

# PROPIEDADES OPTICAS DE LA INTERFACE DIELECTRICO-METAL\*

L. Fuchs

*Escuela de Ciencias Físico-Matemáticas, Universidad Autónoma de Puebla  
A.P. 1152, C.P. 72000. Puebla, México*

G. H. Cocoltzi

*Departamento de Semiconductores del Instituto de Ciencias de la  
Universidad Autónoma de Puebla. A.P. 1651 Puebla 72000, México*

J. L. Carrillo

*Instituto de Física Universidad Autónoma de Puebla  
A.P. J-48 Puebla 72570, México*

Estudiamos teóricamente las propiedades ópticas de una interface dieléctrico-metal. Analizamos primeramente las condiciones para la existencia de los plasmones de interface y superficie. Enseguida simulamos los procesos de excitación y detección de estos modos mediante dos métodos, Reflexión Total Atenuada y Dispersión de Electrones de Baja Energía (200 eV). Para los parámetros correspondientes a la interface *CdS - Al*, determinamos las ventanas de propagación de los modos mediante el cálculo de los mínimos de reflectividad y las pérdidas en la sección transversal de probabilidad del haz incidente de electrones. Discutimos nuestros resultados comparándolos con otros reportados en la literatura.

## INTRODUCCION

El estudio de los modos electromagnéticos en superficies e interfaces ha cobrado una gran relevancia durante los últimos años.<sup>1,2</sup> Ejemplo de dichos modos son los plasmones de superficie y los modos fonón polaritón. Dos de las técnicas que han sido usadas para estudiar la excitación de de estos modos electromagnéticos son: la Reflexión Total Atenuada (*ATR*)<sup>3,4</sup> y la Dispersión de Electrones de Baja Energía en su modalidad conocida como *EELS*.<sup>5,6</sup>

Existen dos tipos de arreglo experimental para la técnica *ATR* conocidos como, geometría de Otto<sup>7</sup> y geometría de Kretschmann,<sup>8</sup> en la geometría de Otto, una película delgada de función dieléctrica  $\epsilon_1(\omega) > 0$ , se encuentra entre un prisma de constante dieléctrica  $\epsilon_p > 0$ , y un sustrato de función dieléctrica  $\epsilon_2(\omega) < 0$ . En la geometría de Kretschmann se intercambia la película delgada y el sustrato. Los espectros de *ATR* se obtienen haciendo incidir una onda de luz sobre la interface a un ángulo mayor que el ángulo crítico para la interface entre el prisma y la película delgada i.e.  $\theta > \theta_c = \text{sen}^{-1}(n_1/n_p)$  donde  $n_p = (\epsilon)^{1/2}$  y  $n_1 = (\epsilon_1(\omega))^{1/2}$ . Los mínimos de reflectividad indican que la luz al incidir y tunelar la película delgada se acopla con los modos normales de la interface película delgada-sustrato.

La dispersión inelástica de electrones de baja energía es útil en este caso dado que los rangos de energías de los modos electromagnéticos son accesibles por este medio y como los rangos de pérdidas de energía es de varios electron Voltios no se requieren técnicas de ultra alta resolución.

La teoría para la dispersión inelástica bajo pequeños ángulos por una superred infinita ha sido desarrollada por Camley y Mills.<sup>9</sup> En el régimen de pequeños ángulos de deflexión ellos encuentran que la contribución de los

plasmones de superficie es dominante en los espectros de pérdida de energía de electrones retrodispersados.

Simulaciones numéricas de experimentos de *EELS* recientemente han sido usados para estudiar los plasmones de superficie en películas delgadas semiconductoras.<sup>10</sup>

En este trabajo pretendemos hacer un estudio comparativo de las propiedades ópticas de interfaces dieléctrico-metal obtenidas mediante la simulación numérica de experimentos de *ATR* y *EELS*.

