

第一章 序論

◆ 1-1 前言

光是傳送資料絕佳的媒介，光訊號在其中流動傳遞連綿不絕的語音串流通訊和數量龐大的數位資料。在傳統的古典光學範疇，主要探討著光波經過透鏡、稜鏡、濾波器與偏振器的反射、透射、色散、相差、干涉與偏振等特性，這些研究最主要被應用在光學成像，包括相機、望遠鏡與顯微鏡等光學成像系統，然而在半個世紀後科學家開始將光學應用在日常生活之中，包括光纖通訊、光儲存、顯示器、太陽能或是生物醫學相關領域上。

傳統的光學元件不僅價格昂貴且體積也大，早期要架構一個光學系統往往需要三、四公尺長的光學桌，光學元件的相對位置以及環境參數往往造成實驗結果的不穩定，例如溫度、濕度、壓力等環境變數，因此科學家提出縮小光學系統的概念[1]。縮小原件並且整合系統也就是積體化的概念，積體光學的概念源自於整合光學桌上的元件至一個微小的晶片上。將所有元件整合至一個微小晶片上，不僅大幅縮小光學系統的體積，同時提高系統的操作穩定度，拜半導體製程的發展所賜，晶片的光學薄膜製程與微影蝕刻技術能將光學系統縮小至一個很小的基板，使用光波導結構可在晶片上建構微小的光學元件與功能性光路，使得光學元件能微小化至晶片上。

近年來由於科技日益發達，資料量越來越龐大，因此電腦的操作頻率也隨之升高，傳統靠電子傳輸訊號的晶片也即將遇到操作頻率極限上的瓶頸，因此許多科學家預言下一個世代將由具光頻操作頻率之積體光路(optical integrated circuit) [5]取代微處理器與電腦晶片中的電子電路。

◆ 1-2 文獻回顧

用光子取代電子而達到積體光路的概念，乍聽之下是一個相當具未來性的新

概念，可惜的是光的繞射現象限制了光電裝置的大小以及性能，由於光波太接近時會互相干擾，因此光纖直徑必須超過其輸送光波的一半波長，以積體光路晶片的觀點出發的話，操作波長633 nm的紅光來說其光纖最小直徑早已遠超過目前最小的電子元件，舉例說明，目前矽積體電路中的電晶體其線寬已小於100 nm。

因此科學家近年來極力開發新技術，希望能透過極微小的奈米結構來傳遞光學訊號。然而在1980年代，實驗證實在特殊條件下讓光波射入金屬與介電質之間的介面，可以使光與金屬表面可自由流動的電子形成共振交互作用，換言之，金屬表面的自由電子將受到外界光波的電磁場變化擾動，而形成能夠超越繞射極限且侷限在金屬表面傳播的表面電漿波，也被認為是下一代積體光路的傳遞媒介。

在金屬與介電質的介面附近，金屬電荷密度發生集體式電偶極振盪現象，稱之為表面電漿共振，而表面電漿共振的高靈敏度，被廣泛運用在化學、生物感測[6]、氣體感應器[6]、膜層厚度偵測[7]，表面電漿波會隨著距離增加而指數衰減，因此會侷限在金屬和介電質的表面附近，形成高度增強的近場(highly enhanced near-field)，也因為表面增強的特性，已被利用於各種表面光譜測量，例如表面增強拉曼光譜(surface-enhanced Raman spectroscopy, SERS) [8]。近年來隨著人們對奈米尺度下的光學現象深感興趣，而引發了奈米光學的蓬勃發展，然而表面電漿模態的侷域特性正好可以用來突破繞射極限，而發展出各種奈米尺度的光學裝置。

極化是光本身具有的一項重要的特質，不同極化的光對於物質往往具有不同的光學現象，一般而言，我們所討論的極化光是指空間勻質極化光(spatially homogeneous polarized light)，也就意味著光束截面的每一個位置在同一時間下都具有相同極化方向，例如線性極化光、圓形極化光和橢圓極化光。然而早期表面電漿的激發光源一般都是採用線性偏振光或是非偏振光源，近年來空間非勻質極化光(spatially inhomogeneous polarized light)由於具有特殊的光學效應而引起廣泛

的討論。其中輻射型偏極化光(radial polarization)屬於一種高度徑向對稱的徑向極化光(cylindrical vector beam)，由於在高數值孔徑物鏡的聚焦下可以產生超越繞射極限的聚焦光點而備受重視，近年來廣泛被應用在光鐳子、粒子加速、光儲存以及微影製程技術上。相較於高數值孔徑物鏡下的線性極化光在聚焦點會產生分岔形變(elongation)的解極化(depolarization)現象，使用高度軸對稱的輻射偏極化光可以相當對稱的聚焦光點，而大幅提升系統的空間解析度。

◆ 1-3 研究動機與論文架構

如同我們所認知的積體電路，為了達到光路積體化的理念，我們必須在金屬表面製作許多奈米結構，例如分光器(splitter)、集光器(combiner)、光波導(wave guide)、光耦合器(coupler)、濾波器(filter)或是反射器(mirror) [2-4]，使光能夠在金屬表面傳播並且執行訊號處理，然而準確的將光源饋入積體光路也是一項重要的議題，以往全反射式激發的稜鏡架構不僅光路上對準不易，更難以準確的將光訊號饋入眾多奈米結構中的正確位置。

近年來，教授 Q. Zhan 提出一種以高數值孔徑物鏡來聚焦輻射型偏極化光場於金屬薄膜與介電質介面的同軸表面電漿激發架構。由於表面電漿激發光源必須為 P 波(TM mode)，而使用輻射型偏極化的聚焦系統恰好能夠完全滿足入射光為 P 波的條件，且在高數值孔徑的聚焦下產生的超越繞射極限焦點能夠使表面電漿集體往聚焦點中心建設性干涉，故能夠在精準的位置上有效地激發金屬表面電漿。

在金屬表面建構奈米微結構不僅需要耗費許多成本，且結構越多良率越難提升。故本實驗中我們希望藉由改變入射光的極化結構，進而初步地去調整饋入處的表面電漿場形，例如：控制傳播方向、饋入面積、分光、聚焦...等前置動作，如此一來不但可以節省成本，增加良率，更能夠藉由極化的改變去即時地調變表面電漿光場，達到更高的控制維度。

本論文將依照以下各章節分別闡述，第二章主要介紹表面電漿基本理論，首先闡述表面電漿學的歷史，接著是以馬克斯威爾方程式為基礎去推導表面電漿的電磁場型態，以及各種常見的表面電漿激發方法，然後是關於徑向極化光的合成與理論介紹。第三章和第四章為本論文主要模擬與實驗部分，第三章說明方向性表面電漿激發的架構，先以有限時域差分法做模擬，再來依序介紹實驗光路架設並解說相關器材，最後則是針對近場光學顯微鏡所得到的近場資訊作探討。第四章的部分則是對於第三章所發現的自相性表面電漿干涉做更進一步的探討，除了介紹干涉的基本理論外，更針對我們的實驗架構建構一套自相性表面電漿干涉模型去解釋並比較實驗圖形與理論數據。最後第五章結論，討論各部分的結果與未來展望。



第二章 表面電漿基本原理

◆ 2-1 表面電漿子的歷史與原理

在1902年，R. W. Wood利用金屬光柵 (metal grating) 和白熾燈泡研究金屬光柵的繞射頻譜中發現到不符合光柵繞射理論的現象，發現到當入射光的電場偏振方向與光柵平行，則其繞射現象與光柵繞射理論相符，但若是入射光的電場偏振方向垂直於金屬光柵，卻會發生異常的繞射與穿透現象[9]，此異常現象引起 R. W. Wood 相當大的興趣並且企圖以此偏振態方向之電磁波與金屬光柵結構產生共振效應來解釋金屬光柵的繞射頻譜，這是科學家與表面電漿極化子(surface plasmon polaritons, SPPs)的第一次接觸；而在1941，Fano於理論計算與分析中提出：當入射光的電場偏振方向垂直於金屬光柵，則入射光在金屬光柵的表面會產生表面波 (surface waves)，並且此表面波會以熱的形態消散於光柵的表面，藉由此表面波的理論計算能驗證R. W. Wood所觀察的異常繞射現象[10]；接著於1950年代，R. H. Ritchie [11]與R. A. Ferrell [12]等科學家相繼提出表面電漿極化子的理論模型，研究表面電漿極化子的色散關係 (dispersion relation)，建立起表面電漿極化子的基礎理論；1968年，A. Otto利用稜鏡耦合的方式激發真空/銀界面的表面電漿極化子，並且量測經過稜鏡全反射後的能量損耗 (attenuated total internal reflection, ATIR)，藉此驗證表面電漿極化子的色散關係，也間接證明了表面電漿極化子的存在[13]。

表面電漿極化子(SPPs)是電磁波在金屬與介電質介面造成自由電子密度重新分佈與集體共振行為，如圖(2-1)所示。電磁波有平行於金屬表面的波向量 k_x 時，電荷疏密的分佈也將沿著z方向傳播形成所謂的表面電漿極化子，圖(2-1a)是電磁場與金屬自由電子交互作用的示意圖，藉由電磁場的分佈可以了解表面電漿極化子為p極化的電磁波。圖(2-1b)是表面電漿極化子在垂直金屬方向的最大電場振幅，可發現極大值位於介面上，並向兩側介質呈現指數衰減。若使用古典電磁理論，所有介質分佈的結構都可能存在s極化與p極化的模態以滿足馬克斯威爾方程式

的解。s極化模態的電場平行於金屬表面，當s極化模態的電磁波入射至金屬表面時，自由電子於瞬間的受力 $F_{\parallel}(t)=eE_{\parallel}(t)$ ，故自由電子受電力作用往無窮遠處移動；反之p極化模態的電場分量垂直於金屬表面，自由電子的受力方向與介面垂直，自由電子在垂直方向不斷的受時變電場 $E(t)$ 的驅動，因此自由電子與入射的p極化模態的電磁波產生共振效應，此電磁波與自由電子的交互作用建構的表面波即是「表面電漿極化子」。金屬平面上的表面電漿子以表面波的形式在金屬與介電物質形成的介面上傳播。

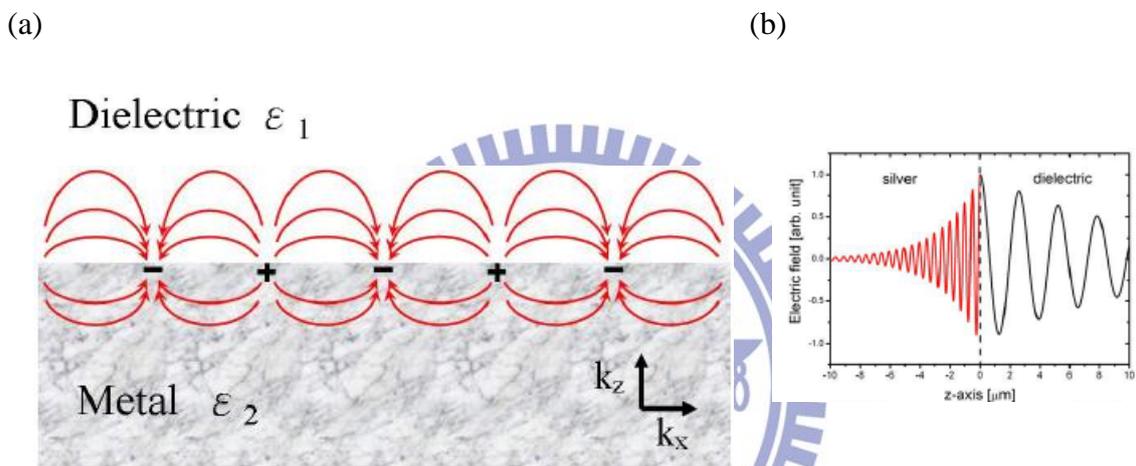


圖 2-1 電荷密度在金屬表面上發生集體式電偶極振盪電場分量示意圖。 $z < 0$ 是金屬的部分， $z > 0$ 是介電材料或是真空部分。 ϵ_1 ， ϵ_2 分別代表介電物質和金屬的介電係數。電場離開介面後會成指數衰減。電場在金屬內部衰減比在介電物質來得大。

我們在此詳細藉由馬克斯威爾關係式推導金屬與介電物質平坦介面上的表面電漿子的模式。

$$\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon \mathbf{dE}/dt \quad (2.1a)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mathbf{u} \mathbf{dH}/dt \quad (2.1b)$$

$$\nabla \cdot \epsilon \mathbf{E} = 0 \quad (2.1c)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (2.1d)$$

先考慮一表面波分別以TM和TE兩種不同的偏振方式在介面上傳播。TE偏振是指電場方向垂直於圖一的x-z平面，而TM偏振是指磁場方向垂直於xz平面。

介面的位置是在 $z=0$ 時，則TM和TE這兩種表面波的電場和磁場的波函數分別可以表示如下：

當入射光為TE mode

$z>0$

$$H_1 = (H_{x1}, 0, H_{z1}) \exp(k_{x1}x + k_{z1}z - \omega t) \quad (2.2a)$$

$$E_1 = (0, E_{y1}, 0) \exp(k_{x1}x + k_{z1}z - \omega t) \quad (2.2a)$$

$$E_1 = (0, E_{y1}, 0) \exp(k_{x1}x + k_{z1}z - \omega t) \quad (2.2b)$$

$z<0$

$$H_2 = (H_{x2}, 0, H_{z2}) \exp(k_{x2}x + k_{z2}z - \omega t) \quad (2.2c)$$

$$E_2 = (0, E_{y2}, 0) \exp(k_{x2}x + k_{z2}z - \omega t) \quad (2.2d)$$

當入射光為TM mode

$z>0$

$$H_1 = (0, H_{y1}, 0) \exp(k_{x1}x + k_{z1}z - \omega t) \quad (2.3a)$$

$$E_1 = (E_{x1}, 0, E_{z1}) \exp(k_{x1}x + k_{z1}z - \omega t) \quad (2.3b)$$

$z<0$

$$H_2 = (0, H_{y2}, 0) \exp(k_{x2}x + k_{z2}z - \omega t) \quad (2.3c)$$

$$E_2 = (E_{x2}, 0, E_{z2}) \exp(k_{x2}x + k_{z2}z - \omega t) \quad (2.3d)$$

首先，對於TE模態而言，其表面波必須符合邊界條件(boundary condition)，其電場和磁場必須在金屬/介質之介面滿足

$$E_{y1} = E_{y2} \quad (2.4a)$$

$$u_1 H_{z1} = u_2 H_{z2} \quad (2.4b)$$

$$H_{x1} = H_{x2} \quad (2.4c)$$

$$k_{x1} = k_{x2} \quad (2.4d)$$

其中 u_1 和 u_2 分別為介質和金屬的磁導率(permeability)。

再利用馬克斯威爾方程式(2.1b)可以得到

$$k_{z1}E_{y1} = -u_1\omega H_{x1} \quad (2.5a)$$

$$-k_{z2}E_{y2} = -u_2\omega H_{x2} \quad (2.5b)$$

$$k_{x1}E_{y1} = -u_1\omega H_{z1} \quad (2.5c)$$

$$k_{x2}E_{y2} = -u_2\omega H_{z2} \quad (2.5d)$$

然而對於非磁性材料， $u_1 \approx u_2$ 。所以根據(2.4a)~(2.4d)可以推得結果為

$$k_{z1} = -k_{z2} \quad (2.6)$$

但是根據色散關係式(dispersion relation)，

$$k_{x1}^2 + k_{z1}^2 = \epsilon_1 \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \quad (2.7a)$$

$$k_{x2}^2 + k_{z2}^2 = \epsilon_2 \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \quad (2.7b)$$

從(2.7)式可以看出，若 $\epsilon_1 \neq \epsilon_2$ 時則(2.6)式為矛盾。從數學上清楚的了解表面電漿波不能以TE偏振狀態存在。然而從物理的角度而言，根據邊界條件，TE模態下電場在介面必須保持連續，換句話說，TE模態的振盪方式在介面並不會產生感應電荷，故無法激發表面電漿子。當負折射率物質出現後，因為能夠具有負的磁導率，故可以容許TE模態的表面電漿振動存在。

接下來考慮當入射光為TM mode 時其表面波的性質。為了符合邊界條件電磁場在介面必須滿足

$$H_{y1} = H_{y2} \quad (2.8a)$$

$$E_{x1} = E_{x2} \quad (2.8b)$$

$$\epsilon_1 E_{z1} = \epsilon_2 E_{z2} \quad (2.8c)$$

$$k_{x1} = k_{x2} \quad (2.8d)$$

因為表面波對稱因素，故 $E_{z1} = -E_{z2}$ ，可以得到介質和金屬的介電係數關係為

$$\varepsilon_1 = -\varepsilon_2 \quad (2.9)$$

並了解到為何必須利用金屬(負折射率)來激發表面電漿子。利用(2.9)式可以得到表面電漿子頻率 ω_{sp} (surface Plasmon frequency)。

再由Drude's model即可得到金屬在高頻極限下的介電係數

$$\varepsilon_2 = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_{sp}^2} = 0 \quad (2.10)$$

其中 ω_p 代表金屬塊材的電漿共振頻率(bulk plasma frequency)。將上式(2.10)帶入(2.9)可以得到

$$\omega_{sp} = \omega_p \sqrt{\frac{1}{\varepsilon_1 + 1}} \quad (2.11)$$

從(2.11)式可以知道若介質為空氣($\varepsilon_1 = 1$)，表面電漿子共振頻率是塊材電漿共振頻率的 $1/\sqrt{2}$ 倍。

將上式帶回馬克斯威爾方程式(2.1a)可以得到

$$k_{z1} H_{y1} = \varepsilon_1 \omega E_{x1} \quad (2.12a)$$

$$k_{x1} H_{y1} = -\varepsilon_1 \omega E_{z1} \quad (2.12b)$$

$$k_{z2} H_{y2} = -\varepsilon_2 \omega E_{x2} \quad (2.12c)$$

$$k_{x2} H_{y2} = \varepsilon_2 \omega E_{z2} \quad (2.12d)$$

$$\frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{z2}}{\varepsilon_2} = 0 \quad (2.12e)$$

最後將(2.12e)帶回TM模態的邊界條件(2.8)式，可以得到金屬平面表面電漿的色散關係如下：

$$k_{x1} = k_{spp}(w) \frac{w}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_1(w)\varepsilon_2(w)}{\varepsilon_1(w) + \varepsilon_2(w)}} \quad (2.13a)$$

$$k_{zi} = \sqrt{\varepsilon_i k_0^2 - k_{x1}^2} \quad i=1,2 \quad (2.13b)$$

$$k_x^2 + k_y^2 < k_0^2 \quad e^{ik_z z} = e^{iz\sqrt{k_0^2 - (k_x^2 + k_y^2)}} \quad (2.14)$$

 電場為傳遞波(propagating wave)

$$k_x^2 + k_y^2 > k_0^2 \quad e^{ik_z z} = e^{-z\sqrt{(k_x^2 + k_y^2) - k_0^2}} = e^{i\alpha z} \quad (2.15)$$

 電場為消散波(evanescent wave)

為了得到表面電漿子， k_{x1} 必須為實數而 k_{z1} 必須為虛數，故若上述之介電常數必須滿足

$$\varepsilon_1 \varepsilon_2 < 0 \quad (2.16a)$$

$$\varepsilon_1 + \varepsilon_2 < 0 \quad (2.16b)$$

這時候 k_{x1} 會大於 $k_0\sqrt{\varepsilon_1}$ 也就是說波長會短於在介質一內自由行進的光波長，而且從(2.13b)式可以發現 k_{z1} 會是虛數，也就是說電磁波會隨著垂直介面方向呈現指數性的衰退，此時電磁波是一近場電磁波。

為了更清楚的描述表面電漿在金屬表面的傳播行為並更加了解表面電漿實際的空間維度，科學家們定義出四大表面電漿傳播長度來具體描述其行為，在介紹這四大參數之前，我們可以從下圖的級數表先了解可見光下所激發的表面電漿的一些長度級數[14]。

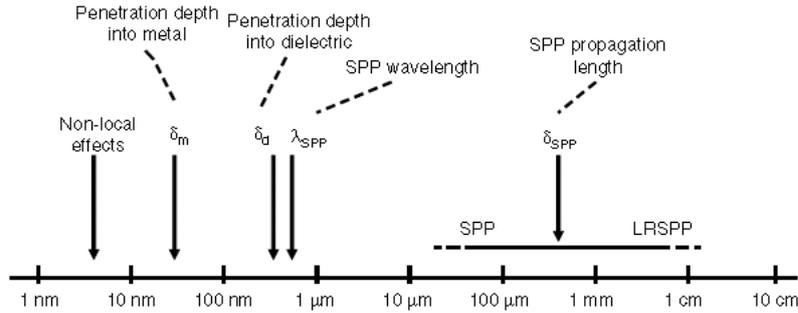


圖 2-2 表面電漿在可見光區與近紅外光區的傳播特性長度等級。左側端點由金屬導致的非侷限效應(Non-local effect)所決定。右側端點由遠距離傳播型表面電漿(LRSPP)之傳播長度所決定。[14]

