



Universiteit
Leiden
The Netherlands

Interference effects with surface plasmons

Kuzmin, N.V.

Citation

Kuzmin, N. V. (2008, January 10). *Interference effects with surface plasmons. Casimir PhD Series*. LION, Quantum Optics Group, Faculty of Science, Leiden University. Retrieved from <https://hdl.handle.net/1887/12551>

Version: Corrected Publisher's Version

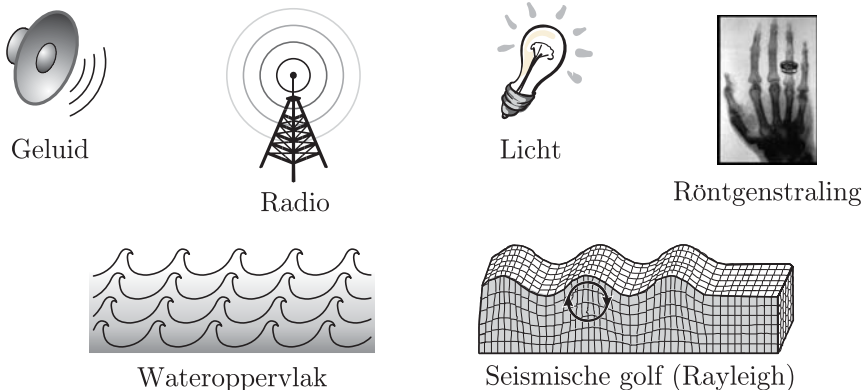
License: [Licence agreement concerning inclusion of doctoral thesis in the Institutional Repository of the University of Leiden](#)

Downloaded from: <https://hdl.handle.net/1887/12551>

Note: To cite this publication please use the final published version (if applicable).

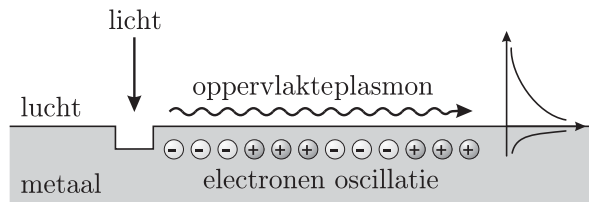
Samenvatting

Overall om ons heen zijn golven: geluid wordt overgebracht door geluidsgolven, aan zee zie we golven op het wateroppervlak, soms voelen wij seismische golven, we maken voortdurend gebruik van elektromagnetische golven zoals bij radio, licht, Röntgenstraling, enz. Grofweg kan je al deze golfverschijnselen in twee klassen indelen, nl. golven die zich voortplanten in de drager zelf en golven die juist alleen aan het oppervlak van de drager propageren. Voorbeelden van de laatste variant zijn watergolven en zogenaamde Rayleigh golven in de seismiek, een van de vier mogelijk seismische golven (zie Fig. 1). In beide gevallen gaat het oppervlak (van het water of van de aardkorst) op en neer en de afzonderlijke volume-eenheden doorlopen een elliptisch pad.



Figuur 1. Golven in de natuur.

Ook elektromagnetische golven kunnen zich strikt langs het grensvlak van twee media voortplanten. Een bekend voorbeeld zijn de Sommerfeld of Zenneck golven: radiogolven met een golf lengte van 100 tot 1000 meter, die als het ware langs het oppervlak van de aarde scheren. Soortgelijke golven spelen een hoofdrol in dit proefschrift: oppervlakte-elektromagnetische golven aan het grensvlak tussen edelmetalen en lucht of glas. Deze heten *oppervlakteplasmonen*. Deze elektromagnetische oppervlaktegolf is verknoopt met een longitudinale golfbeweging van de oppervlakteladingsdichtheid met gelijke golflengte en frequentie.

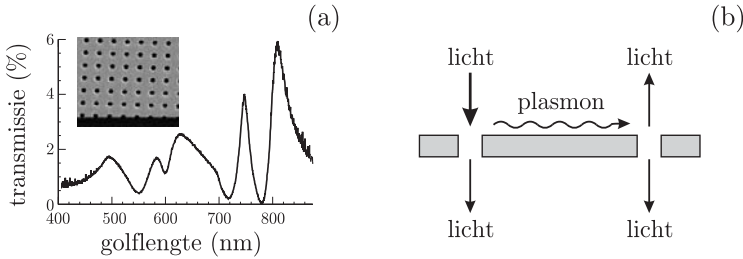


Figuur 2. Configuratie voor het aanslaan van een oppervlakteplasmon aan een metalen oppervlak.

