

УВЕЛИЧЕНИЕ СИГНАЛА ГИГАНТСКОЙ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ ОТ ОСТРОВКОВЫХ ПЛЕНОК СЕРЕБРА В ГЕОМЕТРИИ НАРУШЕННОГО ПОЛНОГО ВНУТРЕННЕГО ОТРАЖЕНИЯ

*А.А.Голубцов, Н.Ф.Пилипецкий, А.Н.Сударкин,
В.В.Шелепенко, В.В.Якименко*

Экспериментально исследован эффект генерации гигантской ВГ от островковых пленок серебра. Выяснено, что сигнал ВГ резко возрастает, если пучок накачки падает на пленку под углами, превышающими угол ПВО для границы подложка – воздух. Отмечается, что выбор материала подложки может приводить к завышению значения эффективности генерации ВГ от таких пленок.

Известно, что достаточно тонкие пленки металлов, нанесенные на диэлектрическую подложку, не являются сплошными и имеют островковую структуру. Это обстоятельство позволяет использовать такие пленки при изучении эффектов аномального поглощения света (АПС)¹, гигантского комбинационного рассеяния (ГКР)^{2,3} и генерации гигантской второй гармоники (ВГ)^{4,5}. Наличие указанных эффектов обусловлено возможностью возрастания локального поля внутри островков металла и вблизи них вследствие возбуждения локализованных поверхностных плазмонов. Эффективность процесса при этом в большой степени зависит от величин фактора локального поля L на частоте возбуждающей волны и на частоте сигнала. Величина фактора L на частоте ω зависит от диэлектрической проницаемости металла $\epsilon(\omega)$, формы металлических частиц и коэффициента заполнения q (подробнее см.³). Ранее, на примере эффекта АПС нами было экспериментально показано⁶, что эффективная величина фактора $L(\omega)$ зависит также от геометрии эксперимента. Так при нарушенном полном внутреннем отражении (НПВО), когда световой пучок падает на островковую пленку со стороны подложки

под углом, превышающим угол полного внутреннего отражения для границы диэлектрик — воздух, эффективное значение фактора локального поля может быть заметно увеличено. Как будет показано в настоящей работе, использование геометрии НПВО позволило значительно увеличить сигнал гигантской ВГ от островковых пленок серебра.

Пленки изготовлялись путем вакуумного напыления на гипотенузу предварительно прогретых стеклянных призм. За один цикл напыления изготовлялось несколько пленок различной массовой толщины $d = m/\rho$, где m — масса, нанесенная на единицу площади, ρ — плотность металла. Скорость напыления во время каждого цикла была постоянной и составляла $0,5 \div 1 \text{ \AA}/\text{с}$. Массовая толщина пленок определялась с помощью взвешивания контрольного образца. Погрешность в определении d не превышала 10%. Наблюдалось полное повторение свойств пленок одинаковой массовой толщины, изготовленных в различных циклах напыления.

В эксперименте использовалось излучение YAG : Nd³⁺-лазера с длиной волны 1064 нм и длительностью импульса 15 нс. Интенсивность пучка накачки не превышала величины $0,5 \text{ МВт}/\text{см}^2$. Излучение ВГ от поверхности InSb, возбуждаемое частью пучка накачки, использовалось для калибровки. Основная доля пучка накачки, проходя через боковую грань призмы, падала на пленку со стороны стекла. Угол падения θ при этом мог быть изменен. Сигнал ВГ регистрировался с помощью ФЭУ. Было выяснено, что в геометрии НПВО излучение гигантской ВГ от островковых пленок серебра имеет малую расходимость, не превышающую расходимости пучка накачки. Как известно⁷, вследствие дисперсии материала призмы направления распространения пучка ВГ и отраженной части пучка накачки должны несколько отличаться, что подтверждалось в эксперименте. Наблюдалась квадратичная зависимость интенсивности гигантской ВГ $I_{2\omega}$ от интенсивности накачки I_{ω} . Поляризация излучения ВГ совпадала с поляризацией пучка накачки.

Помимо направленного, поляризованного пучка ВГ был зарегистрирован ненаправленный, деполаризованный, широкополосный фон неизвестной природы. Наблюдалась более резкая, чем квадратичная, зависимость интенсивности фона от I_{ω} . Общая мощность фона излучаемого пленкой в широком спектральном диапазоне в телесный угол 2π стерадиан, намного превосходила мощность направленной компоненты ВГ. Однако с помощью узкополосного интерференционного светофильтра удалось доказать, что в направленной компоненте содержится не менее 90% суммарного сигнала на частоте 2ω и, таким образом, рассеянной компонентой ВГ можно пренебречь.

