表面プラズモン共鳴とそのレーザー顕微鏡への応用

岡本 隆之*・山口 一郎*

(1996年7月11日 受理)

Surface Plasmon Resonance and Its Application to Laser Microscopy

Takayuki OKAMOTO* and Ichirou YAMAGUCHI*

(Received July 11, 1996)

Surface plasmons are electromagnetic waves localized and propagating along metal-dielectric interfaces. They can be excited by a *p*-polarized light in an attenuated total reflection geometry. The surface plasmon resonance can be used in laser microscopy that provides two dimensional maps of refractive index and/or thickness of samples with very high sensitivity. Spatial light modulators using the surface plasmon resonance are also described.

Key Words: Surface plasmon, Microscopy, ATR, Thin film, Evanescent wave

1. はじめに

表面プラズモンとは金属/誘電体界面に局在し、界面に沿って伝搬する電磁波で、金属表面での電荷密度波を伴うものである。1968年にOtto¹⁾により、つづいて、Kretschmann and Raether²⁾により、全反射光学系を用いた光による表面プラズモンの励起法が考案された。それ以来、この表面プラズモン共鳴の現象は、数々の、表面や薄膜に関する研究に利用されてきた。しかしながら、顕微鏡へ応用されたのは比較的最近で、1987年から1988年にかけて、Yeatman and Ash³⁻⁵⁾および、Rothenhäuslerら⁶⁻⁸⁾によって報告されたのが最初である。前者は厚さ0.7nmのWO₃薄膜の格子を、後者は厚さ9.3nmのSiO_x薄膜や、4

層のLangmuir-Brodgett(LB)膜などの膜厚分布を観察している。表面プラズモン顕微鏡は金属表面上の薄膜層や、吸着層などの存在に対して非常に敏感であり、それらの膜厚や屈折率に関する2次元情報が高感度で得られるという特長を持つ。

本解説では最初に、表面プラズモンおよび表面プラズモン共鳴について説明し、次に表面プラズモン顕微鏡とその具体的な装置、観察例について述べる。また、表面プラズモン顕微鏡の応用の1つである空間光変調素子についても紹介する。

2. 表面プラズモン共鳴

2.1 1表面プラズモンとその存在条件

ここで述べる表面プラズモンとは2つの媒質が

* 理化学研究所 (〒351-01 埼玉県和光市広沢 2-1)

* The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN) (2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-01)

平面で接しているとき、その界面に局在し、その界面に沿って伝搬する電磁波をいう。まず、このような電磁波が存在するためには、それぞれの媒質にどのような条件が必要かを考える。媒質1($z \geq 0$)と媒質2($z \leq 0$)が界面($z=0$)で接している状態を考える。界面に沿ってx方向に伝搬し、界面から離れるにしたがって減衰する電磁波の場のy方向成分は、それぞれの媒質中で次のように与えられる。

$$\begin{aligned} U_1 &= U_0 \exp[i(k_x x - \omega t)] \exp(-\gamma_1 z) \quad \text{for } z \geq 0 \\ U_2 &= U_0 \exp[i(k_x x - \omega t)] \exp(\gamma_2 z) \quad \text{for } z \leq 0 \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 U はTE波の場合は電場を指し、TM波の場合は磁場を差す。また、 k_x は波数の接線成分であり、 ω は角周波数である。場が界面に局在するためには γ_1 および γ_2 はともに正の実数である必要がある。これらの場は界面で境界条件を満足しなければならない。すなわち、電場、磁場の接線成分が連続で、かつ、電束密度、磁束密度の法線成分が連続でなければならない。式(1)はすでに前者を満足している。後者に関しては、

$$\frac{1}{\epsilon_1} \frac{\partial U_1}{\partial z} = \frac{1}{\epsilon_2} \frac{\partial U_2}{\partial z} \quad \text{for TM wave} \quad (2)$$

$$\frac{\partial U_1}{\partial z} = \frac{\partial U_2}{\partial z} \quad \text{for TE wave} \quad (3)$$

となる、ここで、 ϵ_1 、 ϵ_2 はそれぞれ媒質1、媒質2の誘電率である。TM波の場合、式(2)より次の条件が導かれる。

$$\frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} = -\frac{\gamma_1}{\gamma_2} \quad (4)$$

