

第一章 绪论

1.1 超快激光的发展和应用

激光是二十世纪六十年代初出现的一门新兴科学技术。由于激光具有任何其它光源所不具备的优异特征,所以它的出现大大改变了人类对自然界的认知能力。由于它极高的能量密度可以改变物质的正常状态,为理论工作者提供了一个崭新的激光与物质探索领域。

随着激光技术飞速发展,超快激光出现了人们的视线之中,它具备独特的超短脉冲、超强特性,能以较低的脉冲能量获得极高的峰值光强[1-7]。超短脉冲啁啾放大技术(Chirped Pulse Amplification, CPA)的出现使超快激光的强度得到大大提高[8]。与传统长脉冲激光及连续激光不同,超快激光有着超短的激光脉冲,这使得激光脉冲的频谱宽度相当大。这样宽的频谱在进行诸如原子能级研究,激光选键化学等方面都具有重要的应用。利用超快激光脉冲短的特点,可以采用泵浦-探测的方式,将激光脉冲与物质相互作用现象在不同的时刻照相,以期获得整个过程的特点。这个方法已经被应用到各个领域,如在原子与分子反应动力学研究中以及观察电子的运动,利用飞秒激光脉冲甚至阿秒脉冲,通过泵浦-探测的方法观察到反应过程[9-10]。聚焦后的超快激光,其峰值功率密度超过 $10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$ 时,所产生的电场强度就已经大于原子的内电场。它提供的极强极高的电场,能够超过价带电子的束缚力,使分子、原子的电子体系发生巨大变化。利用这个特性,人们可以研究由于超快激光导致原子内部产生的奇特现象[11-12]。并且,超快激光还显示出其它不同的特性,如热影响区域小、作用效果能够超过光学衍射极限、优秀的空间选择特性[13]。图 1-1 展示了超快超强激光的发展过程与应用范围[14]。

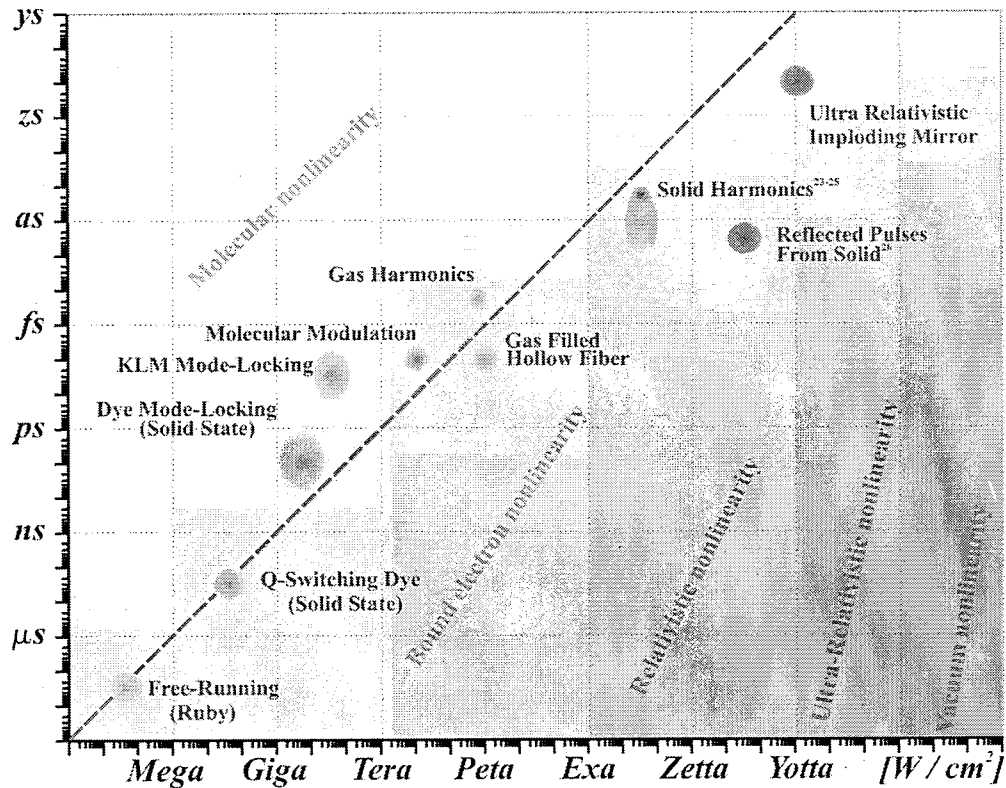


图 1-1 超快超强激光的发展及应用

1.1.1 超快激光与物质的相互作用

超短超强激光脉冲与物质的相互作用是当前最活跃的研究课题之一。它在新型的粒子加速器、超快高能 X 射线光源等方面，都有着广泛的应用前景。同时，它包含多方面理论和实验研究内容的课题，涉及到物理学的许多重要分支，如激光物理、原子分子物理、非线性光学、等离子体物理、热力学等。随着超短激光脉冲技术的不断发展，实验上已经能够产生高强度的周期量级超短脉冲，为光与物质的相互作用研究提供了前所未有的实验手段和极端的物理条件，开拓了光与物质相互作用的崭新的研究领域，产生了所谓的极端非线性光学，大大丰富了光学的研究内容，将激光与原子、分子、离子、电子团簇以及等离子体等各种形态的物质之间的相互作用研究拓展到高度非线性和相对论的强场范围。

超短超强激光与物质的相互作用过程中，随着激光强度的不断提高，各种非

线性效应不断增强,出现了高次谐波、阈上电离、隧穿电离等现象,并且周期量级超短激光脉冲失去了波动现象所特有的周期性特征,从而导致一系列全新的物理现象与规律。它提供了一种新的实验工具应用于相干控制、非线性光学以及新近兴起的亚周期电子波包的控制等领域[12-13],并提供了一种新的时间测量尺度-阿秒[10],将可能对众多学科领域产生重要影响。

1.1.2 高次谐波的产生

在超快超强脉冲与物质相互作用产生的极端非线性效应中,高次谐波的产生[15-17]占有很重要的地位。谐波是基波频率整数倍的波,而高次谐波通常可以达到基波频率的数十倍,它是产生 X 射线激光的重要方法,不仅有重要的理论研究价值,而且有极为重要的实用价值。高次谐波研究的主要动力来自于它极有潜力的应用前景[18-20]。

首先,利用高次谐波辐射可以获得相干的、脉冲持续时间短的 XUV 和 X 射线源,人们实现阿秒相干脉冲的首选光源。利用少周期超短超强激光脉冲与惰性气体介质相互作用产生的高次谐波已经成功地进入了水窗波段(4.4 nm-2.6 nm),这对于活的生物细胞和亚细胞结构的显微成像具有重大意义。

其次,高次谐波的研究对强场物理的研究有着强大的推动作用。由于激光技术的飞速发展,人们利用台式激光器获得的电场强度已经可以达到甚至超过原子单位电场强度。这些强场的实现直接推动了各个学科的发展,开辟了许多全新的物理学领域。研究强场物理学的目的是发现并解释物质极端物理条件下所辐射的各种强场效应,建立和发展新的非微扰理论。高次谐波的研究是检验强场物理理论的一个重要工具,同时也不断为强场物理理论提出新的课题,因此高次谐波研究是深入认识强场物理本质的一个重要手段。

最后,高次谐波辐射脉冲可达到亚飞秒量级,具有持续时间短、频带窄、波长可调谐的特点,因此在需要时间和空间高分辨的微观超快过程研究领域有着广泛的应用,例如激光等离子体诊断,原子内壳层的光电离和双光子电离,材料科学和化学中的表面物理和化学研究,半导体的全息光刻,原子团簇的电子和几何

结构研究等。

高次谐波由于辐射谱呈现平台以及平台区谐波有规律的等频率间隔分布的独特优点,成为突破阿秒界限的首选光源。运用少周期的飞秒激光产生阿秒脉冲[21],使原子尺度内时间分辨成为可能,将超快过程的测量范围扩展到各种物质形态中电子的运动过程,如复杂分子中的电荷跃迁、分子中价电子的运动状态等。阿秒技术的实现具有极其重大且不可替代的应用价值。激光脉冲持续时间影响着化学、物理学和生物学中的测量手段的更新以及对未知领域的深入研究。利用高次谐波在实验上已经获得了脉冲时间仅为 80 as 的单个阿秒脉冲,氢原子中的电子在第一波尔轨道上运动一周的时间大约 152 as,利用如此短的脉冲,人们可以对原子尺度上的微观超快过程进行实时探测[22],如利用阿秒脉冲研究了原子内壳层电子驰豫过程,及实时观测原子中电子的隧穿电离过程。

1.2 表面等离子体光学

表面等离子体(surface plasmon)是在介电常数符号相反的两种介质的界面上存在的一种电磁表面波模式。由于其表面波特性,光能被约束在空间尺寸远小于其自由空间波长的区域,从而利用表面等离子体来对光波在亚波长尺寸上进行控制与操纵已成为当前国际上的研究热点之一。在适当的金属与介质组成的波导结构中,表面等离子体波可以被约束在几十纳米甚至更小的范围内,并且不再受衍射极限的限制。由于这种表面等离子体波导对光波具有强约束作用,所以可以用来制作高集成度的纳米光子芯片。表面等离子体在光集成、光存储、超分辨成像、负折射率材料及高次谐波的产生[23]等许多领域有着广泛的应用前景。目前对表面等离子体的研究已成为一门新兴的科学——表面等离子体学(Plasmonics)[24]。是当前纳米光子学的主要分支之一。

1.2.1 表面等离子体的发展

对表面等离子体的研究可以最早追溯到 19 世纪末 20 世纪初,它一直在理解

大量实验事实的和理解各种固体的基本性质方面扮演着重要的角色。但近年来使表面等离子体重新成为研究热点则源于人们对纳米材料电磁性质的探讨。

沿着有限电导率导体的表面上传输的表面波的数学描述是由 Sommerfeld 与 Zenneck 最早给出的, 这类表面波是在射频波段。Wood 在 1902 年可见光波段首先观察到了当光入射到金属光栅时在反射光谱上所观察到的反常衍射现象[25]。1941 年, Fano 将金属光栅的反常衍射现象与以前的 Sommerfeld 的理论工作联系起来, 提出了表面等离子体波的概念[26]。随后在 1957 年, Ritchie 利用电子束通过金属薄片时的衍射而记录了在金属表面发生的相互作用时伴随的能量损失现象[27], 这种现象在 20 世纪 60 年代与以前在光频的衍射光栅的工作相互联系。可见光下的 Sommerfeld 表面波在 1968 年已经通过棱镜耦合的办法来实现, 图 1-2 展示了分别由 Kretschmann 和 Otto 提出的棱镜耦合方案[28-29]。关于所有这些现象的统一理论解释表面等离子体激化理论就建立起来了。接下来对表面等离子体的研究主要集中在表面等离子体应用于传感及表面增强拉曼散射, 以及一些关于金属薄膜支持长程表面波(Long range surface plasmon polariton, LRSPP)的理论工作[30]。1998 年, 法国的 Ebbesen 等发表了关于金属薄膜亚波长小孔阵列远场透射增强效应的著名论文, 引发了国际上对表面等离子体广泛而深入的研究, 并促成表面等离子体学的形成[31]。从 Ebbesen 的发现以来, 表面等离子体的研究一直是国际研究的前沿热点。

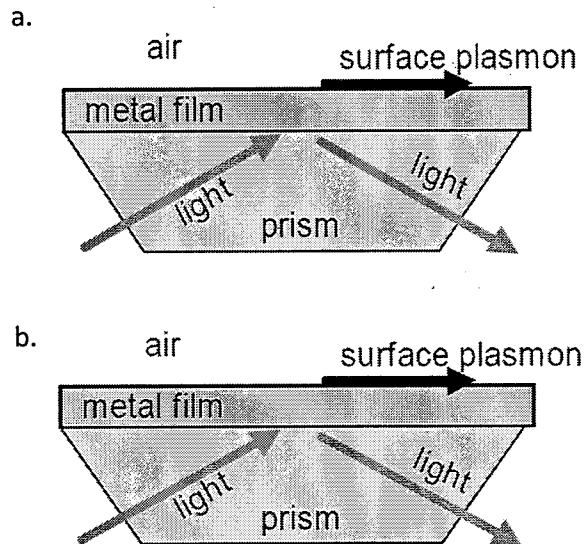


图 1-2. 激发表面等离子体的棱镜模型

(a) Kretschmann 等提出的棱镜耦合方案

(b) Otto 等提出的棱镜耦合方案

表面等离子体的产生是需要特定条件的,表面等离子体的波矢比同频率下其所存在界面的一侧的介质中的光波矢要大,只有满足波矢匹配的时候才能产生表面等离子体,这被称为表面等离子共振 (Surface Plasmon Resonance, SPR)。表面等离子共振对该介质折射率比较敏感,因此可以被应用到传感领域。加上表面等离子体在界面处有非常大的局部场强增强效应,可以大大提高传感灵敏度,因此从上个世纪 80 年代以来就被应用在气体及生物分子的检测等领域。到目前为止,表面等离子体传感器在技术上已经发展非常成熟。

1.2.2 表面等离子体的原理及应用

表面等离子体是传播于介质与金属界面上的电磁激发,在垂直于界面的方向上呈指数衰减。金属中的自由电子在外界电磁场的作用下相对于金属中的正离子发生相对位移,带来电子密度的重新分布,从而在金属表面的两边产生电场。表面等离子体的场强在金属与介质的界面处沿着垂直于界面的方面呈指数衰减,而在界面的附近局域场强非常大。表面等离子体共振是金属纳米结构非常独特的光学特性,对基于表面等离子体共振的纳米结构体系的研究已形成了迅速发展的热点研究领域之一。

表面等离子体的主要特性主要包含三个方面:亚波长约束、场增强及异常色散。表面等离子体的蓬勃发展与应用都可以与上述三个特性联系起来[32-33]。微纳米光子器件、光信息存储、超分辨光刻等都可以归因于表面等离子体的亚波长约束特性;而表面增强传感、提高二极管发光效率及太阳能电池效率、纳米天线等应用则是由于表面等离子体的空间局域近场增强效应。光及电磁波领域一些热门研究热点,比如负折射、完美成像、隐身(Cloaking)等,都与表面等离子体的某些异常色散有着很大的关联。金属纳米结构的表面等离子体激发能够产生非常

特殊的光电性质,例如,微量的分子吸附就可以导致表面等离子体共振频率的改变;一些特殊的纳米结构也可导致局域光电场的显著增强,这使得所吸附分子的拉曼散射强度增强几个至十几个数量级,从而使表面拉曼光谱的探测灵敏度达到单分子水平。

表面等离子体光学包含非常广泛的研究内容,随着纳米科学的发展,以表面等离子体共振为基础的研究日益活跃,并派生出众多的研究分支,例如表面光电场增强、表面增强光谱、光透射增强、表面等离子体纳米波导、光学力增强、表面等离子体光催化、表面增强的能量转移及选择性光吸收等等[34-35]。这些研究不但发现许多新现象和提出许多新问题,而且展示了巨大的应用前景,有望为纳米表征技术和基于其的传感器技术提供新原理和新方法,进而发展为具有超高检测灵敏度的新型表面等离子体和表面增强光谱传感器。由于表面等离子体的这些特性和一些基本物理机理问题还需要进一步探索,这使得表面等离子体这一现象既具有广泛的新颖应用前景,又具有很高的研究价值。

1.3 金属纳米结构在超快激光中的应用

利用超快激光可以激发金属纳米结构的表面等离子振荡,而金属中的等离子体振荡这种现象早在 20 世纪三四十年代就受到了人们的关注。在金属表面散射电子的实验中,观测到发生非弹性散射电子的能量损失存在一个不随入射角度和电子初始能量变化的固定值。对于这个能量损失有两种解释,一种认为这是金属电子跃迁吸收所导致的,另一种认为这是入射电子激发了金属内电子的集体振荡所导致的。20 世纪 50 年代初,Ritchie 利用高电荷密度系统内电荷运动的集体描述理论证明了后一种解释的正确性,特别是在考虑到金属边界的影响后,Ritchie 还通过计算解释了在部分实验中观察到的金属等离子体振荡的低能方向的能量吸收峰的成因[36]。随后,Powell 所作的精确电子非弹性散射实验重新验证了 Ritchie 的理论工作[37],从而结束了两种解释的争论。金属中存在着大量的价电子,它们可以在金属中自由地运动。由于价电子的自由移动性及电子间存在着库仑相互作用,所以在金属内部微观尺度上必然存在着电子密度的起伏。由于库仑作用的长程性,导致电子系统既存在集体激发即等离子体振荡,也存在个别激发即准电子。

金属激发的表面等离子体近年来吸引了人们的注意, 纳米金属材料得到了快速发展, 由于其具有许多传统材料无法媲美的独特的等离子光学特性, 在纳米光学领域具有广泛的应用前景。光与纳米金属结构中的自由电子相互作用, 产生表面等离子体共振效应 (Surface Plasmon resonance, SPR) 和局域表面等离子体共振效应 (Localized surface Plasmon resonance, LSPR), 与纳米金属复合材料的结构参数有很密切的关系[38]。金属表面的 SPR 特性可以通过改变它的载体—金属微纳结构来实现调控。金属纳米颗粒的 LSPR 特性对颗粒的尺寸、形状、颗粒间距及周围的介电环境等因素都极为敏感, 主要由于金属颗粒内和附近区域的局域电场增强, 因此通过改变上述因素可以调控纳米颗粒的 LSPR 特性, 满足不同的应用需求, 比如近场增强二次谐波, 表面增强拉曼散射等。在表面等离子体共振下纳米金属复合结构表现出增强的三阶非线性光学性质, 具有大的非线性光学性质和快速响应等特点, 大大缩小全光元件的尺寸, 从而在高速光开关、光调制器、光波导器件和光限幅器件等全光器件方面具有广阔的应用前景。所以研究纳米金属复合结构的线性和非线性光学性质对构造微纳结构光子器件有着重要的指导意义。

1.4 纳米周期介质结构在超快激光中的应用

在超快激光的研究中, 另一种经常使用的材料是高介电常数介质材料。与等离子体光子学类似, 介质材料主要的任务也是制造低损耗的光子器件, 提高光源的输出效率, 以及制作一些高速高存储光器件。

利用超快飞秒红外 (infrared, IR) 激光聚焦到稀有气体分子或原子上产生高次谐波 (high harmonic generation, HHG), 已经成为获得阿秒极紫外 (extreme-ultraviolet, XUV) 脉冲的一项成熟的技术。利用外部的增强腔产生 HHG 并由此来产生 XUV 脉冲的方法可以得到高重复频率的 XUV 光源[39-42]。但利用外部腔产生 HHG 这种方法需要克服的一个主要的难题是, 如何从产生 HHG 的红外激光中有效地耦合出与其共轴传播的 XUV 脉冲, 同时不影响谐振腔的工作。因为由 HHG 产生的 XUV 脉冲是与入射的红外激光沿着同一个方向传播的, 而 XUV 由于其极短的波长, 十分容易被腔内反射红外光的镜片吸收或阻

碍。因此找到能够有效耦合出腔内的 XUV 光源的元件就非常重要，

Yost 与其合作者利用一个纳米周期结构的浮雕型光栅作为 XUV 输出耦合器 [32]，将光栅周期结构直接蚀刻在腔内一个红外反射镜的表面。这个方法仅增加了微小的腔内损耗，支持共振腔谐振产生高强度脉冲，克服了耦合 XUV 的主要难题，并且不会对光束产生非线性的相移。在耦合输出 XUV 光的技术中，从输出能量可调的角度来看，采用纳米周期结构的衍射光栅这种方法是最有前景的。Yost 采用的这种耦合器，XUV 最大的输出效率在 65nm 处达到约 10%，是一种产生高重复频率 HHG 的非常有发展前景的方法。

1.5 多光子加工技术制备纳米结构

超快飞秒激光的超强特性使其能以极低的脉冲能量获得超强光场，并且激光辐照区淀积的能量难以通过热扩散途径逸出辐照区域，其与透明物质相互作用是通过双光子或多光子吸收过程实现，因此作用区域仅限于焦点核心很小体积内，因而在三维微制备领域有着独到优势。

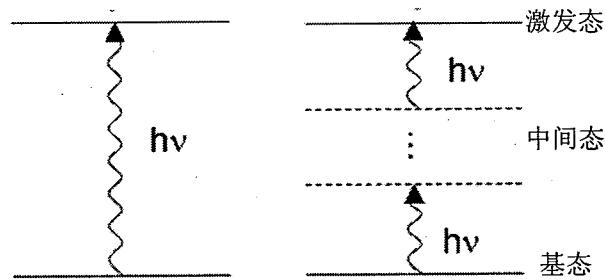


图 1-3 单光子吸收过程（左图）与多光子吸收过程（右图）

多光子吸收过程是指在强光激发下，一个原子或分子同时吸收多个不同频率（也可以为同一频率）的光子从基态跃迁到激发态[43-44]，如图1-3右图所示，对应与物质与光场相互作用中的耗散过程，即光场通过吸收与辐射与物质交换能量。多光子过程在强光激发下，通过中间态直接或分步地吸收两个或多个光子的过程，它是一个三阶非线性耗散过程。在该过程中，介质与光场之间通过光的吸收和发射交换能量。与单光子不同的是，单光子吸收是原子或分子吸收一个光子跃迁到相应的激发态（图1-3左图）。多光子吸收过程中，原子或分子同时吸收多个光子，

通过若干个“虚拟态”，达到一个稳定激发态。单光子吸收与光强成线性关系，而多光子吸收与光强的关系由多光子吸收过程决定。对于需要同时吸收 n 个光子的多光子过程，其吸收几率与光强的 n 次方成正比[45]。

Göppert-Mayer在1937年就从理论上预言了双光子吸收的存在，并用二阶微扰理论导出双光子过程的跃迁几率[46]。但是由于这个多光子吸收需要非常高的光子强度，在激光被发明前，即使双光子吸收也没有实验证明。直到60年代初激光器出现后，才由Kaiser和Garrett利用红宝石激光器为激发光源，首次观测到了GaF₂:Eu²⁺晶体的双光子吸收所引起的荧光发射现象，从实验上证实了双光子吸收过程[47]。

利用多光子吸收过程引发的金属离子还原或者预聚树脂的聚合，已经实现了多种微结构的加工[48-51]。由于双光子吸收采用具有超短和超强特性的飞秒激光作为光源以及自身的非线性效应，使其具有如下特性[52-57]：一方面，双光子吸收通常采用可见光或近红外光来激发，激发光对介质穿透率高，可有效地减少介质对激发光的耗散和破坏，并能用可见光或近红外光来激发那些原本需要远紫外光才能激发的体系；另一方面，由于材料的双光子吸收与激发光强的平方密切相关，因而在紧密聚焦的条件下，双光子吸收仅局限在物镜焦点处空间体积约为 λ^3 (λ 为入射光波长)的微小范围内。这两个特点为双光子的深层次、超精细加工提供了基础。

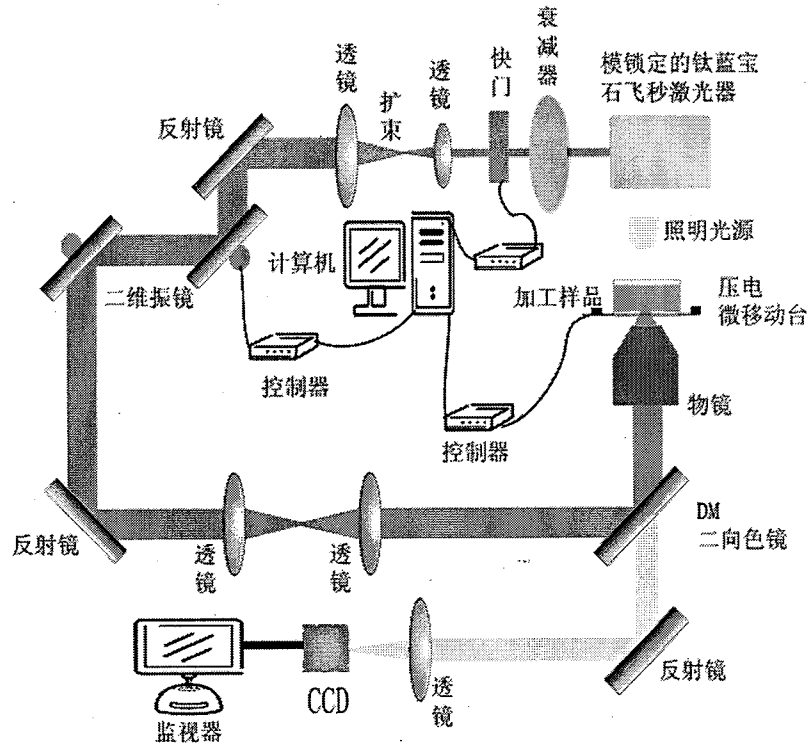


图 1-4 飞秒激光的加工实验系统

双光子微加工的过程实际上就是利用双光子聚合进行微结构造型，多光子加工装置如图1-4所示[49]：从激光器发射的飞秒激光束经过一系列光学元件后，聚焦在透明树脂中。树脂被密封在两片盖玻片中，盖玻片被固定在三维压电移动台上。透明树脂中激光焦点及其附近的高度局域化区域内引发双光子聚合反应，液态树脂转变为固体。当激光焦点在树脂内沿三维方向移动时，聚合反应沿焦点的踪迹产生，这使得可以用激光在树脂内直接产生由计算机控制的任何三维结构。二维振镜或者压电移动平台控制激光焦点在载玻片平面的位置，通过压电陶瓷移动器控制激光焦点的高度。这些设备均由计算机控制实现三维加工，控制高速快门的通断实现激光束的关闭与开启，调节衰减片调节激光束的能量。利用计算机的软件控制系统协调振镜和压电移动台的精密运动与高速快门的通断。为了实时观测样品加工，将普通照明光引入样品中，用CCD对样品的透射或反射光成像。最后，用溶剂将未聚合的树脂洗掉，留下计算机预先编程的图形拷贝。与普通光刻技术的平面加工过程不同，飞秒激光双光子加工是一种真正的三维立体微结构加工方法。图1-5 为多光子聚合方法制备的各种二维及三维微纳结构与光子器件

