NOTIZEN

Zur Theorie der Plasmaresonanzstrahlung an rauhen Oberflächen

E. Kretschmann und H. Raether

Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg

(Z. Naturforschg. 22 a, 1623—1625 [1967]; eingeg. am 18. August 1967)

Bestrahlt man eine dünne Metallschicht mit parallel polarisiertem Licht, dessen Spektrum die Plasmafrequenz ω_P enthält, so findet man eine allseitige Emission von parallel polarisiertem Licht mit einem ausgeprägten Maximum der Intensität bei der Plasmafrequenz. Voraussetzung dafür ist, daß die einfallende elektrische Feldstärke eine Komponente in Richtung der Foliennormalen besitzt (p-pol. Licht). Das Phänomen ist bisher an Silber- und Kaliumschichten beobachtet worden [1–3].

An einer glatten Schicht ist das Beobachtungsergebnis unverständlich, da auf Grund der Stetigkeitsbedingungen für $E_{\tan}$ und $H_{\tan}$ nur der durchgelassene (transmittierte) und reflektierte Strahl auftreten darf. Man muß daher nach Stern [4] eine rauhe Oberfläche annehmen. Die Abstrahlung der von p-pol. Licht angeregten senkrecht zur Grenzfläche schwingenden Oberflächenströme löscht sich dann nicht vollständig aus, wie bei einer glatten Oberfläche. Stern hat die von diesen Oberflächenströmen ausgestrahlte Energie berechnet unter den Voraussetzungen, daß die Rauhigkeit klein gegen die Wellenlänge und die Dicke der Schicht ist und daß die Korrelationsfunktion der Rauhigkeit gegeben ist durch

$$\langle \delta(x_\perp), \delta(x_\perp - s_\perp) \rangle = \langle \delta^2(x_\perp) \rangle \exp(-s_\perp/\sigma^2). \qquad (1)$$

Dabei ist σ die Korrelationslänge. $\delta(x_\perp)$ ist die Höhendifferenz zwischen der wahren Folienoberfläche und der gemittelten am Ort $x_\perp$, nimmt also positive und negative Werte an. $x_\perp$ und $s_\perp$ sind Vektoren in der Oberfläche.

Für die Leistung $\mathrm{d}T_s$ des Streulichts einer Folie der Dicke τ und der DK ε, die unter dem Winkel Θ zur Foliennormalen in den Raumwinkel $\mathrm{d}\Omega$ abgestrahlt wird, dividiert durch das Produkt T_i aus der Intensität des unter Θ_0 eingestrahlten Lichtes und der beleuchteten Folienfläche, gibt Stern die Formeln an

$$\frac{\mathrm{d}T_s}{T_i\,\mathrm{d}\Omega} = \frac{4}{\pi c^2}\,\omega^6 \sin^2\Theta \cos^2\Theta\,|\varepsilon - 1|^2 \left|\frac{E_n}{E_i}\right|^2 \exp\{-(\tfrac{1}{2}\sigma(k_{\perp 0} - k_\perp))^2\}\,(|W^+_{k_\perp}|^2 + |W^-_{k_\perp}|^2)\,N\,a\,\delta^2. \qquad (2)$$

Dabei bedeuten

$$\left|\frac{E_n}{E_i}\right|^2 = \frac{\sin^2\Theta_0 \cos^2\Theta_0}{|\sin^2\Theta_0 - \varepsilon|}\left|\frac{(1-f_0)(e^{+k_0'\tau} - f_0\,e^{-k_0'\tau})}{e^{k_0'\tau} - f_0^2\,e^{-k_0'\tau})}\right|^2,$$

$$W^+_{k_\perp} = \frac{(\varepsilon+1)\,e^{-k(z-\tau/2)}\,(e^{k'\tau} - f\,e^{-k'\tau})}{2\pi c(\varepsilon k + k')(e^{k'\tau} - f^2 e^{-k'\tau})}, \qquad W^-_{k_\perp} = \frac{\pi c(\varepsilon k + k')^2\,(e^{k'\tau} - f^2 e^{-k'\tau})}{(\varepsilon+1)\,e^{-k(z+\tau/2)}\,k'},$$

$k = (k_\perp^2 - (\omega/c)^2)^{1/2}$, $\quad k' = (k_\perp^2 - \varepsilon(\omega/c)^2)^{1/2}$, $\quad f = (\varepsilon k - k')/(\varepsilon k + k')$,

$k_\perp^2 = k_x^2 + k_y^2$, $\quad k_x = (\omega/c)\sin\Theta\cos\Phi$, $\quad k_y = (\omega/c)\sin\Theta\sin\Phi$,

$k_{\perp 0} = (k_{x0}, k_{y0})$; $\quad k_{x0} = (\omega/c)\sin\Theta_0$; $\quad k_{y0} = 0$,

Φ = Winkel zwischen Beobachtungs- und Einstrahlebene,

N = Anzahl der Erhebungen und Senken pro Flächeneinheit,

δ^2 = mittlere quadratische Höhe einer Erhebung oder Senke,

a = Geometriefaktor der Ordnung 1,

k_0, k_0', f_0 berechnen sich wie k, k', f, jedoch als Funktion von $k_{\perp 0}$.

