

文章编号:1001-9014(2009)01-0031-04

光在金属界面的传输特性研究

顾 闻, 邬云骅, 陈岳瑞, 戴仲鸿, 周薇溪, 郑玉祥, 陈良尧
(复旦大学 光科学与工程系 先进光子学材料与器件国家重点实验室, 上海 200433)

摘要:采用射频溅射方法制备了贵金属银薄膜样品. 通过椭圆偏振光谱方法在 1.5~4.5 eV 光子能量区测量获得了复介电函数和复折射率. 针对 3 个不同波长的复折射率常数, 对于光从大气入射到金属银边界, 以及从金属银入射到大气边界的情况进行了具体模拟计算和分析, 发现即使在平行金属膜条件下, 光在大气一侧的出射角也不等于初始入射角, 并且与波长、光学常数和入射角等有关的等效折射率常数和折射角均为正值, 在整个光谱区不改变符号, 与实验观察的结果不相符合. 实例计算所揭示的这些涉及到光在金属中的传输特性仍有待于更多的实验和理论研究.

关键词: Snell 定律; 复折射率; 光传输; 光折射
中图分类号: O435.1; O482.3; O484.4+1 **文献标识码:** A

STUDY ON THE PROPERTIES OF LIGHT PROPAGATION AT THE METAL INTERFACE

GU Wen, WU Yun-Hua, CHEN Yue-Rui, DAI Zhong-Hong,
ZHOU Wei-Xi, ZHENG Yu-Xiang, CHEN Liang-Yao

(State Key Lab of Advanced Photonic Materials and Devices, Department of Optical Science and
Engineering, Fudan University, Shanghai 200433, China)

Abstract: The noble metal Ag film sample was prepared by the RF (radio frequency) sputtering method. The complex dielectric function and the complex refractive index of the thick Ag film sample were measured by the spectroscopic ellipsometric method in the 1.5~4.5 eV photon energy region. The light refractions at the Ag/air interface for a plane film structure were analytically calculated at three different wavelengths. From the calculation, it was found that the refraction angle at the air side is not equal to the initial incidence angle, which is against the experimental observations. The pseudo refractive index and the real refractive angle related to the wavelength, optical constant and incidence angle are always positive in the whole spectrum range. The results given in this work show that more experimental and theoretical studies will be required to understand the properties of light propagation at the metal interface in the future.

Key words: Snell law; complex refractive index; light propagation; light refraction

引言

追溯至 17 世纪上半叶, Snell 和 Descartes 发现当光线穿越由不同介质构成的界面时会发生折射, 被称为 Snell 折射定律, 成为现代光学原理的重要基石之一^[1]. 这一定律被广泛应用于理解光在非吸收的透明物质中的传播行为, 但当被扩展和应用于强光吸收材料, 如金属边界时, 这一问题至今仍未能被很好地认识和解决. 即使对于最简单的情况, 如假设由金属和大气构成的界面, 当光穿越金属/空气边界

时发生的折射可由一般类型的 Snell 公式表达:

$$n_1 \sin \alpha = \tilde{n}_2 \sin \beta, \quad (1)$$

式中空气的折射率 $n_1 = 1$, α 是空气一侧的入射角, \tilde{n}_2 是金属的复折射率, 因此, 折射角 β 也将是复角. 但实际上, 复角 β 仅具有数学意义, 光线在物质中的实际传播路径必须为实数. 因此, 即使在实验上测量到金属的复折射率值 \tilde{n}_2 , 依然无法从实验数据求得在金属一侧真实的折射角. 例如, Lezec 等人观察到当光穿过贵金属金和银为基的斜面时, 红光(波长为 685nm)和绿光(波长为 514nm)分别发生了正和

收稿日期: 2008-02-21, 修回日期: 2008-06-18

Received date: 2008-02-21, revised date: 2008-06-18

基金项目: 中国自然科学基金项目(60327002, 60778028), 上海市基础研究基金(07JC14048)

作者简介: 顾 闻(1982-), 男, 上海人, 硕士, 主要研究方向为金属的光学性质.

负的折射^[2],显然,采用常规金和银的光学常数和 Snell 公式无法解释这些现象. Wegener 小组考虑了古斯-汉森等效效应,采用数值模拟计算的方法,给出了绿光(波长为 532nm)在银膜中的负折射传输路径,甚至建议不再称折射率 n 为“折射率”,而改称为速度减慢因子^[3,4]. 因此,对于光在介质边界的传输路径的研究依然十分重要,它导致了许多的实验现象和材料的发现和研究,如人工负折射和光子晶体等材料^[5-14],这不仅具有重要的学术意义,而且具有潜在的应用价值.

