

可见光波在天然金属基界面正负折射机理的研究和进展

陈良尧, 陈岳瑞, 戴仲鸿, 周薇溪, 沈彦, 邬云骅, 顾闻, 郑玉祥

(复旦大学 先进光子学材料和器件国家重点实验室光科学与工程系, 上海 200433)

摘要: Snell定律揭示了光在穿越不同介质界面时的传播和折射规律, 这是现代物理光学的重要基础。追求完美光学透镜的途径之一是寻找正负折射率匹配材料, 但在相当长时期内, 在自然界中从未发现有违背 Snell定律的天然负折射率材料存在。在本研究工作中制备了一系列入射角精确可控的楔形贵金属金和银等样品, 采用不同波长的激光, 对于光在最简单的天然贵金属界面传播时所发生的由负到正折射特性变化进行了定量实验测量, 获得表观折射率随入射和折射角变化的定量关系。对于导致奇异光折射现象的各种争议性机理进行了细致探索和讨论, 这与等离子体、负磁导率和 Goos-Hänchen等效应无关。研究结果将有助于人们理解光在金属基微结构中发生正负折射传播的物理机理, 从而为新型微纳光电子材料和器件的研制和应用建立基础。

关键词: Snell定律; 折射率; 金属光学; 等离子频率; 群速度

中图分类号: O431.1; O436.1

PACC: 7865; 7890

文献标识码: A

1 引言

早在 17 世纪上半叶, Snell 和 Descartes 就发现当光线穿越由不同介质构成的界面时会发生折射, 后被称为 Snell 折射定律, 成为现代光学原理的重要基础^[1]。这一定律被广泛应用于理解光在非吸收的透明物质中的传播行为。对于最简单的情况, 假设折射率分别为 n_1 和 n_2 的透明介质构成了理想界面, 当光以入射角 θ_1 从折射率为 n_1 的介质穿过界面, 入射到折射率为 n_2 的介质时, 将发生光沿 θ_2 角的折射, 其变化规律由 Snell 公式表示:

$$n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2 \quad (1)$$

至今为止, 天然透明材料的折射率 n_1 和 n_2 都为正的实数, 入射角 θ_1 和折射角 θ_2 也都为正值。将 Snell 公式用于光学透镜的研究和应用, 光线穿过透镜界面时存在入射和折射角之间非线性变化的缺陷。除了工艺和设计的努力外, 尝试改进的途径是设法寻找负折射率材料, 与正折射率材料相匹配, 可形成完美无缺的光学透镜, 这是多年前理论研究的预期^[2]。因此, 对于负折射率材料,

Snell 公式可被修改为:

$$n_1 \sin \theta_1 = (-|n_2|) \sin(-|\theta_2|) \quad (2)$$

式中假设了介质 2 具有负的折射率值 n_2 ($n_2 = -|n_2|$), 可产生负折射角 θ_2 ($\theta_2 = -|\theta_2|$)。

这种理论方面的假设和预期导致了光学原理其它方面的困难。对于普适材料, 折射率通常为复数 \tilde{n} ($\tilde{n} = n + ik$), n 和 k 分别是复折射率的实部 (折射率) 和虚部 (消光系数)。因此, 自然界中非光学吸收的透明材料仅体现了其在某特定波长或频率区 $k=0$ 的特性。建立在麦克斯韦方程基础上的复折射率 \tilde{n} 和复介电常数 $\tilde{\epsilon}$ ($\tilde{\epsilon} = \epsilon_1 + i\epsilon_2$) 之间的一般关系为:

$$\tilde{n}^2 = \tilde{\epsilon} \quad \epsilon_1 = n^2 - k^2, \quad \epsilon_2 = 2nk \quad (3)$$

当 $k=0$ 时, $\epsilon_2=0$, $\epsilon_1>0$, $n = \sqrt{\epsilon_1} > 0$ 这说明在自然界中不可能存在负折射率的透明材料。为了克服这一困难, 在理论上引进了复磁导率 $\tilde{\mu}$ ($\tilde{\mu} = \mu_1 + i\mu_2$) 的假设^[2], 即:

$$\tilde{n}^2 = \tilde{\epsilon} \tilde{\mu} \quad \tilde{n} = \sqrt{\tilde{\epsilon} \tilde{\mu}} \quad (4)$$

当满足 $(\epsilon_1 |\mu_1| + \mu_1 |\epsilon_1|) < 0$ 的条件时, 有可能发生 $n < 0$ 的情况^[3,4]。这意味着仅当 ϵ_1 或 μ_1 小于零, 或者是 ϵ_1 和 μ_1 同小于零才能够产生 $n < 0$ 的特

收稿日期: 2008-08-25; 修订日期: 2008-09-24

基金项目: 国家自然科学基金 (60327002, 60778028); 上海市科委基础研究项目基金 (07TC14058) 资助项目

作者简介: 陈良尧 (1950-), 男, 江苏人, 教授, 博士, 主要从事凝聚态光学性质和信息光子学的研究。

E-mail: Lycher@fudan.ac.cn; Tel: (021) 65646068

殊条件,然而,在此条件下 $k \neq 0$ 表明这类材料将具有光吸收特性。按照建立在麦克斯韦方程基础上的物理光学原理,对于 $n_2 < 0$ 和 $k_2 \neq 0$ 的光吸收物质,光在界面的折射将不再具有 Snell 公式 (1)、(2) 的简单形式,而被表示成更一般的形式^[5]:

$$n_1 \sin \theta_1 = \tilde{n}_2 \sin \theta_2 \quad (5)$$

式中,折射率 \tilde{n}_2 和折射角 θ_2 均为复数。光的折射角被表达为复数形式仅具有数学上的意义,光在吸收物质中的真实传播路径和方向必须是实数。因此,在 Snell 定律的框架下,公式 (5) 可被改写成能与实验测量结果相比较的形式:

$$n_1 \sin \theta_1 = n_{e2} \sin \theta_{e2} \quad (6)$$

公式 (6) 是实验测量折射角和折射率的基础。当已知 n_1 和 θ_1 时,在实验上可通过测量有效折射角 θ_{e2} 来确定有效折射率 n_{e2} 的值和符号。显然,公式 (2) 与 (6) 的含义完全不同。如果存在复磁导率 $\tilde{\mu}_2$ 的作用, n_{e2} 将具有与 θ_1 , n_1 , \tilde{n}_2 , $\tilde{\epsilon}_2$, $\tilde{\mu}_2$ 之间非常复杂的色散函数关系,并且 $n_{e2} \neq n_2$ 。仅对于非吸收介质,当 $\tilde{\mu}_2 = 1$, $k_2 = 0$, $\epsilon_2 = 0$ 时,才会存在 $n_{e2} = n_2$ 的简单关系。

2001 年,Shelby 等人采用将微金属(金)环镶嵌进氟塑料中的方法,首先在金属基人工微结构边界观察到微波频率区由公式 (6) 所定义的负折射率现象^[6]。这种材料被称为“左手”材料,并将所观察到的有效 n_e 值等价于负折射率 n 值,激起了人们对负折射率材料结构和制备的浓厚兴趣,也引发了学术界对于光在金属基结构中传播特性更深入的理论和实验研究的热潮和争议^[7-10]。这触及到对核心光学原理的深刻认识和修改,以及所伴随产生的一系列与传统光学原理和规律尖锐冲突的问题。

金属基薄膜材料在现代光学仪器和光电子器件中起着至关重要的作用,如可被用来制备:(1) 宽带高效率太阳能光热转换器件^[11,12];(2) 性能优良的光学反射镜,覆盖了从红外至紫外的宽广的光谱工作区^[13];(3) 极佳的导电透明窗口,可在新型平面显示器件中获得重要应用^[14,15];(4) 被建议用于制备国防武器装备中的“隐身”器件,具有极低的电磁波辐射特性^[16,17];(5) 完美光学透镜,及其在现代光学领域的广泛应用^[18];(6) 利用表面等离子增强效应的生化传感器等研究^[19]。

由于实验研究受到很强光吸收的限制,人们对于光在金属基材料中传播特性的认识依然十分

有限。对于金属来说,代表电磁波传播特征的光学折射率是复数,光频电磁场在金属中的分布极不均匀。这些问题虽有理论研究和预言,但至今仍未被实验严格测量和证实,以致无法对光在金属边界的实际传播路径和特性作精确预期和计算。Bom 和 Wolf^[5] 以及 Garcia-Pomar 和 Nieto-Vesperinas^[20] 分别处理了光从介质到金属和金属到介质边界的实折射角和路径问题,但将他们分别给出的两组公式(介质→金属→介质)联系起来考虑,却发生了在全入射角范围内 n_e 和 θ_e 不连续的困难,与实验测量结果不符。

早期在微波频率区观察到人工金属基微结构边界的负折射实验数据都较粗糙,一般仅给出规一化光强的负折射率值,而无表征材料的吸收系数、复折射率包括 n 和 k 的光谱测量结果,这给更深入细致的研究和认识带来了困难^[6,9]。

如果在微波频率区可发生光的负折射,因色散关系将导致这种有趣的自然现象也必将发生在其它频率段,如可见光区,这将更具有实际应用意义和能够被更精确地测量和研究。Lezec 等人采用金银基平面波导结构,报道了折射角在红光(685 nm 波长)为正和绿光(514 nm 波长)为负的结果^[21]。最近 Valentine 等人采用 21 层的银基 MgF₂ 鱼网结构,报道了 1 200~1 450 nm 波长区的正折射和 1 450~1 800 nm 波长区的负折射结果^[22]。同属该研究小组,Yao 等人采用银丝镶嵌在氧化铝中的结构,报道了 780 nm 波长 TM 和 TE 模的折射率分别为负和正的观察结果^[23]。显然,依据公式 (6),这些作者通过实折射角的观察测量所获得有效折射率的值并不代表按光学原理所定义的折射率 n ,而是与材料的种类和结构密切相关的。如同一研究小组^[22,23] 将贵金属银与可见光区折射率差别不大的透明介质,如与氟化镁 ($n \approx 1.38$) 和氧化铝 ($n \approx 1.6$) 组成人工微结构时,仅结构方面的差异就能在 600~1 450 nm 波长区观察到表观折射率既可正也可为负的结果,并无确切的规律可循。

Snell 定律揭示了仅当光斜入射到由不同折射率材料组成的界面时,光的路径才发生正或负的折射改变。然而,这些人工微结构中包含这么多微界面,究竟哪一层的微观斜面导致了光的微观折射变化? 在包含了大量金属基微界面的人工结构中,许多微观界面将产生光的折射、衍射、绕

射、多重反射等复杂的次级效应,也将对宏观上被观察到的有效折射率效应产生可观的积累性贡献,很难在实验中将这此次级效应分辨、隔离,这为细致的数据分析和研究带来了困难。譬如,即使不考虑微金属结构,仅深刻蚀的周期透明氧化物微结构,也可产生效率高达 87.1% 的表观奇异“光折射”现象^[24-25],这主要是周期微结构中光的干涉和衍射机理在起作用。因此,为了真正理解贵金属在人工微结构中导致负折射率的作用和机理,研究发生在最简单金属界面上的光折射现象和规律是非常必要的^[18]。

