

Dissertation Alwin Klick

ZEITAUFGELÖSTE PHOTOEMISSIONS-
ELEKTRONENMIKROSKOPIE VON
GRENZFLÄCHENNAHEN LICHTMODEN

Alwin Klick

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der
Christian-Albrechts-Universität zu Kiel

| | |
|-----------------------------|-----------------------------|
| Erstgutachter: | Prof. Dr. Michael Bauer |
| Zweitgutachter: | Prof. Dr. Carsten Reinhardt |
| Tag der mündlichen Prüfung: | 20.06.2019 |
| Zum Druck genehmigt: | 16.07.2019 |

gez. Prof. Dr. Frank Kempken
Dekan

INHALTSVERZEICHNIS

| | |
|--|-----|
| KURZFASSUNG | VII |
| ABSTRACT | IX |
| | |
| I GRUNDLAGEN | 1 |
| 1 EINLEITUNG | 3 |
| 1.1 Plasmonik und Nanooptik | 3 |
| 1.2 Untersuchung von oberflächennahen Lichtwellen mittels TR-PEEM | 5 |
| 2 OBERFLÄCHENNAHE LICHTWELLEN | 7 |
| 2.1 Anregung | 7 |
| 2.2 Gebeugtes Licht | 8 |
| 2.3 Oberflächenplasmon-Polariton | 9 |
| 2.4 Schichtwellenleiter | 12 |
| 3 ABBILDUNG VON OBERFLÄCHENNAHEN LICHTWELLEN MITTELS PEEM | 15 |
| 3.1 Zeitaufgelöste Photoemissions-Elektronenmikroskopie | 15 |
| 3.2 UHV-System | 16 |
| 3.3 PEEM | 17 |
| 3.4 fs-Laser-System | 19 |
| 3.5 Detektion von Oberflächenwellen: Interferenz und Schwebung | 21 |
| 3.6 Zeitaufgelöste Untersuchungen | 23 |
| | |
| II ERGEBNISSE | 27 |
| 4 WELLENLEITER-MODEN IN SILIZIUMDIOXID | 29 |
| 4.1 Durchführung und Ergebnis | 29 |
| 4.2 Interne Photoemission und die Untersuchung von Isolatoren | 30 |
| <i>Manuskript: „Detection and characterization of attenuated multimode waveguiding in SiO₂ slabs“</i> | 32 |

| | | |
|------------|---|-----------|
| 5 | SPP-EINKOPPLUNG AN STUFENKANTEN | 39 |
| 5.1 | Kopplungskonstante | 39 |
| 5.2 | Durchführung und Ergebnis | 40 |
| 5.3 | Vergleich mit Daten aus der Literatur | 41 |
| | <i>Manuskript: „Amplitude and Phase of Surface Plasmon Polaritons Excited at a Step Edge“</i> | <i>42</i> |
| 5.4 | Korrektur zum Manuskript | 50 |
| 5.5 | Wirkungsparameter | 50 |
| 5.6 | Explizite Wellenlängenabhängigkeit | 52 |
| 6 | OBERFLÄCHENNORMALER LICHTEIFALL | 55 |
| 6.1 | Senkrechter und streifender Einfall | 55 |
| 6.2 | Transmissive Anregung | 57 |
| | <i>Manuskript: „fs-Time-resolved PEEM operated at sample illumination from the rear side“</i> | <i>59</i> |
| 6.3 | Interferenz von LR- und SR-SPP | 66 |
| 7 | PHOTOEMISSIONS-KONTRAST BEI OBERFLÄCHENNORMALEM LICHTEIFALL | 69 |
| 7.1 | Richtungsabhängigkeit der Photoemission | 69 |
| 7.2 | Interferenz stehender SPP-Wellen: SNOM | 72 |
| 7.3 | Interferenz stehender SPP-Wellen: PEEM | 75 |
| 8 | FAZIT | 79 |
| III ANHANG | | 81 |
| A | ANALYTISCHE FUNKTION ZUR BESCHREIBUNG DES SCHWEBUNGSMUSTERS | 83 |
| A.1 | Obere Einhüllende | 83 |
| A.2 | Untere Einhüllende | 86 |
| A.3 | Schwebungs-Amplitude | 87 |
| B | GLEICHUNGEN UND NEBENRECHNUNGEN ZUR ELEKTRODYNAMIK | 91 |
| B.1 | Maxwellgleichungen im SI | 91 |
| B.2 | Stetigkeitsbedingungen an Grenzflächen | 91 |
| B.3 | SPP-Poynting-Vektor | 92 |
| LITERATUR | | 95 |
| DANKSAGUNG | | 105 |

KURZFASSUNG

Die vorliegende Arbeit ist ein Beitrag zum Forschungsgebiet der Nanooptik, deren erklärtes Ziel es ist, photonische Anwendungen in den Sub-Wellenlängenbereich zu verkleinern bzw. die Taktrate elektronischer Anwendungen in den Bereich optischer Frequenzen zu erhöhen. Ein Teilaspekt der Nanooptik und Gegenstand der vorliegenden Arbeit ist die Untersuchung der Propagationsdynamik ultrakurzer Lichtpulse entlang von Oberflächen. Dazu wird die zeitaufgelöste Photoemissions-Elektronenmikroskopie (TR-PEEM) verwendet. Das PEEM bietet eine Ortsauflösung im Nanometerbereich und ist sensitiv auf das elektrische Nahfeld. Es ist daher gut zur Untersuchung nanooptischer Anregungen geeignet. Die Kombination mit Femtosekunden-Laserpulsen und Verwendung der Pump-Probe-Technik ermöglicht die Beobachtung der Anregungsdynamik auf den relevanten Längen- und Zeitskalen.

Die erste Studie, die in dieser Arbeit vorgestellt wird, befasst sich mit der Ausbreitung von Wellenleitermoden in einer Siliziumdioxidschicht. Es wird gezeigt, dass diese Moden mit dem PEEM beobachtet und quantitativ charakterisiert werden können. Im Hinblick auf zukünftige Experimente ist interessant, dass mit SiO_2 ein sehr guter Isolator mit dem PEEM untersucht wird.

Den Kern der Arbeit bildet jedoch die Untersuchung von Oberflächenplasmon-Polaritonen (SPPs), die entlang der Gold-Vakuum-Grenzfläche propagieren. In der zweiten Studie wird die laserinduzierte Anregung von SPP-Moden an Kanten unterschiedlicher Höhe systematisch und quantitativ untersucht. Unterschiede in der Einkopplungseffizienz lassen sich hauptsächlich auf Interferenz zurückführen. Es konnte eine für die vorliegende Anregungsgeometrie optimale Stufenhöhe bestimmt werden.

Die Anregung mit senkrecht zur Oberfläche einfallendem Licht bietet große Vorteile bei der Untersuchung zweidimensionaler Strukturen. Ebenfalls vorteilhaft ist die Möglichkeit zur Begrenzung der Anregung auf einen sehr kleinen Bereich. Es wurde daher eine Einkopplungseinheit aufgebaut und in Betrieb genommen, die beide Anforderungen erfüllt. Die Tauglichkeit des Aufbaus wird in der dritten Studie wiederum anhand der Anregung und Detektion von SPP-Moden demonstriert. Neben der Gold-Vakuum-Mode wird die SPP-Mode an der verdeckten Gold-Substrat-Grenzschicht beobachtet.

Den Abschluss bildet ein noch nicht abgeschlossenes Projekt, mit dem untersucht werden kann, ob der PEEM-Kontrast und damit die Photoemissionsausbeute vom senkrechten oder parallelen Anteil des elektrischen Feldes dominiert wird. Es werden erste, vielversprechende Ergebnisse gezeigt, die einen überproportional starken Anteil des senkrechten elektrischen Feldes nahelegen.

ABSTRACT

The present thesis contributes to the field of nanooptics, the goal of which is to downsize photonic applications to the sub-wavelength scale and increase the clock speed of electronic applications to optical frequencies. Part of nanooptics and object of the present thesis is to study the propagation dynamics of ultrashort light pulses along surfaces. To this end, time-resolved photoemission electron microscopy (TR-PEEM) is applied. PEEM, with its nanometer resolution and sensitivity to the electrical near field, is well-suited for the investigation of nanooptical excitations. The combination with femtosecond laser pulses using the pump-probe scheme enables the observation of excitation dynamics on the relevant length and time scales.

The issue of the first study presented in the course of this thesis are propagating waveguide modes in a silicon dioxide slab. It is shown that these modes can be observed and characterized quantitatively with the PEEM instrument. It is interesting to note that, here, the PEEM was used to examine SiO_2 , a very good insulator. This is of great importance for future experiments.

The focus of this thesis is, however, on the study of surface plasmon polaritons (SPPs) propagating along a gold/vacuum interface. In the second study, the laser-induced excitation of SPPs at step edges of different heights is analyzed in a systematic and quantitative manner. Due to interference, the main parameter determining the coupling efficiency is the ratio between step height H and excitation wavelength λ . An optimal step height for the excitation geometry in question could be determined.

The excitation with normally incident light is advantageous for the investigation of two-dimensional structures. Of further advantage is the possibility of locally confined excitation. To this end, a novel coupling device which satisfies both requirements was build and put into operation. Its suitability for the intended use is shown in the third study by means of excitation and detection of SPP modes. In addition to the gold/vacuum mode, the SPP mode at the buried interface between gold layer and substrate is observed.

Lastly, an experiment is presented to determine whether the PEEM contrast and thereby the photoemission yield is dominated by the in-plane or out-of-plane component of the electric field. First promising results of this work in progress suggest a disproportionately high contribution of the out-of-plane component.

TEIL I
GRUNDLAGEN

1 EINLEITUNG

Die vorliegende Dissertation bündelt die Ergebnisse von vier Experimenten, in denen die zeitaufgelöste Photoemissions-Elektronenmikroskopie zum Einsatz kommt, um grenzflächennahe Lichtmoden zu charakterisieren. Den Kern dieser Untersuchungen bildeten Oberflächenplasmon-Polaritonen (*Surface Plasmon Polaritons*, SPPs), die entlang der Gold-Vakuum-Grenzfläche propagieren. Ferner wurde die Ausbreitung von Wellenleitermoden in einer Siliziumdioxidschicht untersucht.

Die Arbeit gliedert sich in zwei Teile. Im Grundlagenteil werden oberflächennahe Lichtwellen (Kapitel 2) und die zeitaufgelöste Photoemissions-Elektronenmikroskopie (Kapitel 3) eingeführt. Im zweiten Teil werden drei Studien (Kapitel 4-6) und ein unabgeschlossenes Projekt (Kapitel 7) vorgestellt. Da es sich bei der vorliegenden Dissertation um eine kumulative Arbeit handelt, sind die Manuskripte zu den Studien – die bereits in einschlägigen Fachzeitschriften erschienen sind – beigefügt und bilden die Grundlage des Ergebnisteils.

Die vorliegende Arbeit ist ein Beitrag zum Forschungsgebiet der Plasmonik bzw. Nanooptik. Ausgehend von der klassischen Optik wird daher im nächsten Abschnitt zunächst eine kurze Einführung in das Forschungsgebiet gegeben, bevor im zweiten Abschnitt ein Ausblick auf die vorliegende Arbeit folgt.

1.1 PLASMONIK UND NANOOPTIK

Die *Optik* befasst sich mit der Ausbreitung elektromagnetischer Wellen. Im Rahmen der klassischen Elektrodynamik lassen sich nahezu alle optischen Phänomene durch die Maxwellgleichungen und die Lorentzkraft beschreiben [1]. Die klassische Optik gilt daher schon seit über hundert Jahren als verstanden. Entsprechend werden wenig neue Erkenntnisse erwartet – die Disziplin ist schon vor langer Zeit aus dem Stadium der Grundlagenforschung in das der Entwicklung übergegangen. Heutzutage steht der Anwendungsbezug im Vordergrund: Eine Optikerin baut Brillen, Kameras, Mikroskope.

Optik

Prominente Neuentwicklungen im letzten Jahrhundert sind der Laser [2] sowie Halbleiterbauteile wie Leucht- und Photodioden. Diesen Bauelementen und den zugrundeliegenden physikalischen Effekten ist gemein, dass zu ihrem Verständnis die Teilchennatur des Lichtes – das Photon – berücksichtigt werden muss. Entsprechend heißt die neu entstandene Disziplin *Photonik*. Die Ähnlichkeit mit dem Wort *Elektronik* ist dabei durchaus beabsichtigt [3]. So ist in den angesprochenen Dioden die Erzeugung bzw. Detektion des Lichtes eng mit elektronischen Vorgängen verbunden. Die Zielsetzung der

Photonik

Photonik ist, frei übersetzt nach Lifante, „die Kontrolle von Licht durch Elektronen und anders herum“ [4]. Photonische Bauteile können aufgrund des Beugungslimits jedoch nicht beliebig klein gefertigt werden. So muss beispielsweise der Durchmesser eines Glasfaserkabels immer mindestens halb so groß wie die Wellenlänge des zu leitenden Lichtes sein.

Plasmonik und
Nanooptik

An diesem Punkt setzt die *Plasmonik* an. Sie befasst sich mit der Untersuchung von Oberflächenplasmonen, die es erlauben, Licht im sichtbaren Spektralbereich räumlich auf Bereiche unterhalb des Beugungslimits zu lokalisieren. Das Ziel ist es, Oberflächenplasmonen zu nutzen, um einerseits photonische Anwendungen in den Sub-Wellenlängenbereich zu überführen und andererseits die optischen Frequenzen für die Elektronik zu erschließen [5–9]. Für die Überführung der Photonik in den Sub-Wellenlängenbereich ist ferner der Begriff *Nanooptik* gebräuchlich, der die Zielsetzung präziser beschreibt und daher im Folgenden bevorzugt verwendet wird. Zwischen den beiden Disziplinen Plasmonik und Nanooptik gibt es große Überschneidungen, aber auch Unterschiede. Neben der Nanooptik ist beispielsweise die Sensorik ein wichtiger Teilbereich der Plasmonik. Instrumente auf Basis der Oberflächenplasmon-Resonanz sind schon seit den 1990er Jahren fester Bestandteil der Biosensorik [10]. Gleichzeitig umfasst auch die Nanooptik Gebiete jenseits der Plasmonik. So ist die feine Spitze des optischen Rasternahfeldmikroskops (*Scanning Near-Field Optical Microscope*, SNOM) ein Beispiel für eine nanooptische Anwendung auf Basis dielektrischer Materialien. Im Sinne der Nanooptik gelangte die Plasmonik bisher nur in einigen Nischenanwendungen zur Anwendungsreife. Ultraschnelle Prozessoren mit Taktraten im Bereich optischer Frequenzen lassen dagegen noch auf sich warten. Insofern ist „The Promise of Plasmonics“ [11] noch nicht eingelöst.

Nahfeld

Praktisch möglich wurde die Beschäftigung mit der Nanooptik durch neue experimentelle Techniken, die das elektrische *Nahfeld* abbilden, wie beispielsweise das oben angesprochene SNOM [12] sowie das in dieser Arbeit verwendete Photoemissions-Elektronenmikroskop (PEEM) [13–16]. Als Nahfeld wird dabei das Feld direkt an der Oberfläche bezeichnet. Es unterscheidet sich qualitativ vom Fernfeld, welches das Feld in großer Entfernung beschreibt und mit konventionellen optischen Methoden beobachtbar ist. Ein gut bekanntes Beispiel zur Veranschaulichung des Unterschiedes ist die Beugung am Spalt. Hier unterscheidet sich die Fresnelbeugung direkt hinter dem Spalt qualitativ von der Fraunhoferbeugung in großer Entfernung. Die Fresnelbeugung gehört streng genommen auch zum Fernfeld, da sie mit konventioneller Optik beobachtbar ist, befindet sich aber an der Grenze zum Nahfeld. Eine Besonderheit des Nahfeldes ist, dass sich die Intensität auf Längenskalen signifikant ändern kann, die kleiner sind als die Vakuumwellenlänge des verwendeten Lichtes. Der Zugang zum Nahfeld bedeutet daher im Umkehrschluss, dass die Eigenschaften des Lichtes im Sub-Wellenlängenbereich – die Nanooptik – der Untersuchung zugänglich wird. Vervollständigt wurde das Repertoire durch die Entwicklung neuer numerischer Methoden sowie der entsprechenden Rechenleistung. Dazu zählen beispielsweise Rechnungen auf Basis der *finite-difference time-domain* (FD-TD) [17], der diskreten Dipolapproximation (DDA) [18] oder der

finite-Elemente-Methode (FEM).

Ein Teilaspekt der sehr weit gefassten Aufgabe der Nanooptik ist die Untersuchung der *Dynamik* einer elektromagnetischen Anregung an geeigneten Modellsystemen. Diesem Ziel widmet sich das Schwerpunktprogramm 1391 der deutschen Forschungsgemeinschaft, *Ultrafast Nanooptics*, in dessen Rahmen auch die vorliegende Arbeit entstand. Untersuchungsgegenstand des Schwerpunktprogramms ist „die Ein- und Auskopplung von ultrakurzen Lichtimpulsen in Nanostrukturen, Propagation breitbandiger nanooptischer Anregungen, nichtlineare nanooptische Phänomene sowie die kohärente Steuerung von nanooptischen Anregungen“ [19]. Zur Untersuchung der Anregungsdynamik sind experimentelle Methoden nötig, die einerseits eine *Ortsauflösung* besitzen, mit der Objekte abgebildet werden können, deren Abmessungen kleiner sind als die verwendete Lichtwellenlänge. Andererseits muss die *Zeitauflösung* des Experimentes geeignet sein, ultraschnelle Prozesse mit Dauern im Femtosekundenbereich zu beobachten. Eine erprobte Methode ist die Kombination eines PEEM mit der Anregung durch Femtosekunden-Laserpulse [20–22], die auch in der vorliegenden Arbeit verwendet wird. Die ultrakurze Anregung und zeitversetzte Abfrage erlaubt die zeitaufgelöste Beobachtung der Anregungsdynamik.

Ultraschnelle
Nanooptik

1.2 UNTERSUCHUNG VON OBERFLÄCHENNAHEN LICHTWELLEN MITTELS TR-PEEM

Die zeitaufgelöste Photoemissions-Elektronenmikroskopie (*time-resolved PEEM*, TR-PEEM) ist die zentrale Messmethode, die den in dieser Arbeit vorgestellten Experimenten zugrunde liegt. Für das Projekt *Femtosecond dynamics and control of metal-organic hybrid plasmonic systems* [23] aufgebaut und in Betrieb genommen, wurde das Messsystem bereits in der Vergangenheit erfolgreich zur Untersuchung plasmonischer Anregungen in der Arbeitsgruppe „Ultrakurzzeit-Dynamik“ von Prof. Dr. Michael Bauer an der CAU Kiel verwendet [24–31]. Für die in dieser Dissertation vorgestellten Untersuchungen stellt es den Ausgangspunkt dar. Die durchaus beeindruckenden Fähigkeiten des Messsystems legen dabei gewissermaßen die Richtung der durchgeführten Experimente fest. Um der zentralen Bedeutung für diese Arbeit Rechnung zu tragen, werden in Kapitel 3 der experimentelle Aufbau sowie die Mess- und Auswertemethoden detailliert vorgestellt.

Von der sehr weit gefassten Zielsetzung der ultraschnellen Nanooptik wird in dieser Arbeit nur ein Teilaspekt bearbeitet. Der Fokus liegt auf der Untersuchung propagierender Moden an weit ausgedehnten Ober- bzw. Grenzflächen. Dazu zählen auch die Wellenleitermoden, die in der Studie „Detection and characterization of attenuated multimode waveguiding in SiO₂ slabs using photoemission electron microscopy“ [32] in Kapitel 4 untersucht werden. Diese sind streng genommen nicht Teil der Nanooptik, da sie nicht auf Bereiche unterhalb des Beugungslimits beschränkt sind und daher der konventionellen Photonik zugerechnet werden können. Die propagierenden Moden, die an

Propagierende
Moden

oder nahe einer Grenzfläche auftreten, werden in Kapitel 2 vorgestellt. Hier ist besonders das Oberflächenplasmon-Polariton hervorzuheben. Die *Anregung* von SPP-Wellen ist das Thema von Kapitel 5. In der hier vorgestellten Studie „Amplitude and phase of surface plasmon polaritons excited at a step edge“ [33] wird die SPP-Einkopplung an Stufenkanten auf einer Goldoberfläche quantitativ untersucht. Die Beobachtung steht dabei im Einklang mit dem Ergebnis numerischer Rechnungen und kann auf einfache Weise durch Interferenz erklärt werden. Im Hinblick auf zukünftige Experimente ist besonders interessant, dass ein optimaler Wert für die Stufenhöhe gefunden wird.

Lokalisierte und
senkrechte
Anregung

Durch das Messsystem ist bereits eine sehr gute Orts- und Zeitauflösung gegeben. Voraussetzung für die Untersuchung komplexer Nanostrukturen ist darüber hinaus die Möglichkeit, lokal begrenzt anregen zu können. Zu diesem Zweck wurde eine stark fokussierende Einkoppeleinheit aufgebaut, die es erlaubt, das einfallende Licht von der Probenrückseite aus auf die Oberfläche zu bündeln. Die Realisierung der Einkopplungseinheit wird in der Kapitel 6 beigefügten Studie „Femtosecond time-resolved photoemission electron microscopy operated at sample illumination from the rear side“ [34] beschrieben. Neben der möglichen hochlokalen Anregung hat diese Anregungsgeometrie den weiteren Vorteil, dass das Licht senkrecht zur Oberfläche einfällt. Das erleichtert die Untersuchung von zweidimensionalen Strukturen, wie detailliert in Kapitel 6 diskutiert wird. Durch diese Erweiterung des experimentellen Aufbaus wurde wichtige Vorarbeit für zukünftige Forschung geleistet. Genutzt wird die Möglichkeit zur senkrechten Anregung in dem in Kapitel 7 vorgestellten, noch nicht abgeschlossenen Projekt. Hier wird über die Interferenz stehender SPP-Wellen die Kontrastbildung im PEEM untersucht.

2 OBERFLÄCHENNAHE LICHTWELLEN

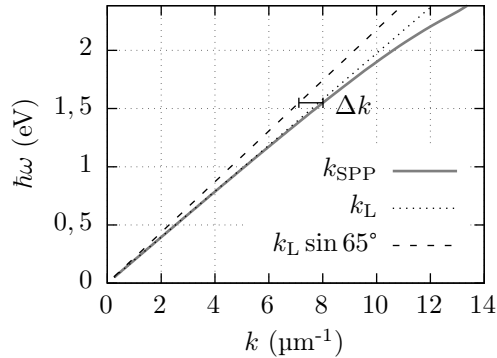
In der vorliegenden Arbeit werden Lichtwellen untersucht, die an oder nahe der Oberfläche propagieren. Die wichtigsten dieser Wellen werden in diesem Kapitel vorgestellt. Hierbei handelt es sich um gebeugtes Licht, Oberflächenplasmon-Polariton und Wellenleitermoden. Abhängig von der Geometrie können eine oder mehrere Wellen angeregt werden. Aufgrund der Energieerhaltung haben sie alle die gleiche Frequenz wie die einfallende Welle, unterscheiden sich aber in ihrer Wellenzahl. Analog zu Eigenschwingungen spricht man von *optischen Moden*. Besonders offensichtlich ist diese Analogie für Wellenleitermoden. Hier gibt die Modenordnung die Anzahl der Intensitätsknoten im Querschnitt des Wellenleiters an. Im weiter gefassten Wortsinn werden auch andere elektromagnetische Wellen als Moden bezeichnet. So ist die transversal-elektromagnetische (TEM) Welle im Vakuum die einzig existierende Mode. Elektrisches und magnetisches Feld stehen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung (und zueinander). Bei Wellenleitermoden ist in der Regel nur eine Komponente streng senkrecht zur Ausbreitungsrichtung, die andere hat einen Anteil parallel dazu. Ist das Magnetfeld ausschließlich senkrecht, handelt es sich um eine transversal-magnetische (TM) Mode, bei senkrechtem elektrischen Feld entsprechend um eine transversal-elektrische (TE). In dieser Arbeit werden nur TM-Moden untersucht, zu denen auch das Oberflächenplasmon-Polariton (SPP) gehört. Bevor die verschiedenen Moden im Folgenden detailliert betrachtet werden, wird zunächst deren Anregung erläutert.

2.1 ANREGUNG

Sämtliche hier untersuchte Wellen haben einen Wellenvektor \mathbf{k} , der sich in Betrag und/oder Richtung von dem des einfallenden Lichtes unterscheidet. Diese Differenz $\Delta\mathbf{k}$ muss zur effektiven Anregung überwunden werden. Dies ist in Abb. 2.1 beispielhaft für das Gold-Vakuum-SPP (siehe Abschnitt 2.3) gezeigt. Licht- und SPP-Welle haben hier die gleiche Energie von 1,55 eV, was einer Lichtwellenlänge von 800 nm entspricht. Die Wellenzahldifferenz Δk ergibt sich aus der SPP-Wellenzahl k_{SPP} und dem Anteil der Lichtwellenzahl in Ausbreitungsrichtung der SPP-Welle. Dieser ist hier mit $k_{\text{L}} \sin 65^\circ$ gegeben, wobei 65° der Einfallswinkel ist.

Zur Überwindung der Wellenzahldifferenz existieren verschiedene Möglichkeiten: Es kann beispielsweise ein Einkoppelgitter verwendet werden, dessen Gittervektor \mathbf{G} exakt der benötigten Wellenvektordifferenz entspricht. Dies hat jedoch mehrere Nachteile. Erstens ist die benötigte Wellenzahldifferenz für eine bestimmte Mode in der Regel

Abb. 2.1: Dispersion des Gold-Vakuum-SPP im Vergleich zur Lichtdispersion. Die Wellenzahldifferenz Δk muss zur Anregung überwunden werden.



wellenlängenabhängig. Für eine Messung mit verschiedenen Wellenlängen müssten demnach jeweils unterschiedliche Gitter verwendet werden. Zweitens verhält sich das Gitter wie ein Frequenzfilter, der den angeregten Puls spektral begrenzt und damit zeitlich verbreitert. Das ist ein Nachteil bei zeitaufgelösten Messungen, wenn ultrakurzer Pulse mit intrinsisch breitem Spektrum verwendet werden. Drittens ist die Wellenzahldifferenz vor der Messung nicht immer bekannt. Oft (z.B. in [31]) ist die Bestimmung der Wellenzahl der angeregten Mode das eigentliche Ziel der Messung. Hier kann kein vorher angepasstes Einkoppelgitter verwendet werden.

Stattdessen wird die Anregung in den Experimenten, die in dieser Arbeit vorgestellt werden, mit Stufenkanten realisiert. Aufgrund der Orts-Wellenzahl-Unschärfe $\Delta x \cdot \Delta k \geq 1$, die direkt aus der Fouriertransformation folgt, kann eine Kante einen Wellenvektor bereitstellen. Je schärfer die Struktur um Realraum ist, desto größer ist die verfügbare Wellenzahldifferenz. Eine einzelne scharfe Kante dient somit als Anregungspunkt für viele verschiedene Moden.




Abb. 2.2: Eine Stufenkante

2.2 GEBEUGTES LICHT

An einer Kante – wie auch an anderen Strukturen – wird Licht gebeugt. An jedem Punkt wird dabei gemäß dem Huygens’schen Gesetz eine Kugelwelle ausgesendet. Ist die Struktur in eine Dimension weit ausgedehnt, entsteht eine Zylinderwelle. Das ist auch bei der in Abb. 2.2 gezeigte Kante der Fall, die gedacht aus der Papierebene herausragt. Das Licht wird ausgehend von der Stufe in alle Richtungen in das umgebende Medium abgestrahlt (siehe Abb. 2.3). Ebenso entsteht eine Zylinderwelle, die in das Probenmaterial hinein strahlt (Abb. 2.4). Der Brechungsindex

$$n = \frac{k_{\text{Mode}}}{k_{\text{Licht}}} \quad (2.1)$$

den diese Welle erfährt ist natürlich gleich dem Brechungsindex n des umgebenden Mediums bzw. des Probenmaterials. Zusätzlich zu eventueller Absorption im Material

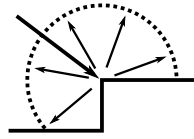


Abb. 2.3: Beugung in das umgebende Medium

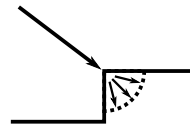


Abb. 2.4: Beugung in die Probe

fällt die Intensität, wie bei allen Zylinderwellen, mit $1/r$ ab, wobei r den Abstand zur Anregungskante bezeichnet. Die Intensität des gebeugten Lichtes ist daher schon in relativ dichter Entfernung zur Kante weitgehend abgeklungen.

Bekannt wurde diese Zylinderwelle, weil sie nahe der Anregungsstruktur mit anderen Oberflächenwellen wie dem Oberflächenplasmon-Polariton interferiert [35], welches weiter unten behandelt wird. In der Literatur hat sich der Begriff der quasi-zylindrischen Welle (*quasi-cylindrical wave*, QCW) [35, 36] etabliert. Damit ist das oberflächennahe Feld des Lichtes gemeint, welches an Strukturen gebeugt wurde, die in zwei Dimensionen kleiner als die Lichtwellenlänge sind. Die QCW unterscheidet sich von einer normalen Zylinderwelle in ihrem Anteil nahe der Oberfläche, dem *Nahfeld*. Für eine ausführliche Diskussion sei auf die Literatur, insbesondere auf den Artikel von Lalanne et al. [35], verwiesen.

Quasi-zylindrische Welle

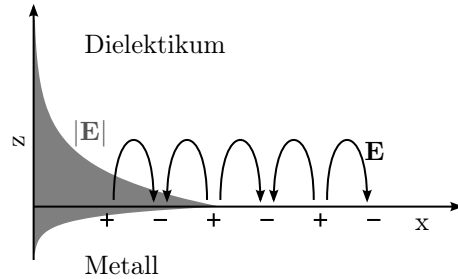
Quasi-zylindrische Wellen sind nicht Untersuchungsgegenstand dieser Arbeit. Relevant sind sie, weil in der Auswertung zur Untersuchung multimodaler Wellenleiter in Kapitel 4 neben den Signaturen der Wellenleitermoden auch die der QCW sichtbar werden. Bei den anderen Messungen wird der Einfluss des gebeugten Lichtes minimiert, indem der zur Auswertung gewählte Bereich erst in einigen μm Abstand zur Kante beginnt.

2.3 OBERFLÄCHENPLASMON-POLARITON

Im Gegensatz zum gebeugten Licht ist das Oberflächenplasmon-Polariton eine *evaneszente* Oberflächenwelle, d.h. eine Welle deren Feld senkrecht zur Oberfläche exponentiell abfällt (siehe Abb. 2.5). Die Welle ist damit gewissermaßen an der Grenzfläche gefangen. Das besondere am SPP ist, dass der Bereich auf den die Welle begrenzt ist, unterhalb des Beugungslimits liegt, also kleiner als die halbe Wellenlänge ist. Wie unten gezeigt wird, existieren SPP-Wellen nur, wenn das Vorzeichen der dielektrischen Funktion an der Grenzschicht wechselt. Dies ist an der Grenze zwischen einem Metall und einem Dielektrikum der Fall. Bevor die Eigenschaften des SPP im einzelnen erläutert werden, erscheint eine Begriffserklärung angebracht.

Ein Plasma, also ein Gas aus geladenen Teilchen schwingt mit einer charakteristischen Plasmon

Abb. 2.5: Betrag (grau) sowie Richtung (schwarz) der elektrischen Felder einer SPP-Mode an einer Metall-Dielektrikum-Grenzschicht.



Frequenz

$$\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{m^*\epsilon_0}} \quad (2.2)$$

dabei ist n die Elektronendichte, e die Elementarladung, m^* die effektive Elektronenmasse und ϵ_0 die elektrische Feldkonstante. Auch ein Metall mit seinem quasi-freien Elektronengas kann als Plasma angesehen werden, mit einer entsprechend hohen Elektronendichte ($5,9 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$ bei Gold [37]). Eine Störung in der Elektronendichte mit einer Frequenz größer als der Plasmafrequenz ω_p bereitet sich im Plasma wellenartig aus mit der Dispersionsrelation [38]:

$$\omega^2 = \omega_p^2 + \frac{3}{5}k^2v_F^2. \quad (2.3)$$

Dabei ist v_F die Fermi-Geschwindigkeit der Elektronen ($0,0047 \cdot c$ bei Gold [37]). Dies ist die Plasmaoszillation oder Langmuir-Welle. Das Quant dieser longitudinalen Elektronendichtewelle ist das *Plasmon* mit der Energie $E = \hbar\omega$ und dem Impuls $p = \hbar k$. Es handelt sich bei dem Plasmon um ein sogenanntes *Quasi-Teilchen*, da es Teilcheneigenschaften analog zum Photon besitzt, anders als dieses aber aus einer Vielzahl beteiligter Teilchen (Elektronen) besteht, die kollektiv um die Ruhelage schwingen.

Plasmon Polariton

Diese Welle ist im Vergleich zu der transversalen elektromagnetischen Welle im Plasma, dem Plamon-Polariton, die sich gemäß

$$\omega^2 = \omega_p^2 + k^2c^2 \quad (2.4)$$

ausbreitet, derartig langsam, dass der zweite Term in (2.3) üblicherweise vernachlässigt wird und man mit $\omega = \omega_p$ die Dispersion eines stationären Teilchens bzw. einer Resonanzfrequenz erhält. Diese Näherung ist zumindest nahe der Lichtlinie voll und ganz zulässig. Elektromagnetische Wellen unterhalb der Plasmafrequenz können nicht propagieren und werden reflektiert. Daraus resultiert der typische Glanz der Metalle mit Plasmafrequenzen oberhalb des sichtbaren Spektralbereiches.

In der Plasmonik als Teilgebiet der Nanooptik ist dagegen mit dem Begriff *Plasmon* häufig das Oberflächenplasmon-Polariton oder das in dieser Arbeit nicht behandelte lokalisierte Oberflächenplasmon gemeint. Das eigentliche Plasmon wird zur Abgrenzung dann meist als *Volumenplasmon* bezeichnet. Volumenplasmonen sind nicht Gegenstand der vorliegenden Arbeit.

Die Eigenschaften des SPP werden durch seine Dispersionsrelation beschrieben. Das Standardwerk *Plasmonics: Fundamentals and Applications* [39] zeigt die Herleitung aus den Maxwellgleichungen. Im *Handbook of Surface Plasmon Resonance* [10] wird dagegen dem Ansatz von Cardona [40] gefolgt, der die Dispersionsrelation aus den Fresnelgleichungen herleitet. Dieser originelle und sehr elegante Ansatz wird im folgenden beschrieben. Ausgangspunkt ist der Reflexionskoeffizient für p-polarisiertes Licht¹

$$r^p = \frac{E_r}{E_i} = \frac{n_2 \cos \alpha - n_1 \cos \beta}{n_2 \cos \alpha + n_1 \cos \beta}, \quad (2.5)$$

dabei sind α und β die Winkel des einfallenden bzw. gebrochenen Strahls, n_1 und n_2 die Brechungsindizes von Medium 1 bzw. 2, wobei der einfallende Strahl aus dem Medium 1 kommt, siehe Abb. 2.6. Im Folgenden werden zwei Spezialfälle betrachtet: Setzt man $\alpha + \beta = \pi/2$ wird $\cos \alpha = \sin \beta$ und $\cos \beta = \sin \alpha$. Mit dem Snelliusschen Brechungsgesetz ($n_1 \sin \alpha = n_2 \sin \beta$) wird der Zähler in (2.5) Null. Das führt auf den bekannten Brewster-Winkel ($\tan \alpha = n_2/n_1$), bei dem die Reflexion von p-polarisiertem Licht verschwindet. Setzt man dagegen $\alpha - \beta = \pi/2$, wird $\cos \alpha = -\sin \beta$ und $\cos \beta = \sin \alpha$. Damit verschwindet der Nenner von (2.5) und der Reflexionskoeffizient wird unendlich. Dieser Fakt deckt sich mit der Resonanzbedingung für eine Oberflächenwelle. Anschaulicher formuliert bedeutet dies, dass nahe der Oberfläche eine elektromagnetische Welle mit endlicher Amplitude existieren kann, ohne dass Licht eingestrahlt wird. Analog zum Brewster-Winkel folgt:

$$\tan \alpha = -\frac{n_2}{n_1}. \quad (2.6)$$

In Medium 1 gilt außerdem:

$$\tan \alpha = \frac{k_{\parallel}}{k_{\perp}}; \quad k_{\parallel}^2 + k_{\perp}^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \cdot n_1^2. \quad (2.7)$$

Berechnet man den Winkel α gemäß (2.6), stellt man fest, dass der „Einfallswinkel“ sowohl negativ als auch komplexwertig ist, wenn man $n_1 = 1$ und für n_2 typische Werte eines Metalls (z.B. $n = 0.12 + 5i$ für Gold bei 800 nm [41]) annimmt². Daraus wird deutlich, dass α nicht als Winkel eines einfallenden Strahls zu interpretieren ist. Entsprechend gibt es keinen Einfallswinkel, bei dem der reflektierte Strahl unendlich stark wird, die Energieerhaltung bleibt folglich unverletzt. Vielmehr ist $\tan \alpha$ gemäß (2.7)

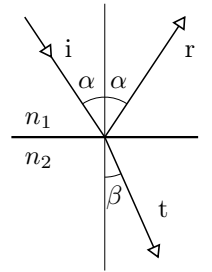


Abb. 2.6: Reflexion und Brechung

¹Licht, dessen elektrisches Feld *parallel* zur Einfallsebene schwingt.

²es ergibt sich $\alpha = (-89,7 - 11,6i)^\circ$.

als Verhältnis der parallelen bzw. senkrechten Anteile der SPP-Wellenzahl zu verstehen. Diese Wellenzahlen sind komplex, wie wir weiter unten sehen werden.

SPP-Dispersions-
relation

Die Lösung des Gleichungssystems (2.6), (2.7) führt direkt auf die Dispersionsrelation des SPP:

$$k_{\parallel} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}}. \quad (2.8)$$

Wie üblich gilt $\varepsilon = n^2$ für beliebige (insbesondere komplexe) n und ε . Der effektive Brechungsindex, den die SPP-Mode bei Ausbreitung entlang der Grenzfläche erfährt, ist gleich dem Wurzelterm in (2.8):

$$n_{\text{SPP}} = \frac{k_{\parallel}}{k_0} = \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}} \quad (2.9)$$

mit $k_0 = \omega/c$.

Evaneszenz

Gleichung (2.8) beschreibt die SPP-Dispersion, es ist aber noch keine *hinreichende Bedingung* für eine evaneszente Oberflächenwelle. Wie oben erwähnt, fällt die Amplitude einer evaneszenten Welle senkrecht zur Oberfläche exponentiell ab. Dafür muss der senkrechte Wellenzahlanteil k_{\perp} hauptsächlich imaginär sein. Gemäß (2.7) folgt

$$k_{\perp 1,2} = \sqrt{k_0^2 \varepsilon_{1,2} - k_{\parallel}^2} = \frac{\omega}{c} \frac{\varepsilon_{1,2}}{\sqrt{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}} \quad (2.10)$$

in Medium 1 bzw. 2. Damit k_{\perp} imaginär wird muss in beiden Medien $k_{\parallel}^2 > k_0^2 \varepsilon$ bzw. $n_{\parallel} > n$ gelten. Dies ist genau dann der Fall wenn $\varepsilon_1 + \varepsilon_2 < 0$ ist. Positives ε_1 vorausgesetzt muss ε_2 demnach negativ sein. Das Vorzeichen der Wurzel in (2.10) muss so gewählt werden, dass $\text{Im}[k_{\perp} \cdot z]$ positiv ist, damit die Intensität mit steigendem Abstand zur Oberfläche abfällt.

Für die oben angesprochene Gold-Vakuum-Grenzschicht ergibt sich bei einer Vakuumwellenlänge von 800 nm in Ausbreitungsrichtung ein Brechungsindex von $n_{\text{SPP}} = 1,02 + 0,001i$ bzw. eine Wellenzahl von $k_{\text{SPP}} = 8,016 + 0,008i \mu\text{m}^{-1}$. Das entspricht einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{SPP}} = 784$ nm sowie einer Propagationslänge von $L_{\text{SPP}} = \frac{1}{2 \text{Im}[k_{\text{SPP}}]} = 64 \mu\text{m}$. Nach dieser Entfernung ist die Intensität der SPP-Welle auf $\frac{1}{e}$ abgefallen. Senkrecht zur Grenzfläche ist $k_{\perp} = -0,04 + 1,6i \mu\text{m}^{-1}$ auf der Vakuumseite sowie $k_{\perp} = 0,92 + 40,1i \mu\text{m}^{-1}$ im Gold. In beiden Fällen ist k_{\perp} hauptsächlich imaginär, d.h. $\text{Im}[k_{\perp}] \gg \text{Re}[k_{\perp}]$. Die Abklinglängen $\hat{z} = \frac{1}{2 \text{Im}[k_{\perp}]}$ sind 312 nm und 12,5 nm auf der Vakuum- bzw. Goldseite. Beide Werte sind, wie eingangs gefordert, kleiner als das Beugungslimit von 400 nm.

2.4 SCHICHTWELLENLEITER

Dielektrische Wellenleiter bestehen aus einem Material mit reellem Brechungsindex n , der größer ist als der Brechungsindex des umgebenden Materials. Totalreflexion

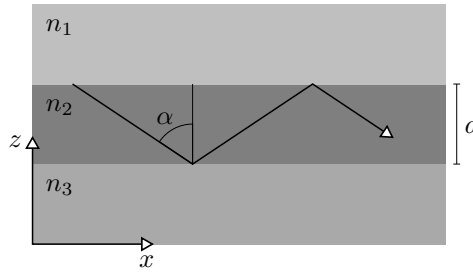


Abb. 2.7: Strahlverlauf in einem Schichtwellenleiter.

an den Grenzflächen fängt das Licht im Inneren des Wellenleiters ein. So können z.B. in Glasfaserkabeln zur Telekommunikation Informationen quasi verlustfrei über weite Distanzen übermittelt werden. Diese Glasfasern sind dabei in zwei Dimensionen (Höhe und Breite) begrenzt, in Ausbreitungsrichtung (Länge) dagegen sehr lang. Für eine Modellhafte Betrachtung kann man sie als unendlich lang annehmen. Bei den hier untersuchten Wellenleitern handelt es sich dagegen um Schichtsysteme, sie sind nur in der Höhe begrenzt sowie in Breite und Länge unbegrenzt. Diese unendliche Ausdehnung senkrecht zu Höhe und Ausbreitungsrichtung vereinfacht das Problem auf ein zweidimensionales, parallel und senkrecht zur Oberfläche. Für eine Ausführliche Diskussion über Wellenleiter sei auf die Literatur, insbesondere *Integrated Photonics: Fundamentals* [4] verwiesen, der die vorliegende Abhandlung im Wesentlichen folgt.

Ausgangspunkt der Betrachtung ist der transmittierte Strahl in Abb. 2.6. Ganz allgemein gilt:

$$\begin{aligned} k_{\parallel} &= \frac{\omega}{c} n_2 \sin \beta \\ k_{\perp} &= \frac{\omega}{c} n_2 \cos \beta. \end{aligned} \tag{2.11}$$

mit dem Brechungsgesetz $n_1 \sin \alpha = n_2 \sin \beta$ und $\sin^2 \alpha + \cos^2 \alpha = 1$ lässt sich (2.11) auch schreiben als:

$$\begin{aligned} k_{\parallel} &= \frac{\omega}{c} n_1 \sin \alpha \\ k_{\perp} &= \frac{\omega}{c} \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \alpha}. \end{aligned} \tag{2.12}$$

Ist $n_1 > n_2$ und ist außerdem der Einfallswinkel α größer als der *kritische Winkel der Totalreflexion* $\alpha_{\text{krit}} = \arcsin(n_2/n_1)$, dann wird der Radikant in (2.12) negativ (reelle $n_{1,2}$ vorausgesetzt) bzw. k_{\perp} wird imaginär. Damit ist der transmittierte Strahl *evaneszent* in Medium 2 mit der Abklinglänge $\hat{z} = \frac{1}{2 \text{Im}[k_{\perp}]}$. Wie ausführlich in [4] diskutiert, wird außerdem die Reflexion $R = |r|^2 = 1$, d.h. der Strahl wird, wie der Name sagt, total reflektiert.

