

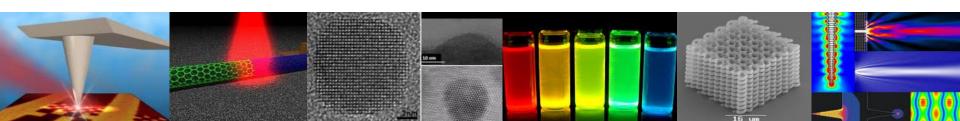
纳米光子学

nanophotonics

第6讲:金属光学与体积等离激元

兰长勇

光电科学与工程学院



回顾

光与物质相互作用

- 材料的光学性质 吸收、散射和色散(色散关系 ω-k 、相速度和群速度)
- ▶电磁场理论

Maxwell方程组、边界条件、本构关系(物质方程)、 波动方程、时空谐波场(霍姆霍兹方程)

绝缘体材料的光响应

Lorentz模型(束缚电子)

纳米光子学内容

课程知识点

1. 研究内容

纳米光子学基础

电子与光子异同 4 纳米尺度下光与物质相互作用

2. 研究方法

计算方法: 电磁场数值模拟

特性描述: 近场光学

制备方法: 纳米加工

量子材料: 电子的限域引起光学效应

表面等离子体光学: 金属光学

光子晶体:周期性介质光学

亚波长共振: 在远场影响光传播和

偏振的周期性光学结构

超材料: 人工设计电磁材料

表面等离子体光学

- ▶ 金属光学与体积等离激元
- ▶ 表面等离子体激元
- ▶ 表面等离子体激元的激发与表征
- 局域表面等离子体
- ▶ 等离子体集成电路

本讲内容

- 1. 什么是等离子体?
 - -宇宙中的等离子体
 - -金属中的等离子体
- 2. 金属光学性质
 - -Drude模型
 - -等离子体频率对应的介电常数ε
- 3. 等离子体激元
 - -体积等离子体激元的物理本质
 - -体积等离子体激元的性质
 - -体积等离子体激元的应用

自然界中的等离子体



闪电



地球电离层



极光

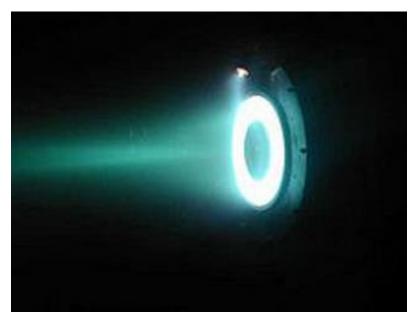


等离子体灯

实验室中的等离子体



等离子体化学气相沉积

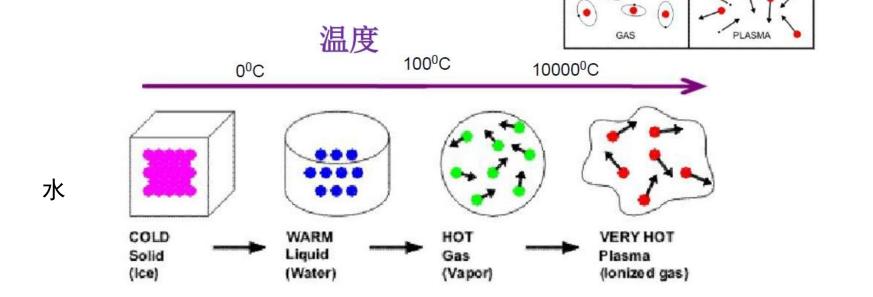


溅射沉积、等离子刻蚀/清洗

共同特点电离气体

等离子体的特征

物质的四种状态: 固体、液体、气体 <mark>等离子体——具有自由电荷的热电离气体</mark>



- •如果对气体持续加热,使分子分解为原子并发生电离,就形成了由离子、电子和中性粒子组成的气体,这种状态称为<mark>等离子体</mark>。
- •除了加热之外,还可以利用如加上强电磁场等方法使其解离。

电离

bound electron free electron

等离子体和普通气体性质不同

普通气体:

由分子构成,分子之间相互作用力是短程力,仅当分子碰撞时,分子之间的相互作用力才有明显效果。

等离子体:

- 1. 带电粒子之间的库仑力是长程力,库仑力的作用效果远远超过带电粒子可能发生的 局部碰撞效果;
- 2. 等离子体中的带电粒子运动时,能引起正电荷或负电荷局部集中,产生电场;电荷 定向运动引起电流,产生磁场;
- 3. 电场和磁场会影响其他带电粒子的运动,并伴随着极强的热辐射和热传导;
- 4. 等离子体在运动过程中一般都表现出明显的集体行为。

等离子的这些特性使它区别于普通气体被称为物质的第四态

金属中的等离子体

固体、液体、气体通常温度过低,密度过大,导致没有等离子 体存在

在室温下能得到等离子体吗?

