

文章编号: 0253-2239(2009)06-1638-06

金膜上亚波长周期性孔阵的模拟与研制

王 卉¹ 曾 韡¹ 宋国峰²

(¹复旦大学材料科学系, 上海 200433; ²中国科学院半导体研究所, 北京 100083)

摘要 分析了 980 nm 波长的光在透过制作在金膜上的亚波长周期性孔阵时的透射增强现象。通过建立中心带缺陷孔的三角晶格的孔阵模型, 并采用三维时域有限差分方法对该模型的透射情况进行模拟分析。结果表明通过优化孔阵周期参数可以对特定波长的光实现一定程度的选择透过性。当孔阵周期为 450 nm, 中心缺陷孔径为 400 nm, 孔阵中单个孔孔径为 150 nm 时, 980 nm 波长光透过该孔阵时具有明显的透射增强效应, 并且距孔阵表面 3 μm 的远场光斑尺寸被局限在亚波长尺度(880 nm)。研究了使用聚焦离子束在金膜上制备孔阵的工艺, 成功研制了与设计尺寸一致的孔阵。这种孔阵可以集成在 980 nm 垂直腔面发射激光器上, 用于改善器件的远场光学特性。

关键词 表面等离子体光子学; 亚波长周期性孔阵的透射增强效应; 三维时域有限差分方法; 聚焦离子束

中图分类号 TN29 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20092906.1638

Simulation and Development of Subwavelength Periodic Hole Array on Au Film

Wang Hui¹ Zeng Wei¹ Song Guofeng²

(¹Department of Material Science, Fudan University, Shanghai 200433, China
²Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract The enhanced transmission phenomenon of 980 nm wavelength light through sub-wavelength periodic hole arrays on Au film was analyzed. A triangular lattice hole arrays model with centric defect mode hole was established. By using three-dimensional finite difference time domain(3D-FDTD)method, the property of transmission has been numerically analyzed. The results show that the transmission with given wavelength can be enhanced by optimizing the periodic parameters of hole arrays. When the period of hole arrays, diameter of centric hole and diameter of air holes are 450 nm, 400 nm, 150 nm respectively, the transmission field can be confined to a spot with sub-wavelength width (880 nm) in 3 μm far-field from hole array surface. The fabrication technology of hole array on Au film by using focused ion beam (FIB) was studied, and the expected hole array was developed. This hole arrays can be integrated onto a 980 nm wavelength VCSEL lasers to optimize the far-field characteristic of the device.

Key words plasmonics; enhanced transmission phenomenon of sub-wavelength periodic hole arrays; three-dimensional finite difference time domain(3D-FDTD); focused ion beam (FIB)

1 引 言

Ebbesen 等人首次报道了^[1]光在穿过金属膜上的亚波长周期性孔阵时出现的透射增强现象:透射光的能量与入射光能量的比值大于孔阵的占空比,比传统衍射理论的估计值提高了 10^4 量级。目前对这种透射增强现象最常见的解释是表面等离

子体激元(Surface plasma polaritons, SPP)^[2~4]理论。表面等离子体激元是一种倏逝波(evanescent wave),在平行于金属表面的方向传播,在垂直于金属表面方向的能量呈指数下降。一种典型的表面等离子体结构是在将金属膜镀于介质膜上,并在金属膜上制作类似于光子晶体的周期性孔阵。