Totalreflexion

Betrachten wir nun ein Schichtsystem wie das in Abb. 2.7 gezeigte, bestehend aus den drei Medien 1, 2 und 3. Der Strahl propagiere in Schicht 2 der Dicke d . An der oberen und unteren Grenzfläche wird das Licht jeweils reflektiert. Der Phasenhub, den dieser

Interferenz-Bedingung

Strahl bei einem kompletten Durchlauf erfährt, ist durch

$$\phi_{\text{ges}} = 2 \frac{\omega}{c} n_2 d \cos \alpha + \phi_{2,1} + \phi_{2,3} \quad (2.13)$$

gegeben. Dabei ist $2n_2 d \cos \alpha$ die optische Weglängendifferenz zwischen einfallendem und zweifach reflektiertem Strahl und $\phi_{2,1}$, $\phi_{2,3}$ die Phasendifferenz aufgrund der Reflexion an oberer bzw. unterer Grenzfläche. Die $\phi_{i,j}$ ergeben sich dabei aus der Phase des (im allgemeinen Fall komplexen) Reflexionskoeffizienten

$$r = \frac{E_i}{E_r} = |r| e^{i\phi} \quad (2.14)$$

und sind abhängig von den jeweiligen Brechungsindizes sowie dem Einfallswinkel α , d.h. $\phi_{i,j} = \phi_{i,j}(n_i, n_j, \alpha)$. Die Bedingung für konstruktive Interferenz fordert, dass der Phasenversatz ϕ_{ges} gleich einem ganzzahligen Vielfachen von 2π ist:

$$2\pi m = 2 \frac{\omega}{c} n_2 d \cos \alpha + \phi_{2,1} + \phi_{2,3} \quad ; \quad m = 0, 1, 2, \dots \quad (2.15)$$

m heißt auch *Ordnung* der Mode und gibt die Knotenzahl der Intensitätsverteilung im Wellenleiter an. Da (2.15) sowohl explizit als auch implizit über die $\phi_{i,j}$ von α , n und ω abhängt, empfiehlt sich eine numerische Lösung, wie in Kapitel 4 durchgeführt. Der *effektive Brechungsindex* ergibt sich aus

Effektiver Brechungsindexindex
Wellenleitermode

$$n_{\text{eff}} = \frac{k_{\parallel}}{k_0} = n_2 \cdot \sin \alpha, \quad (2.16)$$

ist also kleiner als der Brechungsindex des Wellenleitermaterials. Ferner muss der effektive Index größer sein als der Brechungsindex des umgebenden Materials, damit k_{\perp} gemäß (2.12) imaginär und der Strahl damit totalreflektiert wird. Der *Gruppenlaufindex* dagegen, welcher die Ausbreitung der Einhüllenden eines Signals beschreibt, ist aufgrund der längeren Weglänge mit

$$n_g = n_2 / \sin \alpha, \quad (2.17)$$

größer als der des Wellenleitermaterials. Die Gruppengeschwindigkeit eines Lichtpulses ist folglich kleiner als bei gradliniger Ausbreitung.

(Quasi-) Wellenleiter

Als *Wellenleiter* im eigentlichen Sinne werden Systeme bezeichnet, die mindestens eine geführte Welle unterstützen. Das bedeutet im Falle der hier diskutierten Schichtwellenleiter, dass an oberer wie unterer Grenzschicht Totalreflexion auftritt. Vernachlässigbare Absorption vorausgesetzt, propagiert eine solche Welle über sehr weite Strecken praktisch verlustfrei. Daneben gibt es weitere Konfigurationen, die im Folgenden ebenfalls verallgemeinert als Wellenleiter bezeichnet werden. Wenn nur an einer Grenzschicht Totalreflexion auftritt und in das andere Medium (üblicherweise das Substrat) abgestrahlt wird, spricht man von einer Substrat-strahlenden Mode oder Substratmode [4]. Strahlt die Welle in beide umgebenden Medien ab, handelt es sich um eine strahlende Mode. Auch strahlende und Substratmoden können gemäß (2.15) gefunden werden. Eben diese werden in Kapitel 4 untersucht.

3 ABBILDUNG VON OBERFLÄCHENNAHEN LICHTWELLEN MITTELS PEEM

In diesem Kapitel wird erläutert, wie oberflächennahe Lichtwellen mittels PEEM abgebildet werden. Zunächst wird die grundlegende Konzeption skizziert, die Kombination eines PEEM mit ultrakurzen Laserpulsen. Danach wird der experimentelle Aufbau beschrieben. Er gliedert sich in zwei Teilbereiche: Das Ultrahoch-Vakuum-System (UHV-System) und das Lasersystem. Auf das verwendete PEEM wird dabei gesondert eingegangen. Den Abschluss des Kapitels bildet eine Diskussion über die Auswertung der PEEM-Aufnahmen im Hinblick auf propagierende Lichtmoden.

Auf die ausführliche Diskussion von Grundlagen zur Photoemission und der Erzeugung ultrakurzer Laserpulse wird bewusst verzichtet. Zum Verständnis der in dieser Arbeit vorgestellten Experimente ist die *Existenz* dieser Phänomene ausreichend. Ausnahmen von dieser Regel finden sich an relevanter Stelle in den einzelnen Kapiteln. So wird beispielsweise in Kapitel 7 die Richtungsabhängigkeit der Photoemission diskutiert. Für weitere Informationen sei auf die Literatur verwiesen. Photoemission inklusive Zweiphotonen-Photoemission (2PPE) sowie weitere Grundlagen des PEEM werden in *Surface Microscopy with Low Energy Electrons* [16] erläutert. Dort findet sich auch ein ausführlicher Überblick über seine Anwendungsmöglichkeiten. Ultrakurze Pulse werden ausführlich in Kapitel 12 des *Springer Handbook of Lasers and Optics* [42] behandelt.

3.1 ZEITAUFGELÖSTE PHOTOEMISSIONS-ELEKTRONENMIKROSKOPIE

Bei den in dieser Arbeit gezeigten Experimenten wird ein Photoemissions-Elektronenmikroskop mit einem Femtosekunden-Lasersystem kombiniert, um oberflächennahe Lichtwellen abzubilden. Ein PEEM nutzt den Photoeffekt um einen Ausschnitt der untersuchten Probe vergrößert darzustellen. Im Gegensatz zu einem optischen Mikroskop wird nicht das von der Probe ausgehende Licht betrachtet, sondern die vom einfallenden Licht emittierten Elektronen. Daher ist die Auflösung nicht mehr durch die Beugung des Lichtes begrenzt, sondern durch die der Photoelektronen. Damit kann prinzipiell eine Ortsauflösung im Bereich der de-Broglie-Wellenlänge von wenigen Nanometern erreicht werden [43]. In der Praxis ist die Auflösung durch weitere Faktoren begrenzt, wie weiter unten erläutert wird. Bei dem verwendeten Gerät beträgt sie bestenfalls ≈ 30 nm. Da

PEEM

durch die Photoemission laufend Elektronen aus der Probe entfernt werden ist PEEM nur an leitfähigen Proben möglich.

Bei Femtosekunden-Lasern (fs-Lasern) handelt es sich um gepulste Laser mit Pulsdauern im Femtosekundenbereich. Die Verwendung eines solchen Lasers zur Photoemission hat eine Reihe von Vorteilen gegenüber herkömmlichen Lichtquellen. So überträgt sich erstens die Kohärenz des Laserlichtes auf die angeregte Welle. Es kommt zur Interferenz zwischen den beiden Wellen, was die Beobachtung der angeregten Welle mit dem PEEM ermöglicht. Wie in Abschnitt 3.5 erläutert, bilden sich Bereiche hoher und niedriger Gesamtintensität aus, in denen es zu mehr bzw. weniger Photoemission kommt. Dabei tragen sowohl einfallende als auch angeregte Welle zur Photoemission bei.

Die kurze Pulsdauer ermöglicht zweitens eine hohe Spitzenintensität. Bei einem Laser mit einer Repetitionsrate von 100 MHz und 10 fs Pulsdauer ist die Spitzenleistung beispielsweise um den Faktor 10^6 höher als die Durchschnittsleistung. Das wiederum macht die Zweiphotonen-Photoemission (2PPE) nutzbar. Dabei werden zwei Photonen gleichzeitig absorbiert, somit können auch dann Elektronen emittiert werden, wenn die Photonenenergie $\hbar\omega$ kleiner ist als die Austrittsarbeit der Probe. Es ist dabei unerheblich, ob eins oder beide Lichtquanten von der einfallenden oder der angeregten Welle stammen. Die 2PPE ist ein nichtlinearer Effekt, dessen Wahrscheinlichkeit mit der Intensität zunimmt. Damit ist die 2PPE-Rate proportional zum Intensitätsquadrat. 2PPE ist prinzipiell auch mit einem Dauerstrich-Laser möglich, jedoch liegt die dafür benötigte Intensität in der Regel über der Zerstörschwelle der Probe.

Drittens ermöglicht die Verwendung ultrakurzer Pulse zeitaufgelöste Messungen. Dabei wird die *Pump-Probe-Technik* verwendet. Ein erster Laserpuls regt das System an, mit dem zweiten wird anschließend abgefragt. Die Beobachtung der zeitlichen Entwicklung wird durch Variation des Zeitversatzes zwischen den Pulsen realisiert. Gemessen wird jeweils über eine große Anzahl von Pulspaaren, bei dem verwendeten Experiment typischerweise einige 10^9 . Diese Messkonfiguration ist entsprechend nur bei Prozessen möglich, die reversibel und immer exakt gleich ablaufen. Durch die Pump-Probe-Technik können Prozesse beobachtet werden, die schneller ablaufen als mit konventionellen Methoden beobachtbar ist, wie z.B. die Propagation eines ultrakurzen Lichtpulses über die Probenoberfläche.

Kohärente
Anregung

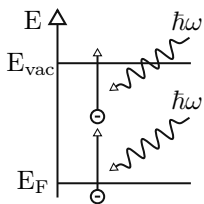


Abb. 3.1: 2PPE

Pump-Probe

3.2 UHV-SYSTEM

Wie in Abb. 3.2 dargestellt, besteht das UHV-System aus insgesamt drei Kammern, die durch Ventile miteinander verbunden sind. Das PEEM befindet sich in der Hauptkammer des Experimentes, in der ein Basisdruck von 10^{-10} mbar herrscht. Für die Funktion des PEEM, das in Abschnitt 3.3 ausführlicher beschrieben wird, ist ein Druck besser als 10^{-6} mbar nötig, damit die Photoelektronen nicht durch Stöße mit Gasmolekülen abgelenkt werden. Der um mehrere Größenordnungen niedrigere Druck in der Kammer

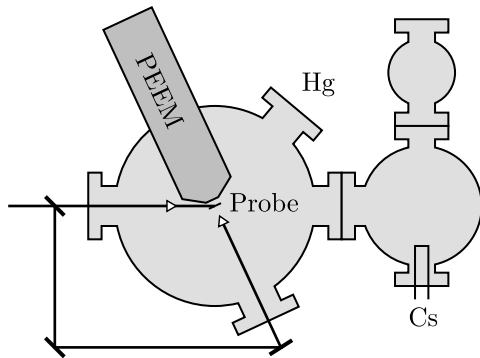


Abb. 3.2: Das UHV-System (schematisch) bestehend aus Haupt- Präparations- und Transferkammer. Probe und PEEM befinden sich in der Hauptkammer des Experimentes. Mit dem Laser kann die Probe wahlweise durch streifenden Einfall von vorne oder senkrecht von hinten beleuchtet werden. Eine Quecksilberdampf-Lampe (Hg) dient als alternative Lichtquelle. In der Präparationskammer kann Caesium (Cs) aufgedampft werden. Die Transferkammer dient zum Ein- und Ausschleusen der Probe.

stellt sicher, dass die Probe nicht durch Adsorbate verunreinigt wird. Die Kammer besteht aus nichtmagnetischem μ -Metall, um die Elektronenbahnen nicht durch magnetische Felder zu stören. An die Hauptkammer schließt sich die Präparationskammer an, die ebenfalls einen Basisdruck von 10^{-10} mbar aufweist. Sie dient dem Aufdampfen von Caesium auf die Probe, wodurch deren Austrittsarbeit gesenkt wird. Den Abschluss bildet eine weitere Kammer mit einem Basisdruck von 10^{-8} mbar, die zum Ein- und Austransferieren der Proben genutzt wird.

Durch Einkoppelfenster aus Quarzglas kann die Probe mit dem Laser beleuchtet werden. Bei streifendem Einfall auf die Vorderseite wird der Laser mit einem Hohlspiegel von 500 mm Krümmungsradius auf die Probe fokussiert. Aufgrund des streifenden Einfalls mit einem festen Winkel von 65° entsteht ein elliptischer Spot von $\approx 50 \times 113 \mu\text{m}^2$. Bei der neu aufgebauten rückwärtigen Einkopplungseinheit, die in Kapitel 6 vorgestellt und ausführlich diskutiert wird, dient eine Linse zum Fokussieren auf die Probe. Hier sind minimale Spotdurchmesser von unter $6 \mu\text{m}$ möglich. Einen Überblick über die verwendeten Laser gibt Abschnitt 3.4. Als alternative Lichtquelle dient eine Quecksilberdampf-Lampe. Von ihr wird die Spektrallinie bei 254 nm verwendet. Dieses ultraviolette Licht hat eine Photonenenergie von 4,9 eV, was über der Austrittsarbeit aller untersuchten Materialien liegt und daher konventionelle Ein-Photonen-Photoemission (1PPE) erlaubt¹.

Lichteinkopplung

3.3 PEEM

Bei den hier vorgestellten Experimenten wird das *IS-PEEM* der Firma *Focus GmbH* verwendet. IS steht für *Integrated Sample-Stage* und bezieht sich darauf, dass der Probentisch fest mit dem zylinderförmigen Mikroskop verbunden ist. Im Gegensatz zu

¹Für die Austrittsarbeit von Gold finden sich in der Literatur Werte zwischen 4,7 und 5,5 eV, abhängig von Reinheit und Struktur der Oberfläche [44–47]. Die hohe Elektronenausbeute aus den verwendeten polykristallinen Goldfilmen auch ohne Caesium-Deposition deutet darauf hin, dass die Austrittsarbeit der hier verwendeten Proben unterhalb von 4,9 eV liegt.

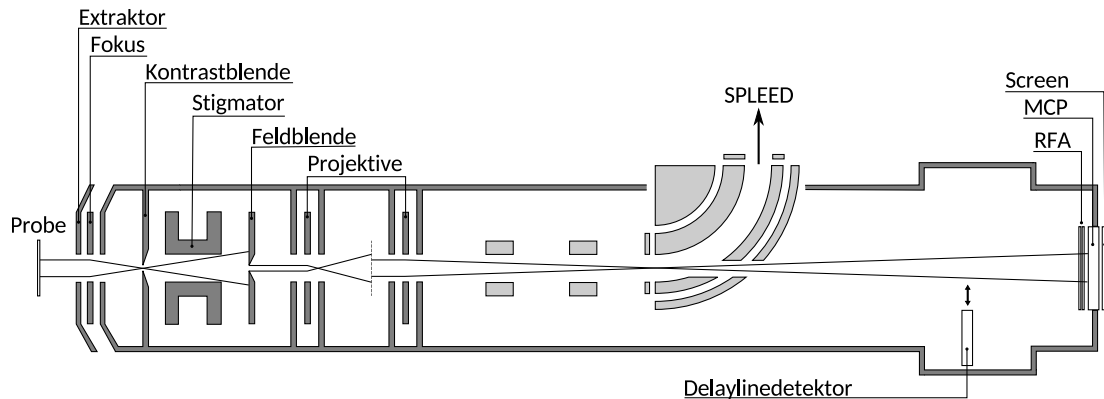


Abb. 3.3: Schematische Darstellung des verwendeten PEEM. Nachdruck aus der Diplomarbeit von Malte Großmann [48].

einem externen Probentisch hat dies den Vorteil, dass die Probe weniger gegen das Mikroskop schwingen kann, was die Auflösung erheblich verbessert. Die Probe kann lateral verfahren werden, jedoch nicht verdreht und verkippt. Durch diese Anordnung werden nur Elektronen detektiert, die die Probe in einem kleinen Bereich um die Oberflächennormale verlassen².

Elektrostatisches Linsensystem

Die Photoelektronen werden im Gerät durch ein elektrostatisches Linsensystem auf eine Bildeinheit abgebildet. Die geerdete Probe ist dabei integraler Bestandteil des Linsensystems. Die Spannungen an den anderen Komponenten verstehen sich, sofern nicht anders angegeben, als relativ zur Probe. Die erste Linse ist das Objektiv, bestehend aus Probe, Extraktor und Fokus. Am Extraktor liegt eine hohe positive Spannung an, die die Elektronen von der Probenoberfläche in Richtung des Mikroskops beschleunigt. Durch Änderung der Fokus-Spannung wird die Probenoberfläche scharf gestellt. Nachdem die Elektronen das Objektiv passiert haben, befinden sie sich im Potential der äußeren Ummantelung des Geräts, an der eine positive Spannung anliegt. Mit der darauf folgenden Kontrastblende lässt sich der Öffnungswinkel um die Oberflächennormale einstellen. Eine kleine Blendenöffnung verringert die Gesamtzählrate, gleichzeitig minimiert sie diverse Abbildungsfehler [49]. Es folgt eine als Oktupol ausgelegte Deflektor-Stigmator-Einheit zum verringern von Abbildungsfehlern. Der Deflektor verschiebt dabei den Fokus lateral, mit dem Stigmator lässt sich der astigmatische Abbildungsfehler verringern. Mit den Projektivlinsen kann die Vergrößerung stufenlos eingestellt werden. Dabei gibt es drei verschiedene Vergrößerungsmodi. Im Einlinsenmodus sind die Projektive auf Säulenniveau, d.h. deaktiviert. Hier wird die Vergrößerung allein durch das Objektiv erzielt. Im Zweilinsenmodus agieren die Projektive gemeinsam wie eine einzelne Linse, während sie im Dreilinsenmodus wie zwei getrennte Linsen wirken. Die in Abb. 3.3

²Bei 1 eV kinetischer Energie etwa 10 Grad um die Normale bei Verwendung einer Kontrastblende [16].

eingezeichneten Elektronenbahnen entsprechen denen im Dreilinsenmodus. Die an den Projektiven anliegende Spannung ist positiv relativ zur Probe, jedoch negativ bezogen auf die Säulenspannung. Weitere Informationen zu dem verwendeten Gerät finden sich in der Literatur [13, 50, 51].

An das Linsensystem schließt sich die Bildeinheit an. Eine Vielkanalplatte (*Multi Channel Plate*, MCP) wirkt als Elektronenvervielfacher, der das Messsignal verstärkt. Die Verstärkung lässt sich durch Anlegen einer Spannung zwischen Vorder- und Rückseite der MCP regeln. Die erzeugten Elektronenwolken treffen anschließend auf einen Leuchtschirm. Dieser wird mit einer CCD-Kamera aufgenommen und kann am Computer betrachtet und ausgewertet werden. Typische Aufnahmedauern liegen bei 333 ms für eine Echtzeit-Vorschau und 10-60 s für die Aufnahme von Messdaten. Trotz mehrfacher Signalumwandlung geht man davon aus, dass die Kamera-Zählrate proportional zur emittierten Elektronenrate auf der Probe ist.

Bildeinheit

Prinzipiell ist die Auflösung des PEEM durch die Beugung der Photoelektronen auf etwa 4 nm begrenzt [43]. Diese Auflösung wird bei dem hier verwendeten Gerät jedoch nicht erreicht. In der Praxis wird die maximal erreichbare Auflösung zweifach begrenzt: Durch bauliche Toleranzen in der Fertigung sowie Abbildungsfehler des Linsensystems. Zur ersten Kategorie zählen z.B. auch Unebenheiten der Probenoberfläche. Zur zweiten Kategorie gehören dagegen chromatische Aberration sowie Bildfehler aufgrund eines endlich kleinen Austrittswinkelbereiches [49]. Diese kombinierten Effekte bedingen bei dem verwendeten Gerät eine Auflösung von bestenfalls 30 nm. Darüber hinaus gibt es noch weitere Effekte, die die erreichbare Auflösung verschlechtern. Werden zeitgleich zu viele Elektronen aus der Probe emittiert, stoßen diese sich ab, was die Auflösung verschlechtert. Dieser Effekt wird als *Raumladung* bezeichnet. Bei gepulster Anregung wird bei dem verwendeten System weniger als ein Elektron pro Puls emittiert, was Raumladungseffekte ausschließt. Durch die hohen Repetitionsraten der verwendeten Laser ergibt sich dennoch eine ausreichend hohe Zählrate. Ist die Probenoberfläche nicht oder nur sehr schlecht leitfähig, führt Photoemission schnell zu einer *Aufladung*. Eine geladene Oberfläche führt zu einer Ablenkung der Elektronen und damit zu Bildverzerrung. Bei den in Kapitel 4 verwendeten Proben war vor allem die Aufladung der begrenzen Faktor.

Auflösung

3.4 FS-LASER-SYSTEM

Das Lasersystem ist schematisch in Abb. 3.4 gezeigt. Es beinhaltet zwei Titan-Saphir-Oszillatoren, die beide vom Pump laser *Millenia Pro* der Firma *Spectra-Physics* gepumpt werden. Für frequenz aufgelöste Messungen wird der *Tsunami* [52] genutzt, der ebenfalls von *Spectra-Physics* vertrieben wird. Er liefert Laserpulse mit Dauern von 50-100 fs, bei einer Leistung von 1,4 W mit 80 MHz Repetitionsrate. Die Zentralwellenlänge der Laserpulse ist kontinuierlich von 720-900 nm durchstimmbare. Dieser Wellenlängenbereich

Tsunami

Abb. 3.4: Schematische Darstellung des Lasersystems. Der *Millenia* pumpt den *Griffin* oder den *Tsunami*. Im weiteren Verlauf besteht die Möglichkeit zur Erzeugung der zweiten (SHG) und vierten (FHG) Harmonischen. Außerdem stehen zwei Mach-Zehnder-Interferometer (MZI) zur Verfügung.

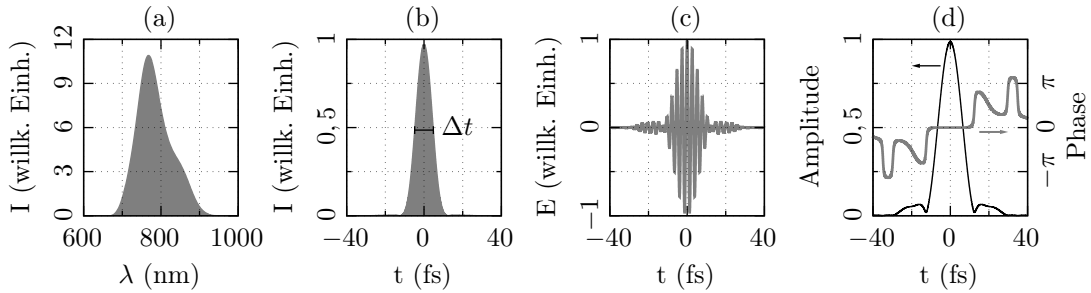
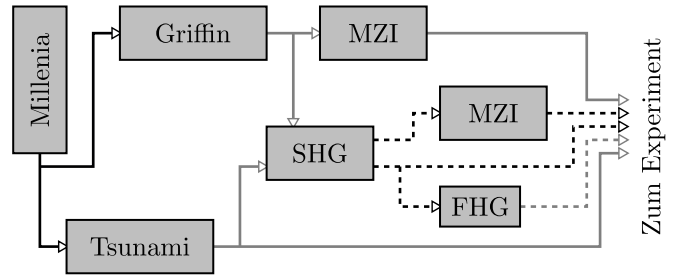


Abb. 3.5: (a): Intensitätsspektrum des *Griffin* als Funktion der Wellenlänge. (b): Daraus berechneter zeitlicher Intensitätsverlauf. Die Pulsdauer Δt beträgt 9,64 fs. (c): Verlauf des elektrischen Feldes. (d): Amplitude und Phase als Funktion der Zeit.

ist direkt im Experiment nutzbar. Alternativ kann mittels eines nichtlinearen Kristalls die zweite Harmonische (*Second Harmonic Generation*, SHG) erzeugt werden. Ähnlich wie die 2PPE, ist die SHG ein nichtlinearer Prozess, dessen Effizienz mit der Intensität des einfallenden Lichtes zunimmt. Mehr Informationen zu nichtlinearer Optik, wie der SHG, finden sich in der Literatur [42]. Die frequenzverdoppelten Pulse der zweiten Harmonischen haben Zentralwellenlängen zwischen 360 und 425 nm. Pulse von 420 nm können nochmals frequenzverdoppelt werden, um die vierte Harmonische mit 210 nm zu erzeugen.

Griffin

Für zeitaufgelöste Messungen wird der kommerzielle Laser *Model TS* („Griffin“) [53] der Firma *Kapteyn-Murnane Laboratories Inc.* verwendet. Dieser Titan-Saphir-Laser erzeugt Laserpulse von unter 10 fs Halbwertsbreite bei einer Zentralwellenlänge von ungefähr 790 nm. Die Repetitionsrate beträgt 95 MHz bei einer Durchschnittsleistung von 800 mW. Abbildung 3.5(a) zeigt ein typisches, mit dem Spektrometer *USB4000* von *Ocean Optics* gemessenes, Laserspektrum. Aus der spektralen Verteilung kann über die Fouriertransformation der zeitliche Verlauf von Intensität (b), Amplitude und Phase (c,d) des Pulses berechnet werden. Die Pulsdauer beträgt hier 9,64 fs. Bei der Betrachtung des Feld- bzw. Amplitudenverlaufes (c,d) sind Nebenmaxima vor und nach dem Hauptpuls zu erkennen. Die ebenfalls in (d) gezeigte Phase als Funktion der Zeit ist über den Hauptpuls konstant. Dagegen zeigt sich bei jedem Minimum der Amplitude ein Phasensprung.

Außerdem fällt bei der Betrachtung des ersten Nebenmaximums auf, dass die Phase sich kontinuierlich ändert. Das entspricht einer vom Hauptpuls abweichenden Frequenz. Sowohl das Laserspektrum als auch der zeitliche Verlauf von Amplitude und Phase sind typisch für einen gaußförmigen Puls mit dezentraler Absorption, vgl. *Springer Handbook of Lasers and Optics* [42], Kapitel 12, insbesondere die Abbildungen 12.3m sowie 12.27m.

Die Pulse werden anschließend durch ein *Mach-Zehnder-Interferometer* in jeweils zwei identische Teilpulse aufgespalten. Der Aufbau des Interferometers ist in Abb. 3.6 skizziert. Eine detaillierte Beschreibung findet sich in der Dissertation von Christoph Lemke [54]. Der Zeitversatz wird im Interferometer durch Verlängerung des einen Arms gegen den anderen erreicht. Die exakte Wegdifferenz wird durch einen Helium-Neon-Referenzlaser bestimmt und mittels eines aktiven Regelkreises konstant gehalten. Damit kann der Zeitversatz auf 30 Attosekunden genau eingestellt werden. Dies entspricht etwa 1% der Periodendauer des Griffin, man spricht bei dieser Genauigkeit auch von *interferometrischer Zeitauflösung*. Das Interferometer dient darüber hinaus zur Messung der *interferometrischen Autokorrelation*. Wie im *Springer Handbook of Lasers and Optics* beschrieben wird, kann diese zur Charakterisierung der Laserpulse genutzt werden. Für zeitaufgelöste Messungen mit der zweiten Harmonischen werden die Pulse des Griffin in der SHG-Strecke frequenzverdoppelt. Die so erzeugten Pulse haben eine Zentralwellenlänge von 400 nm mit 20 fs Pulsdauer. Für die Einstellung des Zeitversatzes steht ein weiteres Interferometer zur Verfügung, dessen Optiken auf ebendiese Wellenlänge zugeschnitten sind.

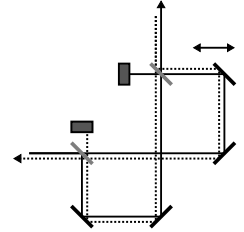


Abb. 3.6: Mach-Zehnder-Interferometer (Schema)

3.5 DETEKTION VON OBERFLÄCHENWELLEN: INTERFERENZ UND SCHWEBUNG

Zur Abbildung von Oberflächenwellen mit dem PEEM werden zwei Effekte genutzt: Die Interferenz zwischen einfallender und angeregter Welle und die Abhängigkeit der Photoemission von der Intensität des elektrischen Nahfeldes. Wie bereits in der Einleitung erläutert wurde, wird mit dem Begriff *Nahfeld* das Feld direkt an der Oberfläche bezeichnet. Im Falle von 1PPE ist die Emissionsrate proportional zur Intensität. Bei der 2PPE ist sie dagegen proportional zum Intensitätsquadrat. In beiden Fällen kann eine Intensitätsmodulation auf der Probenoberfläche beobachtet werden.

Zur Ausbildung dieser Intensitätsmodulation kommt es durch die Interferenz aus einfallender und angeregter Welle [21]. Trifft das Licht auf eine Anregungsstruktur, wird dort lokal eine Lichtmode, wie z.B. eine SPP-Welle angeregt. Diese propagiert anschließend über die Oberfläche und überlagert mit dem Licht, das neben der Struktur einfällt. Durch Interferenz kommt es zur Ausbildung einer Intensitätsmodulation, wie im Folgenden gezeigt wird. Dazu wird eine Überlagerung zweier Wellen betrachtet. Wie in Kapitel 2 erläutert wurde, haben beide Wellen die gleiche Frequenz, unterscheiden

Interferenz

sich aber in ihrer Wellenzahl. Es ergibt sich ein elektrisches Feld E_{ges} von

$$E_{\text{ges}}(x, t) = E_1 \cos(k_1 x - \omega t) + E_2 \cos(k_2 x - \omega t). \quad (3.1)$$

Die Intensität ergibt sich aus dem zeitlichen Mittelwert der quadratischen Amplitude:

$$I \propto \langle E_{\text{ges}}^2(x, t) \rangle = \langle E_1^2 \cos^2(k_1 x - \omega t) + E_2^2 \cos^2(k_2 x - \omega t) + 2 E_1 E_2 \cos(k_1 x - \omega t) \cos(k_2 x - \omega t) \rangle. \quad (3.2)$$

Der erste und zweite Term führen auf konstantes $E_1^2/2$ bzw. $E_2^2/2$. Wie sich sehr leicht zeigen lässt, ist

$$\cos x \cos y = \frac{1}{2} [\cos(x + y) + \cos(x - y)]. \quad (3.3)$$

Damit ergibt sich für den dritten Term in (3.2)

$$E_1 E_2 [\cos((k_1 + k_2)x - 2\omega t) + \cos((k_1 - k_2)x)] \quad (3.4)$$

wobei der erste Term im zeitlichen Mittel verschwindet. Es verbleibt der zeitunabhängige Term $E_1 E_2 \cos(\Delta k x)$, wobei $\Delta k = k_1 - k_2$ ist. Die Gesamtintensität ist damit

$$I \propto \frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2} + E_1 E_2 \cos(\Delta k x). \quad (3.5)$$

Schwebung

Die zeitunabhängige Intensitätsmodulation, die durch Δk beschrieben wird, ist im PEEM beobachtbar (siehe Abb. 3.7) und wird als *Schwebung* bezeichnet. Der Begriff ist der Akustik entlehnt und beschreibt dort eine Lautstärkenmodulation aufgrund der Überlagerung zweier Wellen mit nahe beieinander liegenden Frequenzen. Ein analoges Konzept ist der *Heterodyn* in der Signalverarbeitung. Gut bekannt ist ferner der ebenfalls analoge *Moiré-Effekt* aus der Fotografie. In Abb. 3.9 wird der Moiré-Effekt ausgenutzt, um die Entstehung des Schwebungsmusters zu veranschaulichen.

Im PEEM, das die Probenoberfläche orts aufgelöst abbildet, wird eine Schwebung mit der Wellenlänge $\lambda_s = 2\pi/\Delta k$ beobachtet, wie in Abb. 3.7 gezeigt ist. Die Wellenzahldifferenz, die daraus berechnet werden kann, entspricht der Differenz der oberflächenparallelen Anteile beider Wellenzahlen. Für das einfallende Licht ist das $k_0 \sin \Theta$, wobei Θ der Einfallswinkel ist. Es ergibt sich:

$$\Delta k = k_{\parallel} - k_0 \sin \Theta. \quad (3.6)$$

Berechnung des effektiven Indexes

Daraus kann wiederum der effektive Index der angeregten Welle berechnet werden:

$$n_{\text{eff}} = \frac{k_{\parallel}}{k_0} = \sin \Theta + \frac{\Delta k}{k_0} \quad \text{bzw.} \quad n_{\text{eff}} = \sin \Theta + \frac{\lambda_L}{\lambda_s}. \quad (3.7)$$

Die Bestimmung aus (3.6) und (3.7) gibt den Realteil der Wellenzahl bzw. des Brechungsindex. Im Prinzip ist es auch möglich, den Imaginärteil aus der Schwebung zu

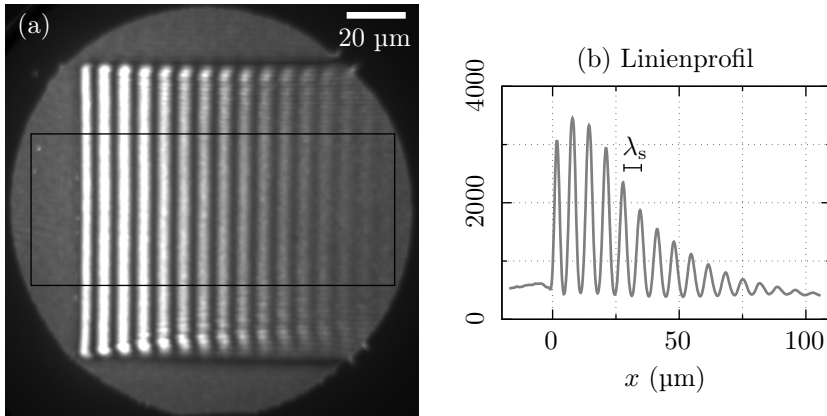


Abb. 3.7: (a): PEEM-Aufnahme eines Goldrechtecks auf ebenfalls goldenem Untergrund. Die Anregung erfolgt von links mit Laserpulsen von 785 nm Zentralwellenlänge. (b): Linienprofil entlang des in (a) markierten Bereichs. Dabei wurde über die Höhe des Rechtecks gemittelt. Die y -Achse zeigt die Zähler der CCD-Kamera. Der Abstand der hellen Linien entspricht der Schwebungswellenlänge λ_s

bestimmen [31]. Bei gepulster Anregung muss dabei die endliche Dauer der beteiligten Pulse berücksichtigt werden. Eine analytische Funktion, die das entstehende Schwebungsmuster unter Berücksichtigung der Pulsdauer für einen 2PPE-Prozess beschreibt, wird in Anhang A hergeleitet. Diese Funktion wird in Kapitel 5 verwendet, um die Einkopplung in SPP-Moden zu quantifizieren. Auf den Einfluss der Pulsdauer wird ferner im folgenden Abschnitt eingegangen.

3.6 ZEITAUFGELÖSTE UNTERSUCHUNGEN

Bei der Verwendung ultrakurzer Pulse muss die Einhüllende berücksichtigt werden, die die Amplitude als Funktion der Zeit beschreibt. Die endliche Pulsdauer, in Kombination mit unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten, führt zu einer endlichen *Wechselwirkungslänge* L_{ww} und damit zu einer endlichen Ausdehnung des Schwebungsmusters. Das wiederum ermöglicht die Untersuchung der Propagationsdynamik durch die Verwendung von zwei Pulsen, die nacheinander auf die Probe treffen. Dieser Sachverhalt wird im Folgenden am Beispiel der Anregung von SPP-Pulsen beschrieben, ist aber genau so auch für andere Lichtmoden gültig.

Wie in Abb. 3.8(a) gezeigt wird, regt der erste Laserpuls einen SPP-Puls an, wenn er auf die Anregungskante trifft. Da die Probenoberfläche gegen die Ausbreitungsrichtung des Lasers verkippt ist, propagiert der Laserpuls mit der *projizierten Geschwindigkeit* von $v_L = c/\sin\Theta$ über die Probe. Der angeregte Puls propagiert dagegen mit einer Gruppengeschwindigkeit von $v_g < c$. Aufgrund der endlichen Pulsdauer und unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeit überlagern die Pulse nach kurzer Zeit nicht mehr (b). Die Wechselwirkungslänge beträgt

$$L_{\text{ww}} = \frac{\Delta t}{2} v_r \quad \text{mit} \quad \frac{1}{v_r} = \frac{1}{v_g} - \frac{1}{v_L} \quad (3.8)$$

wobei Δt die Pulsdauer ist, v_r ist die reduzierte bzw. scheinbare Geschwindigkeit. Nach

Abb. 3.8: Einfall von zwei Laserpulsen auf eine Anregungskante. (a): Der erste Laserpuls regt einen SPP-Puls an. (b): Nach kurzer Zeit überlappen die Pulse nicht mehr. (c): Der zweite Laserpuls trifft auf die Anregungskante und regt einen weiteren SPP-Puls an. (d): Der zweite Laserpuls überlagert mit dem ersten SPP-Puls.

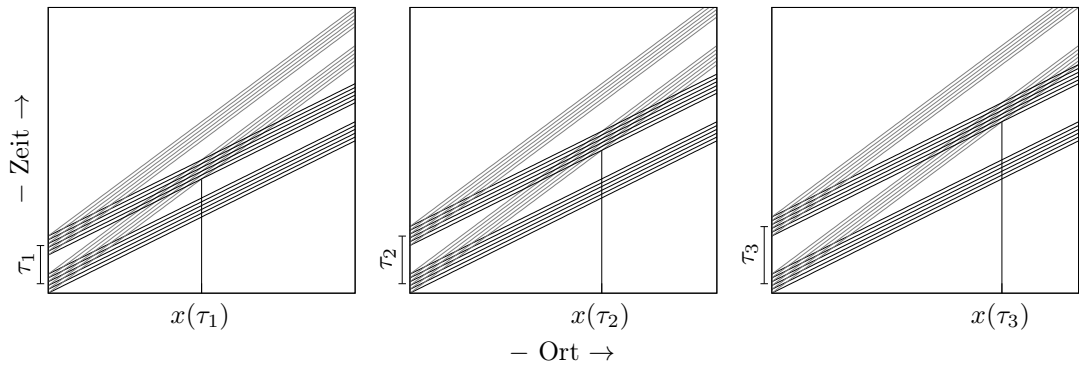
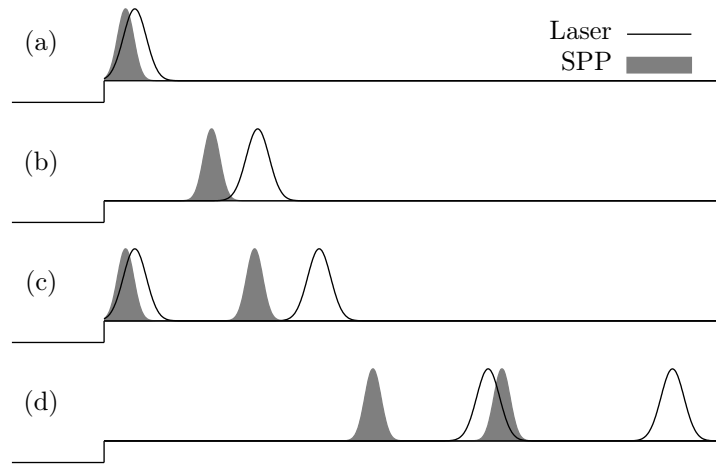


Abb. 3.9: Dynamisches Schwebungsmuster als Funktion des Zeitversatzes τ . Laser- (schwarz) und SPP-Pulse (grau) sind jeweils als eine Reihe von Linien im Zeit-Orts-Diagramm eingetragen.

einer über das Interferometer eingestellten Zeit τ folgt der zweite Puls, der ebenfalls einen SPP-Puls anregt (c). Der zweite Laserpuls ist nun ebenfalls schneller als der erste SPP-Puls und hat diesen nach einiger Zeit eingeholt (d). Hier kommt es zur Interferenz der beiden Pulse, es entsteht das vom Zeitversatz τ abhängige *dynamische Schwebungsmuster*.

Dynamisches Schwebungsmuster

Die τ -Abhängigkeit des dynamischen Schwebungsmusters ist in Abb. 3.9 veranschaulicht. Es handelt sich hier um eine vereinfachte Darstellung, in der die beteiligten Pulse als eine Reihe von Linien dargestellt sind, die den Phasenfronten entsprechen. Die unterschiedliche Steigung resultiert aus der jeweiligen Geschwindigkeit. Der schnellere Laserpuls, in der Abbildung durch schwarze Linien dargestellt, hat im Zeit-Orts-Diagramm eine geringere Steigung, legt also in der gleichen Zeit eine längere Strecke zurück als der SPP-Puls, der durch graue Linien dargestellt wird. Der Linienabstand in vertikaler

Richtung ist für beide Pulse gleich, dies entspricht gleicher Frequenz. Wenn ein Laserpuls mit einem SPP-Puls überlagert, kommt es durch den Moiré-Effekt zu einem vertikalen Streifenmuster. Dies verhält sich analog zur Interferenz der Pulse auf der Probenoberfläche. Es sind jeweils drei dieser Streifenmuster zu erkennen, zwei davon links an der Kante. Es handelt sich hier um die Überlagerung des ersten bzw. zweiten Lichtpulses mit dem jeweiligen SPP-Puls. Mit der Variation des Pulsabstandes ändert sich der zeitliche Abstand der Muster, nicht jedoch die Abhängigkeit von der Ortskoordinate x . Da im PEEM das zeitlich integrierte Signal betrachtet wird, erscheint dieses statische Muster unverändert. Wie oben erläutert, ist die Wellenlänge durch $\lambda_s = 2\pi/\Delta k$ gegeben. Das dritte Streifenmuster in Abb. 3.9 ergibt sich aus der Überlagerung des zweiten Laserpulses mit dem ersten SPP-Puls. Es ist deutlich zu sehen, dass sich der Ort x , an dem sich das Muster befindet, mit steigendem Zeitversatz τ nach rechts verschiebt. Die scheinbare Geschwindigkeit, mit der sich das Muster bewegt, ist durch die in (3.8) eingeführte reduzierte Geschwindigkeit

$$\frac{\partial x}{\partial \tau} = v_r \quad \text{mit} \quad \frac{1}{v_r} = \frac{1}{v_{\text{ex}}} - \frac{1}{v_L} \quad (3.9)$$

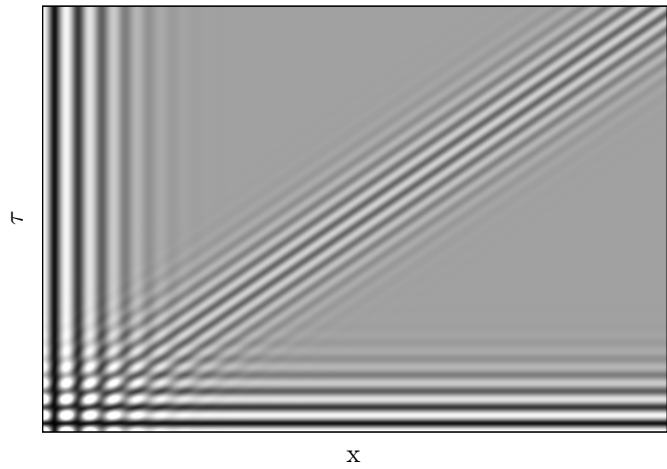
gegeben, wie sich anhand der Überschneidungspunkte im Zeit-Orts-Diagramm zeigen lässt. Hierbei ist zu beachten, dass im allgemeinen Fall die Phasengeschwindigkeit ungleich der Gruppengeschwindigkeit ist. Entsprechend muss in (3.9) unterschieden werden, ob mit $\partial x/\partial \tau$ die Geschwindigkeit der einzelnen Interferenzlinien oder der Einhüllenden beschrieben wird. Im ersten Fall ist $v_{\text{ex}} = v_p$ die Phasengeschwindigkeit, im zweiten Fall ist entsprechend $v_{\text{ex}} = v_g$ die Gruppengeschwindigkeit.

Da die Aufnahmedauer sehr viel länger ist als die Pulsdauer, wird im PEEM das zeitlich integrierte Signal betrachtet. Aus der von Zeit und Ort auf der Probe abhängigen Intensität entsteht die Photoemissions(PE)-Ausbeute $Y(x)$ die nur noch von der x -Koordinate auf der Probe abhängt. Für eine grafische Darstellung wird für jeden Zeitversatz ein Linienprofil erstellt und die gemessene PE-Ausbeute über x und τ aufgetragen. Das so entstandene Zeitversatz-Orts-Diagramm wird in Ab. 3.10 anhand einer Modellrechnung veranschaulicht. Es sind drei voneinander getrennte Bereiche zu sehen. Am linken Bildrand, d.h. für kleine x , befindet sich das vom Zeitversatz τ unabhängige statische Schwebungsmuster. Am unteren Bildrand, bei kleinen τ , erscheint ein weiteres, von x unabhängiges Muster. Diese von τ abhängige Intensitätsmodulation entspricht der in Abschnitt 3.4 angesprochenen interferometrischen Autokorrelation. Schließlich zeigt sich das diagonal von links unten nach rechts oben verlaufende dynamische Schwebungsmuster, dessen Puls- und Phasenfronten wie durch (3.9) beschrieben, mit steigendem Zeitversatz über die Probe propagieren.

τ - x -Diagramm

Statisches Muster und Autokorrelationssignal sind für eine zeitaufgelöste Messung unerwünscht, da sie Teile des dynamischen Musters überdecken können. Das Autokorrelationssignal kann unterdrückt werden, indem die Helligkeit der einzelnen PEEM-Aufnahmen

Abb. 3.10: Modellhaftes Zeitversatz-Orts-Diagramm. Hier ist die berechnete PE-Ausbeute über dem Zeitversatz τ sowie der x -Koordinate aufgetragen. Helle Bereiche entsprechen Bereichen hoher PE-Ausbeute.



vor der Messung des Linienprofils normiert wird. Durch Abzug eines statischen Untergrundes, d.h. des über alle τ gemittelten Signals, kann das statische Muster ebenfalls entfernt werden. Die gleiche Prozedur entfernt darüber hinaus störende Einflüsse durch helle Defekte auf der Probe. Derartig optimierte Darstellungen werden bei der Auswertung der Propagationsdynamik in Kapitel 6 verwendet. Speziell die Signatur der auf der Goldunterseite propagierenden SPP-Mode ist erst nach dem Untergrundabzug erkennbar, da sie anderenfalls vom statischen Muster überdeckt wird.

TEIL II

ERGEBNISSE

4 WELLENLEITER-MODEN IN SILIZIUMDIOXID

In diesem Kapitel wird die Untersuchung von Wellenleitermoden in einer Siliziumdioxidschicht diskutiert. Es handelt sich dabei um sogenannte Substratmoden, wie in Abschnitt 2.4 beschrieben, d.h. es kommt nur an einer Seite (der Vakuumseite) zu Totalreflexion während laufend Leistung in das Siliziumsubstrat abgestrahlt wird. Das beiliegende Manuskript zeigt, dass diese Moden mit dem PEEM beobachtet und quantitativ charakterisiert werden können. Vom experimentellen Standpunkt aus ist bemerkenswert, dass ein PEEM-Experiment in dieser Form überhaupt möglich ist. Wie schon in Abschnitt 3.1 angesprochen wurde, ist PEEM nur an leitenden Proben möglich, hier wird mit SiO_2 aber ein guter Isolator untersucht.

