Aufbau und Justage eines Leckstrahlmikroskopes zum Nachweis des plasmonischen Spin-Hall-Effektes

Hanno Christiansen

März 2021

Inhaltsverzeichnis

1	Ein	führung	2
2	$Th\epsilon$	eorie	2
	2.1	Oberflächen-Plasmon-Polariton (SPP)	2
		2.1.1 Dispersion	3
		2.1.2 Anregung	4
		2.1.3 Leckstrahlung	6
	2.2	Plasmonischer-Spin-Hall-Effekt	7
		2.2.1 Raumfrequenzspektrum von Elektromagnetischen-Feldern	7
		2.2.2 Raumfrequenzspektrum eines Elliptisch-Polarisierten-Dipols	8
		2.2.3 Gerichtete Anregung durch anisotropes Nahfeld	9
3	Mes	ssung und Methoden	9
	3.1	Polarimeter, Verzögerungsplatte, Lineare Dichroismus	9
		3.1.1 Dichroismus	9
		3.1.2 Doppelbrechung	9
		3.1.3 Jones-Formalismus	9
	3.2	Leckstrahlmikroskopie	9
		3.2.1 Immersionsobjektiv	9
		3.2.2 Fourier-Optik	9
	3.3	Optischer Aufbau	9
	3.4	Probe	9
	3.5	Justage und Kalibrierung	9
4	Erg	gebnisse und Diskussion	9
	4.1	Bestimmung des Polarisationszustandes	9
		4.1.1 Modellierung Jones-Polarimeter	9
		4.1.2 least-square-fit	9
	4.2	Bestimmung des Kontrastverhältnisses linkes/rechtes SPP	9
	4.3	Diskussion	9

1 Einführung

2 Theorie

2.1 Oberflächen-Plasmon-Polariton (SPP)

Ein Oberflächen-Plasmon-Polariton (engl. Surface-Plasmon-Polariton SPP) ist das quantisierte Quasiteilchen, der an das elektromagnetischen Feld gekoppelten Elektronen-Dichte-Oszillation, an einer Dielektrikums-Metall-Grenzschicht. Durch die spezielle Form dieser Geometrie, ist es möglich, trotz des rein longitudinalen Charakters der Elektronen-Dichte-Oszillation, ein elektromagnetisches Feld mit transversalen Komponenten zu erzeugen. Diese transversalen Komponenten sind notwendig, damit eine Kopplung an das rein transversale elektromagnetische Feld des Vakuums tendenziell zu ermöglichen. Die einfachste Geometrie in der SPPs auftreten können ist ein Zwei-Schichtsystem. Der Halbraum oberhalb der xy-Ebene mit z > 0 sei von einem Dielektrikum mit der Dielektrizitätskonstante ϵ_D ausgefüllt. Der Halbraum unterhalb der xy-Ebene mit z<0sei von einem Metall mit der im allgemeinen komplexen Dielektrischen-Funktion $\epsilon(\omega)$ ausgefüllt. An der Grenzschicht zwischen diesen beiden Halbräumen können SPPs propagieren. Um nun einige Charakteristische Eigenschaften von SPPs zu erläutern, gehe ich davon aus, dass das SPP entlang der x-Achse propagiert und entlang der y-Achse homogen ist. So wird das Problem effektiv 2-dimensional. Wie in [3] gezeigt, lassen sich die elektromagnetischen Felder eines SPPs in dieser einfachen Geometrie durch folgende Ausdrücke beschreiben:

$$\vec{E}_n = \begin{pmatrix} 1\\0\\\pm k_{\rm spp}/k_{z,n} \end{pmatrix} E_0 \exp\left(i(k_{\rm spp}x + k_{z,n}|z| - \omega t)\right)$$
(1)

$$\vec{H}_n = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} H_0 \exp\left(i(k_{\text{spp}}x + k_{z,n}|z| - \omega t)\right)$$
 (2)