ここから、2つの媒質のうち一方の誘電率は負でなければならないことがわかる。また、両媒質への侵入長(振幅が $1/e$ になる界面からの距離)は γ の逆数で与えられるため、誘電率に反比例することがわかる。一方TE波の場合、式(3)より $\gamma_1 = -\gamma_2$ となり、最初に述べた γ_1 および γ_2 はともに正の実数であるという条件と矛盾する。したがって、TE波の表面プラズモンは存在しないことがわかる。この帰結は表面プラズモンの本来の意味を

考えれば明らかである。すなわち、表面プラズモンとは界面に沿って伝搬する表面電荷密度波と電磁波が結合したものであるため、もともとy方向の電場成分を持たないからである。式(4)と両媒質での電磁波の分散関係

$$k_x^2 - \gamma_i^2 = \epsilon_i \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \quad \text{for } i=1,2 \quad (5)$$

から、表面プラズモンの分散関係

$$k_x = \left(\frac{\omega}{c} \right) \left(\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2} \right)^{1/2} \quad (6)$$

が得られる。ここで、 c は真空中の光速である。

さて、いくつかの金属の誘電率の実部は可視域で負であり、式(4)の条件を満たす。しかし、金属の誘電率は虚部を持つため、表面プラズモンは界面に沿って伝搬しながら減衰する。今、媒質1が複素誘電率 $\epsilon_1 = \epsilon'_1 + i\epsilon''_1$ を持つ金属であるとすると、表面プラズモンの波数も複素数 $k_x = k'_x + ik''_x$ となり次式で与えられる。

$$k'_x = \left(\frac{\omega}{c} \right) \left(\frac{\epsilon'_1 \epsilon_2}{\epsilon'_1 + \epsilon_2} \right)^{1/2} \quad (7)$$

$$k''_x = \left(\frac{\omega}{c} \right) \left(\frac{\epsilon'_1 \epsilon_2}{\epsilon'_1 + \epsilon_2} \right)^{3/2} \left[\frac{\epsilon''_1}{2(\epsilon'_1)^2} \right] \quad (8)$$

式(8)より、表面プラズモンの伝搬長、すなわち、その強度が伝搬にともない $1/e$ になる距離が求まり、次式で与えられる。

$$L = (2k''_x)^{-1} \quad (9)$$

2.2 光による表面プラズモンの励起

表面プラズモンは最初に定義したように、両媒質で界面から離れるにしたがって指数関数的に減衰する。そのため、表面プラズモンは非放射である。逆にいえば、外からの伝搬光で、表面プラズモンを励起することはできない。式(7)からもわかるように、表面プラズモンの波数は両媒質中の伝搬光の波数よりも大きい。すなわち、表面プラズモンは両媒質でエヴァネッセント波となっている。逆に考えれば、エヴァネッセント波により表面プラズモンを励起すること

Fig. 1 (a) Otto and (b) Kretschmann configurations for excitation of surface plasmon.

ができる。エヴァネッセント波を得る最も簡単な方法は減衰全反射 (Attenuated Total Reflection: ATR) 法を用いることである。Otto¹⁾はFig. 1(a)に示すように誘電体側からプリズムを界面に近付け、プリズム側から臨界角以上の角度でp偏光(TM波)単色光を入射し、その時に生じるエヴァネッセント波で表面プラズモンを励起する系を考案した。しかしながら、このOtto配置はプリズムと金属表面との距離を数10nmに制御しなければならないと、金属表面上の試料の厚さに制限を受けるため、顕微鏡には次に述べるKretschmann配置^{2,9)}が適している。この系ではOtto配置とは逆に、Fig. 1(b)に示すようにプリズムを金属側から界面に近付ける方法である。実際にはプリズムの底面に、金属薄膜を真空蒸着することで、この系は簡単に実現できる。また、この系では金属表面上の試料の厚さに制限を受けないため、ほとんどの表面プラズモン顕微鏡ではこのKretschmann配置が用いられている。

これらの配置においては、エヴァネッセント波の波数と、表面プラズモンの波数 k_x が一致したとき、すなわち、プリズムの屈折率を n_0 、入射角を θ_0 とすると、

$$k_x = \left(\frac{\omega}{c} \right) n_0 \sin \theta_0 \quad (10)$$

のとき、表面プラズモンが励起され共鳴が起きる。表面プラズモン共鳴は反射率を観測することで確認できる。Kretschmann配置における振幅反射率 r_{012} は次式で与えられる。

$$r_{012} = \frac{r_{01} + r_{12} \exp(2ik_{z1}d)}{1 + r_{01}r_{12} \exp(2ik_{z1}d)} \quad (11)$$

