

# Физика

УДК 535.016:537.876.4

## Разработка метода спектроскопии поверхностных плазмонов терагерцового диапазона

Г. Н. Жижин <sup>\*</sup>, А. К. Никитин <sup>\*</sup>, А. П. Логинов <sup>†</sup>, Н. И. Головцов <sup>†</sup>, Т. А. Рыжова <sup>†</sup>

<sup>\*</sup> Научно-технологический центр уникального приборостроения РАН  
Россия, 117342, Москва, ул. Бутлерова, 15

<sup>†</sup> Кафедра общей физики  
Российского университета дружбы народов  
Россия, 117198, Москва, ул. Миклухо-Маклая, 6

Статья посвящена разработке метода спектроскопии поверхностных плазмонов (ПП) терагерцового (ТГц) диапазона ( $30\text{--}100\text{ см}^{-1}$  или  $0,1\text{--}10\text{ ТГц}$ ) с использованием излучения лазера на свободных электронах (ЛСЭ). В работе описаны: 1) способы возбуждения ТГц ПП объёмным излучением и измерения их характеристик; 2) результаты экспериментов по возбуждению ТГц ПП на поверхности алюминия и меди излучением ЛСЭ ( $\lambda = 110$  и  $150\text{ мкм}$ ), 3) методика расчёта по комплексному показателю преломления ТГц ПП диэлектрической проницаемости материала образца; 4) ряд разработанных авторами способов реализации спектроскопии поверхности посредством ТГц ПП.

**Ключевые слова:** поверхностные плазмоны, терагерцовое излучение, инфракрасная спектроскопия, лазеры на свободных электронах, диэлектрическая проницаемость металлов, поверхностные электромагнитные волны.

### 1. Введение

*Поверхностные плазмоны* (ПП) представляют собой комплекс, состоящий из волны плотности свободных носителей в проводнике и  $p$  — поляризованной электромагнитной волны, поле которой максимально на границе раздела «проводник—окружающая среда» и экспоненциально затухает как при удалении от границы в обе стороны, так и в направлении распространения ПП [1]. ПП используют в оптометрии для повышения чувствительности измерений, поскольку возбуждение ПП зондирующими излучениями сопровождается усилением напряжённости его поля в приповерхностной области и увеличением длины взаимодействия с поверхностью [2]. Наиболее эффективная область применения ПП — спектроскопия поверхности металлов, позволяющая получать спектры поглощения субмомономолекулярных слоёв [3].

До недавних пор спектральная область применений ПП была ограничена видимым и средним инфракрасным (ИК) диапазонами, где длина распространения ПП ( $L$ ) не превышает  $10^3$  длин волн ( $\lambda$ ) и имеются достаточно мощные перестраиваемые источники излучения. Попытки же освоения дальнейшей области ИК диапазона, называемой также *терагерцовой* (ТГц), с частотой от 0,1 до 10 ТГц, были затруднены отсутствием плавно перестраиваемых по частоте лазеров и огромной длиной распространения ПП, достигающей  $\lambda \cdot 10^5$ , т.е.  $\sim 10$  метров.

Актуальность освоения ТГц диапазона обусловлена перспективой применения излучения ТГц частот в космической связи, в оптоэлектронных устройствах обработки информации, в оптической спектроскопии [4,5]. Создание в середине 80-х годов *лазеров на свободных электронах* (ЛСЭ) [6] — плавно перестраиваемых источников когерентного излучения всего оптического диапазона — явились важной

---

Статья поступила в редакцию 10 ноября 2007 г.

предпосылкой для выполнения этой задачи. Открылась возможность экстраполяции на ТГц диапазон различных методов когерентной оптики, в том числе и оптики металлов.

С другой стороны, так как металлы в ИК диапазоне имеют коэффициент отражения близкий единице, то такие традиционные оптические методы контроля их поверхности как рефлектометрия, Фурье-спектроскопия и эллипсометрия, мало эффективны. Характеристики же ПП (фазовая скорость, длина распространения, распределение поля) и на ТГц частотах остаются, как и в более высокочастотных областях, чрезвычайно чувствительными к свойствам металлической поверхности и её переходного слоя [7]. Поэтому, использование ПП для изучения проводящей поверхности в ТГц диапазоне имеет перспективу. Однако, механический перенос метода ПП-спектроскопии из среднего в дальний ИК диапазон невозможен. С увеличением длины волны от 10 до 100 мкм эффективность возбуждения ТГц ПП (она  $\sim 1/\lambda^4$ ) уменьшается до сотых долей процента, длина распространения ПП возрастает от единиц сантиметров до метров, а фазовая скорость ПП меньше скорости света в окружающей среде всего на тысячные доли процента. Необходимо разработать ряд способов и устройств для выполнения спектральных измерений посредством ПП в ТГц диапазоне, прежде чем можно будет утверждать, что метод ПП-спектроскопии применим и на ТГц частотах.

## 2. Методы преобразования объёмного излучения (ОИ) в ТГц ПП и детектирование ТГц ПП

Так как фазовая скорость ПП  $\vartheta$  меньше скорости света в окружающей среде с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_2$ , то при непосредственном падении электромагнитной волны на поверхность проводника с  $\varepsilon_1(\nu) = \varepsilon'_1 + i\varepsilon''_1$  возбуждение ПП невозможно.

Равенства  $\vartheta$  тангенциальной составляющей фазовой скорости падающего излучения можно добиться либо за счёт дифракции падающего излучения, либо методом НПВО, располагая у поверхности (на расстоянии, равном нескольким  $\lambda$ ) призму, выполненную из материала, оптически более плотного, чем среда с  $\varepsilon_2$ .