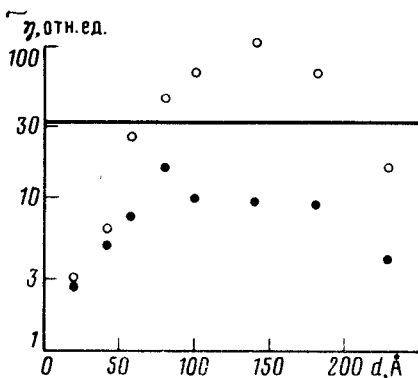


Рис. 1

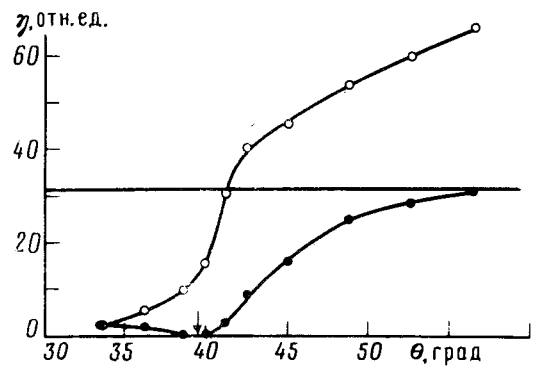


Рис. 2

На рис. 1 в логарифмическом масштабе приведены экспериментальные значения эффективности $\eta = I_{2\omega}/I_{\omega}^2$ генерации ВГ в зависимости от массовой толщины пленки d при угле падения $\theta = 45^\circ$ для p -поляризованного (темные кружки) и s -поляризованного (светлые кружки) пучка накачки. Единице на графике соответствует достижимая чувствительность нашей измерительной аппаратуры. Можно видеть, что максимальный сигнал был получен при $d = 80 \text{ \AA}$ в

случае p -поляризованной накачки и при $d = 140 \text{ \AA}$ в случае s -поляризованной накачки. На рис. 2 приведены экспериментальные значения эффективности генерации ВГ в зависимости от угла падения θ при фиксированной толщине пленки $d = 80 \text{ \AA}$. Можно видеть, что сигнал ВГ резко увеличивается при углах падения θ , превышающих угол ПВО (обозначен на оси абсцисс стрелкой) для поверхности раздела стекло – воздух. Для вычисления абсолютных значений эффективности генерации ВГ мы использовали объемный сигнал второй гармоники от тонкой пластины кристаллического кварца. На рисунках горизонтальной чертой обозначена величина, соответствующая 10^{-3} от максимальной эффективности генерации ВГ от кварцевой пластины. Сравнивая эффективность генерации ВГ от кварцевой пластины ($6,3 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$) и от гладкой поверхности серебра ($2,4 \cdot 10^{-21} \text{ см}^2/\text{Вт}$) (см. 4) с данными эксперимента можно заключить, что максимальная эффективность генерации гигантской ВГ, достигнутая нами в геометрии НПВО, равна $\eta = 2,05 \cdot 10^{-17} \text{ см}^2/\text{Вт}$, что в $8,5 \cdot 10^3$ раз больше, чем от гладкой поверхности серебра.

Важно отметить, что вследствие возбуждения локализованных плазмонов электромагнитное поле возрастает не только в металле, но и в приповерхностных слоях подложки, что также может приводить к увеличению сигнала ВГ. Так авторы работы 4 приписывают измеренную эффективность генерации ВГ $\eta = 2,5 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2/\text{Вт}$ островковой пленке серебра, напыленной на сапфировую подложку. Аналогичное значение η при использовании в качестве подложки сапфира получили и мы. Однако в случае использования стеклянной подложки зарегистрировать сигнал в геометрии, когда пучок накачки падает на островковую пленку со стороны воздуха, не удалось. Вероятно именно приповерхностные слои подложки, а не объем серебра, является источником сигнала ВГ в случае сапфировой подложки. При этом максимальный сигнал ВГ достигается при толщинах пленки, соответствующих наибольшему фактору локального поля (в 4 при $d = 36 \text{ \AA}$). В нашем случае величина сигнала зависит также от объема металла, участвующего в генерации ВГ. При этом оптимальными являются более толстые пленки.

В заключение отметим, что геометрия НПВО позволила нам увеличить эффективность генерации гигантской ВГ от островковых пленок серебра не менее, чем на два порядка. Поскольку, как уже было сказано выше, при НПВО увеличивается также аномальное поглощение света, можно констатировать, что эффективное значение фактора локального поля в этой геометрии заметно увеличивается. Поскольку описанный метод эффективного возбуждения локализованных плазмонов не вносит в эксперимент дополнительных усложнений, можно надеяться, что он найдет широкое применение и при изучении эффекта ГКР.

Литература

1. *Hunderi O.* Surface Sci., 1980, 96, 1.
2. *Furtak T.E., Reyes J.* Surface Sci., 1980, 93, 351.
3. *Емельянов В.И., Коротев Н.И.* УФН, 1981, 135, 345.
4. *Wokaun A., Bergman J.G., Heritage J.P., Glass A.M., Liao P.F., Olson D.H.* Phys. Rev. B., 1981, 24, 849.
5. *Акципетров О.А., Баранова И.М., Еловигов С.С., Елютин П.В., Есиков Д.А., Никулин А.А., Фоминых Н.Н.* Письма в ЖЭТФ, 1985, 41, 505.
6. *Голубцов А.А., Пилипецкий Н.Ф., Сударкин А.Н., Якименко В.В.* Поверхность, 1986, № 4, с. 87.
7. *Blombergen N., Ducuing J.* Phys. Lett., 1963, 6, 5.