ここで、 r_{ij} は媒質*i*/媒質*j*界面における振幅反射率であり(媒質0はプリズム)、 k_{z1} は媒質1(金属)における波数の垂直成分である。入射角を走査しながら反射率を測定すると、共鳴角 θ_0 において反射率が急激に減衰する現象(ディップ)が見られ(以後、ディップが示された反射率の角度分布を共鳴曲線と呼ぶ)、この入射角において表面プラズモン共鳴が起きていることが確認できる。すなわち、入射光のエネルギーが表面プラズモンに与えられ、最終的に熱として消費されている。

2.3 共鳴曲線

ディップの深さは、入射光エネルギーの表面プラズモンへの変換率で決まる。表面プラズモンの伝搬に伴う減衰は、金属での吸収による内部損失と、一度励起された表面プラズモンが再びプリズム側に光を放射するために起こる放射損失による。後者は励起にATR法を用いたことに起因する。Kretschmann配置において、金属膜が厚い場合、入射波はほとんどプリズム/金属界面で反射され、表面プラズモンの励起に関与しなくなるため、ディップは浅くなる。また、金属膜が薄い場合、放射損失が大きくなりやはりディップは浅くなる。金属膜厚が適当で、再放

Fig. 2 Resonance curves for different thicknesses d_1 of silver films in the Kretschmann configuration.

Fig. 3 Resonance curves for silver, gold, copper, and aluminium films. The thicknesses of them are chosen to minimize the reflectance at the dips and summarized in Table I.

Table I Indices of refraction of metals and their thickness to give minimum reflectance^{24,25)}.

	Index of refraction	Thickness (nm)
Silver	$0.06 + 4.28i$	53.1
Gold	$0.18 + 3.44i$	47.9
Copper	$0.27 + 3.41i$	42.4
Aluminium	$1.37 + 7.62i$	8.57

射光とプリズム/金属界面での反射光の振幅が等しくなったとき(このとき両者の位相は π だけ異なっている)ディップは最も深くなる。Fig. 2にプリズム/銀/空気の系において、銀の膜厚を変化させたときの共鳴曲線を示す。励起光はHe-Neレーザー(波長 $\lambda = 632.8\text{nm}$)、プリズムはBK-7(屈折率 $n_0 = 1.515$)を仮定している。膜厚50nm付近で、最もディップが深くなっているのがわかる。

一方、ディップの幅は表面プラズモンの伝搬長に逆比例する。これは、スペクトル幅が波長の長さに逆比例するのと同じ関係である。金属の厚さが半無限の場合の伝搬長は式(9)で与えられるが、Kretschmann配置の場合、放射損失が存在するため、伝搬長はそれよりも短くなる。その結果、金属薄膜が薄くなるほど放射損失が大きくなり、ディップ幅は広がる(Fig. 2参照)。ディップの反射率が0となったとき、放射損失と内部損失は等しくなっている¹⁰⁾。このときの伝

搬長は式(9)で与えられる伝搬長の1/2となる。Fig. 3に種々の金属薄膜を用いたときの共鳴曲線を示す。金属薄膜の厚さはディップにおける反射率が0になるように選んでいる。このときの各金属の複素屈折率および、膜厚をTable Iに示す。金属薄膜として、銀を選んだときに最も狭いディップが得られることがわかる。この理由は銀が最も小さい複素誘電率の虚部を持つためである。

2.4 共鳴曲線の意味

さて、表面プラズモン共鳴から何がわかるかについて考える。式(6)および(7)より、一方の媒質の誘電率が既知であれば、共鳴角を測定することにより、もう一方の媒質の誘電率を知ることができる。しかし、表面プラズモン共鳴の大きな特長は、バルクの屈折率の測定だけではなく、薄膜の屈折率や膜厚が測定できることである。最初に述べたように、表面プラズモンでは界面において、場の振幅が最も大きくなる。したがって、表面プラズモン共鳴は界面付近の状態の変化に、非常に敏感である。ここで媒質1と媒質2の間に誘電率 ϵ_3 、膜厚 d_3 の薄膜層が存在する場合を考える。膜厚 d_3 が波長に比べて十分小さい場合、Kretschmann⁹⁾によって表面プラズモンの波数ベクトルの k_x 一次近似式が次のように与えられている。

