



**HAL**  
open science

# Séparation et étude expérimentale des composantes de l'émission optique d'une couche continue d'argent d'épaisseur croissante (1-125 nm) bombardée par des électrons de 4 à 24 keV

F. Miserey

► **To cite this version:**

F. Miserey. Séparation et étude expérimentale des composantes de l'émission optique d'une couche continue d'argent d'épaisseur croissante (1-125 nm) bombardée par des électrons de 4 à 24 keV. *Revue de Physique Appliquée, Société française de physique / EDP*, 1990, 25 (6), pp.545-554. 10.1051/rphysap:01990002506054500 . jpa-00246217

**HAL Id: jpa-00246217**

**<https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00246217>**

Submitted on 1 Jan 1990

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification  
 Physics Abstracts  
 78.70

## Séparation et étude expérimentale des composantes de l'émission optique d'une couche continue d'argent d'épaisseur croissante (1-125 nm) bombardée par des électrons de 4 à 24 keV

F. Miserey

Conservatoire national des Arts et Métiers, Laboratoire de Physique des Composants Electroniques (UA n° 827), 292 rue Saint-Martin, 75141 Paris Cedex 03, France

(Reçu le 12 janvier 1990, accepté le 8 mars 1990)

**Résumé.** — On fait croître l'épaisseur  $d$  d'une couche d'argent très mince et continue, initialement déposée par évaporation dans l'ultra-vide sur un support d'aluminium non-oxydé, de  $d = 1$  à 125 nm à l'aide d'une vingtaine d'évaporations successives. Pour  $d < 7$  nm, les courbes du pouvoir réflecteur, relevées *in situ*, sont dépourvues du pic d'absorption correspondant à l'excitation des plasmons de surface *via* la rugosité naturelle de l'argent, ce qui indique que la surface est relativement lisse. L'émission optique ( $300 < \lambda < 375$  nm) de la couche bombardée par des électrons de faible énergie ( $4 < E < 24$  keV) est analysée, pour les polarisations p et s de la lumière émise, au moyen d'un spectrophotomètre compteur de photons étalonné. Trois pics sont séparés dans le spectre ; leurs caractéristiques (polarisation de la lumière émise, longueur d'onde centrale du pic, variation de sa hauteur avec l'énergie  $E$  des électrons) permettent d'en attribuer sans ambiguïté l'origine, respectivement : au rayonnement optique de freinage — ou Bremsstrahlung (BR), au rayonnement de transition (RT) à l'état pur, et au rayonnement des plasmons de surface (RPS) *via* la rugosité. Les maximums  $W_{BR}$ ,  $W_{RT}$  et  $W_{RPS}$  de puissance rayonnée sont mesurés, en valeur absolue, à  $E = \text{Cte}$ , pour les différentes épaisseurs de la couche : l'émission est dominée par le RT si le film est mince ( $d < 15$  nm) ;  $W_{BR}$  croît avec  $d$ , et cette croissance est saturée pour  $d > 70$  nm ; une corrélation linéaire est établie entre  $W_{RPS}$ , qui augmente avec  $d$ , et l'amplitude du pic d'absorption observé dans les couches du pouvoir réflecteur de la couche d'argent.

**Abstract.** — The thickness of a very thin and continuous silver film vacuum-evaporated on an unoxidized aluminium substrate is grown from  $d = 1$  to 125 nm by about twenty successive evaporations. Films as thin as  $d < 7$  nm have smooth surface, since *in situ* measured reflectance curves do not show the absorption dip corresponding to surface plasmons excitation *via* silver natural roughness. A calibrated photon-counting spectrometer is used to analyze p- and s-polarized components of the optical emission ( $300 < \lambda < 375$  nm) which arises when low energy electrons ( $4 < E < 24$  keV) are impinging on the film. Three peaks in the spectra are resolved. Taking into account the emitted light polarization, central wavelength and height variation of each peak with electron energy  $E$ , they are unambiguously attributed to longwave Bremsstrahlung (BR), pure transition radiation (RT), and roughness-coupled radiation from surface plasmons (RPS) respectively. The electron energy  $E$  being a constant, top values  $W_{BR}$ ,  $W_{RT}$  and  $W_{RPS}$  of the absolute radiated powers are measured, for increasing values of the Ag film thickness : for thin films ( $d < 15$  nm), pure RT dominates the emission ;  $W_{BR}$  increases with  $d$  and reaches a plateau for  $d > 70$  nm ;  $W_{RPS}$  increases with  $d$ , and is linearly correlated with the magnitude of the dip observed in reflectance curves of the silver films.

### 1. Introduction.

Les couches de métaux purs bombardées par des électrons émettent un rayonnement optique dont le spectre est continu.

L'étude théorique de cette émission s'effectue en considérant que les électrons sont animés d'un mouvement rectiligne et uniforme lorsqu'ils traversent la surface séparant le vide du métal, caractérisé

par sa fonction diélectrique  $\epsilon(\omega)$ . L'existence d'une discontinuité diélectrique est nécessaire pour que les équations de Maxwell admettent une solution quelle que soit la vitesse  $v$  des électrons incidents [1]. Les conditions de continuité des champs à l'interface entre les deux milieux sont satisfaites pour des ondes de deux sortes : (a) si le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  possède une composante normale à l'interface (Fig. 1a), un champ électromagnétique est rayonné de part et

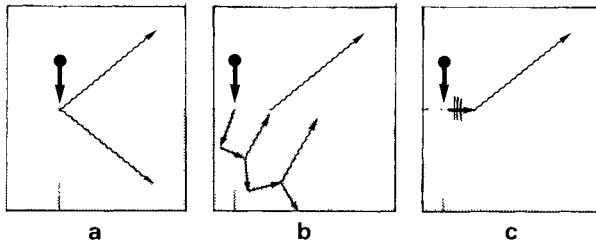


Fig. 1. — Représentation schématique des trois mécanismes concourant à l'émission électromagnétique d'une couche métallique bombardée par des électrons de faible énergie : (a) rayonnement de transition ; (b) Bremsstrahlung ; (c) excitation d'une onde électromagnétique de surface et rayonnement *via* la rugosité.

[Schematic drawing of the three mechanisms involved in electromagnetic emission from a metallic film bombarded by low energy electrons : (a) transition radiation ; (b) Bremsstrahlung ; (c) excitation of a surface wave and roughness-coupled radiation.]

d'autre de la discontinuité — c'est le rayonnement de transition (RT) [2], dont le spectre présente un pic d'émission [3] à une longueur d'onde très proche de la longueur d'onde de plasma de volume  $\lambda_p$  du métal ; (b) si  $\mathbf{k}$  est dans le plan d'interface (Fig. 1c), un mode électromagnétique de surface s'établit, pour lequel le champ reste confiné au voisinage de l'interface. La courbe représentative de la relation  $\omega(k)$  des ondes de surface étant entièrement située en dessous de la droite de la lumière [4], ces ondes ne peuvent rayonner, si ce n'est par l'intermédiaire de la rugosité superficielle. Cette rugosité, de caractère aléatoire, peut être décrite par un ensemble de fréquences spatiales (vecteur d'onde  $k$ ) dont la densité spectrale  $g(k)$  est la transformée de Fourier de la fonction d'auto-covariance  $G(x)$  de la rugosité [5].