從圖中可以了解在可見光激發下的表面電漿，能夠在金屬上傳播微米甚至釐米的等級，其即定義為表面電漿傳播長度(SPP propagation length, L_{spp})，並且其等效表面電漿波長(SPP wavelength, λ_{spp})略小於入射光波長，大約為數百奈米，在金屬表面傳播的同時表面電漿強度也會朝介電質層遞減(propagation depth into dielectric, δ_d)，其強度遞減至 $1/e$ 時的距離大約為數百奈米，而朝金屬內部強度遞減至 $1/e$ 的距離即為所謂的膚質深度(skin depth, δ_m)大約為數十奈米，有了以上長度概念我們將可以更快速了解表面電漿的行為。

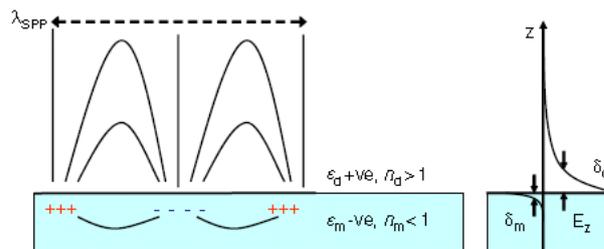


圖 2-3 描述表面電漿子模態之電子團分佈與電場分佈關係。右側圖表示電場離開介面後會成指數衰減。電場在金屬內部衰減比在介電物質來得大。三個傳播長度分別為表面電漿波長(λ_{spp})，往介質區遞減的深度(δ_d)，以及往金屬內遞減的膚質深度(δ_m)。

在我們詳細定義個個長度參數之前必須有個觀念 $k_{spp} = k' + ik''$ ，而其中實部 k' 主導

了表面電漿波的傳播，虛部 k'' 則主導了表面電漿的衰減。從波數 $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ 的觀念

出發,推導出等效表面電漿波長 $\lambda_{spp} = \frac{2\pi}{k'}$,也可以寫成

$$\lambda_{spp} = \lambda_0 \sqrt{\frac{\epsilon_d + \epsilon'_m}{\epsilon_d \epsilon'_m}} \quad (2.17)$$

對於介電質為空氣介質而言,其等效表面電漿波長約略小於入射光波長,而從上圖我們也能從此參數了解其金屬內部正負電子團的分布情況。表面電漿傳播長度 L_{spp} 則由主導表面波衰減的參數 k'' 決定

$$L_{spp} = \frac{1}{2k''} \quad (2.18)$$

一般而言表面電漿傳播長度和入射光波長成正比關係。表面電漿強度朝介電質層遞減至 $1/e$ 時,其深度為:

$$\delta_d = \frac{1}{k_0} \sqrt{\frac{\epsilon_d + \epsilon'_m}{\epsilon_d^2}} \quad (2.19)$$

表面電漿強度朝金屬層遞減至 $1/e$ 時之膚質深度為:

$$\delta_m = \frac{1}{k_0} \sqrt{\frac{\epsilon_d + \epsilon'_m}{\epsilon_m^2}} \quad (2.20)$$

而膚質深度一般和入射光頻率成反比關係。

光與金屬物質的交互作用主要來自於光波隨著時間與空間週期性變化的電磁場對金屬內部電荷的影響。而造成電荷密度在空間分佈的變化以及能階的躍遷、極化等效應,這些內部的效應和外來的光波互相耦合後以散射、吸收、折射等形式能量重新分佈,進而表達出各種不同的光學現象。

當電磁波與物體交互作用時,此時物體對外加電磁場可用淨電荷密度(ρ)、淨電流密度(J)、電極化強度(P)、磁極化強度(M)等物理量配合馬克斯威爾方程式來表示,由於物質內部的電極化和磁極化會產生感應電場及感應磁場,故引入電位移(electric displacement, D)和磁感應(magnetic induction, B)向量來表示物質內部總和的電磁場。

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \epsilon_0 \epsilon \vec{E} \quad (2.21)$$

$$\vec{B} = \mu(\vec{H} + \vec{M}) = \mu_0 \mu \vec{H} \quad (2.22)$$

其中 ϵ 和 μ 分別代表物質相對於真空的介電係數(dielectric constant)和磁導率(permeability)，此物理量可以用來表示物質對外加電磁場的反應狀況或是光學性質。

由於金屬內部具有可任意移動的自由電子，當其受到外加電磁場影響時自由電子的行為將主導金屬的光學性質，故接下來將討論金屬自由電子對外加電磁場的反應，

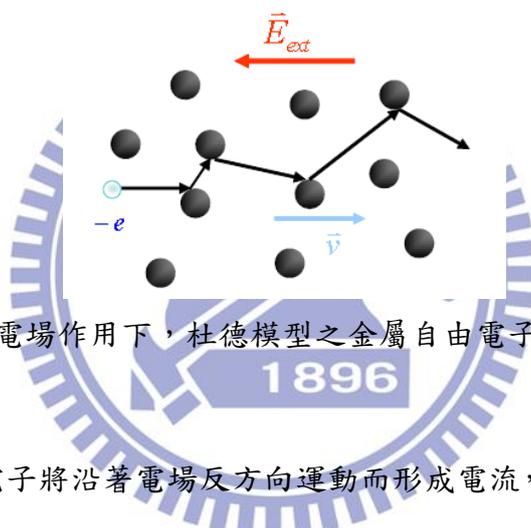


圖 2-4 外加電場作用下，杜德模型之金屬自由電子運動示意圖。[18]

在外加電場下自由電子將沿著電場反方向運動而形成電流，而電流定義為每單位時間通過特定截面的總電荷量，現在考慮電荷密度 N 的金屬，並假設在外加電場下電子運動速度為 \vec{v} ，故自由電子移動所形成的電流密度為：

$$\vec{J} = N(-e)\vec{v} \quad (2.23)$$

通過截面 A 的電流為 $I = \vec{J} \cdot \vec{A}$ 但自由電子受電場而移動時會和原子核或是晶格缺陷產生碰撞，故並非所有電子都是等速度沿同一方向行進，並且應注意其電子速度並不會隨外加電場而加速，因此其電子運動行為須藉由某物理模型來解釋，其中杜德模型(Drude model) 為一種簡單有效的自由電子模型。

在杜德模型中最重要的假設為金屬導電帶中的電子為自由電子，可自由的移動，電子與電子之間的作用力被忽略，主要的碰撞來自於電子與晶格間的交互作用。

用所產生的振盪。當外加電場施加於金屬，自由電子受力後的運動方程式可表示為：

$$m_e \frac{d\bar{V}}{dt} + \frac{m_e}{\tau} \bar{V} + e\bar{E} = 0 \quad (2.24)$$

m 為自由電子的質量， v 為電子的移動速度， τ 為電子與晶格碰撞的時間週期， e 為電子的電荷量， E 為外加電場。假若外加電場為 $\bar{E}(t) = \bar{E}_0 \exp(i\bar{k} \cdot \bar{r} - i\omega t)$ ，則電子的位移可表示為 $\bar{r}(t) = \bar{r}_0 \exp(i\bar{k} \cdot \bar{r} - i\omega t)$ ，利用歐姆定律 $\bar{J} = \sigma \bar{E}$ ，且電流密度 $\bar{J} = -n_e e \bar{V}$ ，將歐姆定律代入電子的運動方程式可推得金屬的導電率

$$\sigma(\omega) = (N_e e^2 / m_e) / (1 - i\omega\tau) \quad (2.25)$$

被電場極化的電子產生一個時變的偏極量 $\bar{P}(t) = -N_e e \bar{r}(t)$ ，因此金屬內的電位移 \bar{D} 可表示為：

$$\bar{D} = \epsilon_0 \bar{E} + \bar{P} = \epsilon_0 \bar{E} - N_e e \bar{r}(t) \quad (2.26)$$

將(2.11)對時間微分，可得 $\frac{d\bar{D}}{dt} = \epsilon_0 \left(\frac{d\bar{E}}{dt} \right) - N_e e v(t)$ ，引入歐姆定律可得

$\frac{d\bar{D}}{dt} = \epsilon_0 \left(\frac{d\bar{E}}{dt} \right) - \sigma \bar{E}$ ，由於電場為簡諧振盪場，因此可將方程式整理為

$(-i\omega\epsilon_r\epsilon_0)\bar{E} = (-i\omega\epsilon_r\epsilon_0 + \sigma)\bar{E}$ ，左右係數相等可得金屬的相對介電常數之色散方程式：

$$\epsilon_r = 1 + \frac{i\sigma(\omega)}{\epsilon_0\omega} \quad (2.27)$$

將(2.10)帶入(2.12)，並定義電漿頻率 $\omega_p = [N_e e^2 / \epsilon_0 m_e]^{1/2}$

與碰撞頻率 $\nu_c = 1/\tau$ ，可將相對介電常數整理為：

$$\epsilon_r(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\nu_c)} \quad (2.28)$$

根據杜德模型，金屬的介電係數僅由材料的電漿頻率與碰撞頻率決定。

當光波入射至金屬，其光學特性由光波與金屬的交互作用決定，有三種物理過程描述光波於金屬中的傳播特性：(1)自由電子效應、(2)集體振盪與(3)能階躍遷。自由電子的模型描述金屬的色散效應；自由電子的集體振盪呈現吸收特性；入射光波的能量高時，將發生能階之間的載子躍遷，以Au為例光波的能量高於2 eV才有能階躍遷的行為。金屬的介電常數可使用「勞倫茲-杜德模型」[15,16]。

$$\varepsilon_r(\omega) = \varepsilon_f(\omega) + \varepsilon_b(\omega) \quad (2.29)$$

$$\varepsilon_f(\omega) = 1 - \frac{\xi_p^2}{\omega(\omega - i\Gamma_0)} \quad (2.30)$$

$$\varepsilon_b(\omega) = \sum_{j=1}^k \frac{f_j \omega_p^2}{(\omega_j^2 - \omega^2) + i\omega\Gamma_j} \quad (2.31)$$

ε_r 是金屬的介電常數， ε_f 是杜德模型所建立的介電常數 (2.30)， ε_b 是勞倫茲模型所建立的介電常數 (2.31)。 $\xi_p = \sqrt{f_0} \omega_p$ ，K是共振頻率的數目， ω_j 是共振頻率， f_j 是共振強度， $1/\Gamma_j$ 是生命期，以Au為例，其共振數目K=5 [17]。對於Au而言，當光波的能量小於2 eV（波長小於620 nm）時，沒有能階躍遷的機制發生，此時光波與Au的交互作用只有自由電子效應與集體振盪行為，因此杜德模型能正確的描述光波傳遞於Au的特性，但當入射光波長大於620 nm，則必須考慮能階躍遷行為，引入勞倫茲修正項。

◆ 2-2 表面電漿子的激發方法

激發表面電漿子的方式，主要可以分成兩大類。首先第一類也是最早證實表面電漿子存在的方法是利用加速過的低能量帶電粒子在真空的環境中撞擊在金屬薄膜上，然後量測撞擊過後的帶電粒子能量變化，再由這些能量變化去推測表面電漿子的能量。圖 (2-5) [19] 是電子打在金屬薄膜上後能量變化，而這層金屬上鍍著一層不同厚度的絕緣層，從這個實驗可以清楚的看出表面電漿子的能量，及其隨著絕緣層厚度的變化。

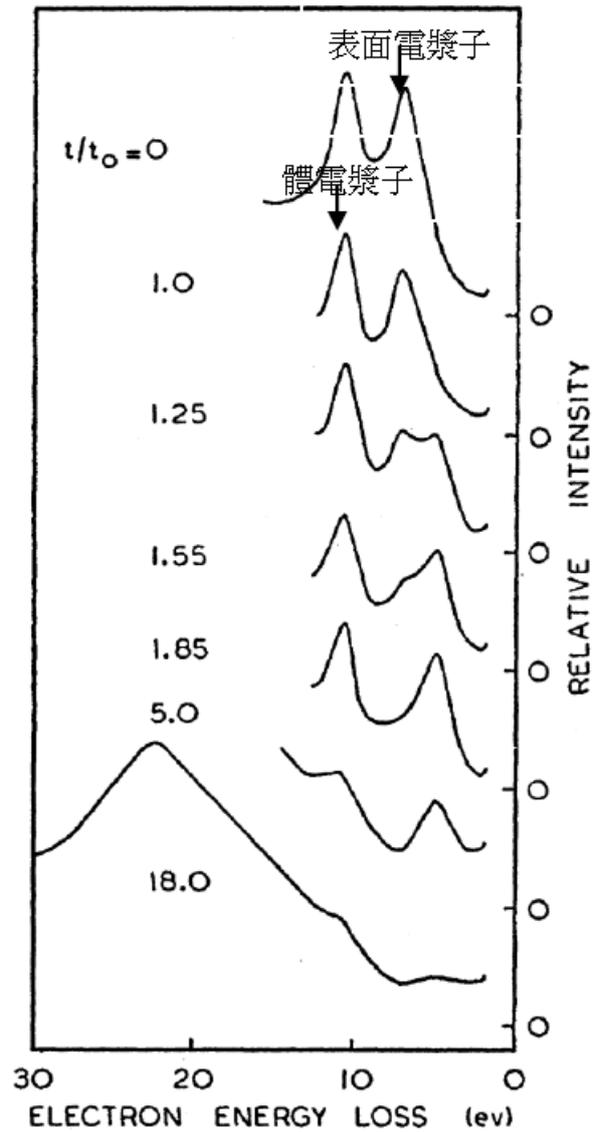


圖 2-5 以帶電粒子加速撞擊金屬薄膜後其帶電粒子能量變化圖。

第二類激發表面電漿子的方式是用光激發[20]。從(2.15)可以得知光在介質的水平方向動量永遠小於表面電漿子的動量，所以光無法直接和表面電漿子耦合，所以接下來會介紹兩種改變光水平方向動量的方法，目的在於增加入射光水平方向的動量，使下圖中空氣的色散曲線能與金屬/空氣介面SPP色散曲線能有交點，進而產生表面電漿子。

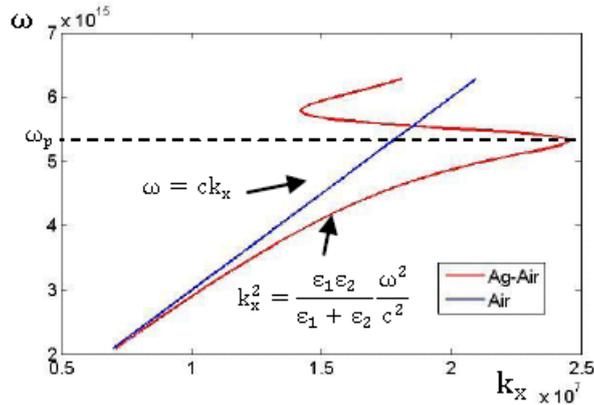


圖 2-6 紅色曲線為空氣-銀介面處的散色曲線；藍色曲線為空氣中光的散色曲線。

第一種方法是利用稜鏡改變光的水平向量。這方法主要是利用架構如圖(2-6)由 A.Otto於1968年提出[21]。當光從稜鏡射入時在三稜鏡底面由於光是從密介質到疏介質所以在特定角度以上會產生全反射，此時水平方向的動量可以表示成：

$$k_x = k_0 \sqrt{\epsilon} \sin \theta$$

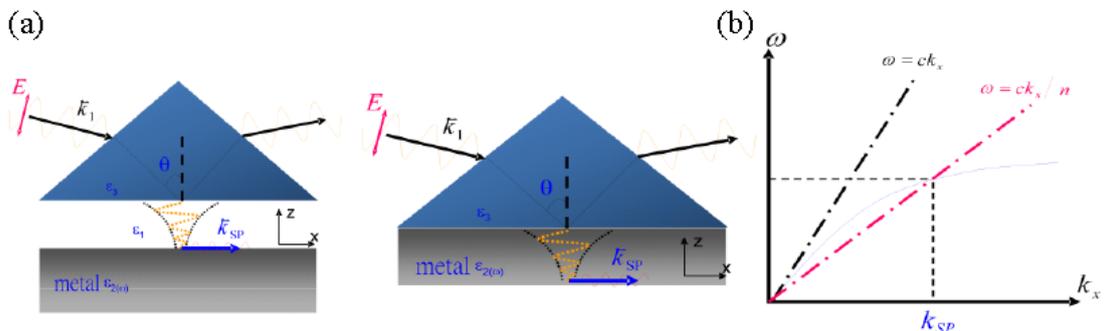


圖 2-7 (a)全反射式表面電漿激發架構。左：Otto 架構。右：Kretschmann 架構。(b)代表真空中光源的黑線在進入稜鏡後斜率會變小成為紅線狀態。

此時當角度等於一定的值時，光的水平方向動量剛好等於表面電漿子的水平方向動量。此時光就可以利用穿隧效應的方式穿過金屬與稜鏡間間隙激發金屬的表面電漿子。由於這方法是利用全反射的方式，所以又稱為衰退全反射。但是在此架構下稜鏡和金屬中間的介電層在實驗中難以精準控制，故於1971年，Kretschmann也發表另一種更易於實驗操作的稜鏡耦合方式來激發表面電漿[22]，只需在稜鏡下方均勻鍍上一層金屬薄膜即可。若金屬薄膜厚度有限則在金屬兩側將產生出兩種表面電漿模態，在邊界條件下介面處電磁場必須符合以下關係式：

$$(\varepsilon_2 k_{1z} + \varepsilon_1 k_{2z})(\varepsilon_3 k_{2z} + \varepsilon_2 k_{3z}) + (\varepsilon_2 k_{1z} - \varepsilon_1 k_{2z})(\varepsilon_3 k_{2z} - \varepsilon_2 k_{3z}) \exp(i2k_{2z}d) = 0 \quad (2.32)$$

若在 $\varepsilon_1 = \varepsilon_3$ 的情況下，上式可以被分解為互相獨立的兩個關係式

$$\varepsilon_2 k_{1z} - i\varepsilon_1 k_{2z} \tan(k_{2z}d/2) = 0 \quad (2.33)$$

$$\varepsilon_2 k_{1z} + i\varepsilon_1 k_{2z} \cot(k_{2z}d/2) = 0 \quad (2.34)$$

此二式可以由 k_x, ω 的關係解得如下

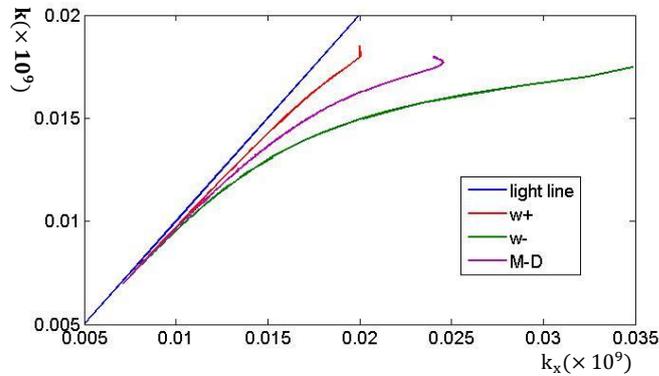


圖 2-8 銀薄膜的散色曲線($d=50$ nm)，M-D 曲線可以拆解為兩個模態 ω^+ 以及 ω^- 。

上二式分別對應到高频 ω^+ ，以及低频 ω^- 兩個共振模態，其各自共振模式可用下圖去代表。在高频模態下，電子分布在兩側不對稱振盪，因為庫倫作用力的關係振盪頻率會比較快，而在低频模態，電子分布在兩側對稱振盪，故振盪頻率會下降。

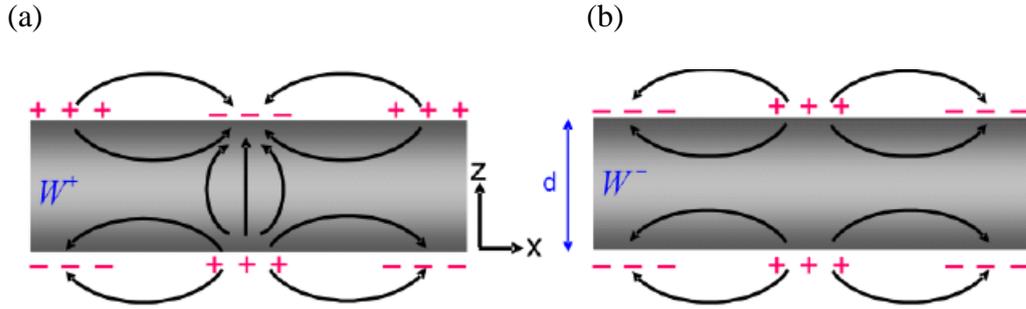


圖 2-9 金屬表面電漿共振的高頻(a)以及低頻模態(b)。[23]

