# 银纳米线表面等离子体激元导光的研究

张 旭 吴 禹 仝 旋 许孝芳 吕 柳 江苏大学机械工程学院,江苏镇江 212000

**摘要** 搭建采用光纤锥近场激发银纳米线表面等离子体激元的光路,并在氧化钢锡(ITO)衬底上实现银纳米线表面 等离子体激元突破衍射极限在亚波长领域的光波导。通过*R*轴旋转平移台,改变光纤锥与银纳米线平行方向上的 角度,研究在ITO衬底上银纳米线表面等离子体激元在不同激发角度下的耦合效率。实验上获得不同角度下银纳 米线光波导的电荷耦合元件(CCD)数码信息图,并采用 Adobe Photoshop 灰度直方图的方法,在 100 pixel×100 pixel质 量下计算入射光强以及出射光强,进而计算银纳米线的耦合效率。结果表明,在不同的激发角度下,银纳米线在 ITO衬底上的耦合效率与激发角度相关,两者平行时耦合效率最高,垂直时耦合效率最低。 关键词 表面光学;光电子学;表面等离子激元;银纳米线;耦合效率 中图分类号 0438 **文献标识码 A doi:** 10.3788/AOS201636.0124001

# Study of Surface Plasmon Polariton Waveguide of Silver Nanowire

Zhang Xu Wu Yu Tong Xuan Xu Xiaofang Lü Liu

School of Mechanical Engineering, JiangSu University, Zhenjiang, Jiangsu 21200, China

**Abstract** A specific optical system is designed and implemented to study the surface plasmon polaritons waveguides of silver nanowire deposited on the indium tin oxide (ITO) substrate. Fiber optical taper is used to stimulate surface plasmon polaritons in the near field. The degree between the fiber optical taper and the silver nanowire is changed by a *R* axial rotation. The coupling efficiency of the silver nanowire waveguide is researched corresponding to the different intersection degrees. The charge couple device (CCD) digital pictures are caught and the inlet and outlet scattering intensities are calculated by the gray histogram tool in the Adobe Photoshop with a 100 pixel×100 pixel. According to the experimental results, the coupling efficiency is effected by the intersection degree between the fiber optical taper and the silver nanowire, and the value reaches the peak when the angle is  $90^{\circ}$ .

**Key words** optics at surfaces; optoelectronics; surface palsmon polaritons; silver nanowire; coupling efficiency

**OCIS codes** 240.6680; 060.2310; 260.2110

## 1 引 言

表面等离子体激元(SPPs)是由入射光和金属表面自由震荡的电子耦合产生的一种局域在介质与金属表面传播的电磁波<sup>[1-2]</sup>。由于能量的高度局域性,SPPs能够突破传统光束的衍射极限实现在亚波长领域的光传输,这一特性使得 SPPs 近年来引起了国内外的极大关注<sup>[3-4]</sup>。这种特殊的光波导机制满足了光子器件的小型化和光集成芯片高密度化的要求,为实现光子集成器件提供了进一步的可行性。目前在多个技术领域已经实现了基于贵金属 SPPs 的应用,包括表面增强拉曼光谱仪<sup>[5]</sup>、生物标记与检测<sup>[6]</sup>、超限分辨成像以及 SPPs 激光器等<sup>[7]</sup>。由于在传输过程中 SPPs还会受到欧姆损耗以及散射损耗的影响,强度逐渐衰减,这些因素使纳米

收稿日期: 2015-07-15; 收到改稿日期: 2015-08-14

基金项目:国家青年基金(11204107),国家博士后基金(2012M521005、2015M571678),江苏省光子制造科学与技术重点实验 室开放基金(GZ201210)

作者简介:张 旭(1991—),男,硕士研究生,主要从事表面等离子体波导方面的研究。E-mail:986062685@qq.com

导师简介: 吕 柳(1981--),女,博士,副教授,主要从事近场光学方面的研究。E-mail:lvliu@ujs.edu.cn(通信联系人)

