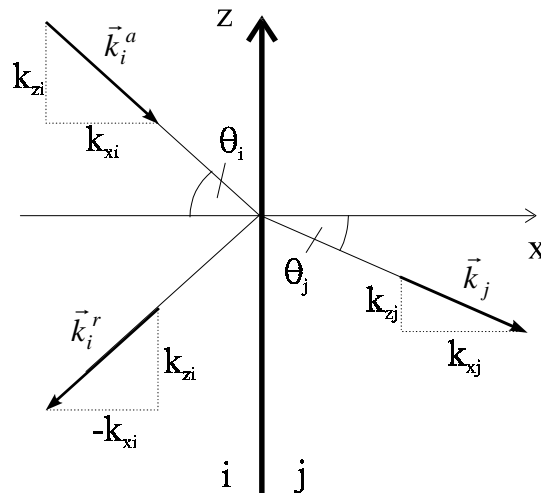


## 2. Optik an Vielfachschichten

In diesem Kapitel werden die für diese Arbeit wesentlichen Inhalte der Optik dünner Schichten beschrieben. Hierbei stellt der Transfer-Matrix-Formalismus die zentrale Methode dar, mit der die theoretische Beschreibung von Reflexions- und Transmissionseigenschaften beliebiger Vielfachschichtsysteme gelingt. Aus ihr gehen die verschiedenen Resonanzphänomene, wie geführte und quasi-geführte optische Wellen oder die Oberflächen-Plasmon Resonanz hervor. Darüber hinaus bieten die Transfer-Matrizen die Möglichkeit die optischen Felder in einer Vielfachschicht zu berechnen sowie kontinuierliche Brechungsindexprofile zu behandeln.

### 2.1. Die 2×2-Transfer-Matrix eines Vielfachschichtsystems



**Abb. 2.1:** Geometrie bei Reflexion und Brechung von Lichtwellen an einer ebenen Grenzfläche  $x = 0$ .

Ausgangspunkt der Betrachtung ist der Übergang einer ebenen Lichtwelle von einem Medium  $i$  in ein Medium  $j$ . Dieser Übergang wird durch die Fresnel'schen Formeln beschrieben, welche die reflektierte bzw. transmittierte Feldamplitude mit der einfallenden Amplitude verknüpfen. Betrachtet man gemäß Abbildung 2.1 eine unter dem Winkel  $\theta_i$  einfallende Welle im Medium  $i$ , so gilt für die Normalkomponente des Wellenzahlvektors  $\vec{k}$ :

$$k_{xi} = \sqrt{k_0^2 \tilde{n}_i^2 - k_{zi}^2} = \sqrt{k_0^2 \tilde{n}_i^2 - k_0^2 n_{\text{eff}}^2} \quad (2.1a)$$

wobei  $k_0 = 2\pi/\lambda$  der Betrag des Vakuumwellenvektors und  $\tilde{n}_i = n_i + i\kappa_i$  der im allgemeinen komplexe Brechungsindex des Mediums ist. Für transparente Dielektrika ist  $\kappa_i \approx 0$  und der Brechungsindex entspricht der reellen Brechzahl:  $\tilde{n}_i = n_i$ .

Die Tangentialkomponente  $k_{zi}$  bzw. der über  $n_{\text{eff}} = k_{zi}/k_0$  definierte effektive Brechungsindex bleibt beim Übergang in das angrenzende Medium erhalten, was dem Snellius'schen Brechungsgesetz entspricht:

$$k_{zi} = n_i k_0 \sin \theta_i = n_j k_0 \sin \theta_j = k_{zj}$$

$$\Leftrightarrow n_i \sin \theta_i = n_j \sin \theta_j = n_{\text{eff}}$$

Für die Fresnel'schen Reflexions- und Transmissionskoeffizienten  $r_{ij}$  bzw.  $t_{ij}$  gilt polarisationsabhängig:

$$r_{ij}^s = \frac{k_{xi} - k_{xj}}{k_{xi} + k_{xj}} \quad t_{ij}^s = \frac{2k_{xi}}{k_{xi} + k_{xj}} \quad \text{für eine s-polarisierte Welle}$$

( $\perp$  Einfallsebene)

und

$$r_{ij}^p = \frac{n_j^2 k_{xi} - n_i^2 k_{xj}}{n_j^2 k_{xi} + n_i^2 k_{xj}} \quad t_{ij}^p = \frac{2n_i n_j k_{xi}}{n_j^2 k_{xi} + n_i^2 k_{xj}} \quad \text{für eine p-polarisierte Welle.}$$

( $\parallel$  Einfallsebene)

Diese Darstellung der Fresnel'schen Formeln über die  $k_x$ -Komponenten ist besonders vorteilhaft bei der Berechnung der Reflexion bzw. Transmission in Computersimulationen, da bei vorgegebenen  $n_{\text{eff}}$  lediglich die  $k_x$  der einzelnen Schichten gemäß Gleichung (2.1a) berechnet werden und somit die explizite Umrechnung der jeweiligen Ausbreitungswinkel  $\theta_i$  erspart bleibt.

Die Berechnung der Lichtausbreitung in optisch anisotropen Schichten gestaltet sich wesentlich schwieriger und wird in dieser Arbeit nur im Spezialfall optisch einachsiger Schichten behandelt. Die optisch einachsige Symmetrie läßt sich häufig bei dünnen Polymerfilmen (z.B. bei Polyimiden) beobachten, wobei die optische Achse senkrecht zur Schichtebene steht. In diesem Fall wird die Richtungsabhängigkeit des Brechungsindexes über den dielektrischen Tensor  $\hat{\epsilon}$  beschrieben. Für ein uniaxiales System mit der optischen Achse in  $x$ -Richtung hat  $\hat{\epsilon}$  folgende Gestalt:

$$\hat{\epsilon} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \epsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_z \end{bmatrix} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \tilde{n}_e^2 & 0 & 0 \\ 0 & \tilde{n}_o^2 & 0 \\ 0 & 0 & \tilde{n}_o^2 \end{bmatrix}.$$

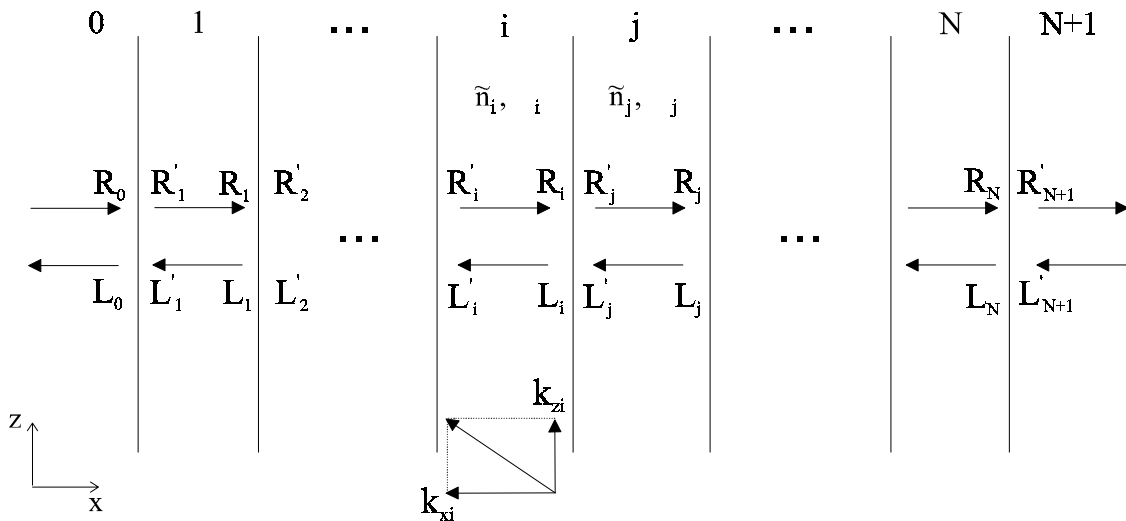
Hierbei bezeichnet  $\tilde{n}_o$  den ordentlichen und  $\tilde{n}_e$  den außerordentlichen Brechungsindex. Für senkrecht zur Schichtebene schwingende elektrische Feldanteile ist mit dem außerordentlichen und für in der Schichtebene schwingende Anteile mit dem ordentlichen Brechungsindex zu rechnen. Da bei s-polarisiertem Licht das elektrische Feld in der Schichtebene liegt, darf weiterhin isotrop mit dem ordentlichen Brechungsindex gerechnet werden und die Fresnel'schen Reflexions- und Transmissionskoeffizienten bleiben unverändert. Ist die einfallende Welle p-polarisiert, so existieren sowohl senkrecht als auch parallel zur Schichtebene schwingende elektrische Feldanteile, was zur Folge hat, daß nun beide Brechungsindizes von Relevanz sind. Für p-polarisiertes Licht lauten die Fresnel-Koeffizienten nun:

$$r_{ij}^p = \frac{n_{o,j}^2 k_{xi} - n_{o,i}^2 k_{xj}}{n_{o,j}^2 k_{xi} + n_{o,i}^2 k_{xj}} \quad t_{ij}^p = \frac{2n_{o,i} n_{o,j} k_{xi}}{n_{o,j}^2 k_{xi} + n_{o,i}^2 k_{xj}}.$$

Dabei berechnen sich die  $x$ -Komponenten des Wellenzahlvektors nun um den Faktor  $\tilde{n}_{o,i}/\tilde{n}_{e,i}$  erweitert:

$$k_{xi} = \frac{\tilde{n}_{o,i}}{\tilde{n}_{e,i}} \sqrt{\tilde{n}_{e,i}^2 k_0^2 - k_{zi}^2} = \frac{\tilde{n}_{o,i}}{\tilde{n}_{e,i}} k_0 \sqrt{\tilde{n}_{e,i}^2 - n_{\text{eff}}^2} \quad (2.1b)$$

Eine ausführliche Behandlung optisch anisotroper Medien mit uniaxialer Symmetrie befindet sich im Anhang (Kap. 10).



**Abb. 2.2:** Schema eines (N+2)-Schichtsystems bestehend aus N Schichten und den beiden Halbräumen 0 und N+1.

Um die stationäre Helmholtz-Gleichung für ein Schichtsystem gemäß Abbildung 2.2 zu erfüllen, setzt man als Lösung in jeder Schicht für das elektrische Feld eine Linearkombination aus in positiver und negativer  $x$ -Richtung laufenden ebenen Wellen an:

$$E_i(x) = R_i e^{ik_{xi}x} + L_i e^{-ik_{xi}x}.$$

Hierbei steht  $R_i$  für die Amplituden der in positive  $x$ -Richtung (rechts) laufenden und  $L_i$  für die Amplituden der in negative  $x$ -Richtung (links) laufenden Anteile. Für die s-polarisierte TE-Welle steht der elektrische Feldvektor senkrecht zur Einfallsebene und hat somit nur eine Komponente in  $y$ -Richtung, wohingegen der elektrische Feldvektor der p-polarisierten TM-Welle in der Einfallsebene liegt und somit  $x$ - und  $z$ -Komponenten hat. Gemäß Abbildung 2.2 seien die Teilwellen rechts einer Grenzfläche  $i$ - $j$  gestrichen markiert. Ausgehend von den Stetigkeitsbedingungen läßt sich eine lineare Abbildung herleiten [13], welche die Amplitudenvektoren  $\begin{pmatrix} R_i \\ L_i \end{pmatrix}$  und  $\begin{pmatrix} R'_j \\ L'_j \end{pmatrix}$  links und rechts einer Grenzfläche miteinander verknüpft:

$$\begin{pmatrix} R_i \\ L_i \end{pmatrix} = \frac{1}{t_{ij}} \begin{bmatrix} 1 & r_{ij} \\ r_{ij} & 1 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} R'_j \\ L'_j \end{pmatrix} = \mathbf{D}_{ij} \begin{pmatrix} R'_j \\ L'_j \end{pmatrix} \quad (2.2)$$