El contenido del trabajo se presenta de la siguiente manera: En la sección siguiente se presentan brevemente los fundamentos teóricos para el cálculo de, A) La relación de dispersión de los modos normales de interfaces dieléctrico-metal y para una película delgada de conductor. B) La reflectividad de luz de polarización *P*. y C) La sección transversal de pérdida del haz de electrones incidente. En la sección III se discute la simulación de los experimentos de dispersión de luz y de electrones. Finalmente presentamos nuestras conclusiones en la sección IV.

## FUNDAMENTOS TEORICOS

### A. Relación de Dispersión

Consideremos una placa de anchura *d* y función dieléctrica  $\epsilon_2(\omega)$  limitada por dos medios semiinfinitos de función dieléctrica  $\epsilon_1(\omega)$  y  $\epsilon_3(\omega)$ , respectivamente. Elijamos nuestro sistema de coordenadas de tal forma que las superficies de la placa sean paralelas al plano *XY*. Consideremos que el vector de propagación de la onda está en la dirección *X*. En estas condiciones se puede mostrar que la relación de dispersión para esta placa está dada por la siguiente expresión<sup>2</sup>

$$\left[ 1 + \frac{q_1 \epsilon_2}{q_2 \epsilon_1} \right] \left[ 1 + \frac{q_2 \epsilon_3}{q_3 \epsilon_2} \right] + e^{i2q_2 d} \left[ 1 - \frac{q_1 \epsilon_2}{q_2 \epsilon_1} \right] \left[ 1 - \frac{q_2 \epsilon_3}{q_3 \epsilon_2} \right] = 0, \quad (1)$$

donde  $q_1, q_2$  y  $q_3$  son las componentes del vector de onda en los tres medios en la dirección  $Z$ , dichas componentes están dadas por

$$q_i = \left( \epsilon_i(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2 \right)^{1/2}, \quad i = 1, 2, 3$$

donde  $K_x$  es la componente del vector de onda en la dirección  $X$ .

En el límite  $d \rightarrow \infty$  la ecuación 1 toma la forma<sup>2</sup>

$$\frac{c^2 k_x^2}{\omega^2} = \frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}, \quad \frac{c^2 q_1^2}{\omega^2} = \frac{\epsilon_1^2}{\epsilon_1 + \epsilon_2} \quad i = 1, 2 \quad (2)$$

$$\frac{c^2 k_x^2}{\omega^2} = \frac{\epsilon_2 \epsilon_3}{\epsilon_2 + \epsilon_3}, \quad \frac{c^2 q_2^2}{\omega^2} = \frac{\epsilon_2^2}{\epsilon_2 + \epsilon_3} \quad i = 2, 3$$

Estas son las relaciones de dispersión de los modos electromagnéticos en las interfaces entre la placa y los dos medios semiinfinitos. En el caso de una placa simétrica  $\epsilon_1(\omega) = \epsilon_3(\omega)$  se tiene que estas expresiones se simplifican quedando en la forma

$$\frac{q_2(\omega)}{\epsilon_1(\omega)} = i \frac{q_2}{q_1} \tan(q_2 a), \quad d = 2a \quad (3)$$

$$\frac{q_2(\omega)}{\epsilon_1(\omega)} = -i \frac{q_2}{q_1} \cot(q_2 a)$$

Estas son las relaciones de dispersión para los modos simétrico y antisimétrico respectivamente.

## B. Reflectividad

La reflectividad para luz de polarización  $P$  está dada por la expresión<sup>11</sup>

$$R_P = \left| \frac{Z_P - \cos \theta / n_p}{Z_P + \cos \theta / n_p} \right|^2, \quad (4)$$

donde  $\theta$  es el ángulo de incidencia,  $n_p$  es índice de refracción del prisma y  $Z_P$  es la impedancia de superficie bajo consideración. En nuestro caso estamos considerando que la configuración  $ATR$  está formada por una película delgada de constante dieléctrica  $\epsilon_2(\omega)$  y de espesor  $d$  crecida sobre un sustrato de función dieléctrica  $\epsilon_3(\omega)$ .

