

亚波长金属椭球周期阵列-金属薄膜复合结构的光透明特性研究

陈元浩 刘桂强 黄宽 胡莹 张向楠 蔡正杰

(江西师范大学物理与通信电子学院,江西省光电子与通信重点实验室,江西 南昌 330022)

摘要 设计了一种新型的亚波长透明金属结构,该结构由一层六角晶格排列的椭球形金纳米颗粒沉积在金膜上构成。使用时域有限差分法计算了该结构的透射特性,发现该金属结构具有强的光学透明现象。随着椭球纵横比或金膜厚度的增加,共振透射峰出现明显的蓝移,且透射率发生显著变化。此外还发现,金纳米椭球颗粒阵列位于金膜上表面时的透射率比位于下表面时的透射率要大。

关键词 材料;表面等离子体隧穿;金属纳米粒子;金属透明;表面等离子体共振

中图分类号 O436 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/LOP50.071602

Investigation of Optical Transparent Properties of Sub-Wavelength Complex Structure of a Metal Ellipsoid Periodic Array and a Metal Film

Chen Yuanhao Liu Guiqiang Huang Kuan Hu Ying
Zhang Xiangnan Cai Zhengjie

(Jiangxi Provincial Key Laboratory of Optoelectronics and Telecommunication, College of Physics and Communication Electronics, Jiangxi Normal University, Nanchang, Jiangxi 330022, China)

Abstract A novel sub-wavelength transparent metal structure consisting of with a layer of gold ellipsoid nanoparticles arranged into the hexagonal lattice on the surface of a gold film is proposed. The transmission characteristics of the structure are investigated by using the finite-difference time-domain (FDTD) method. Simulation results show that the structure presents pronounced optical transparent behaviors. With the increase of the ellipsoid aspect ratio or the gold film thickness, obvious blue shift of the narrow resonant peak appears, accompanied by the pronounced change in transmittance. The transmission spectrum with much narrower peak is achieved in the proposed structure as compared to that of the structure with a gold nanosphere array on the thin gold film. In addition, we also find that the transmittance of the structure with the gold ellipsoid array on the top surface of the gold film is larger than that with the gold ellipsoid array on the bottom surface of the gold film.

Key words materials; surface plasmon tunneling; metal nanoparticle; metal transparency; surface plasmon resonance

OCIS codes 160.4760; 120.7000; 120.2440; 310.6860

1 引言

金属等离子体结构因其表面等离子体的激发而显示许多新奇的光学现象,如抗反射、增强透射及等离子

收稿日期: 2013-04-18; 收到修改稿日期: 2013-04-20; 网络出版日期: 2013-06-21

基金项目: 国家自然科学基金(11004088,11264017)、江西省自然科学基金(2010GQW0025,20122BAB202006)、江西省科技攻关项目(20112BBE50033)、江西省教育厅科技项目(GJJ10099,GJJ13234)

作者简介: 陈元浩(1988—),男,硕士研究生,主要从事光电技术和光子晶体等方面的研究。

E-mail: chenyanhao1988@gmail.com

导师简介: 刘桂强(1977—),女,副教授,主要从事光电技术和光子晶体等方面的研究。E-mail: liugq83@163.com (通信联系人)

体布拉格反射等,故在表面增强拉曼散射、受激辐射放大器、传感器等领域具有广泛的应用前景^[1-3]。1998年,Ebbesen等^[4]发现具有纳米孔阵列的金属膜的奇特光学透射现象,该现象引起了人们的广泛关注^[5-6]。研究发现,由周期孔阵列或狭缝构成的金属薄膜的光透明现象主要是由于表面等离子体共振对电场的增强作用引起的^[7-8]。但这种表面等离子体共振通常具有宽带宽或短生命周期特性,这在很大程度上限制了它的应用范围^[9-10]。