Sanz 等人尝试在可见光区直接测量金样品的 Snell 折射角,但采用了长度为 5 mm、厚度为 25~4 400 nm 的楔形样品(样品中部的厚度约为 2 200 nm)和近场测量等条件,产生了不合理结果^[26]。Wegener 等人考虑 Goos-Hänchen 等效效应,采用数值模拟计算的方法,给出绿光(532 nm 波

新型金属基光学和电子器件应用研究的需求,更深层次将触及到的对自然界中光的本质问题的理解。按照物理光学原理,光在真空中传播速度为 c ,但在凝聚态物质中光的传播速度 v 受控制于折射率 n 的值,即 $v=c/n$ 。如果 n 可随波长发生从正到负的改变,光的传播速度也将发生相应正或负的增速或减速变化,甚至在 $n=0$ 的位置,存在速度趋于无穷的奇异点。如果自然界中确实存在光的增速和减速因子,那么光在凝聚态物质中被微观带电粒子增速和减速的物理机理是什么? 这些都无现成的理论和明确的答案,依然是一个黑匣子^[19]。在过去很长时期内,对于很强光吸收的天然物质,仍未在实验上直接观察到光穿过其界面发生的正负折射现象,这是真正的挑战^[29]。

因此,认识和理解光在金属基边界的传输路径及其规律不仅具有重要的学术研究意义,而且具有潜在的应用价值。在本研究工作中制备了一系列入射角精确可控的楔形贵金属金和银等样品,采用不同波长的激光,对于光在最简单的天然贵金属界面传播时发生由负到正的折射特性变化进行了定量实验测量,获得表观折射率随入射和

折射角变化的定量关系,并对于导致奇异光折射现象的各种争议性机理进行了细致探索和讨论。研究结果将有助于人们理解光在左/右手物质中发生正负折射传播的物理机理,从而为新型微纳光电子材料和器件的研制和应用建立基础^[30-31]。

2 实验方法

2.1 样品制备

在实验中采用了具有稳定和低速溅射速率的 Leybold SP600 射频溅射系统,背景真空度约为 7×10^{-4} Pa,射频溅射的功率设定在 50 W,对 99.99% 纯度的金和银靶进行溅射,将纯贵金属膜淀积到双面光学抛光的 K9 玻璃衬底上。采用 Ambios-XP2 台阶仪和称重法对金属膜的生长速率和厚度进行了双重定标测量,金和银膜的生长速率分别约为 0.128 nm/s 和 0.121 nm/s。在真空室的样品表面置有掩模板,用真空细分步进电

139.5, 155.0 μrad 。对于另一组 7 块楔形银膜样品,楔角分别为 14.7, 29.4, 44.1, 58.8, 74.5, 88.1, 102.8 μrad 。对靠近楔形样品半透明边缘的表面进行了 SEM 测量,显示出样品具有连续和均匀分布的纳米金属颗粒膜表面^[30-31]。

采用椭圆偏振光谱法在 1.5~4.5 eV 光子能量区和 70° 入射角条件下对金和银样品的复介电常数谱进行了测量^[32],结果分别显示在图 1 和图

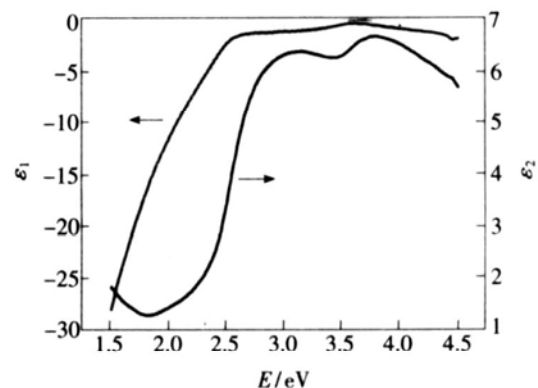


图 1 椭圆光谱实验测量获得金膜样品的复介电函数 $\tilde{\epsilon}$ ($\tilde{\epsilon} = \epsilon_1 + i\epsilon_2$)

Fig. 1 Spectra of the complex dielectric function $\tilde{\epsilon}$ ($\tilde{\epsilon} = \epsilon_1 + i\epsilon_2$) measured by the spectroscopic ellipsometry for the gold film sample

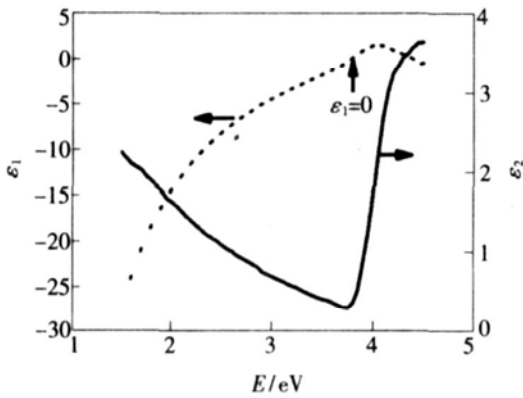


图 2 椭圆光谱实验测量获得银膜样品的复介电函数谱, 在光子能量 $E = 3.8 \text{ eV}$ 附近, $\varepsilon_1 = 0$ 和 $\varepsilon_2 \approx 0$ 满足等离子共振条件; 从其虚部 ε_2 谱中, 可看到带间跃迁发生在约 4.0 eV 附近

Fig 2 Spectra of the complex dielectric function were measured by the spectroscopic ellipsometry for the silver film sample. At the photon energy near 3.8 eV , the plasmon resonance happens with the condition of $\varepsilon_1 = 0$ and $\varepsilon_2 \approx 0$. It can be seen in the imaginary part of the dielectric function that the onset of interband transitions happens at about 4.0 eV .

2中。在图 1 中的 3.8 eV 光子能量附近, 金膜的介电常数虚部具有较高的值, $\varepsilon_2 = 6.667$, 表明采用射频溅射方法生长的金属膜具有较为致密的膜质量特性^[33]。

2.2 折射角的实验测量

在 Snell 定律的框架下, 测量了光在楔形金和银膜界面的折射特性。实验装置如图 3 所示。由于贵金属膜在可见光区具有很强的光吸收特性, 样品的楔角被限制在小于 $160 \mu\text{rad}$ 范围内。从光源出射的激光束被 20 倍扩束, 可将发散角降至小于 0.3 mrad 。平行激光束穿过直径 2 mm 的光阑, 垂直入射到样品的金属/玻璃面, 从金属/大气的斜面出射。按图 3 的实验测量原理图, 在金属/大气界面, 光束从金属面 ($\tilde{n} = \tilde{n}_m$) 入射到大气 ($\tilde{n} = 1$), 为讨论简单起见, 公式 (6) 可改写为:

$$\sin\theta_a = n_m \sin\theta_m \quad (7)$$

式中 n_m 和 θ_m 分别是金属膜的有效折射率和光在金属侧的入射角, θ_a 是光在大气侧的折射角。因此, 样品的楔形角等于入射角 θ_m , 通过测量光在大气一侧的折射角 θ_a , 即可获得金属膜的等效折射率 n_m 的值。在小角度入射和折射条件下, $n_m = \sin\theta_a / \sin\theta_m \approx \theta_a / \theta_m$ 。由于入射和折射角都很小, 在实验中采用了光程放大的方法, 即光程在两块

光学平面镜之间被 10 重放大后延伸到 20.55 m , 最后光斑被投射在光屏上, 用高灵敏度长焦距 CCD 探测器对光斑位置的微小偏移进行记录和测量, CCD 像元数所对应的光斑位移为 27.4 像元/mm 。

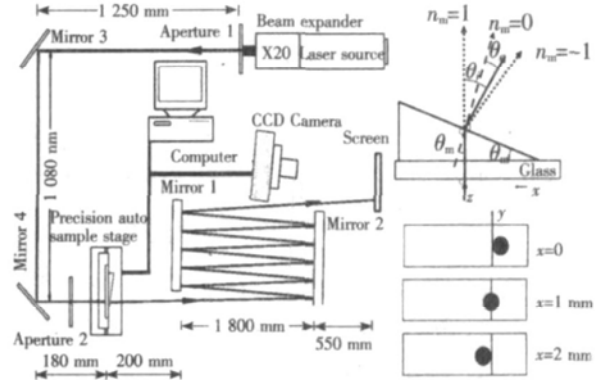


图 3 实验装置示意图, 采用双平面镜 10 重反射的光程延长方法, 对光束从楔形样品出射后其光斑位置的微小偏移进行 CCD 精确成像测量

Fig 3 The experimental setup to measure the refraction of light transmitted through the wedged-shaped thin film samples. The CCD camera was used to record the transmitted beam spot which was imaged on the screen with the reflections light path extended by 10 multiple between two plane mirrors.

所用光源为波长 632.8 nm 的氦氖激光, 以及波长为 532 nm 和 473 nm 的固体激光。实验中, 由计算机控制样品的移动, 使入射光斑处于楔形样品薄边 $x = 0$ 的初始位置, 用 CCD 探测器记录其在远场 $L = 20.55 \text{ m}$ 距离的光斑图; 然后移动样品, 使探测光斑刚好完全进入金属膜内, 处于 $x = 2.2 \text{ mm}$ 位置, 再次记录其在远场的光斑图, 如此对每块样品往返重复测量 10 次, 以克服因微小空气扰动和环境振动给测量带来的误差。再对二维光斑的光强进行分析, 将其投影在 x 方向上, 经数值积分形成一维光强分布。通过测量其半峰全宽 (FWHM) 得到一维光强分布随像元位置的变化。图 4 给出了采用 632.8 nm 波长的激光对于楔形角为 $108.5 \mu\text{rad}$ 金样品测量的结果, 可明显看到远场光斑位置有 163 像元的负偏移。

光在吸收物质中的衰减与样品的厚度有关。对于膜的厚度沿样品 x 方向线性变化的楔形样品, 由于不均匀的光衰减, 会使出射光斑的分布强度发生偏移。这不会影响光的折射角, 但会对光斑的位置分析产生误差和影响。因此, 实验中用

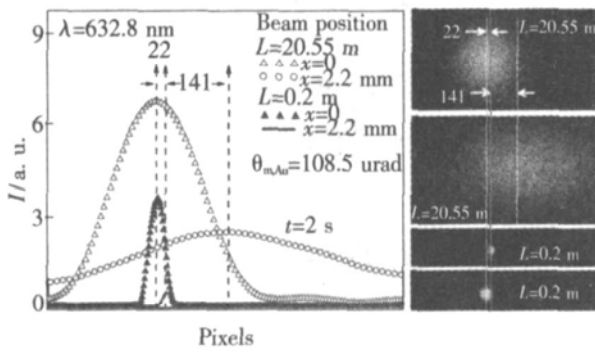


图 4 采用 632.8 nm 波长的激光对于楔形角为 108.5 μrad 金样品的远场和近场光斑位置偏移的测量结果, 可明显看到远场和近场光斑位置分别有 163 像元和 22 像元的负偏移, 扣除近场偏移的影响后, 光斑位置的纯负偏移约为 141 像元

