

## ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ ВСТРЕЧНЫХ ПОВЕРХНОСТНЫХ ПОЛЯРИТОНОВ НА ПОВЕРХНОСТИ КВАРЦА

*Е.В.Алиева, Г.Н.Жижин, В.А.Сычугов\*,  
В.А.Яковлев, А.Ф.Г. Ван дер Меер<sup>+1)</sup>, М.Дж. Ван дер Виль<sup>+2)</sup>*

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

*\*Институт общей физики РАН  
117942 Москва, Россия*

*+FOM-Institute for Plasma Physics  
3439 MN Nieuwegein, The Netherlands*

Поступила в редакцию 17 октября 1995 г.

При возбуждении встречных поверхностных поляритонов на кварце с дифракционной решеткой (период 18.2 мкм) ИК-излучением  $\sim 10$  мкм наблюдается генерация второй гармоники (ГВГ)  $\sim 5$  мкм в направлении, перпендикулярном поверхности образца. ГВГ максимальна в области щели шириной  $10 \text{ см}^{-1}$  на дисперсионной кривой поверхностных поляритонов кварца, обусловленной дифракционной решеткой.

Поверхностные поляритоны (ПП) – возбуждения, электрическое поле которых максимально на границе раздела и экспоненциально убывает при удалении от нее [1]. Это делает ПП чувствительным индикатором состояния поверхности, а усиление поля при возбуждении ПП позволяет надеяться на повышение эффективности нелинейно-оптических процессов на поверхности [2].

Генерация второй гармоники (ГВГ) видимого диапазона при возбуждении поверхностных плазмон-поляритонов на металле наблюдалась в [2,3]. При этом в [3] была использована схема одновременного возбуждения встречных поверхностных плазмон-поляритонов на дифракционной решетке. Мы использовали эту же схему для получения ГВГ среднего ИК диапазона на поверхности кварца с возбуждением встречных поверхностных фонон-поляритонов кварца.

У кварца наиболее высокочастотные  $E$  колебания попадают в область перестройки  $\text{CO}_2$ -лазера, и распространение ПП по поверхности кварца в этой области хорошо изучено [4-6]. ПП являются нерадикационными колебаниями, их волновой вектор превосходит волновой вектор излучения с той же частотой. Для возбуждения ПП на кварце мы применили решеточное преобразование ПП [1].

Возбуждение поверхностных поляритонов на дифракционной решетке происходит при равенстве волнового вектора ПП  $k_{\text{ср}}$  и суммы проекции волнового вектора излучения и вектора, кратного вектору обратной решетки. Если штрихи решетки перпендикулярны плоскости падения излучения, то этому соответствует

<sup>1)</sup>A.F.G. Van der Meer

<sup>2)</sup>M.J. Van der Wiel

$$k_{s,p} = \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta + \frac{2\pi p}{a}, \quad p = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots,$$

где  $\lambda$  – длина волны излучения,  $\theta$  – угол падения излучения,  $a$  – период решетки,  $p$  – порядок дифракции. При угле падения излучения, близком к  $30^\circ$ , можно выполнить условия одновременного возбуждения ПП, распространяющихся как по направлению распространения излучения ( $p = +1$ ), так и в противоположном направлении ( $p = -3$ ).

Дифракционные решетки были нанесены на поверхность кварца методом фотолитографии с последующим ионным травлением. Оптимальная глубина решеток определялась по максимальному возбуждению ПП на поверхности кварца и составила 0.9 мкм. Период решеток был выбран равным 18.2 мкм для возбуждения ПП кварца вблизи 9.3 мкм. Направление штрихов решетки было параллельно оптической оси кварца, лежащей в плоскости образца (в этом случае анизотропия оптических постоянных кварца не сказывается на спектрах ПП).

