

金属-绝缘体-金属结构的表面等离子激元受激放大辐射放大器的研制

李志全¹ 朱君^{1*} 牛立勇¹ 孙宇超¹ 李文超²

(¹ 燕山大学电气工程学院, 河北 秦皇岛 066004
² 东北大学秦皇岛分校自动化系, 河北 秦皇岛 066004)

摘要 为了研究用于表面等离子(SP)波的可集成表面等离子激元受激放大辐射(SPASER)放大器,设计了植入饱和吸收体的金属-绝缘体-金属(MIM)结构放大器的基本组成。根据 SPASER 的基本原理,对激射条件进行了分析,给出了放大器的制作工艺和抽运脉冲的设计以及性能指标。结果表明研制的放大器在选择 566 nm 波长的入射光和 532 nm 波长的抽运光,放大区采用长度范围为 1~1.5 μm 的条件下,其脉冲响应时间可达 100 fs,带宽为 1.5~2 THz,SP 的放大增益为 30~60 dB。该 SPASER 放大器研究将为大规模集成光子学芯片设计提供理论和技术基础,可在下一代高速通信系统中得到广泛应用。

关键词 非线性光学;量子光学;表面等离子激元;金属-绝缘体-金属波导;弛豫振荡

中图分类号 O437.4 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201232.0823002

Manufacture of SPASER Amplifier with Metal-Insulator-Metal Structure

Li Zhiquan¹ Zhu Jun¹ Niu Liyong¹ Sun Yuchao¹ Li Wenchao²

(¹ College of Electrical Engineering, Yanshan University, Qinhuangdao, Hebei 066004, China
² Department of Automation, Northeastern University at Qinhuangdao, Qinhuangdao, Hebei 066004, China)

Abstract In order to research the integration surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation (SPASER) amplifier for surface plasmon (SP) amplification, the basic components of amplifier which includes metal-insulator-metal (MIM) structure embedded by the saturation absorber are designed and discussed. According to the basic principle of SPASER, stimulated emission conditions are analyzed. Meanwhile, the fabrication process of amplifier and pump pulse are designed, and the performance index is given. The results show that under the conditions of the incident light wavelength of 566 nm, pump light wavelength of 532 nm and the length of amplification region of 1~1.5 μm , the pulse response time can reach 100 fs, the bandwidth of 1.5~2 THz and gain of SP-ranges from 30 to 60. SPASER amplifier research will provide theoretical and technology foundation for large-scale integrated photonic chip, which will be widely used for high-speed communications system in next generation.

Key words nonlinear optics; quantum optics; surface plasmon polaritons; metal-insulator-metal waveguide; relaxation oscillation

OCIS codes 350.5400; 350.4010; 040.22351

1 引言

表面等离子激元(SPP)早在 1950 年的 Ritchie

研究之后就一直被理解为自由电子和光波电磁场共振频率相同时形成的一种集体振荡态,只是当

收稿日期: 2012-02-04; 收到修改稿日期: 2012-03-28

基金项目: 国家自然科学基金(60877047)、河北省自然科学基金(F20100002002)和国家留学人员科技活动项目择优资助经费(20070216004)资助课题。

作者简介: 李志全(1954—),男,教授,博士生导师,主要从事非线性光电检测技术、光纤传感与通信和光学薄膜技术等方面的研究。E-mail: lzq54@ysu.edu.cn