Метод НПВО применяют главным образом в видимом и ближнем ИК диапазонах, где длина распространения ПП  $L$  меньше диаметра пучка падающего излучения [2]. В дальнем же ИК диапазоне, где величина  $L$  достигает десятков и сотен сантиметров, эффективность возбуждения ПП методом НПВО резко уменьшается и он применяется редко.

Для дифракционного возбуждения ПП световым пучком можно использовать любые неоднородности поверхности проводника (например, шероховатость или специально сформированный гофр) или экран, подносимый к поверхности проводника на расстояние  $\sim 10\lambda$ . Вследствие дифракции падающего излучения тангенциальная компонента его волнового вектора увеличивается на величину волнового вектора, связанного с Фурье-компонентами шероховатости, гофра или края экрана, и становится равной тангенциальной составляющей волнового вектора ПП, при этом достигается равенство фазовых скоростей объёмной и поверхностной волны, что сопровождается перекачкой энергии из первой в последнюю. Как и метод НПВО, дифракционный метод имеет в дальней ИК области низкую эффективность возбуждения ПП (сотые доли процента), но зато его можно применять в широком диапазоне частот практически без перестройки элемента преобразования [8]. Заметим, что эффективность возбуждения ТГц ПП с использованием дифракционной решётки может быть поднята до десятков процентов, если на решётку нанести слой с большим показателем преломления, что приводит к перераспределению поля ПП из воздуха в слой и металл [9].

Авторы работы [10] предложили использовать для преобразования объёмной волны в ТГц ПП рупорный метод, используемый в СВЧ технике для закачки излучения в полый металлический волновод. Действительно, в этом случае, по мере сужения раструба, фазовая скорость волноводных мод, возбуждённых сфокусированным падающим ОИ, уменьшается и, при некотором расстоянии между стенками волновода, обеспечивается фазовый синхронизм между  $p$  — поляризованной модой и ТГц ПП, что и приводит к частичной перекачке энергии в

поверхностную волну. Возможно, рупорный метод является наиболее приемлемым (с точки зрения реализации и эффективности) для возбуждения ТГц ПП на гладкой проводящей поверхности, свободной от покровного слоя.

Что касается детектирования ТГц ПП, то в первых экспериментах для этого использовались болометрические или охлаждаемые жидким гелием полупроводниковые приёмники [11–13]. Причём, детектировалось ОИ, порождённое ТГц ПП, прошёдшей по поверхности образца некоторое расстояние. Преобразование ПП в ОИ осуществлялось, как правило, в результате дифракции ТГц ПП либо на краю второго экрана, либо просто на краю образца. Однако с развитием хроноспектроскопии [14], называемой в зарубежной литературе time-domain spectroscopy и выполняемой с использованием фемтосекундных импульсов лазерного излучения, потребовались более чувствительные и широкодиапазонные приёмники [15]. Этим требованиям удовлетворили приёмники в виде фотопроводящих дипольных антенн, детектирующие поле ТГц ПП непосредственно при их размещении на поверхности образца [16].

### 3. Абсорбционная ПП-спектроскопия ТГц диапазона

В методе абсорбционной ПП-спектроскопии измеряемой величиной является длина распространения ПП  $L = \lambda/(2\pi\chi'')$ , равная расстоянию, на котором интенсивность поля ПП уменьшается в  $e \approx 2,718$  раз; здесь  $\chi''$  — мнимая часть показателя преломления ПП.

Для измерения величины  $L$  в среднем ИК диапазоне используют двухпризменный способ, в котором преобразование ОИ в ПП и обратно осуществляют посредством дифракции излучения на ребрах двух призм, используемых здесь не в качестве элементов полного внутреннего отражения, а в качестве апертуры, совмещённой с поворотным зеркалом (рис. 1) [17]. Суть способа состоит в измерении интенсивности  $I$  поля ПП не менее чем в двух точках трека с координатами  $x_1$  и  $x_2$  при перемещении одной из призм. Тогда коэффициент затухания ПП  $\alpha \equiv L^{-1} = \ln(I_{x_1}/I_{x_2})/(x_2 - x_1)$ . Измерения величины  $L$  на данной частоте  $\nu$  производятся на чистой поверхности образца —  $L_0$ , и после завершения формирования на ней переходного слоя —  $L$ ; тогда обусловленная исследуемым слоем разность  $\Delta L = L_0 - L$ . Зависимость  $\Delta L(\nu)$  представляет собой спектр поглощения слоя в рабочем диапазоне частоты излучения.

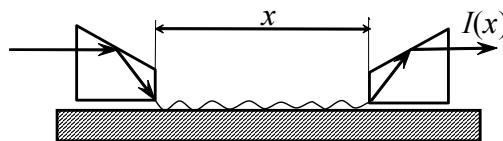


Рис. 1. Схема двухпризменного способа измерения длины распространения ПП [17]

В ТГц диапазоне расчётное значение  $L_0$ , как уже отмечалось, может достигать нескольких метров, и поэтому точность измерений, при использовании образцов длиной 15–20 см, понижается до 10–20%.

В этой связи возникла необходимость создать такие условия, при которых поглощение ПП ТГц диапазона существенно больше, а фазовая скорость — меньше, по сравнению с соответствующими характеристиками ПП на чистой поверхности металла. Тогда точность измерения  $L$  и  $\vartheta$  может быть повышена до единиц процентов (как в среднем ИК диапазоне), что позволит осуществлять исследование переходного слоя проводящей поверхности в ТГц диапазоне методом ПП-спектроскопии.