Hier bezeichnet  $\mathbf{D}_{ij}$  die Übergangsmatrix für den Übergang von Schicht  $i$  nach  $j$ ,  $r_{ij}$  und  $t_{ij}$  die oben aufgeführten Fresnel-Koeffizienten. Die Amplitudenvektoren  $\begin{pmatrix} R'_i \\ L'_i \end{pmatrix}$  und  $\begin{pmatrix} R_i \\ L_i \end{pmatrix}$  links und rechts innerhalb einer Schicht  $i$  unterscheiden sich durch eine Laufphase  $\phi_i$ , die durch die  $x$ -Komponente des Wellenzahlvektors und die Schichtdicke  $d_i$  festgelegt ist:

$$\phi_i = k_{xi} d_i = k_0 \sqrt{\tilde{n}_i^2 - n_{\text{eff}}^2} \cdot d_i \quad (2.3)$$

Diese Phase wird durch die Phasenmatrix  $\mathbf{P}_i$  der Schicht  $i$  berücksichtigt:

$$\begin{pmatrix} R'_i \\ L'_i \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} e^{-i\phi_i} & 0 \\ 0 & e^{i\phi_i} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} R_i \\ L_i \end{pmatrix} = \mathbf{P}_i \begin{pmatrix} R_i \\ L_i \end{pmatrix} \quad (2.4)$$

Aus Gleichung (2.2) und (2.4) folgt somit:

$$\begin{pmatrix} R'_i \\ L'_i \end{pmatrix} = \mathbf{P}_i \begin{pmatrix} R_i \\ L_i \end{pmatrix} = \mathbf{P}_i \mathbf{D}_{ij} \begin{pmatrix} R'_j \\ L'_j \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

Für ein  $(N+2)$ -Schichtsystem bestehend aus zwei Halbräumen und  $N$  Zwischenschichten läßt sich somit der Amplitudenvektor des linken Halbraums mit dem Amplitudenvektor des rechten Halbraums über eine Matrix  $\mathbf{M}$  in Beziehung setzen:

$$\begin{pmatrix} R_0 \\ L_0 \end{pmatrix} = \mathbf{M} \cdot \begin{pmatrix} R'_{N+1} \\ L'_{N+1} \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} R'_{N+1} \\ L'_{N+1} \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

Die Gesamttransfermatrix  $\mathbf{M}$  des Schichtsystems ergibt sich aus dem Produkt der einzelnen Phasen- und Übergangsmatrizen:

$$\mathbf{M} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} = \mathbf{D}_{01} \prod_{i=1}^N \mathbf{P}_i \mathbf{D}_{i,i+1} \quad (2.7)$$

Aus dieser charakteristischen  $2 \times 2$ -Matrix lassen sich für beliebige homogene Schichtsysteme sowohl Reflexions- und Transmissionskoeffizienten als auch Ausbreitungskonstanten geführter Wellen berechnen. Die verschiedenen in dieser Arbeit aufgegriffenen Anwendungsmöglichkeiten der Matrix-Methode werden im weiteren Verlauf dieses Kapitels vorgestellt.

## 2.2. Reflexions- und Transmissionskoeffizienten von Vielfachschichten

Zur Berechnung der Reflexions- und Transmissionskoeffizienten betrachtet man gemäß Abbildung 2.2 eine vom linken Halbraum auf das Schichtsystem einfallende Welle mit der Amplitude  $R_0$  und setzt die vom rechten Halbraum auftreffende Amplitude gleich Null, d.h.  $L'_{N+1} = 0$ . Aus Gleichung (2.6) ergeben sich damit folgende Beziehungen zwischen den Amplituden des linken und des rechten Halbraums:

$$\begin{aligned} R_0 &= M_{11} \cdot R'_{N+1} \\ L_0 &= M_{21} \cdot R'_{N+1} \end{aligned}$$

Für den Reflexionskoeffizienten folgt daraus:

$$r := \frac{L_0}{R_0} = \frac{M_{21}}{M_{11}} \quad (2.8)$$

Der Transmissionskoeffizient ergibt sich dagegen zu:

$$t := \frac{R'_{N+1}}{R_0} = \frac{1}{M_{11}} \quad (2.9)$$

Insbesondere eignet sich diese Matrix-Methode zur Beschreibung der bei der Reflexion am Vielfachschichtsystem auftretenden Resonanzphänomene, wie z.B. die in dieser Arbeit behandelten Oberflächen-Plasmon oder Leckwellen Resonanzen. Diese Resonanzphänomene treten in der Praxis im Reflexionsspektrum einer Schichtstruktur in Erscheinung. Für die dem Experiment zugängliche Reflektivität  $R$  eines Schichtsystems läßt sich mit dem Matrix-Formalismus der theoretische Ausdruck gewinnen:

$$R = |r|^2 = \left| \frac{M_{21}}{M_{11}} \right|^2 \quad (2.10)$$

Hierbei hängt  $R$  vom Einfallswinkel, der Wellenlänge des verwendeten Lichtes sowie von den optischen Parametern ( $d_i$  und  $\tilde{n}_i$ ) der einzelnen Schichten ab. Durch eine Anpassung des theoretischen Ausdrucks für  $R$  an gemessene Reflexionsdaten lassen sich somit Schichtdicken und Brechungsindex der Schichten als Parameter der besten Anpassung bestimmen.

### 2.3. Geführte Wellen in Schichtsystemen

In einem beliebigen Schichtsystem liegt Wellenführung vor, wenn die zum Schichtsystem hinlaufenden Feldanteile verschwinden und die hinauslaufenden Anteile exponentiell abfallen, d.h. evaneszent sind.[14,15] Setzt man in Gleichung (2.6) die zum Schichtsystem hinlaufenden Amplituden  $R_0$  und  $L'_{N+1}$  gleich Null, dann gilt:

$$\begin{aligned} 0 &= M_{11} \cdot R'_{N+1} \\ L_0 &= M_{21} \cdot R'_{N+1} \end{aligned}$$

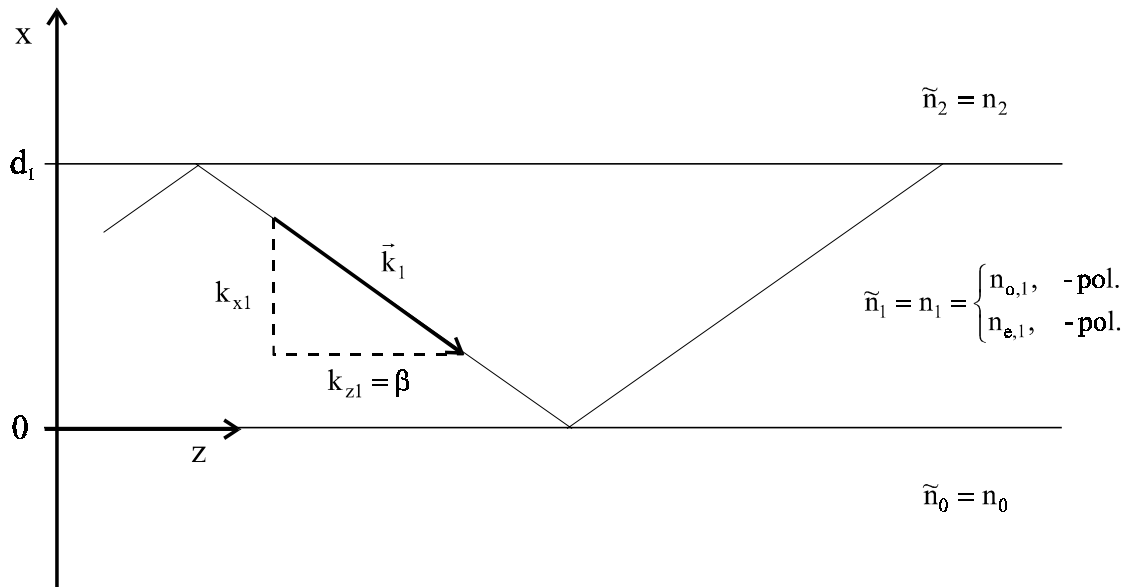
Hieraus folgt, daß Wellenführung offenbar nur dann möglich ist, wenn das Matrixelement  $M_{11}$  verschwindet:

$$M_{11} = 0 \quad (2.11)$$

$M_{11}$  ist bei gegebener Schichtkonfiguration ( $d_i, \tilde{n}_i$ ) nur eine Funktion von  $n_{\text{eff}}$ . Damit lassen sich aus den Nullstellen des Matrixelements die Ausbreitungskonstanten  $\beta = k_z = k_0 n_{\text{eff}}$  aller ausbreitungsfähigen Moden einer beliebigen Schichtstruktur berechnen. Liegt eine Wellenleiterstruktur vor, so erhält man für die gefundenen Lösungen innerhalb der Schichten oszillierende und in den Außenräumen evaneszente Felder. Gleichung (2.11) stellt eine Eigenwertgleichung dar und die Lösungen  $\beta$  die dazugehörigen Eigenwerte. Die zu jedem Eigenwert gehörige Eigenfunktion ergibt sich als Feldverteilung durch Lösen der Helmholtz-Gleichung.

Gleichung (2.11) kann allgemein als Bedingung für Wellenleitung in beliebigen Strukturen aufgefaßt werden. Im Falle planarer Schichtwellenleiter mit Stufenindex ist

sie äquivalent zu der bekannten Transversalen Resonanzbedingung (TRB), eine Eigenwertgleichung, die sich durch Lösen der Wellengleichung unter Berücksichtigung der Stetigkeitsbedingungen an den Grenzen ergibt.[16]



**Abb. 2.3:** Geometrie eines planaren Schichtwellenleiters

Die einfachste Wellenleiterstruktur bildet ein 3-Schichtsystem bestehend aus einer dielektrischen Schicht und zwei dielektrischen Halbräumen, wobei die Brechzahl der dielektrischen Schicht größer ist als die der umgebenden Medien. Im folgenden wird die TRB für einen anisotropen Schichtwellenleiter aus der Matrix-Methode berechnet. Die Geometrie eines planaren Schichtwellenleiters ist in Abbildung 2.3 skizziert. Die reell angenommenen Brechungsindizes der umgebenden Halbräume seien  $n_0$  (Substrat) und  $n_2$  (Cover). Die Wellenleiterschicht der Dicke  $d_1$  sei doppelbrechend mit einer senkrecht zur Schichtebene stehenden optischen Achse und den Brechungsindizes  $n_{o,1}$  und  $n_{e,1}$ . Berechnet man nun die Gesamtmatrix dieses 3-Schichtsystems nach Gleichung (2.7), so erhält man für das Matrixelement  $M_{11}$ :

$$M_{11} = (\mathbf{D}_{01} \mathbf{P}_1 \mathbf{D}_{12})_{11} = \frac{1}{t_{01} t_{12}} \cdot (e^{-i\phi_1} + r_{01} r_{12} e^{i\phi_1}),$$

wobei die Fresnel-Koeffizienten sowie die Laufphase  $\phi_1$  jeweils getrennt für s- und p-Polarisation einzusetzen sind.

$M_{11} = 0$  liefert somit jeweils die Gleichung:

$$k_{x1}d_1 = \arctan\left(\frac{\frac{-ik_{x0}}{k_{x1}} + \frac{-ik_{x2}}{k_{x1}}}{1 + \frac{k_{x0}k_{x2}}{k_{x1}^2}}\right) + m\pi \quad \text{für s-Polarisation,}$$

$$k_{x1}d_1 = \arctan\left(\frac{\frac{-in_{o,1}^2 k_{x0}}{n_0^2 k_{x1}} + \frac{-in_{o,1}^2 k_{x2}}{n_2^2 k_{x1}}}{1 + \frac{n_{o,1}^4 k_{x0}k_{x2}}{n_0^2 n_2^2 k_{x1}^2}}\right) + m\pi \quad \text{für p-Polarisation.}$$

Hierbei berücksichtigt das Glied  $m\pi$  ( $m = 0,1,2,\dots$ ) die Periodizität der Tangensfunktion. Unter Verwendung der Beziehung:

$$\arctan\left(\frac{x+y}{1-xy}\right) = \arctan x + \arctan y$$

für die Arkustangens-Funktion ergibt sich:

$$k_{x1}d_1 - \arctan\left(\frac{-ik_{x0}}{k_{x1}}\right) - \arctan\left(\frac{-ik_{x2}}{k_{x1}}\right) = m\pi \quad (m = 0,1,2,\dots)$$

für s-Polarisation und:

$$k_{x1}d_1 - \arctan\left(\frac{-in_{o,1}^2 k_{x0}}{n_0^2 k_{x1}}\right) - \arctan\left(\frac{-in_{o,1}^2 k_{x2}}{n_2^2 k_{x1}}\right) = m\pi \quad (m = 0,1,2,\dots)$$

für p-Polarisation.

