

文章编号: 0253-2239(2006)08-1236-4

用扫描近场光学显微镜技术研究金膜表面 等离子体子共振*

郑建亚¹ 于晓明² 张天浩^{1,2**} 方哲宇² 杨海东² 尹美荣² 贾峰²
康慧珍² 路彦珍³ 杨大鹏² 杨嘉² 满江伟²

1 南开大学物理科学学院实验中心, 天津 300071
2 南开大学物理科学学院光子学中心弱光非线性光子学材料先进技术及设备教育部实验室,
天津市信息光子材料与技术重点实验室, 天津 300071
3 石家庄机械化步兵学院文化教研室, 石家庄 050083

摘要: 表面等离子体波 (SPW) 可与入射光横磁波极化能量耦合并被共振激发, 这种现象被称为表面等离子体共振现象 (SPR)。主要利用扫描近场光学显微镜 (SNOM) 技术和表面等离子体共振现象技术相结合, 来研究金膜表面等离子体共振。设计并建立了结构独特的新型 Kretschmann 型表面等离子体共振现象耦合装置, 同时又设计了具有厚度梯度的表面等离子体的制备方法。在此基础上, 测量了改变入射角条件下的表面等离子体共振曲线, 测得该装置的等离子体共振角灵敏度为 1° 。并且对金膜表面进行表面等离子体共振条件下的扫描近场光学显微成像。实验结果表明, 在共振时金膜表面的扫描成像比不共振时清晰, 而且增加了很多细节。应用表面等离子体共振现象技术将可以明显提高扫描近场光学显微镜的信噪比、分辨力等性能。

关键词: 近场光学; 表面等离子体波; 表面等离子体共振; 扫描近场光学显微镜; 克里施曼配置
中图分类号: TH742 文献标识码: A

Research of Surface Plasmon Resonance on Gold Film Using Scanning Near-Field Optical Microscopy

Zheng Jianya¹ Yu Xiaoming² Zhang Tianhao^{1,2} Fang Zheyu² Yang Haidong²
Yin Meirong² Jia Feng² Kang Huizhen² Lu Yanzhen³ Yang Dapeng²
Yang Jia² Man Jiangwei²

1 *Experiment Center, College of Physics, Nankai University, Tianjin 300071*
2 *Key Laboratory of Advanced Technique and Equipment for Weak-Light Nonlinear Photonics Materials, Ministry of Education, Tianjin Municipal Key Laboratory of Photonics Materials and Technology for Information Science, Photonics Research Center, Nankai University, Tianjin 300071*
3 *Literacy Staff Room, Shijiazhuang Mechanized Infantry College, Shijiazhuang 050083*

Abstract: Surface plasmon resonance (SPR) is a phenomenon induced by the polarizing energy coupling and resonant exciting of surface plasmon wave and incident TM light wave. The SPR on gold film is studied with combination of scanning near-field optical microscope (SNOM) and SPR technique. A novel Kretschmann type of SPR coupling device with special structure is designed and set up, and the fabrication method of surface plasmon with thickness gradient is presented. Based on the above preparation, the curve of SPR is measured with varied incident angle conditions, and the angle sensitivity for SPR is 1° . The image of gold film surface is obtained with SNOM under SPR conditions, and it is found that the image is clearer under SPR condition than that without SPR and more details are distinguished. The performances, such as signal-noise ratio and resolution, for SNOM are greatly improved with the SPR technique.

