

扫描近场光学显微镜的光耦合偶极子模型*

吴才章^{1,2} 叶 梅¹ 叶虎年¹

(1 华中科技大学 仪器系, 武汉 430074)

(2 河南工业大学 电气学院, 郑州 450052)

摘 要 为了研究扫描近场光学显微镜中探针和粗糙样品表面的耦合相互作用, 提出了一种光耦合偶极子模型. 在该模型中, 探针和样品突起都由光极化偶极子表示, 在准静态电磁场近似的情况下样品表面的诱导极化效应由影像偶极子表示, 应用偶极子辐射理论可以得到系统的自洽场方程. 此模型提供了一种直观分析扫描近场光学显微镜中探针和样品相互作用机理的方法. 在此基础上, 进一步讨论了金属样品的近场成像特点和其特有的局域光学共振现象. 数值结果表明: 不同于一般的介质样品, 金属样品的近场图像与入射光频率直接相关, 改变入射光的频率, 获得的样品近场图像的形状和对比度都会发生变化. 特别是当入射光频率处于样品极化共振范围内时, 金属纳米粒子的极化率会出现光极化共振, 这样就可以获得样品粒子的最大有效尺寸, 为提高系统的分辨率提供了一条重要途径.

关键词 扫描近场光学显微镜; 准静态电磁场; 影像偶极子

中图分类号 O439 **文献标识码** A

0 引言

对近场光学显微镜的理论研究是近场光学技术的一个重要方面, 总的来说, 主要采用两种方法: 一是数值计算. 时域有限差分法(FDTD)是一种被广泛应用于近场光学理论模拟的数值计算方法^[1], 但是由于近场光学显微镜本身的结构特点和近场特有的局域特性, 系统边界条件的适当选取是一个很难解决的问题, 使得此方法的应用受到很大的限制; 二是解析方法, Girard 等人率先应用场传播子理论对近场光学显微镜进行了理论研究, 提出了近场光学场传播子的概念, 对近场光学的理论研究起到了奠基作用^[2,3]. 随后 Keller 等人对近场传播子理论作了更深入的探讨, 提出了近场直接传播子和间接传播子的概念^[4~6]. Girard 和 Keller 都是在并矢格林函数的基础上, 为避免引入边界条件, 通过场积分方程的方法得到场传播子的具体表达式和系统的场分布. 这种求解过程比较复杂, 不易于揭示探针和样品相互作用的微观机理. 本文采用间接的方法, 不直接求解系统的场方程, 而是利用等效原理的方法避免了由边界条件带来的计算的复杂性, 在电磁场准静态近似的情况下, 应用影像偶极子方法对近场光学显微镜进行理论模拟.

1 影像偶极子模型

本理论的出发点是用极化偶极子代表探针和样

品突起. 光场在这些小粒子上诱导的偶极矩的大小与其位置处的局域场成正比, 这种理论模型对于纳米级的研究对象来说已经被证明是合理的^[7]. 本文考虑的系统结构如图 1, 一个半径为 a , 极化率为 α_s 的偶极子球代表近场光收集探针, 它位于样品平面上与样品平面距离为 R_s . 半径为 b , 极化率为 α_t 的偶极子球代表样品突起, 它们也都位于样品平面上方, 与样品平面距离为 R_s . 整个下半空间充满复介电常数为 ϵ 的样品, 以样品表面为 $x-y$ 平面建立如图的笛卡儿坐标系.

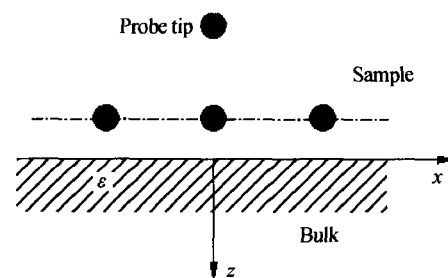


图 1 近场光学显微镜的几何结构

Fig. 1 Schematic diagram showing the geometry of system, i. e. the probe tip sphere, the sample in SNOM

根据场方程的知识, 如果能确切地知道样品平面的场分布, 也就是知道系统的边界条件, 就可以通过格林函数的方法计算出任意探测位置的场分布. 然而由于样品平面上诱导极化电荷的出现, 很难确切地给出系统的边界条件. 为了解决这一问题, 根据近场探测的实际情况, 考虑到近场光学显微镜的探测距离远小于入射光的波长, 应用准静态电磁场理论中的镜像理论, 样品平面上的诱导极化效应由探针和样品偶极子的影像来等效, 如图 2.