Fig 4 The measured light intensity distributions along the x direction show the light refraction as recorded with the pixel numbers by the CCD camera for the wedged gold film sample ($\theta_{m,Au} = 108.5 \text{ mrad}$, $\lambda = 632.8 \text{ nm}$) at the far and near distance location. The parallel shift (22 pixels) and the total negative shift (163 pixels) were measured by carefully analyzing the beam image position to obtain the net negative shift of 141 pixels

相同的 CCD 探测器记录了近场 ($L = 0.2 \text{ m}$) 光斑在初始位置 ($x = 0$) 和进入薄膜 ($x = 2.2 \text{ mm}$) 位置后的光斑图。在计算光束的折射偏移时, 将光强不均匀衰减导致的近场偏移影响扣除。如图 4 所示, 从楔形样品出射的光斑约存在 22 像元的近场偏移, 扣除此影响后, 实际远场位置偏移了约 141 像元, 相当于 $\Delta x = 5.1 \text{ mm}$ 的负偏移。在图中还可看到, 由于沿样品 x 方向的不均匀吸收, 出射光斑变窄, 远场光斑强度沿 x 方向出现明显展宽的现象。

对于楔形角为 77.5 μrad 金样品, 图 5 显示了远场光斑一维强度分布随三个波长 ($\lambda = 632.8, 532, 473 \text{ nm}$) 的位置偏移变化。对于 632.8 nm 和 532 nm 波长, 远场光斑位置均朝负方向偏移, 而 473 nm 波长的光斑位置偏向正方向。作为对比参考, 图中还给出了用 632.8 nm 波长的激光测量楔形角为 27.3 μrad 的非晶硅膜样品的结果, 其折射角是正的, 与此相对应的远场光斑位置偏向正方向。

图 6 给出了采用 632.8 nm 波长激光对于楔形角为 58.8 μrad 银样品测量的结果, 同样可看

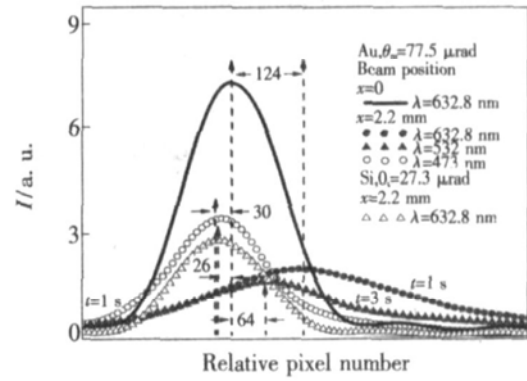


图 5 采用 632.8, 532, 473 nm 波长激光对于楔形角为 77.5 μrad 金样品进行测量所显示的光斑一维强度分布图。作为对比参考, 还给出了采用 632.8 nm 波长激光对楔形角为 27.3 μrad 的非晶硅膜样品的测量结果, 其折射角和光斑位置的偏移都是正的

Fig 5 The measured light intensity distributions along the x direction for the wedged Au ($\theta_{m,Au} = 77.5 \text{ μrad}$) film sample for 473, 532 and 632.8 nm laser wavelengths. As a reference, the measurement was performed on the wedged a-Si ($\theta_{m,a-Si} = 27.3 \text{ μrad}$) film sample for the 632.8 nm wavelength to show both the positive refraction and the positive shift of beam image positions

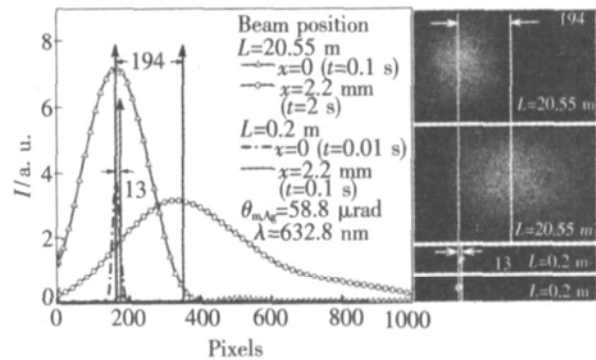


图 6 采用 632.8 nm 波长的激光对于楔形角为 58.8 μrad 银样品的远场和近场光斑位置偏移的测量结果, 显示出远场和近场光斑位置分别有 194 像元和 13 像元的负偏移, 扣除近场偏移的影响后, 光斑位置的纯负偏移约为 181 像元

Fig 6 The measured light intensity distributions along the x direction show the negative light refraction as recorded with the pixel numbers by the CCD camera at the far and near distance location for the wedged silver film sample ($\theta_{m,Ag} = 58.8 \text{ μrad}$, $\lambda = 632.8 \text{ nm}$). The parallel shift (13 pixels) and the total negative shift (194 pixels) were measured by carefully analyzing the beam image position to obtain the net negative shift of 181 pixels

到远场和近场光斑位置分别有 194 像元和 13 像元的负偏移。

按图 3 的实验示意图, 光在金属/大气界面的出射角 $\theta_r \approx \Delta x/L$, 其中 Δx 是扣除近场影响后光

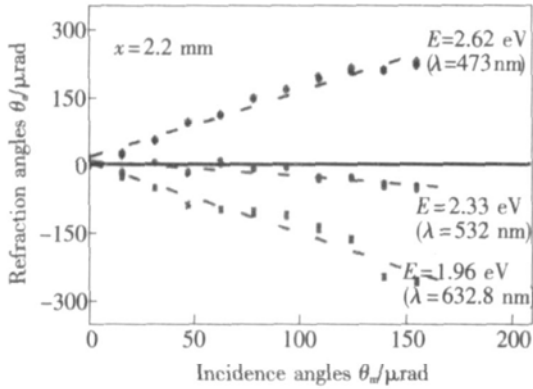


图 7 采用三个波长 ($\lambda=632.8$ 、 532.0 、 473.0 nm) 的激光分别入射到金/大气界面, 测量大气侧光的折射角 θ_a 随金膜侧入射角 θ_m 的变化关系, 呈现出由负到正的光折射变化特性。

Fig 7 The negative refraction angle of θ_a changing with the incident angle θ_m was measured as light transmits through the gold/air interface for $\lambda=473.0$, 532.0 and 632.8 nm, respectively

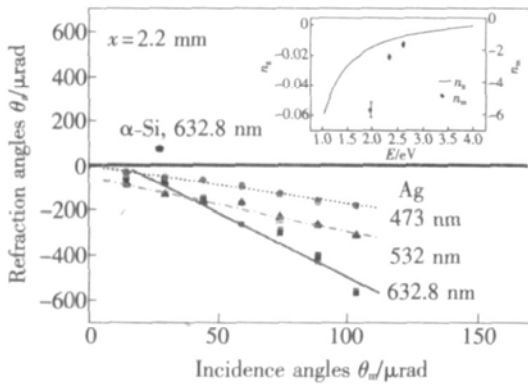


图 8 采用三个波长 ($\lambda=632.8$ 、 532.0 、 473.0 nm) 的激光分别入射到银/大气界面, 测量大气侧的折射角 θ_a 随银膜侧入射角 θ_m 的变化关系, 呈现出负折射特性。在 632.8 nm 波长, 测量了 α -Si 的折射角, 显示 θ_a 是正的。在 $1.0\sim 3.5$ eV 的带内跃迁区, 数值计算了群折射率 n_g 的值, 并与有效折射率 n_m 的变化趋势进行了比较, 结果如插图所示

Fig 8 The negative refraction angle of θ_a was measured as light transmits through the silver/air interface for $\lambda=473.0$, 532.0 and 632.8 nm. The refraction angle of θ_a is positive for the α -Si sample measured for $\lambda=632.8$ nm. The inset shows the numerically calculated spectrum of the group refractive index n_g comparing to n_m , which is negative in the $1.0\sim 3.5$ eV intraband transition region

斑位置沿 x 方向的纯折射偏移量, L 是光斑的远场距离 ($L=20.55$ m)。因此, 按 $\theta_a = \theta_r - \theta_m$ 的关系可求得光从楔形金和银膜样品的大气一侧出射的折射角 θ_m , 进而按公式 (7) 获得有效折射率 n_m 的值, 结果分别显示在图 7 和图 8 中。

3 金属基界面折射机理的探索 and 讨论

3.1 受折射率控制的光速可变机理

在自然界中, 主要存在两种受折射率控制的光速可变机理, 即光波的相位传播速度 v_p 和表征能量传播的群速度 v_g [5, 34, 35]:

$$v_p = \frac{c}{n}, \quad v_g = \frac{c}{n_g} \quad (8)$$

式中, 群折射率 n_g 与光子频率 ω 或能量 E 的关系为:

$$n_g = n + \omega \frac{dn}{d\omega} = n + E \frac{dn}{dE} \quad (9)$$

在 Snell 公式 (1) 中, 虽然早期对于光穿过不同透明介质界面发生的光折射现象有多种不同机理的探索和研究 [34], 但在麦克斯韦方程的基础上, 逐步归因于由不同折射率 n 控制的光速可变机理。对于大多数低色散的透明介质或在某特定波长区 $dn/d\omega \approx 0$ 的低吸收材料, $n_g \approx n$, 相速度和群速度之间的差别很小, 按公式 (1) 测量到的折射率 n 可等同于 n_g 的值。但对于强吸收和强色散材料, $n_g \neq n$, 相速度和群速度之间存在巨大差别, 而光在界面传播的折射方向主要体现了其能量传播的方向。对于自然界中的材料, 相折射率 n 总是正的, 但群折射率 n_g 的值可有正负, 取决于 $dn/d\omega$ 的变化率, 当 $dn/d\omega < 0$ 并且 $|dn/d\omega| > n/\omega$ 时, $n_g < 0$ 。

可见光区贵金属金的色散特性主要取决于两种机理: (1) 在光子能量小于 2.5 eV 的 D_{ndc} 区, 主要来自 s 带内自由电子跃迁的贡献; (2) 在高于 2.5 eV 的光谱区, 主要是带间电子跃迁的机理起主导作用 [33, 36, 37]。折射率 n 与复介电常数实虚部之间的关系为:

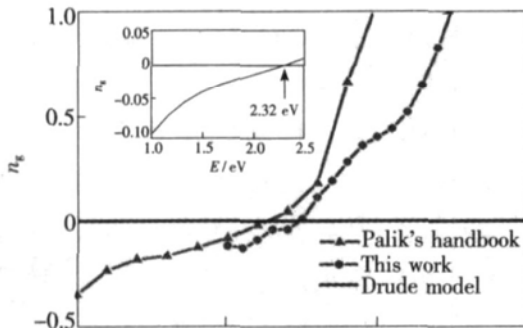
$$n = \sqrt{(\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} + \epsilon_1)/2} \quad (10)$$