Key words: near-field optics; surface plasmon wave; surface plasmon resonance; scanning near-field optical microscope; Kretschmann configuration

* 国家自然科学基金(60208002)、南开大学本科生科技创新项目和长江学者及创新团队发展计划资助课题。

作者简介: 郑建亚(1957~), 男, 南开大学物理科学学院高级工程师, 主要从事近场光学、表面非线性光学等方面的研究。

** 通信联系人。E-mail: zhangth@nankai.edu.cn

收稿日期: 2005-08-09; 收到修改稿日期: 2005-11-24

1 引言

表面等离子体波 (Surface plasmon wave, SPW) 也称为表面电浆波, 是金属表面自由电子的一种集团运动。在一定条件下, 可与入射光横磁波 (TM) 极化能量耦合并被共振激发, 这种现象称为表面等离子体共振 (Surface plasmon resonance, SPR)。表面等离子体共振现象技术广泛应用于各类生化传感器和物理量测量仪器。

近几年已有一些学者进行了将表面等离子体共振现象技术与扫描近场光学显微镜 (Scanning near-field optical microscope, SNOM) 相结合的研究工作^[1~5]。由于扫描近场光学显微镜大多采用纳米量级的探针, 因而探针孔径限制了近场光信号的强度^[6~9]。利用表面等离子体共振现象共振增强效应可以大大提高近场光信号的强度, 从而提高扫描近场光学显微镜的信噪比和分辨力。

本文介绍了我们研制的表面等离子体共振现象的扫描近场光学显微镜系统及使用此系统所作的相关研究工作。包括: 1) 建立了结构独特的新型的 Kretschmann 型表面等离子体共振现象耦合装置; 2) 对表面等离子体共振现象共振增强峰的测量; 3) 共振条件下金膜表面的扫描近场光学显微成像。

2 Kretschmann 型表面等离子体共振现象耦合方式的原理

目前普遍采用 Kretschmann 型表面等离子体共振现象耦合方式来实现表面等离子体共振, 其原理图如图 1 所示^[10]。通常通过真空蒸镀、磁控溅射等方法在棱镜表面镀一层几十纳米厚的高反射率薄膜如金、银膜。

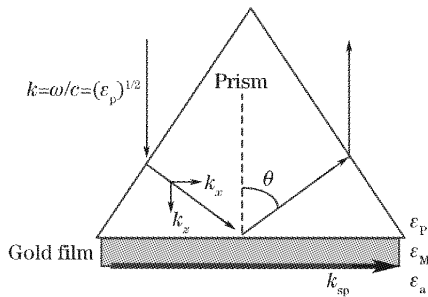


图 1 Kretschmann 型表面等离子体共振耦合方式

Fig. 1 Kretschmann type of surface plasmon resonance

根据麦克斯韦方程, 可以推导出该表面等离子体波的波数 k_{sp} :

$$k_{sp} = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_M \epsilon_a}{\epsilon_M + \epsilon_a} \right)^{1/2} \quad (1)$$

当 p 偏振的入射光通过棱镜入射到金属表面时, 入射光波矢 k 在 x 方向上的投影 k_x 为

$$k_x = \epsilon_p^{1/2} \frac{\omega}{c} \sin \theta. \quad (2)$$

以上两式中, ϵ_M 、 ϵ_a 、 ϵ_p 依次为金属介电常量的实部、金属表面电介质的介电常量、棱镜介电常量, 当 $k_x = k_{sp}$ 时, 就产生共振, 共振角为

$$\theta_{sp} = \arcsin \left(\frac{\epsilon_M \epsilon_a}{\epsilon_M + \epsilon_a} \frac{1}{\epsilon_p} \right)^{1/2}. \quad (3)$$

处于共振的表面等离子体波发射与全内反射出射光同向的光, 当金属膜厚度合适时, 可与从棱镜-金属表面反射回去的光干涉相消, 此时反射光最弱, 称为衰减全反射 (Attenuated total reflection, ATR), 这是表面等离子体共振现象的最显著标志。

3 实验装置和技术

合适的金属膜厚度是达到最大的共振深度的关键因素之一。我们设计了如图 2 所示的镀膜方法以得到最合适的膜厚。在使用离子溅射法向棱镜上镀金膜时, 设法使棱镜倾斜, 得到的金膜将有一个厚度梯度。这样可以在金膜上找到厚度最合适的区域。

