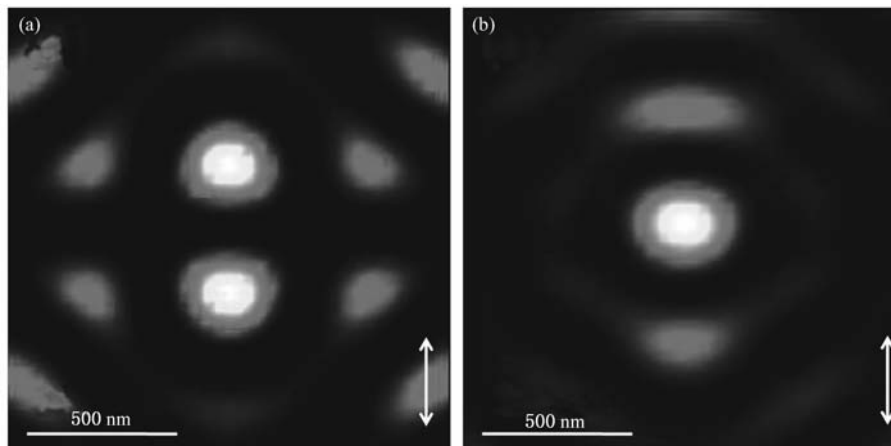


图 5 FDTD 模拟的电场 z 分量在环状狭缝中心正上方 $1 \mu\text{m}$ 处的二维分布,白色箭头表征激发光偏振方向 (a) 对应无错位的环状狭缝, (b) 对应有半周期位相错位的环状狭缝

4. 结 论

用线偏振光作为激发光源,研究了有半周期位相差的周期性环状沟槽结构对 SPP 的聚焦情况. 利用扫描近场光学显微镜得到了半高宽小于 200 nm 的单聚焦点. 基于有限时域差分数值计算结果证实了我们的实验结果. 为了更清楚的探索这种方法的可行性,又用线偏振光作为激发光源,研究了相位

错位半个周期的单个环状狭缝结构对 SPP 的聚焦情况. 得到了半高宽小于 250 nm 的单聚焦点. 相对于利用径向偏振光得到单聚焦点的方法,这种方法无需聚焦激发光,也无需使激发光的中心对准环状结构的几何中心,只需用线偏振光直接垂直照射到样品底部即可得到单个聚焦点,在实际中会很容易应用而且更加灵活,从而在相关领域如亚波长光学、近场成像与探测、纳米粒子操纵会有很好的应用前景.

[1] Kim S, Jin J, Kim Y J, Park I Y, Kim Y, Kim S W 2008 *Nature* **453** 757

[2] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W 2003 *Nature* **424** 824

[3] Ozbay E 2006 *Science* **311** 189

- [4] Bozhevolnyi S I, Volkov V S, Devaux E, Laluet J, Ebbesen T W 2006 *Nature* **440** 508
- [5] Fang Z Y, Lin C F, Ma R M, Huang S, Zhu X 2010 *ACS Nano*. **4** 75
- [6] Rothenhäusler B, Knoll W 1988 *Nature* **332** 615
- [7] Xie S X 2010 *Chin. Phys. B* **14** 9
- [8] Fang Z Y, Lin F, Huang S, Song W T, Zhu X 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 063306
- [9] Liu Z W, Steele J M, Srituravanich W, Pikus Y, Sun C, Zhang X 2005 *Nano. Lett.* **5** 1726
- [10] Lerman G M, Yanai A, Levy U 2009 *Nano. Lett.* **9** 2139
- [11] Chen W B, Abeysinghe D C, Nelson R L, Zhan Q W 2009 *Nano. Lett.* **10** 4320
- [12] Zayats A V, Smolyaninov I I, Maradudin A A 2005 *Phys. Rep.* **408** 131
- [13] Peyrade D, Silberstein E, Lalanne P, Talneau A, Chen Y 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 829
- [14] Krenn J R, Dittlacher H, Schider G, Hohenau A, Leitner A, Aussenegg F R 2003 *J. Microscop* **209** 167
- [15] Weeber J C, Lacroute Y, Dereux A, Devaux E, Ebbesen T, Girard C, González M U, Baudrion A L 2004 *Phys. Rev. B* **70** 235406
- [16] Gonzalez M U, Weeber J C, Baudrion A L, Dereux A, Stepanov A L, Krenn J R, Devaux E, Ebbesen T W 2006 *Phys. Rev. B* **73** 155416
- [17] Bouhelier A, Ignatovich F, Bruyant A, Huang C, Colas D, Francs G, Weeber J C, Dereux A, Wiederrecht G P, Novotny L 2007 *Opt. Lett.* **32** 2535
- [18] Novotny L, Hecht B 2006 *Principles of Nano-optics* (Cambridge: Cambridge Univ. Press)

Nanofocusing by phase delayed plasmonic nanostructures illuminated with a linearly polarized light

Song Wen-Tao¹⁾ Lin Feng¹⁾ Fang Zhe-Yu¹⁾ Zhu Xing^{1)2)†}

1) (School of Physics, State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

2) (National Center for Nanoscience and Nanotechnology, Beijing 100190, China)

(Received 11 May 2010; revised manuscript received 12 May 2010)

Abstract

We report the near-field nanofocusing through two types of plasmonic nanostructures consisting of annular grooves and annular slit, respectively. The radius of one half of each circle is designed to be bigger than the other half by half wavelength of the surface plasmon polaritons. By illuminating the structures with linearly polarized light, one single tight focal spot was detected by the scanning near-field optical microscope. Compared with the method of using radially polarized light, this method does not need to keep the center of the illuminating light right on the center of the structure, hence is much easier to use. Furthermore, theoretical simulations based on the finite-difference time-domain method testified the experimental results.

Keywords: near-field optical microscopy, surface plasmon polaritons, nanofocusing, linearly polarized light

PACC: 0779, 7320J, 4225J

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2007CB936800) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60977015).

† Corresponding author. E-mail: zhuxing@pku.edu.cn