## C. Sección Eficaz

Ahora explicamos brevemente el procedimiento de cálculo de la sección eficaz de dispersión para electrones incidiendo sobre una película crecida sobre un sustrato como se describió en la sección A. Para tal fin es necesario primero resolver las ecuaciones de Maxwell para dicha geometría.<sup>12</sup> En el límite no retardado y tomando  $\epsilon_1 = 1$ , en la película delgada el potencial está dado por la expresión

$$\Phi(\vec{x}, t) = \int \frac{d^2 Q_{\parallel}}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \phi(\vec{Q}_{\parallel}, z; \omega) e^{i(\vec{Q}_{\parallel} \cdot \vec{X}_{\parallel} - \omega t)}, \quad (5)$$

$$\text{con } \phi(\vec{Q}_{\parallel}, z; \omega) = A_+ e^{Q_{\parallel} z} + A_- e^{-Q_{\parallel} z}, \quad 0 < z < d,$$

donde  $\vec{Q}_{\parallel} = k_x \hat{X} + k_y \hat{Y}$ ,  $\vec{X}_{\parallel} = X \hat{x} + y \hat{y}$ ,  $A_+$  y  $A_-$  son las amplitudes.

De esta manera la componente  $z$  del campo de desplazamiento eléctrico es  $D_z = -\epsilon_2 \nabla \Phi(X, t)$ , y en el sustrato se tiene para el potencial

$$\phi(\vec{Q}_{\parallel}, z; \omega) = d_- e^{-Q_{\parallel} z} \quad (6)$$

Dado que el sustrato ocupa la región  $z < 0$  y la película delgada está en  $0 < Z < d$ , si se aplican las condiciones de frontera de Maxwell a la interface  $Z = d$  se encuentra fácilmente la siguiente relación

$$\frac{A_+}{A_-} = \frac{\epsilon_2 - \epsilon_3}{\epsilon_2 + \epsilon_3} e^{-2Q_{\parallel} d}, \quad (7)$$

y en  $Z = 0^+$  se tendrá

$$\frac{\phi_2(0^+)}{D_z^{(2)}(0^+)} = \frac{\epsilon_2 + \epsilon_3 + (\epsilon_2 - \epsilon_3)e^{-2Q_{\parallel} d}}{\epsilon_2 Q_{\parallel} [\epsilon_2 + \epsilon_3 - (\epsilon_2 - \epsilon_3)e^{-2Q_{\parallel} d}]} \quad (8)$$

El potencial en la región  $Z < 0$  está dado por

$$\phi_1(z) = A \cos \left[ (\omega - \vec{Q}_{\parallel} \cdot \vec{V}_{\parallel}) \frac{z}{V_{\perp}} \right] + C_+ e^{Q_{\parallel} z}, \quad (9)$$

y el desplazamiento

$$D_z^{(1)}(z) = \frac{-A}{V_{\perp}} (\omega - \vec{Q}_{\parallel} \cdot \vec{V}_{\parallel}) \text{sen} \left[ (\omega - \vec{Q}_{\parallel} \cdot \vec{V}_{\parallel}) \frac{z}{V_{\perp}} \right] - C_+ Q_{\parallel} e^{Q_{\parallel} z}, \quad (10)$$

con

$$A = \frac{8\pi e V_{\perp}}{(\omega - \vec{Q}_{\parallel} \cdot \vec{V}_{\parallel})^2 + Q_{\parallel}^2 V_{\perp}^2} \quad (11)$$

Usando el hecho de que tanto el potencial como la componente normal del campo de desplazamiento son continuas en  $Z = 0$ , la siguiente relación puede obtenerse fácilmente

$$C_+ = RA = -\frac{A}{1 + Q_{\parallel} [\phi(0)/D_z(0)]} \quad (12)$$

con la razón  $\phi(0)/D_z(0)$  dada por la ecuación 8.

