第6卷 第5期
1986年5月

光 学 学 报
ACTA OPTICA SINICA

Vol. 6, No. 5
May, 1986

# 在 GaAs–Al 矩形光栅界面上表面增强二次谐波产生

崔大复 陈正豪 周岳亮 吕惠宾
(中国科学院物理研究所)

**提 要**

我们以 GaAs-Al 矩形光栅界面为例具体推导了二次谐波产生的公式。依据 Bloembergen 和 Pershan 关于非线性介质的理论，用微扰论方法求解了麦克斯韦方程。理论公式和数值计算均表明，表面增强二次谐波起源于共振激励表面电磁波。

## 一、引 言

最近几年，人们对电磁波与粗糙表面的相互作用甚感兴趣。其原因主要是利用界面的粗糙性可以将体电磁波耦合成表面电磁波[1,2]，此外粗糙表面可以引起表面增强非线性光学效应，如表面增强喇曼散射[3]，表面增强二次谐波产生[4]等。对于增强的机理有若干不同的解释，人们认为共振激励产生表面电磁波是引起增强效应的主要原因[5~8]。我们以 GaAs–Al 光栅界面为例，计算了在不同入射角条件下二次谐波强度。结果表明，二次谐波增强的确起源于表面电磁波的共振激励。

## 二、基 本 方 程

取 GaAs 晶体表面为(1 1 0)方向，一维矩形光栅的周期为 2 μm，占空比为 1:1，槽深 $\xi$ 约为 5000 Å，沟槽取向与(1 $\bar{1}$ 0)方向一致，即光栅波矢量 $\boldsymbol{g}$ 沿着(0 0 1)方向。然后，在光栅表面镀一层铝(Al)膜。对于波长为 10.6 μm 的 TEA $CO_2$ 激光光源，则有 $\xi \ll (\lambda/2)$。这时，可以用微扰方法求解二次谐波的麦克斯韦方程。

让基频波从 GaAs 晶体一侧入射到光栅界面上。由于 GaAs 的非线性系数比金属大得多，所以可以只考虑 GaAs 的非线性，而视金属 Al 是线性介质。按照上述的晶体取向，实验室坐标系$(x, y, z)$与晶体坐标$(\bar{x}, \bar{y}, \bar{z})$的变换关系是

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\bar{z} \\ (1/\sqrt{2})(\bar{y}-\bar{x}) \\ (1/\sqrt{2})(\bar{x}+\bar{y}) \end{pmatrix}。 \tag{1}$$

界面的函数方程是 $f(x, y, z)=0$。令金属 $a$ (Al) 占据 $f>0$ 的空间，非线性介质 $b$ (GaAs) 占据 $f<0$ 的空间。对于一维矩形光栅界面

收稿日期：1985年7月1日；收到修改稿日期：1985年10月22日

$$\left.\begin{aligned} &f(x, y, z)=z-\xi\sum_{m}^{\infty}C_m\exp(imgx), \qquad m=\pm1, \pm2, \cdots\\ &C_m=(1/2)\sin C(m/2), \end{aligned}\right\} \tag{2}$$

在金属和非线性晶体中的二次谐波方程分别是

$$\left.\begin{aligned} &\nabla\times\nabla\times\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}, 2\omega)-\frac{4\omega^2}{c^2}\epsilon_a(2\omega)\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}, 2\omega)=0, \quad f>0\\ &\nabla\times\nabla\times\boldsymbol{E}_b(\boldsymbol{r}, 2\omega)-\frac{4\omega^2}{c^2}\epsilon_b(2\omega)\boldsymbol{E}_b(\boldsymbol{r}, 2\omega)=\frac{16\pi\omega^2}{c^2}\boldsymbol{P}^{NL}(2\omega), \quad f<0 \end{aligned}\right\} \tag{3}$$

其中 $\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}, 2\omega)$为金属中的二次谐波场，$\boldsymbol{P}^{NL}(2\omega)$是晶体的二阶非线性极化强度，它是产生二次谐波的源，$\boldsymbol{E}_b(\boldsymbol{r}, 2\omega)$为 GaAs 中的二次谐波场，它是自由波 $\boldsymbol{E}_{bf}(\boldsymbol{r}, 2\omega)$和驱动波 $\boldsymbol{E}_{bp}(\boldsymbol{r}, 2\omega)$的叠加。在$f=0$ 的界面处，场满足如下边界条件

$$\left.\begin{aligned} &\boldsymbol{n}\times[\boldsymbol{E}_b(\boldsymbol{r}, 2\omega)-\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}, 2\omega)]|_{f=0}=0,\\ &\boldsymbol{n}\times\{\nabla\times[\boldsymbol{E}_b(\boldsymbol{r}, 2\omega)-\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}, 2\omega)]\}|_{f=0}=0, \end{aligned}\right\} \tag{4}$$

