

О ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ НА ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛА

Н.Н. Ахмедиев, И.В. Мельников, Л.И. Робур

Показано, что существенную роль в генерации отраженной от металла второй гармоники играет нормальная компонента нелинейных поверхностных токов, при вычислении которой необходимо учитывать эффекты пространственной дисперсии. Результаты расчетов хорошо согласуются с экспериментальными данными.

В одной из первых экспериментальных работ [1] по генерации второй гармоники (ГВГ) при отражении лазерного излучения от поверхности металла отмечалось качественное расхождение с результатами расчетов, выполненных в рамках модели свободных электронов [2]; учет межзонного поглощения [3] не устранил этого расхождения. В работе [4] указывалось на необходимость учета нормальной составляющей нелинейных поверхностных токов. Там же отмечалось, что в общем случае такой расчет наталкивается на значительные трудности.

В этой заметке сообщаются результаты теоретического и экспериментального исследования процесса ГВГ на зеркальной поверхности металла. Теория развивается в приближении "тонкого" переходного слоя ($\omega L/v_F \ll 1$, $L \ll \lambda$, L — толщина слоя, v_F — скорость Ферми, ω и λ — частота и длина волны накачки), когда существенны эффекты пространственной дисперсии. Экспериментально исследовалась ГВГ при отражении излучения ИАГ: Nd^{3+} лазера от поверхности серебра.

Декартова система координат располагалась таким образом, чтобы металл занимал полупространство $z > 0$. На поверхность металла из вакуума под углом Θ падала р-поляризованная волна с амплитудой E_p ; плоскость падения совпадала с плоскостью хz. Считаем, что оптические свойства металла удовлетворительно описываются моделью вырожденной бесстолкновительной электронной плазмы с пространственной дисперсией. В этом случае электрическое поле в металле на частоте ω состоит из продольной $E_{||}$ и поперечной E_{\perp} частей, причем в интересующем нас случае $\omega < \omega_p$ (ω_p — плазменная частота) продольная компонента поля приводит к плазменному экранированию, являясь именно тем "переходным" слоем, который обуславливает появление нелинейных поверхностных токов. Процедура нахождения последних может быть значительно упрощена, если пренебречь процессом обратной перекачки энергии из ВГ в волну накачки и предположить зеркальное отражение электронов от границы металл-вакуум. Тогда из уравнений Власова следует, что нормальная компонента плотности поверхностного тока на частоте 2ω является суммой двух слагаемых

$$j^z(2\omega) = j_{||}^z + j_{||}^z = \frac{3e^3 N}{i2m^2 \omega^3} E_p^2 \sin^2 \Theta [\epsilon_1(\omega) - 1] \times \\ \times \left[\frac{4}{a^3} (\text{Arth } a - 2\text{Arth } \frac{a}{2}) + \frac{\epsilon_1(\omega) - 1}{2(1 - a^2)^2} \right]$$

и представляет собой двойной слой на границе; параметр $a = kv_F/\omega$ определяется из дисперсионного соотношения для продольных волн

$$(a - \text{Arth } a)/a^3 = -\omega^2/3\omega_p^2.$$

Учет пространственной дисперсии при вычислении "объемного" тока и тангенциальной компоненты поверхностного j_{\perp}^x не важен. Соответствующие выражения, совпадающие с полученными ранее /2, 4/, таковы:

$$j_{\perp\perp} = - \frac{e^3 N}{2m^2 \omega^2 c} [E_{\perp} H] \exp \left\{ i \frac{2\omega}{c} (\sin \Theta x + G_1 z) \right\}, \quad (1)$$

$$j_{\perp}^x = \frac{e^3 N}{im^2 \omega^2 \omega} (\epsilon_{\perp}(\omega) - 1) E_{\perp}^x E_{\perp}^z \exp \left\{ i \frac{2\omega}{c} x \sin \Theta \right\},$$

где $E_{\perp}^x = Z_p H^y$, $E_{\perp}^z = -H^y \sin \Theta / \epsilon_{\perp}$, $H^y = 2E_p \cos \Theta / (Z_p + \cos \Theta)$, $Z_p = G_1 / \epsilon_{\perp}$, $G_1 = (\epsilon_{\perp}(\omega) - \sin^2 \Theta)^{1/2}$, $\epsilon_{\perp}(\omega)$ — поперечная диэлектрическая проницаемость.

Граничные условия в случае двойного слоя имеют вид /5/:

$$\begin{aligned} [E^x]_{z=+0}^{z=-0} &= -4\pi \partial P^z / \partial x, \quad [H^y]_{z=+0}^{z=-0} = -4\pi j_{\perp}^x, \\ P^z &= - (2i\omega)^{-1} j_{\perp}^z \exp(2ik_x x - 2i\omega t), \quad k_x = \omega \sin \Theta / c. \end{aligned} \quad (2)$$

Условия (2) совместно с уравнением (1) дают решение для амплитуды магнитного поля отраженной под углом Θ ВГ

$$H_R = 4\pi e^3 N E_p^2 F(\Theta) / im^2 \omega^3 c, \quad (3)$$

где N — концентрация электронов, а функция $F(\Theta)$ определяет угловую зависимость ГВГ ($I_{2\omega} \sim |F(\Theta)|^2$):

$$\begin{aligned} F(\Theta) &= \sin \Theta \cos^2 \Theta (\epsilon_{\perp}(\omega) - 1) (\epsilon_{\perp}(\omega) (\epsilon_{\perp}(\omega) - 1)^{-1} - 4(\omega/\omega_p)^2 G_1 G_2 + \\ &+ 6\epsilon_{\perp}(2\omega) \sin^2 \Theta (4a^{-3} (\text{Arth } a - 2\text{Arth } a/2) + (\epsilon_{\perp}(\omega) - 1)/2) \epsilon_{\perp}^{-1}(\omega) \times \\ &\times (G_1 + \epsilon_{\perp}(\omega) \cos \Theta)^{-2} (G_2 + \epsilon_{\perp}(2\omega) \cos \Theta)^{-1}, \\ G_2 &= (\epsilon_{\perp}(2\omega) - \sin^2 \Theta)^{1/2}. \end{aligned} \quad (4)$$

Соотношения (3), (4) будут использованы ниже при обсуждении результатов эксперимента.