* 通信联系人。E-mail: zhujun1985810@sohu.com

R. W. Wood在光学实验中首次发现 SPP 的共振现象后^[1~3],才赋予了 SPP 新的概念和研究空间使之成为重要的研究领域。2003 年 Duan 等^[4]成功开发出一种可自动调控开关的纳米放大器,并将其安装在微芯片上,能大幅度提高计算机磁盘和光子计算机的信息存储量。这一现象利用的是纳米结构局域场和外部光场共振的条件,通过表面等离子(SP)的受激、放大、辐射使玻色子受激辐射,从而使共振能够局域在纳米尺度上^[5]。表面等离激元受激放大辐射(SPASER)的研究实质性开展的标志是科学家对生成相干等离子场理论问题的解决。2003 年 Mark 等^[6~10]首先提出利用 SPP 来设计和制作放大的器件,并撰文指出,与其他等离子器件不同的是,SPASER 可以有效地产生和放大表面等离子波。从物理原理知道,金属等离子纳米颗粒中利用的 SP 模式会引起其内部反馈,这个反馈起因于 SP 模式场在增益介质中呈现的周期性变化的形式,并且很难从根本上消除,会导致 SPASER 增益饱和。这样就使固定状态下的任何 SPASER 纯放大系数为零,即决定了 SPASER 不能制作成放大器。为了克服这一难点,研究人员经过了长时间的实验与研究,发现有两种方法可将 SPASER 制作成一个纳米放大器:1)动态(瞬态)方法,粒子数反转之后的连续波确定之前飞秒瞬态处理过程,SPASER 将会拥有一个不为零的纯放大系数;2)双稳态方法,这种方法是基于在增益介质中掺入饱和和吸收体,利用基于密度矩阵方程的量子分子运动论而设计的,同时这又是通过关于 SPASER 的激光理论的 Bloch 方程改进的,可实现 SPASER 双稳态超快纳米放大器的研制。本文采用后一种方式完成放大器器件的设计,提出了放大器的激射原理和基本组成结构以及对比仿真了放大的结果,这一成果可应用到生物传感、波谱检测、显微成像和超快通信等领域^[5,11~18]。

2 SPASER 放大器的研制

在光学谐振非线性特性研究中,从无序结构拓展到有序多层膜结构是一个明显的进步,体积分数高的有序纳米金属颗粒复合介质及载色体非线性光学谐振研究更是这一进步的具体体现。在这一拓展中,将有源器件和连续局域场结合起来,利用 SPASER 的超快特性和纳米激光技术的潜在优势设计超快放大器的研究,使大规模光集成实验有了实质性进展^[19]。

2.1 SPASER 放大的理论基础

经典场方程的 SP 本征模 $\varphi_n(\mathbf{r})$ 和本征值 s_n 的关系是

$$\nabla[\theta(\mathbf{r}) - s_n]\nabla\varphi_n(\mathbf{r}) = 0, \quad (1)$$

式中 $\theta(\mathbf{r})$ 为本征函数,SP 的频率 Ω_n 满足 $s(\Omega_n) = s_n$, $s(\Omega_n)$ 满足谱函数 $s(\omega) = [1 - \epsilon(\omega)/\epsilon_h]^{-1}$, $\epsilon(\omega)$ 为金属介电常数, ϵ_h 为空气的介电常数,频率 Ω_n 是复数,且 $\Omega_n = \omega_n - i\gamma_n$, ω_n, γ_n 满足方程 $\text{Re}[s(\omega_n)] = s_n$, 因此 $\gamma_n = \frac{\text{Im}[s(\omega_n)]}{s_n}$, $s'_n = \frac{d\text{Re}[s(\omega)]}{d\omega} \Big|_{\omega=\omega_n}$, 对应周期为 $\tau_n = 1/\gamma_n$ (SP 的周期 τ_n 应足够长,才能产生 SPASER 的两级发射器),其是通过近似描述增益介质的量子哈密顿量 H 来定义的:

$$H = \frac{1}{4\pi T} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d[\omega\epsilon(\mathbf{r}, \omega)]}{d\omega} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, -\omega) \frac{d\omega}{2\pi} d^3\mathbf{r}. \quad (2)$$

(2) 式是通过时间 T 的傅里叶变换计算得出, T 应满足 $\tau_n \gg T \gg 1/\omega_n$ 。由于弛豫较少 ($\gamma_n \ll \omega_n$),使 T 成为一个相对独立的量。进一步分析电磁场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\nabla\phi(\mathbf{r}, t)$, 可得出一系列的本征态 $\varphi_n(\mathbf{r})$ 满足

$$\phi(\mathbf{r}, t) = \sum_n \sqrt{\frac{2\pi\hbar s_n}{\epsilon_h s_n}} \varphi_n(\mathbf{r}) \exp(-\gamma_n t) \times [a_n \exp(-i\omega_n t) + a_n^+ \exp(i\omega_n t)], \quad (3)$$