收稿日期: 2008-04-20; **收到修改稿日期**: 2008-11-10

作者简介: 王 卉(1983-),女,硕士研究生,主要从事表面等离子体效应与半导体激光器方面的研究。

E-mail: 052030011@fudan.edu.cn

导师简介: 曾 韡(1970-),男,副教授,硕士生导师,主要从事材料学与器件失效分析方面的研究。

E-mail: sganmc@fudan.edu.cn

特定频率范围的光波入射到这种孔阵上时,表面等离子体激元被激发并在周期性结构中传播,激元间的相互作用以及周期性孔阵对它们的散射产生了带隙现象,当满足布洛赫波产生条件时还会导致透射增强现象。该透射增强现象是由三个主要的机制在同时作用:一是表面等离子体的激发,入射光在介质/金属界面与周期性孔阵相互作用,形成表面等离子体激元;二是由于周期性金属表面导致的表面等离子体晶体的光子能带选择;三是选择出来的表面等离子体模式在金属/空气界面再度转化为光波。目前,围绕表面等离子体进行着大量的理论与应用研究,而该技术更被广泛地应用于激光器、光纤及传感器^[5~8]等领域。

许多理论研究表明^[9~14],通过改变周期性结构的特征参数(光栅的周期占空比,孔阵的周期、孔径、孔深等),可以有效改变透射峰的位置和峰值强度。选择特定的介质膜与金属膜后,调整孔阵的周期常数,就可以有效控制透射光的波长,使得某一特定波长的光波在透过该孔阵时具有最大的透射率。

本文使用三维结构的时域有限差分方法(3D-FDTD)对亚波长周期性孔阵的透射情况进行了数字模拟,模拟结构包括二氧化硅薄膜与溅射于其上的金膜,并在金膜上制作了三角晶格的孔阵。模拟结果显示透过该孔阵的光具有明显的透射增强现象,远场光斑尺寸被局限在亚波长尺度,同时通过调整周期性孔阵的特征参数,可以对特定波长的光波实现一定程度的选择透过性。本文还使用聚焦离子束设备,在 Au 膜上制作了与设计尺寸一致的亚波长周期性孔阵,为这种孔阵结构在激光器等领域的应用奠定了基础。

2 数字模型与透射情况的模拟

数字模型(图 1)包括介质层(SiO_2 , 折射率为 1.46)与制备有周期性孔阵的 Au 层(厚度为 100 nm)。孔阵为三角晶格,中心位置设有缺陷孔(孔径与其他孔不同,根据单孔透射率最大的情况进行了优化),其余孔关于缺陷孔中心对称。孔阵的参数包括周期 P 、孔深 t (即 Au 膜厚度)、中心缺陷孔孔径 W 以及普通孔孔径 d 。孔阵的单个孔为 Au 膜上的圆柱形空气孔。入射光波长为 980 nm 的 p 型偏振(H_y, E_x, E_z)平面光,仅考虑垂直入射情况(模拟 980nm VCSEL),入射光源距 Au/ SiO_2 界面距离为 500 nm。

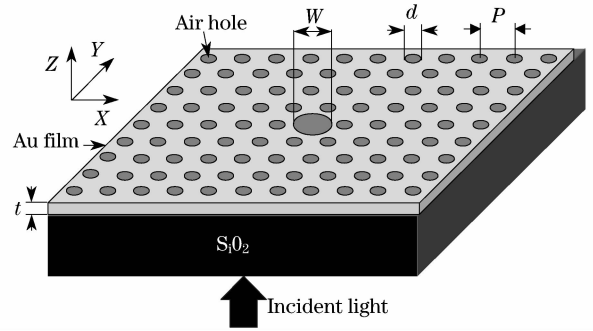


图 1 中心带缺陷孔的三角周期性孔阵模型
Fig. 1 Triangular periodic hole array with centric defect mode hole

使用 Drude 模型来描述金属的光学性质:

$$\epsilon_r(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\omega_p^2}{2i\omega\nu_c - \omega^2}, \quad (1)$$