- 电解质溶液:正、负离子——液态等离子体
- 半导体:电子和空穴——固态等离子体

金属:自由电子+正离子



三种等离子体共振形式:

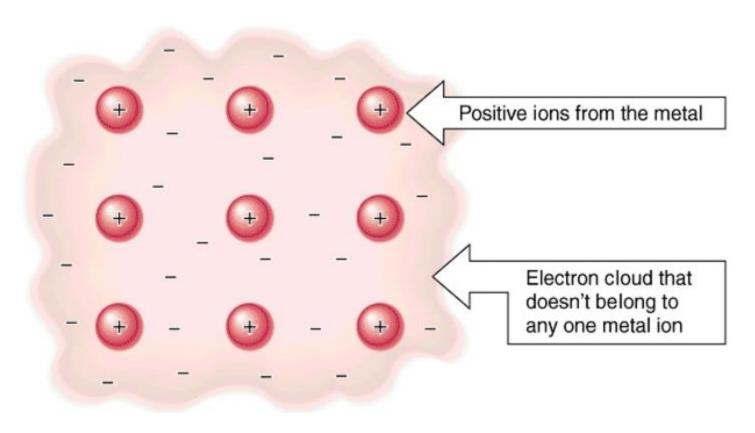
- 体积等离子体激元
- 表面等离子体激元
- 局域表面等离子体激元

都由自由运动的带电粒子组成,且整体呈电中性

本讲内容

- 1. 什么是等离子体?
 - -宇宙中的等离子体
 - -金属中的等离子体
- 2. 金属光学性质
 - -Drude模型
 - -等离子体频率对应的介电常数ε
- 3. 等离子体激元
 - -体积等离子体激元的物理本质
 - -体积等离子体激元的性质
 - -纳米光学中体积等离子体激元的应用

金属



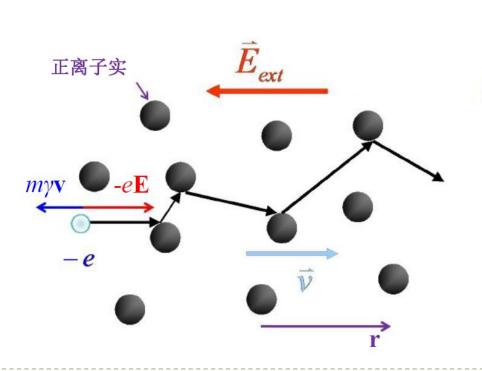
- 带负电的可以自由运动的电子+带正电的不动的正离子
- 一种等离子体

金属光学性质——Drude模型

- 金属的光响应是由自由电子的行为决定的
- 在外场 E 作用下,自由电子可以被看做没有回复力的谐振子

外电场 $E(t) = E_0 \exp(-i\omega t)$,

自由电子的运动方程:



作用在电子上的力

- 电场力: -eE
- 阻尼力: *myv*
- (y 阻尼频率或阻尼系数,表 征电子与离子实的碰撞频率)

$$\gamma = 100 \, \text{THz}$$

金属光学性质——电子位移产生极化

自由电子的运动方程:

$$m\mathbf{r} + m\gamma\mathbf{r} + K\mathbf{r} = -e\mathbf{E}$$

m – 电子质量 γ – 阻尼频率 (~100 THz)

也可以像 Lorentz 模型一样求解 电子不受束缚,没有固有频率 ω_0

对时间谐振 $E(t) = E_0 \exp(-i\omega t)$, 有时间谐振解 $r(t) = r_0 \exp(-i\omega t)$ 代入上式,解为:

$$r = \frac{e/m}{\omega^2 + i\omega\gamma} E$$

则可以得到宏观极化矢量:

$$P = Np = -Ner = -Ner = Ne^2/m$$

$$\omega^2 + i\omega\gamma$$

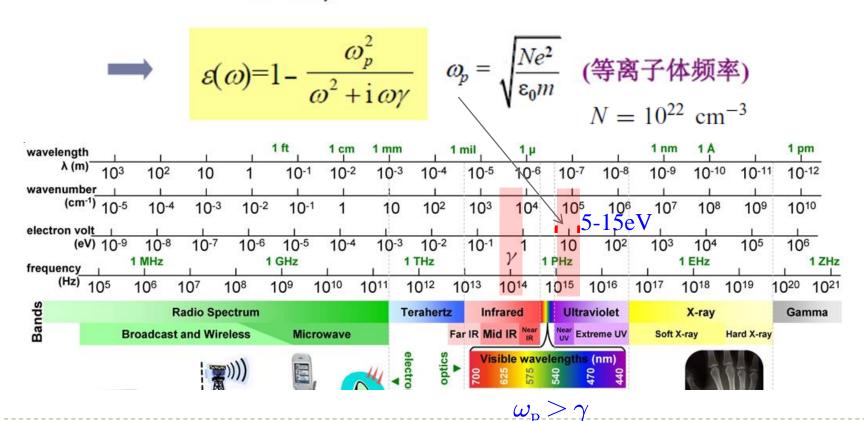
$$E$$
N- 电子密度

金属光学性质——等离子体频率

可以导出介电常数:

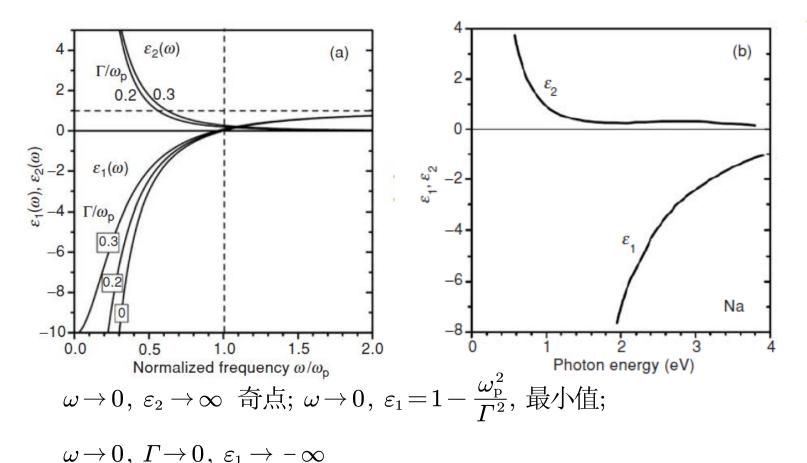
电位移=真空电位移+极化矢量

$$P = -Ner = -\frac{Ne^2/m}{\omega^2 + i\omega\gamma}E$$
 \Longrightarrow $D = \varepsilon_0 E + P = \varepsilon_0 \varepsilon E$