4.1 DURCHFÜHRUNG UND ERGEBNIS

Untersucht wurden die Wellenleitermoden mit der zweiten (und vierten) Harmonischen eines Titan-Saphir-Lasers, also mit Laserpulsen von etwa 400 nm (210 nm) Zentralwellenlänge. Da die SiO_2 -Schichten mit bis zu 1,5 μm relativ dick sind im Verhältnis zur Wellenlänge, unterstützen sie die Propagation mehrerer Moden. Bei Anregung mit 400 nm existieren insgesamt acht TM-Moden, bei 210 nm sind es sechzehn, von denen jeweils mehrere angeregt werden. Das Schwebungsmuster entsteht folglich aus der Überlagerung mehrerer angeregter Moden mit dem einfallenden Licht. Wie im Manuskript beschrieben wird, wurden die Wellenzahlen der angeregten Moden jeweils mittels eines *Fast-Fourier-Algorithmus* aus dem Schwebungsmuster bestimmt. Es zeigt sich, dass bevorzugt Moden höherer Ordnung angeregt werden, die einen vergleichsweise kleinen effektiven Index besitzen.

Eine Durchstimmung der Zentralwellenlänge der einfallenden Pulse ermöglicht die Untersuchung der *Dispersion* der angeregten Moden. Außerdem wurde in einem Pump-Probe Experiment die *Dynamik* der Anregung untersucht. Neben den Substratmoden konnte dabei eine strahlende Mode beobachtet werden. Der multimodale Charakter der Wellenleiter zeigte sich in einer Schwebung zwischen den einzelnen angeregten Moden. In Abschnitt 6.3 wird die Entstehung dieser Schwebung im Zusammenhang mit der Interferenz zwischen zwei SPP-Moden genauer betrachtet und hergeleitet.

Eine Besonderheit der Proben ist die Dekoration mit Gold-Nanopartikeln. Diese wurden in einem selbstorganisierten Prozess mittels einer Mizellen-Lösung aufgetragen,

Gold-Nanopartikel

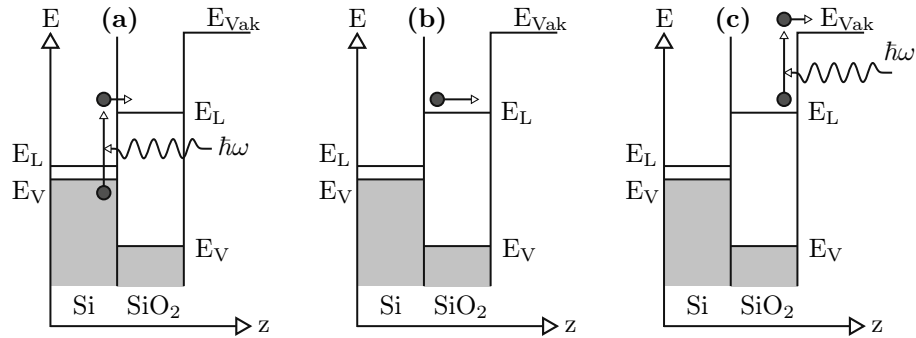


Abb. 4.1: Schematische Darstellung der Photoemission aus SiO₂. (a): Ein Photon mit Energie $\hbar\omega$ regt ein Elektron aus dem Valenzband des Siliziums in das Leitungsband des SiO₂ an (Interne Photoemission). (b): Dieses Elektron ist im Leitungsband frei beweglich und kann zur Oberfläche propagieren. Dort kann es vorhandene positive Ladung ausgleichen oder selbst emittiert werden (c).

wie ausführlich in der Dissertation von Laith Kadem [55] beschrieben ist. Die Goldpartikel ordnen sich dabei quasi-regelmäßig zu einer hexagonalen gitterähnlichen Struktur an. Wie ein Vergleich mit nicht dekorierten Proben zeigt, wirken die Nanopartikel wie Antennen bzw. Elektronenemitter, die die Beobachtung der Wellenleitermoden erleichtern. Aufgrund der geringen Größe der Nanopartikel und der Tatsache, dass die genutzten Anregungsfrequenzen weit entfernt von lokalisierten Partikelmoden sind, kann ein Einfluss auf die Propagationseigenschaften ausgeschlossen werden.

4.2 INTERNE PHOTOEMISSION UND DIE UNTERSUCHUNG VON ISOLATOREN

Da SiO₂ ein sehr guter Isolator ist, führt eine Emission von Elektronen unweigerlich zu einer Aufladung der Oberfläche, was im besten Fall für enorme Bildverzerrung sorgt, im ungünstigsten Fall alle weitere Photoemission unterdrückt. Dass das Experiment dennoch ohne die genannten Effekte durchführbar ist, ist auf das Siliziumsubstrat zurückzuführen, auf dem die SiO₂-Schichten aufgebracht sind. Durch Lichteinfall auf die Grenzfläche kommt es zu Photoemission vom Silizium in das Siliziumdioxid. Abbildung 4.1 zeigt den prinzipiellen Ablauf: Zunächst wird durch Absorption eines Photons ein Elektron vom Valenzband des Silizium in das SiO₂-Leitungsband angeregt. Diesen Vorgang bezeichnet man als *Interne Photoemission* (IPE) [56–58], da die Photoanregung an einer internen Grenzfläche stattfindet, nicht an der Oberfläche. Prinzipiell kann auch ein Loch aus dem Silizium-Leitungsband in das SiO₂-Valenzband gebracht werden [59]. Das angeregte Leitungselektron ist nun im SiO₂ frei beweglich und kann zur Probenoberfläche propagieren (b). Da gleichzeitig zur IPE auch Photoemission an der Oberfläche stattfindet – Elektronen also die Probe verlassen – ist anzunehmen, dass

die Oberfläche positiv geladen ist. Das Leitungselektron kann diese positive Ladung ausgleichen und so die Aufladung der Probenoberfläche verringern. Ebenso ist denkbar, dass das Leitungselektron selbst im nächsten Schritt an der Oberfläche emittiert wird (c). Nur wenn die IPE-Rate größer oder gleich der Oberflächen-PE-Rate ist, wird eine Aufladung der Oberfläche vermieden und eine scharfe Abbildung ist möglich.

Prinzipiell kann anstelle von Silizium ein anderes (halb-) leitendes Material verwendet werden, ebenso ein anderer Isolator anstelle von SiO_2 . So ist unter den genannten Voraussetzungen die Untersuchung von Isolatoren mittels Photoemission möglich. Die Verwendung von isolierenden Schichten bietet jedoch noch weitere Möglichkeiten, die über die Untersuchung des Isolators selbst hinaus gehen. Sie können beispielsweise verwendet werden, um das zu untersuchende System vom Substrat zu entkoppeln. Damit könnte beispielsweise eine lichtinduzierte Ladungstrennung in Halbleiternanodrähten [60, 61] mit dem PEEM untersucht werden, ohne dass die erzeugten Ladungsträger in das Substrat abfließen. Auch die Untersuchung der Kopplung von Licht an Exzitonen [62] erscheint möglich.

Detection and characterization of attenuated multimode waveguiding in SiO₂ slabs using photoemission electron microscopy

Alwin Klick,^{1,*} René Wagner,¹ Malte Großmann,¹ Laith F. Kadem,² Till Leibner,³ Horst-Günter Rubahn,³ Christine Selhuber-Unkel,² and Michael Bauer¹

¹*Institute of Experimental and Applied Physics, University of Kiel, Leibnizstr. 19, D-24118 Kiel, Germany*

²*Institute for Materials Science, University of Kiel, Kaiserstr. 2, D-24143 Kiel, Germany*

³*Mads Clausen Institute, NanoSYD, University of Southern Denmark, Alsion 2, DK-6400 Sønderborg, Denmark*



(Received 3 November 2017; published 16 August 2018)

Multimode waveguiding in the visible and near-ultraviolet spectral regime is observed and characterized in thermally grown SiO₂ layers on silicon using photoemission electron microscopy (PEEM). Comparison with finite-element-method simulations allows identifying order and character of the attenuated modes. Real-time investigations on mode propagation support these findings and give additional evidence for the existence of radiative modes. Finally, the presented experimental results illustrate how a defined deposition of gold nanoparticles can substantially enhance the sensitivity of the PEEM technique to electromagnetic field modes supported by thin dielectric and insulating layers.

DOI: [10.1103/PhysRevB.98.085128](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.085128)

I. INTRODUCTION

In recent years, photoemission electron microscopy (PEEM) has emerged as a powerful near-field probe for studying propagating electromagnetic modes confined to the surface or near-surface region of conducting samples. The technique provides an exceptional lateral resolution in the order of 10 nm and below [1]. Additionally, when operated in a time-resolved mode, it allows monitoring in real-time processes taking place on a few-fs timescale [2,3]. Most PEEM studies focused so far on surface plasmon polaritons (SPP) supported by metal-dielectric interfaces. Topics included SPP phase and group propagation [4–7], SPP dispersion [8,9], plasmonic focusing [10,11] and switching [12], plasmonic waveguiding [13,14], and the formation of plasmonic vortices [15].

Recently, it was shown that PEEM can be used in a similar manner to map optical waveguide modes supported by dielectric layers [16–19] and their manipulation by photonic structures [20]. The dielectric material of choice in these studies was indium tin oxide owing to its well-known conductive properties which are intrinsically required to perform photoemission-based experiments. As dielectric properties are key parameters for the design of photonic structures, it would be highly desirable if the unique capabilities of the PEEM technique could also be applied to nonconducting materials which are more commonly used in optical waveguide applications.

In this paper, we report on the observation and characterization of optical waveguide modes in SiO₂ slabs of different thickness using PEEM. Two key ingredients allow mapping the

modes confined in the insulating slabs: internal photoemission from an underlying silicon substrate guarantees charge neutrality during the experiments. Furthermore, gold nanoparticles deposited on top of the waveguide act as efficient electron emitters sensing the near field at the surface generated by the waveguide modes. In addition, interferometric time-resolved PEEM experiments were performed which allow monitoring in real time the propagation of excited waveguide modes, in a very similar manner to what was reported in the past for SPPs [4]. Notably, the time-resolved data allow identifying a radiative mode of the slab which keeps hidden in the static PEEM data.

II. EXPERIMENTAL SETUP

The experiments were conducted using a photoemission electron microscope (IS PEEM, *Focus GmbH*) [21] mounted in an ultrahigh vacuum (UHV) μ -metal chamber and providing a lateral resolution of 40 nm. Available light sources for static PEEM experiments were the 254-nm ($h\nu = 4.9$ eV) main emission line of a mercury discharge lamp and the second and fourth harmonics of the pulsed near-infrared output of a Ti:sapphire oscillator [Tsunami, *Spectra Physics*, tuning range: 710 to 890 nm, 40-fs pulse width (FWHM)]. The second harmonic light covered a wavelength range between 360 and 430 nm ($h\nu = 3.45$ and 2.89 eV, respectively) and was used to perform PEEM experiments in the two-photon photoemission mode (2PPEEM) [2]. Fourth harmonic light was generated by frequency doubling of 420-nm ($h\nu = 2.95$ eV) second harmonic pulses providing a wavelength λ of 210 nm ($h\nu = 5.9$ eV). Photon energies of fourth harmonic and mercury lamp resulted in one-photon photoemission from the investigated samples and generated, therefore, conventional threshold PEEM (TPEEM) images. Prior to the PEEM experiments, wavelengths of second and fourth harmonic were measured using a calibrated fiber optic spectrometer (USB4000, Ocean Optics) in front of the UHV chamber entrance window.

*klick@physik.uni-kiel.de

Published by the American Physical Society under the terms of the [Creative Commons Attribution 4.0 International license](https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/). Further distribution of this work must maintain attribution to the author(s) and the published article's title, journal citation, and DOI.

Interferometric time-resolved 2PPEEM (ITR-2PPEEM) experiments were conducted using the second harmonic of a sub-15-fs Ti:sapphire oscillator (Griffin, *KMLabs*, 800 nm). 15-fs pulses with a central wavelength of 400 nm ($h\nu = 3.1$ eV) were split into two identical pulses using an actively stabilized Mach-Zehnder interferometer [22]. The stability of the interferometer allowed adjusting the temporal delay between the two excitation laser pulses with a timing accuracy of better than 30 as [5]. All laser-based experiments were performed with *p*-polarized pulses hitting the sample at an angle of incidence $\Theta = 65^\circ$ with respect to the surface normal.

Scanning electron microscopy (SEM) and helium ion microscopy (HIM) were used to map the sample surface. SEM experiments were performed using a Hitachi S-4800 microscope. HIM was carried out by an Orion NanoFab helium ion microscope (Carl Zeiss) at 30-keV beam energy, with an applied probe current ranging from 0.5 to 1.1 pA.

III. SAMPLES

Sample preparation followed a process described in detail in Ref. [23]. Silicon wafers with a thermally grown, $1.5 \mu\text{m} \pm 5\%$ oxide layer were microstructured using photolithography and wet etching as follows: $25\text{-}\mu\text{m}$ -wide and 60-nm -deep stripes, separated by $25 \mu\text{m}$, were etched into the oxide layer. The process was repeated after rotation of the sample by 90° , resulting in a quadruple, checkerboardlike pattern with segments of different heights of the SiO₂ layer [see Fig. 1(a)]. At illumination with light, the segment edges of the platforms act as momentum source required to overcome the wave-vector mismatch between light and the waveguide modes supported by the SiO₂ layer. The sample design allows, furthermore, studying three different waveguide geometries in parallel.

Using block copolymer micelle nanolithography, the SiO₂ surface was additionally decorated with gold nanoparticles with a nominal size of 5–8 nm in diameter. In detail, a gold-carrying micelle solution is spin coated onto the microstructure, where the micelles self-assemble into a quasi-hexagonal structure with an inter-particle distance of 50–100 nm. Afterwards, the polymer micelles are removed via plasma etching, leaving the metallic gold nanoparticles. As will be shown below, the decoration of the SiO₂ surface with gold nanoparticles is essential for observation and characterization of waveguide modes using PEEM.

Figure 1(b) shows an SEM image of a sample after deposition of gold nanoparticles. The obvious difference in the nanoparticle density between different segments was discussed in detail in an earlier study [23]. For instance, the particle density observed in the top right segment is much more sparse than in the bottom left segment. The corresponding slab heights are 1.5 and $1.38 \mu\text{m}$, respectively. Furthermore, in the vicinity of the segment edges one observes a gradient in the nanoparticle density with a decrease in density when approaching an edge from the upper level and an increase in density when approaching an edge from the lower level. In this border region, the average gold interparticle distance varies between ≈ 50 and ≈ 150 nm. The overall difference in nanoparticle density between the different segments decreases towards the respective field centers, where no difference in nanoparticle density between different segments is observed any more. The approx-

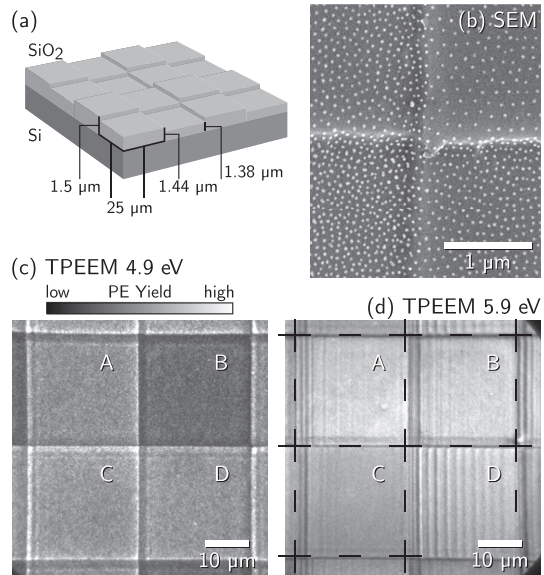


FIG. 1. (a) Schematic of the sample geometry; relevant dimensions are indicated. (b) SEM image of a sample showing the intersection of four segments; individual gold nanoparticles appear as bright spots. (c) TPEEM image of four segments recorded at illumination with the Hg discharge lamp ($h\nu = 4.9$ eV). (d) TPEEM image of four segments recorded at illumination with the fourth harmonic laser light ($h\nu = 5.9$ eV, laser incident from the left); dashed lines indicate the borders of the individual segments, which were determined by comparison with TPEEM data recorded with the Hg discharge lamp. Note the different scale bars in (b) and (c) and (d), respectively.

imate gold interparticle distance in this region is ≈ 60 nm. HIM images were taken to additionally gain information on the size of the deposited particles. The data show that the diameter of the deposited nanoparticles is smaller than 15 nm.

IV. STATIC PEEM RESULTS

Figures 1(c) and 1(d) show images of four neighboring sample segments recorded in TPEEM mode using 254-nm light (Hg discharge lamp) and 210-nm light (laser fourth harmonic), respectively. Despite the presence of a rather thick and insulating layer of SiO₂ sharp images of the sample surface using low kinetic energy (≤ 2 eV) photoelectrons can be recorded. Notably, sharp PEEM images can also be recorded from samples which were not decorated with gold nanoparticles [see Fig. 7(a)]. We suspect that internal photoemission (IPE) from the valence band of the silicon substrate into the SiO₂ conduction band delivers compensation charges preventing image distortion or a complete blocking of the photoemission process due to surface charging [24–26]. A photon energy threshold of 4.3 eV for IPE at the Si/SiO₂ interface was reported before [26], making IPE possible in a one-photon absorption process on excitation with fourth harmonic light and the Hg discharge lamp and in a two-photon absorption process on excitation with the second harmonic light. The

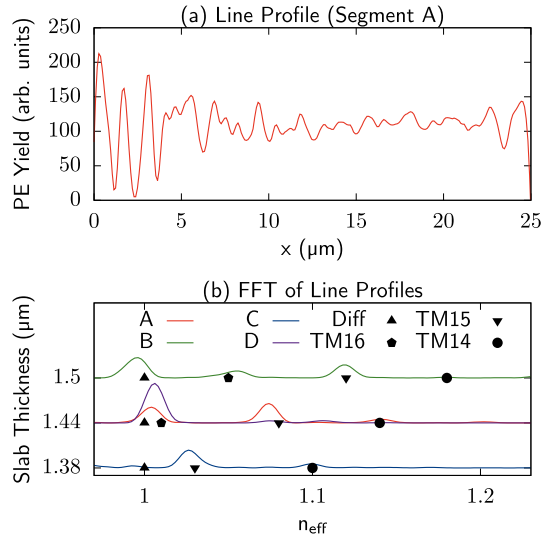


FIG. 2. (a) PE intensity profile across segment A in Fig. 1(d); (b) FFT spectra of the PE intensity profiles across the different segments labeled A–D in Fig. 1(d); the black symbols are FEM results for effective indices of the slab waveguide modes. “Diff” denotes the diffracted, quasicylindrical mode, whereas “TMX” indicates the transverse magnetic waveguide mode of order X.

TPEEM image recorded with 254-nm light shows a clear correlation between photoemission yield and height of SiO₂ layer: the highest segment [upper right segment in Fig. 1(c)] appears darker, while the lowest segment (lower left segment) appears brighter than the two intermediate segments. This correlation allows for an unambiguous assignment of the SiO₂ layer thickness to the individual segments as mapped in the PEEM experiments.

On excitation with 210-nm light [Fig. 1(d)] we observe strongly modulated periodic photoemission intensity patterns emerging from the left-hand edges covering the entire area of the individual segments. Similar intensity modulations, albeit more restricted to the vicinity of the coupling edges, are also observed on excitation with 400-nm light [Fig. 3(a)]. The observation of periodic intensity patterns in PEEM is a characteristic signature for propagating electromagnetic modes which were excited at the sample surface. In the past, such patterns have been associated with the excitation of surface plasmon polaritons at metal-dielectric interfaces [4] and guided optical modes within dielectric slabs [16]. The pattern formation results from the coherent superposition of illuminating light field and phase-coupled surface mode or waveguide mode with the periodicity given by the wave-vector mismatch $\Delta k = |k_l - k_{ex}|$ [4]. k_l denotes here the surface projected wave vector of the illuminating light field, i.e., $k_l = 2\pi/\lambda \cdot \sin \Theta$, k_{ex} is the wave vector of the excited mode. The pattern contrast depends on the order of the photoemission process and is given by $(1 + \beta)^2/(1 - \beta)^2$ in the case of a one-photon photoemission process and by $(1 + \beta)^4/(1 - \beta)^4$ in the case of a two-photon photoemission process [27]. Here,

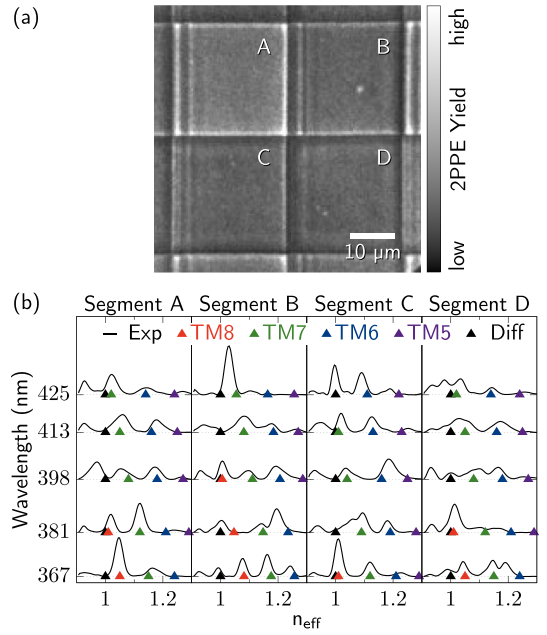


FIG. 3. (a) 2PPEEM image of the sample illuminated with 400-nm laser light; the sample is illuminated with the laser light incident from the left. (b) FFT spectra of 2PPE intensity profiles across the four segments in Fig. 2(a) for different excitation wavelengths; black and colored triangles mark effective mode indices obtained from the FEM simulations. $n_{\text{eff}} = 1$ (black triangles) indicates the incident laser mode which is diffracted at the coupling edge (quasicylindrical mode). Red, green, blue, and purple triangles mark the position of the TM8, TM7, TM6, and TM5 waveguide modes supported by the SiO₂ slab, respectively.

β denotes the ratio of the normal components of mode electric field amplitude and laser electric field amplitude.

Figure 2(a) shows the photoemission (PE) intensity profile of the upper left segment in Fig. 1(d), in the following referred to as segment A (see also labeling of the PEEM images). The shape of the profile hints to more than one periodicity involved in the formation of the intensity pattern. A Fourier analysis allows for a quantitative interpretation of such PEEM patterns [16–20]. A fast Fourier transformation (FFT) of the photoemission intensity profiles of all four segments was performed using the Welch method [28] [Fig. 2(b)]. The graphs display FFT power spectral densities as function of the mode effective index

$$n_{\text{eff}} = \frac{k_{ex}}{k_l}. \quad (1)$$

Each spectrum shows several peaks which we associate with the excitation of different modes by the illuminating laser pulse. Reasonable agreement in the peak position is observed for segments A and D, which exhibit the same SiO₂ layer thickness of 1.44 μm . The Fourier analysis of the 2PPEEM patterns yield very similar results. Figure 3(b) compares FFT spectra of the four segments and for five different excita-

tion wavelengths. Once again, the spectra clearly prove the multimode character of the excitation. Again, the spectra of segments A and D match rather well. The comparison of the data recorded with different excitation wavelengths hint, furthermore, to a dispersive character of the individual modes as expected for propagating modes.

In an optical waveguide, the effective index of a waveguide mode is given by

$$n_{\text{eff}} = n \sin \vartheta, \quad (2)$$

with n being the refractive index of the waveguide material and ϑ being the mode propagation angle with respect to the normal of the waveguide supporting interfaces. For a self-consistent solution of Eq. (2), ϑ has to fulfill the relation [29]

$$2\pi m = 2k_0 n d \cos \vartheta + \phi_1 + \phi_2. \quad (3)$$

Here, m is an integer and typically referred to as the mode order, $k_0 = \omega/c_0$ the vacuum wave vector, with ω being the mode frequency, and d the thickness of the waveguide. Finally, ϕ_1 and ϕ_2 are the phase shifts experienced by the mode at reflection at the mode supporting interfaces. Equations (2) and (3) directly imply that in the experiments a dependence of n_{eff} on excitation wavelength as well as SiO₂ slab thickness are to be expected.

To verify the detection of optical waveguide modes supported by the SiO₂ layer, we performed finite-element-method (FEM) simulations for comparison with the experimental data. The FEM calculations were carried out using the wave optics module of COMSOL MULTIPHYSICS. According to the sample geometry we considered in the calculations two-dimensional SiO₂ slabs of 1.5-, 1.44-, and 1.38- μm thickness which were sandwiched in-between a silicon substrate and a vacuum superstrate. The model did not account for the deposited gold nanoparticles. FEM calculations were performed for all excitation wavelengths investigated in the study resulting in a plethora of mathematical solutions to the relevant boundary condition problem. Each solution provides relevant mode parameters such as effective mode index and electric and magnetic field profile. Only some of these solutions represent actual waveguide modes. One has to closely examine the effective mode indices and mode field profiles in order to distinguish between waveguide modes and other, nonwaveguiding modes or potentially nonphysical modes. Of the waveguide modes, only transverse magnetic (TM) modes were considered for comparison with the experimental data since only those can be excited with p -polarized light. The results of the FEM calculations for the photon energy range accessible in the 2PPEEM experiments are summarized in the mode dispersion diagram shown in Fig. 4(a). The solid lines represent the light line in vacuum and SiO₂, respectively, i.e., photon energy as function of wave vector. Only modes located to the right of the vacuum light line, i.e., modes with $n_{\text{eff}} > 1$, undergo total internal refraction at the SiO₂/vacuum interface and can be considered as waveguide modes. These modes are, however, partially refracted into the silicon substrate due to the refractive index of silicon being larger than the refractive index of SiO₂. These losses result in a considerable attenuation of the modes and correspondingly short propagation lengths. In the wavelength range accessible by the second harmonic of the laser output, an overall of 8 TM waveguide modes

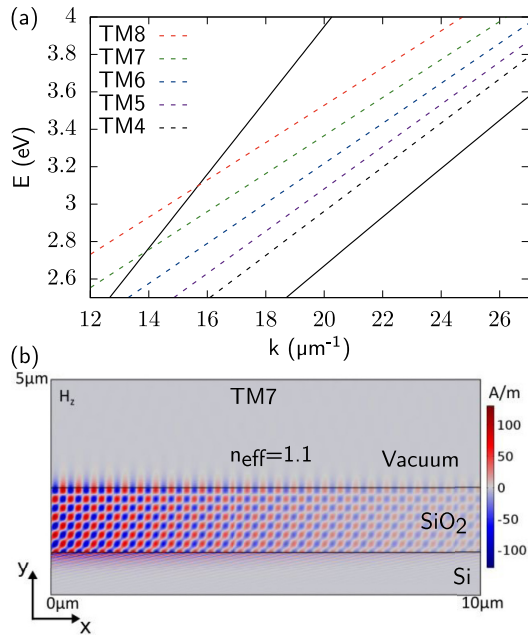


FIG. 4. (a) Mode dispersion diagram compiled from the results of the FEM calculations; the solid black and gray lines represent the light line in vacuum and SiO₂, respectively. Colored dashed lines represent TM waveguide modes. (b) Calculated magnetic field amplitude of the TM7 mode for excitation with 400-nm light and a slab thickness of 1.5 μm .

are identified, at excitation with fourth harmonic light the calculation yields 16 TM modes.

Figure 4(b) shows results of the calculations for the magnetic field amplitude of the TM7 mode, i.e., the TM mode exhibiting seven nodes across the SiO₂ slab. The slab thickness is 1.5 μm and the excitation wavelength is 400 nm. For the effective index of the mode, the calculation yields a value of $n_{\text{eff}} = 1.1$. Due to the radiation losses into the silicon substrate, the propagation length is restricted to $\approx 2.5 \mu\text{m}$. The mode propagation lengths in the UV spectral regime are predicted to be longer. For instance, for the TM16 mode the simulations yield a value of $\approx 4.5 \mu\text{m}$. The decay lengths of the corresponding superposition signal as probed in the PEEM experiments [Figs. 1(d) and 3(a)] at the least qualitatively confirm these numbers.

FEM results for effective indices of different modes and for the different slab thicknesses are added for comparison with the experimental data to Figs. 2(b) and 3(b). On excitation with 210-nm light, the highest-order mode supported by the SiO₂ slabs (yielding the lowest n_{eff}) is the TM16 mode, on excitation at wavelengths of ≈ 400 nm the highest-order mode is the TM8 mode. The comparison of experimental data and simulation shows a good to very good quantitative agreement, both for the TPEEM results as well as the 2PPEEM results, proving that the experiments indeed probe propagating waveguide modes in the SiO₂ slabs. Based on the comparison between

experiment and simulation, it would be possible to identify the respective segments in terms of layer thickness or, even more, to determine the layer thickness with an accuracy in the 10-nm range. Also, the changes in n_{eff} as function of excitation wavelength, i.e., the dispersion relations of the modes as probed in the 2PPEEM experiment, are very well reproduced by the FEM calculations. Overall, we observe a reduction of the experimental mode amplitude with decreasing mode order. It results from the decrease of the coupling efficiency as at the same time the wave-vector mismatch with respect to the excitation laser pulse increases. Deviations from this behavior may arise from differences in the near-surface amplitude of the mode electric fields which are probed by the surface-sensitive PEEM technique [19]. Additionally, structural imperfections of the coupling edge for instance due to the presence of the gold nanoparticles could selectively affect the coupling efficiency for a specific mode. The lowest-order mode visible in the experimental data is the TM5 mode.

In some of the experimental spectra, an extra peak shows up at $n_{\text{eff}} = 1$. The experiment probes here the incident laser mode which is diffracted at the step edge and which in literature is often referred to as “quasicylindrical wave” [30–34].

For a multimode excitation scenario as in the present case, the appearance of a periodic intensity pattern in the PEEM data could alternatively arise from the superposition of two different waveguide modes [16]. The periodicity of the pattern will then be given by the wave-vector mismatch between the coupled modes, yielding additional peaks in the Fourier spectra. The experimental data do not show distinct indications for such an additional signal. We suspect that the excited mode amplitudes are too small to compete with the primary PEEM signal arising from the superposition of incident laser field and waveguide modes.

Indications for backward propagating modes, i.e., modes which propagate in opposite direction with respect to the incident laser field, were observed neither on excitation with second harmonic light nor on excitation with fourth harmonic light. In the used excitation geometry, the coupling efficiency for these types of modes is strongly reduced in comparison to the observed forward propagating modes as was shown in the past for instance in the case of backward propagating SPP modes supported by a gold vacuum interface [5,35].

V. TIME-RESOLVED PEEM RESULTS

Figure 5(a) shows four ITR-2PPEEM intensity profiles of segment D (SiO_2 layer thickness: $1.44 \mu\text{m}$) recorded within a single optical cycle of the excitation laser pulse at a temporal delay τ of 27.7 fs and at incremental steps of 0.3 fs. A complete movie covering an overall delay range of 10–45 fs is in addition added in the Supplemental Material [36]. The overall response of the 2PPEEM signal from the attenuated waveguide modes to changes in the temporal delay is very similar to what was reported in the past in ITR-2PPEEM studies on the propagation dynamics of SPPs [4,10]: within an optical cycle, we observe a forward motion of the superposition maxima (and minima) towards the center of the segment which arises from the phase propagation of the detected modes.

Delay-distance diagrams as shown for segment D in Fig. 5(b) allow illustrating the mode propagation dynamics in

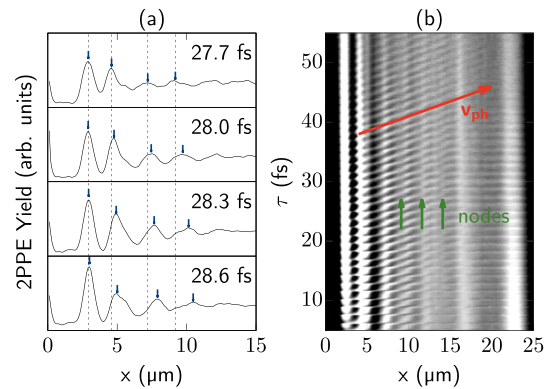


FIG. 5. (a) ITR-2PPEEM intensity profiles of segment D at different time delays recorded within one optical cycle of the excitation laser; the time delays correspond to incremental phase delays of $\approx \pi/2$; blue arrows mark the position of interference maxima, starting positions of the maxima are marked with gray lines; (b) delay-distance diagram of segment D generated from the ITR-2PPEEM scan; the red arrow marks the slope of the interference maxima associated with the phase propagation of the TM7 mode. Green arrows mark beating nodes arising from the superposition of the TM7 mode and propagating lower-order modes.

a single image. The figure displays photoemission intensity profiles generated by vertical integration across segment D as a function of τ and propagation distance x . The overall signal quality particularly allows for a quantitative evaluation of the phase velocity v_{ph} of the main mode contributing to the signal. In the delay-distance representation, the propagation of superposition maxima and minima is transformed into alternating bright and dark streaks. v_{ph} determines the slope $\frac{\partial \tau}{\partial x}$ of the streaks and can be evaluated as follows [5]:

$$v_{\text{ph}} = \left[\frac{\partial \tau}{\partial x} + \frac{\sin \Theta}{c} \right]^{-1}.$$

Accordingly, the effective mode index is given by

$$n_{\text{eff}} = \sin \Theta + c \frac{\partial \tau}{\partial x}. \quad (4)$$

For segment D, Eq. (4) yields an effective mode index of $n_{\text{eff}} = 1.07$, a value which agrees very well with the FEM result for the TM7 mode, i.e., the lowest-index waveguide mode excited at 400-nm laser wavelength. Data analysis of the other segments shows that the ITR-2PPEEM signal is in all cases dominated by the lowest-index waveguide mode. Higher-index modes show up as beating nodes in the delay-distance diagrams as marked in Fig. 5(b) by the green arrows.

Figure 6(a) compares ITR-2PPEEM intensity profiles of segment A (SiO_2 layer thickness: $1.44 \mu\text{m}$) which were simultaneously recorded with the data of segment D shown in Fig. 5(a). Clearly visible is once again a forward propagation of superposition maxima arising from the phase propagation of the TM7 mode. Notably, in the close vicinity of the coupling edge an additional photoemission intensity maximum shows up which exhibits an inverted response as τ increases. Instead of a forward propagation towards the center of the

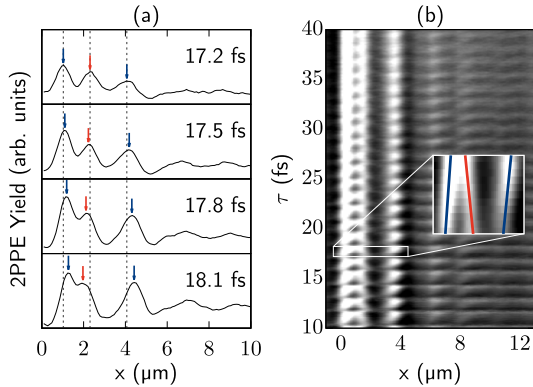


FIG. 6. (a) ITR-2PPEEM intensity profiles of segment A at time delays within one optical cycle of the excitation laser pulse; blue and red arrows mark the position of interference maxima, gray lines additionally mark the interference maxima in the first panel. (b) Delay-distance diagram of segment A generated from the ITR-2PPEEM scan; the inset shows a closeup of the region marked by the white box. The red line in the inset marks the negative slope $\frac{\partial \tau}{\partial x}$ of the interference maxima associated with a radiative mode of the SiO₂ slab. Blue lines mark for comparison the positive slope $\frac{\partial \tau}{\partial x}$ of interference maxima associated with the dominating nonradiative mode.

segment, we observe here a backward propagation towards the coupling edge. In the time-distance diagram [Fig. 6(b)], the corresponding interference streaks exhibit a negative slope $\frac{\partial \tau}{\partial x}$ (see red marker in the inset) yielding an effective mode index $n_{\text{eff}} < 1$, according to Eq. (4). Based on the experimental data, we estimate the value of the effective mode index to $n_{\text{eff}} \approx 0.6$. This result implies that the signal is due to a radiative mode which is subject to losses by refraction into the vacuum, i.e., a mode which is located to the left of the light line in Fig. 4(a). This interpretation is in line with the observation that a mode signal can only be observed in the very close vicinity of the coupling edge. Even though less pronounced, such a mode can also be noticed in segments B and C (see movie in the Supplemental Material [36]).

As the static 2PPEEM experiments provide only information on the absolute value of Δk , a mode with $n_{\text{eff}} = 0.6$ (corresponding to $\Delta k = 0.3 k_L$) cannot be distinguished from a mode with $n_{\text{eff}} = 1.2$ [see Eq. (1)]. A distinct assignment of the mode character relies on the specific capabilities of ITR-2PPEEM.

VI. ROLE OF GOLD NANOPARTICLES

The role of the gold nanoparticles, which were deposited on top of the SiO₂ surface, have not been discussed in detail, yet. In the first instance, one could speculate if the particle arrays may also support propagating modes which can form from dipole-dipole interaction of neighboring particles following a polarization by the excitation laser pulse [37]. A quantitative analysis under consideration of particle size and particle arrangement shows that this cannot be the case in the relevant frequency range. This finding is supported by the very good agree-

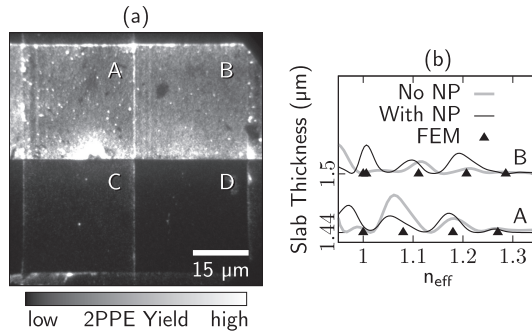


FIG. 7. (a) 2PPEEM image of a sample which was not covered with gold nanoparticles (NP); the image was recorded with 400-nm laser light. (b) FFT power spectral density of the 2PPE intensity profile of segments A and B in (a) in comparison to corresponding data from a nanoparticle covered surface and the results of the FEM simulations.

ment of the experimental data with the FEM simulations, which exclusively consider propagating modes in the SiO₂ slab.

The relevance of the nanoparticles for the experiments becomes evident from 2PPEEM images of nondecorated samples as shown in Fig. 7(a). Here, the data show significant irregularities particularly at the coupling edges and a strong contrast among different segments which is no longer linked to the SiO₂ layer thickness. Furthermore, the overall photoemission signal is significantly reduced in comparison to, for instance, the data shown in Fig. 3(a) so that for identical microscope settings the image integration time had to be increased by a factor of 20. Most importantly, if at all, only very weak signatures from the waveguide modes are visible making a quantitative data evaluation difficult. A reasonable FFT analysis of the 2PPEEM data in Fig. 7(a) is only possible for segments A and B: Fig. 7(b) shows FFT power spectral densities of the segments as function of n_{eff} in comparison to corresponding data from a nanoparticle covered sample and the results of the simulations. Within the accuracy of the evaluation, the agreement of the different data sets indicates an insignificant influence of the nanoparticles on the mode effective indices. Due to the limited data quality, an evaluation of PEEM data from the uncovered surface in the UV spectral regime was not possible.

The gold nanoparticles obviously act as efficient electron emitters probing the local field generated at the SiO₂ surface by the superposition of laser field and excited waveguide modes. The used photon energies imply that electron emission results from photoemission processes (and two-photon photoemission processes, respectively) initiated by the superposition field with the gold sp states close to the Fermi energy acting as initial states.

VII. CONCLUSION

PEEM was demonstrated before to be a viable instrument for the observation and characterization of optical guided modes [16,18,20]. Here, we showed that such investigations do not have to be restricted to conductive materials but that even an optical waveguide made from a very good insulator

can be studied in a comprehensive manner. To this end, the mode supporting material, SiO₂, was grown upon a silicon wafer to facilitate IPE. This in turn provided compensation charges necessary to avert image distorting charging during PEEM experiments. Gold nanoparticles deposited on top of the waveguide acted in addition as local antennas amplifying the evanescent mode electric field and translating it into a photocurrent detectable by the PEEM instrument. Notably, owing to the sparse coverage of a few percent and excitation conditions far off any (plasmonic) resonance, the effect of the nanoparticles on the mode spectrum is negligible, as confirmed by comparison of the experimental data with FEM simulations. We finally would like to emphasize the capabilities of the

ITR-2PEEM technique which in this study was applied to investigate in real-time the propagation of optical waveguide modes and enabled us to unambiguously distinguish between guided and radiative modes of the SiO₂ slab.

ACKNOWLEDGMENTS

This work was supported by the German Research Foundation (DFG) through the Collaborative Research Center 677 “Function by Switching.” We thank J. Adam for helpful discussion. C.S. and L.F.K. acknowledge funding from the European Research Council (ERC Starting Grant No. 336104).

- [1] E. Bauer, *Surface Microscopy with Low Energy Electrons* (Springer, New York, 2014).
- [2] O. Schmidt, M. Bauer, C. Wiemann, R. Porath, M. Scharfe, O. Andreyev, G. Schönhense, and M. Aeschlimann, *Appl. Phys. B* **74**, 223 (2002).
- [3] A. Kubo, K. Onda, H. Petek, Z. Sun, Y. S. Jung, and H. K. Kim, *Nano Lett.* **5**, 1123 (2005).
- [4] A. Kubo, N. Pontius, and H. Petek, *Nano Lett.* **7**, 470 (2007).
- [5] C. Lemke, T. Leißner, S. Jauernik, A. Klick, J. Fiutowski, J. Kjelstrup-hansen, H.-G. Rubahn, and M. Bauer, *Opt. Express* **20**, 12877 (2012).
- [6] P. Kahl, S. Wall, C. Witt, C. Schneider, D. Bayer, A. Fischer, P. Melchior, M. H.-v. Hoegen, M. Aeschlimann, and F.-J. M. zu Heringdorf, *Plasmonics* **9**, 1401 (2014).
- [7] Y. Gong, A. G. Joly, D. Hu, P. Z. El-Khoury, and W. P. Hess, *Nano Lett.* **15**, 3472 (2015).
- [8] M. Shibuta, T. Eguchi, and A. Nakajima, *Plasmonics* **8**, 1411 (2013).
- [9] C. Lemke, T. Leißner, A. Klick, J. Fiutowski, J. W. Radke, M. Thomaschewski, J. Kjelstrup-Hansen, H.-G. Rubahn, and M. Bauer, *Appl. Phys. B* **116**, 585 (2014).
- [10] C. Lemke, C. Schneider, T. Leißner, D. Bayer, J. W. Radke, A. Fischer, P. Melchior, A. B. Evlyukhin, B. N. Chichkov, C. Reinhardt, M. Bauer, and M. Aeschlimann, *Nano Lett.* **13**, 1053 (2013).
- [11] B. Frank, P. Kahl, D. Podbiel, G. Spektor, M. Orenstein, L. Fu, T. Weiss, M. H.-v. Hoegen, T. J. Davis, F.-J. M. zu Heringdorf, and H. Giessen, *Sci. Adv.* **3**, e1700721 (2017).
- [12] M. Großmann, A. Klick, C. Lemke, J. Falke, M. Black, J. Fiutowski, A. J. Goszczak, E. Sobolewska, A. U. Zillohu, M. K. Hedayati, H.-G. Rubahn, F. Faupel, M. Elbahri, and M. Bauer, *ACS Photonics* **2**, 1327 (2015).
- [13] T. Leißner, C. Lemke, J. Fiutowski, J. W. Radke, A. Klick, L. Tavares, J. Kjelstrup-Hansen, H.-G. Rubahn, and M. Bauer, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 046802 (2013).
- [14] M. Dąbrowski, Y. Dai, A. Argondizzo, Q. Zou, X. Cui, and H. Petek, *ACS Photonics* **3**, 1704 (2016).
- [15] G. Spektor, D. Kilbane, A. K. Mahro, B. Frank, S. Ristok, L. Gal, P. Kahl, D. Podbiel, S. Mathias, H. Giessen, F.-J. M. zu Heringdorf, M. Orenstein, and M. Aeschlimann, *Science* **355**, 1187 (2017).
- [16] J. P. S. Fitzgerald, R. C. Word, S. D. Saliba, and R. Könenkamp, *Phys. Rev. B* **87**, 205419 (2013).
- [17] R. C. Word, J. P. S. Fitzgerald, and R. Könenkamp, *Opt. Express* **21**, 30507 (2013).
- [18] T. Stenmark, R. C. Word, and R. Könenkamp, *Opt. Express* **24**, 3839 (2016).
- [19] R. C. Word and R. Könenkamp, *Opt. Express* **24**, 18727 (2016).
- [20] J. P. S. Fitzgerald, R. C. Word, and R. Könenkamp, *Phys. Rev. B* **89**, 195129 (2014).
- [21] W. Swiech, G. Fecher, C. Ziethen, O. Schmidt, G. Schönhense, K. Grzelakowski, C. M. Schneider, R. Frömter, H. Oepen, and J. Kirschner, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **84**, 171 (1997).
- [22] M. U. Wehner, M. H. Ulm, and M. Wegener, *Opt. Lett.* **22**, 1455 (1997).
- [23] L. F. Kadem, C. Lamprecht, J. Purto, and C. Selhuber-Unkel, *Langmuir* **31**, 9261 (2015).
- [24] R. Williams, *Phys. Rev.* **140**, A569 (1965).
- [25] A. M. Goodman, *J. Electrochem. Soc.* **115**, 276C (1968).
- [26] R. Yan, Q. Zhang, W. Li, I. Calizo, T. Shen, C. A. Richter, A. R. Hight-Walker, X. Liang, A. Seabaugh, D. Jena, H. G. Xing, D. J. Gundlach, and N. V. Nguyen, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 022105 (2012).
- [27] A. Klick, S. de la Cruz, C. Lemke, M. Großmann, H. Beyer, J. Fiutowski, H.-G. Rubahn, E. R. Méndez, and M. Bauer, *Appl. Phys. B* **122**, 79 (2016).
- [28] P. Welch, *IEEE Trans. Audio Electroacoust.* **15**, 70 (1967).
- [29] G. Lifante, *Integrated Photonics: Fundamentals* (Wiley, Chichester, 2003).
- [30] W. Dai and C. M. Soukoulis, *Phys. Rev. B* **80**, 155407 (2009).
- [31] H. W. Kihm, J. H. Kang, J. S. Kyoung, K. G. Lee, M. A. Seo, and K. J. Ahn, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 141102 (2009).
- [32] P. Lalanne, *Surf. Sci. Rep.* **64**, 453 (2009).
- [33] H. Liu and P. Lalanne, *Phys. Rev. B* **82**, 115418 (2010).
- [34] A. C. H. Gan, L. Lalouat, P. Lalanne, and L. Aigouy, *Phys. Rev. B* **83**, 085422 (2011).
- [35] C. Lemke, T. Leißner, A. Klick, J. W. Radke, J. Fiutowski, J. Kjelstrup-Hansen, H.-G. Rubahn, and M. Bauer, *Opt. Express* **21**, 27392 (2013).
- [36] See Supplemental Material at <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevB.98.085128> for a movie generated from the time-resolved data.
- [37] A. D. Humphrey and W. L. Barnes, *Phys. Rev. B* **90**, 075404 (2014).