其中 ω 为入射光频率, ϵ_∞ 是金属在无穷大频率时的相对折射率, ω_p 是等离子体共振频率, ν_c 是碰撞频率。这些参数均可从实际金属的实验测量中获得。

模拟区域大小为 $X \times Y \times Z = (8 \times P) \times (8 \times P) \times 4 \mu\text{m}$ 。其中 XY 平面为孔阵所在平面, Z 方向垂直于孔阵表面。XY 平面大小随孔阵周期 P 变化(可以减小计算量), Z 方向的包括光源所在平面、Au 膜以及 Au 膜以上 $4 \mu\text{m}$ 的区域。由于计算机的限制,网格已经尽可能小地划分为 $\Delta x = \Delta y = 20 \text{ nm}$, $\Delta z = 10 \text{ nm}$, 环绕该计算区域设置了称为完美匹配层(Perfect matched layer, PML)的吸收层,使得入射到边界的光都被完全吸收,以消除反射光对计算区域的影响。考虑到实际的面发射光电器件透射光波的偏振方向对透射光场的影响较小,因此本文的计算将单孔的形状均设置为圆柱形。

该周期性孔阵结构中,中心缺陷孔为主要出光孔,对入射光的透射率应尽可能大;周围孔阵的作用主要是将入射光转化为表面等离子体模式,对中心孔的出光起汇聚作用,单孔的透射率应该尽可能小。因此在距离孔阵表面的不同位置设置虚拟探测器,并设置好入射光场初始条件,通过 FDTD 方法的递推,就可以得到经过孔阵调制后空间各个高度的电磁场分布情况。

首先对 Au 膜上圆柱形单孔的透射情况进行了模拟:入射光波长为 980 nm,改变圆柱形单孔的孔径,当孔径小于入射光半波长时(490 nm),光波透射率最大与最小位置分别对应 400 nm 与 150 nm 的孔径(图 2),因此拟定孔阵中心缺陷孔径 W 为 400 nm,普通孔径 d 为 150 nm。

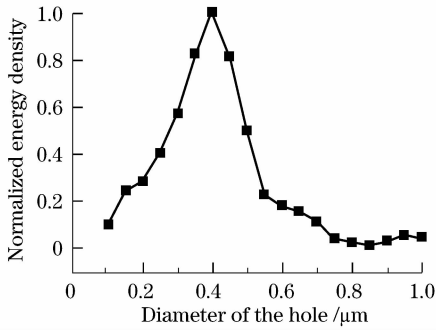


图 2 980 nm 波长的光穿过 Au 膜上不同孔径的圆柱形单孔的透射情况

Fig. 2 Transmission of 980 nm wavelength light through a single cylindrical air hole on Au film with different diameters

将孔阵晶格设置为三角晶格,并固定 W 与 d 的值为 400 nm 与 150 nm,在 200 nm~950 nm 范围内改变孔阵周期 P (50 nm 改变一次)。对每个不同周期的孔阵,可以得到距离孔阵表面 100 nm 处的光场分布,从中选择出周期为 450 nm 时,孔阵的透射光电场能量密度最大。

固定孔阵 W 、 d 与 P 为上文所述值,使孔深 t 在 10 nm~200 nm 间变化(10 nm 改变一次),在距孔阵表面 100 nm 的近场设置探测器,扫描得到孔深 t 为 50 nm(图 3)时,孔阵的透射率最大。

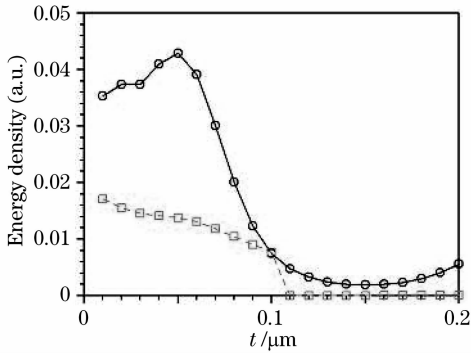


图 3 不同金膜厚度的孔阵透射率

Fig. 3 Transmission of hole array with different Au film thicknesses

得到一组优化的孔阵周期参数为: $P=450$ nm, $t=50$ nm, $W=400$ nm, $d=150$ nm。图 4 为 980 nm 波长光波入射到该周期孔阵时, XZ 平面透射光电场能量密度(Energy density)分布图。保持入射光频率和入射区域不变,通过归一化计算,可以将入射光强度定为 1。图中数值即为透射光强度相对于入射光强度的倍数。由图中可以看出,在距离孔阵表面几百纳米的近场,透射光强度极大,最高达到了入射光光强的 2.6 倍。这是因为入射光在孔阵下表面