金属光学性质——介电函数谱

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_{\rm p}^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega} = 1 - \frac{\omega_{\rm p}^2}{\omega^2 + \Gamma^2} + i\frac{\omega_{\rm p}^2\Gamma}{\omega(\omega^2 + \Gamma^2)} \equiv \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega).$$



16

 $\gamma = \Gamma$

讨论——高频

通常情况:

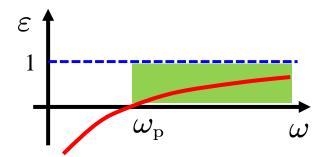
$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_{\rm p}^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}$$

① 对于高频 **ω >ω**_p:

 $\rightarrow \varepsilon > 0$ and $\varepsilon < 1$

高频 (ω>> γ):

$$\varepsilon(\omega) \approx 1 - \frac{\omega_{\mathbf{p}}^2}{\omega^2}$$

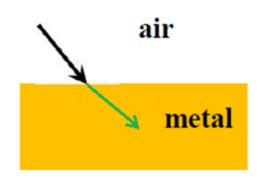


→ 折射率 $n = \sqrt{\varepsilon} = n' + in''$ 为实数 (n' > 0, n'' = 0)

金属中的电场: $E=E_0 \exp(in!k_0 \cdot r)$

→ 金属是透明的 (像电介质)

$$\mathbf{n} < \mathbf{1}$$
 $v_{\mathrm{p}} = \frac{c}{n} > c$



自由电子色散曲线

横电磁波满足

$$k = \sqrt{\varepsilon} \frac{\omega}{c} \Rightarrow \varepsilon = k^2 \frac{c^2}{\omega^2}$$

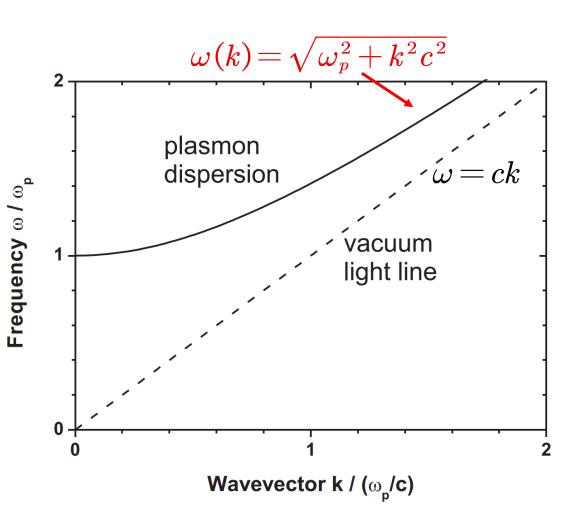
代入
$$\varepsilon = 1 - \frac{\omega_{\mathrm{p}}^2}{\omega^2}$$

$$\Rightarrow k^2 \frac{c^2}{\omega^2} = 1 - \frac{\omega_{\mathrm{p}}^2}{\omega^2}$$

$$\Rightarrow \omega(k) = \sqrt{\omega_{
m p}^2 + k^2 c^2}$$

等离子体色散关系

$$\omega > \omega_{\rm p}$$



讨论

通常情况:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_{\rm p}^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}$$

② 对光频 γ << ω < ω_p:

 $\rightarrow \varepsilon < 0$

→ 折射率
$$n = \sqrt{\varepsilon} = n' + in''$$
 是复数

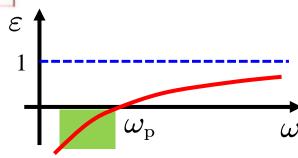
$$n'^{2} - n''^{2} + 2in'n'' \approx 1 - \frac{\omega_{\rm p}^{2}}{\omega^{2}}$$
 $(\gamma = 0)$

$$\Rightarrow \begin{cases} n'^{2} - n''^{2} = 1 - \frac{\omega_{\rm p}^{2}}{\omega^{2}} < 0 \\ n'n'' = 0 \end{cases}$$

$$\Rightarrow \left\{egin{array}{l} n'' = \sqrt{rac{\omega_{
m p}^2}{\omega^2}-1} \ n' = 0 \end{array}
ight.$$

高频 (ω>> γ):

$$\varepsilon(\omega) \approx 1 - \frac{\omega_{\mathbf{p}}^2}{\omega^2}$$



$$(\gamma = 0)$$

对于 $\gamma \neq 0$, $n' \approx 0$, n'' > 0

讨论——光频

金属中的电场:

$$m{E} = m{E}_0 \exp{(im{k}\cdotm{r})} = m{E}_0 \exp{(inm{k}_0\cdotm{r})} = m{E}_0 \exp{(-n''m{k}_0\cdotm{r})}$$