其中 $\boldsymbol{n}$ 是垂直于界面$f=0$ 的法向单位矢量，按定义

$$\boldsymbol{n}=\nabla f/|\nabla f|。 \tag{5}$$

在一般情况下，非线性方程组(3)式是难以求解的，但是当$\xi\ll(\lambda/2)$时，可以将场及其有关的物理量展成$\xi$的幂级数，然后用微扰论方法来处理[9]，将(2)式代入(5)式并展成$\xi$的级数，则有

$$\boldsymbol{n}=\boldsymbol{e}_z-\xi\left(\sum_{m}^{\infty}iC_m mg e^{imgx}\right)\boldsymbol{e}_x-(\xi^2/2)\left(\sum_{m}^{\infty}C_m mg e^{imgx}\right)^2\boldsymbol{e}_z+\cdots, \tag{6}$$

因此

$$\frac{\partial}{\partial n}=\frac{\partial}{\partial z}-\xi\left(\sum_{m}^{\infty}iC_m mg e^{imgx}\right)\frac{\partial}{\partial x}-(\xi^2/2)\left(\sum_{m}^{\infty}C_m mg e^{imgx}\right)^2\frac{\partial}{\partial z}+\cdots。 \tag{7}$$

为了求方程(3)式且满足边界条件(4)式的解，我们必须首先得到基频波入射到光栅界面上以后，在反射方向上的各级基频衍射波的场的表达式以及相应的各级驱动波场的表达式。

## 三、基频衍射波及驱动波

设入射基频波 $\boldsymbol{E}^{(i)}(\boldsymbol{r}, \omega)$为 s 偏振，与 $y$ 轴方向相平行。它从非线性晶体一侧入射到光栅界面上，其表达式是

$$\boldsymbol{E}^{(i)}(\boldsymbol{r}, \omega)=\boldsymbol{E}_s^{(i)}\exp[i(k_{bx}\boldsymbol{e}_x+k_{bz}\boldsymbol{e}_z)]。 \tag{8}$$

按照 Ewald-Oseen 消光定理，金属中的基频透射波 $\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}, \omega)$和非线性晶体中基频反射波 $\boldsymbol{E}_b(\boldsymbol{r}, \omega)$满足如下方程

$$\left.\begin{aligned} &\boldsymbol{E}^{(i)}(\boldsymbol{r}, \omega)=\frac{1}{4\pi k_b^2}\nabla\times\nabla\times\int_s ds'\left[\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}', \omega)\frac{\partial G(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')}{\partial n}-G(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')\frac{\partial\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}', \omega)}{\partial n}\right]=0,\\ &\boldsymbol{E}_b(\boldsymbol{r}, \omega)=\frac{1}{4\pi k_b^2}\nabla\times\nabla\times\int_s ds'\left[\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}, \omega)\frac{\partial G(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')}{\partial n}-G(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')\frac{\partial\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r}', \omega)}{\partial n}\right],\\ &G(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')=\frac{1}{|\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'|}\exp(ik_b|\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'|), \end{aligned}\right\} \tag{9}$$

其中 $G(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')$ 是晶体中的格林函数，它的积分表达式可以表示为[10]

$$G(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')=\frac{i}{2\pi}\int\frac{d^2k_f}{k_z}\exp[i\boldsymbol{k}_f\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')+ik_z|z-z'|]。\tag{10}$$

我们将金属中与非线性晶体中的场分别按 $\xi$ 的幂做级数展开

$$\left.\begin{aligned}\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r},\ \omega)&=\sum_{n=0}^{\infty}\xi^n\boldsymbol{E}_a^{(n)}(\boldsymbol{r},\ \omega),\\ \boldsymbol{E}_b(\boldsymbol{r},\ \omega)&=\sum_{n=0}^{\infty}\xi^n\boldsymbol{E}_b^{(n)}(\boldsymbol{r},\ \omega),\end{aligned}\right\}\tag{11}$$