$$\hat{k}_x = k_x + \Delta k_x \quad (12)$$

ここで、

$$\Delta k_x = \left(\frac{\omega}{c} \right) \left(\frac{\epsilon_3 - \epsilon_2}{\epsilon_3} \right) \left(\frac{\epsilon'_1 \epsilon_2}{\epsilon'_1 + \epsilon_2} \right) \left(\frac{\epsilon_3 - \epsilon'_1}{\epsilon_2 - \epsilon'_1} \right) (-\epsilon'_1 \epsilon_2)^{-1/2} \left(\frac{2\pi d_3}{\lambda} \right) \quad (13)$$

さらに高次の近似式はPockrand¹¹⁾により求められている。この式より、膜厚が波長に比べて十分薄い場合、波数ベクトルの変化は膜厚に比例することがわかる。したがって、各媒質の誘電率が既知であれば、共鳴角から薄膜の厚さを得ることができる。また逆に、膜厚が既知であれば、誘電率が得られる。Fig. 4にプリズム/銀/SiO₂/空気の系における共鳴曲線を示す。SiO₂の膜厚が厚くなるにしたがって、共鳴角が大きくなっていくことがわかる。これらの共鳴曲線が

Fig. 4 Resonance curves for silver covered with SiO_2 of different thicknesses d_3 .

ら、0.1nm程度の膜厚分解能は容易に得られることが理解できる。

3. 表面プラズモン顕微鏡

3.1 原理

表面プラズモン顕微鏡は、表面プラズモン共鳴を用いて、膜厚や屈折率の2次元分布を観察する顕微鏡である。Fig. 5に代表的な表面プラズモン顕微鏡の光学系を示す。表面プラズモンはコリメートされたp偏光レーザー光によって励起される。反射光は顕微鏡対物レンズによりスクリーンまたはカメラ上に拡大し結像される。本顕微鏡において入射角は共鳴角付近に固定される。したがって、屈折率分布による共鳴角の変化は、反射率分布に変換され、最終的には像の明暗として得られる。このとき、像のコントラストは共鳴曲線の傾きが大きいほど、すなわち、ディップの幅が狭いほど高くなる。したがって、Fig. 3からわかるように、銀が最も良い感度を与える。ただし、銀は化学的に不安定であるため、コントラストを犠牲にしても、金が用いられることも多い。

空間分解能は通常の光学顕微鏡では、対物レンズの回折限界で決まるが、表面プラズモン顕微鏡の場合、それに加えて、表面プラズモンの伝搬長を考慮に入れなければならない。すなわち入射面と垂直方向の分解能は回折限界で与えられ、入射面と平行な方向の分解能は表面プラ

Fig. 5 Typical optical configuration of the surface plasmon microscopy.

Fig. 6 Reflectance difference for bare gold and gold covered with 2.5 nm SiO_2 (circles) and propagation length of surface plasmon (squares) as a function of wavelength.¹²⁾

ズモンの伝搬長で与えられる。このことはBergerら¹²⁾によって実験で確認されている。したがって、空間分解能を上げるためには、伝搬長を短くすればよい。伝搬長は銀に比べて金の方が、また、可視域では短波長の方が短くなる。問題は伝搬長が短くなるほどディップの幅が広がるため、得られる像のコントラストが減少することである。そのため実際には、必要以上に伝搬長を短くすることは得策ではない。Fig. 6は金の表面に厚さ2.5nmの SiO_2 薄膜をコートした場合としない場合とで得られる反射率の差と表面プラズモンの伝搬長を、励起光の波長の関数として表したものである¹²⁾。Bruijnら¹³⁾は試料を面内で回転させることにより、675nmの波長において銀を用いて1.5 μm の分解能を得ている。