在本工作中,采用射频离子溅射方法制备了贵金属银膜样品,并采用椭圆偏振光谱方法测量了其光学常数,进而计算分析了可见光在银/空气界面的传输路径,并与实验结果进行了比较,所获得的结果将为进一步研究提供依据.

1 样品制备和实验测量

在实验中采用了 Leybold SP600 溅射系统,背景真空度为 7×10^{-6} mbar,射频溅射的功率设定在 50W,对 99.99% 纯度的银靶进行溅射,将银膜淀积到双面光学抛光的 k9 玻璃衬底上. 采用 Ambios-XP2 台阶仪对银膜的厚度进行了定标测量. 在椭圆偏振光谱测量中^[15],为避免干涉效应,不透明银膜样品的厚度应大于 150nm. 在 1.5 ~ 4.5eV 光谱区和 70° 入射角的条件下,对银膜样品的复介电函数 ϵ ($\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$) 和复光学常数谱 \tilde{n} ($\tilde{n} = n + ik$) 随光子能量 E 的变化进行了测量,结果显示在图 1 和图 2 中.

在低能量 1.5 ~ 4.0eV 的光谱区,介电函数谱主要反映了银自由电子带内跃迁的贡献,与经典 Drude 模型相吻合. 在大于 4.0eV 的光谱区,主要是以银的电子带间跃迁的特征为主.

2 结果和讨论

金属中的自由电子与外部电磁场发生相互耦合作用时,在一定条件,如满足 $\epsilon_1 = 0$ 和 $\epsilon_2 \approx 0$ 时,会激发等离子共振^[16],即电位移矢量 D 和电场 E 满足关系: $D = \epsilon E \approx 0$,所激发的等离子共振会屏蔽金属中电场. 对于银来说,由图 1 可观察到,等离子共振约发生在 3.8eV 附近^[16]. 在小于带间跃迁的低能量 Drude 光谱区,折射率的实部 n 均小于 1 和小于其虚部. 对于实验中经常采用的红、绿、蓝三色激光,如波长 λ 分别为 632.8nm、532.0nm、473.0nm,实验测量得到的复折射率分别为 $\tilde{n}(\lambda = 632.8\text{nm}) = 0.216 + i3.881$, $\tilde{n}(\lambda = 532.0\text{nm}) = 0.201 + i3.132$,

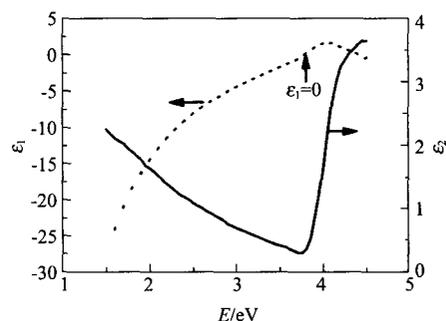


图 1 椭圆光谱实验测量获得银膜样品的复介电函数谱,在光子能量 $E = 3.8\text{eV}$ 附近, $\epsilon_1 = 0$ 和 $\epsilon_2 \approx 0$,满足等离子共振条件;从其虚部 ϵ_2 谱中,可看到带间跃迁发生在约 4.0eV 附近
Fig. 1 Spectra of the complex dielectric function were measured by the spectroscopic ellipsometry for the silver film sample. At the photon energy E near 3.8eV, the plasmon resonance happens with the condition of $\epsilon_1 = 0$ and $\epsilon_2 \approx 0$. It can be seen in the imaginary part of the dielectric function that the onset of interband transitions happens at about 4.0 eV

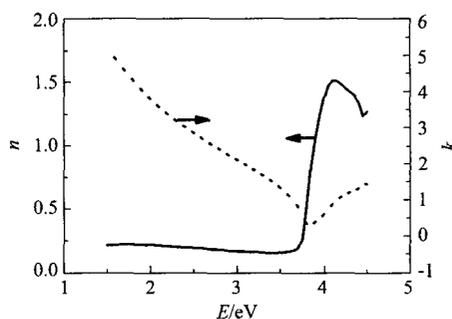


图 2 椭圆偏振实验测量获得银膜样品的复折射率谱,在低能量的自由电子带内跃迁区,其实部 n 的值小于 1.
Fig. 2 Spectra of the complex refractive index were measured by the spectroscopic ellipsometry for the silver film sample. It can be seen that the real part n of the complex refractive index is less than 1 in the low energy free-electron intraband transition region

$\tilde{n}(\lambda = 473.0\text{nm}) = 0.179 + i2.578$. 然而,即使由反射或透射方法测量获得复折射率的值,按公式(1),依然无法求得光在穿越金属边界的实际传输路径,即光在金属一侧的实折射角.