El campo eléctrico que proviene del término  $C_+ e^{Q_{\parallel} z}$  en la ecuación (9), interactúa con los electrones realizando un trabajo, el cual está dado por<sup>9</sup>

$$W = \frac{2e^2 V_{\perp}^2}{\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d^2 Q_{\parallel} \omega Q_{\parallel} d\omega \text{Im} [R(Q_{\parallel}, \omega)]}{[(Q_{\parallel} V_{\perp})^2 + (\omega - \vec{V}_{\parallel} \cdot \vec{Q}_{\parallel})^2]^2} \quad (13)$$

De aquí es posible obtener una expresión para la pérdida de energía de los electrones, la cual tiene la forma

$$W = \int_0^{\infty} \hbar \omega P(\omega) d\omega, \quad (14)$$

donde  $P(\omega)$  se interpreta como la probabilidad por unidad de frecuencia de que el electrón pierda una energía a  $\hbar \omega$ . Puede escribirse la siguiente expresión<sup>9</sup> para  $P(\omega)$

$$P(\omega) = \frac{e^2 V_{\perp}^2}{\pi \hbar \omega^4 \cos^2 \theta_I} \int \frac{dQ_{\parallel} Q_{\parallel}^2 \text{Im} [R(Q_{\parallel}, \omega)] \text{Re} [F_1 \cdot F_2]}{\xi^3 [(\xi^2 - 1)^2 + 4\xi^2 \cos^2 \theta_I]^{3/2}}, \quad (15)$$

donde

$$F_1 = (\xi^2 - 1 + 2i\xi \cos \theta_I)^{1/2},$$

$$F_2 = [(1 + 2\xi^2 \cos \theta_I + i\xi \cos \theta_I)(1 + \xi^2 \cos^2 \theta_I) + \xi^2 \sin^2 \theta_I (3\xi^2 \cos^2 \theta_I - 2 - i\xi \cos \theta_I) + \xi^4 \sin^4 \theta_I],$$

$$V_{\parallel} = V_0 \sin \theta_I,$$

$$V_{\perp} = V_0 \cos \theta_I, V_0$$

es la velocidad de los electrones incidentes  $\xi = V_0 Q_{\parallel} / \omega$ .

## RESULTADOS Y DISCUSION

Con el fin de obtener algunos resultados numéricos para un sistema concreto, por simplicidad usamos la aproximación del oscilador armónico para la función dieléctrica correspondiente a los medios conductor y dieléctrico, la cual puede ser escrita como

$$\epsilon_i(\omega) = \epsilon_{0i} - \frac{\omega_{pi}}{\omega_{Ti}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_i} \quad i=d,m \quad (16)$$

donde  $\epsilon_{0i}$  es una constante independiente de la frecuencia. Para el conductor ésta constante es del orden de la unidad y para el dieléctrico del orden de 10. Para el conductor  $\omega_T$  es cero y para el dieléctrico es la frecuencia del fonón transversal,  $\gamma_i$  son las constantes fenomenológicas de amortiguamiento y  $\omega_{pi}$  para el conductor es la frecuencia de plasma y para el dieléctrico está dada por  $\omega_{pd}^2 = \epsilon_0(\omega_L^2 - \omega_T^2)$  donde  $\omega_L$  es la frecuencia de los fonones longitudinales.

Aquí estudiamos la interface entre un metal y un semiconductor, concretamente la interface Al-CdS, cuyos parámetros tienen los valores siguientes:  $\hbar\omega_p = 15.8eV$ ,  $\hbar\gamma_m = 0.2eV$ ;  $\epsilon_0 = 9.1$ ,  $\hbar\omega_T = 2.552eV$ ,  $\omega_{pd} = 0.11517\omega_T$  y  $\gamma = 4.857\omega_T$ .