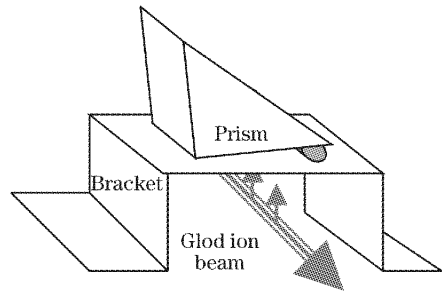


图 2 离子溅射法镀制有厚度梯度的金膜

Fig. 2 Fabrication of gold film with thickness gradient using ion sputtering method

研究金膜表面等离子体共振的扫描近场光学显微系统如图 1 所示。激光通过耦合器耦合到光纤里, 再通过另一个置于防震台内的耦合器将激光转换为平行光输出, 最后经带有平移微调装置的反射镜反射后通过消球差凸透镜聚焦。棱镜的一个直角面镀金膜, 调节样品台的位置使凸透镜的焦点置于该直角面上, 调节探针位置使针尖对准焦点。通过平移台调整反射镜位置用以改变入射角, 由于选择凸透镜为消球差透镜, 对于平行入射光束具有较理想的位置不变的焦点, 因而平移反射镜的位置, 可保证平行激光光束聚焦焦点位置始终不变, 在改变入射角的同时光线无偏差。平移台精度为 $2 \mu\text{m}$ 且凸

透镜焦距较长,因而此装置角灵敏度优于 5×10^{-4} 弧度。通过偏振片调整入射光以 p 偏振入射。这种表面等离子共振现象耦合装置的显著优点是:1) 全部使用最常规的光学器件,省去了同类仪器中常用的笨重昂贵的旋转台、菱形臂和半球形棱镜等器件;2) 具有较高的入射角灵敏度;3) 直角棱镜的金膜整个表面都可以利用,而使用半球形的棱镜的同类仪器只能利用球心部位的金膜,可用范围有限。

多模式扫描探针显微镜电子学控制箱是在 DS89 型 STM 系统上改造而成的,可控制系统进行扫描隧道显微镜、光子扫描隧道显微镜、剪切力扫描力显微

镜、扫描近场光学显微镜等四种模式扫描成像^[11]。图 3 所示的系统可以使用扫描近场光学显微镜模式,此时使用一个锁相放大器激励石英音叉并检测反馈电流,探针-样品间距由音叉反馈电流的大小来控制,同时使用光纤探针接收光学信号并对样品扫描成像;也可以使用光子扫描隧道显微镜模式,此时由另一个锁相放大器控制斩波器并检测光电倍增管(PMT)输出,探针-样品间距由光纤探针采集的近场光信号强度来控制;此外,还可以使用剪切力扫描力显微镜模式,直接对样品表面形貌扫描成像,探针-样品间距也是由监测石英音叉的电流来控制。

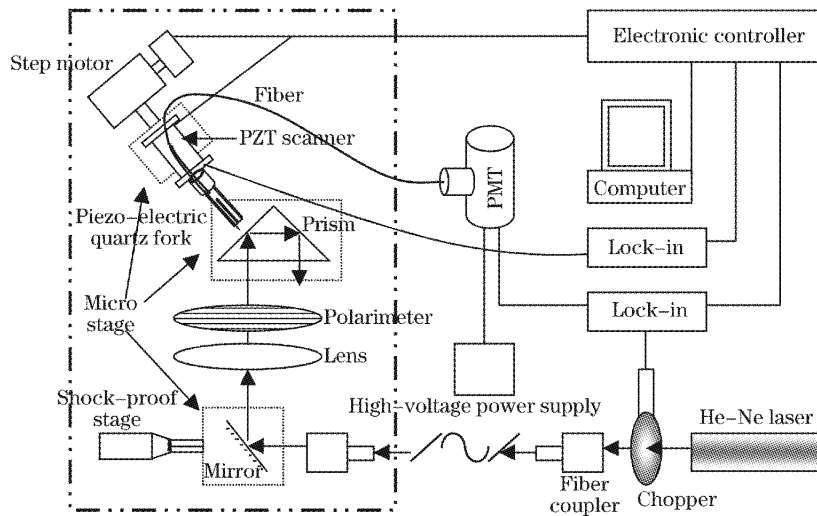


图 3 应用表面等离子共振技术的扫描近场光学显微镜系统

Fig. 3 Scanning near-field optical microscope (SNPM) based on surface plasmon resonance technique