3.2 定量測定

今までの顕微鏡では、共鳴角の入射角からのずれ量を、反射光強度の形で得るものであった。この方法は膜厚などの分布を2次元の明暗画像として、一度に観察できる特長がある。反射率分布から膜厚分布を定量的に求めているものもあるが¹⁴⁾、この方法は入射光の強度むらなど、雑音の影響を受けやすく、定量的な測定には不向きである。Hickel and Knoll¹⁵⁾は入射角を 0.4° ずつ変えて撮影した8枚の画像の、暗線をプロットすることで、膜厚の分布を等高線で表した。この方法は観察領域において、膜厚の変化が単調なときには適用できるが、変化が複雑になると適用困難になる。

著者らは、試料の各点で、反射光強度の角度分布を測定することで、共鳴角の2次元分布が得られる表面プラズモン顕微鏡を開発した¹⁶⁾。Fig. 7に光学系を示す。レーザー光を顕微鏡対物で試料上に集光し、その反射光を1次元のイメージセンサーで受光している。イメージセンサーでは試料の一点からの反射光の角度分布が、機械的走査なしに得られ、共鳴角を正確に求めることができる。試料とプリズムを一体にして2次元走査することにより、共鳴角のマッピングができ、そこから、屈折率分布や、膜厚分布が定量的に得られる。Fig. 8に本顕微鏡により測定したガラス基板に埋め込まれた光導波路の断面の屈折率分布を示す。試料表面に直接厚さ55nmの銀薄膜を真空蒸着し、イメージジョンオイルを介して、高屈折率プリズム($n=1.879$)に密着させた。本顕微鏡では 10^{-4} 以下の屈折率分解が得られている。もう1つの例として、LB膜のモルフォロジーを

Fig. 7 Surface plasmon microscope with an electronic angular scanning.¹⁶⁾

Fig. 8 Two-dimensional distribution of refractive index of an optical waveguide.¹⁶⁾

(a)

(b)

Fig. 9 Images of didodecylphosphate monolayers (a) deposited on gold covered with a polyimide monolayer observed with the surface plasmon microscope and (b) deposited on a glass surface observed with a fluorescence microscope.¹⁷⁾

観察した結果を示す。水面上の単分子膜は表面圧が大きくなるにしたがって、気体相から流動相をへて、結晶相へと相変化する。流動相と結晶相が混在するジドデシルリン酸の単分子膜を、ポリイミド膜を1層コートした厚さ45nmの金薄膜上に堆積し、それを観察した結果をFig. 9(a)に示す¹⁷⁾。明るい部分が結晶相で、流動相と比較して、 0.071° 共鳴角が大きくなっている。Fig. 9(b)に比較のために色素をドーブした同じLB膜の蛍光顕微鏡像を示す。結晶相では色素がはじきだされて、蛍光が得られていない。しかし、表面プラズモン顕微鏡では色素をドーブすることなく高感度で相状態の分布像が得られている。

4. 空間光変調素子への応用

表面プラズモン顕微鏡は誘電体の屈折率分布をコントラストに変換する。したがって、なんらかの方法で、誘電体の屈折率分布を自由に変化させることができれば、表面プラズモン顕微鏡はそのまま空間光変調素子になる。Yeatman and Caldwell¹⁸⁾は機能性媒質としてのネマチック液晶に格子状の電極で電圧をかけ、屈折率分布を与えることで、空間光変調素子を開発した。その後、彼らは光導電性薄膜であるアモルファスシリコンを格子電極と置き換えることで、光書き込み型の空間光変調器を実現している¹⁹⁾。著者らは機能性媒質として、色素ドーブ高分子を用いた全光型の空間光変調素子を提案した²⁰⁾。Fig. 10に光学系の概念図を示す。高屈折率プリズムに真空蒸着した銀薄膜に、厚さ $10\mu\text{m}$ 程度のメ

Fig. 10 Schematic diagram of the spatial light modulator using surface plasmon resonance.²⁰⁾

Fig. 11 Output images read out with (a) positive and (b) negative contrast modulation.²⁰⁾

チルオレンジをドーブしたポリビニルアルコールをコートしただけの簡単な構造となっている。書き込みには Ar^+ レーザー光を用い、読み出しには He-Ne レーザー光を用いている。Fig. 11に読みだされた画像を示す。Fig. 11(a)は書き込み光が照射されていない部分に対する共鳴角に入射角を一致させている場合で、正のコントラストが得られている。また、Fig. 11(b)では反対に、書き込み光が照射されている部分に対する共鳴角に入射角を一致させた場合で、コントラスト反転した像が得られる。このように本変調素子では、入射角を共鳴角の周りでわずかに変化させるだけで、コントラストを正負自由に変換することができる。なお、光照射における色素ドーブ高分子の屈折率変化は $-8.62 \times 10^{-4} \text{cm}^2/\text{W}$

