

## ГИГАНТСКОЕ УСИЛЕНИЕ ГЕНЕРАЦИИ СУММАРНОЙ ЧАСТОТЫ ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ ПОВЕРХНОСТНОГО ПЛАЗМОН-ПОЛЯРИТОНА

*Е.В.Алиева, Э.Р.Элиел<sup>\*1)</sup>, Э.В.М.ван дер Хам<sup>\*1)</sup>, А.Ф.Г.ван дер Meer<sup>□1)</sup>,  
Ю.Е.Петров, В.А.Сычугов<sup>+</sup>, К.Х.Ф.Вреген<sup>\*1)</sup>, В.А.Яковлев<sup>2)</sup>*

*Институт спектроскопии РАН  
142092 Троицк, Московская обл., Россия*

*\* Huygens Laboratory, Leyden University  
2300 RA Leiden, The Netherlands*

*□ FOM-Institute for Plasma Physics Rijnhuizen  
P.O.BOX 1207,3430 BE Nieuwegein, The Netherlands*

*+ Институт общей физики РАН  
117942 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 18 сентября 1997 г.

Исследована генерация суммарной частоты видимого (0.5235 мкм) и ИК (10 мкм) излучений на гладкой и гофрированной поверхностях серебра. При возбуждении поверхностного плазмон-поляритона видимого диапазона на гофрированной границе серебро – воздух сигнал суммарной частоты возрастал более чем на четыре порядка по сравнению с сигналом на гладкой поверхности серебра.

PACS: 42.65.-k, 72.20.Ht, 73.20.Mf, 73.36.+c

Нелинейная спектроскопия генерации суммарной частоты (ГСЧ) в последние годы активно развивается как инструмент исследования поверхностей и границ раздела между средами [1]. Особенно перспективно исследование методами ГСЧ поверхностей сред, имеющих центр инверсии, поскольку в этом случае нелинейные оптические процессы происходят только на поверхности. Также перспективно исследование тонких, вплоть до монослойных, пленок на поверхности этих материалов. Однако интенсивность сигнала ГСЧ с большинства поверхностей очень мала.

Увеличить выход ГСЧ сигнала можно, резонансно увеличив величину электрического поля на исследуемой поверхности. Одним из самых простых и эффективных методов усиления поля на поверхности металла является возбуждение на ней поверхностного поляритона [2]. На металлических поверхностях возможно существование поверхностного плазмон-поляритона (ПП) в широком спектральном диапазоне – от дальней ИК до ультрафиолетовых областей спектра [3]. Интенсивность электромагнитного поля ПП максимальна на границе раздела сред и экспоненциально убывает при удалении от нее.

Для возбуждения ПП мы использовали дифракционную решетку (гофрированную поверхность серебра) [4]. В этом случае возбуждение ПП осуществляется падающим под заданным углом  $p$ -поляризованным пучком света на поверхность, гофрированную с периодом порядка длины волны.

<sup>1)</sup> E.R.Eliel, E.W.M.van der Ham, A.F.G.van der Meer, Q.H.F.Vrethen

<sup>2)</sup> e-mail: yakovlev@isan.troitsk.ru

Схема эксперимента приведена на рис.1. Используемая в настоящей работе установка описана в [5]. В качестве источника ИК-излучения использован лазер на свободных электронах FELIX [6]. Источник видимого излучения работает на второй гармонике Nd:YLF-лазера (длина волны второй гармоники 523.5 нм). Оба лазера синхронизованы между собой таким образом, чтобы с помощью плавной подстройки задержки импульса видимого излучения можно было добиваться максимального временного перекрытия микроимпульсов в нужной точке. Энергия микроимпульса FELIX и лазера видимого излучения составляла в среднем 10 и 8 мкДж, соответственно. Все измерения проведены при фиксированной длине волны излучения FELIX – 10 мкм. Сигнал суммарной частоты детектировался охлаждаемой жидким азотом ПЗС (приборы с зарядовой связью)-камерой (Princeton Instruments). Сигнал ГСЧ излучался с поверхности в виде приблизительно параллельного пучка, который с помощью линзы фокусировался на ПЗС-камеру. Фокусное расстояние линзы – 20 см. Для подавления сильного рассеянного излучения Nd:YLF-лазера использовался сменный селективный узкополосный фильтр (коэффициент пропускания – 70% на частоте сигнала ГСЧ и  $10^{-5}$  – на частоте Nd:YLF-лазера). Для контроля отсутствия сигнала Nd:YLF-лазера проводилась запись сигнала при перекрытом ИК-излучении.