L'énergie rayonnée *via* la rugosité superficielle est concentrée dans une bande spectrale relativement étroite, approximativement centrée sur la longueur d'onde  $\lambda_s$  qui correspond à l'énergie-limite des plasmons de surface de très grand vecteur d'onde excités dans la couche métallique par les électrons incidents.

Ce rayonnement des ondes de plasma de surface (RPS) prend naissance, de même que le RT, à la surface du métal bombardé. Par contre, le rayonnement de freinage — ou Bremsstrahlung (BR) — est généré dans le volume de la cible par les électrons qui y pénètrent et qui sont diffusés par les ions du métal (Fig. 1b). La répartition spectrale  $W_{BR}(\lambda)$  de la puissance rayonnée est continue et s'étend jusqu'aux longueurs d'onde optiques. Le calcul [6] de  $W_{BR}$  conduit à un maximum dans les bandes spectrales où le métal est peu absorbant. C'est ainsi qu'un pic de rayonnement doit correspondre, dans le cas de l'argent, à la fenêtre de transparence de ce métal qui est centrée sur  $\lambda_0 \cong 320$  nm.

De toutes les études qui ont été menées dans ce domaine, celles où le métal bombardé est l'argent sont les plus nombreuses, la fréquence de plasma de l'argent étant située dans une région du spectre (ultra-violet proche :  $\hbar\omega_p = 3,75$  eV) aisément accessible à l'expérimentateur.

Cependant, la proximité de  $\lambda_0$  avec les longueurs d'onde caractéristiques :  $\lambda_p \cong 328$  nm et  $\lambda_s \cong 343$  nm rend délicate la séparation des trois composantes (RT, RPS, BR) de l'émission dans le cas de ce métal, d'autant plus que les puissances rayonnées sont très faibles. Si l'analyse spectrale utilisant une bande d'exploration pas trop longue (i.e. : 5 nm) suffit pour séparer le pic RPS du reste de l'émission, il faut, pour séparer BR et RT, faire de plus appel à deux caractéristiques de ces rayonnements.

— La première caractéristique est constituée par la variation de la puissance avec l'énergie  $E$  des électrons incidents :  $W_{RT}$  augmente linéairement avec  $E$ , tant que les électrons ne sont pas ultra-relativistes [7].  $W_{BR}$  augmente d'abord de façon linéaire avec  $E$  [8], mais seulement pour les faibles valeurs de  $E$  : la fonction  $W_{BR}(E)$  doit en effet passer par un maximum pour une valeur critique  $E_m$  (de l'ordre de quelques keV), puis varier comme  $1/E$  [9]. Certains expérimentateurs [10-14] ont choisi d'utiliser des électrons d'énergie relativement élevée (40 à 100 keV) pour étudier le RT qui, dans ces conditions, est largement prépondérant. Mais cette propriété ne permet pas de séparer le RT lorsqu'il est produit par des électrons de faible énergie.

— La seconde caractéristique est le degré de polarisation de la lumière émise : le RT est entièrement polarisé p (vecteur champ électrique parallèle au plan d'observation-incidence), alors que le BR n'est pas polarisé [15]. Cette propriété a été utilisée par plusieurs auteurs [12, 16, 17] pour isoler le BR dans leurs expériences : la puissance  $W^{(s)}$  mesurée en polarisation s est alors identifiée à  $W_{BR}$ . Cette propriété ne permet pas d'isoler expérimentalement le RT, la puissance  $W^{(p)}$  mesurée en polarisation p étant la somme de  $W_{RT}$  et de  $W_{BR}$ . Mais  $W_{RT}$  peut être déterminée indirectement [14] en effectuant la soustraction des valeurs expérimentales :  $W^{(p)} - W^{(s)}$ .

A notre connaissance, le rayonnement de transition produit à l'interface vide/argent par des électrons de faible énergie ( $E < 25$  keV) n'a jamais été isolé expérimentalement de manière directe.

— Pour y parvenir, nous avons fait porter la première partie de la présente étude sur une couche d'argent très mince, de manière à minimiser le BR (qui est un effet de volume), et lisse, de manière à ce que le RPS soit très peu intense. A ces faibles épaisseurs (quelques nanomètres), il y a lieu de considérer le rayonnement de transition qui prend naissance à la surface supérieure et à la surface

inférieure de la lame mince d'argent, ces deux discontinuités diélectriques étant l'une et l'autre traversées par les électrons incidents. En considérant les réflexions qui se produisent aux deux surfaces et l'interférence entre les rayonnements émis à la première et à la seconde interface, il a été montré [18] que la puissance rayonnée peut être plus importante que dans le cas d'une simple interface :  $W_{RT}$  doit être une fonction pseudo-périodique de l'épaisseur  $d$  de la lame [19].

— Lorsqu'on fera ensuite croître l'épaisseur d'argent et, par là-même, le volume de métal traversé par les électrons incidents, le BR viendra s'ajouter au RT. D'autre part, la croissance de la couche étant obtenue par dépôts successifs, le RPS sera favorisé par l'augmentation de la hauteur quadratique moyenne  $\delta$  des reliefs superficiels qu'entraîne cette technique. La variation de  $\delta$  sera appréciée en mesurant *in situ* l'amplitude relative de la chute de réflectivité caractéristique des surfaces rugueuses d'argent.

## 2. Préparation et caractérisation optique des couches.

Dans une chambre-laboratoire où règne un ultravide poussé (pression  $< 2 \times 10^{-10}$  torr), une cible orientable est constituée par une lame de silice fondue optiquement plane recouverte d'une couche épaisse (200 nm) d'aluminium déposé par évaporation *in situ*, donc non oxydé. Cette sous-couche métallique permet l'écoulement du courant électronique ; d'autre part, elle est opaque au rayonnement de luminescence de la silice. L'aluminium a été choisi parce que : (a) ce métal présente, sous bombardement électronique, une émission lumineuse faible et constante dans le domaine spectral considéré ; (b) une couche d'Al se présente sous forme de grands cristallites à surface plane que l'argent

mouille lorsqu'ils sont dépourvus d'adsorbats et non-oxydés, de sorte qu'un dépôt très peu épais d'argent forme un film continu à la surface de l'aluminium propre ([20, 21]). Les dépôts d'argent sont réalisés par évaporation *in situ* ; leur épaisseur est estimée d'après l'indication d'une balance à quartz dont l'élément sensible est placé près de la cible. Le chauffage de l'évaporateur est réglé de telle sorte que l'épaisseur du dépôt croisse à la vitesse des  $0,1 \text{ nm.s}^{-1}$ . Le premier dépôt réalisé a pour épaisseur  $d = 1 \text{ nm}$ . L'épaisseur d'argent est ensuite portée à  $d = 17,5 \text{ nm}$  au moyen de douze évaporations successives, puis à  $d = 125 \text{ nm}$  au moyen de dix autres dépôts successifs.