Для достижения поставленной цели нами был выбран метод нанесения на поверхность металла  $\varepsilon_1(\nu)$  прозрачного слабо поглощающего слоя толщиной  $d$  с

показателем преломления  $n_1$ . Этот метод воздействия на характеристики ПП широко практикуется в видимом диапазоне [2] и апробирован в среднем ИК диапазоне [18]. Авторами [18] показано, что с ростом  $d$  фазовая скорость ПП монотонно уменьшается, а эффективный показатель преломления ПП  $\varkappa = \varkappa' + i\varkappa''$  асимптотически стремится к значению  $\varkappa$  для ПП на невозмущённой границе «металл–материал слоя». Длина же распространения  $L$  ведёт себя с ростом  $d$  неоднозначно: резко уменьшается от  $L_0$  (значение  $L$  при  $d = 0$ ), достигает минимума  $L_{\min}$  при  $d_c = \lambda / [4 \cdot \sqrt{n_l^2 - 1}]$ , а затем, по мере увеличения  $d$ , возрастает, асимптотически стремясь к значению  $L_\infty$  для ПП на невозмущённой границе «металл–материал слоя».

Для оценки влияния тонкослойного покрытия на поглощение ПП направляемых поверхностью алюминия, нами было выполнено компьютерное моделирование зависимостей  $L$  и  $\varkappa'$  от толщины  $d$  слоя  $Ge$  в видимой и ИК областях спектра. Комплексные значения  $\varkappa$  определяли путём численного решения дисперсионного уравнения ПП для трёхслойной структуры [1]. Оптические постоянные (показатель преломления —  $n$  и показатель поглощения —  $k$ ) алюминия и германия брали из справочника [19]. Показатель преломления германия  $n_1$  полагали равным четырём при всех  $\lambda$  (величина  $n_1$  при возрастании  $\lambda$  от 10 до 110 мкм варьируется лишь в третьем знаке после запятой: от 4,004 до 4,006; а значение  $k$  для  $Ge$  равно  $1 \cdot 10^{-5}$  при  $\lambda = 10$  мкм и  $2 \cdot 10^{-3}$  при  $\lambda = 110$  мкм).

Для удобства анализа полученных результатов сравним вначале характеристики ПП, распространяющихся по невозмущённой границе раздела «алюминий–вакуум» в различных областях оптического диапазона (табл. 1, где  $\delta_2$  и  $\delta_1$  — глубина проникновения поля ПП в вакуум и металл, соответственно, а значения  $\varepsilon'_1$  и  $\varepsilon''_1$  при  $\lambda = 110$  мкм рассчитаны по модели Друде, из-за отсутствия экспериментальных данных). Видно, что с увеличением  $\lambda$  ПП приобретают всё более выраженный фотонный характер: показатель преломления  $\varkappa'$  стремится к единице, глубина проникновения поля в вакуум  $\delta_2$  возрастает до сантиметров, а длина распространения  $L$  достигает нескольких метров. Определить  $L$  в этом случае с точностью хотя бы 10%, при размере образца 15–20 см, практически невозможно.

Таблица 1  
Дисперсия характеристик ПП на границе «Алюминий–вакуум»

$\lambda$ , мкм	$n$	$k$	$\varepsilon'_1$	$\varepsilon''_1$	$\varkappa'$	$\varkappa''$	$L$ , см	$\delta_2$ , мкм	$\delta_1$ , мкм
0,6	1,4	7,65	-56,6	21,4	1,007808	0,003	0,002	0,76	0,012
1,0	1,35	9,6	-91,3	26,1	1,005100	0,001467	0,005	1,57	0,016
5,0	8,67	48,6	-2287	843	1,000193	0,000071	0,561	40,5	0,017
10,0	25,3	89,8	-7424	4544	1,000049	0,000030	2,65	160	0,018
20,0	60,7	147	-17925	17845	1,000014	0,000014	11,4	602	0,022
32,0	103	208	-32655	42848	1,000006	0,000007	34,5	1521	0,024
110,0	—	—	-31902	231622	$1,0 + 10^{-7}$	0,000002	413	20701	0,040

На рис. 2 изображены расчётные зависимости длины распространения  $L$  от толщины  $d$  покровного слоя  $Ge$  для ПП, генерируемых на поверхности алюминиевого образца, расположенного в воздухе, излучением с  $\lambda = 10,0$  мкм и  $\lambda = 110$  мкм, соответственно. Из сравнения графиков видно, что при большей  $\lambda$  эффект уменьшения  $L$  при  $d \approx d_c$  более выражен.

В табл. 2 приведены результаты расчётов экстремальных значений  $L$  в структуре «Al — слой  $Ge$  — воздух» на некоторых  $\lambda$  оптического диапазона (значения  $n$ ,

$k$  и  $\varepsilon_1$  такие же как в табл. 1). Видно, что с ростом  $\lambda$  поглощение ПП, вследствие наличия на металле слоя диэлектрика становится более выраженным (колонка  $L_0/L_{\min}$ ). Отметим также, что учёт слабого селективного поглощения в слое *Ge* приводит к уменьшению значения  $L$  не более чем на 1%.

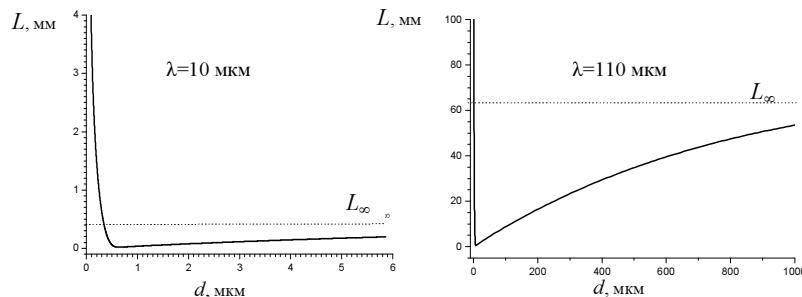


Рис. 2. Расчётные зависимости длины распространения  $L$  ПП по поверхности алюминия от толщины  $d$  слоя германия для излучения с длиной волн  $\lambda = 10 \text{ мкм}$  и  $110 \text{ мкм}$