Der Index n beschreibt hierbei das Material (M für das Metall, D für das Dielektrikum). Das \pm ist + für das Metall und - für das Dielektrikum. ω ist die Winkelfrequenz der Anregung. $k_{\rm spp}$ ist der im allgemeinen komplexe Wellenvektor der Anregung. $k_{\rm spp}$ ist für beide Medien gleich. Der Realteil $\mathbb{R}e\{k_{\rm spp}\}$ des komplexen Wellenvektors lässt sich in die Wellenlänge $\lambda_{\rm spp}=2\pi/\mathbb{R}e\{k_{\rm spp}\}$ des SPP umrechnen. Der Imaginärteil $\mathbb{Im}\{k_{\rm spp}\}$ beschreibt das Dämpfungsverhalten des SPP entlang der Ausbreitungsrichtung. Es lässt sich über $\mathrm{L_{spp}}=1/(2\,\mathbb{Im}\{k_{\rm spp}\})$ eine Propagationslänge definieren. Nachdem das SPP eine Propagationslänge zurückgelegt hat, sind die ursprünglichen Intensitäten des SPP auf 1/e ihres ursprünglichen Betrages zurückgegangen.

Analog beschreibt $\mathbb{R}e\{k_{z,n}\}$ den Exponentiellen-Abfall der Anregung, wenn man sich von der Grenzfläche entfernt. Hier lassen sich die Eindringtiefen $\delta_{M,D}$ definieren, die angeben nach welcher Entfernung in z-Richtung die ursprungliche Feldstärke auf 1/e abgeklungen ist. Das SPP hat sowohl transversale, als auch longitudinale Komponenten des Elektrischen Feldes. Das magnetische Feld ist rein transversal. Daher spricht man auch von einer Transversal-Magnetischen Anregung (TM). Der quantitativer Verlauf des elektrischen Feldes für ein rein reelles $k_{\rm spp}$ und ein rein imaginäres $k_{z,n}$ ist in Abb. 1 dargestellt.

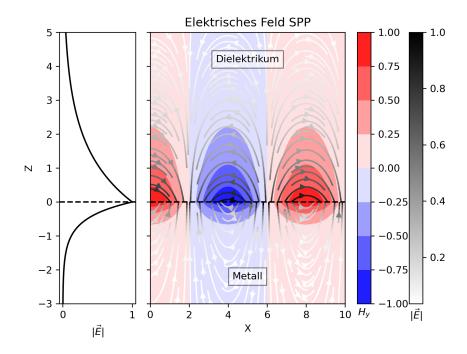


Abbildung 1: Quantitativer Verlauf des Elektrischen Feldes eines SPPs entlang einer Metall-Dielektrikums-Grenzschicht in der xy-Ebene mit Ausbreitungsrichtung in positiver x-Richtung

2.1.1 Dispersion

Die Herleitung der Dispersionsrelation orientiert sich an den Ausführungen in [1, pp. 261–ff] und kann dort im Detail nachvollzogen werden. Ich beschränke mich hier auf eine kurze Beschreibung des Vorgehens. Damit die oben angesetzten elektromagnetischen Felder (1), (2) die Maxwellgleichungen (3) und die Randbedingungen an der Grenzschicht erfüllen, müssen die Bedingungen (4a), (4b) gelten. (Hierbei handelt es sich um den Spezialfall nicht magnetischer Ma-

terialien.)

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0 \qquad \qquad \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \qquad (3)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \qquad \qquad \vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$$

$$\frac{k_{z,M}}{\epsilon_M} + \frac{k_{z,D}}{\epsilon_D} = 0 \tag{4a}$$

$$k_{\rm spp}^2 + k_{z,n}^2 = \epsilon_n \left(\frac{\omega}{c}\right)^2$$
; für $n = M, D$ (4b)