4 结果与讨论

在剪切力模式下,调整探针进入金膜样品近场区域,保持探针-金膜间距不变,通过扫描近场光学显微镜光纤探针检测光信号,当探测点 $x-y$ 方向光信号无太大差别时,探测光纤已处于探测的最佳位置。否则退针调整探针位置,再重新进针以保证针尖处于聚焦激光束焦点中心区域。通过平移台调整反射镜位置从而改变激光光束入射角 θ ,此时激光光束焦点位置不变。探测光纤接收近场光信号的强度(由光电流 I 表示),得到如图 4 所示的 $I-\theta$ 曲线,半峰全宽为 1° ,因而该装置的表面等离子共振角灵敏度为 1° 。由于近场光信号强度与表面等离子波成正比,因此图 4 也是表面等离子共振现象曲线。图中共振峰的半峰全宽取决于凸透镜 12 处激光束半峰全宽和凸透镜焦距。实验中激光束半峰全宽为 1.4 mm,焦距为 8.0 cm,对应的半峰全宽为 1° ,与实验结果相吻合。图 5(a)、图 5(b)是

分别在表面等离子不共振和共振条件下对金膜表面的同一区域近场光学扫描成像结果 ($5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$)。相比之下,共振时金膜表面的像比不共振时清晰,而且增加了很多细节。由此可以看出应用表面等离子共振现象技术可以明显提高扫描近场光

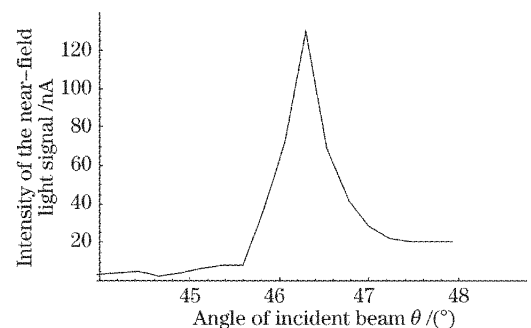


图 4 近场光信号 I 随激光入射角 θ 的变化曲线

Fig. 4 Relationship of near-field light signal intensity I and incident angle θ

学显微镜的信噪比、分辨力等性能。

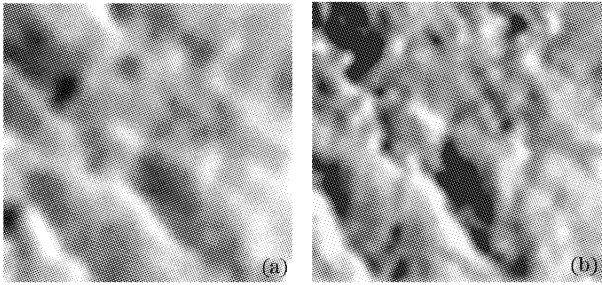


图 5 金膜表面 SNOM 扫描成像图 ($5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m}$)。

不用(a),采用(b)表面等离子体共振技术

Fig. 5 Scanning images using SNOM. (a) Without SPR technique, (b) based on SPR technique

利用扫描近场光学显微镜技术对金膜表面等离子体共振进行了分析,结果发现在表面等离子体共振条件下,扫描近场光学显微镜对金膜表面的扫描成像比不共振时清晰。将表面等离子体共振技术应用于扫描近场光学显微镜,其光信号强度、信噪比和分辨力得以提高,性能大大优于传统的扫描近场光学显微镜。此系统进而可以应用于多方面研究工作,如:利用近场光信号的共振增强,可以得到高信噪比的近场光谱;结合荧光技术实现单分子识别;此外,还可以开展表面等离子体波传播特性分析以及纳米尺度光学加工和光存储等^[12]。

