金属与非线性晶体界面上光学倍频信号的增强

王文澄 陈 湛 王恭明 章志鸣 (复旦大学物理系)

本文报导在不同金属(如 Ag、Au 等)薄膜与非线性晶体界面上光学倍频的增强效应的实验结果。采用 ATR 的 Kretchmann 结构,把一束 YAG 激光器输出的 1.06 μm 基频光,耦合 到金属薄膜与晶体的界面上,当满足表面等离子振荡激元(SP)的激发条件时,可以测量到增强的二次谐波(SH)信号,该信号由 Boxcar 积分器及打印机直接给出。

在同一种石英晶体的基板上,分别镀上厚度为 \sim 500 Å 的 Ag 及 Au 的薄膜,我们分别观测到约 440 倍及约 220 倍的增强 SH 信号。这表明,Ag-石英的 SH 峰值信号比 Au-石 英 的 要大一倍,同时,前者的 $I_R(2\omega)\sim\theta$ 的曲线半宽度却比后者要小一倍半。文中给出它们的理论计算曲线,并比实验结果进行了比较和讨论。

我们还测量了 Ag-空气与 Au-空气两种界面上的 SH 信号。对于 Ag-空气界面,只观测 到约 16 倍的增强,而对 Au-空气没有观测到 SH 信号。

以上结果表明,对于金属与石英晶体界面,SH 信号 $I_{k}(2\omega)$ 主要由石英晶体表面层的非线性极化 $P_{nk}^{NL}(2\omega)$ 所决定,它比金属表面层的非线性极化 $P_{nk}^{NL}(2\omega)$ 要大一至二个数量级。

为了证实 SH 信号的增强主要取决于基板的非线性极化率,我们还观测了在 Ag-ADP晶体及 Ag-石英晶体两种界面上反射的 SH 信号的增强效应。实验结果表明,Ag-ADP界面上的 $I_R(2\omega)$ 的峰值要比 Ag-石英界面上的 $I_R(2\omega)$ 的峰值要比 Ag-石英界面上的 $I_R(2\omega)$ 的峰值要大 1.9 倍,而理论计算的 $(I_R(2\omega)|_{ADP}/I_R(2\omega)|_{ABP})$ 等于 3.3。两者之间的偏离是由于 ADP晶体易潮解使其表面发生变化的缘故。因潮解而变得粗糙的表面破坏了共振激发 SP 的条件,从而使得 SH 信号变小。

为了进一步证明 SH 信号增强效应的确是一种表面现象,而与介质的体效应无关,我们在两块厚度不同的 ADP 晶体上镀相同厚度的 Ag 膜,并测量了它们的 SH 信号。实验确实测量到大小相同的 SH 信号。

金属与非线性晶体界面上的 SH 信号的增强明显地依赖于 SP 的共振激发及基板的 非线性极化率。这个增强可作为研究表面及界面光学性质的一种手段。