趋肤深度

 δ : 当振幅下降为1/e时,波传播的距离

衰减因子

$$n''k_0\delta = 1$$
 $\exists \beta: \quad n''rac{\omega}{c}\delta = 1 \Rightarrow \delta = rac{cn''}{\omega}$

→ 金属中的场指数衰减

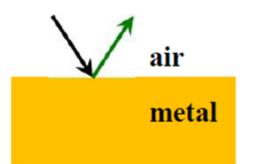
光垂直入射的反射率:
$$R = \frac{(n'-1)^2 + n''^2}{(n'+1)^2 + n''^2}$$

非理想金属: $\gamma \neq 0, R \approx 1$

理想金属: $\gamma = 0, R = 1$

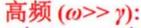
→ 金属表面高反射

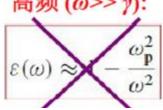
镜子



通常情况:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_{\rm p}^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}$$





③ 对低频 ω << γ:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$$

$$arepsilon=1-rac{\omega_{
m p}^2}{\omega^2+\gamma^2}+irac{\omega_{
m p}^2\gamma}{\omega(\omega^2+\gamma^2)}$$

$$pprox\!1\!-\!rac{\omega_{
m p}^2}{\gamma^2}\!+\!irac{\omega_{
m p}^2}{\omega\gamma}$$

假定:
$$\gamma pprox \omega_{ ext{p}} \quad \Rightarrow \; arepsilon pprox i rac{\omega_{ ext{p}}}{\omega} \quad$$
 即: $arepsilon' = 0, \; arepsilon'' = rac{\omega_{ ext{p}}}{\omega}$

$$egin{array}{ccc} eta & n^2 = arepsilon & \Rightarrow & n' = n'' = \sqrt{rac{arepsilon''}{2}} = \sqrt{rac{\omega_{
m p}}{2\omega}} \end{array}$$

衰减场

金属中的电场: $\boldsymbol{E} = \boldsymbol{E}_0 \exp(i n \boldsymbol{k}_0 \cdot \boldsymbol{r}) = \boldsymbol{E}_0 \exp(i n' \boldsymbol{k}_0 \cdot \boldsymbol{r}) \exp(-n'' \boldsymbol{k}_0 \cdot \boldsymbol{r})$

讨论——低频

趋肤深度 $\delta = c/n''ω$

→金属中的场迅速衰减

光垂直入射的反射率:
$$R = \frac{(n'-1)^2 + n''^2}{(n'+1)^2 + n''^2}$$

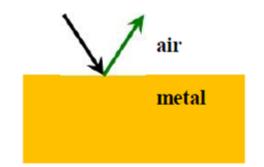
$$n'=n''=\sqrt{rac{\omega_{
m p}}{2\omega}}\gg 1$$

因此:

$$R \approx \frac{n'^2 + n''^2}{n'^2 + n''^2} = 1$$

- →金属表面高反射率
- → 当 ω 很低时 → 理想导体

金属谐振腔、微波波导



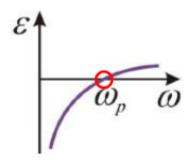
特殊点

通常情况:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_{\rm p}^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}$$

高频 (ω>> γ):

$$\varepsilon(\omega) \approx 1 - \frac{\omega_{\mathbf{p}}^2}{\omega^2}$$



- ④ 在等离子体频率 $\omega \approx \omega_p$:
 - $\rightarrow \varepsilon \approx 0$
 - → 折射率 $n = \sqrt{\beta \mu} \approx 0$

→ 波数
$$k = nk_0 \approx 0$$
 $k = \frac{2\pi}{\lambda} = 0 \Rightarrow \lambda \rightarrow \infty$

这意味着什么? 没有传导波吗?

理想金属介电谱

$$\begin{split} \varepsilon(\omega) &= 1 - \frac{\omega_{\mathrm{p}}^2}{\omega^2 + \mathrm{i}\gamma\omega} \\ &= 1 - \frac{\omega_{\mathrm{p}}^2}{\omega^2 + \gamma^2} + \mathrm{i}\frac{\omega_{\mathrm{p}}^2}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)} \end{split}$$

$$arepsilon_1 \!=\! 1 \!-\! rac{\omega_{
m p}^2}{\omega^2 \!+\! \gamma^2}$$

$$arepsilon_2 \! = \! rac{\omega_{
m p}^2}{\omega(\omega^2 \! + \! \gamma^2)}$$

可见光频率:

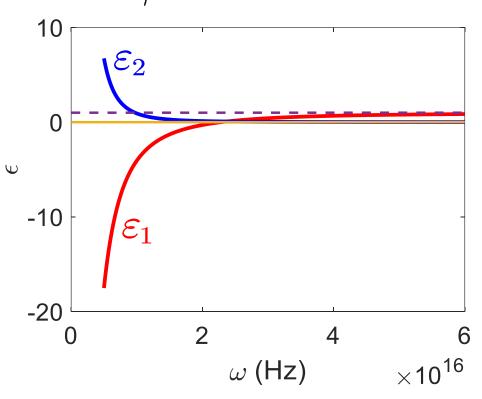
 $4.2 \times 10^{14} - 7.8 \times 10^{14} \text{ Hz}$

对应角频率:

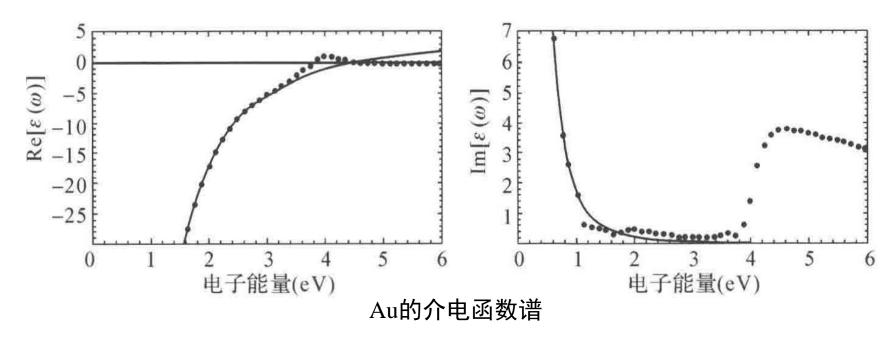
$$2.6 \times 10^{15} - 4.9 \times 10^{15} \text{ Hz}$$

金属Sb的参数:

$$\omega_{
m p} = 2.29 imes 10^{16} \; {
m Hz} \ \gamma = 1.82 imes 10^{15} \; {
m Hz}$$



实际金属介电函数谱



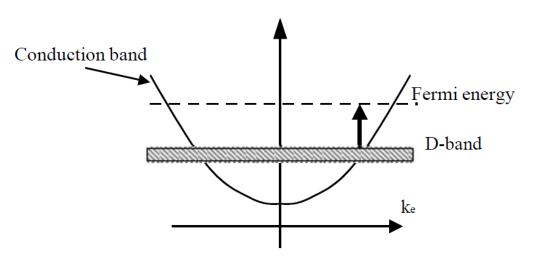
- 等离子体频率与理论值不一致
- 介电函数实部有峰值
- 在高频部分介电常数虚部很大



实际金属介电函数谱——自由电子+束缚电子

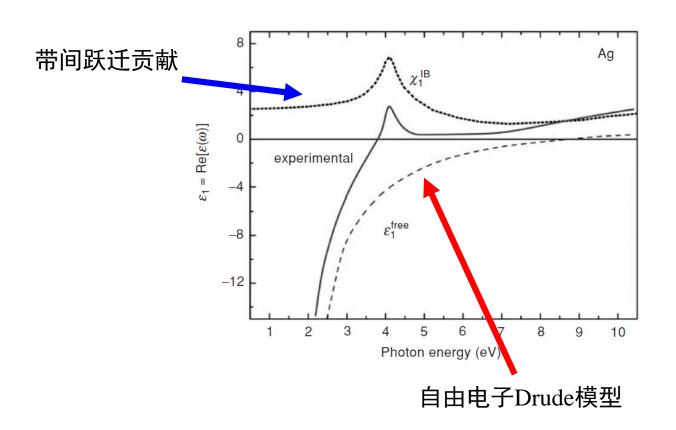
原因是:发生了能带跃迁

- 金属内壳层的电子被高能光子激发
- 常见于贵金属、过渡 金属,如Au,Ag,Cu 等
- 需要对Drude模型做 修正
- 发生跃迁,对于固有 频率,即对应Lorentz 模型的振荡补充项



$$\mathcal{E}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} + \sum_j \frac{\omega_{jp}^2}{\omega_{j0}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j}$$

实际金属介电函数谱——自由电子+束缚电子



实验曲线 = Drude模型 + 带间跃迁Lorentz模型

常见金属的相关参数

Element	Na	Al	Cu	Ag	Au
Skin depth (2 eV) [nm]	38	13	30	24	31
Skin depth (3 eV) [nm]	42	13	30	29	37
Skin depth (4 eV) [nm]	48	13	29	82	27
Mean free path ℓ [nm]	34	16	42	52	42
Free electron					
concentration, N [cm ⁻³]	$2.65 \cdot 10^{22}$	$18.0 \cdot 10^{22}$	$8.45 \cdot 10^{22}$	$5.85 \cdot 10^{22}$	$5.9 \cdot 10^{22}$
Plasmon energy $\hbar\omega_{\rm p}$	5.71	15.3	9.3 [8]	9.0 [5]	8.55 [6]
Fermi velocity, $v_{\rm F}$ [cm/s]	$1.07 \cdot 10^{8}$	$2.02 \cdot 10^{8}$	$1.57 \cdot 10^{8}$	$1.39 \cdot 10^{8}$	$1.39 \cdot 10^{8}$
Fermi energy, $E_{\rm F}$ [eV]	3.23	11.63	7.00	5.48	5.51
Threshold energy for					
interband absorption [eV]	2.1	1.5	2.1	3.9	2.4
Refractive index (560 nm)	_	1.02-i6.85	0.83-i2.60	0.12-i3.45	0.31-i2.88

28

本讲内容

- 1. 什么是等离子体?
 - -宇宙中的等离子体
 - -金属中的等离子体
- 2. 金属光学性质
 - -Drude模型
 - -等离子体频率对应的介电常数ε
- 3. 等离子体激元
 - -体积等离子体激元的物理本质
 - -体积等离子体激元的性质
 - -纳米光学中体积等离子体激元的应用

体积等离子体共振

在等离子体频率 $\omega_{\mathbf{p}}$ 处会发生什么?