[49], 实现了高分辨率三维直写激光加工。

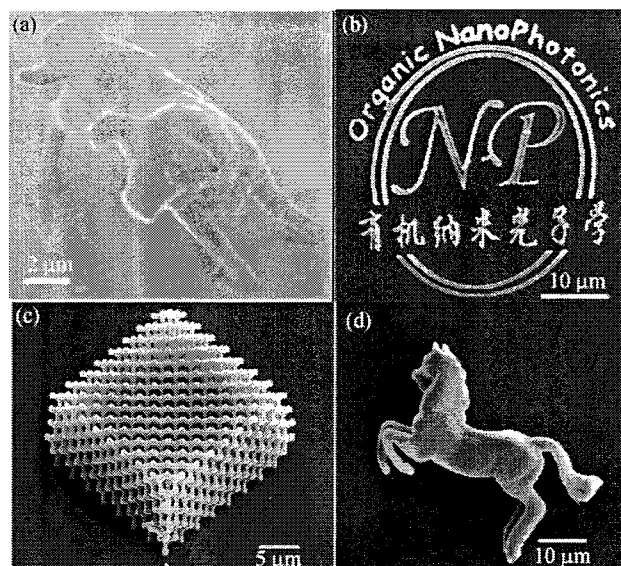


图1-5 多光子聚合方法制备的各种二维及三维微纳结构与光子器件。

- (a) 三维“纳米牛”结构；(b) 二维图标；
(c) 金刚石光子晶体结构；(d) 三维千里马

1.6 论文选题意义及主要研究内容

超短激光脉冲的出现对科学技术和人类社会产生了深刻的影响,开拓了光与物质相互作用的新研究领域,成为现代超快物理学中非常重要的研究手段。高强度的超快激光脉冲可以剥离原子中的电子,通过激光脉冲控制,被电离出来的电子返回母离子时发生碰撞结合,产生具有超宽频谱的高次谐波。超快激光对基础科学研究有着深远的影响,例如观测及控制电子在复杂体系中的运动。在纳米结构的物质中,电磁场分布以及金属表面激发的表面等离子激元可以通过改变纳米尺度的光学器件的大小、形状和材料来调控。因而研究金属纳米天线及纳米周期介质结构在超快激光中的光学特性及应用就显得尤为重要。

本研究工作将包括以下几个方面:

第一,介绍了超快激光的发展和应用,讨论了超快激光与物质的相互作用,

以及高次谐波的产生。同时,回顾了表面等离子体光学的发展与应用。对金属纳米结构及纳米周期介质结构在超快激光中的应用做了描述,并介绍了多光子微纳加工技术。

第二,阐述了本文中用到的电磁场计算方法:有限时域差分法(FDTD)方法,有限元(FEM)方法,严格耦合波(RCWA)方法,以及传输矩阵和散射矩阵法,并且介绍了完美匹配层(PML)吸收边界条件。最后讨论了频率相关材料计算模型分析:Drude模型、Debye模型和Lorentz模型,对金属的表面等离子体特性进行了分析。

第三,具体分析了三角形形状孤立的和耦合的金纳米结构,以及组成的对称的和不对称纳米蝴蝶结天线。分析了其表面等离子体光学特性,计算了频域响应和时域响应。优化设计后的不对称纳米蝴蝶结天线,表面等离共振可支持超宽的频谱响应和高的场增强因子。

第四,研究了由Ag/Au的核壳结构组成的双金属纳米天线结构的光学特性。这种双金属核壳结构由于采用Au做为外层壳,这就避免了内层金属Ag被氧化,将其应用于少周期激光脉冲,对其进行理论计算分析及优化设计。采用数值方法计算并优化了这种双金属纳米天线,并与纯金和纯银纳米结构进行比较。当双金属结构的核壳比例经过优化设计和调整后,这种双金属纳米天线比起纯金或纯银构成的纳米天线有着更高的表面等离激元增强能力。

第五,研究了运用在超快激光中,XUV光的纳米结构的介质耦合输出器,提出了改进的闪耀型结构的XUV纳米周期光栅,并通过优化设计使其输出XUV的衍射效率有了较大的提高。这种闪耀光栅以不同的衍射角输出XUV光,实现了对不同频率和波长的选择,有着较高的衍射效率,且对基频红外光有着高反射特性。对这种衍射光栅在超快激光下的非线性效应,也进行了相关测量和讨论。

最后,对本论文研究结果进行了总结,并对未来发展进行了展望。

1.7 参考文献

- [1] Y. Ishida, et al., Generation of 50-fs pulses from a pulse compressed

passively mode-locked Ti: sapphire laser, Opt. Lett., 16, 153, 1991.

[2] D. E. Spence, P. N. Kean, W Sibbett, et al. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:Sapphire laser. Opt.Lett.1991, 16(1):42-47.

[3] A. Stingl, M. Lenzner, Ch. Spielmann, et al., Sub 10fs mirror dispersion controlled Ti: sapphire laser, Opt. Lett., 20, No.6, 1995.

[4] A.Kasper, K. J. Witte, 10-fs pulse generation from a unidirectional Kerr-lens mode-locked Ti: sapphire laser, Opt. Lett., 21, No.5, 1996.

[5] Xu Lin, Christian Spielmann, Ferenc Klausz, Ultrabroadband ring oscillator for sub-10fs pulse generation. Opt. Lett, Vol.21, No.16, 1996.

[6] U. Morgner, F. X. Kartner, S. H. Cho, et al. Sub-two cycle pulses from a Kerr lens mode locked Ti sapphire laser. Opt. Lett., 1999, 24(24):411-413.

[7] C. Rouyer, E. Mazataud, I. Allais, et al. Generation of 50-TW femtosecond pulse in a Ti:sapphire/Nd:glass chain. Opt. Lett., 1993,18(3):214-216.

[8] K. Yamakawa, M. Aoyama, S. Matsuoka, H. Takuma, Ultrahigh-peak and high-average power chirped-pulse amplification of sub-20-fs pulses with Ti: sapphire amplifiers, IEEE J. Quantum Electron, 4, 385(1998)

[9] A. H. Zewail, Laser femtochemistry, Science, 242, 1645 (1988).

[10] F. Krausz, M. Ivanov, Attosecond physics, Rev. Mod. Phys., 81 (2009) 163.

[11] A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Serinzi, T. W. Hansch, and F. Krausz, Attosecond control of electronic Processes by intense light fields, Nature 421, 611(2003).

[12] M. I. Stockman, M. F. Kling, U. Kleineberg, F. Krausz, Attosecond nanoplasmonic-field microscope, Nat Photon, 1 (2007) 539-544.

[13] G. Steinmeyer, D. H. Sutter, L. Gallmann, N. Matuschek, U. Keller, Frontiers in Ultrashort Pulse Generation: Pushing the Limits in Linear and Nonlinear Optics, Science 286, 1507(1999).

[14] G. A. Mourou, T. Tajima, More Intense, Shorter Pulses, Science 331, 7, (2011).

[15] P. B. Corkum, Plasma perspective on strong field multiphoton ionization,

Phys. Rev. Lett. 71(13), 1994–1997 (1993).

[16] R.J. Jones, K.D. Moll, M.J. Thorpe, J. Ye, Phase-Coherent Frequency Combs in the Vacuum Ultraviolet via High-Harmonic Generation inside a Femtosecond Enhancement Cavity, *Physical Review Letters*, 94 (2005) 193201.

[17] A. Ozawa, J. Rauschenberger, C. Gohle, M. Herrmann, D.R. Walker, V. Pervak, A. Fernandez, R. Graf, A. Apolonski, R. Holzwarth, F. Krausz, T.W. Hänsch, T. Udem, High Harmonic Frequency Combs for High Resolution Spectroscopy, *Physical Review Letters*, 100 (2008) 253901.

[18] C. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, and F. Krausz, Generation of Coherent X-rays in the Water Window Using 5-Femtosecond Laser Pulses, *Science* 278(5338), 661–664 (1997).

[19] M. I. Stockman, M. F. Kling, U. Kleineberg, and F. Krausz, Attosecond nanoplasmonic-field microscope, *Nat. Photonics* 1(9), 539–544 (2007).

[20] C. Gohle, T. Udem, M. Herrmann, J. Rauschenberger, R. Holzwarth, H. A. Schuessler, F. Krausz, and T. W. Hänsch, A frequency comb in the extreme ultraviolet, *Nature* 436(7048), 234–237 (2005).

[21] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. S. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. L. Aquila, E. M. Gullikson, D. T. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Kleineberg, Single-Cycle Nonlinear Optics, *Science* 320, 1614–1617 (2008).

[22] E. Goulielmakis, Z.-H. Loh, A. Wirth, R. Santra, Nina Rohringer, V. S. Yakovlev, S. Zherebtsov, T. Pfeifer, A. M. Azzeer, M. F. Kling, S. R. Leone, and F. Krausz, Real-time observation of valence electron motion, *Nature* 466, 739 (2010).

[23] S. Kim and et al., High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement, *Nature* 453, 757 (2008)

[24] S. Maier, M. Brongersma, P. Kik, S. Meltzer, A. Requicha, B. Koel, and H. Atwater, Plasmonics—A Route to Nanoscale Optical Devices, *Adv. Mater.* 15, 562–562 (2003).

[25] R. W. Wood, On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum, *Proc. Phys.Soc. London*, 18, 269–275 (1902).

- [26] U. Fano, The theory of anomalous diffraction gratings and of quasi-stationary waves on Metallic surfaces, *J. Opt. Soc. Am*, 31, 213-222(1941).
- [27] R. H. Ritchie, Plasma losses by fast electrons in thin films, *Phys. Rev*, 106(5), 874-881(1957).
- [28] E. K Ketschmann, and H. Raether, Radioactive decay of non-radioactive surface plasmons excited by light, *Z. Naturforschung*, 23A, 2135-2136(1968).
- [29] A. Otto, Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection. *Z. Physik* 216, 398 (1968)
- [30] D.A. Weitz, S. Garoff, J. I. Gersten, A. Nitzan, The enhancement of Raman scattering resonance Raman scattering and fluorescence from molecules adsorbed on a rough silver surface, *J. Chem. Phys.*, 78(9):5324-5335(1953).
- [31] T. W. Ebbesen, H. J. Lezee, H. F. Ghaemi, T. Thio & P. A. Wolff, Extraordinary optical transmission through Sub-wavelength hole arrays, *Nature*, 391,667-669(1998).
- [32] Karl W. Böer, *Survey of Semiconductor Physics*, Vol. I, 2nd ed., Wiley 2002, 525.
- [33] Kittel, C., *Introduction to Solid State Physics*, 8th edition, Wiley 2005, 403.
- [34] Wei H, Hao F, Huang Y Z, et al. Polarization dependence of surface-enhanced Raman scattering in gold nanoparticle-nanowire systems. *Nano Lett*, 2008, 8: 2497-502
- [35] Wei H, Hakanson U, Yang Z L, et al. Individual nanometric hole-particle pairs for surface-enhanced Raman scattering. *Small*, 2008, 4:1296-1300
- [36] Ritchie R H. Plasma Losses by Fast Electrons in Thin Films. *Phys Rev.*, 1957, 106 (5): 874~ 881.
- [37] Powell C J, Swan J B. Origin of the Characteristic Electron Energy Losses in Aluminum. *Phys Rev*, 1959,115(4) : 869~ 875.
- [38] H. M. Hiep et al. A localized surface plasmon resonance based immune sensor for the detection of casein in milk. *Sci. Technol. Adv. Mater.* 8 (2007) 331.
- [39] C. Gohle, T. Udem, M. Herrmann, J. Rauschenberger, R. Holzwarth, H.A. Schuessler, F. Krausz, T.W. Hansch, A frequency comb in the extreme ultraviolet,

Nature, 436 (2005) 234-237.

[40] R.J. Jones, K.D. Moll, M.J. Thorpe, J. Ye, Phase-Coherent Frequency Combs in the Vacuum Ultraviolet via High-Harmonic Generation inside a Femtosecond Enhancement Cavity, *Physical Review Letters*, 94 (2005) 193201.

[41] A. Ozawa, J. Rauschenberger, C. Gohle, M. Herrmann, D.R. Walker, V. Pervak, A. Fernandez, R. Graf, A. Apolonski, R. Holzwarth, F. Krausz, T.W. Hänsch, T. Udem, High Harmonic Frequency Combs for High Resolution Spectroscopy, *Physical Review Letters*, 100 (2008) 253901.

[42] D. C. Yost, T.R. Schibli, J. Ye, Efficient output coupling of intracavity high-harmonic generation, *Opt. Lett.*, 33 (2008) 1099-1101.

[43] S. Maruo, O. Nakamura, S. Kawata. Three-dimensional micro-fabrication with two-photon-absorbed photopolymerization. *Opt. Lett.* 1997, 22: 132.

[44] T. Tanaka, H. B. Sun, S. Kawata, Rapid sub-diffraction-limit laser micro nano processing in a threshold material system, *Appl.phys. Lett.*, 2002, 80: 312.

[45] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Boston , Academic Press, 1992.

[46] M. Goppert-Mayer, Elementary file with two quantum fissures. *Annalen Der Physik* 1931, 9: 273.

[47] W. Kaiser and C. G. B. Garrett, 2-photon excitation in $\text{CaF}_2: \text{Eu}^{2+}$. *Phys. Rev. Lett.*, 1961, 7: 229.

[48] K. D. Belfield, K. J. Schafer, Y. Liu, J. Liu, X. B. Ren and E. W. V. Stryland, Multiphoton-absorbing organic materials for microfabrication, emerging optical applications and non-destructive three-dimensional imaging, *J. Phys. Org. Chem.*, 2000, 13: 837.

[49] 董贤子, 陈卫强, 赵震声, 段宣明, 飞秒脉冲激光双光子微纳加工技术及其应用, *科学通报*. 2008, 53, 2.

[50] 崔铮, 微纳米加工技术及其应用, 高等教育出版社, 北京, 2005, 6.

[51] C. N. LaFratta, J. T. Fourkas, T. Baldacchini and R. A. Farrer, Multiphoton fabrication. *Angew. Chem. Int. Ed.* 2007, 46: 6238.

[52] H. B. Sun, S. Matsuo and H. Misawa, Three-dimensional photonic crystal structures achieved with two-photon-absorption photopolymerization of resin, *Appl.*

Phys. Lett., 1999, 74: 786-788.

[53] J. Serbin , M. Gu, Experimental evidence for superprism effects in three-dimensional polymer photonic crystals, Adv. Mater., 2006, 18: 221-224.

[54] S. Yokoyama, T. Nakahama, H. Miki and S. Mashiko, Two-photon-induced polymerization in a laser gain medium for optical microstructure, Appl. Phys. Lett., 2003, 82: 3221-3223.

[55] P. Galajda and P. Ormaos, Complex micromachines produced and driven by light, Appl. Phys. Lett., 2001, 78: 249-251.

[56] C. A. Coenjarts and C. K. Ober, Two-photon three-dimensional micro-fabrication of poly(dimethylsiloxane) elastomers, Chem. Mater., 2004, 16: 5556-5558.

[57] B. Kaehr and J. B. Shear, Multiphoton fabrication of chemically responsive protein hydrogels for microactuation, PNAS, **2008**, 105: 8850-8854.

第二章 电磁计算方法

计算电磁学的数值方法多种多样,在多年的发展中逐渐形成了多种数值模拟方法,每种方法各有优点和侧重,在相关领域里发挥着重要作用。研究介观和微观电磁波散射问题,必须严格求解麦克斯韦方程组。研究涉及的系统通常具有复杂的几何外形和介质分布,正确给出介电常数和边界条件,才能够准确描述电磁场与微结构的相互作用。下面我们就本文用到的几种数值方法进行具体介绍。

2.1 时域有限差分(FDTD)方法

时域有限差分方法(finite difference time domain, FDTD) [1-5]是求解电磁问题的一种数值方法,在1966年由K. S. Yee第一次提出[2],目前已经发展为一种成熟的数值方法。该方法对电磁场E、H分量在空间和时间上采取交替的离散方式,每一个E(或H)场分量周围有四个H(或E)场分量环绕,应用这种离散方式直接将有限差分式代替麦克斯韦时域场旋度方程中的微分式,得到关于电磁场分量的有限差分式,并在时间轴上逐步推进地求解空间电磁场。用具有相同电磁参量的空间网格去模拟被研究体,选取合适的场初始值和计算空间的边界条件,可以得到包括时间变量的麦克斯韦方程的四维数值解。

FDTD方法把各类问题都作为初值问题来处理,能直接反映电磁波的时域特性。在计算中将空间某一样本点的电场(或磁场)与周围格点的磁场(或电场)直接相关联,且介质参数已赋值给空间每一个元胞,因此这一方法可以处理复杂目标和非均匀介质物体的电磁散射、辐射等问题。并且,通过计算每一时间步空间网格中各点的电场和磁场,就能直接模拟电磁波的传播及其与物体的相互作用过程。可以在计算机上以彩色显示,这种电磁场可视化结果清楚地显示了物理过程,便于分析和设计。通过傅里叶变换可进一步求得空间内的频域解。如果需要宽频带的信息,只需在宽频谱的脉冲激励下进行一次计算。FDTD方法直接从麦克斯韦

微分方程组出发, 因此计算格式简单, 物理过程描述直观, 而且不需要任何导出方程, 这就避免了使用更多复杂的数学工具。FDTD 方法适应面比较广, 在电磁研究的多个领域获得广泛应用。例如散射和雷达散射截面的计算, 辐射天线的分析, 生物电磁计量学的计算和电磁热疗系统的计算机模拟, 周期结构的分析, 微波电路的时域分析, 核电磁脉冲的传播和散射和少周期激光光学

2.1.1 FDTD 的发展与特点

最初的 FDTD 方法主要用来求解金属体上的散射问题, 采用的通常是笛卡尔坐标系以及直角六面体空间单元网格。随着 FDTD 技术的发展, 首先解决的是有限计算空间的无反射截断问题。和早期采用的一种方法, 即加大边界与散射体之间的距离, 以在边界上构成外向行波相比, 将波方程的二阶近似用以处理边界上的场值的方法能够得到较好的近似吸收边界条件。同时, 为了解决在直角坐标系中用 FDTD 方法进行模拟时, 由于研究对象的曲面在 FDTD 技术下将呈锯齿形状, 可能产生沿研究对象表面传播的电磁波增大数值色散误差的问题, 提出了共形技术。利用共形网格明显提高了计算精度, 包括使用曲线坐标系使研究对象表面与坐标曲线共形, 或在直角坐标系中改变研究对象介面上的网格形状使二者共形。近来, 相继出现的以麦克斯韦方程的回路积分形式建立相应的 FDTD 算法, FDTD 与其他方法(如积分方程法或矩量法)的混合技术, 以及媒质参数的网格平均技术等, 都使得对于研究对象结构尺寸比网格尺寸小时(如细线、窄槽或薄层等)的特殊问题的 FDTD 模拟变得可行。

FDTD 法的特点是很容易得到被研究电磁散射问题的近场, 但要一次直接得到远场分布则比较困难。80 年代初期提出的利用等效原理将频域近场变换为远场是解决这个问题的好方法, 近几年技术又发展到时域。这二种途径给求解散射问题和天线问题提供了强有力的工具。值得一提的是, 早期 FDTD 方法中没有计及媒质的色散特性, 即假定被研究媒质的电参数是与频率无关的。实际上自然界中有很多媒质的电参数具有很强的色散特性, 近几年研究色散媒质中的 FDTD 算法的提出为解决这一电磁领域内难题铺平了道路。从目前水平看, 在分析一般

散射问题中, FDTD 方法的数值误差小于 3%, 这种精度对于大多数的计算来说是满足要求的。FDTD 方法得到的是时域解, 通过傅里叶变换可得到频域解。即它具有一次时域计算代替频域上逐点计算的潜力。作为一种应用最为广泛的电磁场数值计算方法, FDTD 具有一些较明显的优势:

一、对时域直接进行计算。时域有限差分法直接把含时间变量的麦克斯韦方程在 Yee 氏网格空间中转化为差分方程。每个网格点上电场(或磁场)分量仅与它相邻的磁场(或电场)分量以及上一时间步该点的场值有关。在每一时间步计算网格空间各点的电场和磁场分量, 随着时间步的推进, 能直接模拟电磁场的传播及与散射体的相互作用过程。时域有限差分法把各类问题都作为初值问题来处理, 使电磁波的时域特性被直接反映出来。

二、具有良好的适用性与通用性。在时域有限差分法的差分格式中被模拟空间电磁性质的参量是按空间网格给出的。因此, 媒质的非均匀性、各向异性、色散特性和非线性等均能很容易地进行精确模拟。由于在网格空间中电场和磁场分量被交叉放置, 而且计算中用差分代替微商, 使得介质交界面上的边界条件能自然得到满足。这就为模拟复杂的结构提供了极大的方便。不论是散射、辐射、传输、透入或吸收, 还是瞬态问题还是稳态问题, 只要能对源和结构进行模拟, 时域有限差分法就可以给出正确的解答。而且, 由于麦克斯韦方程是时域有限差分法计算任何问题的数学模型, 其基本差分方程对任何问题是不变的。吸收边界条件和连接条件对很多问题可以通用的, 对不同的问题和计算对象只需修改有关部分。

三、可以合理调节储存空间和计算时间, 且适用于并行计算。所需的存储空间直接由网格空间决定, 每个网格的电磁场都按同样的差分格式计算, 因此计算时间也与网格空间总数 N 成正比, 不需要用矩阵求逆, 降低了算法的空间和时间复杂度。但若网格总数 N 非常大, 其需求的存储空间和计算时间也是相当可观的。在时域有限差分法中, 每个网格点上的电场(或磁场)分量只与其周围相邻网格点处的磁场(或电场)分量及其上一时间步的场值有关, 这个特点很适合并行计算。运用并行计算可使时域有限差分法所需的存储空间和 CPU 时间降低。

四、具有直观易操作性。时域有限差分法直接从麦克斯韦方程出发, 不需要任何导出方程, 避免了使用更多的数学工具, 使得它成为所有计算电磁场计算方

法中最简单的一种。而且能直接在时域中模拟电磁场的传播及其与物体作用的物理过程，非常直观。

上述几方面问题的优点有力推动了 FDTD 技术的发展和应。FDTD 方法本身固有的计算优势，使它在解决复杂形体结构和多种媒质并存的一类电磁问题中占有重要的地位。到目前为止几乎被应用到了电磁场工程的各个方面：辐射天线的分析、微波器件和导行波结构的研究、散射和雷达截面计算、周期结构分析、电子封装和电磁兼容分析、核电磁脉冲的传播和散射以及微光学器件中光的传播和衍射特性，生物电磁学等，以及在天线、微波技术、光电子学等的应用中也越来越受到重视。

2.1.2 FDTD 的基本原理

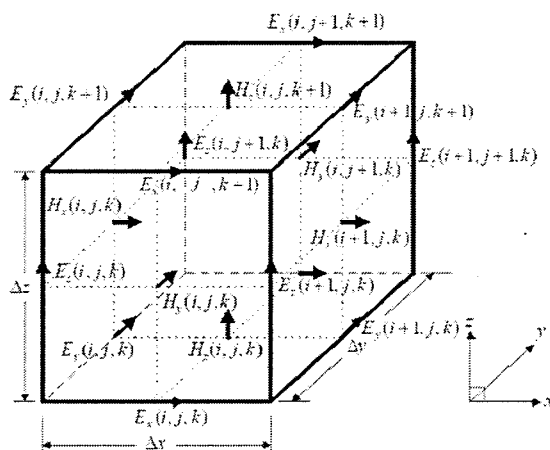


图 2-1 Yee 氏网格中电场和磁场各节点的空间排布

FDTD 法的基本思想是用变且离散的、含有有限个未知数的差分方程近似地替代连续变量的微分方程。Yee 氏网格[2]中电场和磁场各节点的空间排布如图 2-1 所示，该网格体系的特点为电场和磁场各分量在空间的取值点被交叉地放置，使得在每个坐标平面上每个电场分量的四周由磁场分量环绕。下面我们由麦克斯韦方程推导 FDTD 法的数学模型。

在各向同性非色散媒质无源区域中，对频率为 ω 的单色场，可用麦克斯韦

方程组描述:

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2-1)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$$

麦克斯韦方程六个分量式可表示为;

$$\frac{\partial E_x}{\partial t} = \frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} - \sigma E_x \right)$$

$$\frac{\partial E_y}{\partial t} = \frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} - \sigma E_y \right) \quad (2-2)$$

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = \frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} - \sigma E_z \right)$$

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = \frac{1}{\mu} \left(\frac{\partial E_y}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial y} - \sigma_m H_x \right) \quad (2-3)$$

$$\frac{\partial H_y}{\partial t} = \frac{1}{\mu} \left(\frac{\partial E_z}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial z} - \sigma_m H_y \right)$$

$$\frac{\partial H_z}{\partial t} = \frac{1}{\mu} \left(\frac{\partial E_x}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial x} - \sigma_m H_z \right)$$

