

一种温控的可调表面等离子体光学器件

张兵心 陈淑芬 付 雷 邹正峰 孟彦彬

(北京理工大学光电学院, 北京 100081)

摘要 设计加工了一个三层结构的表面等离子体光学吸收器件, 表层结构为规则排列的金质椭圆形微粒。入射电磁波与椭圆形金粒作用激发表面等离子体共振时, 由于沿长短轴方向谐振频率不同, 使得该器件实现了在近红外谱段两个频率处对入射光近 100% 的吸收。实验样品用电子束曝光技术加工, 实验测量与仿真设计结果一致。此外, 由于改变器件表面介质的折射率可以有效调谐器件的谐振特性, 通过在器件表面覆盖一向列型液晶层并由温度控制液晶层的折射率, 实现了一种温控的可调表面等离子体光学吸收器件, 调节过程简单可靠并且可重复实现, 调节范围达 22 nm。该器件由于其高吸收效率和可调谐特性, 可在太阳能电池以及未来光子集成电路等方面得到重要应用。

关键词 表面光学; 电磁波吸收; 表面等离子体共振; 向列相液晶

中图分类号 TN20 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201232.0723005

A Temperature-Controlled Tunable Plasmonic Dual-Band Absorber

Zhang Bingxin Chen Shufen Fu Lei Zou Zhengfeng Meng Yanbin

(School of Optoelectronics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

Abstract A plasmonic dual-band absorber based on a three-layer metal-dielectric-metal structure with an gold elliptical nanodisk array arranged on the top layer is designed and fabricated. Nearly 100% absorption is achieved at dual frequencies in near infrared range due to the plasmonic resonances of incident light and gold elliptical nanodisks along major and minor axes. The designed structure is fabricated by electron beam lithography and the measured reflection spectra match well with simulations. Moreover, it shows that the two absorption peaks can be effectively tuned by coating a temperature-controlled nematic liquid crystal layer on top of the device. The tuning process is simple and repeatable with a maximal tuning range of 22 nm. Owing to its high absorption efficiency and tunable property, this plasmonic absorber must have a great potential in the research field such as solar cells and future photonic circuits.

Key words optics at surfaces; absorption of electromagnetic wave; surface plasmon resonance; nematic liquid crystal

OCIS codes 240.6680; 250.5403; 310.6628; 220.4241

1 引 言

表面等离子体光学主要研究光与金属纳米结构间的相互作用, 是纳米光学领域的一个重要研究方向。光与金属纳米结构相互作用, 可以激发很多新颖的光谱特性^[1,2]。并且, 随着现代微纳加工技术的进步, 对金属纳米结构的加工变得更加方便, 这使得表面等离子体光学的研究得到了快速发展。其中基于表面等离子体光学的吸收器件由于在太阳能电

池^[3,4]、传感器^[5~7]、超高分辨率成像^[8]以及新型人工材料^[9,10]等方面的重要应用, 日渐成为研究热点。Kravets 等^[11]设计了一种一维金属光栅结构, 通过与入射光耦合激发表面等离子体共振, 实现了对入射光 97% 以上的吸收, 可有助于提高新型太阳能电池的光电转换效率。但是, 该设计采用的一维金属光栅结构只对入射光的一种偏振态有较高吸收, 限制了其应用。Liu 等^[12]提出了一种基于二维金属圆

收稿日期: 2012-02-16; **收到修改稿日期**: 2012-03-15

作者简介: 张兵心(1983—), 男, 博士研究生, 主要从事表面等离子体光学和光纤传感等方面的研究。

E-mail: zhangbingxin@gmail.com

导师简介: 陈淑芬(1955—), 女, 教授, 博士生导师, 主要从事光纤传感方面的研究。E-mail: chensf55@sina.com

盘阵列的结构,有效地解决了器件对入射光偏振态的限制。入射光通过与金属圆盘结构耦合激发表面等离子体共振,可在近红外谱段的某频率处实现对入射光的近完全吸收。随后, Lin 等^[13,14]设计了很多新型的金属纳米结构,可在更多频率处或更宽频段范围实现对入射光的近完全吸收。但是,这些器件都有一个共同的缺点,即吸收特性完全取决于结构的尺寸参数,一旦结构加工好,器件的吸收频率便无法再改变。如果想改变器件的谐振频率,只能改变结构的尺寸参数,重新加工。