而近年來Q. Zhan則提出另一種利用高數值孔徑聚焦的同軸方法，此種激發方法類似於Kretschmann架構但改以高數值孔徑物鏡配合徑向極化入射光場取代原本的稜鏡耦合方式，而數值孔徑下的最大入射角 $\theta_{\max} = \sin^{-1}(NA)$ 必須大於表面電漿的激發角度，然而徑向極化入射光場經過物鏡聚焦後即類似稜鏡耦合的TM極化入射光，如此一來在某個範圍內的入射光能量就可以被聚焦在金屬表面上，進而轉換成侷域型表面電漿的能量。採用同軸光路架構的方式不僅可以減少光路對準上產生的問題，利用高數值孔徑物鏡聚焦更能將表面電漿給侷域化，就如同為一個表面電漿所構成的虛擬探針，可以非破壞性方式對樣品進行檢測，應用於生物影像掃描時能夠大幅提升影像解析度及準確度。

而另一種用光來激發表面電漿子的方式如圖(2-10)是用光柵耦合的方式，利用光柵繞射的原理使得光的方向及動量被改變然後被繞射的光的水平方向動量與表面電漿子相同。以一維的光柵來說明的話當

$$k_{sp} = k_0 \sqrt{\epsilon} \sin \theta + iG_x \quad (2.35)$$

其中光的水平方向動量 $k_x = k_0 \sqrt{\epsilon} \sin \theta$ ，一維光柵的倒晶格向量 $G_x = \frac{2\pi}{P}$ ，P是光柵的週期， k_{sp} 為表面電漿子動量。當滿足上式的時候光就可以因為光柵的效應與表面電漿子耦合。

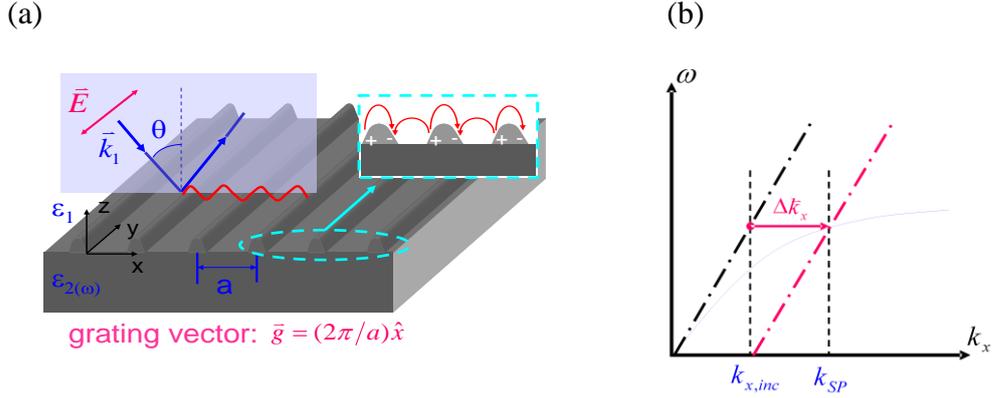


圖 2-10 (a)以光柵耦合方式激發表面電漿架構。(b)代表光源的直線因為光柵向量的關係會往右位移至較高 k_x 。

在了解表面電漿的基本理論之後，我們介紹一種方法來模擬表面電漿的發生。利用矩陣解法來處理多層膜系統往往可以簡化複雜的多層反射與透射問題。我們先假設有一道光波在介質中傳播，其電場形式如下

$$\begin{aligned}
 E &= (A_1 e^{ik_{1,x}x} + B_1 e^{-ik_{1,x}x}) e^{ik_{1,z}x} && \text{media 1} \\
 E &= (A_2 e^{ik_{2,x}x} + B_2 e^{-ik_{2,x}x}) e^{ik_{2,z}x} && \text{media 2}
 \end{aligned} \tag{2.36}$$

其中 A_1 與 A_2 代表往 x 正向傳遞的光波振幅，而 B_1 與 B_2 則表示往 $-x$ 負方向傳遞的光波振幅，基於穿透係數與反射係數在介質介面處的定義，其光波振幅強度有以下關係

$$\begin{aligned}
 B_1 &= A_1 r_{12} + B_2 t_{21} \\
 A_2 &= A_1 t_{12} + B_2 r_{21}
 \end{aligned} \tag{2.36}$$

其中 r_{12} 、 r_{21} 、 t_{12} 、 t_{21} 為 Fresnel 穿透及反射係數。

利用矩陣運算將係數 A_2 、 B_2 代入解出 A_1 、 B_1 可得到

$$\begin{bmatrix} A_1 \\ B_1 \end{bmatrix} = \frac{1}{t_{12}} \begin{bmatrix} 1 & r_{12} \\ r_{12} & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_2 \\ B_2 \end{bmatrix} = T_{12} \begin{bmatrix} A_2 \\ B_2 \end{bmatrix} \tag{2.38}$$

其中將 T_{12} 定義為介質層 1 與介質層 2 之間的轉換矩陣。然而必須注意的是介面處的穿透及反射係數是由光波的極化狀態(s 或 p)來決定的，因此問題常常可以分

解成 s 或 p 兩種情況來分別解之。

此轉換矩陣只和介質兩側特性有關，故我們假設一個在勻質介質傳播的光波形式如下，而其介質厚度為 d 繞射常數為 n 。

$$\begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} e^{-ik_z z} & 0 \\ 0 & e^{ik_z z} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A' \\ B' \end{bmatrix} = P \begin{bmatrix} A' \\ B' \end{bmatrix} \quad (2.39)$$

其中 P 定義為傳播矩陣，然而對於非損耗介質而言 P 為單位矩陣。

有了傳播矩陣 P 和轉換矩陣 T 後我們即可以利用此二矩陣來架構一個多層膜的系統如圖(2-8)所示。

其中 $(A_0 \ B_0)$ 表是在第 0 層的光波振幅，而 $(A_N \ B_N)$ 表是在第 N 層的光波振幅，他們之間的關係如下

$$\begin{bmatrix} A_0 \\ B_0 \end{bmatrix} = T_{01} P_1 T_{12} P_2 \dots T_{N-1} P_{N-1} \begin{bmatrix} A_N \\ B_N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_N \\ B_N \end{bmatrix} \quad (2.40)$$

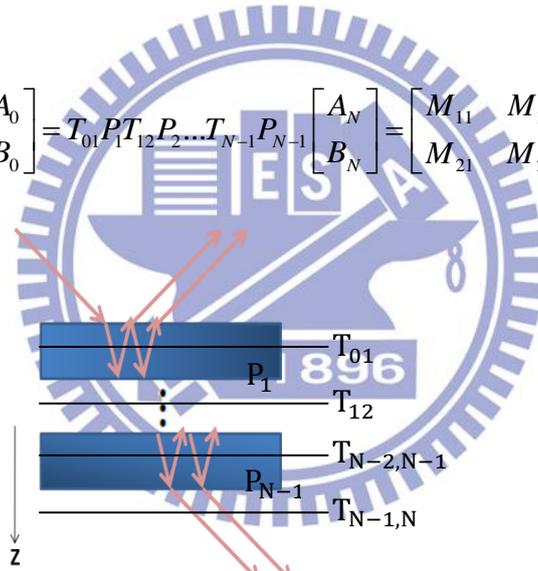


圖 2-11 多層膜矩陣法示意圖。

根據(2.40)式只要有了這個矩陣值以後，就可以解出其穿透係數和反射係數，令 A_0 代表入射光振幅， B_0 是第 0 層反射光振幅， A_N 則為最後的穿透光，在此我們令 $B_N = 0$ 使光從左側入射。

$$\begin{aligned} A_0 &= M_{11} A_N \\ B_0 &= M_{21} A_N \end{aligned} \quad (2.41)$$

可以解得穿透係數及反射係數為

$$t = \left(\frac{A_N}{A_0}\right)_{B_N=0} = \frac{1}{M_{11}} \quad (2.42)$$

$$r = \left(\frac{B_N}{B_0}\right)_{B_N=0} = \frac{M_{21}}{M_{11}} \quad (2.43)$$

接著依照這個方法，去解圖(2-10a)的多層膜結構，其中金薄膜厚度 d_2 為 50 nm，且其繞射係數 $n_1 = 9.8 + 1.965i$ 、 $n_2 = 1.5$ 、 $n_3 = 1$ 。圖(2-12b)中假設 $n_1 = n_3$ ，圖(2-10c)為沒有金屬層的情況。

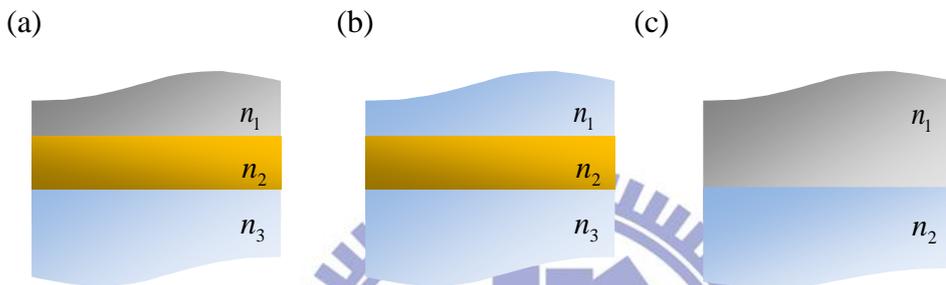


圖 2-12 (a~c) 矩陣法內的三種層狀結構。

我們將透射係數和反射係數對入射光角度繪圖，可以得到下圖(2-13)。

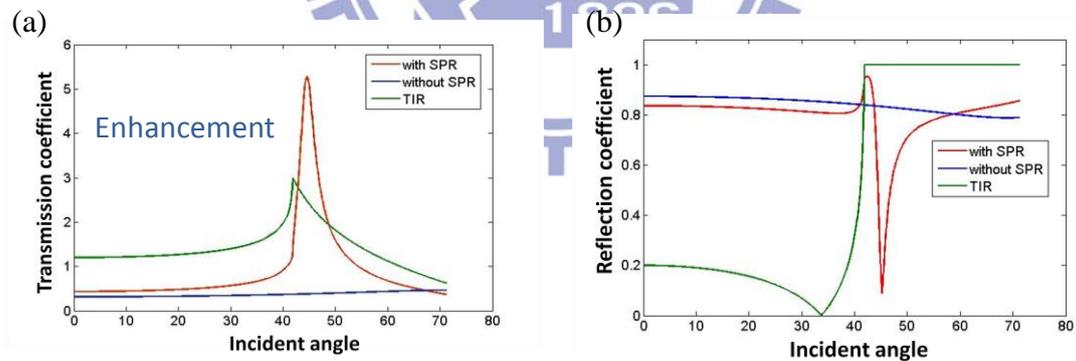


圖 2-13 對於不同結構的穿透(a)與反射係數(b)。紅線代表發生表面電漿共振，藍線代表沒有發生表面電漿共振時的情況，綠線則代表發生全反射時。

從圖中我們可以清楚發現在特定角度下入射光能量可以用以激發表面電漿，造成反射光的銳減，並且大幅增強了穿透光。而若入射光並非以能激發表面電漿的特殊角度入射，則會發生全反射。

◆ 2-3 空間非勻質極化光

一般所謂的空間勻質極化光束(spatially homogeneous polarization)代表在光束截面中的每一點具有相同偏極化，例如：線性偏極化、圓形偏極化、橢圓偏極化，可以表示如 $\overline{E(x,y)} = E_x x + E_y y$ ，而我們可以藉由 E_x 和 E_y 的比例定義各種空間勻質極化光。

然而對於空間非勻質極化光(spatially inhomogeneous polarization)而言，其表示空間中各區域位置有不同的極化態，如下圖所示，在每一個區域的極化可以表示成 $\overline{E_{li}(x_{li}, y_{li})} = E_{xli} x + E_{yli} y$ ，其中 l 和 i 表示空間中不同的區域，而整體光束的極化則可以表示為 $\overline{E_{total}(x,y)} = \sum_{i=1}^n \overline{E_{li}(x_{li}, y_{li})}$ 。

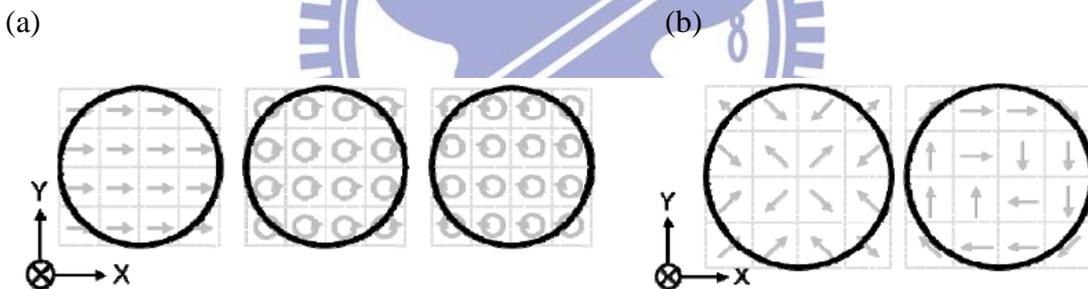


圖 2-14 (a)和(b)代表空間勻質極化光與空間非勻質極化光。

具有高度對稱偏極化的空間非勻質極化光稱之為徑向極化光(cylindrical vector beams)，由於其極化可以產生出特殊光場性質，近年來無論是理論或是實驗都已經引起廣泛的注意[24,25]。徑向極化光場的波函數通解可以拆成兩項互相獨立的分量(azimuthally polarized beam) 以及(radially polarized beam)，這兩種徑向極化光場皆具有甜甜圈狀的光強度分布如下，而電場分布型態可以表示如下式

$$\overline{E_{RP}(r,\phi)} = E_0(r)\hat{r} \quad (2-44)$$

$$\overline{E_{AP}}(r, \phi) = E_0(\phi)\phi \quad (2-45)$$

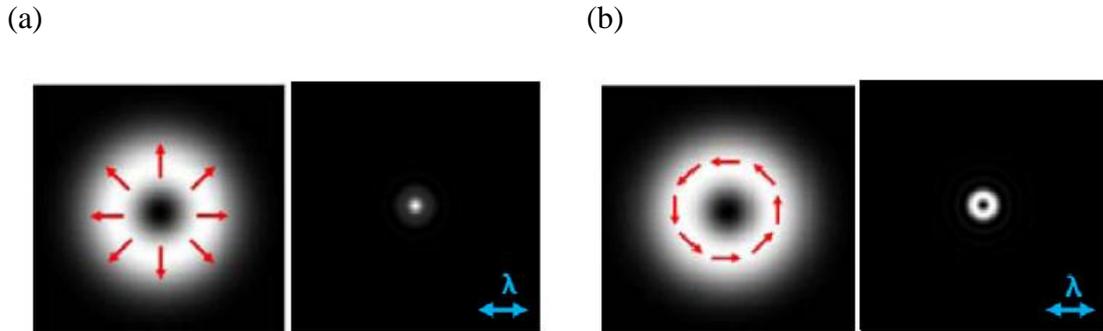


圖 2-15 徑向極化光強度分佈圖以及聚焦光點場形。(a)輻射型偏極化光。(b)角極化偏極化光。

儘管此兩種徑向極化光場具有相同軸對稱的光強分布，但是在聚焦點上的縱向電場卻有極大的差異性，高數值孔徑(NA)物鏡因為具有很強的解極化(depolarize)能力，故當輻射型徑向極化光(radially polarized beam)通過此物鏡時，將會在聚焦點產生一個很強的縱向電場分量，形成一個極小的聚焦光點，換句話說，輻射型偏極化光場通過高數值孔徑物鏡後將產生超越繞射極限的極小光點，此特殊的性質不僅可以用以增加顯微鏡掃描的解析度，更可以被應用在需多光學相關領域，例如：光鑷子[26]、光學儲存或是微影製程[27]上。相反的，(azimuthally polarized beam)在高數值孔徑物鏡的聚焦下其焦點處的縱向電場為零。必須注意的是輻射型徑向極化光在我們的同軸聚焦型系統下屬於TM波，可以用以有效激發金屬表面電漿，然而角分佈徑向極化光是屬於TE波，不能滿足表面電漿激發條件，如下圖所示。

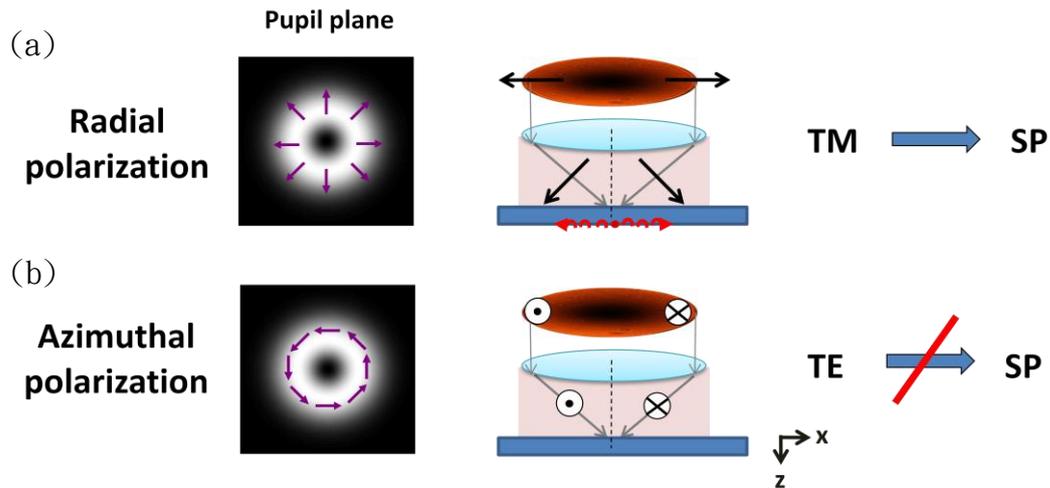


圖 2-16 入光瞳處的偏極化場形分佈。(a)為輻射型偏極化屬於 TM 波，可以激發金屬表面電漿。(b)為角偏極化光屬於 TE 波，不能激發金屬表面電漿。

徑向極化光屬於高度對稱的偏極光，目前文獻上已有許多方法可以合成，一般依照其合成法位於雷射共振腔體內部或外部分成兩大類，前者即為在雷射共振腔內加入相位調變元件及偏振片使其內部模態轉變，進而製造出我們所要的極化電場分布；而後者則在雷射共振腔體外放置液晶調變元件[28]、空間可調性延遲片[29]和次波長結構光柵[30]將線性入射光轉變成我們所要的極化行式，而本實驗室即利用此腔體外部調變的方式來產生出徑向極化光，其有兩種實驗架構可以達到，一種為藉由空間相位調製器(spatial light modulator, SLM)的麥克森干涉合成法[28,31]，利用 SLM 調變兩道雷射光束程所設計的空間相位分佈後再將之合成，利用此方法不僅可以合成出徑向極化光更可以依照所需設計出更複雜的空間非均勻質極化光。而另一種方法為利用套裝的液晶調變徑向極化光轉換器，藉由電壓調控液晶陣列配合內建的相位延遲片和微結構光柵直接將線性入射光扭轉成徑向極化光，此方法可以大幅簡化光路架構也是本篇論文實驗的方法。

線性極化合成法

任何的徑向極化光都可以分解成兩種互相垂直的特徵模態，並且可以用直角坐標系統或極座標系統來表示。在直角坐標系統中，我們可以用兩個線性極化且互相垂直的 Hermite-Gaussian modes (TEM_{10} 和 TEM_{01}) 來合成所要的徑向極化光，而其 HG 的強度分佈可以寫成下式

$$\vec{E}_1(r, \phi) = E_0(r) \cos(\phi) \quad (2-46)$$

$$\vec{E}_2(r, \phi) = E_0(r) \sin(\phi) \quad (2-47)$$

其中 r 代表相對於原點的半徑， ϕ 代表圓柱座標系統中的方位角， E_0 則是電場振幅。接著用麥克森干涉法將 x 方向極化的 TEM_{10} 和 y 方向極化的 TEM_{01} 作合成，即可得到 radially polarized beam。

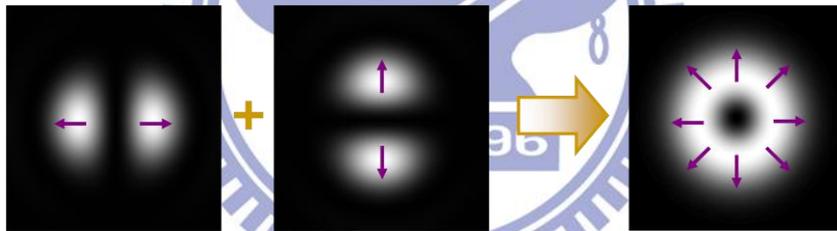


圖 2-17 藉由 X 方向線性偏極化的 HG_{10} 模態和 Y 方向線性偏極化 HG_{01} 模態合成輻射型偏極化光場。

其數學表示如下：

$$\vec{E}_{RP}(r, \phi) = E_1 x + E_2 y = E_0 [\sin(\phi)x + \cos(\phi)y] = E_0(r) \hat{r} \quad (2-48)$$