其中

$$\left.\begin{aligned}\boldsymbol{E}_a^{(0)}(\boldsymbol{r},\ \omega)&=\boldsymbol{\varepsilon}_a^{(0)}\exp(ik_xx+ik_{az}z),\quad k_{az}=(k_a^2-k_x^2)^{1/2}\\ \boldsymbol{E}_b^{(0)}(\boldsymbol{r},\ \omega)&=\boldsymbol{\varepsilon}_b^{(0)}\exp(ik_xx+ik_{bz}z),\quad k_{bz}=(k_b^2-k_x^2)^{1/2}\end{aligned}\right\}\tag{12}$$

$$\left.\begin{aligned}\boldsymbol{E}_a^{(1)}(\boldsymbol{r},\ \omega)&=\boldsymbol{\varepsilon}_{a+}^{(1)}\exp(ik_{x+}x+ik_{az+}z)+\boldsymbol{\varepsilon}_{a-}^{(1)}\exp(ik_{x-}x+ik_{az-}z),\quad k_{az\pm}=(k_a-k_{x\pm})^{1/2}\\ \boldsymbol{E}_b^{(1)}(\boldsymbol{r},\ \omega)&=\boldsymbol{\varepsilon}_{b+}^{(1)}\exp(ik_{x+}x+ik_{bz+}z)+\boldsymbol{\varepsilon}_{b-}^{(1)}\exp(ik_{x-}x+ik_{bz-}z),\quad k_{bz\pm}=(k_b-k_{x\pm})^{1/2}\end{aligned}\right\}\tag{13}$$

在(8)式、(12)式和(13)式中，我们已用到 $k_x=k_{ax}=k_{bx}, k_{x\pm}=k_x\pm g$ 等等。因为在边界条件的方程中场的宗量只含有界面上的值，所以又可将场于界面处展成泰勒级数，得到的 $\boldsymbol{E}_a(\boldsymbol{r},\ \omega)$、$\boldsymbol{E}_b(\boldsymbol{r},\ \omega)$ 以及 $G(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')$ 的级数表达式代入(9)式，并利用(13)式，经过适当的代数运算可以得到下列矢量方程组(取到 $\xi$ 的一次幂)

$$\left.\begin{aligned}&\boldsymbol{\varepsilon}_a^{(0)}(\boldsymbol{k})+\frac{(k_{az}+k_{bz})}{2k_{bz}k_b^2}\boldsymbol{K}_b'\times\boldsymbol{K}_b'\times\boldsymbol{\varepsilon}_a^{(0)}(k)=0,\\ &\boldsymbol{\varepsilon}_b^{(0)}(k)=\frac{(k_{az}-k_{bz})}{2k_{bz}k_b^2}\boldsymbol{K}\times\boldsymbol{K}_b\times\boldsymbol{\varepsilon}_a^{(0)}(k),\\ &\boldsymbol{K}_{b\pm}'\times\boldsymbol{K}_{b\pm}'\times\{(k_{az\pm}+k_{bz\pm})\boldsymbol{\varepsilon}_{a\pm}^{(1)}-ik_0^2[\epsilon_a(\omega)-\epsilon_b(\omega)]C_1\boldsymbol{\varepsilon}_a^{(0)}\}=0,\\ &\boldsymbol{\varepsilon}_{b\pm}^{(1)}=\frac{1}{2K_{b\pm}K_{b\pm}^2}\boldsymbol{K}_{b\pm}\times\boldsymbol{K}_{b\pm}\times\{(k_{az\pm}-k_{bz\pm})\boldsymbol{\varepsilon}_{a\pm}^{(1)}-ik_0^2[\epsilon_a(\omega)-\epsilon_b(\omega)]C_1\boldsymbol{\varepsilon}_a^{(0)}\}。\end{aligned}\right\}\tag{14}$$