在光子能量小于 2.5 eV 的 D_{ndc} 区尾部, 介电常数的实、虚部与等离子能量 E_p 、寿命 τ 和高频介电常数 ϵ_∞ 的关系为:

$$\epsilon_1 = \epsilon_\infty - E_p^2/E^2, \quad \epsilon_2 = E_p^2 \hbar/E^3 \tau \quad (11)$$

对于金膜样品, 光学实验测量得到的 $\epsilon_\infty = 8.13$, $E_p = 9.33$ eV, $\tau = 2.7 \times 10^{-14}$ s^[33]。依据公式 (9~ 11), 在 1.0~ 2.5 eV 光子能量区按 Drude 模型对群折射率 n_g 的值进行了数值计算, 结果显示在图 9 中, n_g 可发生由负 ($E < 2.32$ eV) 到正 ($E > 2.32$ eV) 的转变, 在 $E = 2.32$ eV 附近, $n_g \approx 0$ 。图中还给出了依据文献 [36] 和本实验测量的 $n(\lambda)$ 色散关系对 n_g 进行数值计算的结果, $n_g \approx 0$ 的位置约在 $E = 1.7$ eV 附近。

金样品的 n_g 值随光子能量由负到正的变化与如图 7 显示的有效折射率 n_m 的变化趋势相一致, 即由 Drude 区负的 $n_m = -1.56$ ($E = 1.96$ eV), 负减小到 Drude 区尾部 (靠近带间跃迁区边缘) $n_m = -0.34$ ($E = 2.33$ eV), 再跨过零点, 在带间跃迁区转为正的 $n_m = 1.488$ ($E = 2.62$ eV)。



$n(\lambda)$ from the literature and this work, respectively, the group refractive index n_g is numerically calculated to show that n_g changes from negative to positive with the photon energy.

对于银膜样品, 带间跃迁发生在 > 4.0 eV 的光子能量区, 在可见光区主要是 Drude 区带内自由电子的跃迁机理主导了折射率的色散特性, 光学实验测量的 $\epsilon_\infty = 2.71$, $E_p = 8.97$ eV, $\tau = 4.5 \times 10^{-14}$ s^[38]。依据公式 (9~ 11), 在 1.0~ 4.0 eV 光子能量区对群折射率 n_g 进行了数值计算, 结果

减小到 $n_m = -2.32$ ($\lambda = 532$ nm), 再进一步减小到 $n_m = -1.68$ ($\lambda = 473$ nm), 预期在更短波长的带间跃迁区 n_m 可过零点转为正值。

受折射率控制的光速可变现象还在其它气体和固体物质的光学实验测量中被观察到^[35-39-41], 如在铟掺杂光纤中被发现因巨大的 $dn/d\omega$ 色散特性可导致群折射率 $n_g = -4.000$ ^[39], 以及在 Rb 气体中 $n_g = -23.000$ ^[41]。然而, 由于光学常数、实虚部之间存在严格的 K-K 色散因果关系^[37], 复折射率的实部 n 随频率发生 $dn/d\omega$ 几个数量级的正负变化, 必将导致其虚部消光系数 k 发生与 $dk/d\omega$ 同数量级的巨大变化, 以及伴随同数量级光吸收的急剧增强和能量损失 (吸收系数 $\alpha = 4\pi k/\lambda$)。按光学原理, $n(\lambda)$ 和 $k(\lambda)$ 的色散谱是研究和分析群速度 v_g 和群折射率 n_g 变化的基础, 但至今为止, $n(\lambda)$ 和 $k(\lambda)$ 在相关光谱区随波长和能量发生同数量级巨大变化的色散谱特性并未被实验严格测量和证实, 这是探索受折射率控制的光速可变机理在实验方面的困难和挑战。

在自由电子跃迁机理主导的 Drude 光谱区, 材料的介电常数主要起因于微观带电粒子如自由电子与电磁场的相互作用, 这可以用经典受阻尼

用下随时间 t 发生的位移。在频率为 ω 的周期电磁场作用下, 可解出 N 个电子的平均位移矢量 \mathbf{r} 和极化强度 \mathbf{P} 为:

$$\mathbf{P} = -eN\mathbf{r} = \alpha_e \mathbf{E}, \quad \tilde{\epsilon} = 1 + 4\pi\alpha_e \quad (13)$$

式中 α_e 是电子的极化率。在满足 $\omega\tau \gg 1$ 条件的光频区, 可获得 Drude 区的复介电常数 $\tilde{\epsilon}$ 为:

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon_1 + i\epsilon_2 = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} + i\frac{\omega_p^2}{\omega^3\tau} \quad (14)$$

$$\epsilon_1 = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}, \quad \epsilon_2 = \frac{\omega_p^2}{\omega^3\tau} \quad (15)$$

式中 ω_p 为自由电子的等离子体频率, τ 为自由电子的碰撞时间。

极化位移方向 r 与电场 E 平行, 而与光的传播速度方向垂直, 无法对光速的改变产生直接的影响。在经典 Drude 模型的表达公式 (12) 中, 不含有任何光频电磁场的速度信息, 即带电粒子的极化位移仅与电场的强度、振动频率和散射等机制有关, 而与其传播速度无关, 并不能对光速的改变作出因果关系方面的合理解释。

因此, 促使光速发生快慢变化的机理仍有待更深入的理论和实验研究。当光速受到折射率色散特性的控制时, 折射率随波长有可能发生由负到正的变化, 会产生折射率为零的奇异点, 即在这些奇异点位置光速和波长将趋于无穷。但在自然界中, 至今为止所积累的实验数据显示, 即使在折射率为零的奇异点, 光速和波长都仍为有限值, 不存在趋于无穷发散的现象, 这是理论和实验之间的严重分歧和困难。

3.2 光在金属基界面的传输路径

光在吸收物质界面的传输路径十分复杂, 虽然已经历了多年的研究努力, 但依然未对这些问题有清楚的认识和理解。例如, 实验测到银 532 nm 波长的复折射率 $\tilde{n} = 0.201 + i3.132$ 在 70° 入射条件下, 采用该波长激光从大气入射到银界面, 至今仍无任何理论和实验可预期告知在银内侧的折射角和实际传播路径。

依据麦克斯韦方程和边界条件, Bom 和 Wolf 给出了一组计算公式, 当光从介质入射到金属时, 可计算在金属一侧的实折射角^[5]:

$$\begin{aligned} \tilde{n} \sin \theta_i &= n_a \sin \theta_a \\ q^2 \cos 2\gamma &= 1 - n_a^2 \sin^2 \theta_a (n^2 - k^2) / (n^2 + k^2)^2 \\ q^2 \sin 2\gamma &= 2nk n_a^2 \sin^2 \theta_a / (n^2 + k^2)^2 \\ n_m &= [n_a^2 \sin^2 \theta_a + q^2 (n \cos \gamma - k \sin \gamma)^2]^{1/2} \\ n_m \sin \theta_m &= n_a \sin \theta_a \end{aligned} \quad (17)$$

式中, θ_a 和 θ_i 分别是介质和金属侧的入射角和复折射角, n_a 是介质的折射率, n_m 和 θ_m 分别是金属的有效实折射率和实折射角, q 和 γ 是计算过程中引入的中间参数。银在三个实验波长的复折射率分别为: $\tilde{n}(\lambda = 632.8 \text{ nm}) = 0.216 + i3.881$, $\tilde{n}(\lambda = 532.0 \text{ nm}) = 0.201 + i3.132$, $\tilde{n}(\lambda = 473.0 \text{ nm}) = 0.179 + i2.578$ 。假设入射介质为大气 ($n_a = 1$), 可按公式 (17) 计算光在银侧的实折射角 θ_m 随入射角 θ_a 的变化, 结果显示在图 10 中。当入射角 θ_a 较小时, θ_m 与 θ_a 成近似线性变化的关系。有效折射率 $n \approx n'$ 与复折射率的虚部 k 关

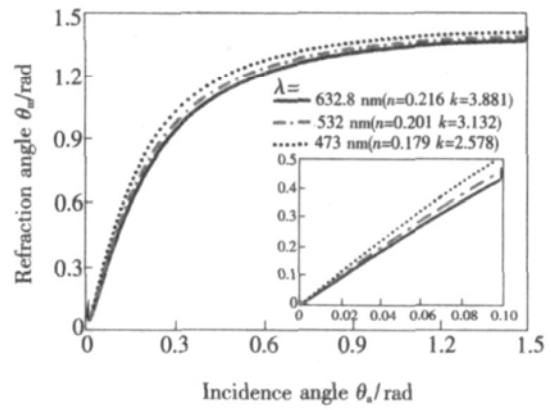


图 10 光从大气入射到银边界时按公式 (17) 计算获得在银一侧的实折射角 θ_m 与入射角 θ_a 的关系

Fig 10 Assuming the light is incident from air to the silver and according to Eq (17), the calculated real refractive angle θ_m at the silver side shows the relationship with the incidence angle θ_a at the air side

在大入射角条件下, 实折射角 θ_m 随入射角 θ_a 的变化趋于平坦。

另一方面, 基于相同的原理和边界条件, Garcia-Pomar 和 Nieto-Vesperinas 给出了另一组公式, 当已知金属一侧的实入射角 θ_m 时, 可计算出介质一侧的折射角 θ_a ^[20]:

$$\begin{aligned} n_a \sin \theta_i &= \tilde{n} \sin \theta_m \\ q^2 \cos 2\gamma &= 1 - \sin^2 \theta_m (n^2 - k^2) / n_a^2 \\ q^2 \sin 2\gamma &= -2nk \sin^2 \theta_m / n_a^2 \\ n_m &= n / (n^2 \sin^2 \theta_m / n_a^2 + q^2 \cos^2 \gamma)^{1/2} \\ n_a \sin \theta_a &= n_m \sin \theta_m \end{aligned} \quad (18)$$

同样采用银在上述三个实验波长的光学常数, 当光以入射角 θ_m 从银界面入射, 从大气侧 ($n_a = 1$) 出射, 可按公式 (18) 计算出光在大气侧的折射角 θ_a 随入射角 θ_m 的变化关系, 结果显示在图 11 中。

光在平行金属银膜内的传播路径如图 12 所示。按公式 (17-18), 由于具有不同的等效折射率 n_m 表达式, 最后计算得到光在大气一侧的出射角并不等于初始入射角。例如, 对于 532 nm 波长来说, 从图 10 中可知, 当大气侧的初始入射角为 0.6 rad 时, 在金属银侧的实折射角约为 1.2 rad 。而在图 11 中, 对于同样的波长, 如果以 1.2 rad 作为光在银膜中的入射角, 在大气侧的出射角约为 0.06 rad 比初始入射角小了约 10 倍, 这与实验观察的结果不符, 即在平行膜两侧应具有相同的入射角和出射角, 这是上述计算模型的困难和局限性。