本文设计加工了一种基于椭圆形纳米金粒的三层结构,实现了在近红外谱段两个频率处对入射光近 100% 的吸收。并通过在器件表面覆盖一层折射率可受温度控制的向列型液晶层,实现了可调谐的表面等离子体光学吸收元件,调谐范围为 22 nm。由于该器件具有的高吸收效率和可调谐特性,可在太阳能电池以及未来光子集成电路等方面得到重要应用。

2 结构设计与加工

图 1 为结构设计图和加工实验样品的扫描电子

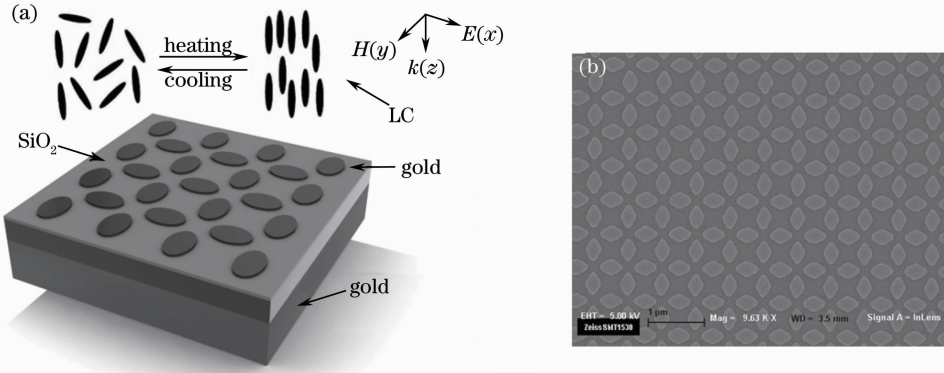


图 1 (a) 表面等离子体光学吸收器件结构设计图; (b) 加工实验样品的扫描电子显微镜图片

Fig. 1 (a) Schematic of designed surface plasmonic absorber; (b) SEM image of fabricated sample

3 实验结果与讨论

3.1 实验样品的仿真与测量

根据设计的结构,用仿真软件 Lumerical FDTD 对结构进行了数值模拟,模拟中所用的材料参数均从软件自带数据库中选取。入射电磁波垂直器件表面入射,电场矢量沿 x 轴方向。在 x 和 y 轴方向均设为周期性边界条件, z 轴设为完美匹配层边界条件。 x 和 y 轴方向的网格大小设置为 8 nm, z 轴方向设为 2 nm,以得到精确的仿真结果。在结构上方 200 nm 处放置一观察面,收集所有反射光及散射光。仿真中椭圆形

显微镜照片(SEM)。该器件表层为一层规则排列的金质椭圆形微粒,入射光与表层椭圆形金粒发生耦合激发表面等离子体共振。由于表面等离子体的谐振频率与金属纳米结构的尺寸有关^[1,14],入射光与椭圆形金粒作用激发表面等离子体共振时,沿长轴和短轴方向会因尺寸不同而有不同的谐振频率,因此,该结构可实现在两个频率处对入射光近 100% 的吸收。此外,由于表层金属微粒在 x 和 y 方向上的对称分布,可使器件对入射光的吸收不受偏振态的影响。底层是一层厚度为 200 nm 的金膜,该金膜的作用一方面由于其厚度大于红外波段电磁波的穿透深度,阻止了入射光的透射。另一方面,可和表层金属微粒一起与入射电磁波发生磁偶极子共振,将入射电磁能量局域在中间的电介质层,最终消散,进一步提高了结构对入射电磁波的吸收效率。这里,中间的电介质层选用的是厚度 30 nm 的二氧化硅层。实验样品的 SEM 图片如图 1(b) 所示,椭圆形金粒长轴 a 约为 360 nm,短轴 b 约为 240 nm,厚度 h 为 20 nm,沿 x 和 y 方向均以周期 p 为 600 nm 周期性分布,图 1(b) 中比例尺为 1 μm 。