其中 x 和 y 為直角坐標系統中的單位向量。

反之，若將 y 方向極化的 TEM_{10} 和 x 方向極化的 TEM_{01} 作合成則可以得到 azimuthally polarized beam。

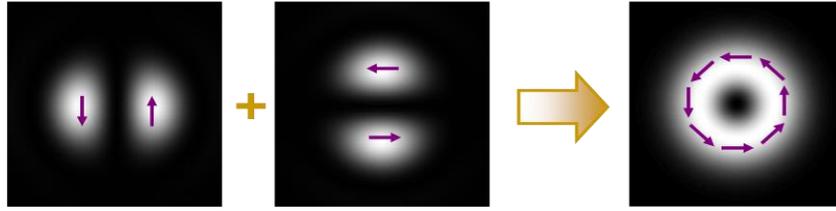


圖 2-18 藉由 Y 方向線性偏極化的 HG_{10} 模態和 X 方向線性偏極化 HG_{01} 模態合成角偏極化光場。

數學表示如下：

$$\vec{E}_{AP}(r, \phi) = E_1 y + E_2 x = E_0 [\cos(\phi)x - \sin(\phi)y] = E_0(\phi)\phi \quad (2-49)$$

總而言之，此線性極化合成法是将兩個不同強度分佈的線性極化光做合成，但在實驗上如何精準的控制強度分佈是一件不易的事情。儘管如此，我們藉由此方法可以很直觀的了解徑向極化光的合成概念。

圓形極化合成法

另一種方法則是利用兩道圓形偏極化光場作干涉來得到徑向極化光，其 Laguerre-Gaussian 分佈的左手圓和右手圓偏極化電場如下：

$$\vec{E}_1(r, \phi) = 1/2 E_0(r)(x - iy) \exp(i\phi) \quad (2-50)$$

$$\vec{E}_2(r, \phi) = 1/2 E_0(r)(x + iy) \exp(i\phi) \quad (2-51)$$

此電場具有圓形偏極化電場具有螺旋狀的相位分佈，將此二電場做相加合成可以得到 radially polarized beam。

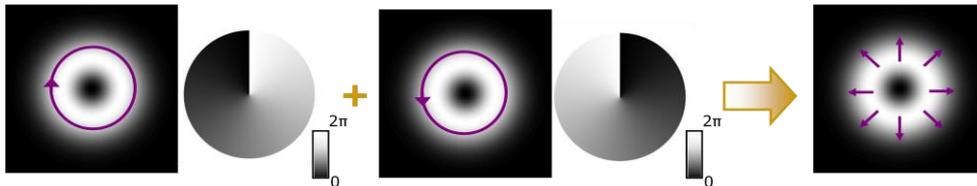


圖 2-19 藉由左手圓形偏極化的 LG_{01} 模態和右手圓形偏極化 LG_{0-1} 模態合成輻射型偏極化光場。

數學上表示為:

$$\vec{E}_{RP}(r, \phi) = \vec{E}_1 + \vec{E}_2 = E_0[\sin(\phi)x + i\cos(\phi)y] = E_0(r)\hat{r} \quad (2-52)$$

同理，若在兩個電場加上 90° 的的相位差，即可得到 azimuthally polarized beam

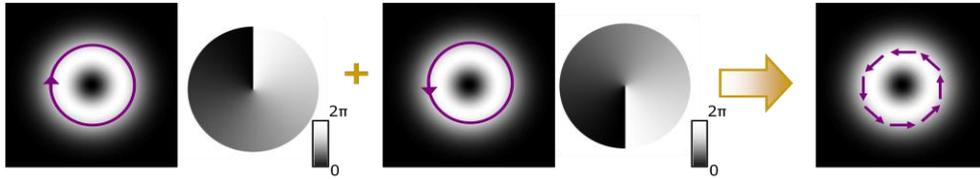


圖 2-20 藉由右手圓形偏極化的 LG_{01} 和左手圓形偏極化 LG_{0-1} 模態合成角偏極化光場。

數學上表示為:

$$\vec{E}_{AP}(r, \phi) = \vec{E}_1 + \vec{E}_2 e^{i\pi} = E_0[\cos(\phi)x - i\sin(\phi)y] = E_0(\phi)\phi \quad (2-53)$$

實驗中使用圓形偏極化合成法最關鍵的點在於相位的調變，然而藉由空間相位調製器(spatial light modulator, SLM)我們可以準確且簡易的控制兩道光的空间相位分佈進而達到我們的需求。

第三章 方向性表面電漿激發

◆ 3-1 光學架構

本實驗架構可以分兩個部分，首先是二維非勻質偏極化光的合成，接著將之導入倒立式顯微鏡並以高數值孔徑物鏡聚焦於金屬表面，透過調變二維非勻質偏極化光場，我們將可以在金屬表面激發出可控方向性的表面電漿波，最後再使用近場光學探針(scanning near-field optical microscopy, SNOM) [32]擷取金屬表面的表面電漿近場訊號，至於反射回來的迴光資訊則可以由 CCD 擷取，亦可將迴光導出顯微鏡並經過透鏡得到其傅立葉轉換的遠場訊號[33,34]。

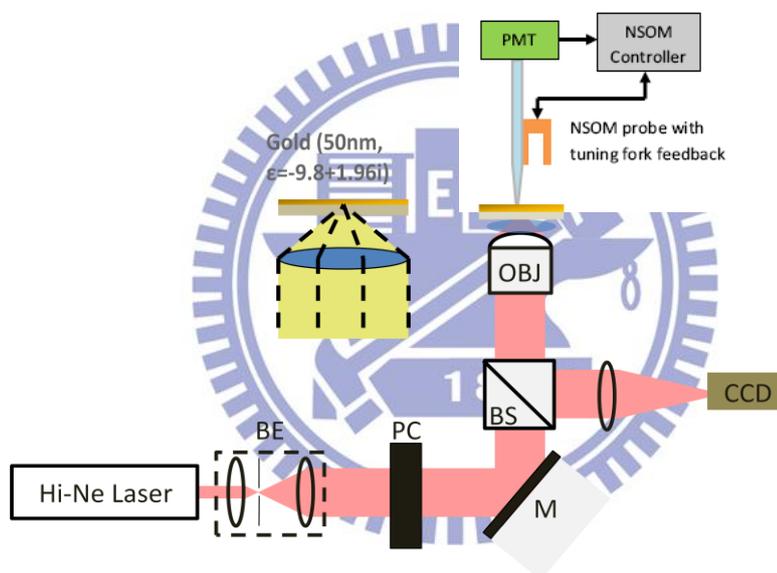


圖 3-1 同軸型徑向極化光聚焦之表面電漿激發系統實驗架構示意圖。BE:擴束系統 (beam expansion system)，PC:偏極化轉換器 (polarization converter)，M:反射鏡 (mirror)，BS:分光鏡 (beam splitter)，OBJ:物鏡 (objective)，NA=1.45。

表面電漿是入射光源、金屬材料和介電質材料三者交互作用下所產生行進於金屬表面的電磁波，因此不同的入射光源、金屬材料和介電質材料將會滿足不同的表面電漿激發條件，而激發出行為特性不相同的表面電漿，在此我們透過前章所述的多層膜矩陣法設計出在現有器材下最能夠有效激發表面電漿的環境，針對

包括入射光波長與入射角度、金屬材料與厚度、介電質材料去做模擬以選擇出一組最適合激發表面電漿的條件，以利實驗的進行。

首先我們探討不同入射光波長下金屬表面電漿的特性，並針對金和銀兩種最常被用以激發表面電漿的金屬來做模擬，從圖(3-2a)中我們可以發現當入射光波長越短時，其激發表面電漿的入射角度越大，且針對金和銀兩種金屬而言其激發波長各約為 520 nm 和 375 nm，然而當入射光波長小於其臨界值時，表面電漿將消失，此現象的主要原因是因為當波長小至臨界值時，金屬的介電常數將會由負值上升為正值，此時將無法滿足表面電漿激發條件，這也可由圖(3-2c)的散射曲線來解釋，當激發波長下降時，散射曲線的切線斜率會趨近於一，如此一來會有更多的表面電漿模態會同時被激發，這些模態們會彼此互相干擾而減弱表面電漿的強度。從圖(3-2b)發現紅光相較於綠光能夠更有效率激發表面電漿，因此我們實驗採用波長 632.8 nm 的紅光做為激發光源。

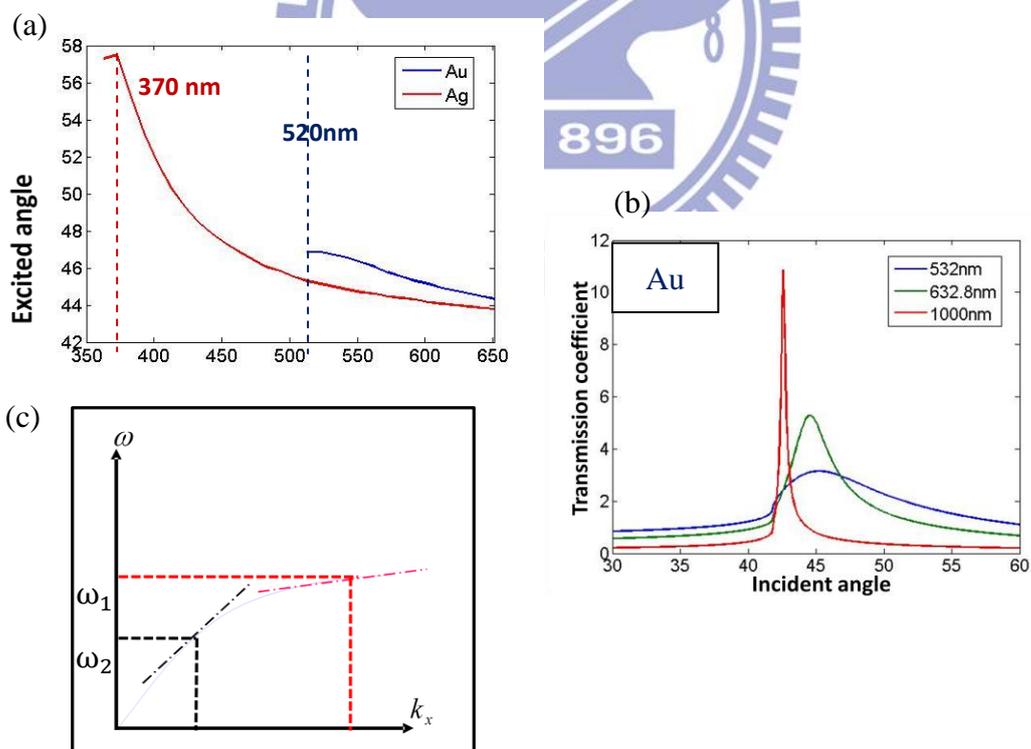


圖 3-2 (a) 表面電漿激發角度與入射光波長關係圖。藍線:金，紅線:銀。金與銀的臨界激發波長分別為 520 nm 和 370 nm。(b)金在不同波長下的穿透係數。(c)表面電漿散色曲線。

在決定入射光波長後，我們將探討金屬薄膜的選擇，一般常用來激發表面電漿的金屬有金和銀兩種，但是由於銀在空氣中較容易氧化而影響其材料參數，故我們選用金來當作表面電漿激發金屬，接下來一樣使用多層膜矩陣法針對不同厚度的金膜作反射率和穿透率的模擬，從圖(3-2bc)中可以發現當金屬薄膜為 50 nm 時最能有效率的激發表面電漿，當厚度太厚或太薄時效率都不好，這是因為當金屬厚度太厚時，從 n_0 處全反射後產生的消散波能量會被金屬層吸收而難以耦合至金屬/空氣介面，而當金屬太薄時，會因表面電漿電子雲振盪行為而將能量輻射至玻璃層，故金屬膜厚對於表面電漿激發效率會有一個最佳解。

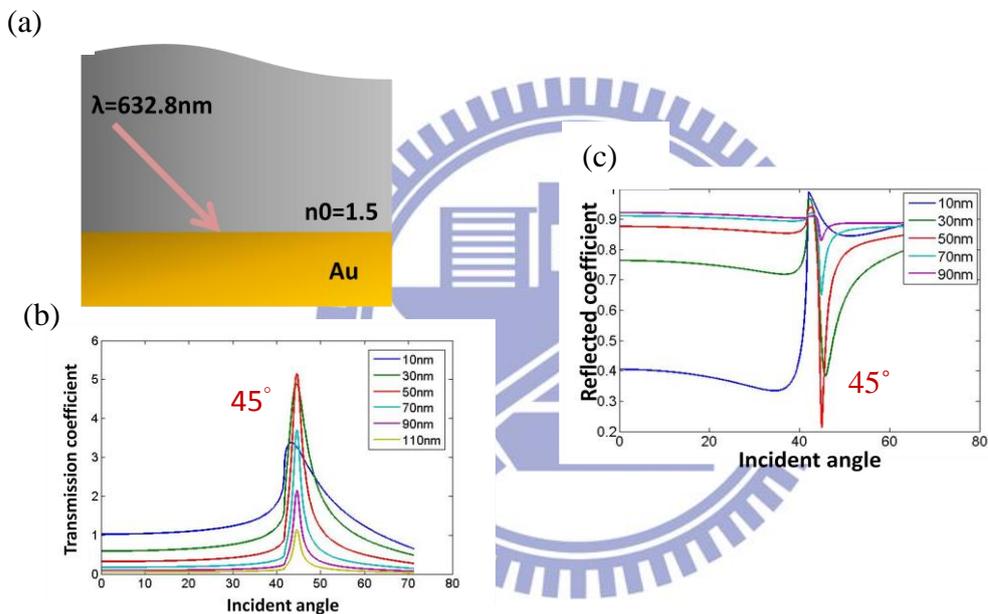


圖 3-3 (a) Kretschmann 架構示意圖。(b)和(c)為穿透係數與入射角度關係圖。表面電漿激發角度約為 45° 且 50 nm 厚的金最有利於激發。

最後我們針對金屬表面處的介電質做探討，不同介電質材料以及其厚度所形成的等效折射率參數可以對應至不同的表面電漿激發角度，根據下圖(3-4a)模型的 n_3 的材質與厚度作多層膜矩陣模擬，圖(3-4b)中可發現當 n_3 的等效折射率大於 1.45 時，表面電漿將無法被激發，這是因為對 $\text{NA}=1.45$ 的油鏡物鏡來說，此時的表面電漿激發角度已經超過了物鏡聚焦所包含的最大入射角，故無法達成激

發條件。

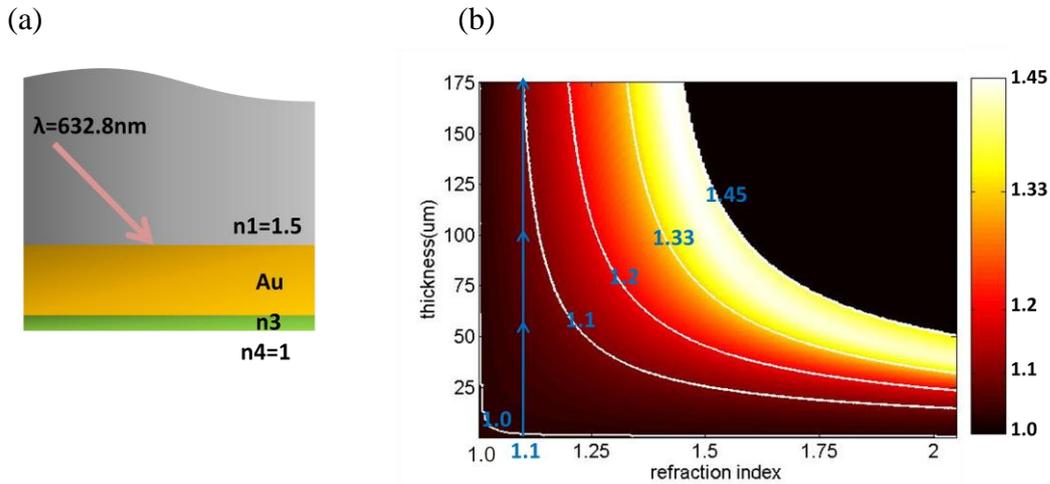


圖 3-4 (a)外加一層介電層 n_3 的 Kretschmann 架構圖。(b)物質折射率與厚度所造成的等效折射率。相同的等效折射率具有相同的激發角度。沿著藍線等效折射率漸漸趨近於 n_3 。圖右上角的黑色區塊代表著等效折射率超過 1.45 而無法激發表面電漿。

在本實驗中我們採用氦氖雷射(He-Ne laser)波長 632.8 nm 做為光源，接著通過空間濾波器擴束並準直，在將光束導入偏極化轉換器(polarization convertor)前必須先將入射光束通過偏振片，使其入射光為線性偏振光，而藉由控制 PC 的電壓我們可以得到輻射型偏極化光場，但因為光束通過偏極化轉換器後，光會因其 PC 內部結構因素而產生雜訊，故我們設置一個空間濾波器在 PC 之後，最後通過特殊幾何設計的擋板即可以得到不同的空間非勻質極化光。擋板的概念來自於角極化光場屬於 TE 波並不無法激發表面電漿，又因為實驗上難以產生一光束為部分輻射型極化、部分角極化的光場，故我們希望藉由擋板的設計使角極化光場無法通過而輻射型偏極化光場能通過來產生我們實驗所需的特殊極化光源，且我們同時也利用 FDTD 進行我們此概念的驗證，果然得到相同的 E_z 電場分佈，故證明了利用自製的八瓣的擋板的確能在金屬表面產生我們所需要的場形。

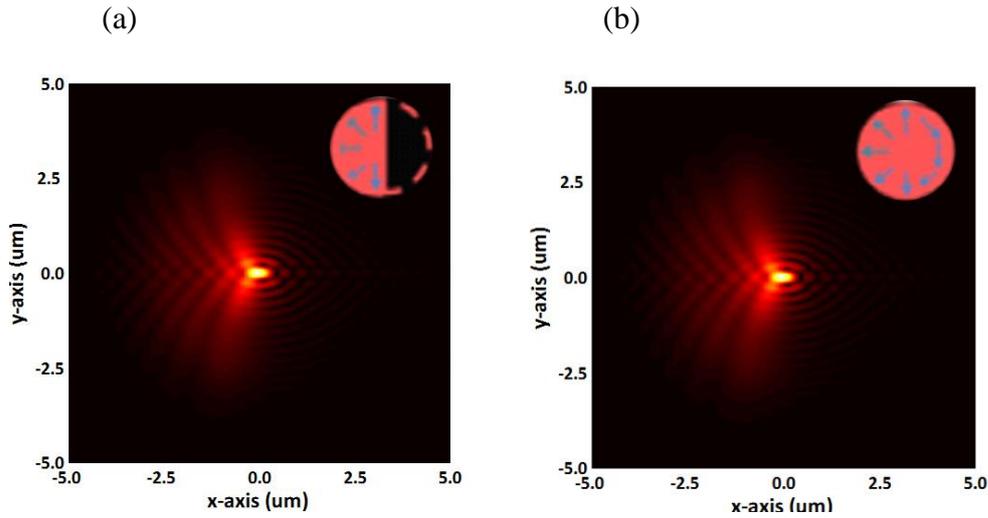
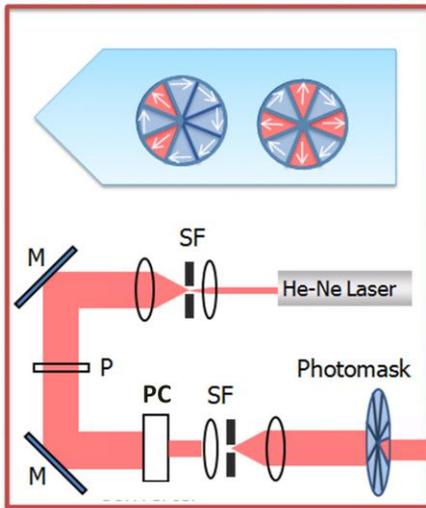


圖 3-5 非勻質極化光聚焦在金屬表面的 E_z 電場分佈圖。右上角示意圖為入射瞳極化分佈(a)表一半輻射型偏極化一半不透光，(b)表一半輻射型偏極化一半角分佈偏極化。

在產了非勻質偏極化光後，將之導入倒立式顯微鏡並以油物鏡(NA= 1.45)聚焦於金薄膜上以產生不同場形的表面電漿，最後再利用掃描式近場光學顯微鏡以無金屬光纖探針(Apertureless tip) [35]進行定高度模態(constant distance mode)的掃描以獲取金屬薄膜表面的近場光資訊。

(a) Spatially Inhomogeneous Polarized Beam



(b) Near field measurement

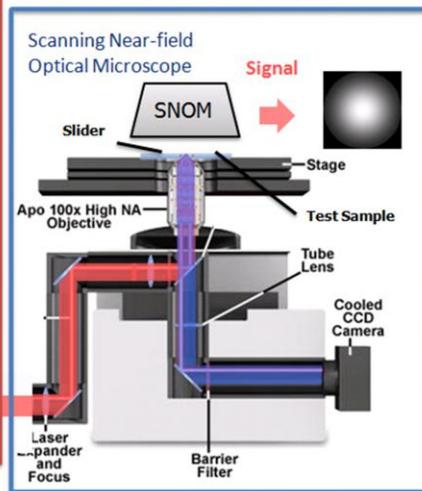


圖 3-6 方向性表面電漿激發實驗光路圖。(a)二維非勻質極化光合成。SF:空間濾波器(spatial filter)，M:反射鏡(Mirror)，P:極化片(polarizer)，PC:偏極化轉化器(polarization converter)。(b)掃描式近場顯微鏡(SNOM)量測。