这六个耦合偏微分方程构成了 FDTD 数值算法的基本方程。其中, σ 为电导率, σ_m 为导磁率, ε 为介电常数, μ 为磁导系数。

在 FDTD 网格中由于场量之间相距为半个空间步长,所以 $F^n(i, j, k)$ 在 X 方向的中心差商可以表示为:

$$\frac{\partial \bar{F}^n(\bar{i}, \bar{j}, \bar{k})}{\partial x} = \frac{\bar{F}^n(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k}) - \bar{F}^n(\bar{i} - \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k})}{\Delta x} + O(\Delta x^2) \quad (2-4)$$

同理, 对时间微商也采用中心差商近似, 且也是相隔半个步长进行计算时就得到:

$$\frac{\partial \bar{F}^n(\bar{i}, \bar{j}, \bar{k})}{\partial t} = \frac{\bar{F}^{n+\frac{1}{2}}(\bar{i}, \bar{j}, \bar{k}) - \bar{F}^{n-\frac{1}{2}}(\bar{i}, \bar{j}, \bar{k})}{\Delta t} + O(\Delta t^2) \quad (2-5)$$

利用上式可得麦克斯韦方程分量式的差分形式为:

$$\begin{aligned} E_x^{n+1}(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k}) = & \frac{1 - \frac{\sigma_\varepsilon(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k})\Delta t}{2\varepsilon(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k})}}{1 + \frac{\sigma_\varepsilon(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k})\Delta t}{2\varepsilon(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k})}} \cdot E_x^n(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k}) \\ & + \frac{\Delta t}{\varepsilon(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{\sigma_\varepsilon(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k})\Delta t}{2\varepsilon(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k})}} \\ & + \frac{H_x^{n+\frac{1}{2}}(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j} + \frac{1}{2}, \bar{k}) - H_x^{n+\frac{1}{2}}(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j} - \frac{1}{2}, \bar{k})}{\Delta y} \\ & - \frac{H_y^{n+\frac{1}{2}}(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k} + \frac{1}{2}) - H_y^{n+\frac{1}{2}}(\bar{i} + \frac{1}{2}, \bar{j}, \bar{k} - \frac{1}{2})}{\Delta z} \end{aligned} \quad (2-6)$$

对 E_y 、 E_z 、 H_x 、 H_y 和 H_z 也有类似的方程。

麦克斯韦旋度方程按 Yee 氏网格[2]所导出的方程(2-6)是一种显式差分格式, 通过时间步的推进计算电磁场在网格空间的变化规律。这种差分格式必须满足数值稳定性条件, 即时间步长 Δt 与空间步长 Δx , Δy , Δz 必须满足一定的关系, 否则将出现随着时间步的推移, 计算的场值将出现不稳定现象。这不同于误差累计的效果, 是由于时间步长与空间步长设置的不合理, 使电磁波传播的因果关系破坏而产生的。A. Taflov [3]对 Yee 氏差分格式的稳定性进行了分析, 导出了对时间步长的限制条件:

$$\Delta t \leq \frac{1}{v \sqrt{(\frac{1}{\Delta x})^2 + (\frac{1}{\Delta y})^2 + (\frac{1}{\Delta z})^2}} \quad (2-7)$$

其中 v 是光在计算空间媒质中的传播速度。对于不同的媒质, 需要采用最大传播速度 v 来满足数值稳定性条件, 这样在其它区域数值稳定性条件自然也能得

到满足。数值稳定性条件要求时间步长不能大于电磁波传播一个空间步长所需的时间，否则就破坏了因果关系。

2.2 有限元 (FEM) 方法

有限元法 (finite element method, FEM) 是以变分原理和剖分插值为基础的一种数值计算方法。它是通过恰当的形式将求解空间划分为有限个单元，再在每个单元中构造分域基函数[6-7]。有限元的思想在 20 世纪四十年代已经在力学领域提出，五十年代开始用于飞机设计。但是这个方法开创性的工作公认是 R. W. Clough 在 1960 年发表的著作中奠定的[8]。此后，该方法得到发展并被广泛地用于结构分析，流体力学，热传递等物理和工程问题之中。六十年代至七十年代，有限元法被运用到电磁场工程领域。其灵活性和通用性的优点及解题能力广受欢迎，取得了巨大的进展，在电磁场理论与电磁场工程及其他场科学中都得到了快速的应用与发展，其优点主要在于：

一、广泛的适应性与易求解性。有限元采用物理上离散与分片多项式插值，因此具有对材料、边界、激励的广泛适应性。有限元方程组的系数矩阵是稀疏的、对称的，有利于代数方程组的求解。所以，有限元法可用于任何微分方程描述的各类物理场，同样适合于时变场、非线性场和复杂介质中的电磁场求解。有限元基于变分原理，将数理方程求解变成代数方程组的求解，因此非常简易。

二、强大的网格划分能力和离散单元的灵活性。有限元法可以较精确的模拟各种复杂的几何结构，并通过选择取样点的疏密情况适应场分布的不同情况，在保证计算精度的同时，不增加过多的计算量，能够更好的模拟实际的复杂分析模型。

三、标准性。有限元法采用矩阵形式和单元组装方法，各环节易于标准化，程序具有通用性且有较高的计算精度，便于编制程序和维护，适宜于制作商用软件。

2.3 严格耦合波分析 (RCWA) 方法

严格耦合波分析法 (Rigorous Coupled-wave Analysis, RCWA) [9-11] 是一种精确分析电磁场在周期性结构中衍射特性的方法。自八十年代年提出以来[9], 严格耦合波分析法不断得到发展和补充, 至今已经成功应用于平面介质吸收全息光栅、任意表面轮廓的介质-金属表面浮雕光栅、复用的全息光栅、二维周期性表面浮雕光栅以及各向异性光栅等各类平面及锥状衍射的透射及反射问题。它将研究的区域分为光栅上、下区域和光栅区域三部分, 并运用傅立叶级数表示三个区域的电磁场, 将麦克斯韦方程的求解问题转化成为一个求解特征函数的问题, 得到光栅区域由特征函数耦合表达的电磁场分布, 通过在光栅区域和其他区域交界面上求解边界条件得到光栅的衍射效率。

严格耦合波分析法比较适合亚波长周期性金属结构的研究问题, 对于分析周期或者近周期结构的光栅非常方便, 相对其他一些方法来说, 严格耦合波分析法能够通过较为直接的方法得到光栅衍射问题的严格麦克斯韦解。严格耦合波分析法不需要迭代过程, 在保证数值稳定性的前提下利用能够得到收敛的稳定解。算法的精确度主要取决于傅立叶级数展开的截断阶数, 并且始终满足能量守恒定律。

严格耦合波分析法的公式推导主要基于麦克斯韦方程, 电磁场以及光栅的介电常数展开成傅里叶级数, 并由此将多维的散射问题降低成一维问题。一般来说线形周期性光栅沿平行光栅方向分割成很多平行的薄光栅。每一层中的电磁场都通过建立耦合波方程求解, 同时相邻层之间考虑边界连续条件。根据边界切向分量连续条件最后求得衍射场个衍射级的复振幅。对于不规则表面浮雕状光栅来说, 可以通过分层处理近似看成很多层薄片状光栅叠加而成。当每一层光栅足够薄时, 理论上可以逼近任何形状的表面浮雕光栅。和单层光栅类似, 在每一层薄光栅中光栅介电常数的傅立叶分量为常数。如果是表面浮雕状不规则结构的衍射问题一般通过以下步骤求解: 首先在每一个薄光栅中建立耦合波方程; 在入射区域和第一层光栅间、相邻薄光栅间以及最后一层薄光栅和透射区域间的介面上建立连续边界条件; 通过给出的边界条件求出反射和透射衍射场的复增幅, 最后确定衍射效率。

2.4 散射矩阵法

我们以纳米周期结构的光栅为例，在严格耦合分析法的基础上运用散射矩阵法对其进行计算与优化。由于光栅由不同材料介质交替构成，我们可以根据光栅的不同材料介质分布将光栅分为若干个层，即由不同的单元组成。

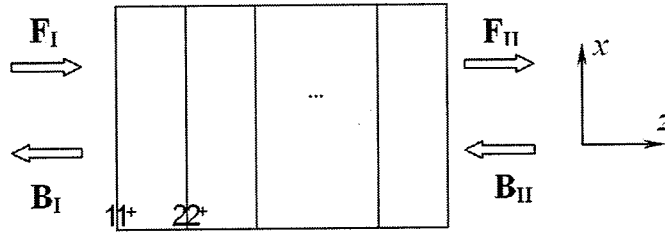


图 2-2 光在不同单元中的传播

对于图2-2所示的多个单元组成的光栅结构，在每一个单元交界处，输入端的向前传播的场用 $\mathbf{F}_I$ 表示，而反射向后传播的场用 $\mathbf{B}_I$ 表示。同样在输出端的透射向前传播的场用 $\mathbf{F}_{II}$ 表示，而向后传播的场用 $\mathbf{B}_{II}$ 表示。则 $\mathbf{F}_{II}$ 、 $\mathbf{B}_{II}$ 与 $\mathbf{F}_I$ 、 $\mathbf{B}_I$ 可通过一个总的散射矩阵 $\mathbf{S}$ 联系起来，即：

$$\begin{bmatrix} \mathbf{F}_{II} \\ \mathbf{B}_{II} \end{bmatrix} = \mathbf{S} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{F}_I \\ \mathbf{B}_I \end{bmatrix} \quad (2-8)$$

下面，我们来推导传输矩阵 $\mathbf{S}$ 的表达式。根据麦克斯韦方程组，光栅结构内部的光场分布可用其本征解的叠加表示，以界面 1 传入界面 1^+ 为例，由光场的连续性可将其场分布用散射矩阵表示为以下形式：

$$\begin{bmatrix} \mathbf{F}_{1^+} \\ \mathbf{B}_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T_{1,1^+} & R_{1^+,1} \\ R_{1,1^+} & T_{1^+,1} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{F}_1 \\ \mathbf{B}_{1^+} \end{bmatrix} \quad (2-9)$$

其中 $T_{1,1^+}$ 和 $R_{1,1^+}$ 分别为界面 1 传入界面 1^+ 的透射系数矩阵和反射系数矩阵， $T_{1^+,1}$ 与 $R_{1^+,1}$ 分别为界面 1^+ 传入界面 1 的透射系数矩阵和反射系数矩阵。透射系数矩阵 T 和反射系数矩阵 R 可根据麦克斯韦方程组，用光栅结构内部光场分布本征解的叠加来求得[13-14]。

在每个单元内部，不同的本征模在传播过程中都经历相变 $e^{-j\beta d}$ ，这样该单元两端的正、反向传播光场 $\mathbf{F}$ 和 $\mathbf{B}$ 同样也可以用一个散射矩阵相关联，以第一个单元为例：

$$\begin{bmatrix} \mathbf{F}_2 \\ \mathbf{B}_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{diag}(e^{-j\beta_1 d_{12}}) & 0 \\ 0 & \mathbf{diag}(e^{j\beta_1 d_{12}}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{F}_{1^+} \\ \mathbf{B}_{1^+} \end{bmatrix} \quad (2-10)$$

合并(2-9) (2-10)式有：

$$\begin{bmatrix} \mathbf{F}_2 \\ \mathbf{B}_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T_{1,2} & R_{2,1} \\ R_{1,2} & T_{2,1} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{F}_1 \\ \mathbf{B}_2 \end{bmatrix} \quad (2-11)$$

其中，

$$\begin{aligned} T_{1,2} &= \mathbf{diag}(e^{-j\beta_1 d_{12}}) \cdot T_{1,1^+} \\ R_{2,1} &= \mathbf{diag}(e^{-j\beta_1 d_{12}}) \cdot R_{1^-,1} \cdot \mathbf{diag}(e^{-j\beta_1 d_{12}}) \\ R_{1,2} &= R_{1,1^+} \\ T_{2,1} &= T_{1^-,1} \cdot \mathbf{diag}(e^{-j\beta_1 d_{12}}) \end{aligned} \quad (2-12)$$

对于每个单元都可以写出类似(2-9)的散射矩阵形式，再逐级合并可得到总的散射矩阵 $\mathbf{S}$ ，这样根据已知的正向入射光场 $\mathbf{F}_1$ 及反向入射光场 $\mathbf{B}_N$ ，可以求出整个光栅的光场分布，进一步得到耦合效率。由于散射矩阵仅有负指数项 $e^{-j\beta d}$ ，其数值稳定性要比传统的传输矩阵法好[12,15]，但是散射矩阵在计算过程中有着更多的矩阵相乘步骤。

2.5 完美匹配层 (PML) 吸收边界条件

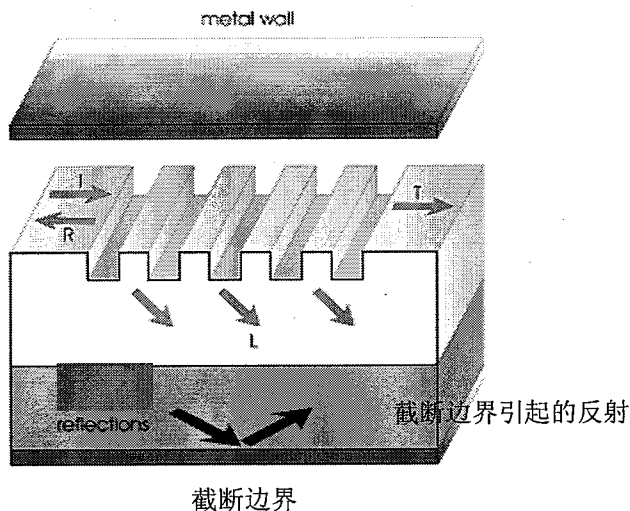


图 2-3 截断边界产生的反射

在利用计算方法进行电磁波传播模拟时,对于开放系统所需的计算空间为无限大,而在计算机模拟时需要在某处把空间截断,这样就会在计算空间截断处产生电磁波反射(如图 2-3 所示),所以必须在截断边界处设置吸收边界条件(Absorbing boundary condition, ABC),来有效消除非物理原因引起的入射波在边界上的反射。因此就需要加入吸收边界条件确保计算的精确。J.P.Berenger 在 1994 年提出了自由空间中的完美匹配层(perfect matched layers, PML)吸收边界条件[16]。PML 是一种假想的能产生电损耗和磁损耗的非物理媒介,可以使以任意角度和任意频率的平面电磁波入射到 PML 边界时,在分界面上产生的反射为零,电磁波在 PML 介质中传播时幅度呈指数型衰减。我们描述平面波的公式为:

$$e^{-jk_0nz} \quad (2-13)$$

在常规 PML 中假设折射率 n 为复数,因此使平面波衰减被 PML 吸收。这里假设 z 为复数,不难发现它也可以使平面波衰减,而且不会产生任何与之相关联的反射现象[17],下面对此进行详细推导与证明。

如图 2-4 所示,假设一平面二维波导由芯层、包层、金属覆盖层组成(只画出了上半部,下半部与此对称,未画出),包层的厚度为 d_0 ,折射率为 n 。在包层和金属覆盖层之间置入 PML,厚度为 $d_{l, \text{re}} - jd_{l, \text{im}}$,折射率为 n 。首先定义一个变量 $\bar{z}$,它由变量 z 映射而来:

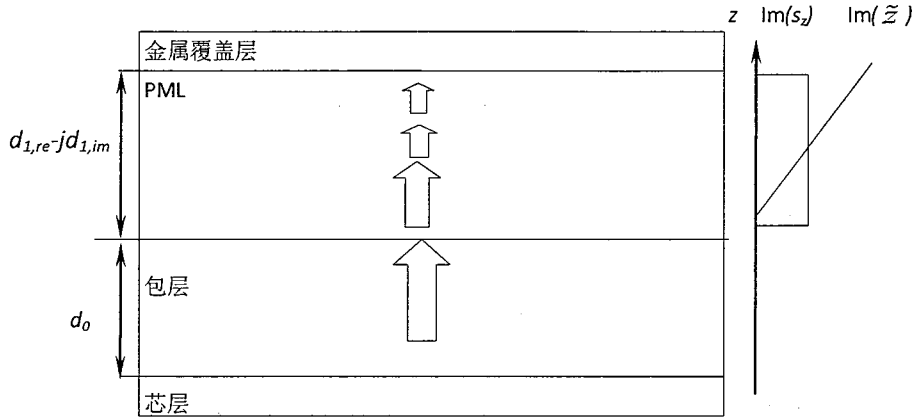


图 2-4 边界条件 PML 的示意图

$$\tilde{z} = \int_0^z s_z(z') dz' \quad (2-14)$$

作为一个实例，在图 1 中，在各处 $\text{Re}(s_z)=1$ ，在 PML 中 $\text{Im}(s_z)=-a$ ，而在其他各处 $\text{Im}(s_z)=0$ 。这使得除了在 PML 中， $\tilde{z}$ 均等于 z 。在 PML 中， $\tilde{z}$ 的虚数部分是线性增长的。(2.6.2) 式中的积分保证了 $\tilde{z}$ 平缓地变化，即使 s_z 是不连续的。将麦克斯韦方程拓展到复空间中，方程的形式是相同的，但坐标值可以是复数。

$$\begin{aligned} \tilde{\nabla} \times \mathbf{E} &= -j\omega\mu\mathbf{H} \\ \tilde{\nabla} \times \mathbf{H} &= j\omega\mu\mathbf{E} \end{aligned} \quad (2-15)$$

其中，微分算符

$$\tilde{\nabla} = \frac{\partial}{\partial x} \mathbf{u}_x + \frac{\partial}{\partial y} \mathbf{u}_y + \frac{\partial}{\partial \tilde{z}} \mathbf{u}_{\tilde{z}} \quad (2-16)$$

对于均匀介质，麦克斯韦方程的解是平面波。平面波在均匀介质中传播显然不会产生反射。同时， $\tilde{z}$ 坐标的虚数部分吸收了在其中传播的波。这可以进行更严格的证明，复空间中的波动方程仍然有相同的形式：

$$\tilde{\nabla}^2 \phi + k_0^2 \phi = 0 \quad (2-17)$$

联立 (2.6.2) 式可推导出

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{1}{s_z} \frac{\partial}{\partial z} \frac{1}{s_z} \frac{\partial}{\partial z} + k_0^2 \right) \phi = 0 \quad (2-18)$$

假设 $\phi = e^{-jk_x x} e^{-jk_y y} \tilde{\phi}(z)$ ，可得

$$\left(\frac{1}{s_z} \frac{\partial}{\partial z} \frac{1}{s_z} \frac{\partial}{\partial z} + k_z^2 \right) \tilde{\phi} = 0 \quad (2-19)$$

其中, $k_z^2 = k_0^2 - k_x^2 - k_y^2$ 。进一步假设 $\tilde{\phi}(z) = e^{\pm j f(z)}$, 并且 $f'(z) = k_z s_z(z)$ 。

则

$$\frac{1}{s_z} \frac{d}{dz} \tilde{\phi}(z) = \pm j k_z \tilde{\phi}(z) \quad (2-20)$$

$$\frac{1}{s_z} \frac{d}{dz} \frac{1}{s_z} \frac{d}{dz} \tilde{\phi}(z) = -k_z^2 \tilde{\phi}(z) \quad (2-21)$$

上式满足等式 (2.6.8)。因此, 方程式 (2.6.8) 的最终解为

$$\tilde{\phi}(z) = A e^{-jk_z \int_0^z s_z(z') dz'} + B e^{+jk_z \int_0^z s_z(z') dz'} \quad (2-22)$$

需要注意到的一点是 (2.6.11) 式的第一项和第二项均满足 (2.6.8) 式。这意味着前进波和后退波是独立的。也就是说, 前进波与后退波之间没有耦合, 其中一个的存在不会激发产生另一个, 并且由于 PML 层与包层折射率相同, 因此它们在传播过程中不论是其波长、入射角与偏振方向如何都不会发生反射。

2.6 介电常数的计算模型分析

介电常数的计算模型一直受到人们的关注, 被广泛应用到各种模拟计算中。色散材料中总的介电响应可以用相对介电常量来描述, 它是电介质物理性质最重要的参数之一, 也称介电常数。通常电介质有两种类型: 无极分子电介质与有极分子电介质。无极分子电介质处在外电场中, 分子的正负电荷中心将发生相对位移形成电偶极子, 产生沿外场分布的电偶极矩。而有极分子的电介质处在外电场中, 介质中的分子偶极子受到外电场的力矩作用, 从而发生取向, 使其偶极矩总和不再为零, 因此出现了介质的极化。在不同介质中, 极化对外电场的响应表现

为不同的类型。对金属而言，电介质中带电粒子在外场作用下产生极化过程所受到的作用力，可以看作是把带电粒子吸向平衡位置的恢复力，这些力与电荷位移成正比是线性弹性力，由于存在弹性恢复力，所以使相互作用具有共振特性。若外场的频率等于带电粒子的固有振动频率就会产生共振，这时极化对外电场的响应为共振型极化，但如果外电场的频率低于带电粒子的共振频率，粒子所受恢复力不再是弹性的，而是具有黏滞性的特点，这是一个不可逆的热力学过程。当施加或撤除外电场时，偶极子趋向迟缓集合，或电极附近离子空间电荷迟缓积聚，它们的过程都是缓慢的趋向平衡态，称为介质弛豫。这种极化类型就称为弛豫型极化。在外场的作用下，介质的相对介电常数是综合反映电极化过程的宏观物理量，是频率的函数。当频率增加时，分子固有电矩的转向逐渐落后于外场的变化，相对介电常量取复数形式：

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)$$

下面具体介绍Drude、Debye、Lorentz介电模型。

2.6.1 Drude 模型

二十世纪初，P. K. Drude 提出一种电子理论，他假设导体中一部分电子可以穿过晶格自由移动，这些电子遵守Maxwell-Boltzmann统计和牛顿运动定律[18]。Drude模型一般用在金属导体材料中，当频率超过材料的本征频率时，所有电子都还可看成自由电子，形成等离子体。Drude模型忽略晶格势和电子之间的相互作用，电子在外界电磁场的作用下产生震荡，并且电子的运动由于和电磁场间的相互作用而损失能量。该相互作用通过碰撞频率 γ 来描述。由相对介电常量定义可得

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \quad (2-23)$$

其中, ω_p 被称为金属的等离子频率, ε_∞ 为 $\omega \gg \omega_p$ 时的 ε 值。

金属的复介电常数用 $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)$ 表示, 则

$$\begin{cases} \varepsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \\ \varepsilon_2(\omega) = \frac{\omega_p^2 \gamma}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)} \end{cases} \quad (2-24)$$

根据频率的取值范围, 我们分为以下几种情况讨论:

1. $\gamma \ll \omega < \omega_p$ 时, $\varepsilon_1 \approx 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} < 0$, $\varepsilon_2(\omega) = \frac{\omega_p^2 \gamma}{\omega^2} \ll |\varepsilon_1|$, 得到 $k \gg n$, 波矢的表达

式为 $k = \frac{\omega}{c} \tilde{n} = \frac{\omega}{c} (n + i\kappa)$, 电磁波传播因子 $e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)}$ 中, k 主导, 即电磁波会呈指数

衰减无法深入金属内部。对于金属 Au、Ag、Cu 等, ω_p 在紫外光范围且 $\gamma \ll \omega_{\text{可见光}}$,

即在可见光波段均符合上述条件。

2. $\omega > \omega_p$ 时, $0 < \varepsilon_1 < \varepsilon_\infty$, $\varepsilon_2 \approx 0$ 金属表现为介质特性, 电磁波可穿透金属内部。

将上述讨论用表 2-1 表示, 即得到在不同的入射光频率下金属的性质。

波段	电磁波入射	金属的性质
微波至远红外 波段（低频段）	电磁波不能穿透金属，仅 能穿透表面很薄的一部分	金属具有强反射性，可视 为完美导体。
近红外至可见 光波段	电磁波透入金属部分逐渐 加大	引起更多损耗
紫外波段	电磁波能在其中穿过	获得介质的性质，但仍有 很大的损耗

表 2-1 金属的光学性质

图2-5为银的介电常数实验测量值(黑线)[19]与Drude模型(蓝色)计算值之间的比较[20]。左图与右图分别为介电常数的实部与虚部，右图中的阴影表示实验测量值中的不确定性，可以看到银的介电常数实验测量值与Drude模型计算值吻合的较好。

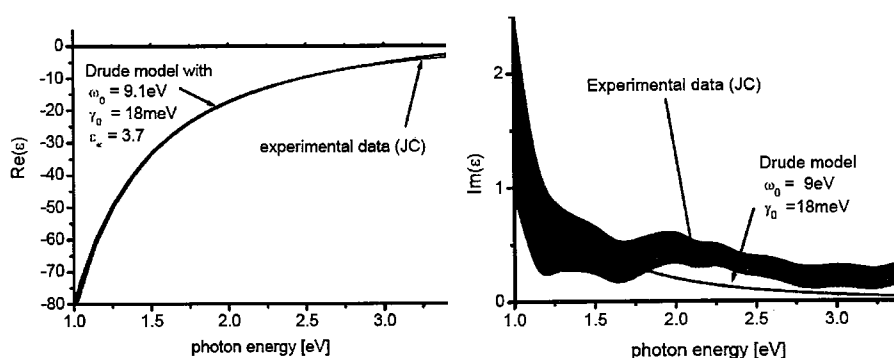


图2-5 银的介电常数实验测量值(黑线)[19]与Drude模型计算值(蓝线)[20]的比较。左图与右图分别为介电常数的实部与虚部。

2.6.2 Debye 模型

对于普通介质，根据Debye 的观点，偶极子弛豫纯粹是一个无弹性的黏性

过程, 主要考虑固有电偶极矩在外场作用下的取向极化, 得复介电常量的表达式为

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} - \frac{\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_s}{1 + i\tau\omega} \quad (2-25)$$