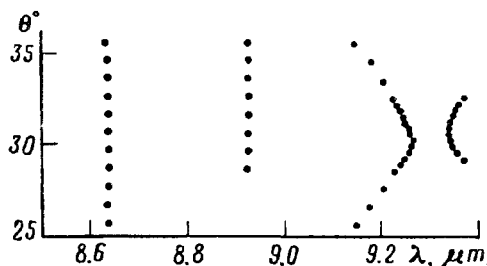


Рис.1

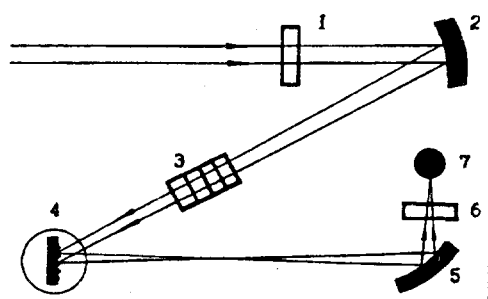


Рис.2

Рис.1. Частотная зависимость минимумов в спектрах отражения одного из образцов кварца с дифракционной решеткой (период решетки 18.2 мкм; глубина травления штрихов 0.9 мкм) от угла падения излучения

Рис.2. Схема экспериментальной установки для наблюдения ГВГ: 1 – фильтр, обрезаящий излучение с длинами волн меньше 7 мкм, 2 – сферическое зеркало ( $f = 1$  м); 3 – сеточный ослабитель, позволяющий менять интенсивность падающего излучения на 3, 5, 10 дБ; 4 – образец (кварц с дифракционной решеткой); 5 – параболическое зеркало; 6 – сапфировая пластина толщиной 0.4 см, поглощающая излучение с  $\lambda = 9.3$  мкм, но пропускающая излучение с  $\lambda = 4.65$  мкм; 7 – охлаждаемый азотом приемник излучения (HgCdTe)

Спектры ИК отражения образцов кварца с нанесенными решетками при различных углах падения излучения были исследованы на фурье-спектрометре Michelson 110 (ВОМЕМ). При возбуждении ПП при различных  $p$  наблюдаются минимумы в спектрах отражения. Частотная зависимость их положения от угла падения дает дисперсию ПП (рис.1). Видно, что взаимодействие ПП приводит к расщеплению дисперсионных кривых в точке их пересечения ( $\lambda = 9.3$  мкм;  $\theta = 30.6^\circ$ ).

Как сообщалось в работе [3], сильный сигнал ГВГ на серебрянных дифракционных решетках наблюдался при частотах, находящихся в щели дисперсионной кривой ПП при  $\lambda = 850$  нм. Мы решили провести подобные эксперименты на кварце, используя возбуждение поверхностных фонон-поляритонов.

Для наблюдения ГВГ использовалось излучение лазера на свободных электронах FELIX [7] со следующими параметрами: длительность макроимпульса 4.2 мс, частота повторения 5 Гц, длительность микроимпульсов 1.3 пс, частота повторения 1 ГГц, пиковая мощность в микроимпульсе 5 МВт. Длина волны излучения менялась от 8.5 до 9.8 мкм с шагом 0.05 мкм. Спектральная ширина линии излучения составляла 0.1 мкм,  $P$  – поляризованное излучение пучка (рис.2) – собиралось сферическим зеркалом 2 ( $f = 1$  м) на образец 4, смещенный от фокуса на 30 см. В этом случае диаметр пятна излучения на образце был равен 0.23 см. Образец был помещен на столик теодолита с угловым отсчетом 0.05°. Угол падения излучения  $\theta$  устанавливался 30.6° (угловая ширина пучка излучения была равна 0.6°). Сеточный ослабитель 3, установленный перед образцом, позволял менять интенсивность падающего излучения на 3, 5, 10 дБ, а фильтр 1 поглощал излучение с длинами волн короче 7 мкм (пропускание фильтра на 5 мкм менее 0.1%). Излучение, идущее от образца по нормали (вторая гармоника), фокусировалось параболическим зеркалом 5 на охлаждаемый жидким азотом приемник излучения 7. Перед приемником была установлена сапфировая пластина 6 толщиной 0.4 см, поглощающая излучение с  $\lambda = 9.3$  мкм (коэффициент пропускания излучения 10 мкм менее 0.1%), но пропускающая излучение с  $\lambda < 5$  мкм.