Een oppervlakteplasmon is bijzonder omdat het een puur twee-dimensionaal golfverschijnsel is: in de richting loodrecht op het oppervlak spreidt de golf zich nauwelijks uit en vervalt binnen een afstand van de orde van de golflengte (in lucht) of veel kleiner (in het metaal) (zie Fig. 2). Door die zeer beperkte uitgebreidheid is het oppervlakteplasmon erg gevoelig voor de eigenschappen van het materiaal boven op het metaal en voor de vlakheid van dat oppervlak. Vanwege deze gevoeligheid worden oppervlakteplasmonen toegepast als ‘probe’ van oppervlakken.

Een tweede consequentie van de zeer beperkte uitgebreidheid van het oppervlakteplasmon in de richting loodrecht op het oppervlak is dat het elektrische veld van dat plasmon sterk opgeslingerd is: als je een lichtbundel efficiënt in een oppervlakteplasmon kan omzetten dan is het elektrische veld van dat plasmon veel (een factor van 10–100) groter dan het elektrische veld van de invallende lichtbundel. Deze opslinging is aantrekkelijk bijvoorbeeld voor niet-lineair optische verschijnselen.

De belangstelling voor oppervlakteplasmonen heeft enkele cycli doorlopen. Het begon allemaal met Robert Wood’s waarneming dat het spectrum van een witte lichtbron, uiteengegrafeld met behulp van een metalen tralie, donkere lijnen bevat. Sommige kleuren waren als het ware verdwenen. Dit verschijnsel staat bekend als de anomalie van Wood en wordt tegenwoordig verklaard in termen van het, bij die specifieke golflengtes, resonant aanslaan van oppervlak-



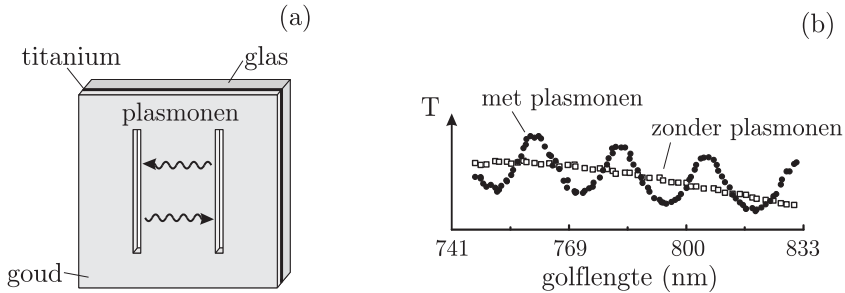
Figuur 3. (a) Licht transmissie door een metalen film met een raster van gaatjes; (b) Licht \rightarrow plasmon \rightarrow licht koppeling bij de gaatjes.

teplasmonen aan het metalen tralie. De meest recente cyclus in de interesse voor oppervlakteplasmonen is aangezwengeld door het werk van de groep van Ebbesen aan de licht-transmissie eigenschappen van metaalfilms die doorboord waren met duizenden minuscule gaatjes (zie Fig. 3a). Als die gaatjes willekeurige posities innemen is de transmissie erg klein, geheel in overeenstemming met algemeen geaccepteerde theoretische modellen. Als de gaatjes echter een regelmatig patroon vormen is de licht-transmissie vele malen groter. Voor zo'n regelmatige structuur vertoont de licht-transmissie als functie van de golflengte van het opvallende licht ook sterke variaties: bij sommige golflengten is de transmissie echt hoog en bij andere golflengten verwaarloosbaar klein. In wezen is zo'n regelmatig gaatjespatroon zoals gebruikt door de groep van Ebbesen niets anders dan een twee-dimensionaal metalen tralie, en het is dus niet verwonderlijk dat oppervlakteplasmonen naar voren werden geschoven om de anomale transmissie-eigenschappen te verklaren. Enerzijds laten de gaatjes een klein beetje licht door; anderzijds zorgen zij voor een koppeling tussen het invallende licht en oppervlakteplasmonen met een welbepaalde golflengte en voortplantingsrichting (zie Fig. 3b). Laatstgenoemden kunnen ook weer terugstrooien naar licht, opnieuw aan de gaatjes.