其中, ε_{∞} 为光频介电常量, ε_s 为稳态介电常量, τ 是弛豫时间。传统 Debye 模型一般适用于气体和极性分子的稀释溶液。对于金属导体材料, 当频率远远超过材料的本征频率时, 所有电子都可以看成自由电子, 形成等离子体, 此时需 debye 模型进行修正可达到较好的拟合, 表达式如下:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} - \frac{\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_s}{1 + i\tau\omega} + \frac{\sigma}{i\omega\varepsilon_0} \quad (2-26)$$

其中, ε_{∞} 为光频介电常量, ε_s 为稳态介电常量, τ 是弛豫时间, σ 为电导率。

图 2-6 金和银的介电常数实验测量值(方形代表介电常数的实数部分, 菱形代表虚数部分)[21]与修正的 debye 模型计算值(实线)[22]之间的比较。金与银的介电常数实验测量值与修正的 debye 模型计算值计算值的均方根误差分别为 0.49% 和 3.52%, 取得了较一致的结果[22]。

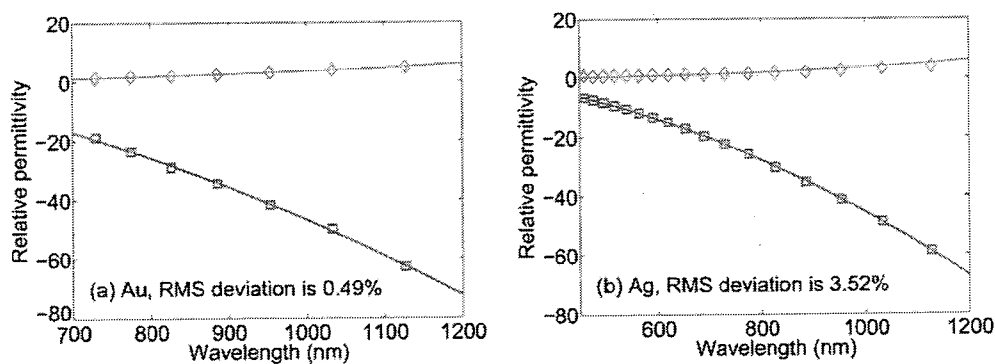


图 2-6 金和银的介电常数实验测量值(方形代表介电常数的实数部分, 菱形代表虚数部分)[21]与修正的 debye 模型计算值(实线)[22]之间的比较。

2.6.3 Lorentz 模型

十九世纪物理学家Lorentz 就原子域内相互作用提出了Lorentz 模型,他认为原子核和电子是通过弹性机制互相联系,电荷间通过电场作用产生弹性力,在电荷作用区域内,电子通过弹性力被吸引或者被弹开,模型表达式如下

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{(\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_s)\omega_0}{\omega_0^2 - \omega^2 + 2i\Gamma\omega} \quad (2-27)$$

其中, ε_{∞} 为光频介电常量, ε_s 为稳态介电常量, ω_0 为本征频率, Γ 为阻尼系数。Lorentz 模型属于共振型机制,适用于普通介质[23]。

2.7 金属的表面等离子体特性

等离激元是与电磁场耦合的金属自由电子的集体振荡。表面等离子体是沿导体表面传播的波,又叫做金属表面的等离子波(surface plasmon wave, SPW)。它是表面自由电子振动与光的电磁场的共振相互作用形成的,在垂直于导体面的方向上指数衰减。具体来说,金属表面等离激元振荡是在库仑作用参与下的高粒子数密度系统中电子的集体运动。表面等离激元就是电子集体振荡的能量量子,由于库仑势场是纵场,因此等离体子是纵振动的量子。金属中的自由电子在外界电磁场的作用下相对于金属中的正离子发生相对位移,带来电子密度的重新分布,从而在金属表面的两边产生电场(如图 2-7 所示),金属表面激发的表面等离子体,在垂直于界面的方向上呈指数衰减,在界面的附近局域场强非常大。

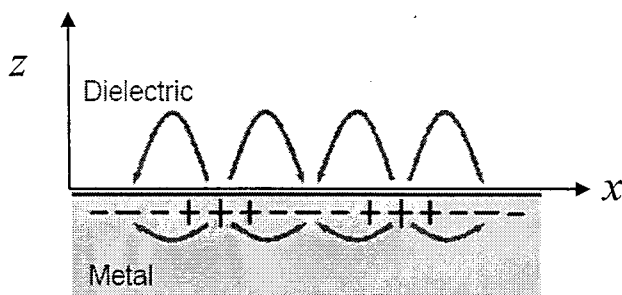


图2-7 金属与介质交界面上的表面等离子体

下面我们从电磁波基本方程推导金属与介质交界面上的表面等离子体色散方程。在图 2-7 中结构， $z < 0$ 的空间为金属，介电常数为 ε_1 。 $z > 0$ 空间为介质，介电常数为 ε_2 的。电场在 z 方向呈指数衰减，表面等离子体沿着 x 方传播。

1. 对于 TM 波，有

$$H_y = \begin{cases} A_2 e^{i\beta x} e^{-k_2 z} & (z > 0) \\ A_1 e^{i\beta x} e^{-k_1 z} & (z < 0) \end{cases}$$

其中， k_1 和 k_2 是在两种媒质中垂直于界面的波矢量。

当 $z = 0$ 时，由连续性可得， $A_1 = A_2$ ，且电位移矢量 $D_{z1} = D_{z2}$ ，得 $\frac{k_1}{k_2} = -\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}$ 。

由于 $k_1, k_2 > 0$ ，因而需满足 $\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} < 0$ ，即 $\varepsilon_1 < -\varepsilon_2$ 时，存在表面等离子波。

2. 对于 TE 波，有

$$E_y = \begin{cases} A_2 e^{i\beta x} e^{-k_2 z} & (z > 0) \\ A_1 e^{i\beta x} e^{-k_1 z} & (z < 0) \end{cases}$$

$z = 0$ 时，由于 E_y 与 H_x 在交界面的连续性，即电磁场切向连续的边界条件要求，可得 $A_1(k_1 + k_2) = 0$ 。因为 $k_1, k_2 > 0$ ，所以 $A_1 = 0$ ，那么 $A_1 = A_2 = 0$ ，所以 TE 波没有表面波。

因此，金属跟介质之间的表面等离子波形式为 TM 偏振，且表面等离子体只能以 TM 偏振的形式存在。对于横电波 TE 而言，根据边界条件，TE 波的电场在界面上必须保持连续，即 TE 波在界面上不会产生感应电荷，也就不可能激发表面电波，所以只能以横磁波 TM 激发表面等离子波。具体来说，这种单偏振性质是因为描述金属的电学性质的介电常数 ε 与磁学性质的磁导率 μ 两者中，在光波段时只有介电常数 ε 为负，而磁导率 μ 在光波段通常与真空中的磁导率一样，金属不表现磁性。金属的特性与介电常数 ε 和磁导率 μ 的关系如表 2-2 所示。

性质	介电常数与磁导率	材料特性
在光波段中	$\varepsilon < 0, \mu > 0$	金属磁导率和真空一致, 不表现磁性。表面有 TM 偏振, 无 TE 偏振。
	$\varepsilon > 0, \mu < 0$	该材料表面上有 TE 偏振, 无 TM 偏振。
	$\varepsilon < 0, \mu < 0$	同时存在 TE 偏振和 TM 偏振的表面波, 负折射材料。
结论	TM 偏振与材料的电学性质有关, TE 偏振与材料的磁学性质有关。	

表2-2 金属在光波段的特性

下面我们来分析表面等离子体的性质。金属的复介电常数的表达式为

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)$$

光波段中, 金属的折射率仍为复数, 定义 $\tilde{n} = n + i\kappa = \sqrt{\varepsilon(\omega)}$, 得到

$$\begin{cases} n = [\frac{1}{2}(\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} + \varepsilon_1)]^{\frac{1}{2}} \\ \kappa = [\frac{1}{2}(\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} - \varepsilon_1)]^{\frac{1}{2}} \end{cases}$$

由2.7.1节的分析和表2-2中的表面等离子体的存在条件, 可得金属表面等离

子体频率 $\omega_{sp} = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \varepsilon_2}}$, 其中 ω_p 为金属的等离子体频率。

定义表面等离子体的波长为 $\lambda_{sp} = \frac{2\pi}{k_{sp}}$, 表面等离子体的有效折射率为

$n_{eff} = \frac{k_{sp}}{k_0}$ 。在忽略金属损耗时, 光频率与金属特性的关系有如下几种情况:

1. $\omega > \omega_p$ 时, 金属表现为介质特性, 光能穿过金属传播但与在普通介质中

传播不同，是一种辐射模。

2. $\omega < \omega_{sp}$ 时，表面等离子体存在金属与介质的界面上。表面等离子体的波矢比介质中大，因此激发表面等离子体要光栅或棱镜耦合结构辅助，来满足波矢匹配条件。常用于集成光子器件。这时其色散关系如图 2-8 所示，该图中的黑线为介质中的光色散曲线。从图上可见，表面等离子体的波矢比介质中的光波矢要大，因此，激发表面等离子体需要光栅或者棱镜耦合结构来辅助，从而满足波矢匹配条件。当光频率比较小时，表面等离子体的波矢与于介质中光波的波矢大小比较接近；当光频率增大时，两者之间的差距也逐渐拉大。

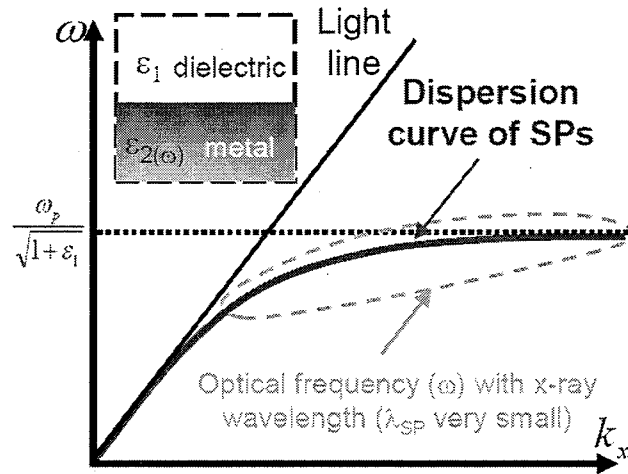


图2-8 表面等离子体的色散曲线

3. $\omega \sim \omega_{sp}$ 时， k_{sp} 迅速增大， λ_{sp} 便很小， n_{eff} 将变得非常大，可以提高 2-3 个数量级。理论上由于衍射决定的光学分辨率 $\frac{\lambda}{2n_{eff}}$ 会小至纳米尺度。因此可以利用表面等离子体，在光频率还在可见波段时，获得波长达到 x 射线的数量级甚至更小，从而表面等离子体可以用于获得高分辨率的成像，如图 2-8 所示（图中红色虚线圈出的区域）。

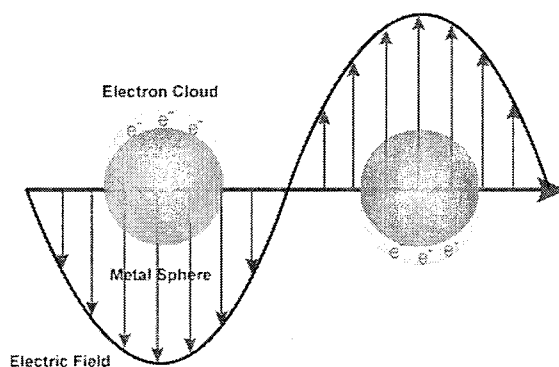


图 2-9 金属纳米粒子的表面等离子体

金属纳米粒子的光学性质一直引人瞩目，其最重要的特征之一是存在表面等离子体，如 2-9 所示[24]。金属纳米粒子的表面等离子体不同于金属面的表面等离子体，差别如下：一方面，这种表面等离子体是局域的，而金属面上的表面等离子体是传播的，它在粒子表面产生很大的场增强，其共振行为不仅与金属的本身性质如体等离子频率有关，也与粒子的大小和几何特征有关。图 2-10 为电子束蚀刻法加工的 Au 纳米粒子[25]，分别用不同频率的光照射。左图为扫描电镜显微镜照片，右图为暗场显微镜图片，可以观察到当金纳米粒子的大小形状不同时，等离共振频率也不相同。

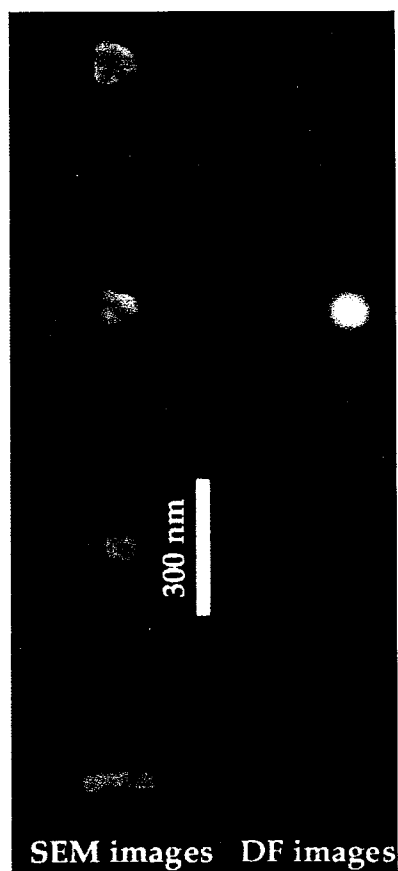


图 2-10 大小形状不同的 Au 纳米粒子的共振频率

另一方面，局域表面等离子体的激发不需要使用各种耦合技巧，光束与粒子的电磁相互作用就可以直接激发起这种共振模式。当入射光作用于纳米金属颗粒时，颗粒内的自由电子将会随着光场的振荡产生集体振荡运动。当电子云偏离原子核的时候，电子云与原子核之间的库仑相互作用将会牵引这些偏移的电子云向原子核靠近，由此就产生了电子云在原子核附近产生振荡。若入射光场的频率与自由电子的固有振荡频率相同时，甚至一个小的入射场也可以引起大的共振，如图 2-11 所示[26]。

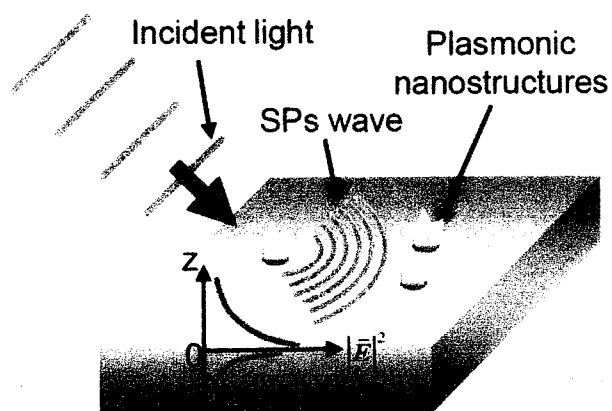


图 2-11 金属纳米结构激发表面等离子激元共振产生局域场增强

由于金属纳米颗粒的等离子体振荡频率位于或接近光频, 并且具有模式压缩、场增强等新颖的光学性质, 因此有广阔的应用前景。近年来可控尺寸、形状的纳米金属颗粒的制备、表征及独特的等离子体光学性质引起了诸多领域的高度关注 (图 2-12) [24], 在单分子探测、表面增强拉曼散射和纳米光子学等方面具有广泛的应用[27-32]。

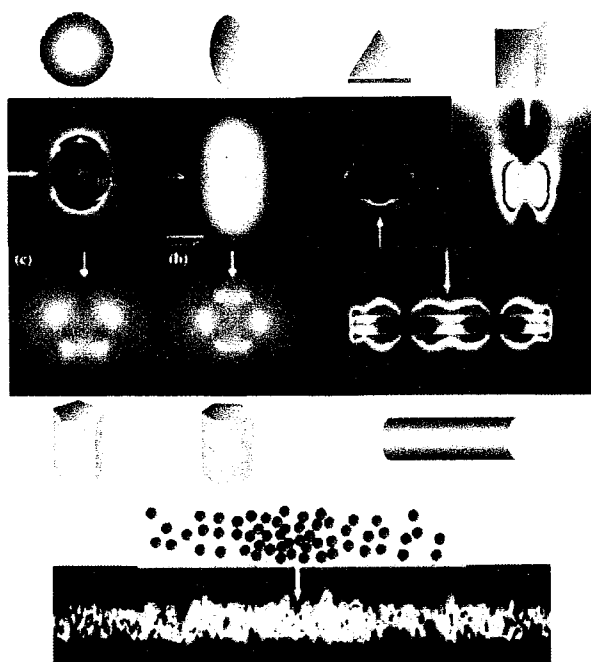


图 2-12 各种形状的纳米金属颗粒的等离子体光学特性

2.8 本章小结

本章主要介绍了本文中用到的电磁场计算方法：有限时域差分法（FDTD）方法，有限元（FEM）方法，严格耦合波（RCWA）方法，以及传输矩阵和散射矩阵法。这些数值计算方法各有其优点，在相关领域里发挥着重要作用。研究电磁波散射问题，研究涉及的系统通常具有复杂的几何外形和介质分布，正确给出边界条件和介电常数，才能够准确描述电磁场与微结构的相互作用。这里我们运用了完美匹配层（PML）吸收边界条件并进行了介电常数的计算模型分析：Drude 模型、Debye 模型和 Lorentz 模型，并对金属的表面等离子体特性进行了分析。

2.9 参考文献

- [1] 葛德彪，闫玉波.电磁波时域有限差分方法，西安：西安电子科技大学出版社，2002.
- [2] Yee K S. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell equations in isotropic media. IEEE Trans., 1966, AP-14(3):302=307.
- [3] Allen Taflove and Susan C. Hagness (2005). Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Method, 3rd ed. Artech House Publishers
- [4] K. Kunz and R. Luebbers, The Finite Difference Time Domain Method for Electromagnetic, 1993, CRC Press Catalog Number 8657, 496.
- [5] K. Chamberlin and L. Gordon, "Modeling Good Conductors Using the Finite Difference.
- [6] 王长清，现代计算电磁学基础，北京：北京大学出版社，2005.
- [7] 王秉中，计算电磁学，北京：科学出版社，2002.
- [8] Clough R.W. The Finite Element Method in Plane Stress Analysis. Conference Electronic Computation (2nd). Pittsburgh: ASCE, 1960.
- [9] M.G. Moharam, T.K. Gaylord, Rigorous coupled-wave analysis of metallic surface-relief gratings, J. Opt. Soc. Am. A, 3 (1986) 1780-1787.

- [10] M.G. Moharam, E.B. Grann, D.A. Pommet, T.K. Gaylord, Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings, *J. Opt. Soc. Am. A*, 12 (1995) 1068-1076.
- [11] P. Lalanne, G. Michael Morris, Highly improved convergence of the coupled-wave method for TM polarization, *JOSA A*, Vol. 13, Issue 4, pp. 779-784 (1996)
- [12] L. Li, New formulation of the Fourier modal method for crossed surface-relief gratings, *J. Opt. Soc. Am. A*, 14 (1997) 2758-2767.
- [13] E. Noponen, J. Turunen, Eigenmode method for electromagnetic synthesis of diffractive elements with three-dimensional profiles, *J. Opt. Soc. Am. A*, 11 (1994) 2494-2502.
- [14] P. Bienstman, H. Derudder, Analysis of cylindrical waveguide discontinuities using vectorial eigenmodes and perfectly matched layers, *IEEE Tans. Microwave Theor. Tech.* (2001)49. 349
- [15] M.G. Moharam, D.A. Pommet, E.B. Grann, T.K. Gaylord, Stable implementation of the rigorous coupled-wave analysis for surface-relief gratings: enhanced transmittance matrix approach, *J. Opt. Soc. Am. A*, 12 (1995) 1077-1086.
- [16] J.P. Berenger. A perfectly matched layer for the absorbtion of electromagnetic waves, *Journ. comput. Phys.*(1994) 114. 185
- [17] P. Bienstman, R. Baets, Waveguide and resonator modeling based on vectorial eigenmode expansion and perfectly matched layer boundary conditions. *Progress In Electromagnetics Research Symposium - PIERS 2000*. United States, 175,2000.
- [18] Drude, P. (1900). *Zur Elektronentheorie der Metalle*. *Annalen der Physik*. 1, 566.
- [19] Johnson, P. and Christy, R. (1972). Optical Constants of the Noble Metals. *Phys. Rev. B*. 6,4370.
- [20] C Sönnichsen. Plasmons in metal nanostructures(2001). *Dissertation der Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians-Universität München*.
- [21] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic, 1985).

- [22] Gai H, Wang J, Tian Q (2007) Modified Debye model parameters of metals applicable for broadband calculations Appl. Opt. 46:2229
- [23] Oughstun E K, Cartwright A N. The Lorenz formula and the Lorentz model of dielectric dispersion. Optics Express, 2003, 11(13) : 1 5411545.
- [24] K.Kelly, E. Coronado, L. L. Zhao, G. Schatz. The Optical Properties of Metal Nanoparticles: The Influence of Size, Shape, and Dielectric Environment, J. Phys. Chem. B 107 668 (2003).
- [25] W. A. Murray, W. L. Barnes, Plasmonic Materials, Adv. Mater. 19, 3771 (2007).
- [26] J. P. Kottmann, and O. J. F. Martin, Plasmon resonant coupling in metallic nanowires, Optics Express. 4 June 2001; 8(12): (2001).
- [27] J. F. Li, Y. F. Huang, Y. Ding, Z. L. Yang, S. B. Li, X. S. Zhou, F. R. Fan, W. Zhang, Z. Y. Zhou, Y. W. De, B. Ren, Z. L. Wang, and Z. Q. Tian, Shell-isolated nanoparticle-enhanced Raman spectroscopy, Nature 464, 392-395 (2010).
- [28] P. Zijlstra, J. W. M. Chon, and M. Gu, Five-dimensional optical recording mediated by surface plasmons in gold nanorods, Nature 459, 410-413 (2009).
- [29] S. A. Maier, P. G. Kik, H. A. Atwater, S. Meltzer, E. Harel, B. E. Koel, and A. A. G. Requicha, Local detection of electromagnetic energy transport below the diffraction limit in metal nanoparticle plasmon waveguides, Nature Material, 2, 229-232 (2003).
- [30] S. A. Maier, P. G. Kik, and H. A. Atwater, Optical pulse propagation in metal nanoparticle chain waveguides, Phys. Rev. B 67, 205402 (2003).
- [31] J. P. Kottmann, O. J. F. Martin, D. R. Smith, and S. Schultz, "Plasmon resonances of silver nanowires with a non-regular cross section," Phys. Rev. B 64, 235402/235401-235410 (2001).
- [32] W. Rechberger, A. Hohenau, A. Leitner, J. R. Krenn, B. Lamprecht, and F. R. Aussenegg, Optical properties of two interacting gold nanoparticles, Opt. Comm. 220, 137-141 (2003).

第三章 蝴蝶结金属纳米天线的光学特性和优化设计

等离子光学在过去的十年中迅速发展, 金属纳米结构成为控制电磁场局域增强的关键因素[1]。由金属构成的纳米光学天线结构, 可以在可见光和近红外波段激发出表面等离激元共振。在纳米量级的空间区域中, 光场振幅有若干个数量级的增加, 产生强烈的电磁场增强效应[2]。超快激光的出现为人类充分探索微观超快现象及研究强场物理提供了前所未见的实用手段和发展机遇。如利用其极高的峰值功率开展极端条件下的研究。聚焦后的超快激光脉冲可以剥离原子中的电子, 通过激光脉冲控制, 被电离出来的电子返回母离子时发生碰撞结合, 产生具有超宽频谱的高次谐波 (high-harmonic generation, HHG) [3], 促进了新的 X 射线光源、激光驱动的离子加速器和极紫外 (extreme ultraviolet, XUV) 波段的阿秒脉冲[4]的研究。这种新的 XUV 光源对基础科学研究, 观测及控制电子在复杂体系中的运动有着深远的影响, 不仅是对单电子进行控制, 也包括对电子集体运动的相干控制, 即表面等离激元。

利用超快激光激发金属纳米结构的表面等离激元主要与两个因素有关: 一个是纳米结构的几何形状, 另一个是纳米结构表面激发的等离共振模式, 因此优化设计纳米结构的参数将会显著地影响到电磁场增强大小和激发的电磁场振荡模式。理解及掌握在超快激光中纳米体系中的粒子的集体振荡, 对下一代纳米光子学器件有着重要的意义, 这将有利于发展基于纳米结构的表面等离激元增强的新型 XUV 及 X 射线光源[3], 以及超高速全光器件[5]。

3.1 蝴蝶结金属纳米天线结构的光学特性

金属纳米天线的出现为少周期的激光脉冲及高次谐波的应用提供了一个非常有前景的发展方向。在这些应用当中, 利用金属纳米粒子构成的光学天线产生超快电磁场响应, 能使入射光的强度增大若干个数量级。对于高次谐波来说, 以

宽带飞秒激光振荡器为入射光，其聚焦后的能量可达到 10^{11} W/cm^2 ，利用纳米天线的表面等离子激元共振放大两个数量级即可达到产生高次谐波的阈值，并且不会对纳米结构产生破坏。在韩国 Kim 小组[3]的工作中，他们就采用这样的方法，利用金属蝴蝶结结构对激光脉冲的放大作用，观察到了高次谐波信号。同时，这种方法可以保持入射光的高重复频率，产生 MHz 的 XUV 光源。

金属纳米天线结构由于其独特的光学以及电磁响应特性，一直以来在表面等离子激元光学中都是研究的热点。它们可以用胶体化学[6]或微纳加工刻蚀[2]的方法制造出来。在可见光和红外波段的表面等离子激元共振增强特性[7-9]使它们有相当强的应用潜力。由这些金属构成的纳米光学天线，其局域表面等离子激元共振可以产生远高于激励源的光强，并且能量高度集中。因此这些纳米结构的表面等离子激元器件是操纵具有高能量且空间上高度集中的电磁场的关键因素。它们能把光的能量控制在纳米尺度上[10-12]，在光学物理上开辟了超越衍射极限的新领域，被广泛地运用在近场扫描光学显微镜[13-14]、光通信集成器件[15]、纳米量级的高密度信息存储[16]及生物传感器方面[17-18]。

我们从理论上研究了在超快激光脉冲下蝴蝶结 (bowtie) 纳米结构天线的光学特性，模拟了频域和时域上表面等离子激元共振。比较了单个和耦合的，对称和不对称金纳米蝴蝶结天线，优化设计其参数使其具有超宽的共振光谱，有利于在产生高次谐波的应用中。由于不对称的蝴蝶结天线支持两个共振峰，因此不对称结构的引入，使其对共振波长有了选择性。其双频共振特性也可应用在双波长的实验上，如泵浦-探测实验，选择性地增强不同波长频率的光。

a.

