

不同预淀积层银膜表面等离子激元波的辐射效率*

邓里文 王恭明

(复旦大学物理系, 三束材料改性国家重点实验室, 上海 200433)

摘 要 测量了棱镜/LB膜/银膜/空气、棱镜/银膜/银膜/空气、棱镜/银膜/空气三种结构在衰减全反射条件下激发的表面等离子激元波由于银膜-空气界面粗糙度而散射到空气中的辐射效率。同时, 由散射光强分布计算出表面粗糙度参数即横向相关长度 σ 和表面波纹深度 δ , 再由 σ 和 δ 计算出理论辐射效率, 理论与实验结果相符合。

关键词 表面等离子激元波, 辐射效率, 随机粗糙度参数。

1 引 言

在薄膜光波导器件中, 薄膜表面的形状或表面粗糙度会影响到光波的传播, 特别是在含有金属包层的波导器件中, 包层金属膜的粗糙度更会严重影响光导波的传播特性。随着有金属膜器件的应用, 金属膜表面粗糙度的研究已成为表面物理的一个重要分支。特别是在光隧道发射结中, 金属膜表面粗糙度基本上决定了它的发射光谱和辐射效率^[1]。

目前, 研究由于粗糙表面引起的辐射效率, 一般是用衰减全反射(ATR)技术激发表面等离子激元波(SP's), 即利用某些材料的负介电性, 使入射光波耦合进该材料层, 再利用光声^[2]、热辐射^[3]、光散射^[4]等方法测量在此种情况下表面等离子激元波的辐射强度。

Inagaki^[2]和 Jung^[5]等利用光声技术研究衰减全反射耦合激发表面等离子激元波由粗糙表面引起的辐射效率, 结果是在银膜厚度为 40~70 nm 时, 辐射效率为 15%。而 Xie^[3]等用热辐射方法测量结果是 30%。Rothenhausler^[6]等用光声技术研究蒸发在玻璃棱镜上的银膜的辐射效率时, 发现对于蒸发速率为 0.5~1 nm/s 的 56 nm 厚的银膜, 其辐射效率为零, 而快速蒸镀的 54 nm 的银膜的辐射效率则为 15%。Morland^[4]等用光散射技术测量了蒸发速率为 1 nm/s, 厚度为 20~70 nm 的银膜, 在棱镜/银膜/空气结构中, 测量的辐射效率为 5%。

由此可见, 由金属膜表面粗糙度引起的辐射, 其辐射效率用不同的方法研究会有不同的结果, 而且用同一种方法也会有所差异。一般认为, 造成这种差异的原因是光声方法和热辐射方法都存在难以归一化的缺点^[7]。与此相反, 光散射方法是直接测量金属膜表面粗糙度引起的表面等离子激元波空间散射光强, 因而光散射方法具有直观, 精确的优点。

* 国家自然科学基金资助课题。

收稿日期: 1997-04-29; 收到修改稿日期: 1997-09-11

本文用光散射技术测量了在相同的蒸发条件下, 不同预淀积层银膜(棱镜/LB膜或银膜/银膜/空气)的光散射强度分布和辐射效率, 并与由金属表面粗糙度参数计算的理论辐射效率进行了比较。

2 实验描述

实验装置可参考文献[9]。实验在空气中进行, 光源为毫瓦量级的稳定功率的氩氟激光, 波长为 633 nm, K₉ 玻璃的直角等腰棱镜置于计算机控制的 $\theta \sim 2\theta$ 转台系统上。由于考虑到要控制 LB 膜, 采用与棱镜相同牌号的一同制作的, 光学光滑的平板玻璃上蒸镀了一层几十纳米的银膜。平板玻璃与棱镜斜面之间用匹配液结合, 转动转台内圈时扫描 p 偏振入射光的入射角 θ , 使 $\theta_i = \theta_{\min}$, θ_{\min} 为表面等离子激元被激发时(ATR 曲线的极小值)对应的入射角。为了测量银膜粗糙表面的散射光强分布, 需固定入射 p 偏振光在表面等离子激元波激发的位置, 通过扫描装有光电探测器的转台外圈从 -90° (负 x 轴向) 到 90° (正 x 轴向) 测得每个散射方向的散射光强空间分布。