式中 a_n 和 a_n^+ 是指本征模 $\varphi_n(\mathbf{r})$ 的某个状态量。这样可将量子哈密顿量化成标准形式:

$$H = \sum_n \hbar\omega_n [a_n^+ a_n + 1/2]. \quad (4)$$

依此计算出 SP 的无量纲增益的第 n 个本征模式:

$$a_n = (A_n - \gamma_n)/\gamma_n, \quad (5)$$

式中 A_n 为爱因斯坦系数。显然当 $a_n > 0$ 时,量子将会放大即 SP 的发生器形成,而在 $a_n \geq 1$ 时,自发辐射可以忽略,意味着相干发生器形成,并且此时 SP 的数量在单一本征模式中迅速增加,有 $N_n \propto \exp(\gamma_n a_n t)$ 。

利用上述结果分析密度矩阵的非对角元素的方程

$$\dot{\rho}_{12}^{(p)} = -[i(\omega - \omega_{12}) + \Gamma_{12}] \rho_{12}^{(p)} + in_{21}^{(p)} \Omega_{12}^{(p)*}, \quad (6)$$

式中常量 Γ_{12} 用来描述偏振弛豫,而 $\Omega_{12}^{(p)} = -A_n \mathbf{d}_{12}^{(p)} \nabla\phi_n(\mathbf{r}_p) a_{0n}/\hbar$ 是指第 p 个载色体内的 SPASER 传输的拉比频率, $d_{12}^{(p)}$ 是对应的过渡偶极振子。通常 $d_{12}^{(p)}$ 可以是实数或者是由合适选择量子态相位的实部组成,由此可见拉比频率 $\Omega_{12}^{(p)}$ 也是实

数。(5)式表达的 SPASER 动态模型将具有很高的非线性,因为它并不是由单一弛豫时间控制的,而是由一系列从增益介质到 SP 的能量转换速率和 SP 载色体的弛豫率决定的。

同时分析 SPASER 在脉冲抽运下,由短脉冲产生的反转粒子数满足

$$\dot{n}_{21}^{(p)} = -4\text{Im}[\bar{\rho}_{12}^{(p)} \Omega_{21}^{(p)}] - \gamma_2 [1 + n_{21}^{(p)}] + g [1 - n_{21}^{(p)}], \quad (7)$$

$$\dot{a}_m = [i(\omega - \omega_n - \gamma_n)] \dot{a}_m + i \sum_p \rho_{12}^{(p)*} \Omega_{12}^{(p)}, \quad (8)$$

式中 $n_{21}^{(p)}$ 为反转粒子数即密度矩阵的对角项之差, \dot{a}_m 为径共量 a_m , 并且与时间的关系为 $a_m = a_{om} \exp(-i\omega t)$, 其中 a_{om} 为变化较慢的幅值。其中 γ_2 是衰减率。即可知当初始 SP 粒子数 N_n 超过临界值时, SPASER 在小于 100 fs 时间内产生一个短脉冲响应,同时反转粒子被迅速耗尽。对应地,当初始 SP 粒子数 N_n 小于临界值时,通过一系列的弛豫振荡, SPASER 会随着 $N_n \rightarrow 0$ 快速弛豫,相应的反转衰减就会发生,且几乎与特征时间(约 1 ps)成指数关系,这是由金属中增强能量转换到 SP 模式确定的^[6,20,21]。

在相干 SP 场相位确定后, SPASER 就可以理解为对称性自发破缺的结果。且代入上述方程推出 SPASER 发射存在的必要条件为

$$\frac{(\gamma_n + \Gamma_{12})^2}{\gamma_n \Gamma_{12} [(\omega_{21} - \omega_n)^2 + (\Gamma_{12} + \gamma_n)^2]} \sum_p |\tilde{\Omega}_{12}^{(p)}|^2 \geq 1. \quad (9)$$

