

超高真空中银表面垂直 谐波电流的实验测量

郑万泉 李 乐 董抒雁 章志鸣
(复旦大学激光物理实验室)

提 要

在超高真空的条件下,测量了清洁、自由银表面产生的光学二次谐波随基波电矢量与入射面之间夹角 φ 的变化,从而通过理论公式,求得由Rudnick和Stern引入的,用于衡量垂直面电流密度的唯象参数 α 的值,在入射基频光波长为 $1.064\mu\text{m}$ 时,被测定为 -4.0 ± 0.8 。

关键词: 银表面;二次谐波;唯象参数 α 。

一、引 言

金属表面产生的光学二次谐波来源于三部分表层电流^[1,2]:一个在趋肤深度内的“体”电流和两个位于表面、厚度只有几 \AA 的面电流,分别垂直、平行于表面。虽然人们已对“体”电流和平行面电流作了正确的定量分析^[1,3],但对垂直面电流的估计却十分困难^[4]。自从Rudnick和Stern引入参数 α ^[5]来唯象地衡量其密度后,理论计算和实验测量低频时的 α 值已引起人们的广泛兴趣(因 α 和表面电荷的分布有关^[6])。经典的流体动力学模型^[3,4,5]或电子气模型^[7]表明,对任何金属都有 $|\alpha|\approx 1$ (更精确的结果是 $-(2/9)$ ^[6])。但最近有人用密度函数近似的方法求得^[8]:对银 $\alpha\approx -12$ 、对铝 $\alpha\approx -28$,这个结果竟比经典模型的要大一至两个数量级。因此,在实验上测定 α 值具有重要意义。目前见到报道的唯一测量^[9]给出对银 $\alpha\approx 0.9$,但这个实验是在玻璃/金属界面进行的,和理论计算中假设的真空/金属界面情况不同,信号因此要受到影响;而且在对 α 值的计算中,文献[7]实际上用到了格林函数的近似^[10],所以其结果是值得怀疑的。

本文首先严格推导了金属表面产生光学二次谐波的表达式,并提出了更好的方法以测定 α ;实验上则在超高真空的条件下测得了自由银表面 α 的精确值: $\alpha = -4.0\pm 0.8$ 。

二、理 论

从麦克斯韦方程出发,加上电磁场在真空/金属界面的特殊边界条件,可以求得金属表面产生光学二次谐波的严格解(假设金属为无限厚)。由于推导过程非常冗长,这里只给出结果。设 φ 为入射基频光电矢量和入射面之间的夹角, θ 为入射角,在反射方向的 p 偏振二次谐波振幅为

$$|E_{2p}^R| = \left| \frac{e\omega_p^2 \sin\theta \cos^2\theta E_0^2}{m c \omega^3 \epsilon(\omega) [\epsilon(2\omega)]^{1/2} F^2(\omega) F(2\omega)} \left\{ \epsilon(\omega) \left[\cos^2\varphi + \frac{F^2(\omega) \sin^2\varphi}{g^2(\omega)} \right] + 2a\epsilon(2\omega) \cos^2\varphi - 4b \cos^2\varphi [\epsilon(\omega) - \sin^2\varphi]^{1/2} [\epsilon(2\omega) - \sin^2\theta]^{1/2} \right\} \right|, \quad (1)$$

$$F(\omega) = [\epsilon(\omega)]^{1/2} \cos\theta + \left[1 + \frac{\sin^2\theta}{\epsilon(\omega)} \right]^{1/2},$$

$$g(\omega) = \cos\theta + [\epsilon(\omega) - \sin^2\theta]^{1/2}.$$

式中 b 是用于衡量平行面电流的唯一参数, ϵ 是金属的介电常数, $\omega_p = [4\pi n_0 e^2 / m]^{1/2}$ 为等离子体振荡频率, E_0 是入射基频光的振幅。对于光滑金属表面, 可以证明^[23]: $b = -1$, 所以从 p 偏振倍频信号随 φ 或 θ 的变化就可求得 a 值。但分析表明: 信号随 φ 的变化与 a 值关系较大。

三、实验装置

实验装置如图 1 所示。YAG 锁模激光器提供脉宽 30 ps, 重复率 10 pps 的稳定基频光源 ($\lambda = 1.064 \mu\text{m}$)。主光束经 ($\lambda/2$) 波片调节偏振态后入射到样品上, 入射光能和光斑面积分别调在 1 mJ 和 4 mm² 左右, 以免损坏银膜, 分束片将一小部分光用来监视其稳定性。光电倍增管 (EMIS 9558-QB) 前和光路中加入适当的滤光片, 干涉滤光片和偏振片, 以滤去各种杂散光和选出 p 偏振的倍频信号。信号由脉冲积分器处理并取平均, 结果由 X-Y 记录仪记录。每个实验点连续测量 100 sec, 这样就相当于对约 1000 个脉冲产生的信号取平均, 加上入射光能量很稳定, 所以应该说测量精度是很高的。

实验在 10^{-10} Torr 的超高真空条件下进行, 辐照的样品——银膜也是在同一真空度下就地蒸镀的, 其厚度超过 5000 Å (因远大于光在其中的衰减深度, 故可近似为无限厚)。