- P 在等离子体频率 $ω = ω_p$, 有 $ε(ω_p) ≈ 0$
- ▶ 看看波动方程: $k(\mathbf{k} \cdot \mathbf{E}) k^2 \mathbf{E} = -\varepsilon \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}$
 - 如果是横波, $\mathbf{k} \cdot \mathbf{E} = 0 \rightarrow k = \sqrt{\varepsilon} \frac{\omega}{c} = nk_{0}, \ \mathbf{\varepsilon} \neq \mathbf{0}$
 - •如果是纵波, $\mathbf{k}/\mathbf{E} \to \mathbf{k}(\mathbf{k}\cdot\mathbf{E}) = \mathbf{k}^2\mathbf{E} \to \varepsilon = 0$

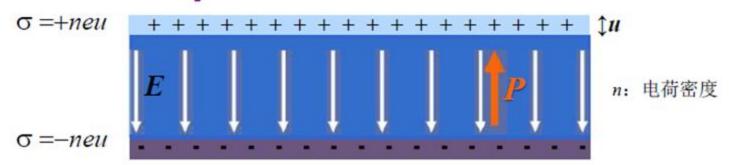
所以在 ω_p ,只有自由电子的集体纵向振荡存在!

-被称为体积等离子体共振!

电荷共振的量子化称为等离激元 Plasmon 振荡方向与电场方向平行

体积等离子体共振

我们考虑一下在 ω_p 处的大块金属薄板:



- 电子整体相对于正电荷背景 发生了位移 *u*
- 在金属板两侧产生异号的表面电荷
- 两侧的电荷在金属板中形成 均匀的电场 $E = neu/\varepsilon_0$
- 电场E为电子提供了回复力 F = -neE

电子的运动方程:

$$nm\frac{\mathrm{d}^2 u}{\mathrm{d}t^2} = -neE$$

$$nm\frac{\mathrm{d}^2 u}{\mathrm{d}t^2} = -\frac{n^2 e^2 u}{\varepsilon_0}$$

$$\Rightarrow \frac{\mathrm{d}^2 u}{\mathrm{d}t^2} + \omega_\mathrm{p}^2 u = 0$$

$$\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{\varepsilon_0 m}}$$

 ω_p 是体积等离子体激元的固有频率!

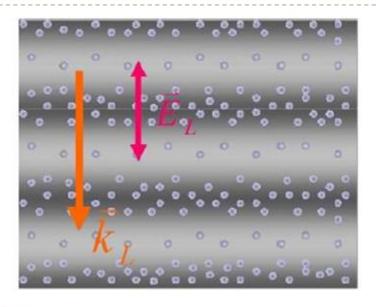
体积等离子体共振——特征

(1) 纵波 k//E

满足波动方程

$$k(k \cdot E) - k^2 E = -\varepsilon \frac{\omega^2}{c^2} E$$

E要有非零解,只能ε=0



(2) 没有 E和H之间相互作用 → 没有电磁场

$$abla imes oldsymbol{E} = -rac{\partial oldsymbol{B}}{\partial t} \Rightarrow oldsymbol{k} imes oldsymbol{E} = \omega \mu oldsymbol{H}$$

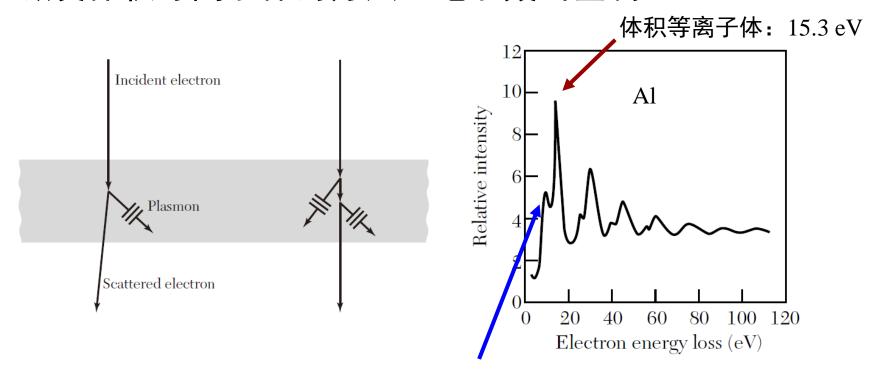
$$\therefore \boldsymbol{k} \parallel \boldsymbol{E}, \therefore \boldsymbol{k} \times \boldsymbol{E} = 0 \Rightarrow \boldsymbol{H}$$

(3)发生的振荡衰减只能通过能量传递给单个电子,被称为朗道阻尼

不与横向电磁波耦合作用!