2.2 放大器结构

SP 应用到放大器中,在之前研究中大都采用图 1 所示的结构:利用不断增加增益介质的方法来弥补损耗。但是一直以来由于这一方法的局限性,使

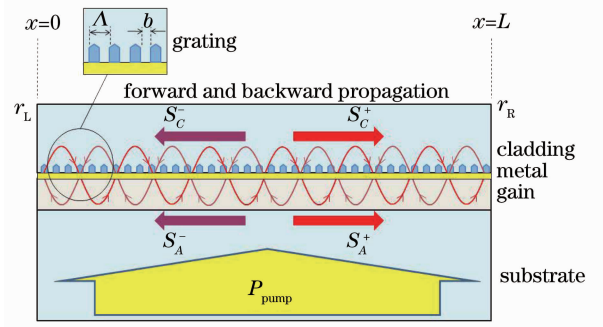


图 1 传统应用的放大原理

Fig. 1 Application of SPP traditional amplification

之无法集成到微纳结构中。

本文采用金属-绝缘体-金属(MIM)波导结构来克服上述问题。图 2 描述的放大器分别采用了传统的 MIM 波导结构图 2(a)和植入饱和吸收体的 MIM 波导结构图 2(b)。图 2(a)是在没有外界激励源的情况下,当光以端面耦合的方式进入到 MIM 波导后,会以 SP 波的形式在金属与绝缘体之间的界面进行传播,在此过程中,将产生较大的损耗,该损耗主要为介质的吸收损耗、端面处的耦合损耗等。图 2(b)是在绝缘体中引入饱和吸收体和外部激励后,饱和吸收体可以对绝缘体内部的介质提供增益,SP 波经过饱和吸收体后,会对产生的相应模式超快放大,最后利用光束接收器对输出 SP 波采集。虽然图 2(b)所示的过程中仍然存在损耗,但是在这一过程会发生明显的 SP 数量增加,即产生了放大作用。

利用这种引入饱和吸收体后增加 SP 的特点,可避免 SPASER 发射器形成过程中自发辐射的发生,即对于在特定阈值数以上的 SP 准粒子进入吸收体后使其饱和并开始产生 SPASER 发射,这就是双稳态 SPASER 放大器的工作过程。

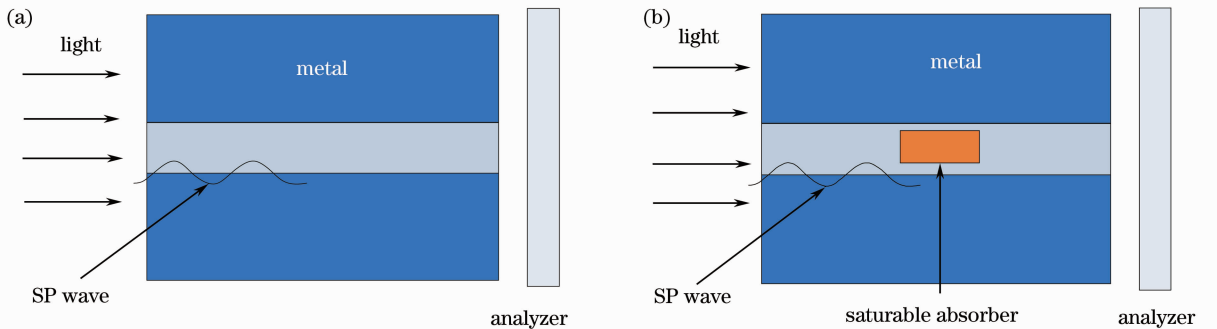


图 2 MIM 波导结构的放大器。(a)未引入饱和吸收体;(b)引入饱和吸收体

Fig. 2 Amplifier of MIM waveguide structure. (a) No saturable absorber; (b) embedded saturable absorber