 $\epsilon_{M,D}=\epsilon_{M,D}(\omega)$ sind hierbei die Permittivitäten der Materialien in Abhängigkeit von der Kreisfrequenz. Aus Gleichung (4b) folgt $k_{z,n}=\sqrt{\epsilon_n k_0^2-k_{\rm spp}^2}$. Diese Beziehung legt den Zusammenhang zwischen $k_{\rm spp}$ und $k_{z,n}$ fest. Außerdem lässt sich hieraus erkennen, dass für typische Materialien $\mathbb{Im}\{k_{z,n}\}\gg\mathbb{R}e\{k_{z,n}\}$. Durch die Dominanz des Imaginärteils über den Realteil der Wellenvektorkomponente senkrecht zur Ausbreitungsrichtung, fallen die Felder senkrecht zu Ausbreitungsrichtung exponentiell ab. Man spricht deswegen von evaneszenten Feldern. Die Anregung ist daher stark an die Grenzfläche gebunden. Durch das Lösen der Bedingungen (4a), (4b) ergibt sich die Dispersionsrelation des SPP an einer Grenzschicht zwischen einem Metall und einem Dielektrikum zu:

$$k_{\rm spp}(\omega) = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_D \epsilon_M(\omega)}{\epsilon_D + \epsilon_M(\omega)}} = k_0(\omega) n_{\rm eff}(\omega)$$
 (5)

Hierbei ist $k_0 = \omega/c$ die Dispersion von elektromagnetischer Strahlung in Vakuum. Und $n_{\rm eff}(\omega)$ wird als effektiver Brechungsindex der Anregung bezeichnet. Die Dispersion kann über den Zusammenhang $E = \hbar \omega$ auch in Abhängigkeit der Energie dargestellt werden.

Im folgenden werden die Messdaten der Dielektrischen-Funktion von Gold aus der Publikation [5] verwendet, um den Verlauf der Dispersion einer Vakuum-Gold Mode qualitativ zu analysieren. Die Publikation stellt Messdaten für unterschiedliche Oberflächenrauhigkeiten zur Verfügung. In dieser Arbeit wurden die Messdaten für aufgedampftes Gold verwendet. Für die Berechnung der Dispersion wurde $\epsilon_D=n_D^2=1.52^2$ verwendet. In der Dispersionskurve Abb. 2.1.1 ist zu erkennen, dass die Dispersionskurve bei einer Anregungs-Energie von $E=hc/\lambda_{\rm HeNe}=1.95{\rm eV}$ rechts von der Lichtlinie des jeweiligen Mediums liegt. Diese k-Differenz sorgt dafür, dass SPPs nicht ohne weiteres von Elektromagnetischer-Strahlung des Vakuums angeregt werden können.

2.1.2 Anregung

Um trotz der k-Differenz in der Dispersionsrelation SPPs mit elektromagnetischer Strahlung anregen zu können, ist es notwendig, den k-Wert der Anregungsstrahlung zu erhöhen. Hierfür gibt es unterschiedliche Mechanismen.

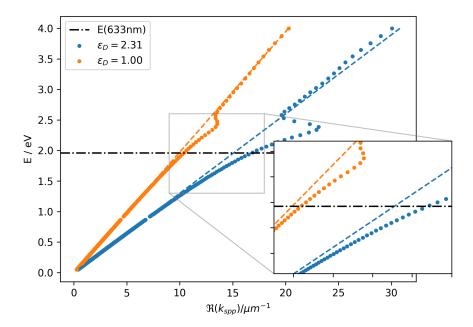


Abbildung 2: Dispersionskurve der Gold-Vakuum und der Gold-Glas Mode. Do Lichtlinien im jeweiligen Medium sind zur Orientierung gestrichelt gekennzeichnet