5 SPP-EINKOPPLUNG AN STUFENKANTEN

Dieses Kapitel thematisiert die SPP-Anregung an Kanten unterschiedlicher Höhe. Der grundlegende Gedanke ist einfach: An einer Kante können Oberflächenplasmon-Polaritonen angeregt werden, ohne Kante, d.h. bei einer Stufe mit Höhe Null, jedoch nicht. Dieser simple Fakt legt eine Abhängigkeit der SPP-Einkopplung von der Stufenhöhe nahe, die in diesem Kapitel untersucht wird. Wie das beiliegende Manuskript zeigt, steigt die Einkoppelstärke zunächst mit der Stufenhöhe an, um dann – aufgrund von Interferenz – wieder zu fallen. Es konnte eine für die vorliegende Anregungsgeometrie *optimale* Stufenhöhe bestimmt werden.

5.1 KOPPLUNGSKONSTANTE

Zunächst muss die Einkoppelstärke quantifiziert und aus den experimentellen Daten extrahiert werden. Dazu wird die komplexe Größe

$$\rho \equiv \beta e^{i\delta} \quad (5.1)$$

definiert, die im Folgenden als *Kopplungskonstante* bezeichnet wird. Dabei ist $\beta = |\rho| = |E_{SPP}/E_L|$ das Verhältnis der Amplituden von SPP- und Laser-Welle sowie δ deren Phasendifferenz. Die Photoemissionsausbeute Y in der Entfernung x von der Kante ergibt sich in einem 2PPE-Prozess aus dem zeitlichen Mittelwert der quadrierten Intensität. Da es sich um gepulste Anregung handelt, wird das Integral über einen Puls betrachtet. Außerdem wird angenommen, dass die Photoemission vom elektrischen Feld senkrecht zur Oberfläche dominiert wird [16]¹:

$$Y(x) \propto \int_{-\infty}^{\infty} [E_{L\perp}(x, t) + E_{SPP\perp}(x, t)]^4 dt \quad (5.2)$$

Die Lösung des Integrals (5.2) unter der Annahme gaußförmiger Pulse wurde im beiliegenden Manuskript an die experimentellen Daten gefittet, um die Kopplungskonstante zu bestimmen. Eine detaillierte Herleitung der Lösung ist in Anhang A zu finden. Phasen- und Gruppengeschwindigkeit sowie Propagationslänge des SPP wurden hier als feste Parameter aus der dielektrischen Funktion von Gold [41, 84] berechnet, also nicht aus

¹Diese Annahme wird durch neuere Messungen mittlerweile in Frage gestellt, siehe Kapitel 7.

dem Fit bestimmt. Vorherige Experimente [31, 67] bestätigen die gute Übereinstimmung mit direkt aus den PEEM-Daten gewonnenen Werten.

Senkrechte
Feldanteile

In (5.2) stehen die senkrechten Anteile der elektrischen Felder, d.h. experimentell ist das Verhältnis

$$\rho' = \frac{E_{\text{SPP}\perp}}{E_{\text{L}\perp}} = \beta' e^{i\delta'} \quad (5.3)$$

zugänglich. $E_{\text{L}\perp}$ ist die Summe der senkrechten Anteile des elektrischen Feldes von eingestrahelter und reflektierter Welle:

$$E_{\text{L}\perp} = E_{\text{L}} (1 + r) \sin \Theta, \quad (5.4)$$

wobei E_{L} das elektrische Feld der eingestrahelten Welle ist, r ist der Reflexionskoeffizient und Θ der Einfallswinkel. Für den senkrechten Anteil des SPP-Feldes im Vakuum ergibt sich [vgl. (B.13)]:

$$E_{\text{SPP}\perp} = -n_{\text{SPP}} \cdot E_{\text{SPP}}. \quad (5.5)$$

Die Kopplungskonstante ρ berechnet sich daher aus dem beobachtbaren Verhältnis ρ' (5.3) zu

$$\rho = \rho' \cdot \left(\frac{(1 + r) \sin \Theta}{-n_{\text{SPP}}} \right). \quad (5.6)$$

Entsprechend ergibt sich für Amplitude und Phase:

$$\beta = \beta' \cdot \left| \frac{(1 + r) \sin \Theta}{-n_{\text{SPP}}} \right| \quad ; \quad \delta = \delta' + \text{Phase} \left(\frac{(1 + r) \sin \Theta}{-n_{\text{SPP}}} \right). \quad (5.7)$$

Im Manuskript wurde aufgrund eines Tippfehlers ein falscher Wert für den Reflexionskoeffizienten angenommen. Dies führte zu einem systematischen Fehler bei der Berechnung von Amplitude und Phase aus den experimentellen Daten. Die korrigierten Werte werden in Abschnitt 5.4 gezeigt.

5.2 DURCHFÜHRUNG UND ERGEBNIS

Zusätzlich zur Abhängigkeit von der Stufenhöhe wurde die Kopplungskonstante in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz untersucht. In einem idealen Experiment würde man dabei einen der Parameter festhalten, während der andere möglichst kleinschrittig variiert wird. In der Praxis sind dem jedoch Grenzen gesetzt. Zum einen kann die Stufenhöhe nicht beliebig fein verändert werden, weil dazu jedes mal eine neue Probe anzufertigen ist und die Stufenhöhe aufgrund von Toleranzen bei der Fertigung nur mit endlicher Genauigkeit hergestellt werden kann. Zum anderen ist die zugängliche Frequenz durch den verwendeten Laser und das Probenmaterial begrenzt. In diesem Fall ist der Ausgang des *Tsunami* zwischen 720 nm und 900 nm verwendbar. Der prinzipiell

ebenfalls zugängliche Bereich der zweiten Harmonischen ist nicht nutzbar, weil die verwendeten Goldfilme keine propagierenden SPP-Moden in diesem Bereich unterstützen. Im Experiment wurden daher Proben mit Stufenhöhen von 100, 150, 200, 300, 450, 550, 750 und 950 nm verwendet und der Laser jeweils im verfügbaren Wellenlängenbereich durchgestimmt.

Vervollständigt wurden die Experimente durch Rechnungen von Sergio de la Cruz und Eugenio Méndez in Ensenada-Tijuana, Mexico. Dabei wurde ein sogenannter *Integral Equation Approach* verwendet. In den Rechnungen gelten oben genannte Einschränkungen nicht. Hier wurde eine feste Wellenlänge von 750 nm und eine beliebig fein einstellbare Stufenhöhen zugrunde gelegt. Eine Einschränkung betrifft hier das einfallende Licht. Es wurde ein Dauerstich-Lichtstrahl mit einer Strahlbreite von 80 Wellenlängen (60 μm) angenommen, gegenüber $\approx 500 \mu\text{m}$ im Experiment. Wie das unten stehende Manuskript zeigt, führen diese Modifikationen nicht zu signifikanten Abweichungen zwischen Experiment und Rechnungen.

5.3 VERGLEICH MIT DATEN AUS DER LITERATUR

Bei der im Manuskript gezeigten Auswertung der SPP-Einkopplung ergeben sich für das Amplitudenverhältnis Werte zwischen 0 und 0,6. In früheren Publikationen finden sich dagegen Werte, die fast durchgängig größer sind als Eins. Zhang et al. [85] berichten von Werten zwischen 0,9 und 2,9. Bei Lemke et al. [31] finden sich Werte zwischen 2 und 7. Im Folgenden soll diskutiert werden, wie diese Differenz zu erklären ist. Eine mögliche Ursache sind Unterschiede im untersuchten System. Das von Zhang et al. durchgeführte Experiment unterscheidet sich von dem in dieser Arbeit vorgestellten in drei Punkten. Erstens verwenden sie Silberfilme anstelle der hier verwendeten Goldfilme. Zweitens haben die einfallenden Laserpulse eine Zentralwellenlänge von 400 nm gegenüber den hier verwendeten 800 nm. Drittens werden anstelle einfacher Stufen Gräben zur Einkopplung verwendet.

Eine andere Erklärung legen die Werte von Lemke et al. nahe. Da es sich um das gleiche System handelt wie in der vorliegenden Untersuchung, können experimentelle Unterschiede als Ursache ausgeschlossen werden. Der Grund für die Abweichung ist in diesem Fall vielmehr eine unzulässige Normierung, bei der die minimale Zählrate auf Null gesetzt wurde. Eine Neuauswertung der von Lemke et al. verwendeten Daten ergibt dagegen Werte zwischen 0,5 und 0,6. Diese finden sich im beiliegenden Manuskript im Datensatz für die Stufenhöhe von 450 nm.

Amplitude and phase of surface plasmon polaritons excited at a step edge

A. Klick¹ · S. de la Cruz^{2,3} · C. Lemke¹ · M. Großmann¹ · H. Beyer¹ · J. Fiutowski⁴ · H.-G. Rubahn⁴ · E. R. Méndez² · M. Bauer¹

Received: 24 July 2015 / Accepted: 28 January 2016 / Published online: 29 March 2016
© Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2016

Abstract A combined experimental and theoretical study on the laser-induced excitation of surface plasmon polaritons (SPP) at well-defined step edges of a gold–vacuum interface is presented. As a relevant parameter determining the coupling efficiency between laser field and SPP, we identify the ratio between step height h and excitation wavelength λ . For specific values of h/λ , an almost complete suppression of SPP excitation is observed, which corresponds to a condition of constructive interference between the waves reflected at the top and bottom of the step. Experiment and theory show, furthermore, that next to the amplitude also the phase of the SPP is affected by the superposition.

1 Introduction

Surface plasmon polaritons are considered as promising and important ingredients for future nano-photonic

applications [1–3]. The implementation of miniaturized plasmon-based devices relies on spatially confined sources providing an efficient means to couple light into SPP modes. Common approaches use well-defined and compact surface structures which enable one to overcome the well-known wave vector mismatch between light and SPP. In the past, various coupling schemes have been developed including gratings [4], slits [5, 6], ridges [7–9], holes and arrays of holes [10, 11], and more complex structures [12] on metallic films. In order to optimize the efficiencies of these coupling units, there is also a need for reliable models which allow for sampling the large parameter space offered by the different structural configurations and excitation geometries, and quite a number of theoretical studies on this topic have been published [13–19]. Using an integral equation approach for the solution of two-dimensional scattering problems, de la Cruz et al. recently presented a comprehensive work on the coupling efficiencies of different types of structural light–SPP coupling units [20]. As one of the outcomes of the study, the authors suggested an optimized light–SPP coupling geometry yielding a maximum efficiency for directional SPP excitation of up to 45 %.

In this work, we present two-photon photoemission electron microscopy (2P-PEEM) data on the excitation of SPPs at defined step edges of different heights representing one of the most basic coupling geometries. Analysis of the data provides information on the coupling efficiency and phase delay for SPP excitation using near-infrared femtosecond laser pulses. The experimental results agree qualitatively and quantitatively very well with calculations based on the approach introduced in [20] demonstrating the high reliability of this model in predicting relevant coupling properties. As an important parameter determining the coupling efficiency, we identify the ratio between step height h and excitation wavelength λ . For specific values of h/λ , a

This article is part of the topical collection “Ultrafast Nanooptics” guest edited by Martin Aeschlimann and Walter Pfeiffer.

✉ A. Klick
klick@physik.uni-kiel.de

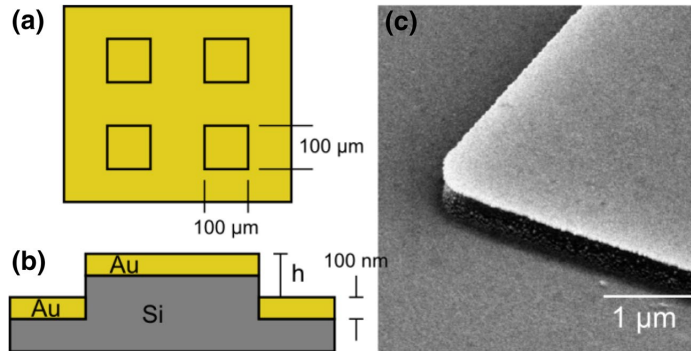
¹ Institute of Experimental and Applied Physics, University of Kiel, Leibnizstr. 19, 24118 Kiel, Germany

² División de Física Aplicada, Centro de Investigación Científica y de Educación Superior de Ensenada, Carretera Ensenada-Tijuana No. 3918, Ensenada, BC 22860, Mexico

³ Cuerpo Académico de Energía y Sustentabilidad, Universidad Politécnica de Chiapas, Tuxtla Gutierrez, Chiapas 29082, Mexico

⁴ Mads Clausen Institute, University of Southern Denmark, NanoSYD Alsion 2, 6400 Sønderborg, Denmark

Fig. 1 Sample geometry used in the experiments; **a** scheme of a sample unit with four quadratic platforms for SPP excitation (top view); **b** cross section of a platform with the relevant parameters indicated; **c** SEM image of the corner of a platform; the platform height is 950 nm



substantial reduction in the laser–SPP coupling efficiency is observed arising from destructive interference effects modulating the excitation laser field. Experiment and theory show, furthermore, that this interference also affects the phase of the SPP field.

2 Experiment

The sample geometry used in the experiments is illustrated in Fig. 1a, b. Step edges for SPP excitation are provided by the rims of quadratic platforms fabricated by ultraviolet lithography and reactive-ion etching of a silicon substrate. Samples with platforms of different heights h (100, 150, 200, 300, 450, 550, 750, and 950 nm) were prepared and finally covered with a 100-nm-thick gold film on top of a 4-nm-thick titanium adhesion layer. Scanning electron microscopy (SEM) data of the samples (Fig. 1c) indicate that the preparation procedure yields well-defined and sharp platform edges for SPP coupling. Silver-covered substrates for reference experiments were prepared in a similar manner.

For SPP excitation, the samples mounted in a ultrahigh-vacuum (UHV) chamber were illuminated with sub-100-fs laser pulses from a tunable Ti:Sapphire oscillator (Tsunami, Spectra Physics) under a fixed angle of incidence of $\theta = 66.3^\circ \pm 0.6^\circ$. The error accounts for the tolerances in the dimensions of the UHV chamber according to DIN standard DIN 7168-m and the uncertainty in determining the direction of incident and reflected laser beam. Experimental data were recorded for different wavelengths λ ranging from 720 to 900 nm measured with a calibrated fiber spectrometer. To guarantee nearly transform-limited excitation conditions, any residual group velocity dispersion of the laser pulses was compensated using an external Fork prism pair compressor. For SPP imaging, a photoemission electron microscope (PEEM) (IS PEEM, Focus GmbH) operated in the 2P-PEEM mode was used, as described in

detail in [21, 22]. Prior to the photoemission measurements, the samples were covered in situ with a small amount of cesium (coverage $\ll 1$ monolayer) using a well-degassed getter source (SAES Getters S.p.A.). This treatment is required to lower the work function in order to facilitate a two-photon photoemission (2PPE) process from the gold and silver surfaces with near-infrared light pulses [23]. All experiments were performed under UHV conditions at an average laser power of 200 mW (at a pulse repetition rate of 80 MHz). The laser is focused to an elliptic-shaped spot with an extent of approximately $500 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$, which guarantees homogeneous illumination of the sample within the field of view of the PEEM instrument. More details of the experimental setup are described in [24, 25].

3 Theory

In this section, we provide a brief description of the numerical approach employed for the calculations. With reference to Fig. 2, a p-polarized monochromatic Gaussian beam of $1/e$ half-width g illuminates a metallic surface with a step of height h . The origin of coordinates is taken as the upper corner of the step, which coincides with the center of the beam. For the calculations, we assume that the system is invariant along y , which complies reasonably well with

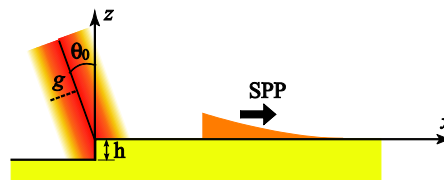


Fig. 2 Schematic diagram of the geometry considered. A beam of light illuminates the metallic step with an angle of incidence θ , exciting a SPP that propagates along the flat section

the experimental conditions. Due to computational limitations, the width $2g$ of the beam employed in the numerical work is only about 80 wavelengths; a much broader beam is employed in the experiments. Another difference is that the calculations were carried out for monochromatic fields, while the experiments were conducted with fs laser pulses. Nevertheless, as we shall see in the results, no significant discrepancies are introduced by these differences.

The surface profile is conveniently described by a vector-valued function $\mathbf{r}_s(\tau) = [\xi(\tau), \eta(\tau)]$, whose x and y coordinates are functions of a single parameter τ [26]. This permits the study of profiles that are not single-valued functions of x . For the case of a flat, horizontal surface at $z = 0$, one simply has that the parameter $\tau = x$, and that the parametric functions are $\xi(\tau) = x$ and $\eta(\tau) = 0$. Thus, assuming a surface of length L , the step profile studied here can be described using three distinct sections: one for the interval $-L/2 < x < 0$, where we set $\mathbf{r}_s(\tau) = [x, 0]$; one for $x = 0$, where we set $\mathbf{r}_s(\tau) = [0, z]$; and another one for the interval $0 < x < L/2$, where we set $\mathbf{r}_s(\tau) = [x, 0]$.

In this section, we assume for the fields an implicit time dependence of the form $e^{-i\omega t}$ that is suppressed from the notation. Given the invariance of the system along the y direction, the polarization of the field is retained upon interaction with the surface. Also, since the magnetic field vector is along y , the problem is most naturally solved in terms of this component, which we represent by $H(x, z)$. This is another difference with the experimental work, as the signal measured in the 2P-PEEM is more directly related to the electric field. Although this is not really an issue, it is important to keep this fact in mind in the interpretation of the results. Central to this discussion is the relation between the fields, which, from Maxwell's equations, can be expressed in vacuum as follows:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = E_x(\mathbf{r})\hat{x} + E_z(\mathbf{r})\hat{z} = -i\frac{c}{\omega} \frac{\partial H(\mathbf{r})}{\partial z} \hat{x} + i\frac{c}{\omega} \frac{\partial H(\mathbf{r})}{\partial x} \hat{z}, \quad (1)$$

where $\mathbf{r} = (x, z)$, \hat{x} and \hat{z} are unit vectors along x and z , and the subindices indicate the components of the electric field along these directions. This equation also illustrates the fact that all the information required to solve the problem is contained in $H(\mathbf{r})$. In the following, we provide a brief description of the numerical method employed to solve the problem in terms of the magnetic field. More details can be found in Refs. [26, 27].

Employing Green's integral theorem, the total field above the surface may be expressed as the sum of the incident and scattered fields, as follows:

$$H(\mathbf{r}) = H_i(\mathbf{r}) + \frac{1}{4\pi} \int \left[\frac{\partial G_0(\mathbf{r}\tau')}{\partial N'} H(\tau') - G_0(\mathbf{r}\tau') L(\tau') \right] d\tau', \quad (2)$$

where $G_0(\mathbf{r}|\mathbf{r}')$ is the free space Green function, and $\partial/\partial N'$ is a derivative along the outward normal to the surface. In this expression, $H_i(\mathbf{r})$ represents the incident field, and the integral represents the scattered field $H_s(\mathbf{r})$. The source functions, $H(\tau)$ and $L(\tau)$, represent the values of the field and its normal derivative evaluated on the surface as it is approached from above.

The incident Gaussian beam can be written in terms of its angular spectrum representation as follows:

$$H_i(\mathbf{r}) = \int_{-\omega/c}^{\omega/c} \frac{dq}{2\pi} A(q|k) e^{iqx - i\alpha_0(q)z}, \quad (3)$$

where $\alpha_0(q) = [(\omega/c)^2 - q^2]^{1/2}$, with $Re\{\alpha_0(q)\} > 0$ and $Im\{\alpha_0(q)\} > 0$, and

$$A(q|k) = A_{\parallel} \sqrt{\pi} g e^{-g^2(q-k)^2/4}. \quad (4)$$

The constant A_{\parallel} is assumed real and $k = (\omega/c) \sin \theta$, where θ represents the angle of incidence. It can be verified that on the plane $z = 0$, one gets

$$H_i(x, 0) = A_{\parallel} e^{ikx} e^{-x^2/g^2}. \quad (5)$$

We see that A_{\parallel} is the amplitude of the p-polarized incident beam at the origin of coordinates, and using Eq. (1), one can show that it also represents the magnitude of the incident electric field vector.

The source functions $H(\tau)$ and $L(\tau)$ may be found by solving a pair of integral equations that can be written as [28]

$$H(\tau) = H_i(\tau) + \frac{1}{4\pi} \lim_{\nu \rightarrow 0} \int \left[\frac{\partial G_0(\mathbf{r}|\tau')}{\partial N'} H(\tau') - G_0(\mathbf{r}_\nu|\tau') L(\tau') \right] d\tau', \quad (6)$$

$$0 = -\frac{1}{4\pi} \lim_{\nu \rightarrow 0} \int \left[\frac{\partial G_m(\mathbf{r}|\tau')}{\partial N'} H(\tau') - \varepsilon(\omega) G_m(\mathbf{r}_\nu|\tau') L(\tau') \right] d\tau', \quad (7)$$

where $G_m(\mathbf{r}|\mathbf{r}')$ is the Green's function for the metal, $\varepsilon(\omega)$ its dielectric function, and $\mathbf{r}_\nu = \mathbf{r}_s(\tau) + \nu\hat{n}$; here, ν is a positive infinitesimal and \hat{n} is a vector normal to the surface.

Once the source functions are known, one can calculate the scattered field in vacuum using the integral expression that appears in Eq. (2). The corresponding electric field components can be obtained from Eqs. (1) and (2). However, due to the divergences of the Green's function and its derivatives as the point of observation approaches the surface, the surface electric field is more conveniently calculated in a more direct form from the source functions [28]

$$\mathbf{E}(x) = E_z(x)\hat{z} + E_x(x)\hat{x} = \frac{ic}{\omega} \left[\frac{dH(x)}{dx} \hat{z} - L(x)\hat{x} \right]. \quad (8)$$

The interaction of the incident beam with the edge excites SPPs that propagate on the upper flat section of the sample. In the vacuum region $z > 0$, the field of this excitation is of the form

$$H(x, z) = A_{\text{spp}} e^{ik_{\text{spp}}x} e^{-\beta_{\text{spp}}z}, \quad (9)$$

where k_{spp} and β_{spp} are the wave number and the decay constant of the SPP field into the vacuum, and A_{spp} is the amplitude of the SPP field at the origin. Again, the electric field associated with the SPP can be obtained from Eq. (1). It can be verified that it is mainly normal to the surface and that its amplitude is the same as that of the magnetic field.

At this stage, it is convenient to define the complex quantity

$$\rho = \frac{A_{\text{spp}}}{A_{\parallel}} = \beta e^{i\delta}, \quad (10)$$

where the coupling amplitude $\beta = |\rho|$, and δ is the phase difference between the incident beam and the excited SPP. The parameters β and δ are of central importance in this work, and from the discussion above, it should be clear that they can be defined equivalently in terms of electric field amplitudes in vacuum. It is also worth mentioning that the coupling efficiency defined in [23] is proportional to β^2 .

4 Results and discussion

Figure 3a compares 2P-PEEM images of a step edge of a platform (step height $h = 950$ nm) recorded at illumination with different laser wavelengths. The position of the step edge is indicated by the white dashed line. The periodic 2PPE intensity pattern (in the following referred to as beating pattern) to the right of the step edge is the characteristic 2P-PEEM signature for an SPP excited at the step edge and propagating to the right. It is caused by the superposition of illuminating laser field and SPP polarization field as described in detail in Ref. [29] with the periodicity arising from the wave vector mismatch between laser field and SPP. At variation in the laser wavelength, one observes clear changes in periodicity, phase, and contrast of the beating pattern.

A quantitative analysis of the changes in the pattern periodicity allows determining real and imaginary parts of the SPP dispersion relation at the gold–vacuum interface, a topic that has been addressed in detail in previous studies [30, 31]. The present work will focus on the changes in the pattern phase and pattern contrast as characteristic parameters determined by the coupling efficiency between laser light and SPP.

2P-PEEM intensity profiles deduced from the beating patterns shown in Fig. 3a are compared in Fig. 3b (solid red lines) and illustrate the considerable changes in the pattern contrast and phase in a more quantitative manner.

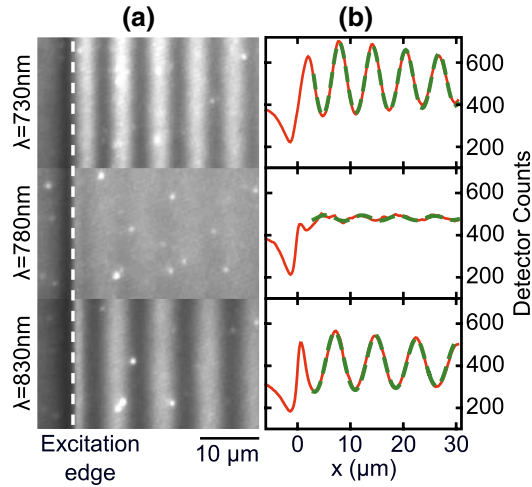


Fig. 3 SPP excitation at a platform height of 950 nm; the respective excitation wavelengths are indicated to the left; **a** 2P-PEEM images at illumination with laser pulses of 730-, 780-, and 830-nm center wavelength, respectively; the laser is incident from the left. The position of the step edge is marked by the white dashed line. **b** Solid red line 2P-PEEM intensity profiles deduced by vertical integration from the images are shown in Fig. 2a; dashed green line fit to the experimental data (for details, see text)

Notably, at an excitation wavelength of 780 nm, the beating pattern disappears almost completely, indicating a considerable reduction in the light–SPP coupling efficiency in comparison with excitation at 730 and 830 nm. At the same time, the phase of the beating pattern undergoes a continuous shift by approximately π as evidenced by the change from a $- \cos$ -type behavior at 730 nm to a $+ \cos$ -type behavior at 830 nm.

For a quantitative analysis of the experimental data, we will next derive an analytic model describing the 2P-PEEM signal associated with the excitation of the SPP. The model reveals that the complex coupling parameter $\rho = \beta e^{i\delta}$ introduced above [eq. (10)] is the relevant parameter determining the 2P-PEEM pattern contrast. In contrast to the calculations, we consider in the analysis of the experimental data the electric field components E_{SPP} and E_L of SPP and laser, respectively, as being the field components which are more directly related to the photoemission process.

The photoemission signal at a distance x from the excitation edge as detected in the 2P-PEEM experiment, $I_{2\text{PPE}}(x)$, results from a superposition of E_{SPP} and an effective laser field E_L^{eff} given by incident and reflected laser light. It can be written as [29]:

$$I_{2\text{PPE}}(x) = A \int_{-\infty}^{\infty} \left[E_L^{\text{eff}}(x, t) + E_{\text{SPP}}(x, t) \right]^4 dt, \quad (11)$$

with A being a proportionality constant. The integration limits are justified by the virtually infinite exposure time in the 2P-PEEM acquisition mode in comparison with pulse widths of laser and SPP. The exponent of the integrand arises from the second-order nonlinearity of the two-photon photoemission process. A Gaussian time profile is assumed for the excitation laser pulse so that $E_L^{\text{eff}}(x, t)$ is given by:

$$E_L^{\text{eff}}(x, t) = E_{L0}(1 + r) \cdot \sin(\Theta) \cdot (k_L \sin(\Theta) \cdot x - \omega t) \cdot \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{x \cdot \sin(\Theta) - c \cdot t}{c \cdot \sigma_t}\right)^2\right], \quad (12)$$

with r being the reflectivity of the metal surface, E_{L0} being the amplitude of the incident laser field, $k_L = \frac{\omega}{c}$ being the wave vector of the laser field, c being the vacuum speed of light, and σ_t is the width of the Gaussian field envelope. The first $\sin(\Theta)$ term accounts for the observation that at large angles of incidence, the photoemission intensity near threshold tends to be dominated by surface excitations and the normal component of the electric field, respectively [32–34]. The second $\sin(\Theta)$ term accounts for the beating pattern being formed by the projection of k_L onto the wave vector k_{SPP} of the SPP. The (time-integrated) intensity profile of the laser field is regarded as constant. This assumption is well justified as the overall extension of the laser spot at the surface is much larger than the size of the sample area selected for data analysis ($\approx 20 \times 40 \mu\text{m}$).

According to Eq. (10), the SPP polarization field $E_{\text{SPP}}(x, t)$, which is originally generated at the step edge by the incident laser field, is described by the following term [31]:

$$E_{\text{SPP}}(x, t) = E_{L0} \cdot \beta \cdot \sin(k'_{\text{SPP}}x - \omega t + \delta) \cdot \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{x - v_{g,\text{SPP}} \cdot t}{v_{g,\text{SPP}} \cdot \sigma_t}\right)^2\right] \cdot \exp[-k''_{\text{SPP}}x]. \quad (13)$$

Here, k'_{SPP} and k''_{SPP} are the real and the imaginary parts of k_{SPP} and $v_{g,\text{SPP}}$ is the group velocity of the SPP pulse. Integration of (11) using (12) and (13) yields the following analytic expression:

$$I_{2\text{PE}}(x) = AE_{L0}(1 + r) \sin(\Theta) \cdot \frac{3}{16} \sqrt{2\pi} \sigma \left[1 + 4 \cos(\varphi(x)) \cdot D(x) P^{\frac{3}{2}}(x) + (4 + \cos(2\varphi(x))) \cdot D^2(x) P(x) + 4 \cos(\varphi(x)) \cdot D^3(x) P^{\frac{3}{2}}(x) + D^4(x)\right] \quad (14)$$

with the phase term

$$\varphi(x) = \Delta k \cdot x - \delta, \quad (15)$$

the coupling term

$$D(x) = \frac{\beta}{(1 + r) \sin(\Theta)} \cdot \exp[-k''_{\text{SPP}}x], \quad (16)$$

and

$$P(x) = \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{x}{v_{\text{red}} \cdot \sigma_t}\right)^2\right] \quad \text{with} \quad \frac{1}{v_{\text{red}}} = \frac{\sin(\Theta)}{c} - \frac{1}{v_{g,\text{SPP}}}, \quad (17)$$

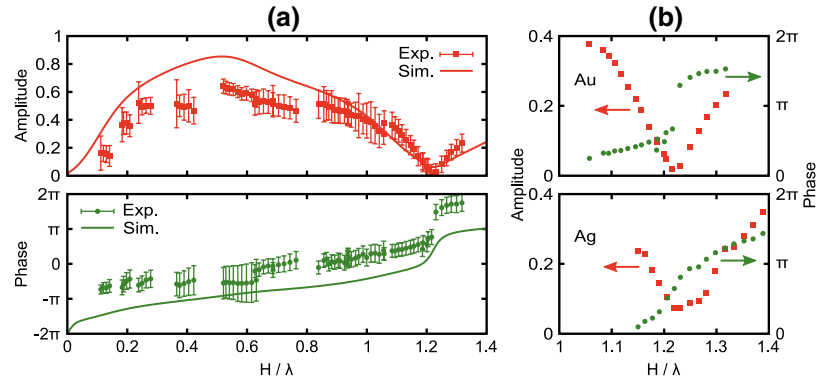
a term arising from the superposition of laser and SPP pulse profile.

Equation (14) can be fitted to the 2P-PEEM intensity profiles, with the coupling amplitude $\beta = E_{\text{SPP}}/E_{L0}$, the phase difference δ , and the proportionality $A' = AE_{L0}$ left as the only free fitting parameters. Literature data for the permittivity $\epsilon(\omega)$ [35, 36] and the SPP dispersion relation $\omega(k_{\text{SPP}})$ [31] and its derivative are used to fix r , k'_{SPP} and k''_{SPP} , and $v_{g,\text{SPP}} = \frac{\partial \omega}{\partial k_{\text{SPP}}}$. The pulse width of laser and SPP were determined from spectra of the transform-limited laser pulses measured in front of the vacuum chamber. The fits were performed at omission of the first pattern maximum in the experimental data located next to the step edge. In this area, the 2P-PEEM signal carries substantial contributions from the sample topography (step edge) which is not considered in the fitting model. The fitting results match the experimental data very well as shown in Fig. 3b, which compares the fits (green dashed lines) with the 2P-PEEM intensity profiles.

Figure 4a shows the coupling amplitude β and the phase difference δ between the incident laser beam and the SPP as obtained from the fits of Eq. (14) to the 2P-PEEM intensity profiles for SPP excitation at the gold-covered step edges of different heights. The data are displayed as a function of h/λ , the ratio between step height and excitation wavelength. It is the relevant quantity determining the characteristic dependencies of β and δ . For increasing values of h/λ , the coupling amplitude β first increases up to a maximum value of about 0.6 at $h/\lambda \approx 0.5$ and then decreases to reach a distinct local minimum close to zero at $h/\lambda \approx 1.22$. This general trend is further superimposed by small fluctuations, which we attribute to sample-to-sample variations in the quality of the step edges, i.e., the presence of structural defects and other inhomogeneities, which may also affect the coupling efficiency.

For the phase shift, we observe a slow and rather constant increase from $\delta = -0.7\pi$ at $h/\lambda \approx 0.1$ to $\delta = 0.6\pi$ at $h/\lambda \approx 1.2$. As h/λ further increases, δ exhibits a sharp rise by π at $h/\lambda \approx 1.22$, i.e., at the position of the minimum in β . Overall, a total phase shift of $\delta \approx 2.5\pi$ is observed in the probed h/λ regime. The silver-covered substrates (bottom of Fig. 4b) show a very similar behavior near $h/\lambda \approx 1.22$ even though the overall response of β and δ seems to be somehow broadened. The 2P-PEEM images of the silver samples (not shown) indicate a much higher defect density in comparison with the gold films. We therefore suspect that the broadening in the silver data arises from structural inhomogeneities at the step edges. Experiments on silver

Fig. 4 **a** Coupling amplitude β (red squares, top) and phase difference δ with respect to the incident laser field (green circles, bottom) as a function of h/λ for SPP excitation at the gold platforms; solid lines are the corresponding results of the numerical calculations. **b** Close-up of the data shown in Fig. 4a in the vicinity of the coupling minimum (top) and corresponding close-up for SPP excitation at silver platforms (bottom)



samples for other values of h/λ were not performed within this study.

Results of the numerical calculations for the gold step edges under consideration of the excitation geometry used in the experiment ($\Theta = 66.3^\circ$) are shown in Fig. 4a. They were calculated using a value of $\epsilon(\omega) = -18.17 + i1.19$, which corresponds to a wavelength of $\lambda = 750$ nm. The half-width of the beam was $g = 32$ μm . The general trend of the experimental data is very well reproduced by the calculations for both, coupling amplitude and phase delay. In particular, the position of the maximum and minimum of β as well as the calculated rise in δ by π near $h/\lambda \approx 1.22$ is in perfect agreement with the experiment. Note that there is a rather constant phase difference between experimental and calculated data of about 0.7π . We suspect that the origin of this difference is due to a systematic error in the determination of the positions of the coupling edges from the experimental 2P-PEEM data.

The theory results clearly support the interpretation of the experimental results for β in terms of a measure for the efficiency of laser-SPP coupling at the step edge. On the other hand, the comparison also proves the numerical approach being a reliable tool for the characterization of plasmonic coupling units. Both the experiment and theory show that for a given excitation wavelength λ , the coupling efficiency and the relative phase between laser light and SPP at a step edge depend on the step height h . Even more, at a critically value of h , the coupling efficiency is almost completely suppressed. The coincidence of the gold and silver data hints to a predominant geometrical effect being responsible for the observations, and the actual origin will be discussed in the following.

At interaction with a surface structure light is coupled into different emission channels by reflection, diffraction, absorption, and—if supported by the interface—conversion into plasmonic excitations (Fig. 5a). Energy conservation guarantees that the intensities

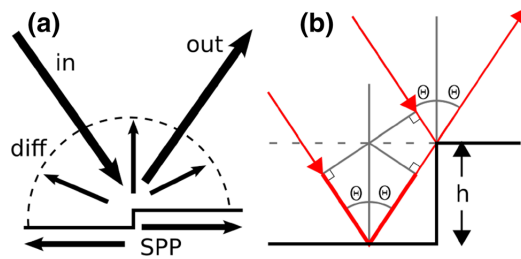


Fig. 5 **a** Schematic illustration of different emission channels available for light in interaction with a surface structure: The incident light (in) can be absorbed (not shown), reflected (out), diffracted (diff), or converted into a plasmonic excitation (SPP); **b** scheme illustrating the origin of the interference effects at a step edge responsible for the observed modulation in the laser-SPP coupling efficiency: Two partial rays are formed at reflection of the incidence beam at the two step levels. Depending on their relative phase, the rays can interfere constructively or destructively at the step edge. The total field available for SPP excitation is finally given by the superposition of this interference field with the incident beam. Θ is the angle of incidence of the laser

coupled into the different emission channels sum up to the total intensity of the incoming light, i.e., any increase in one of the emission channels must result in a reduction in one or more of the other emission channels and vice versa.

At illumination of a step edge, an incident laser beam undergoes reflection at the lower as well as at the upper step level (Fig. 5b). The phase difference γ between these two reflected partial rays is given by

$$\gamma = 2 \cdot k_L \cdot h \cdot \cos \Theta. \quad (18)$$

Constructive (destructive) interference between the two reflected partial rays is expected for $\gamma = 2m \cdot \pi$, ($\gamma = (2m + 1) \cdot \pi$) with m being an integer, resulting in a maximum (minimum) in the intensity of the overall

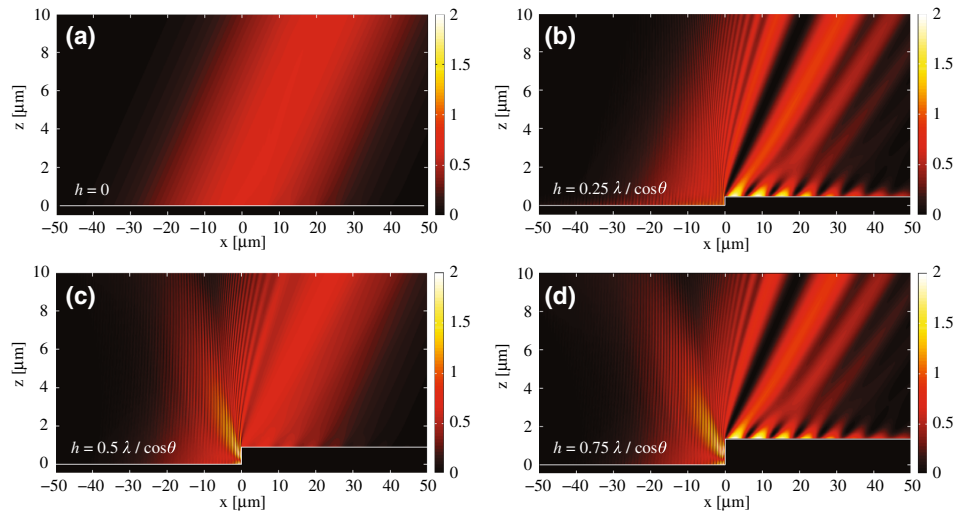


Fig. 6 Calculated scattered magnetic intensity for excitation at $\lambda = 750$ nm and an angle of incidence of $\Theta = 66.3^\circ$; for the calculations, we used a value of $\epsilon(\omega) = -18.17 + i1.19$ corresponding to gold at $\lambda = 750$ nm and a beam whose half-width was $g = 32$ μm . **a** flat surface ($h = 0$) yielding $\gamma = 0$; **b** $h = 0.25\lambda/\cos\Theta$ yielding $\gamma = \pi$ and destructive interference of the reflected partial rays at

the step edge; **c** $h = 0.5\lambda/\cos\Theta$ yielding $\gamma = 2\pi$ and constructive interference of the reflected partial rays at the step edge; **d** $h = 0.75\lambda/\cos\Theta$ yielding $\gamma = 3\pi$ and destructive interference of the reflected partial rays at the step edge; in the two destructive cases (6b, d), the field of the SPP propagating to the right and its interference with the field reflected from the top surface are clearly visible

reflected beam. For an angle of incidence $\Theta = 66.3^\circ$ and $m = 1$, Eq. (18) yields complete constructive (destructive) interference at $h/\lambda = 1.24 \pm 0.03$ ($h/\lambda = 0.62 \pm 0.02$). The errors account for the uncertainty in determining the incident angle of the laser onto the sample. Notably, the minimum and the maximum in the coupling amplitude β are observed in experiment and simulation at almost identical values. Calculations of the scattered near field for $\Theta = 66.3^\circ$ and for different values of h/λ are shown in Fig. 6. Figure 6a, c illustrates the cases $m = 0$ (no step at all) and $m = 1$ for a complete constructive interference scenario, i.e., for maximum intensity being scattered into the reflected beam. In these cases, only a reduced intensity is available for the SPP channel, and SPP excitation is indeed not observed (Fig. 6a) or very weak (Fig. 6c). On the other hand for complete destructive interference conditions (Figs. 6b, d), the intensity of the reflected beam vanishes, whereas the SPP field emerging to the left becomes maximum, as expected.

In a more local picture, the observed changes in light-SPP coupling can be understood from the superposition of incoming and reflected beam, which modulates the net amplitude and the phase of the electric field component available for SPP excitation at the step edge. For maximum intensity of the reflected beam ($h/\lambda = 1.24$), this superposition is destructive so that SPP excitation is suppressed. Contrarily, at destructive interference of the two reflected

partial rays, the total intensity of the incoming beam is available for SPP excitation resulting in a maximum in the coupling efficiency. Correspondingly, also the phase of the net field available for SPP excitation is modulated by the superposition. The observed phase shift in the SPP response next to the minimum in the coupling efficiency arises from the phase mismatch of 2π between incoming and reflected beam at destructive superposition yielding a π -shift of the resulting net field with respect to the incoming laser beam.

5 Conclusion

In a combined experimental and theoretical study, the coupling properties of metallic step edges acting as model-type light-driven SPP emitters were analyzed. Next to the coupling efficiency, the quantity which is typically addressed in these types of studies, the results also provide information on the phase of the SPP. Most strikingly, a steep decrease in the coupling efficiency is observed for distinct values of h/λ which is accompanied by a phase shift of π of the excited SPP. Similar effects can be expected for other, more efficient coupling devices [20] and may be useful in different plasmonic applications. Examples include spectral filters or phase modulators for broadband SPP pulses, which could be tuned in their properties by a structural

design of the coupler. The results show also that the scattering approach used in the calculations and the 2P-PEEM technique are quite suitable tools for a comprehensive characterization of localized light–SPP couplers on the relevant length scales.

Acknowledgments This work was funded by the German Research Foundation (DFG) through Priority Program 1391 “Ultrafast Nanooptics,” the Danish Council for Independent Research (FTP project ANAP, contract No. 09-072949). The work of S. de la C. and E.R.M. was supported in part by CONACYT, under Grant No. 180654.