Las condiciones físicas para la existencia de modos electromagnéticos, despreciando efectos de amortiguamiento están dadas por las ecuaciones(2) con  $K_x^2 > 0$  y  $q_1^2, q_2^2, q_3^2 < 0$ ; Para satisfacer estas condiciones es necesario suponer que  $\epsilon_1 > 0$  y  $\epsilon_2 < 0$  y en magnitud  $\epsilon_1 < \epsilon_2$ . Si el dieléctrico es representado por  $\epsilon_1$  y el conductor por  $\epsilon_2$ , es posible excitar plasmones de interface en dos ventanas de propagación definidas por  $0 < \omega < \omega_{si}$ ,  $(\omega_T) < \omega_L < \omega < \omega_{s2}$ , donde  $\omega_{si}$  son las soluciones de  $\epsilon_1(\omega_s) + \epsilon_2(\omega_s) = 0$ . Estas regiones de frecuencia han sido estudiadas recientemente<sup>13</sup> y se muestran en la figura 1. También se han usado películas delgadas de Plata y Aluminio para estudiar la propagación de modos electromagnéticos.<sup>14</sup>

En la referencia 14 se reportan dos mínimos bien definidos en el espectro de reflectancia interpretándose en base al acoplamiento de los modos de la película y la superficie.

Ahora procedemos a mostrar y discutir nuestros resultados de la simulación numérica de experimentos de *ATR* en una película delgada y en una interface, enseguida, para los mismos sistemas, discutimos nuestros resultados de la simulación de *EELS*.

### A. Simulación de *ATR*

En nuestra simulación de un experimento de *ATR* mantenemos fijo el ángulo de incidencia y variamos la frecuencia de la luz incidente. Consideramos las geometrías anteriormente descritas para estudiar los plasmones de superficie e interface.

En la figura 2 comparamos los espectros de *ATR* para las geometrías de Otto y Kretschmann para la interface dieléctrico-metal. En ambos casos consideramos un ángulo de incidencia  $\theta = 60^\circ$ , el grosor de la película es de  $105 \text{ \AA}$  y el índice de refracción del prisma es  $n_p = (\epsilon_p)^{1/2} = 3.417$ .

La curva correspondiente a la geometría de Otto muestra dos mínimos bien definidos, uno para frecuencias menores que  $\omega_T$  y la otra para frecuencias mayores que  $\omega_L$ . La curva correspondiente a la geometría de Kretschmann solo presenta un mínimo bien definido sobre  $\omega_L$ . Estos mínimos en la reflectancia se interpretan como la excitación de plasmones en la interface dieléctrico metal.

Los mínimos de *ATR* debidos a la excitación de plasmones en las superficies de la película metálica son mostrados en la figura 3 para tres diferentes grosores y para un ángulo de incidencia de  $50^\circ$ . Para lograr estos mínimos, hemos considerado un prisma y la capa metálica bajo estudio, separados por una brecha de aire de igual espesor que la película. Los mínimos en este caso se atribuyen a la excitación de los modos simétrico y antisimétrico, como lo predice la relación de dispersión electromagnética. Como se puede observar los mínimos son más pronunciados a medida que el grosor de la película disminuye. Cuando el grosor de la película aumenta más allá de cierto valor, éstos mínimos degeneran en uno solo que corresponde a la excitación de modos simples de superficie.

Las relaciones de dispersión para los modos de una película delgada como se obtiene a partir de la ecuación 3 se presentan en la figura 4 para una película de aluminio con un grosor  $d = 112 \text{ \AA}$ . Para comparación, en la misma figura aparece la relación de dispersión obtenida por la simulación de *ATR* a través de la relación  $k_x = (\omega_{\min} n_p \sin \theta) / C$ . En esta fórmula  $\omega_{\min}$  es la frecuencia del mínimo de reflectancia. Como se puede ver las curvas son muy parecidas, lo cual indica que existe la posibilidad de excitar y detectar los modos en la película metálica mediante *ATR*.