这里 $k_0=(\omega/c)$, $k_a=[\epsilon_a(\omega)]^{\frac{1}{2}}k_0$, $k_b=[\epsilon_b(\omega)]^{\frac{1}{2}}k_0$, $\boldsymbol{K}_a=k_x\boldsymbol{e}_x+k_{az}\boldsymbol{e}_z$, $\boldsymbol{K}_b'=k_x\boldsymbol{e}_x+k_{bz}\boldsymbol{e}_z$, $\boldsymbol{K}_b=k_x\boldsymbol{e}_x-k_{bz}\boldsymbol{e}_z$, 其余类推。解矢量方程组(14)式可知，在现在的情况下，两种介质中的各级基频衍射波只有 s 偏振，具体结果如下

$$\left.\begin{aligned}\varepsilon_{as}^{(0)}&=\frac{2k_{bz}}{k_{az}+k_{bz}}\varepsilon_s^{(i)},\quad \varepsilon_{as\pm}^{(1)}=\frac{iC_1k_0^2[\epsilon_a(\omega)-\epsilon_b(\omega)]}{k_{az\pm}+k_{bz\pm}}\varepsilon_{as}^{(0)},\\ \varepsilon_{bs}^{(0)}&=\frac{k_{bz}-k_{az}}{k_{az}+k_{bz}}\varepsilon_s^{(i)},\quad \varepsilon_{bs\pm}^{(1)}=\frac{iC_1k_0^2[\epsilon_a(\omega)-\epsilon_b(\omega)]}{k_{az\pm}+k_{bz\pm}}\varepsilon_{as}^{(0)}。\end{aligned}\right\}\tag{15}$$

得到了基频各级衍射波的表达式以后，我们就可以给出非线性晶体中相应的二阶非线性极化强度 $\boldsymbol{P}^{NL}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)$ 及驱动波 $\boldsymbol{E}_p(\boldsymbol{r},\ 2\omega)$。

就 GaAs 晶体而言，它属于 $\bar{4}3m$ 点群。在我们选定的条件下，二阶极化强度只有 $\boldsymbol{e}_x$ 分量。与入射波方向相对应的二阶极化强度是

$$\left.\begin{aligned}P_x^{(i)}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)&=p_x^{(i)}\exp(i\boldsymbol{Q}_s'\cdot\boldsymbol{r}),\\ \boldsymbol{Q}_s'&=2k_x\boldsymbol{e}_x+2k_{bz}\boldsymbol{e}_z=Q_x\boldsymbol{e}_x+Q_{sz}\boldsymbol{e}_z,\quad p_x^{(i)}=d(\varepsilon_{bs}^{(i)})^2,\end{aligned}\right\}\tag{16}$$

这里 $d$ 是非线性晶体的二阶非线性系数。与反射波方向相对应的二阶极化强度可以用 $\xi$ 的幂级数表示出来，即

$$
\left.\begin{aligned}
&\boldsymbol{P}_{s}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)=p_{x}^{(0)}\exp(i\boldsymbol{Q}_{s}\cdot\boldsymbol{r})+\xi p_{x\pm}^{(1)}\exp(i\boldsymbol{Q}_{s\pm}\cdot\boldsymbol{r})+\cdots,\\
&\boldsymbol{Q}_{s}=2k_{x}\boldsymbol{e}_{x}-2k_{bz}\boldsymbol{e}_{z}=Q_{x}\boldsymbol{e}_{x}-Q_{sz}\boldsymbol{e}_{z},\\
&\boldsymbol{Q}_{s\pm}=2k_{x\pm}\boldsymbol{e}_{x}-2k_{bz\pm}\boldsymbol{e}_{z}=Q_{x\pm}\boldsymbol{e}_{x}-Q_{sz\pm}\boldsymbol{e}_{z},\\
&p_{x}^{(0)}=d(\varepsilon_{bz}^{(0)})^{2},\ p_{x\pm}^{(1)}=2d\varepsilon_{bz}^{(0)}\varepsilon_{bz\pm}^{(1)}。
\end{aligned}\right\}\tag{17}
$$

(17)式 $P_{x}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)$ 表示式中等号右面的第一项与零级衍射方向相对应，第二项与一级衍射方向相对应。

按照 Bloembergen 和 Pershan 的理论[10]，倍频驱动波 $\boldsymbol{E}_{bp}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)$ 可以表示为