材料的SPPs输出强度大幅降低,搬运信息能力减弱,这也是约束SPPs应用的一大因素,而提高耦合效率则是 解决问题的途径之一。因此,要实现SPPs光子集成器件的大规模应用,对于SPPs耦合效率的探索意义重大。 较之其他贵金属材料,银的本征损耗小,且化学方法生长出的银纳米线表面平滑,有益于SPPs的传输<sup>[8]</sup>。与传 统衬底相比,氧化铟锡(ITO)导电薄膜表面活跃着大量的自由电子,搬运光子能力强,是目前应用非常广泛的 一种导电材料。因此,搭建了激光-光纤耦合系统,采用熔融拉锥法制备了直径可与银纳米线直径比拟的光 纤锥,采用近场激发银纳米线SPPs的方法,通过改变光纤锥与银纳米线平行角度,研究了银纳米线SPPs在 ITO表面耦合效率与激发角度的相互影响关系。实验结果表明,当光纤锥与银纳米线平行时激发效率最高, 垂直时激发效率最低。

## 2 SPPs 耦合效率的计算原理

当激发光源不变时,SPPs由于受到传输损耗的影响,强度会逐渐减弱。一般情况下,采用化学方法生长出的银纳米线表面平滑,晶格结构良好,因此可以忽略由于银纳米表面粗糙导致的传播路径中的散射损耗<sup>19</sup>。此时,银纳米线波导的出射光强与入射光强的关系为

$$I_{\text{out}} = I_{\text{in}} \exp(-L/L_{\text{sp}}), \tag{1}$$

式中 *I*<sub>au</sub>为出射光强, *I*<sub>n</sub>为入射光强, *L*为实际传输距离, *L*<sub>p</sub>为有效传输长度, 即光强衰减为初始光强的 exp(-1) 时的实际传播距离。根据(1)式, 耦合效率定义为金属纳米线光散射一端的光散射强度与光纤锥中传播的光强 比值。可以将耦合效率估算为

$$f = \{1/[1 + \exp(-l/L) \times (I_{\rm in}/I_{\rm out})] \} [(P_{\rm in} - P_{\rm out})/P_{\rm in}], \qquad (2)$$

式中 *l* 为实验样品中银纳米线的长度,*P*<sub>in</sub>为光纤锥入射端的输入功率,*P*<sub>out</sub>为光纤锥出射端的输出功率<sup>10</sup>。因为在同一根银纳米线上进行激发表面等离子体,所以避免了纳米线自身结构的差异对耦合效率的影响。在 实验中,只需要得到入射强度、出射强度,控制好有效传播距离,通过对(2)式进行拟合,即可探究耦合效率的 影响关系。

## 3 光纤锥激发银纳米线 SPPs 导光实验

#### 3.1 激发原理及光纤锥的制备

由于 SPPs 的波矢与入射激光无法匹配,因此,如果需要激发表面等离子体必须进行波矢补偿<sup>[11-12]</sup>。目前的 波矢补偿方式主要有全反射法和散射波矢补偿法。其中,全反射法是利用激发光在发生全反射的过程中,产 生倏逝波场进行波矢补偿,实际应用有棱镜耦合、高数值孔径聚焦等。散射补偿法是利用光子在产生散射时 形成的额外波矢进行补偿。在实际应用中,可利用纳米颗粒的散射光激发表面等离子体<sup>[13]</sup>。然而全反射法激 发表面等离子体的方法会使实验设备变得更加繁冗复杂,增加了实验不稳定性。纳米颗粒散射原理只能在少 部分实验中得到应用,且激发效率低,并不适合进行 SPPs传输损耗的研究。目前国内外关于金属纳米结构对 SPPs的激发也有着广泛的研究,例如金属光栅、金属凹槽结构等<sup>[14-16]</sup>。基于以上考虑,选择采用光纤锥近场激 发的原理,研究银纳米线 SPPs导光。具体方法为,采用熔融拉锥法(见图1)将一段裸光纤拉制为光纤锥,然后 利用激光-光纤耦合系统将激发光耦合进光纤锥中。此时,激发光从光纤锥另一端口出射。用三维纳米平移