偏極化轉換器：

偏極化轉換器是一種利用液晶陣列去調變極化方向的裝置，此裝置的結構可分成三個部分：相位延遲元件(retarder cell)、液晶陣列元件(twisted nematic cell)、二維微結構元件(theta cell)如圖所示，其中黑線代表微結構(rubbing)方向。

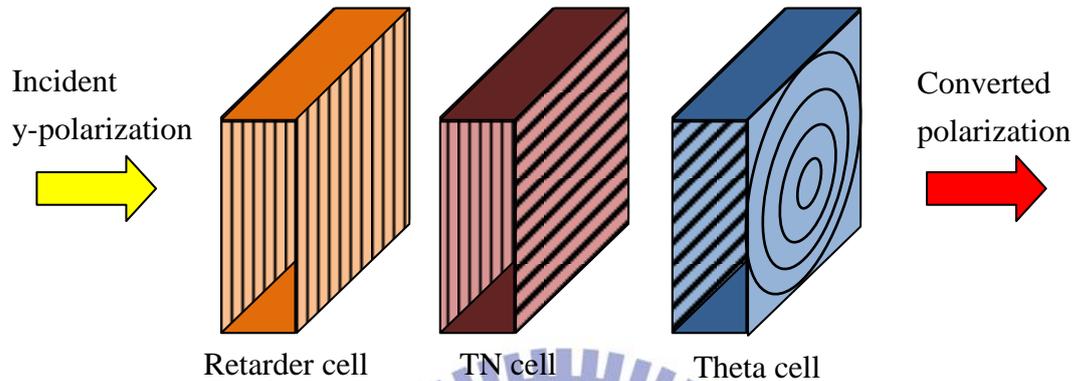


圖 3-7 液晶型偏極化轉化器基本架構。線性極化光從左側進入相位延遲原件，並隨著電壓控制液晶陣列元件改變電場方向，穿過二維結構元件後即可得到輻射型偏極化光或是角極化分佈光場。

其中二維微結構元件是能夠將線性極化光轉換為徑向極化光最主要的機構，此元件的入光面具有線性溝槽(rubbing)二維結構也就是光軸方向(cell axis)，而出光面為具有同心圓型溝槽的結構，故當此二維微結構元件的兩側結構方向互相垂直時，則藉由其內部液晶可將入射光旋轉 90° ，反之，若兩側結構方向互相平行則入射光通過後極化保持不變。

但是由示意圖可以發現當入射光通過二維結構元件後，其上半部入射光場和下半部入射光場會被旋轉至相反的兩個方向，也就是說若入射光為水平方向的偏極化，則當光經過液晶旋轉並通過同心圓溝槽結構後，上半部將產生順時針方向的極化光場，但下半部卻會產生逆時針方向的極化光場，這是因為入射光電場會選擇最小旋轉角度去沿著圓型溝槽做偏轉，但是因為上下部分極化方向的不同，在上下相交的邊界處將產生一條暗紋(defect line)，這可以使用額外的相位補償片去消去這條暗紋而得到均勻的強度分佈。然而為了產生同順時針或是逆時針的偏

時，便會經由鎖相放大器來調變探針與樣品之間的相對位置訊號，此時迴授控制器亦會驅動壓電致動器(piezoelectric actuator)以達到動態精準的控制探針於樣品上方數奈米位置處，突破所謂光學遠場繞射極限，獲得低於繞射極限的空間解析度(spatial lateral resolution)之近場光學資訊。



圖 3-9 (a) Solver SNOM。(b)倒立式光學顯微鏡 Olympus IX81。

探針可分為光纖奈米孔穴探針(Aperture tip)或是無孔式金屬尖端探針(Apertureless tip)，一般而言前者通常在照明模式(illumination mode)中使用，而後者則在收光模式中使用(detection mode)。光纖奈米孔穴探針是指在探針外圍有鍍上一層數十奈米的薄金屬層，一般常見的金屬為鋁(Al)或是鉻(Cr)，因為鋁在可見光頻段的反射係數最高，可避免光穿透出光纖外，故在照明模式中能夠有效集中光源於針尖；至於在收光模式中，外層包覆金屬的探針能夠阻擋樣品表面的雜散光影響，但相對的也會使穿透率下降增加偵測的困難度。過去文獻[35,36,37,39,40,42]顯示無孔式金屬尖端探針所量測的數值大小和樣品表面的電場強度平方成正比，但是光纖奈米孔穴探針所取得的表面資訊為何目前尚未有個統一的解答，大部分的科學家[35,39,40,42]認為所取得的訊號和無孔式金屬尖端探針所量測結果相同，只是訊號強度受探針外包覆金屬層的影響會較弱，但有另一派科學家認為所取得的訊號和外層包覆金屬的材質有相關性[38,43]，例如外層鍍金的光纖探針能夠收到表面磁場資訊[43]，而也有一派科學家[44]認為包覆金屬的光纖探針其外層金屬會與樣品表面電場作用而產生表面電漿，進而影響量測

訊號，例如鍍鋁的探針所收到的訊號和樣品表面電場梯度平方成正比[45,46]。

◆ 3-2 表面電漿物理模型

表面電漿是金屬內部電子團受入射光的電磁場變化而群體振盪所產生傳播於金屬表面的電磁波。想要了解表面電漿的特性，除了使用 FDTD 切割時間空間以馬克斯威爾方程式數值解之外，科學家們更建立了物理模型去解釋種種現象，不僅可以省下 FDTD 數值模擬所需要的大量時間及電腦資源，更能夠以物理的角度去理解表面電漿的特性。

輻射型偏極化光場與表面電漿對入射光角度的選擇性滿足了貝索光場所需的條件，故早期科學家將入射光場透過物鏡聚焦之傅立葉關係，解得了聚焦點位置的光場分佈函數，在將其乘上一角度選擇函數之概念建構了一物理模型來解釋表面電漿的現象，利用 Richards-Wolf 向量繞射理論[47,48]解出金屬表面的電場分佈：

$$E_r(r, \varphi, z) = 2A \int_0^{\theta_{\max}} \cos^{1/2}(\theta) p(\theta) t_p(\theta) \sin(\theta) \cos(\theta) J_1(k_1 r \sin(\theta)) \exp[iz(k_2^2 - k_1^2 \sin^2(\theta))^{1/2}] d\theta \quad (3.1)$$

$$E_z(r, \varphi, z) = i2A \int_0^{\theta_{\max}} \cos^{1/2}(\theta) p(\theta) t_p(\theta) \sin(\theta)^2 J_0(k_1 r \sin(\theta)) \exp[iz(k_2^2 - k_1^2 \sin^2(\theta))^{1/2}] d\theta \quad (3.2)$$

其中 $t_p(\theta)$ 是 P 波針對入射角度 θ 的穿透係數，A 是常數， θ_{\max} 由物鏡 NA 決定

$\theta_{\max} = \sin^{-1}(NA)$ ， $P(\theta)$ 是入光瞳處的 Apodization 函數； $J_m(x)$ 是 m 階的貝索函

數； k_1 與 k_2 分別為玻璃與介電值的波數。從迴光場形可以知道表面電漿激發如同

一個角度濾波器，因此穿透函數可以近似為 $t_p(\theta) = t_p(\theta_{sp}) \delta(\theta - \theta_{sp})$ ，帶回上式可

以簡化為：

$$E_r(r, \varphi, z) = 2A \cos^{1/2}(\theta) P(\theta_{sp}) \sin(\theta_{sp}) \cos(\theta_{sp}) \times J_1(k_1 r \sin(\theta_{sp})) \exp[iz(k_2^2 - k_1^2 \sin^2(\theta_{sp}))^{1/2}] \quad (3.3)$$

$$E_z(r, \varphi, z) = i2A \cos^{1/2}(\theta) P(\theta_{sp}) t_p(\theta_{sp}) \sin^2(\theta_{sp}) \times J_0(k_1 r \sin(\theta_{sp})) \exp[iz(k_2^2 - k_1^2 \sin^2(\theta_{sp}))^{1/2}] \quad (3.3)$$

在滿足表面電漿激發下 $k_2^2 - k_1^2 \sin^2(\theta_{sp}) < 0$ ，因此 E_r 和 E_z 會隨著 z 傳播而衰減，但在其橫向切面場形保持不變如同 Bessel beam 的性質[49]。

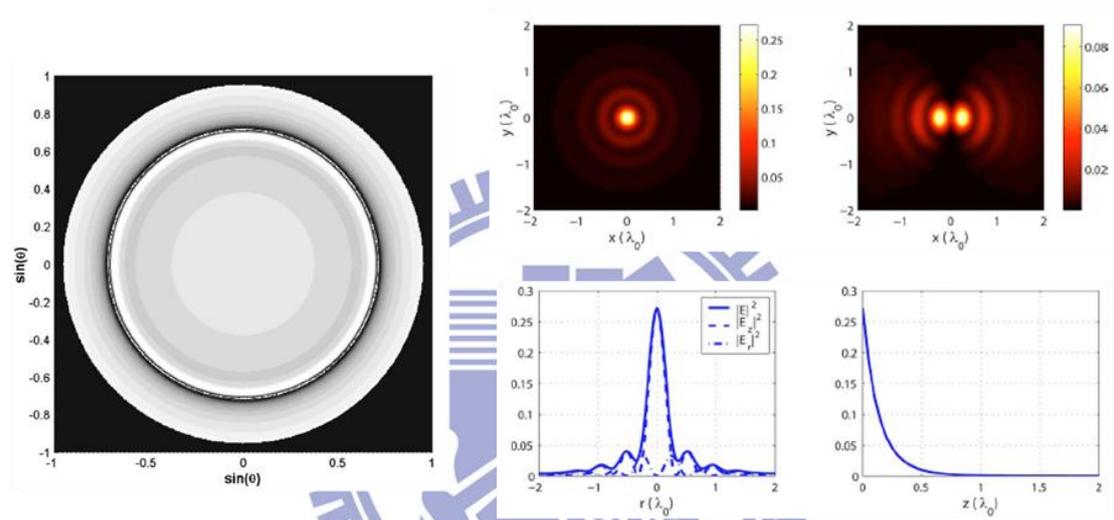


圖 3-10 向量繞射理論數值模擬結果。(a) 輻射型偏極化光場造成之金屬表面 $|E|^2$ 分佈。(b) 線性極化光場造成之金屬表面 $|E|^2$ 分佈。(c) 縱向電場 $|E_z|^2$ (dashed curve)，橫向電場 $|E_r|^2$ (dashed-dotted curve)。(d) 沿著 Z 軸衰減的 $|E|^2$ 。[49]

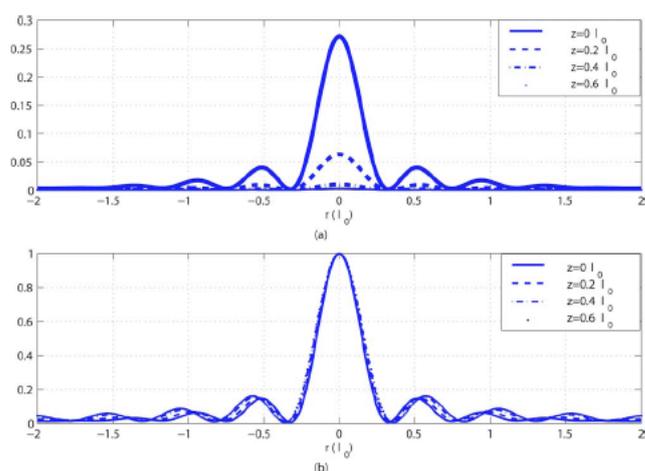


圖 3-11 (a) $|E_z|^2$ 在銀表面不同距離的橫向分佈圖。(b) 為將(a)正規化後的結果。從圖中可以發現在即使在距離銀表面不同距離的位置其 $|E_z|^2$ 的橫向強度分佈仍維持相同。

上述提供了一個相當準確易懂的模型去解釋一個全域輻射型偏極化光場在金屬表面造成的電場分佈，但是我們實驗中的入射光場屬於部分輻射型極化和部分角偏極化而非全域性激發，所產生於金屬表面具有方向傳播特性的表面電漿波，若使用上述模型架構無法正確描述其傳播，因為入射光會再聚焦點形成對稱的光場形，無法預見其在表面的方向性激發與傳播行為。

因此為了建立起我們方向性表面電漿激發並且互相干涉的行為，我們參考了一篇關於稜鏡架構表面電漿干涉行為的文獻[50]，在文獻中他們利用兩道相同頻率的雷射光，在金屬表面激發出一道往左傳播與另一道往右傳播的表面電漿波，並使兩表面波對撞並產生干涉的行為，並且他們根據此方法建立起一個簡易模型來解釋干涉條紋如下(3-12)，利用兩道平面波在起始位置相距 L 的地方反方向傳播，平面波在金屬表面傳播會逐漸衰減，且 L 的設定必須小於其表面波傳播長度才能觀察到明顯干涉條紋。

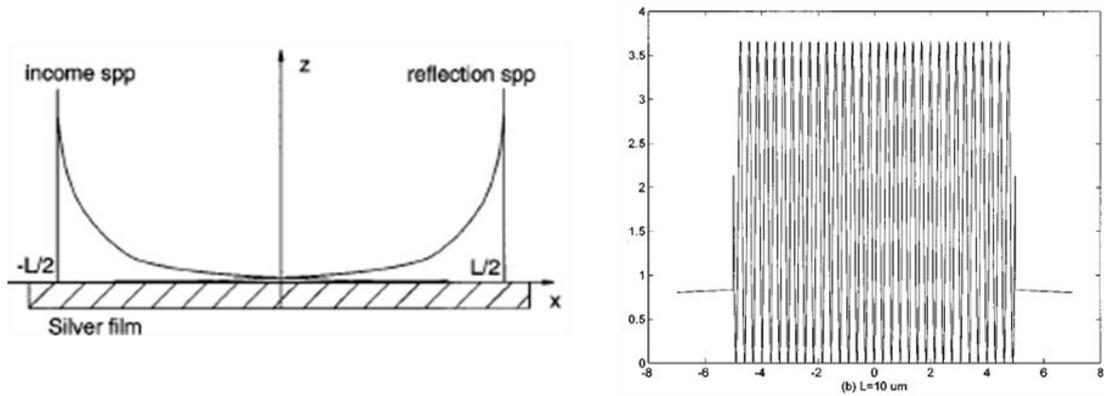


圖 3-12 (a)兩道表面電漿波對撞干涉的模型。(b)當 $L=10\ \mu\text{m}$ 時以及 (c)當 $L=10\ \mu\text{m}$ 時的干涉圖形。[50]

而在我們的實驗中，輻射型偏極化光場經過物鏡聚焦後在不同的切平面會形成一個甜甜圈形狀的強度分佈圖形如下圖(3-13)，隨著距離焦點平面越遠，甜甜圈強度分佈的半徑 L 會增大，

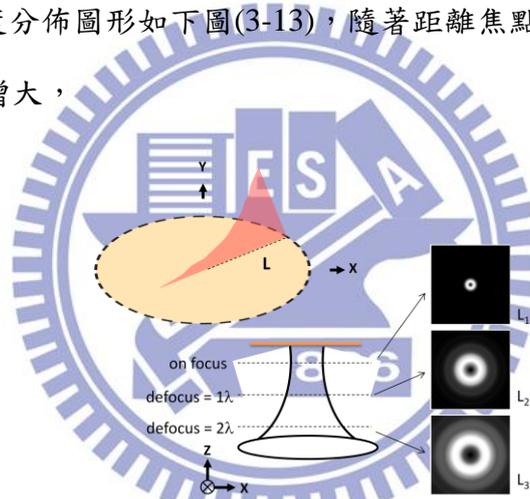


圖 3-13 輻射型偏極化場經物鏡聚焦後在不同焦平面之能量分布圖，呈現甜甜圈狀。左上角為此甜甜圈狀光場等效為金屬上的環狀表面電漿源往中心傳播示意圖。

而在金屬表面形成環狀表面電漿激發源(ring source)，依據其不同聚焦位置將表面電漿波往四周傳播(a、b)，或是往焦點中心傳播下圖(c)。

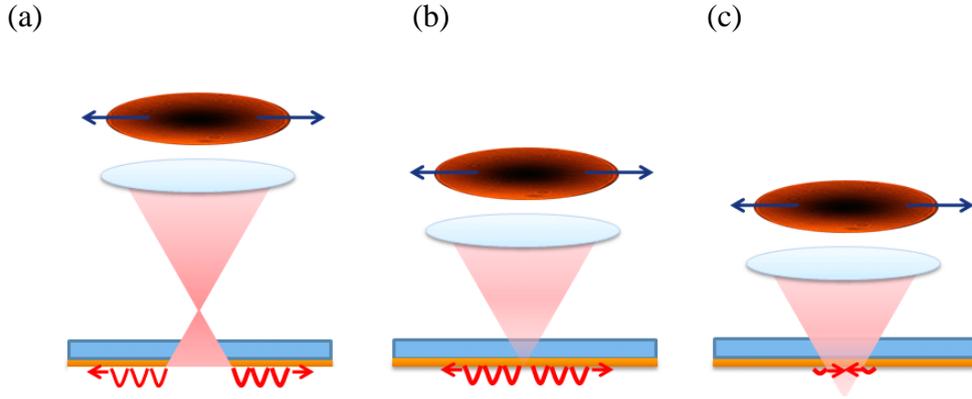


圖 3-14 輻射型偏極化光場經物鏡聚焦，並隨著不同的離焦距離，導致金屬表面電漿波傳播方向的差異示意圖。(a) $z>f$ (b) $z=f$ (c) $z<f$ 。

因此我們依照此環狀表面電漿激發源的概念，將上述文獻中的一維結構延伸為二維的結構，隨著設計入射瞳處的極化光場，可以在金屬表面對應出相對的表面電漿源並往聚焦中心傳播，我們假設表面電漿激發環上任一點 E_n 對金屬面上任一觀測點 $o(r, \theta)$ 所造成之電場表示為：

$$d = L - r_2 \cos(\theta - \theta_o) \quad (3.5)$$

$$E_n = E_0(r, \theta) e^{-\alpha d(\theta)} e^{i\beta d(\theta)} \quad (3.6)$$

$$k_{SP} = k' + ik'' = \beta + i\alpha \quad (3.7)$$

其中 d 為源點出發的平面波至觀測點的距離， $E_0(r, \theta)$ 為高斯分佈振幅，故金屬平面上某一點的電場值即為所有表面電漿源的電場在觀測點所疊加的結果，表示如下：

$$E_{total} = \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{dE_{nr}(\theta)}{d\theta} d\theta + \int_{\theta_3}^{\theta_4} \frac{dE_{nl}(\theta)}{d\theta} d\theta \quad (3.8)$$

$$I_{total} \propto |E_{total}|^2$$

其中 E_{nr} 以及 E_{nl} 分別為兩側表面電漿源的電場，而為了使我們的模型與實驗情形更符合，雖然在環形激發環源上各點的電場我們以平面波的傳播方式表示，但我們假設其電場橫向截面的振幅大小為高斯分佈函數，其表面波往原點傳播並且逐