微粒的长短轴分别设为 $a=360$ nm, $b=240$ nm,厚度设为 $h=20$ nm。图 2 中虚线给出了设计结构反射光谱的仿真结果。通过对设计参数的优化,在入射波长为 $\lambda_1=1271$ nm 和 $\lambda_2=1700$ nm 两处,反射光强度几乎为零($R=0$)。由于结构底层厚度 200 nm 的金膜完全阻止了入射电磁波的透射(即 $T=0$),由 $A=1-R-T$ 可知,设计的表面等离子体光学吸收结构在 $\lambda_1=1271$ nm 和 $\lambda_2=1700$ nm 两处对入射光吸收效率接近 100%。

接着,分别计算了入射光以 TE 和 TM 两种偏

振态斜入射时的反射光谱。对于 TM 偏振态的斜入射,保持磁场方向(y 方向)与器件表面平行。这时,沿 x 轴方向波矢不再为零,改变 x 方向的边界条件为 Bloch, y 方向仍为周期性边界条件。入射光角度以 10° 的间隔增加,直至 50° 。计算结果列在表 1 中,对于 TM 偏振态的斜入射即使角度增大到 50° ,两个吸收频率处仍然可保持 98% 以上的吸收,且吸收频率不受入射角度影响。对于 TE 偏振态,即保持电场方向(x 方向)与器件表面平行,这时设置 x 方向的边界条件为周期性边界条件,改变 y 方向的边界条件为 Bloch,入射角增加至 50° 时,两个吸收峰仍然可以保持 95% 以上的吸收。

表 1 以 TE 和 TM 两种偏振态斜入射时器件的吸收效率

Table 1 Absorption efficiencies with different incident angles under TE and TM polarizations

	0°	10°	20°	30°	40°	50°
Peak 1 (TE)	99.5%	99.5%	99.4%	99.4%	99.2%	99.2%
Peak 1 (TM)	99.5%	99.5%	99.5%	99.4%	99.4%	99.4%
Peak 2 (TE)	99.0%	98.7%	98.5%	98.2%	96.6%	95.1%
Peak 2 (TM)	99.0%	98.8%	98.8%	98.7%	98.6%	98.5%

该结构之所以能实现对入射光的近完全吸收,其物理机制主要有两个方面:1)入射电磁波和表层椭圆形金粒阵列耦合激发的表面等离子体共振。共振发生时,大部分入射光能量转化为金属微粒表面自由电子的集体振荡,在金属微粒表面形成一个增强的表面等离子体场。而且,电场分量沿着椭圆金粒的长轴和短轴方向发生共振时,共振频率不同^[15],因此在吸收光谱中看到了双频率处的完全吸收;2)磁偶极子共振,在外加电磁场的作用下,表层金属微粒和底层金膜中会产生方向相反的位移电流^[12],形成一个与入射光磁场方向相反的磁偶极矩,并与入射光的磁场分量强烈作用,磁偶极子共振将入射电磁能量局域在中间的电介质层中,最终消散,进一步提高了结构对入射电磁波的吸收效率。

随后,对设计结构进行加工测量。首先在清洗干净的玻璃基底上镀上厚度 200 nm 的金膜和 30 nm 的二氧化硅层,表层二维对称排列的椭圆形金粒阵列由电子束曝光技术加工(E-beam lithography),二氧化硅层与金膜界面镀有 2 nm 厚的铬作为粘合层。为使样品加工时间不至于过长,同时又方便实验测量,表面金属微粒阵列的加工面积为 $2\text{ mm} \times 2\text{ mm}$,其他参数与仿真设计完全一样,加工好的实验样品电镜图如图 1(b)所示。对样品的测量采用的是傅里叶变换红外光谱仪(Bruker