Dit onderzoek was als het ware een lont die een kruitvat aanstak: een ware waterval van onderzoeken en publicaties volgden op het gebied van gestructureerde metaal films en hun respons op invallend licht. Dit onderzoeksgebied wordt tegenwoordig “plasmonics” of “nano-plasmonics” genoemd.

In eerste instantie ging een groot deel van de belangstelling uit naar metallische structuren die, net als die van de groep van Ebbesen minuscule, op regelmatige afstand geboorde gaatjes bevatten. De gaatjes waren bijvoorbeeld rond, vierkant, rechthoekig of ellipsvormig en elke structuur vertoonde zijn eigen speciale karakteristieken. Men kon ook sleutelen aan de diameter van de gaatjes of de metaalfilm inpakken of een heel ander golflengtegebied

bestuderen. Er werd veel gepubliceerd en er was erg veel discussie over de interpretatie van de meetresultaten. In de toepassing van de theorie werd door velen het sterk gestructureerde metaaloppervlak behandeld alsof het geheel vlak en ongestructureerd was; dit veroorzaakte de nodige controverse. Nieuwe modelbeschrijvingen werden gelanceerd en de discussie raakte behoorlijk verhit. Het was tijd voor een vereenvoudiging.



Figuur 4. (a) Dubbelspleet in een dunne goudfilm; (b) Twee-spleet transmissie spectrum.

Taco Visser kwam met een elegant voorstel: neem een metaalfilm, frees daarin twee smalle lange parallelle spleten die op enige afstand van elkaar staan (Fig. 4a) en meet het transmissie spectrum van die geperforeerde film (Fig. 4b). Als de spleten voldoende smal zijn en de spleetafstand is goed gekozen dan zal door toedoen van de oppervlakteplasmonen de transmissie van deze film als functie van de golflengte van het invallende licht op en neer gaan. Het aardige is dat de twee-spleten geometrie, zoals hier voorgesteld, een van de kanonieke geometriën van de natuurkunde is. Zij heeft bijgedragen aan de ontwikkeling van de golfbeschrijving van licht en is ook van groot belang in de context van het begrip van de quantum mechanica. Het twee-spleten experiment staat dan ook in elk natuurkunde studieboek en is bekend als het experiment van Young.

Het elegante van dit voorstel is dat het aanslaan, het zich voortplanten en het de-exciteren van het oppervlakteplasmon goed ruimtelijk gescheiden zijn. Het aanslaan en het de-exciteren gebeurt aan de spleten en de voorplanting over een vlak stuk metaal daartussen.

Dit voorstel van Visser vormt de basis van het in dit proefschrift beschreven onderzoek. In **hoofdstuk 2** rapporteer ik over de metingen aan een systeem bestaande uit: een 200 nm dikke goudfilm met daarin twee 200 nm brede, 50 μm lange spleten op een onderlinge afstand van 5, 10, 15, 20 of 25 μm . Die goudfilm hangt niet los in de ruimte maar is door middel van een titani-

um hechtlaag gebonden aan een substraat van glas. Het experiment bevestigt de theoretische voorspelling, namelijk dat het transmissiespectrum van een dubbelspleet een modulatie vertoont (Fig. 4b). Deze modulatie wordt veroorzaakt doordat een deel van het op de spleten invallende licht coherent omgezet wordt in oppervlakteplasmonen, die bij aankomst bij de andere spleet gedeeltelijk weer in licht worden omgezet, opnieuw door een coherent, dat wil zeggen fasebehoudend verstrooiingsproces. Bij elk van de spleten ontstaat interferentie van, enerzijds, het direct op die spleet invallende licht, en anderzijds, het licht dat via plasmonische koppeling afkomstig is van de andere spleet. Deze interferentie in de spleet is verantwoordelijk voor de waargenomen spectrale modulatie.

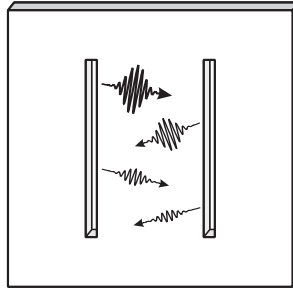
Bij interferentie hoort een faserelatie. Het is duidelijk dat de faserelatie bepaald wordt door het product van spleetafstand en golfgetal (propagatie constante) van het oppervlakteplasmon. Maar is er meer? Elke verstrooiingsgebeurtenis, bijvoorbeeld de partiële omzetting van het invallende licht in een oppervlakteplasmon, kan een fasesprong veroorzaken. Die fasesprong heeft gevolgen voor de positie van de maxima en minima in het transmissie spectrum. Theoretische berekeningen toonden aan dat de fasesprong voor het dubbele verstrooiingsproces “licht in de vrije ruimte \rightarrow oppervlakteplasmon \rightarrow licht in de spleet” gelijk is aan π . Onze experimentele nauwkeurigheid was niet groot genoeg om dat te bevestigen of te weerleggen.