金属纳米颗粒由于其局域表面等离子体的激发而显示出窄带光学行为,且其带宽可通过改变粒子与粒子间的近场相互作用或者远场衍射耦合来调节^[11-13]。目前,已有大量研究集中在由周期性纳米粒子阵列(球形、柱体、三角锥体)和金属薄膜构成的复合结构的光学特性方面^[14-18]。研究发现,因金属纳米颗粒和金属膜间的耦合强度要远大于金属纳米颗粒与普通氧化物基底间的耦合强度^[17],故由金属纳米颗粒与金属膜组成的复合结构显示出了更强的光透明现象^[19-20],这在新型滤波片、太阳能电池薄膜等方面具有广泛的应用前景。金属纳米椭球具有不同于球形、柱体和三角锥体的特殊性质,如各向异性,故由金属纳米椭球和金属薄膜组成的复合结构可能会产生许多新奇的光学现象。但国内外目前还没有关于利用金属椭球周期阵列和金属薄膜构成的复合结构来实现金属透明的研究。

本文设计了一种由金纳米椭球颗粒周期阵列和金膜组成的新型三维亚波长透明金属复合结构,并利用时域有限差分法(FDTD)计算了该复合结构的光学透射行为,研究了结构产生的共振峰的位置、带宽以及透射强度与椭球纵横比、金膜厚度的关系,分析了金纳米椭球颗粒阵列分别位于金膜的上下表面时光透射率的变化情况,并对这些现象的物理机理进行了分析。

2 结构模型设计

所研究的亚波长金椭球周期阵列-金膜复合结构由一层金纳米椭球颗粒平铺在金膜上构成,如图1所示。其中,金纳米椭球颗粒排列成二维六角晶格形状,其长轴、短轴、纵横比分别用 a 、 b 和 r 来表示,其中 $a = 60 \text{ nm}$, $r = a/b$ 。金膜厚度用 d 来表示。

利用FDTD计算该结构的光学行为,在计算过程中,沿 z 轴方向的计算区域采用完美匹配层吸收边界来进行截取,沿 x 方向和 y 方向的边界则采用周期边界条件。具有一定频带宽度的高斯脉冲信号在位于该结构上方 400 nm 的位置垂直于 xoy 平面入射(如图1所示)。金的介电常数可由Drude模型^[21]算得:

$$\epsilon_m(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega},$$

式中 ω_p 是等离子体频率, γ 是能量损失的碰撞频率。

3 结果和讨论

首先研究了复合结构中椭球纵横比对光学透射率的影响,结果如图2所示。此时,椭球周期阵列位于金膜上表面, $d = 20 \text{ nm}$, b 从 20 nm 增加到 60 nm ,即 r 从 3 减小到 1 。从图2可见,随着 r 的减小,该复合结构的透射光谱出现明显的红移现象,且光透射率呈现先增强后减弱的变化趋势。当 $r = 3$ 时,共振峰中心波长位于 437 nm 附近,透射现象不明显,透射率低于 20% ;当 $r = 6/5$ 时,光学透射最强,光透射率高达 43% ;当 $r = 1$ 时,对应球形颗粒周期阵列结构,该复合结构共振峰的中心波长为 485 nm ,透射强度轻微减弱。金属纳米颗粒从椭球逐渐转为球形,体系的有效折射率增加,导致透射光谱发生红移现象;而透射强度的变化则取决于体系表面等离子体的共振耦合模式和耦合强度。此外,随着椭球纵横比的增加,透射峰逐渐变窄,这是由于椭球颗粒的各向异性特性及局域表面等离子体的共振激发所致。

图2中的插图为 $r = 6/5$ 和 1 时,该复合结构的电场分布图(虚线矩形框表示金膜位置)。从插图可见,

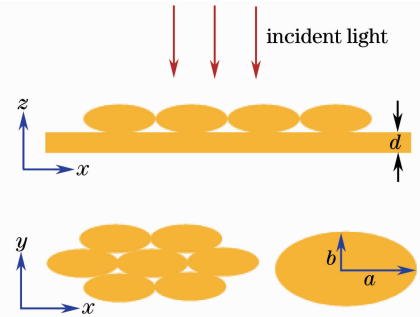


图1 金纳米椭球阵列-金膜复合结构及椭球排列模式
Fig. 1 Schematic diagram of the structure with a gold ellipsoid periodic array on the top of gold film and the arrangement of ellipsoids