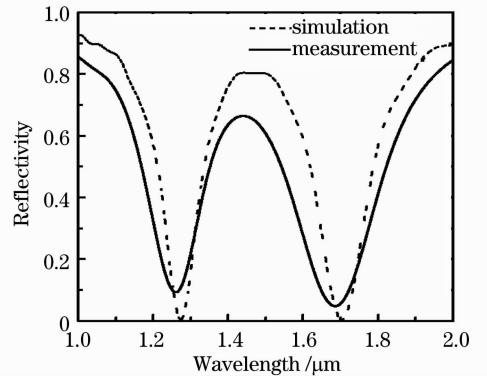


图 2 表面等离子体光学吸收元件的仿真与实验测量的反射光谱

Fig. 2 Simulated and measured reflection spectra of the plasmonic dual-band absorber

FTIR, IFS 66/S),入射光垂直样品表面入射,实验测量中以金膜的反射率作为参考,经过归一化的反射光谱如图 2 中实线所示。两个吸收峰位置分别在 $\lambda_1 = 1260\text{ nm}$ 和 $\lambda_2 = 1685\text{ nm}$ 处,与仿真结果基本一致,测得的两频率处的吸收效率分别降为 91% 和 95%。器件的吸收效率比仿真结果略有降低,一方面是由于实际加工误差造成的;另一方面,相比于仿真计算,实际加工中必须在金膜与二氧化硅界面处镀有 2 nm 的铬粘合层,降低了磁偶极子共振的强度。尽管如此,两频率处仍然都保持了 90% 以上的高吸收效率。

3.2 谐振频率的调节

该表面等离子吸收器件的谐振频率会受表层椭圆形金属微粒尺寸的影响。保持其他参数不变,改变椭圆形微粒的尺寸,得到的谐振特性仿真曲线如图 3 所示。其中虚线给出了当椭圆微粒长轴 $a = 350\text{ nm}$,短轴 $b = 230\text{ nm}$ 时的谐振特性,实线表示当椭圆微粒长轴 $a = 370\text{ nm}$,短轴 $b = 250\text{ nm}$ 时的谐振特性。从仿真结果知,当椭圆形微粒的短轴长度从 230 nm 变化为 250 nm 时,第一个吸收波长 λ_1 从 1224 nm 红移至 1304 nm,长轴从 350 nm 增加为 370 nm 后,第二个吸收波长 λ_2 也从 1665 nm 红移至 1753 nm。可见,通过改变椭圆形微粒尺寸,可以使该器件在近红外区域不同波长处与入射光发生谐

振。但是,一旦当器件加工好后,其谐振频率便已确定,无法再做改变。有时受到加工精度限制,加工好的样品并不能精确满足所需要的谐振频率,重新加工必然造成浪费。这时,引入一个简单可靠的调谐

机制是非常必要的。而且,可调谐的表面等离子体器件在优化太阳能电池的吸收效率和光学传感器的精度等方面也有重要应用价值。

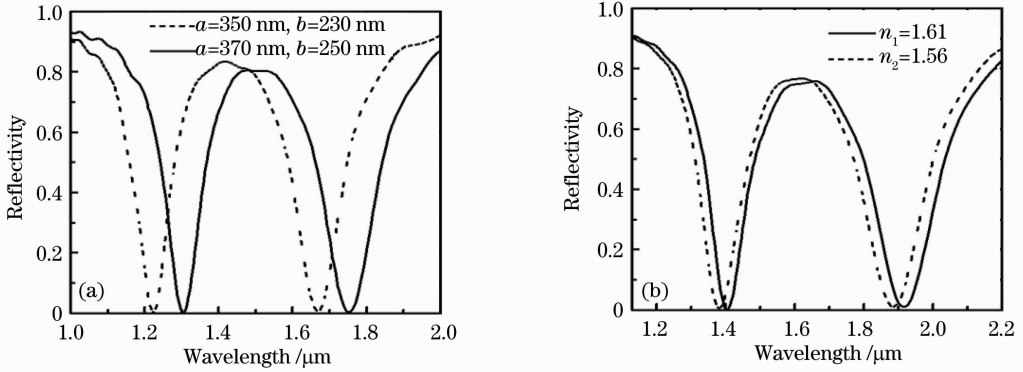


图3 器件谐振频率可调性分析。(a)椭圆形金属微粒尺寸改变对谐振频率的影响;
(b)结构表层介质折射率变化对谐振频率的影响

Fig. 3 Tunable property of the absorber. (a) Influence of different sizes of elliptical nanodisks on resonant frequency;
(b) influence of different refractive indices for top dielectric layers on resonant frequency