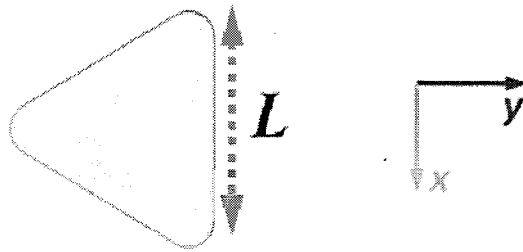


图 3-1 (a) 单个三角形金纳米结构示意图

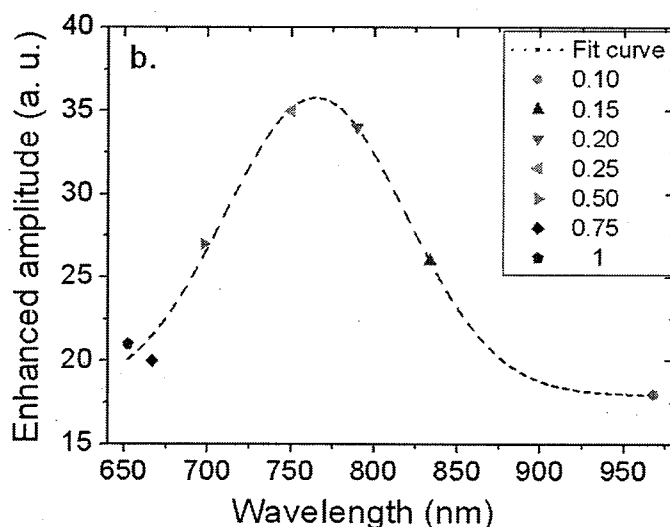


图 3-1 (b) 单个三角形金纳米结构的等离共振峰随波长变化的函数关系

首先, 我们研究单个三角形金纳米结构的光学性质, 如图 3-1 所示。所采用的材料为贵金属金, 三角形的 y 方向的长度用 T 表示, 长度为 100nm 。 x 方向的长度用 L 表示, 初始长度为 100nm 。 z 方向的厚度为 20nm 。

我们采用了有限元法(finite element method, FEM) [19]计算金属粒子的光学响应。金的介电常数采用了 Palik 的实验数据[20]。在我们的理论模型中, 金属纳米粒子的外界环境是真空 (折射率为 1.0), 总的计算区域是 $1 \times 1 \times 1\ \mu\text{m}^3$, 采用了厚度为 500nm 的完美匹配层(perfect matched layer, PML)作为边界吸收条件 [21]包围在计算区域的外面。为确保对近场天线的计算精度, 我们划分的三维计算单元网格为 $1 \times 1 \times 1\text{nm}^3$ [22]。

我们优化的目标有三个: 一、宽的共振光谱, 在 800nm 附近有着尽可能宽的表面等离共振光谱, 这是为了与 Ti: Sapphire 红外飞秒振荡器发射的激光波长一致, 以便可以得到较宽的频谱增强范围; 二、高的场增强能力, 支持尽可能高的表面等离激元增强因子; 三、大的增强区域, 在足够大的增强区域能满足一定的增强幅度, 如满足产生 HHG 的强度阈值, 场增强因子达到 35 比较理想, 可以使入射场的强度增大 10^2 。

我们研究了变化单个三角形金纳米结构 x 方向的长度, 即变化 L 的大小时, 得到不同的等离子体共振谱。根据优化目标, 我们将 L 从 100nm 变化到 10nm ,

即变化比例 ρ 从 1 变化到 0.1，观察该纳米结构的表面等离子共振光谱。为计算单个三角形金纳米结构对每个波长的共振谱，我们分别以归一化的每个频率的平面波为入射源，由上方照射在三角形上，极化方向为 y 方向。在距离三角形纳米结构 5 nm 的 y 方向上探测所激发出的表面等离子激元。从图 3-1 中，可以看到 ρ 从 1 减少到 0.1 时，其共振峰有着明显的红移，同时场增强因子先迅速增加，在 $\rho=0.25$ 出现了最高的场增强因子 35，随后迅速降低。变化比例 $\rho=0.25$ 时，共振峰位置 750nm 与飞秒振荡器的中心波长 800nm 比较吻合。

3.2 对称的纳米蝴蝶结天线的光学特性

尽管单个的椭球可以得到我们需要的表面等离子共振光谱，但其场增强因子和增强区域十分有限，以致限制了其应用范围。为了得到更高的场增强因子和更大的场增强区域，我们进一步考察了由单个的三角形纳米结构组成的对称的纳米蝴蝶结天线。

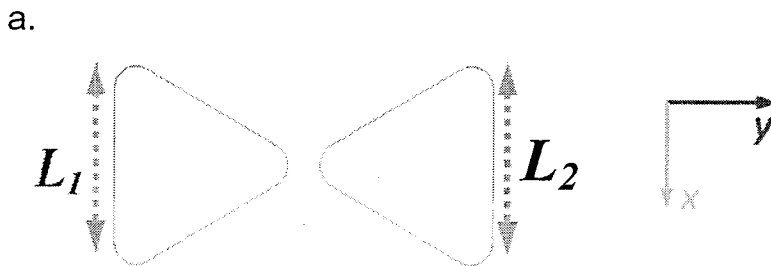


图 3-2 (a) 对称蝴蝶结纳米天线示意图；

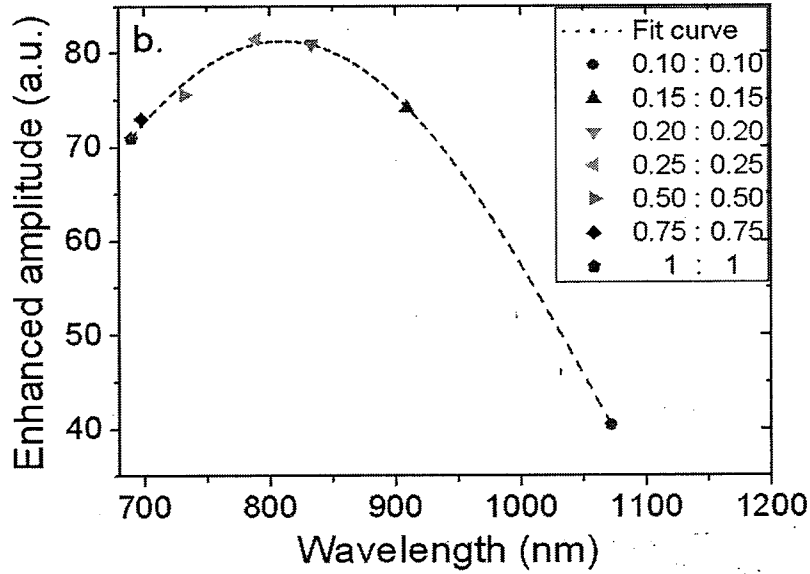


图 3-2 (b) 对称蝴蝶结纳米天线的等离共振峰随波长变化的函数关系。

对称的纳米蝴蝶结天线如图 3-2 所示。对于构成蝴蝶结天线的每个三角形来说，由于是对称结构，y 方向的长度 T 均为 100 nm；左右两个三角形 x 方向的长度均用 L 表示，初始长度为 100 nm；z 方向的厚度为 20 nm。三角形呈端点对端点对称放置，两个三角形端点间的空隙为 10 nm。

我们将左右两个三角形 x 方向的长度 L 从 100 nm 变化到 10 nm，即变化比例 ρ 从 1 变化到 0.1，观察该纳米结构的表面等离共振光谱。以归一化的每个频率的平面波为入射源，由上方照射在三角形上，极化方向为 y 方向。在对称蝴蝶结纳米天线空隙的中心探测所激发出的表面等离激元，得到的等离共振峰随波长变化的函数关系如图 3-2 所示。当 ρ 从 1 减少到 0.1 时，其共振峰有着明显的红移，同时场增强因子先是缓慢地增加，在 800 nm 处达到最大值，随后迅速降低。 $\rho=0.25$ 时出现了最高的场增强因子 80，其共振峰 800 nm 与飞秒振荡器的中心波长一致。

3.3 不对称的蝴蝶结天线的光学特性与优化设计

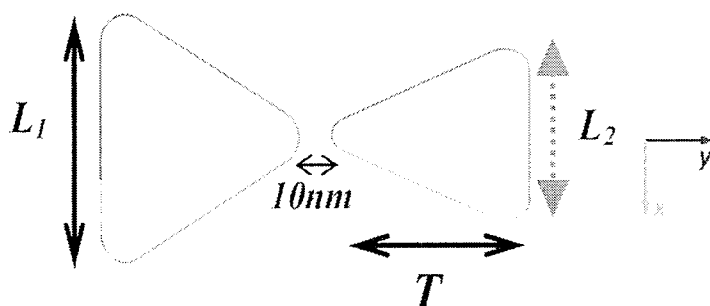


图 3-3 不对称蝴蝶结纳米天线结构

不对称的纳米蝴蝶结天线如图 3-3 所示。对于构成蝴蝶结天线的三角形，y 方向的长度 T 仍然为 100 nm；左右两个三角形 x 方向的长度分别用 L_1 和 L_2 表示，初始长度为 100 nm；z 方向的厚度为 20 nm。三角形呈端点对端点对称放置，两个三角形端点间的空隙为 10 nm。

L_1 取 100 nm 固定不变，将 L_2 从 100 nm 变化到 10 nm，即变化比例 ρ 从 1 变化到 0.1，观察该纳米结构的表面等离子共振光谱。在不对称蝴蝶结纳米天线空隙的中心探测所激发出的表面等离子激元，得到的等离子共振峰随波长变化的函数关系如图 3-2 所示。

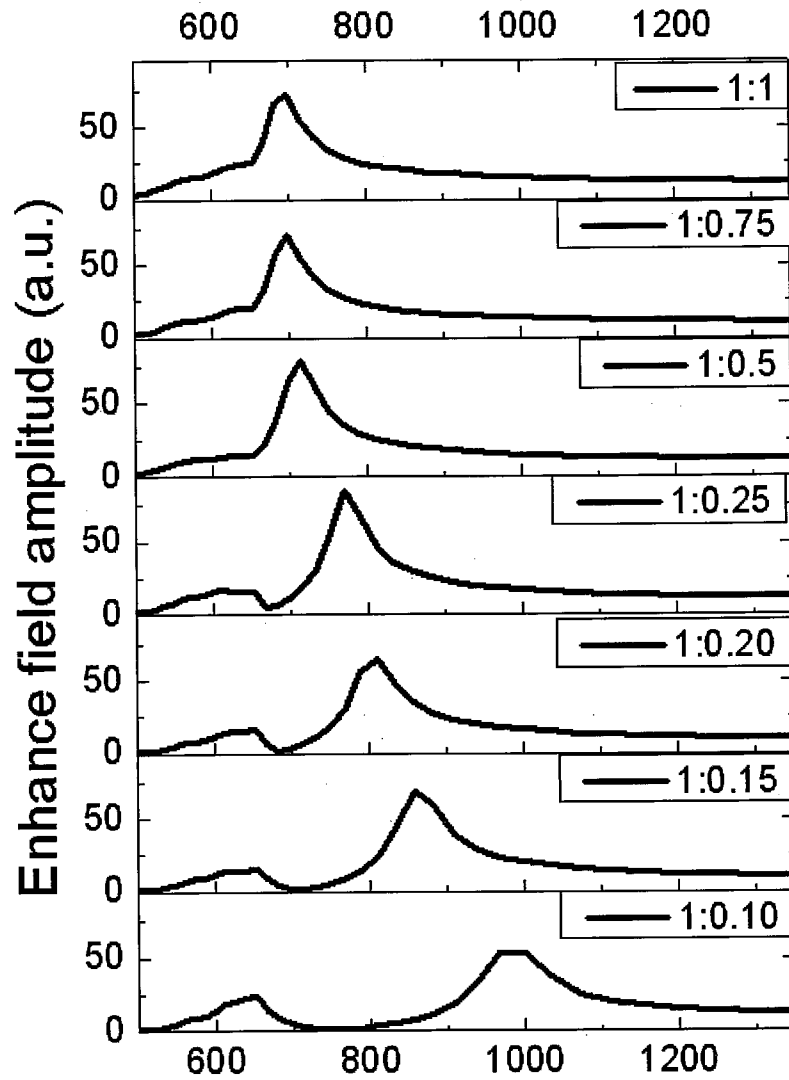


图 3-4 不对称蝴蝶结纳米天线结构的等离共振光谱

从图 3-4 中可以看到，当固定左边的三角形不变，保持 $L_1=100\text{ nm}$ ，而右边的三角形 x 方向的长度 L_2 从 100 nm 变化到 10 nm 时，与前面单个三角形和对称蝴蝶结纳米天线不同，其等离共振光谱出现了两个峰。当 L_2 的变化比例为 $\rho_2 \geq 0.5$ 时，仅有一个共振峰。当 $\rho_2 < 0.5$ 时，出现了第二个共振峰，而且随着 ρ_2 的减小，右边的主共振峰也在不断红移。有图 3-2 对单个的三角形纳米结构的分析可知，主共振峰是来自于右边不断变化的三角形；而左边较低的共振峰，是来自于左边固定不变的三角形。

考虑到我们优化设计的目的，我们选择 $L_1:L_2=1:0.25$ 不对称纳米蝴蝶结天线作为研究对象，因为它有最高的场增强因子，而且共振峰比较符合入射光源的

中心波长。由于不对称纳米蝴蝶结天线支持双共振峰，我们分别用两个波长去激发它的电磁共振状态，并与对称蝴蝶结天线进行比较。图 3-5 中可以看到当用不同的入射波分别激发不对称纳米蝴蝶结天线的两个共振状态，电场的分布也随之改变。当入射波是 650nm 时，左边的三角形达到共振状态，较高的电场振幅出现在其附近。当入射波是 800nm 时，右边的三角形达到共振状态，较高的电场振幅出现在其附近。入射光激发的蝴蝶结金属纳米天线的表面等离子共振模式，对于构成该天线的三角形来说均为偶极振荡模式。

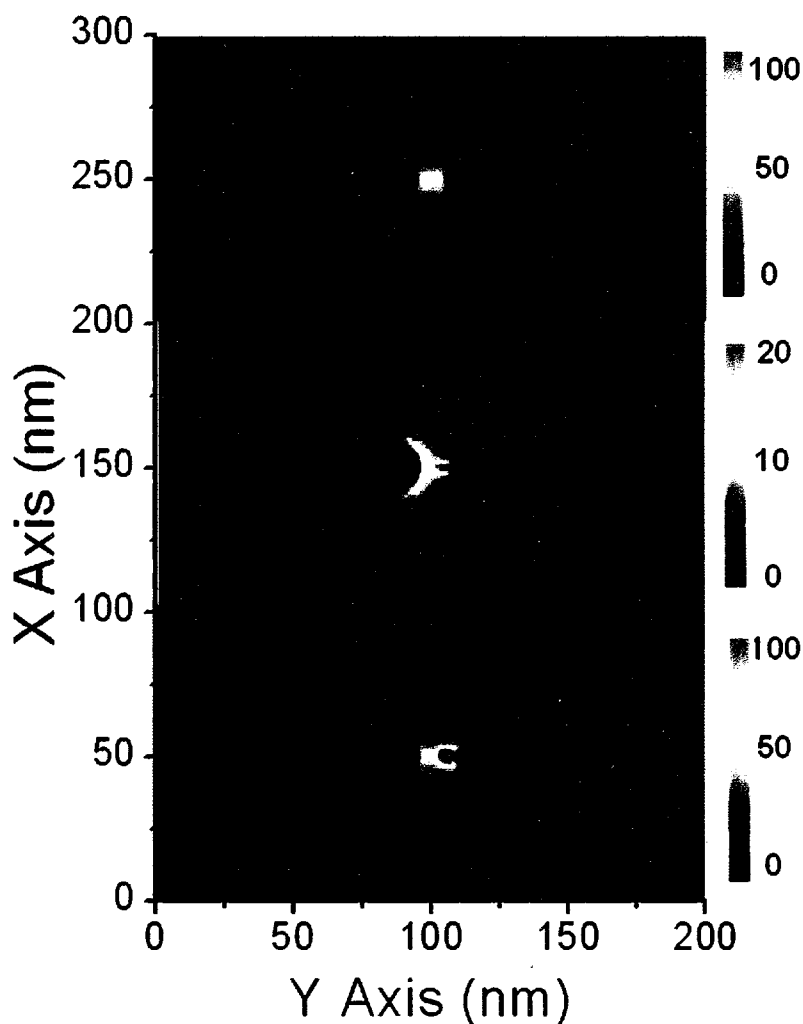


图 3-5 对称和不对称纳米蝴蝶结天线的电磁共振。

- (a). 对称纳米蝴蝶结天线, $L_1:L_2=1$: 1 在 700nm 入射波的共振电场分布。
- (b). 不对称纳米蝴蝶结天线, $L_1:L_2=1$: 0.25 在 650nm 入射波的共振电场分布。
- (c). 不对称纳米蝴蝶结天线, $L_1:L_2=1$: 0.25 在 800 nm 入射波的共振电场分布。

3.4 金属纳米蝴蝶结天线在超快激光下的时域响应

为了考察对称和不对称纳米蝴蝶结天线的时域响应, 我们采用典型的 Ti:Sapphire 激光器, 中心波长 800nm, 脉冲长度 2.5fs 的宽带光源[23]激发纳米天线的表面等离共振激元, 以利于产生超短 XUV 脉冲。激励源的脉冲长度对纳米体系在时域上激发的等离激元有非常重要的影响。激光脉冲越短, 激发达到产生 HHG 阈值的电磁振荡周期就越少。在常见的激光驱动的 XUV 光源中, 少周期的电磁振荡意味着可以产生孤立的超短阿秒量级的 XUV 脉冲, 而不是很难测量的一连串 XUV 脉冲。入射激光的脉冲强度聚焦后最大可达到 $10^{11}\text{W}/\text{cm}^2$, 但这个值并未超过纳米结构的损伤阈值[3, 24]。时域响应显示在图 3-6 中。入射源为归一化的 y 极化波。在蝴蝶结纳米天线空隙的中心探测所激发出的表面等离激元。

对于对称纳米蝴蝶结天线 $L_1:L_2=1:1$, 表面等离激元在第三个周期达到振荡的最大值 30, 随后迅速地呈指数衰减, 在 45fs 的时间内衰减为 0。对于不对称纳米蝴蝶结天线, 这里仍以 $L_1:L_2=1:0.25$ 为例, 表面等离激元在第三个周期达到振荡的最大值, 由于两个共振频率同时被增强, 两个共振模式交替涨落, 其时域响应表现出强烈的调制特性, 随后迅速地衰减, 在 55fs 的时间内衰减为 0。

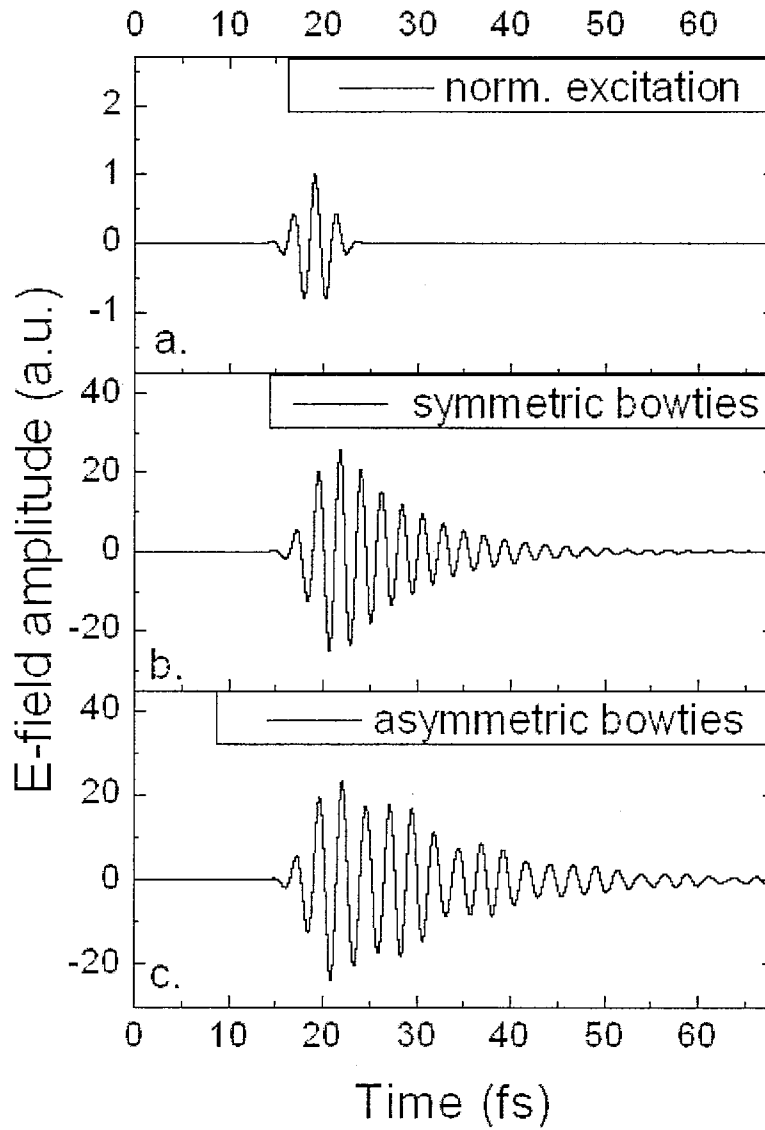


图 3-6 对称和不对称纳米蝴蝶结天线的时域响应

进一步我们研究了在入射双色场时，不对称纳米蝴蝶结天线 $L_1:L_2=1:0.25$ 的时域响应，考察其双频共振特性。入射的双色场如下所示：

$$E(t) = E_{\omega_1}(t) \cos(\omega_1 t) + E_{\omega_2}(t) \cos(\omega_2 t)$$

其中， ω_1 和 ω_2 分别为不对称纳米蝴蝶结天线的共振频率 650 nm 和 800 nm。

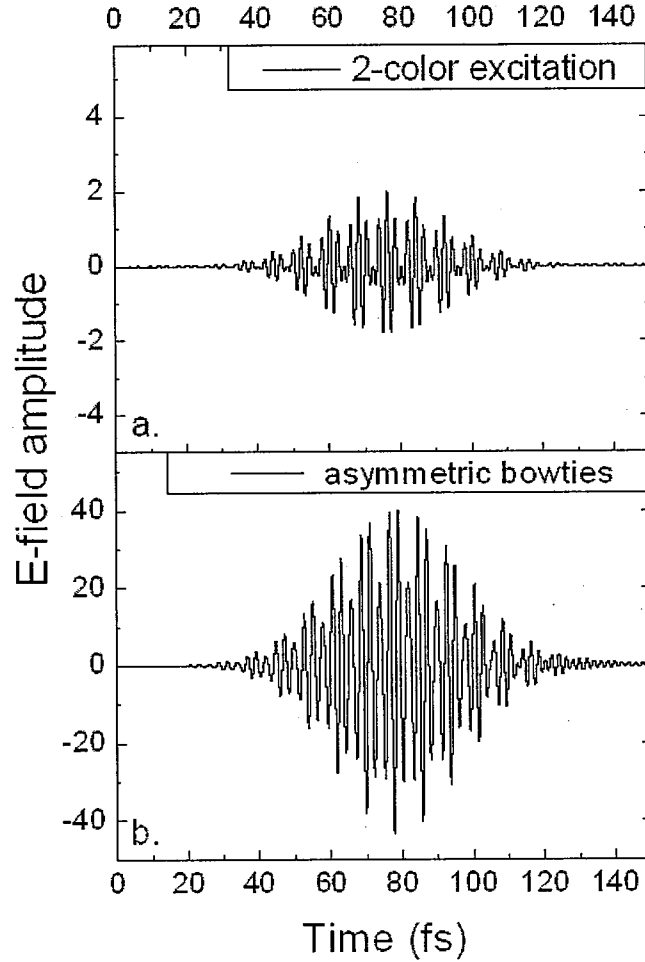


图 3-7 不对称纳米蝴蝶结天线在双色场入射时的时域响应

从图 3-7 中可以观察到双色场入射到不对称纳米蝴蝶结天线上后, 相对于入射光的振幅, 两个频率的光均被增强了约 20 倍, 并且其载波相位(carrier envelope phase, CEP) 产生了 π 的变化。这种双频增强特性, 可选择性地增强对不同波长的双色光, 有利于应用在使用多个频率的实验上, 如泵浦-探测实验, 或者多频生物探测器等。

3.5 本章小结

我们研究了三角形形状孤立的和耦合的金纳米结构, 以及组成的对称的和不对称纳米蝴蝶结天线, 分析了其表面等离子体光学特性, 计算了频域响应和时域

响应。优化设计后的不对称纳米蝴蝶结天线,表面等离共振可支持超宽的频谱响应和超高场增强因子,这对于利用 HHG 产生高频率的 XUV 光源是非常有帮助的。同时,不对称纳米蝴蝶结天线还支持多个共振频率,通过改变构成天线的三角形的长度比例可以调节其共振频率,选择性地增强对不同波长的入射光,有利于应用在使用多个频率的实验上,如泵浦-探测实验,或者多频生物探测器等。

3.6 参考文献

- [1] S. Maier, M. Brongersma, P. Kik, S. Meltzer, A. Requicha, B. Koel, H. Atwater, Plasmonics—A Route to Nanoscale Optical Devices, *Adv. Mater.*, 13 (2001) 1521.
- [2] A. Sundaramurthy, P.J. Schuck, N.R. Conley, D.P. Fromm, G.S. Kino, W.E. Moerner, Toward Nanometer-Scale Optical Photolithography: Utilizing the Near-Field of Bowtie Optical Nanoantennas, *Nano Lett.*, 6 (2006) 355-360.
- [3] S. Kim, et al., High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement, *Nature*, 453 (2008) 757.
- [4] F. Krausz, M. Ivanov, Attosecond physics, *Rev. Mod. Phys.*, 81 (2009) 163.
- [5] S. Assefa, F. Xia, Y.A. Vlasov, Reinventing germanium avalanche photodetector for nanophotonic on-chip optical interconnects, *Nature*, 464 (2010) 80-84.
- [6] Y. Sun, Y. Xia, Shape-Controlled Synthesis of Gold and Silver Nanoparticles, *Science*, 298 (2002) 2176-2179.
- [7] J.J. Mock, D.R. Smith, S. Schultz, Local Refractive Index Dependence of Plasmon Resonance Spectra from Individual Nanoparticles, *Nano Letters*, 3 (2003) 485-491.
- [8] Z. Zhang, A. Weber-Bargioni, S.W. Wu, S. Dhuey, S. Cabrini, P.J. Schuck, Manipulating Nanoscale Light Fields with the Asymmetric Bowtie Nano-Colorsorter, *Nano Lett.*, 9 (2009) 4505-4509.
- [9] H. Qian, W. Jing, C. Li-Ran, S. Jian, Z. Xiao-Dan, G. Wei-Dong, X. Shao-Zhen, Z. Ying, ,Research of surface enhanced Raman scattering caused by surface plasmon of Ag nanostructures, *Acta Physica Sinica*, 58 (2009) 1984-.
- [10] S.A. Maier, P.G. Kik, H.A. Atwater, S. Meltzer, E. Harel, B.E. Koel, A.A.G.