*** 国家自然科学基金项目资助项目
 基金号: 61074077, 61074078, 61074079, 61074080, 61074081, 61074082, 61074083, 61074084, 61074085, 61074086, 61074087, 61074088, 61074089, 61074090, 61074091, 61074092, 61074093, 61074094, 61074095, 61074096, 61074097, 61074098, 61074099, 61074100, 61074101, 61074102, 61074103, 61074104, 61074105, 61074106, 61074107, 61074108, 61074109, 61074110, 61074111, 61074112, 61074113, 61074114, 61074115, 61074116, 61074117, 61074118, 61074119, 61074120, 61074121, 61074122, 61074123, 61074124, 61074125, 61074126, 61074127, 61074128, 61074129, 61074130, 61074131, 61074132, 61074133, 61074134, 61074135, 61074136, 61074137, 61074138, 61074139, 61074140, 61074141, 61074142, 61074143, 61074144, 61074145, 61074146, 61074147, 61074148, 61074149, 61074150, 61074151, 61074152, 61074153, 61074154, 61074155, 61074156, 61074157, 61074158, 61074159, 61074160, 61074161, 61074162, 61074163, 61074164, 61074165, 61074166, 61074167, 61074168, 61074169, 61074170, 61074171, 61074172, 61074173, 61074174, 61074175, 61074176, 61074177, 61074178, 61074179, 61074180, 61074181, 61074182, 61074183, 61074184, 61074185, 61074186, 61074187, 61074188, 61074189, 61074190, 61074191, 61074192, 61074193, 61074194, 61074195, 61074196, 61074197, 61074198, 61074199, 61074200, 61074201, 61074202, 61074203, 61074204, 61074205, 61074206, 61074207, 61074208, 61074209, 61074210, 61074211, 61074212, 61074213, 61074214, 61074215, 61074216, 61074217, 61074218, 61074219, 61074220, 61074221, 61074222, 61074223, 61074224, 61074225, 61074226, 61074227, 61074228, 61074229, 61074230, 61074231, 61074232, 61074233, 61074234, 61074235, 61074236, 61074237, 61074238, 61074239, 61074240, 61074241, 61074242, 61074243, 61074244, 61074245, 61074246, 61074247, 61074248, 61074249, 61074250, 61074251, 61074252, 61074253, 61074254, 61074255, 61074256, 61074257, 61074258, 61074259, 61074260, 61074261, 61074262, 61074263, 61074264, 61074265, 61074266, 61074267, 61074268, 61074269, 61074270, 61074271, 61074272, 61074273, 61074274, 61074275, 61074276, 61074277, 61074278, 61074279, 61074280, 61074281, 61074282, 61074283, 61074284, 61074285, 61074286, 61074287, 61074288, 61074289, 61074290, 61074291, 61074292, 61074293, 61074294, 61074295, 61074296, 61074297, 61074298, 61074299, 61074300, 61074301, 61074302, 61074303, 61074304, 61074305, 61074306, 61074307, 61074308, 61074309, 61074310, 61074311, 61074312, 61074313, 61074314, 61074315, 61074316, 61074317, 61074318, 61074319, 61074320, 61074321, 61074322, 61074323, 61074324, 61074325, 61074326, 61074327, 61074328, 61074329, 61074330, 61074331, 61074332, 61074333, 61074334, 61074335, 61074336, 61074337, 61074338, 61074339, 61074340, 61074341, 61074342, 61074343, 61074344, 61074345, 61074346, 61074347, 61074348, 61074349, 61074350, 61074351, 61074352, 61074353, 61074354, 61074355, 61074356, 61074357, 61074358, 61074359, 61074360, 61074361, 61074362, 61074363, 61074364, 61074365, 61074366, 61074367, 61074368, 61074369, 61074370, 61074371, 61074372, 61074373, 61074374, 61074375, 61074376, 61074377, 61074378, 61074379, 61074380, 61074381, 61074382, 61074383, 61074384, 61074385, 61074386, 61074387, 61074388, 61074389, 61074390, 61074391, 61074392, 61074393, 61074394, 61074395, 61074396, 61074397, 61074398, 61074399, 61074400, 61074401, 61074402, 61074403, 61074404, 61074405, 61074406, 61074407, 61074408, 61074409, 61074410, 61074411, 61074412, 61074413, 61074414, 61074415, 61074416, 61074417, 61074418, 61074419, 61074420, 61074421, 61074422, 61074423, 61074424, 61074425, 61074426, 61074427, 61074428, 61074429, 61074430, 61074431, 61074432, 61074433, 61074434, 61074435, 61074436, 61074437, 61074438, 61074439, 61074440, 61074441, 61074442, 61074443, 61074444, 61074445, 61074446, 61074447, 61074448, 61074449, 61074450, 61074451, 61074452, 61074453, 61074454, 61074455, 61074456, 61074457, 61074458, 61074459, 61074460, 61074461, 61074462, 61074463, 61074464, 61074465, 61074466, 61074467, 61074468, 61074469, 61074470, 61074471, 61074472, 61074473, 61074474, 61074475, 61074476, 61074477, 61074478, 61074479, 61074480, 61074481, 61074482, 61074483, 61074484, 61074485, 61074486, 61074487, 61074488, 61074489, 61074490, 61074491, 61074492, 61074493, 61074494, 61074495, 61074496, 61074497, 61074498, 61074499, 61074500, 61074501, 61074502, 61074503, 61074504, 61074505, 61074506, 61074507, 61074508, 61074509, 61074510, 61074511, 61074512, 61074513, 61074514, 61074515, 61074516, 61074517, 61074518, 61074519, 61074520, 61074521, 61074522, 61074523, 61074524, 61074525, 61074526, 61074527, 61074528, 61074529, 61074530, 61074531, 61074532, 61074533, 61074534, 61074535, 61074536, 61074537, 61074538, 61074539, 61074540, 61074541, 61074542, 61074543, 61074544, 61074545, 61074546, 61074547, 61074548, 61074549, 61074550, 61074551, 61074552, 61074553, 61074554, 61074555, 61074556, 61074557, 61074558, 61074559, 61074560, 61074561, 61074562, 61074563, 61074564, 61074565, 61074566, 61074567, 61074568, 61074569, 61074570, 61074571, 61074572, 61074573, 61074574, 61074575, 61074576, 61074577, 61074578, 61074579, 61074580, 61074581, 61074582, 61074583, 61074584, 61074585, 61074586, 61074587, 61074588, 61074589, 61074590, 61074591, 61074592, 61074593, 61074594, 61074595, 61074596, 61074597, 61074598, 61074599, 61074600, 61074601, 61074602, 61074603, 61074604, 61074605, 61074606, 61074607, 61074608, 61074609, 61074610, 61074611, 61074612, 61074613, 61074614, 61074615, 61074616, 61074617, 61074618, 61074619, 61074620, 61074621, 61074622, 61074623, 61074624, 61074625, 61074626, 61074627, 61074628, 61074629, 61074630, 61074631, 61074632, 61074633, 61074634, 61074635, 61074636, 61074637, 61074638, 61074639, 61074640, 61074641, 61074642, 61074643, 61074644, 61074645, 61074646, 61074647, 61074648, 61074649, 61074650, 61074651, 61074652, 61074653, 61074654, 61074655, 61074656, 61074657, 61074658, 61074659, 61074660, 61074661, 61074662, 61074663, 61074664, 61074665, 61074666, 61074667, 61074668, 61074669, 61074670, 61074671, 61074672, 61074673, 61074674, 61074675, 61074676, 61074677, 61074678, 61074679, 61074680, 61074681, 61074682, 61074683, 61074684, 61074685, 61074686, 61074687, 61074688, 61074689, 61074690, 61074691, 61074692, 61074693, 61074694, 61074695, 61074696, 61074697, 61074698, 61074699, 61074700, 61074701, 61074702, 61074703, 61074704, 61074705, 61074706, 61074707, 61074708, 61074709, 61074710, 61074711, 61074712, 61074713, 61074714, 61074715, 61074716, 61074717, 61074718, 61074719, 61074720, 61074721, 61074722, 61074723, 61074724, 61074725, 61074726, 61074727, 61074728, 61074729, 61074730, 61074731, 61074732, 61074733, 61074734, 61074735, 61074736, 61074737, 61074738, 61074739, 61074740, 61074741, 61074742, 61074743, 61074744, 61074745, 61074746, 61074747, 61074748, 61074749, 61074750, 61074751, 61074752, 61074753, 61074754, 61074755, 61074756, 61074757, 61074758, 61074759, 61074760, 61074761, 61074762, 61074763, 61074764, 61074765, 61074766, 61074767, 61074768, 61074769, 61074770, 61074771, 61074772, 61074773, 61074774, 61074775, 61074776, 61074777, 61074778, 61074779, 61074780, 61074781, 61074782, 61074783, 61074784, 61074785, 61074786, 61074787, 61074788, 61074789, 61074790, 61074791, 61074792, 61074793, 61074794, 61074795, 61074796, 61074797, 61074798, 61074799, 61074800, 61074801, 61074802, 61074803, 61074804, 61074805, 61074806, 61074807, 61074808, 61074809, 61074810, 61074811, 61074812, 61074813, 61074814, 61074815, 61074816, 61074817, 61074818, 61074819, 61074820, 61074821, 61074822, 61074823, 61074824, 61074825, 61074826, 61074827, 61074828, 61074829, 61074830, 61074831, 61074832, 61074833, 61074834, 61074835, 61074836, 61074837, 61074838, 61074839, 61074840, 61074841, 61074842, 61074843, 61074844, 61074845, 61074846, 61074847, 61074848, 61074849, 61074850, 61074851, 61074852, 61074853, 61074854, 61074855, 61074856, 61074857, 61074858, 61074859, 61074860, 61074861, 61074862, 61074863, 61074864, 61074865, 61074866, 61074867, 61074868, 61074869, 61074870, 61074871, 61074872, 61074873, 61074874, 61074875, 61074876, 61074877, 61074878, 61074879, 61074880, 61074881, 61074882, 61074883, 61074884, 61074885, 61074886, 61074887, 61074888, 61074889, 61074890, 61074891, 61074892, 61074893, 61074894, 61074895, 61074896, 61074897, 61074898, 61074899, 61074900, 61074901, 61074902, 61074903, 61074904, 61074905, 61074906, 61074907, 61074908, 61074909, 61074910, 61074911, 61074912, 61074913, 61074914, 61074915, 61074916, 61074917, 61074918, 61074919, 61074920, 61074921, 61074922, 61074923, 61074924, 61074925, 61074926, 61074927, 61074928, 61074929, 61074930, 61074931, 61074932, 61074933, 61074934, 61074935, 61074936, 61074937, 61074938, 61074939, 61074940, 61074941, 61074942, 61074943, 61074944, 61074945, 61074946, 61074947, 61074948, 61074949, 61074950, 61074951, 61074952, 61074953, 61074954, 61074955, 61074956, 61074957, 61074958, 61074959, 61074960, 61074961, 61074962, 61074963, 61074964, 61074965, 61074966, 61074967, 61074968, 61074969, 61074970, 61074971, 61074972, 61074973, 61074974, 61074975, 61074976, 61074977, 61074978, 61074979, 61074980, 61074981, 61074982, 61074983, 61074984, 61074985, 61074986, 61074987, 61074988, 61074989, 61074990, 61074991, 61074992, 61074993, 61074994, 61074995, 61074996, 61074997, 61074998, 61074999, 61075000, 61075001, 61075002, 61075003, 61075004, 61075005, 61075006, 61075007, 61075008, 61075009, 61075010, 61075011, 61075012, 61075013, 61075014, 61075015, 61075016, 61075017, 61075018, 61075019, 61075020, 61075021, 61075022, 61075023, 61075024, 61075025, 61075026, 61075027, 61075028, 61075029, 61075030, 61075031, 61075032, 61075033, 61075034, 61075035, 61075036, 61075037, 61075038, 61075039, 61075040, 61075041, 61075042, 61075043, 61075044, 61075045, 61075046, 61075047, 61075048, 61075049, 61075050, 61075051, 61075052, 61075053, 61075054,