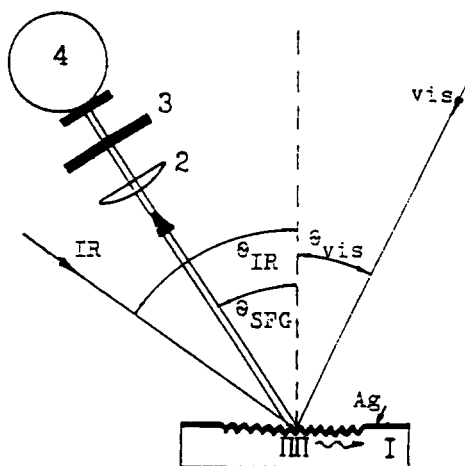


Рис.1. Схема экспериментальной установки: 1 – образец, 2 – фокусирующая линза, 3 – фильтр, 4 – ПЗС-камера

Дифракционные решетки наносились на часть поверхности стеклянных пластин фотолитографическим методом с последующим ионным травлением. Период решеток (определялся по дифракции луча видимого лазера) составил 305 нм для решетки I и 318 нм – для решетки II, глубина решеток – 15–20 нм. Сверху на решетки наносилась серебряная пленка толщиной около 200 нм термическим испарением в вакууме при давлении остаточных паров  $\approx 10^{-5}$  торр.

Для возбуждения III на границе раздела сред необходимо выполнение условия сохранения тангенциальной составляющей импульса. В случае, когда на поверхность нанесена дифракционная решетка, причем, как видимый, так и ИК-лучи лежат в плоскости, перпендикулярной ее штрихам, для границы раздела воздух – металл это условие можно записать в виде

$$\frac{1}{\lambda_{vis}} \sin \theta_{vis} - \frac{1}{\lambda_{ir}} \sin \theta_{ir} = \frac{1}{\lambda_{sfg}} \sin \theta_{sfg}, \quad (1)$$

где  $\lambda_{vis}$ ,  $\lambda_{ir}$ ,  $\lambda_{sfg}$  – длины волн видимого лазера, инфракрасного излучения FELIX и генерируемой суммарной частоты соответственно,  $\theta_{vis}$ ,  $\theta_{ir}$ ,  $\theta_{sfg}$  – соответствующие им углы падения (испускания).

Это же уравнение верно и в случае ГСЧ на гладкой поверхности образца [6]. Из этого следует, что мы можем сравнивать интенсивности ГСЧ с гладкой и гофрированной поверхностей простым параллельным смещением образца, сохраняя неизменной всю геометрию эксперимента.

В эксперименте углы падения на образец видимого и ИК-излучений изменялись одновременно поворотом образца. Угол между ними был фиксирован и составлял  $90.3^\circ$ . Угол максимального возбуждения ПП определялся экспериментально двумя независимыми методами: по минимуму зеркального отражения и визуально по максимуму рассеянного образцом света. В пределах экспериментальной погрешности оба метода дали одинаковые значения. Углы падения  $\theta_{vis}$ , соответствующие максимальному возбуждению ПП, приведены в таблице. Вычисленные с помощью этих величин значения действительной части эффективного показателя преломления ПП ( $n'$ ) [3], также представленные в таблице, находятся в хорошем согласии со значением 1.056, вычисленным из оптических постоянных серебра, приведенных в [7] (см. также [8]).

**Экспериментальные параметры и интенсивности сигнала ГСЧ, измеренные ПЭС-камерой (в импульсах) при различных конфигурациях образцов**

Образец	Период решетки, нм	$\theta_{vis}$	$n'$	$I_{sfg}$		
				конфиг. 1	конфиг. 2	гладкий металл
I	305	$40.3^\circ$	1.069	$1 \cdot 10^5$	82	57
II	318	$35.5^\circ$	1.065	$1.5 \cdot 10^6$	–	98

Измерения выхода ГСЧ проводились в трех различных конфигурациях:

1. Волновой вектор видимого излучения параллелен плоскости дисперсии решетки.
2. Волновой вектор видимого излучения перпендикулярен плоскости дисперсии решетки.
3. ГСЧ происходит на гладкой поверхности металла за пределами дифракционной решетки.