Таблица 2  
Дисперсия экстремальных значений длины распространения ПП  $L$  в структуре «*Al* — слой *Ge* — воздух»

$\lambda$ , $\mu\text{m}$	$d_c$ , $\mu\text{m}$	$L_o$ , $\mu\text{m}$	$L_{\min}$ , $\mu\text{m}$	$L_\infty$ , $\mu\text{m}$	$L_0/L_{\min}$	$L_\infty/L_{\min}$
0,63	0,029	0,0167	0,00008	0,00018	208,75	92,78
1,0	0,049	0,0531	0,00025	0,00064	212,40	82,97
5,0	0,311	5,6055	0,00762	0,08683	735,63	64,56
10,0	0,600	26,5330	0,02072	0,41366	1280,55	64,14
32,0	2,100	344,9640	0,09730	5,38871	3545,36	64,01
110,0	7,20	4131,9500	0,47500	64,56080	8698,84	64,00

Конечно, величина  $d_c$  в ТГц диапазоне, как правило, превышает технологически допустимые значения толщины покровного слоя (в том числе и для германия). Однако даже при  $d < d_c$ , длина распространения ПП  $L$  может быть уменьшена до расстояния, сравнимого с приемлемым размером образца ( $10 \div 20 \text{ см}$ ).

Нами были выполнены тестовые эксперименты по возбуждению ТГц ПП и измерению их длины распространения. Эксперименты проводились в НИИ атомной энергии Республики Корея (Korea Atomic Energy Research Institute — KEARI) с использованием излучения ЛСЭ, недавно введённого в строй при техническом содействии Института ядерных исследований им. Г. И. Будакера СО РАН [20]. ЛСЭ генерирует излучение в виде макроимпульсов длительностью 3 мкс (мощностью 10Вт) с периодом 1 с.

Схема установки, на которой выполнялись эксперименты по измерению поглощения ПП на частоте  $\nu = 90 \text{ см}^{-1}$ , приведена на рис. 3.

Исследуемые образцы представляли собой непрозрачные зеркала с алюминиевым покрытием, нанесённым методом термического испарения в вакууме на оптически полированные подложки ( $30 \times 150 \times 5 \text{ мм}$ ). Образцы устанавливались на подвижную платформу, прецизионно перемещаемую в горизонтальной плоскости

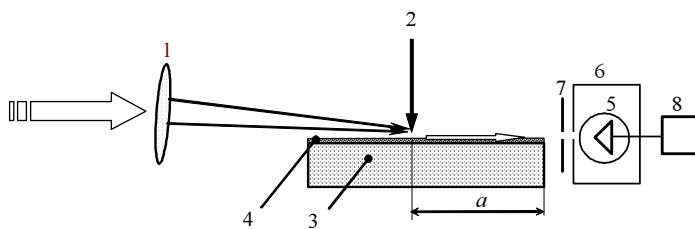


Рис. 3. Схема экспериментальной установки по измерению затухания ТГц ПП [21]

вдоль хода луча электромеханическим приводом с шагом 1 мм. Дифракционным элементом возбуждения ПП («апертурный» метод) служило лезвие обычной бритвы 2. Бритва крепилась неподвижно, а режущий край лезвия фиксировался над поверхностью образца на расстоянии 1–2 мм. Пучок (диаметром около 20 мм) линейно поляризованного излучения ЛСЭ направлялся на образованную таким образом щель полиэтиленовой цилиндрической линзой 1 с фокусным расстоянием 15 см, наклонённой на  $10^\circ$ – $15^\circ$  по отношению к плоскости образца главной оптической осью (во избежание прямого попадания излучения ЛСЭ на детектор). Дифрагируя на крае бритвы, падающее излучение преобразовывалось в ПП, распространяющиеся в том же направлении по поверхности образца (стеклянная подложка — 3, непрозрачная металлическая пленка — 4). Пройдя расстояние  $a$ , поверхностная волна срывалась с торца образца, преобразуясь в объёмную волну, интенсивность которой регистрировалась детектором 5, помещённым в криостат 6 с хладагентом и защищённым от паразитных засветок горизонтальной диафрагмой 7 шириной 2 мм. В качестве детектора излучения использовался охлаждаемый жидким гелием  $Ge:Ga$  фоторезистор. Сигнал с детектора 5 поступал в блок накопления и обработки информации 8.

Затухание ПП вдоль образца измерялось по сигналу детектора при последовательно фиксированных положениях образца (расстояния  $a$ ) относительно неподвижного источника возбуждения ПП. Как изменение, так и определение расстояния  $a$  проводилось с точностью 1 мкм. Интенсивность детектируемого излучения (нормированная на независимо измеренную интенсивность входного пучка) при каждом значении  $a$  усреднялась по восьми последовательным импульсам ЛСЭ и запоминалась цифровым осциллографом.

Отношение сигнал-шум выдерживалось на уровне 100, а расстояние между неподвижным детектором и торцом образца изменялось в ходе измерений от 5 до 15 см по мере продвижения образца под лезвием. Учёт изменения расстояния от образца до детектора в ходе данного промера осуществлялся путём перерасчёта сигнала в предположении обратно квадратичной зависимости интенсивности объёмной волны от расстояния.

На рис. 4 представлены экспериментальные зависимости  $I/I_0$  от расстояния  $\Delta_a$ , пройденного ПП по образцу с покровным германиевым слоем различной толщины  $d$ . Здесь  $I_0$  — сила фототока при  $a_0 = 50$  мм,  $I$  — сила фототока при  $a = a_0 + \Delta_a$ .

Последовательность точек, полученных при измерении образцов с различными  $d$ , хорошо аппроксимируется экспоненциальной функцией (сплошные линии) с тем или иным коэффициентом затухания  $\alpha$ . Располагая такими графиками, можно рассчитать как величину  $\alpha = \frac{\ln(I/I_0)}{\Delta_a}$ , так и длину распространения ПП  $L = 1/\alpha$ .