*国家自然科学基金资助项目(30170276)和(10176010)
Tel: 0371-66088726 Email: wucaizhang@sohu.com
收稿日期: 2004-09-01

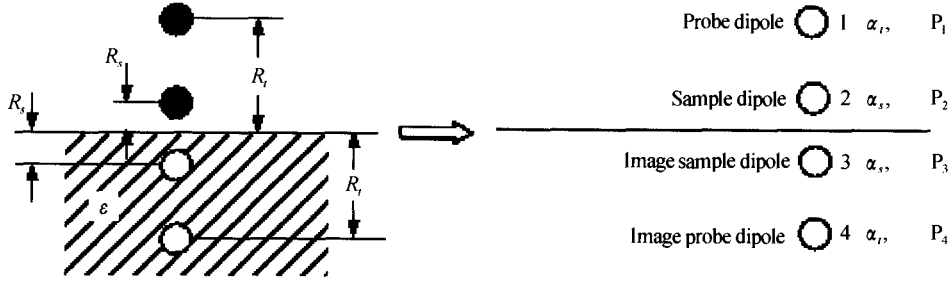


图2 影像偶极子模型

Fig. 2 Schematic diagram showing the image dipole model for SNOM

对于 E 垂直于样品平面也就是入射光为 z 偏振的情形, 偶极矩为 p 的偶极子在样品表面的诱导极化效应可以用一个大小相等以样品平面为对称面的影像偶极子来代替, 其等效的偶极矩为^[8]

$$p' = \beta p \quad (1)$$

式中 $\beta = (\epsilon - 1) / (\epsilon + 1)$. 对于 E 平行于样品平面的情形, 包括 x 偏振或 y 偏振, 影像偶极子的偶极矩应取为

$$p' = -\beta p \quad (2)$$

下面对偶极子的辐射场分布进行一个全面的分析, 对于偶极矩为 p 的偶极子来说, 其辐射的电场和磁场分别为^[9]

$$E(\omega, r) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \exp(ik \cdot r - i\omega t) \left\{ \frac{1}{r^3} [3 \hat{r} (\hat{r} \cdot p) - p] - \frac{ik}{r^2} [3 \hat{r} (\hat{r} \cdot p) - p] - \frac{k^2}{r} [\hat{r} \times (\hat{r} \times p)] \right\} \quad (3)$$

$$H(\omega, r) = -\frac{i\omega}{4\pi\epsilon_0} \exp(ik \cdot r - i\omega t) \left(\frac{1}{r^2} - \frac{ik}{r} \right) \cdot p \times \hat{r} \quad (4)$$

由式(3)、(4)可知, 在远场 ($kr \gg 1$) 区域, $1/r$ 项占主导地位, 这部分场被称为辐射场; 在近场区域 ($kr \ll 1$), $1/r^3$ 项占主导地位, 这部分场被称为隐失场. 在近场区域, 占主导地位的是隐失场, 其电场和磁场能量密度之比为

$$\frac{U_E(r)}{U_H(r)} = \frac{\epsilon_0 |E|^2}{\mu_0 |H|^2} \approx \frac{1}{k^2 r^2} \gg 1 \quad (5)$$

由式(5)可以看出, 在近场区域电场分量比磁场分量大的多, 所以下面的计算中仅保留 $1/r^3$ 项对应的电场分量.

