

锗薄膜透射光学二次谐波研究

张良民 于群力 雷 结 李祥生 荀增光

(陕西师范大学物理系, 西安 710062)

摘要 本文采用固定入射角, 改变入射光偏振方位角的方法从实验上研究了锗薄膜的透射光学二次谐波产生及其变化规律。并从理论上推导了产生透射二次谐波的表达式。最后拟合求得描述面谐波电流的唯象参数 a 。

关键词 透射二次谐波, 锗薄膜。

1 引言

介质表面或界面产生的光学二次谐波作为一种表面探测手段, 近年来得到迅速发展^[1~3], 与此相应光学二次谐波信号的起源及特征的理论和实验工作也日益显示出其重要性。二次谐波信号来源于三部分谐波电流, 一个趋肤深度内的体电流和两个独立的面电流, 这两个面电流中一个垂直于表面, 另一个平行于表面。自从 1971 年 Rudnick 和 Stern 提出用两个唯象参数 a, b 分别描述这两种面电流之后, 表面二次谐波机理研究主要集中于如何更准确地从实验和理论上确定 a, b 值。目前, 无论是理论还是实验仅限于研究表面反射二次谐波^[4~7], 但作者认为, 在满足一定条件时, 介质薄膜在透射方向也应存在光学二次谐波, 且与产生反射二次谐波的起源相同。据此, 进行了理论和实验工作, 并在锗薄膜中观察到透射光学二次谐波。实验中分别测量了在固定几个不同入射角时, 锗薄膜的透射二次谐波强度随入射光偏振态的变化而变化。从理论上分析了其机理, 并利用求得的 p 偏振信号的表达式, 拟合求得唯象参数 a 。

2 理论分析

实验所用薄膜厚度超过 500 nm, 由于倍频光介电常数虚部很大, 在其中的衰减深度仅为几十 nm, 作为近似对倍频光该膜可视为无限厚。而基频光介电常数虚部很小, 该膜可视为透明, 所以玻璃-锗膜界面上产生的二次谐波不会透过薄膜进入检测系统。实验上测得的二次谐波是来自体电流源和锗膜-空气界面上的两个面电流源的辐射。因此理论分析只需考虑薄膜-空气界面。由于在锗膜中存在一定色散, 所以透射的基波和二次谐波可以明显分开。样品示意图及坐标选取如图 1 所示。锗的介电常数见表 1。

Table 1 The dielectric constant of germanium

wavelength	1064 (nm)	532 (nm)
dielectric constant	18.9	19.3
of germanium	+i1.02	+i21.1

取 $z = 0$ 为锗膜空气界面, $z > 0$ 为空气, $z < 0$ 为锗膜。经棱镜、锗膜的基频光在 $x-z$ 平面以 θ_2 角入射到锗膜-空气界面上, 电场表达式为

$$\begin{aligned} E &= E_0(\cos \theta_2 \cos \phi_2 i + \sin \phi_2 j - \sin \theta_2 \cos \phi_2 k) \\ &\exp [-i \frac{n_2 \omega}{c}(z \cos \theta_2 + x \sin \theta_2) - i\omega t] + c.c. \end{aligned} \quad (1)$$

式中 ϕ_2 为锗膜中基频光的偏振方位角, E_0 为原点处的场强, n_2 为锗膜的折射率。

用参数 a , b 描述垂直和平行表面的面电流, 由麦克斯韦方程推导出满足二次谐波电场的波动方程为^[8]

$$\nabla^2 E_2 - \frac{4\omega^2}{c^2} E_2 = 0 \quad z > 0 \quad (2)$$

$$\nabla^2 E_2 - \frac{4\omega^2}{c^2} \epsilon(2\omega) E_2 = -\frac{e\omega_p^2}{2mc^2\omega^2} \nabla(E_1 \cdot E_1) \quad z < 0 \quad (3)$$

这里下标“2”表示二倍频, ω 为等离子体共振频率。 E_1 为锗膜内基频光场强。从(2)、(3)式出发, 使用边界条件, 同时考虑到基频光两次透射的能量损失、基频光进入棱镜和玻璃-锗界面的菲涅耳系数以及入射角 θ_1 、 θ'_1 、 θ_2 , 出射角 θ_3 之间的关系, 最后求得透射波的解为

$$s \text{ 偏振: } E_{2s}^T = -\frac{2ib\omega_p^2 E_0^2 \sin \theta_2 \cos \phi_2 \sin \phi_2}{mc\omega^3 \{[\epsilon(2\omega) - \sin^2 \theta_3]^{\frac{1}{2}} + \cos \theta_3\}}, \quad (4)$$

p 偏振

$$\begin{aligned} E_{2p}^T &= \frac{-ie\omega_p^2 E_0^2}{4mc\omega^3 \epsilon(2\omega)} \frac{[2\sin^2 \theta_3 - \epsilon(2\omega)]}{\cos \theta_3 [2\sin^2 \theta_3 - \epsilon(2\omega)] + (\sin^2 \theta_3 - \cos^2 \theta_3) [\epsilon(2\omega) - \sin^2 \theta_3]^{\frac{1}{2}}} \\ &\{ \sin \theta_3 + 2a \sin \theta_3 \sin^2 \theta_2 \cos^2 \phi_2 \epsilon(2\omega) - 2b \frac{[\epsilon(2\omega) - \sin^2 \theta_3]^{\frac{1}{2}}}{2\sin^2 \theta_3 - \epsilon(2\omega)} \sin \theta_2 \cos \theta_2 \cos^2 \phi_2 \} \end{aligned} \quad (5)$$