La cible argentée est caractérisée par son pouvoir réflecteur  $R(\lambda)$  en incidence normale, mesuré dans l'intervalle  $290 < \lambda < 550 \text{ nm}$ . A cet effet, l'appareillage (Fig. 2) a été conçu de manière à pouvoir être utilisé comme un réflectomètre : dans ce cas, l'ensemble {SmMOp} constitue une source de lumière monochromatique de longueur d'onde variable qui éclaire quasi normalement la cible (le faisceau est faiblement convergent) à travers le hublot  $h$ . Une fraction du flux incident est réfléchi à  $45^\circ$  par la lame  $L$  vers la photodiode  $D$ , qui fournit un signal électrique servant de référence. Après réflexion sur la cible, le flux transmis par  $L$  est à son tour partiellement réfléchi à  $45^\circ$  par  $L$  vers la photodiode  $N$ . Le pouvoir réflecteur de la cible est donné à chaque longueur d'onde par :

$$R = \frac{1}{t_0^2(1-r)} \frac{\text{signal de N}}{\text{signal de D}}$$

où  $t_0$  désigne le coefficient de transmission du hublot  $h$ , et  $r$  le coefficient de réflexion à  $45^\circ$  de la lame  $L$ . On a déterminé le facteur  $1/t_0^2(1-r)$  à chaque longueur d'onde en remplaçant la cible par un prisme à réflexion totale.

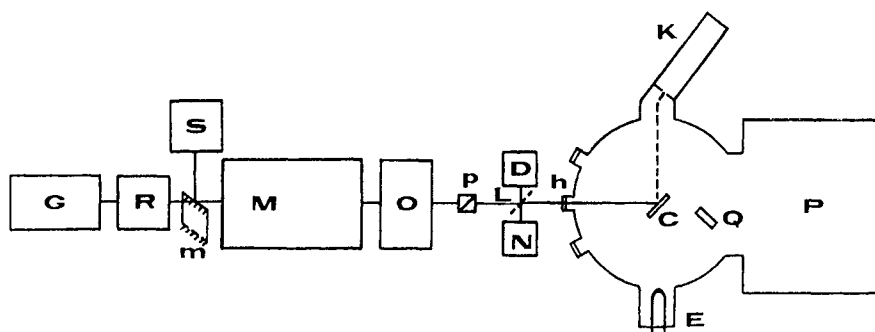


Fig. 2. — Schéma de principe de l'appareillage : C, cible orientable dans l'ultravide ; D, photodiode ; E, évaporateur ; G, chaîne de comptage ; h, hublot (silice) ; K, canon à électrons ; L, lame (silice) ; M, monochromateur ; m, miroir plan escamotable ; N, photodiode ; O, optique conjuguant la cible et la fente du monochromateur ; P, groupe de pompage ; p, prisme de Glan ; R, photomultiplicateur ; Q, balance à quartz ; S, lampe à arc au xénon.

[Schematic diagram of the experimental set-up. C, rotating target ; D, photodiode ; E, metal evaporator ; h, fused silica window ; K, electron gun ; L, fused silica plate ; M, monochromator ; m, movable plane mirror ; N, photodiode ; O, optical system ; P, pumping unit ; p, Glan prism ; R, photomultiplier ; Q, quartz thickness monitor ; S, xenon lamp.]

— Le premier dépôt d'argent a pour effet d'abaisser le pouvoir réflecteur de la couche-support d'aluminium dans le proche UV (Fig. 3). Cette diminution est accentuée par les dépôts successifs et, pour  $d > 10$  nm, apparaît le minimum prononcé de réflectivité qui correspond à la fenêtre de transparence de l'argent. Celle-ci se déplace vers les grandes longueurs d'onde lorsque  $d$  augmente : la valeur limite  $\lambda_0 = 320$  nm correspondant au matériau massif est atteinte pour  $d > 60$  nm.

— La chute de réflectivité caractéristique des surfaces rugueuses d'argent n'est pas observée après les premiers dépôts, mais seulement pour  $d > 7$  nm, ce qui indique que les premières couches continues sont plus lisses que les suivantes : les dépôts successifs d'argent ont pour effet d'augmenter la hauteur quadratique moyenne  $\delta$  des rugosités et, par conséquent, l'amplitude  $\Delta R$  de la chute de réflectivité, en vertu de la relation [22] :

$$\Delta R/R' = A \cdot g(k) \cdot \delta^2$$

où  $R'$  désigne le pouvoir réflecteur de la surface idéalement lisse, et  $A$  une constante.

Pour les épaisseurs d'argent  $d > 20$  nm, on a comparé la courbe expérimentale  $R(\lambda)$  à la courbe théorique  $R'(\lambda)$  que l'on a calculée dans le cas d'une couche idéalement lisse, de même épaisseur, supportée par un substrat d'aluminium. Les fonctions diélectriques complexes  $\epsilon(\omega)$  de l'argent et de

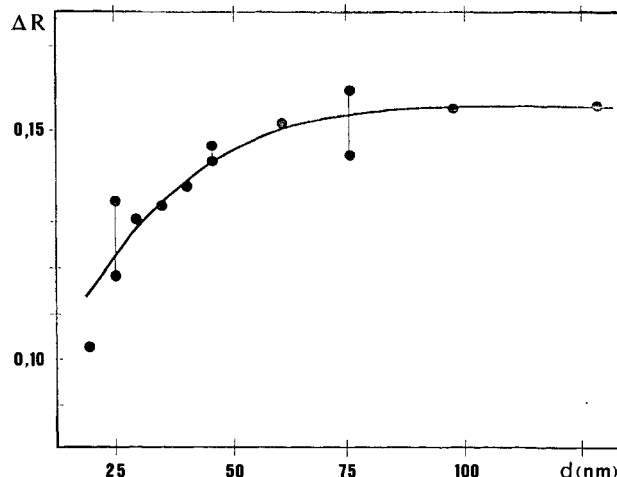


Fig. 4. — Chute de réflectivité  $\Delta R$  observée à  $\lambda = 346$  nm dans la courbe du pouvoir réflecteur de la couche d'argent : variation en fonction de l'épaisseur  $d$  de la couche.