激发的表面等离子体激发,在孔阵表面传播到中心缺陷孔处被再度转化为光波,因此透射光的能量集中在孔阵中心缺陷孔的上方,这就有效地提高了透射光的功率密度。

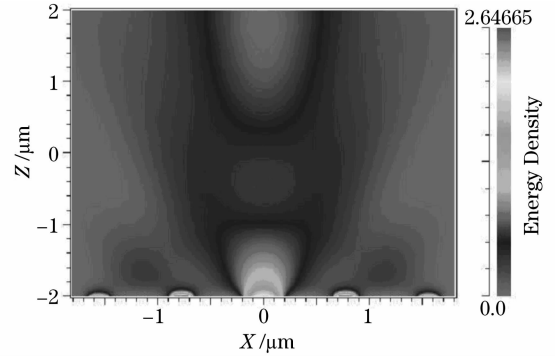


图 4 优化过周期参数的三角孔阵在 XZ 平面上透射电场能量密度的分布图

Fig. 4 Transmitted electric field energy density distribution within XZ plane of hole array with optimized periodic parameters

由图 5 可以看出,透射光束的形状在远场得到了很好的汇聚。在距 Au 表面 $3 \mu\text{m}$ 的远场,透射峰的半峰全宽(FWHM)仍然小于入射光波长,保持在 880 nm(图 5)。在孔阵上方 $1\sim 4 \mu\text{m}$ 处分别设置探测器测量透射光的电场能量密度(Energy density)(图 6),设入射光光强为 I_0 ,透射光光强为 I ,探测器测量值电场能量密度(E Energy density)即为 I/I_0 。在距离孔阵上方 $1 \mu\text{m}\sim 2 \mu\text{m}$ 之间,透射光光强仅为入射光光强的 8% 以下,透射峰的半峰全宽也超过了入射光的波长。在这一区域透射光束发散角较大。然而当探测器与孔阵表面距离增加到 $3 \mu\text{m}$ 时,透射光光强约增强到入射光强度的 12%,透射峰半峰全宽也被重新汇聚到亚波长尺度(880 nm)。当探测器距表面 $4 \mu\text{m}$ 时,透射光强度相比 $3 \mu\text{m}$ 处

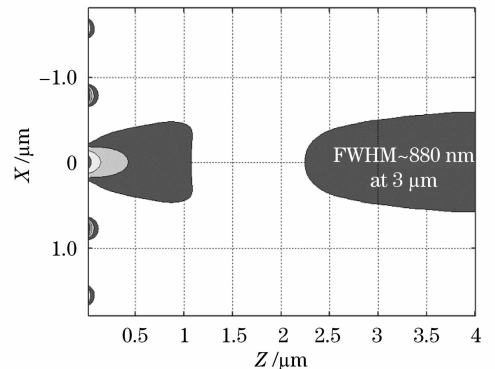


图 5 距孔阵表面 $3 \mu\text{m}$ 处远场光场分布情况
Fig. 5 Electric field energy distribution at $3 \mu\text{m}$ distance from hole array surface

有所降低,而透射峰半峰全宽也再次大于入射光波长。可以认为在距离孔阵表面 $3 \mu\text{m}$ 处,透射光光斑被聚焦成一个亚波长尺度的小点;透射电场能量密度最大,透射峰的半峰全宽也最小,这说明孔阵对入射光的调制主要作用在远场,这种周期性结构对透射光在远场的汇聚被认为是表面等离子体的作用。

作为比较,模拟了 980 nm 波长的光透过 Au 膜上孔径为 400 nm 单孔时 XZ 平面电场能量密度的分布(图 7)。可以看到,当与金属层表面距离增大时,光强迅速减小。透射光场仅分布在距 Au 膜表面几百纳米的近场,且透过单孔光波的发散角也远大于有孔阵调制的情况^[15]。