References

1. M. Kauranen, A.V. Zayats, *Nat. Phys.* **6**, 737 (2012)
2. N. Liu, F. Wen, Y. Zhao, Y. Wang, P. Nordlander, N.J. Halas, A. Aluì, *Nano Lett.* **13**, 142 (2013)
3. N.J. Halas, *Nano Lett.* **10**, 3816 (2010)
4. S.T. Koev, A. Agrawal, H.J. Lezec, V.A. Aksyuk, *Plasmonics* **7**, 269 (2012)
5. F. Lopez-Tejiera, S.G. Rodrigo, L. Martín-Moreno, F.J. García-Vidal, E. Devaux, T.W. Ebbesen, J.R. Krenn, P. Radko, S.I. Bozhevolnyi, M.U. Gonzalez, J.C. Weeber, A. Dereux, *Nat. Phys.* **3**, 324 (2007)
6. L. Zhang, A. Kubo, L. Wang, H. Petek, T. Seideman, *Phys. Rev. B* **84**, 245442 (2011)
7. H. Ditlbacher, J.R. Krenn, N. Felidj, B. Lamprecht, G. Schider, M. Salerno, A. Leitner, F.R. Aussenegg, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 404 (2002)
8. H. Ditlbacher, J.R. Krenn, A. Hohenau, A. Leitner, F.R. Aussenegg, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3665 (2003)
9. I.P. Radko, S.I. Bozhevolnyi, G. Bruccoli, L. Martín-Moreno, F.J. García-Vidal, A. Boltasseva, *Phys. Rev. B* **78**, 115115 (2008)
10. A.-L. Baudrion, F. de Léon-Pérez, O. Mahboub, A. Hohenau, H. Ditlbacher, F.J. García-Vidal, J. Dintinger, T.W. Ebbesen, L. Martín-Moreno, J.R. Krenn, *Opt. Express* **16**, 3420 (2008)
11. E. Devaux, T.W. Ebbesen, J.C. Weeber, A. Dereux, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 4936 (2003)
12. V.E. Ferry, L. a. Sweatlock, D. Pacifici, and H. a. Atwater, *Nano Lett.* **8**, 4391 (2008)
13. P. Lalanne, J.P. Hugonin, J.C. Rodier, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 1 (2005)
14. P. Lalanne, J.P. Hugonin, *Nat. Phys.* **2**, 551 (2006)
15. P. Lalanne, J.P. Hugonin, J.C. Rodier, *J. Opt. Soc. Am. A. Opt. Image Sci. Vis.* **23**, 1608 (2006)
16. G. Gay, O. Alloschery, B. Viaris de Lesegno, C. O’Dwyer, J. Weiner, H.J. Lezec, *Nat. Phys.* **2**, 262 (2006)
17. O.T. Janssen, H.P. Urbach, G.W.T. Hoof, *Opt. Express* **14**, 11823 (2006)
18. J. Weiner, *Opt. Express* **16**(2), 950–956 (2008)
19. J.P.B. Mueller, F. Capasso, *Phys. Rev. B* **88**, 121410 (2013)
20. S. de la Cruz, E.R. Méndez, D. Macías, R. Salas-Montiel, P.M. Adam, *Phys. Status Solidi* **249**, 1178 (2012)
21. O. Schmidt, M. Bauer, C. Wiemann, R. Porath, M. Scharfe, O. Andreyev, G. Schönhense, M. Aeschlimann, *Appl. Phys. B* **74**, 223 (2002)
22. L. Douillard, F. Charra, Z. Korczak, R. Bachelot, S. Kostcheev, G. Lerondel, P.-M. Adam, P. Royer, *Nano Lett.* **8**, 935 (2008)
23. C. Lemke, C. Schneider, T. Leibner, D. Bayer, J.W. Radke, A. Fischer, P. Melchior, A.B. Evlyukhin, B.N. Chichkov, C. Reinhardt, M. Bauer, M. Aeschlimann, *Nano Lett.* **13**, 1053 (2013)
24. T. Leibner, K. Thilsing-Hansen, C. Lemke, S. Jauernik, J. Kjelstrup-Hansen, M. Bauer, H.-G. Rubahn, *Plasmonics* **7**, 253 (2011)
25. C. Lemke, T. Leibner, S. Jauernik, A. Klick, J. Fiutowski, J. Kjelstrup-hansen, H. Rubahn, M. Bauer, *Opt. Express* **20**, 12877 (2012)
26. C.I. Valencia, E.R. Méndez, B.S. Mendoza, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 2150 (2003)
27. A.A. Maradudin, T. Michel, A.R. McGurn, E.R. Méndez, *Ann. Phys. (N. Y.)* **203**, 255 (1990)
28. J.A. Sánchez-Gil, J.V. García-Ramos, E.R. Méndez, *Phys. Rev. B* **62**, 10515 (2000)
29. A. Kubo, N. Pontius, H. Petek, *Nano Lett.* **7**, 470 (2007)
30. M. Shibuta, T. Eguchi, A. Nakajima, *Plasmonics* **8**(3), 1411–1415 (2013)
31. C. Lemke, T. Leibner, A. Klick, J. Fiutowski, J. W. Radke, M. Thomaschewski, J. Kjelstrup-Hansen, H.-G. Rubahn, M. Bauer, *Appl. Phys. B* **116**(3), 585–591 (2013)
32. E. Bauer, *Surface Microscopy with Low Energy Electrons* (Springer, Berlin, 2014)
33. P.O. Gartland, S. Berge, B.J. Slagsvold, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 916 (1973)
34. P. Feibelman, *Prog. Surf. Sci.* **12**, 287 (1982)
35. P.B. Johnson, R.W. Christy, *Phys. Rev. B* **6**, 4370 (1972)
36. R.L. Olmon, B. Slovick, T.W. Johnson, D. Shelton, S.-H. Oh, G.D. Boreman, M.B. Raschke, *Phys. Rev. B* **86**, 235147 (2012)

5.4 KORREKTUR ZUM MANUSKRIFT

Wie oben erwähnt wurde im Manuskript der Korrekturterm (5.6), (5.7) falsch berechnet. Infolgedessen ergab sich eine um den Faktor $\approx 1,11$ zu große Amplitude. Signifikanter äußerte sich der Fehler in der Phase, die um $\approx 0,85\pi$ zu hoch berechnet wurde. Dieser Wert ist sehr nahe bei der im Manuskript festgestellten Differenz von $\approx 0,7\pi$ zwischen gemessenem und berechnetem Phasenversatz und damit vermutlich deren Hauptursache. Es verbleibt eine systematische Diskrepanz von $\approx -0,15\pi$, die möglicherweise auf eine ungenaue Festlegung der Anregungskante zurückzuführen ist. Eine weitere mögliche Fehlerquelle ist der Beitrag der parallelen elektrischen Feldanteile, wie in Kapitel 7 diskutiert wird. Abb. 5.1 zeigt korrigierte Werte für Amplitude und Phase.

Abb. 5.1: Korrigierte Werte für Amplitudenverhältnis und Phasenversatz zwischen Laser- und SPP-Welle. Die schwarze Linie zeigt den berechneten Verlauf, gemessene Werte sind als graue Balken dargestellt.

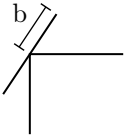
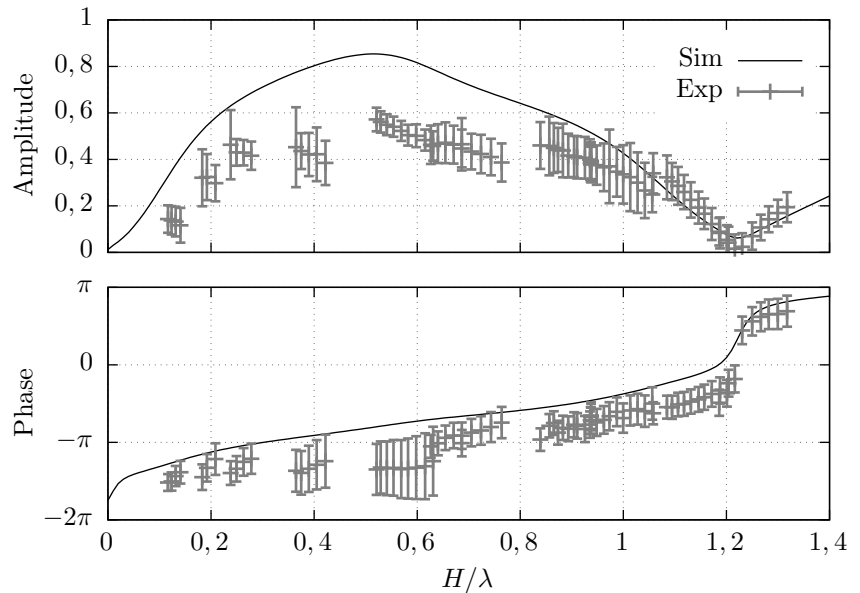


Abb. 5.2: Wirkungsquerschnitt c (oben) und Wirkungsparameter b (unten)

5.5 WIRKUNGSPARAMETER

Bisher wurde das Amplitudenverhältnis β als Kopplungsparameter verwendet. Eine alternative Beschreibung ist die Verwendung eines *Wirkungsparameters* analog zum *Wirkungsquerschnitt*. Der Wirkungsquerschnitt ist der Bereich um den Mittelpunkt eines Teilchens, in dem ein einfallendes zweites Teilchen mit dem ersten wechselwirkt. Der Stoßquerschnitt zweier Billardkugeln ist beispielsweise $\pi(r_1 + r_2)^2$, wobei r_1 und r_2 die jeweiligen Radien der Kugeln sind. Der Streuquerschnitt von Licht an Nanopartikeln ist dagegen in der Regel deutlich kleiner als sein (physikalischer) Querschnitt und steigt

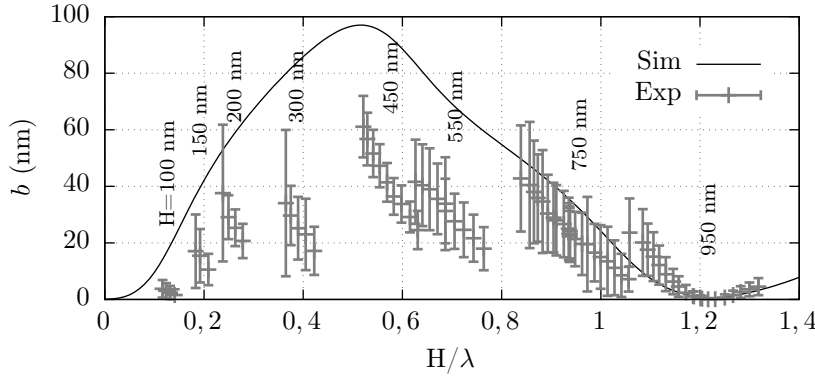


Abb. 5.3: Der Wirkungsparameter b als Funktion von H/λ . Die durchgezogene Linie zeigt die numerisch bestimmte Lösung für $\lambda=750$ nm. Graue Balken zeigen die experimentellen Werte für die verschiedenen Proben. Die Kantenhöhe H ist jeweils angegeben.

mit der Frequenz des einfallenden Lichtes an². Während der Wirkungsquerschnitt eines Teilchens die Dimension einer Fläche hat (siehe Abb. 5.2), hat der hier eingeführte Wirkungsparameter b die Dimension einer Länge. Dabei bezeichnet b die Entfernung zum Mittelpunkt der Kante, innerhalb derer das einfallende Licht in die SPP-Mode einkoppelt.

Zur Berechnung des Wirkungsparameters aus dem Amplitudenverhältnis wird der Poynting-Vektor $\mathbf{S} = \mathbf{E} \times \mathbf{H}$ des einfallenden Lichtes sowie der SPP-Welle betrachtet. Gemäß obiger Definition wird davon ausgegangen, dass der Energiestrom des Lichtes $S_L = |\mathbf{S}_L|$, multipliziert mit dem zweifachen des Wirkungsparameters, der über z integrierten Energiestromdichte der SPP-Welle entspricht. Da die Intensität der SPP-Welle exponentiell mit dem Abstand zur Oberfläche abfällt, ist dieses Integral endlich. Wie in Anhang B.3 diskutiert, wird \mathbf{S}_{SPP} von dem Anteil parallel zur Ausbreitungsrichtung im Vakuum $S_{\text{SPP},x,v}$ dominiert. Die Anteile innerhalb des Metalls sowie senkrecht zur Oberfläche sind demgegenüber vernachlässigbar klein. Insgesamt ergibt sich:

Energiestrom

$$2b S_L \approx \int_0^{\infty} S_{\text{SPP},x} dz = \hat{z}_v S_{\text{SPP},x,v,0}, \quad (5.8)$$

dabei ist \hat{z}_v die Abklinglänge im Vakuum, $S_{\text{SPP},x,v,0}$ ist der Betrag des Poynting-Vektors an der Grenzfläche. Da die Energiestromdichte proportional zum Quadrat der Feldamplitude ist, kann der Wirkungsparameter b aus dem bekannten Amplitudenverhältnis β berechnet werden:

$$b = \frac{\hat{z}_v}{2} \frac{S_{\text{SPP},x,v,0}}{S_L} = \frac{\hat{z}_v}{2} \beta^2. \quad (5.9)$$

²Bei sphärischen Teilchen, deren Radius deutlich kleiner ist als die Wellenlänge des einfallenden Lichtes, ist der Streuquerschnitt $C_{\text{str}} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha|^2$ und der Absorptionsquerschnitt $c_{\text{abs}} = k \text{Im}[\alpha]$. Dabei ist α die Polarisierbarkeit $\alpha = 4\pi R^3 \frac{\epsilon - \epsilon_u}{\epsilon + 2\epsilon_u}$. Die ϵ , ϵ_u sind die dielektrische Funktion von Teilchen und Umgebung, R ist der Radius [110].

Der so berechnete Wirkungsparameter ist in Abb. 5.3 gezeigt. Da der Wirkungsparameter den Abstand zur Kante bezeichnet, innerhalb dessen einfallende Photonen in die SPP-Mode eingekoppelt werden, ist er gut geeignet, um die *Effizienz* der Einkopplung zu beschreiben. Wie man in Abb. 5.3 sieht, ist er mit $\lesssim 60$ nm deutlich kleiner als die anregende Stufe. Hieraus wird ersichtlich, dass nur ein geringer Anteil des auf die Stufe fallenden Lichtes in SPPs umgewandelt wird.

5.6 EXPLIZITE WELLENLÄNGENABHÄNGIGKEIT

Wie eingangs erwähnt, wurde für die Messung aus praktischen Gründen eine endliche Anzahl Proben (mit unterschiedlicher Stufenhöhe) verwendet und jeweils die Laser-Wellenlänge im zugänglichen Bereich durchgestimmt. Die experimentell bestimmte Einkopplung folgt dabei weitgehend einem durch H/λ bestimmten Verlauf aufgrund von Interferenz, wie im Manuskript diskutiert wird. Zusätzlich dazu zeigt sich für die einzelnen Datensätze jeweils eine Abnahme der Einkopplung mit steigender Anregungsfrequenz (d.h. steigendem H/λ), wie gerade für die niedrigeren Stufen in Abb. 5.3 gut zu sehen ist. Dies deutet auf eine explizite Wellenlängenabhängigkeit hin. Es wird vermutet, dass die Einkopplung mit steigender Frequenz abnimmt, da in diesem Fall die benötigte Wellenzahldifferenz $\Delta k = k_{\text{SPP}} - k_{\text{L}} \sin \Theta$ größer wird. Ein ähnlicher Trend wurde bereits in Kapitel 4 bei der Einkopplung in Wellenleitermoden beobachtet.

In diesem Zusammenhang ist es aufschlussreich, das Verhältnis aus experimentell bestimmtem und berechnetem Wirkungsparameter zu untersuchen. Das Resultat ist in Abb. 5.4 gegen Δk aufgetragen. Die Werte zeigen eine große Streuung von Probe zu Probe. So ist die relative Einkopplung bei der Stufenhöhe von 200 nm dreimal so groß wie bei 100 nm. Vermutete Ursache ist eine Variation in der Qualität der Stufe. Es wird davon ausgegangen, dass eine abgerundete oder ausgefrante Kante schlechter zur Einkopplung geeignet ist, als eine scharfe. Bei allen Proben mit Ausnahme der 950 nm hohen Kante zeigt sich eine systematische Abnahme der Einkopplung mit steigender Wellenzahldifferenz von ≈ 0.6 auf ≈ 0.3 , was die vermutete Abhängigkeit tendenziell bestätigt.

Experimentell ist die explizite Wellenlängenabhängigkeit der Einkopplung nicht ohne weiteres zugänglich. Eine Wellenlängenänderung führt immer zu einer Änderung in der Interferenz zwischen direkt eingestrahlttem und reflektiertem Licht. Jede explizite Wellenlängenabhängigkeit ist daher immer mit einer impliziten Wellenlängenabhängigkeit aufgrund von Interferenz verbunden. Prinzipiell sind mehrere Methoden zur Unterdrückung der Interferenz denkbar. Zwei Möglichkeiten sind in Abb. 5.5 gezeigt. So kommt es beispielsweise nicht zu Interferenz, wenn das Substrat, auf dem die Goldplattform aufgebracht ist, eine vernachlässigbare Reflexion besitzt (a). Hierbei ist zu beachten, dass das Substrat noch leitfähig genug sein muss um eine Aufladung der Oberfläche zu vermeiden, siehe Abschnitt 3.3 sowie Kapitel 4. Die Interferenz kann vollständig

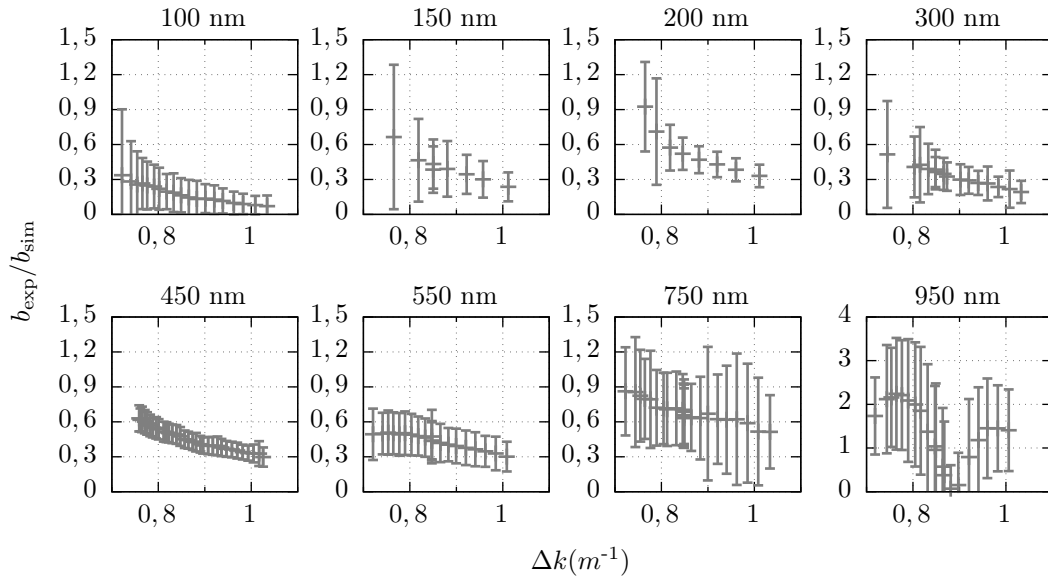


Abb. 5.4: Verhältnis aus experimentell bestimmtem und berechnetem Wirkungsparameter aufgetragen über der Wellenzahldifferenz zwischen einfallendem Laserlicht und SPP-Mode. Die Überschrift über den Graphen gibt die jeweilige Stufenhöhe an. Man beachte die unterschiedliche Skalierung der y -Achse bei 950 nm.

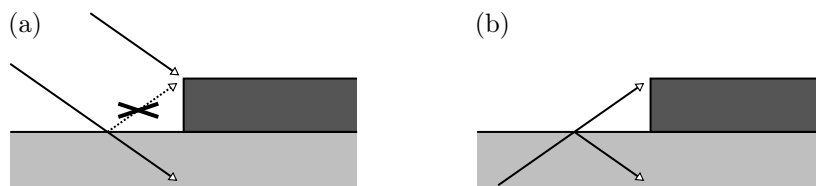


Abb. 5.5: Mögliche Anregungsgeometrien zur Vermeidung von Interferenz zwischen direkt eingestrahlttem und reflektiertem Strahl. Eine Goldplattform (dunkel) ist auf einem Substrat (hell) aufgebracht. (a): Es wird konventionell in Draufsicht angeregt, das Substrat hat vernachlässigbare Reflexion. (b): Es wird in Transmission angeregt, das Substrat ist (teilweise) transparent.

unterdrückt werden, wenn das SPP auf der Goldplattform in Transmission angeregt wird (b). Hierfür muss das Substrat zumindest teilweise transparent sein. Anregung in Transmission ist bei dem vorliegenden System möglich, die Anregung erfolgt hier allerdings immer senkrecht zur Oberfläche. Diese Art der Anregung bringt eigene Vor- und Nachteile mit sich, wie ausführlich im folgenden Kapitel diskutiert wird.

6 OBERFLÄCHENNORMALER LICHTEIFALL

Die Verwendung oberflächennormalen Lichteinfalls ist eine neue Entwicklung bei der Untersuchung von SPP- und anderen Oberflächenwellen mittels PEEM [65]. Von oberflächennormalem Lichteinfall spricht man, wenn das Licht parallel zur Probennormalen, d.h. senkrecht, auf die Probe fällt. Die Umsetzung ist aus technischer Sicht nicht trivial, weil sich der Extraktor des PEEM unmittelbar vor der Probe befindet, siehe Abb. 3.2. Daher kann die Probe nicht direkt von vorne beleuchtet werden. In anderen Arbeitsgruppen werden PEEM-Systeme verwendet, bei denen die Photoelektronen durch Magnetfelder umgelenkt werden [65]. An diesen ist die Beleuchtung senkrecht zur Oberfläche ohne weiteres möglich. Bei dem PEEM, mit dem die hier vorgestellten Messungen durchgeführt wurden, ist das jedoch nicht der Fall. Stattdessen wird ein anderer Ansatz gewählt: Die Beleuchtung erfolgt transmissiv von der Probenrückseite aus. Dazu wird der Laser durch ein Rohr von hinten durch die Verfahrensbühne des PEEM in Richtung Probe geleitet. Am Ende des Rohres befindet sich eine Linse, die die Strahlung auf die Probe bündelt. Der erstmals von Klaer et al. [111] vorgestellte Aufbau wurde an das verwendete System angepasst, was im beiliegenden Manuskript erläutert wird. Eine wichtige Änderung betrifft das Linsenmaterial, welches auf zeitaufgelöste Messungen mit ultrakurzen Laserpulsen optimiert wurde.

In diesem Kapitel werden zunächst die Vor- und Nachteile der oberflächennormalen Anregung diskutiert. Die Einkopplungseinheit wird im beiliegenden Manuskript vorgestellt. Erste, erfolgreiche Messungen werden dort sowie im letzten Abschnitt gezeigt.

6.1 SENKRECHTER UND STREIFENDER EINFALL

Die Verwendung oberflächennormalen Lichteinfalls hat sowohl Vor- als auch Nachteile gegenüber dem konventionellen streifenden Einfall. Ein Vorteil betrifft die Auswertung der PEEM-Daten. Die Bestimmung des effektiven Brechungsindex (3.7) vereinfacht sich bei $\Theta = 0$ zu

$$n_{\text{eff}} = \frac{\Delta k}{k_0} \quad \text{bzw.} \quad \lambda_{\text{ex}} = \lambda_s \quad (6.1)$$

d.h. die gemessene Schwebungswellenlänge λ_s ist gleich der Wellenlänge der SPP- bzw. Wellenleitermode. Analog ergibt sich für die Phasen- bzw. Gruppengeschwindigkeit aus der dynamischen Messung (3.9)

$$\frac{\partial x}{\partial \tau} = v_{\text{ex}}, \quad (6.2)$$

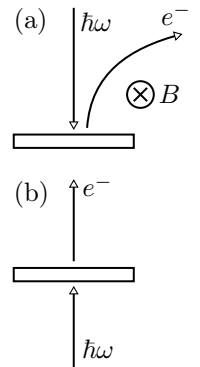


Abb. 6.1: (a) Um- lenkung durch ein Ma- gnetfeld; (b) transmis- sive Anregung

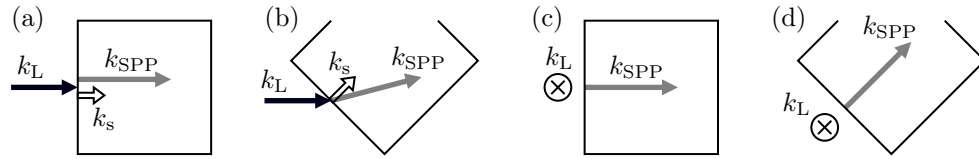


Abb. 6.2: Vergleich der Anregungsgeometrien bei streifendem (a,b) und senkrechtem (c,d) Lichteinfall.

wobei v_{ex} die Gruppen- bzw. Phasengeschwindigkeit bezeichnet, je nachdem, ob die Steigung der Interferenzstreifen oder der Einhüllenden des Signals betrachtet wird.

Man könnte einwenden, dass diese Vereinfachungen nicht so erheblich sind, dass sie den experimentellen Mehraufwand rechtfertigen. Dabei muss man jedoch beachten, dass in den Abschnitten 3.5 und 3.6 jeweils nur Probleme betrachtet wurden, in denen die Anregungskante senkrecht zum einfallenden Licht ausgerichtet war, siehe Abb. 6.2(a). In diesem Fall sind die Wellenvektoren von (projiziertem) einfallendem Licht, SPP und Schwebung parallel zueinander. Es handelt sich um ein quasi-eindimensionales Problem. Ist dagegen, wie in Abb. 6.2(b) gezeigt, die Anregungskante nicht senkrecht zum einfallenden Licht, so sind auch die Wellenvektoren nicht parallel. Zur Interpretation der PEEM-Aufnahmen muss das *zweidimensionale* Problem gelöst werden, wie Buckanie ausführlich in seiner Dissertation erläutert [112]. Wenn dagegen durch senkrechten Einfall angeregt wird [Abb. 6.2(c,d)], ist die Propagationsrichtung der angeregten Welle nicht entscheidend, da sie immer senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des einfallenden Lichtes ist. Ferner breitet sich die angeregte Welle immer senkrecht zur Anregungskante aus und der Schwebungsvektor k_s entspricht dem Wellenvektor der angeregten Welle [65]. Das ist von Vorteil, da es die Auswertung erheblich vereinfacht. Ein weiterer Vorteil des senkrechten Einfalls ist, dass durch die Polarisationsrichtung des einfallenden Lichtes ausgewählt werden kann, an welchen Kanten Wellenpakete angeregt werden [65, 68]. Das ist bei streifendem Einfall nur bedingt der Fall [113]. Aufgrund dieser Umstände bietet der oberflächennormale Lichteinfall deutliche Vorteile bei der Untersuchung zweidimensionaler Strukturen wie Nanoschaltkreisen [114], Fokusstrukturen [68, 115] oder Nano-Vortices [71].

2-D-Geometrie

Einkopplung

Ein möglicher Nachteil senkrechter Anregung ist die vermutlich geringere Einkopplereffizienz. Wie in den Abschnitten 2.1 und 5.6 diskutiert, muss die Wellenvektordifferenz bei der Anregung zugefügt werden. Bei senkrechter Anregung hat das anregende Licht keinen Wellenvektoranteil in Ausbreitungsrichtung der angeregten Welle, daher ist die Differenz deutlich größer und die erwartete Effizienz entsprechend geringer. Eine quantitative Bestimmung analog zu der in Kapitel 5 ist bisher nicht möglich, weil die Kontrastmechanismen bei dieser Anregungsgeometrie noch nicht vollständig verstanden sind. Dies wird weiter unten in Kapitel 7 ausführlich diskutiert. Numerische Rechnungen [103] zeigen aber eine generelle Abnahme der Kopplungseffizienz in Richtung kleinerer Einfallswinkel.

Ein weiterer Nachteil ist die benötigte Auflösung des Gerätes. Da die Wellenzahldifferenz bei senkrechtem Lichteinfall größer ist als bei streifendem, ist die beobachtete Schwebungswellenlänge kleiner und es wird eine entsprechend bessere Auflösung benötigt. Das ist mit dem verwendeten Gerät zwar durchaus möglich, eine höhere Vergrößerung bedeutet jedoch notwendigerweise eine geringere Photoemission aus dem entsprechend kleineren Bildausschnitt und damit schlechtere Bildqualität. Auch der zeitliche Mehraufwand kann bei empfindlichen Proben ein weiterer Nachteil sein, wenn die Oberfläche durch anhaltende intensive Beleuchtung verändert wird.

6.2 TRANSMISSIVE ANREGUNG

Nachdem nun die Vor- und Nachteile von oberflächennormalem gegenüber streifendem Einfall diskutiert wurden, wird im Folgenden auf die Besonderheiten der transmissiven Anregung im Vergleich zur senkrechten Anregung von der Probenvorderseite eingegangen. Eine Besonderheit ist, dass die Probensubstrate für transmissive Anregung zumindest teilweise lichtdurchlässig sein müssen, damit an der Probenvorderseite Photoemission möglich ist. Wie schon in Abschnitt 3.1 erwähnt, gilt auch hier, dass die Vorderseite leitfähig sein muss, um Aufladung zu verhindern. Für die hier gezeigten Experimente wurden Glassubstrate verwendet. Bei einem Teil der verwendeten Proben befand sich darauf eine dünne Schicht Indium-Zinn-Oxid (ITO). Dieses Material besitzt beide benötigten Eigenschaften: Es ist ein guter elektrischer Leiter und durchsichtig im sichtbaren Spektralbereich. Auf diese Filme wurden die Goldfelder zur Untersuchung der SPP-Propagation aufgebracht. Andere Proben wurden flächendeckend mit einem 50 nm dicken Goldfilm bedampft. Diese Dicke entspricht vier Abklinglängen des Lichtes bei der verwendeten Wellenlänge. An der Probenvorderseite ist die Intensität entsprechend auf $e^{-4} \approx 1,8\%$ gefallen. Wie sich zeigt, ist diese vergleichsweise geringe Intensität sowohl für eine effiziente Anregung als auch Photoemission ausreichend.

Sehr interessant im Hinblick auf zukünftige Experimente ist die Sichtbarkeit der SPP-Mode, die an der verdeckten Unterseite der Goldschicht propagiert. Da sich die untersuchten Goldfilme auf dielektrischen Substraten befinden, wird sowohl an der Gold-Vakuum-, wie auch an der Gold-Substrat-Grenzfläche eine SPP-Welle angeregt. Sind die Filme dünner als wenige Abklinglängen, koppeln die beiden Moden miteinander. Es entsteht das schwach gedämpfte *long-range-SPP* (LR-SPP) an der Gold-Vakuum- und das stark gedämpfte *short-range-SPP* (SR-SPP) an der Gold-Substrat-Grenzfläche. Mittels der PEEM-Technik wurde das SR-SPP bisher nur an sehr dünnen (20-40 nm), einkristallinen Goldflocken hoher Qualität beobachtet [68]. Der Grund für die Sichtbarkeit bei transmissiver Anregung ist, dass das einfallende Licht an der Goldunterseite eine höhere Intensität hat als an der Oberseite. Deshalb wird die dortige SPP-Mode entsprechend stärker angeregt. Aufgrund der Evaneszenz ist die Intensität des SR-SPP an der Oberseite ebenfalls weitgehend abgeklungen. Da die Abklinglänge der SPP-Welle

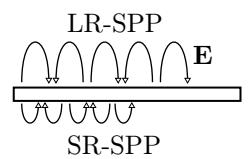


Abb. 6.3: Long- und short-range-SPP

nach (2.10) fast gleich der des Lichtes ist¹, hat das SR-SPP an der Oberfläche eine mit dem einfallenden Licht (und der SPP-Welle an der Oberseite) vergleichbare Intensität. Damit ist es im Experiment auch an vergleichsweise rauen Filmen beobachtbar, was ein großer Vorteil bei der Untersuchung dieser Mode ist. Erwähnenswert ist ferner, dass die beiden SPP-Moden miteinander interferieren, was ebenfalls im Experiment sichtbar wird. Die entsprechende Signatur wird im Manuskript kurz und in Abschnitt 6.3 ausführlicher diskutiert.

Zur Fokussierung der Lichtstrahlen auf die Probe wird eine Sammellinse unmittelbar vor der Probenrückseite der Probe verwendet. Wie im Manuskript erläutert wird, kann die Laser-Strahlung auf einen Bereich mit einem Durchmesser von weniger als 6 μm fokussiert werden. Dies ermöglicht eine sehr lokale Anregung der Probe. Alternativ kann ein größerer Bereich beleuchtet werden, indem der Abstand zwischen Probe und Linse vergrößert wird und die Probe sich nicht mehr im Brennpunkt der Linse befindet. Ist die Probe dagegen innerhalb der Brennweite der Linse, kommt es auf der Oberfläche zu Interferenzringen, siehe Abb. 3(a) im Manuskript. Diese können verwendet werden, um senkrechten Einfall mit einer Genauigkeit von wenigen Bogenminuten einzustellen.

¹12,5 nm im Vergleich zu 12,7 nm des einfallenden Lichtes

Femtosecond time-resolved photoemission electron microscopy operated at sample illumination from the rear side

Cite as: *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 053704 (2019); doi: [10.1063/1.5088031](https://doi.org/10.1063/1.5088031)

Submitted: 7 January 2019 • Accepted: 20 April 2019 •

Published Online: 16 May 2019



Alwin Klick,^{1,a)} Malte Großmann,¹ Maria Beewen,¹ Paul Bittorf,¹ Jacek Fiutowski,²  Till Leißner,² 
Horst-Günter Rubahn,² Carsten Reinhardt,^{3,4} Hans-Joachim Elmers,⁵  and Michael Bauer¹ 

AFFILIATIONS

¹Institute of Experimental and Applied Physics, University of Kiel, Leibnizstr. 19, D-24118 Kiel, Germany

²NanoSYD, Mads Clausen Institute, University of Southern Denmark, Alision 2, DK-6400 Sønderborg, Denmark

³Laser Zentrum Hannover e.V., Hollerithallee 8, D-30419 Hannover, Germany

⁴Fakultät 4, Hochschule Bremen, Neustadtswall 30, D-28199 Bremen, Germany

⁵Institute of Physics, Johannes Gutenberg University Mainz, Staudingerweg 7, D-55099 Mainz, Germany

^{a)}klick@physik.uni-kiel.de

ABSTRACT

We present an advanced experimental setup for time-resolved photoemission electron microscopy (PEEM) with sub-20 fs resolution, which allows for normal incidence and highly local sample excitation with ultrashort laser pulses. The scheme makes use of a sample rear side illumination geometry that enables us to confine the sample illumination spot to a diameter as small as 6 μm . We demonstrate an operation mode in which the spatiotemporal dynamics following a highly local excitation of the sample is globally probed with a laser pulse illuminating the sample from the front side. Furthermore, we show that the scheme can also be operated in a time-resolved normal incidence two-photon PEEM mode with interferometric resolution, a technique providing a direct and intuitive real-time view onto the propagation of surface plasmon polaritons.

Published under license by AIP Publishing. <https://doi.org/10.1063/1.5088031>

I. INTRODUCTION

Femtosecond time-resolved two-photon photoemission electron microscopy (tr2PPEEM) was first demonstrated in 2002.¹ Since then, it has widely been used to track collective electronic excitations and electromagnetic modes in space and time including surface plasmon polaritons (SPPs),²⁻⁵ optical waveguide modes,^{6,7} and localized surface plasmons.⁸⁻¹⁰ The technique attracted additional interest in the study of carrier transport and recombination in semiconductors.^{11,12} Important technological advancements of the technique include the addition of interferometric time resolution,⁸ the implementation of energy resolving detection schemes,¹³ and the operation at laser illumination in normal incidence as opposed to the standard oblique incidence geometry.⁴

In normal incidence 2PPEEM (NI2PPEEM), the symmetry of the studied problem is not affected by the direction of incidence of the excitation laser. This can be advantageous if one is, for instance,

interested in changes in the sample response to the laser polarization.^{14,15} Furthermore, when studying propagating electromagnetic modes, the NI2PPEEM signal can provide mode spectral information in a very direct and intuitive manner.⁴ Two different excitation schemes of NI2PPEEM are described in the literature: In a front illumination mode, the photoelectrons collected by the PEEM instrument are emitted from the sample surface that is illuminated with the excitation laser.⁴ Next to static experiments, this operation mode was in the past particularly successful in interferometric time-resolved studies on the propagation and manipulation of SPP fields.^{15,16} In an alternative scheme, the sample is illuminated from the rear side while the PEEM instrument collects photoemitted electrons from the opposite side.¹⁴ Such a configuration relies on the thickness of the investigated sample being of the order of the penetration depth of the excitation laser light, i.e., ultrathin films deposited on transparent substrates have to be used. However, the geometric constraints of this approach are much more relaxed than

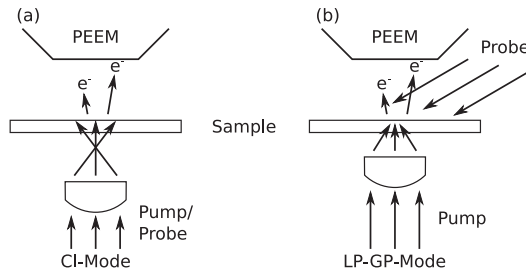


FIG. 1. Schematic illustration of the two PEEM operation modes presented in this work. (a) CI mode: Both laser pulses illuminate the sample in normal incidence from the rear side. To enlarge the illuminated area, the sample surface is positioned at some distance in front of the focal plane of the focusing lens. (b) LP-GP mode: A pump laser pulse is focused in normal incidence from the rear side of the sample. The sample response to the localized excitation is probed by a laser pulse hitting the sample under oblique incidence from the front side.

in the front illumination mode so that highly local excitation conditions using short focal length lenses can be realized at reasonable costs.

The scope of this work is to provide a detailed description and characterization of a novel setup for time-resolved NI2PPEEM that was successfully applied in a recent study on the near-field enhanced photoemission from cross antennas.¹⁴ The experiment is operated in the rear side illumination mode and allows therefore for highly local excitation conditions with the excitation spot size restricted to a diameter of $<6 \mu\text{m}$. At the same time, pulse broadening effects particularly due to the lens used to focus the excitation laser are kept at a minimum, allowing for excitation of the sample with sub-20 fs laser pulses (FWHM). Two different operation modes are presented (see Fig. 1). In a collinear illumination (CI) mode, pump and probe pulses both hit the sample at normal incidence from the rear side [Fig. 1(a)]. In a local pump/global probe (LP-GP) mode, a large area response of a sample to a highly local laser excitation from the rear side is probed by a time-delayed and weakly focused laser pulse illuminating the sample from the front side [Fig. 1(b)]. The capabilities of the different operation modes are illustrated by examples in which the propagation of SPPs at a gold-vacuum interface is monitored in real time.

II. EXPERIMENTAL DETAILS

A. System configuration

The setup demonstrated in the present work is based on an oblique incidence tr2PPEEM system introduced in detail in Ref. 17. We use a commercial photoemission electron microscope (IS PEEM, *Focus GmbH*) mounted inside an ultrahigh vacuum (UHV) μ -metal chamber (base pressure: 1×10^{-10} mbar). Experiments are performed with a sub-15 fs Ti:sapphire oscillator (Griffin, *KMLabs*) operated at a center wavelength $\lambda \approx 775 \text{ nm}$ ($h\nu = 1.6 \text{ eV}$). Measurement of the laser beam profile in mode-locked operation and in front of the entrance window of the UHV chamber yields a beam size (FWHM) of 1.4 mm in the vertical direction and 1.8 mm in the horizontal direction.

In the CI mode, the laser pulses are equally split into two pulses using an actively stabilized Mach-Zehnder interferometer,¹⁸ allowing for adjusting the time delay τ between the two pulses with an accuracy of $<30 \text{ as}$.³ The two pulses are collinearly focused onto the sample from the rear side using a focusing device introduced in detail below. When operated in the LP-GP mode, a beam splitter separates the pulses into a pump part that is focused onto the sample from the rear side. The other (probe) part hits the sample under oblique incidence from the front side after passing through an adjustable delay stage. In both operation modes, group velocity dispersion (GVD) of the laser pulses are compensated by a Fork prism compressor. This includes GVD picked up during propagation from the optical components of the setup, from the UHV entrance window and during propagation through air.¹⁹

B. Samples

Three different types of samples were used in the experiments described below. For the characterization of laser spot size and pulse width at the sample position, 40 nm thick polycrystalline gold films were evaporated onto a 1.1 mm fused silica (FS) substrate covered with a 100 nm thick indium tin oxide (ITO) layer (sample A). For the experiments performed in the CI mode, quadratic gold platforms ($100 \times 100 \mu\text{m}^2$, 50 nm thickness) were fabricated onto the ITO/FS substrate by standard UV photolithography (sample B). Experiments in the LP-GP mode were performed with 50 nm thick polycrystalline gold films evaporated onto dielectric ridges made from Ormosil²⁰ (sample C). The ridges were lithographically structured using mask projection microscope photolithography, providing sub-200 nm resolution.^{21–24} In all three samples, an ultrathin chromium adhesion layer between the gold film and substrate was used.

Prior to the 2PPEEM experiments, a sub-monolayer of cesium was deposited *in situ* onto the sample surface from a well-degassed getter source (SAES Getters). This procedure was used to lower the work function of the gold film below a value of 3.2 eV so that two-photon photoemission (2PPE) with the 775 nm laser source becomes possible. In past studies, we have shown that the deposition of small amounts of cesium onto a gold sample does not affect the propagation properties of SPPs within the resolution of the PEEM instrument.²⁵

C. Focusing device

Illumination of the sample from the rear side with a focused, normal incident laser beam becomes possible with the installation of a home-built focusing device into the UHV chamber, which has also been used in the above mentioned study on near-field photoemission.¹⁴ We would like to note that in comparison with the setup used in the latter study, the performance of the focusing device has been further improved. A careful selection of the focusing lens parameter as described in detail below allowed to considerably reduce the achievable focal spot size by more than a factor of 10. At the same time, the ultimate temporal resolution of the experiment could be improved by more than factor of 5 and was pushed into the sub-20 fs regime. Additionally, an optical setup capable of interferometric resolution was successfully implemented into the experimental setup. A schematic of the device is shown in Fig. 2. It is mounted to the vacuum flange opposite to the entrance lens of the PEEM. The laser beam enters the UHV-system through a fused silica entrance

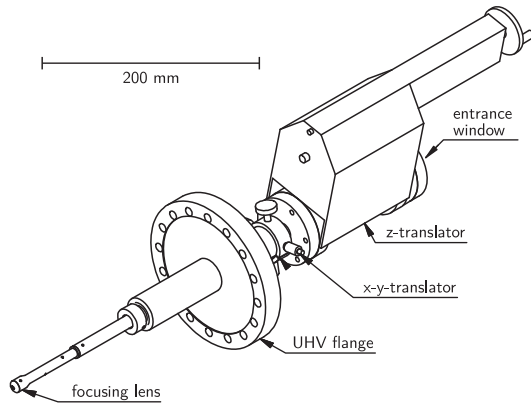


FIG. 2. Schematic of the focusing device. The laser beam enters the UHV through the entrance window, passes an evacuated pipe, and is focused onto the sample (not shown) from the rear by the focusing lens mounted to the end of the pipe. Translator stages allow positioning the lens in the x -, y -, and z -direction with an accuracy of $\approx 10 \mu\text{m}$. The pipe is fully retractable to not impede sample stage movement or when the focusing device is not needed.

window and passes an evacuated pipe. A planoconvex lens mounted to the end of the pipe is used to focus the beam from the rear side onto the sample. A three-axis translation stage allows for an accurate positioning of the incident beam onto the sample with a reproducibility of 0.01 mm. An overall stroke of 10 cm along the z -direction additionally allows us to completely retract the focusing lens out of the sample area if required.

The focusing device should finally deliver a laser spot diameter of a few micrometers at the sample position while keeping the laser pulse width in the sub-20 fs regime. We chose fused silica as the lens material as in the near infrared spectral regime, chromatic dispersion and GVD of this material are both comparatively small. A small chromatic dispersion minimizes chromatic aberration effects, which at broadband illumination can considerably broaden the focal diameter. Due to lack of UHV-compatibility, achromatic lenses cannot be used in the setup. A small GVD reduces temporal broadening effects during passage of the ultrashort laser pulses through the lens. In this work, a lens radius of curvature $R = 7.5 \text{ mm}$ was chosen, yielding for 775 nm light a focal length $f = 16.54 \text{ mm}$ and for a beam diameter $d = 1.6 \text{ mm}$ (FWHM) a focal diameter of $3.61 \mu\text{m}$. The latter value was calculated under the assumption of an incident monochromatic Gaussian beam and represents therefore a lower limit of the excitation spot diameter that we expect in the experiment for the given beam cross section.

Figures 3(a)–3(c) compare 2PPEEM images from sample A at laser illumination from the sample rear side and for different distances between the sample surface and focal plane of the fused silica lens. The images were recorded from a plane area of the gold film using broadband laser pulses (775 nm central wavelength), supporting a transform-limited pulse width of $\approx 12 \text{ fs}$. As we increase the lens-sample distance, size and shape of the photoemission spot profile undergo clear changes. We measure a minimum spot diameter

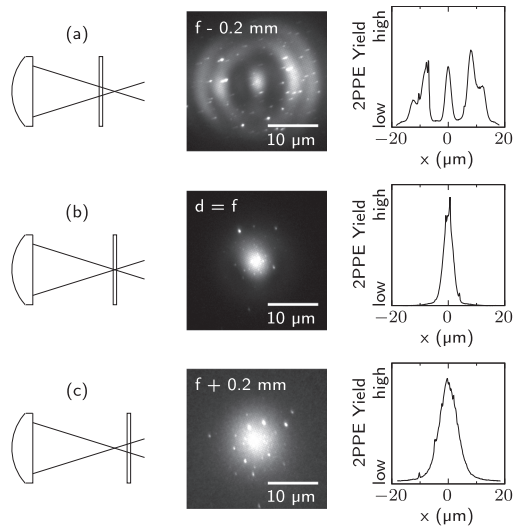


FIG. 3. Characterization of the excitation spot profile at the sample surface: 2PPEEM images and 2PPE intensity profiles of a plane gold surface (sample A) for different positions of the sample surface with respect to the position f of the focal plane. The excitation geometry is schematically illustrated in the left column. (a) Sample positioned at $f - 0.2 \text{ mm}$: The 2PPE intensity pattern is modulated by distinct interference rings. (b) Sample positioned in the focal plane: The minimum 2PPE spot diameter of $3.85 \mu\text{m}$ is observed corresponding to a laser spot diameter of $5.5 \mu\text{m}$ (FWHM). (c) Sample positioned at $f + 0.2 \text{ mm}$: The 2PPE spot diameter becomes enlarged without disturbing interference rings. The bright dots in the 2PPEEM images are due to defects of the gold film.

of $3.85 \mu\text{m}$ (FWHM) in the 2PPEEM signal when the sample surface is positioned in the focal plane [see the 2PPE intensity profile in Fig. 3(b)]. Under consideration of the second order nonlinearity of the 2PPE process, this yields an actual laser spot diameter at the sample surface of $5.5 \mu\text{m}$ (FWHM). This value exceeds the estimated minimum diameter by a factor of ≈ 1.5 most likely due to chromatic aberration at broadband illumination and deviations from a Gaussian beam profile. The ringlike pattern observed for the case when the sample is positioned between the lens and focal plane [Fig. 3(a)] arises from combined refraction and interference effects at the glass substrate of the sample. The pattern is very useful for the adjustment of the laser beam to normal incidence, as already small deviations from normal incidence conditions distort its radial symmetry. Experiments performed in the CI mode typically rely on the illumination of extended sample areas instead of highly local excitation conditions. For this type of experiments, the focal plane is positioned between the lens and sample so that at the sample surface an enlarged illumination spot without interference rings is formed [Fig. 3(c)].