Schreibt man nun die  $k_{xi}$  ( $i = 0,1,2$ ) nach den Gleichungen (2.1a) und (2.1b) für s- bzw. p-Polarisation, so erhält man die TRB eines Schichtwellenleiters mit optisch einachsiger Anisotropie für s-Polarisation:

$$d_1 k_0 \sqrt{n_{o,1}^2 - n_{\text{eff}}^2} - \arctan\left(\frac{\sqrt{n_{\text{eff}}^2 - n_0^2}}{\sqrt{n_{o,1}^2 - n_{\text{eff}}^2}}\right) - \arctan\left(\frac{\sqrt{n_{\text{eff}}^2 - n_2^2}}{\sqrt{n_{o,1}^2 - n_{\text{eff}}^2}}\right) = m\pi \quad (2.12a)$$



und für p-Polarisation:

$$d_1 k_0 \frac{n_{o,1}}{n_{e,1}} \sqrt{n_{e,1}^2 - n_{\text{eff}}^2} - \arctan \left( \frac{n_{o,1}^2}{n_0^2} \cdot \frac{\sqrt{n_{\text{eff}}^2 - n_0^2}}{\frac{n_{o,1}}{n_{e,1}} \sqrt{n_{e,1}^2 - n_{\text{eff}}^2}} \right) - \arctan \left( \frac{n_{o,1}^2}{n_2^2} \cdot \frac{\sqrt{n_{\text{eff}}^2 - n_2^2}}{\frac{n_{o,1}}{n_{e,1}} \sqrt{n_{e,1}^2 - n_{\text{eff}}^2}} \right) = m\pi$$

(12b)

Diese Resonanzbedingung stellt eine Eigenwertgleichung dar, die auf numerischem Wege zu lösen ist. Die einzelnen Eigenwerte  $n_{\text{eff}}$  werden der Polarisation entsprechend als  $\text{TE}_m$ -Moden (s-polarisiert) und  $\text{TM}_m$ -Moden (p-polarisiert) bezeichnet, wobei  $m = 0, 1, 2, \dots$  den Modenindex darstellt. In dieser bewährten Darstellung der TRB finden sich die bei der Totalreflexion auftretenden Phasensprünge (Arkustangens-Terme), sowie die der optischen Weglänge entsprechende Phasendifferenz ( $2d_1 k_{x1}$ ) wieder. Diese ergeben bei der strahlenoptischen Betrachtung die gesamte Phasendifferenz zwischen zwei Teilstrahlen und müssen in der Summe  $2m\pi$  ergeben.[16,17,18]

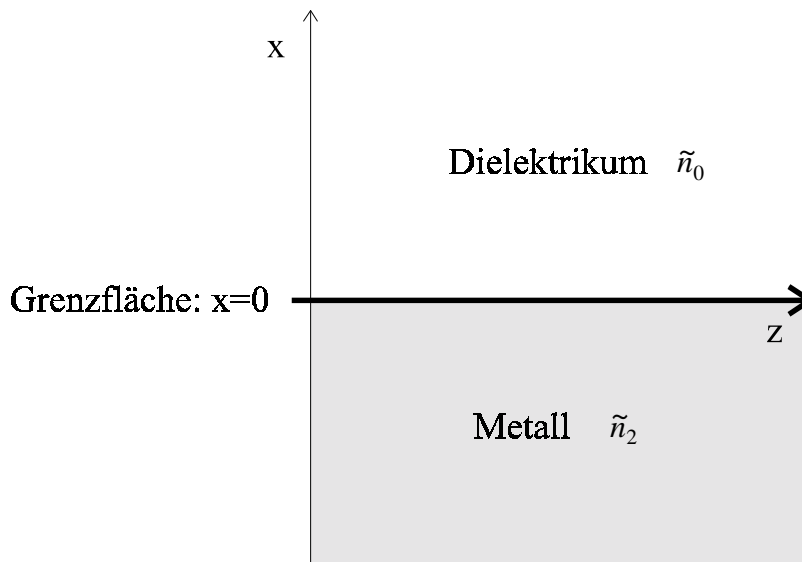
Wie an diesem Beispiel gezeigt, läßt sich die Bedingung für transversale Resonanz einer Schichtstruktur über den Matrix-Formalismus herleiten. In der Praxis können Wellenleiterstrukturen aus beliebig vielen Schichten bestehen, welche darüber hinaus noch einen nicht immer zu vernachlässigenden Imaginärteil des Brechungsindex haben können, so daß die Transversale Resonanzbedingung in ihrer Darstellung noch umfangreicher wird.

## 2.4. Oberflächen-Plasmonen

In der optischen Sensorik wird häufig Gebrauch von dem Phänomen der grenzflächengebundenen Oberflächenpolaritonen gemacht.[1] Hierbei stellt das Oberflächen-Plasmon Polariton eine Erweiterung der sogenannten Evaneszentwellen-Spektroskopie dar. In der Integrierten Optik ist die Oberflächen-Plasmon Resonanz (SPR=Surface Plasmon Resonance) sehr nützlich bei der optischen Charakterisierung dünner Filme über die Methode der gedämpften Totalreflexion (ATR=Attenuated Total Reflection).[10,19,20] In der Anwendung wird die Sensitivität des Plasmons gegenüber Brechungsindexänderungen oder sich bildenden Adsorbatschichten im angrenzenden Medium für zahlreiche Sensoren im Bereich der Refraktometrie, der Gas- und Wasseranalytik und der Biosensorik ausgenutzt.[21-23]

Das Oberflächen-Plasmon ist eine Oberflächenwelle, die entlang einer Metall-Dielektrikum Grenzfläche propagiert und in beiden Richtungen normal zur Grenzfläche evaneszent ist, d.h. exponentiell abklingt. Die Resonanzbedingung bzw. Dispersionsrelation der Oberflächen-Plasmon Resonanz läßt sich aus der Gleichung für transversale

Resonanz eines 3-Schichtsystems ableiten, wenn man den Spezialfall einer verschwindenden Schichtdicke ( $d_1 = 0$ ) betrachtet und einen metallischen Halbraum annimmt.[24,25] Gemäß Abbildung 2.4 sei das Koordinatensystem so gewählt, daß die Metall-Dielektrikum Grenzfläche in der  $yz$ -Ebene liegt. Der Index 0 steht für das Dielektrikum und der Index 2 für das Metall.



**Abb. 2.4:** Geometrie bei der Betrachtung zweier angrenzender Halbräume aus Metall ( $x < 0$ ) und Dielektrikum ( $x > 0$ ).

Die Bedingung  $M_{11} = 0$  liefert mit  $d_1 = 0$ :

$$1 + r_{01} r_{12} = 0$$

Einsetzen der Fresnel'schen Reflexionskoeffizienten für s-Polarisation führt zu der Beziehung

$$k_{x0} + k_{x2} = 0$$

Unter Verwendung von Gleichung (2.1a) ergibt sich mit  $k_{z0} = k_{z2} = \beta$  der folgende Widerspruch:  $\tilde{n}_0^2 = \tilde{n}_2^2$ .

Das bedeutet also, daß keine TE-Oberflächenwelle als Lösung existiert.

Für p-Polarisation erhält man aus der Bedingung für Resonanz dagegen die Beziehung:

$$\frac{k_{x0}}{\tilde{n}_0^2} + \frac{k_{x2}}{\tilde{n}_2^2} = 0.$$

Einsetzen der  $k_{x_0}$  und  $k_{x_2}$  nach Gleichung (2.1a) ergibt die Dispersionsrelation für die Oberflächen-Plasmon Resonanz [26]:

$$\tilde{\beta} = k_z = k_0 \sqrt{\frac{\tilde{n}_0^2 \tilde{n}_2^2}{\tilde{n}_0^2 + \tilde{n}_2^2}} \quad (2.13)$$

Wegen des komplexen Brechungsindex  $\tilde{n}_2 = n_2 + i\kappa_2$  des Metalls ist auch die Ausbreitungskonstante  $\tilde{\beta}$  komplex, was eine gedämpfte Ausbreitung der Oberflächenwelle zur Folge hat. Hierbei bestimmt der Imaginärteil von  $\tilde{\beta}$  das Abklingverhalten der Welle entlang der Propagationsrichtung. Typische Werte des komplexen Brechungsindex bei 632.8 nm zweier häufig verwendeter Metalle sind  $\tilde{n}(\text{Ag}) = 0.08 + i4.12$  für Silber und  $\tilde{n}(\text{Au}) = 0.12 + i3.3$  für Gold [26,27], wobei die Werte für  $\tilde{n}$  stark abhängig von Herstellungsprozeß der Metallfilme sind. Die exponentielle Dämpfung der Welle normal zur Grenzfläche ist durch  $e^{-i k_x x}$  gegeben und wird somit durch die entsprechenden  $x$ -Komponenten der  $\vec{k}$ -Vektoren im Metall und im Dielektrikum festgelegt. Für ein typisches polymeres Dielektrikum ( $n_0 \approx 1.5$ ) dringt das evaneszente Feld der Oberflächenwelle etwa 200 nm ( $\approx 1/3$  der Wellenlänge) in die dielektrische Schicht ein. Dagegen beträgt die Eindringtiefe in die Silber- bzw. Goldschicht lediglich 20-30 nm.

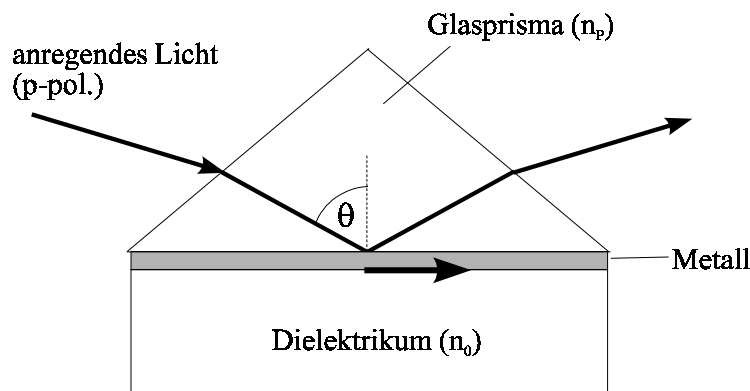
Für  $n_2 \cong 0$  und  $n_0^2 < \kappa_2^2$  wird die Ausbreitungskonstante allerdings rein reell und die Welle kann sich ungedämpft ausbreiten, was für die oben angegebenen Metalle annähernd erfüllt ist. Mit dem reellen Brechungsindex des Dielektrikums ergibt sich für den Realteil der Ausbreitungskonstanten näherungsweise:

$$\beta_r \approx k_0 \sqrt{\frac{n_0^2 (n_2^2 - \kappa_2^2)}{n_0^2 + (n_2^2 - \kappa_2^2)}} > k_0 n_0 \quad (2.14)$$

Da  $\beta_r > k_0 n_0$  gilt, ist eine direkte optische Anregung der Oberflächen-Plasmon Resonanz nicht möglich. Hierzu bedient man sich der Methode der bereits erwähnten abgeschwächten Totalreflexion (ATR). Es kommen zwei wesentliche Anordnungen in Betracht: Die Otto- oder die Kretschmann Geometrie.[10] In beiden Anordnungen wird das anregende Licht über ein Koppelprisma eingestrahlt, an dessen Unterseite es totalreflektiert wird. Die Kopplung mit dem Oberflächen-Plasmon an der äußeren Metallgrenzfläche erfolgt über die evaneszente Welle des Lichtes, sobald die tangential Komponente des  $\vec{k}$ -Vektors so angepaßt ist, daß sie mit dem Realteil der Ausbreitungskonstante des Oberflächen-Plasmens übereinstimmt. Bei der Otto-Geometrie [28,29] wird hierzu die beliebig dicke Metallschicht so nahe an die Unterseite des Prismas gebracht, daß nur noch eine dünne Luftschicht zwischen Prisma und Metall verbleibt. Dabei muß die Dicke der Luftschicht in der Größenordnung der Wellenlänge sein, so daß das evaneszente Feld des totalreflektierten Lichtes noch mit hinreichender Stärke die Metalloberfläche erreichen und dort die gewünschte Oberflächenwelle anregen kann. Im Experiment bereitet die definierte Einstellung des Luftspaltes allerdings einige

Schwierigkeiten. Der Vorteil dieser Anordnung ist im wesentlichen darin zu sehen, daß die Oberflächen-Plasmon Welle auf Volumenproben angeregt werden kann, was bei der zweiten Möglichkeit der Anregung nicht gegeben ist.

