

01; 04; 09

© 1990 г.

## НАСЫЩЕНИЕ ПОГЛОЩЕНИЯ ПОВЕРХНОСТНОЙ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОЙ ВОЛНЫ В СИСТЕМЕ МЕТАЛЛ—ПОГЛОЩАЮЩИЙ ГАЗ

*В. Г. Бордо, В. А. Кравченко, Ю. Н. Петров, С. П. Суров,  
В. А. Сычугов*

Рассмотрено поглощение интенсивной поверхностной электромагнитной волны (ПЭВ) на границе металл—поглощающий газ. Использована модель газа, которая учитывает как столкновительную релаксацию, так и релаксацию из-за диффузии молекул. Определена зависимость коэффициента поглощения волны от параметра насыщения. Для проверки теоретической модели проведены эксперименты с ПЭВ, возбуждаемой  $\text{CO}_2$  лазером на поверхности алюминия, контактирующего с газообразным гексафторидом серы. Расчетные данные хорошо согласуются с экспериментальными результатами.

Поверхностные электромагнитные волны (ПЭВ) малой интенсивности в системе металл—диэлектрик достаточно хорошо исследованы [1]. В то же время распространение интенсивной ПЭВ по границе металл—поглощающий газ, когда возникают явления, существенно зависящие от интенсивности ПЭВ [2-4], мало изучено. Характер насыщения поглощения ПЭВ в такой системе может дать полезную информацию о поверхности, например о свойствах адсорбированного слоя молекул и релаксационных процессах на поверхности. В связи с этим представляет интерес вопрос о затухании интенсивной ПЭВ на границе металл—поглощающий газ.

В работе рассмотрено поглощение такой волны, резонансной колебательному переходу молекул газа. Использовалась модель поглощающего газа, которая учитывает как столкновительную релаксацию, так и релаксацию из-за диффузии молекул. Определена зависимость коэффициента поглощения ПЭВ от параметра насыщения. Для проверки теоретической модели проведены эксперименты с ПЭВ, возбуждаемой  $\text{CO}_2$  лазером на поверхности алюминия, контактирующей с газообразным гексафторидом серы. Расчетные данные хорошо согласуются с экспериментальными результатами.

### Насыщение поглощения ПЭВ

Коэффициент поглощения ПЭВ на границе твердое тело—разреженный газ можно приближенно представить в виде

$$\alpha = \alpha_0 + \alpha_1,$$

где  $\alpha_0$  — коэффициент поглощения ПЭВ в системе твердое тело—вакуум,  $\alpha_1$  — вклад газа в поглощение ПЭВ.

Коэффициент поглощения в газе в свою очередь может быть выражен через мощность, расходуемую волной на периодическое изменение поляризации газа,

$$\alpha_1 = - \frac{\int_0^{\infty} \overline{Q(z)} dz}{\int_{-\infty}^0 \overline{S_{1x}(z)} dz + \int_0^{\infty} \overline{S_{2x}(z)} dz}, \quad (1)$$

где  $Q = \mathcal{E}(\partial \mathcal{P} / \partial t)$ ,  $S_i = (c/4\pi)[\mathcal{E}_i, \mathcal{H}_i]$  — вектор Пойнтинга.  
Компоненты полей и поляризации имеют вид ( $\mathcal{F} = \{\mathcal{E}_i, \mathcal{H}_i, \mathcal{P}\}$ )

$$\mathcal{F} = \frac{1}{2} \mathbf{F}(z) \exp(-i\omega t + ikx) + \text{к. с.},$$

$i=1, 2$ ;  $\omega$  и  $k$  — частота и волновой вектор ПЭВ; черта обозначает усреднение по времени за период поля; поля  $\mathcal{E}$  и  $\mathcal{H}$  берутся для системы твердое тело — вакуум, индексы 1 и 2 относятся к твердому телу и вакууму соответственно. Предполагается, что поверхностная  $TM$ -волна распространяется вдоль оси  $x$ , а ось  $z$  направлена нормально к границе раздела в глубь газовой среды.

Моделируя молекулы газа двухуровневыми системами с уровнями  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$ , выразим поляризацию через элемент матрицы плотности  $\rho_{12}$

$$\frac{1}{2} \mathbf{P}(z) = N \langle \rho_{12}(z) \mathbf{d}_{21} \rangle$$

где  $N$  — плотность числа молекул в газе,  $\mathbf{d}_{21}$  — дипольный момент перехода, угловые скобки обозначают усреднение по ансамблю молекул.