GVD, which is governed by the second derivative of the refractive index, $d^2n/d\lambda^2$, is the dominant contribution to the temporal broadening of ultrashort pulses when propagating through plane optics. The situation gets more complex in the case of lenses.

At increasing distance from the optical axis, the path length through the material will decrease so that different parts of the beam will accumulate different amounts of GVD. The variation in the propagation length through the material will furthermore result in a variation in the delay between the group and phase front, resulting in an additional broadening of the pulse at the focal point. This effect is also referred to as propagation time difference (PTD) and is proportional to $dn/d\lambda$.²⁶ The latter two effects cannot be compensated by conventional pulse compression schemes, such as Fork prism compressors or grating compressors, and must, therefore, be tolerated in the final configuration of the setup. Figure 4(a) shows how the GVD that is accumulated by the laser beam during propagation through the fused silica lens changes as a function of distance r from the optical axis. The data were calculated for a wavelength of 800 nm. At $r = d/2 = 0.8$ mm, we expect the GVD of the passed laser beam being 1.3 fs^2 smaller than at the lens center [see the black line and arrow in Fig. 4(a)]. For a transform-limited incident 15 fs-laser pulse, this value results in a difference in the pulse width of only ≈ 0.005 fs, indicating the minor relevance of this effect for the time-resolution of the experiment.

Even though small, calculations show that PTD effects are of more significance. Figure 4(b) displays the amount of delay T_0 between the group and phase front accumulated during propagation through the lens as a function of distance from the optical axis calculated for a wavelength of 800 nm. For instance, at $r = d/2 = 0.8$ mm, T_0 is reduced by ≈ 2 fs in comparison with the value of T_0 at the optical axis [see the black line and arrow in Fig. 4(b)]. Figure 4(c) shows how the temporal profile of a laser pulse is affected in the presence of PTD. For the calculations, we considered a transform-limited

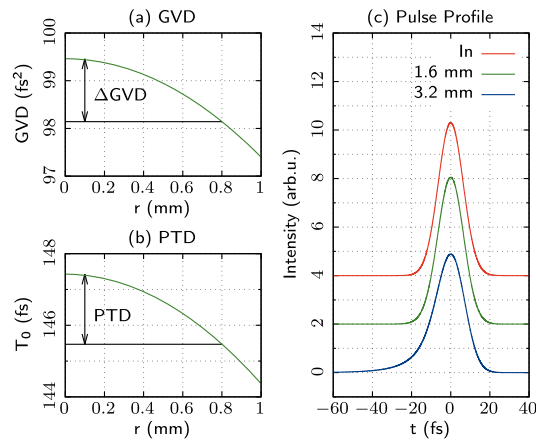


FIG. 4. Pulse broadening effects due to the focusing lens. (a) GVD accumulated at 800 nm wavelength during passage through the focusing lens as a function of distance r from the optical axis. (b) Time delay between the group and phase front after passage of 800 nm-laser light as a function of distance r from the optical axis. (c) Changes in the pulse profile of an initially transform-limited laser pulse (15 fs pulse width, 800 nm center wavelength, and 1.6 mm beam diameter) due to PTD at passage through the lens. Solid red line: incident pulse profile; solid green line: exit pulse profile. The blue line shows the exit pulse profile for a beam diameter of 3.2 mm.

15 fs-laser pulse with a Gaussian intensity profile [beam diameter of 1.6 mm (FWHM)]. The results show that the exit pulse is broadened due to PTD effects by ≈ 0.5 fs in comparison with the incidence pulse. Additionally, the pulse profile becomes slightly asymmetric as a tail forms at the pulse front end. Notably, the distortion of the pulse profile quickly grows as the beam diameter increases. For a beam diameter of 3.2 mm (FWHM), we expect that the exit pulse is broadened by 2.9 fs with the front end tail being much more pronounced [see the blue line in Fig. 4(c)]. However, an increase in the beam diameter can at the same time reduce the spot diameter at the sample position. The beam diameter of the incident laser pulse is therefore a critical parameter in the experiment and has to be adjusted for an optimum trade-off between temporal resolution and lateral extension of the sample excitation spot.

Characterization of the temporal pulse profile was performed by second order interferometric autocorrelation (IAC) measurements. Second harmonic generation (SHG) IAC traces were measured using a β -Barium Borate (BBO) crystal before the pulse enters the UHV chamber. 2PPE IAC traces derived from interferometric tr2PPEEM data from sample A were additionally used to characterize the temporal pulse profile at the sample position. 2PPE IAC traces were recorded in the CI mode, i.e., upon illumination of sample A from the rear side. For reference, we additionally recorded 2PPE IAC traces at collinear illumination of sample A from the front side in the conventional oblique incidence geometry. In all measurements, the Fork prism compressor was adjusted to minimize GVD effects.

Figures 5(a)–5(c) compare experimental interferometric SHG and 2PPE IAC traces. The width of the SHG IAC signal envelope [Fig. 5(a)] yields a temporal width of $\approx 13.5 \pm 0.5$ fs (FWHM)²⁷ for the laser pulses entering the UHV chamber, a value close to the transform limit of 11.5 fs determined from the laser spectrum. Analysis of the 2PPE traces yield values of 14.9 ± 1 fs and 16.7 ± 1 fs for sample front illumination [Fig. 5(b)] and CI illumination [Fig. 5(c)], respectively. These values are slightly larger than what is observed in the SHG IAC measurements. In both cases, we particularly note

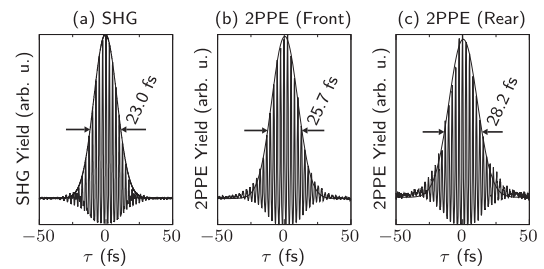


FIG. 5. Experimental second order IACs. (a) SHG IAC measured at the interferometer output. 5 mm of fused silica was inserted into the beam path to account for material dispersion due to different components in the 2PPEEM setup. (b) 2PPE IAC traces derived from interferometric tr2PPEEM data from sample A recorded at front illumination in the conventional oblique incidence mode. (c) 2PPE IAC traces derived from interferometric tr2PPEEM data from sample A recorded in the CI mode. For all three measurements, the Fork prism compressor was adjusted to minimize GVD effects. Gaussian fits to the IAC envelopes are added to the graphs. Numbers indicate the width Δt_{IAC} (FWHM) of the Gaussians.

some broadening at the tail of the traces which we assign to the finite lifetime of the excited intermediate quasiparticle states probed in the 2PPE process.²⁸ The difference between the two 2PPE traces may hint to PTD effects in the presence of the focusing lens in the CI mode. However, it should also be noted that some left over GVD is visible in the data recorded in the CI mode which could not completely be compensated by the Fork prism compressor. Nevertheless, the data show that also in the CI mode the laser pulse width can be kept well in the sub-20 fs range, proving the capability of this approach to perform interferometric tr2PPEEM experiments at high temporal resolution.

III. OPERATION MODES

A. CI mode

In the CI mode, two collinear and time-delayed equal pulses illuminate the rear side of the sample at normal incidence. The focusing lens is positioned at a distance of $f + 0.6$ mm from the sample surface so that the focal plane is located between the lens and surface [see Fig. 3(c)]. This excitation geometry results in a homogeneous and extended illumination spot with a diameter of ≈ 80 μm . For the test experiments, we excited SPP wave packets at sample B by illuminating an edge of a gold platform with the polarization of the two excitation pulses oriented perpendicular to the edge. The time delay τ between the two pulses was varied from $\tau = +25$ fs to $\tau = +60$ fs in steps of 0.2 fs. For each time delay, a 2PPEEM image of the illuminated sample area was captured.

Figures 6(a) and 6(b) show 2PPEEM images recorded at $\tau = +30$ fs and $\tau = +55$ fs. The periodic intensity pattern emerging from the illuminated (coupling) edge of the gold platform [marked CE in Figs. 6(a) and 6(b)] is the characteristic photoemission signature of the excited SPP wave packet.² In PEEM experiments performed under normal incidence, the wavelength of the probed SPP can directly be read out from the periodicity of this pattern.¹ In a two-pulse correlation experiment, an SPP pattern is formed from two different contributions:² In the vicinity of the coupling edge, one observes a static signal which does not evolve as τ is varied and which results from the superposition of the SPP wave packet with the laser pulse it is excited from. The second component arises from the superposition of the same SPP wave packet with the second laser pulse. This part of the pattern propagates along the surface as τ is varied [see differences between Figs. 6(a) and 6(b) marked by the arrow] and contains the relevant time-domain information on phase and group propagation of the SPP.

Figure 6(c) shows a delay-distance diagram which plots 2PPE intensity profiles as a function of τ and distance x from the coupling edge. The intensity profiles were derived from the complete interferometric CI scan and were generated by integration along the vertical axis of the 2PPEEM images. In this representation of the data, the propagation of an SPP wave packet results in a sloped interference pattern with the slope of the interference maxima (and minima) determined by the SPP phase velocity v_{ph} .³ Notably, the data show two patterns which clearly differ in their slope, indicating that two different SPP modes are excited at the coupling edge. We assign the dominating interference pattern, which in the graph extends to the maximum propagation distance probed in the experiment, to an SPP which is excited at the gold-vacuum interface [see the blue line in Fig. 6(c)]. The quantitative analysis of the data yields for this mode

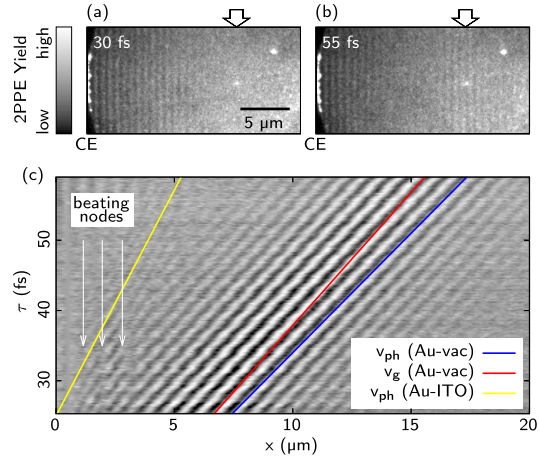


FIG. 6. tr2PPEEM data of sample B recorded in the CI mode. [(a) and (b)] 2PPEEM images at $\tau = 30$ fs and $\tau = 55$ fs. The differences in the periodic intensity pattern particularly in the part of the images marked by the arrow result from the propagation of an SPP wave packet excited at the coupling edge (CE). (c) Delay-distance diagram compiled from a complete interferometric tr2PPEEM scan. The graph shows 2PPE intensity profiles of individual 2PPEEM images after background subtraction and normalization to maximum intensity as a function of τ and distance x from the coupling edge. The blue (yellow) line indicates the slope of the interference pattern determined by the phase velocity of an SPP propagating along the gold-vacuum (gold-ITO) interface. The red line indicates the slope of the pattern envelope maximum determined by the group velocity of the gold-vacuum SPP. Beating nodes arising from the superposition of gold-vacuum and gold-ITO SPPs are marked by white arrows.

an effective index $n_{\text{eff}} = 1.02$ and a phase velocity $v_{\text{ph}} = 0.98c$, with c being the vacuum speed of light. The latter value conforms with the calculated value for a gold-vacuum SPP under consideration of reference permittivity data of gold.²⁹ The slope of the line following the envelope maximum of the pattern [see the red line in Fig. 6(c)] is determined by the SPP group velocity v_g .³ Here, the quantitative analysis yields a value of $v_g = 0.93c$ once again in good agreement with the expectation for a gold-vacuum SPP.

The second pattern is visible for distances $x < 5$ μm . The slope of the interference maxima of this pattern is significantly steeper than what is observed for the gold-vacuum SPP [see the yellow line in Fig. 6(c)]. The quantitative analysis of this pattern yields an effective index of $n_{\text{eff}} = 1.93$ corresponding to $v_{\text{ph}} = 0.52c$. A comparison with calculations shows that the second pattern arises from the excitation of an SPP at the buried interface between the gold layer and ITO film. For the calculations, we used permittivity data of ITO from Ref. 30. The observation of an interface SPP hidden underneath a gold layer using PEEM was so far only reported in experiments using high quality (single crystalline) gold platelets of a thickness of 20 nm.³¹ The high sensitivity of the present experiment (which was conducted with a 50 nm thick polycrystalline gold film) results from the rear illumination geometry, which strongly favors SPP excitation at the gold-ITO interface in comparison with excitation at the gold-vacuum surface owing to the limited penetration depth of

≈ 13 nm of 800 nm light into the gold film.²⁹ Notably, we also observe an interference between the two SPPs. The resulting beating nodes are indicated by the white arrows in Fig. 6(c). The observed beating period of $0.9 \pm 0.1 \mu\text{m}^2$ agrees very well with a calculated value of $0.85 \mu\text{m}$ considering the evaluated effective indices of the two involved modes.

B. LP-GP mode

In the LP-GP mode, a pump laser pulse illuminates the sample in normal incidence from the rear. The sample surface is positioned in the focal plane guaranteeing a highly local excitation confined to an area of $\approx 16 \mu\text{m}^2$. The response of the sample to the excitation is probed by a second laser pulse illuminating the sample at an angle of incidence $\Theta = 65^\circ$ with respect to the surface normal from the front side. A concave mirror (500 mm focal length) is used to focus the probe beam restricting the illuminated area to a size of $\approx 5400 \mu\text{m}^2$. For the measurement shown here, a dielectric ridge of sample C was moved into the pump excitation area with the pump pulse polarized perpendicular to the ridge in order to excite SPP wave packets. 2PPEEM images of the sample recorded at simultaneous illumination with the pump and probe beam at different time delays τ are shown in Fig. 7(a), with the p-polarized probe beam incident from the left. The time delays between the pump and probe beam were set to $\tau = -33.3$ fs, 20.0 fs, and 206.7 fs, respectively. In the images, photoemission signals from different processes are visible. The excitation by the pump pulse results in a bright photoemission spot located on top and in the close vicinity of the ridge. The faint short-period intensity patterns within this spot on both sides of the ridge are the static signals of SPPs which are excited and probed by the pump pulse at the same time. The long-period intensity pattern to the right of the ridge is the corresponding static signal of an SPP that is excited and probed by the probe pulse.² Close to time-zero, i.e., at $\tau = -33.3$ fs (20.0 fs), additional short-period interference fringes appear on the right (left) hand side of the excitation ridge. These fringes result from the interference between the normal incidence pump and oblique incidence probe pulse, marking for a given value of τ the area of spatiotemporal overlap between the two pulses, as will be discussed below. At sufficiently large delays, i.e., at $\tau = 206.7$ fs, the area of spatiotemporal overlap has left the field of view and no cross correlation signal between pump and probe pulses is visible any more.

For time-resolved LP-GP experiments, τ was varied between -100 fs and 200 fs with respect to time zero in steps of 6.67 fs. Here, a negative time delay denotes the case in which the probe pulse arrives at the pump excitation area before the pump pulse. The result of a complete time-resolved LP-GP scan is summarized in the time-distance diagram shown in Fig. 7(b). Similar to Fig. 6(c), the diagram plots 2PPE intensity profiles as a function of τ and distance x from the excitation ridge for a complete pump-probe scan. The intensity profiles were once again generated by integration along the vertical axis of the 2PPEEM images. For each x -value, the data were normalized along the time-delay axis. This procedure effectively suppresses the strong and localized photoemission signal from the focused pump pulse as well as the static interference patterns from the pump and probe pulses.

Over the entire x -range, the data plotted in Fig. 7(b) are dominated by a linear signal trace extending from $\tau = 100$ fs to $\tau = -100$ fs.

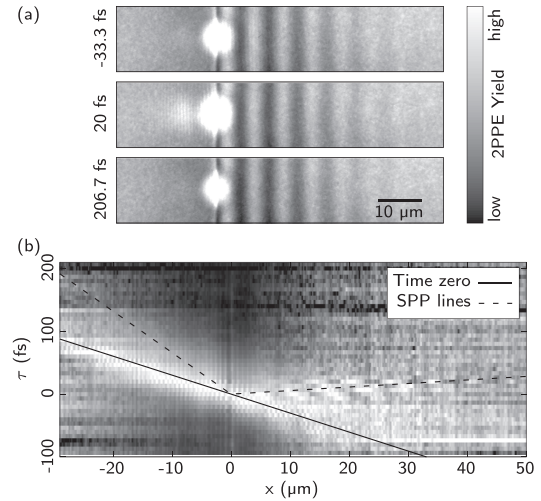


FIG. 7. tr2PPEEM data of sample C recorded in the LP-GP mode. (a) 2PPEEM images recorded with a focused pump beam illuminating a dielectric ridge of the sample from the rear side and an oblique incident probe beam illuminating the sample from the front side at different time delays τ . The short-period fringe pattern visible to the right (left) of the bright excitation spot at $\tau = -33.3$ fs ($\tau = 20$ fs) results from a cross correlation signal between pump and probe pulses. (b) Delay-distance diagram compiled from a complete tr2PPEEM scan. The graph shows 2PPE intensity profiles of individual 2PPEEM images after background subtraction and normalization to maximum intensity as a function of τ and distance x from the excitation ridge. For each time delay, the 2PPEEM signal was integrated vertically. The black solid line marks the signal arising from the cross correlation between the pump-laser signal diffracted into the sample surface plane and the probe laser pulse. The line marks at the same time the actual time-zero of the experiment. The two dashed lines mark the pump-probe cross correlation signal resulting from propagating SPP wave packets excited by the focused pump pulse at the sample ridge and propagating in the opposite direction. The slopes of the dashed lines are determined by the SPP group velocity.

The slope of the signal, $\frac{\Delta x}{\Delta \tau}$, can be related to the probe beam surface projection of the vacuum speed of light, c_p , and is given by $\frac{\Delta x}{\Delta \tau} = -\frac{1}{c_p} = -\frac{\sin \Theta}{c} = -3.02 \text{ fs } \mu\text{m}^{-1}$ [see the black solid line in Fig. 7(b)]. We obviously detect here the cross correlation of the pump laser signal diffracted into the sample surface plane and the probe laser pulse. The signal trace marks the actual time zero of the experiment, which varies along the x -direction due to the oblique incidence of the probe beam and the resulting spread in the probe pulse arrival time along the sample surface. We conclude that any dynamics associated with the localized excitation of SPPs by the pump pulse can only show up in the area of the time-distance diagram above the time zero line, where at the probed position the probe pulse follows the pump pulse. In this area, we identify two different signatures arising from SPP excitation, emerging in the opposite direction from the pump excitation area at $x = 0$ and marked by black dashed lines in Fig. 7(b). We monitor here the group propagation of SPP wave packets that are excited by the focused pump beam at the ridge and that propagate into the positive and negative x -direction. The comparison of the

slope of the respective signal traces with calculations under consideration of the SPP group velocity $v_g = 0.93c$ at a gold-vacuum interface for excitation with 800 nm light³ confirms this interpretation. For the SPP wave packet copropagating with the probe pulse, i.e., propagating in the positive x -direction, the slope of the signal trace in a time-distance diagram is given by $\frac{\Delta t}{\Delta x} = \frac{1}{v_g} - \frac{1}{c_p}$,³ yielding a value of $\frac{\Delta t}{\Delta x} = 0.56 \text{ fs } \mu\text{m}^{-1}$. For a counterpropagating SPP wave packet, i.e., a wave packet propagating in the negative x -direction, the slope of the signal trace in a time-distance diagram is given by $\frac{\Delta t}{\Delta x} = \frac{1}{v_g} + \frac{1}{c_p}$,³ yielding a value of $\frac{\Delta t}{\Delta x} = 6.61 \text{ fs } \mu\text{m}^{-1}$. For the direct comparison with the experimental data, the slopes of the black dashed lines in Fig. 7(b) were set accordingly.

IV. CONCLUSION

We presented an advanced experimental setup for time-resolved PEEM in which a thin film sample deposited onto a transparent substrate is excited in normal incidence with an ultrashort laser pulse from the rear side. Despite the use of a short focal length lens in the experimental setup, we succeeded in keeping pulse broadening effects at a tolerable level while at the same time highly local excitation conditions could be achieved. We successfully demonstrated two modes of operation: Operated in a collinear illumination mode, the setup allows for interferometric normal-incidence 2PPEEM experiments, a scheme which in the study of SPP propagation can be advantageous in comparison with conventional oblique incidence PEEM.⁴ In a local pump-global probe mode, the spatiotemporal evolution of a highly local photoexcitation is globally probed by a laser pulse incident onto the sample front side. We particularly expect the latter operation mode to be of interest for studies beyond the investigation of SPP excitations such as the study of carrier transport dynamics in semiconducting materials.

ACKNOWLEDGMENTS

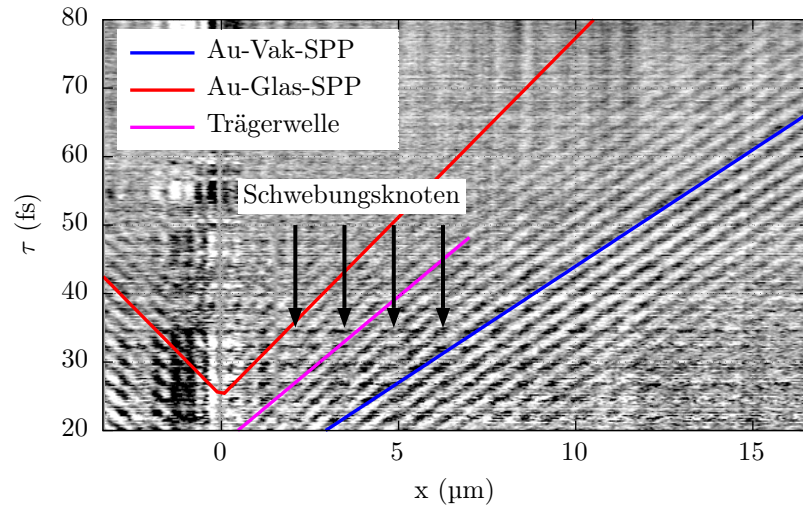
This work was supported by the German Research Foundation (DFG) through Priority Program No. 1391 "Ultrafast Nanooptics" and Projects Nos. RE3012/4-1 and RE3012/2-1.

REFERENCES

- ¹O. Schmidt, M. Bauer, C. Wiemann, R. Porath, M. Scharte, O. Andreyev, G. Schönhense, and M. Aeschlimann, *Appl. Phys. B* **74**, 223 (2002).
- ²A. Kubo, N. Pontius, and H. Petek, *Nano Lett.* **7**, 470 (2007).
- ³C. Lemke, T. Leifner, S. Jauernik, A. Klick, J. Fiutowski, J. Kjelstrup-Hansen, H.-G. Rubahn, and M. Bauer, *Opt. Express* **20**, 12877 (2012).
- ⁴P. Kahl, S. Wall, C. Witt, C. Schneider, D. Bayer, A. Fischer, P. Melchior, M. Horn-von Hoegen, M. Aeschlimann, and F.-J. Meyer zu Heringdorf, *Plasmonics* **9**, 1401 (2014).

- ⁵Y. Gong, A. G. Joly, D. Hu, P. Z. El-Khoury, and W. P. Hess, *Nano Lett.* **15**, 3472 (2015).
- ⁶J. P. S. Fitzgerald, R. C. Word, S. D. Saliba, and R. Könenkamp, *Phys. Rev. B* **87**, 205419 (2013).
- ⁷R. C. Word and R. Könenkamp, *Opt. Express* **24**, 18727 (2016).
- ⁸A. Kubo, K. Onda, H. Petek, Z. Sun, Y. S. Jung, and H. K. Kim, *Nano Lett.* **5**, 1123 (2005).
- ⁹M. Bauer, C. Wiemann, J. Lange, D. Bayer, M. Rohmer, and M. Aeschlimann, *Appl. Phys. A* **88**, 473 (2007).
- ¹⁰M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, F. Javier Garcia de Abajo, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Spindler, and F. Steeb, *Nature* **446**, 301 (2007).
- ¹¹K. Fukumoto, K. Onda, Y. Yamada, T. Matsuki, T. Mukuta, S.-I. Tanaka, and S.-Y. Koshihara, *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 083705 (2014).
- ¹²K. Fukumoto, Y. Yamada, K. Onda, and S. Koshihara, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 053117 (2014).
- ¹³A. Oelsner, M. Rohmer, C. Schneider, D. Bayer, G. Schönhense, and M. Aeschlimann, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **178**, 317 (2010).
- ¹⁴P. Klaer, G. Razinskas, M. Lehr, X. Wu, B. Hecht, F. Schertz, H. J. Butt, G. Schönhense, and H. J. Elmers, *Appl. Phys. B* **122**, 136 (2016).
- ¹⁵G. Spektor, D. Kilbane, A. K. Mahro, B. Frank, S. Ristok, L. Gal, P. Kahl, D. Podbiel, S. Mathias, H. Giessen, F.-J. Meyer zu Heringdorf, M. Orenstein, and M. Aeschlimann, *Science* **355**, 1187 (2017).
- ¹⁶P. Kahl, D. Podbiel, C. Schneider, A. Mahris, S. Sindermann, C. Witt, D. Kilbane, M. Horn-von Hoegen, M. Aeschlimann, and F. Meyer zu Heringdorf, *Plasmonics* **13**, 239 (2018).
- ¹⁷T. Leifner, K. Thilsing-Hansen, C. Lemke, S. Jauernik, J. Kjelstrup-Hansen, M. Bauer, and H.-G. Rubahn, *Plasmonics* **7**, 253 (2012).
- ¹⁸M. U. Wehner, M. H. Ulm, and M. Wegener, *Opt. Lett.* **22**, 1455 (1997).
- ¹⁹R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon, *Opt. Lett.* **9**, 150 (1984).
- ²⁰A. Ovsianikov, J. Viertl, B. Chichkov, M. Oubaha, B. MacCraith, I. Sakellari, A. Giakoumaki, D. Gray, M. Vamvakaki, M. Farsari, and C. Fotakis, *ACS Nano* **2**, 2257 (2008).
- ²¹T. Birr, U. Zywiets, P. Chhantyal, B. N. Chichkov, and C. Reinhardt, *Opt. Express* **23**, 31755 (2015).
- ²²T. Birr, U. Zywiets, T. Fischer, P. Chhantyal, A. B. Evlyukhin, B. N. Chichkov, and C. Reinhardt, *Appl. Phys. B* **122**, 164 (2016).
- ²³J. C. Love, D. B. Wolfe, H. O. Jacobs, and G. M. Whitesides, *Langmuir* **17**, 6005 (2001).
- ²⁴R. Orghici, K. Bethmann, U. Zywiets, C. Reinhardt, and W. Schade, *Opt. Lett.* **41**, 3940 (2016).
- ²⁵C. Lemke, T. Leifner, A. Klick, J. Fiutowski, J. W. Radke, M. Thomaschewski, J. Kjelstrup-Hansen, H.-G. Rubahn, and M. Bauer, *Appl. Phys. B* **116**, 585 (2014).
- ²⁶Z. Bor, *Opt. Lett.* **14**, 119 (1989).
- ²⁷We assume $\Delta t_{\text{pulse}}/\Delta t_{\text{IAC}} \approx 1.7$ as expected for a Gaussian pulse close to the transform limit, *Springer Handbook of Lasers and Optics*, 2nd ed., edited by F. Träger (Springer Science & Business Media, 2012).
- ²⁸M. Bauer, A. Marienfeld, and M. Aeschlimann, *Prog. Surf. Sci.* **90**, 319 (2015).
- ²⁹P. B. Johnson and R. W. Christy, *Phys. Rev. B* **6**, 4370 (1972).
- ³⁰R. J. Moerland and J. P. Hoogenboom, *Optica* **3**, 112 (2016).
- ³¹B. Frank, P. Kahl, D. Podbiel, G. Spektor, M. Orenstein, L. Fu, T. Weiss, M. Horn-von Hoegen, T. J. Davis, F.-J. Meyer zu Heringdorf, and H. Giessen, *Sci. Adv.* **3**, e1700721 (2017).

Abb. 6.4: Zeitversatz-Orts-Diagramm einer zeitaufgelösten PEEM-Messung aufgenommen im kollinearen Messmodus. Die Steigung der blauen, roten und magentafarbenen Linie entspricht der Phasengeschwindigkeit von LR-, SR-SPP sowie Trägerwelle der Schwebung. Schwebungsknoten sind mit Pfeilen markiert.



6.3 INTERFERENZ VON LR- UND SR-SPP

Wie im Abschnitt über transmissive Anregung diskutiert wurde, werden sowohl an Ober- als auch Unterseite der Goldschicht SPP-Moden angeregt. Die Signatur des SR-SPP an der Unterseite ist im Zeitversatz-Orts-Diagramm der zeitaufgelösten Messung sichtbar (siehe Abb. 6 des beiliegenden Manuskriptes). Die gute Übereinstimmung mit der berechneten Phasengeschwindigkeit zeigt, dass tatsächlich das SR-SPP detektiert wurde. Ferner wird nahe der Anregungskante eine zusätzliche Schwebung beobachtet, was als Interferenz zwischen den Moden interpretiert wird. Bei der im Manuskript dargestellten Messung ist diese Schwebung schlecht sichtbar, da aufgrund der sehr unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten die Wechselwirkungslänge gemäß (3.8) sehr kurz ist. Folglich treten nur drei Schwebungsknoten auf, was lediglich einer einzigen Wellenlänge entspricht. Daher wird im Folgenden eine weitere zeitaufgelöste Messung vorgestellt, bei der im Zeitversatz-Orts-Diagramm mehrere Perioden der Schwebung sichtbar sind. Mittels einer analytischen Rechnung wird gezeigt, dass die beobachtete Schwebung in der Tat durch die Interferenz der SPP-Moden entsteht.

Die in Abb. 6.4 durch das Zeitversatz-Orts-Diagramm dargestellte Messung wurde im kollinearen Messmodus durchgeführt, wie im Manuskript erläutert, d.h. sowohl Pump- als auch Probe-Puls fallen senkrecht in Transmission auf die Probe. Es wurde Probe C aus dem Manuskript verwendet. Hier befindet sich ein 50 nm dicker Goldfilm direkt auf einem Substrat aus BK7-Glas. Zur SPP-Anregung wird ein vertikal verlaufender Grat verwendet, der sich direkt auf dem Glas und damit unterhalb des Goldes befindet. Der Zeitversatz der 13 fs langen Laserpulse wurde zwischen 20 und 80 fs mit einer Schrittweite von 0,2 fs variiert. Wie in Abschnitt 3.6 beschrieben, wurde der statische Untergrund aus der Abbildung entfernt. Nahe des Anregungsgrates bei $x = 0$ sind

aufgrund des nicht optimalen Untergrundabzugs jedoch noch Überreste des statischen Musters zu sehen.

Wie schon bei der im Manuskript gezeigten Messung, wird das dynamische Muster für große Abstände vom Anregungsgrat von der Signatur des LR-SPP an der Gold-Vakuum-Grenzschicht dominiert. Die bekannte Phasengeschwindigkeit dieser Welle beträgt $v_p = c/n_{\text{eff}}$ mit $n_{\text{eff}} = 1,02$ bei der Zentralwellenlänge von 775 nm und wurde hier zur Größenkalibrierung des Bildes verwendet. Die steilere Signatur des SR-SPP ist nahe des Anregungsgrates sichtbar, insbesondere links des Streifens, d.h. bei $x < 0$ sowie bei großem Zeitversatz. Die Steigung der roten Linie entspricht der Phasengeschwindigkeit des SR-SPP, die hier aus den Brechungsindizes von Gold [84] bzw. BK7-Glas [130] berechnet wurde. Auch hier bedeutet die gute Übereinstimmung der Linien, dass das SR-SPP detektiert wurde.

An der Stelle, an der sich beide Signaturen im Zeitversatz-Orts-Diagramm überlagern, kommt es zur Ausbildung einer Schwebung zwischen den SPP-Moden. Die Schwingungsknoten dieser Schwebung sind in Abb. 6.4 durch Pfeile markiert. Der Abstand zwischen den Knoten beträgt $1,39 \pm 0,3 \mu\text{m}$. Die Berechnung des Knotenabstandes aus den Brechungsindizes von Gold-Vakuum- und Gold-Glas-SPP (1,02 und 1,57), siehe (6.6) weiter unten, ergibt $1,41 \mu\text{m}$, was innerhalb der Fehlertoleranz des experimentell ermittelten Wertes ist. Zwischen den Knoten, d.h. in den Schwingungsbäuchen, liegt die Steigung der Linien zwischen denen der beiden Einzelmoden, wie man anhand der magentafarbenen Linie in Abb. 6.4 sehen kann. Es fällt auf, dass die Amplitude offenbar nach jedem Knoten ihr Vorzeichen ändert: Eine zunächst helle Linie erscheint nach dem Knoten dunkel und anders herum.

Schwebung
zwischen den
SPP-Moden

Wie folgende Rechnung zeigt, lässt sich dieses Verhalten durch die Interferenz der beiden SPP-Moden erklären. Die Lichtintensität an der Oberfläche ist durch den zeitlichen Mittelwert des quadrierten elektrischen Feldes gegeben:

$$I_{\text{ges}} = \langle E_{\text{ges}}^2 \rangle = \langle (E_{\text{LR-SPP}} + E_{\text{SR-SPP}} + E_{\text{L}})^2 \rangle \quad (6.3)$$

Hier bezeichnet $E_{\text{LR-SPP}}$ das elektrische Feld des LR- und $E_{\text{SR-SPP}}$ dasjenige des SR-SPP. Im Rahmen dieser Abschätzung wird hier die Richtung und Amplitude der Felder ignoriert. Wie in Abschnitt 3.6 diskutiert, ergibt sich das dynamische Muster aus der Überlagerung der vom ersten Laserpuls angeregten SPP-Pulse mit dem zweiten Laserpuls:

$$\left\langle \left[\underbrace{\cos(k_{\text{LR}}x - \omega t) + \cos(k_{\text{SR}}x - \omega t)}_{E_{\text{SPP}}} + \underbrace{\cos(-\omega t + \omega\tau)}_{E_{\text{L}}} \right]^2 \right\rangle \quad (6.4)$$

wobei die Wellenzahlen von kurzem und langem SPP mit k_{LR} und k_{SR} bezeichnet werden. τ ist der Zeitversatz des zweiten Laserpulses. Aufgrund des senkrechten Einfalles ist die projizierte Lichtwellenzahl gleich Null. Da ein Phasenversatz der SPP-Wellen zueinander bzw. zur Lichtwelle den Ort der Knotenpunkte verschiebt, nicht aber deren

Abstand, werden die statischen Phasen, wie auch schon die Amplituden, ignoriert. Durch Verwendung von $\cos x + \cos y = 2 \cos\left(\frac{x+y}{2}\right) \cdot \cos\left(\frac{x-y}{2}\right)$ kann E_{SPP} als

$$E_{\text{SPP}} = 2 \cos\left(\frac{k_{\text{LR}} + k_{\text{SR}}}{2}x - \omega t\right) \cdot \cos\left(\frac{k_{\text{LR}} - k_{\text{SR}}}{2}x\right) \quad (6.5)$$

geschrieben werden. Bei der Auflösung der Klammer $(E_{\text{SPP}} + E_{\text{L}})^2$ in (6.4) berücksichtigen wir nur den interessanten gemischten Term. Es ergibt sich:

$$\begin{aligned} \langle E_{\text{SPP}} \cdot E_{\text{L}} \rangle &= 2 \cos\left(\frac{\Delta k}{2}x\right) \cdot \langle \cos(\bar{k}x - \omega t) \cdot \cos(-\omega t + \omega \tau) \rangle \\ &= \underbrace{\cos\left(\frac{\Delta k}{2}x\right)}_{\text{Modulation}} \cdot \underbrace{\cos(\bar{k}x - \omega \tau)}_{\text{Trägerwelle}} \end{aligned} \quad (6.6)$$

mit $\Delta k = |k_{\text{LR}} - k_{\text{SR}}|$ und $\bar{k} = \frac{k_{\text{LR}} + k_{\text{SR}}}{2}$. Hier wurde wiederum

$$\cos x \cdot \cos y = \frac{1}{2} [\cos(x + y) + \cos(x - y)] \quad (6.7)$$

verwendet. Mit (6.6) wird die Schwebung beschrieben, die aus der Interferenz der beiden SPP-Moden entsteht. Die Wellenzahl der Trägerwelle, und damit Steigung der Linien in den Schwingungsbäuchen, ergibt sich aus dem arithmetischen Mittel der Wellenzahlen der Einzelmoden. Die Modulation ist ebenfalls durch eine Kosinus-Funktion gegeben. Die Wellenzahl entspricht der halben Wellenzahldifferenz der beiden Moden. Dies führt zu Nullstellen (Knoten) mit einem Abstand von einer halben Schwebungswellenlänge (wobei $\lambda_{\text{s}} = 4\pi/\Delta k$) mit einem Vorzeichenwechsel an den Knoten. Auch dieses Verhalten wird, wie oben beschrieben, im Experiment beobachtet.

7 PHOTOEMISSIONS-KONTRAST BEI OBERFLÄCHENNORMALEM LICHTEIFALL

In diesem Kapitel wird eine Fragestellung vorgestellt, die sich im Zusammenhang mit der Auswertung und Interpretation von PEEM-Aufnahmen ergibt, die mit Oberflächennormalem Lichteinfall aufgenommen werden. Im engeren Sinne geht es dabei um den Ursprung des PEEM-Kontrastes bei der Untersuchung von SPP-Wellen. Es stellt sich die Frage, ob der Kontrast bevorzugt durch den senkrechten oder parallelen Anteil des elektrischen Feldes relativ zur Oberfläche verursacht wird. Da der PE-Kontrast über

$$K = \frac{Y_{\max} - Y_{\min}}{Y_{\max} + Y_{\min}} = \frac{\Delta Y}{2\bar{Y}} \quad (7.1)$$

mit der PE-Ausbeute Y zusammenhängt, geht es im weiteren Sinne auch darum, ob und wie die PE selbst von der Richtung des elektrischen Feldes, d.h. senkrecht bzw. parallel zur Oberfläche, abhängt.

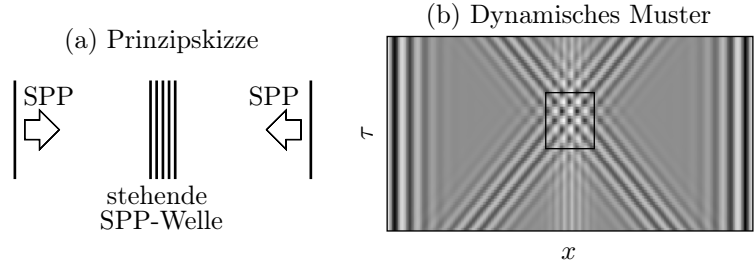
Im Folgenden wird die Fragestellung anhand von Beispielen aus der aktuellen Literatur [115, 131] und eigenen Messungen konkretisiert und ihre Relevanz gezeigt. Anschließend wird ein Experiment vorgeschlagen, das zur Untersuchung der Frage geeignet ist, ob der PEEM-Kontrast von der senkrechten oder parallelen Komponente des elektrischen Feldes dominiert wird. Zu diesem Zweck wird das Interferenzbild betrachtet, das sich aus der Interferenz stehender SPP-Wellen ergibt. Das übliche Vorgehen wird hier gewissermaßen umgedreht: Während sonst das PEEM zur Untersuchung von SPP-Wellen genutzt wird, werden hier SPP-Wellen zur Untersuchung des PEEM verwendet. Der letzte Abschnitt des Kapitels gibt einen Überblick über erste, bisher unveröffentlichte Ergebnisse.

7.1 RICHTUNGSABHÄNGIGKEIT DER PHOTOEMISSION

In Kapitel 5 wurde davon ausgegangen, dass die Photoemission und damit der PE-Kontrast vom senkrechten Anteil des elektrischen Feldes dominiert wird¹. Der Feldanteil parallel zur Oberfläche wurde demgegenüber vernachlässigt. Bei senkrechtem Lichteinfall hat das einfallende Licht jedoch nur Feldanteile parallel zur Oberfläche. Trotzdem ist, wie bei den in Kapitel 6 gezeigten Messungen, im PEEM eine Schwebung zu sehen. Daraus

¹Genauer gesagt wurde in Kapitel 5 der senkrechte Feldanteil an der Oberfläche *auf der Vakuumseite* betrachtet. Dieser ist jedoch sowohl für das einfallende Licht, als auch die SPP-Welle proportional zum senkrechten Feldanteil im Metall, es wird also vermutlich kein zusätzlicher Fehler eingeführt.

Abb. 7.1: Experiment von Podbiel et al. [115] (vereinfacht). (a): Prinzipskizze. Es werden zwei gegenläufige SPP-Pulse ange-regt. Diese erzeugen in der Feldmitte eine stehende Welle. (b): Es wird das durch das Rechteck markierte dynamische Muster der stehenden SPP-Welle betrachtet.



folgt notwendigerweise, dass die parallelen Feldanteile einen Beitrag zum Kontrast liefern müssen, wie schon Podbiel et al. [131] bemerken. Die in Kapitel 5 gemachte Annahme, dass der PE-Kontrast ausschließlich vom senkrechten Anteil des elektrischen Feldes verursacht wird, kann also nicht richtig sein und muss modifiziert werden.

In einem weiteren Artikel von Podbiel et al. [115] wird ebenfalls der Frage nach dem PEEM-Kontrast nachgegangen, indem das dynamische Muster einer stehenden SPP-Welle untersucht wird. Das Vorgehen der Autoren wird durch die in Abb. 7.1(a) gezeigte Prinzipskizze verdeutlicht: Ein erster Laserpuls regt zwei gegenläufige SPP-Pulse auf einer Goldoberfläche an. Diese überlagern und bilden eine stehende SPP-Welle, die im PEEM sichtbar ist. Mit einem zweiten Puls wird die stehende Welle abgefragt, es entsteht das dynamische Muster. Die Form des in Abb. 7.1(b) mit einem Rechteck markierten Musters wird nun genauer betrachtet. Es zeigt sich, dass die mit der stehenden SPP-Welle assoziierten Maxima um $\lambda/4$ gegen die auf die Überlagerung mit dem Abfragepuls zurückgeführten Maxima verschoben sind. Da in diesem Experiment mit oberflächennormalen Lichteinfall angeregt und abgefragt wird, das einfallende Licht also nur Feldkomponenten parallel zur Oberfläche hat, müssen letztere Maxima durch die parallelen Komponenten verursacht sein. Da außerdem die senkrechten Feldanteile der SPP-Welle um $\lambda/4$ gegen die parallelen verschoben sind, wird von den Autoren geschlossen, dass das PE-Signal der stehenden Welle von den senkrechten Feldkomponenten dominiert wird. Für weitere Details sei auf den Artikel von Podbiel et al. [115] verwiesen.

Aus dieser Beobachtung schließen die Autoren des genannten Artikels, dass die senkrechten Feldkomponente *allgemein* einen größeren Beitrag zur Photoemission liefert als die parallele. Die PE-Ausbeute wird von ihnen durch

$$Y_{2\text{PPE}} \propto \langle E_{\parallel}^4 \rangle + \alpha^4 \langle E_{\perp}^4 \rangle + \beta^2 \langle E_{\parallel}^2 E_{\perp}^2 \rangle \quad (7.2)$$

modelliert, wobei α und β reelle Zahlen sind. Im weiteren Verlauf des Artikels wird $\beta^2 = 2\alpha^2$ gesetzt. Dadurch vereinfacht sich (7.2) zu:

$$Y_{2\text{PPE}} \propto \left\langle \left(E_{\parallel}^2 + \alpha^2 E_{\perp}^2 \right)^2 \right\rangle. \quad (7.3)$$

Dieses einfache Modell (7.3) findet sich in vergleichbarer Form auch bei Gartland et al. [108]. Da gemäß (B.14) der senkrechte Feldanteil der SPP-Welle im Metall um den Faktor

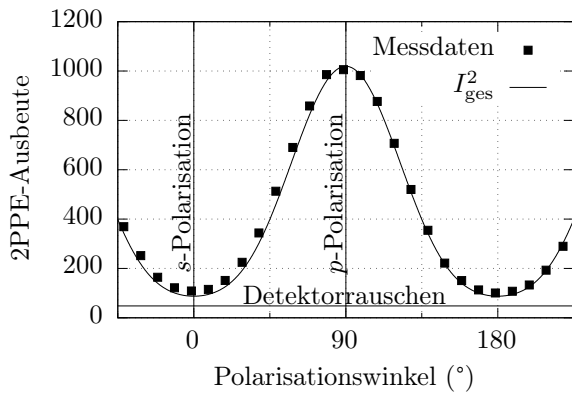


Abb. 7.2: Abhängigkeit der 2PPE-Ausbeute von der Polarisation des einfallenden Lichtes. Die Quadrate zeigen die polarisationsabhängige Photoemissionsausbeute, hier als Zähler der CCD-Kamera angegeben. Die untere Linie entspricht dem Detektorrauschen der Kamera. Die schwarze Linie zeigt einen Fit der quadratische Gesamtintensität des einfallenden Lichtes im Metall an die Messwerte.