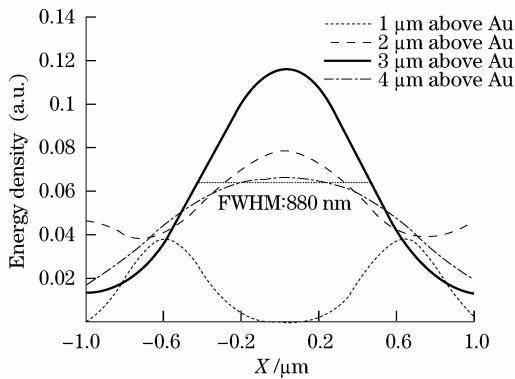


图 6 距孔阵表面 $1 \sim 4 \mu\text{m}$ 的探测器测得的透射光强

Fig. 6 Transmitted light energy density detected at $1 \sim 4 \mu\text{m}$ distance from hole array surface

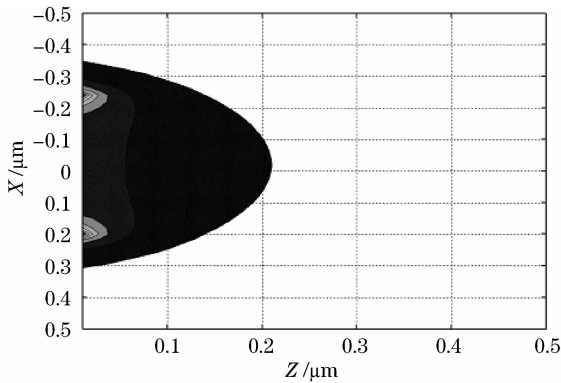


图 7 孔径为 400 nm 的圆柱形单孔 XZ 平面透射电场能量密度的分布图

Fig. 7 Transmitted electric field energy density distribution within XZ plane of light through a cylindrical air hole with 400 nm diameter

采用不同波长的光入射时,如上文所述周期的孔阵,对 980 nm 波长的光透过率最大,而偏离 980 nm 中心波长较远的光透过率很小。这说明孔阵对某个特定波长的光具有一定的选择透过性。通过选择合适的周期参数,可以为亚波长孔阵确定一

个透射率最大的中心波长,从而有效过滤掉与入射波长偏离较远的光波。

因此,如果光电器件(如 980 nm VCSEL)应用了这种亚波长周期性孔阵结构,应该可以有效地减小器件的远场光斑并提高出射光束的能量密度。同时,选择合适的孔阵参数,可以很好地改善发光器件的频率特性。采用这一结构的光电器件可能成为一种新型的高密度存储光源,在距离器件表面几微米处的透射光斑具有优异的特性。

3 使用聚焦离子束设备在 Au 膜上制备周期性孔阵

使用聚焦离子束设备,在 Au 膜上研制成功了如上文所述的孔阵。这意味着可以将这种孔阵集成到各种光电器件上,为亚波长孔阵在激光器等领域的实际应用奠定了基础,同时,使用聚焦离子束在金属膜上制作纳米结构的相关工艺,也是一个值得探索的课题。实验所用 FIB 设备为 FEI 公司生产的 DB235-FIB 工作站,它同时具有电子束成像与 Ga+ 离子束成像功能。在 30 keV 加速电压下,Ga+ 离子束的束流变化范围为 1 pA 到 20 nA 。随着离子束束流的变化,离子束束斑大小与成像分辨率也发生相应的变化。当离子束束流为 1 pA 时,Ga+ 离子束的束斑分辨率达到了 7 nm 。由于该工作站没有刻蚀 Au 的工艺参数文件,为了在 Au 膜上制备亚波长孔阵,需要通过反复实验摸索出合适的刻蚀工艺参数。