[Height  $\Delta R$  of the dip observed in silver film Reflectance curve at  $\lambda \cong 346$  nm, versus thickness  $d$  of the film.]

l'aluminium qui interviennent dans ce calcul sont connues à partir des constantes optiques de Ag et de Al, telles qu'elles ont été déterminées au Laboratoire ; elles sont très proches de celles publiées par [23]. Les valeurs (Fig. 4) de  $\Delta R = R' - R$  obtenues ( $0,11 < \Delta R < 0,155$ ) correspondent à des valeurs  $\delta$

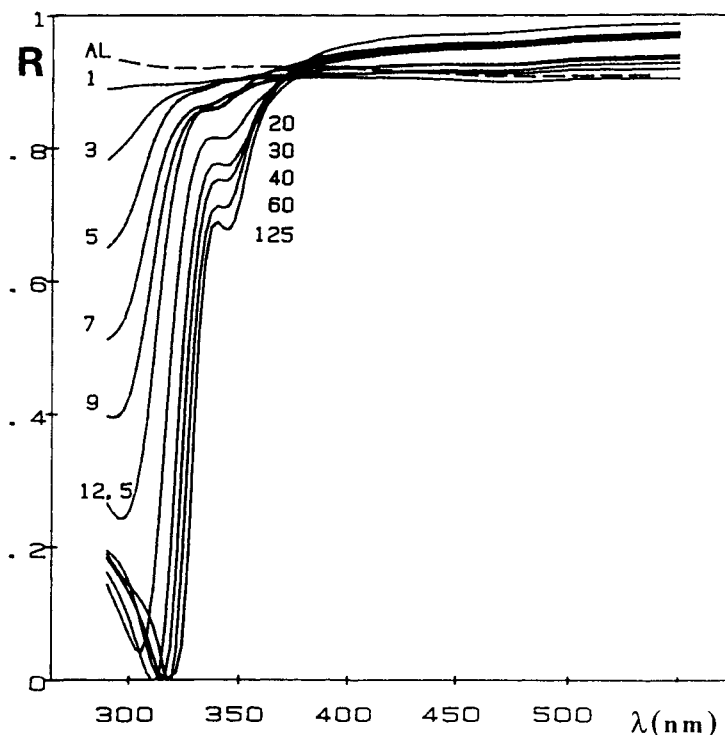


Fig. 3. — Pouvoir réflecteur  $R(\lambda)$  de la couche d'argent ; épaisseur d'argent en nanomètres.

[Silver film Reflectance  $R(\lambda)$  ; Ag thickness in nanometers.]

un peu différentes suivant les auteurs :  $0,8 < \delta < 1,6$  nm, [24] ;  $1,4 < \delta < 1,7$  nm, [25].

La saturation de la courbe  $\Delta R = f(d)$  observée pour  $d > 75$  nm doit correspondre à un début de nivellement des reliefs superficiels.

La chute de réflectivité se produit à la longueur d'onde  $\lambda_1 = 346,3 (\pm 1,5)$  nm, quelle que soit  $d$  : le plasmon d'énergie  $\hbar\omega_1 = 3,58$  eV est excité par la lumière normalement incidente. D'après la courbe de dispersion des plasmons à l'interface vide/argent [26], le module du vecteur d'onde de couplage doit être égal à  $k_r \approx 2,75 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$ . En l'absence

d'informations sur la structure des couches, on ne peut rien dire sur une possible évolution de la longueur d'autocovariance avec leur épaisseur.

### 3. Analyse spectrale du rayonnement émis par les couches bombardées.

Après chaque évaporation d'argent, on relève le pouvoir réflecteur d'une petite surface (aire  $s \approx 5 \text{ mm}^2$ ) située au centre de la cible, puis on bombarde cette même surface sous l'incidence  $\theta = -45^\circ$  (par rapport à la normale à la cible) par un

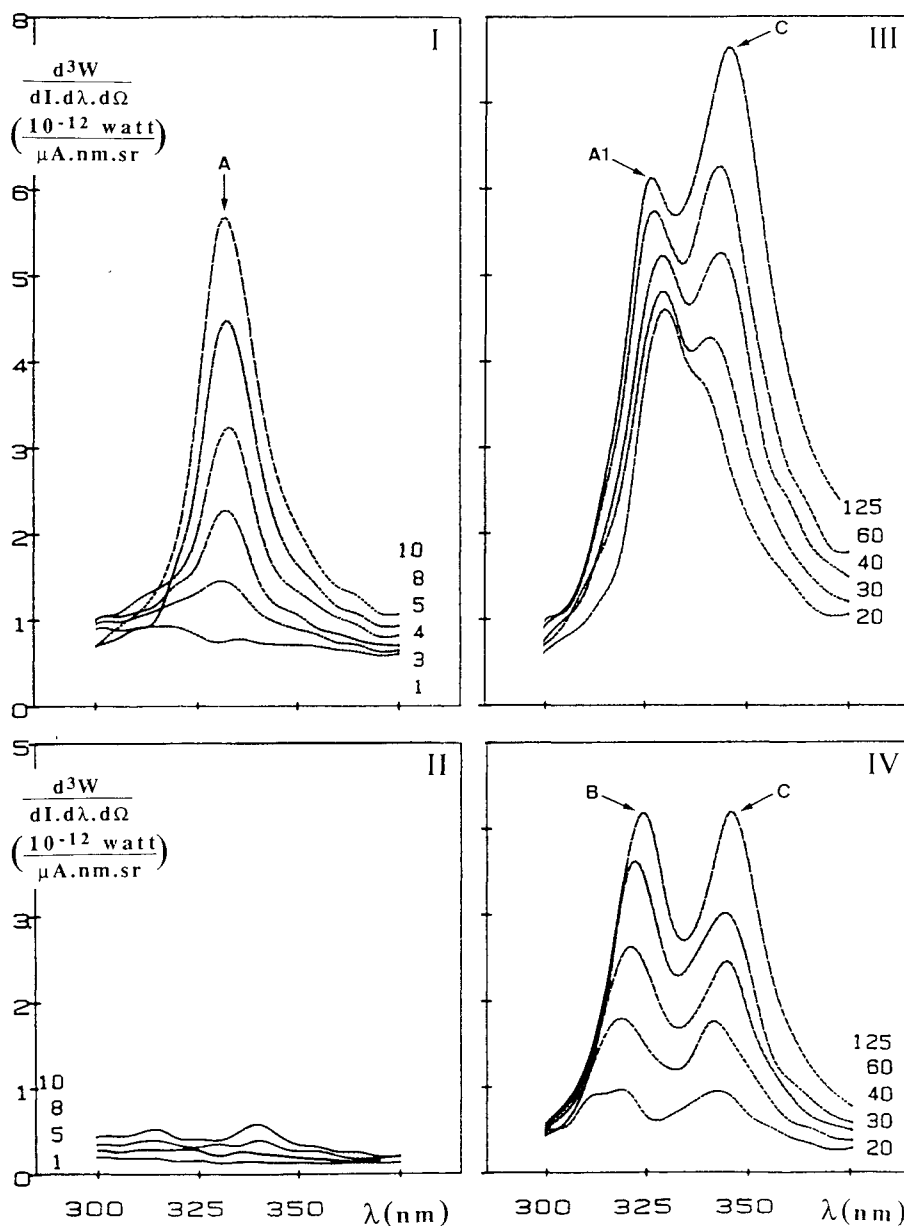


Fig. 5. — Spectres de l'émission optique, (I et III) en polarisation p, (II et IV) en polarisation s, de la couche d'argent bombardée par des électrons d'énergie 12 keV ; épaisseur d'argent en nm.