$$
\left.\begin{aligned}
&\boldsymbol{E}_{bp}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)=\boldsymbol{E}_{p}^{(2)}\exp(i\boldsymbol{Q}_{s}'\cdot\boldsymbol{r})+\boldsymbol{E}_{p}^{(0)}\exp(i\boldsymbol{Q}_{s}\cdot\boldsymbol{r})+\xi\boldsymbol{E}_{p+}^{(1)}\exp(i\boldsymbol{Q}_{s+}\cdot\boldsymbol{r})\\
&\qquad+\xi\boldsymbol{E}_{p-}^{(1)}\exp(i\boldsymbol{Q}_{s-}\cdot\boldsymbol{r})+\cdots,\\
&\boldsymbol{E}_{p}^{(2)}=\frac{4\pi p_{x}^{(0)}}{\epsilon_{b}(\omega)-\epsilon_{b}(2\omega)}\cdot\frac{Q_{bz}^{2}\boldsymbol{e}_{x}-Q_{x}Q_{sz}\boldsymbol{e}_{z}}{Q_{b}^{2}},\\
&\boldsymbol{E}_{p}^{(0)}=\frac{4\pi p_{x}^{(0)}}{\epsilon_{b}(\omega)-\epsilon_{b}(2\omega)}\cdot\frac{Q_{bz}^{2}\boldsymbol{e}_{x}+Q_{x}Q_{sz}\boldsymbol{e}_{z}}{Q_{b}^{2}},\\
&\boldsymbol{E}_{p\pm}^{(1)}=\frac{4\pi p_{x\pm}^{(1)}}{\epsilon_{b}(\omega)-\epsilon_{b}(2\omega)}\cdot\frac{Q_{bz\pm}^{2}\boldsymbol{e}_{x}+Q_{x\pm}Q_{sz\pm}\boldsymbol{e}_{z}}{Q_{b}^{2}},
\end{aligned}\right\}\tag{18}
$$

其中 $Q_{b}^{2}=\epsilon_{b}(2\omega)Q_{0}^{2}$，$Q_{0}=(2\omega/c)$。(18)式所给出的 $\boldsymbol{E}_{bp}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)$ 是带有源项 $(16\pi\omega^{2}/c^{2})\boldsymbol{P}^{NL}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)$ 的二阶非线性方程(3)式的一个特解。在目前的条件下，它只存在 $p$ 偏振态。

## 四、二次谐波的微扰方程

知道了 $\boldsymbol{E}_{bp}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)$ 以后，利用边界条件(4)式就可以进一步求解 $\boldsymbol{E}_{a}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)$ 和 $\boldsymbol{E}_{b}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)$ 类似于对基频波的作法，将倍频场也展成 $\xi$ 的幂级数，则金属中的场可以表示为

$$
\left.\begin{aligned}
&\boldsymbol{E}_{a}^{(0)}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)=\boldsymbol{E}_{a}^{(0)}(2\omega)\exp(i\boldsymbol{Q}_{a}\cdot\boldsymbol{r}),\quad \boldsymbol{Q}_{a}=Q_{x}\boldsymbol{e}_{x}+Q_{az}\boldsymbol{e}_{z},\\
&\boldsymbol{E}_{a}^{(1)}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)=\boldsymbol{E}_{a+}^{(1)}(2\omega)\exp(i\boldsymbol{Q}_{a+}\cdot\boldsymbol{r})+\boldsymbol{E}_{a-}^{(1)}(2\omega)\exp(i\boldsymbol{Q}_{a-}\cdot\boldsymbol{r}),\quad \boldsymbol{Q}_{a\pm}=Q_{x\pm}\boldsymbol{e}_{x}+Q_{az\pm}\boldsymbol{e}_{z},
\end{aligned}\right\}\tag{19}
$$

非线性晶体一侧自由波可表示为

$$
\left.\begin{aligned}
&\boldsymbol{E}_{b}^{(0)}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)=\boldsymbol{E}_{b}^{(0)}(2\omega)\exp(i\boldsymbol{Q}_{b}\cdot\boldsymbol{r}),\quad \boldsymbol{Q}_{b}=Q_{x}\boldsymbol{e}_{x}-Q_{bz}\boldsymbol{e}_{z},\\
&\boldsymbol{E}_{b}^{(1)}(\boldsymbol{r},\ 2\omega)=\boldsymbol{E}_{b+}^{(1)}(2\omega)\exp(i\boldsymbol{Q}_{b+}\cdot\boldsymbol{r})+\boldsymbol{E}_{b-}^{(1)}(2\omega)\exp(i\boldsymbol{Q}_{b-}\cdot\boldsymbol{r}),\quad \boldsymbol{Q}_{b\pm}=Q_{x\pm}\boldsymbol{e}_{x}-Q_{bz\pm}\boldsymbol{e}_{z},
\end{aligned}\right\}\tag{20}
$$