Переход между этими конфигурациями осуществляется поворотом образца на  $90^\circ$  или его параллельным смещением. Результаты этих трех измерений также приведены в таблице. Как видно из таблицы, в случае возбуждения ПП (конфигурация 1) усиление ГСЧ составляет  $\approx 10^3$  для образца I и  $\approx 1.5 \cdot 10^4$  для образца II. Отсутствие усиления в конфигурации 2 (ПП не возбуждается) указывает, что данный эффект не связан с увеличением шероховатости поверхности, которое могло произойти в процессе изготовления дифракционной решетки.

Известно, что вблизи угла возбуждения ПП угловая зависимость интенсивности зеркально отраженного от дифракционной решетки электромагнитного излучения имеет минимум [3, 4]. Если глубина решетки мала по сравнению с длиной волны падающего излучения, как это имеет место для всех решеток, используемых в настоящей работе, интенсивность ПП, а следовательно, и  $I_{sfg}(\theta_{vis})$ , должны быть пропорциональны  $1 - R(\theta_{vis})$ , где  $R(\theta_{vis})$  – коэффициент отражения видимого излучения от

решетки [3]. Указанные зависимости  $I_{sfg}(\theta_{vis})$ ,  $1 - R(\theta_{vis})$  для образца II приведены на рис.2. Как видно из рисунка, указанное соотношение в пределах экспериментальной погрешности выполняется. Полученные результаты однозначно указывают на то, что именно возбуждение ПП является причиной усиления ГСЧ, однако значение полученного коэффициента усиления примерно на 2 порядка превосходит ожидаемое усиление интенсивности электрического поля волны возбуждающего излучения на гофрированной поверхности [9]. Для выяснения причин столь большого расхождения необходимы дальнейшие исследования.

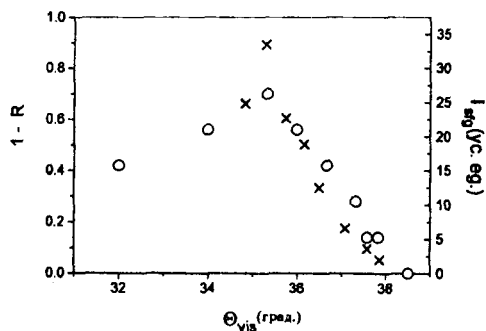


Рис.2. Зависимости величины  $1 - R(o)$  и интенсивности ГСЧ  $I_{sfg}(x)$  от угла падения видимого излучения для образца II в области возбуждения ПП

Авторы благодарят Нидерландский фонд исследования фундаментальных свойств материи (FOM) за поддержку и предоставление необходимого времени для работы на FELIX. Данная работа является частью исследовательской программы Нидерландского технологического фонда (STW), поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований (95-02-04194, 95-02-04195 и 97-02-16792). Авторы выражают благодарность Л.А.Кузик и И.Ф.Салахутдинову за помощь в подготовке эксперимента.

1. Y.R.Shen, Nature **337**, 519 (1989).
2. Е.В.Алиева, Г.Н.Жижин, В.А.Яковлев и др., Письма в ЖЭТФ **62**, 794 (1995).
3. Поверхностные поляритоны, под ред. В.М.Аграновича и Д.Л.Миллса, М.: Наука, 1985.
4. D.Beaglehole, Phys. Rev. Lett. **22**, 706 (1969).
5. E.W.M. van der Ham, Q.H.F.Vrethen, and E.R.Eliel, Optics Lett. **21**, 1448 (1996).
6. R.J.Bakker, D.A.Jaroszynski, A.F.G.van der Meer et al., J. Quantum Electron. **30**, 1635 (1994).
7. P.V.Jonson and R.V.Christy, Phys. Rev. **B6**, 4370 (1972).
8. M.A.Ordal, L.L.Long, R.J.Bell et al., Appl. Opt. **22**, 1099 (1983).
9. D.L.Mills and M.Weber, Phys. Rev. **B26**, 1075 (1982).