漸衰減，而反方向部分則給予其為快速衰減的消散波而非直接令之為零，使其更為貼近自然界能量分佈行為。

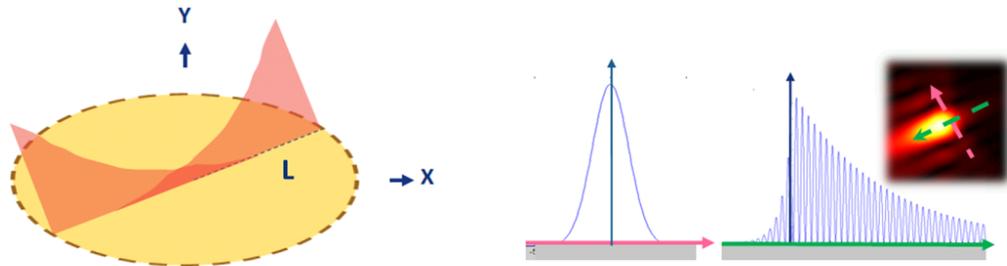


圖 3-15 干涉模型示意圖。右二圖分別為環狀表面電漿源上各點源的橫向及縱向電場剖面圖。

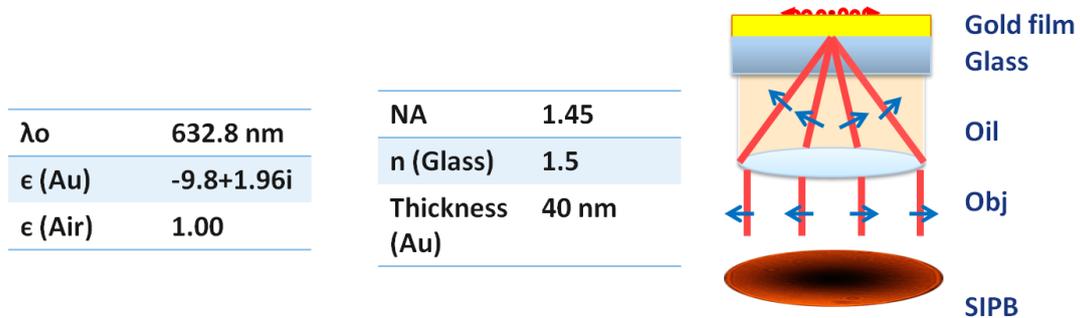
◆ 3-3 模擬與討論

在決定了實驗的各個參數後我們先採用時域有限差分法（Finite-difference time-domain method, FDTD）來進行金屬表面電漿之電場模擬，FDTD是由A. Taflove於1980年發表文章[51]所提出，是一個常用的電磁模擬技術，主要原理是將時間與空間網格化，在格點間距很小的極限情況下，將一函數的微分運算轉換成差分運算。運用在求解馬克斯威爾方程（Maxwell equation）時，給定一初始場，可模擬電磁波與材料的交互作用，與此電磁波隨時間的演化行為。此外FDTD採用全波模擬的方法，將馬克斯威爾方程式中的「法拉第定律」與「安培定律」做空間與時間上的切割，並且使用「中央差分法」對時間與空間進行偏微分，因此FDTD的模擬無任何理論上的近似，只有差分法產生的數值誤差，如格點色散（grid dispersion），可利用較精細的格點來降低數值誤差。另外，FDTD 是模擬空間中電場E與磁場H隨著時間的變化，因此可直接由電場與磁場來計算模擬區域中任何位置的資訊，不需要藉由其他轉換。

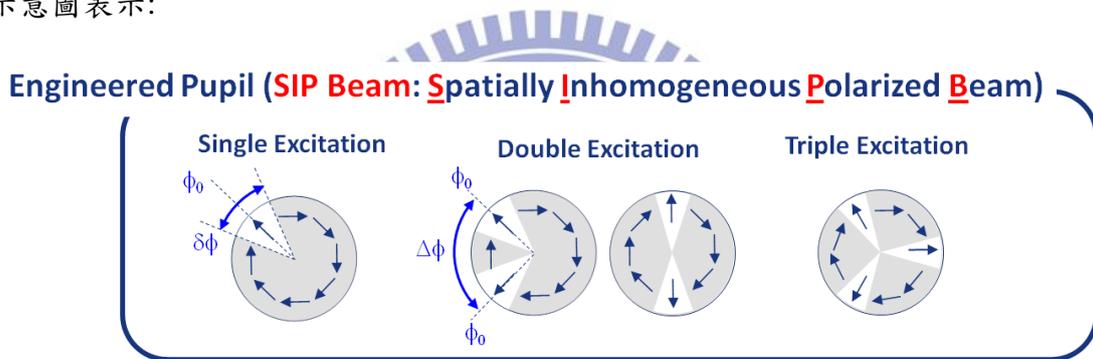
FDTD的最大缺點就是空間格點需要小於 $\lambda/10 \sim \lambda/20$ ，且時間格點必須滿足數值穩定的條件 $dt \leq 1/[c\sqrt{(1/dx)^2 + (1/dy)^2 + (1/dz)^2}]$ ，此格點切割的限制使得在模擬過程中需要大量的電腦資源，然而此缺點限制模擬空間與運算速度，因此遠場

(far field) 的現象難以被模擬，必須結合其他數值計算始能獲得遠場的資訊。

在模擬中我們採用的參數如下：



為了描述空間非勻質極化光(SIPB)中的極化分佈，我們將其各角度定義以下示意圖表示：



我們藉由改變SIPB中輻射型偏極化(屬於TM波可以激發表面電漿)和角偏極化(屬於TE波不能激發表面電漿)的比例以及相對位置(ϕ_0 、 $\delta\phi$ 、 $\Delta\phi$)，可以分別去調變表面電漿的傳播方向和激發面積，下圖模擬場形中右上角的示意圖即為SIPB的極化分佈狀況，其中灰色的區域代表角極化偏振，而白色的區域表示輻射型偏振，而模擬圖則為FDTD解出來垂直於金屬表面的電場分佈圖也就是主宰表面電漿場形的 $|E_z|$ 分量，特別注意的是實驗上我們所測量到的應該是電場強度 $|E_z|^2$ ，但為了更清楚觀測周邊電場的細微變化我們在此由 $|E_z|$ 圖形來進行解說。

從圖(3-16a)可以清楚發現當輻射型偏極化在入射瞳的左下側時，可以在金屬表面得到往其對角線位置傳播的表面電漿，而若當輻射型偏極化在入射瞳的右上側時

如圖(3-16b)，則可以得到往其對角左下傳播的表面電漿，如此一來我們發現藉由改變輻射型極化光場在入射瞳的相對位置(ϕ_0)，即可改變金屬表面電漿的傳播方向。接著我們漸漸提升輻射型偏極化光場所佔的比例($\delta\phi$) (3-16a~h)，因為入射瞳輻射型極化光場和激發面積存在著傅立葉轉換關係，故隨著輻射型偏極化光場所佔的比例越高，可以得越小的表面電漿激發面積，並且表面電漿將隨之相互干涉，而當入射光輻射型極化光場的比例達到100%時(h)，表面電漿將在中心產生共振干涉而產生往全域均勻傳播的表面電漿[52]。

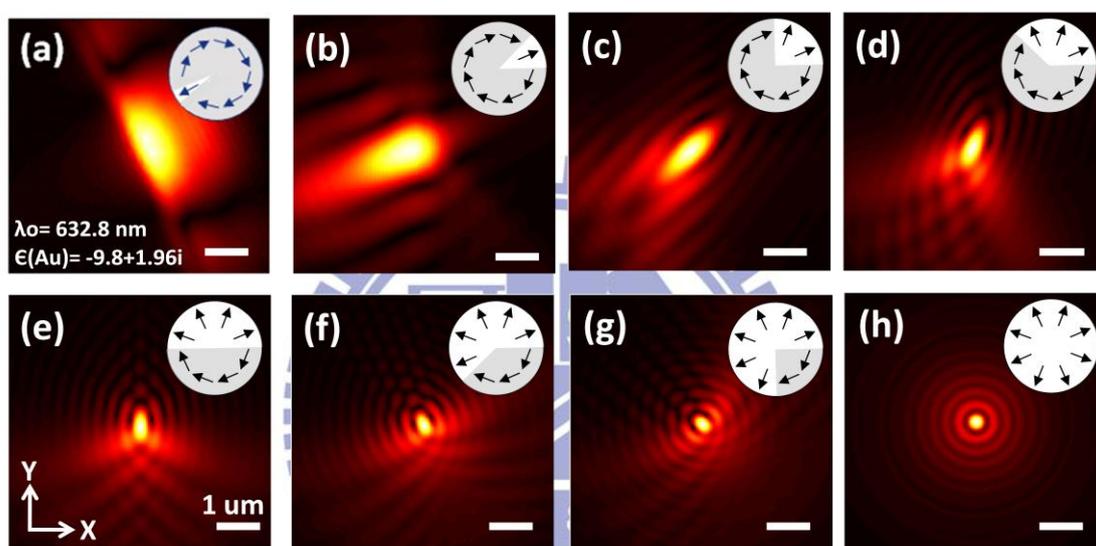


圖 3-16 表面電漿電場振幅分佈圖。(a~h) 為依序增加入光瞳處輻射型偏極化光場對角極化光場的比例，如圖右上角示意圖所示。改變輻射型偏極化光場的相對位置與大小比例可以控制表面電漿傳播方向及激發面積大小。

再者如果我們藉由入光瞳極化分佈的設計使表面電漿對撞，如圖(3-17a)，將可以產生明顯的表面電漿干涉行為，這提供了一個簡易的方法去研究表面電漿干涉以及光與金屬交互作用的基本理論，也可使兩道表面電漿波沿著特定的角度對撞(3-17b)，隨著對撞角度的設計不僅可以得到略大的干涉週期，而若藉由更複雜的入射光極化設計(3-17c)，則可使四道表面波對撞干涉，產生十字形的干涉圖形。

故在此我們可以藉由設計入射光場極化的簡易方法，即可以在金屬表面產生方向性和激發面積可控的表面電漿源，而免去以往必須在金屬表面製造奈米微結構才能達到操控表面電漿的繁複流程。

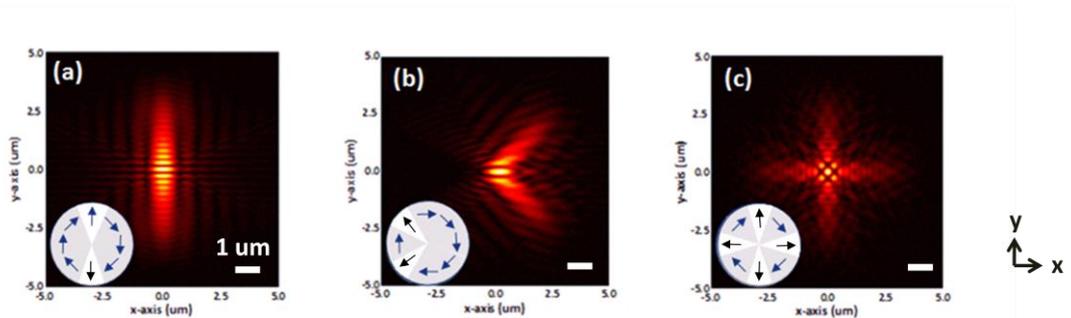


圖 3-17 表面電漿干涉電場振幅分佈圖。(a)兩道表面電漿沿 y 方向互相傳播對撞干涉。(b)兩道表面電漿以夾 90° 對撞干涉的叉狀圖形。(c)四道表面電漿對撞干涉的十字圖形。

◆ 3-4 可控方向性與激發面積表面電漿

當入射光極化分佈如下示意圖(3-18a)時，將會在金屬表面激發一道往 X 正向傳播的表面電漿波(3-18b)，其圖中左上角為 FDTD 的模擬結果，而如果縮減其輻射型偏極化光場的比例並且旋轉一個角度的話，基於傅立葉轉換關係將可以得到一個更大的表面電漿激發面積並往不同方向傳播如下圖(3-18d)，從兩張圖中都可以發現除了表面電漿所激發的主面積外，外圍還有一些雜散的表面電漿能量，這應該是表面的不平整造成的散射結果。

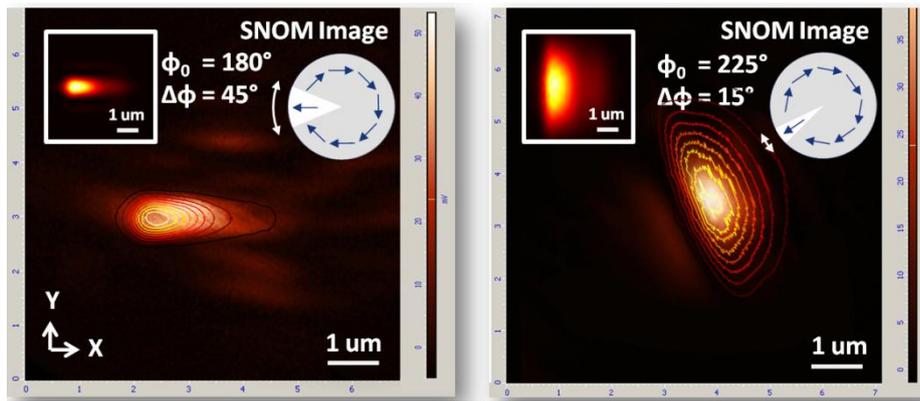


圖 3-18 SNOM 掃描到的方向性表面電漿場分佈。(a) $\delta\phi = 45^\circ$ 輻射型極化光場所激發往 X 正向傳播的表面電漿。(b) $\delta\phi = 15^\circ$ 輻射型極化光場所得具有更大激發面積且往不同方向傳播的表面電漿。

比對近場量測的實驗結果和 FDTD 的模擬結果如下，從其剖面圖可以清楚看到表面電漿激發面積的大小差異，圖(a)中可發現當激發面積較小時實驗結果與模擬較為吻合，但當激發面積較大時(b)，雖然可以量測到較大的激發面積，但卻不如模擬結果大，我們認為這是因為當激發面積較小時，表面電漿能量較高且與金屬接觸面積較少，故能量被金屬吸收或受表面粗糙度而散色的比率較低，但當激發面積增加時，此時入射光只有少量比例能用以激發表面電漿，在金屬表面上能量較弱且發散，能量易損耗於金屬內部，故實驗上無法量測到如模擬預期般大的激發面積，但整體而言其趨勢和我們的預期是一致的。

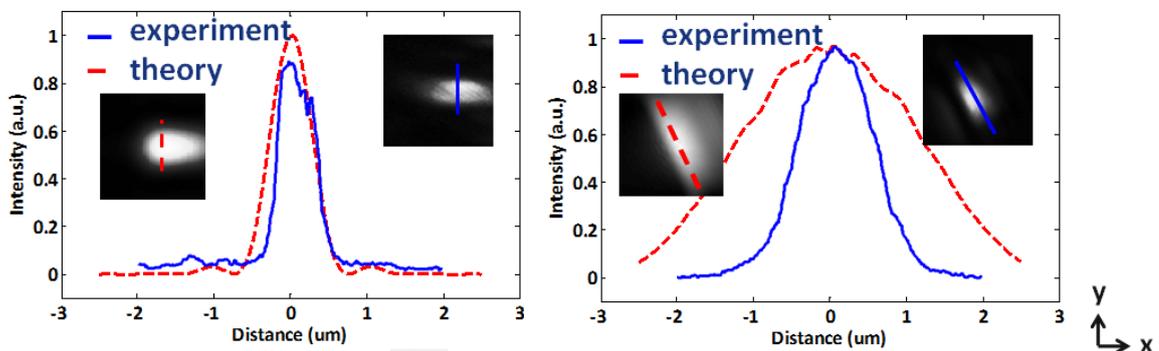


圖 3-19 比較 FDTD 模擬與近場量測結果之剖面圖。(a) 10° 輻射型極化光場。(b) 45° 輻射型極化光場。藍線:實驗值，紅線:模擬值。

除此之外我們也測量其表面電漿的傳播長度如下圖(3-14)，實驗與模擬比較結果相當吻合大約可以在金屬表面傳播約 2 微米，傳播長度主要取決於入射光波長以及在金屬內部的損耗。

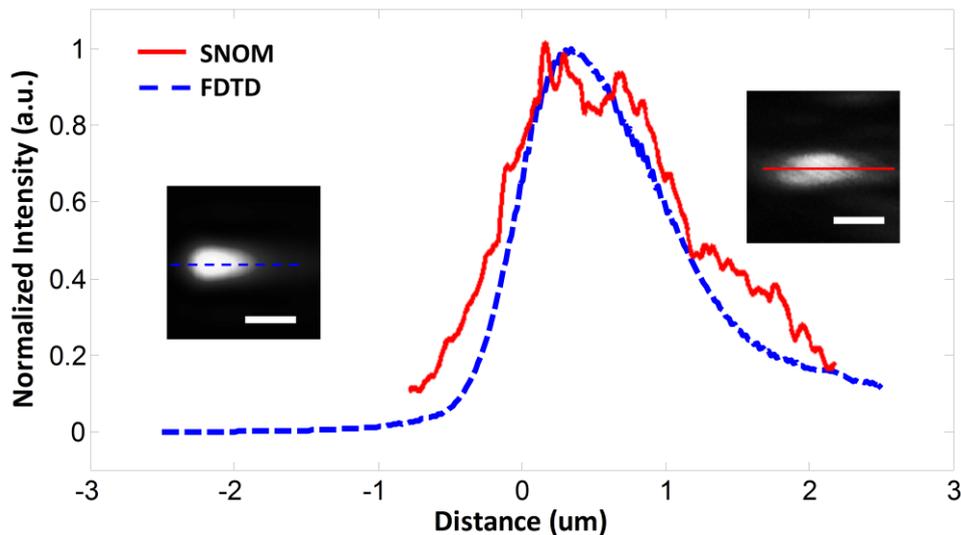


圖 3-20 比較 FDTD 模擬與近場量測結果之縱向剖面圖。藍線：模擬值，紅線：實驗值。

除了單方向表面電漿積發外，我們也可以利用調變入射光極化分佈來產生多道表面電漿積發，當入射光極化分佈如圖(3-11b)左下角示意圖時，我們可以得到 $\Delta\phi = 45^\circ$ 角的兩道表面電漿波，但由於在聚焦(on focus)情況時會產生表面電漿的干涉行為，將之略微離焦(defocus)可以明顯分開兩道表面電漿而減少其干涉行為而得到以下的圖形(3-15)。而相同原理我們也可以於金屬表面產生三道表面電漿往外傳播如圖(3-16)。利用此法達到多道表面電漿激發是一個很嶄新的概念，因為以往不管是同軸聚焦型光路架構或是 Kretschmann 稜鏡全反射架構都只能產生單道表面電漿波，相信此技術對於光積體電路、光波導或是微影製程術都能有很大的幫助。

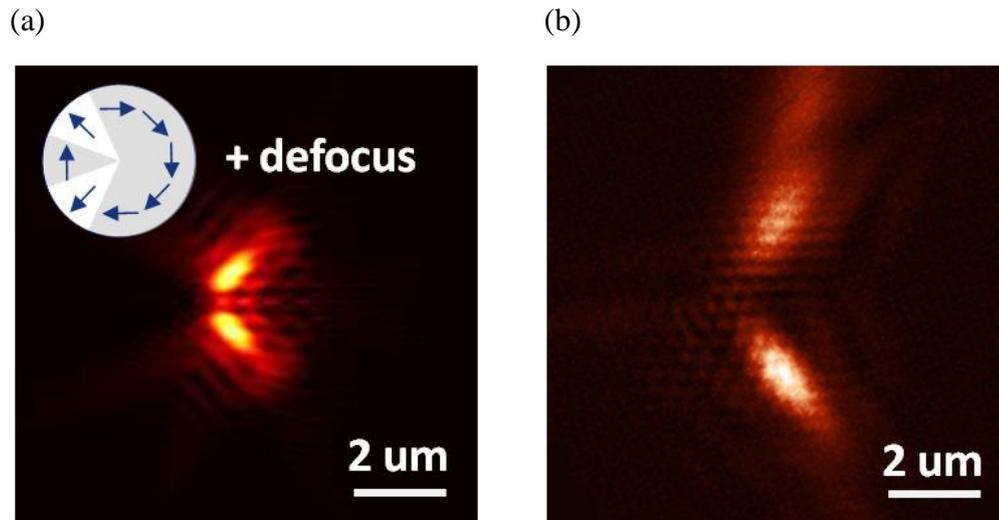


圖 3-21 利用入射光極化分佈設計(a.左上角示意圖)在離焦(defocus)的情況下同時產生兩道表面電漿波往外傳播。FDTD 模擬圖(a)與近場 SNOM 量測圖(b)。

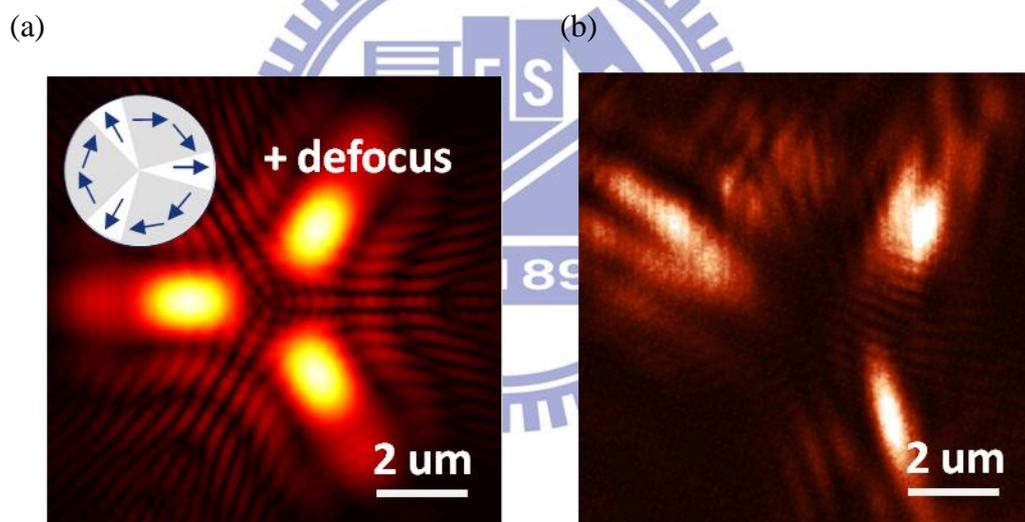


圖 3-22 利用入射光極化分佈設計(a.左上角示意圖)在離焦(defocus)的情況下同時產生三道表面電漿波往外傳播。FDTD 模擬圖(a)與近場 SNOM 量測圖(b)。