式中 $Q_{x}=Q_{sx}=Q_{ax}=Q_{bx}=2k_{x}$，$Q_{x\pm}=Q_{x}\pm g$，$Q_{a}=[\epsilon_{a}(2\omega)]^{\frac{1}{2}}Q_{0}$，$Q_{b}=[\epsilon_{b}(2\omega)]^{\frac{1}{2}}Q_{0}$ 等等。此外，上角标“0”、“1”分别代表在零级和一级衍射方向上传播的二次谐波，将(20)式在边界处作泰勒展开后代入边界条件(4)式，并利用(6)式，则可以得到以下矢量方程组。

$$
\boldsymbol{e}_{z}\times(\boldsymbol{E}_{b}^{(0)}-\boldsymbol{E}_{a}^{(0)})=-\boldsymbol{e}_{z}\times(\boldsymbol{E}_{p}^{(2)}+\boldsymbol{E}_{p}^{(0)}),\tag{21}
$$

$$
\begin{aligned}
\boldsymbol{e}_{z}\times(\boldsymbol{E}_{b\pm}^{(1)}-\boldsymbol{E}_{a\pm}^{(1)})=&\pm iC_{1}g\boldsymbol{e}_{x}\times(\boldsymbol{E}_{b}^{(0)}-\boldsymbol{E}_{a}^{(0)}+\boldsymbol{E}_{p}^{(2)}+\boldsymbol{E}_{p}^{(0)})+iC_{1}\boldsymbol{e}_{z}\times[Q_{bz}\boldsymbol{E}_{b}^{(0)}\\
&+Q_{az}\boldsymbol{E}_{a}^{(0)}+Q_{sz}(\boldsymbol{E}_{p}^{(0)}-\boldsymbol{E}_{p}^{(2)})]-\boldsymbol{e}_{z}\times\boldsymbol{E}_{p\pm}^{(1)},
\end{aligned}\tag{22}
$$

以及

$$
\boldsymbol{e}_{z}\times(\boldsymbol{Q}_{b}\times\boldsymbol{E}_{b}^{(0)}-\boldsymbol{Q}_{a}\times\boldsymbol{E}_{a}^{(0)})=-\boldsymbol{e}_{z}\times(\boldsymbol{Q}_{s}\times\boldsymbol{E}_{p}^{(0)}+\boldsymbol{Q}_{s}'\times\boldsymbol{E}_{p}^{(2)}),\tag{23}
$$

$$
\begin{aligned}
\boldsymbol{e}_{z}\times(\boldsymbol{Q}_{b\pm}\times\boldsymbol{E}_{b\pm}^{(1)}-\boldsymbol{Q}_{a\pm}\times\boldsymbol{E}_{a\pm})=&\pm iC_{1}g\boldsymbol{e}_{x}\times(\boldsymbol{Q}_{b}\times\boldsymbol{E}_{b}^{(0)}-\boldsymbol{Q}_{a}\times\boldsymbol{E}_{a}^{(0)}+\boldsymbol{Q}_{s}\times\boldsymbol{E}_{p}^{(0)}+\boldsymbol{Q}_{s}'\times\boldsymbol{E}_{p}^{(2)})\\
&+iC_{1}\boldsymbol{e}_{z}\times[Q_{bz}\boldsymbol{Q}_{b}\times\boldsymbol{E}_{b}^{(0)}+Q_{az}\boldsymbol{Q}_{a}\times\boldsymbol{E}_{a}^{(0)}+Q_{sz}(\boldsymbol{Q}_{s}\times\boldsymbol{E}_{p}^{(0)}-\boldsymbol{Q}_{s}'\times\boldsymbol{E}_{p}^{(2)})]-\boldsymbol{e}_{z}\times\boldsymbol{Q}_{s\pm}\times\boldsymbol{E}_{p\pm}^{(1)}。
\end{aligned}\tag{24}
$$