实验所用的样品为 SiO_2 膜上溅射的 Au 薄膜,Au 膜厚度为 100 nm ,为增加 Au 膜的粘附性,先在 SiO_2 膜上溅射了 50 nm 的 Ti 膜。目标为研制出中心带缺陷孔的三角孔阵,孔阵周期为 450 nm ,中心缺陷孔径为 400 nm ,普通孔孔径为 150 nm 。使用 FIB 刻蚀的孔的形状受离子束束斑形状影响,孔的直径与深度分别受离子束束流(Beam current)大小与驻留时间(Dwell time)的控制。当离子束束流较大时,束斑尺寸也相应较大,刻蚀精度也会相应降低。因此,理论上来说,最小的离子束束流与较长的离子束驻留时间是理想的工艺条件^[16]。首先采用了最小束流进行刻蚀:固定加速电压为 30 keV ,束流为 1 pA ,驻留时间为 $0.1 \mu\text{s}$,离子束重合距离为 50% 时,导入刻蚀图形文件,刻蚀的孔阵如图 8(a)。制作的孔阵表面光滑,孔阵周期性均匀。但是因为束流过小,刻蚀所需要的时间很长,上图孔阵需要的刻蚀时间约为 22 min ,可以看到刻蚀出的小孔轻微

地偏离圆形,且孔径与设定的参数偏离过大:以中心孔为例,孔径约为 670 nm,比设计的 400 nm 扩展了约 67%。这是因为小束流时离子束聚焦困难,长时间刻蚀时,离子束漂移使得刻蚀图形变形。因此,需要适当增加刻蚀离子束的束流,以缩短总的刻蚀时间,使刻蚀的孔阵质量提高。图 8(b)为选用 10 pA 离子束束流刻蚀的孔阵,与设计尺寸相吻合,而且刻蚀总时间很短。

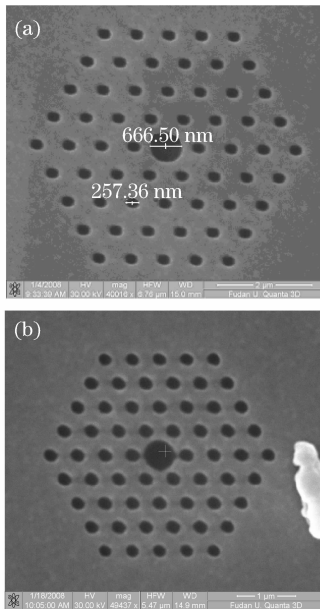


图 8 使用 1 pA (a), 10 pA (b) 束流刻蚀的孔阵
Fig. 8 Hole array etched by 1 pA ion beam current (a), the 10 pA beam current (b)

当离子束束流增加时,其束斑也相应增大,刻蚀出的小孔边缘逐渐变得不平滑,小孔的形状也越来越难以控制。当离子束束流为 30 pA 时,刻蚀出的小孔图形严重偏离圆形,且小孔的边缘很不规则,因此本文主要讨论在 10 pA 束流下孔阵的制作。需要在多个位置打孔时,通常的做法是在刻蚀完一个小孔后,再通过电子束重新定位找到下一个小孔的位置进行刻蚀,这种方法占用的机时较长,而且伴随着重新定位时定位不准的问题。为了进一步缩短刻蚀孔阵所需要的总时间,在导入刻蚀文件图形文件时,应该将孔阵的完整图形作为位图(bitmap 256 色灰度位图)整体导入,这样机器会自动记录下离子束应该移动的位置,制作的孔阵周期性均匀。这种方法是,离子束在刻蚀完一个孔后移动到下一个位置时一直保持在工作状态。离子束移动方式为横向制作完一排小孔后,下移制作下一排小孔,因此同一横排孔与孔之间的部分也会被刻蚀出一条浅槽。这可以通过旋转输入的刻蚀文件位图,并将该位图拆分为纵向单排小孔的组合加以解决(图 9)。当离子束束流为 10 pA 时,如果仅仅将位图整体输入,离子束横向移动使同一横排中的小孔之间被部分刻蚀;而将输入位图旋转 60° 后孔阵形貌也没有明显改善;如果将输入位图旋转 60° 并拆分为竖行小孔的组合后,制作的孔阵表面形貌良好,小孔之间不存在部分刻蚀。