无论是球还是椭球阵列,电磁场能量主要局域在粒子与粒子、粒子与薄膜所形成的空隙中。粒子间的强局域电磁场说明在粒子与粒子之间产生了强的近场光-物质相互作用;颗粒间的强近场光-物质相互作用进一步激发了金膜的表面等离子体,致使在粒子与膜间出现了强的局域电磁场,而表面等离子体反过来又与颗粒的局域表面等离子体发生强耦合作用,进而导致这种单面周期性褶皱结构^[17-18]的强光学透射行为^[22]。但当 $r=1$ 时,在粒子与粒子、颗粒与膜之间的电磁场能量相对于 $r=6/5$ 时要弱,相当多的能量被反射到颗粒阵列上边的空气中,导致金球形颗粒阵列-金膜复合结构的光透射率减小。

研究了金膜厚度对复合结构光透射率的影响,结果如图3所示。椭球阵列位于金膜上表面, $b=30\text{ nm}$, $r=2$,金膜厚度 d 从 10 nm 增加到 40 nm 。从图3可见,随着金膜厚度的增加,出现了两个明显的变化。首先,透射光谱的共振峰出现明显蓝移,当光波穿过椭球形金属颗粒阵列后进入到椭球颗粒和薄膜之间所形成的不规则腔中,光波在腔内无规则反射,某些特定波长相干加强,形成共振,相干加强后再从金属薄膜中隧穿出去,而某些波长的光无法形成共振,被吸收和局域在腔内,从而导致透射光谱发生蓝移现象^[22]。其次,透射强度随着金膜厚度的增加急剧减小,透射率从 0.48 几乎减小到 0 ,这是由于金膜厚度的增加阻碍了表面等离子体的共振隧穿,致使光透射减弱。

图3插图是 $d=10\text{ nm}$ 和 40 nm 时的电场分布图(虚线矩形框表示金膜位置)。当 $d=10\text{ nm}$ 时,粒子与粒子、粒子与膜之间的相互作用都很强,能量主要局域在粒子与粒子、粒子与薄膜之间的纳米空隙中,证明了该结构中光学透明行为主要源于粒子与粒子间、粒子与膜之间的近场相互作用以及它们之间的等离激元共振耦合作用^[19]。而当 $d=40\text{ nm}$ 时,粒子与粒子、粒子与膜之间的相互作用较弱,这说明金膜厚度的增加降低了等离激元共振的耦合作用。

最后,还研究了椭球阵列位置的不同对光透射率的影响,结果如图4所示。此时,椭球阵列位于金膜下表面, $d=20\text{ nm}$, r 从 3 减小到 1 。同样,复合结构的共振峰随着 r 的减小出现了明显的红移。当 $r=3/2$ 时,透射最强,但其最大透射率与图2相比要小,这说明椭球阵列位于金膜上表面时,该结构的光学透射行为更

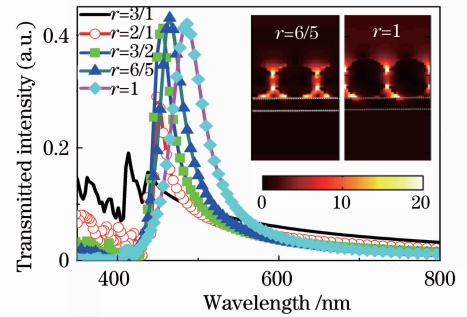


图2 椭球在金属薄膜上表面时,透射光谱与椭球纵横比的关系,插图为 $r=6/5$ 和 $r=1$ 时的电场分布图

Fig. 2 Transmission spectra of the structures with different aspect ratios of gold ellipsoids on the top surface of the gold film. Inset: field intensity $|E|^2$ distribution profiles when $r=6/5$ and $r=1$

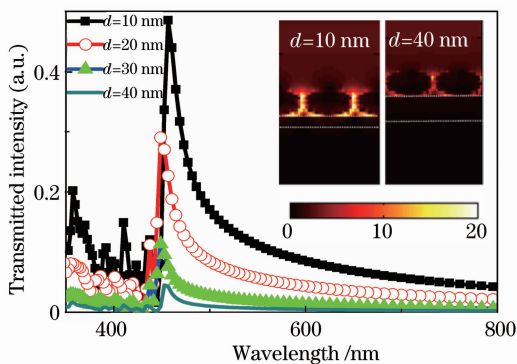


图3 薄膜厚度变化时的透射光谱图,插图为 $d=10\text{ nm}$ 和 $d=40\text{ nm}$ 时的电场分布图

Fig. 3 Transmission spectra of the structure with different thickness of gold film. Inset: field intensity $|E|^2$ distribution profiles when $d=10\text{ nm}$ and $d=40\text{ nm}$