图 1 熔融拉锥法烧制光纤锥示意图 Fig.1 Schematic diagram of fused biconical taper

0124001-2

台夹持住光纤锥,缓慢靠近银纳米线从而激发银纳米线 SPPs。由这种熔融状态拉制而成的光纤锥表面光滑平整,均匀度理想,散射损耗非常小。更重要的是,由于光纤锥末端直径非常小,90%以上的能量都以倏逝波的形式传播,这种高强度的倏逝场可以很容易补偿波矢进而激发 SPPs<sup>[17]</sup>。

#### 3.2 实验光路的搭建及实验方法。

首先,搭建激发银纳米线 SPPs的光路系统,采用一台波长为 532 nm 的半导体激光器(长春光机所,MGL-III-532 nm-10 mW)作为激发光源,然后利用光纤耦合透镜(THORLABS-F240FC-A,透镜焦距 F=7.86 mm,数 值孔径 NA=0.51)、光纤准直器(THORLABS)、光纤耦合四维调整架(北京光世纪,PFC201)组合而成的激光-光 纤耦合系统将激发光耦合进光纤锥中。采用纳米三维平移台(THORLABS-MAX313D)夹持住光纤锥缓慢靠 近放置在 R轴旋转台(CHUO SEIK-RS147)上的银纳米线样品。同时,采用三维平移台支撑住 R轴旋转台,以 便于银纳米线样品可以四维移动,如图 2 所示。实验中所用银纳米线样品采用多元醇还原法制备<sup>[18]</sup>。采用 乙二醇作为还原剂,聚乙烯吡咯烷酮(PVP)作为表面活性剂,硝酸银为银料来源,加入少量氯化铁作为保护 剂,在 150 ℃的条件下,采用油浴加热制备银纳米线溶液。所得的银纳米线溶液以 3600 rad/s 的速度离心并 溶解在乙醇中,重复两次以除掉反应残留物,保留在乙醇中备用。纳米线的乙醇溶液滴在 ITO 导电薄膜上并 放置在空气中自然风干,从而得到实验银纳米线样品。将刻有字母坐标的微型无支撑膜的镂空铜网放置在 沉积了纳米线的衬底上。实验中,通过铜网的标记标定纳米线的位置,就可以在以后的多次实验中[包括扫 描电镜(SEM)测试]找到相同的纳米线,从而保证实验的准确性<sup>[19]</sup>。纳米线的扫描电镜图见图 3,从中可以看 出纳米线表面光滑,直径为 231.7 nm,长度为 6.7 μm。样品上方采用物镜(PVD-195SPA,×80)和电荷耦合元 件(CCD)(PDV-MV500)来观察和采集数据。



Fig.2 Schematic diagram of experimental setup



Fig.3 SEM image of silver nanowire

## 4 实验结果

在ITO导电薄膜表面上选择一根表面光滑、长度适中的银纳米线进行 SPPs 导光实验。将已经耦合进激 光的光纤锥缓慢靠近到银纳米线的一个端点,通过 R轴旋转平移台调整光纤锥与纳米线的角度。然后,调整 纳米线和光纤锥平行,并利用光纤锥激发 SPPs,通过 CCD 观察银纳米线的端点从而判断入射光激发 SPPs 的 传输情况。此外,分别调整光纤锥和银纳米线的夹角,在 0°~90°的范围内分别在不同角度下进行了 SPPs 的 激发以及导光实验。图 4为不同角度下银纳米线与光纤锥的明场成像图以及激光在纳米线内的传输实验结 果图。从图 4(a)~(d)可以明显观察到银纳米线和光纤锥,并通过该成像判断出二者的角度分别约为 0°、30°、 60°、90°。图 4(e)~(h)分别为图 4(a)~(d)对应的在入射激光激发下的暗场像,从中可以看出在这 4 种角度下, SPPs都能被激发且从纳米线的端口有激光出射,即为银纳米线的基于 SPPs 的光传输。由于银纳米线的直径 为 231.7 nm,说明了该纳米线的光波导突破了衍射极限,使得入射光局域在纳米尺度传输。此外,从图 4 中 可以明显看出,银纳米线出射端口的强度随着激发角度的变化而变化,在平行的时候出射端口散射光强最 强,而在垂直的时候出射端口光强最弱。