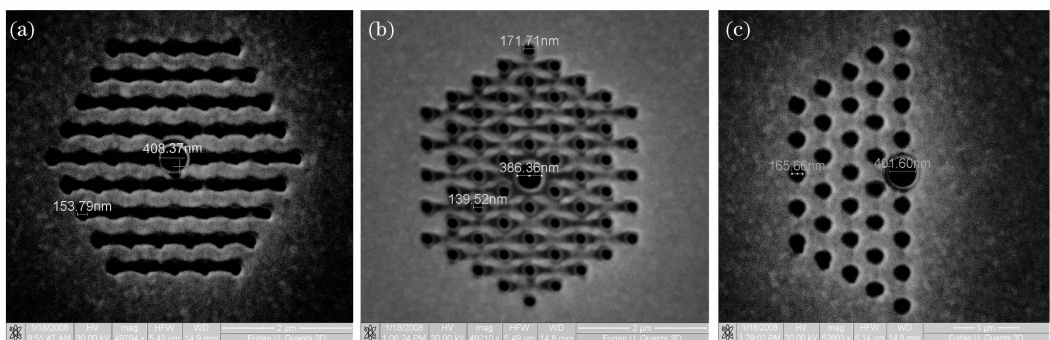


图 9 无改进的输入位图(a)输入位图旋转 60° (b); 拆分输入位图并旋转 60° (c) 制备的孔阵形貌
Fig. 9 Holy array without optimization (a) with input etch pattern twisted by 60° (b) the etch pattern divided and twisted by 60° (c)

通过反复摸索工艺条件,最后确定了当加速电压为 30.0 kV,离子束束流为 10 pA,刻蚀深度为 80 nm 时,驻留时间为 100 ns,离子束重合距离为 50% 时,刻蚀的孔阵尺寸与设计尺寸相符合[图 8(b)]。而此刻蚀一个孔阵所需要的时间仅为 2 分 50 秒,这就大大降低了制作成本,为将孔阵制作

在实际器件上作好了铺垫。

4 结 论

本文设计了 Au 膜上亚波长周期性孔阵的理论模型,孔阵为三角晶格,中心有缺陷出光孔,孔阵上下方分别是空气与 SiO_2 介质膜。远场(离 Au 膜表

面 3 μm 处)光斑宽度小于入射光波长,当不同波长的光波入射到孔阵时,孔阵对特定波长的波表现出了良好的选择透过性。3D-FDTD 模拟也显示相比单孔的透射情况,带缺陷孔的亚波长孔阵在远场的光强增强了几个量级,透射的能量与入射的能量之比大于孔阵的占空比,这就有效地提高了透射光的功率密度。三角孔阵对透射光束的汇聚作用远远高于单孔情况,这种现象可以由表面等离子体的调制作用得到解释。

通过使用聚焦离子束设备,在 Au 薄膜上研制成功了文中所述的三角晶格周期性孔阵,确定了相应的工艺条件,为将该孔阵应用于实际器件奠定了基础。将亚波长周期性孔阵应用于半导体光电器件,能有效提高器件的功率密度和减小器件的远场光斑尺寸,并能很好地改善器件的频率特性,这对制备可应用于远场高密度存储与远程通信的新型光电器件很有意义。