Dit eerste experiment, beschreven in hoofdstuk 2, gaf onmiddellijk aanleiding tot een nieuw experiment (**hoofdstuk 3**). Hierin werden niet beide spleten belicht maar slechts één van de twee. Dat vereist de nodige zorg omdat je al gauw bij het focuseren van een laserbundel last kan krijgen van buigingsringen, waardoor onbedoeld een beetje licht op de tweede spleet valt. Op grond van het boven beschreven dubbele verstrooiingsmechanisme verwacht je nu dat je, ondanks het belichten van maar één spleet, toch een twee-spleten interferentiepatroon kan waarnemen. Wij nemen dat inderdaad waar; het patroon heeft een aantal ongewone eigenschappen.

Merk op dat dit betekent dat, als je een afbeelding maakt van de dubbelspleet, bijvoorbeeld met een microscoop, dan je dan licht uit beide spleten ziet komen: veel uit de belichte spleet, weinig uit de niet-belichte spleet (zie hoofdstuk 1, Figuur 1.6).

Als je een interferentiepatroon kan waarnemen als je maar één spleet belicht dan moet je ook een interferentiepatroon kunnen waarnemen als je beide spleten belicht maar elk met een andere lichtbron. Je kan dat ook anders formuleren: het licht dat op de ene spleet valt hoeft geen enkele faserelatie te hebben met het licht dat op de andere spleet valt en toch krijg je een inter-

ferentiepatroon. Het experiment toont aan dat deze gedachtegang correct is: de plasmonen zorgen voor coherentie aan de uitgang van de spleten terwijl die totaal afwezig is aan de ingang van de spleten.

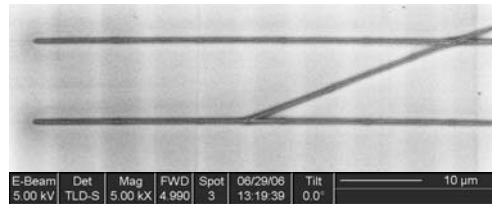


Figuur 5. Oppervlakteplasmon impuls kaatsen heen en weer tussen twee spleten.

Ook **hoofdstuk 4** vindt zijn oorsprong in de metingen van hoofdstuk 2. Het daar waargenomen spectrum vertoont een modulatie patroon dat net niet sinusvormig is; de pieken zijn een beetje smaller dan de dalen. Dit suggereert dat het oppervlakteplasmon als het bij een spleet arriveert ook teruggestrooid wordt, zeg maar teruggekaatsd, maar voor slechts een kleine fractie (zie Fig. 5). In hoofdstuk 4 bestudeer ik dit kaatsgedrag van oppervlakteplasmonen gebruik makend van smalle spleten die zowel als bron, afvoerkanaal en spiegel dienst doen. Ondanks het feit dat de weerkaatsingscoëfficiënt klein is (≈ 0.04) kunnen we, met behulp van een interferometrische techniek, vier weerkaatsingen van een oppervlakteplasmon waarnemen. De metingen geven ook informatie over de groepssnelheid van een oppervlakteplasmon. Ook in dit experiment spelen fasesprongen bij verstrooiing, in dit geval weerkaatsing, een rol. Wij vinden dat deze weerkaatsings fasesprong gelijk is aan die van het eerder besproken dubbele verstrooiingsproces.

Als beide spleten door het invallende licht worden beschenen zullen zij allebei oppervlakteplasmonen lanceren. Tussen de twee spleten ontstaat dan een staande plasmogolf. De periodiciteit hiervan is gelijk aan de halve plasmon golflengte, in ons geval ≈ 250 nm. Om deze staande plasmon golf waar te nemen moeten wij een truc uithalen (**hoofdstuk 5**). Ten eerste moeten wij het oppervlak tussen de twee spleten, bijvoorbeeld door middel van een extra spleet, verstoren zodanig dat de plasmonen gaan afstralen. Ten tweede moeten wij ervoor zorgen dat wij een meetinstrument gebruiken met voldoende ruimtelijk oplossend vermogen. Aangezien de plasmonen zullen afstralen bij 800 nm (de golflengte van het oorspronkelijk op de spleten invallende licht)

is er een probleem. Met normale verre-veld microscopie kan je geen 250 nm structuren bij een golflengte van 800 nm oplossen. Wij hebben ervoor gekozen om tussen de twee spleten een smalle schuine spleet aan te brengen (zie Fig. 6). Deze zorgt voor de noodzakelijke verstoring van het plasmonveld om iets te kunnen zien en, omdat hij schuin staat, rekt hij het patroon als het ware uit (in ons geval met een factor 6).