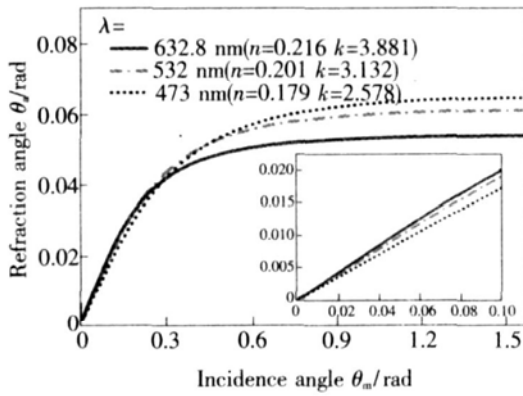


图 11 光从金属银一侧入射到银和大气的边界, 按公式 (18) 计算获得大气侧的折射角 θ_a 与银侧的实入射角 θ_m 之间的关系

Fig 11 Assuming the light is incident from the silver to air and according to Eq (18), the calculated refractive angle θ_a at the air side shows the relationship with the real incidence angle θ_m at the silver side

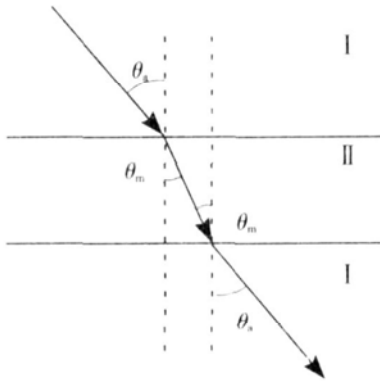


图 12 光从介质 I 入射到平行金属膜 II 又出射到相同介质 I 的传播路径示意图, 应具有相同的入射和出射角。

Fig 12 The light path to show the light incident from the medium I into the metal film II, then transmitting through and finally coming out of the film, going into the medium I. Both of the incident and exited angles should be equal

另外, 按公式 (17, 18) 计算模型, 光在金属边界的有效折射率和实折射角虽然都是波长、光学常数和入射角的函数, 但都为正值, 在整个光谱区不改变符号, 这与图 7 和图 8 所示符号可变的有有效折射率的实验测量结果不符。

3.3 Goos-Hänchen 效应

在探索和研究光在金属基边界奇异传输特性的过程中, Goos-Hänchen 效应是另一种引起人们研究兴趣并被用于尝试解释负折射现象的机理。这种效应最早被用来解释光在透明介质边界发生全内反射时伴有微小横向位移的现象^[42]。如图

13 所示, 光从介电常数 ϵ_1 的介质 1 斜入射到介电常数 ϵ_2 的介质 2 并且 $\epsilon_1 > \epsilon_2$, 当入射角大于某临界角时, 会发生光的全内反射。细致的实验观察发现, 入射光是透入介质 2 一定深度后被反射, 波束中心在介质 2 的入射点 B 与出射点 C 之间存在很小的横向位移 x_s 。

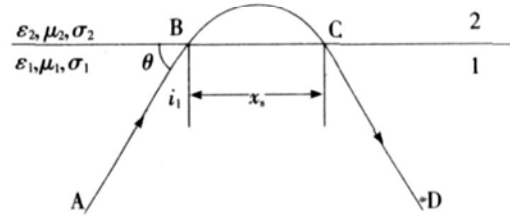


图 13 在全内反射边界的反射波发生横向位移示意图
Fig 13 The transverse displacement of the reflective light wave happens at the totally internal reflection interface composed by two media

在实验中实际被观察到反射光的 Goos-Hänchen 平移量为 D :

$$D = 2\delta \sin i \tag{19}$$

式中 δ 为光在介质 2 中的透入深度, i 为入射角^[42]。通过假设不同的条件, 更为推广的 Goos-Hänchen 效应被用于光束负平行位移的研究。在 Lai 等人对于两种非吸收透明介质边界的研究中^[43], 假设发生 Goos-Hänchen 负位移的条件是两介质之一必须具有负的介电常数。如上述讨论可知, 复介电常数 $\tilde{\epsilon} = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ 其中 $\epsilon_1 = n^2 - k^2$, $\epsilon_2 = 2nk$ 。对于非吸收透明介质, $k = 0$ 即 $\epsilon_1 = n^2$, $\epsilon_1 \geq 0$ 。因此, 虽然理论上可带有很大随意性地假设透明介质具有负介电常数, 但在自然界中并不存在这种物质。因此, 基于自然界中不存在的介质材料, 将不能如理论预期的那样, 真正在透明介质界面观察到负的 Goos-Hänchen 位移效应。

在本实验研究中, 所采用的样品测量系统涉及到两个界面, 一个是光从玻璃/金属界面正入射, 另一是光在金属/大气界面出射和折射。对于玻璃/金属界面, 光在金属一侧的透入深度 $\delta = \lambda / 4\pi k$ 按金样品消光系数 k 的实测数据, 可对不同波长的透入深度 δ 进行计算, 分别为: $\delta (\lambda = 473 \text{ nm}, k = 1.73) = 21.76 \text{ nm}$, $\delta (\lambda = 532 \text{ nm}, k = 2.028) = 20.86 \text{ nm}$, $\delta (\lambda = 632.8 \text{ nm}, k = 4.524) = 14.29 \text{ nm}$ 。然而, 在正入射条件下, $i = 0$ 因此, 由公式 (19) 可知, 其光束的平行位移 $D = 0$ 对光的折射路径无影响。对于金属/大气界面的情况, 目

前仍缺少合适的物理模型来描述光在大气一侧可能产生的透入深度,因此,也不构成对折射路径的影响,或仍有待作更深入的理论和实验研究和分析。

为了理解发生在金属基人工微结构中的负折射现象及其物理起源,Goos-Hänchen效应还在理论上被进一步推广。Dolling等人将它用于解释光在金属/介质边界的正负折射规律^[28],揭示了在很大入射角范围,Goos-Hänchen效应的正负光折射符号不随波长变化,但依赖于光的偏振性,而Snell定律则与光的偏振无关。在Dolling等人的理论模型和数值计算中,主要输入了与偏振有关的光学阻抗、透射和反射系数等参数,才导致了这种与偏振有关的正负折射特性。但依据光学原理,当入射角很小时,不同偏振光的透射和反射系数之间的差别很小,可被忽略不计。不仅如此,如图7所示,在相同入射角条件下,光的折射角可随波长发生从正到负的改变,这与Dolling等人假设Goos-Hänchen效应所导致的预期结果不符。

3.4 负磁导率效应

在尝试解释人工微结构材料的负折射机理时,还引入了负磁导率的假设,即假设磁导率 $\mu \neq 1$ 和 $\mu < 0$ 甚至可为复数^[2~4],但这些假设都未在实验上被严格测量和证实^[29~44]。譬如,对于纳米金颗粒结构,Grigorenko等人^[45]采用负磁导率假设对反射谱进行了拟合,但实际上并未对负磁导率进行实验测量。在拟合中,他们在Dnude模型中输入了与金颗粒光学性质完全不同的体材料光学常数,这仅适用于光子能量 $E < 2.5$ eV的光谱区,而并不适用于金的 $E > 2.5$ eV带间跃迁光谱区^[33],他们还将Dnude模型不适当地扩展到了包含带间跃迁区的全部可见光区,对实验数据进行了错误的拟合,导致了错误的结果^[29~44]。这说明这种拟合模型和数值计算过程具有很大的随意性和误导性,与光频区非磁性物质的磁导率必须为1的物理基础不符^[37]。

基于Maxwell-Garnett (MG)模型,在可见光区,对于由金属和透明介质组成的人工微结构,假设其有效介电常数 ϵ_e 和有效磁导率 μ_e 分别为 $\epsilon_e = \epsilon_{e1} + i\epsilon_{e2}$, $\mu_e = \mu_{e1} + i\mu_{e2}$,可表示为^[46]:

$$\begin{aligned} (\epsilon_e - \epsilon) / (\epsilon_e + \epsilon) &= (\epsilon_m - \epsilon) f_s / (\epsilon_m + \epsilon), \\ \mu_e &= (1 - f_s) \mu + f_s \mu_m \end{aligned} \quad (20)$$

式中, μ 和 ϵ 分别是人工微结构中主质材料的磁

导率和介电常数, μ_m 和 ϵ_m 是镶嵌在微结构中金属的复磁导率和复介电常数, f_s 是组分填充系数^[46]。有效折射率 \tilde{n}_e 具有关系 $\tilde{n}_e = n_e + ik_e$, $\tilde{n}_e^2 = \epsilon_e \mu_e$,以及 $\epsilon = 1 + 4\pi\alpha_e$, $\mu = 1 + 4\pi\alpha_m$,其中 α_e 和 α_m 分别是主质材料的电偶极矩和磁偶极矩。

固体的介电常数和磁导率分别起源于微观电偶极矩和磁偶极矩对于快速交变电磁场的响应特性。在极高频如x光波段,无论是电偶极矩还是磁偶极矩都难以跟得上电磁场的快速变化,导致 $\alpha_e = \alpha_m = 0$, $\epsilon = \mu = 1$ 。对于贵金属来说,在自由电子的带内跃迁光谱区,因d带为满带,光频电磁波主要对s带内的自由电子产生影响和起作用。虽然电子的电偶极矩能够对电磁场的变化产生响应,但磁偶极矩很难在很高频率的可见光区随外界电磁波的振荡发生相应的变化。因此,在可见光区,按式(20),将满足 $\mu_e = \mu = 1$ 的条件^[37]。由此可知,在可见光区,金属基人工材料的有效介电常数 ϵ_e 和折射率将主要取决于结构中金属的微观几何形状和填充系数 f_s ^[47],而与磁导率 μ 无关。