Bei der gebräuchlicheren und für diese Arbeit bedeutenden Anordnung, der Kretschmann-Geometrie, wird die Oberflächenwelle auf der Unterseite eines Metallfilms definierter Schichtdicke angeregt.[30,31] Die prinzipielle Anordnung der Kretschmann-Geometrie ist in Abbildung 2.5 dargestellt.



**Abb. 2.5:** Die Kretschmann-Geometrie zur Anregung einer Oberflächen-Plasmon Welle

Auf der Basisseite des Prismas wird eine dünne Metallschicht aufgebracht, auf dessen Unterseite sich die Grenzfläche zum Dielektrikum befindet. Die Schichtdicke für die optimale Anregung des Oberflächen-Plasmons hängt vom Imaginärteil des Brechungsindexquadrates ab und wegen der Dispersion somit auch von der Wellenlänge des anregenden Lichtes.[32] Für Silber und Gold liegen optimale Schichtdicken bei etwa 50 nm ( $\lambda = 632.8$  nm). Das evaneszente Feld des an der Unterseite totalreflektierten Lichtes reicht durch die Metallschicht und regt auf dessen Unterseite das Oberflächen-Plasmon an, falls die zur Grenzfläche parallele Komponente des Wellenzahlvektors mit dem für die Anregung benötigten übereinstimmt. Für den Wellenzahlvektor des Lichtes im Prisma gilt:

$$\vec{k} = k_0 n_p.$$

Die zur Grenzfläche parallele Komponente lautet:

$$k_{\parallel} = k_0 n_p \sin \theta,$$

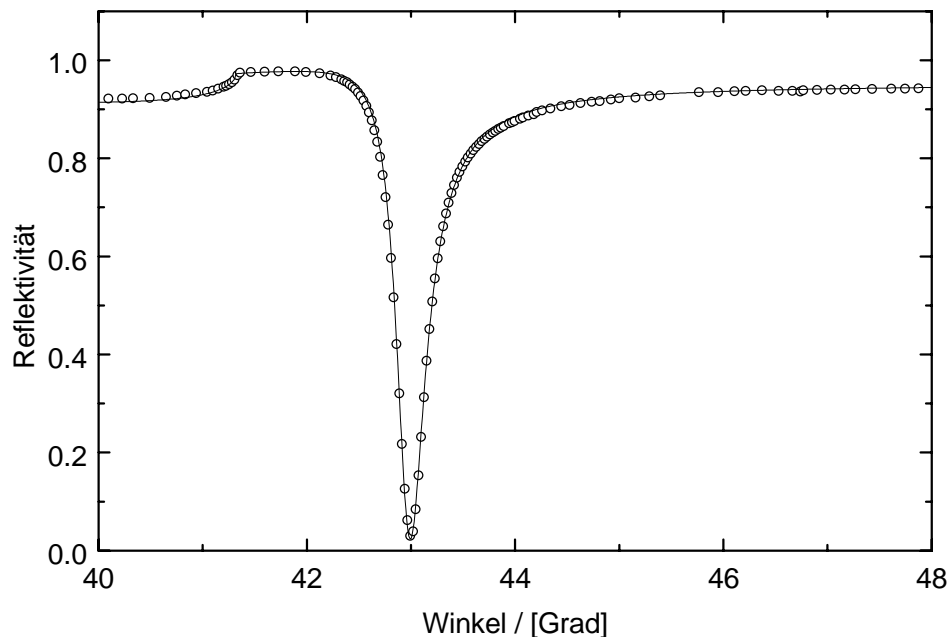
wobei  $\theta$  der Ausbreitungswinkel im Prisma und  $n_p$  der Prismenindex ist.

Die Anpassung des Wellenzahlvektors kann somit durch Einstellung des Ausbreitungswinkels  $\theta$  im Prisma erfolgen. Dazu muß der Brechungsindex des Prismas so gewählt sein, daß die Vergrößerung des  $\vec{k}$ -Vektors durch das Prisma ausreicht, um eine Anregung des Oberflächen-Plasmons unter akzeptablen Winkeln zu ermöglichen. Nach Gleichung (2.14) muß also gelten:

$$k_0 n_p > \operatorname{Re}\{\beta_{\text{SPR}}\} > k_0 n_0,$$

wobei  $n_0$  den Brechungsindex des unter dem Metallfilm befindlichen Dielektrikums darstellt.

Durch Messung der reflektierten Intensität unter Variation des Einfallswinkels erhält man ein sogenanntes ATR-Spektrum, wie es in Abbildung 2.6 für ein mit Silber beschichtetes BK7-Prisma und Luft als Dielektrikum dargestellt ist.

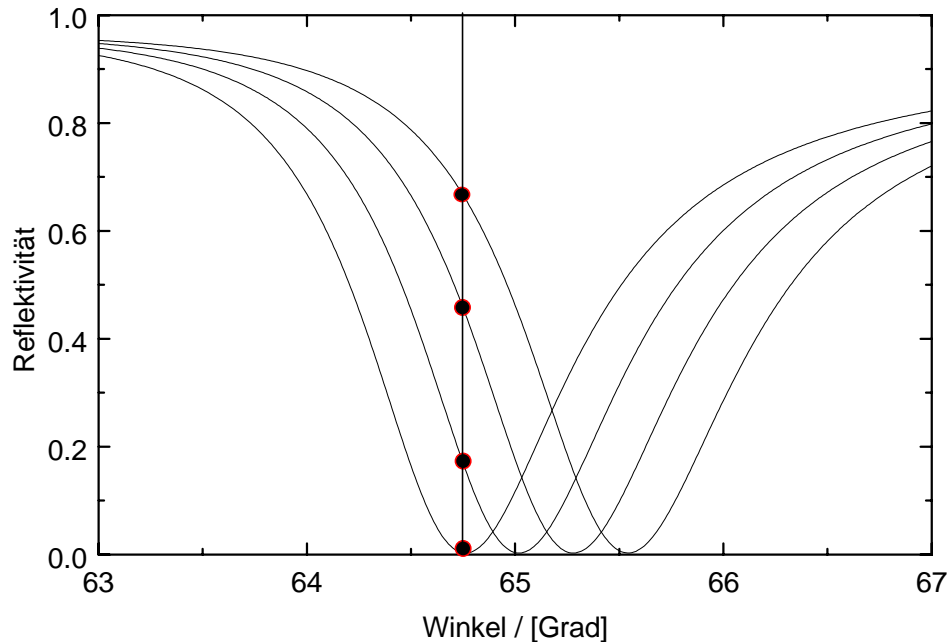


**Abb. 2.6:** Gemessenes ATR-Spektrum einer dünnen Silberschicht (o). Die theoretische Anpassung (—) mit Hilfe der Matrix-Methode ergibt  $d_{\text{Ag}} = 54 \text{ nm}$  und  $\tilde{n}_{\text{Ag}} = 0.078 + i4.05$ .

Im Bereich der Totalreflexion erscheint im Spektrum am Winkel der optimalen Kopplung zwischen Lichtwelle und Oberflächen-Plasmon ein Einbruch der Reflektivität. Hier wird die Totalreflexion geschwächt, die einfallende Lichtwelle ver-

liert ihre Energie an die Oberflächen-Plasmon Welle. Die theoretische Anpassung in Abbildung 2.6 zeigt, daß sich die Spektren mit der in Kapitel 2.2 vorgestellten Theorie sehr gut beschreiben lassen.

Besonders interessant ist das Verhalten der Resonanz für variierende Brechungsindizes des angrenzenden Dielektrikums. Hierzu zeigt Abbildung 2.7 mit der Matrix-Methode berechnete ATR-Spektren für verschiedene Brechungsindizes  $n_0$  des Dielektrikums.



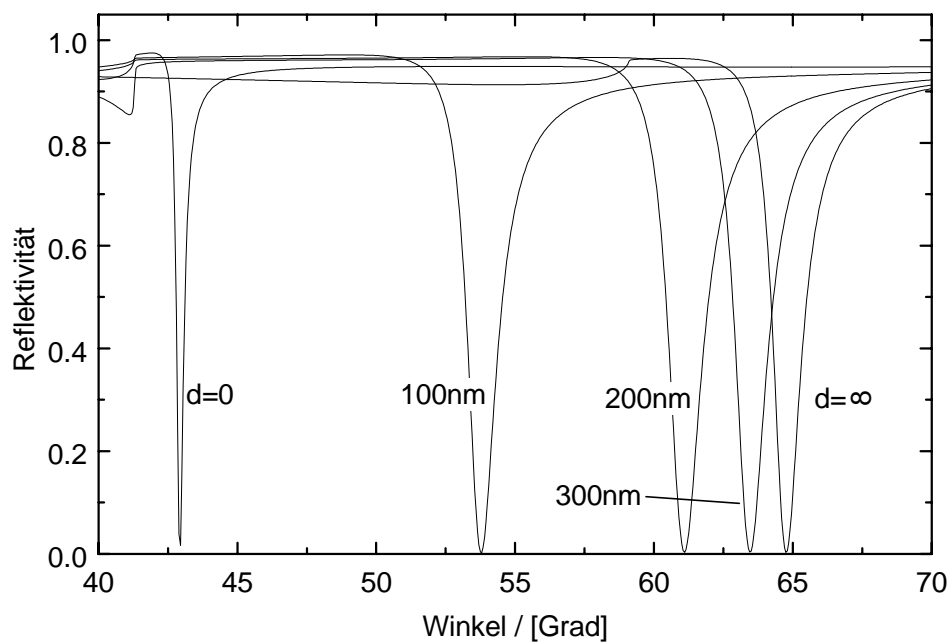
**Abb. 2.7:** Verschiebung der Oberflächen-Plasmon Resonanz zu größeren Winkeln bei Brechungsindexerhöhung des angrenzenden Dielektrikums um jeweils  $\Delta n_0 = 0.0025$ . Die Markierungen verdeutlichen den Anstieg der Reflektivität unter festem Beobachtungswinkel.

Steigende Indizes bewirken eine deutliche Verschiebung der Oberflächen-Plasmon Resonanz zu größeren Winkeln., d.h. zu größeren Ausbreitungskonstanten  $\beta_r$ . Bezeichnenderweise bleibt dabei die Form der Resonanz (Tiefe und Halbwertsbreite) erhalten. Die Verschiebung zu größeren Ausbreitungskonstanten ergibt sich direkt aus Gleichung (2.14), die den Zusammenhang zwischen  $\beta_r$  und  $n_0$  wiedergibt. Mit  $n_0^2 \ll |n_2^2 - \kappa_2^2|$ , was für die gebräuchlichen Metalle Silber und Gold sehr gut erfüllt ist, folgt ein näherungsweise linearer Zusammenhang zwischen  $\beta_r$  und  $n_0$  und somit auch zwischen  $\sin\theta$  und  $n_0$ . Speziell gilt dann für kleine Änderungen:  $d\theta \sim dn_0$ . Die Beobachtung der Reflektivität unter einem festen in der Resonanz gelegenen Winkel  $\theta_0$  führt

bei einem Brechungsindexanstieg zu einer Erhöhung der Reflektivität, wie in Abbildung 2.7 durch die Markierungen verdeutlicht.