[Optical emission spectra, (I and III) p-polarized light, (II and IV) s-polarized light, from silver film bombarded by 12 keV electrons ; Ag thickness in nm.]

faisceau d'électrons d'énergie réglable de  $E = 4$  à 24 keV et de courant proche de  $1 \mu\text{A}$ . Deux déviateurs magnétiques croisés permettent de centrer le faisceau. La cathode chaude du canon n'est pas en vue directe de la cible.

Le spectre de la lumière émise est relevé, à la valeur choisie de  $E$ , à l'aide d'un spectrophotomètre à comptage de photons dont l'axe optique fait un angle de  $+45^\circ$  par rapport à la normale à la cible ; le plan d'observation ainsi défini coïncide avec le plan d'incidence électronique. La petite surface bombardée par les électrons est entièrement vue par le spectrophotomètre. Cet appareil, dont la réalisation a été décrite par ailleurs [27], est constitué par l'ensemble {POMRG} de la figure 2, le miroir  $m$  étant escamoté. Il est ouvert à  $f/20$  et a été étalonné en sensibilité spectrale absolue grâce à une source étalon fournie par l'Institut National de Métrologie du CNAM.

Des flux de  $10^2$  à  $10^5$  photons par seconde peuvent être analysés commodément dans le domaine spectral considéré. Avec une longueur de bande spectrale d'exploration  $\Delta\lambda = 4,5 \text{ nm}$ , le comptage est effectué pendant 10 s à 40 s pour chaque valeur choisie de  $\lambda$ .

La répartition spectrale de la puissance rayonnée lorsque la couche est bombardée par des électrons d'énergie 12 keV a été étudiée pour  $300 < \lambda < 375 \text{ nm}$  en fonction de l'épaisseur d'argent déposée. La figure 5 montre différents spectres relevés pour les polarisations  $p$  et  $s$  de la lumière émise.

— Pour les épaisseurs d'argent les plus faibles ( $d < 10 \text{ nm}$ ), on observe un *pic unique* A (Fig. 5.I), centré sur  $\lambda = 322 (\pm 1) \text{ nm}$ , de largeur à mi-hauteur  $\Delta\lambda = 21 \text{ nm}$ . Ce pic n'est observé qu'en polarisation  $p$ . En polarisation  $s$ , la puissance émise est nettement plus faible qu'en polarisation  $p$ , et aucune structure significative n'apparaît dans les spectres à ces épaisseurs d'argent (Fig. 5.II).

— Un spectre de structure plus complexe est relevé dans le cas des épaisseurs d'argent plus importantes ( $20 < d < 125 \text{ nm}$ ), où *trois pics* sont observés :

le pic A1, centré sur  $\lambda = 328 (\pm 2) \text{ nm}$ , est relevé en polarisation  $p$  (Fig. 5.III) ; le pic B, centré sur  $\lambda = 321 (\pm 1) \text{ nm}$  est relevé en polarisation  $s$  (Fig. 5.IV) ; le pic C, centré sur  $\lambda = 343 (\pm 2,4) \text{ nm}$ , existe pour les deux polarisations  $p$  et  $s$ .

Ce résultat est proche de ceux qui ont été obtenus par d'autres expérimentateurs qui bombardaient des cibles épaisses d'argent avec des électrons de faible énergie ([9, 28-31]). Cependant, les spectres publiés ne montrent que deux pics. Si l'origine du pic de plus grande longueur d'onde centrale — correspondant à notre pic C — est unanimement attribuée au RPS, l'origine de l'autre pic est attribuée au BR suivant certains auteurs, ou au TR suivant d'autres. Or,

dans notre expérience, nous sommes en présence d'un pic A1 (en polarisation  $p$ ) et d'un pic B (en polarisation  $s$ ) dont les longueurs d'onde centrales sont différentes.

Comme [12, 16, 17], nous attribuons au seul BR l'origine du pic B : sa longueur d'onde centrale coïncide avec celle du minimum principal des courbes de pouvoir réflecteur que nous avons relevées, c'est-à-dire avec la fenêtre de transparence de l'argent qui permet au BR d'émerger du métal.

Le pic A1 doit résulter de la superposition du RT avec la composante  $p$  du BR, dont l'importance est telle (dans le cas des couches minces) que le RT ne peut être isolé. Aux très faibles épaisseurs d'argent, par contre, le pic A observé en polarisation  $p$  correspond à la résonance attendue au voisinage de  $\lambda_p$  dans le spectre du RT.

On examine maintenant l'effet d'une variation des paramètres  $d$  et  $E$  sur les pics A, B et C en vue de les identifier respectivement au RT, au BR et au RPS.

#### 4. Etude des composantes de l'émission optique.

4.1 LE RAYONNEMENT DE TRANSITION À L'ÉTAT PUR. — La variation de l'amplitude du pic A en fonction de l'épaisseur  $d$  du film d'argent bombardé par des électrons d'énergie constante  $E = 12 \text{ keV}$  est montrée sur la figure 6 : l'amplitude croît avec l'épaisseur tant que celle-ci reste inférieure à une valeur critique ( $d_0 \cong 12,5 \text{ nm}$ ), ce qui est en accord avec le caractère pseudo-périodique prévu par la théorie du RT des lames minces [19]. Ceci avait déjà été vérifié pour des couches minces d'argent auto-supportées d'épaisseur  $d > 30 \text{ nm}$  bombardées par des électrons d'énergie  $E > 25 \text{ keV}$  [16] ; nous avons étendu cette vérification au cas des couches très minces ( $3 < d < 15 \text{ nm}$ ) déposées sur aluminium non-oxydé.

L'évolution du pic A avec l'énergie des électrons incidents a été étudiée en bombardant la couche d'épaisseur  $d = 10 \text{ nm}$  avec des électrons d'énergie  $E = 4, 8, 12, 16, 20$  et  $24 \text{ keV}$ . La figure 7 montre que l'amplitude du pic A augmente linéairement avec  $E$ . Cette croissance linéaire est prévue par la théorie du RT [1].