2.3 关键器件的结构设计及材料的选择

放大器的结构如图 3 所示。器件设计中结构的材料选择对于结构功能实现至关重要,在对金属-介质复合结构的零级透射率的研究中发现,可见光范围内,金比银的 SPPs 透射峰弱,特别是通过其空腔共振引发的透射峰明显下降(大约为 85%),可见金的透射性能比银差,因此器件结构设计中选择银作为结构材料。考虑到波长对放大器的影响,选择波长为 566 nm 的入射光和波长为 532 nm 的抽运光,放大区长度采用 1~1.5 μm 。增益介质的选择方面,需要选择较大工作波长范围的染料和聚合物分子。

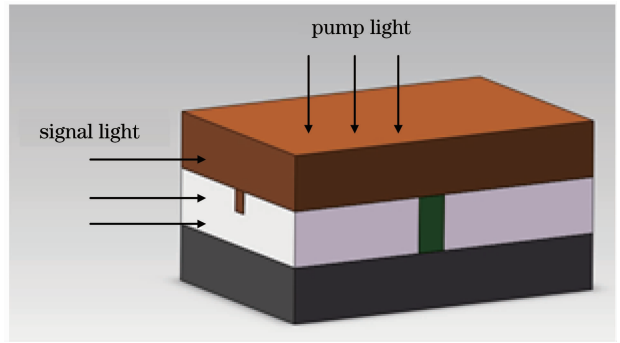


图 3 放大器的设计结构

Fig. 3 Structure of amplifier

3 SPASER 放大器的制作工艺和特点

3.1 制作工艺

考虑到放大器的结构要求和工艺的优化特点,SPASER放大器件采用了如图4所示整个制作过

程。首先采用硅作为基底材料,然后将银镀在基底材料上,增益介质选择有机染料若丹明,它的可吸光波在 526 nm 附近,能量的转换效率达到 10%左右,适合放大器中对于增益介质的基本选择要求。在此基础上,利用电子束刻蚀的方式嵌入波导结构,最后将 SiO_2 沉积到 Ag 表面。

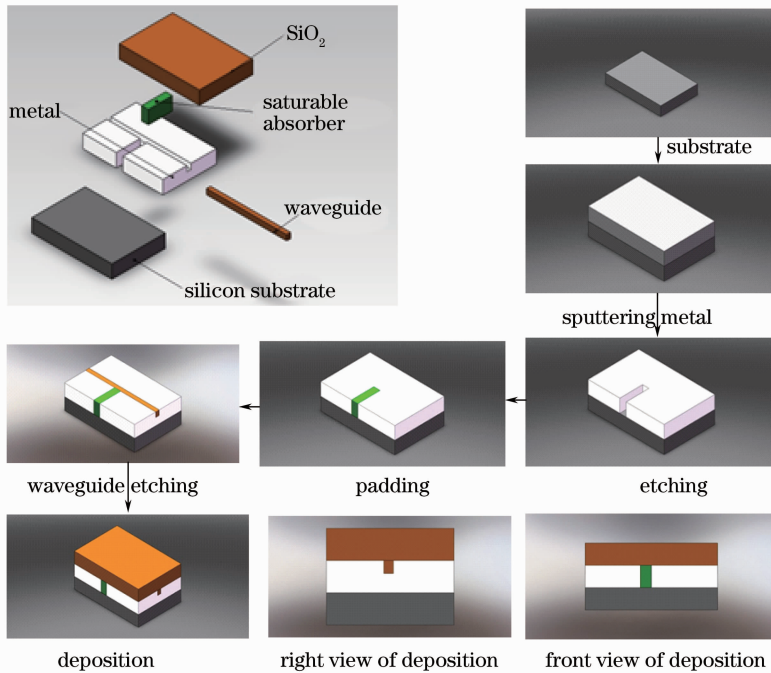


图 4 SPASER 放大器的制作过程和基本工艺

Fig. 4 Fabricaiton process and basic processing of SPASER amplifier

3.2 抽运脉冲的设计

抽运脉冲设计如图 5 所示,脉冲三倍频的 10 Hz 锁模脉冲 Nd:YAG 激光器输出抽运脉冲,波长为 532 nm,光束半径约 20 μm ,沿着某一确定方向入射到样品上,辐射激光经过柱面镜用 CCD 接收物像,同时经过一准直物镜,用分光计检测。