### B. Sección Transversal

Ahora presentamos los resultados para la sección transversal  $P(\omega)$  para electrones incidiendo con un ángulo  $\theta = 45^\circ$  con una energía cinética de 200 eV. En la figura 5 se muestra el espectro para electrones dispersados casi especularmente por una película delgada de aluminio depositada sobre un substrato de CdS. Las curvas corresponden a diferentes grosores de la película. Para grosores de 15 y 20  $\text{ \AA}$  observamos dos picos en la región de baja energía que corresponden a dos diferentes valores del vector de propagación y pueden asociarse a la excitación de dos modos de superficie, además, a altas frecuencias se obtiene un pico prominente que se debe al plasmón de superficie. Para grosores mayores, se observa un solo pico a la frecuencia del plasmón de superficie. En la figura 6 se muestran nuestros resultados para  $P(\omega)$  para cuatro diferentes grosores de la película delgada, en este caso, sin substrato. La figura muestra dos picos que aparecen para grosores de 15 y 20  $\text{ \AA}$ , estos picos, para grosores mayores se transforman en uno solo, el cual corresponde al plasmón de superficie.

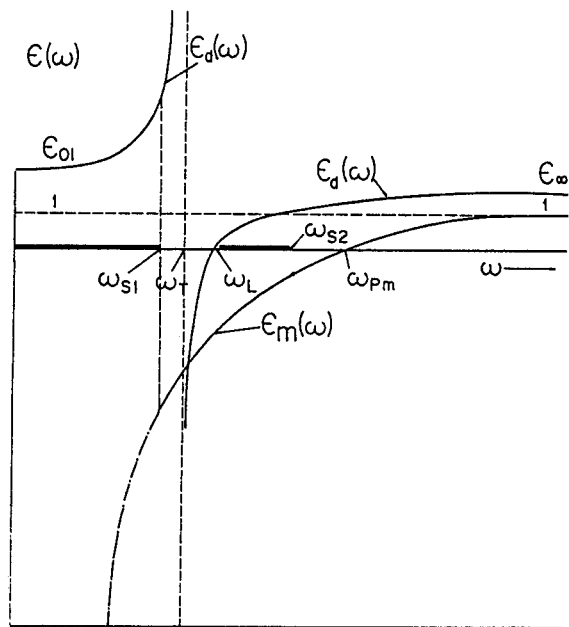


Fig. 1 Funciones dieléctricas hipotéticas de un dieléctrico y un conductor. La figura muestra las ventanas de propagación. I.  $0 < \omega < \omega_{s1}$  y II.  $\omega_L < \omega < \omega_{s2}$ .

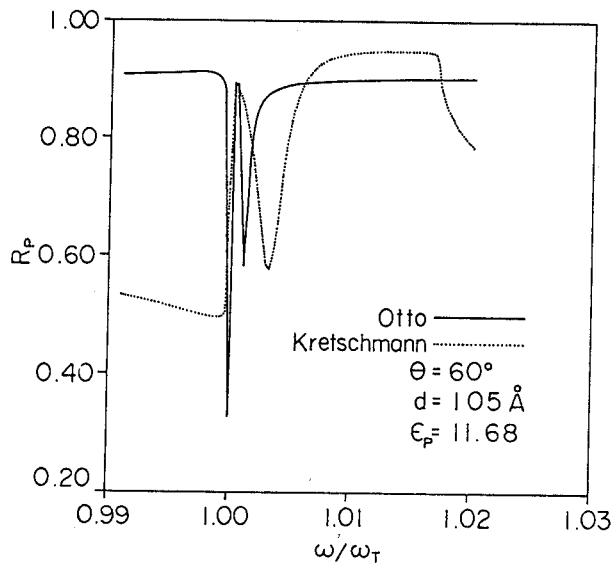


Fig. 2 Espectros de reflectancia para los arreglos de Otto y Kretschmann.  $\theta = 60^\circ$ ,  $d = 105 \text{ \AA}$  y  $n_p = 3.417$ . La interfase considerada es Al - CdS.

## CONCLUSIONES

Los resultados de la simulación de los experimentos de ATR para el caso del arreglo de Otto reproducen los dos mínimos predichos por las relaciones de dispersión electromagnéticas. Para el arreglo de Kretschmann aparece un solo mínimo bien definido en la ventana superior de propagación, esto significa que en esta geometría solo un plasmón de interface puede excitarse, nuestros resultados para películas metálicas concuerdan con las predicciones hechas por otros autores sobre la existencia de modos y su dependencia con el grosor de la película. Nuestros resultados para las películas metálicas apoyan la predicción de la existencia de los modos simétrico y antisimétrico, es decir para espesores pequeños de la película, existe acoplamiento entre los modos superficiales para formar los modos simétrico y antisimétrico, pero esta interacción desaparece para grosores grandes.