Экспериментальная установка и методика измерений подробно описаны в работе /6/. Применялся ИАГ: Nd^{3+} лазер, который генерировал импульсы длительностью 12 нс с максимальной энергией 30 мДж. Угол падения излучения на образец менялся от 30 до 85°. Использовалась оптически толстая пленка серебра, полученная напылением в высоком вакууме (давление $< 10^{-4}$ Па) на полированную стеклянную подложку. Излучение лазера и отраженная гармоника были поляризованы в плоскости падения.

Сопоставление полученной в эксперименте угловой зависимости ГВГ с результатами вычислений для различных теоретических моделей приведено на рис. 1. Здесь кружками изображается отношение интенсивности ВГ $I_{2\omega}(\Theta)$, усредненной по 100 реализациям, к максимальной для серебра величине $I_{2\omega}^{\max}$, достигающейся при $\Theta = 75,5^\circ$. Сплошной линией представлены результаты расчета относительного коэффициента нелинейного отражения $\rho(\Theta) = I_{2\omega}(\Theta) / I_{2\omega}^{\max}$ с использованием формул (3), (4) и данных из табл. 1, где приводится сводка эллипсометрических измерений оптических констант на частотах ω и 2ω ; эти измерения были выполнены на том же образце, что и нелинейно-оптические. Зависимость $\rho(\Theta)$, рассчитанная в приближении "толстого" переходного слоя /7/ ($\omega L / v_F \gg 1$), когда эффекты пространственной дисперсии несущественны, практически совпадает с рассчитанной по модели "тонкого" слоя. Пунктиром изображены результаты вычислений, проведенных без учета двойного слоя на границе /2/.

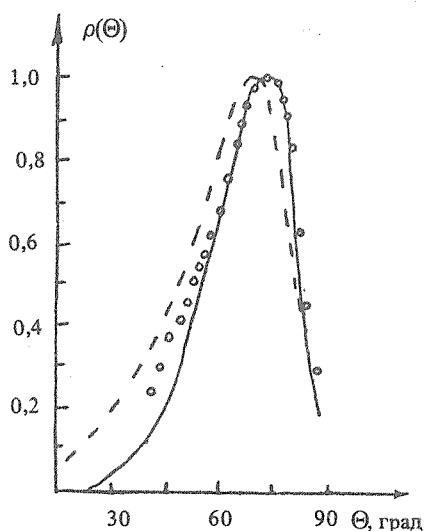


Рис. 1. Сопоставление экспериментальных и теоретических угловых зависимостей ГВГ для серебра.

Таблица 1

Диэлектрическая проницаемость серебра $\epsilon_{\perp} = \epsilon'_{\perp} + i\epsilon''_{\perp}$ на длинах волн 1,06 и 0,53 мкм

Длина волны, мкм	ϵ'_{\perp}	ϵ''_{\perp}
1,06	-45,9	1,21
0,53	-10,2	0,291

Сравнительный анализ кривых на рис. 1 показывает, что учет нормальной составляющей нелинейных поверхностных токов дает качественно наиболее верное описание процесса ГВГ, особенно для тех Θ , при которых коэффициент ρ близок к единице. При малых Θ наш расчет приводит к заниженным по сравнению с экспериментальными значениям $\rho(\Theta)$, что, по-видимому, является следствием теплового воздействия лазерного излучения.

Так как для серебра на длине волны 1,06 мкм при $\Theta = 45^\circ$ известна эффективность генерации [3/

$$[I_{2\omega}(45^\circ)/I_{\omega}^2(45^\circ)]^{1/2} = 1,3 \cdot 10^{-9} \text{ ед. СГСЭ}, \quad (5)$$

можно сравнить величину эффективности ГВГ $I_{2\omega}^{\max}/I_{\omega}^2$, вычисленную в рамках различных подходов, с ее экспериментальным значением, которое может быть получено из (5) с помощью эмпирического соотношения $\rho(45^\circ) = 0,17$ (рис. 1). Соответствующее сравнение, приведенное в табл. 2, показывает, что экспериментальному значению $I_{2\omega}^{\max}/I_{\omega}^2$ наилучшим образом отвечает результат вычислений по модели "тонкого" переходного слоя.

Таблица 2

Эффективность ГВГ при отражении от серебра $(I_{2\omega}^{max}/I_{\omega}^2) 10^{18}$, см²/Вт

Эксперимент	$\omega L/v_F \ll 1$	$\omega L/v_F \gg 1$	Без учета двойного слоя
5,8	5,4	5,2	1,8

ЛИТЕРАТУРА

1. Sonnenberg H., Heffner H. JOSA, 58, 209 (1968).
2. Bloembergen N. et al. Phys. Rev. Lett., 16, 986 (1966).
3. Bloembergen N. et al. Phys. Rev., 174, 813 (1968).
4. Rudnick T., Stern E. A. Phys. Rev., B4, 4274 (1971).
5. Страттон Дж. Теория электромагнетизма. М., ОГИЗ, 1948, с. 174.
6. Белый М. У. и др. Квантовая электроника (Киев), вып. 30, 77 (1986).
7. Ахмедиев Н. Н. ЖТФ, 45, 2109 (1975).

Поступила в редакцию 12 июля 1988 г.