Figuur 6. Drie spleet afbeelding.

Door middel van deze schuine spleet kunnen wij, in principe, de staande plasmogolf onderzoeken. Omdat er ook een deel van het invallende licht door de schuine spleet sijpelt ontstaat er nog een ander, veel helderder, interferentiepatroon in het door de schuine spleet doorgelaten licht. Gelukkig kunnen wij dat laatste patroon onderdrukken door de golflengte van het invallende licht geschikt te kiezen en kunnen wij de staande plasmogolf alsnog waarnemen. Ons sample is zo gemaakt dat de twee parallelle spleten waar tussen de schuine spleet loopt nog een heel stuk doorlopen voorbij het gebied waar de schuine spleet ligt. Als wij de lichttransmissie van dit deel van het sample meten zien we dat deze transmissie maximaal wordt bij precies die golflengten waar het staande-golfpatroon in de schuine spleet zichtbaar wordt. Deze correlatie biedt ons de mogelijkheid de fase van het verstrooiingsproces “invallend-licht \rightarrow oppervlakteplasmon \rightarrow licht door de spleet” experimenteel te bepalen. Wij vinden een waarde π , geheel in overeenstemming met de theoretische voorspellingen.

Met dit sample kunnen wij ook de waarschijnlijkheid meten dat het plasmon over een spleet heen ‘springt’ en de daarmee gepaard gaande fasevertraging. Alles bij elkaar levert het ons een vrij compleet beeld op van de wisselwerking van een oppervlakteplasmon met een spleet.

In **hoofdstuk 6** komt een intrigerend resultaat van onze allereerste metingen aan bod. Bij de metingen van hoofdstuk 2 gebruiken wij spleten met een breedte van 200 nm in een 200 nm dikke goudfilm. Wij verwachtten dat deze spleten een veel kleinere lichttransmissie zouden hebben voor licht gepolariseerd parallel aan de spleten dan voor licht gepolariseerd loodrecht op

de spleten. Dat bleek, tot onze verassing, niet waar te zijn. Nog verrassender vonden wij het feit dat als we licht op de spleten lieten vallen bij een golflengte van 800 nm met een polarisatie onder 45 graden met de spleet, het doorgelaten licht circulair gepolariseerd is (en vice versa). De spleten werken als het ware als een $\lambda/4$ -plaatje, bekend uit de kristal-optica. Om deze waarnemingen beter te begrijpen hebben we een experiment gedaan aan een grote serie enkele spleten met steeds toenemende spleetbreedte, van 50 nm tot 1000 nm. Wij hebben daarmee de niet-triviale variatie van de transmissie coëfficiënt als functie van de spleetbreedte zorgvuldig in kaart gebracht voor beide hoofdrichtingen van de polarisatie van het licht. Wij hebben onze metingen vergeleken met resultaten van numerieke berekeningen op grond van een diffractie model en vinden prima overeenstemming.

In **hoofdstuk 7** rapporteer ik over een experiment aan zilver. Goud is geel en zilver is wit; dat kleurverschil zegt iets over de respons van beide materialen op invallend licht: in het blauwe deel van het spectrum gedraagt zilver zich nog netjes als een "tekstboek"metaal, goud doet dat helemaal niet. Omdat zilver, als het aan lucht wordt bloot gesteld, snel dof wordt, wordt het metaal ingepakt tussen glas en een dunne chroomlaag. Wij bestuderen de oppervlakteplasmonen aan het grensvlak van zilver en glas. Als nieuwigheid bestuderen we deze oppervlakteplasmonen over een heel groot spectraal gebied, van het blauw-groen tot in het infrarood. De metingen in het blauw-groene deel van het spectrum zijn bijzonder: de golflengte van het oppervlakteplasmon is daar ongehoord klein (≈ 260 nm).