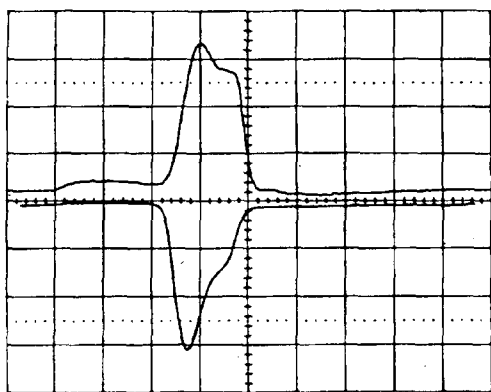


Рис.3. Форма макроимпульса излучения, падающего на образец (верхняя кривая) и форма импульса сигнала приемника, соответствующая ГВГ на поверхности кварца (нижняя кривая).

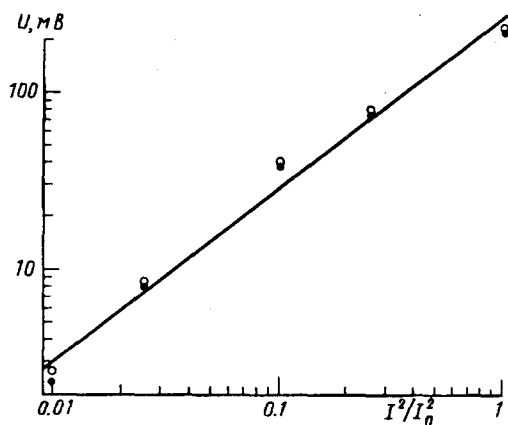


Рис.4. Зависимость интенсивности ГВГ от квадрата интенсивности падающего излучения ( $\lambda = 9.3$  мкм): точки – экспериментальные значения, сплошная прямая – линейная аппроксимация, соответствующая квадратичной зависимости ГВГ от интенсивности падающего излучения

На рис.3 показаны форма макроимпульса излучения, падающего на образец (верхняя кривая), и форма импульса сигнала приемника, соответствующая ГВГ на поверхности кварца (нижняя кривая). Искажение формы импульса характерно для нелинейных процессов, оно обусловлено большей плотностью мощности излучения в начале макроимпульса (за счет меньшей длительности микроимпульсов). В нашем эксперименте длительность микроимпульсов в начале макроимпульса была равна 1.3 пс.

Была измерена зависимость сигнала приемника от интенсивности падающего излучения, которая менялась сеточным ослабителем (3, рис.2). Зависимость интенсивности ГВГ от квадрата интенсивности падающего излучения (длина волны 9.3 мкм) приведена на рис.4: точки – экспериментальные значения, сплошная прямая – линейная аппроксимация, соответствующая квадратичной зависимости ГВГ от интенсивности падающего излучения. Наблюдение квадратичной зависимости интенсивности сигнала от интенсивности падающего излучения служит подтверждением ГВГ на данном образце.

Для проверки того, что ГВГ связана именно с ПП, возбуждающимися на поверхности кварца с помощью решеток, мы проделали следующие измерения:

- 1) изменили ориентацию образца – установили штрихи решетки параллельно плоскости падения излучения – условие возбуждения ПП в этом случае не выполняются. Величина сигнала упала до уровня шума;
- 2) сместили образец так, что излучение попало на гладкую поверхность кварца – ПП при этом также не возбуждаются. Величина сигнала также упала до уровня шума.