L'ensemble des propriétés du pic A (valeur de la longueur d'onde centrale, polarisation  $p$ , amplitude croissant linéairement avec  $E$ , existence d'une épaisseur d'argent critique pour laquelle la puissance rayonnée est maximum) caractérise le RT de l'argent.

Le rendement mesuré atteint 1 photon émis par nm de longueur de bande spectrale et par stéradian pour  $10^6$  électrons d'énergie 12 keV : cette valeur est de 3 à 10 fois plus grande (à énergie électronique constante) que les valeurs publiées ([12, 14, 16]) qui ont été obtenues avec des couches d'épaisseurs nettement supérieures ( $60 < d < 70 \text{ nm}$ ).

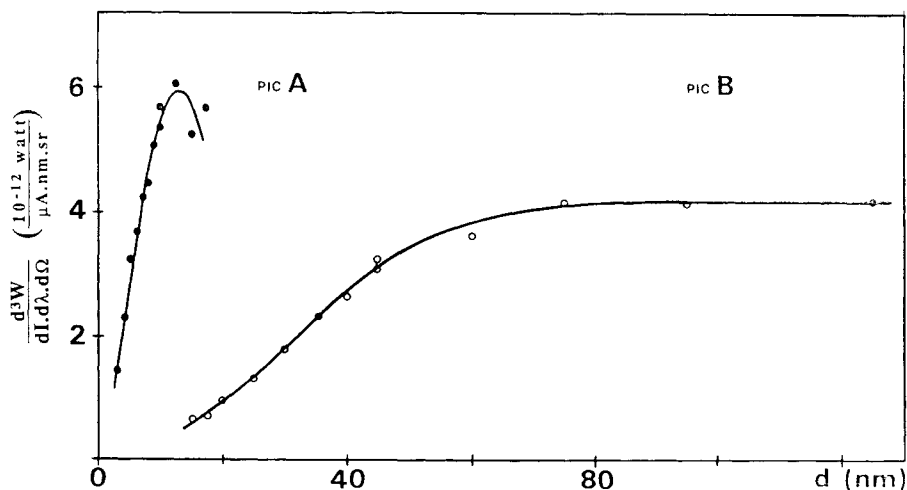


Fig. 6. — Variation de l'amplitude des pics de rayonnement A ( $\lambda \approx 332$  nm, polarisation p) et B ( $\lambda \approx 321$  nm, polarisation s) en fonction de l'épaisseur du film d'argent ; énergie des électrons incidents :  $E = 12$  keV.

[Height of A-radiation peak ( $\lambda \approx 332$  nm, p-polarized light) and of B-radiation peak ( $\lambda \approx 321$  nm, s-polarized light) versus silver film thickness ; incident electrons energy :  $E = 12$  keV.]

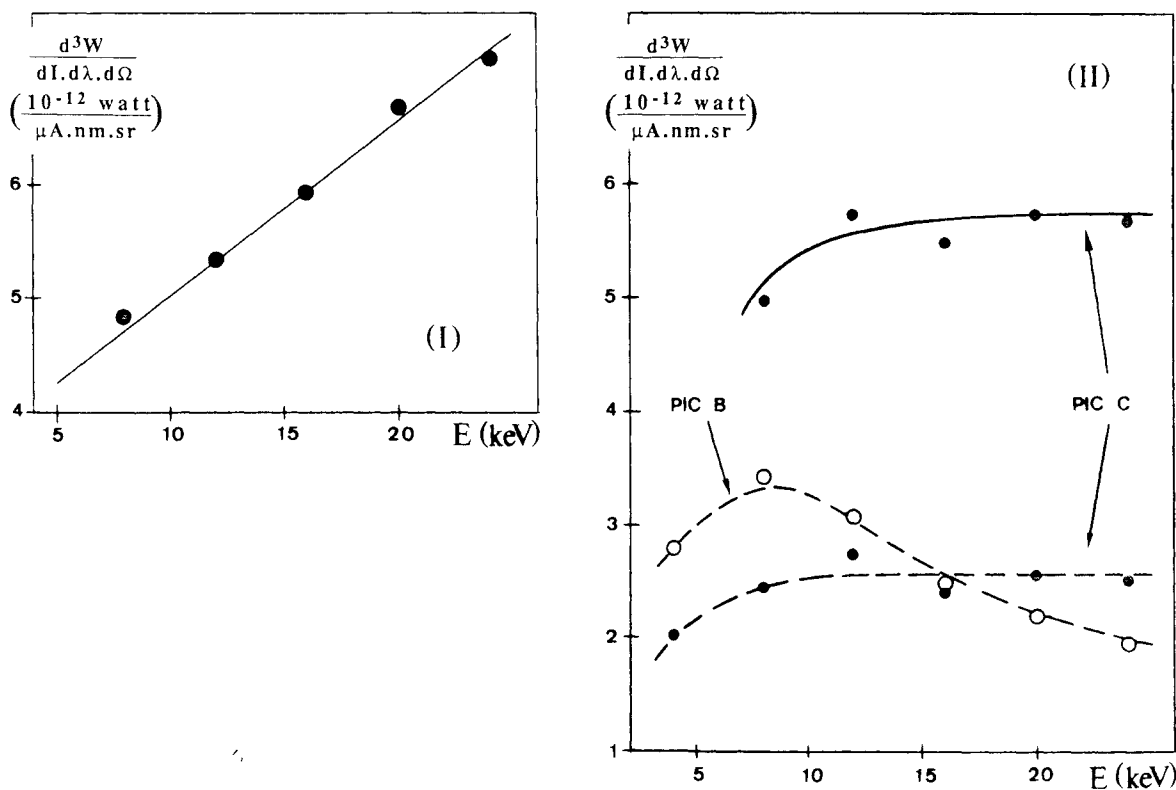


Fig. 7. — Variation de l'amplitude des pics de rayonnement en fonction de l'énergie des électrons incidents : (I) pic A, couche d'épaisseur  $d = 10$  nm ; (II) pics B et C, couche d'épaisseur  $d = 45$  nm (en trait plein : polarisation p ; en trait interrompu : polarisation s).

[Height of radiation peaks versus incident electrons energy : (I) peak A, film thickness  $d = 10$  nm ; (II) peaks B and C, film thickness  $d = 45$  nm (full line : p-polarized light ; dashed line : s-polarized light).]