根据分析, 可以得到一组描述图 2 系统的场方程, 探针和样品突起处的电场分布分别由其他偶极子的辐射场共同决定, 他们的场分布必须通过自洽的方法求出^[10]. 由于采用了电磁场的准静态近似, 可以忽略近场传播引起的相位延迟, 以下公式中计算中略去时谐因子.

$$E_1 = E_0 + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r_{21}^3} [3 \hat{r}_{21} (\hat{r}_{21} \cdot p_2) - p_2] + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r_{31}^3} [3 \hat{r}_{31} (\hat{r}_{31} \cdot p_3) - p_3] + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{1}{r_{41}^3} [3 \hat{r}_{41} (\hat{r}_{41} \cdot p_4) - p_4] \quad (6)$$

$$E_2 = E_0 + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r_{12}^3} [3 \hat{r}_{12} (\hat{r}_{12} \cdot p_1) - p_1] + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r_{32}^3} [3 \hat{r}_{32} (\hat{r}_{32} \cdot p_3) - p_3] + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{1}{r_{42}^3} [3 \hat{r}_{42} (\hat{r}_{42} \cdot p_4) - p_4] \quad (7)$$

式中 $p_1 = \alpha_i E_1$, $p_2 = \alpha_s E_2$, $p_{3x} = -\beta \alpha_s E_{2x}$, $p_{3y} = -\beta \alpha_s E_{2y}$, $p_{3z} = \beta \alpha_s E_{2z}$, $p_{4x} = -\beta \alpha_i E_{1x}$, $p_{4y} = -\beta \alpha_i E_{1y}$, $p_{4z} = \beta \alpha_i E_{1z}$.

式(6)和(7)表明, 样品在探针处引起的近场分布受到探针本身的影响, 也就是说探针和样品之间存在强烈的相互作用, 只有把他们看作一个统一的整体, 才能正确地得到系统的近场分布.

根据式(6)或(7), 对于 N 个偶极子(包括探针), 可以写出任一被研究偶极子位置处的场方程

$$E(r, \omega) = E_0(r, \omega) + \sum_{i=1}^N [F(r, r_i, \omega) \cdot E(r_i, \omega)] \quad (8)$$

式中

$$F(r, r_i, \omega) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \alpha_i(\omega) [T(r, r_i) + T(r, r_{iM}) M(\omega)] \quad (9)$$

$$T(r, r_i) = \frac{3\mathbf{R}\mathbf{R} - R^2\mathbf{U}}{R^5}, \mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{r}_i, R = |\mathbf{R}|, r_{iM} = (x_i, y_i, -z_i) \quad (10)$$

$$M(\omega) = \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1} \begin{vmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{vmatrix} \quad (11)$$

$\alpha_i(\omega) = \alpha_i U$ 表示偶极子的极化率张量, U 是单位张量. 上述结果与通过电磁场并矢传播子方法的结果完全一样, $T(r, r_i)$ 表达了此偶极子与其他真实偶极子的直接相互作用, 被称为近场直接传播子, $T(r, r_{iM}) \cdot M(\omega)$ 表示此偶极子与其他影像偶极子的相互作用, 被称为近场间接传播子^[5, 11].

如果进一步考虑远场和中间场的贡献, 场直接传播子表达式可由式(3)直接得到

$$D(r, r_i, \omega) = \frac{1}{4\pi} \left[\left(-\frac{1}{R} - \frac{ic_0}{\omega R^2} + \frac{c_0^2}{\omega^2 R^3} \right) \mathbf{U} + \left(\frac{1}{R} + \frac{3ic_0}{\omega R^2} - \frac{3c_0^2}{\omega^2 R^3} \right) \hat{\mathbf{R}}\hat{\mathbf{R}} \right] \exp [i(\omega/c_0)R] \quad (12)$$

2 数值计算和讨论

既然扫描近场显微镜可以通过等效的偶极子(包括真实偶极子和影像偶极子)来描述,所以关于它的一些重要结论可以通过偶极子辐射方面的知识直观地得到,比如金属样品对系统探测精确度的影响.不同于一般的介质样品,金属样品存在特有的光极化共振,利用这种共振效应可以优化系统设计,所以在近场光学显微镜的实验中,常常以金属样品作为观测对象.特别是贵金属,它的极化共振频率已经处于可见光区域.

为了模拟系统的场分布,必须知道探针和样品偶极子的极化率.在扫描近场光学显微镜中,探针和样品突起的尺寸远小于入射光的波长,其等效极化率可以通过长波近似的方法得到,真空中各向同性纳米球的光学极化率张量为^[6]

$$\alpha(\omega) = 4\pi\epsilon_0 a^3 \frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 2} U \quad (13)$$

式中 ϵ_0 是真空的介电常数, $\epsilon(\omega)$ 表示球粒子与入射光频率 ω 相关的相对复介电常数, a 为其半径.