体积等离子体共振——特征

▶ 激发体积等离子体的方法: 电子轰击金属

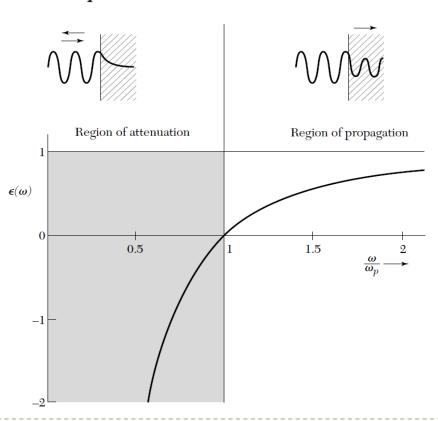


表面等离子体: 10.3 eV

电子能量损失谱(EELS),用于等离子体,能量损失值1-50 eV。

体积等离子体共振——模式

- 当 $\omega > \omega_p$, 横模 (EM wave) 光透过金属—电子不能做出迅速响应来屏蔽入射光
- 当 $\omega = \omega_p$, 纵模 (volume plasmons, non-EM wave)
- 当 $\omega < \omega_p$, 没有扩散波(场快速衰减, 趋肤深度 δ)

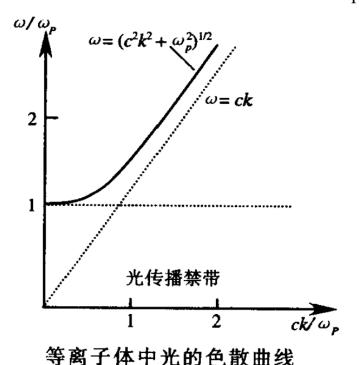


光被金属反射—电子屏蔽入射光电场 反射率接近于1

体积等离子体共振——光在等离子中的色散曲线

$$\left.\begin{array}{l}
\varepsilon = \frac{c^2}{\omega^2} k^2 \\
\varepsilon = 1 - \frac{\omega_{\rm p}^2}{\omega^2}
\right\} \Rightarrow \omega = \sqrt{c^2 k^2 + \omega_{\rm p}^2} \qquad v_g = \frac{d\omega}{dk} = \frac{c^2 k}{\sqrt{c^2 k^2 + \omega_{\rm p}^2}} = \begin{cases}
0, & k = 0 \\
c, & k = \infty
\end{cases}$$

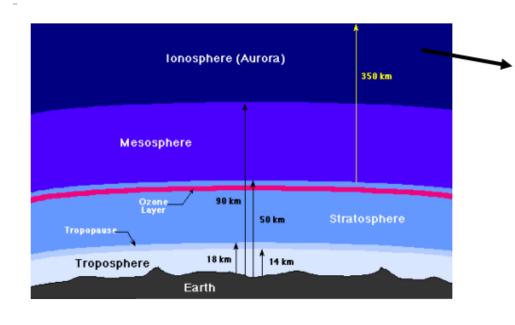
$$k = 0 \text{ 对应 } \omega = \omega_{\rm p}, \text{ 群速度为零, 不传播能量}$$



0.05 0.10 0.150.20 光子能量(eV)

垂直入射下 n 型 InSb 光学反射谱

Another example: the ionosphere



the uppermost part of the atmosphere, where many of the atoms are ionized. There are a lot of free electrons floating around here...

For N $\sim 10^{12}$ m⁻³, the plasma frequency is:

$$\omega_P = \sqrt{\frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m_e}} = 2\pi \times 9 \text{ MHz}$$

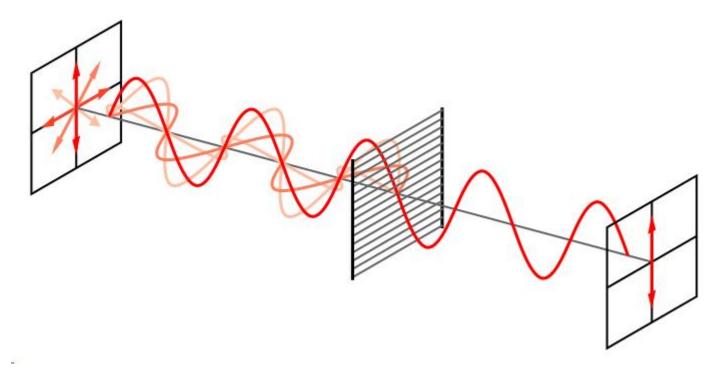
Radiation above 9 MHz is transmitted, while radiation at lower frequencies is reflected back to earth.

That's why AM radio broadcasts can be heard very far away.

本讲内容

- 1. 什么是等离子体?
 - -宇宙中的等离子体
 - -金属中的等离子体
- 2. 金属光学性质
 - -Drude模型
 - -等离子体频率对应的介电常数ε
- 3. 等离子体激元
 - -体积等离子体激元的物理本质
 - -体积等离子体激元的性质
 - -纳米光学中体积等离子体激元的应用

正常光栅



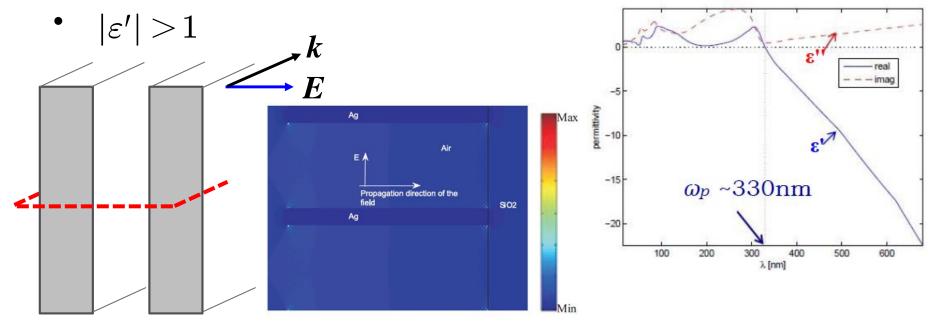
垂直于光栅方向电场透过,平行于光栅方向电场反射——金属线偏振片

原理是什么?