В табл. 3 сведены результаты расчётов значений  $\alpha$  и  $L$  по кривым на рис. 4 —  $\alpha_{\text{эксп.}}$  и  $L_{\text{эксп.}}$ , а также расчётные значения этих величин —  $\alpha_{\text{теор.}}$  и  $L_{\text{теор.}}$ , экстраполированные из графика  $L(d)$  на рис. 2. Расхождение между экспериментальными и расчётными значениями  $\alpha$  и  $L$  при  $d \leq 0.5$  мкм очень велико (примерно в 30 раз при  $d = 0$ ), но при  $d = 1$  и 2 мкм экспериментальные результаты вполне удовлетворительно согласуются с расчётыми.

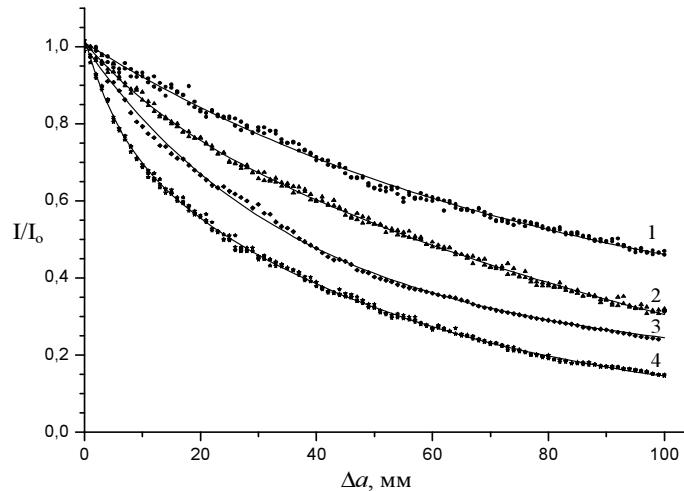


Рис. 4. Измеренные зависимости интенсивности поля ПП с частотой  $\nu = 90 \text{ см}^{-1}$  от пройденного ими расстояния  $\Delta a$  при различной толщине  $d$  покровного слоя германия: кривая 1 —  $d = 0 \text{ мкм}$ ; 2 —  $d = 0,5 \text{ мкм}$ ; 3 —  $d = 1,0 \text{ мкм}$ ; 4 —  $d = 2,0 \text{ мкм}$ . [22]

Таблица 3  
Зависимости коэффициента затухания  $\alpha$  и длины распространения  $L$  ПП в структуре «Al—слой Ge—воздух» от толщины слоя  $d$

$d, \text{ мкм}$	0	0,5	1,0	2,0
$\alpha_{\text{эксп.}}, \text{ см}^{-1}$	0,07	0,10	0,12	0,19
$\alpha_{\text{теор.}}, \text{ см}^{-1}$	0,0024	0,02	0,09	0,22
$L_{\text{эксп.}}, \text{ см}$	14,3	10,0	8,3	5,3
$L_{\text{теор.}}, \text{ см}$	413	52	10,9	4,5

Таким образом, мы, как и авторы более ранних работ по изучению распространения ПП в ТГц диапазоне с использованием излучения лазеров на парах метанола и воды [11, 12], вынуждены констатировать необычно большое поглощение ПП чистой (невозмущённой покровным слоем) поверхностью металла. В наших экспериментах это могло иметь место по следующим причинам: 1) наличие на поверхности алюминия поглощающей окисной плёнки; 2) методические погрешности при измерении слабого затухания, в частности, не вполне корректный учёт реальной зависимости интенсивности объёмной волны от расстояния; 3) различие плазменных и столкновительных частот напылённого и массивного алюминия, использованных в экспериментах и в модели Друде при оценке поглощения ПП.

#### 4. Фазовая ПП-спектроскопия ТГц диапазона

Помимо длины распространения другой важной характеристикой ПП является их фазовая скорость  $\vartheta = C/\varkappa'$ , где  $C$  — скорость света в вакууме, а  $\varkappa'$  — действительная часть показателя преломления ПП. Так как величина  $\varkappa'$  зависит не только от частоты излучения  $\nu$ , но и от свойств поверхности и её переходного слоя, то, измеряя  $\varkappa'$ , можно также получать информацию о поверхности и слое.

Поскольку  $\vartheta$  от  $C$  в вакууме для ТГц ПП незначительно ( $\Delta\varkappa' = \varkappa' - 1 \approx 10^{-6}$ ), то определить её можно только интерференционным способом при условии прохождения ПП поверхностью волной значительного расстояния  $a$  (чтобы фазовый набег

$\Delta\varphi = \Delta\nu' \cdot a \cdot 2\pi/\lambda$  составил порядка  $\pi$ ). Идея фазовой ПП-спектроскопии поверхности твёрдого тела в ИК диапазоне была предложена в работе [23]. Она состоит в реализации такой схемы интерферометра Майкельсона, когда в одном из плеч устройства излучение проходит часть пути в виде ПП, а затем вновь преобразуется в объёмную волну. Существуя в виде ПП, зондирующее излучение накапливает информацию о поверхности образца, которая переносится на интерференционную картину.

Для определения  $\nu'$  ПП инфракрасного диапазона авторами работы [23] был разработан и создан плазмонный интерферометр. В основу его конструкции была положена схема интерферометра Майкельсона, при этом излучение в измерительном плече интерферометра часть пути проходит в виде ПП, а затем вновь преобразуется в объёмную волну. Существуя в виде ПП, зондирующее излучение приобретает фазовый сдвиг  $\Delta\varphi$ , который можно оценить по регистрируемой интерференционной картине.

Схема ПП-интерферометра, применённого нами в экспериментах по определению  $\nu'$  ТГц ПП, приведена на рис. 5.