Über die zeitliche Aufzeichnung der Reflektivität unter festem Winkel läßt sich die Dynamik von Brechungsindexänderungen studieren. Diese Sensitivität der Oberflächen-Plasmon Resonanz gegenüber Brechungsindexänderungen bietet besonders im Bereich der optischen Sensorik ein Feld für zahlreiche Anwendungen und ist für diese Arbeit von zentraler Bedeutung.

Ein weiterer bemerkenswerter Effekt kommt zum Tragen, wenn das direkt angrenzende Dielektrikum eine Zwischenschicht darstellt und die Schichtdicke in der Größenordnung der Eindringtiefe des evaneszenten Plasmon-Feldes liegt. Dann ragt das evaneszente Feld bis in den dahinter liegenden Halbraum hinein und die Winkellage der Resonanz wird stark abhängig von der Schichtdicke des Dielektrikums. Dies verdeutlicht Abbildung 2.8, in der die Winkellage der Oberflächen-Plasmon Resonanz für verschiedene Schichtdicken des Dielektrikums dargestellt ist.



**Abb. 2.8:** Winkellage der Oberflächen-Plasmon Resonanz für verschiedene Schichtdicken des angrenzenden Dielektrikums. Die Berechnung der Resonanzen erfolgte für ein BK7-Anregungsprisma mit  $n_p = 1.5151$ , einer 50 nm Silberschicht mit  $\tilde{n}_{Ag} = 0.085 + i4.12$  und einem Dielektrikum mit  $n_{Diel.} = 1.3$  ( $\lambda = 632.8$  nm).

Ausgehend von der Winkellage für  $d = 0$  verschiebt sich die Oberflächen-Plasmon Resonanz mit zunehmenden Schichtdicken zu größeren Winkeln und konvergiert für  $d \rightarrow \infty$  gegen die Resonanz-Winkellage, die für den dielektrischen Halbraum zutrifft. Beachtet man, daß sich die Resonanz von  $d = 0$  bis  $d = 300$  nm um etwa 20 Grad im Winkelspektrum verschiebt, so ergeben sich hier höchst interessante Anwendungen für die Schichtdickenbestimmung im Nanometerbereich.[10,19] So macht man sich diese hohe Schichtdickenempfindlichkeit beispielsweise in der Immunosensorik zu Nutze.[33] Ferner lassen sich durch eine zeitliche Messung der Resonanzlage im Winkelspektrum, z.B. mit einer CCD Zeilen-Kamera, kontinuierliche Dickenzunahmen während der Herstellung dielektrischer Schichten in Echtzeit aufzeichnen. Dies gilt natürlich nur für kleinere Schichtdicken, die im Bereich der Eindringtiefe des evaneszenten Plasmon-Feldes liegen und somit die Resonanzlage noch deutlich von derjenigen für  $d \rightarrow \infty$  abweicht. Für das in Abbildung 2.8 gezeigte Beispiel ist der Bereich auf Schichtdicken kleiner als 400 nm beschränkt. Bei größeren Dicken der dielektrischen Schicht reicht das evaneszente Feld des Plasmons kaum noch in den dahinter liegenden Halbraum hinein und die Lage der Resonanz konvergiert gegen den Winkel für  $d \rightarrow \infty$ . Schließlich geht die Information über die Schichtdicke verloren, da das Feld des Plasmons die zweite Grenzfläche der Schicht nicht mehr ertastet.

Die genaue Bestimmung der Dicke wird jedoch wieder möglich, wenn die Schicht eine bestimmte Abschneidedicke von etwa  $\lambda/2$  übersteigt. Dann kommt es in der betrachteten Konfiguration zur Anregung sogenannter Leckwellen Resonanzen, aus denen wieder die Schichtdicke hervorgeht. Bei diesen Resonanzen handelt es sich um quasi-geführte Moden, die sich in der dielektrischen Schicht ausbreiten und als Leckmoden oder Leckwellen bezeichnet werden. Sie bilden zusammen mit der Oberflächen-Plasmon Resonanz die Basis der sogenannten Metallfilm verstärkten Leckwellenspektroskopie und werden im folgenden Abschnitt eingehend behandelt.

## 2.5. Metallfilm verstärkte Leckwellenspektroskopie

Ausbreitungsfähige Moden eines Lichtwellenleiters zeichnen sich dadurch aus, daß die Ausbreitungskonstante  $\beta$  reell ist und die Ausbreitung abgesehen von geringfügigen Absorptionsverlusten ungedämpft erfolgt. In bestimmten Schichtkonfigurationen existieren jedoch Modentypen, bei denen sowohl Wellenführung als auch Abstrahlung auftritt, die Ausbreitungskonstante also komplex ist. Hierzu betrachtet man wie beim planaren Wellenleiter ein System aus einer dielektrischen Schicht und zwei dielektrischen Halbräumen, wobei der Brechungsindex des Substrats ( $n_0$ ) nun größer ist als derjenige der dielektrischen Schicht ( $n_1$ ), so daß insgesamt gilt:

$$n_0 > n_1 > n_2.$$



In diesem System kann nun lediglich von Medium 1 zu Medium 2 Totalreflexion erfolgen. An der Grenzfläche zum Substrat tritt dagegen immer die normale Reflexion mit einem Phasensprung von  $\pi$  auf und es wird Energie in das Substrat abgestrahlt. Damit treten also auch ohne Absorption in den Medien Verluste auf, was eine komplexe Ausbreitungskonstante  $\tilde{\beta}$  zur Folge hat. Diese quasi geführten Moden bezeichnet man als Leckmoden oder Leckwellen. Unter Ausnutzung des Zick-Zack-Modells, eines strahlenoptischen Modells zur Betrachtung planarer Wellenleiter, läßt sich eine genäherte Dispersionsrelation für den experimentell zugänglichen Realteil  $k_0 n_{\text{eff}}$  der Ausbreitungskonstanten von Leckmoden bestimmen.[34] Die exakte Dispersionsrelation für Leckwellen als Funktion der komplexen Ausbreitungskonstanten folgt wie in Kapitel 2.3 beschrieben aus der allgemeinen Bedingung für transversale Resonanz in Gleichung (2.11).[35]

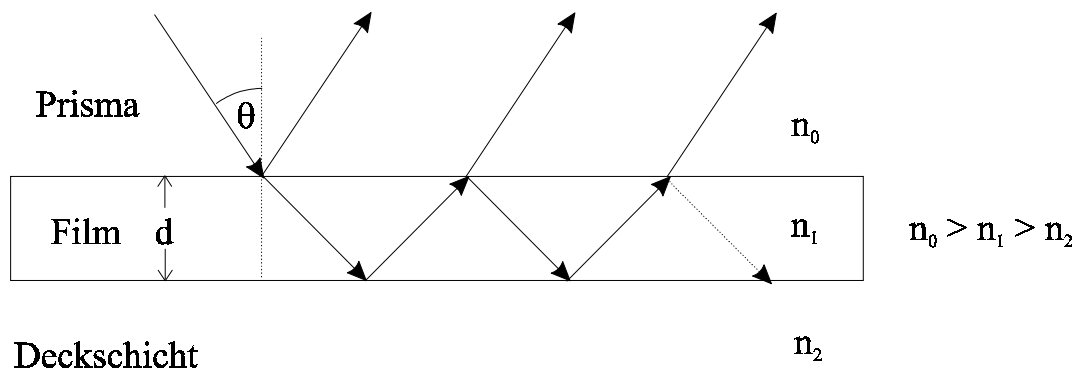
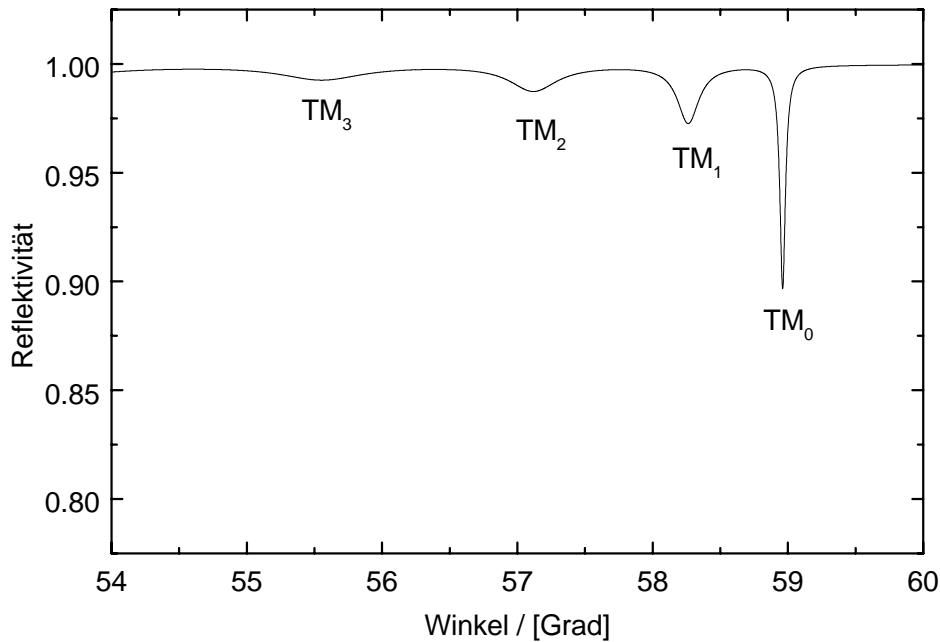


Abb. 2.9: Geometrie zur Anregung und Beobachtung von Leckwellen.

Zur Beobachtung von Leckwellen wird, wie in Abbildung 2.9 dargestellt, Licht über das Substrat, ein optisch dichtes Prisma, eingestrahlt und die Reflektivität als Funktion des Einfallswinkels gemessen. An der Unterseite der dielektrischen Schicht der Dicke  $d$  wird das Licht totalreflektiert, so daß man hier auch von einer ATR-Anordnung sprechen kann. Unter bestimmten Winkeln, d.h. für bestimmte  $n_{\text{eff}}$ , kommt es zur Resonanz und es bildet sich innerhalb der Schicht eine quasi-geführte Leckwelle aus. Die Aufsummation der aus der Schicht tretenden Teilstrahlen ergibt dann ein Minimum der Reflektivität.

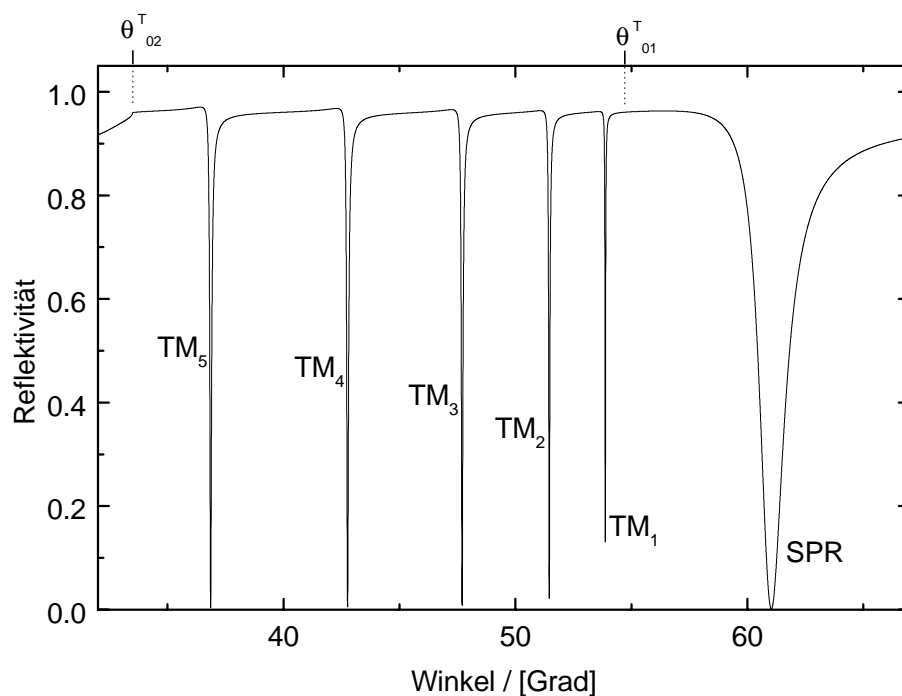


**Abb. 2.10:** Leckwellen-Reflexionsspektrum berechnet für einen  $3\ \mu\text{m}$  Polymerfilm ( $\tilde{n}_1 = 1.48 + i0.00001$ ) auf einem SF11-Prisma ( $n_0 = 1.72309$ ).