正常光栅

- 原理: 边界条件决定的
- 正常光栅工作的光频率低于等离子体频率 $\omega < \omega_{
 m p}$
- 介电常数 $\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon''$

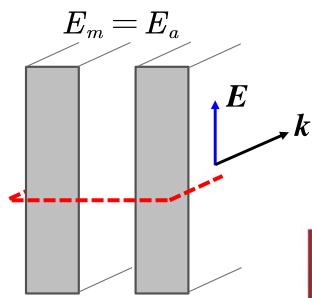
Ag 的介电常数



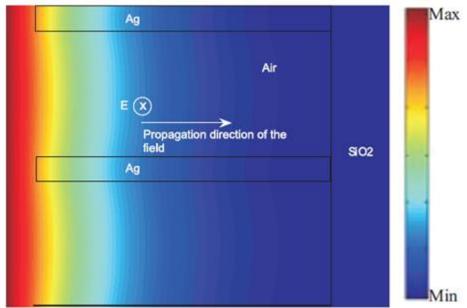
$$D_m = D_a \Rightarrow \varepsilon' E_m = E_a \Rightarrow |E_a| \gg |E_m|$$

光从间隙穿过,具有很大的透过率

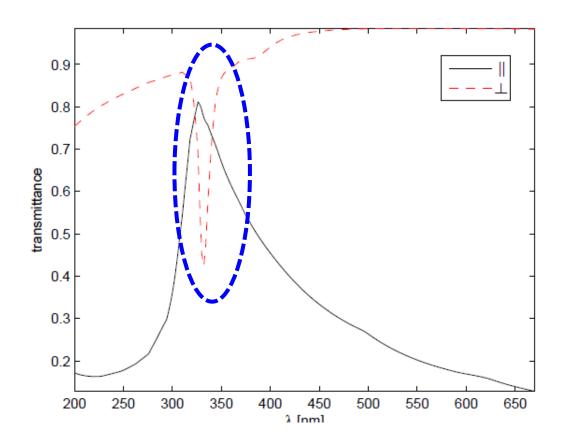
正常光栅



- 空气和金属中电场相同、
- 性质由金属控制
- 整个光栅类似一块金属板
- 强反射



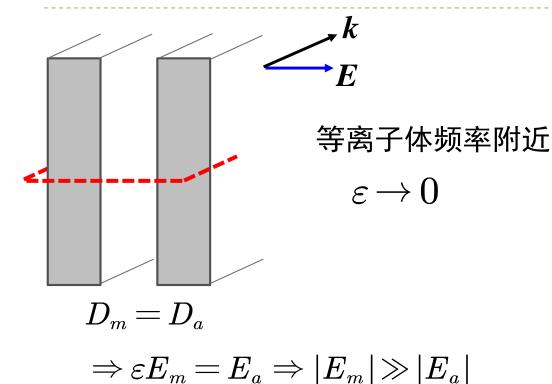
反常现象



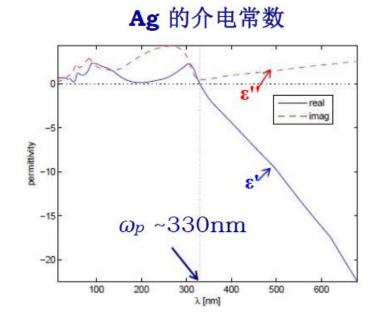
Reference:

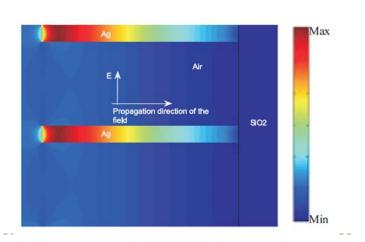
A. Lehmuskero, B. Bai, P. Vahimaa, and M. Kuittinen, "Wire-grid polarizers in the volume plasmon region," Opt. Express 17, 5481-5489 (2009).

反常现象



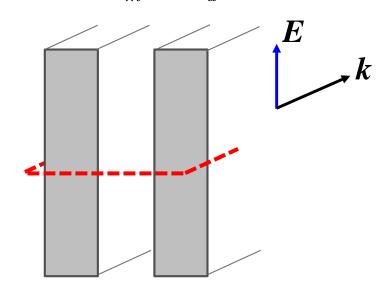
- 光在金属中传输存在一定损耗
- 光透过光栅后能量极大的减小了
- 透过率比较低



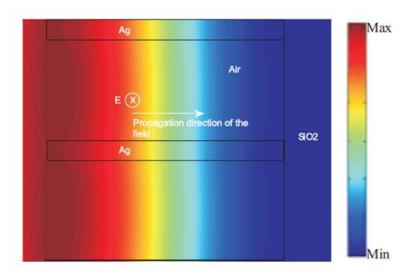


反常现象

$$E_m = E_a$$



- 金属和空气中电场大小相同
- 整体还是表现为金属板
- 等离子体频率附近, ε"较小
- 金属类似介质
- 光通过金属后衰减相对较小
- 光具有较大的透过率



小结

- > 等离子体
 - > 具有自由电荷的电离气体
- ▶ 金属中的等离子体
 - ▶ 自由电子的密度波,三种类型(体积、表面、局域)
- ▶ 用Drude模型解释/理解金属的电磁响应
- 体积等离子体
 - ▶ 等离子体频率的物理意义,纵波,非电磁波
 - 逆光栅偏振器