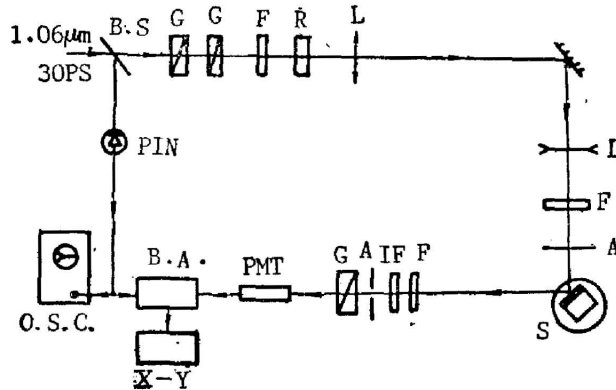


Fig. 1 Experimental Setup

B. S., Beam Splitter; G, Glan Prism; F, Filter; IF, Interference Filter; R, $\lambda/2$ Rotator; L, Lens; A, Aperture; B. A., Boxcar Averager; PMT, Photomultiplier; X-Y, X-Y Recorder; S, Sample; PIN, PIN Photodiode; O.S.C., Oscilloscope

四、实验结果

在入射角 $\theta = 41.8^\circ$ 时, 我们测量了银膜表面产生的倍频信号随偏振角 φ 的变化 ($0 \leq \varphi$

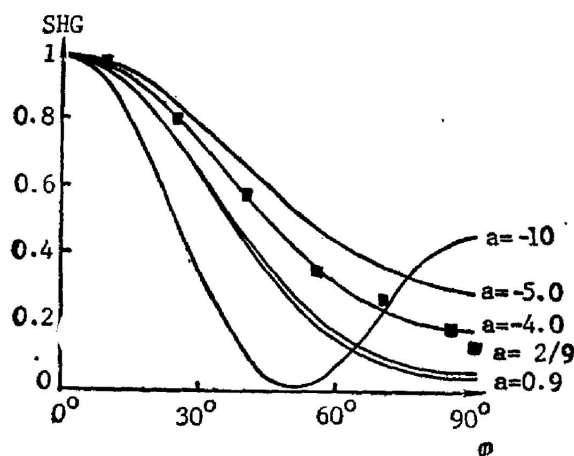


Fig. 2 Variation of SHG intensities from a free Ag Surface as a function of polarization angle φ at $1.064\mu\text{m}$ incidence. The angle of incidence $\theta=41.8^\circ$. The Value of "a" is determined to be -4.0 ± 0.8 and the curves of different values of this parameter are also drawn for comparison

$\leq 90^\circ$)。图 2 中的每个实验点表示对 1000 个脉冲取的平均, 并已对其最大值(即 $\varphi=0$ 时)归一化了。

厚银膜的介电常数是^[7]: $\epsilon(\omega) = -67.03 + i2.44$, $\epsilon(2\omega) = -11.09 + i0.33$ 。这样利用 (1)、(2)、(3) 式就可直接求得 $a = -4.0 \pm 0.8$ 。图 2 中的曲线是由 Apple II 微机画出的。显然, 实验点和 $a = -4.0$ 的理论曲线吻合得非常好。为了和以往的理论预言和实验结果比较, 图中还画出了 $a = 0.9, -2/9, -5.0, -10.0$ 的变化曲线, 这些值都和我们的实验测量很不相符, 所以是不正确的。

五、结 论

在 10^{-10} Torr 超高真空下, 本文首次用改变入射光偏振态的方法, 测定了自由银表面的参数 a 值等于 -4.0 ± 0.8 。

因为不同 a 值的曲线变化十分明显, 如图 2 所示, 而且在理论计算中用的是严格解, 所以本文的结果具有很高的精确度和可靠性。这不仅修正了过去的测量值, 而且为今后建立正确的理论模型提供了实验基础。

本文的工作得到了本组姜杏梅(生前)、陈刚、刘杨华、王恭明、王文澄同志等的许多热情帮助, 在此深表谢意!

参 考 文 献

- [1] J. Rudnick, E. A. Stern; *Phys. Rev. (B)*, 1971, **4B**, No. 12 (Dec.), 4274~4290.
- [2] J. E. Sipe, V. C. Y. So *et al.*; *Phys. Rev. (B)*, 1980, **21B**, No. 10 (Apr), 4389~4402.
- [3] N. Bloembergen, R. K. Chang *et al.*; *Phys. Rev.*, 1968, **174**, No. 3 (Oct), 813~822.
- [4] J. E. Sipe, G. I. Stegeman; in *«Surface Polaritons»*, edited by V. M. Agranovich and D. L. Mills, (North-Holland, 1982), 661~701.
- [5] M. Corvi, W. L. Schaich; *Phys. Rev. (B)*, 1986, **33B**, No. 6 (Mar), 3688~3695.
- [6] M. Weber, A. Liebsch, *Phys. Rev. (B)*, 1987, **35B**, No. 14 (May), 7411~7416.
- [7] J. C. Quail, H. J. Simon; *Phys. Rev. (B)*, 1985, **31B**, No. 8 (Apr), 4900~4905.

Determination of normal harmonic current at silver surface under ultrahigh vacuum condition

ZHENG WANQUAN, LI LE, DONG SHUYAN AND ZHANG ZHIMING
(*Lab. of Laser Physics & Optics, Fudan University Shanghai*)

(Received 23 June 1988)

Abstract

We have measured the optical second-harmonic generation at free silver surface under ultrahigh vacuum condition. The value of the phenomenological parameter " a ", introduced by Rudnick and Stern as a measure of the normal surface current, is determined to be -4.0 ± 0.8 at incident $1.064 \mu\text{m}$ fundamental radiation.

Key words: silver surface; second harmonic-generation; phenomenological parameter " a "