3.3 仿真对比

仿真采用对比的方式进行比较,图 6 比较了采

用改进的 MIM 波导结构 SPASER 放大器的瞬态中高态、低态与通常情况下的 SP 激子数。由图 6 可知,当初始 SP 激子数 N_n 小于临界值[图 6(a)]时,表现为一系列的弛豫振荡,SPASER 朝着 $N_n \rightarrow 0$ 快速弛弛,这是由于金属中增强能量转换到 SP 模式决定的;当 SP 激子数的初始值 N_n 足够大[图 6(b)]时,由于弛豫振荡,在不到 100 fs 的短时间就超过了初始值的数量,由理论分析可知 SP 激子数达到它

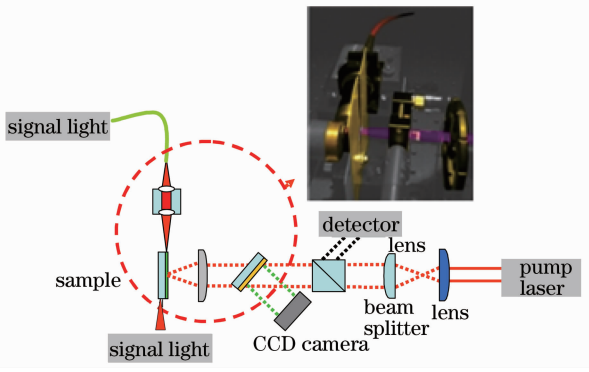


图 5 实验抽运系统设计图

Fig. 5 Pump system of experiment

的稳定状态而不是趋于 0,且可停留在这一状态很长时间;分析普通的 MIM 结构 SPP 传播时[图 6(c)], SP 的激子数也同样有放大过程,此时就算在连续抽运条件下也无法持续大量激子数,最后还将趋于 0。

为了进一步表征 SP 的放大,图 7 采用了比较在单一界面中普通 SP 传播和对于采用本文设计的波导结构的功率谱密度的方式进行分析。从中可得,一般结构的谱功率带宽显然更窄,而设计的结构在带宽方面显然更有优势;SPASER 放大器的损耗明显低于一般 SP 激射结构。结合理论依据分析仿真结果可知,研制的双稳态的 SPASER 放大器的性能指标为:响应时间为 100 fs,带宽为 1.5~2 THz,