依据麦克斯韦方程和边界条件,Born 和 Wolf 给出了一组计算公式,专用于分析和处理当光从介质入射到金属时,已知介质一侧的入射角和金属的光学常数,可计算出在金属一侧发生的实折射角^[17]:

$$\begin{aligned} \tilde{n} \sin \theta_i &= n_a \sin \theta_a \\ q^2 \cos 2\gamma &= 1 - n_a^2 \sin^2 \theta_a (n^2 - k^2) / (n^2 + k^2)^2 \\ q^2 \sin 2\gamma &= 2nk n_a^2 \sin^2 \theta_a / (n^2 + k^2)^2 \\ n_m &= [n_a^2 \sin^2 \theta_a + q^2 (n \cos \gamma - k \sin \gamma)^2]^{1/2} \\ n_m \sin \theta_m &= n_a \sin \theta_a \end{aligned} \quad (2)$$

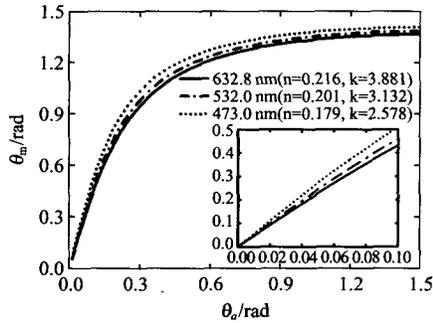


图3 光从大气入射到银边界时按公式(2)计算获得的在金属银一侧的实折射角 θ_m 与入射角 θ_a 的关系

Fig. 3 As the light is incident from the air to the silver, according to Eq. (2), the calculated real refractive angle θ_m at the silver side shows the relationship with the incidence angle θ_a at the air side

式中, θ_a 是介质一侧的入射角, θ_i 是基于 Snell 公式的一般意义上在金属一侧的复折射角, n_a 是介质的折射率, n_m 和 θ_m 分别是基于 Snell 公式的金属等效实数折射率和光在金属一侧的实折射角, q 和 γ 是计算过程中引入的中间参数.对于实验中测量到银在3个波长($\lambda = 632.8\text{nm}, 532.0\text{nm}, 473.0\text{nm}$)的光学常数的情况,假设介质是大气,即 $n_a = 1$,可按公式(2)计算光在金属银一侧的实折射角 θ_m 随入射角 θ_a 的变化,结果显示在图3中.当入射角 θ_a 较小时,金属一侧的实折射角 θ_m 与入射角 θ_a 近似成线性变化关系,并且由公式(2)可得 $\sin^2\theta_a \approx 0$,等效实折射率 $n_m \approx n$,与折射率的虚部无关.在大入射角条件下,实折射角 θ_m 随入射角 θ_a 的变化趋于平坦.

另一方面,基于同样的原理和边界条件,Garcia-Pomar 和 Nieto-Vesperinas 给出了另一组公式,专用于分析和处理光从金属一侧入射到介质的情况,当已知金属一侧的实入射角 θ_m 时,可计算出介质一侧的折射角 θ_a ^[18]:

$$\begin{aligned} n_a \sin\theta_i &= \tilde{n} \sin\theta_m \\ q^2 \cos 2\gamma &= 1 - \sin^2\theta_m (n^2 - k^2) / n_a^2 \\ q^2 \sin 2\gamma &= -2nk \sin^2\theta_m / n_a^2 \\ n_m &= n / (n^2 \sin^2\theta_m / n_a^2 + q^2 \cos^2\gamma)^{1/2} \\ n_a \sin\theta_a &= n_m \sin\theta_m \end{aligned} \quad (3)$$

同样采用银在3个波长($\lambda = 632.8\text{nm}, 532.0\text{nm}, 473.0\text{nm}$)的光学常数,假设介质是大气,即 $n_a = 1$,当光在金属银中以入射角 θ_m 穿过银和大气的界面时,可按公式(3)计算出光在大气一侧的折射角 θ_a 随银一侧实入射角 θ_m 的变化关系,结果显示在图4中.