Los resultados de la simulación de experimentos de dispersión de electrones de baja energía muestran la existencia de dos picos correspondientes a los plasmones de interfase para películas delgadas, además del pico prominente asociado al plasmón de superficie. Cuando se incrementa el grosor de la película, se detecta solamente el pico correspondiente al plasmón de superficie. Nótese que en ausencia del substrato y para grosores pequeños de la película el acoplamiento de los modos simétrico y antisimétrico se manifiesta en los dos picos del espectro. Cuando el grosor de la película se incrementa, el acoplamiento disminuye hasta degenerar en un solo pico.

Pensamos que las dos técnicas estudiadas aquí, pueden aplicarse satisfactoriamente de manera complementaria en el análisis experimental de plasmones en películas metálicas e interfaces dieléctrico-metal.

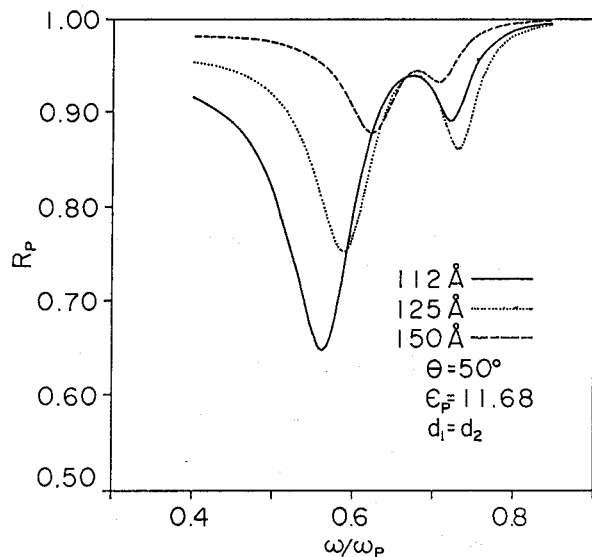
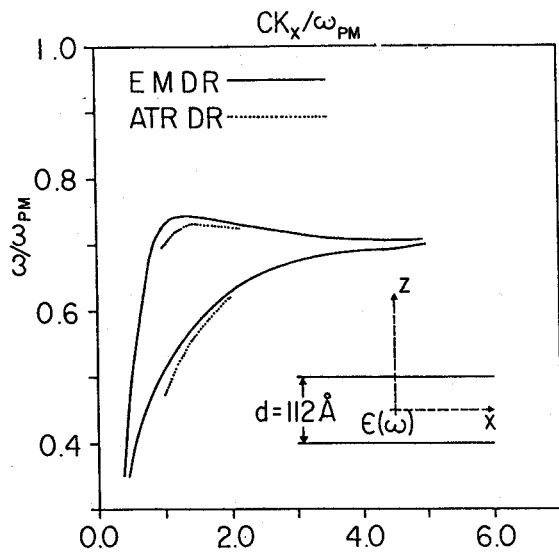
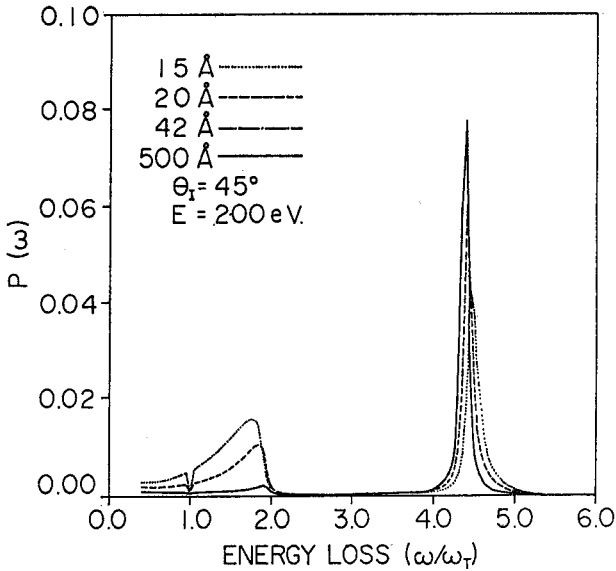