由矢量方程(21)式和(23)式，可以求出金属与非线性晶体中各自零级衍射方向上的二次谐波场，其振幅分别是

$$\boldsymbol{E}_a^{(0)}(2\omega)=\frac{4\pi(Q_{az}\boldsymbol{e}_x-Q_x\boldsymbol{e}_z)}{[Q_{bz}\epsilon_a(2\omega)+Q_{az}\epsilon_b(2\omega)](Q_s^2-Q_b^2)}\left[(p_x^{(i)}-p_x^{(0)})Q_{bz}Q_{sz}+Q_{bz}^2(p_x^{(i)}+p_x^{(0)})\right],\tag{25}$$

$$\boldsymbol{E}_b^{(0)}(2\omega)=\frac{4\pi(Q_{bz}\boldsymbol{e}_x+Q_x\boldsymbol{e}_z)}{[Q_{bz}\epsilon_a(2\omega)+Q_{az}\epsilon_b(2\omega)](Q_s^2-Q_b^2)}\left[(p_x^{(0)}-p_x^{(i)})Q_{az}Q_{sz}+\frac{\epsilon_a(2\omega)}{\epsilon_b(2\omega)}(p_x^{(i)}+p_x^{(0)})Q_{bz}^2\right]。\tag{26}$$

从(25)式和(26)式可知，由于 GaAs 晶体的对称性以及我们所选择的晶体取向，对 $s$ 偏振的基频入射波，其零级二次谐波只存在 $p$ 偏振态。下面我们还会看到，对于一级衍射方向上的二次谐波也是如此。由矢量方程组(22)式和(24)式，经过适当的代数运算后，可以分别得金属一侧与晶体一侧的一级衍射方向上的二次谐波场，

$$\left.\begin{aligned}\boldsymbol{E}_{a\pm}^{(1)}&=\frac{(Q_{az\pm}\boldsymbol{e}_x-Q_{x\pm}\boldsymbol{e}_z)}{[Q_{bz\pm}\epsilon_a(2\omega)+Q_{az\pm}\epsilon_b(2\omega)]}\left[\epsilon_b(2\omega)\Sigma_\pm-\frac{Q_{bz\pm}}{Q_0^2}\Pi_\pm\right],\\ \boldsymbol{E}_{b\pm}^{(1)}&=\frac{-(Q_{bz\pm}\boldsymbol{e}_x+Q_{x\pm}\boldsymbol{e}_z)}{[Q_{bz\pm}\epsilon_a(2\omega)+Q_{az\pm}\epsilon_b(2\omega)]}\left[\epsilon_a(2\omega)\Sigma_\pm-\frac{Q_{az\pm}}{Q_0^2}\Pi_\pm\right],\end{aligned}\right\}\tag{27}$$

其中

$$\left.\begin{aligned}\Sigma_\pm&=\pm iC_1g(E_{bz}^{(0)}-E_{az}^{(0)}+E_{pz}^{(0)}+E_{pz}^{(i)})-iC_1[Q_{bz}E_{bx}^{(0)}+Q_{az}E_{ax}^{(0)}+Q_{sz}(E_{px}^{(0)}-E_{px}^{(i)})+E_{px\pm}^{(1)},\\ \Pi_\pm&=C_1\left[Q_{bz}Q_bE_b^{(0)}+Q_{az}Q_aE_a^{(0)}-Q_{sz}\frac{Q_b^2}{Q_x}(E_{pz}^{(0)}-E_{pz}^{(i)})\right]+\frac{Q_b^2}{Q_{x\pm}}E_{pz\pm}^{(1)}。\end{aligned}\right\}\tag{28}$$

下面我们考察在一级衍射方向上的二次谐波的特征。从(28)式可以看出，不论是在金属一侧还是在晶体一侧，一级衍射方向上的二次谐波场都有一项共振分母

$$D(2\omega)=Q_{bz\pm}\epsilon_a(2\omega)\pm Q_{az\pm}\epsilon_b(2\omega)。\tag{29}$$

当这项分母为零时，二次谐波场出现极大值。相应地有关系式

$$|Q_x\pm g|^2=Q_0^2\frac{\epsilon_a(2\omega)\epsilon_b(2\omega)}{\epsilon_a(2\omega)+\epsilon_b(2\omega)}。\tag{30}$$

很明显，这个关系式恰好就是光栅耦合产生表面电磁波的色散关系。当两种介质给定以后，只要适当地选择入射角 $Q_i(Q_x=2k_b\sin\theta_i)$ 和光栅矢量 $\boldsymbol{g}$，就可以使(30)式成立，从而在界面上共振激励表面电磁波，导致表面二次谐波的增强效应。对于非线性晶体-金属界面，由于金属的吸收系数比较大，在金属一侧能获得的倍频信号就比较弱；而对非线性晶体，如 GaAs 等，在红外波段很宽的范围内是透明的，其中的倍频强度要比金属中高几个数量级，所以，我们最感兴趣的是非线性晶体一侧的场。