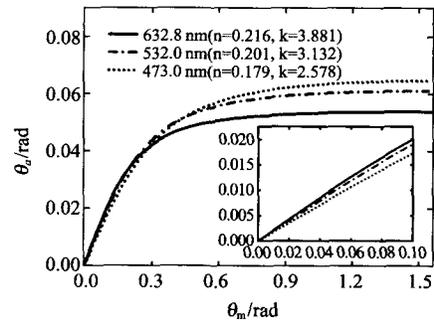


图4 光从金属银一侧入射到银和大气的边界时,按公式(3)计算获得大气一侧的折射角 θ_a 与银一侧的实入射角 θ_m 之间的关系

Fig. 4 As the light is incident from the silver to air, according to Eq. (3), the calculated refractive angle θ_a at the air side shows the relationship with the real incidence angle θ_m at the silver side

由图4可知,大气一侧的出射角 θ_a 与银一侧的实入射角 θ_m 具有图3中类似的变化关系,但对于平行的银膜样品,假设光从大气一侧入射,穿过银膜,发生实折射角 θ_m ,又以该折射角作为入射角,从大气一侧出射,显然,按公式(2)和(3),由于具有不同的等效折射率 n_m 表达式,最后计算得到大气一侧的出射角并不等于初始入射角.例如,对于532.0nm波长来说,从图3中可知,当大气一侧的初始入射角为0.6rad时,在金属银一侧的实折射角约为1.2rad.而在图4中,对于同样的波长,如果以1.2rad作为光在金属银膜中的入射角,在大气一侧的出射角约为0.06rad,约比初始入射角小了10倍,这与实验观察的结果不一致,即在大气一侧的出射角应等于初始入射角,这是上述计算模型的困难和局限性.同时,按照公式(2)和(3)的计算方法,光在金属和介质边界的等效实折射率和实折射角虽然都是波长、光学常数和入射角的函数,但都为正值,在整个光谱区不改变符号,这与实验观察结果并不相符合^[2, 19].

为了对公式(2)和(3)作进一步的证实^[17, 18],采用文献[19]中的样品制备和实验测量方法,制备了一组银的楔形膜样品,楔角分别为14.7 μrad 、29.4 μrad 、44.1 μrad 、58.8 μrad 、74.5 μrad 、88.1 μrad 和102.8 μrad .样品淀积在玻璃基板上.采用3个波长($\lambda = 632.8\text{nm}, 532.0\text{nm}, 473.0\text{nm}$)的激光,让光从玻璃和金属界面垂直入射,从金属和大气界面出射.通过测量和分析出射光的路径偏移,可求得光在大气一侧的折射角,结果显示在图5中,可发现在大气一侧具有负的折射角,并且其绝对值随波长减小而减小,不符合小角度入射时金属的等效折射率 n_m

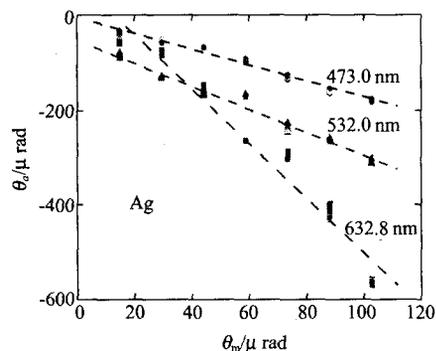


图5 采用文献[19]的实验方法,将3个波长($\lambda = 632.8\text{nm}$, 532.0nm , 473.0nm)的激光分别入射到银和大气界面,测量得到大气一侧的折射角 θ_a 随银膜一侧入射角 θ_m 的变化关系,呈现负折射现象

Fig. 5 Using the method given in Ref. [19], the refractive angle θ_a at the air side was measured as light transmits through the silver/air interface at $\lambda = 632.8\text{nm}$, 532.0nm and 473.0nm , respectively. The refractive angle θ_a is negative and it changes with the incidence angle θ_m at the silver side

$\approx n$ 的条件,与公式(3)的预期结果不相吻合。

因此,虽然基于麦克斯韦方程及其边界条件给出了光在金属边界的传播路径的计算原理和方法,但仍难以真实反映光在金属中的实际传播路径,这将影响到许多金属基微纳光电子材料和器件的研究和应用。目前,无论是在理论还是实验方面,对于光在金属基边界传输特性的理解依然十分有限和困难,仍在探索中,需要对这些现象和问题作更深入的实验和理论分析研究,从而为新器件的研制和应用建立可靠的基础。