测量的方法如图 1 所示, z 轴在入射平面内且垂直棱镜斜面, x 轴则平行棱镜斜面。 D 点表示探测器的位置, P 点表示探测器在 $x-z$ 平面的投影, θ 为 OP 与 x 轴的夹角, ϕ 为 OD 与 OP 的夹角。为了测量棱镜外侧散射光强的平均空间分布, 在 $\phi = 0^\circ$ 和 $\phi = 90^\circ$ 之间等间隔地取 9 个散射平面, 即 $\phi = 10^\circ \times n$, $n = 0, 1, \dots, 8$, 并假定在 $\phi = 0^\circ$ 时, 测量的散射光强是在 $\phi = 0^\circ$ 到 $\phi = 10^\circ$ 的平均值。对于其他几个散射平面, 依此类推。在每个固定的 ϕ 值, 如 $\phi = 0^\circ$ 时, 在 θ 从 -90° 到 90° 中测量 180 个点, 即每度取一点。实验中散射光信号由锁相放大器检出, 散射光强数据由计算机采集和记录。为了肯定所探测的光是表面等离子激元波激发由粗糙表面引起的散射光, 以及提高测量信噪比的需要, 实验中仔细地校正了 s 偏振入射光即偏振与入射平面垂直的散射背景。

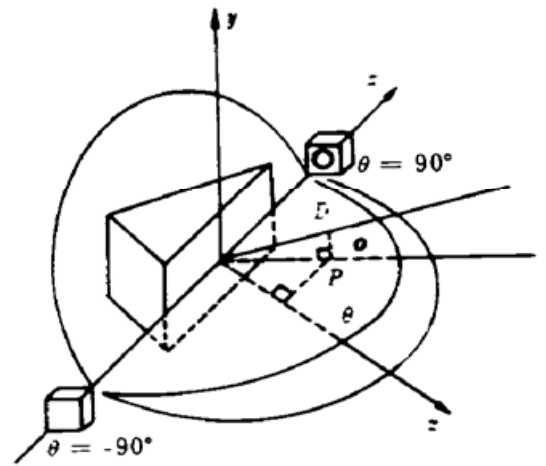


Fig. 1 Experiment arrangement for the sample section

实验的银膜样品是在真空度为 1.33×10^{-3} Pa、室内温度条件下制备的。分别测量了三种预淀积条件下即银膜预淀积层(棱镜/银膜/银膜/空气结构)、LB膜预淀积层(棱镜/LB膜/银膜/空气结构)和无预淀积层(棱镜/银膜/空气结构)银膜的散射情况。其中无预淀积层的银膜是与有 LB 膜预淀积层的银膜同时蒸镀的。

采用如下方法计算出散射总光强: 在每个固定的 ϕ 值如 $\phi = 0^\circ$ 时, 由于测量到的是某个立体角元 $d\Omega$ 内的平均散射光强, 每个半球环带如 $\phi = 0^\circ$ 到 $\phi = 10^\circ$ 的面积 dS_0 分成 180 个等分。每个等分的立体角是 $dS_0/180r^2$, 这样, 对于 $\phi = 0^\circ$ 时的总光强 $I(\phi)$ 为:

$$I(\phi = 0^\circ) = I_0 \frac{dS_0}{180r^2} \sum_{j=1}^{180} I_{0j} \quad (1)$$

式中 I_0 为入射光强, r 为图 1 中的球面半径即探测器到棱镜斜面上衰减全反射点的距离(本文中 $r = 150$ mm), I_{0j} 为在 $\phi = 0^\circ$ 散射平面内的 180 个点中的第 j 点的单位入射光强的单位立体角的强度值。 dS_0 为 $\phi = 0^\circ$ 和 $\phi = 10^\circ$ 之间的半球环面积, dS_0 由下式给出:

$$dS_0 = \pi r^2 (\sin \phi_2 - \sin \phi_1) \quad (2)$$

式中 $\phi_2 = 10^\circ$, $\phi_1 = 0^\circ$ 。最后考虑到整个散射空间, 总的散射光强 I_{exp} 为:

$$I_{\text{exp}} = 2 \sum_{n=0}^8 I(\phi_n) = 2I_0 \sum_{n=0}^8 \frac{dS_n}{180r^2} \sum_{j=1}^{180} I_{nj} \quad (3)$$