4.2 LE BREMSSTRAHLUNG DANS LES COUCHES MINCES. — La hauteur du pic B a été étudiée en fonction de  $d$  et de  $E$ .

— La figure 6, obtenue pour  $E = 12$  keV, montre que le maximum de la puissance rayonnée augmente avec  $d$ , et que cette croissance est rapidement



saturée au-delà de  $d = 70$  nm. Ce résultat s'explique aisément en considérant que : (a) nos couches minces d'argent sont traversées par les électrons d'énergie 12 keV [32] ; (b) le BR est d'autant plus intense que l'épaisseur de métal est grande : (c) la saturation est due à l'atténuation optique dans l'argent (la longueur d'atténuation optique étant voisine de 50 nm dans les conditions de l'expérience, ce sont les photons engendrés dans la première centaine de couches atomiques qui contribuent principalement au rayonnement susceptible d'émerger du métal). L'effet de l'épaisseur des films d'argent sur le Bremsstrahlung optique n'avait jusqu'ici fait l'objet que d'observations fragmentaires ([14, 16]). La figure 6 montre également la compétition entre RT et BR : en dessous de  $d = 20$  nm.  $W_{BR}$  est négligeable devant  $W_{RT}$  ; et le RT cesse d'exister à l'état pur pour  $d > 20$  nm.

— La figure 7, obtenue pour  $d = 45$  nm, montre la variation de la hauteur  $W_{BR}$  du pic B en fonction de  $E$ . La fonction  $W_{BR}(E)$  passe par un maximum pour  $E_m \cong 9$  keV, ce qui constitue la véritable signature du BR optique. Un maximum comparable a été obtenu par Boersch [6], mais avec une cible d'argent massif et sans analyser la polarisation de la lumière émise : la puissance mesurée était alors due, en partie, au RT.

Nous avons déterminé le rendement du BR dans des conditions proches de celles qui correspondent au maximum de puissance rayonnée. Sa valeur est 2,5 fois supérieure à celle du rendement du RT toutes choses égales par ailleurs.

#### 4.3 RAYONNEMENT DES PLASMONS DE SURFACE. —

L'amplitude des pics C augmente lorsque  $E$  croît de 4 à 24 keV (Fig. 7), un palier de saturation apparaissant au-delà de  $E = 12$  keV. Cette croissance saturée, qui est caractéristique des pics C, est gouvernée par la probabilité qu'ont les électrons d'énergie  $E$  d'exciter les ondes de plasma de surface de grands vecteurs d'onde [30].

La longueur d'onde centrale qui est la même pour les pics C relevés, dans les deux polarisations, se déplace légèrement vers le rouge avec les évaporations successives et atteint  $\lambda_m = 345$  nm après le dernier dépôt d'argent. L'énergie du plasmon excité par le bombardement électronique est alors  $\hbar\omega_m = 3,59$  eV. Pour se désexciter de manière radiative en émettant un photon dans la direction  $\theta = 45^\circ$ , ce plasmon a besoin d'un vecteur d'onde de couplage  $k_r' \cong 1,45 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$ . Les vecteurs d'onde  $k_r$  et  $k_r'$ , qui autorisent respectivement l'excitation par la lumière normalement incidente, et la désexcitation radiative dans la direction  $\theta$ , doivent exister dans le spectre  $g(k)$  de la rugosité avec une fréquence suffisamment grande pour assurer le couplage dans chaque processus. Ceci peut être réalisé si  $g(k)$  est une gaussienne décalée, présentant un maximum

large pour une valeur de  $k \neq 0$  et intermédiaire entre  $k_r'$  et  $k_r$  :  $k_m \cong 2 \times 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$  par exemple. Un tel spectre a été déterminé [5] par microdensitométrie d'une couche d'argent relativement peu rugueuse ( $\delta \cong 1,5$  nm ;  $\sigma \cong 25$  nm).

L'énergie  $E$  des électrons étant fixée à 12 keV, la puissance maximale rayonnée  $W_{RPS}$  a été mesurée après chaque dépôt supplémentaire d'argent. Les résultats sont présentés sur la figure 8, où l'on a porté en abscisses la chute relative de réflectivité  $\Delta R/R'$  ( $0,125 < \Delta R/R' < 0,185$ ) correspondant aux différentes valeurs de  $d$ . On observe que  $W_{RPS}$  croît linéairement avec  $\Delta R/R'$ . Le caractère linéaire de cette variation qui, à notre connaissance, n'avait pas été mis expérimentalement en évidence à ce jour, montre que la puissance rayonnée *via* la rugosité superficielle augmente proportionnellement au produit  $g(k) \cdot \delta^2$ .

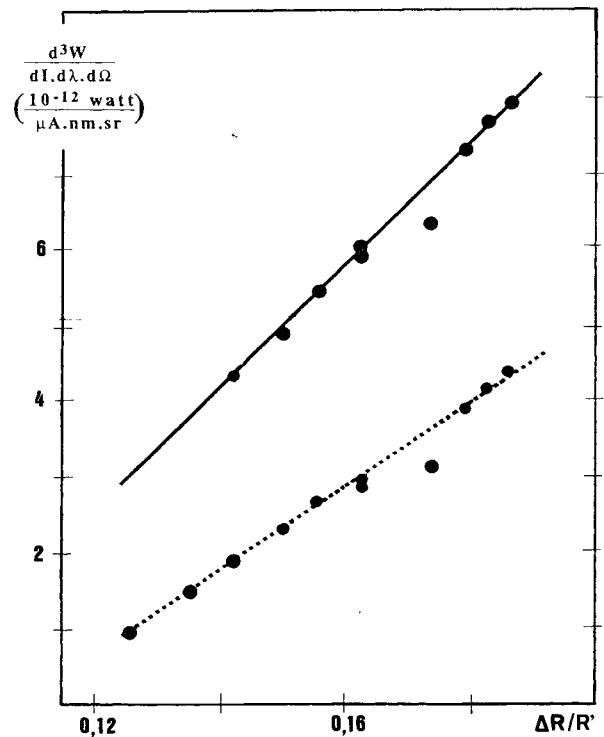


Fig. 8. — Hauteur du pic de rayonnement des plasmons de surface, pour les polarisations p (trait plein) et s (trait interrompu) de la lumière émise, en fonction de la chute relative de réflectivité observée à  $\lambda \cong 346$  nm dans la courbe du pouvoir réflecteur de la couche d'argent.

[Height of the Surface Plasmon Radiation peak (full line : p-polarized light ; dashed line : s-polarized light) versus relative magnitude of the dip observed at  $\lambda \cong 346$  nm in silver film reflectance curve.]

#### Conclusion.

Le rayonnement (RPS) des plasmons de surface excités par les électrons bombardant une couche d'argent d'une part, le rayonnement de freinage —

ou Bremsstrahlung — (BR) émis dans le domaine optique par les mêmes électrons qui pénètrent dans la couche d'autre part, accompagnent le rayonnement de transition (RT) qui est émis lorsque les électrons franchissent l'interface vide/argent.