Requicha, Local detection of electromagnetic energy transport below the diffraction limit in metal nanoparticle plasmon waveguides, *Nature Material*, 2 (2003) 229-232.

[11] S. Maier, M. Brongersma, P. Kik, S. Meltzer, A. Requicha, B. Koel, H. Atwater, Plasmonics-A Route to Nanoscale Optical Devices (*Advanced Materials*, 2001, 13, 1501), *Advanced Materials*, 15 (2003) 562-562.

[12] G. Ya-Nan, X. Wen-Rui, Z. Wen-Mei, ,Propagation properties of a surface plasmonic waveguide with double elliptical metallic nanorods, *Acta Physica Sinica*, 6 (2009) 4168-4173.

[13] P. Biagioni, D. Polli, M. Labardi, A. Pucci, G. Ruggeri, G. Cerullo, M. Finazzi, L. Duo, Unexpected polarization behavior at the aperture of hollow-pyramid near-field probes, *Appl. Phys. Lett.*, 87 (2005) 223112-223113.

[14] P. Biagioni, J.S. Huang, Du, ograve, L., M. Finazzi, B. Hecht, Cross Resonant Optical Antenna, *Phys. Rev. Lett.*, 102 (2009) 256801.

[15] S.A. Maier, P.G. Kik, H.A. Atwater, Optical pulse propagation in metal nanoparticle chain waveguides, *Phys. Rev. B*, 67 (2003) 205402.

[16] P. Zijlstra, J.W.M. Chon, M. Gu, Five-dimensional optical recording mediated by surface plasmons in gold nanorods, *Nature*, 459 (2009) 410-413.

[17] S. Chah, M.R. Hammond, R.N. Zare, Gold Nanoparticles as a Colorimetric Sensor for Protein Conformational Changes, *Chem. Biol.*, 12 (2005) 323-328.

[18] H. Peng, W. Yi-Hui, Z. Ping, ,Study of interaction of surface plasmon resonance sensor with nano-gold, ,*Acta Physica Sinica*, 9 (2010) 6532-6536.

[19] S. Gilbert, F. George, *An Analysis of The Finite Element Method*, Prentice Hall, 1973.

[20] E.D. Palik, *Handbook of Optical Constants*, 1985.

[21] J. P. Berenger, A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves, *J. Comput. Phys.*, 114 (1994) 185-200.

[22] J.P. Kottmann, O.J.F. Martin, Accurate solution of the volume integral equation for high-permittivity scatterers, *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 48 (2000) 1719-1726.

[23] V.S. Yakovlev, P. Dombi, G. Tempea, C. Lemell, J. Burgdörfer, T. Udem, A.

Apolonski, Phase-stabilized 4-fs pulses at the full oscillator repetition rate for a photoemission experiment, *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 76 (2003) 329-332.

[24] A. Plech, V. Kotaidis, M. Lorenc, J. Boneberg, Femtosecond laser near-field ablation from gold nanoparticles, *Nat Phys*, 2 (2006) 44-47.

第四章 双金属纳米天线的光学特性和优化设计

本章中我们研究了由 Ag/Au 的核壳结构组成的双金属纳米天线结构的光学特性。这种双金属核壳结构最近被用胶体化学方法成功地合成出来[1-2]，由于采用 Au 做为外层壳，这就避免了内层金属 Ag 被氧化。在实验方面，这种双金属结构的化学方法制备及光谱测试近年来已有文献进行报道[1-4]。我们将其应用于少周期激光脉冲，对其进行理论计算分析及优化设计。采用数值方法计算并优化了这种双金属纳米天线，并与纯金和纯银纳米结构进行比较。我们发现当双金属结构的核壳比例经过优化设计和调整后，这种双金属纳米天线比起纯金或纯银构成的纳米天线有着更高的表面等离子激元增强能力。而且，它们的表面等离子激元共振光谱覆盖可见光到红外波段，其超宽的频谱响应实现了超快的时域响应。通过比较可用自组装法合成的二聚体、三聚体和七聚体结构的双金属纳米粒子光学天线，发现优化设计其几何结构后，双金属纳米天线不仅可以提供超宽的共振频谱，也增大了电磁场增强的有效面积，这对基于纳米结构产生高次谐波以及产生孤立的阿秒脉冲等应用具有重要的意义。

4.1 双金属核壳结构纳米小球的光学特性

双金属核壳结构小球的内核由银构成，外面由厚度为 h_{Au} 的金壳包覆，小球的总半径为 R 。图 4-1 展示了 Ag/Au 双金属核壳结构的纳米粒子的结构。我们采用了有限元法(finite element method, FEM)[5]计算金属粒子的光学响应。金和银的介电常数采用了 Palik 的实验数据[6]。在我们的理论模型中，金属纳米粒子的外界环境是真空（折射率为 1.0），总的计算区域是 $1000 \times 1000 \times 1000 \text{ nm}^3$ ，采用了厚度为 500 nm 的完美匹配层(perfect matched layer, PML)作为边界吸收条件[7]包围在计算区域的外面。为确保对近场天线的计算精度，我们划分的三维计

算单元网格为 $1 \times 1 \times 1 \text{ nm}^3$ [8]。

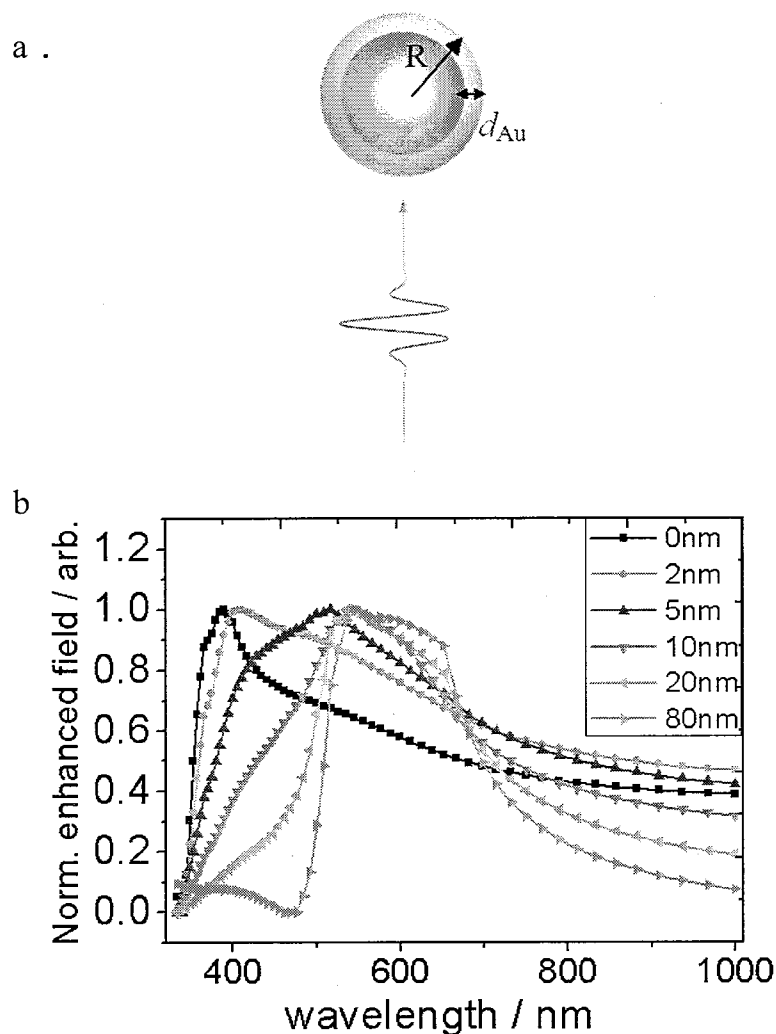


图 4-1 (a) 不同壳厚的 Ag/Au 双金属核壳结构示意图；

(b) 不同壳厚的 Ag/Au 双金属核壳结构的纳米粒子的共振光谱。

我们优化核壳结构的目标有三个方面的：1.共振频谱与中心波长为 800 nm 的 Ti: Sapphire 飞秒激光入射光源相匹配，最大化表面等离激元的增强因子；2.优化表面等离激元共振（场振幅增强因子 >100 ）的增强区域，扩大能够产生高次谐波 HHG 的区域面积；3.设计纳米结构的排列，使表面等离激元共振响应有超快响应。基于以上目的，我们相继研究了不同金属纳米小球的排列，单个的以及耦合的二聚体、三聚体和七聚体纳米天线。

由于共振频率和场增强因子对金属纳米结构的形状和排列非常敏感,因此我们首先计算了不同的金外壳厚度对双金属结构纳米小球的光学性质产生的影响(图 4-1)。双金属核壳结构的小球半径 R 固定为 80 nm。金外壳厚度 d_{Au} 由 0 nm 增加到 80 nm,即小球由纯银逐渐变化到纯金。为计算该结构对每个波长的共振谱,我们分别以归一化后每个波长的平面波为入射源,由上方照射在纳米小球上,入射场的极化方向为横向。在距离双金属小球表面的 2 nm 处探测所激发出的表面等离激元,结果如图 1 所示。比较双金属结构和纯金及纯银,可以清楚地观察到双金属结构有着更宽的共振频谱。当金壳厚度增加时,共振光谱有红移现象,光谱带宽也随之变化,最宽的共振带宽出现在当金壳厚度为 5 nm 时。

4.2 耦合的双金属纳米小球的光学特性与优化设计

当单个的双金属核壳结构的纳米小球有着超宽的频谱响应时,其电磁场的增强能力却很有限,这就限制了其应用范围,例如不利于应用在高次谐波的产生上。在研究单个金属纳米颗粒的等离激元之后进一步研究两个甚至多个颗粒间等离激元的耦合可以更深入地揭示等离激元的基本性质,是构筑具有实用功能的等离激元器件的重要基础。

因此,我们进一步研究了优化后的纳米小球组成的耦合纳米天线结构,使其能够产生足够高的场增强效应。首先研究了最简单的耦合结构,由一对纳米小球组成的二聚体,小球间的距离间隔为 5 nm (图 4-2),其中,双金属小球的外层金壳厚度为 5 nm,半径 $R = 80$ nm。并且,计算了两小球间隙中心的光场,与同样结构的纯金、纯银纳米天线进行了比较。

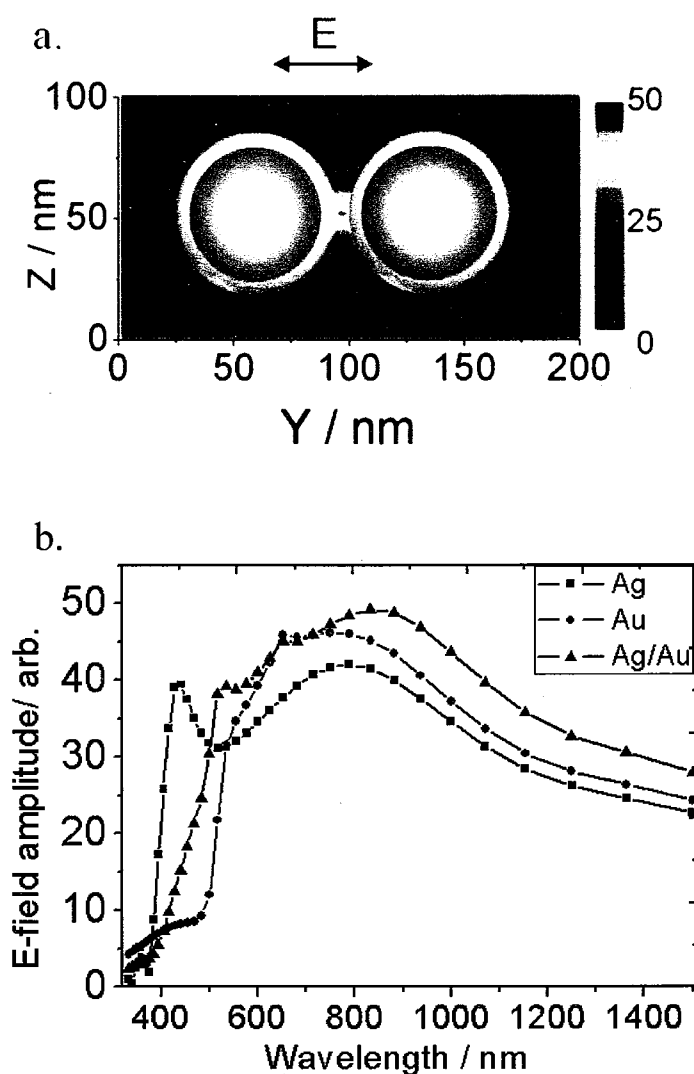


图4-2 (a) 耦合的双金属纳米小球天线的增强光场分布。(b) 双金属Ag/Au核壳结构及纯金、纯银结构纳米天线的表面等离子激元共振光谱。

模拟的双金属及纯金、纯银结构的纳米小球表面等离子激元增强共振光谱显示在图 4-2 中。场振幅增强因子的最大值在三种材料中均超过了 40。并且，光强增强因子在纳米小球间隙中，有 $(50 \text{ nm})^3$ 的范围超过了 100，这样，利用表面等离子激元的增强就足够产生 XUV 光。比较三种不同材料的耦合纳米小球对，耦合的银纳米粒子具有最宽的表面等离子激元共振光谱。相对于金纳米粒子的共振谱线，银纳米粒子偏向蓝光波段。耦合的金纳米小球天线有着比银更高的场增强因子，但共振光谱带宽却相对比较窄。双金属核壳结构的小球构成的纳米天线结合了金

和银的优点,有着从 500 nm 到 1200 nm 超宽的共振光谱,且最大场振幅增强因子达到了 50。值得注意的是,耦合的纳米小球对的间隙 5 nm 是任意选取的,更小的间距 1-5 nm 均可以由自组装方法实现及调节[9-10]。当计算更小的耦合纳米粒子间距时,我们发现其共振频谱仅有微小的不同,稍稍向红光方向偏移,频谱带宽是相似的。但增强因子有着显著的提高,这使得耦合纳米粒子有着更广阔的应用范围。

4.3 三聚体和七聚体的双金属纳米天线的超宽电磁响应

通过改变紧密排列的团簇中粒子的数目、位置及大小,共振光谱会出现强烈的近场增强特性及类 Fano 共振现象[11]。在这些紧密相邻的粒子间隙中,产生强烈的表面等离激元耦合共振,表现为表面等离激元的混合模式[12]。目前报道的利用自组装方法制备的金属纳米小球,其间距可以控制在 2 nm 附近[9-10],其分辨率超过目前的微纳蚀刻加工方法。这种化学合成的方法方便且成本低,能够大批量生产二维和三维的纳米表面等离激元结构[13-14]。我们理论计算了 Ag/Au 核壳结构的三聚体和七聚体的表面等离激元共振光谱及透射光谱。基于现今的自组装技术[9-10],我们选择了 2 nm 作为三聚体和七聚体结构的相邻粒子间隙。并且,在设计耦合的纳米天线结构中,我们选用了同样大小的粒子,这简化了制备过程中的难度。

三聚物和七聚物的排列分别显示在图 4-3 和图 4-4 中,半径 $R = 80$ nm,外壳金的厚度为 5 nm,相邻小球间隙为 2 nm。图 4-3 (a) 与图 4-4 (a) 分别为三聚体和七聚体的等离子体共振光场分布,在其最上端空隙的中心测得它们的增强光谱,并分别显示于图 4-3 (b) 与图 4-4 (b) 中,入射光场为水平方向极化。黑色曲线是表面等离激元共振增强光谱。三聚体的场振幅增强因子的最大值达到了 100,而七聚体的最大值甚至达到了 200。光强增强因子在每个纳米小球间隙中,有 $(50 \text{ nm})^3$ 的范围超过了 100。七聚体在 500 nm 和 950 nm 两处出现的表面等离激元共振峰是横向和纵向的表面等离激元共振的混合模式。在图 4-3 (b) 与图 4-4 (b) 中的红色曲线是透射光谱。三聚体的透射光谱在 550 nm 处出现了一个

突降,这是由于窄带宽的亚辐射模(暗共振模式)与宽带宽的超辐射模的相干叠加形成的[15]。这种相互作用导致了不对称的光谱图,被称为类 Fano 共振[11]。这是由于入射光的极化方向打破了纳米结构的对称性,产生了类 Fano 共振[16]。类似的现象也可以在七聚物的透射光谱中观察到,出现在 500 nm 和 950 nm 左右。对于七聚体结构,在 500 nm 和 950 nm 左右的 Fano 共振是由于位于中心的纳米粒子和外围环绕的六聚体的相互作用,两者的混合模式引起了表面等离激元共振,尽管 500 nm 处的突降不像 950 nm 处那么明显。

观察图 4-3 (b) 与图 4-4 (b) 中的等离激元增强光谱和透射光谱,不论是三聚体还是七聚体,其透射光谱类 Fano 共振突降的位置正好对应着近场表面等离激元增强的峰值。在这个频率,纳米系统只向外辐射少量的光,并不会耗尽表面等离激元共振的能量。本质上,粒子内部的间隔距离决定了从单一的表面等离激元共振模式到混合的共振模式。由于强烈的同相的表面等离激元共振,超辐射模有着足够宽的光谱带宽与亚辐射模的光谱叠加在一起。在这些表面等离激元纳米光学天线中,纳米结构的几何形状和排列以及金属材料本身固有的阻尼因子对 Fano 共振的形成起着重要的作用,并且最终决定了 Fano 共振的带宽。

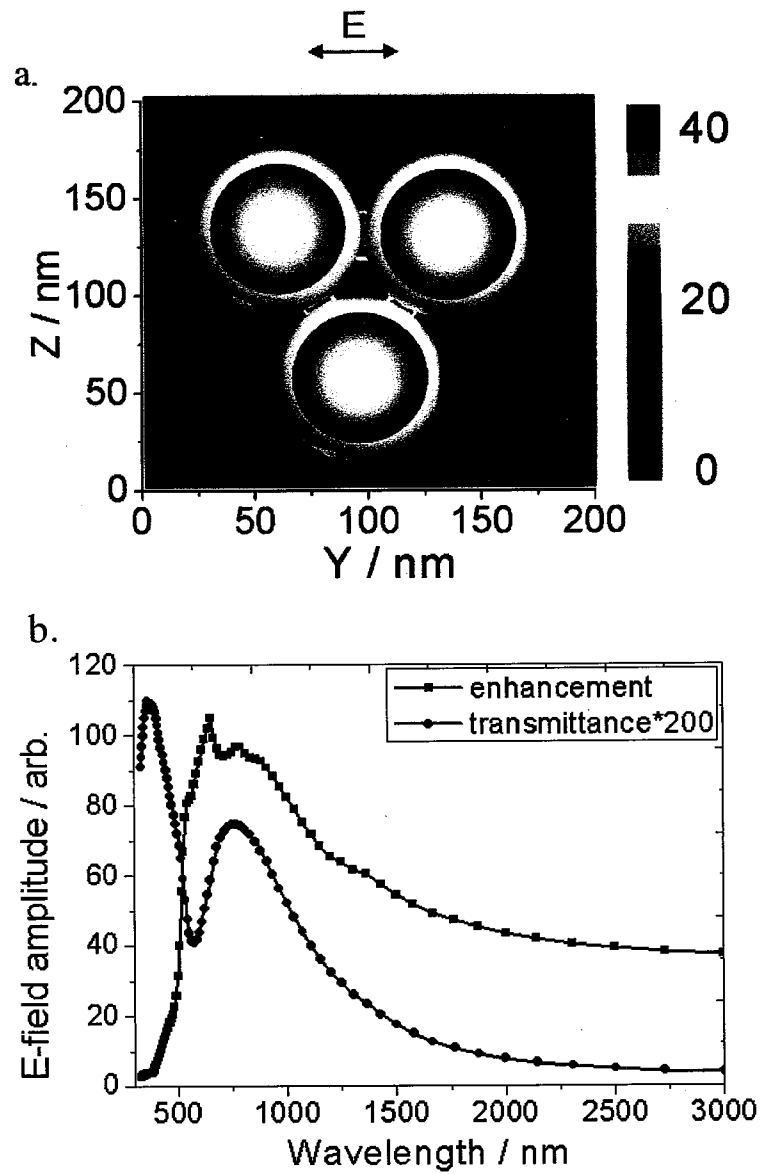


图 4-3 Ag/Au 纳米核壳结构小球的三聚体的光学特性

(a) 三聚体的等离子体共振光场分布。(b) 三聚体的等离共振增强光谱（黑色曲线）和透射光谱（红色曲线）分别与波长的函数关系

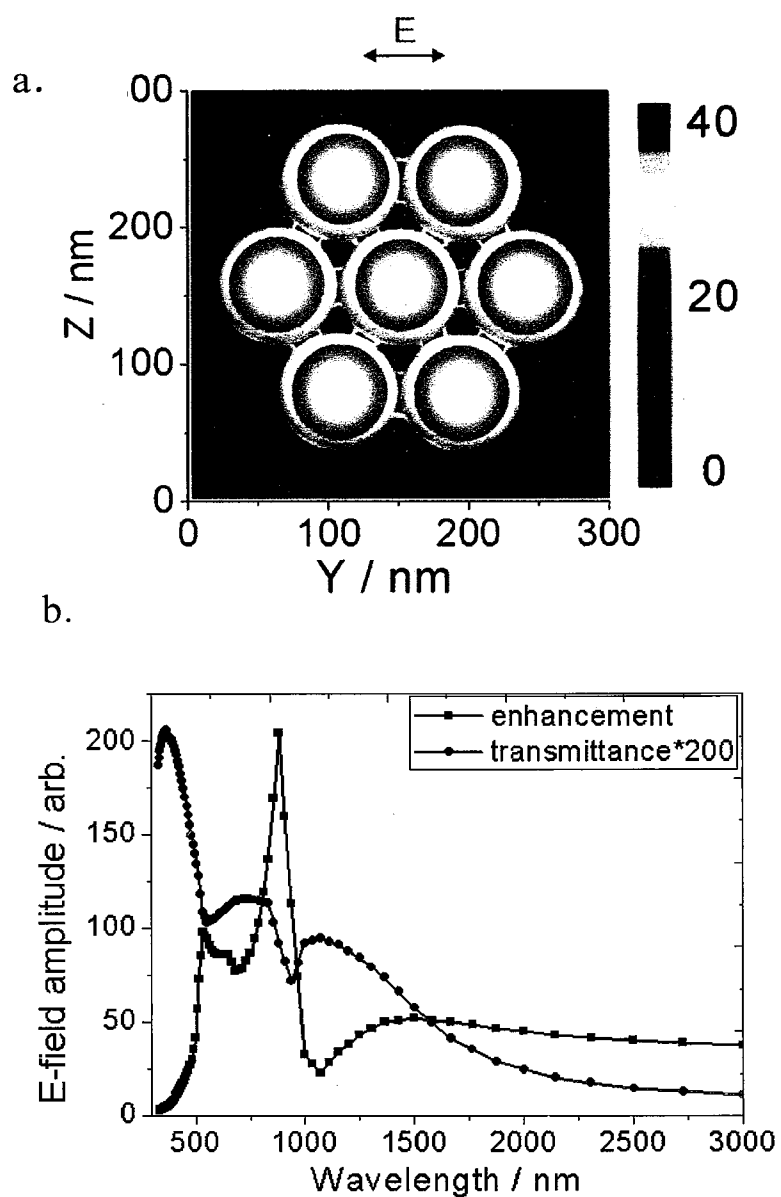


图 4-4 Ag/Au 纳米核壳结构小球的七聚体的光学特性。

(a) 七聚体的等离子体共振光场分布。(b) 七聚体的等离共振增强光谱（黑色曲线）和透射光谱（红色曲线）分别与波长的函数关系

4.4 Ag/Au 核壳结构天线在超快激光下的时域响应

为了寻找具有表面等离激元超快衰减特性(有利于实现单个超短阿秒脉冲),

同时仍然具有足够高的场增强能力（例如满足产生高次谐波的条件[17-18]）的纳米结构排列，我们探讨了双金属纳米结构的时域响应。这里我们采用超短激光脉冲作为激励源，中心波长为 800 nm，脉冲的高斯波包半高全宽（full width of half maximum, FWHM）为 2.5 fs，入射激光脉冲显示在图 4-5 中。我们模拟了在这个激励源下，耦合的二聚体、三聚体和七聚体结构的纳米天线引起的时域响应。我们运用有限时域差分法（finite difference time domain, FDTD）进行计算，结果如图 4-4 所示。为了让它们更可比性，二聚体的小球间空隙与三聚体、七聚体一致，均为 2 nm。