で、主として光吸収による温度変化によるものであることを確認している。

5. おわりに

表面プラズモン顕微鏡の原理、特長、応用について述べた。表面プラズモン顕微鏡は試料を金属上に固定しなければならないという制約があるが、単分子膜の膜厚変化(または屈折率変化)が感度良く観察できることからわかるように、界面付近の情報を2次元的に得る手段としては非常に優れた方法である。

表面プラズモン顕微鏡で得られるデータは基本的に、共鳴角だけである。バルク試料の測定においては未知変数は屈折率だけであり、容易に求まる。しかし、薄膜試料の場合には、一般に膜厚と、屈折率の2つの未知数が存在し、両者の分離測定は困難である。今後、多波長を利用するなどして、両者を分離して観察できるようになることが望まれる。

なお、最近の話題として、表面プラズモン共鳴と走査型トンネル顕微鏡を組み合わせ、銀薄膜の表面や、それに吸着させた色素クラスターなどが数nmの空間分解能で観察されている²¹⁻²³⁾ことを付記しておく。このように、エヴァネッセント波を用いた光学技術に新しい展開をもたらす可能性も見えているので、微細構造の解析技術としての今後が期待される。

参 考 文 献

- 1) A. Otto: Z. Physik. **216** (1968) 398.
- 2) E. Kretschmann and H. Raether: Z. Naturforsch. **23a** (1968) 2135.
- 3) E. Yeatman and E. A. Ash: Electron. Lett. **23** (1987) 1091.
- 4) E. M. Yeatman and E. A. Ash: Proc. SPIE **897** (1988) 100.
- 5) E. M. Yeatman and E. A. Ash: Proc. SPIE **1028** (1988) 231.
- 6) B. Rothenhäusler, C. Duschl, and W. Knoll: Thin Solid Film **159** (1988) 323.
- 7) B. Rothenhäusler and W. Knoll: Nature **332** (1988) 615.
- 8) B. Rothenhäusler and W. Knoll: J. Opt. Soc. Am. **B5** (1988) 1401.
- 9) E. Kretschmann: Z. Physik. **241** (1971) 313.
- 10) H. Raether: *Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings* (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
- 11) I. Pockrand: Surf. Sci. **72** (1978) 577.
- 12) C. E. H. Berger, R. P. H. Kooyman, and J. Greve: Rev. Sci. Instrum. **65** (1994) 2829.
- 13) H. E. de Bruijn, R. P. H. Kooyman and J. Greve: Appl. Opt. **32** (1993) 2426.
- 14) H. Morgan and D. M. Taylor: Appl. Phys. Lett. **64** (1990) 1330.
- 15) W. Hickel and W. Knoll: Appl. Phys. Lett. **57** (1990) 1286.
- 16) T. Okamoto and I. Yamaguchi: Opt. Commun. **93** (1992) 265.
- 17) 田島信芳, 近藤聖二, 篠原悦夫, 越石喜代三, 岡本隆之, 山口一郎, 下村政嗣: 分光研究 **42** (1993) 156.
- 18) E. M. Yeatman and M. E. Caldwell: Appl. Phys. Lett. **55** (1989) 613.
- 19) M. E. Caldwell and E. M. Yeatman: Appl. Opt. **31** (1992) 3880.
- 20) T. Okamoto, T. Kamiyama and I. Yamaguchi: Opt. Lett. **18** (1993) 1570.
- 21) M. Specht, J. D. Pedarnig, W. M. Heckl and T. W. Hänsch: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 476.
- 22) J. D. Pedarnig, M. Specht, W. M. Heckl and T. W. Hänsch: Appl. Phys. **A55** (1992) 476.
- 23) Y.-K. Kim, P. M. Lundquist, J. A. Helfrich, J. M. Mikrut, G. K. Wong, P. R. Auvil and J. B. Ketterson: Appl. Phys. Lett. **66** (1995) 3407.
- 24) P. B. Johnson and R. W. Christy: Phys. Rev. **B6** (1972) 4370.
- 25) E. D. Palik (ed): *Handbook of optical constants of solids* (Academic Press, Orland, 1985).