式中 2 是考虑到 ϕ 角从 0° 到 -90° 的贡献, $n = 0, 1, \dots, 8$, $j = 1, 2, \dots, 180$; dS_n 为

$$dS_n = \pi r^2 (\sin \phi_{n+1} - \sin \phi_n) \quad (4)$$

3 实验结果和讨论

图 2 和图 3 分别是实验测得的不同预淀积层条件下的散射光强分布 ($\phi = 0^\circ$ 时)。其中, 图 2 为银膜预淀积层即棱镜/银膜/银膜/空气结构的散射分布情况。图中 a 曲线的第一层银膜厚度为 20.3 nm, 蒸发速率为 0.23 nm/s; 第二层银膜厚度为 53.8 nm, 蒸发速率为 0.45 nm/s。b 曲线所示的银膜情况为第一层 47.3 nm, 蒸发速率为 0.31 nm/s, 第二层厚度为 20.0 nm, 蒸发速率为 0.21 nm/s。由图可知, 二者的散射分布各不相同, a 曲线的散射分布大致呈左右对称分布, 即在 $\theta > 0^\circ$ 的分支和 $\theta < 0^\circ$ 的分支几乎相似。而 b 曲线的银膜则表现为正向加强, 即 $\theta > 0^\circ$ 的分支明显大于 $\theta < 0^\circ$ 的分支。另外, 从图可知, a 曲线的散射光强度明显大于 b 曲线的散射光强度。

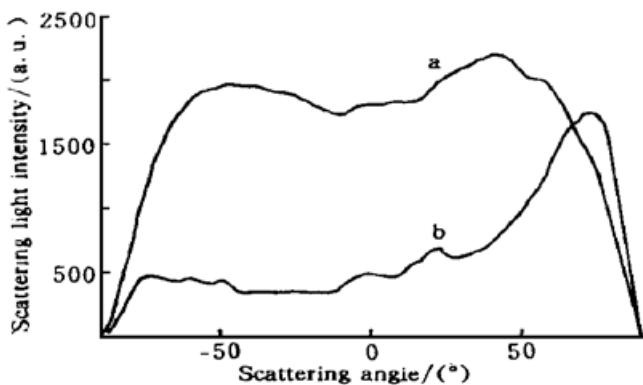


Fig. 2 Experimental angular distributions of scattering light intensities. a, b denote the thickness of Ag pre-coated layers are 20.3 nm and 47.3 nm respectively

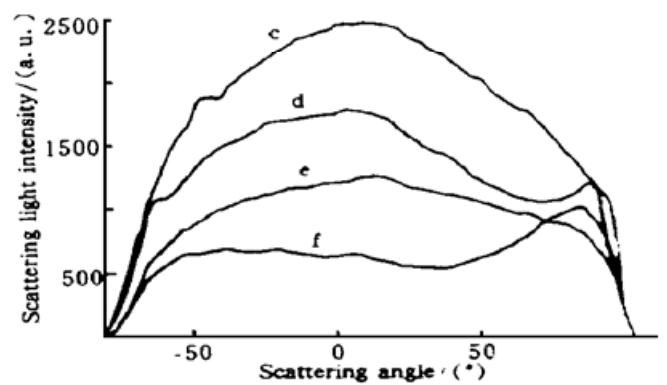


Fig. 3 Experimental angular distributions of scattering light intensities. c, d denote the pre-coated layers with 17 and 7 bilayer LB film; e and f indicate the pre-coated layers without LB films respectively