Kretschman-Konfiguration In der Kretschmann Konfiguration wird ausgenutzt, dass man den auf eine Ebene projizierten Anteil eines Wellenvektors durch Einfallswinkel verkleinern kann. Da der Wellenvektor allerdings vergrößert werden muss, um ein SPP mit Strahlung aus Dielektrikum anzuregen, ist es notwendig ein System mit mehr als zwei Schichten zu verwenden. Ein dünner Metallfilm wird zwischen zwei Dielektrika mit $\epsilon_{D_1} > \epsilon_{D_2}$ eingeschlossen. So ist es möglich, den Wellenvektor der Anregenden Strahlung zunächst durch Wechsel in das Dielektrikum 1 mit $\epsilon_{D_1} > \epsilon_{D_2}$ zu vergrößern, und dann durch den Einfallswinkel zu Grenzschichtebene exakt an das SPP der Mode Metall-Dielektrikum2 anzupassen. Dieses Verfahren wird bei der Kretschman-Konfiguration verwendet. Ein schematischer Aufbau der Kretschmann Konfiguration ist Abb. 3 zu entnehmen. Die Anregungsstrahlung tritt hier zunächst in das Prisma ein. Hierdurch wird der Wellenvektor der Anregungsstrahlung um $k_{D_1} = k_0 \sqrt{\epsilon_{D_1}}$ vergrößert. Das Material des Prismas wird so gewählt, dass der Wellenvektor größer als der Wellenvektor des SPPs (5) ist. Der Einfallswinkel $Theta_E$ wird so gewählt, dass die Projektion von k_{D_1} auf die Goldoberfläche gerade $k_{\rm spp}$ entspricht. Es gilt

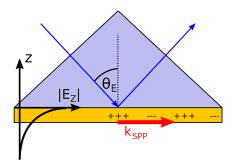


Abbildung 3: Schematischer Aufbau der Kretschman-Konfiguration. Die Abbildung ist aus [2] entnommen

also:

$$\sin(\theta_E) = \frac{\mathbb{R}e\{k_{\text{spp}}\}}{k_{D_1}}$$

$$\Rightarrow \mathbb{R}e\{k_{\text{spp}}\} = \sin(\theta_E)k_0\sqrt{\epsilon_{D_1}}$$
(6)

$$\Rightarrow \mathbb{R}e\{k_{\rm spp}\} = \sin(\theta_E)k_0\sqrt{\epsilon_{D_1}}$$
 (7)

Bei der Reflektion einer elektromagnetischen Welle an einem Metall, dringen in das Metall evaneszente Felder ein. [4]. Ist die Metallschicht dünn genug, haben diese evaneszenten Felder an unteren Grenzfläche des Metalls noch ausreichend Intensität, um dort ein SPP anzuregen. Dies ist möglich, da die k-Komponenten wie oben erläutert an einander angepasst worden sind. Die in Abb. 3 gezeigte Geometrie nutzt für das Dielektrikum 1 ein Prisma, um die Einkopplung der elektromagnetischen Welle aus dem Vakuum in das Dielektrikum1 möglichst effektiv zu gestalten. Als Dielektrikum 2 wurde hier Luft verwendet.

Anregung an Strukturen Eine weitere Möglichkeit, die Wellenvektordifferenz zu überwinden stellen scharfe Strukturen an der Metalloberfläche da. An diesen Strukturen streut das anregende Licht, und kann somit ausreichend k gewinnen, um ein SPP anzuregen. Diese Strukturen können entweder künstlich hergestellt werden, oder es werden Defekt-Stellen auf der Probe genutzt. Da die Struktur scharf im Ortsraum ist, besitzt Sie ein breites Raumfrequenzspektrum.

2.1.3 Leckstrahlung

Leckstrahlung ist der inverse Effekt zur Anregung in der Kretschmann-Konfiguration. In einem Dreischichtsystem Dielektrikum1-Metall-Dielektrikum2 kann ein an der Grenzfläche Dielektrikum1-Metall propagierendes SPP, durch evaneszente Felder, durch den Metallfilm in das Dielektrikum2 abstrahlen. Dies ist nur möglich, wenn ϵ_{D_2}
; ϵ_{D_1} ist, da sonst die Phasenanpassungsbedingung (6) nicht

erfüllt werden kann. Diese Strahlung tritt dann unter einem Winkel θ_L aus der Probe, so dass die Phasenanpassungsbedingung gerade erfüllt ist. Diese in das Dielektrikum 2 abgestrahlte Strahlung bezeichnet man als Leckstrahlung. Für das auftreten von Leckstrahlung muss der Metallfilm ausreichen dünn sein, damit die evaneszenten Felder des SPP an der zweiten Grenzschicht noch ausreichend Intensität aufweisen. Durch die Phasenanpassungsbedingung (6) kann einem Bestimmten Abstrahlwinkel θ_L ein konkreter $\mathbb{R}\{k_{\mathrm{spp}}\}$ zugeordnet werden und umgekehrt. Dieser Umstand wird bei der Leckstrahlmikroskopie ausgenutzt, um den Wellenvektor des SPP zu bestimmen.