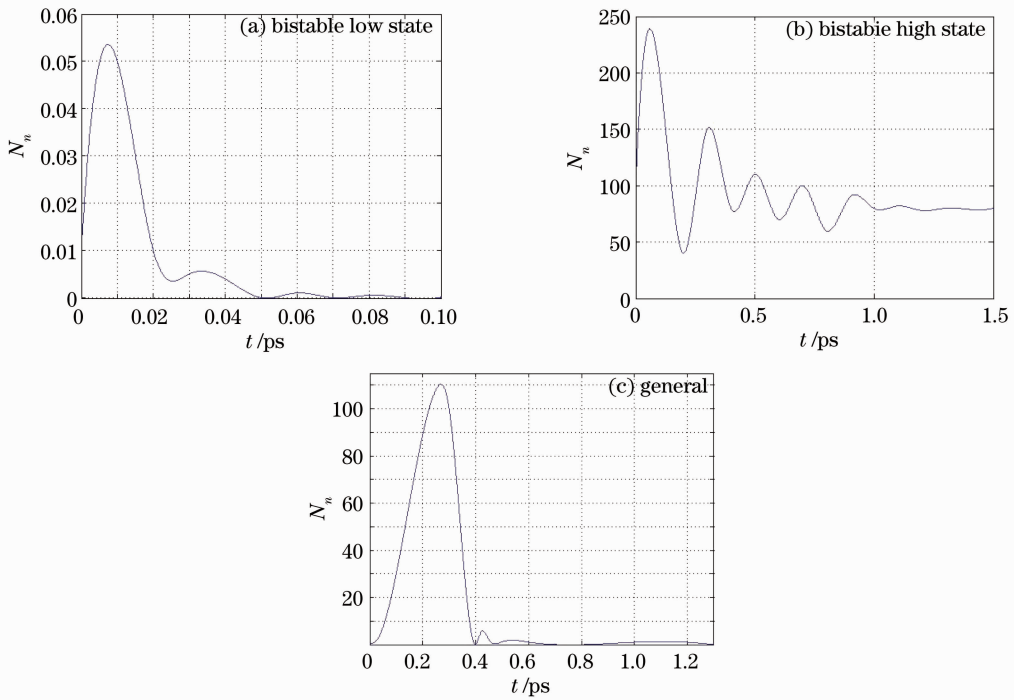


图 6 对比分析 SP 的激子数。(a) 双稳低态; (b) 双稳高态; (c) 非双稳态结构

Fig. 6 Curves of SP excitations number. (a) Bistable low state; (b) bistable high state; (c) non bistable state

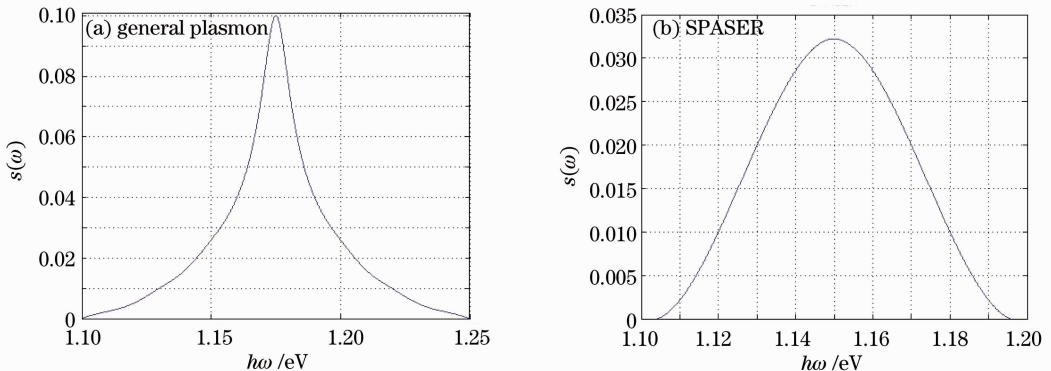


图 7 $S(\omega)$ 比较。(a) 普通 SP 传播; (b) SPASER 放大器

Fig. 7 Contrast of $S(\omega)$. (a) Ordinary SP; (b) SPASER amplifier

SP的放大增益为30~60 dB。同时也验证了双稳态放大这项技术可以解决 SPASER内反馈造成的SP净增益消除的难题^[6,7,14]。

4 结 论

研制的基于SPASER机制的双稳态放大器,理论上采用密度矩阵方程进行分析,结构上采用了带有饱和吸收体MIM波导结构实现双稳态的特性,工艺上采用了可实现和精确的制作方式。结果表明制作的双稳态放大器的脉冲响应时间可达100 fs,带宽为1.5~2 THz,SP的放大增益为30~60 dB。SPASER放大器件的研究,将在信息传输与存储、激光束的控制、光电超快转化、光子操控、纳米尺度的电泵光源和等离子微小激光器等众多方面有独特的应用。