从表面等离子体共振的理论背景出发,研究可影响其谐振频率的因素。对于金属纳米结构的表面等离子体共振,通常用准静电近似在相应的边界条件下求解 Maxwell 方程来描述,当一金属球直径远小于入射光波长时,这种方法得到的金属纳米球的极化率为^[2]

$$\alpha = 4\pi a^3 \frac{\epsilon - \epsilon_m}{\epsilon + 2\epsilon_m}, \quad (1)$$

式中 a 为金属小球半径, ϵ 为金属球的介电常数, ϵ_m 为金属小球周围介质的介电常数。当谐振发生时,电极化率最强,由(1)式可知,金属小球的共振特征不仅与其本身的尺寸和形状有关,还与周围介质的介电常数直接相关,当周围介质发生变化时,表面等离子体共振频率也会发生变化。当微粒的尺寸增加时,入射光不能均匀地极化粒子,只需采用米氏理论引入高阶共振来描述,影响其谐振的因素不变。因此,除了改变金属微粒的尺寸,还可以通过改变微粒表面介质层的折射率来达到调节其谐振特性的目的。

通过在实验样品表面覆盖一层可以用温度控制其折射率的向列型液晶层,实现了对谐振频率的可逆调节。实验中使用的是 5CB (pentyl-cyanobiphenyl) 液晶 (Sigma-Aldrich Corp.), 该液晶在工业上被广泛用作光学器件、传感器和液晶显示器等方面的材料^[16]。它是一种室温液晶,在室温状态下呈浑浊液态,液晶分子混乱排列使其表现出光学各向同性特点。此时,液晶在可见光区域的折射率 n_1

约为 1.61,在近红外区域折射率略低。该液晶只具有向列相一个液晶相,清亮点为 $35.5\text{ }^\circ\text{C}$,当升温至清亮点时,液晶分子沿同一方向排列,如图 1(a)所示。这时,液晶由浑浊变成透明,其折射率 n_2 变为 1.56 左右。图 3(b)给出了样品覆盖液晶层后的仿真曲线,当折射率由 1.61 变为 1.56 时,两个谐振波长分别蓝移了 22 nm 和 31 nm。

实验首先测量了在未覆盖液晶层时器件本身的温度稳定性,将样品放在一小型加热台上加热至 $70\text{ }^\circ\text{C}$,测得的反射光谱如图 4(a)所示,即使将温度升至 $70\text{ }^\circ\text{C}$,器件的谐振特性并无明显变化。随后,在器件表面覆盖 5CB 液晶层,分别测量器件在室温 $25\text{ }^\circ\text{C}$ 时、加热至 $37\text{ }^\circ\text{C}$ 后和再次冷却至 $25\text{ }^\circ\text{C}$ 时的反射光谱。实验测得的整个调谐过程的反射光谱如图 4(b)所示,图中无标记的实线为室温下覆盖液晶层后器件的反射光谱,与器件放置于空气中时相比,覆盖液晶层后,室温下两个吸收峰分别从 $\lambda_1 = 1260\text{ nm}$ 和 $\lambda_2 = 1685\text{ nm}$ 处红移至 $\lambda_3 = 1398\text{ nm}$ 和 $\lambda_4 = 1899\text{ nm}$ 处,这个频移是由于金粒表面液晶层的折射率的变化引起的。图 4(b)中带圆点标记的曲线为加热至 $37\text{ }^\circ\text{C}$ 时的反射光谱,带三角标记的曲线是再次冷却至室温时器件的反射光谱。图 4(c)和 4(d)分别给出了两个谐振频率处调谐过程的放大图。由图 4(c)可知,从室温加热至 $37\text{ }^\circ\text{C}$ 后,由于液晶折射率降低,第一个吸收波长由 1398 nm 蓝移至 1376 nm ,再次冷却到室温后又红移至 1393 nm , $\Delta\lambda = 17\text{ nm}$ 。由图 4(d)可知,第二个吸收峰在整个