Abbildung 2.10 zeigt ein solches Reflexionsspektrum für p-polarisiertes Licht, das für eine  $3\ \mu\text{m}$  Polymerschicht ( $n_1 = 1.48$ ) berechnet wurde. Der Abstand zwischen den einzelnen TM-Leckmoden sowie ihre Anzahl ist wie schon beim planaren Wellenleiter durch die Dicke und den Brechungsindex der Schicht festgelegt. Mit zunehmendem Modenindex, also mit kleinerem Winkel, verlieren die Leckwellen Resonanzen an Tiefe und ihre Halbwertsbreite nimmt zu.

Faßt man den Leckwellenleiter als optischen Resonator auf, so ist dessen Güte und somit die Halbwertsbreite der Resonanzen durch die auftretenden Verluste bestimmt. Die Verluste sind hierbei im wesentlichen durch die Abstrahlung in das Prisma gegeben, welche um so geringer ausfallen je höher die Reflektivität  $R_{10}$  beim Übergang Film/Prisma ist. Eine hohe Reflektivität  $R_{10}$  kann zum einen schon durch die Wahl eines hochbrechenden Prismas, was einen hohen Brechungsindexsprung an der Grenzfläche zur Folge hat, erreicht werden. Andererseits ist eine metallische Verspiegelung der Prismenfläche wesentlich effektiver, wobei zu beachten ist, daß die Verspiegelung teiltransparent sein muß, um weiterhin die Anregung über das Prisma zu ermöglichen. Zu diesem Zwecke haben sich teiltransparente Beschichtungen aus Silber oder Gold bei einer Schichtdicke von etwa  $50\ \text{nm}$  bestens bewährt. Die Güte des Leckwellen-Resonators wird deutlich erhöht und die Resonanzen im Reflexionsspektrum werden im

Vergleich zur einfachen Konfiguration schmaler und tiefer. Von entscheidender Bedeutung ist hierbei die Tatsache, daß neben der Vergütung des Resonators auch die Anregung der Oberflächen-Plasmon Welle der Metallschicht gegeben ist. Durch Einfügen der dünnen Metallschicht entspricht die Anordnung nun exakt der im vorherigen Abschnitt besprochenen Kretschmann-Geometrie. Im TM-Reflexionsspektrum (Abbildung 2.11) erscheinen nun sowohl die Leckwellen als auch die Oberflächen-Plasmon Resonanz. Dieses Spektrum, welches auch als Metallfilm verstärktes Leckwellenspektrum bezeichnet wird [36,37], enthält aufschlußreiche Informationen über das betreffende Schichtsystem. Die Form aller Resonanzen wird im wesentlichen durch die optischen Parameter ( $d$ ,  $\tilde{n}$ ) der Metallschicht bestimmt, wobei für die Leckmoden auch eine stärkere Abhängigkeit vom Imaginärteil des Brechungsindex der dielektrischen Schicht vorhanden ist. Die Winkellage der Oberflächen-Plasmon Resonanz wird, wie bereits angesprochen, hauptsächlich durch die Brechzahl des Dielektrikums bestimmt. Bei den Leckwellen wird die Winkellage und auch die Anzahl der Resonanzen sowohl durch die Brechzahl als auch durch die Dicke der dielektrischen Schicht festgelegt.

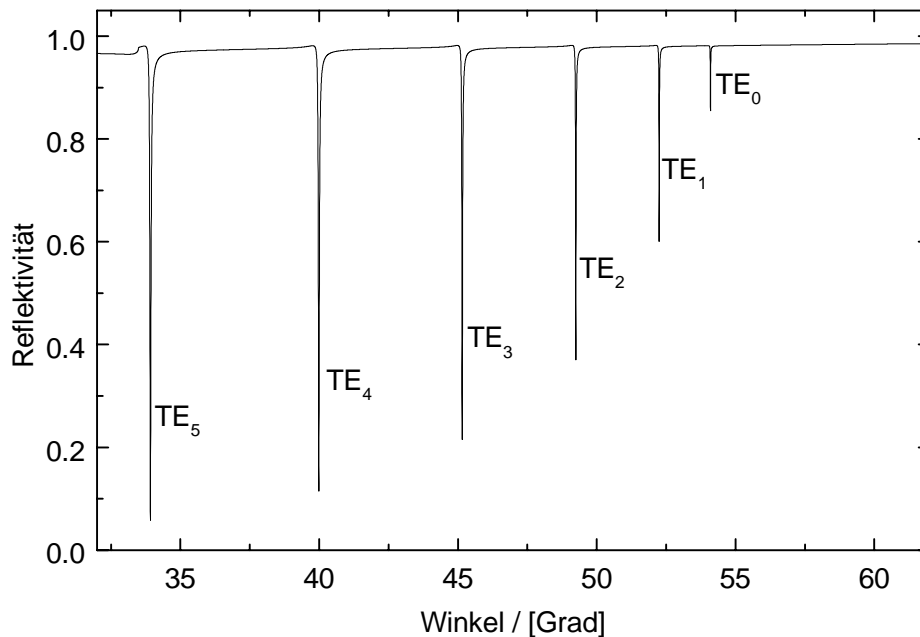


**Abb. 2.11:** Typisches Metallfilm verstärktes Leckwellenspektrum (TM), berechnet für das Schichtsystem (Prisma)/(50nm Silber)/(1.6 $\mu$ m Polymer) mit  $n_p = 1.8129$ ,  $\tilde{n}_{Ag} = 0.085 + i 4.12$  und  $\tilde{n}_f = 1.48 + i 0.00001$ .

Das in Abbildung 2.11 dargestellte TM-Reflexionsspektrum läßt sich in drei wesentliche Winkelbereiche aufteilen. Für Winkel unterhalb des Grenzwinkels der ersten Totalreflexion  $\theta_{02}^T$  findet an den Grenzflächen normale Reflexion statt, so daß ein Teil des Lichtes in den Halbraum 2 (Luft) transmittiert und dem Reflexionsspektrum verloren geht. Nach Erreichen des ersten Grenzwinkels  $\theta_{02}^T$  wird das Licht an der Unterseite der dielektrischen Schicht totalreflektiert und somit die Anregung von Leckwellen möglich. Die entsprechende Totalreflexionskante bei  $\theta_{02}^T = 33.48^\circ$  ist in Abbildung 2.11 ganz links markiert. Im gezeigten Beispiel erscheinen fünf sehr scharfe und tiefe Leckwellen Resonanzen ( $TM_5, TM_4, \dots, TM_1$ ), welche eine mit dem Modenindex zunehmende Halbwertsbreite vorweisen. Wird der Grenzwinkel der Totalreflexion für den Übergang Prisma/Dielektrikum überschritten, so wird die Anregung des Oberflächen Plasmons durch das evaneszente Feld des nun an der Prismenunterseite totalreflektierten Lichtes möglich. Im Spektrum erscheint oberhalb dieses Grenzwinkels ( $\theta_{01}^T = 54.7^\circ$ ) die im Vergleich zu den Leckwellen Resonanzen deutlich breitere Oberflächen-Plasmon Resonanz in ihrer charakteristischen Form.

Es ist zu beachten, daß die später einsetzende Totalreflexion an der Prismenunterseite im Reflexionsspektrum nicht mehr in Form einer zusätzlichen Kante sichtbar wird, da sich das gesamte Schichtsystem bereits für Winkel größer als  $\theta_{02}^T$  im Bereich der Totalreflexion befindet.

Im Gegensatz zur Oberflächen-Plasmon Resonanz existieren Leckwellen Resonanzen auch für s-polarisiertes Licht. In diesem Fall hat die Silberschicht lediglich die Funktion einer metallischen Verspiegelung zur Vergütung des Leckwellen Resonators. Ein sogenanntes Metallfilm verstärktes TE-Reflexionsspektrum ist in Abbildung 2.12 für das gleiche Schichtsystem aus Abbildung 2.11 gezeigt. Die TE-Leckmoden zeigen eine noch geringere Halbwertsbreite als die TM-Moden, sind allerdings auch von geringerer Tiefe, was insgesamt auf die Polarisationsabhängigkeit der Reflektivität an der Silberschicht zurückzuführen ist. Die Silber-Schichtdicke für eine optimale Vergütung des TE-Leckwellen Resonators ist aus diesem Grunde etwas kleiner zu wählen als für den TM-Fall.



**Abb.2.12:** Metallfilm verstärktes Leckwellenspektrum (TE) berechnet für das Schichtsystem aus Abbildung 2.11.

Durch gezielte Auswertung gemessener Reflexionsspektren läßt sich ein Schichtsystem im Bezug auf die optischen Parameter der Einzelschichten vollständig charakterisieren. Zur hinreichend genauen Ermittlung von Schichtdicke und Brechzahl der dielektrischen Schicht genügt es oft schon, die Lage der Resonanzen (Minima) im Spektrum zu bestimmen und auszuwerten.[38] Genauere Aussagen über die optischen Parameter erhält man schließlich durch eine Anpassung an das gemessene Spektrum mit Hilfe des Matrix-Formalismus. Bei dieser theoretischen Anpassung geht dann neben der Winkellage auch die Form der Resonanzen ein und es ergeben sich somit detailliertere Informationen über alle optischen Schichtparameter.

Neben der Anregung der Plasmonen und Leckwellen durch Variation des Einfallswinkels der monochromatischen Lichtwelle, können die Resonanzen auch im Wellenlängenspektrum unter festem Einfallswinkel beobachtet werden.[39] Eine Veränderung der Wellenlänge wirkt sich direkt nur im Betrag des Vakuum Wellenzahlvektors  $k_0 = 2\pi/\lambda$  aus, was somit in noch nachvollziehbarer Weise die Laufphasen  $k_{xi}x$  der Wellen verändert. Den hauptsächlichen Einfluß auf die Optik hat allerdings die Dispersion der einzelnen Schichtmaterialien. Die Wellenlängenabhängigkeit der Brechungsindizes ist bei vielen Schichtmaterialien entweder unbekannt oder nur sehr schwierig durch analytische Funktionen zu beschreiben, was eine theoretische Beschreibung der polychromatischen ATR-Spektren unüberschaubar macht. Die

Realisierung von Plasmon und Leckwellen Resonanz-Anregungen bei Verwendung polychromatischen Lichtes bietet zahlreiche interessante Anwendungsmöglichkeiten über die Verwendung konventioneller Spektrometeranordnungen.

## 2.6. Feldverteilung der verschiedenen Resonanzphänomene

Wie in Kapitel 2.1 beschrieben, ergeben sich die elektrischen Feldverteilungen innerhalb einer Schicht  $i$  aus einer Linearkombination von nach links und nach rechts laufenden Wellen:

$$E_i(x) = R_i e^{ik_{xi}x} + L_i e^{-ik_{xi}x} = \begin{bmatrix} e^{ik_{xi}x} & 0 \\ 0 & e^{-ik_{xi}x} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} R_i \\ L_i \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

Für s-polarisiertes Licht entspricht  $E_i(x)$  der stetig verlaufenden  $y$ -Komponente des elektrischen Feldes. Im Falle p-polarisierten Lichtes hat umgekehrt das magnetische Feld nur eine stetig verlaufende  $y$ -Komponente, die sich unter Anwendung der ersten Maxwell-Gleichung

$$\vec{H} = \frac{-i}{\omega\mu_0} (\vec{\nabla} \times \vec{E})$$

durch  $E_i(x)$  wie folgt ausdrücken läßt:

$$H_i(x) = H_{yi}(x) = \tilde{n}_i \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} E_i(x).$$

Die Amplituden  $R'_i$  und  $L'_i$  auf der linken Seite einer Schicht  $i$  ergeben sich mit den Übergangsmatrizen  $D_{i,i+1}$  und den Phasenmatrizen  $P_i$  der Einzelschichten gemäß der in Gleichung (2.5) gegebenen Iterationsvorschrift:

$$\begin{pmatrix} R'_i \\ L'_i \end{pmatrix} = P_i D_{i,i+1} \begin{pmatrix} R'_{i+1} \\ L'_{i+1} \end{pmatrix}, \quad i = N, N-1, \dots, 1 \quad (2.16)$$

Bei bekannten Amplitudenvektoren in den Halbräumen läßt sich mit gegebener Ausbreitungskonstante  $\beta = k_0 n_{\text{eff}}$  einer Resonanzerscheinung die Feldverteilung im gesamten Schichtsystem mit Gleichung (2.15) berechnen. Die Amplituden in den Halbräumen ergeben sich unterschiedlich je nach Art der betrachteten Resonanz aus der Gesamttransfermatrix  $M$ , die gemäß Gleichung (2.6) die Amplitudenvektoren der beiden Halbräume miteinander verknüpft.