$|\sqrt{\epsilon_{Au}}| \approx 5$ kleiner ist als der parallele, wird von Podbiel et al. $\alpha > 5$ angenommen um die Dominanz der senkrechten Komponente zu erklären.

Die Autoren begründen das Modell (7.3) mit dem *Oberflächeneffekt der Photoemission*. Dieser wurde ursprünglich angenommen, um die Photoemission im Modell des freien Elektronengases zu erklären [132]. Wie Feibelman [109] ausführt, müssen Energie und Impuls bei der Absorption eines Photons durch ein Elektron erhalten bleiben. Da Photonen für ihre Energie sehr wenig Impuls haben, kann ein freies Elektron ohne zusätzliche Impulsquelle kein Photon absorbieren. Liefert das Kristallgitter den benötigten Impuls, spricht man vom Volumeneffekt der Photoemission. Alternativ kann die Diskontinuität an der Oberfläche selbst dazu führen, dass Impuls senkrecht zur Oberfläche hinzugefügt wird. In diesem Fall spricht man vom Oberflächeneffekt der Photoemission. Zum Oberflächeneffekt trägt nur die senkrechte Feldkomponente bei. Diesem zusätzliche Beitrag zur Photoemission wird durch den Faktor α in (7.3) Rechnung getragen. Experimentell wurde der Oberflächeneffekt an Aluminium [133] und Kupfer [108] beobachtet, also an Metallen, die dem Modell des freien Elektronengases ähneln. Podbiel et al. berichten nun auch von der Beobachtung des Oberflächeneffektes an Gold.

Oberflächeneffekt der Photoemission

Nach diesem Exkurs in die Literatur wird im Folgenden ein Experiment gezeigt, das durchgeführt wurde, um die Ergebnisse von Podbiel et al. zu überprüfen und das zu einem anderen Ergebnis kommt. Dazu wird die Polarisationsabhängigkeit der Photoemission bei streifendem Einfall gemessen. Ultrakurze Laserpulse mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm treffen unter einem Winkel von 65° auf eine Goldoberfläche. Vor der Messung wurde eine sub-Monolage Caesium auf die Probe gebracht, um die Austrittsarbeit auf unter 3,1 eV zu senken und somit den 2PPE-Prozess auf dieser Probe zu ermöglichen. Die Polarisation des einfallenden Lichtes wird in 10° -Schritten gedreht und jeweils die 2PPE-Ausbeute aufgenommen. Ein Polarisationswinkel von 0° entspricht hier *s*-Polarisation, *p*-Polarisation ist entsprechend um 90° verdreht.

Polarisationsabhängigkeit der Photoemission

Das Ergebnis der Messung ist in Abb. 7.2 gezeigt. Gut zu erkennen ist, dass die PE-Ausbeute bei *p*-polarisiertem Licht sehr viel höher ist als mit *s*-polarisiertem, bei dem die

PE-Ausbeute auf etwa ein Zwanzigstel abfällt. Oberflächlich betrachtet scheint dies das Modell (7.3) zu bestätigen: Bei p -Polarisation hat das einfallende Licht einen elektrischen Feldanteil senkrecht zur Oberfläche. Hier ist die PE entsprechend höher als bei s -Polarisation, bei der es keinen senkrechten Feldanteil gibt. Eine andere Interpretation ergibt sich, wenn man die elektrischen Felder innerhalb des Metalls, nahe $z = 0$, also direkt unterhalb der Oberfläche betrachtet. Hier sind:

$$\begin{aligned} E_x &= E_0 t^p \cos \beta \sin \varphi \\ E_y &= E_0 t^s \cos \varphi \\ E_z &= E_0 t^p \sin \beta \sin \varphi. \end{aligned} \tag{7.4}$$

φ beschreibt hier den Polarisationswinkel, β ist der Winkel des gebrochenen Strahles² und $t^{p,s}$ sind die Transmissionskoeffizienten für p - bzw. s -polarisiertes Licht. Sowohl $t^{p,s}$ als auch β sind dabei komplexwertig. Mit den Fresnel-Koeffizienten (B.6) und (B.8) ergibt sich betragsmäßig:

$$\begin{aligned} |E_x| &= 0,362 \cdot E_0 \sin \varphi \\ |E_y| &= 0,165 \cdot E_0 \cos \varphi \\ |E_z| &= 0,0646 \cdot E_0 \sin \varphi. \end{aligned} \tag{7.5}$$

Daraus folgt, dass die elektrische Feldstärke parallel zur Oberfläche (x, y) immer größer ist als der Anteil senkrecht dazu (z). Außerdem ist die Gesamtstärke größer bei p - als bei s -Polarisation. Die höhere PE-Ausbeute bei p -polarisiertem Licht ist entsprechend auf eine größere Transmission in das Metall zurückzuführen. In Abbildung 7.2 ist die quadratische Gesamtintensität des einfallenden Lichtes im Metall $\langle I^2 \rangle = \langle (E_x^2 + E_y^2 + E_z^2) \rangle$ als durchgezogene Linie eingezeichnet. Das entspricht einem Parameter von $\alpha = 1$ in (7.3). Mit einem frei wählbaren Proportionalitätsfaktor passt die Linie ausgezeichnet an die Messwerte. In diesem Experiment konnten folglich keine Anzeichen für den Oberflächeneffekt an Gold gefunden werden, was den weiter oben vorgestellten Ergebnissen von Podbiel et al. widerspricht.

Dieser Widerspruch wirft die Frage auf, ob es den Oberflächeneffekt an Gold tatsächlich gibt und warum man ihn in einigen Experimenten beobachtet, in anderen jedoch nicht. Es erscheint lohnenswert, dieser Frage in weiteren Experimenten nachzugehen. Den Ausgangspunkt für weitere Überlegungen bildet ein Experiment mit dem die Kontrastbildung im SNOM untersucht wurde.

7.2 INTERFERENZ STEHENDER SPP-WELLEN: SNOM

In dem von Dvořák et al. durchgeführten Experiment wird gezeigt, dass der Bildkontrast im SNOM vom senkrechten Feldanteil dominiert wird [134]. Im Hinblick auf die in

²Es gilt $\sin \beta = n_1/n_2 \sin \Theta$, wobei Θ der Einfallswinkel ist

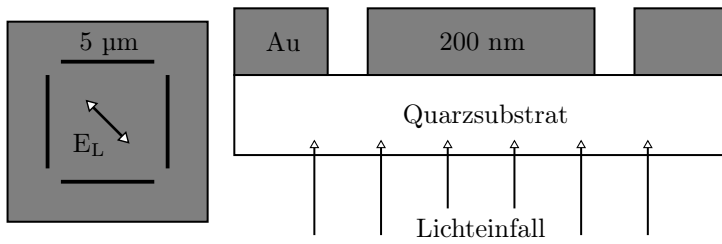


Abb. 7.3: Probendesign bei Dvořák et al. [134]. Details siehe Text.

diesem Kapitel untersuchte Fragestellung ist dieses Experiment interessant, da sowohl PEEM als auch SNOM das elektrische Nahfeld abbilden. Eine Durchführung mit dem PEEM erscheint daher vielversprechend. Im Folgenden wird zunächst das Experiment von Dvořák et al. vorgestellt. Es schließt sich eine Diskussion darüber an, inwiefern sich das Experiment auf das PEEM übertragen lässt und welches Ergebnis man mit bzw. ohne einen signifikanten Einfluss des Oberflächeneffekts erwarten würde.

In dem Experiment von Dvořák et al. wird eine quadratische Anregungsstruktur durch senkrecht einfallendes Licht beleuchtet. Diese in Abb. 7.3 gezeigte Anregungsstruktur besteht aus vier Gräben, die mittels fokussiertem Ionenstrahl in einen Goldfilm geschrieben wurden. Die Gräben, die bis auf das Quarzsubstrat reichen, bilden die Kanten eines Quadrates. Durch Beleuchtung mit Laserlicht in Transmission werden an den Gräben SPP-Wellen angeregt, die über die Goldoberfläche propagieren. Der mit 200 nm sehr dicke Goldfilm blockiert das einfallende Licht, so dass das elektrische Feld auf der Probenoberseite ausschließlich durch die SPP-Wellen gegeben ist. Durch die Wahl der Polarisation kann ausgewählt werden, ob jeweils an den vertikalen oder horizontalen Gräben Wellen angeregt werden, die dann auf der Fläche des Quadrates eine stehende Welle ausbilden. Besonders interessant ist die Beleuchtung mit Licht diagonaler Polarisation. Hier werden an allen vier Kanten Wellen angeregt. Das Interferenzbild besteht folglich aus der Überlagerung von zwei stehenden SPP-Wellen, die senkrecht zueinander verlaufen. Die parallelen Feldanteile der beiden stehenden Wellen stehen senkrecht zueinander, addieren sich daher quadratisch gemäß

Experiment von Dvořák et al.

$$E_{\parallel} = \sqrt{E_{x1}^2 + E_{y2}^2} \quad (7.6)$$

wobei E_{x1} , E_{y2} der parallele Feldanteil der horizontal bzw. vertikal verlaufenden Welle ist. Dagegen stehen die senkrechten Feldanteile parallel zueinander, addieren sich also gemäß

$$E_{\perp} = E_{z1} + E_{z2} \quad (7.7)$$

mit den senkrechten Feldanteilen E_{z1} und E_{z2} . Dieser Sachverhalt äußert sich in einem qualitativen Unterschied zwischen den Interferenzbildern. Abb. 7.4 zeigt die mittlere Intensität, die hier aus der Überlagerung von zwei senkrecht zueinander verlaufenden stehenden Wellen berechnet wurde. Das durch den senkrechten Feldanteil gebildete

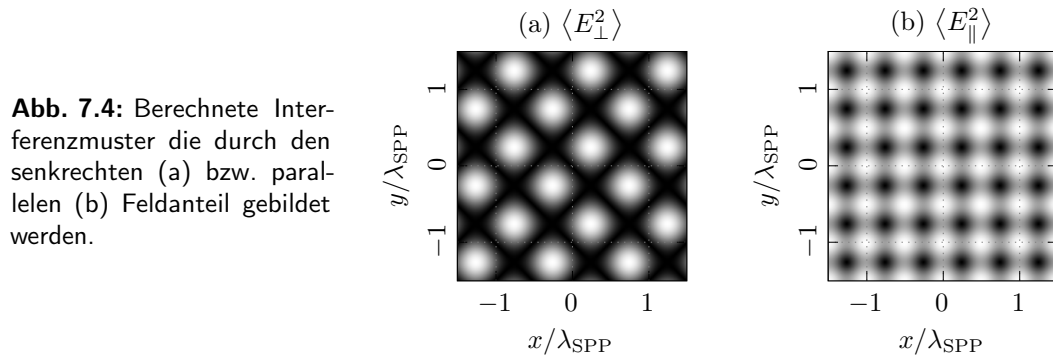
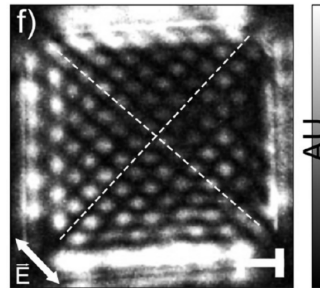


Abb. 7.4: Berechnete Interferenzmuster die durch den senkrechten (a) bzw. parallelen (b) Feldanteil gebildet werden.

Abb. 7.5: SNOM-Aufnahme der Anregungsstruktur. Der Maßstabsbalken entspricht einer Länge von 1 μm . Genehmigter Nachdruck aus Nano Lett. 2013, 13, 6, 2558-2563 [134]. Copyright (2013) American Chemical Society.



Muster (a) unterscheidet sich deutlich von dem durch das parallele Feld gebildete (b). Im Falle des senkrechten elektrischen Feldes verschwindet jeder zweite Schwingungsbauch aufgrund destruktiver Interferenz, es ergibt sich eine rautenförmige Anordnung der Intensitätsmaxima. Wegen des Phasenversatzes von 180° zwischen den Wellen, die an gegenüberliegenden Gräben angeregt werden, befindet sich in der Feldmitte ein Schwingungsknoten. Durch die quadratische Addition im Fall paralleler elektrischer Felder kommt es dagegen nicht zur Auslöschung. Es erscheinen doppelt so viele Intensitätsmaxima, die quadratisch angeordnet sind. Wie Dvořák et al. zeigen, entspricht die in Abb. 7.5 abgebildete SNOM-Aufnahme dem Interferenzmuster der senkrechten Feldanteile. Diese Beobachtung lässt den zweifelsfreien Schluss zu, dass der Bildkontrast im SNOM von ebenjenen senkrechten Feldanteilen dominiert wird.

Übertragbarkeit auf
das PEEM

Unklar ist jedoch, ob auch der PEEM-Kontrast vom senkrechten Anteil dominiert wird. Es wird davon ausgegangen, dass das SNOM das Nahfeld im Vakuum abbildet. Insofern ist das Ergebnis von Dvořák et al. nicht überraschend, da im Vakuum der senkrechte Feldanteil einer SPP-Welle nach (B.13) um den Faktor $|\sqrt{\varepsilon_{\text{Au}}}| \approx 5$ größer als der parallele, das Feld wird also vom senkrechten Anteil dominiert. Im Falle des PEEM ist hingegen davon auszugehen, dass das Nahfeld innerhalb des Festkörpers abgebildet wird. Im Gold ist der senkrechte Feldanteil nach (B.14) um den Faktor $|\sqrt{\varepsilon_{\text{Au}}}| \approx 5$ kleiner als der parallele, das Feld wird demnach vom parallelen Anteil dominiert. Ist die Photoemission proportional zur quadratischen Gesamtintensität, unabhängig von der

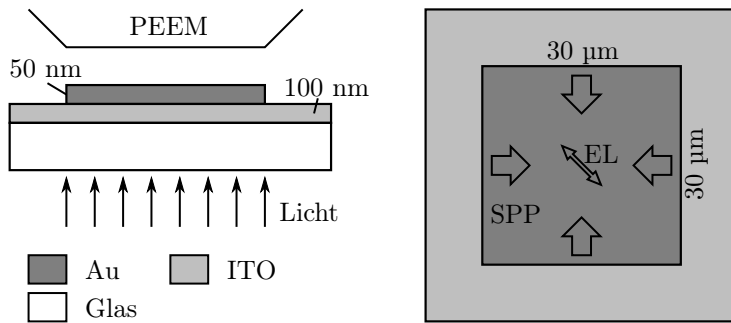


Abb. 7.6: Anregungsgeometrie für die PEEM-Messung.

Richtung des elektrischen Feldes, ist daher ein Interferenzmuster wie das in Abb. 7.4 rechts gezeigt zu erwarten, dass aus den parallelen Feldanteilen erzeugt wird. Zeigt sich dagegen im Experiment ein Muster wie in Abb. 7.4 links oder eine Mischform, würde das Modell (7.3) und damit die Relevanz des Oberflächeneffektes bestätigt. Bei genügend hoher Datenqualität könnte auf diese Weise ein Wert für den Parameter α gefunden werden.

7.3 INTERFERENZ STEHENDER SPP-WELLEN: PEEM

Eine erste Messung der SPP-Interferenz an einer quadratischen Antriebsstruktur wurde mit dem PEEM bereits durchgeführt. Obwohl die Datenlage aufgrund der Probenqualität nicht befriedigend ist, sind die Ergebnisse überzeugend und vielversprechend. Sie werden daher im Folgenden vorgestellt.

Für das PEEM-Experiment wird das Probedesign, wie in Abb. 7.6 gezeigt, gegenüber der Messung von Dvořák et al. leicht abgewandelt. Mittels Elektronenstrahl-Lithographie werden 50 nm dicke, quadratische Goldfelder auf einem mit ITO bedeckten Glassubstrat aufgebracht. Bei dieser Dicke kann das Laserfeld an der Oberfläche nicht mehr vernachlässigt werden. Dies wird bewusst in Kauf genommen, um die Position des Laserspots auf der Probe anhand seines Photoemissionssignals einstellen zu können. Um dennoch ein Interferenzmuster zu erzeugen, das ausschließlich aus der Überlagerung von SPP-Wellen entsteht, werden ultrakurze Pulse verwendet, um Laser und SPP-Feld voneinander zu trennen. Als Seitenlänge des Quadrates wird 30 μm gewählt. Bei 20 fs langen Pulsen beträgt die Wechselwirkungslänge nach (3.8) ungefähr 6 μm , in der Feldmitte wird demnach keine Wechselwirkung zwischen stehender SPP-Welle und Laserlicht mehr erwartet.

In Abb. 7.8(a) ist eine PEEM-Aufnahme gezeigt, bei der mit horizontaler Polarisation angeregt wurde. Das Gesichtsfeld entspricht dabei ungefähr dem in Abb. 7.7 gezeigten, d.h. der Bildausschnitt beginnt unmittelbar an einer der Kanten und reicht bis in die Feldmitte. Direkt an der Anregungskante ist die bereits bekannte Schwebung zwischen SPP-Welle und Laserlicht sichtbar. Auf der rechten Bildseite und damit im Zentrum der

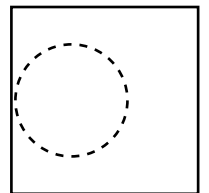


Abb. 7.7: Bildausschnitt relativ zur Goldinsel.

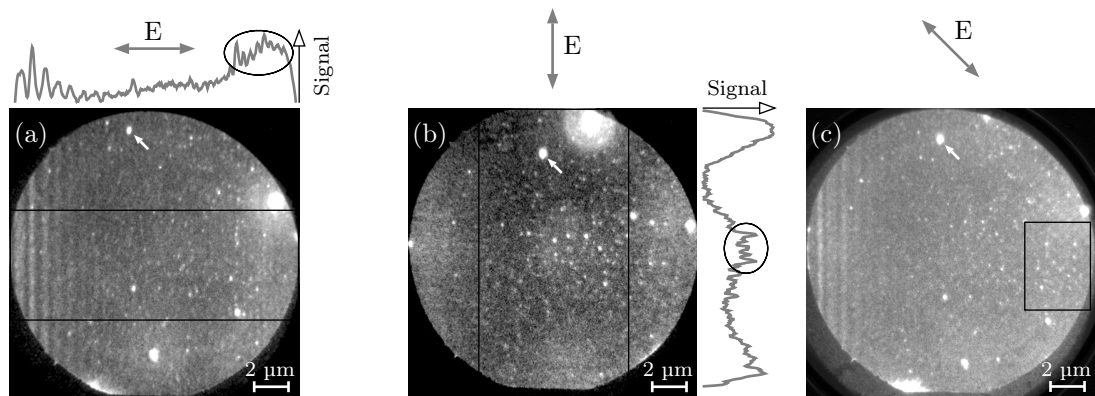


Abb. 7.8: PEEM-Aufnahmen für horizontale (a), vertikale (b) und diagonale (c) Polarisation. Oberhalb von (a) sowie rechts von (b) ist ein horizontales bzw. vertikales Linienprofil entlang des schwarzen Rechtecks gezeigt. Die stehende Welle ist jeweils gekennzeichnet. Das Rechteck in (c) gibt den Bildbereich an in dem das Interferenzbild aus der Superposition der beiden stehenden Wellen erwartet wird. Zur Orientierung ist in allen Bildern derselbe Defekt durch einen weißen Pfeil markiert.

Goldinsel, zeigt sich eine weitere, schwächere Signatur. Diese ebenfalls vertikal verlaufende Helligkeitsmodulation hat im Vergleich zur Schwebung die halbe Periodendauer. Es handelt sich hierbei um die Signatur der stehenden Welle zwischen den beiden horizontal verlaufenden SPP-Wellenpaketen. Etwas besser ist die stehende Welle im Intensitätsprofil sichtbar, das über der PEEM-Aufnahme gezeigt ist. Die Photoelektronenausbeute ist hier als Funktion der horizontalen Ortskoordinate aufgetragen, wobei über die vertikale Richtung integriert worden ist. Der Integrationsbereich ist in Abb. 7.8(a) als schwarzes Rechteck markiert. Die Signaturen von Schwebung und stehender Welle überlagern sich nicht, eine Kantenlänge von $30\ \mu\text{m}$ ist demnach ausreichend zur Entkopplung. Für die Darstellung der Messwerte wäre eine kleinere Struktur vorteilhaft. Wie man anhand des Linienprofils sieht, erscheint sogar eine Kantenlänge von $20\ \mu\text{m}$ als ausreichend.

Bei der Anregung mit vertikal polarisiertem Licht würde man aufgrund der stehenden Welle eine horizontal verlaufende Helligkeitsmodulation erwarten. Das ist jedoch nicht der Fall. Stattdessen wird die in Abb. 7.8(b) gezeigte PEEM-Aufnahme von hellen Defekten dominiert. Die stehende Welle zeigt sich aber im Intensitätsprofil, welches hier in vertikaler Richtung aufgenommen wurde. Zwar wird auch das Intensitätsprofil von Defekten dominiert, bei dieser Polarisation sind jedoch andere Defekte sichtbar als in 7.8(a). Dieser Sachverhalt lässt sich so deuten, dass die Defekte wie Antennen wirken, die die Feldüberhöhung aufgrund der stehenden Welle abbilden. Insofern wird das Linienprofil trotz der Defekte für aussagekräftig befunden.

Abb. 7.8(c) zeigt eine PEEM-Aufnahme, bei der mit diagonal polarisiertem Licht angeregt wurde. Die Ausbildung des Interferenzmusters wird am Kreuzungspunkt der beiden stehenden Wellen erwartet. In dem mit einem Rechteck markierten Bereich

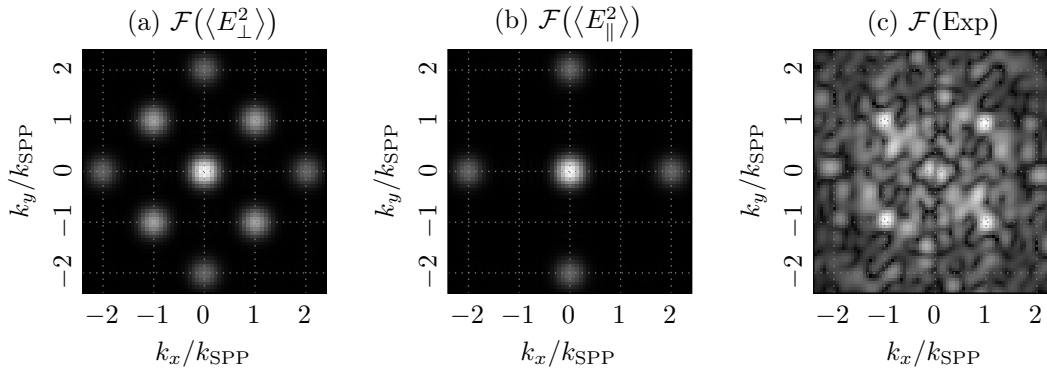


Abb. 7.9: (a),(b): Fourierbilder der in Abb. 7.4 gezeigten Interferenzbilder aus senkrechtem bzw. parallelem Feldanteil. (c): Fourierbild des in Abb. 7.8(c) gerahmten Ausschnitts der PEEM-Aufnahme.

ist tatsächlich, wenn auch schwach, ein regelmäßig angeordnetes Muster zu erkennen. Dominiert wird jedoch auch dieser Bereich von Defekten, die eine direkte Zuordnung zu einem der in Abb. 7.4 gezeigten Muster im *Ortsraum* nicht zulassen.

Zur weiteren Auswertung wird daher eine Fouriertransformation durchgeführt, um den Einfluss der zufällig verteilten Defekte zu reduzieren. In Abb. 7.8(a,b) sind die fouriertransformierten berechneten Interferenzbilder aus Abb. 7.4 gezeigt. Zur Verminderung von Artefakten durch die endliche Bildgröße wurde eine gaußförmige Fensterfunktion verwendet. Wie gut zu erkennen ist, unterscheiden sich die beiden Bilder qualitativ voneinander. Für den senkrechten Feldanteil befinden sich die ersten vier Maxima bei

$$\begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \pm k_{\text{SPP}} \\ \pm k_{\text{SPP}} \end{pmatrix}, \quad (7.8)$$

für den parallelen Feldanteil fehlen diese jedoch. Abb. 7.9(c) zeigt die Fouriertransformation des experimentell bestimmten, in Abb. 7.8(c) markierten Bereichs. Auch hier wurde eine gaußförmige Fensterfunktion auf die Messdaten gelegt. Außerdem wurde der konstante Untergrund abgezogen. Wie aufgrund der Datenqualität zu erwarten, ist das Fourierbild des experimentell bestimmten Intensitätsverlaufes stark verrauscht. Dennoch zeigen sich eindeutig Maxima an den für das senkrechte elektrische Feld charakteristischen Stellen. So kann trotz der unbefriedigenden Datenlage eine zweifelsfreie Zuordnung vorgenommen werden. Aus der Beobachtung lässt sich schlussfolgern, dass der senkrechte Feldanteil einen signifikanten Anteil zur Photoemission haben muss. Da wie erwähnt der senkrechte Feldanteil der SPP-Welle im Metall um den Faktor $|\sqrt{\varepsilon_{\text{Au}}}| \approx 5$ kleiner ist als der parallele, ist dieses Ergebnis zunächst überraschend. Es lässt sich ferner als Indiz dafür deuten, dass der senkrechte Feldanteil tatsächlich einen größeren Anteil an der Photoemission hat als der parallele. Dies würde die Ergebnisse von Podbiel et al. und damit die Signifikanz des Oberflächeneffektes bestätigen und stünde im Widerspruch zu

Fouriertransformation

der in Abb. 7.2 gezeigten Messung. Allerdings ist die Datenlage zu unbefriedigend für eine definitive Aussage.

Probenqualität

Hauptursache für die beklagenswerte Datenlage ist die intrinsische Rauigkeit des 100 nm dicken ITO-Films, die sich in einer Vielzahl von hellen Defekten in der Photoemission äußert. Die Bedeckung mit 50 nm Goldfilm reicht nicht aus um diese Rauigkeit auszugleichen³. Das führt zu in den in Abb. 7.8 beobachteten, von Defekten dominierten PEEM-Aufnahmen. Mittlerweile werden deutlich glattere Substrate verwendet, um dieses Problem zu beheben. Eine weitere Ursache ist die offenbar unterschiedliche Qualität der Anregungskanten. Wie in Abb. 7.8 zu sehen, gelingt die Einkopplung mit horizontaler Polarisation besser als mit vertikaler. Dies könnte auf die Fabrikation mittels Elektronenstrahl-Lithographie zurückzuführen sein. Es ist anzunehmen, dass das Rastern des Schreibbereiches mit dem Elektronenstrahl dazu führt, dass die Kante parallel zur Schreibrichtung glatter ist, als die senkrecht dazu und sich daher besser zur Einkopplung eignet. Abhilfe könnte hier die Fertigung der Quadrate mittels fokussiertem Ionenstrahl schaffen, wie es auch in dem Experiment von Dvořák et al. genutzt wurde. Erste Testmessungen an derartig geschriebenen Gräben, um optimale Werte für Breite und Tiefe zu ermitteln, wurden in der Arbeitsgruppe bereits durchgeführt, sind jedoch nicht Gegenstand dieser Arbeit.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass deutliche Hinweise darauf gefunden wurden, dass der PEEM-Kontrast vom senkrechten Feldanteil dominiert wird, auch wenn der parallele Anteil vor allem bei oberflächennormalem Lichteinfall nicht vernachlässigt werden kann. Eine Erklärung dieser Beobachtung ist der Oberflächeneffekt der Photoemission. Außerdem lässt sich festhalten, dass die Datenqualität aus den genannten Gründen für eine definitive Aussage noch nicht ausreicht. Eine Wiederholung der Messung an Proben mit glatter, defektfreier Oberfläche und gleichmäßigen Einkopplungskanten wäre daher sehr wünschenswert. Das Experiment ist nicht nur sehr interessant im Hinblick auf die Kontrastbildung im PEEM-Instrument, sondern könnte überdies zu einem besseren Verständnis der Photoemission beitragen.

³Es ist aus der Literatur [135, 136] bekannt, dass ein sehr dünner Metallfilm bis zu einer Dicke von etwa 100 nm die Rauigkeit des Substrats geringfügig verringert. Bei dickeren Metallfilmen erhöht sich dagegen die Rauigkeit.

8 FAZIT

In der vorliegenden Arbeit wurden drei bereits publizierte Studien sowie ein noch nicht abgeschlossenes Projekt vorgestellt und diskutiert. Dabei kam die zeitaufgelöste Photoemissions-Elektronenmikroskopie zum Einsatz, um propagierende elektromagnetische Wellen an Ober- bzw. Grenzflächen zu untersuchen. In erster Linie handelt es sich dabei um die SPP-Mode an der Goldoberfläche. Darüber hinaus wurden sowohl die SPP-Mode an der verdeckten Gold-Substrat-Grenzschicht als auch Wellenleitermoden beobachtet und quantitativ charakterisiert.

In der Studie „Detection and characterization of attenuated multimode waveguiding in SiO₂ slabs using photoemission electron microscopy“ wurde gezeigt, dass die TR-PEEM-Technik angewendet werden kann, um optische Wellenleitermoden in einer Siliziumdioxidschicht zu untersuchen. Flächendeckend auf die Probenoberfläche aufbrachte Gold-Nanopartikel wirken dabei wie Antennen bzw. Elektronenemitter, die die Beobachtung der Wellenleitermoden erleichtern. Bereits früher wurde in der Literatur von der Beobachtung solcher Moden mittels PEEM berichtet [72, 74, 76], jedoch ausschließlich an elektrisch leitendem Indium-Zinn-Oxid. Hier wurde mit Siliziumdioxid dagegen ein sehr guter Isolator untersucht. Dass Photoemissions-Experimente überhaupt durchführbar sind, wurde mit interner Photoemission aus dem Substrat in die SiO₂-Schicht begründet. Es wird daher angenommen, dass die Untersuchungsmethode auch auf andere Isolatoren übertragbar ist, die in zukünftigen Experimenten mit dem PEEM untersucht werden könnten. Darüber hinaus wurde vorgeschlagen, isolierende Schichten zu nutzen, um das zu untersuchende System vom Substrat zu entkoppeln. Damit könnte beispielsweise eine lichtinduzierte Ladungstrennung in Halbleiternanodrähten [60, 61] mit dem PEEM untersucht werden, ohne dass die erzeugten Ladungsträger in das Substrat abfließen. Auch die Untersuchung der Kopplung von Licht an Exzitonen [62] scheint vor diesem Hintergrund möglich.

In Kapitel 5 wurde die Studie „Amplitude and phase of surface plasmon polaritons excited at a step edge“ vorgestellt, in der die Anregung von SPP-Wellen an Stufenkanten auf einer Goldoberfläche untersucht wird. In der systematisch durchgeführten Studie wurden Stufenhöhe und Anregungsfrequenz variiert. Es wurde gezeigt, wie die Einkoppelstärke aus den PEEM-Aufnahmen extrahiert werden kann. Die experimentellen Beobachtungen stehen dabei im Einklang mit dem Ergebnis numerischer Rechnungen. Als maßgeblicher Parameter für die Kopplungskonstante wurde das Verhältnis aus Stufenhöhe und Wellenlänge H/λ identifiziert. Dabei konnte ein optimaler Wert für die Stufenhöhe bei der verwendeten Anregungsfrequenz gefunden werden. Darüber hinaus

Wellenleitermoden
in SiO₂

SPP-
Einkoppelstärke

wurde beobachtet, dass die Einkopplung für spezielle Werte von H/λ gegen Null geht. Neben der Einkopplungsamplitude ändert sich ferner die Phase δ des angeregten SPP. Diese Erkenntnisse erlauben, ganz im Sinne des Schwerpunktprogramms 1391, die „kohärente Steuerung von nanooptischen Anregungen“ [19]. Da die Beobachtungen auf einfache Weise durch Interferenz erklärt werden können, sind die Ergebnisse prinzipiell auf andere Anregungsgeometrien, Materialien und Anregungsfrequenzen übertragbar. Trotzdem erscheinen weitere Untersuchungen lohnenswert, vor allem bei Nutzung senkrechten Lichteinfalls. Da der senkrechte Lichteinfall experimentell in Transmission realisiert wurde (siehe Kapitel 6), ist zudem die explizite Wellenlängenabhängigkeit der Anregung zugänglich, wie in Kapitel 5 erläutert wurde. Bevor die Einkoppelstärke bei senkrechtem Lichteinfall aus den experimentellen Daten bestimmt werden kann, muss jedoch geklärt werden, wie sich der Kontrast im PEEM aus den elektrischen Feldern der beteiligten Wellen ergibt.

PEEM-Kontrast

Im Kern geht es dabei um die Frage, ob die Feldanteile senkrecht bzw. parallel zur Oberfläche gleichermaßen oder unterschiedlich zur Photoemission und damit zum beobachteten Feldkontrast beitragen. Zur Beantwortung dieser Frage wurde in Kapitel 7 ein Experiment vorgeschlagen, das die Interferenz stehender SPP-Wellen bei senkrechtem Lichteinfall nutzt. Damit wurde das übliche Vorgehen gewissermaßen umgedreht: Während in den anderen Studien das PEEM zur Untersuchung von SPP-Wellen genutzt wird, wurden hier SPP-Wellen zur Untersuchung des PEEM verwendet. Obwohl das Projekt noch nicht als abgeschlossen angesehen werden kann, sind die bisherigen Ergebnisse überzeugend und deuten auf einen überproportionalen Anteil des Feldes senkrecht zur Oberfläche hin. Diese Beobachtung lässt sich mit dem Einfluss des historisch bedeutenden Oberflächeneffekts der Photoemission erklären [108, 109, 132, 133]. Weitere Experimente sind nötig, um die bisherigen Ergebnisse zu bestätigen und gegebenenfalls einen quantitativen Wert für den Einfluss des Oberflächeneffekts zu ermitteln.

Senkrechter
Lichteinfall

Die in diesem Experiment genutzte Einkopplungseinheit, die die Anregung mit oberflächennormal einfallendem Licht ermöglicht, wurde im Verlauf dieser Arbeit aufgebaut und getestet. Neben dem senkrechten Einfall, der die Untersuchung zweidimensionaler Strukturen erheblich vereinfacht, bietet sie außerdem die Möglichkeit der hochlokalen Anregung. Wie in der Studie „Femtosecond time-resolved photoemission electron microscopy operated at sample illumination from the rear side“ gezeigt wurde, ist der minimale Strahldurchmesser im Fokuspunkt kleiner als sechs μm bei einer gleichzeitigen Pulsdauer von weniger als 20 fs. Diese räumlich und zeitlich extrem lokalisierte Anregung ist die Voraussetzung für eine zukünftige Untersuchung der Anregungsdynamik in komplexen Nanostrukturen. Weitere interessante Möglichkeiten bietet die Untersuchung der SPP-Mode an der verdeckten Gold-Substrat-Grenzschicht, die bei transmissiver Anregung bevorzugt angeregt wird.

TEIL III
ANHANG

A ANALYTISCHE FUNKTION ZUR BESCHREIBUNG DES SCHWEBUNGSMUSTERS

Im folgenden soll das Integral

$$\boxed{Y(x) = \int_{-\infty}^{\infty} [E_1(x, t) + E_2(x, t)]^4 dt} \quad (\text{A.1})$$

berechnet werden. Die E_1 , E_2 beschreiben dabei pulsformige Signale. Wir gehen davon aus, dass der zweite Puls E_2 im zeitlichen Verlauf, wie in Frequenz und Pulsdauer dem ersten folgt, wie es bei den in dieser Arbeit betrachteten angeregten Pulsen der Fall ist. Die vierte Potenz der Amplituden spiegelt den 2PPE-Prozess wieder, die unendliche Integrationsgrenzen entsprechen der zeitlichen Mittelwertbildung bei endlichen, gepulsten Signalen. Der erste Puls wird als zeitlich gaussförmig angenommen:

$$E_1(x, t) = \frac{E_1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \cdot \cos(k_1 x - \omega t) \cdot \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{x/v_1 - t}{\sigma}\right)^2\right]. \quad (\text{A.2})$$

Dabei ist E_1 die elektrische Feldstärke des ersten Pulses, k_1 der Wellenvektor, v_1 ist die Gruppengeschwindigkeit und σ gibt die zeitliche Breite der Einhüllenden an.

Der zweite Puls folgt im zeitlichen Profil dem ersten. Neben Amplitude und Phase ändern sich außerdem Wellenvektor und Gruppengeschwindigkeit:

$$E_2(x, t) = \frac{E_2}{\sqrt{2\pi\sigma}} \cdot \cos(k'_2 x - \omega t + \delta) \cdot \exp(-k''_2 x) \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{x/v_2 - t}{\sigma}\right)^2\right]. \quad (\text{A.3})$$

Der Wellenvektor k_2 ist in diesem Fall komplex. k'_2 und k''_2 bezeichnen Real- und Imaginärteil desselben. Für die weitere Rechnung wird oBdA $\frac{E_1}{\sqrt{2\pi\sigma}} = 1$ und $\frac{E_2}{\sqrt{2\pi\sigma}} = \beta$ gesetzt. β ist dann das Amplitudenverhältnis der beiden Pulse.

A.1 OBERE EINHÜLENDE

Zur Vereinfachung wird das Problem in mehrere Teilschritte zerlegt. Zunächst werden daher nur die Einhüllenden der Pulse E_1 und E_2 betrachtet und als A bzw. B bezeichnet.

Das Integral

$$O(x) = \int [A(x, t) + B(x, t)]^4 dt \quad (\text{A.4})$$

liefert die obere Einhüllende des Signals. Dabei ist

$$A(x, t) = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{x/v_1 - t}{\sigma} \right)^2 \right], \quad (\text{A.5})$$

$$B(x, t) = \beta \cdot \exp(-k_2'' x) \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{x/v_2 - t}{\sigma} \right)^2 \right]. \quad (\text{A.6})$$

mit Hilfe der Substitutionen:

$$-t' = t - x/v_1 \quad ; \quad \tau = \frac{x}{v_{\text{red}}} \quad ; \quad \frac{1}{v_{\text{red}}} = \frac{1}{v_1} - \frac{1}{v_2} \quad (\text{A.7})$$

und

$$D(x) = \beta \cdot \exp(-k_2'' x) \quad (\text{A.8})$$

werden (A.5) und (A.6) zu

$$A(x, t) = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t'}{\sigma} \right)^2 \right], \quad (\text{A.9})$$

$$B(x, t) = D(x) \cdot \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t' - \tau}{\sigma} \right)^2 \right]. \quad (\text{A.10})$$

Die Funktion $D(x)$ enthält nun das Amplitudenverhältnis und die Dämpfung des zweiten Pulses. Auflösen der Klammer in (A.4) führt auf:

$$O(x) = \int [A^4 + 4 A^3 B + 6 A^2 B^2 + 4 A B^3 + B^4] dt \quad (\text{A.11})$$

dabei wurde die x - und t -Abhängigkeit von $A(x, t)$ und $B(x, t)$ aus Gründen der Lesbarkeit nicht mitgeschrieben. Der Erste Term in (A.11) liefert:

$$\int A^4 dt = \int \exp^4 \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t'}{\sigma} \right)^2 \right] dt' = \int \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t'}{\sigma/2} \right)^2 \right] dt' = \sqrt{2\pi}\sigma/2. \quad (\text{A.12})$$

Völlig analog gilt für den letzten Term:

$$\int B^4 dt = D^4(x) \cdot \int \exp^4 \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t' - \tau}{\sigma} \right)^2 \right] dt' = \sqrt{2\pi}\sigma/2 \cdot D^4(x). \quad (\text{A.13})$$

Der zweite Term in (A.11)

$$\begin{aligned} 4 \int A^3 B \, dt &= 4D(x) \cdot \int \exp^3 \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t'}{\sigma} \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t' - \tau}{\sigma} \right)^2 \right] dt' \\ &= 4 D(x) \cdot \int \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t'}{\sigma/\sqrt{3}} \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t' - \tau}{\sigma} \right)^2 \right] dt' \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

hat die Form einer Faltung zweier Gauß-Kurven der Breite $\sigma/\sqrt{3}$ bzw. σ . Die Faltung erzeugt wieder eine Gauß-Kurve der Breite $\sigma\sqrt{1/3 + 1}$. Dies führt auf:

$$\begin{aligned} 4 \int A^3 B \, dt &= \sqrt{2\pi}\sigma/2 \cdot 4D(x) \cdot \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\tau}{\sigma \cdot 2/\sqrt{3}} \right)^2 \right] \\ &= \sqrt{2\pi}\sigma/2 \cdot 4 D(x) \cdot P^{3/4}(x). \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

Hier wurde

$$P(x) = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\tau}{\sigma} \right)^2 \right] \quad (\text{A.16})$$

eingeführt. Wiederum analog dazu ist der vierte Term:

$$4 \int AB^3 \, dt = \sqrt{2\pi}\sigma/2 \cdot 4 D^3(x) \cdot P^{3/4}(x). \quad (\text{A.17})$$

Es fehlt noch die Berechnung des mittleren Terms in (A.11):

$$\begin{aligned} 6 \int A^2 B^2 \, dt &= 6 D^2(x) \cdot \int \exp^2 \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t'}{\sigma} \right)^2 \right] \exp^2 \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t' - \tau}{\sigma} \right)^2 \right] dt' \\ &= \sqrt{2\pi}\sigma/2 \cdot 6 D^2(x) \cdot \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\tau}{\sigma} \right)^2 \right] = \sqrt{2\pi}\sigma/2 \cdot 6 D^2(x) \cdot P(x). \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

Mittels

$$N = \sqrt{2\pi}\sigma/2 \quad \text{Normierung} \quad (\text{A.19})$$

$$D(x) = \beta \cdot \exp(-k_2''x) \quad \text{Amplitudenverhältnis} \quad (\text{A.20})$$

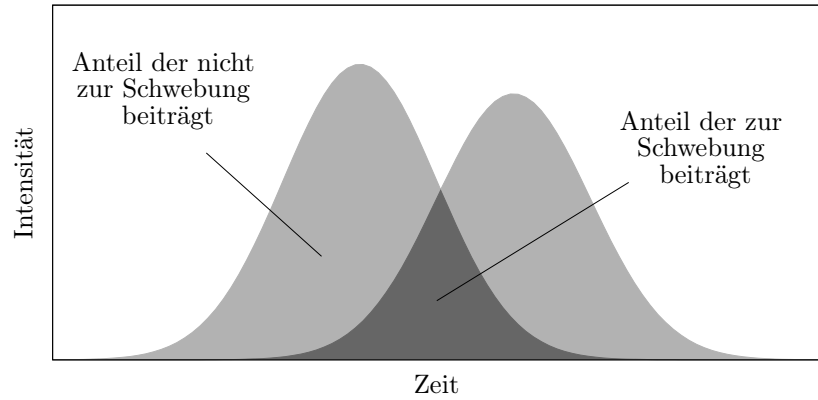
$$P(x) = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\tau}{\sigma} \right)^2 \right] \quad \text{Gauß-Kurven-Form} \quad (\text{A.21})$$

sowie mit (A.12), (A.15), (A.18), (A.17) und (A.13) kann eine analytische Formel für die obere Einhüllende des Schwebungsmusters angegeben werden:

$$\boxed{\frac{O(x)}{N} = 1 + 4 D(x)P^{3/4}(x) + 6 D^2(x)P(x) + 4 D^3(x)P^{3/4}(x) + D^4(x).} \quad (\text{A.22})$$

In dieser Formel ist nun keine Zeitabhängigkeit mehr enthalten.

Abb. A.1: Teilweise überlappende Pulse an einem festen Ort. Aufgetragen ist der Verlauf der Intensität über der Zeit.



A.2 UNTERE EINHÜLENDE

Nun soll die untere Einhüllende des Schwebungsmusters berechnet werden. Das beobachtete Schwebungsmuster $S(x)$ lässt sich als das zeitliche Integral über eine unreine Schwebung beschreiben, deren Reinheitsgrad sich wegen der Pulsform und der unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeit mit der Zeit und dem Ort ändert. Zur Verdeutlichung sind die beiden Pulse in Abb. A.1 an einem festen Ort dargestellt.

Zur Ausbildung des Schwebungsmusters trägt nur der Teil der Pulse bei, der mit dem jeweils anderen Puls überlappt. Der Rest der Pulse trägt zum Untergrund, zur unteren Einhüllenden des Schwebungsmusters bei. Betrachten wir erneut die Einhüllenden der Pulse A und B . Man kann schreiben:

$$A(x, t) + B(x, t) = \begin{cases} 2 A(x, t) + B(x, t) - A(x, t) & \text{für } A(x, t) < B(x, t) \\ 2 B(x, t) + A(x, t) - B(x, t) & \text{für } A(x, t) > B(x, t). \end{cases} \quad (\text{A.23})$$

Außerdem werden definiert:

$$A'(x, t) \equiv |A(x, t) - B(x, t)| ; \quad B'(x, t) \equiv 2 \min(A(x, t), B(x, t)). \quad (\text{A.24})$$

Es gilt völlig Exakt:

$$A(x, t) + B(x, t) = A'(x, t) + B'(x, t). \quad (\text{A.25})$$

Dabei trägt A' zur unteren Einhüllenden bei, B' zur Schwebung. Die untere Einhüllende ergibt sich aus der Forderung, dass die Schwebung minimal wird ($B' = 0$), während sich die obere Einhüllende aus der Forderung nach maximaler Schwebungsamplitude ergibt.