这在物理上能够被理解,当金属和介质材料的磁偶极矩都对外界快速变化的电磁场无响应时,将它们组合成人工结构,无论给出何种数学表达式,都将不存在任何额外的物理机制能导致合成的有效磁偶极矩随外界电磁场发生急剧的响应和改变,其合成结构的表观磁导率将等于1。当 $\mu = 1$ 时, $\tilde{n} = \sqrt{\tilde{\epsilon}}$, $\epsilon_1 = n^2 - k^2$, $\epsilon_2 = 2nk$ 。这意味着对于光吸收物质,如存在负的折射率 n ,介电函数的虚部 ϵ_2 将为负数,能量损失函数为 $\epsilon_2 / (\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)$,这是对光频电磁波与物质中微观粒子相互作用后能量损失的一种量度^[37],很难被理解成会以负数的形式释放出能量,因此,十分需要对这些核心问题给予更深入细致的研究和分析。

3.5 等离子共振条件

金属基人工微结构的体或表面等离子波的假设也被用于解释负折射的现象和机理^[27, 48],但都缺少将等离子共振光谱等特性计入计算研究的确切分析。金属中的等离子体是在电磁场激励下某能量区发生大量电子的集团共振,从而对电位移场 D ($D = \tilde{\epsilon} E$)产生很强的屏蔽作用,使 $D \approx 0$ 发生在介电常数 $\tilde{\epsilon} \approx 0$ ($\epsilon_1 = 0$, $\epsilon_2 \approx 0$)的能量位置。对

于贵金属来说,按公式(16)定义的等离子频率或能量都不可能发生在可见光区(约 1.7~3.1 eV 光子能量区),如金和银的等离子能量 E_p 分别为 9.33 eV^[33] 和 8.97 eV^[38]。但按公式(11, 15)的条件,由于高频介电常数 ϵ_∞ 的影响,实际有可能发生 $\epsilon_1 = 0$ 的等离子振荡能量 E_p^* 将下移至较低的光子能量区,即当 $E = E_p^*$ 时, $\epsilon_1 = 0$

$$E_p^* = \frac{E_p}{\sqrt{\epsilon_\infty}} \quad (21)$$

Johnson 和 Christy 曾经对可见光区贵金属的透射和反射光谱作过系统的实验测量和备受重视的研究,认为等离子共振仅存在于银,而不能在金和铜样品中被观察到^[49]。如图 1 和图 2 由椭圆偏振光谱测量得到的介电常数谱所示,对于银样品来说,由于 Drude 区尾部受 ϵ_∞ 和带间跃迁的影响, $\epsilon_1 = 0$ 和 $\epsilon_2 \approx 0$ 的能量被下移至近紫外区约 3.8 eV 附近。而从金的介电常数谱中可看到,在可

因此,试图采用横场特征的光频电磁波来激发等离子振荡的条件极为苛刻和有限,如在 p 光偏振和大入射角条件下,或许有可能在银膜表面产生有限的光波纵场分量而在 3.8 eV 附近激发出高透射的等离子共振^[51]。

在极薄层金属表面被激发的表面等离子振荡能量 E_{ps} 与体等离子能量 E_p 的关系为^[52]:

$$E_{ps} = \frac{E_p}{\sqrt{1 + \epsilon_d}} \quad (22)$$

式中 ϵ_d 为与金属近邻介质的介电常数。对于折射率 n 在 1.3~2.5 范围的大多数介质材料来说, ϵ_d 约在 1.7~6.3 范围, E_{ps} 的值约在 (0.37~0.61) E_p 范围。如对于金样品,依据光学实验测量结果, $E_p = 9.33$ eV^[33], E_{ps} 约在 3.5~5.7 eV 光子能量区间。对于银样品, $E_p = 8.97$ eV^[38], E_{ps} 约在 3.3~5.5 eV 光子能量区间。这些有可能被激发的表面等离子能量都不在可见光范围。因此,在可见光区,以及在能量更低的长波光谱区所观察到的负折射率现象,都与体或表面等离子振荡的机制无关。在实际金属和介质组成人工

结构的光谱研究中,或许会观察到反射、透射或吸收峰的存在,多半与已知光学原理的结构性增强机理有关。在金属基微结构中可找到大量各种谱峰增强的例子,并不必归因于体或表面等离子共振的机理假设。即使对于天然贵金属如金和铜样品,在带内和带间电子跃迁的交叠区边缘因急剧变化的光学常数也会产生谱结构,如在能量损失谱中出现峰谷现象,但这与金属的等离子共振机理无关。因此,仍需要有更多可供比较的其它基础性实验方法(如电子能量损失谱)来给予金属等离子共振效应更细致的分析和证实^[53~55],将有助于增进对这些效应的理解和应用。

因此,虽然一些文献中常采用体或表面等离子波的假设来解释光在贵金属基人工微结构中传播时发生的负折射现象,但这些假设依然有待于被实验严格测量和证实。在本研究中,采用了最简单的贵金属金和银/大气界面,并对金和银的复

3.6 金属环的感应磁导率效应

为了理解和产生金属基人工微结构材料的负折射率效应,许多研究小组都采用了各种形状和尺寸的微金属环结构^[6, 56~60],这是类似电路系统中的电感效应,即通过电磁波的交变电场在微金属环中产生附加的磁感应电流和磁场,诱导出人工“光学磁性”,以致影响电磁波的传播方向。但至今尚未在人工微结构的“光学磁性”与负折射效应之间建立起实验方面的因果联系^[29]。这种人工微金属环既可是开口结构^[6, 56, 57, 60],也可成鱼眼或鱼网状的闭环结构^[22, 58, 59],甚至是完全开路的微金属线结构^[23]。按普适电路原理,其它金属也可产生类似环状结构的“光学磁性”,但目前似乎仅将研究兴趣专注于贵金属微结构,意味着“光学磁性”机理并不具有各类金属的普适性,而仅特别有选择地适用于贵金属,这与宏观电路的普适原理不符。此外,已报道的实验结果显示,无论是可产生“光学磁性”的开口结构,还是无“光学磁性”效应的闭路(或短路)贵金属微结构,都可产生表观负折射效应^[6, 22, 23]。对于本实验制备的楔形贵金属样品,图 14 显示了在银膜边缘

($\theta_m = 73.5 \mu\text{rad}$, $x = 0.2 \text{ mm}$) 拍摄的 SEM 图, 可看到样品具有较均匀和连续分布的纳米颗粒膜结构。在这些最简单的天然金属界面不存在任何形式的微金属环、线和网状结构, 同样可发生光的负折射效应, 并且光在贵金属界面的折射还可随波长发生由负变到正的改变, 这显然与微观光磁电流导致的“光学磁性”效应完全无关。

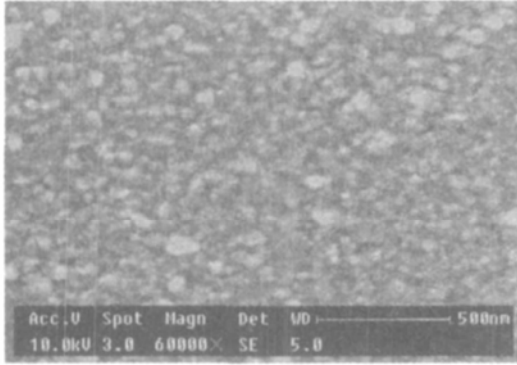


图 14 在楔形角 $\theta_m = 73.5 \mu\text{rad}$ 的银膜边缘 ($x = 0.2 \text{ mm}$) 拍摄的 SEM 图, 揭示出较均匀和连续的银纳米颗粒膜结构

Fig 14 The SEM image for the silver sample ($\theta_m = 73.5 \mu\text{rad}$) at the thinner edge ($x = 0.2 \text{ mm}$) shows that the sample has a continuous and uniform surface

金属中电子的平均自由程还与费米面的速度 v_F 有关。对于金和银样品, 其绝对零度的费米速度约为 $1.4 \times 10^5 \text{ nm/s}$ ^[61]。在可见光频率 $f \approx 10^{15} / \text{s}$ 的电场驱动下, 金属电子在一个电磁场振荡周期内的平均自由程 $d \approx 1.4 \text{ nm}$, 远小于大多数金属环结构数百纳米的设计尺寸^[60]。因此, 假设光的极高频交变电场可在环线内感应出连续分布的微电流并诱导出“光学磁场”的机理仍有待被更多独立的实验进行严格可靠的测量和研究。

4 结 论

对发生金属基人工微结构边界的负折射现象及其研究进展进行了介绍。为了理解贵金属在这种结构中的作用, 需要隔离其它复杂次级效应, 对光频电磁波在最简单天然金属界面的传播特性进行细致研究。基于 Snell 定律的实验框架, 在研究中制备了一系列入射角精确可控的楔形贵金属金和银等样品, 采用不同波长的激光, 对于光在最简单天然贵金属界面传播时发生由负到正的折射特性进行了定量实验测量, 获得表观折射率随入射和折射角变化的定量关系, 对于导致奇异光折射现象的各种争议性机理进行了细致探索和讨论, 这与等离子体、负磁导率和 Goos-Hänchen 等效应无关。天然金属界面的正负折射效应未被包含在微金属结构的光学性质研究中, 这将激起对负折射率效应物理起源更深层次的新解释和认识。依据 Snell 定律, 一旦已知物质的光学常数, 将可精确预期光束在全入射角范围的折射路径和规律, 并在光电子领域获得实际和广泛的应用。至今为止, 在有限条件下特殊设计和制备的金属基微结构的表观光折射特性显然不具备这种特征。这仍需要有更多的后续研究, 不仅是研究贵金属界面, 还需研究光在过渡金属和合金等界面的传播和折射特性, 这是理解和应用金属基微结构奇异光学特性的重要基础, 将可延伸到对于光在凝聚态物质中传播因受折射率控制其速度发生快慢变化的更底层认识的突破。因此, 本研究工作和结果将有助于人们理解和认识光在金属基微结构中发生正负折射传播的物理机理和规律, 从而为新型微纳光电子材料和器件的研制和应用建立基础。

参 考 文 献:

- [1] Shirley JW. An early experimental determination of Snell's law [J]. *American J. Phys* , 1951, **19** (9): 507-508
- [2] Veselago V G. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of ϵ and μ [J]. *Sov. Phys. Usp.*, 1968, **10** (4): 509-514
- [3] Depine R A, Lakhtakia A. A new condition to identify isotropic dielectric magnetic materials displaying negative phase velocity [J]. *Microwave Opt. Technol. Lett.* , 2004, **41** (4): 315-316
- [4] McCall M W, Lakhtakia A, Weiglhofer W S. The negative index of refraction demystified [J]. *Eur. J. Phys.* , 2002, **23** (3): 353-359
- [5] Born M, Wolf E. *Principles of Optics* [M]. Oxford 6th Edition, Ch 13, Pergamon Press, 1993
- [6] Shelby R A, Smith D R, Schultz S. Experimental verification of a negative index of refraction [J]. *Science* , 2001, **292**