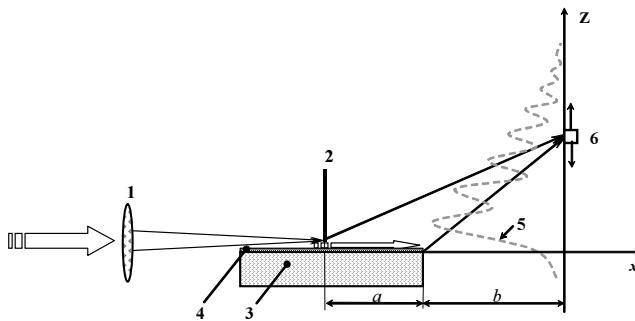


Рис. 5. Схема ПП-интерферометра для определения действительной части показателя преломления ПП в терагерцовой области спектра: 1 — линза, 2 — экран, 3 — подложка, 4 — непрозрачная металлическая пленка, 5 — распределение интенсивности в интерферограмме, 6 — подвижный фотодетектор.

Излучение ЛСЭ фокусировалось линзой 1 на край экрана 2, дифрагировало на нём и расщеплялось на два пучка, один из которых распространялся под углом к поверхности образца (стеклянная подложка — 3, непрозрачная металлическая пленка — 4) в виде расходящегося пучка объёмных электромагнитных волн, а другая часть преобразовывалась в ПП, распространявшаяся прямо по поверхности образца. Пройдя расстояние  $a$ , ПП приобретали фазовый сдвиг  $\Delta\varphi$  и, дойдя до края образца, преобразовывались на нём в объёмную волну. В области пересечения объёмных волн, исходящих от экрана и края образца, формировалась интерференционная картина — интерферограмма 5, регистрируемая детектором 6, перемещаемым в вертикальном направлении на расстоянии  $b$  от края образца.

Исследуемые образцы устанавливались как неотъемлемая часть ПП-интерферометра в специальную приставку, позволяющую изменять и замерять расстояние  $a$  с точностью 0,1мм, а расстояние  $b$  между плоскостью перемещения детектора и краем образца оставалось постоянным (200 мм) во всех экспериментах.

Нами была разработана аналитическая методика обработки интерферограмм, зарегистрированных на ПП-интерферометре, с целью расчёта величины  $\nu'$  по положениям максимумов интерферограммы. Согласно [23], условие наблюдения интерференционного максимума в точке с координатой  $z$  имеет вид:

$$\nu' \cdot a + \sqrt{b^2 + (z - z_0)^2} - \sqrt{(b + a)^2 + (z - z_o)^2} = (m + \theta)\lambda, \quad (1)$$

где  $z_0$  — соответствует нулевой оптической разности хода между двумя интерферирующими объёмными волнами,  $m = 1, 2, 3, \dots$  — номер максимума,  $\theta$  — дополнительный фазовый сдвиг, приобретаемый излучением при срыве ПП с края образца и преобразовании в объёмную волну. В этой системе уравнений содержится три неизвестных величины:  $z_0, \theta, \chi'$ .

Величину  $z_0$ , зависящую от расстояния  $a$ , можно определить путём вычитания друг из друга двух уравнений типа (1), составленных, например, для двух соседних максимумов одной и той же интерферограммы:

$$\sqrt{b^2 + z_m^2} - \sqrt{b^2 + z_{m+1}^2} + \sqrt{(b+a)^2 + z_m^2} + \sqrt{(b+a)^2 + z_{m+1}^2} + \lambda = 0, \quad (2)$$

где  $z_m = z - z_0$ , а  $z_m$  — координата  $m$ -того максимума.

Координате  $z_0$  не соответствуют в интерферограмме какие-либо специфические особенности; поэтому для более точного определения  $z_0$  следует составить несколько комбинаций пар максимумов интерферограммы и, после решения соответствующего числа раз уравнения (2), рассчитать среднее значение найденных  $z_0$ .

Скачок фазы  $\theta$  не зависит от  $a$ , поэтому, располагая одной интерферограммой, его определить невозможно. Однако если мы зарегистрируем интерференционные картины при различных расстояниях  $a$  и одинаковых  $b$ , то величина  $\theta$  может быть исключена путём вычитания друг из друга двух уравнений типа (1), составленных для одного и того же интерференционного максимума  $m$ . Полученное в результате вычитания новое уравнение будет содержать только одну неизвестную величину — искомую  $\chi'$ . Решая новое уравнение относительно  $\chi'$ , получим:

$$\begin{aligned} \chi' = & \frac{\sqrt{b^2 + (z_{2m} - z_{02})^2} - \sqrt{b^2 + (z_{1m} - z_{01})^2}}{a_1 - a_2} + \\ & + \frac{\sqrt{(b+a_1)^2 + (z_{1m} - z_{01})^2} - \sqrt{(b+a_2)^2 + (z_{2m} - z_{02})^2}}{a_1 - a_2}, \end{aligned} \quad (3)$$

где  $z_{01}$  и  $z_{02}$  — значения  $z_0$ , рассчитанные по уравнению (2) с использованием двух интерферограмм, зарегистрированных при различных пробегах ПП по образцу ( $a_1$  и  $a_2$ );  $z_{1m}$  и  $z_{2m}$  — координаты любых  $m$ -х максимумов обеих интерферограмм, соответственно.

Эксперименты по интерферометрическому определению действительной части показателя преломления ПП были выполнены с использованием импульсного излучения ЛСЭ (длительность импульсов — 3 мкс, мощность — 10 Вт, период — 1 с) на двух длинах волн: 110 и 150 мкм. Образцы представляли собой непрозрачные зеркала с металлическим покрытием, нанесённым в вакууме термическим испарением на оптически полированные подложки (с размерами  $30 \times 150 \times 5$  мм). Мы располагали такими зеркалами с покрытием из алюминия, меди и хрома, а также массивными зеркалами из меди и нержавеющей стали.