调谐过程中由 1899 nm 蓝移至 1874 nm 后又红移至 1896 nm, $\Delta\lambda = 22$ nm。实验仅通过控制温度便

成功实现了对该表面等离子体光学器件谐振频率调节。

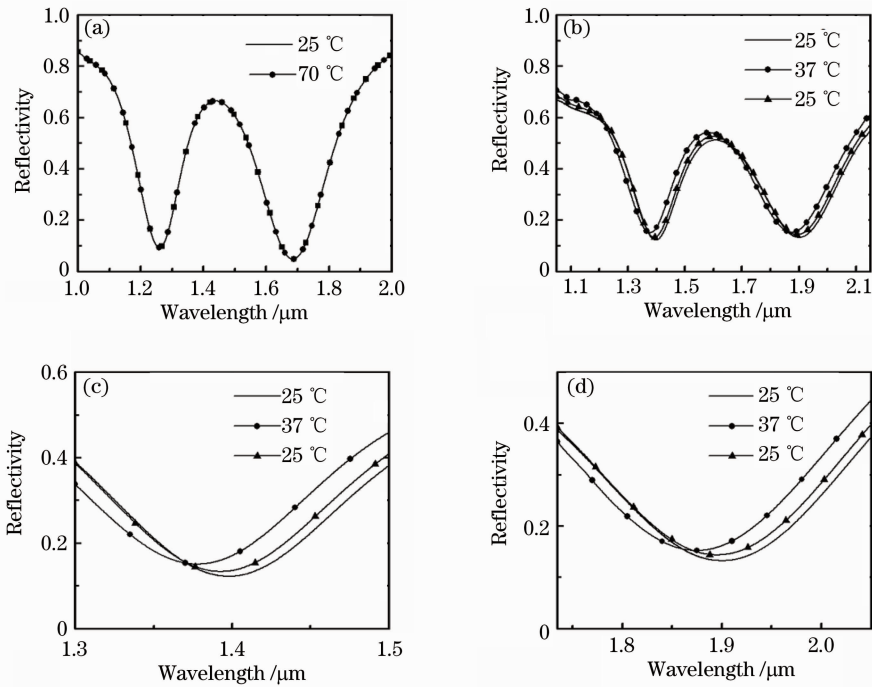


图 4 器件表面覆盖液晶层后反射曲线测量结果。(a)未覆盖液晶层时器件谐振频率随温度变化曲线；

(b)升温与降温过程器件谐振频率的可逆调节曲线；(c)和(d)谐振频率处的放大图

Fig. 4 Experimental measured reflection spectra of the liquid crystal coated absorber. (a) Curves of resonance frequency versus temperature without liquid crystal layer; (b) temperature-controlled reversible tuning process of the device's resonant frequency; (c) and (d) enlarged views of the two resonance frequencies

4 结 论

实现了一种温控的可调表面等离子体吸收元件。器件由一种椭圆形金粒阵列的三层结构构成,金属椭圆形微粒通过与入射电磁波耦合激发表面等离子体共振,可对近红外波段两个频率处的入射能量达到近 100% 的吸收。将器件表面覆盖一层向列型液晶层后,两吸收频率可由温控反复可逆调节,最大调节范围为 22 nm。通过优化结构参数或使用折射率变化范围更大的向列型液晶层将可进一步提高该器件的性能,实际应用中可根据需要选择合适的调谐范围。该可调式吸收器件,由于其在近红外谱段的高效电磁吸收特性和可逆调谐特性,将在光开关、温度传感器和新型太阳能电池等方面有重要应用。