Für ein Schichtsystem, in dem geführte Wellenleitermoden existieren, sind die zum Schichtsystem hinlaufenden Felder Null und die hinauslaufenden Anteile wegen der

imaginären  $k_{xi}$  in den Halbräumen evaneszent. Mit den verschwindenden Amplituden  $R_0$  und  $L_{N+1}'$  und der Resonanzbedingung  $M_{11} = 0$  (Gleichung (2.11)) ergibt sich für Gleichung (2.6):

$$\begin{pmatrix} 0 \\ L_0 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} \cdot \begin{pmatrix} R_{N+1}' \\ 0 \end{pmatrix}.$$

Mit der Normierung  $L_0 = 1$  folgt daraus für die Amplitude im rechten Halbraum:

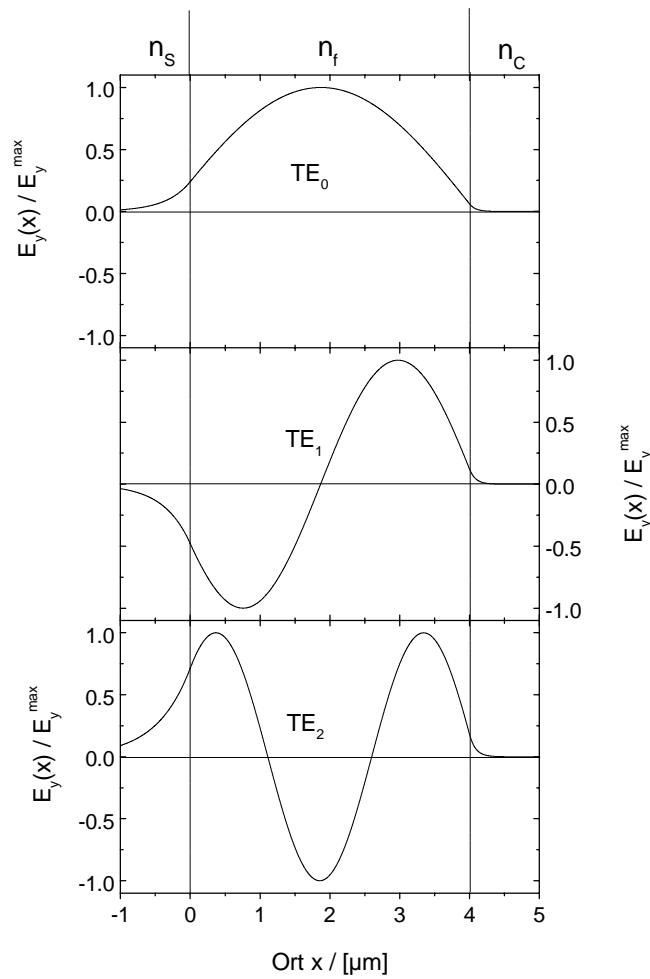
$$R_{N+1}' = \frac{1}{M_{21}} L_0 = \frac{1}{M_{21}},$$

so daß sich mit der in Gleichung (2.16) gegebenen Vorschrift alle Amplitudenvektoren und mit Gleichung (2.15) die Feldverteilung in den einzelnen Schichten berechnen lassen.

Für einen einfachen planaren Wellenleiter bestehend aus einer Schicht und zwei Halbräumen zeigt Abbildung 2.13 die Feldverteilungen der ersten drei geführten TE-Moden. Die für die Berechnung der Feldverteilung benötigten Ausbreitungskonstanten bzw. effektive Indizes der einzelnen Moden sind vorher aus der in Kapitel 2.3 behandelten Bedingung für transversale Resonanz geführter Wellen zu ermitteln und ergeben für die in Abbildung 2.13 gegebene Wellenleiterkonfiguration folgendes TE-Modenspektrum:

Modenindex m	0	1	2	3
$n_{\text{eff}}^m$	1.540343	1.535396	1.527264	1.516438

Wie aus den Feldverteilungen der einzelnen Moden zu entnehmen ist, korrespondiert der Modenindex m mit der Zahl der Feldnullstellen. Deutlich zu erkennen ist auch, daß die Eindringtiefe des exponentiell gedämpften Feldes einer Mode aufgrund des kleineren Brechungsindexunterschieds im Substrat größer ist als in der Deckschicht. Ferner zeigt sich, daß mit zunehmendem Modenindex das evaneszente Feld tiefer in das Substrat bzw. in die Deckschicht eindringt. Dieses Verhalten ist in der Abhängigkeit der Eindringtiefe vom effektiven Index  $n_{\text{eff}}$  einer Mode begründet.



**Abb. 2.13:** Feldverteilungen für die ersten drei TE-Moden eines  $4 \mu\text{m}$  dicken planaren Wellenleiters mit dem Filindex  $n_f = 1.542$ , einem Kronglassubstrat ( $n_s = 1.513$ ) und Luft als Deckschicht ( $n_c = 1$ ).

Bei der Berechnung der Feldverteilungen der über die Methode der gedämpften Totalreflexion (ATR) angeregten Resonanzen (Oberflächen-Plasmon und Leckwellen) betrachtet man nur eine vom linken Halbraum einfallende Amplitude  $R_0$  und setzt die vom rechten Halbraum einfallende Amplitude  $L'_{N+1}$  gleich Null. Die aus dem Schichtsystem in die Halbräume hinauslaufenden Amplituden,  $L_0$  und  $R'_{N+1}$ , ergeben sich als reflektierte bzw. transmittierte Amplituden aus den Elementen der Gesamttransfermatrix  $\mathbf{M}$  wie folgt (s. Kap. 2.2):

$$L_0 = rR_0 = \frac{M_{21}}{M_{11}} R_0 \quad R'_{N+1} = tR_0 = \frac{1}{M_{11}} R_0.$$



Damit sind die Amplituden in den Halbräumen vollständig definiert und der Feldverlauf im gesamten Schichtsystem läßt sich wiederum anhand der Gleichungen (2.15) und (2.16) berechnen.

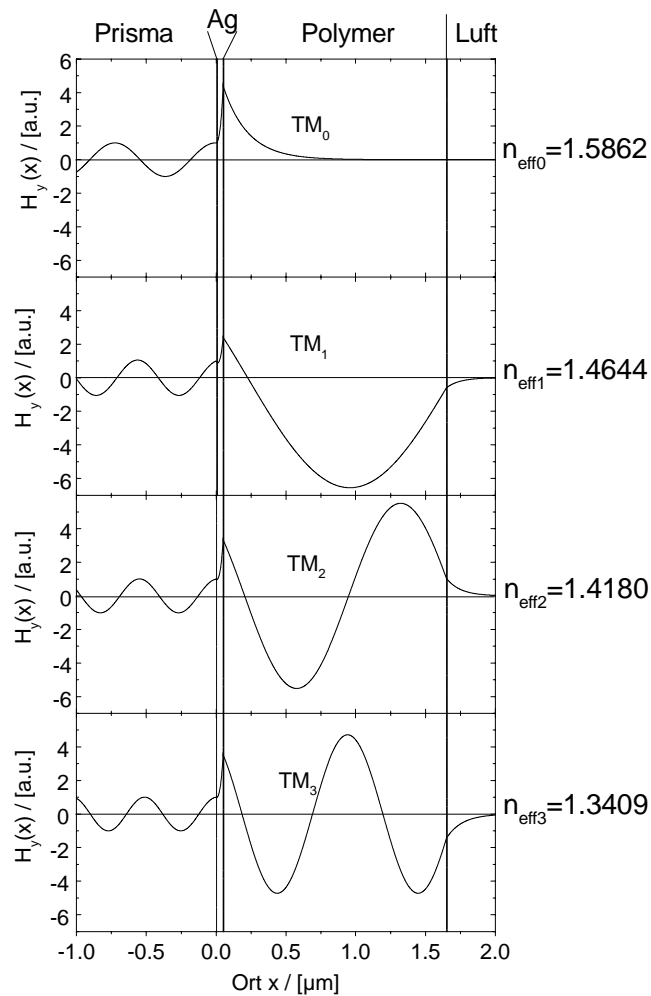
Für das schon im vorherigen Abschnitt behandelte Vielfachschichtsystem (Abb. 2.11 und 2.12) bestehend aus Prisma/50 nm Silber/1.6  $\mu\text{m}$  Polymer/Luft sind die Feldverteilungen der Oberflächen-Plasmon Resonanz und der ersten drei Leckmoden ( $\text{TM}_1$ ,  $\text{TM}_2$ ,  $\text{TM}_3$ ) berechnet worden und in Abbildung 2.14 dargestellt. Der für die Berechnung benötigte Realteil der Ausbreitungskonstanten  $\beta_r = k_0 n_{\text{eff}}$  einer Resonanz ergibt sich aus dem Einfallswinkel  $\theta_p$  des anregenden Lichtes im linken Halbraum (Prisma), unter dem die jeweilige Resonanz beobachtet werden kann:

$$\beta_r = k_0 n_{\text{eff}} = k_0 n_p \sin \theta_p.$$

Dabei bezeichnet  $k_0$  den Betrag des Vakuum Wellenzahlvektors und  $n_p$  den Brechungsindex des Prismas.

Wie in Abbildung 2.14 zu erkennen, fällt der Unterschied zwischen den Feldverteilungen der Oberflächen-Plasmon Resonanz (SPR) und den übrigen Leckwellen recht deutlich aus. Das  $H_y$ -Feld der Oberflächen-Plasmon Welle ( $\text{TM}_0$ ) besteht in beiden Richtungen aus evaneszenten Feldanteilen und ist stark im Bereich der Silber/Polymer-Grenzfläche ( $x = 0.05 \mu\text{m}$ ) lokalisiert. Daher ist die Sensitivität des Plasmons auf Brechungsindexänderungen im Bereich dieser Grenzfläche begrenzt. Die Eindringtiefe in den dielektrischen Polymerfilm beträgt hier ca. 200 nm und entspricht somit etwa 1/3 der Wellenlänge ( $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ ).

Die Felder der quasi-geführten Leckmoden erstrecken sich im Gegensatz zur Oberflächen-Plasmon Welle über den gesamten Polymerfilm und sind im rechten Halbraum ( $x > 1.65 \mu\text{m}$ ) aufgrund der Totalreflexion an der Polymer/Luft Grenzfläche evaneszent. Die Anzahl der Feldnullstellen entspricht auch hier wieder dem Modenindex, so daß der Oberflächen-Plasmon Welle somit der  $\text{TM}_0$ -Modus zugeordnet wird.[24]



**Abb. 2.14:** Feldverteilung der bei der Metallfilm unterstützten Leckwellenspektroskopie auftretenden TM-Resonanzen: Oberflächen-Plasmon ( $\text{TM}_0$ ) und Leckmoden ( $\text{TM}_1$ ,  $\text{TM}_2$ ,  $\text{TM}_3$ ). Die Berechnung erfolgte hier für das gleiche Schichtsystem aus Abbildung 2.11 bzw. 2.12.