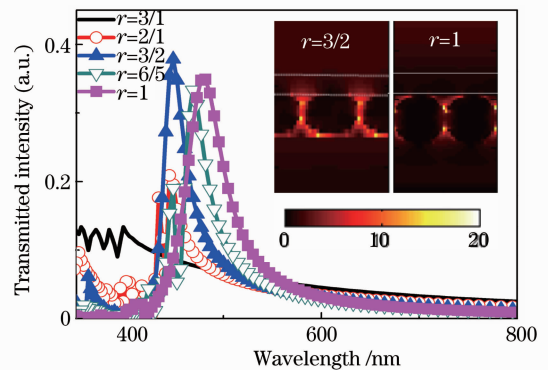


图4 椭球在金属薄膜下表面时,透射光谱随纵横比的变化关系,插图为 $r=3/2$ 和 $r=1$ 时的电场分布图

Fig. 4 Transmission spectra of the structure with different aspect ratios of gold ellipsoids on the bottom surface of the gold film. Inset: field intensity $|E|^2$ distribution profiles when $r=3/2$ and $r=1$

明显。为了深入分析这两种不同的情况,进一步研究了其电场分布模式,其结果如图4中的插图所示。从图可见,当 $r=3/2$ 时,电磁场能量主要集中在椭球与椭球、椭球与膜之间的纳米空隙中,这说明椭球与膜之间的等离子体耦合起到了主要的作用^[20],但椭球与椭球、椭球与膜之间的局域等离子体共振行为相对于图2而言要弱,这是因为更多的光能量被反射到了自由空间,导致了透射光的减弱。而当 $r=1$ 时,颗粒之间、颗粒与膜之间的弱电磁场分布证明该结构中的近场等离子体相互作用、等离子体共振耦合作用均减弱。可见,椭球周期阵列结构更有助于近场等离子体及等离子体共振耦合的激发。

4 结 论

提出了一种由一层有序金属纳米椭球颗粒阵列与金属薄膜所构成的新型亚波长透明金属复合结构,利用FDTD对其光学透射特性进行分析和研究,发现由于金属纳米椭球颗粒的亚波长周期结构有助于激发金膜的表面等离子体效应以及椭球金纳米颗粒的局域等离子体效应,从而可以得到特殊的光学透明现象;位于450 nm附近的窄共振峰随椭球纵横比和金膜的厚度变化而发生偏移,光学透射率也会发生急剧的变化;同时,金椭球阵列-金膜复合结构的透射率也和椭球阵列在金膜上下表面的位置有关。这为基于亚波长结构金属透明现象的研究提供了很好的结构模型,有助于促进其在新型光电子学器件领域的应用发展。