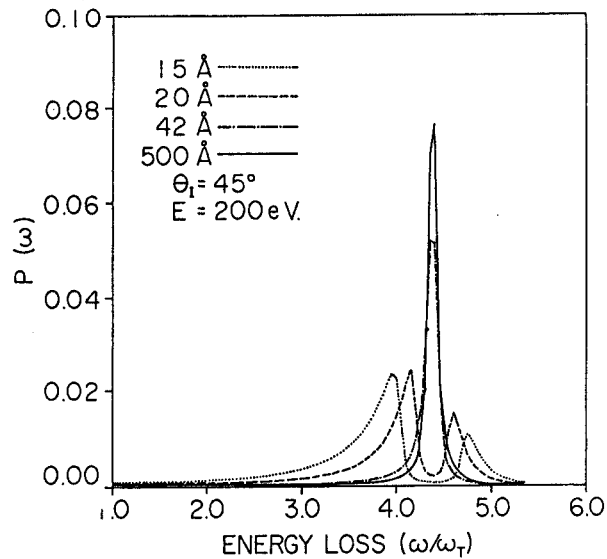
Fig. 3. Mínimos de ATR para una película de Al. Se consideran tres grosores diferentes  $d_2$ , con  $d_2 = d_1$  ( $d_1$  es el grosor de la película de aire).



**Fig. 4.** Relación de Dispersión Electromagnética (EMDR), como se obtiene de la ec.(3) y curvas de la Relación de Dispersión obtenidas por simulación de ATR. En este caso el gap de aire  $d_1 = d_2 = 112 \text{ \AA}$ . Los parámetros correspondientes a la película de Al se especifican en el texto.



**Fig. 5.** Sección transversal de dispersión para películas delgadas de Al sobre un sustrato de CdS.  $\theta = 45^\circ$  y  $E = 200 \text{ eV}$ .



**Fig. 6.** Sección transversal de dispersión para películas delgadas de Al sin sustrato para los mismos parámetros que en la fig. 5.

#### REFERENCIAS

1. Trabajo apoyado parcialmente por CONACyT.
2. P. Halevi, Surf. Science, **76**, 64 (1978).
3. S. Ushioda in Progress in Optics, Ed. E. (North-Holland 1981).
4. P. Halevi and G. Hernández-Cocoletzi, Phys. Rev. B, **18**, 590 (1978).
5. Yoshiko Nakao and Karuka Yamada, Surf. Science, **176**, 578 (1986).
6. C. Powell, Phys. Rev. **175**, 972 (1968).
7. R.J. Bell, R.W. Alexander, Jr., C.A. Ward and I.L. Tyler, Surf. Science **48**, 253 (1975).
8. A. Otto, Z. Phys. **216**, 398 (1968).
9. E. Kretschmann and H. Raether, Z. Naturforsch. A **23**, 2135 (1968).
10. R.E. Camley and D.L. Mills, Phys. Rev. B, **29**, 1695 (1984).
11. S.R. Streight and D.L. Mills, Phys. Rev. B, **38**, 8526 (1988).
12. K.L. Kliewer and Ronald Fuchs, Phys. Rev. **172**, 607 (1968).
13. J.D. Jackson, Classical Electrodynamics, (Wiley, New York 1975).
14. P. Halevi, G. Hernández-Cocoletzi and F. Ramos in Excitons in Confined Systems. Editors: R. del Sole, A. D'Andrea, and A. Lapicciarella, (Springer-Verlag 1987).
15. J.C. Quail, J.G. Rako, and H.J. Simon. Optics Letters **8**, 377 (1983).