В качестве примера результатов экспериментом по интерферометрическому определению  $\chi'$  ТГц ПП на рис. 6 приведены интерферограммы, полученные при использовании излучения с  $\lambda = 150$  мкм при различных расстояниях  $a$ . В результате решения уравнения (1) были получены следующие значения  $z_0$ :  $z_{01} = 80,548$  мм для  $a_1 = 120$  мм и  $z_{02} = 77,398$  мм для  $a_2 = 80$  мм, величина же  $\chi'$  оказалась равной 1,0005, при ошибке определения величины  $\Delta\chi' = \chi' - 1$  равной  $\pm 50\%$ .

Для проверки чувствительности ТГц ПП интерферометра к наличию тонких пленок на металлической поверхности были исследованы два специально приготовленных образца, у которых поверх алюминиевой непрозрачной пленки был нанесён либо слой германия, либо слой кремния, оба толщиной 100 нм. На рис. 7 приведены три интерферограммы для  $\lambda = 150$  мкм при  $a = 120$  мм; хорошо заметен сдвиг интерферограмм для образцов с полупроводниковыми пленками

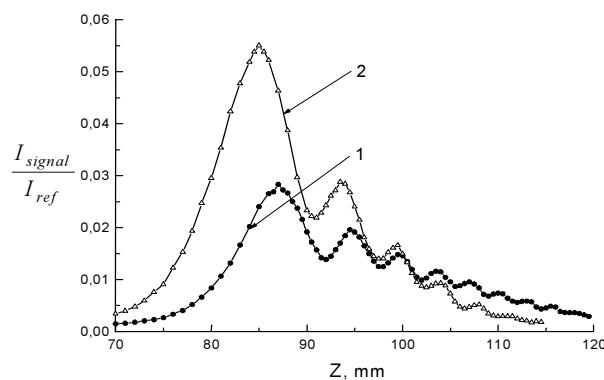


Рис. 6. Интерферограммы, зарегистрированные для алюминиевого образца при длине волны излучения  $\lambda = 150$  мкм и различных расстояниях  $a$ , пробегаемой ПП по образцу: кривая 1 —  $a = 120$  мм, 2 —  $a = 80$  мм

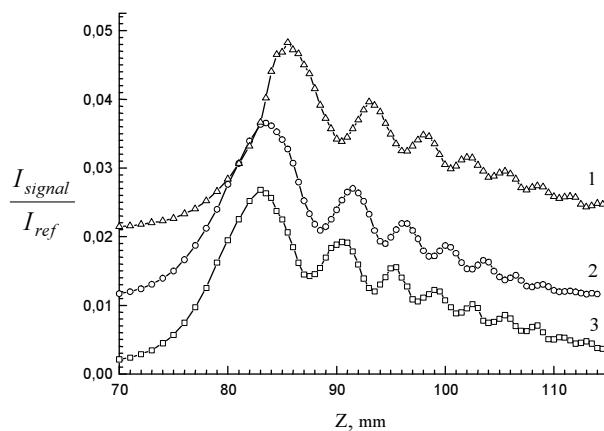


Рис. 7. Интерферограммы, полученные для алюминиевого образца при  $\lambda = 150$  мкм и  $a = 120$  мм: кривая 1 — чистая поверхность образца, 2 — при наличии на поверхности  $Al$  плёнки кремния толщиной 100 нм, 3 — при наличии на поверхности  $Al$  плёнки германия толщиной 100 нм. Интерферограммы 2 и 3 искусственно смещены вдоль вертикальной оси на 0,01 и 0,02, соответственно.

в сторону меньших  $z$  из-за увеличения  $\chi'$  пропорционального показателю преломления материала плёнки. Сдвиг интерферограмм означает, что даже в ТГц области спектра ПП остаются достаточно чувствительными к наличию тонких слоёв на поверхности металла.

Таким образом, впервые была определена действительная часть показателя преломления ПП в ТГц диапазоне частот. Экспериментально подтверждена высокая чувствительность фазовой скорости ПП к наличию на поверхности образца полупроводникового покрытия.

Определённые в результате экспериментов значения  $\chi'$  и  $L$  были использованы для расчёта по дисперсионному уравнению ПП для двухслойной структуры (см. [1]) диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_1$  алюминия на длине волны 110 мкм. Действительная и мнимая части  $\varepsilon_1$  оказались равными:  $\varepsilon'_1 \approx -4000$  и  $\varepsilon''_1 \approx 6500$ , соответственно. Эти значения сильно отличаются от значений  $\varepsilon_1$ , рассчитанных по модели Друде для кристаллического алюминия. По нашему мнению, основной причиной этого расхождения может являться существенное различие значений плазменных и столкновительных частот для напылённого и кристаллического алюминия ( $\nu_p = 11900$  см $^{-1}$  и  $\nu_\tau = 660$  см $^{-1}$ ).

## 5. Заключение

Таким образом, нами установлено, что реальное поглощение поверхностных плазмонов алюминиевым образцом на терагерцовых частотах значительно больше рассчитанного с использованием модели Друде. Кроме того, нанесение на поверхность алюминия прозрачного слоя германия позволяет управлять как поглощением, так и фазовой скоростью ПП, что открывает перспективу применения спектроскопии поверхностных плазмонов в дальнем ИК диапазоне.