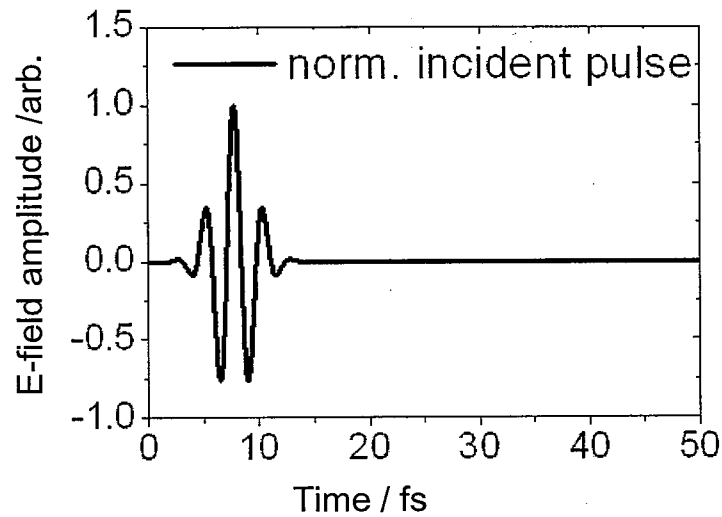


图 4-5 入射的超快激光脉冲，其高斯波包的半高全宽(FWHM)为 2.5 fs，中心波长 800 nm。

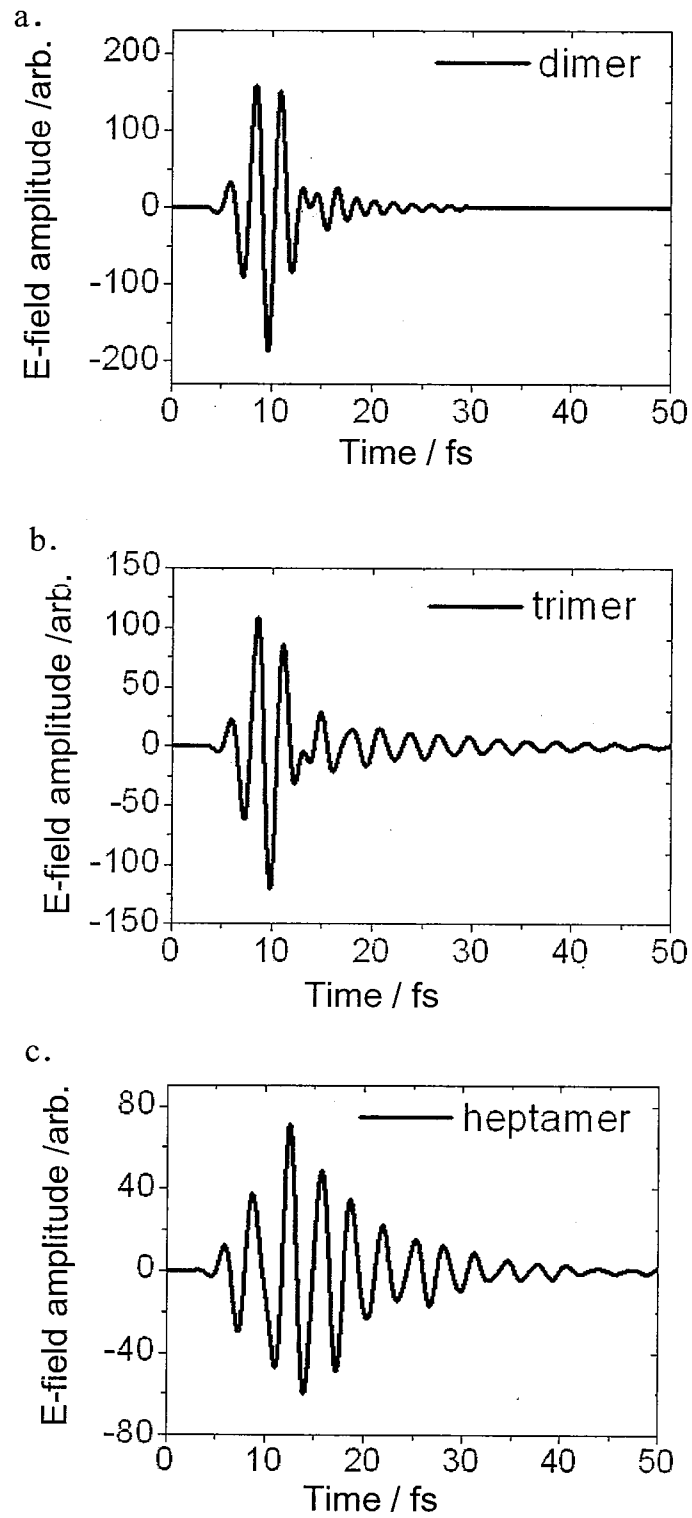


图 4-6 二聚体 (a) dimer、三聚体 (b) trimer 和七聚体 (c)

heptamer 在入射的超快激光下的时域响应, 其结构分别显示在图 4-2 (a)、图 4-3 (a) 和图 4-4 (a) 中。

二聚体的时域响应很大程度上类似于入射的激励脉冲, 如图 4-6 (a) 所示。激发出来的表面等离激元共振导致了增强的光场信号有一个时间上的相位延迟。与初始的激励脉冲相比较, 相位约延迟了 π 。电磁场受到激励后, 首先迅速地增大, 随后经历了一个快速的呈指数性的衰减, 衰减时间为 21 fs。最大的场振幅增强因子达到约 160。图 4-6 (b) 为三聚体的时域响应。增强的电磁场有一个约 $\pi/2$ 的时间相位延迟。首先电磁场迅速地增加到了 120, 然后经历了持续 42 fs 的衰减过程。七聚体的时域响应显示在图 4-6 (c) 中。电磁场在三个周期振荡后缓慢地增加到最大值 80, 然后经历了持续 38 fs 的衰减过程。七聚体与二聚体、三聚体相比, 其时域响应有明显的不同是因为, 其共振光谱虽然有很大的增强因子但其带宽相对较窄, 并且共振峰偏离了中心波长为 800 nm 的入射脉冲。而有着类似的 Fano 共振性质的三聚体, 其共振光谱就与入射脉冲的光谱比较匹配。因此, 七聚体的衰减在三种结构中是最平缓的。与二聚体相比, 在相邻粒子的空隙中, 三聚体和七聚体可以提供更大面积的有着足够增强能力的表面等离激元共振区域。这将增加产生高次谐波的转换效率。二聚体和三聚体展示了相似的电磁场迅速衰减的性质, 并且具有相当高的场增强能力, 这将对少周期的激光应用带来裨益, 如产生孤立的阿秒脉冲[18]。尽管二聚物有着最高的增强因子, 但它仅有一个空隙作为表面等离激元增强区域。三聚物不仅对少周期的激光脉冲有着足够的增强能力, 同时它较多的粒子间的空隙也提供了面积较大的场增强区域。

4.5 本章小结

我们对双金属核壳结构纳米天线进行了优化设计, 数值模拟结果展示了该结构可以提供超宽带的表面等离激元共振光谱, 并且支持超快时域响应。后一个特

性能够利用光学近场增强来产生 MHz 重复频率的孤立的 XUV 脉冲。二聚体、三聚体和七聚体三种纳米结构中, 我们均发现其具有较大的场增强面积, 足以用来产生高次谐波, 即在每个耦合的纳米粒子空隙间中, 有 $(50\text{ nm})^3$ 的增强区域的场振幅增强因子能达到 100。

从 Ti:sapphire 振荡器出射的入射脉冲的强度是 10^{11} W/cm^2 , 那么通过纳米结构的表面等离激元增强, 峰值强度就可以超过 $1 \times 10^{14}\text{ W/cm}^2$, 这个强度足以在稀有气体 Xe 和 Ar[18]中产生高次谐波。在研究的这些体系当中, 我们发现耦合的 Ag/Au 核壳结构的二聚体具有最强的场增强能力, 场振幅增强因子可以超过 160。但对于少周期的激光应用, 二聚体表面等离激元共振增强区域较小。三聚体不仅具有较大的场增强区域, 同时支持超快的时域响应。七聚体表现了较强的类 Fano 共振特性, 这导致了相当高的场增强能力, 场振幅增强因子能达到 200 左右, 但其光谱带宽比较窄。尽管这种结构不适用于产生孤立的阿秒脉冲, 但对于产生高次谐波和生物传感上的应用有很大帮助。

4.6 参考文献

- [1] S. Pande, S.K. Ghosh, S. Praharaj, S. Panigrahi, S. Basu, S. Jana, A. Pal, T. Tsukuda, T. Pal, Synthesis of Normal and Inverted Gold–Silver Core–Shell Architectures in β -Cyclodextrin and Their Applications in SERS, *The Journal of Physical Chemistry C*, 111 (2007) 10806-10813.
- [2] A. Murugadoss, M. Kar, R. Pasricha, A. Chattopadhyay, Silver Fused Conducting Fiber Formation of Au–Ag Core–Shell Nanoparticles Mediated by Ascorbic Acid, *Plasmonics*, 4 (2009) 161-170.
- [3] F. Douglas, R. Yañez, J. Ros, S. Marín, A. de la Escosura-Muñiz, S. Alegret, A. Merkoçi, Silver, gold and the corresponding core shell nanoparticles: synthesis and characterization, *Journal of Nanoparticle Research*, 10 (2008) 97-106.
- [4] W. Yan, et al., The shape evolution of gold seeds and gold@silver core–shell nanostructures, *Nanotechnology*, 20 (2009) 305602.

- [5] S. Gilbert, F. George, *An Analysis of The Finite Element Method*, Prentice Hall, 1973.
- [6] E.D. Palik, *Handbook of Optical Constants*, 1985.
- [7] J. P. Berenger, A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves, *J. Comput. Phys.*, 114 (1994) 185-200.
- [8] J. P. Kottmann, O.J.F. Martin, Accurate solution of the volume integral equation for high-permittivity scatterers, *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 48 (2000) 1719-1726.
- [9] J. A. Fan, C. Wu, K. Bao, J. Bao, R. Bardhan, N.J. Halas, V.N. Manoharan, P. Nordlander, G. Shvets, F. Capasso, Self-Assembled Plasmonic Nanoparticle Clusters, *Science*, 328 (2010) 1135-1138.
- [10] J. F. Li, Y.F. Huang, Y. Ding, Z.L. Yang, S.B. Li, X.S. Zhou, F.R. Fan, W. Zhang, Z. Y. Zhou, Y. WuDe, B. Ren, Z.L. Wang, Z.Q. Tian, Shell-isolated nanoparticle-enhanced Raman spectroscopy, *Nature*, 464 (2010) 392-395.
- [11] N. Verellen, Y. Sonnefraud, H. Sobhani, F. Hao, V.V. Moshchalkov, P.V. Dorpe, P. Nordlander, S.A. Maier, Fano Resonances in Individual Coherent Plasmonic Nanocavities, *Nano Lett.*, 9 (2009) 1663-1667.
- [12] E. Prodan, C. Radloff, N.J. Halas, P. Nordlander, A Hybridization Model for the Plasmon Response of Complex Nanostructures, *Science*, 302 (2003) 419-422.
- [13] K. J. Stebe, E. Lewandowski, M. Ghosh, Oriented Assembly of Metamaterials, *Science*, 325 (2009) 159-160.
- [14] J. H. Lee, Q. Wu, W. Park, Metal nanocluster metamaterial fabricated by the colloidal self-assembly, *Optics Letter*, 34 (2009) 443-445.
- [15] J. A. Fan, K. Bao, C. Wu, J. Bao, R. Bardhan, N.J. Halas, V.N. Manoharan, G. Shvets, P. Nordlander, F. Capasso, Fano-like Interference in Self-Assembled Plasmonic Quadrumer Clusters, *Nano Lett.*, 10 (2010) 4680-4685.
- [16] F. Hao, Y. Sonnefraud, P.V. Dorpe, S.A. Maier, N.J. Halas, P. Nordlander, Symmetry Breaking in Plasmonic Nanocavities: Subradiant LSPR Sensing and a Tunable Fano Resonance, *Nano Lett.*, 8 (2008) 3983-3988.
- [17] E. Goulielmakis, et al., Single-Cycle Nonlinear Optics, *Science*, 320 (2008)

1614.

[18] S. L. Stebbings, Y.-Y. Yang, F. Sussmann, R. Graf, A. Apolonskiy, A. Weber-Bargioni, M. Durach, M.I. Stockman, A. Scrinzi, F. Krausz, M.F. Kling, Probing ultrafast nano-localized plasmonic fields via XUV light generation, Proc. SPIE, (2008) 77571F.

第五章 纳米周期介质结构的优化设计与应用

利用红外 (infrared, IR) 超快飞秒激光聚焦到稀有气体分子或原子上产生高次谐波 (high harmonic generation, HHG) [1], 已经成为获得阿秒极紫外 (extreme-ultraviolet, XUV) 脉冲的一项成熟的技术。但由于产生高次谐波的高阶非线性过程需要较高的激发强度, 因此产生高重复频率 MHz 量级的 XUV 光是一项非常具有挑战性的工作。这种高重复频率的 XUV 光有着高分辨率的光谱, 可实现时间上的高精度测量, 而且在一些需要高 XUV 能流密度和低脉冲能量的实验中 (例如为了避免空间电荷效应) [2], 高重复频率的 XUV 脉冲更显得非常必要。传统的方法中, 采用放大器放大光强获得产生 HHG 的足够能量, 但其缺点是只能工作在较低的重复频率[3], 采用这种方式产生的 XUV 光其应用范围就相当有限。

利用外部的增强腔产生 HHG 并由此来产生 XUV 脉冲的方法克服了上述缺点, 可以得到高重复频率的 XUV 光源[4-7]。这种方法中, 锁模的红外飞秒激光振荡器发射出高重复频率的红外脉冲入射到外部的共振增强腔中, 然后聚焦到这个增强腔中稀有气体喷嘴上, 共振增强后的激光峰值功率足够在腔内产生与振荡器相同重复频率的高次谐波, 即可以实现输出 MHz XUV 光的光源。但利用外部腔产生 HHG 这种方法需要克服的一个主要的难题是, 如何从产生 HHG 的红外激光中有效地耦合出与其共线传播的 XUV 脉冲, 同时不影响谐振腔的工作。因为由 HHG 产生的 XUV 脉冲是与入射的红外激光沿着同一个方向传播的, 而 XUV 由于其极短的波长, 十分容易被腔内反射红外光的镜片吸收或阻碍。因此找到能够有效耦合出腔内的 XUV 光源的元件就非常重要, 这种 XUV 元件需要在耦合出 XUV 脉冲的同时, 对基频光红外激光有着最小的损耗, 并且不影响谐振腔的正常工作。

目前采用的XUV输出耦合元件有下述几种方式。第一种是在产生HHG的增强腔中, 放置一块很薄的蓝宝石片[4-6]。这个蓝宝石基片以布儒斯特角放置, 可以反射XUV光并让基频红外光穿过。但这种方法会导致较大的群速度色散, 并

且在高强度的脉冲会引起非线性的相位改变。为了克服这个问题另一种方法被采用,即在腔内激光聚焦的焦点后,也就是在XUV光产生的后方放置一个可让XUV从中间小孔穿过的曲面镜,或使用一个有狭缝的镜子让两束分立的红外脉冲在空间相遇后,产生向另一方向传播的HHG[8-9]。然而,这些方法均会导致基频红外光额外的衍射损耗,及增加腔内结构的复杂程度。Yost与其合作者利用一个纳米周期量级的浮雕型光栅作为XUV输出耦合器,将光栅结构直接蚀刻在腔内一个红外反射镜的表面。这个方法仅增加了微小的腔内损耗,支持共振腔谐振产生高强度脉冲,克服了耦合XUV的主要难题,并且不会对光束产生非线性的相移。在耦合输出XUV光的技术中,从输出能量可调的角度来看,采用纳米周期结构的衍射光栅这种方法是很有前景的。Yost采用的这种耦合器,XUV最大的输出效率在65nm处达到约10%。

本章采用严格耦合波分析法(rigorous coupled-wave analysis method, RCWA)结合散射矩阵法,研究了运用在超快激光中,XUV光的纳米结构的介质耦合输出器,提出了改进的闪耀型结构的XUV纳米周期光栅,并通过优化设计使其输出XUV的衍射效率有了较大的提高。这种闪耀光栅以不同的衍射角输出XUV光,实现了对不同频率和波长的选择,有着较高的衍射效率,且对基频红外光有着高反射特性($R>99.95\%$)。计算结果表明这种纳米周期结构的闪耀光栅将XUV的衍射效率增加到20%以上,并通过在XUV波段36 nm到79 nm的实验结果证实了该闪耀光栅的高衍射效率。最后,我们比较了未蚀刻光栅结构的多层膜 SiO_2 介质反射镜的反射率和闪耀光栅对红外基频光1030 nm的反射率,并研究了衍射光栅在超快激光下的非线性效应。

5.1 XUV 衍射光栅的理论计算及其光学性质

我们采用严格耦合波分析方法[10-11]结合散射矩阵法[12]对纳米周期结构的光栅进行设计。优化光栅的目的是使其在36nm和79nm的范围得到最高的衍射效率,即Yb:YAG激光器输出波长1030nm的13到29次谐波。同时在这个范围, He^+ 的1s-2s能级跃迁位置在61nm附近可以提供高分辨率的真空紫外光谱[4, 6]。值

得指出的是在光栅的设计中，基频红外激光的波长可以根据实际需要任意选择。纳米周期的光栅结构被蚀刻在多层介质膜反射镜上。这个反射镜对基频红外光 1030nm 有着近乎完美的反射率。光栅结构就被加工在这个多层膜反射镜的最上层 SiO₂ 表面上。优化的参数包括入射角，光栅周期，刻槽深度，占宽比（一个周期内光栅的闪耀部分占总周期的百分比），闪耀角。该闪耀光栅的剖面图如图 2a 所示，计算中光栅的介电常数采用了 Palik 的实验数据[13]。

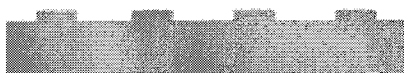
我们优化的衍射光栅参数为，入射角 72 度，光栅周期为 510 nm，刻槽深度为 46 nm，占宽比为 70%，光栅闪耀角为 3.6 度。优化后的光栅对基频红外波 1030 nm 及其各级谐波的耦合输出效率如表 5-1 所示，

Harmonic order	Wavelength (nm)	Outcoupling Efficiency (Incident angle=72 degree)
0	1030	0
3	343.33	0.00717
5	206	0.0216
7	147.14	0.0601
9	114.44	0.101
11	93.64	0.140
13	79.23	0.165
15	68.67	0.152
17	60.59	0.214
19	54.21	0.212
21	49.05	0.213
23	44.78	0.192
25	41.2	0.172
27	38.15	0.148
29	35.52	0.129
31	33.23	0.108
33	31.21	0.0860

表5-1 XUV光栅对基频红外波1030nm的各次谐波的耦合效率

比起 Yost 采用的平面浮雕型光栅，该闪耀光栅将耦合效率由 10%提高到约 20%，在 50nm 到 60nm 附近，其-1 级的 XUV 衍射光甚至超过 20%，如图 5-1 所示。理论上，闪耀型光栅的衍射效率可以达到 20%，比起平面浮雕型的衍射效率（10%左右）要高，

(a)



(b)



(c)

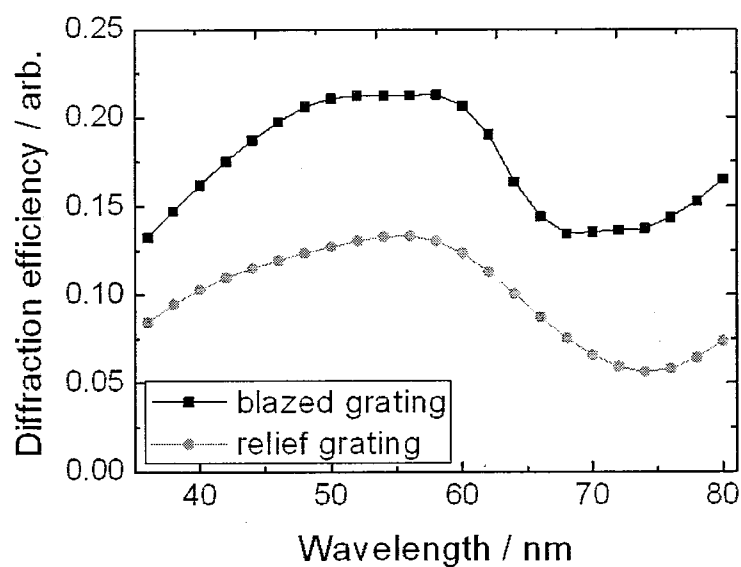


图 5-1 纳米周期结构光栅 (a) 平面浮雕型光栅; (b) 闪耀型光栅 (c) 平面浮雕型光栅和闪耀型光栅的衍射效率比较

图5-2为按照上述优化参数加工的闪耀光栅的原子力显微镜（atomic force microscopy, AFM）图片，光栅采用感应耦合等离子刻蚀法（inductive coupled plasma-reactive ion etching, ICP-RIE）加工在红外波段的多层膜高反射镜表层上，该反射镜在1000-1040nm波段反射率大于99.95%。

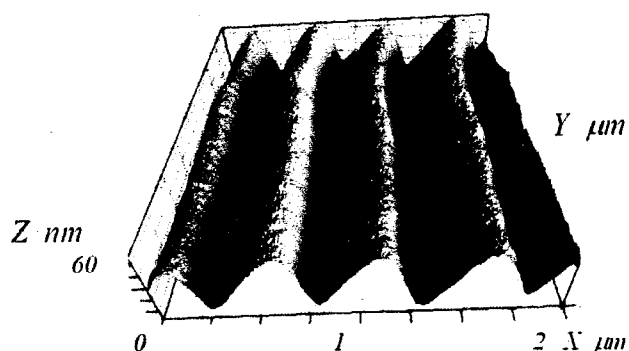


图 5-2 纳米周期的闪耀光栅原子力显微镜照片

5.2 XUV 衍射光栅在超快激光下的应用与测试

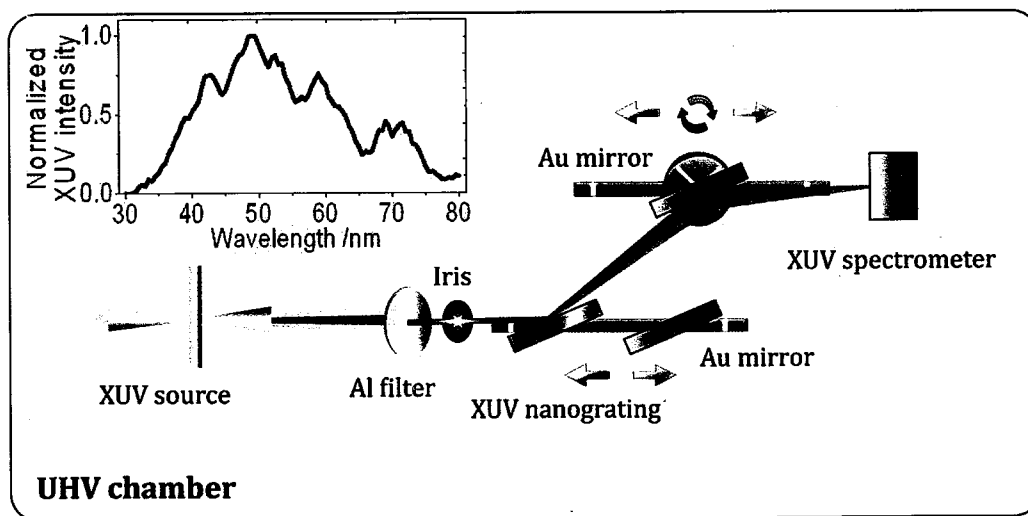


图 5-3 测试闪耀光栅的衍射效率的实验装置。

测试纳米周期结构闪耀光栅衍射效率的实验装置显示在图 5-3 中。整个装置放置在真空腔内，宽带XUV源(其频谱见插图)由少周期相位稳定Ti: Sapphires聚焦到Xe气喷嘴上。200 nm 厚的Al金属片用来滤掉余下的IR光，并允许 79.2 nm 以下XUV穿过。XUV或是被闪耀光栅衍射，或者是被金平面镜反射，经过第二个金平面镜反射后进入到XUV光谱仪中。为了补偿闪耀光栅的衍射角使光线发生的偏转，第二个金反射镜可以平移和转动。