参 考 文 献

- 1 Naomi J. Halas. Plasmonics: an emerging field fostered by nano letters[J]. *Nano Lett.*, 2010, **10**(10): 3816~3822
- 2 Stefan A. Maier. Plasmonics: Fundamentals and Applications [M]. Berlin: Springer, 2007

- 3 Harry A. Atwater, Albert Polman. Plasmonics for improved photovoltaic devices [J]. *Nature Materials*, 2010, **9** (3): 205~213
- 4 J. N. Munday, H. A. Atwater. Large integrated absorption enhancement in plasmonic solar cells by combining metallic gratings and antireflection coatings [J]. *Nano Lett.*, 2011, **11**(6): 2195~2201
- 5 Liu Chang, Zou Zhengfeng, Chen Shufen *et al.*. Surface plasmon resonance sensor based on compact disk grating[J]. *Chinese J. Lasers*, 2012, **39**(3): 0314001
刘畅, 邹正峰, 陈淑芬等. 基于光盘光栅的表面等离子体共振传感器[J]. *中国激光*, 2012, **39**(3): 0314001
- 6 Wan Yan, Liang Dakai, Zeng Jie *et al.*. Prism surface plasmon wave sensor system based on polarizing beam splitter[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(5): 1354~1357
万艳, 梁大开, 曾捷等. 基于偏振分光棱镜的表面等离子体波传感系统[J]. *光学学报*, 2010, **30**(5): 1354~1357
- 7 Guan Chunying, Yuan Libo, Shi Jinhui. Microstructured-fiber surface plasmon resonance sensor[J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(2): 0206003
关春颖, 苑立波, 史金辉. 微孔光纤表面等离子体共振传感特性分析[J]. *光学学报*, 2011, **31**(2): 0206003
- 8 Z. Liu, S. Durant, H. Lee *et al.*. Experimental studies of far-field superlens for sub-diffractive optical imaging [J]. *Opt. Express*, 2007, **15**(11): 6947~6954
- 9 T. J. Yen, W. J. Padilla, N. Fang *et al.*. Terahertz magnetic response from artificial materials[J]. *Science*, 2004, **303**(5663):

- 1494~1496
- 10 Qingkun Liu, Yanxia Cui, Dennis Gardner *et al.*. Self-alignment of plasmonic gold nanorods in reconfigurable anisotropic fluids for tunable bulk metamaterial applications[J]. *Nano Lett.*, 2010, **10**(4): 1347~1353
- 11 V. G. Kravets, F. Schedin, A. N. Grigorenko. Plasmonic blackbody: almost complete absorption of light in nanostructured metallic coatings[J]. *Phys. Rev. B*, 2008, **78**(20): 205405
- 12 N. Liu, M. Mesch, T. Weiss *et al.*. Infrared perfect absorber and its application as plasmonic sensor[J]. *Nano Lett.*, 2010, **10**(7): 2342~2348
- 13 Chiahung Lin, Rueylin Chern, Hoangyan Lin. Polarization-independent broad-band nearly perfect absorbers in the visible regime[J]. *Opt. Express*, 2011, **19**(2): 415~424
- 14 Chenggang Hu, Zeyu Zhao, Xunan Chen *et al.*. Realizing near-perfect absorption at visible frequencies[J]. *Opt. Express*, 2009, **17**(13): 11039~11044
- 15 E. Hutter, J. H. Fendler. Exploitation of localized surface plasmon resonance [J]. *Adv. Mater.*, 2004, **16** (19): 1685~1706
- 16 Ren Changyu, Sun Xiudong, Liu Zhengjun *et al.*. Investigation of self-diffraction effect in C60-doped nematic liquid crystals induced by Gaussian beam[J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(3): 772~777
- 任常愚, 孙秀冬, 刘正君 等. C60 掺杂向列相液晶薄膜的激光诱导自衍射现象研究[J]. *光学学报*, 2009, **29**(3): 772~777

栏目编辑: 韩 峰