参 考 文 献

- 1 U. Fischer, D. Pohl. Observation of single-practice plasmons by near-field optical microscopy [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **62**(4): 458~461
- 2 O. Marti, H. Bielefeldt, B. Hecht *et al.*. Near-field optical measurement of the surface plasmon field[J]. *Opt. Commun.*, 1993, **96**: 225~228
- 3 S. Bozhvolnyi, I. Smolyaninov, A. Zayats. Near-field microscopy of surface-plasmon polaritons: Localization and internal interface imaging[J]. *Phys Rev. B*, 1995, **51**(24): 17916~17924

- 4 I. Smolyaninov, D. Mazzoni, J. Mait *et al.*. Experimental study of surface-plasmon scattering by individual surface defects[J]. *Phys. Rev. B*, 1997, **56**(3): 1601~1611
- 5 M. Specht, J. Pedarnig, W. Heickl *et al.*. Scanning plasmon near-field microscope[J]. *Phys. Rev.*, [1] Otto A. Excitation of radiative Surface Plasmon Waves in Silver by the Method of Frustrated Total Reflection[J]. *Z. Physik*, 1968, **216**: 398~410
- 6 Mi Changwen, Wang Keyi, Xu Jianbin. Application of polarization-modulation near field scanning optical microscope [J]. *J. Chinese Electron Microscopy Society*, 2005, **22**(3): 234~236 (in Chinese)
- 糜长稳,王克逸,许建斌. 偏振光调制的扫描近场光学显微镜应用[J]. *电子显微学报*, 2005, **22**(3): 234~236
- 7 Xu Tiejun, Xu Jiying, Wang Jia *et al.*. Numerical analysis of interaction and perturbation between evanescent field and probe in optical field detection by SNOM[J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(4): 465~469 (in Chinese)
- 徐铁军,许吉英,王佳等. 扫描近场光学显微镜与光场相互作用分析[J]. *光学学报*, 2005, **25**(4): 465~469
- 8 Jian Guoshu, Bai Fei, Pan Shi *et al.*. The numerical simulation of photon scanning tunnel microscope's image with metallic particle probe[J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(4): 470~474 (in Chinese)
- 简国树,柏菲,潘石等. 探针尖端金属微粒的光子扫描隧道显微镜成像数值模拟[J]. *光学学报*, 2005, **25**(4): 470~474
- 9 Chen Xiaogang, Min Hai, Zhang Guoping *et al.*. Reflection properties of guided wave in fiber taper used for scanning near-field optical microscopy[J]. *Acta Optica Sinica*, 1999, **19**(6): 826~829 (in Chinese)
- 陈晓刚,明海,张国平等. 扫描近场光学显微镜光纤锥中导波反射特性[J]. *光学学报*, 1999, **19**(6): 826~829
- 10 Kretschmann E. Die bestimmung optischer konstanten von metallen durch anregung von oberflächen-plasma schwingungen [J]. *Z. Physik*, 1971, **241**: 313~324
- 11 Zhang Tianhao, Zhang Chunping, Zhang Guangyin *et al.*. The establishment of multi-mode scanning probe microscope based on STM[J]. *J. Optoelectronics*, 2001, **12**(2): 174~178 (in Chinese)
- 张天浩,张春平,张光寅等. 基于STM的多模式扫描探针显微镜的建立[J]. *光电子·激光*, 2001, **12**(2): 174~178
- 12 Zhang Tianhao, Yin Meirong, Fang Zheyu *et al.*. New applications of surface plasmon resonance technology[J]. *Phys.*, 2005, **34**(12): 909~914 (in Chinese)
- 张天浩,尹美容,方哲宇等. 表面等离子体共振技术的一些新应用[J]. *物理*, 2005, **34**(12): 909~914