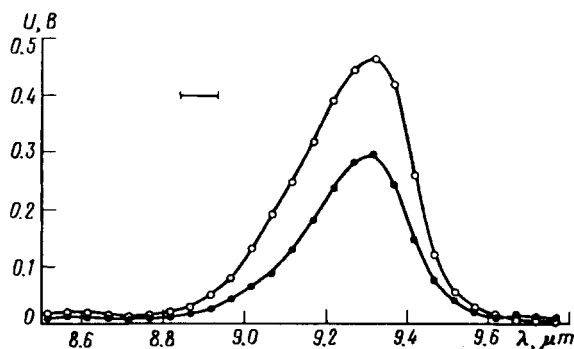


Рис.5. Частотная зависимость сигнала ГВГ на чистой поверхности образца кварца с дифракционной решеткой (период 18.2 мкм; глубина травления штрихов 0.9 мкм) – черные кружки, и покрытой диэлектрической пленкой толщиной 200 Å – светлые кружки. Сплошные линии проведены через экспериментальные точки. Отрезком показана ширина спектральной линии излучения FELIX

ПП на кварце существуют в узком спектральном диапазоне, соответственно и ГВГ должна наблюдаться в этом же спектральном диапазоне. Была измерена частотная зависимость сигнала ГВГ при оптимальном угле падения излучения на образец 30.6°, она представлена на рис.5 (нижняя кривая). Максимальная величина сигнала приходится на длину волны 9.3 мкм в хорошем согласии с положением щели дисперсионной кривой ПП этого образца (рис.1). Эффективность возбуждения ГВГ составила  $1.2 \cdot 10^{-9}$ .

Наличие прозрачной диэлектрической пленки на поверхности приводит к большей локализации напряженности ПП вблизи поверхности образца [1], поэтому можно было ожидать увеличения интенсивности ГВГ в присутствии такой пленки. На образец была нанесена диэлектрическая пленка толщиной 200 Å методом Лэнгмюра – Блоджетт. В спектрах отражения было видно, что это привело к увеличению на 30% поглощения в полосах, соответствующих возбуждению ПП. На этом образце также была измерена частотная зависимость сигнала ГВГ, она представлена на рис.5 верхней кривой. Величина сигнала ГВГ также возросла. Это служит добавочным подтверждением того, что наблюдаемая ГВГ обусловлена именно ПП, возбуждающимися на поверхности кварца.

Авторы благодарят А.А.Сигарева за нанесение диэлектрической пленки методом Лэнгмюра – Блджетт.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и Фонда Сороса.

- 
1. Г.Н.Жижин, М.А.Москалева, Е.В.Шомина, В.А.Яковлев, Сб.: *Поверхностные поляритоны*, под ред. В.М.Аграновича и Д.Л.Миллса. М.: Наука, 1985. (G.N.Zhizhin, M.A.Moskaleva, E.V.Shomina, V.A.Yakovlev, in *Surface polaritons*, Eds. V.M.Agranovich and D.L.Mills, North-Holland, Amsterdam, 1982).
  2. И.Р.Шен, Ф. де Мартини, Сб.: *Поверхностные поляритоны*, под ред. В.М.Аграновича и Д.Л.Миллса. М.: Наука, 1985. (Y.R.Shen, F.deMartini, in *Surface polaritons*, Eds. V.M.Agranovich and D.L.Mills, North-Holland, Amsterdam, 1982).
  3. G.Blau, J.L.Coutaz, and R.Reinisch, *Optics Letters* **18**, 1352 (1993).
  4. Г.Н.Жижин, В.А.Масленников, В.И.Силин и др., *ФТТ* **27**, 198 (1985).
  5. V.I.Silin, S.A.Voronov, V.A.Yakovlev, and G.N.Zhizhin, *Int. J. Infrared and Millim. Waves* **10**, 101 (1989).
  6. Е.В.Алиева, Л.А.Кузик, Ф.А.Пудонин, В.А.Яковлев, *ФТТ* **34**, 3233 (1992).
  7. D.Oepts, A.F.G. van der Meer, and P.W. van Amersfoort, *Infrared Physics and Technology* **36**, 297 (1995).