- (6): 77-79
- [7] Valanju P M, W alser R M, V alanju A P. W ave refraction in negative index media always positive and very inhomogeneous [J]. *Phys Rev Lett*, 2002, **88**(18): 187401-1-3
- [8] Garcia N, Nieto-Vesperinas M. Is there an experimental verification of a negative index of refraction yet [J]. *Opt Lett*, 2002, **27**(11): 885-887.
- [9] Pendry J B. Positively negative [J]. *Nature*, 2003, **423**(6935): 22-23
- [10] Cubukcu E, Aydin K, Ozbay E, *et al*. Electromagnetic wave negative refraction by photonic crystals [J]. *Nature*, 2003, **423**(6940): 604-605
- [11] Li X F, Chen Y R, Miao J, *et al*. High solar absorption of a multilayered thin film structure [J]. *Opt Exp*, 2007, **15**(4): 1907-1912
- [12] Zhao S, Wäckelgård E. Optimization of solar absorbing three-layer coatings [J]. *Sol Energ Mat Sol C*, 2006, **90**(3): 243-261.
- [13] Chen A, Hasegawa K, Podolskiy V A, *et al*. Metamaterial coatings for broadband asymmetric mirrors [J]. *Opt Lett*, 2007, **32**(13): 1770-1772
- [14] Poorter J D, Heller A, Aspnes D E. Experiment and theory of transparent metal films [J]. *Nature*, 1985, **313**(6004): 664-666
- [15] Podes R B, Lee C J, Moon D G, *et al*. Transparent conducting metal electrode for top emission organic light-emitting devices: Ca:Ag double layer [J]. *Appl Phys Lett*, 2004, **84**(23): 4614-4617.
- [16] Leonhardt U. Optical conformal mapping [J]. *Science*, 2006, **312**(5781): 1777-1780
- [17] Chen H, Wu B, Zhang B, *et al*. Electromagnetic wave interactions with a metamaterial cloak [J]. *Phys Rev Lett*, 2007, **99**(6): 063903-1-3
- [18] Pendry J B. Negative refraction makes a perfect lens [J]. *Phys Rev Lett*, 2000, **85**(18): 3966-3969
- [19] Matsubara K, Kawata S, Minami S. Optical chemical sensor based on surface plasmon measurement [J]. *Appl Opt*, 1988, **27**(6): 1160-1163
- [20] Garcia-Pomar J L, Nieto-Vesperinas M. Transmission study of prisms and slabs of lossy negative index media [J]. *Opt Exp*, 2004, **12**(10): 2081-2095
- [21] Lezec H J, Dionne J A, Atwater H A. Negative refraction at visible frequencies [J]. *Science*, 2007, **316**(5823): 430-432
- [22] Valentine J, Zhang S, Zentgraf T, *et al*. Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index [J]. *Nature*, 2008 (Aug), doi 10.1038/nature07247, advanced online publication, 1-4
- [23] Yao J, Liu Z W, Liu Y M, *et al*. Optical negative refraction in bulk materials of nanowires [J]. *Science*, 2008, **321**(5891): 930
- [24] Zhou C, Jia J, Liu L. Circular damann grating [J]. *Opt Lett*, 2003, **28**(22): 2174-2176
- [25] Wang S, Zhou C, Zhang Y, *et al*. Deep-etched high-density fused-silica transmission gratings with high efficiency at a wavelength of 1 550 nm [J]. *Appl Opt*, 2006, **45**(12): 2567-2571.
- [26] Sanz M, Papageorgopoulos A C, Egelhoff W F, *et al*. Transmission measurements in wedge-shaped absorbing samples: An experiment for observing negative refraction [J]. *Phys Rev E*, 2003, **67**(6): 601-605
- [27] Wegener M, Dolling G, Linden S. Plasmonics: backward waves moving forward [J]. *Nature Materials*, 2007, **6**(7): 475-476
- [28] Dolling G, Klein M W, Wegener M, *et al*. Negative beam displacements from negative-index photonic metamaterials [J]. *Opt Exp*, 2007, **15**(21): 14219-14227.
- [29] Shalaev V M. Optical negative-index metamaterials [J]. *Nature Photonics*, 2007, **1**(1): 41-48
- [30] Wu Y H, Gu W, Chen Y R, *et al*. Experimental observation of light refraction going from negative to positive in the visible region at the pure air/Au interface [J]. *Phys Rev B*, 2008, **77**(3): 035134-1-3
- [31] Wu Y H, Gu W, Chen Y R, *et al*. Negative refraction at the pure Ag/air interface observed in the visible Drude region [J]. *Appl Phys Lett*, 2008, **93**(7): 071910-1-3
- [32] Chen L Y, Feng X W, Su Y, *et al*. Design of scanning ellipsometer by rotating synchronously the polarizer and analyzer

- [J]. *Appl Opt*, 1994 **33**(7): 1299-1305
- [33] Aspnes D E, Kinsbron E, Bacon D D. Optical properties of Au sample effects [J]. *Phys Rev B*, 1980 **21**(8): 3290-3299
- [34] Klein M V, Furtak T E, *Optics* [M]. 2nd edition, John Wiley & Sons, Inc 1986
- [35] Stenner M D, Gauthier D J, Meifeld M A. The speed of information in a “fast-light” optical medium [J]. *Nature*, 2003 **425**(6959): 695-698
- [36] Lynch D W, Hunter W R. *Handbook of Optical Constants of Solids* [M]. Edited by Palik E D, London: Academic Press 1985, 275
- [37] Wooten F. *Optical Properties of Solids* [M]. New York and London: Ch 2-3, Academic Press 1972
- [38] Parkins G R, Lawrence W E, Christy R W. Intraband optical conductivity $\sigma(\omega, T)$ of Cu, Ag and Au: Contribution from electron-electron scattering [J]. *Phys Rev B*, 1981, **23**(12): 6408-6416
- [39] Gehring G M, Schweinsberg A, Barsi C, *et al* Observation of backward pulse propagation through a medium with a negative group velocity [J]. *Science*, 2006 **312**(5775): 895-897.
- [40] Peatross J, Glasgow S A, Ware M. Average energy flow of optical pulses in dispersive media [J]. *Phys Rev Lett*, 2000 **84**(11): 2370-2373.
- [41] Akulshin A M, Barreiro S, Lezama A. Steep anomalous dispersion in coherently prepared Rb vapor [J]. *Phys Rev Lett*, 1999 **83**(21): 4277-4280
- [42] Jackson J D. *Classical Electrodynamics* [M]. 3rd edition, John Wiley & Sons, Inc 1999, 308
- [43] Lai H M, Kwok C W, Loo Y W, *et al* Energy-flux pattern in the Goos-Hänchen effect [J]. *Phys Rev E*, 2000 **62**(5): 7330-7339
- [44] Kildishev A V, Drachev V P, Chettiar U K, *et al* Comment on negative refractive index in artificial metamaterials [J/OL]. 2006 <http://arxiv.org/abs/physics/0609234>
- [45] Grigorenko A N, Geim A K, Gleason H F, *et al* Nanofabricated media with negative permeability at visible frequencies [J]. *Nature*, 2005 **438**(7066): 335-338
- [49] Johnson P B, Christy R W. Optical constants of the noble metals [J]. *Phys Rev B*, 1972 **6**(12): 4370-4379
- [50] Melnyk A R, Harrison M J. Theory of optical excitation of plasmons in metals [J]. *Phys Rev B*, 1970 **2**(4): 835-850
- [51] McAlistar A J, Stem E A. Plasma resonance absorption in thin metal films [J]. *Phys Rev*, 1963 **132**(4): 1599-1602
- [52] Otto A. *Optical Properties of Solid-state Development* [M]. Edited by B. O. Seraphin, North-Holland, Ch 13, 1976
- [53] Nilsson P O, Lindau I, Hagström S B M. Optical plasma-resonance absorption in thin films of silver and some silver alloys [J]. *Phys Rev B*, 1970 **1**(2): 498-505
- [54] Krane K J, Raether H. Measurement of surface plasmon dispersion in aluminum and indium [J]. *Phys Rev Lett*, 1976 **37**(20): 1355-1357.
- [55] Klos T, Raether H. The dispersion of surface plasmons of Al and Mg [J]. *Phys Lett A*, 1973 **44**(3): 157-158
- [56] Pendry J B, Holden A J, Robbins D J, *et al* Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena [J]. *IEEE Trans Microwave Theory and Tech*, 1999 **47**(11): 2075-2084
- [57] Yen T J, Padilla W J, Fang N, *et al* Terahertz magnetic response from artificial materials [J]. *Science*, 2004 **303**(5663): 1494-1496
- [58] Dolling G, Enkrich C, Wegener M, *et al* Low-loss negative-index metamaterial at telecommunication wavelengths [J]. *Opt Lett*, 2006 **31**(12): 1800-1802
- [59] Zhang S, Fan W, Malloy K J, *et al* Near-infrared double negative metamaterials [J]. *Opt Exp*, 2005 **13**(13): 4922-4930

- [60] M eyra th T P, Zentgraf T, Giessen H. Lorentz model for metamaterials. Optical frequency resonance circuits [J]. *Phys Rev B*, 2007, 75(20): 205102-1-3
- [61] Ashcroft N W, Mermin N D. *Solid State Physics* [M]. Orlando: Ch 1, Saunders College Publish, 1976: 38

Recent Progress of the Researches on the Positive and Negative Refractions of the Visible Light Propagating at the Metal-based Interface

CHEN Liang-yao, CHEN Yue-ru, DAI Zhong-hong

ZHOU Wei-xi, SHEN Yan, WU Yun-hua, GU Wen, ZHENG Yu-xiang

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

Abstract Snell's law reveals the propagation and refraction properties of the light when it passes through the interface composed by two media with different optical constants. It is the foundation of modern physical and geometrical optics. The effort to realize a perfect lens is trying to find the material with a negative refractive index, which has not yet been found in the natural material in past years. In this work, we have fabricated a series of noble metal-based film samples (Au and Ag) with different incident angles. We quantitatively measured the refraction of the light passing through the metal/air interface, and observed that the refraction can change from negative to positive in the visible range at the simplest natural metal/air interface. The mechanisms for causing the negative refraction have been carefully discussed and analyzed, and are not attributed to the effects such as the plasmon resonance, the negative permeability, the Goos-Hänchen shift, and so on. We hope, therefore, the results given in this work will stimulate people to understand more of the physical origin of the negative refraction happened in the metal-based artificial materials, and will help its application in the photonics material and device design and fabrication in the future.

Key words Snell law; refractive index; metal optics; plasmon frequency; group velocity

作者简介: 郑玉祥 (1968-), 男, 安徽泾县人, 博士, 教授, 主要从事固体光谱学的研究。