采用 Adobe Photoshop 灰度直方图的处理方式<sup>[20]</sup>,得到了入射光以及出射光的归一化强度,并计算了各个角度下的 SPPs 耦合效率 f,如图 5 所示。结果表明,随着光纤锥和纳米线的夹角的增大,耦合效率逐渐降低,且在平行时 f 最大,而在垂直时 f 最小。又选择了其他两根纳米线进行了 SPPs 导光实验,并计算了在不同角度下耦合效率 f 的值,得到了类似的结果。充分的数据表明,在 ITO 表面上,银纳米线 SPPs 的导光耦合效率受到



图 4 银纳米线基于 SPPs 的光传输成像图。光纤锥与银纳米线的夹角分别约为(a) 0°, (b) 30°, (c) 60°, (d) 90°时的明场成像图; (e)~(h)为与图 4(a)~(d)对应的 SPPs 导光的暗场成像(白色圆圈标记的为 SPPs 出射点的位置) Fig.4 Images of SPPs based light propagation along silver nanowire.Bright field imaging with angles between the fiber optical taper and the silver nanowire of (a)0°, (b)30°, (c)60°, (d)90°; (e)~(h) dark field imaging corresponding the waveguide diagrams to Figs.4(a)~(d) (the incident light spots are marked by the white circles)

激发角度的影响,当光纤锥与银纳米线平行时,耦合效率最高,而当光纤锥与银纳米线垂直时,耦合效率最低。 表面等离子体的波矢  $\mathbf{k}_{spp}$ 大于入射光的波矢  $\mathbf{k}_{in}$ ,所以当光纤锥接触到银纳米线一端时,一部分入射光被散射。 由散射理论得知,此时入射光波矢获得一个额外的波矢补偿  $\mathbf{k}_{sea}$ ,若要激发SPPs,则需要满足条件  $\mathbf{k}_{spp} = \mathbf{k}_{in} \cos \theta + \mathbf{k}_{sea}$ , 式中 $\theta$ 为纳米线与光纤锥的夹角,即激发角度。当 $\theta$ 越接近 0°时,越容易满足等式条件,即容易补偿波矢,此时 耦合效率也就更高。相反,当 $\theta$ 越接近 90°,此时很难满足补偿波矢的条件,因此激发效率最低。当激发角度转 过 90°时,所有的矢量的方向都发生相同的改变,因而得到的值并不会改变。



图5 银纳米线耦合效率与激发角度的关系

## 5 结 论

搭建采用光纤锥近场激发 SPPs 的实验光路,并研究 ITO 衬底上银纳米线 SPPs 导光耦合效率与激发角度 的关系。实验观察到明显的银纳米线突破衍射极限在亚波长领域传播的现象。由于激发 SPPs 需要波矢量 匹配,合适的激发角度能够更加有效地激发提供额外的波矢补偿,从而增加 SPPsSs 耦合效率。用 R 轴旋转 台改变光纤锥与银纳米线的激发角度,在0°~90°的范围内探究银纳米线 SPPs 导光现象,并在不同角度下计 算其耦合效率。实验发现,不同的银纳米线的耦合效率都随着激发角度的变化而变化,当激发角度为0°时 耦合效率最高,90°时耦合效率最低。该实验结论对银纳米线微纳光学集成器件有很好的推动作用。

#### 参 考 文 献

1 Gramotnev D K, Bozhevolnyi S I. Plasmonics beyond the diffraction limit[J]. Nature Photonics, 2010, 4(2): 83-91.

2 Lü Liu. Localized Surface Plasmon Enhanced Photoluminescence of Nano Metal and Fluorescent QDs Composite System[D]. Heifei: University of Technology and Science of China, 2009: 31-39.