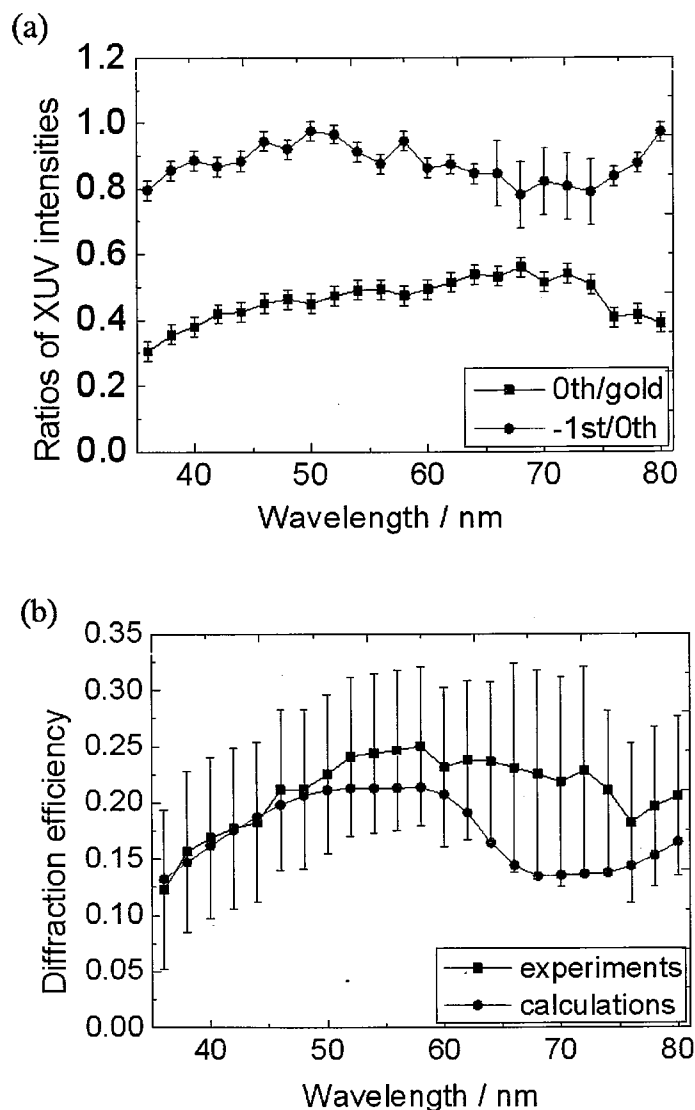


图 5-4 (a) 测量的 XUV 光线的强度。(b) XUV 光栅的耦合效率理论值和实验值的比较

测量得到的XUV光线的强度表示在图 5-4(a)中, $R_{0th/gold}$ 是闪耀光栅的 0 级衍射XUV与金平面镜反射XUV的比值, 用黑色曲线表示。黑色曲线上的误差棒的产生来源于XUV光谱的抖动, 误差大小约为 0.03。 $R_{1st/0th}$ 是闪耀光栅的-1 级衍射XUV与 0 级衍射XUV的比值, 用红色曲线表示。红色曲线上的误差棒由多次试验统计得到, 并在一个标准差 (σ) 之内。图 5-4 (b) 为理论计算得到的-1 级衍射效率 (红色曲线) 和从实验中得到的-1 级衍射效率 (黑色曲线)。黑色曲线上的误差棒产生于图a中提到的原因以及系统误差, 系统误差的产生是因为金反射镜反射率的校准误差。误差在 66 nm 到 74 nm 的误差范围为 0.09, 在其他波长范围为 0.07。

闪耀光栅对XUV光的-1 级衍射效率 Eff_{1st} , 由实验中的测量值通过如下的表达式得到

$$Eff_{1st}(\lambda) = R_{1st/0th}(\lambda) \times R_{0th/gold}(\lambda) \times ref_{gold}(\lambda) \quad (5-1)$$

ref_{gold} 是金平面反射镜对各个波长的反射率。计算结果表示在图 5-4 (b) 中。考虑到实验测量仪器的分辨率有限, 我们对计算结果进行了半高宽度 (Full width at half maximum, FWHM) 为 4nm 的高斯卷积处理并与实验值进行比较, 理论值与实验值[14]的绝对误差显示在图 3b中。可以观察到 36 nm至 60 nm的范围误差较小, 而在 70 nm附近光栅的理论衍射效率与实验的误差稍大。这是因为光栅介质 SiO_2 的折射率在 70 nm左右接近于 1.0 导致光栅-1 级衍射效率的降低, 而在加工过程中光栅表层 SiO_2 的元素配比成分 SiO_x 发生变化, 引起实验中光栅表面的折射率与理论值发生偏移。另一个可能导致误差的原因是, 由于加工技术的限制不能保证光栅蚀刻表面完全平滑, 且光栅的实际加工参数与理论优化值有些微小的偏差。

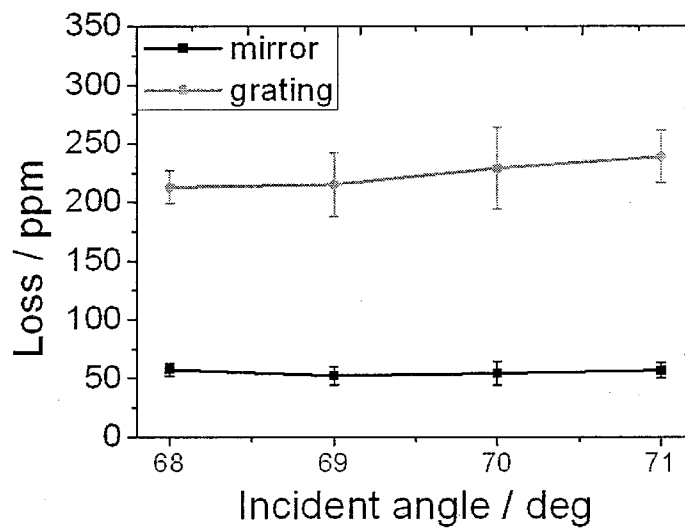


图 5-5 纳米周期结构的闪耀光栅和
多层膜介质镜测量的对红外基频光 1030 nm 的损耗

为了测量纳米周期结构的闪耀光栅对红外基频光 1030 nm 的反射率，我们使用损耗测量仪（LossPro，中心波长为 1030 nm）测量了在高反射率介质镜的上表层 SiO_2 表面蚀刻纳米周期的闪耀光栅后引入的损耗，并且比较了不同入射角的情况。图 5-5 为纳米周期结构的闪耀光栅和多层膜介质镜测量的对红外基频光 1030 nm 的损耗。测量的闪耀光栅的损耗的平均值低于 300 ppm，即反射率 > 99.97%。而上表层 SiO_2 无光栅结构的多层膜反射镜测得的损耗低于 60 ppm，即反射率 > 99.994%。误差棒由多次测量统计得到，并符合一个标准差 (σ)。因此在上表层 SiO_2 表面蚀刻的纳米周期结构的闪耀光栅并未对红外基频光 1030 nm 产生太大的影响，仍然保持了高反射率。

5.3 XUV 衍射光栅在超快激光下的非线性效应

为了研究超快激光下纳米周期结构衍射光栅的非线性效应，我们使用图 6 中的 z-scan 实验装置，并且比较了纳米周期结构的闪耀光栅和没有光栅结构的多层膜介质镜。

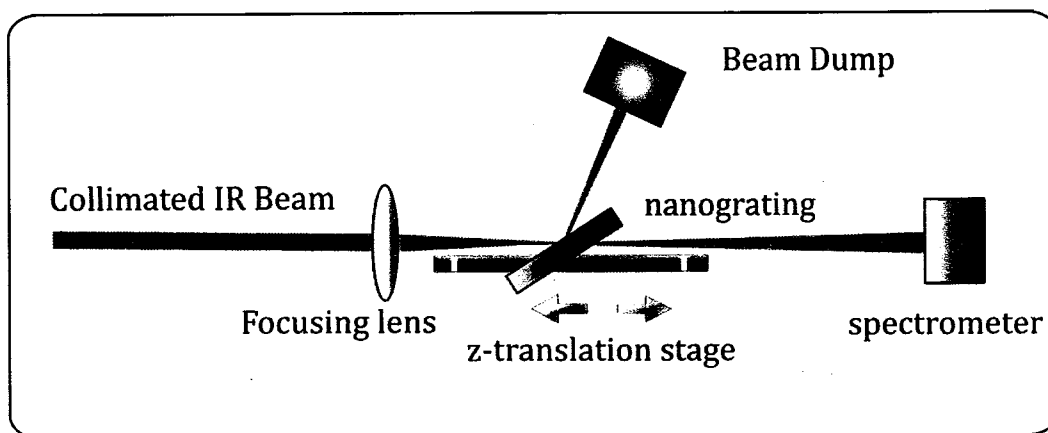


图 5-6 Z-scan 实验装置

Z-scan 实验装置展示在图 5-6 中。入射的红外超快激光参数为：中心波长 1040 nm，平均功率 40W，重复频率 78 MHz，脉冲长度为 200fs。准直的激光通过一个聚焦透镜以 60 度的入射角入射在纳米周期结构的光栅上，透射的光信号由紫外光谱仪观察。聚焦透镜的焦距为 150 nm， 聚焦直径为 55 μ m，准直的激光光束直径为 3.6 mm。

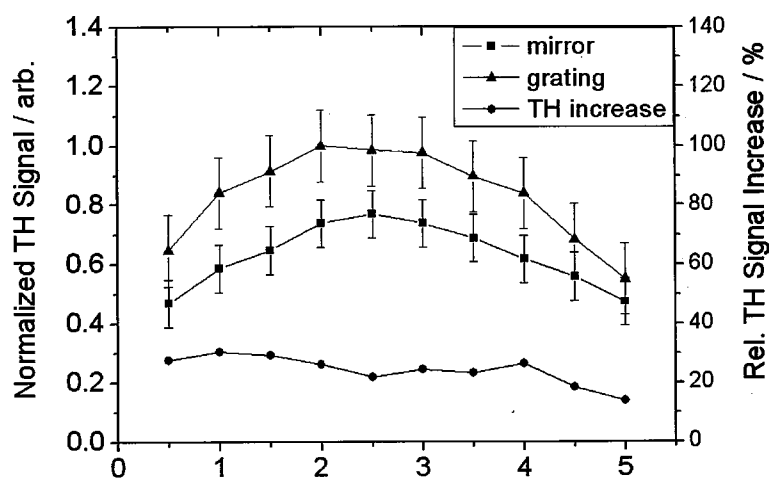


图 5-6 Z-scan 测量的结果

图 5-6 所示的测量结果表明纳米周期结构的光栅提高了非线性效应产生的光信号强度。红色曲线为衍射光栅产生三次谐波 (Third harmonic, TH) 的强度，

黑色曲线为同样的介质镜的光滑表面产生三次谐波的强度,可以观察到比起介质镜的光滑表面,纳米周期结构的闪耀光栅使三次谐波的强度提高了 30%。黑色曲线和红色曲线上的误差棒由多次测量统计得到,并符合一个标准差 (σ)。与观察到的介质表面的纳米结构增强三次谐波强度的现象类似,谐波增强等非线性效应也可以在介质表面附着的金属纳米结构上观察到[15-17],关于这个现象的物理机制的详细研究有待于未来工作的深入展开与讨论。

5.4 本章小结

我们优化设计了一种高衍射效率的XUV光栅耦合输出器,采用严格耦合波分析法结合散射矩阵对其进行分析。这个闪耀型的衍射光栅可使用在飞秒激光驱动的外部谐振增强腔中,耦合出MHz高重复频率的XUV脉冲。其-1级的耦合效率在36nm到79nm可达到20%左右,计算结果和实验取得了较一致的结果。我们还比较了未蚀刻光栅结构的多层膜SiO₂介质反射镜的反射率和闪耀光栅对红外基频光1030 nm的反射率。初始的SiO₂介质反射镜的反射率为99.994%,蚀刻上纳米周期结构的闪耀光栅后,其反射率仍然可达到99.97%,保持了较高的反射率。最后,我们衍射光栅在超快激光下的非线性效应进行了研究和探讨。

5.5 参考文献

[1] P. B. Corkum, Plasma perspective on strong field multiphoton ionization, *Physical Review Letters*, 71 (1993) 1994.

[2] M. I. Stockman, M.F. Kling, U. Kleineberg, F. Krausz, Attosecond nanoplasmonic-field microscope, *Nat Photon*, 1 (2007) 539-544.

[3] C. Spielmann, N.H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, F. Krausz, Generation of Coherent X-rays in the Water Window Using 5-Femtosecond Laser Pulses, *Science*, 278 (1997) 661-664.

- [4] C. Gohle, T. Udem, M. Herrmann, J. Rauschenberger, R. Holzwarth, H.A. Schuessler, F. Krausz, T.W. Hansch, A frequency comb in the extreme ultraviolet, *Nature*, 436 (2005) 234-237.
- [5] R. J. Jones, K.D. Moll, M.J. Thorpe, J. Ye, Phase-Coherent Frequency Combs in the Vacuum Ultraviolet via High-Harmonic Generation inside a Femtosecond Enhancement Cavity, *Physical Review Letters*, 94 (2005) 193201.
- [6] A. Ozawa, J. Rauschenberger, C. Gohle, M. Herrmann, D.R. Walker, V. Pervak, A. Fernandez, R. Graf, A. Apolonski, R. Holzwarth, F. Krausz, T.W. Hänsch, T. Udem, High Harmonic Frequency Combs for High Resolution Spectroscopy, *Physical Review Letters*, 100 (2008) 253901.
- [7] D. C. Yost, T.R. Schibli, J. Ye, Efficient output coupling of intracavity high-harmonic generation, *Opt. Lett.*, 33 (2008) 1099-1101.
- [8] K. D. Moll, R.J. Jones, J. Ye, Output coupling methods for cavity-based high-harmonic generation, *Opt. Express*, 14 (2006) 8189-8197.
- [9] J. Wu, H. Zeng, Cavity-enhanced noncollinear high-harmonic generation for extreme ultraviolet frequency combs, *Opt. Lett.*, 32 (2007) 3315-3317.
- [10] M. G. Moharam, T.K. Gaylord, Rigorous coupled-wave analysis of metallic surface-relief gratings, *J. Opt. Soc. Am. A*, 3 (1986) 1780-1787.
- [11] M. G. Moharam, E.B. Grann, D.A. Pommet, T.K. Gaylord, Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings, *J. Opt. Soc. Am. A*, 12 (1995) 1068-1076.
- [12] L. Li, New formulation of the Fourier modal method for crossed surface-relief gratings, *J. Opt. Soc. Am. A*, 14 (1997) 2758-2767.
- [13] E. D. Palik, G. Ghosh, E.J. Prucha, *Handbook of Optical Constants of Solids in*, Academic Press New York, 1985.
- [14] Y.-Y. Yang, F. Süßmann, S. Zharebtsov, I. Pupeza, J. Kaster, D. Lehr, H.-J. Fuchs, E.-B. Kley, E. Fill, X.-M. Duan, Z.-S. Zhao, F. Krausz, S.L. Stebbings, M.F. Kling, Optimization and characterization of a highly-efficient diffraction nanograting for MHz XUV pulses, *Opt. Express*, 19 (2011) 1954-1962.
- [15] T. Hanke, G. Krauss, D. Träutlein, B. Wild, R. Bratschitsch, and A.

Leitenstorfer, "Efficient Nonlinear Light Emission of Single Gold Optical Antennas Driven by Few-Cycle Near-Infrared Pulses," *Physical Review Letters* 103, (2009) 257404.

[16] A. Benedetti, M. Centini, C. Sibilia, M. Bertolotti, Engineering the second harmonic generation pattern from coupled gold nanowires, *Journal of the Optical Society of America B* 27, (2010) 408.

[17] H. Giessen, M. Lippitz, Directing Light Emission from Quantum Dots, *Science* 329, (2010) 910.

第六章 结论与展望

当超快激光脉冲照射到金属纳米结构上,将会激发超快过程的电磁场。纳米尺度的局域表面等离激元的移相时间通常在飞秒的数量级内,这使得用飞秒激光对局限在纳米尺度的光能量进行相干控制成为可能。本文不仅研究了金属纳米结构在超快激光中产生的独特的光学非线性效应,也研究了介质纳米结构在超快激光中的应用及光学性质,主要研究结果如下:

1.研究三角形形状孤立的和耦合的金纳米结构,以及组成的对称的和不对称纳米蝴蝶结天线,分析了超快激光下表面等离激元光学特性,计算了频域响应和时域响应。优化设计后的不对称纳米蝴蝶结天线,表面等离共振可支持超宽的频谱响应和超高场增强因子,这对于利用 HHG 产生高频率的 XUV 光源是非常有帮助的。同时,不对称纳米蝴蝶结天线还支持多个共振频率,通过改变构成天线的三角形的长度比例可以调节其共振频率,选择性地增强对不同波长的入射光,有利于应用在使用多个频率的实验上,如泵浦-探测实验,或者多频生物探测器等。

2. 对双金属核壳结构纳米天线进行优化设计,数值模拟结果展示该结构可以提供超宽带的表面等离激元共振光谱,并且支持超快时域响应。后一个特性能够利用光学近场增强来产生 MHz 重复频率的孤立的 XUV 脉冲。二聚体、三聚体和七聚体这三种纳米结构中,我们均发现其具有较大的场增强面积,足以用来产生高次谐波,即在每个耦合的纳米粒子空隙间中,有 50 nm^3 的增强范围的场振幅增强因子能达到 100。从 Ti:sapphire 振荡器出射的入射脉冲的强度是 10^{11} W/cm^2 , 那么通过纳米结构的表面等离激元增强,峰值强度就可以超过 $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 这个强度足以在稀有气体 Xe 和 Ar 中产生高次谐波,有助于产生新一代的 XUV 光源。

3. 优化了应用在超快激光中可以高效耦合输出 XUV 的光器件,提出了改进的闪耀型结构的 XUV 纳米周期光栅,使其输出 XUV 的衍射效率有了较大的提高。这种闪耀光栅以不同的衍射角输出 XUV 光,实现了对不同频率和波长的选

择，有着较高的衍射效率，且对基频红外光有着高反射特性 ($R > 99.95\%$)。这种纳米周期量级的光栅作为 XUV 输出耦合器，仅增加了微小的腔内损耗，支持共振腔谐振产生高强度脉冲，克服了耦合 XUV 的主要难题。在耦合输出 XUV 光的技术中，从输出能量可调的角度来看，采用纳米周期结构的衍射光栅这种方法是相当有前景的。

纳米结构的光器件在光学物理上开辟了超越衍射极限的新领域，被广泛地运用在近场扫描光学显微镜、光通信集成器件、纳米量级的高密度信息存储及生物传感器方面。本文所作的工作有助于理解及掌握纳米结构体系中超快激光下激发的电磁响应，对开发及设计下一代纳米光子学器件有着重要的意义，这将有利于发展基于纳米结构的表面等离子激元增强的新型 XUV 及 X 射线光源，及超越硅基光电器件数倍的超高速的全光器件。

攻读博士期间发表及待发表的文章

期刊论文:

1. Ying-Ying Yang, Frederik Süßmann, Sergey Zherebtsov, Ioachim Pupeza, Jan Kaster, Dennis Lehr, Hans-Jörg Fuchs, Ernst-Bernhard Kley, Ernst Fill, Xuan-Ming Duan, Zhen-Sheng Zhao, Ferenc Krausz, Sarah L. Stebbings, Matthias F. Kling, Optimization and characterization of a highly-efficient diffraction nanograting for MHz XUV pulses, Optics Express 19, 1954 (2011).
2. Ying-Ying Yang, Yong-Liang Zhang, Feng Jin, Xian-Zi Dong, Xuan-Ming Duan, Zhen-Sheng Zhao, Steering the optical response with asymmetric bowtie 2-color controllers in the visible and near infrared range, Optics Communications 284 (2011) 3479-3483,
- 3 杨盈莹, 张永亮, 赵震声, 段宣明, 双金属纳米天线在少周期激光中的宽带超快电磁响应, 物理学报 (已接收).
4. Ying-Ying Yang, Edit Csapó, Yong-Liang Zhang, Frederik Süßmann, Sarah L. Stebbings, Xuan-Ming Duan, Zhen-Sheng Zhao, Imre Dékány, Matthias F. Kling, Optimization of the field enhancement and spectral bandwidth of single and coupled bimetal core-shell nanoparticles for few-cycle laser applications, Plasmonics, (in review).
5. Sarah L. Stebbings, Ying-Ying Yang, Frederik Süßmann, R. Graf, A. Apolonskiy, A. Weber-Bargioni, Maxim Durach, A. Scrinzi, Mark I. Stockman, Ferenc Krausz, Matthias F. Kling, Probing ultrafast nano-localized plasmonic field via XUV light

generation, Proceeding of SPIE, Vol. 7757, (2010) 77571F

6. Sarah L. Stebbings, Frederik Sußmann, Ying-Ying Yang, Armin Scrinzi, Maxim Durach, A. Rusina, Mark I. Stockman, Matthias F. Kling, Generation of isolated attosecond XUV pulses employing nanoplasmonic field enhancement: optimization of coupled ellipsoids, New journal of physics (in review).

会议论文:

1. Ying-Ying Yang, Ioachim Pupeza, Sarah L. Stebbings, Maxim Durach, Frederik Sußmann, Waldemar Schneider, Jan Kaster, O. Pronin, Zhen-Sheng Zhao, Xuan-Ming Duan, Mark I. Stockman, Ernst Fill, Matthias F. Kling, Ferenc Krausz, Tailored nanostructures for the generation of MHz attosecond XUV pulses, International Workshop on Photonic Nanomaterials, (PhoNa 2010) Mar. 24-25, 2010, Jena, Germany

2. Ying-Ying Yang, Sarah L. Stebbings, Frederik Sußmann, Maxim Durach, Dennis Lehr, Waldemar Schneider, Ioachim Pupeza Jan Kaster, O. Pronin, Zhen-Sheng Zhao, Xuan-Ming Duan, Mark.I. Stockman, Ernst-Bernhard Kley, Ernst. Fill, Ferenc Krausz., Matthias F. Kling, Engineering nanostructures for MHz XUV light sources, 31th European Conference on Laser Interaction with Matter conference (ECLIM 2010) Sept. 6-10, 2010, Budapest, Hungary

3. Ioachim Pupeza, Ying-Ying Yang, O. Pronin, J. Kaster, Sarah L. Stebbings, Tino Eidam, Jens Limpert, Andreas Tünnermann, Ernst Fill, Matthias Kling, Ferenc Krausz, High harmonic generation in resonators and output-coupling by nanostructures, International Workshop on Photonic Nanomaterials, (PhoNa 2010) Mar. 24-25, 2010, Jena, Germany

4. Wei-Er Lu, Ying-Ying Yang, Xian-Zi Dong, Wei-Qiang Chen, Xuan-Ming Duan, Two-photon induced polymerization photoinitiator with radical quenching group, International conference on organic photonics and electronics 2009 (ICOPE 2009) The 11th international conference on organic nonlinear optics (ICONO11), Sept. 20-25, 2009, Beijing, China.

致谢

本论文是在赵震声研究员、段宣明研究员的悉心指导下完成的。两位导师经常在百忙之中为我指导分析研究过程中出现的问题，他们无微不至的关怀和谆谆教诲令我十分感动。赵老师和段老师渊博的知识、严谨的治学态度、崇高的敬业精神和一丝不苟的工作作风，使我树立了远大的学术目标，掌握了基本专业知识和技术，更学习了他们实事求是的工作科研方法和态度。两位导师高尚的学术风范和人格魅力将使我受益终生。在此谨向两位导师表示最衷心的感谢和诚挚的敬意！

感谢张永亮老师在计算模拟方面提供的指导和意见，感谢董贤子老师在实验操作方面的帮助，两位老师在学习和生活中都给予了我许多无私的帮助和亲切的关怀，使我能够顺利完成学业。在此谨向两位老师表示衷心的感谢和诚挚的祝福。

本论文的部分研究工作是在德国马普量子光学所完成的，在此衷心感谢 Matthias F. Kling 教授给予的指导和帮助。

感谢有机纳米光子学研究组的各位老师和同学，有机纳米光子学研究组是一个团结的集体，感谢各位老师和同学给予我的诸多帮助。

深深感谢我的父亲和母亲，他们在生活和学习上给予了我很大的支持和鼓励，是他们给予我努力学习的信心和力量。

深深感谢我的爱人徐旻，是他对我一贯的支持和鼓励让我有勇气克服一切困难，顺利完成学业并不断进步。

最后，再次衷心地感谢所有关心和帮助过我的人，祝他们永远健康、幸福。

学位论文声明

本人声明，所呈交的学位论文系本人在导师指导下进行的研究工作及取得的成果。除了文中特别加以标注和致谢的地方外，论文中不包含其他人已经发表或撰写的研究成果。本人保证论文中的实验数据真实可信。

本人如违反上述声明，愿意承担以下责任和后果：

- 1、交回中国科学院研究生院授予的学位证书；
- 2、中国科学院理化技术研究所或中国科学院研究生院可在相关媒体上对作者本人的行为进行通报；
- 3、本人按照中国科学院理化技术研究所和中国科学院研究生院规定的方式，对因不当取得学位给理化所和研究生院造成的名誉损害，进行公开道歉；
- 4、本人负责因论文成果不实产生的法律纠纷。

论文作者签名：杨盈莹

日期：2011 年 5 月 25 日