其中 c 为真空中的光速, m 为电子质量, θ_2 、 θ_3 分别为基频光在锗膜-空气界面上的入射角和出射角, ϕ_2 为基频光在锗膜中的偏振角。 $\epsilon(\omega)$ 和 $\epsilon(2\omega)$ 为锗对基频和倍频光的介电常数。

由(5)式可见, 只要测出同-入射角下的 p 偏振光强随偏振态的变化, 利用理论和实验都证明了的 $b = -1$ 的结论^[7,9], 即可拟合求得参数 a 的数值。

3 实验

3.1 样品制备

选用三面透光的直角 K9 玻璃棱镜, 镀膜面用氧化锶精密抛光后, 再用酒精、乙醚冲洗。锗纯度为 99.99%, 1.33×10^{-3} Pa 的条件下蒸镀, 膜厚大于 500 nm, 蒸镀速度 2.5 nm/s。

3.2 实验测量

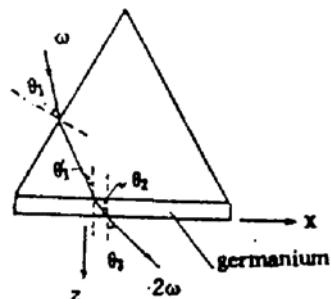


Fig. 1 Schematic diagram of sample

θ_1 -angle of incidence at the prism surface; θ'_1 -angle of incidence at the prism-germanium interface; θ_2 -angle of incidence at the germanium air interface; θ_3 -angle of emergent at the germanium-air interface

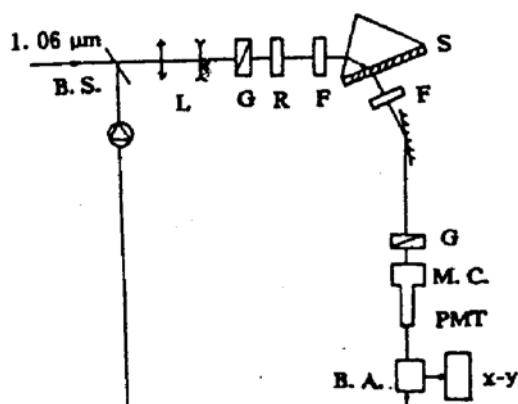


Fig. 2 Experimental setup

B. S. -beam splitter; G-glan prism; F-filter;
 $R-\lambda/2$ wave plate; PMT-photo multiplier;
 M.C. - monochromator; B. A. - boxcar
 averager; x-y—x-y recorder; S-sample

用调 Q YAG 激光器输出的 1064 nm 光作基频光，光束直径由准直系统调至 3 mm 左右，再通过格兰棱镜使其变为线偏振光，偏振态由 $\lambda/2$ 波片调节，精度为 1°。棱镜样品置于一转台上，改变入射角的精度为 0.1°。样品前光能量调至 3 mJ/pulse。基频光由棱镜一侧进入，入射到锗膜上。样品前放置一透 1064 nm 光滤 532 nm 光的滤光片，以滤去前边光学元件产生的二次谐波。样品后放置另一滤 1064 nm 光透 532 nm 光的滤光片，以避免后面器件产生的二次谐波影响测量精度。薄膜中透射出的倍频光经一格兰棱镜后，只剩 p 偏振分量，经一平面镜反射后用一透镜聚进单色仪及光电倍增管，输出信号由 Boxcar 处理，并由 x-y 记录仪记录。每一实验点测量 300 个脉冲，读取其平均值。实验装置见图 2。

实验中对每一入射角都采取固定样品前的光能量，改变入射光偏振态的方法测量透射二次谐波 p 偏振信号强度的变化。

4 结果与讨论

由于实验中改变的是基频光在空气中的偏振角 ϕ_1 ，所以实验拟合及图中所给曲线中的自变量都是这个值。 ϕ_1 不等于 ϕ_2 ，利用菲涅耳系数可求得 ϕ_1 和 ϕ_2 之间的联系。当 $\phi_1 = 0$ 时 $\phi_2 = 0$ ，因此拟合时取 $\phi_1 = 0$ 时的信号作为参考信号。