参 考 文 献

- R. H. Ritchie. Plasma losses by fast electrons in thin films[J]. *Phys. Rev.*, 1957, **106**(5): 874~881
- Huang Dexiu, Liu Xuefeng. Semiconductor Laser and Applications[M]. Beijing: National Defence Industry press, 1999
黄德修, 刘雪峰. 半导体激光器及其应用[M]. 北京: 国防工业出版社, 1999
- C. J. Powell, J. B. Swan. Origin of the characteristic electron energy losses in aluminum[J]. *Phys. Rev.*, 1959, **115**(4): 869~875
- Xiangfeng Duan, Yu Huang, Ritesh Agarwal *et al.*. Single-nanowire electrically driven lasers[J]. *Nature*, 2003, **421**(3): 241~245
- Diederik S. Wiersma, Mikhail A. Noginov. Nano and random lasers[J]. *J. Opt.*, 2010, **12**(2): 020201
- David J. Bergman, Mark I. Stockman. Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation: quantum generation of coherent surface plasmons in nanosystem[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2003, **90**(2): 027402
- Mark I. Stockman. The spaser as a nanoscale quantum generator and ultrafast amplifier[J]. *J. Opt.*, 2010, **12**(2): 024004
- Robert F. Service. Smallest of the Small? [J]. *Science*, 2010, **328**(5980): 811~812
- M. A. Noginov, G. Zhu, A. M. Belgrave *et al.*. Demonstration of a spaser-based nanolaser[J]. *Nature*, 2009, **460**(11): 1110~1112
- Mark L. Brongersma, Vladimir M. Shalaev. The case for plasmonics[J]. *Science*, 2010, **328**(5977): 440~441
- Zheyu Fang, Qian Peng, Wentao Song *et al.*. Plasmonic focusing in symmetry broken nanocorrals[J]. *Nano Lett.*, 2011, **11**(2): 893~897
- V. A. Fedotov, N. Papasimakis, E. Plum *et al.*. Spectral collapse in ensembles of metamolecules[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2010, **104**(22): 223901
- Mark I. Stockman. Spaser action, loss compensation, and stability in plasmonic systems with gain[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2011, **106**(15): 156802
- Ge Yuanjing, Zhang Guangqiu, Chen Qiang. Plasma Science Technology and Its Application in Industry[M]. Beijing: China Light Industry Press, 2007
葛袁静, 张广秋, 陈 强. 等离子体科学技术及其在工业中的应用[M]. 北京: 中国轻工业出版社, 2007
- Gao Guangyu. The Study of Coherence of Surface Plasmon-Polaritons[D]. Tianjin: Nankai University, 2010
高光宇. 表面等离子激元相干性的研究[D]. 天津: 南开大学, 2010
- Zhou Gan, Wang Tao, Zhang Liang *et al.*. Silica Based on the Surface Plasma Resonance of the Waveguide Ultra-Wideband Optical Parametric Amplifiers[P]. 2010, CN201010266850.8
周 淦, 王 涛, 张 亮等. 基于硅基表面等离子体波导的超宽带光参量放大器[P]. 2010, CN201010266850.8
- Hong Xiaogang, Xu Wendong, Zhao Chengqiang *et al.*. Optimal design of surface plasmon resonance films structure [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(7): 2164~2469
洪小刚, 徐文东, 赵成强等. 表面等离子体共振膜系结构优化设计[J]. 光学学报, 2010, **30**(7): 2164~2169
- Qin Xiaojuan, Guo Yanan, Xue Wenrui. Propagation properties of a surface plasmonic waveguide with a double-square-shaped air core [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(12): 3537~3541
秦小娟, 郭亚楠, 薛文瑞. 双正方形中空表面等离子体光波导的传播特性研究[J]. 光学学报, 2010, **30**(12): 3537~3541
- Hakan E. Türeci, Li Ge, Stefan Rotter *et al.*. Strong interaction in multimode random lasers [J]. *Science*, 2008, **320**(5876): 643~646
- Andrey E. Nikolaenko, Francesco De Angelis, Stuart A. Boden *et al.*. Carbon nanotubes in a photonic metamaterial[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2010, **104**(15): 153902
- G. P. Guo, R. Yang, X. F. Ren *et al.*. Excitation of surface plasmons in a single silver nanowire using higher-order-mode light [J]. *Physica E*, 2010, **42**(5): 1751~1754

栏目编辑: 韩 峰