参 考 文 献

- 1 T. W. Ebbesen, H. J. Lezec. Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays [J]. *Nature*, 1998, **391** (6669): 667~669
- 2 H. Raether. *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings* [M]. Berlin: Springer-Verlag, 1988
- 3 Anatoly. V. Zayats, Igor. I. Smolyaninov. Near-field photonics: surface plasmon polaritons and localized surface plasmons [J]. *J. Opt. A: Pure and Appl. Opt.*, 2003, **5**(5): 16~50
- 4 H. F. Ghaemi, Tineke Thio. Surface plasmons enhance optical transmission through subwavelength holes [J]. *Phys. Rev. B*, 1998, **58**(11): 6779~6782
- 5 Zeng Jie, Liang Dakai, Du Yan *et al.*. Quasi-Distributed optical fiber sensor based on surface plasmon resonance [J]. *Chin. J. Lasers*, 2007, **34**(2): 243~248 (in chinese)
曾捷,梁大开,杜艳等. 准分布式光纤表面等离子体波传感器[J]. *中国激光*, 2007, **34**(2): 243~248
- 6 Cao Di, Zhang Huifang, Tao Feng. Theoretical study on properties of surface plasmon polaritons at interfaces of metamaterials with three-layered asymmetric structures [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(8): 1601~1610 (in Chinese)
曹迪,张惠芳,陶峰. 三层不对称人工电磁材料界面处表面等离子体激元的理论研究[J]. *光学学报*, 2008, **28**(8): 1601~1610
- 7 Lü Qiang, Huang Dexiu, Yuan Xiuhua *et al.*. Sensitivity of surface plasmon resonance sensor for different wavelengths [J]. *Chin. J. Lasers*, 2007, **34**(7): 972~976 (in Chinese)
吕强,黄德修,元秀华等. 不同波长下表面等离子体共振传感器的灵敏度[J]. *中国激光*, 2007, **34**(7): 972~976
- 8 Zeng Jie, Liang Dakai, Zeng Zhenwu *et al.*. Reflective optical fiber surface plasma wave resonance sensor [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(3): 404~409 (in chinese)
曾捷,梁大开,曾振武等. 反射式光纤表面等离子体波共振传感器特性研究 [J]. *光学学报*, 2007, **27**(3): 404~409
- 9 William L. Barnes, Alain Dereux. Surface plasmon subwavelength optics [J]. *Nature*, 2003, **424**(6950): 824~830
- 10 C. Genet and T. W. Ebbesen. Light in tiny holes [J]. *Nature*, 2007, **445**(7123): 39~46
- 11 A. Krishnan T. Thio, T. J. Kim *et al.*. Evanescently coupled resonance in surface plasmon enhanced transmission [J]. *Opt. Commun.*, 2001, **200**(1~6): 1~7
- 12 Roland Müller, Claus Ropers, Christopy Lienau. Femtosecond light pulse propagation through metallic nanohole arrays: The role of the dielectric substrate [J]. *Optics Express*, 2004, **12** (21): 5067~5081
- 13 Qiaoqiang Gan, Fabrication. Design and Application of Near-Field Optical Very-Small-Aperture Lasers [D]. Beijing: Institute of Semiconductors Chinese Academy of Sciences, 2006 (in Chinese)
甘巧强. 近场光学微小孔径半导体激光器的研制与应用[D]. 北京:中科院半导体研究所,2006
- 14 Jianxia Gao. Study of Nano-Aperture Vertical Cavity Surface-Emitting Lasers [D]. Beijing: Institute of Semiconductors Chinese Academy of Sciences, 2007, 52~68 (in Chinese)
高建霞. 微小孔垂直腔面发射激光器的研制[D]. 北京:中科院半导体研究所,2007,52~68
- 15 Baoshan Guo, Qiaoqiang Gan. Numerical study of a high-resolution far-field scanning optical microscope via a surface plasmon-modulated light source [J]. *Lightwave Technol.*, 2007, **25**(3): 830~832
- 16 Yong Kwan Kim, Aaron J. Danner. Focused ion beam nanopatterning for optoelectronic device fabrication [J]. *IEEE J. Selected Topics In Quant. Electron.*, 2005, **11**(6): 1292~1298