## Литература

1. Поверхностные поляритоны. Поверхностные электромагнитные волны на границах сред / под ред. В. М. Аграновича, Д. Л. Миллса. — М.: Наука, 1985. — 525 с.
2. Никитин А. К. Плазмонная оптометрия: Дисс. д.т.н. / НТИ УП РАН. — М., 2002. — 270 С..
3. Zhizhin G. N., Yakovlev V. A. Broad-band spectroscopy of surface electromagnetic waves // Physics Reports. — No 5/6. — 1990. — Pp. 281–289.
4. Siegel P. H. Terahertz technology // IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques. — Vol. 50, No 3. — 2002. — Pp. 910–955.
5. Csurgay A. I., Porod W. Surface plasmon waves in nanoelectronic circuits // Intern. J. of Circuit Theory and Applications. — Vol. 32. — 2004. — Pp. 339–361.
6. Marshall T. C. Free-electron lasers. — Macmillan: N.Y., 1985. — 240 p. — M.: Мир, 1987.— 237 с.
7. Schlesinger Z., Webb B. C., Sievers A. J. Attenuation and coupling of far infrared surface plasmons // Solid State Comm. — Vol. 39. — 1981. — Pp. 1035–1039.
8. Эффективность апертурного возбуждения в спектроскопии ПЭВ / Г. Н. Жижин, С. Ф. Паркер, М. А. Честерс, В. А. Яковлев // Оптика и спектроскопия. — Т. 65, вып. 2. — 1988. — С. 371–375.
9. Seymour R. J., Krupczak J. J., Stegeman G. I. High efficiency coupling to the overcoated surface plasmon mode in the far infrared // Applied Physics Letters. — Vol. 44, No 4. — 1984. — Pp. 373–375.
10. Jeon T.-I., Grischkowsky D. THz Zenneck surface wave (THz surface plasmon) propagation on a metal sheet // Applied Physics Letters. — Vol. 88. — 2006. — Art. 061113.
11. Koteles E. S., McNeill W. H. Far infrared surface plasmon propagation // Intern. J. Infrared and Millimeter Waves. — Vol. 2, No 2. — 1981. — Pp. 361–371.
12. Steijn K. W., Seymour R. J., Stegeman G. I. Attenuation of far-infrared surface plasmons on overcoated metal // Applied Physics Letters. — Vol. 49, No 18. — 1986. — Pp. 1151–1153.
13. First experiments on application of free-electron laser terahertz radiation for optical control of metal surfaces / G. D. Bogomolov, Y. U. Jeong, G. N. Zhizhin et al // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. — No 5. — 2005. — Pp. 57–63.
14. Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors / D. Grischkowsky, S. Keiding, M. Exter, C. Fattinger // JOSA (B). — Vol. 7, No 10. — 1990. — Pp. 2006–2017.
15. Time-domain measurements of surface plasmon polaritons in the terahertz frequency range / J. Saxler, J. G. Rivas, C. Janke et al // Physical Rew. (B). — Vol. 69. — 2004. — Art. 155427.
16. Detection of up to 20 THz with a low-temperature-grown GaAs photoconductive antenna gated with 15 fs light pulses / S. Kono, M. Tani, P. Gu, K. Sakai // Applied Physics Letters. — Vol. 77, No 25. — 2000. — Pp. 4104–4106.
17. Жижин Г. Н., Москалева М. А., Шомина Е. В. Распространение поверхностных электромагнитных волн по металлическим поверхностям. Гл.3 / под ред. В. М. Аграновича, Д. Л. Миллса. — М.: Наука, 1985. — 525 с.
18. Schlesinger Z., Sievers A. J. IR surface-plasmon attenuation coefficients for Ge-coated Ag and Au metals // Physical Review (B). — Vol. 26, No 12. — 1982. —

- Pp. 6444–6454.
19. Handbook of optical constants of solids / Ed. by E. D. Palik. — San Diego, USA: Academic Press, 1998. — 804 p.
  20. Jeong Y. U., Kazakevitch G. M., Lee B. C. Status and prospects of a compact FIR FEL driven by a magnetron-based microtron // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research (A). — Vol. 483. — 2002. — Pp. 195–199.
  21. Жижин Г. Н., Никитин А. К., Богомолов Г. Д. Поглощение поверхностных плазмонов терагерцового диапазона в структуре «металл-покровный слой-воздух» // Оптика и спектроскопия. — Т. 100, № 5. — 2006. — С. 798–802.
  22. Zhizhin G. N., Nikitin A. K., Bogomolov G. D. Absorption of surface plasmons in «metal-cladding layer-air» structure at terahertz frequencies // Infrared Physics & Technologies. — Vol. 49, No 1-2. — 2006. — Pp. 108–112.
  23. Фазовая спектроскопия поверхностных электромагнитных волн / С. А. Воронов, Г. Н. Жижин, С. А. Киселёв и др // Компьютерная оптика. — № 4. — 1989. — С. 66–71.

UDC 535.016:537.876.4

## Elaboration of THz Surface Plasmon Spectroscopy Method

G. N. Zhizhin \*, A. K. Nikitin\*, N. I. Golovtsov<sup>†</sup>, A. P. Loginov<sup>†</sup>, T. A. Ryjova<sup>†</sup>

\* Scientific and Technological Center for Unique Instrumentation, RAS  
Butlerov str., 15, Moscow, 117342, Russia

<sup>†</sup> General Physic Department  
Peoples' Friendship University of Russia  
Miklukho-Macklaya str., 6, Moscow, 117198, Russia

Development of surface plasmon (SP) spectroscopy method in teraHertz (THz) spectral range ( $30\text{--}100\text{ cm}^{-1}$  or  $0.1\text{--}10\text{ THz}$ ) utilizing free-electron laser (FEL) radiation is described in the paper. The following issues are considered in it: 1) methods for THz SP excitation by bulk radiation, as well as the ways of measuring their characteristics; 2) experimental results on THz SP excitation on aluminum and copper surfaces by FEL radiation with wavelength of 110 and 150  $\mu\text{m}$ ; 3) the procedure for the sample material THz dielectric constant calculation using the measured SP complex refractive index; 4) a number of methods implementing THz SP spectroscopy technique.