对于金属粒子,与频率有关的复介电常数可由 Drude 理论模型得到

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma)} \quad (14)$$

ω_p 是金属的金属等离子体频率, γ 是粒子的光学阻尼系数.由式(14)可知,当 $\omega = \omega_0 = \omega_p/\sqrt{3}$ 时,金属粒子会出现极化共振,这与金属粒子的表面等离子

体共振有关.

为计算简便,假定观测对象仅有两个金属样品偶极子,它们沿 x 方向相距 200 nm (± 100 nm),并假设入射光为 x 偏振,探针沿 x 方向以恒高级模式进行扫描,通过数值计算可以求出不同频率入射光照下探针在不同扫描位置探测到的光强 E^2 的大小.计算中参数选取为: $R_t = 100$ nm, $a = 10$ nm, $R_s = 25$ nm, $b = 10$ nm, 探针介质的相对介电常数 $\epsilon = 1.5$, 观测的金属样品为金属纳米球.图 3 是在不同频率入射光照下,探针处的光强 E^2 随 x 的变化曲线,图 3(a) 为入射光频率远小于共振频率的情形,此时样品的近场图像出现了对比度反常,此种情况和介质样品的一样,即两个样品球正上方的光强出现了两个凹陷,这是由于样品在探测处引起的场扰动小于 E_0 的缘故;图 3(b) 为入射光频率等于金属样品极化共振频率的情形,此时样品的近场图像出现了对比度正常,而且光强曲线的 FWHM 也增宽,这是由于在共振区域,样品偶极子出现了极化共振,它的有效尺寸受到明显的增加,在样品球正上方探测处引起的场扰动大于^[12] E_0 . 计算中也发现对于入射光频率远大于共振频率的情况,计算出的光强曲线和入射光频率远小于共振频率的情形完全相反,如图 3(c),这是由于当入射光频率小于共振频率时,金属样品极化率的实部为正值;当入射光频率远大于共振频率时,金属样品极化率的实部为负值.

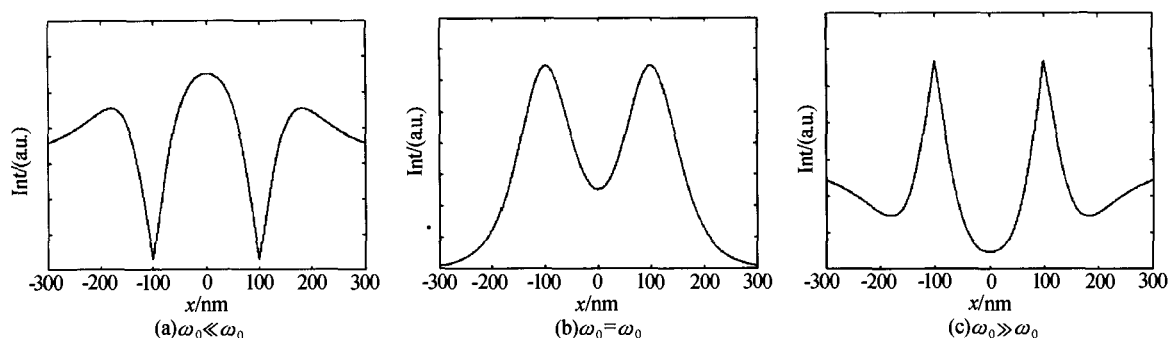


图 3 不同频率入射光照下探针处的光强随 x 坐标的变化曲线

Fig. 3 Intensity of the field at the site of the probe tip as a function of the x -coordinate with different incident light frequency

计算结果表明:金属样品不同于一般的介质样品,在其他条件不变的情况下,改变入射光的频率,获得的近场图像的形状和对比度都可能会发生改变.特别是当入射光频率处于样品极化共振范围内时,可以获得样品的最大有效尺寸,这为获得更高的系统分辨率提供了一条途径.

3 结论

根据近场探测处于纳米级亚波长范围内的特点,

应用电磁场准静态近似理论中的镜像理论,在不引入边界条件的情况下,提出了一种模拟近场光学显微镜的简便方法.应用此方法不仅可以使我们对近场光学显微镜系统的场分布进行定量的讨论,也能使我们对系统中探针和样品相互作用的机理有更本质的认识,而且该方法计算简便、物理意义明确,能直观地模拟扫描近场光学显微镜的工作过程.