L'analyse du spectre de la lumière émise en polarisation p et en polarisation s, avec une bande d'exploration de longueur  $\Delta\lambda = 4,5$  nm, a permis de séparer sans ambiguïté ces trois rayonnements. La technique du comptage des photons a été utilisée pour mesurer, en valeur absolue, les très faibles puissances rayonnées —  $W_{BR}$ ,  $W_{RT}$  et  $W_{RPS}$  sont de l'ordre de  $10^{-12}$  W/ $\mu$ A.nm.sr — dont les variations respectives ont été étudiées en fonction de : (a) l'énergie  $E$  des électrons incidents, (b) l'épaisseur  $d$  de la couche d'argent, qu'on a fait croître dans de larges limites par évaporations successives, le pouvoir réflecteur  $R(\lambda)$  étant mesuré *in situ* à chaque stade de la croissance.

Cette étude a apporté les résultats expérimentaux originaux suivants : (1) Aux faibles épaisseurs d'argent ( $d < 20$  nm),  $W_{BR}$  peut être considéré comme négligeable devant  $W_{RT}$  ; le RT existe à l'état

pur si, de plus, la rugosité superficielle de la couche est très faible. (2)  $W_{BR}$  croît avec  $d$ , et cette croissance présente une saturation lorsque  $d$  devient comparable à la longueur d'atténuation optique dans l'argent. (3) Si l'énergie  $E$  des électrons augmente,  $W_{BR}$  passe par un maximum pour une valeur critique  $E_m$  ( $E_m \cong 9$  keV dans le cas où  $d = 45$  nm). (4)  $W_{RPS}$  est proportionnel à l'amplitude relative de la chute de réflectivité qui caractérise les surfaces rugueuses de l'argent.

#### Remerciements.

L'auteur a plaisir à remercier les enseignants-chercheurs du laboratoire : J.-C. Dudek et G. Hincelin, ainsi que son Directeur : A. Septier, pour les discussions fructueuses qui ont jalonné ce travail. L'étalonnage en sensibilité spectrale absolue a été possible grâce à B. Rougie, Ingénieur à l'Institut National de Métrologie. La collaboration de Mme D. Duval a été appréciée pour la mesure de  $R$  et le traitement informatique des données.

#### Bibliographie

- [1] TER-MIKAELIAN M. L., High-energy electromagnetic processes in condensed media, Interscience tracts on Physics and Astronomy n° 29 (J. Wiley & Sons, New York) (1972) pp. 194-242.
- [2] GINZBURG V. L., FRANK I. M., *J. Phys. U.S.S.R.* **9** (1945) 353.
- [3] SILIN V. P. et FETISOV E. P., *Sov. Phys. J.E.T.P.* **18** (1964) 1081-1087.
- [4] RAETHER H., Surface polaritons, Eds. Agranovich et Mills (North-Holland Pub. Co., Amsterdam) 1982, pp. 331-403.
- [5] VARNIER F., Thèse d'Etat, Aix-Marseille-III (1983).
- [6] BOERSCH H. et SAUERBREY G., Optical properties and electronic structure of metals and alloys, Ed. F. Abeles (North-Holland Pub. Co., Amsterdam) 1965, pp. 386-398.
- [7] WARTSKI L., Thèse d'Etat, Univ. Paris-Sud, Orsay (1976).
- [8] KRAMERS H. A., *Philos. Mag.* **46** (1923) 836-871.
- [9] BOERSCH H., DOBBERSTEIN P., FRITZSCHE D. et SAUERBREY G., *Z. Phys.* **187** (1965) 97-118.
- [10] FRANK A. L., ARAKAWA E. T. et BIRKHOFF R. D., *Phys. Rev.* **126** (1962) 1947-1952.
- [11] ARAKAWA E. T., DAVIS N. O. et BIRKHOFF R. D., *Phys. Rev.* **135** (1964) 224-226.
- [12] CRAM L. S. et ARAKAWA E. T., *Phys. Rev.* **153** (1967) 455-459.
- [13] HARUTYUNIAN F. R., HOVHANNISSIAN R. A. et ROSTOMIAN B. O., *Phys. Lett. A* **37** (1971) 163-164.
- [14] HATTENDORF H.-D., *Phys. Status Solidi* (a) **42** (1977) 489-494.
- [15] GLUCKSTERN R. L., HULL Jr. M. H. et BREIT G., *Phys. Rev.* **90** (1953) 1026-1035.
- [16] ARAKAWA E. T., DAVIS N. O., EMERSON L. C. et BIRKHOFF R. D., *J. Phys. France* **25** (1964) 129-133.
- [17] LITTLE J., Thesis Ph. D. Univ. of Tennessee, Knoxville (1982).
- [18] PAFOMOV V. E., *Sov. Phys. J.E.T.P.* **6** (1958) 829-830.
- [19] RITCHIE R. H. et ELRIDGE H. B., *Phys. Rev.* **126** (1962) 1935-1947.
- [20] LOPEZ-RIOS T. et VUYE G., *J. Phys. E: Sci. Instrum.* **15** (1982) 456-461.
- [21] BORENZSTEIN Y., LOPEZ-RIOS T. et VUYE G., *J. Phys. Colloq. France* **44** (1983) C10-475-478.
- [22] KRETSCHMANN E. et KRÖGER E., *J. Opt. Soc. Am.* **65** (1975) 150-154.
- [23] JOHNSON P. B. et CHRISTY R. W., *Phys. Rev.* **6** (1972) 4370.
- [24] CUNNINGHAM L. J. et BRAUNDMEIER Jr. A. J., *Phys. Rev.* **14** (1976) 479-483.
- [25] STANFORD J. L., BENNETT H. E., BENNETT J. M., ASHLEY E. J. et ARAKAWA E. T., *Bull. Am. Phys. Soc.* **13** (1968) 989.
- [26] DUDEK J.-C., Thèse de 3<sup>e</sup> cycle, Université Paris-Sud, Orsay (1978).
- [27] MISEREY F., Thèse d'Etat, Université Paris-Sud, Orsay, n° 3004 (1985).
- [28] VON BLANCKENHAGEN P., BOERSCH H., FRITZSCHE D., SEIFERT H. G. et SAUERBREY G., *Phys. Lett.* **11** (1964) 296-297.

- [29] DOBBERSTEIN P. et SAUERBREY G., *Phys. Lett. A* **31** (1970) 328-329.
- [30] CHUNG M. S., CALCOTT T. A., KRETSCHMANN E. et ARAKAWA E. T., *Surf. Sci.* **91** (1980) 245-263.
- [31] KRITSKII V. A., KLYAP M. P., OVCHINNIKOV V. L. et POP S. S., *Sov. Tech. Phys. Lett.* **7** (1981) 125-127
- [32] ARNAL F., Thèse d'Etat, Univ. Paul-Sabatier, Toulouse (1975).
-