一般说来，在非线性晶体一侧产生的二次谐波是倍频自由波 $\boldsymbol{E}_{bf}(2\omega)$ 与驱动波 $\boldsymbol{E}_{bp}(2\omega)$ 的叠加。但是，由于驱动波没有共振分母，只是自由波才能共振激励表面电磁波。由此可见，非线性晶体-金属界面上的表面增强二次谐波的增强效应主要来自非线性晶体中自由波的贡献。计算表明，在共振峰附近自由波的强度比驱动波强度高3个数量级以上。因此，晶体一侧的二次谐波强度可以近似地表示为

## 五、结果与讨论

对于 GaAs-Al 界面，采用 TEA $CO_2$ 激光器的 10.6 $\mu m$ 波长为光源，当矩形光栅的周期为 2 $\mu m$ 时，则在(30)式的左面必须取"+"，算式才有可能成立，并产生表面增强效应。当取 $\epsilon_a(2\omega)=(-909.4195+i87.9889)$，$\epsilon_b(2\omega)=(10.8608+i0.00004)$，那么，表面增强二次谐波的极大值出现在 $\theta_i \sim 11.85°$ 附近。我们在 IBM-370 电子计算机上用 Fortran 语言程序进行了具体数值计算。结果表明，在共振激励表面电磁波的条件下，当 $\xi$ 的取值从 3000 Å 到 7000 Å 时，可以得到 $10^3 \sim 10^4$ 的增强。此外，当光栅的周期从 2 $\mu m$ 增加为 10 $\mu m$ 时，相应的二次谐波强度增强值降低一个数量级。

由于 $CO_2$ 激光波长比通常用的可见光波长大一个数量级，因此表面粗糙颗粒的线度也应相应大一个数量级。故采用红外光源时样品较容易加工，因而也就可以比较严格地将理论与实验进行比较，这正是利用红外激光进行表面粗糙增强实验的一大优点。

最后我们顺便指出，如果入射基频波不是 $s$ 偏振，则基频衍射波中将会产生 $p$ 偏振分量的场，那么，在适当的入射角度下也会产生共振激励基频表面电磁波，并导致表面二次谐波增强。

## 参考文献

[1] S. N. Jasperson, S. E. Schnatterly; *Phys. Rev.*, 1969, **188**, No. 2 (Dec), 759.
[2] Y. Y. Teng, E. Stern; *Phys. Rev. Lett.*, 1967, **19**, No. 9 (Aug), 511.
[3] M. Fleishman, P. J. Hendra *et al.*; *Chem, Phys. Lett.*, 1974, **26**, No. 2 (May), 163.
[4] C. K. Chen, A. R. B. deCastro *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1981, **46**, No. 2 (Jan), 145.
[5] F. Toigo, A. Marvin *et al.*; *Phys. Rev.* (*B*), 1977, **15**, No. 12 (Jun), 5618.
[6] P. Sheng, R. S. Stepleman *et al.*; *Phys. Rev.* (*B*), 1982, **26**, No. 6 (Sep), 2907.
[7] N. E. Glass, A. A. Maradudin *et al.*; *Phys. Rev.* (*B*), 1982, **26**, No. 10 (Nov), 5357.
[8] M. Weber, D. L. Mills; *Phys. Rev.* (*B*), 1983, **27**, No. 5 (Mar), 2698.
[9] G. S. Agarwal, S. S. Jha; *Phys. Rev.* (*B*), 1982, **26**, No. 2 (Jul), 482.
[10] N. Bloembergen, P. S. Pershan; *Phys. Rev.*, 1962, **128**, No. 2 (Oct), 606.

# Surface-enhanced second harmonic generation at GaAs–Al interface on a rectangular grating

CUI DAFU, CHEN ZHENGHAO, ZHOU YUELIANG AND LU HUIBIN
*(Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing)*

(Received 1 July 1985; revised 22 October 1985)

## Abstract

The formulae of second harmonic generation at GaAs–Al interface on a rectangular grating are presented. According to the nonlinear medium theory given by Bloembergen and Pershan, we have solved Maxwell equations by using pertubution method in power of the surface roughness parameter. All formulae and calculations show that the surface-enhanced second harmonic generation arises from resonant excitation of surface polaritons.