图 3 是两组不同 LB 膜预淀积层厚度的银膜散射光强分布。c 样品为用 17 双层花生酸镉 LB 膜作预淀积层, 每层厚度为 2.8 nm, 即预淀积层厚度为 95.2 nm。e 曲线为与 c 曲线所示的样品同时蒸镀的银膜即棱镜/银膜/空气结构的散射分布。c、e 样品的银膜的蒸发速率均为 0.34 nm/s, 银膜厚度为 68.1 nm。d 样品为用 7 双层花生酸镉 LB 膜作预淀积层, 预淀积层厚度为 39.2 nm, f 曲线为与 d 曲线的所示样品同时蒸镀的无预淀积层的银膜的散射分布情况。d 与 f 样品的蒸发速率为 0.28 nm/s, 银膜厚度为 70.0 nm。由图可见, c 样品与 e 样品的散射分布形状没有很大的变化, 都在 $\theta = 0^\circ$ 附近出现最大值, 略向 $\theta < 0^\circ$ 方向倾斜, 但是由于有了 LB 膜预淀积层, c 样品的散射光强明显大于没有预淀积层的银膜的 e 样品的散射光强。对于 d 样品和 f 样品则有明显的变化, f 样品的散射分布呈现两个峰值, 在 $\theta = 75^\circ$ 出现一个较大的值, $\theta < 0^\circ$ 变化则较为平滑。由于有了 LB 膜预淀积层(d 样品)后, 改变了银膜的表面粗糙度, 从而使散射光强明显向 $\theta < 0^\circ$ 的方向倾斜, $\theta > 0^\circ$ 的最大值的峰位只是略有变

化, 后向散射光强明显大于没有预淀积层的银膜即 f 曲线所示样品的散射光强。

利用(3)式算出的各样品实验测量的辐射效率如表 1 所示。由表 1 可知, 不同的预淀积层条件, 将会大大影响表面等离子激元波的辐射效率。

为了由表面粗糙度参数即横向相关长度 σ 和表面波纹深度 δ , 计算表面粗糙度引起的散射光辐射效率, 利用如下方法求出表面粗糙度参数: 根据 K-K 理论^[8]及文献[9]的方法, 空间某点的散射光强 $dI = I_{nj}$ 可由下式表示:

$$\frac{dI}{I_0 d\Omega} = \frac{1}{4} \left[\frac{\omega}{c} \right]^4 \frac{\sqrt{\epsilon_0}}{\cos \theta_0} |t_{012}^p(\theta_0)|^2 |W(\theta)|^2 |S(\Delta K)|^2 \quad (5)$$

式中 I_0 为 p 偏振入射光的强度, ϵ_0 为棱镜的介电常数, θ_0 为入射角即衰减全反射条件下的入射角 θ_{\min} , $\frac{dI}{I_0}$ 为归一化强度, t_{012}^p 为棱镜(0)-银膜(1)-空气(2)的二界面系统的菲涅耳透射系数:

$$t_{012}^p = \frac{t_{21}t_{10} \exp(iK_{1z}d)}{1 + r_{21}r_{10} \exp(iK_{1z}d)} \quad (5a)$$

式中 d 为金属膜的厚度, t_{21} 、 t_{10} 和 r_{21} 、 r_{10} 分别为空气-银膜和银膜-棱镜界面的菲涅耳透射和反射系数, $W(\theta)$ 为入射光电场产生的极化电流的偶极辐射的角分布函数。

$$|W(\theta)|^2 = |W_1(\theta)|^2 + |W_2(\theta)|^2 \quad (5b)$$

$$|W_1(\theta)|^2 = A(\theta, \epsilon_1) \left[\left| \frac{1 + \sin^2 \theta}{|\epsilon_1|} \right|^{1/2} - \sin \theta \right]^2 \cos^2 \phi \quad (5c)$$

$$A(\theta, \epsilon_1) = \frac{|\epsilon_1| + 1}{|\epsilon_1| - 1} \frac{4}{1 + (\tan^2 \theta) / |\epsilon_1|} \quad (5d)$$

$$|W_2(\theta)|^2 = \frac{\cos^2 \theta}{1 + (\tan^2 \theta) / |\epsilon_1|} \cos^2 \phi \quad (5e)$$

ϵ_1 为金属膜的介电常数。 $|S(\Delta K)|^2$ 是描述粗糙度的分布函数, 它由下式表示:

$$|S(\Delta K)|^2 = \frac{1}{4\pi} \sigma^2 \delta^2 \exp \left[-\frac{\sigma^2 \Delta K^2}{4} \right] \quad (6)$$

ΔK 表示由于粗糙度的存在引起的光波矢的变化, 它由下式表示:

$$\Delta K = \frac{\omega}{c} \left[(\sqrt{\epsilon_0} \sin \theta_0)^2 - 2 \sqrt{\epsilon_0} \sin \theta_0 \sin \theta \cos \phi + \sin^2 \theta \right]^{1/2} \quad (7)$$