4 结语

在本研究工作中采用椭圆偏振光谱方法在 $1.5 \sim 4.5\text{eV}$ 光子能量区测量了射频溅射银膜样品的复介电函数和复折射率光谱。在不同入射角和3个不同波长的条件,依据银膜的复折射率常数,对于光从大气入射到金属银边界,以及从金属银入射到大气边界的传输情况进行了模拟计算和分析,发现按经典模型,即使在平行金属膜条件下,光在金属膜边界的出射角也不等于初始入射角。模拟计算结果显示,光在银膜边界的等效折射率常数和折射角与波长、光学常数和入射角等条件有关,并均为正值,在整个光谱区不改变符号,这与实验观察的结果不相符合。通过数值模拟计算所揭示的这些涉及到光在金属中的传播路径方面的差异仍有待于更多的实验和理论分析研究。

REFERENCES

- [1] Shirley J W. An early experimental determination of Snell's law[J]. *American Journal of Physics*, 1951, **19**(9): 507—508.
- [2] Lezec H J, Dionne J A, Atwater H A. Negative refraction at visible frequencies[J]. *Science*, 2007, **316**(5823): 430—432.
- [3] Wegener M, Dolling G, Linden S. Backward waves moving forward[J]. *Nature materials*, 2007, **6**: 475—476.
- [4] Dolling G, Klein M W, Wegener M, et al. Negative beam displacements from negative-index photonic metamaterials[J]. *Opt. Exp.*, 2007, **15**(21): 14219—14227.
- [5] Shelby R A, Smith D R, Schultz S. Experimental verification of a negative index of refraction[J]. *Science*, 2001, **292**(5514): 77—79.
- [6] Veselago V G. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of ϵ and μ [J]. *Sov. Phys. Usp.*, 1968, **10**(4): 509—514.
- [7] Parazzoli C G, Greigor R B, Li K, et al. Experimental verification and simulation of negative index of refraction using snell's law[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2003, **90**: 107401-1—107401-4.
- [8] Pendry J B. Positively negative [J]. *Nature*, 2003, **423**: 22—23.
- [9] Parimi P V, Lu W T, Vodo P, et al. Negative refraction and left-handed electromagnetism in microwave photonic crystals [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, **92**: 127401-1—127401-4.
- [10] Pendry J B, Holden A J, Robbins D J, et al. Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena [J]. *IEEE Trans. Microw. Theory and Tech.*, 1999, **47**: 2074—2084.
- [11] Smith D R, Padilla W J, Vier D C, et al. Composite medium with simultaneously negative permeability and permittivity [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **84**: 4184—4187.
- [12] Luo C, Johnson S G, Joannopoulos J D. All-angle negative refraction in a three-dimensionally periodic photonic crystal [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2002, **81**: 2352—2354.
- [13] Zhang X D. Image resolution depending on slab thickness and object distance in a two-dimensional photonic-crystal-based superlens [J]. *Phys. Rev. B*, 2004, **70**: 195110-1—195110-9.
- [14] Li Z Y, Lin L L. Evaluation of lensing in photonic crystal slabs exhibiting negative refraction [J]. *Phys. Rev. B*, 2003, **68**: 245110-1—245110-7.
- [15] Chen L Y, Feng X W, Su Y, et al. Design of scanning ellipsometer by rotating synchronously the polarizer and analyzer [J]. *Appl. Opt.*, 1994, **33**(7): 1299—1305.
- [16] Johnson P B, Christy R W. Optical constants of the noble metals [J]. *Phys. Rev. B*, 1972, **6**: 4370—4379.
- [17] Born M, Wolf E. *Principles of Optics* [M]. 6th Edition, Oxford: Pergamon Press, 1993.
- [18] Garcia-Pomar J L, Nieto-Vesperinas M. Transmission study of prisms and slabs of lossy negative index media [J]. *Opt. Exp.*, 2004, **12**(10): 2081—2095.
- [19] Wu Y H, Gu W, Chen Y R, et al. Experimental observation of light refraction going from negative to positive in the visible region at the pure air/Au interface [J]. *Phys. Rev. B*, 2008, **77**: 035134-1—035134-5.