参 考 文 献

- 1 Zhang Bingxin, Chen Shufen, Fu Lei, *et al.*. A temperature-controlled tunable plasmonic dual-band absorber [J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(7): 0723005.
张兵心, 陈淑芬, 付雷, 等. 一种温控的可调表面等离子体光学器件[J]. *光学学报*, 2012, 32(7): 0723005.
- 2 Peng Yang, Hou Jing, Huang Zhihe, *et al.*. Using surface plasmon resonance to control the reflection index of mirror [J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(1): 0124001.
彭杨, 侯静, 黄值河, 等. 表面等离子体共振控制镜面反射率[J]. *光学学报*, 2012, 32(1): 0124001.
- 3 Li Zhiquan, Zhu Jun, Niu Liyong, *et al.*. Manufacture of SPASER amplifier with metal-insulator-metal structure [J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(8): 0823002.
李志全, 朱君, 牛立勇, 等. 金属-绝缘体-金属结构的表面等离子体共振放大辐射放大器的研制[J]. *光学学报*, 2012, 32(8): 0823002.
- 4 T W Ebbesen, H J Lezec, H F Ghaemi, *et al.*. Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays [J]. *Nature*, 1998, 391(6668): 667-669.
- 5 W-C Tan, T W Preist, R J Sambles. Resonant tunneling of light through thin metal films via strongly localized surface plasmons [J]. *Phys Rev B*, 2000, 62(16): 11134-11138.
- 6 Z Sun, X Zuo. Tunable absorption of light via localized plasmon resonances on a metal surface with interspaced ultra-thin metal gratings [J]. *Plasmonics*, 2011, 6(1): 83-89.
- 7 S A Darmanyan, A V Zayats. Light tunneling via resonant surface plasmon polariton states and the enhanced transmission of periodically nanostructured metal films: an analytical study [J]. *Phys Rev B*, 2003, 67(3): 035424.
- 8 Y C Lan. Optical tunneling effect of localized surface plasmon; a simulation study using particle-in-cell method [J]. *Appl Phys Lett*, 2006, 88(7): 071109.
- 9 I Avrutsky, Y Zhao, V Kochergin. Surface-plasmon-assisted resonant tunneling of light through a periodically corrugated thin metal film [J]. *Opt Lett*, 2000, 25(9): 595-597.
- 10 N Bonod, S Enoch, L Li, *et al.*. Resonant optical transmission through thin metallic films with and without holes [J]. *Opt Express*, 2003, 11(5): 482-490.
- 11 B F Bai, L F Li, L J Zeng. Experimental verification of enhanced transmission through two-dimensionally corrugated metallic films without holes [J]. *Opt Lett*, 2005, 30(18): 2360-2362.
- 12 S A Maier, H A Atwater. Plasmonics: localization and guiding of electromagnetic energy in metal/dielectric structures [J]. *J Appl Phys*, 2005, 98(1): 011101.
- 13 F Wang, Y R Shen. General properties of local plasmons in metal nanostructures [J]. *Phys Rev Lett*, 2006, 97(20): 206806.
- 14 J Cesario, R Quidant, G Badenes, *et al.*. Electromagnetic coupling between a metal nanoparticle grating and a metallic surface [J]. *Opt Lett*, 2005, 30(24): 3404-3406.

- 15 A Hohenau, J R Krenn, J Beermann, *et al.*. Spectroscopy and nonlinear microscopy of Au nanoparticle arrays: experiment and theory [J]. *Phys Rev B*, 2006, 73(15): 155404.
- 16 Chen Yuanhao, Liu Guiqiang, Gong Lixia, *et al.*. Optical properties and fluorescence modification of the sandwich structure composed of ultra-thin gold films, light-emitting layers and photonic crystals [J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(10): 1016001.
陈元浩, 刘桂强, 龚丽霞, 等. 超薄金膜-发光层-光子晶体三明治结构的光学特性及荧光调制[J]. *光学学报*, 2012, 32(10): 1016001.
- 17 N Papanikolaou. Optical properties of metallic nanoparticle arrays on a thin metallic film [J]. *Phys Rev B*, 2007, 75(23): 235426.
- 18 N Féridj, J Aubard, G Levi, *et al.*. Enhanced substrate-induced coupling in two-dimensional gold nanoparticle arrays [J]. *Phys Rev B*, 2002, 66(24): 245407.
- 19 S Xie, H Li, S Fu, *et al.*. Surface plasmon tunneling through a touching gold nanocylinder array on a thin gold film [J]. *Opt Commun*, 2011, 284(7): 2036–2041.
- 20 Chen Juan, Yan Lianshan, Pan Wei, *et al.*. Comparison of transmission properties of two kinds of subwavelength metallic wave plates [J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(4): 0405001.
陈娟, 闫连山, 潘炜, 等. 两种亚波长金属波片的透射特性对比[J]. *光学学报*, 2012, 32(4): 0405001.
- 21 P Drude. Zur elektronentheorie der metalle [J]. *Ann Phys*, 1900, 306(3): 566–613.
- 22 Cao Qing, Philippe Lalanne. Negative role of surface plasmons in the transmission of metallic gratings with very narrow slits [J]. *Phys Rev Lett*, 2002, 88(5): 057403.