Fig.5 Relationship between the coupling efficiency and the stimulated degree of silver nanowire

- 光学学报
- 吕 柳.纳米金属和荧光量子点复合体系的局域表面等离子体增强荧光的研究[D].合肥:中国科学技术大学,2009:31-39.
- 3 Holmgaard T, Chen Z, Bozhevolnyi S I, *et al.*. Bend-and splitting loss of dielectric-loaded surface plasmon-polariton waveguides[J]. Opt Express, 2008, 16(18): 13585-13592.
- 4 Hutter E, Fendler J H. Exploitation of localized surface plasmon resonance[J]. Advanced Materials, 2004, 16(19): 1685-1706.
- 5 Maier S A. Plasmonic field enhancement and SERS in the effective mode volume picture[J]. Opt Express, 2006, 14(5): 1957-1964.
- 6 Haes A J, Van Duyne R P. A nanoscale optical biosensor: Sensitivity and selectivity of an approach based on the localized surface plasmon resonance spectroscopy of triangular silver nanoparticles[J]. Journal of the American Chemical Society, 2002, 124(35): 10596–10604.
- 7 Park H, Qian F, Barrelet C J, et al.. Microstadium single-nanowire laser[J]. Applied Physics Letters, 2007, 91(25): 251115.
- 8 Li X, Guo X, Wang D, et al.. Propagation losses in gold nanowires[J]. Opt Commun, 2014, 323: 119-122.
- 9 Li Xiyuan. All-Fiber Hvbrid Photo-Plasmon Circuits: Intergrating Nanowire Plasmonics with Fiber Optics[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2014: 29-38.

李西远. 表面等离激元与标准光纤的集成和应用[D]. 杭州: 浙江大学, 2014: 29-38.

10 Yang Rui. The Application of Surface Plasmons in Light Propagation Through Metallic Nanowires[D]. Heifei: University of Technology and Science of China, 2010: 27-28.

杨 锐.表面等离子体在金属纳米线光信息传输中的应用[D].合肥:中国科学技术大学,2010:27-28.

- 11 Krasavin A V, Zayats A V. Passive photonic elements based on dielectric-loaded surface plasmon polariton waveguides[J]. Applied Physics Letters, 2007, 90(21): 211101.
- 12 Krishnan A, Regan C J, Grave De Peralta L, et al.. Resonant coupling in dielectric loaded plasmonic waveguides[J]. Applied Physics Letters, 2010, 97(23): 231110.
- 13 Dong Chunhua. Experiment Study of Whispering Gallery Mode Microcavity and Cavity Quantum Dynamics[D]. Heifei: University of Technology and Science of China, 2011: 33-55.

董春华.回音壁模式微腔量子电动力学的实验研究[D].合肥:中国科学技术大学,2011:33-55.

14 Chen Quansheng, Tong Yuying, Zhuang Yuan, et al.. Unidirectional excitation of surface plasmon based on metallic-slit-groove structure [J]. Acta Optica Sinica, 2014, 41(5): 0510001.

陈全胜, 佟玉莹, 庄 园, 等. 基于金属狭缝凹槽结构单向激发表面等离子体[J]. 光学学报, 2014, 41(5): 0510001.

15 Xiao Yufei, Zhang Weiping, Huang Haihua, *et al.*. Influence of function of metal grating shape on surface plasmon resonance[J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(11): 1114001.

肖钰斐,张伟平,黄海华,等.金属光栅结构对表面等离子体共振的影响[J].中国激光,2013,40(11):1114001.

16 Luo Xin, Zou Xihua, Wen Kunhua, et al.. Narrow-band filter of surface plasmon based on dual-section metal-insulator-metal structure [J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(11): 1123003.

罗 昕, 邹喜华, 温坤华, 等. 双节 MIM 结构表面等离子体窄带光学滤波器[J]. 光学学报, 2013, 33(11): 1123003.

- 17 Ma Y, Li X, Yu H, et al.. Direct measurement of propagation losses in silver nanowires[J]. Opt Lett, 2010, 35(8): 1160-1162.
- 18 Coskun S, Aksoy B, Unalan H E. Polyol synthesis of silver nanowires: An extensive parametric study[J]. Crystal Growth & Design, 2011, 11(11): 4963-4969.
- 19 Lu L, Wang L, Zou C, *et al.*. Doubly and triply coupled nanowire antennas[J]. The Journal of Physical Chemistry C, 2012, 116(44): 23779–23784.
- 20 Pyayt A L, Wiley B, Xia Y, *et al.*. Integration of photonic and silver nanowire plasmonic waveguides[J]. Nature Nanotechnology, 2008, 3(11): 660-665.

栏目编辑:张 雁