Table 2 The values of parameter a at
 the measured angle of incidence

θ_2	12.3°	11°	10°	6.8°
a	0.9	1.2	1.5	2.9

另外锗对基频光的折射率较大，这种几何配置的缺点是入射角的改变范围不大，本文共测量了 4 个入射角，利用(5)式拟合结果如表 2 所列。图 3、图 4 给出入射角 θ_2 为 11° 和 10° 的拟合曲线。

拟合结果表明，唯象参数 a 值随入射角减小而增大。也说明锗薄膜的透射光学二次谐波确由体源和薄膜-空气界面上的两个面电流产生，本文的理论模型能较好的描述这一现象。关于锗的 a 值计算和实验尚未见到报道，从本文所得结果可见在该实验条件下 a 参数为正值。

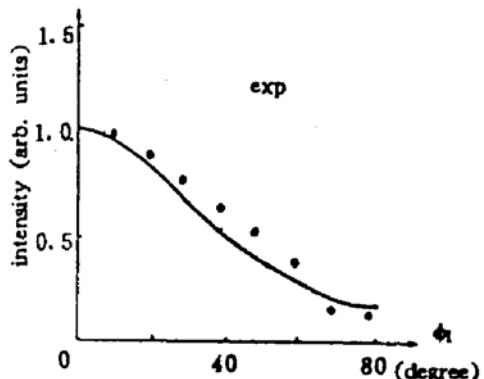


Fig. 3 Normalized p -polarized TSHG signal v. s. polarization angle ϕ_1 , incident angle $\theta_2 = 11^\circ$

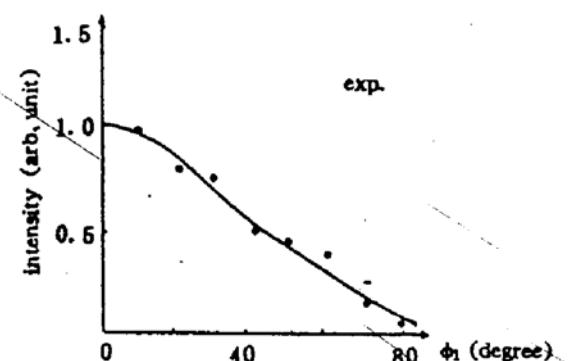


Fig. 4 Normalized p -polarized TSHG signal v. s. polarization angle ϕ_1 , incident angle $\theta_2 = 10^\circ$

参 考 文 献

- [1] J. Miragliotta, T. E. Furtak, In situ determination of the structure of an electrodeposited monolayer using optical second-harmonic generation. *Phys. Rev. (B)*, 1988, **37**(2): 1028~1030
- [2] T. D. Hewitt, D. Roy, Optical second harmonic generation as a probe of hydrogen evolution on copper. *Chem. Phys. Lett.*, 1991, **181**(5): 407~412
- [3] L. E. Urbach, K. L. Percival, J. M. Hicks et al., Resonant surface second-harmonic generation; surface states on Ag(110). *Phys. Rev. B*, 1992, **45**(7): 3769~3772
- [4] W. L. Schaich, A. Liebsch, Nonretarded hydrodynamic-model calculation of second-harmonic generation at a metal surface. *Phys. Rev. B*, 1988, **37**(110): 6187~6192
- [5] A. Liebsch, W. L. Schaich, Second-harmonic generation at simple metal surface. *Phys. Rev. B*, 1989, **40**(8): 5401~5410
- [6] J. C. Quail, H. J. Simon, Second-harmonic generation from silver and aluminum films in total internal reflection. *Phys. Rev. B*, 1985, **31**(8): 4900~4905
- [7] H. B. Jiang, L. Li, W. C. Wang et al., Reflected second-harmonic generation at a silver surface. *Phys. Rev. B*, 1991, **44**(3): 1220~1224
- [8] 郑万泉, 董抒雁, 眭小宇, 金属表面在反射方向产生光学二次谐波的研究(I). 光学学报, 1989, **9**(6): 487~491
- [9] M. Covi, W. L. Schaich, Hydrodynamic-model calculation of second-harmonic generation at a metal surface. *Phys. Rev. B*, 1986, **33**(6): 3688~3695

Transmitted Second-Harmonic Generation Through Germanium Thin Film

Zhang Liangmin Yu Qunli Lei Jie Li Xiangsheng Gou Zengguang

(Department of Physics, Shaanxi Normal University, Xi'an 710062)

(Received 20 July 1993; revised 11 October 1993)

Abstract Quantitative measurements of transmitted second harmonic generation (TSHG) through the germanium thin film versus the angle of polarization of incident light from the interface between germanium film and K9 glass are presented. We calculated the intensity of TSHG by the boundary conditions and Sipe's hydrodynamics model, and found that the phenomenological parameter "a" which estimates the size of this normal components of the harmonic current has varying value with angle of incidence.

Key words transmitted second harmonic generation, germanium thin film.