Wir haben versucht, die Formel durch Einführung der Fresnel-Koeffizienten r und t der dünnen Schicht (also dem Verhältnis von reflektierter bzw. durchgelassener zu eingestrahlter Amplitude des Lichtes) übersichtlicher zu schreiben. Man erhält dann

$$\frac{\mathrm{d}T_s}{T_i\,\mathrm{d}\Omega} = (1/64\,\pi)\,\sigma^2 \langle\delta^2\rangle (\omega/c)^4 \sin^2\Theta \sin^2\Theta_0\,|1 - \varepsilon^{-2}|^2 \exp\{-(\tfrac{1}{2}\sigma(k_{\perp 0} - k_\perp))^2\}\,(|1+r|^2\,|t_0|^2 + |t|^2\,|1+r_0|^2), \qquad (3)$$

[1] J. Brambring u. H. Raether, Phys. Rev. Letters 15, 882 [1965]; Z. Phys. 199, 118 [1967].

[2] J. Bösenberg u. H. Raether, Phys. Rev. Letters 18, 397 [1967].

[3] W. Steinmann, J. Hofmann u. K. Stettmaier, Phys. Rev. Letters 23, 234 [1966].

[4] E. A. Stern, University of Washington, Plasma Radiation by Rough Surfaces, unveröffentlicht.

wenn man das Streulicht auf der Transmissionsseite beobachtet, und

$$\frac{dT_s}{T_i\, d\Omega} = \ldots (|1+r|^2 |1+r_0|^2 + |t|^2 |t_0|^2), \tag{3 a}$$

wenn man es auf der Reflexionsseite beobachtet[5]. $r=r(\Theta,\tau)$, $r_0=r_0(\Theta_0,\tau)$, $t=t(\Theta,\tau)$, $t_0=t_0(\Theta_0,\tau)$ sind die FRESNEL-Koeffizienten als Funktion der Frequenz ω, des Einstrahlwinkels Θ_0, des Beobachtungswinkels Θ und der Schichtdicke τ. Mit den Bezeichnungen von STERN sind sie gegeben durch (siehe z. B. [6])

$$r=f(e^{k'\tau}-e^{-k'\tau})/(e^{k'\tau}-f^2\, e^{-k'\tau}), \tag{4}$$

$$t=(1-f^2)/(e^{k'\tau}-f^2\, e^{-k'\tau}). \tag{4 a}$$

Man kann die Formel kurz wie folgt erläutern:

Die in den Raumwinkel $d\Omega$ unter dem Winkel Θ abgestrahlte Leistung eines einzelnen Dipolelements dp auf der Oberfläche $d^2x_\perp$ einer planparallelen Schicht ist

$$dT_s = (c/8\pi)\,|dp|^2(\omega/c)^4 \cdot \sin^2\Theta(\tfrac{1}{4})\,|1+\varepsilon^{-1}|^2\,|1+r|^2\, d\Omega, \tag{5}$$

wobei dp mit der Stromdichte j an der Oberfläche verknüpft ist durch

$$dp = (j(x_\perp)/\omega)\,\delta(x_\perp)\, d^2x_\perp. \tag{6}$$

Gegenüber der bekannten Formel für die Dipolstrahlung im leeren Raum tritt der Faktor

$$(\tfrac{1}{4})\,|1+\varepsilon^{-1}|^2\,|1+r|^2$$

hinzu. Bei einem Dipol unmittelbar über der Grenzfläche wäre $|1+r|^2$ zu setzen, im andern Fall, daß sich der Dipol unmittelbar unterhalb, also im Metall, befindet, $|\varepsilon^{-1}|^2\,|1+r|^2$. Unser Ergebnis ist das Mittel beider Fälle. In Gl. (5) wurde ein Dipol auf der Beobachtungsseite betrachtet. Bei einem Dipol auf der Gegenseite gilt Gl. (5) mit dem Unterschied, daß $|t|^2$ an Stelle von $|1+r|^2$ zu setzen ist. Die Integration von Gl. (6) über die streuende Fläche A liefert

$$|p|^2 = |j_0/\omega|^2 \iint d^2x_\perp\, d^2x'_\perp\, \delta(x_\perp)\,\delta(x'_\perp) \cdot \exp\{-i(k_\perp - k_{\perp 0})\,(x_\perp - x'_\perp)\}. \tag{7}$$