Mathematisch ausgedrückt:

$$O(x) = \int [A(x, t) + B(x, t)]^4 dt \quad \text{Obere Einhüllende} \quad (\text{A.26})$$

$$U(x) = \int [A(x, t) - B(x, t)]^4 dt \quad \text{Untere Einhüllende} \quad (\text{A.27})$$

Die obere Einhüllende haben wir weiter oben schon ausgerechnet (A.22). Für die untere Einhüllende müssen wir nur die Vorzeichen der Terme mit ungeradem Exponenten tauschen:

$$\boxed{\frac{U(x)}{N} = 1 - 4 D(x)P^{3/4}(x) + 6 D^2(x)P(x) - 4 D^3(x)P^{3/4}(x) + D^4(x)}. \quad (\text{A.28})$$

A.3 SCHWEBUNGS-AMPLITUDE

Bisher wurden obere und untere Einhüllende berechnet. Doch was ist mit der Schwebung dazwischen? Die exakte Form soll jetzt berechnet werden. Wir schreiben die elektrischen Felder der Pulse als Produkt von Phasenfunktion und Einhüllender:

$$E_1(x, t) = \cos(k_1 x - \omega t) \cdot A(x, t) = a(x, t) \cdot A(x, t) \quad (\text{A.29})$$

$$E_2(x, t) = \cos(k'_2 x - \omega t + \delta) \cdot B(x, t) = b(x, t) \cdot B(x, t). \quad (\text{A.30})$$

Nach einsetzen in (A.1) und ausmultiplizieren der Klammer ergibt sich:

$$Y(x) = \int [a^4 A^4 + 4 a^3 b A^3 B + 6 a^2 b^2 A^2 B^2 + 4 a b^3 A B^3 + b^4 B^4] dt. \quad (\text{A.31})$$

Hier wurde wieder aus Gründen der Lesbarkeit darauf verzichtet, die x - und t -Abhängigkeit der Funktionen $a(x, t)$, $b(x, t)$ sowie $A(x, t)$ und $B(x, t)$ explizit auszuschreiben. Betrachten wir erneut zunächst den ersten Term in (A.31):

$$\begin{aligned} \int a^4 A^4 dt &= \int \cos^4(k_1 x - \omega t) \cdot A^4 dt \\ &= \int \frac{1}{8} [3 + 4 \cos(2k_1 x - 2\omega t) + \cos(4k_1 x - 4\omega t)] \cdot A^4 dt \\ &= \underbrace{\frac{3}{8} \int A^4 dt}_{\approx \frac{3}{8} N} + \underbrace{\frac{1}{2} \int \cos(2k_1 x - 2\omega t) \cdot A^4 dt}_{\approx 0} + \underbrace{\frac{1}{8} \int \cos(4k_1 x - 4\omega t) \cdot A^4 dt}_{\approx 0} \quad (\text{A.32}) \\ &= \frac{3}{8} N. \end{aligned}$$

Die Terme, in denen der Kosinus unter dem Integral steht, mitteln sich über die Pulsdauer heraus, wenn die Pulsdauer hinreichend groß gegenüber der Periodendauer ist. Dies ist

bei den hier betrachteten Pulsen immer der Fall. Analog gilt für den letzten Term in (A.31):

$$\int b^4 B^4 dt = \frac{3}{8} N D^4(x). \quad (\text{A.33})$$

Betrachten wir nun den zweiten Term in (A.31):

$$\begin{aligned} 4 \int a^3 b A^3 B dt &= 4 \int \cos^3(k_1 x - \omega t) \cdot \cos(k_2 x - \omega t + \delta) \cdot A^3 B dt \\ &= 4 \int \frac{1}{4} [3 \cos(k_1 x - \omega t) + \cos(3k_1 x - 3\omega t)] \cdot \cos(k_2 x - \omega t + \delta) \cdot A^3 B dt. \end{aligned} \quad (\text{A.34})$$

Es gilt:

$$\cos y \cdot \cos z = \frac{1}{2} [\cos(y+z) + \cos(y-z)]. \quad (\text{A.35})$$

Wendet man (A.35) auf den ersten Term der ausmultiplizierten Klammer in (A.34) an, ergibt sich:

$$\begin{aligned} &\cos(k_1 x - \omega t) \cdot \cos(k_2 x - \omega t + \delta) \\ &= \frac{1}{2} \left[\cos((k_1 + k_2)x - 2\omega t + \delta) + \underbrace{\cos((k_1 - k_2)x - \delta)}_{\cos(\Delta k \cdot x + \delta)} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.36})$$

Der zweite Term in (A.36) enthält keine Zeitabhängigkeit mehr und kann daher vor das Integral gezogen werden. Bei allen weiteren Termen von (A.34) bleibt eine Kosinusfunktion mit zeitabhängiger Phase unter dem Integral erhalten. Diese Terme mitteln sich daher bei der Integration über die Pulsdauer heraus. Es gilt also:

$$4 \int a^3 b A^3 B dt = 4 \cdot \frac{3}{8} \cos(\Delta k \cdot x - \delta) \int A^3 B dt = 4 \cdot \frac{3}{8} N \cdot \cos(\Delta k \cdot x + \delta) \cdot D(x) P^{3/4}(x) \quad (\text{A.37})$$

Analog gilt wieder für den vierten Term:

$$4 \int a b^3 A B^3 dt = 4 \cdot \frac{3}{8} N \cdot \cos(\Delta k \cdot x + \delta) \cdot D^3(x) P^{3/4}(x) \quad (\text{A.38})$$

Für die Berechnung des dritten Terms in (A.31) betrachten wir das Produkt

$$a^2(x, t) \cdot b^2(x, t) = \cos^2 y \cdot \cos^2 z = \frac{1}{4} (1 + \cos(2y) + \cos(2z) + \cos(2y) \cdot \cos(2z)) \quad (\text{A.39})$$

mit $y = k_1 x - \omega t$ und $z = k_2 x - \omega t + \delta$. Als einzige Terme ohne zeitabhängige Phase (deren Integral über die Pulsdauer nicht verschwindet) verbleiben $\frac{1}{4} + \frac{1}{8} \cos(2\Delta k \cdot x + 2\delta)$, also:

$$\begin{aligned} 6 \int a^2 b^2 A^2 B^2 dt &= 6 \cdot \left[\frac{1}{4} + \frac{1}{8} \cos(2\Delta k \cdot x + 2\delta) \right] \int A^2 B^2 dt \\ &= 6 \cdot \frac{3}{8} N \cdot \left[\frac{2}{3} + \frac{1}{3} \cos(2\Delta k \cdot x + 2\delta) \right] \cdot D^2(x) P(x) \end{aligned} \quad (\text{A.40})$$

Wir schreiben nun abschließend (gemeinsam mit den schon bekannten Funktionen (A.19), (A.20) und (A.21)):

$$\tilde{N} = \frac{3}{8} N = \frac{3}{8} \sqrt{2\pi}\sigma/2 \quad \text{Normierung} \quad (\text{A.41})$$

$$D(x) = \beta \cdot \exp(-k_2''x) \quad \text{Amplitudenverhältnis} \quad (\text{A.42})$$

$$P(x) = \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\tau}{\sigma}\right)^2\right] \quad \text{Gauß-Kurven-Form} \quad (\text{A.43})$$

$$\varphi(x) = \Delta k \cdot x + \delta \quad \text{Phasenfunktion} \quad (\text{A.44})$$

und damit:

$$\boxed{\frac{Y(x)}{\tilde{N}} = 1 + 4 \cos(\varphi(x)) D(x) P^{3/4}(x) + \left(4 + 2 \cos(2\varphi(x))\right) \cdot D^2(x) P(x) + 4 \cos(\varphi(x)) D^3(x) P^{3/4}(x) + D^4(x).} \quad (\text{A.45})$$

B GLEICHUNGEN UND NEBENRECHNUNGEN ZUR ELEKTRODYNAMIK

B.1 MAXWELLGLEICHUNGEN IM SI

Die Maxwellgleichungen im Vakuum lauten:

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{E} &= \frac{\rho}{\varepsilon_0} & \nabla \times \mathbf{E} &= -\dot{\mathbf{B}} \\ \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 & \nabla \times \mathbf{B} &= \frac{1}{c^2} \dot{\mathbf{E}} + \mu_0 \mathbf{j} \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

Die Maxwellgleichungen in Materie hingegen lauten:

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{D} &= \rho_{\text{ext}} & \nabla \times \mathbf{E} &= -\dot{\mathbf{B}} \\ \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 & \nabla \times \mathbf{H} &= \dot{\mathbf{D}} + \mathbf{j}_{\text{ext}} \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

mit

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E} \quad \mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0 \mu} \quad (\text{B.3})$$

B.2 STETIGKEITSBEDINGUNGEN AN GRENZFLÄCHEN

Die Tangentialkomponenten von \mathbf{E} und \mathbf{H} sind stetig, ebenso die Normalkomponenten von \mathbf{D} und \mathbf{B} :

$$\begin{aligned} E_{\parallel 1} &= E_{\parallel 2} & H_{\parallel 1} &= H_{\parallel 2} \\ D_{\perp 1} &= D_{\perp 2} & B_{\perp 1} &= B_{\perp 2} \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Für p-polarisiertes Licht ist

$$\begin{aligned} E_i \cos \alpha - E_r \cos \alpha &= E_t \cos \beta \\ \varepsilon_1 E_i \sin \alpha + \varepsilon_1 E_r \sin \alpha &= \varepsilon_2 E_t \sin \beta. \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

Auflösung von (B.5) führt auf den *Reflexions-* sowie den *Transmissionskoeffizienten* für p-polarisiertes Licht

$$\begin{aligned} r^{\text{p}} &= \frac{E_r}{E_i} = \frac{n_2 \cos \alpha - n_1 \cos \beta}{n_2 \cos \alpha + n_1 \cos \beta} \\ t^{\text{p}} &= \frac{E_t}{E_i} = \frac{2n_1 \cos \alpha}{n_2 \cos \alpha + n_1 \cos \beta}. \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

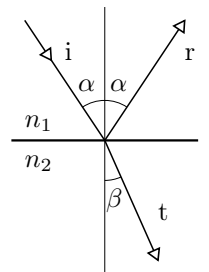


Abb. B.1: Reflexion und Brechung

Für s-polarisiertes Licht nutzt man die Stetigkeitsbedingungen für das Magnetfeld und ferner $\mathbf{k} \times \mathbf{E} = \omega \mu_0 \mu \mathbf{H}$, was für harmonische Wellen aus den Maxwellgleichungen (B.2) folgt. Es ergibt sich:

$$\begin{aligned} E_i \cos \alpha - E_r \cos \alpha &= E_t \cos \beta \\ E_i \sin \alpha + E_r \sin \alpha &= E_t \sin \beta. \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

die Auflösung von (B.7) wiederum führt auf den Reflexions- und Transmissionskoeffizienten für s-polarisiertes Licht

$$\begin{aligned} r^s &= \frac{n_1 \cos \alpha - n_2 \cos \beta}{n_1 \cos \alpha + n_2 \cos \beta} \\ t^s &= \frac{2n_1 \cos \alpha}{n_1 \cos \alpha + n_2 \cos \beta}. \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

B.3 SPP-POYNTING-VEKTOR

Der Poynting-Vektor der Energiestromdichte ist mit

$$\mathbf{S} = \mathbf{E} \times \mathbf{H} \quad (\text{B.9})$$

gegeben. Das SPP ist eine TM-Welle, daher gilt:

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ 0 \\ E_z \end{pmatrix}; \quad \mathbf{H} = \begin{pmatrix} 0 \\ H_y \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{B.10})$$

Aus der Maxwellgleichung für die Rotation ($\nabla \times \mathbf{H} = \dot{\mathbf{D}} + \mathbf{j}_{\text{ext}}$) (B.1) ohne externe Ströme ($\mathbf{j}_{\text{ext}} = 0$) und unter Annahme harmonischer Zeitentwicklung $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r})e^{-i\omega t}$ folgt:

$$\begin{pmatrix} -\partial H_y / \partial z \\ 0 \\ \partial H_y / \partial x \end{pmatrix} = -i\omega \varepsilon_0 \varepsilon \begin{pmatrix} E_x \\ 0 \\ E_z \end{pmatrix}. \quad (\text{B.11})$$

Jetzt machen wir den Ansatz

$$H_y = H_0 e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)} \quad \text{mit} \quad \mathbf{k}\mathbf{r} = k_{\parallel}x + k_{\perp}z. \quad (\text{B.12})$$

Die $k_{\parallel, \perp}$ sind bekannt, vergleiche (2.8), (2.10). Im Dielektrikum ergibt sich

$$\begin{aligned} E_{x,D} &= \frac{k_{\perp,D}}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_D} H_y = \frac{n_{\perp,D}}{\varepsilon_D} E_0 = \frac{E_0}{\sqrt{\varepsilon_D + \varepsilon_M}} \\ E_{z,D} &= \frac{-n^{\text{SPP}}}{\varepsilon_D} E_0 \end{aligned} \quad (\text{B.13})$$

wobei $k = n \cdot \omega/c$ und $E_0 = H_y/c\epsilon_0$ genutzt wurde. Im Metall dagegen ist

$$\begin{aligned} E_{x,M} &= \frac{n_{\perp,M}}{\epsilon_M} E_0 = \frac{E_0}{\sqrt{\epsilon_D + \epsilon_M}} \\ E_{z,M} &= \frac{-n_{\text{SPP}}}{\epsilon_M} E_0 \end{aligned} \quad (\text{B.14})$$

Wegen $n_{\perp,D}/\epsilon_D = 1/\sqrt{\epsilon_D + \epsilon_M} = n_{\perp,M}/\epsilon_M$ ist E_x an der Oberfläche stetig. Nachdem jetzt alle Felder bekannt sind, kann der Poynting-Vektor berechnet werden. Nach wie vor gilt:

$$\mathbf{S} = \mathbf{E} \times \mathbf{H} = \begin{pmatrix} -E_z H_y \\ 0 \\ E_x H_y \end{pmatrix}. \quad (\text{B.15})$$

Einsetzen von (B.13), (B.14) in (B.15) liefert die jeweiligen Anteile des Poynting-Vektors in den beiden Halbräumen:

$$\begin{aligned} S_{x,D} &= \frac{n_{\text{SPP}}}{\epsilon_D} E_0 \cdot H_y \quad ; \quad S_{z,D} = \frac{E_0}{\sqrt{\epsilon_D + \epsilon_M}} \cdot H_y \\ S_{x,M} &= \frac{n_{\text{SPP}}}{\epsilon_M} E_0 \cdot H_y \quad ; \quad S_{z,M} = \frac{E_0}{\sqrt{\epsilon_D + \epsilon_M}} \cdot H_y. \end{aligned} \quad (\text{B.16})$$

Vor der Multiplikation muss die bisher implizit angenommene Realteilbildung durchgeführt werden. Mit $S_0 = \frac{1}{2} \frac{H_0^2}{c\epsilon_0}$ ergibt sich für den zeitlich gemittelten Anteil des Poynting-Vektors in Ausbreitungs- (x -) Richtung

$$\langle S_x(x, z) \rangle = S_0 e^{-2k''_{\text{SPP}} x} \cdot \begin{cases} e^{-2k''_{\perp,D} z} \cdot \text{Re}\left(\frac{n_{\text{SPP}}}{\epsilon_D}\right) & \text{im Dielektrikum} \\ e^{-2k''_{\perp,M} z} \cdot \text{Re}\left(\frac{n_{\text{SPP}}}{\epsilon_M}\right) & \text{im Metall.} \end{cases} \quad (\text{B.17})$$

Für eine Gold-Vakuum-Grenzfläche bei 800 nm Vakuumwellenlänge ist $\text{Re}\left(\frac{n_{\text{SPP}}}{\epsilon_D}\right) = 1,02$ und $\text{Re}\left(\frac{n_{\text{SPP}}}{\epsilon_M}\right) = -0,0407$. Der Energiestrom im Metall ist somit deutlich kleiner als im Vakuum und außerdem gegenläufig, d.h. entgegen der Ausbreitungsrichtung. Berücksichtigt man zusätzlich die unterschiedlichen Eindringtiefen $\hat{z} = \frac{1}{2 \text{Im}(k_{\perp})}$ von 312 nm in Vakuum gegen 12,5 nm in Gold, dann ergibt sich die gesamte, also über den jeweiligen Halbraum integrierte Energiestromdichte zu

$$\int \langle S_x \rangle dz = S_0 e^{-2k''_{\text{SPP}} x} \cdot \begin{cases} 319 \text{ nm} & \text{im Dielektrikum} \\ -0,5 \text{ nm} & \text{im Metall.} \end{cases} \quad (\text{B.18})$$

Der Anteil des Energiestroms im Metall ist somit vernachlässigbar klein gegen den im Vakuum.

LITERATUR

- [1] T. Fließbach, *Elektrodynamik*, 5. Aufl. (Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, 2008).
- [2] T. H. Maiman, „Stimulated Optical Radiation in Ruby“, *Nature* **187**, 493 (1960).
- [3] G. A. Reider, *Photonik, Eine Einführung in die Grundlagen*, 2. Aufl. (Springer-Verlag, Wien, 2005).
- [4] G. Lifante, *Integrated Photonics: Fundamentals* (John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK, 2003).
- [5] W. L. Barnes et al., „Surface plasmon subwavelength optics“, *Nature* **424**, 824 (2003).
- [6] E. Ozbay, „Plasmonics: Merging Photonics and Electronics at Nanoscale Dimensions“, *Science* **311**, 189 (2006).
- [7] D. K. Gramotnev und S. I. Bozhevolnyi, „Plasmonics beyond the diffraction limit“, *Nat. Photonics* **4**, 83 (2010).
- [8] M. L. Brongersma und V. M. Shalaev, „The Case for Plasmonics“, *Science* **328**, 440 (2010).
- [9] M. Kauranen und A. V. Zayats, „Nonlinear plasmonics“, *Nat. Photonics* **6**, 737 (2012).
- [10] R. B. M. Schasfoort und A. J. Tudos, Hrsg., *Handbook of Surface Plasmon Resonance* (The Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK, 2008).
- [11] H. A. Atwater, „The Promise of Plasmonics“, *Sci. Am.* **296**, 56 (2007).
- [12] D. W. Pohl et al., „Optical stethoscopy: Image recording with resolution $\lambda/20$ “, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 651 (1984).
- [13] W. Swiech et al., „Recent progress in photoemission microscopy with emphasis on chemical and magnetic sensitivity“, *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **84**, 171 (1997).
- [14] M. Cinchetti et al., „Photoemission Electron Microscopy as a Tool for the Investigation of Optical Near Fields“, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 047601 (2005).
- [15] E. Bauer, „LEEM and UHV-PEEM: A retrospective“, *Ultramicroscopy* **119**, 18 (2012).

- [16] E. Bauer, *Surface Microscopy with Low Energy Electrons* (Springer US, New York, NY, USA, 2014).
- [17] A. Taflove, „Application of the Finite-Difference Time-Domain Method to Sinusoidal Steady-State Electromagnetic-Penetration Problems“, *IEEE Trans. Electromagn. Compat.* **EMC-22**, 191 (1980).
- [18] E. M. Purcell und C. R. Pennypacker, „Scattering and Absorption of Light by Nonspherical Dielectric Grains“, *Astrophys. J.* **186**, 705 (1973).
- [19] M. Aeschlimann und W. Pfeiffer, *Schwerpunktprogramm 1391: Ultrafast Nanooptics*, Projektantrag.
- [20] F.-J. Meyer zu Heringdorf et al., „Femtosecond photoemission microscopy“, *Surf. Sci.* **601**, 4700 (2007).
- [21] A. Kubo et al., „Femtosecond Microscopy of Surface Plasmon Polariton Wave Packet Evolution at the Silver/Vacuum Interface“, *Nano Lett.* **7**, 470 (2007).
- [22] M. Bauer et al., „Phase propagation of localized surface plasmons probed by time-resolved photoemission electron microscopy“, *Appl. Phys. A* **88**, 473 (2007).
- [23] M. Bauer, *Femtosecond dynamics and control of metal-organic hybrid plasmonic systems*, Projektantrag innerhalb des SPP 1391.
- [24] C. Lemke et al., „Mapping surface plasmon polariton propagation via counter-propagating light pulses“, *Opt. Express* **20**, 12877 (2012).
- [25] T. Leißner et al., „Surface Plasmon Polariton Emission Prompted by Organic Nanofibers on Thin Gold Films“, *Plasmonics* **7**, 253 (2012).
- [26] C. Lemke et al., „Spatiotemporal Characterization of SPP Pulse Propagation in Two-Dimensional Plasmonic Focusing Devices“, *Nano Lett.* **13**, 1053 (2013).
- [27] T. Leißner et al., „Surface plasmon polariton propagation in organic nanofiber based plasmonic waveguides“, *Opt. Express* **21**, 8251 (2013).
- [28] T. Leißner et al., „Morphological Tuning of the Plasmon Dispersion Relation in Dielectric-Loaded Nanofiber Waveguides“, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 046802 (2013).
- [29] C. Lemke et al., „Measurement of surface plasmon autocorrelation functions“, *Opt. Express* **21**, 27392 (2013).
- [30] C. Lemke et al., „The Interplay between Localized and Propagating Plasmonic Excitations Tracked in Space and Time“, *Nano Lett.* **14**, 2431 (2014).
- [31] C. Lemke et al., „The complex dispersion relation of surface plasmon polaritons at gold/*para*-hexaphenylene interfaces“, *Appl. Phys. B* **116**, 585 (2014).
- [32] A. Klick et al., „Detection and characterization of attenuated multimode waveguiding in SiO₂ slabs using photoemission electron microscopy“, *Phys. Rev. B* **98**, 085128 (2018).

-
- [33] A. Klick et al., „Amplitude and phase of surface plasmon polaritons excited at a step edge“, *Appl. Phys. B* **122**, 79 (2016).
- [34] A. Klick et al., „Femtosecond time-resolved photoemission electron microscopy operated at sample illumination from the rear side“, *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 053704 (2019).
- [35] P. Lalanne et al., „A microscopic view of the electromagnetic properties of sub- λ metallic surfaces“, *Surf. Sci. Rep.* **64**, 453 (2009).
- [36] C. H. Gan et al., „Optical quasicylindrical waves at dielectric interfaces“, *Phys. Rev. B* **83**, 085422 (2011).
- [37] N. W. Ashcroft und N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Brooks/Cole Thomson Learning, Singapur [u.a.], 2006).
- [38] M. P. Marder, *Condensed Matter Physics*, 2. Aufl. (John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, NJ, USA, 2010).
- [39] S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications* (Springer US, New York, NY, USA, 2007).
- [40] M. Cardona, „Fresnel Reflection and Surface Plasmons“, *Am. J. Phys.* **39**, 1277 (1971).
- [41] P. B. Johnson und R. W. Christy, „Optical constants of the noble metals“, *Phys. Rev. B* **6**, 4370 (1972).
- [42] F. Träger, Hrsg., *Springer Handbook of Lasers and Optics*, 2. Aufl. (Springer Science & Business Media, 2012, Luxemburg).
- [43] R. M. Tromp et al., „A new aberration-corrected, energy-filtered LEEM/PEEM instrument. I. Principles and design“, *Ultramicroscopy* **110**, 852 (2010).
- [44] P. A. Anderson, „Work Function of Gold“, *Phys. Rev.* **115**, 553 (1959).
- [45] J. C. Rivière, „THE WORK FUNCTION OF GOLD“, *Appl. Phys. Lett.* **8**, 172 (1966).
- [46] W. Sachtler et al., „The work function of gold“, *Surf. Sci.* **5**, 221 (1966).
- [47] S. Trasatti, „Operative (electrochemical) work function of gold“, *J. Electroanal. Chem. Interfacial Electrochem.* **54**, 19 (1974).
- [48] M. Großmann, *Schematische Zeichnung PEEM*, Private Kommunikation.
- [49] *6th FOCUS PEEM Workshop*, Hünstetten: Focus GmbH, 2015.
- [50] *Instruction Manual Focus IS-PEEM*, Version 1.1 (Focus/Omicron, Taunusstein, 2002).
- [51] C. Wiemann, „Zeitaufgelöste Photoelektronen-Emissionsmikroskopie zur Untersuchung elektronischer Anregungen an nanostrukturierten Oberflächen“, Dissertation (Technische Universität Kaiserslautern, 2006).

- [52] *Tsunami, Mode-locked Ti:sapphire Laser*, User's Manual, Spectra-Physics (Santa Clara, CA, USA, 2002).
- [53] *Model TS, Ti:Sapphire Laser Kit*, Instruction Manual, Kapteyn-Murnane Laboratories Inc. (Boulder, CO, USA, 2010).
- [54] C. Lemke, „Orts- und zeitaufgelöste Charakterisierung ultrakurzer Wellenpakete in plasmonischen Nanostrukturen“, Dissertation (Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, 2014).
- [55] L. F. Kadem, „Nanostructured and Photoswitchable Biointerfaces for Controlling Cell Adhesion“, Dissertation (Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, 2016).
- [56] R. Williams, „Photoemission of Electrons from Silicon into Silicon Dioxide“, *Phys. Rev.* **140**, A569 (1965).
- [57] A. M. Goodman, „Internal Photoemission as a Tool for the Study of Insulators“, *J. Electrochem. Soc.* **115**, 276C (1968).
- [58] R. Yan et al., „Determination of graphene work function and graphene-insulator-semiconductor band alignment by internal photoemission spectroscopy“, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 022105 (2012).
- [59] A. M. Goodman, „Photoemission of Holes from Silicon into Silicon Dioxide“, *Phys. Rev.* **152**, 780 (1966).
- [60] S. Schäfer et al., „Laser-Induced Charge Separation in CdSe Nanowires“, *Nano Lett.* **11**, 2672 (2011).
- [61] S. Schäfer et al., „Charge separation in CdSe/CdTe hetero-nanowires measured by electrostatic force microscopy“, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 022110 (2012).
- [62] Z. Fei et al., „Nano-optical imaging of WSe₂ waveguide modes revealing light-exciton interactions“, *Phys. Rev. B* **94**, 081402 (2016).
- [63] O. Schmidt et al., „Time-resolved two photon photoemission electron microscopy“, *Appl. Phys. B* **74**, 223 (2002).
- [64] A. Kubo et al., „Femtosecond Imaging of Surface Plasmon Dynamics in a Nanostructured Silver Film“, *Nano Lett.* **5**, 1123 (2005).
- [65] P. Kahl et al., „Normal-Incidence Photoemission Electron Microscopy (NI-PEEM) for Imaging Surface Plasmon Polaritons“, *Plasmonics* **9**, 1401 (2014).
- [66] Y. Gong et al., „Ultrafast Imaging of Surface Plasmons Propagating on a Gold Surface“, *Nano Lett.* **15**, 3472 (2015).
- [67] M. Shibuta et al., „Imaging and Characterizing Long-Range Surface Plasmon Polaritons Propagating in a Submillimeter Scale by Two-Color Two-Photon Photoelectron Emission Microscopy“, *Plasmonics* **8**, 1411 (2013).

-
- [68] B. Frank et al., „Short-range surface plasmonics: Localized electron emission dynamics from a 60-nm spot on an atomically flat single-crystalline gold surface“, *Sci. Adv.* **3**, e1700721 (2017).
- [69] M. Großmann et al., „Light-Triggered Control of Plasmonic Refraction and Group Delay by Photochromic Molecular Switches“, *ACS Photonics* **2**, 1327 (2015).
- [70] M. Dabrowski et al., „Multiphoton Photoemission Microscopy of High-Order Plasmonic Resonances at the Ag/Vacuum and Ag/Si Interfaces of Epitaxial Silver Nanowires“, *ACS Photonics* **3**, 1704 (2016).
- [71] G. Spektor et al., „Revealing the subfemtosecond dynamics of orbital angular momentum in nanoplasmonic vortices“, *Science* **355**, 1187 (2017).
- [72] J. P. S. Fitzgerald et al., „Photonic near-field imaging in multiphoton photoemission electron microscopy“, *Phys. Rev. B* **87**, 205419 (2013).
- [73] R. C. Word et al., „Direct coupling of photonic modes and surface plasmon polaritons observed in 2-photon PEEM“, *Opt. Express* **21**, 30507 (2013).
- [74] T. Stenmark et al., „Determination of the Goos-Hänchen shift in dielectric waveguides via photo emission electron microscopy in the visible spectrum“, *Opt. Express* **24**, 3839 (2016).
- [75] R. C. Word und R. Könenkamp, „Mode structure of planar optical antennas on dielectric substrates“, *Opt. Express* **24**, 18727 (2016).
- [76] J. P. S. Fitzgerald et al., „Subwavelength visualization of light in thin film waveguides with photoelectrons“, *Phys. Rev. B* **89**, 195129 (2014).
- [77] M. U. Wehner et al., „Scanning interferometer stabilized by use of Pancharatnam’s phase“, *Opt. Lett.* **22**, 1455 (1997).
- [78] L. F. Kadem et al., „Controlled Self-Assembly of Hexagonal Nanoparticle Patterns on Nanotopographies“, *Langmuir* **31**, 9261 (2015).
- [79] P. Welch, „The use of fast Fourier transform for the estimation of power spectra: A method based on time averaging over short, modified periodograms“, *IEEE Trans. Audio Electroacoust.* **15**, 70 (1967).
- [80] W. Dai und C. M. Soukoulis, „Theoretical analysis of the surface wave along a metal-dielectric interface“, *Phys. Rev. B* **80**, 155407 (2009).
- [81] H. W. Kihm et al., „Separation of surface plasmon polariton from nonconfined cylindrical wave launched from single slits“, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 141102 (2009).
- [82] H. Liu und P. Lalanne, „Light scattering by metallic surfaces with subwavelength patterns“, *Phys. Rev. B* **82**, 115418 (2010).
- [83] A. D. Humphrey und W. L. Barnes, „Plasmonic surface lattice resonances on arrays of different lattice symmetry“, *Phys. Rev. B* **90**, 075404 (2014).

- [84] R. L. Olmon et al., „Optical dielectric function of gold“, *Phys. Rev. B* **86**, 235147 (2012).
- [85] L. Zhang et al., „Imaging of surface plasmon polariton fields excited at a nanometer-scale slit“, *Phys. Rev. B* **84**, 245442 (2011).
- [86] N. Liu et al., „Individual Nanoantennas Loaded with Three-Dimensional Optical Nanocircuits“, *Nano Lett.* **13**, 142 (2013).
- [87] N. J. Halas, „Plasmonics: An emerging field fostered by nano letters“, *Nano Lett.* **10**, 3816 (2010).
- [88] S. T. Koev et al., „An Efficient Large-Area Grating Coupler for Surface Plasmon Polaritons“, *Plasmonics* **7**, 269 (2012).
- [89] F. López-Tejeira et al., „Efficient unidirectional nanoslit couplers for surface plasmons“, *Nat. Phys.* **3**, 324 (2007).
- [90] H. Ditlbacher et al., „Fluorescence imaging of surface plasmon fields“, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 404 (2002).
- [91] H. Ditlbacher et al., „Efficiency of local light-plasmon coupling“, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3665 (2003).
- [92] I. P. Radko et al., „Efficiency of local surface plasmon polariton excitation on ridges“, *Phys. Rev. B* **78**, 115115 (2008).
- [93] A.-L. Baudrion et al., „Coupling efficiency of light to surface plasmon polariton for single subwavelength holes in a gold film“, *Opt. Express* **16**, 3420 (2008).
- [94] E. Devaux et al., „Launching and decoupling surface plasmons via micro-gratings“, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 4936 (2003).
- [95] V. E. Ferry et al., „Plasmonic Nanostructure Design for Efficient Light Coupling into Solar Cells“, *Nano Lett.* **8**, 4391 (2008).
- [96] P. Lalanne et al., „Theory of Surface Plasmon Generation at Nanoslit Apertures“, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 263902 (2005).
- [97] P. Lalanne und J. P. Hugonin, „Interaction between optical nano-objects at metallo-dielectric interfaces“, *Nat. Phys.* **2**, 551 (2006).
- [98] P. Lalanne et al., „Approximate model for surface-plasmon generation at slit apertures“, *J. Opt. Soc. Am. A* **23**, 1608 (2006).
- [99] G. Gay et al., „The optical response of nanostructured surfaces and the composite diffracted evanescent wave model“, *Nat. Phys.* **2**, 262 (2006).
- [100] O. Janssen et al., „On the phase of plasmons excited by slits in a metal film“, *Opt. Express* **14**, 11823 (2006).
- [101] J. Weiner, „Phase shifts and interference in surface plasmon polariton waves“, *Opt. Express* **16**, 950 (2008).

-
- [102] J. P. B. Mueller und F. Capasso, „Asymmetric surface plasmon polariton emission by a dipole emitter near a metal surface“, *Phys. Rev. B* **88**, 121410(R) (2013).
- [103] S. de la Cruz et al., „Compact surface structures for the efficient excitation of surface plasmon-polaritons“, *Phys. status solidi b* **249**, 1178 (2012).
- [104] L. Douillard et al., „Short Range Plasmon Resonators Probed by Photoemission Electron Microscopy“, *Nano Lett.* **8**, 935 (2008).
- [105] C. I. Valencia et al., „Second-harmonic generation in the scattering of light by two-dimensional particles“, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 2150 (2003).
- [106] A. Maradudin et al., „Enhanced backscattering of light from a random grating“, *Ann. Phys.* **203**, 255 (1990).
- [107] J. Sánchez-Gil et al., „Near-field electromagnetic wave scattering from random self-affine fractal metal surfaces: Spectral dependence of local field enhancements and their statistics in connection with surface-enhanced Raman scattering“, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **62**, 10515 (2000).
- [108] P. O. Gartland et al., „Surface-Effect Characteristics of Photoemission from Clean Copper-Crystal Surfaces“, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 916 (1973).
- [109] P. Feibelman, „Surface electromagnetic fields“, *Prog. Surf. Sci.* **12**, 287 (1982).
- [110] C. F. Bohren und D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Wiley-VCH Verlag GmbH, Weinheim, Germany, 1998).
- [111] P. Klaer et al., „Polarization dependence of plasmonic near-field enhanced photoemission from cross antennas“, *Appl. Phys. B* **122**, 136 (2016).
- [112] N. M. Buckanie, „Anregung und Propagation von Oberflächenplasmonen in Ultrakurzzeit- Photoemissionselektronenmikroskopie“, Dissertation (Duisburg-Essen, 2010).
- [113] T. Leißner, „Plasmonische Wellenleitung an Gold/*para*-Hexaphenyl-Grenzflächen“, Dissertation (Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, 2013).
- [114] G. Razinskas et al., „Normal-Incidence PEEM Imaging of Propagating Modes in a Plasmonic Nanocircuit“, *Nano Lett.* **16**, 6832 (2016).
- [115] D. Podbiel et al., „Imaging the Nonlinear Plasmoemission Dynamics of Electrons from Strong Plasmonic Fields“, *Nano Lett.* **17**, 6569 (2017).
- [116] M. Aeschlimann et al., „Adaptive subwavelength control of nano-optical fields“, *Nature* **446**, 301 (2007).
- [117] K. Fukumoto et al., „Femtosecond time-resolved photoemission electron microscopy for spatiotemporal imaging of photogenerated carrier dynamics in semiconductors“, *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 083705 (2014).

- [118] K. Fukumoto et al., „Direct imaging of electron recombination and transport on a semiconductor surface by femtosecond time-resolved photoemission electron microscopy“, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 053117 (2014).
- [119] A. Oelsner et al., „Time- and energy resolved photoemission electron microscopy-imaging of photoelectron time-of-flight analysis by means of pulsed excitations“, *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **178-179**, 317 (2010).
- [120] P. Kahl et al., „Direct Observation of Surface Plasmon Polariton Propagation and Interference by Time-Resolved Imaging in Normal-Incidence Two Photon Photoemission Microscopy“, *Plasmonics* **13**, 239 (2018).
- [121] R. L. Fork et al., „Negative dispersion using pairs of prisms“, *Opt. Lett.* **9**, 150 (1984).
- [122] A. Ovsianikov et al., „Ultra-low shrinkage hybrid photosensitive material for two-photon polymerization microfabrication“, *ACS Nano* **2**, 2257 (2008).
- [123] T. Birr et al., „Ultrafast surface plasmon-polariton logic gates and half-adder“, *Opt. Express* **23**, 31755 (2015).
- [124] T. Birr et al., „Ultrafast surface plasmon-polariton interference and switching in multiple crossing dielectric waveguides“, *Appl. Phys. B* **122**, 164 (2016).
- [125] J. C. Love et al., „Microscope projection photolithography for rapid prototyping of masters with micron-scale features for use in soft lithography“, *Langmuir* **17**, 6005 (2001).
- [126] R. Orghici et al., „All-polymer arrayed waveguide grating at 850 nm: design, fabrication, and characterization“, *Opt. Lett.* **41**, 3940 (2016).
- [127] Z. Bor, „Distortion of femtosecond laser pulses in lenses“, *Opt. Lett.* **14**, 119 (1989).
- [128] M. Bauer et al., „Hot electron lifetimes in metals probed by time-resolved two-photon photoemission“, *Prog. Surf. Sci.* **90**, 319 (2015).
- [129] R. J. Moerland und J. P. Hoogenboom, „Subnanometer-accuracy optical distance ruler based on fluorescence quenching by transparent conductors“, *Optica* **3**, 112 (2016).
- [130] *Optical Glass Data Sheets*, SCHOTT North America, Inc., 2017.
- [131] D. Podbiel et al., „Analysis of the contrast in normal-incidence surface plasmon photoemission microscopy in a pump–probe experiment with adjustable polarization“, *Appl. Phys. B* **122**, 90 (2016).
- [132] I. Tamm und S. Schubin, „Zur Theorie des Photoeffektes an Metallen“, *Z. Physik* **68**, 97 (1931).

- [133] J. G. Endriz und W. E. Spicer, „Study of Aluminum Films. II. Photoemission Studies of Surface-Plasmon Oscillations on Controlled-Roughness Films“, *Phys. Rev. B* **4**, 4159 (1971).
- [134] P. Dvořák et al., „Control and near-field detection of surface plasmon interference patterns“, *Nano Lett.* **13**, 2558 (2013).
- [135] Z. Liu et al., „Surface evolution and dynamic scaling of sputter-deposited Al thin films on Ti(100) substrates“, *Appl. Surf. Sci.* **226**, 371 (2004).
- [136] J. Yang et al., „Effect of substrate on surface morphology evolution of Cu thin films deposited by magnetron sputtering“, *Surf. Coatings Technol.* **201**, 5574 (2007).

DANKSAGUNG

Alles begann mit meiner Diplomarbeit im PEEM-Labor der Arbeitsgruppe „Ultrakurzzeit-Dynamik“. Ich war begeistert vom freundschaftlichen Umgang, der flachen Hierarchie und der produktiven Atmosphäre in der AG. Daher zögerte ich nicht lange, als Prof. Dr. Michael Bauer mir ein Dissertationsprojekt in Aussicht stellte, und sagte sofort zu. Nach einigen Umwegen u.a. über Halbleiter-Nanodrähte, langem Brüten über Datenauswertung und Interpretation, zwischen Euphorie und Ernüchterung, Zweifel und Motivation, nach Tagen und Wochen im Labor, langen Schreibnächten mit Schokorosinen, mein treuer kleiner Hund immer an meiner Seite, nach dem Genuss von viel Kaffee (stark, heiß, schwarz und vor allem lecker!) sowie dem ein oder anderen Gerstenkaltgetränk und einige graue Haare später ist dieses Projekt nun endlich abgeschlossen. Diese Dissertation ist dabei nicht alleine in einem dunklen Kämmerlein entstanden. Vielmehr war eine große Anzahl von Menschen an dem Gelingen dieses Projektes beteiligt, denen ich an dieser Stelle meinen Dank aussprechen möchte.

Meinem Doktorvater Prof. Dr. Michael Bauer danke ich herzlich für die Gelegenheit diese Dissertation durchzuführen, das heißt Forschung zu betreiben, die Ergebnisse meiner Arbeit auf diversen Konferenzen vorzustellen und mich auf Workshops und Summer Schools weiter zu bilden. Die kompetente Betreuung sowie seine menschliche und unkomplizierte Art, Probleme anzugehen, weiß ich sehr zu schätzen.

Mein nächster Dank gilt den ehemaligen Doktoranden Dr. Christoph Lemke und Dr. Till Leißner, die mich und meinen Ko-Diplomanden Jörn Willers Radke in die Geheimnisse der Plasmonik und des zeitaufgelösten PEEM einweihten. In mühsamer Arbeit und mit ungebrochener Begeisterung haben die beiden das Messsystem in Betrieb genommen und produktiv gemacht. Als ich mit meiner Diplomarbeit anfang, lief eine wahre Publikationsmaschine. So fiel die Mehrheit von Tills und Christophs Veröffentlichungen in meine Zeit als Diplomand und den Beginn meiner eigenen Doktorarbeit. Ganz ohne das in irgendeiner Form mit meiner eigenen Person in Zusammenhang bringen zu wollen, muss ich sagen: Das kann unmöglich Zufall sein!

Ein herzlicher Dank gilt meinen Kollegen aus dem PEEM-Labor, besonders meinem Laborpartner Malte Großmann, der sich mit mir die Betreuung des Experiments sowie diverser Master- und Bachelorstudenten teilte und mich in der Schreibphase durch Korrekturlesen unterstützte. Auch den von mir ganz oder teilweise betreuten Masterstudenten sei gedankt: Maria Beewen hat gemeinsam mit Malte die rückwärtige Einkopplungseinheit aufgebaut. René Wagner danke ich für die angenehme Zusammenarbeit und sein stoisches Gemüt, insbesondere im Umgang mit *Comsol*. Dennis Trautwein schließlich

hat die aktuell verwendete Messsoftware programmiert, die die Bedienung des PEEM immens erleichtert. Joost Jakobs danke ich für die Wartung der Geräte und sonstige größere oder kleinere Arbeiten im Labor. Es war eine Freude mit euch zu arbeiten!

Bei den Kooperationspartnern aus Sønderborg Dr. Jacek Fiutowski, Dr. Till Leißner und Dr. Jost Adam bedanke ich mich für das Bereitstellen der Proben und hilfreiche Diskussionen. Auch Dr. Antonio Malavé und Dr. Laith Kadem von der Technischen Fakultät danke ich für die Herstellung von Proben. Sergio de la Cruz und Eugenio Méndez aus Ensenada, Mexico danke ich für die Modellrechnungen zur Einkopplungseffizienz.

Darüber hinaus gilt mein Dank der gesamten Community aus dem Schwerpunktprogramm 1391, *Ultrafast Nanooptics*. Die vielen Konferenzen, Meetings und Seminare habe ich in angenehmster Erinnerung. Der Austausch mit anderen Nanooptikern hat mich stets aufs Neue motiviert. Hervorheben möchte ich Prof. Dr. Carsten Reinhardt. Er ist ein unerschöpflicher Quell von Fachwissen und Ideen, dem ich für viele hilfreiche Diskussionen danke.

Die oben erwähnte gute Stimmung in der Arbeitsgruppe wäre nicht möglich ohne die Menschen, die sie herbeiführen. In besonderem Maße haben sich Dr. Ankatrin Stange, Dr. Stephan Jauernik und Petra Hein um die zwischenmenschliche Seite während und nach der Arbeitszeit verdient gemacht. Stephan und Petra danke ich für das Korrekturlesen, hilfreiche Diskussionen und die kritische Hinterfragung der ersten Fassungen dieser Arbeit. Meinem guten Freund Stephan danke ich darüber hinaus für die wöchentlichen „Gruppensitzungen“ in der *Palenke* und die gemeinsam durchgestandenen letzten Etappen unserer Doktorarbeiten.

Ich danke ferner meinem Vater Hans Klick, der mich großzügig und auf unkomplizierte Weise während meines Studiums und darüber hinaus unterstützt hat, ohne dies jemals an Bedingungen zu knüpfen. Auch meiner Mutter Helga Schenk danke ich für ihre Hilfsbereitschaft und moralische Unterstützung. Beispielsweise ist sie im letzten Jahr einmal wöchentlich nach Kiel gefahren, um auf meine Tochter aufzupassen, damit ich diese Arbeit fertig stellen konnte.

Dank geht auch an die Bürogemeinschaft am Wilhelmplatz, die mich ausgesprochen freundlich aufgenommen hat und in der ich diese Arbeit in einer überaus konstruktiven Atmosphäre beendet habe.

Mein größter Dank gilt schließlich den wichtigsten Personen in meinem Leben, meiner eigenen kleinen Familie. Es geht jedes mal die Sonne auf, wenn ich meine Tochter Irma sehe. Auch die kleine Holly schafft es immer, mich aufzumuntern. Ein besonderer Dank gilt meiner Frau Steffi. Ich halte es nicht für selbstverständlich, dass du dich und deine Projekte hintangestellt hast, um mir die Beendigung dieser Arbeit zu ermöglichen. Ohne deine Unterstützung und Geduld wäre dies nicht möglich gewesen. Auch für hilfreiche Diskussionen, Korrekturlesen und konstruktive Kritik an den ersten Fassungen dieser Arbeit bin ich dankbar. Mein Leben mit euch zu teilen ist das größte Glück.

Diejenigen, die mir außerdem zur Seite standen und die ich versehentlich hier nicht erwähnt habe, bitte ich mir zu verzeihen und sich meines Dankes dennoch gewiss zu sein.

ERKLÄRUNG

Hiermit versichere ich die vorliegende Arbeit nach Inhalt und Form selbstständig (abgesehen von der Beratung durch meinen Betreuer) unter Einhaltung der Regeln guter wissenschaftlicher Praxis der Deutschen Forschungsgemeinschaft und nur mit den angegebenen Hilfsmitteln angefertigt zu haben. Diese Arbeit wurde weder ganz noch in Teilen an anderer Stelle im Rahmen eines Prüfungsverfahrens vorgelegt. Frühere Promotionsversuche habe ich nicht unternommen. Mir wurde kein akademischer Grad entzogen.

Kiel,

Alwin Klick