利用(5)式和实验测得的散射光强分布曲线(图 2、图 3), 计算得到了如表 1 所示的各种样品的表面粗糙度参数 σ 和 δ 。图 4 和图 5 是与图 2 和图 3 相应的散射光强分布的理论散射光强分

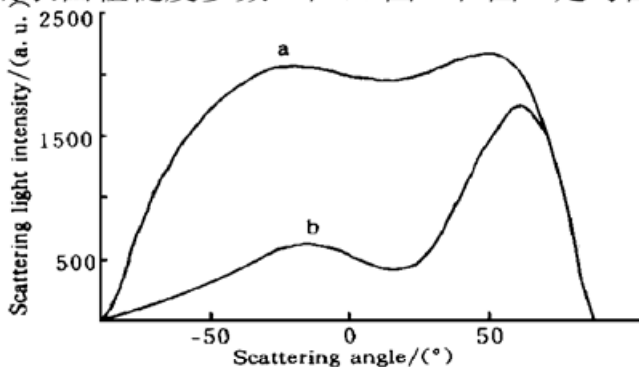


Fig. 4 The theoretic fitting of scattering light angular distributions for a and b

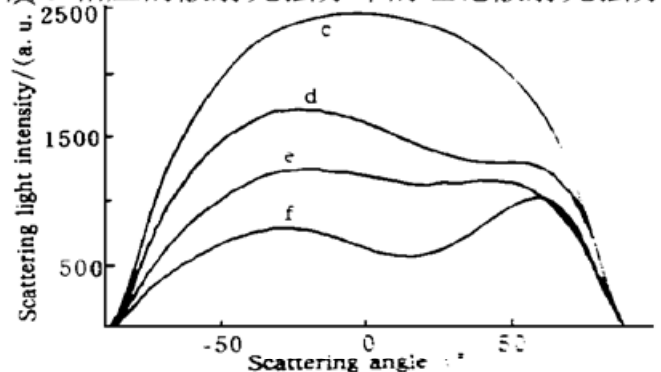


Fig. 5 The theoretic fitting of scattering light angular distributions for c, d, e, and f

布曲线, 可见理论曲线与实验曲线是相符的。

这样, 在计算得到表面粗糙度参数后, 利用(5)式和(3)式计算出总的散射光强。表1中也列出了由表面粗糙度参数算出的理论辐射效率。

Table 1. Experimental and calculated data for different samples

samples	deposition rate/(nm/s)		thickness /nm		permittivity		roughness parameters/nm		radiative efficiency/%	
	first layer	second layer	precoated layer	Ag film	real	imaginary	σ	δ	experimental	calculated
a	0.23	0.45	20.3	53.8	- 11.6	0.32	150.0	1.4	2.0	1.6
b	0.31	0.21	47.3	20.0	- 9.8	0.96	156.0	0.7	0.5	0.4
c	0	0.34	95.2	68.1	- 10.0	0.74	139.1	2.6	6.1	6.5
d	0	0.28	39.2	70.0	- 10.5	0.53	113.6	2.0	3.3	3.2
e	0	0.34	0	68.1	- 10.0	0.74	149.1	1.8	2.4	2.6
f	0	0.28	0	70.0	- 10.5	0.53	159.6	1.0	1.6	2.3

从表1可知, 不同预淀积层的辐射效率并不相同, 辐射效率的变化从0.5%到6.1%。即使都是银膜预淀积层, 辐射效率变化也相当大。对于a样品和b样品, 虽然它们的总厚度差不多, 但预淀积层厚度为20.3 nm的银膜的辐射效率(2%)比预淀积层厚度为47.3 nm的银膜辐射效率(0.5%)大许多。导致这种差异, 作者认为这是由于厚度为20 nm左右的银膜结构是不连续的(岛状膜)。说明预淀积层表面结构对光散射效率的影响比银膜/空气界面结构的影响大。

另外, 对于有LB膜预淀积层的银膜的辐射效率变化更加明显: 同样制备条件的二组银膜样品c与e、d与f, 有LB膜预淀积层的样品c和d的辐射效率都增加了一倍以上。对于具有不同LB膜预淀积层厚度的银膜c与d, 其辐射效率变化也很大, 39.2 nm厚的LB膜预淀积层的银膜的辐射效率为3.3%, 而95.2 nm LB膜预淀积层的辐射效率达6.1%, 几乎是前者的二倍。以上实验结果表明预淀积层的表面结构和预淀积层的厚度是决定银膜表面等离子激元波辐射效率的二个主要因素。