第四章 自相性表面電漿干涉

◆ 4-1 基本干涉理論

一道單一頻率的光在空間中傳播時，空間電磁場分佈依簡單正弦函數分佈。光有振幅，振幅的平方和光的亮度成正比，光也有相位，光的相位決定它振動的波峰和波谷位置，在各種波動相關的現象中，干涉現象是最重要的特徵。兩道相同頻率的光互相干涉時，可以在屏幕上顯示亮暗相間的干涉條紋，這是兩道光在進行建設性干涉(亮紋)及破壞性干涉(暗紋)的結果。在光學中同調性是兩道光互相干涉程度的指標，當兩道相同頻率單色光高度同調時，他們的相對相位是穩定的，會產生穩定的干涉條紋，如果兩道光在銀幕的一點是同相的，就會形成建設性干涉，顯示亮紋。相反的，如果兩道光在銀幕某一點是反相的，就會形成破壞性干涉，顯示暗紋。如果兩道光是不同調的，他們之間的相對相位會非常迅速的變化，不會產生明顯穩定的干涉條紋，只會均勻的照亮屏幕。

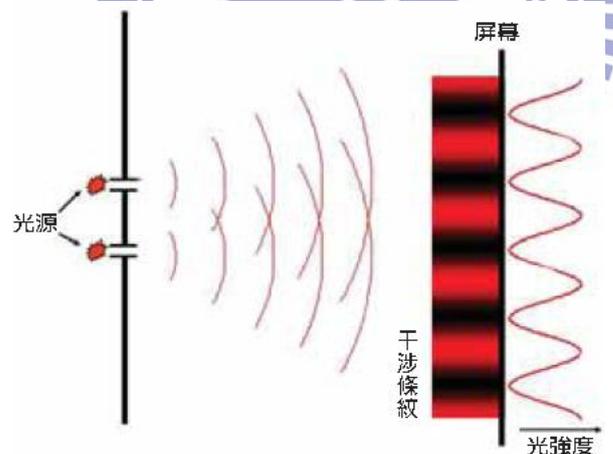


圖 4-1 雙狹縫光干涉示意圖。

以下以數學推導干涉行為，首先將最基本的兩道平面波電場表示如下：

$$\vec{E}_1 = E_{01} \cos(k_1 \cdot r - \omega_1 t + \phi_1) \quad (4.1)$$

$$\vec{E}_2 = E_{02} \cos(k_2 \cdot r - \omega_2 t + \phi_2) \quad (4.2)$$

接著將兩道光相加得到其整體行為，

$$\vec{E}_1 = \vec{E}_1 + \vec{E}_2 \quad (4.3)$$

$$I_t = \left| \vec{E}_1 \right|^2 + \left| \vec{E}_2 \right|^2 + 2 \langle \vec{E}_1 \bullet \vec{E}_2 \rangle \quad (4.4)$$

而其中式(4.4)右側第三項即為干涉項，接下來考慮兩道光相對方向，當兩道光互相垂直時干涉相為零，此時不會有干涉行為產生，但當兩道光具有平行分量時

$\vec{E}_1 \bullet \vec{E}_2$ 可以表示如下：

$$\begin{aligned} \vec{E}_1 \bullet \vec{E}_2 &= E_1 E_2 \cos(k_1 \bullet r - w_1 t + \phi_1) \cos(k_2 \bullet r - w_2 t + \phi_2) \\ &= 1/2 E_1 E_2 \{ \cos(w_1 t + w_2 t) \cos(A + B) + \\ &\quad \cos(w_1 t - w_2 t) \cos(A - B) + \\ &\quad \sin(w_1 t + w_2 t) \sin(A + B) + \\ &\quad \sin(w_1 t - w_2 t) \sin(A - B) \} \end{aligned} \quad (4.5)$$

若當 $w_1 \neq w_2$ 時，上式中之 $\sin(w_1 t + w_2 t)$ 與 $\cos(w_1 t + w_2 t)$ 在時間平均下的值為零，而 $\cos(w_1 t - w_2 t)$ 與 $\sin(w_1 t - w_2 t)$ 不為零，若要由偵測器觀測到其干涉條紋必須滿足：

$$\frac{2\pi}{w_1 - w_2} \gg T (10^{-3} \sim 10^{-10} s) \quad (4.6)$$

其中 T 為偵測器所能偵測的最小變化週期，一般約為 $10^{-3} \sim 10^{-10} s$ ，故假設使用的偵測器所能針測的最小變化週期為 $10^{-9} s$ 且 $w_1 = 500 \text{ nm}$ ，則 w_2 須滿足 $w_2 = 500 \text{ nm} \pm 0.00083 \text{ nm}$ ，換句話說我們可以了解若要觀測到兩道光的干涉行為，此兩道光必須具有幾乎完全相同的頻率。

金屬表面電漿的干涉行為其實和上式推導大致相同，只是在表面波在金屬上傳播會多一個衰減項，故同理當兩道金屬表面電漿沿著 X 軸分別從 $x = -L/2$ 及 $x = L/2$ 往原點時可以表式成下式：

$$I(x) = \left\{ E_1 e^{(i \text{Re}(k_{sp}) - \text{Im}(k_{sp}))(\frac{L}{2} + x)} + E_2 e^{(i \text{Re}(k_{sp}) - \text{Im}(k_{sp}))(\frac{L}{2} - x)} \right\}^2 \quad (4.7)$$

當 $|E_1| = |E_2|$ 時可以簡化為：

$$I(x) = 2I_0 e^{-\text{Im}(k_{sp})L} [\cosh(2 \text{Re}(k_{sp})x) + \cos(2 \text{Re}(k_{sp})x)] \quad (4.8)$$

由上式可知道兩道無限大平面表面電漿波在金屬表面同項對撞干涉之週期:

$$T = \lambda_{spp} / 2 \quad (4.9)$$

4-2 表面電漿干涉模型討論

根據方程式(3.8)以Matlab執行之，在光源632.8 nm之Lorentz-Drude model下， $\epsilon_{Au} = -9.7997 + 1.9649i$ ，入射偏極化光場如 $k = 10.45 + 0.1i \text{ (1/um)}$ 下圖(4-2)為45°對稱的輻射型偏極化光場，依序改變L的長度為0.5 um、0.75 um、1 um、1.5 um，可以得到以下干涉圖形(4-2)並將之與FDTD 模擬結果做比較，可以發現當L 越大時，也就是金屬薄膜遠離焦點平面並且等效表面電漿環的半徑越大，其間干涉條紋數越多，但干涉週期與條紋相對位置均不改變，此現象與表面電漿干涉相關文獻[53]所得結果相同。當L=0.75 um 時我們的模型與FDTD 模擬在聚焦點的結果有最好的近似，故我們選擇L 參數為0.75 um 來進行後面的模擬。

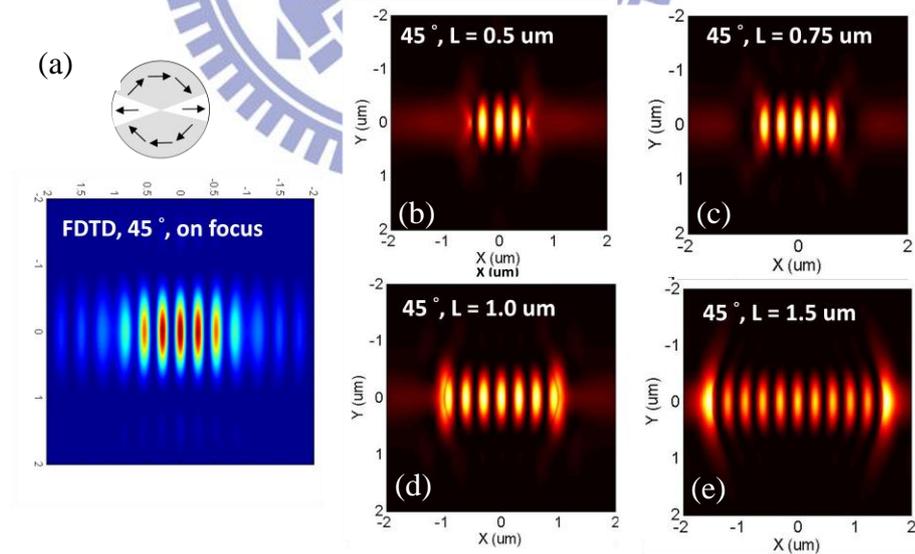


Fig. 4-2 45°表面電漿對撞激發的FDTD模擬圖(左)以及不同環形半徑(L)下以本模型所得到的電場強度分佈圖。(b) L=0.5 um (c) L=0.75 um (d) L=1.0 um。(e) L=1.5 um。

接著討論當輻射型偏極化光場為 15° 與 30° 的情形，在此可以觀察到當輻射型偏極化所占角度越小，橫向(Y)能量分佈越廣，此現象無論在實驗、FDTD 模擬以及我們所建立的模型都相當一致，其剖面圖可以發現模型與 FDTD 結果在中心位置干涉條紋相當吻合，但當觀測位置越遠離中心兩者週期越不吻合，我們認為這誤差是因為雖然入射角在 θ_{sp} 時入射光能量能夠最有效率的被轉換為表面電漿，但事實上能夠激發表面電漿的角度是一個有限的範圍，隨著入射角越遠離 θ_{sp} ，入射光轉換為表面電漿效率越低，而不同入射角的入射光可以激發出不同 k_{sp} ，不同 k_{sp} 在表面上即可對應至不同的干涉週期。

此外我們也發現中心干涉週期與外圍的干涉週期不同，離中心越遠處干涉週期越大，這是因為入光瞳處輻射型偏極化光場並非無限小，故在金屬表面上並非只有兩道反向 k_{sp} 對撞的表面電漿干涉，而還存在著其他組夾著某個角度的 k_{sp} 干涉，隨著兩道 k_{sp} 之間的交角越大，干涉週期也會越大。

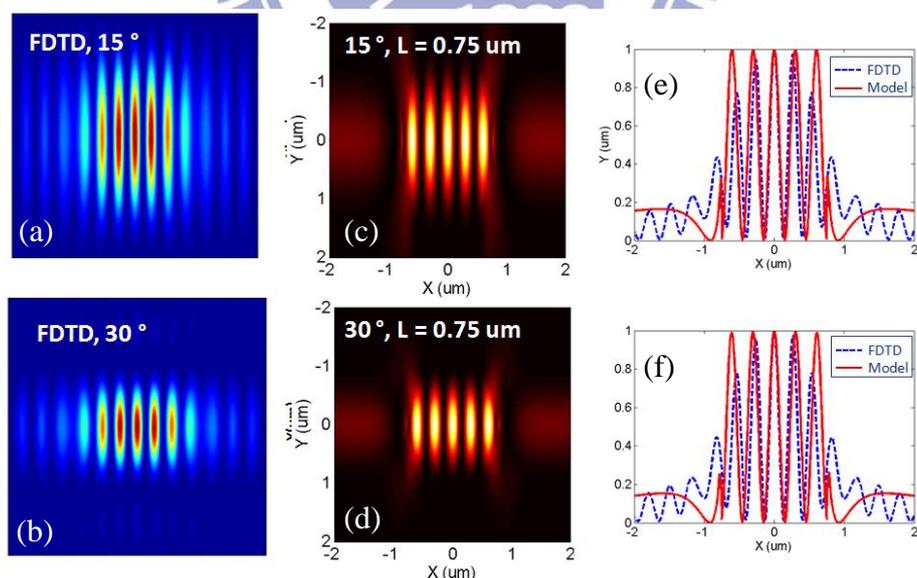


圖 4-3 15° (a)與 30° (b)表面電漿對撞激發的 FDTD 模擬圖與本模型所得到的電場強度分佈圖(c、d)，及其橫向剖面圖(e、f)。

最後我們比較不同比例之輻射型偏極化光場在金屬上所造成的表面電漿干

涉結果，模型與 FDTD 模擬結果都顯示當輻射型偏極化光場所占比例越高，其干涉週期越大，且距離中心越遠此現象越明顯，與我們上述的推論吻合。

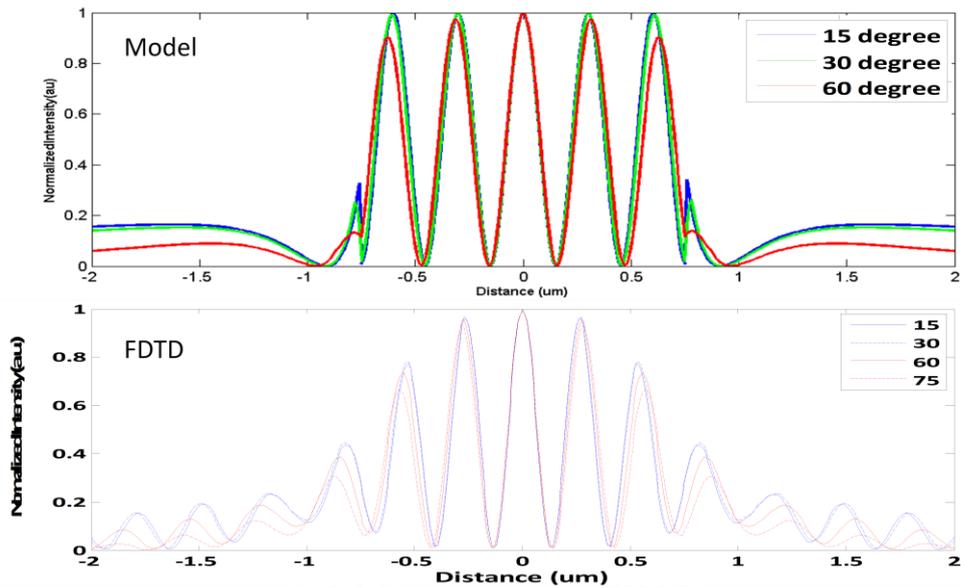


圖 4-4 分別比較本模型(上)與 FDTD(下)在不同角度大小的輻射型偏極化下所造成的表面電漿干涉橫向剖面圖。可以觀察出隨著輻射型偏極化光場所占角度越大，表面電漿干涉週期會略升，且越往兩旁差異化越大。

最後必須一提的是我們的模型並無法預測觀測點在 L 之外的場形，至於 L 內的場形和實際情況仍有少許誤差仍需改進，雖然此模型還有很大的改良空間，但我們認為整體而言這個模型的概念對於我們了解表面電漿的行為已經有相當程度的幫助。

◆ 4-3 自相性表面電漿干涉

在本實驗中我們採用同調性極高的氬氫雷射作為光源，故能夠在金屬表面激發出高度同調的表面電漿波，藉由設計入光瞳的極化分佈，我們能夠在金屬表面上激發出兩道表面電漿並使之對撞，進而產生穩定的干涉條紋，下面我們依序設計了 15° 、 45° 、 75° 的輻射型偏極化以產生表面電漿對撞干涉。輻射型偏極化所占角度越小，在金屬表面上能產生越接近無限大平面表面電漿波干涉，而隨著角

度的增大還會伴有其他非180°對撞的表面電漿干涉影響，也就是當 k_{sp1} 和 k_{sp2} 方向之夾角不為180°所產生不同週期干涉的影響。

下圖(4-5)為15°輻射型偏極化產生表面電漿對撞干涉，從SNOM所得到的近場資訊圖可以發現其橫向(Y)之能量分佈延伸較長，這現象與兩道無限大平面表面電漿波對撞之結果較為類似，但因為在實驗上難以達到兩角度無限小之輻射型偏極化，故在此我們僅以15°輻射型偏極化產生表面電漿干涉來近似兩道無限大平面表面電漿波對撞結果。比較剖面強度分佈圖可以發現近場實驗圖形之週期與FDTD模擬結果相當接近，近場實驗圖形之干涉周期約為553 nm，而FDTD所模擬出的干涉週期為550 nm。

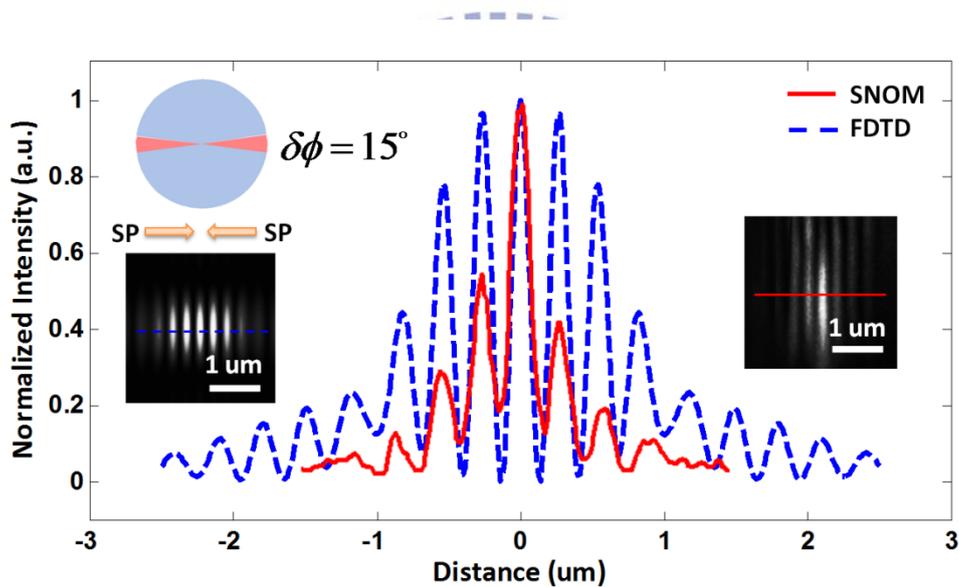


圖 4-5 15°輻射型偏極化光場聚焦於金屬表面產生之表面電漿干涉圖。左上角為入光瞳處之光場極化分佈示意圖，紅色:輻射型偏極化，藍色:角偏極化。左側方框為FDTD模擬結果;右側方框為SNOM量測結果。

其次我們也模擬45°、75°輻射型偏極化以產生表面電漿對撞干涉，從實驗圖與模擬圖可以清楚看到當輻射型偏極化光所占角度越大時，其橫向能量傳播越短，平均干涉週期略增，並且干涉中心週期與外側週期之差異越來越大，干涉行為更複雜，我們認為這是因為隨著輻射型偏極化光所占角度越大，在金屬表面上會產生

更多方向之 k_{sp} 往中心傳播，而這些不同方向的 k_{sp} 將會在金屬表面上產生更複雜的干涉結果。

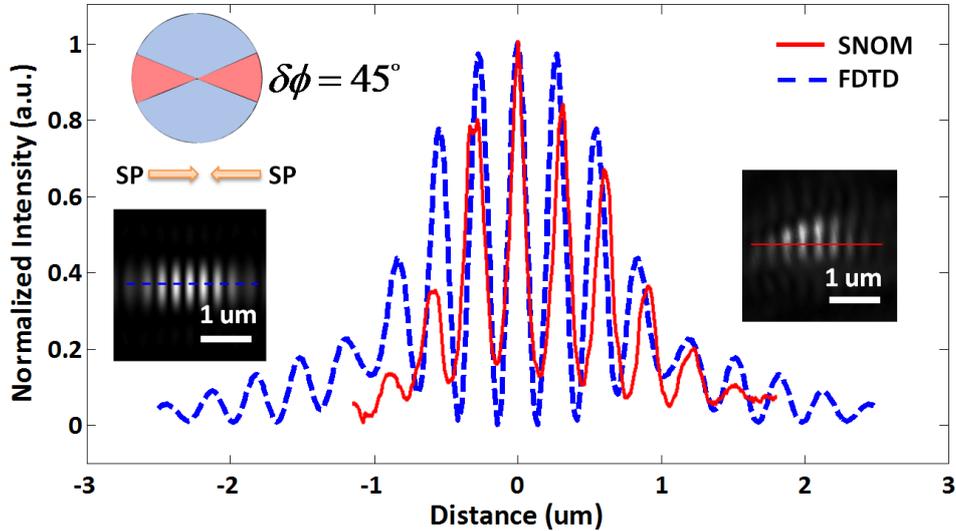


圖 4-6 45° 輻射型偏極化光場聚焦於金屬表面產生之表面電漿干涉圖。左上角為入光瞳處之光場極化分佈示意圖，紅色:輻射型偏極化，藍色:角偏極化。左側方框為 FDTD 模擬結果;右側方框為 SNOM 量測結果。