Der Faktor $\exp\{-i(k_\perp - k_{\perp 0})\,(x_\perp - x'_\perp)\}$ berücksichtigt die gegenseitige Phasendifferenz der erregten Dipole. j_0 ist die Amplitude der Stromdichte an der Oberfläche. Mit der Substitution $(x_\perp - x'_\perp) = s_\perp$ folgt

$$|p|^2 = |j_0/\omega|^2 A \int d^2s_\perp \langle \delta(x_\perp), \delta(x_\perp - s_\perp)\rangle \cdot \exp\{i(k_{\perp 0} - k_\perp)\, s_\perp\} \tag{8}$$

und mit dem vorausgesetzten Ansatz (1) für die Korrelationsfunktion

$$= |j_0/\omega|^2 A\,\pi\,\sigma^2 \langle\delta^2\rangle \exp\{-(\tfrac{1}{2}\,\sigma(k_{\perp 0} - k_\perp))^2\}. \tag{9}$$

Aus Gl. (8) folgt, daß bei einer glatten Schicht, d. h. $\langle \delta(x_\perp), \delta(x_\perp - s_\perp)\rangle = \langle\delta^2\rangle$, auch in diesem Modell nur der reflektierte und der durchgelassene Strahl auftritt.

Die Stromdichte j_0 ergibt sich aus dem normalen Anteil der Polarisation P_0 und der Feldstärke E_0 an der Oberfläche im Innern der glatten Schicht auf der Seite der Lichtquelle zu

$$j_0 = \dot{P}_0 = (\varepsilon - 1)\,\dot{E}_0/4\pi = (-i\omega)\,\frac{\varepsilon-1}{4\pi}\sin\Theta_0\,\frac{1}{\varepsilon}\,E_i(1+r_0) \tag{10}$$

und entsprechend auf der Gegenseite zu

$$j_0 = (-i\omega)\,\frac{\varepsilon-1}{4\pi}\sin\Theta_0\,\frac{1}{\varepsilon}\,E_i\,t_0. \tag{10 a}$$

Dabei bedeutet E_i die Feldstärke des unter dem Winkel Θ_0 eingestrahlten Lichtes. Aus den Gln. (5), (9) und (10) folgen dann mit $T_i = (c/8\pi)\,A\,E_i^2$ und unter der Voraussetzung, daß die Rauhigkeiten der beiden Oberflächen unabhängig voneinander sind, die Gln. (3) und (3 a).

Der starke Resonanzcharakter der Streustrahlung bei der Plasmafrequenz wird allein durch $|1-\varepsilon^{-2}|^2$ gegeben, da $|r+1|^2$ und $|t|^2$ bei ω_P ein Minimum haben (Abb. 1). Die Streuformel ist symmetrisch in Θ und Θ_0. $\sigma^2\langle\delta^2\rangle$ bestimmt die Intensität der Strahlung. Bei Schichten mit der gleichen mittleren quadratischen Höhe der Rauhigkeit $\langle\delta^2\rangle$ strahlt die Schicht mit der größeren Korrelationslänge σ stärker. Gl. (3 a) zeigt, daß auch eine unendlich dicke Schicht strahlen kann. Der ε-abhängige Teil der Streuformel wird dann $|1-\varepsilon^{-2}|^2\,(|1+f|^2\,|1+f_0|^2)$. f und f_0 sind die FRESNEL-Koeffizienten, die die Reflexion an einer Grenzfläche beschreiben.

Als Beispiel wurde die Streuformel für auf Quarzglas aufgedampfte Silberschichten angewandt. Der Rechnung liegen die ε-Werte von Silber[7] zugrunde. Die Abb. 1–4 zeigen den Vergleich zwischen gemessenen[8] und nach der Formel (3) berechneten Streuspektren. Das Meßverfahren wurde in [9] beschrieben. Wenn man berücksichtigt, daß die untersuchten Folien sicher nicht genau die ε-Werte von [7] haben, ist die Übereinstimmung befriedigend. Um bei Rechnung und Messung das Maximum in Abb. 1 an der gleichen Stelle zu bekommen, muß man die Plasmawellenlänge um etwa 20 Å niedriger annehmen als in [7], also $\lambda_P = 3260$ Å.

[5] Unsere Formeln enthalten im Unterschied zu der STERNschen den Faktor σ^4 und unterscheiden zwischen $|1+r_0|^2$ und $|t_0|^2$.

[6] L. LANDAU u. E. LIFSHITZ, Electrodynamics of Continuous Media, Pergamon Press, London 1960, § 67.

[7] R. HUEBNER, J. Opt. Soc. Amer. **54**, 1434 [1964].