一般认为是 δ^2 决定表面等离子激元波散射的强度, 而 σ 决定了表面等离子激元波和表面之间的平均总动量转移^[10], 主要影响散射光的空间频率分布。由表1可知, 辐射效率随着表面波纹深度 δ 的增加而增加。

另外, 单独为银膜即棱镜/银膜/空气结构中辐射效率为2.4%和1.6%, 与Naoi^[7]等2%的结果相近似, 但是与光声方法及热辐射方法都有所不同。两个样品的厚度差不多, 但由于不是同时制备, 蒸镀条件略有差异, 导致介电常数及表面粗糙度参数有所变化, 从而使辐射效率有所变化。

参 考 文 献

- [1] J. Watanabe, A. Takeuchi, Y. Uehara *et al.*, Prism-coupled light emission from tunnel junctions containing interface roughness: Experiment. *Phys. Rev. (B)*, 1988, **38**(18) : 12959~ 12965
 A. Takeuchi, J. Watanabe, Y. Uehara *et al.*, Prism-coupled light emission from tunnel junctions containing interface roughness: Theory. *Phys. Rev. (B)*, 1988, **38**(18) : 12948~ 12958

- [2] T. Inagaki, K. Kagami, E. T. Arakawa, Photoacoustic observation of nonradiative decay of surface plasmons in silver. *Phys. Rev. (B)*, 1981, **24**(6) : 3644~ 3646
- [3] Yuan-Lin Xie, Hua Li, Yue-Liang Zhou *et al.*, Bolometric observation of nonradiative decay of surface plasmons in silver. *Appl. Phys. (A)*, 1989, **48**(5) : 497~ 500
- [4] John Morland, Arnold Adams, Paul K. Hansma, Efficiency of light emission from surface plasmons. *Phys. Rev. (B)*, 1982, **25**(4) : 2297~ 2300
- [5] C. S. Jung, G. Park, Y. D. Kim, Photoacoustic determination of field enhancement at a silver surface arising from resonant surface plasmon excitation. *Appl. Phys. Lett.*, 1985, **47**(11) : 1165~ 1169
- [6] B. Rothenhausler, J. Rabe, P. Korpium *et al.*, On the decay of plasmon surface polaritons at smooth and rough Ag-air interfaces: A reflectance and photo-acoustic study. *Surf. Sci.*, 1984, **137**(1) : 373~ 382
- [7] Y. Naoi, M. Fukui, Intensity of surface-plasmon polariton energy emitted into the air side in an air/Ag-film/prism configuration. *Phys. Rev. (B)*, 1990, **42**(8) : 5009~ 5012
- [8] E. Kroger, E. Kreeschmann, Scattering of light by slightly rough surfaces of thin films including plasma resonance emission. *Z. Physik*, 1970, **237**(1) : 1~ 7
- [9] 邓里文, 王恭明, 测定金属膜表面粗糙度的表面等离子激元光谱方法. *光学学报*, 1998, **18**(4) : 474~ 480
- [10] A. J. Braundmeier, Jr., D. G. Hall, Some measurement of angular distribution and polarization of surface plasmon radiation from Ag film. *Surf. Sci.*, 1975, **49**(2) : 376~ 392

Efficiency of Emission from Surface Plasmon Waves of Ag Films for Different Pre-Coated Layers

Deng Liwen Wang Gongming

(State Key Joint Lab. for Materials Modulation by Laser, Ion and Electron Beams,
Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433)

(Received 27 April 1997; revised 11 September 1997)

Abstract The attenuated-total-reflection technique was used to excite surface plasmon. We have measured the efficiencies of the surface plasmon energy emitted through surface roughness into air side, for prism/LB film or Ag film /Ag film/ air and prism/Ag film/air structures. Depending on the distribution of scattering light intensity, the surface roughness parameters, i. e. the transverse correlation length σ and the surface corrugation depth δ of air/Ag film interface were simultaneously evaluated. Then we calculated the emission efficiency of the surface plasmon polariton energy from σ and δ . The calculated efficiency corresponds with that of experiment.

Key words surface plasmon waves, emission efficiency, stochastic roughness parameters.