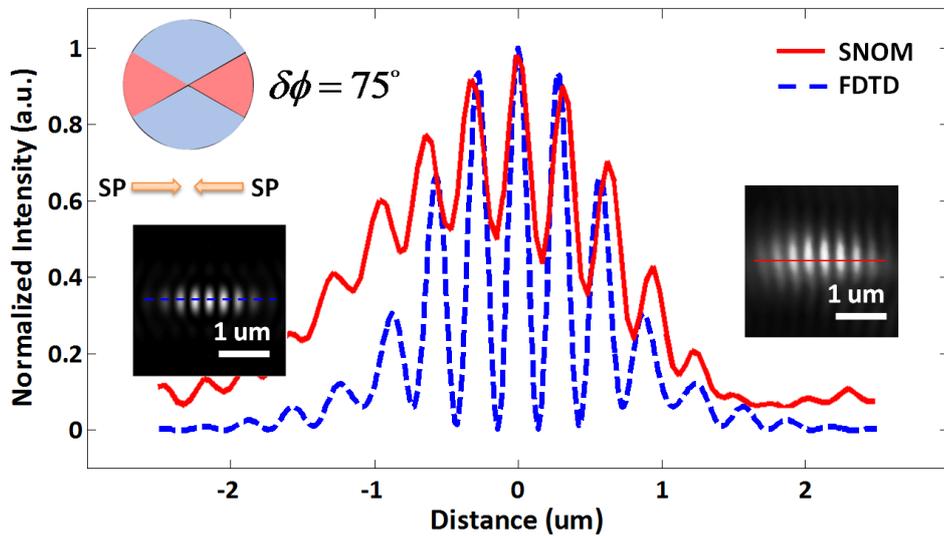


圖 4-7 75° 輻射型偏極化光場聚焦於金屬表面產生之表面電漿干涉圖。左上角為入光瞳處之光場極化分佈示意圖，紅色:輻射型偏極化，藍色:角偏極化。左側方框為 FDTD 模擬結果;右側方框為 SNOM 量測結果。

利用遠場調變入射光極化分佈來產生近場表面電漿波干涉行為，不僅提供了

一個簡易且即時的方法去了解表面電漿的傳播行為也可以了解其表面電磁波與金屬特性的交互作用，而近年來利用表面電漿干涉的微影製程技術也受到相當程度的關注，其可產生小於 100 nm 解析度的線寬以及奈米點，目前提出的方法有藉由 Kretschmann 架構並在入射角分別為 $+\theta_{sp}$ 以及 $-\theta_{sp}$ 分別打入兩道入射光，使其產生了道表面電漿波對撞干涉條紋[54]，或是利用光柵結構產生兩道表面電漿的干涉的微影製程技術[55,56]...等，但若利用我們調變入射光極化的方法去產生自相性表面電漿干涉，除了可以免去表面微結構的製作，更能夠藉由極化分佈的設計而及時地產生更多的表面二維圖案，達到微影製程上更高維度的控制。

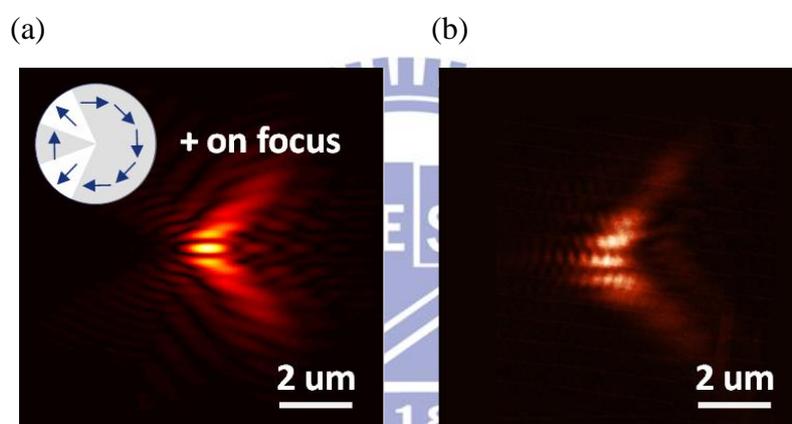


圖 4-8 設計入射光極化分布如(a)左上角之示意圖，在金屬表面產生兩道表面電漿波往中心傳播的自相性表面電漿叉狀干涉圖形。(a)FDTD 模擬結果，(b)以 SNOM 掃描所得近場分布圖形。

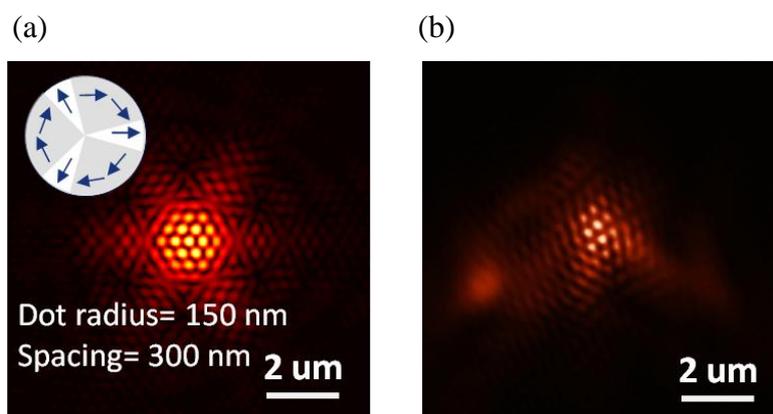


圖 4-9 設計入射光極化分布如(a)左上角之示意圖，在金屬表面產生三道表面電漿波往中心傳播的自相性表面電漿蜂巢狀干涉圖形。(a)FDTD 模擬結果，(b)以 SNOM 掃描所得近場分布圖形。

第五章 總結與未來展望

本實驗提出一種藉由調變入射光場的二維非勻質極化分佈來操控金屬表面電漿傳播方向的方法。利用高數值孔徑物鏡將經過特殊極化分佈設計的入射光場聚焦於金屬表面，不僅可以產生傳播方向與激發面積可控的表面電漿源，經過特殊極化設計更能夠觀察到表面電漿自相性的干涉行為。除了以近場顯微鏡掃描其金屬表面近場資訊外，我們也利用 FDTD 做電場模擬並且架構一套簡易物理模型來解釋表面電漿的干涉行為。

第一部分我們根據 Kretschmann 稜鏡式架構，以 Matlab 去建構多層膜矩陣模型，藉由改變不同的入射光波長與金屬膜厚，求出對於金(Au)而言能夠激發出表面電漿的最低入射光波長為 520 nm，並且在金膜厚為 50 nm 時對於表面電漿的激發有最好的效率。

第二部分設計入射光場的極化分佈來改變金屬表面電漿的傳播行為。當入光瞳處之輻射型偏極化所占之比例越大時，根據傅立葉轉換關係，在金屬表面的表面電漿激發面機會越集中，但表面電漿的干涉行為也會隨之而更嚴重。並且當改變入光瞳處之輻射型偏極化光場與角偏極化光場之間的相對位置時，可以動態的及時控制表面電漿的傳播方向，而不需如以往得藉由製作金屬表面繁複的奈米結構才能控制表面電漿傳播行為，不僅可以節省成本更能精準控制。在此我們提供一種既簡易且創新的方法來產生”可控性表面電漿源”，並認為此項技術能夠與現今許多表面電漿應用結合，達到對表面電漿更高維度的操控，例如(5-2)所示，在特定位置同時饋入三個不同傳播方向的表面電漿源。第三部分透過入光瞳處的極化分佈，使兩道表面電漿在金屬表面對撞並產生自相性的表面電漿干涉條紋，當入光瞳處的輻射型偏極化光場所占角度比例很小時，在金屬表面上可產生類似兩道無限大表面電漿平面波干涉行為，其干涉週期接近 $\lambda_{sp}/2$ ，而若當逐步增大其入光瞳處輻射型偏極化光場的角度比例，在金屬上會產生兩道圓弧狀的表面電漿源互相傳播，故干涉週期會隨著入光瞳處輻射型偏極化光場的角度比例越大而略

增大。為了能更清楚解釋表面電漿的傳播與干涉行為我們也提出了一個簡易的模型概念，利用輻射型偏極化光場聚焦後會產生甜甜圈狀強度分佈，並且隨著離焦距離的增大甜甜圈半徑會增大的概念，創造出入光瞳處部分輻射型偏極化部分角偏極化能夠在金屬表面產生圓弧狀表面電漿激發源的模型，此模型提供一個簡易且直觀的角度去了解表面電漿在金屬表面的傳播與干涉行為。而我們也相信利用簡易設計入射光極化分佈來產生自相性表面電漿干涉的方法，能夠應用在奈米級微影製程或是透過干涉條紋來解析局部金屬特性參數等相關研究(5-2)。

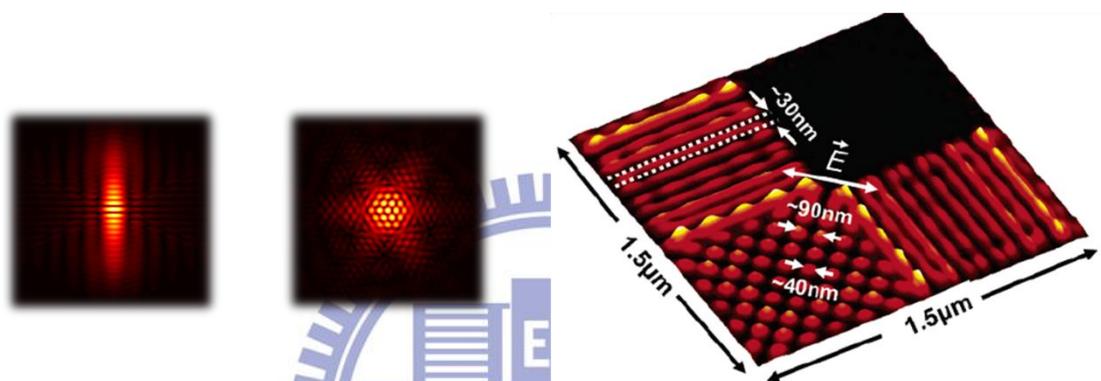


圖 5-1 非勻質偏極化聚焦光場產生於金屬表面之表面電漿干涉(左圖)。表面電漿干涉應用於微影製程 (右圖)。[56]

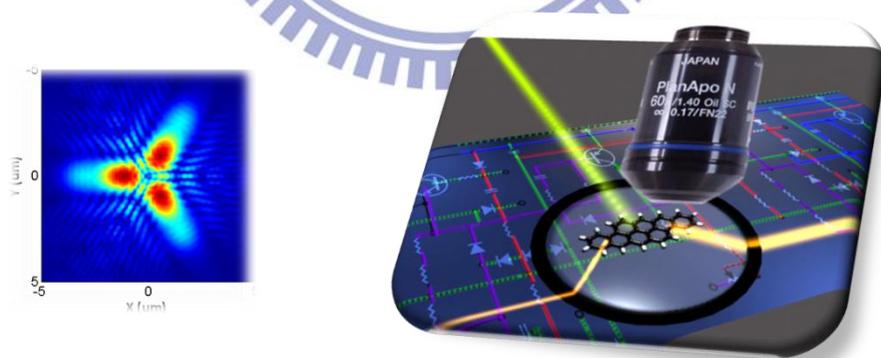


圖 5-2 在入光瞳處設計三瓣輻射型偏極化光場，在金屬表面可產生三道往不同方向傳播的表面電漿(左圖)。將此方式導入光積體電路的示意圖(右圖)。

參考文獻

- [1] S. E. Miller and A. G. Chynoweth, "Optical Fiber Communications," *Academic*, Chap. 1, (1979).
- [2] B. Wang and G. P. Wang, "Plasmon Bragg reflectors and nanocavities on flat metallic surfaces," *Appl. Phys. Lett.* Vol. **87**, 013107 (2005).
- [3] B. Wang and G. P. Wang, "Simulations of nanoscale interferometer and array focusing by metal heterowaveguides," *Opt. Express* Vol. **13**, 10558-10563 (2005).
- [4] X. Fan and G. P. Wang, "Nanoscale metal waveguide arrays as Plasmon lens," *Opt. Lett.* Vol. **31**, 1322-1324 (2006).
- [5] 張勝雄, "奈米電漿子波導原件於積體光學之應用," *物理雙月刊*, 12 (2008).
- [6] B. Liedberg, C. Nylander, and I. Lundstrom, "Surface Plasmon resonance for gas detection and biosensing," *Sensors and Actuators* Vol. **4**, 299-304 (1982).
- [7] I. W. Chung, R. Bernhardt, and J. C. Pyun, "Sequential analysis of multiple analytes using a surface Plasmon resonance biosensor," *J. Immunol. Methods* Vol. **311**, 178-188 (2006).
- [8] 易政男, "藉由奈米電漿子偵測信號強化之表面電漿共振與表面強化拉曼散色生物感測器," 國立中央大學光電科技研究所, 博士論文 (2005).
- [9] R. W. Wood, "On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum," *Proc. Phys. Soc. London* Vol. **18**, 269-275 (1902).
- [10] U. Fano, "The theory of anomalous diffraction gratings and quasi-stationary waves on metallic surfaces," *J. Opt. Soc. Am.* Vol. **32**, 213-222 (1941).
- [11] R. H. Ritchie, "Plasma losses by fast electrons in thin films," *Phys. Rev.* Vol. **106**, 874-881 (1957).
- [12] E. A. Stern and R. A. Ferrell, "Surface plasma oscillations of a degenerate electron gas," *Phys. Rev.* Vol. **120**, 130-136 (1960).

- [13] A. Otto, "Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection," *Zeitschrift fur Physik* Vol. **216**, 398-410 (1968).
- [14] William L Barnes, "Surface plasmon-polariton length scales: a route to sub-wavelength optics," *J. Opt.* Vol. **8**, S87-S93 (2006).
- [15] H. Eherenreich and H. R. Philipp, "Optical properties of Ag and Cu," *Phys. Rev.* Vol. **128**, 1622-1629 (1962).
- [16] H. Ehrenreich, H. R. Philipp, and B. Segall, "Optical properties of Aluminum," *Phys. Rev.* Vol. **132**, 1918-1928 (1963).
- [17] A. D. Rakic, A. B. Djurusic, J. M. Elazar, and M. L. Majewski, "Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices," *Appl. Opt.* Vol. **37**, 5271-5283 (1998).
- [18] N. M. Ashcroft and N. D. Mermin, "Solid state physics," *Academic Press.*, (2001).
- [19] Powell, C. J. and Swan, J. B. "Effect of oxidation on the characteristic loss spectra of aluminum and magnesium," *Phys. Rev.* Vol. **118**, 640-643 (1960).
- [20] H. Raether, "Surface plasmons on smooth and rough surface and on gratings," *Springer-Verlag*, (1988).
- [21] A. Otto, "Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection," *Z. Phys.* Vol. **216**, 398 (1968).
- [22] E. Kreschmann and H. Raether, "Radiative decay of non-radiative surface plasmons excited by light," *Z. Naturf. A* **23**, 2136-2136 (1968).
- [23] H. Raether, "Physics of thin film: Advances in research and development," *Academic Press.* Vol. **152**, (1976).
- [24] M. Erdelyi and Z. Bor, "Radial and azimuthal polarizers," *J. Opt.* Vol. **8**, 737-742 (2006).

- [25] S. C. Tidwell, D. H. Ford, and Kimura W.D., "Transporting and focusing radially polarized laser beam," *Opt. Eng.* Vol. **31**, 1527-1531(1992).
- [26] Q. Zhan, "Trapping metallic Rayleigh particles with radial polarization," *Opt. Express* Vol. **12**, 3377 (2004).
- [27] L. E. Helseth, "Roles of polarization, phase and amplitude in solid immersion lens systems," *Opt. Commun.* Vol. **191**, 161-172 (2001).
- [28] B. Jia, X. Gan, and Min Gu, "Direct measurement of a radially polarized focus evanescent field facilitated by a single LCD," *Opt. Express* Vol. **13**, 18 (2005).
- [29] G. Machavariani, Y. Lumer, I. Moshe, A. Meir, and S. Jackel, "Efficient extracavity generation of radially and azimuthally polarized beams," *Opt. Lett.* Vol **32**, 1468-1470 (2007).
- [30] Z. Bomzon, G. Biener, V. Kleiner, and E. Hasman, "Radially and azimuthally polarized beams generated by space-variant dielectric subwavelength grating," *Opt. Lett.* Vol. **27**, 285-287 (2002).
- [31] S. C. Tidwell, D. H. Ford, and W. D. Kimura, "Generating radially polarized beams interferometrically," *Appl. Opt.* Vol. **29**, 2234-2239 (1990).
- [32] R. C. Dunn, "Near-Field Scanning Optical Microscopy," *Chem. Rev.* Vol. **99**, 2891-2927 (1999).
- [33] H. Kano, W. Knoll, "Locally excited surface-plasmon-polaritons for thickness measure of LBK films," *Opt. Commun.* Vol. **153**, 235-239 (1998).
- [34] K.J. Moh, X. C. Yuan, J. Bu, S. W. Zhu, and Bruce Z. Gao, "Surface plasmon resonance imaging of cell-substrate contacts with radially polarized beams," *Opt. express* Vol. **16**, 20734-20741 (2008).
- [35] B. Vohnsen and S. I. Bozhevolnyi, "Characterization of near-field optical probes," *Appl. Opt.* Vol. **38**, 9 (1999).
- [36] J. Cites, M. F. M. Sanghadasa, and C. C. Sung, "Analysis of photon scanning tunneling microscope images," *J. Appl. Phys.* Vol. **71**, 7-10 (1992).

- [37] D. Van Labeke and D. Barchiesi, "Scanning-tunneling optical microscopy: a theoretical macroscopic approach," *J. Opt. Soc. Am.*, Vol. **9**, 732-739 (1992).
- [38] D. Van Labeke and D. Barchiesi, "Probes for scanning tunneling optical microscopy: a theoretical comparison," *Opt. Soc. Am.* Vol. **10**, 2193-2201 (1993).
- [39] J.C. Weeber, F. de Fornel, J.P. Goudonnet, "Numerical study of the tip-sample interaction in the photon scanning tunneling microscope," *Opt. Commun.* Vol. **126**, 285-292 (1996).
- [40] M. Tanaka and K. Tanaka, "Computer simulation for two-dimensional near field optics with use of a metal-coated dielectric probe" *Opt. Soc. Am.* Vol. **18**, 919-925 (2001).
- [41] Ilya P. Radko, Sergey I. Bozhevolnyi, and Niels Gregersen, "Transfer function and near-field detection of evanescent waves," *Appl. Opt.* Vol. **45**, 4054-4061 (2006).
- [42] R. C. Reddick, R. J. Warmack and T. L. Ferrell, "New form of scanning optical microscopy," *Phys. Rev.* Vol. **39**, 767-770 (1989).
- [43] E. Devaux, A. Dereux, E. Bourillot, J. C. Weeber, Y. Lacroute, and J. P. Goudonnet, "Local detection of the optical magnetic field in the near zone of dielectric samples," *Phys. Rev.* Vol. **62**, 10504-10514 (2000).
- [44] H. Cory, A. C. Boccara, J. C. Rivoal, and A. Lahrech, "Excitation and superfocusing of surface plasmon polaritons on a silver-coated optical fiber tip," *Opt. Commun.* Vol. **18**, 118-124 (1998).
- [45] A. Bouhelier, F. Ignatovich, A. Bruyant, C. Huang, G. Colas des Francs, J. C. Weeber, A. Dereux, G. P. Wiederrecht, and L. Novotny, "Surface plasmon interference excited by tightly focused laser beams," *Opt. Lett.* Vol. **32**, 2535-2537 (2007).
- [46] W. Chen and Q. Zhan, "Realization of an evanescent Bessel beam via surface plasmon interference excited by a radially polarized beam," *Opt. Lett.* Vol. **34**, 722-724 (2009).
- [47] E. Wolf, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **253**, 349 (1959).

- [48] B. Richards and E. Wolf, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **253**, 358 (1959).
- [49] Q. Zhan, "Evanescent Bessel beam generation via surface plasmon resonance excitation by a radially polarized beam," *Opt. Lett.* Vol. **31**, 1726-1728 (2006).
- [50] M. Xiao, R. Machorro, and J. Siqueiros, "Interference in far-field radiation of two contra-propagating surface plasmon polaritons in the Kretschmann configuration," *J. Vac. Sci. Technol.* Vol. **16**, 1420-1424 (1998).
- [51] A. Taflove, "Application of the finite-difference time-domain method to sinusoidal steady state electromagnetic penetration problems," *IEEE Trans. Electromag. Compat.* Vol. **22**, 191-202 (1980).
- [52] W. Chen and Q. Zhan "Realization of an evanescent Bessel beam via surface plasmon interference excited by a radially polarized beam," *Opt. Lett.* Vol. **34**, 722-724 (2009).
- [53] A. Bouhelier, F. Ignatovich, A. Bruyant, C. Huang, G. Colas des Francs, J.-C. Weeber, A. Dereux, G. P. Wiederrecht, and L. Novotny "Surface plasmon interference excited by tightly focused laser beams," *Opt. Lett.* Vol. **32**, 2535-2537 (2007).
- [54] L. L. Doskolovich, E. A. Kadomina, and I. I. Kadomin, "Nanoscale photolithography by means of surface plasmon interference," *J. Opt. A: Pure Appl.* Vol. **10**, 854-857 (2007).
- [55] X. Luo and T. Ishihara, "Surface plasmon resonant interference nanolithography technique," *Appl. Phys. Lett.* Vol. **84**, 4780 (2004).
- [56] Z. W. Liu, Q. H. Wei, and X. Zhang, "Surface Plasmon Interference Nanolithography," *Nano Lett.* Vol. **5**, 957-961 (2005).