

“ФЕКТ ГРОМООТВОДА”
“ИГАНТСКОЙ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ”

*И.М.Баранова, Е.Д.Мишина,
В.Петухов*

рой гармоники более чем в 10^5 раз при отражении на два порядка превосходит наблюдавшееся

гармоники (ВГ) — явление, заключающееся в значительном ВГ при отражении света от шероховатой поверхности серебра $^{1-3}$.

но гигантскому комбинационному рассеянию света (ГКР) и объясняет поля падающего излучения $E(\omega)$ вблизи шероховатой поверхности металла $L(\omega)E(\omega)$, где $L(\omega)$ — фактор локального поля.

Обычно механизм усиления локального поля $E_l(\omega)$ связывается с резонансным возбуждением в системе шероховатостей локализованных поверхностных плазмонов (ПП). В случае, когда размер неоднородности много меньше длины волны излучения накачки λ , справедливо электростатическое приближение, и фактор локального поля внутри эллиптической шероховатости металла определяется выражением ⁴:

$$L_{int}^{\Pi\Pi}(\omega) = 1/[1 - (1 - \epsilon_M(\omega)/\epsilon_0(\omega))A], \quad (1)$$

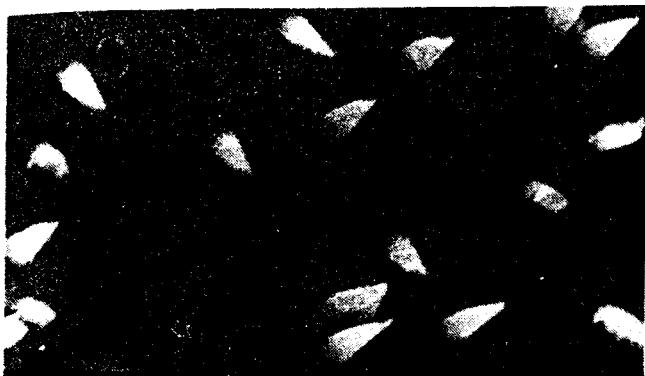
где $\epsilon_M(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega)$ и $\epsilon_0(\omega)$ – диэлектрические проницаемости металла и окружающей среды, фактор деполяризации $A = (1 - e^2)(\operatorname{arth} e - e)/e$, $e = \sqrt{1 - b^2/a^2}$ – eccentricитет эллипсоида вращения с полуосами a и b . В резонансе, когда $\operatorname{Re}[1 - (1 - \epsilon_M(\omega))\epsilon_0(\omega)]A = 0$, фактор $L_{int}^{\text{ПП}}(\omega) \sim 1/\epsilon_2(\omega)$. Для серебра в видимой области $L_{int}^{\text{ПП}} \sim 10$ и интенсивность гигантской ВГ $I_{2\omega} \sim L^4(\omega)$ возрастает на три – четыре порядка. Однако, что очень важно, при увеличении размера неоднородности резонансное плазмонное усиление на поверхности существенно уменьшается и при $a, b \sim \lambda$ $L_{int}^{\text{ПП}} \lesssim 1^5$.

В работе ⁶ показано, что при точном решении краевой задачи в выражении (1) появляется дополнительный множитель $L^3 \Gamma = 3/2(a/b)^2(1 - A)$, связанный не с резонансом ПП, а с возрастанием локального поля на поверхности большой кривизны – "эффект громоотвода" (ЭГ) ⁷. Экспериментально плазмонное усиление можно подавить, используя крупномасштабную неоднородность ($a, b \sim \lambda$). При этом усиление за счет ЭГ может оставаться значительным при использовании системы острый.

Нами исследовалась генерация гигантской ВГ на системе крупных конических острей, полученных по методу, предложенному Флеровым⁸. Были изготовлены серебряные реплики с лавсановых пленок, перфорированных тяжелыми ионами больших энергий и подвергнутых химическому травлению. На рисунке приведены фотографии такой реплики, полученные в двух масштабах на растровом электронном микроскопе (угол наклона образца к пучку электронов $\sim 30^\circ$). Характерный диаметр основания "конуса" $\sim 0,5 \text{ мкм}$, высота $2 - 3 \text{ мкм}$, радиус кривизны острия $< 100 \text{ \AA}$, коэффициент заполнения (отношение боковой площади острий к видимой площади реплики) $\eta \sim 0,1 - 0,2$.