2.2 Plasmonischer-Spin-Hall-Effekt

Der Plasmonische-Spin-Hall-Effekt beschreibt, wie an einer räumlich symmetrischen Struktur angeregte SPPs, abhängig von der Polarisation der anregenden Strahlung, in unterschiedliche Richtungen propagieren. Speziell propagiert das SPP bei links-zirkular polarisierter Strahlung in eine um 180° verschiedene Richtung zu dem SPP, dass mit rechts zirkular polarisiertem Licht angeregt worden ist.

2.2.1 Raumfrequenzspektrum von Elektromagnetischen-Feldern

Um den Plasmonischen-Spin-Hall-Effekt zu verstehen, ist es zunächst notwendig, die Raumfrequenzdarstellung von Elektromagnetischen Feldern zu verstehen. Die folgenden Ausführungen orientieren sich an [4], wobei in dieser Arbeit nur der etwas einfacherer 2D-Fall ausgeführt wird.

Das Elektrische Feld am Ort $\vec{r} = \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix}$ sei durch $\vec{E}(\vec{r})$ gegeben. Die Zeitabhängigkeit

von \vec{E} sei durch $\vec{E}(\vec{r},t) = \mathbb{R}e\{\vec{E}(\vec{r})\exp(-i\omega t)\}$ gegeben. Dann lässt sich $\vec{E}(\vec{r})$ durch eine Fouriertransformation in x-Richtung wie folgt darstellen:

$$\vec{E}(x,z) = \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \hat{\vec{E}}(k_x,z) \exp(ik_x x)$$
 (8)

$$\hat{\vec{E}}(k_x, z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}x \vec{E}(x, z) \exp(-ik_x x)$$
 (9)

Wenn wir davon ausgehen, dass das Medium entlang der x-Achse homogen, isotrop, linear und quellfrei ist, muss das Elektrische Feld, die sich unter diesen Bedingungen aus den Maxwellgleichungen (3) ergebende Helmholtz-Gleichung $(\vec{\nabla}^2 + k^2) \vec{E}(\vec{r}) = 0$, erfüllen. Einsetzen von (8) in die Helmholtz-Gleichung ergibt mit der Definition $k_z := \sqrt{k^2 - k_x^2}$ folgenden Zusammenhang:

$$\hat{\vec{E}}(k_x, z) = \hat{\vec{E}}(k_x, z = 0) \exp(\pm ik_z) \tag{10}$$

Das Vorzeichen legt hier die Propagationsrichtung fest. Einsetzen in (8) ergibt:

$$\vec{E}(x,z) = \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \hat{\vec{E}}(k_x, z = 0) \exp(i(k_x x \pm k_z))$$
(11)

Wenn also das Raumfrequenzspektrum für einen z-Wert bekannt ist, lassen sich die Spektren für alle anderen z-Werte gemäß (10) berechnen. Für einen festen Wert von k_x gibt es, je nach dem ob k_x größer oder kleiner als k ist zwei unterschiedliche Lösungen. Wenn $k_x^2 < k^2$ ist, ist $k_z := \sqrt{k^2 - k_x^2}$ eine reelle Zahl. Daher handelt es sich nach (10) um eine ebene Welle, die entlang der z-Achse propagiert. Wenn hingegen $k_x^2 > k^2$ ist, ist $k_z := \sqrt{k^2 - k_x^2}$ eine imaginäre Zahl. Dann handelt es sich bei (10) um eine evaneszente Welle, die entlang der z-Achse exponentiell abklingt. In dem Raumfrequenzspektrum kann man also zwischen Bereichen mit Ebenen-Wellen und Bereichen mit Evaneszenten-Wellen unterscheiden. Dieses Konzept lässt sich ohne weiteres auch auf 3 Raumdimensionen und das Magnetische Feld erweitern.