参考文献

- 1 Christensen D A. Analysis of near field tip patterns including object interaction using finite-difference time-domain

- calculation. *Ultramicroscopy*, 1995, **57**(2): 189~195
- 2 Girard C, Courjon D. Model for scanning tunneling optical microscopy: a microscopic self-consistent approach. *Phys Rev B*, 1990, **42**(15): 9340~9349
 - 3 Girard C, Dereux A, Martin O J F, et al. Generation of optical standing waves around mesoscopic surface structures: scattering and light confinement. *Phys Rev B*, 1995, **52**(4): 2889~2898
 - 4 Keller O. Screened electromagnetic propagators in nonlocal metal optics. *Phys Rev B*, 1986, **34**(6): 3883~3899
 - 5 Keller O, Xiao M, Bozhevolnyi S. Configurational resonances in optical near-field microscopy: a rigorous point-dipole approach. *Surf Sci*, 1993, **280**(1): 217~230
 - 6 Xiao M, Bozhevolnyi S, Keller O. Numerical study of configurational resonances in near-field optical microscopy with a mesoscopic metallic probe. *Appl Phys A*, 1996, **62**(1): 115~121
 - 7 Labani B, Girard C, Courjon D, et al. Optical interaction between a dielectric tip and a nanometric lattice: implications for near-field microscopy. *J Opt Soc Am B*, 1990, **7**(6): 936~943
 - 8 Knoll B, Keilmann F. Enhanced dielectric contrast in scattering-type scanning near-field optical microscopy. *Opt Commun*, 2000, **182**(8): 321~328
 - 9 Jackson J D. Classical Electrodynamics, New York: Wiley, 1998. 391~427
 - 10 Davis R C, Williams C C. Optical dipole model for photodetection in the near field. *J Opt Soc Am A*, 2001, **18**(7): 1543~1551
 - 11 武清华, 王桂英, 徐至展. 自洽场方法研究近场扫描显微镜的分辨率. *中国激光*, 2002, **29**(10): 871~874
Wu Q H, Wang G Y, Xu Z Z. *Chin J Lasers*, 2002, **29**(10): 871~874
 - 12 Girard C, Bouju X. Self-consistent study of dynamical and polarization effects in near-field optical microscopy. *J Opt Soc Am B*, 1992, **9**(2): 298~305

Optical Coupled-dipole Model for Scanning Near-field Optical Microscopy

Wu Caizhang^{1,2}, Ye Mei¹, Ye Hunian¹

¹ Department of Instrumentation, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074

² College of Electrical Engineering, Henan University of Technology, Zhengzhou 450052

Received date: 2004-09-01

Abstract An optical coupled-dipole model was proposed in order to study the coupling between the probe tip and the rough sample in SNOM. In this model both the optical probe tip and the sample protrusions were represented by optical polarizable dipole spheres. The induced polarization effects on the sample surface can be replaced by the image dipoles in the context of quasi-static electromagnetic field approximation. Applying the radiation theory of the dipole, a set of self-consistent equations have been established to describe the field distribution at the sites of the probe tip and the sample protrusions. This method permits us to analyze the physical mechanisms of the interaction between the probe tip and the rough sample surface in SNOM intuitively. On the basis of this approach, the characteristic of the near-field imaging and the localized optical resonance of the metallic sample were discussed. The calculating result indicates that its near-field images were directly related to the incident light frequency, and the shape and the contrast of the images were sensitive to the incident light frequency. Especially when the frequency of the incident light was within the range of the polarized resonance frequency, the polarized resonance of the nanoparticle will appear, and one can obtain the largest effective size of the sample particles. This may open a new way towards the better detection sensitivity in SNOM.

Keywords Scanning near-field optical microscopy; Quasi-static electromagnetic field; Image dipole



Wu Caizhang was born in 1968. He received the M. S. degree from the Physics Department of Huazhong University of Science and Technology in 1997. Now he is a Ph. D candidate in the Department of Instrumentation. His major research involves the near-field optics and precision measurement.