[8] Unveröffentlichte Messungen von P. SCHREIBER aus unserem Institut. Sie entsprechen hinsichtlich der Linienform, der Abhängigkeit der Intensität vom Beobachtungswinkel und der Schichtdicke etwa den in [1] angegebenen Messungen.

[9] P. SCHREIBER u. H. RAETHER, Z. Naturforschg. **21 a**, 2116 [1966].

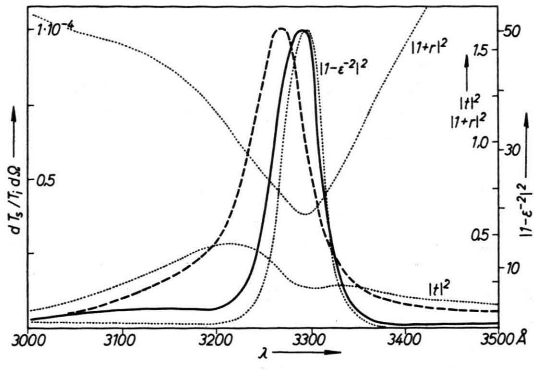

Abb. 1. Plasmaresonanzstrahlung einer Silberfolie der Dicke $\tau = 600$ Å. Einstrahlwinkel $\Theta_0 = 30°$, Beobachtungswinkel $\Theta = 30°$, Winkel zwischen Beobachtungs- und Einstrahlebene $\Phi = 90°$. Bei einer Korrelationslänge der Rauhigkeit von $\sigma = 1200$ Å (nach Abb. 2) muß die mittlere quadratische Höhe der Rauhigkeit $\langle\delta^2\rangle$ zu etwa 50^2 Å^2 angenommen werden, um die berechnete (————) an die gemessene (— — — —) Intensität anzupassen. Zum Vergleich sind die Funktionen $|t|^2$, $|1+r|^2$ und $|1-\varepsilon^{-2}|^2$ (········) in die Abbildung eingetragen.

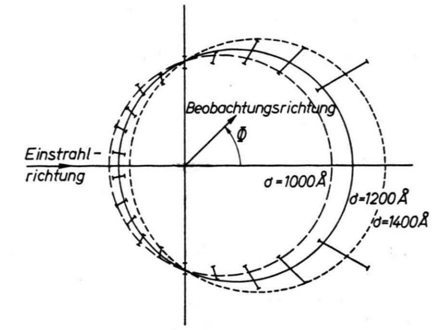

Abb. 2. Intensität der Plasmaresonanzstrahlung als Funktion des Azimutwinkels Φ. $\Theta = \Theta_0 = 30°$, $\tau = 600$ Å. Die mit $\sigma = 1000$, 1200, 1400 Å berechneten Kurven sind bei $\Phi = 90°$ an die gemessenen (|——|) Werte angepaßt. Beste Übereinstimmung bei $\sigma = 1200$ Å.

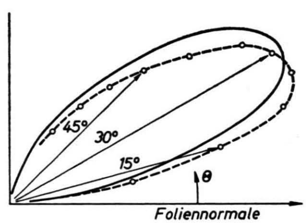

Abb. 3. Intensität der Plasmaresonanzstrahlung als Funktion des Beobachtungswinkels Θ. $\tau = 600$ Å, $\Theta_0 = 30°$, $\Phi = 90°$. Die mit $\sigma = 1200$ Å berechnete Kurve (————) ist an die gemessene (— — — —) im Maximum der Intensität angepaßt. Mit $\sigma = 1600$ Å würden Messung und Rechnung übereinstimmen.

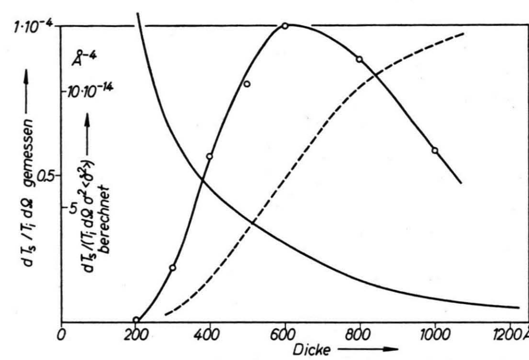

Abb. 4. Schichtdickenabhängigkeit der Intensität der Plasmaresonanzstrahlung. $\Theta = \Theta_0 = 30°$, $\Phi = 90°$. Aus der gemessenen (—○—) und berechneten (————) Intensität wurde der Streufaktor (— — — —) $\sigma^2\langle\delta^2\rangle$ berechnet. Nimmt man an, daß die Korrelationslänge konstant bleibt, so wächst $\langle\delta^2\rangle$ mit der Schichtdicke.