2.2.2 Raumfrequenzspektrum eines Elliptisch-Polarisierten-Dipols

Wenn man das oben beschriebene Verfahren auf einen Elliptisch-Polarisierten Dipol anwendet, lässt sich das Raumfrequenzspektrum bestimmen. Hier werde ich mich wieder auf den 2-Dimensionalen Fall beschränken. Das Dipolmoment sei:

$$\vec{P} = \begin{pmatrix} p_x \\ p_y \end{pmatrix}$$

 p_x und p_y sind im allgemeinen komplexe Zahlen. So kann \vec{P} auch Elliptische Polarisationen darstellen. Das Die y-Komponente des Magnetfeldes dieses Dipols lässt sich nun, wie in [4] und [6] gezeigt wird analog zu den obigen Ausführungen in Raumfrequenzanteile zerlegen.

$$H_y(x,z) = \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \hat{H}_y(k_x,z) \exp(ik_x x)$$
 (12)

 $_{
m mit}$

$$\hat{H}_y(k_x, z) = \frac{i\omega}{8\pi^2} \left\{ p_z \frac{k_x}{k_z} \mp p_x \right\} \exp(ik_z|z - z_{\text{Dipol}}|)$$
(13)

2.2.3 Gerichtete Anregung durch anisotropes Nahfeld

3 Messung und Methoden

- 3.1 Polarimeter, Verzögerungsplatte, Lineare Dichroismus
- 3.1.1 Dichroismus
- 3.1.2 Doppelbrechung
- 3.1.3 Jones-Formalismus
- 3.2 Leckstrahlmikroskopie
- 3.2.1 Immersionsobjektiv
- 3.2.2 Fourier-Optik
- 3.3 Optischer Aufbau
- 3.4 Probe
- 3.5 Justage und Kalibrierung

4 Ergebnisse und Diskussion

- 4.1 Bestimmung des Polarisationszustandes
- 4.1.1 Modellierung Jones-Polarimeter
- 4.1.2 least-square-fit
- 4.2 Bestimmung des Kontrastverhältnisses linkes/rechtes SPP
- 4.3 Diskussion

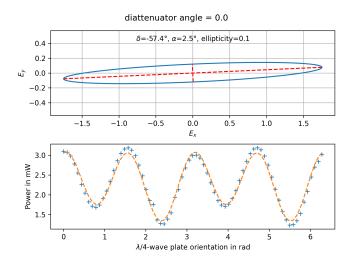


Abbildung 4: Polarisation

5 Zusammenfassung und Ausblick

Literatur

- [1] M. Fox. Optische Eigenschaften von Festkörpern. De Gruyter Oldenbourg, München and Wien, 2020. ISBN 9783110669138. doi: 10.1515/9783110669138.
- [2] Joris Jaruschewski. Aufbau eines Leckstrahlungsmikroskopes zur Untersuchung plasmonischer Systeme. Masterarbeit, Kiel, 2020.
- [3] S. A. Maier. *Plasmonics: Fundamentals and applications*. Springer, New York, 2007. ISBN 9780387331508.
- [4] L. Novotny and B. Hecht. Theoretical foundations. In L. Novotny and B. Hecht, editors, *Principles of nano-optics*, pages 12–44. Cambridge University Press, Cambridge, 2012. ISBN 9780511794193. doi: 10.1017/CBO9780511794193.004.
- [5] R. L. Olmon, B. Slovick, T. W. Johnson, D. Shelton, S.-H. Oh, G. D. Boreman, and M. B. Raschke. Optical dielectric function of gold. *Physical Review B*, 86(23), 2012. ISSN 1098-0121. doi: 10.1103/PhysRevB.86.235147.
- [6] F. J. Rodríguez-Fortuño, G. Marino, P. Ginzburg, D. O'Connor, A. Martínez, G. A. Wurtz, and A. V. Zayats. Near-field interference for the unidirectional excitation of electromagnetic guided modes. *Science*, 340 (6130):328–330, 2013. ISSN 1095-9203. doi: 10.1126/science.1233739.