Генерация гигантской ВГ наблюдалась при отражении излучения с $\lambda = 1,06 \text{ мкм}$ импульсного одномодового YAG : Nd³⁺ лазера с плотностью мощности $W \sim 10 \text{ кВт/см}^2$. Система регистрации излучения ВГ с $\lambda = 0,53 \text{ мкм}$ подобна². Была исследована диаграмма направленности излучения гигантской ВГ, которое оказалось распределенным практически равномерно в телесном угле 2π ср. При возбуждении линейно поляризованным светом излучение гигантской ВГ существенно деполяризовано. Эффективность генерации при s - и

p -поляризованном излучении накачки практически одинакова. В широком диапазоне W выполняется квадратичный закон для зависимости $I_2 \omega(W)$.



Фотография поверхности серебряной остройной реплики, полученная на сканирующем электронном микроскопе. Реплика снята с лавсановой пленки, перфорированной ионами аргона. Увеличение: $a - 10^4$ и $b - 3 \cdot 10^4$. Угол наклона образца к направлению пучка электронов $\sim 30^\circ$. Масштабная метка соответствует 1 мкм

Интенсивность диффузного сигнала гигантской ВГ сравнивалась с интенсивностью зеркальной ВГ от монолитного серебряного образца, либо от реплики, полученной на неперфорированной части пленки. Абсолютное возрастание сигнала в $(1 \div 2) \cdot 10^2$ раз с учетом коэффициента сбора диффузного излучения ВГ линзовой системой ($\sim 0,01$) и коэффициента заполнения η позволяет сделать нижнюю оценку величины поверхностного усиления $(1 - 2) \cdot 10^5$. Однако усиление, по-видимому, больше, поскольку основной вклад в него дает не вся поверхность острия, а лишь область с большой кривизной. В случае вытянутых эллипсоидов ($a/b = 2$) расчет показывает ⁹, что эффективно работает только 0,2 – 0,3 всей площади эллипсоидов. Таким образом, можно считать, что коэффициент поверхностного усиления ВГ на предложенной нами структуре близок к 10^6 и большая часть его определяется "эффектом громоотвода".

До настоящего времени плазмонное поверхностное усиление наблюдалось только для ВГ в серебре и золоте. Для неблагородных металлов гигантская ВГ не была обнаружена, усиление высших гармоник также не наблюдалось ¹⁰. Предложенные остройные структуры позволили нам обнаружить генерацию гигантской третьей гармоники в серебре и поверхностное усиление второй гармоники в алюминии.

В заключение авторы с благодарностью отмечают, что идея этого эксперимента предложена В.Б.Брагинским, выполнен он был благодаря помощи, обсуждениям и критике – Л.В.Келдыша, Г.Н.Флерова, В.Б.Брагинского. За помощь в подготовке и описании образцов мы благодарим Э.И.Рай, Б.В.Мчедлишвили и В.И.Кузнецова.

Литература

1. Chen C.K., de Castro A.R.B., Shen Y.R. Phys. Rev. Lett., 1981, **46**, 145.
2. Акципетров О.А., Мишина Е.Д., Петухов А.В. Письма в ЖЭТФ, 1983, **37**, 592.
3. Акципетров О.А., Мишина Е.Д., Письма в ЖЭТФ, 1983, **38**, 442.
4. Chen C.K., Heinz T.F., Ricard D., Shen Y.R. Phys. Rev. B, 1983, **27**, 1965.
5. Kerker M., Wang D.-S., Chew H. Appl. Opt., 1980, **19**, 3373.
6. Liao P.F. In "Surface enhanced Raman Scattering" ed. by Chang R.K., Furtak T.E., Plenum Press, N.Y., 1982.
7. Gersten J.I., Nitzan A. J. Chem. Phys., 1980, **73**, 3023.
8. Флеров Г.Н. Вестник АН СССР, 1984, **4**, 35.
9. Barber P.W., Chang R.K., Massoyan H. Phys. Rev. B, 1983, **27**, 7251.
10. Heritage J.P., Glass A.M. In "Surface Enhanced Raman Scattering" ed. by Chang R.K., Furtak T.E., Plenum Press, N.Y., 1982.

Московский
Государственный университет
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию
27 июля 1984 г.