Da die Anzahl der Schichten hierbei nicht begrenzt ist, lassen sich die Felder in beliebigen planaren Schichtstrukturen berechnen. Insbesondere können so auch die Feldverteilungen in Strukturen mit kontinuierlichem Brechzahlverlauf berechnet werden. Auf die Behandlung derartiger Brechzahlprofile mit dem Transfer-Matrix-Formalismus soll im folgenden Abschnitt näher eingegangen werden.

## 2.7. Behandlung kontinuierlicher Brechzahlprofile mit der Matrix-Methode

Kontinuierliche inhomogene Brechzahlprofile treten in der integrierten Optik recht häufig in Erscheinung. Zum einen führen sehr viele Techniken der Wellenleiterherstellung wie Ionenimplantation, Ionenaustausch in Glas und Dotierung mittels Diffusion zu Profilen, die vom stufenförmigen Verlauf abweichen und somit einen Wellenleiter mit inhomogenem Brechzahlverlauf bilden. Zum anderen führen reversible Diffusionsprozesse in geeigneten dünnen Schichten zu Brechzahlprofilen  $n(x,t)$ , die bei integriert optischen Gas- oder Flüssigkeitssensoren ein optisches Signal verursachen. Mechanische Spannungen in Materialien mit hohem spannungsoptischen Koeffizienten können ebenfalls Brechzahlprofile verursachen [40], wobei mechanische Spannungsprofile vielerlei Ursprungs sein können.

Wie bereits oben beschrieben stellt der Vielfachschicht-Matrix-Formalismus ein numerisches Verfahren dar, das die Möglichkeit bietet, für beliebige Vielfachschichtstrukturen Reflexions- und Transmissionskoeffizienten sowie die Ausbreitungskonstanten geführter Wellen zu bestimmen. Ein kontinuierlicher Brechungsindexverlauf  $n(x)$  innerhalb einer Schicht kann dabei beliebig genau angenähert werden, indem man die Schicht in  $N$  Einzelschichten mit konstantem Brechungsindex zerlegt und das Indexprofil durch eine stückweise konstante Funktion annähert, wobei die Einzelschichten von gleicher oder unterschiedlicher Dicke sein können. Da für  $N \rightarrow \infty$  die Treppenfunktion gegen die Profildfunktion konvergiert, wird die Näherung um so genauer je größer die Anzahl  $N$  der Einzelschichten gewählt wird.

Für Schichtwellenleiter mit allgemeinem Profil wurden eine Reihe von Näherungsmethoden entwickelt, die die Berechnung der Ausbreitungskonstanten und der Feldverteilungen ermöglichen, wobei die meisten Näherungen auf die aus der Quantentheorie stammenden WKB-Methode (Wentzel, Kramers, B Brillouin) basieren.[41,42] Für verschiedene Indexprofile (u.a. parabolisches, lineares oder exponentielles Profil) konnten die Helmholtz-Gleichungen für Schichtwellenleiter exakt gelöst werden und eine Ausbreitungsbedingung für die ausbreitungsfähigen Moden berechnet werden.[43-45]

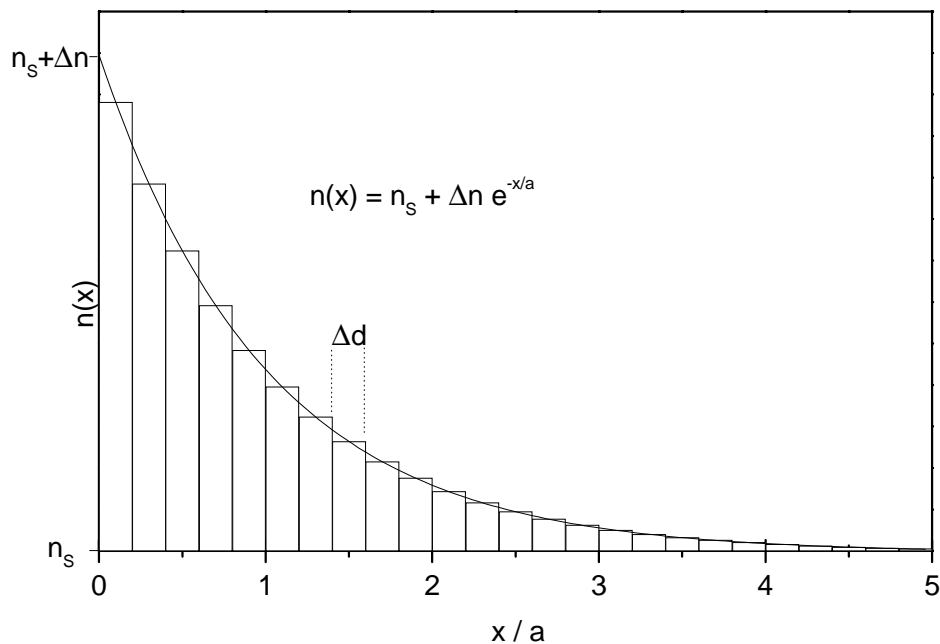
Bei der Verwendung der Matrix-Methode stellt Gleichung (2.11) die allgemeine Ausbreitungsbedingung geführter Wellen dar. Die Zerlegung einer Schicht mit kontinuierlichem Profil in ein Vielfachschichtsystem führt über Gleichung (2.11) zu Ausbreitungskonstanten, die mit feinerer Zerlegung, d.h. mit größerer Anzahl  $N$  der Einzelschichten, gegen die exakten Lösungen konvergieren. Die Konvergenz wird im folgenden für das exakt lösbare Problem eines diffundierten Wellenleiters mit exponentiellem Brechungsindexverlauf gezeigt.

Hierzu wird folgende Struktur eines reellen Brechungsindex betrachtet:

$$n(x) = \begin{cases} 1 & , \quad x < 0 \\ n_s + \Delta n \cdot \exp(-x/a) & , \quad x > 0 \end{cases}$$

Hier ist  $n_s$  der Brechungsindex des Substrats,  $\Delta n$  der Indexsprung an der Oberfläche und  $a$  die Eindringtiefe des Profils im Substrat. Die Ortskoordinate  $x$  stellt die Tiefe im Substrat dar. Der Halbraum  $x < 0$  sei Luft mit dem Brechungsindex  $n = 1$ . Tief im Substrat ( $x > 5a$ ) entspricht  $n(x)$  dem Substratindex  $n_s$ . Das Profil  $n(x)$  sowie die Annäherung an den exakten Verlauf durch  $N$  Einzelschichten gleicher Dicke  $\Delta d$  und stückweise konstantem Index  $n_i$  ist in Abbildung 2.15 veranschaulicht. Für den Brechungsindex  $n_i$  der  $i$ -ten Einzelschicht gilt:

$$\begin{aligned} n_i &= n(x_i) \\ x_i &= (i - 1/2) \cdot \Delta d \quad (i = 1, 2, \dots, N) \end{aligned}$$



**Abb. 2.15:** Exponentieller Brechzahlverlauf im Substrat, angenähert durch eine Zerlegung der Schicht in  $N = 25$  Einzelschichten gleicher Dicke  $\Delta d$ .

Für Werte von  $n_s = 2.177$ ,  $\Delta n = 0.09837$ ,  $a = 2.22726 \mu\text{m}$  bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 632.8 \text{ nm}$  sind die effektiven Indizes (d.h. die Ausbreitungskonstanten  $\beta$  in Einheiten von  $k_0$ ) der ausbreitungsfähigen Moden für verschieden feine Zerlegungen ( $N=25, 50, 100, 200$ ) berechnet worden. Zum Vergleich sind alle Werte in Tabelle 2.1 zusammen mit den exakten Lösungen (aus [46]) dargestellt.

**Tab. 2.1:** Berechnete TE Modenspektren eines exponentiellen Brechzahlprofils

m	$n_{\text{eff}}^m$ (N=25)	$n_{\text{eff}}^m$ (N=50)	$n_{\text{eff}}^m$ (N=100)	$n_{\text{eff}}^m$ (N=200)	$n_{\text{eff}}^m$ (exakt)
0	2.24320	2.24275	2.24269	2.24268	2.24267
1	2.22187	2.22159	2.22154	2.22154	2.22153
2	2.20748	2.20740	2.20736	2.20736	2.20735
3	2.19710	2.19717	2.19715	2.19714	2.19714
4	2.18954	2.18970	2.18968	2.18968	2.18967
5	2.18415	2.18432	2.18431	2.18430	2.18430
6	2.18048	2.18062	2.18061	2.18061	2.18061
7	2.17822	2.17831	2.17830	2.17830	2.17830
8	2.17714	2.17717	2.17717	2.17717	2.17717

Es zeigt sich, daß für eine Zerlegung in 100 Schichten die Abweichung vom exakten Wert jeweils nur noch im Bereich  $1 \times 10^{-5}$  liegt und somit eine hinreichende Genauigkeit erreicht wird. Deutlich auszumachen ist die Konvergenz der berechneten effektiven Indizes mit feiner werdender Zerlegung gegen den jeweils exakten Wert. So erhält man zum Beispiel bei der 0.ten Mode ( $m = 0$ ) folgende kontinuierliche Abnahme der Abweichung vom exakten Wert:

N	25	50	100	200
Abw.	$53 \times 10^{-5}$	$8 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-5}$	$1 \times 10^{-5}$

Bei den Moden der höheren Ordnung ( $m \geq 1$ ) konvergieren die Werte für die effektiven Indizes noch schneller als bei der 0.ten Ordnung. Schon bei einer Zerlegung in  $N=50$  Einzelschichten beträgt die Abweichung höchstens noch  $1 \times 10^{-5}$ .

Die gleiche Übereinstimmung wird auch bei der Berechnung von Reflexionsspektren von Schichtsystemen mit kontinuierlichem Indexprofil erreicht. Da die Genauigkeit

einer Zerlegung davon abhängt, wie stark sich  $n(x)$  mit  $x$  ändert, ist es sinnvoll, die Zerlegung abhängig vom Verlauf von  $n(x)$  zu gestalten. Bereiche mit steilem Verlauf von  $n(x)$  können feiner diskretisiert werden als Bereiche mit eher flachem Verlauf. Dies hat zwar eine mit  $n(x)$  variierende Schichtdicke der Einzelschichten zur Folge, reduziert aber bei gleicher Genauigkeit die Anzahl  $N$  der Einzelschichten und somit den Rechenaufwand. Es hat sich gezeigt, daß für die in dieser Arbeit auftretenden Indexprofile ausreichende Genauigkeit durch eine Zerlegung in  $N=100$  Einzelschichten gleicher Dicke erreicht wird.

In der Praxis ist umgekehrt häufig die Problemstellung gegeben, aus gemessenen Modenindizes oder Reflexionsspektren auf den Verlauf eines Brechzahlprofils zu schließen. Für sogenannte diffundierte Wellenleiter sind seit den 70er Jahren zahlreiche Methoden zur Lösung dieses inversen Problems entwickelt worden, welche hauptsächlich wieder auf die WKB-Näherung zurückgehen.[47-49] Analog liefert der Matrix-Formalismus eine Eigenwertgleichung für die Modenindizes einer wellenleitenden Schichtstruktur, die umgekehrt, im Falle bekannter Eigenwerte, zur Rekonstruktion des Brechzahlprofils herangezogen werden kann.

Ebenso beinhalten die Reflexionsmeßdaten eines Metallfilm verstärkten Leckwellenspektrums genügend Information, um das Indexprofil in der dielektrischen Schicht zu rekonstruieren. Aus dem Matrix-Formalismus läßt sich wie oben beschrieben ein theoretischer Ausdruck für die Reflektivität herleiten, welcher die Profilkurve in Abhängigkeit einiger zu bestimmender Parameter enthält. Aus einer theoretischen Anpassung an die Meßdaten ergeben sich schließlich die Parameter und somit das Brechzahlprofil.

Da sich der Brechzahlverlauf  $n(x)$  einer Schicht hauptsächlich im Modenspektrum widerspiegelt, ist die Genauigkeit der Profilbestimmung folglich von der Anzahl vermessener Moden abhängig, wobei es gleich ist ob Wellenleiter- oder Leckmoden betrachtet werden. Für Schichten, in denen aufgrund der Dimensionierung überhaupt nur wenige Moden ausbreitungsfähig sind, ist somit eine Profilbestimmung kaum möglich.