В случае быстрой фазовой релаксации  $\rho_{12}$  выражается через разность диагональных элементов  $\rho_{11} - \rho_{22}$ . Матрица плотности  $\rho$  описывает микроскопическую эволюцию состояния газа в поле ПЭВ. Однако, если интенсивность волны слабо меняется на расстоянии порядка длины свободного пробега, а переходы между уровнями молекул происходят за времена, гораздо большие времени свободного пробега, возможно менее детальное, макроскопическое описание эволюции системы. Макроскопические уравнения эволюции имеют вид уравнений диффузии для возбужденных и невозбужденных молекул и включают члены, учитывающие изменение состояния молекулы. Стационарная разность населенностей уровней  $w$ , определяющая насыщение перехода, находится из уравнения [5]

$$D \frac{d^2 w}{dz^2} - \frac{1}{\tau} (w - w_e) - \frac{2\sigma J(z)}{\hbar\omega} w = 0 \quad (2)$$

и граничных условий

$$w(0) = w(\infty) = w_e.$$

Здесь  $D$  — коэффициент самодиффузии,  $\tau$  — время жизни возбужденного состояния,  $\sigma$  — сечение поглощения,  $J(z) = J(0) e^{-z/\delta}$  — интенсивность ПЭВ,  $\delta$  — глубина ее проникновения в газ,  $w_e$  — равновесная разность населенностей.

В случае, когда  $\sqrt{D\tau} \gg \delta$ , уравнение (2) имеет приближенное решение

$$w(z) = w_e I_0(g e^{-z/\delta}) [1 - (1 - I_0^{-1}(g)) e^{-z/\sqrt{D\tau}}],$$

где  $I_n$  — модифицированная функция Бесселя 1-го рода  $n$ -го порядка,

$$g = \delta \sqrt{\frac{2\sigma J(0)}{\hbar\omega D}} \equiv \sqrt{\frac{J(0)}{J_s}}, \quad (3)$$

$g$  — параметр, характеризующий насыщение;  $J_s$  — интенсивность насыщения.

При этом для коэффициента поглощения  $\alpha_1$  получается выражение

$$\alpha_1 = \alpha_{10} \frac{2I_1(g)}{gI_0(g)}. \quad (4)$$

Коэффициент поглощения слабой ПЭВ  $\alpha_{10}$  выражается через линейную восприимчивость газа  $\chi$  следующим образом:

$$\alpha_{10} = -4\pi \frac{\omega}{c} \left( \frac{\epsilon_1}{\epsilon_1 + 1} \right)^{1/2} \text{Im} \chi,$$

где  $\epsilon_1$  — диэлектрическая проницаемость твердого тела.

В слабом поле при  $g \ll 1$   $\alpha_1 = \alpha_{10}$ ; при увеличении интенсивности ПЭВ  $\alpha_1 \rightarrow 0$ . В случае металла  $|\epsilon_1| \gg 1$  и  $\alpha_{10} = -4\pi (\omega/c) \text{Im} \chi$ .

Рассмотрим теперь поглощение слабой пробной ПЭВ в присутствии сильной основной волны. Чтобы характеризовать насыщение поглощения, введем величину

$$\Delta\alpha_1(x) = \frac{1}{x} \ln \frac{J_p(x)}{J_p^0(x)}, \quad (5)$$

$J_p$  и  $J_p^0$  — интенсивности пробной ПЭВ в присутствии основной волны и без нее соответственно.

Выражение (5) можно переписать в следующем виде

$$\Delta\alpha_1 = \frac{1}{x} \left[ \alpha_{10}x - \int_0^x \alpha_1(g(x)) dx \right] = \frac{2\alpha_{10}}{\alpha_0 x} \int_{g(x)}^{g(0)} \frac{I_2(g)}{gI_0(g)} dg. \quad (6)$$

Здесь учтена зависимость параметра насыщения от координаты  $x$  вследствие поглощения интенсивной ПЭВ. При увеличении интенсивности основной волны величина  $\Delta\alpha_1$  стремится к  $\alpha_{10}$ . В пределе слабого поля ( $g \ll 1$ ) для  $\Delta\alpha_1$  справедливо выражение

$$\Delta\alpha_1 = \frac{\alpha_{10}}{8\alpha_0 x} (1 - e^{-\alpha_0 x}) g^2(0). \quad (7)$$

### Эксперимент

Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. В кювету с гексафторидом серы, в которой расположен образец с исследуемой поверхностью, заводились два луча  $\text{CO}_2$  лазера: основной мощностью до 1 Вт и пробный мощностью  $\sim 0.07$  Вт. Образец представлял собой пластину из кремния,

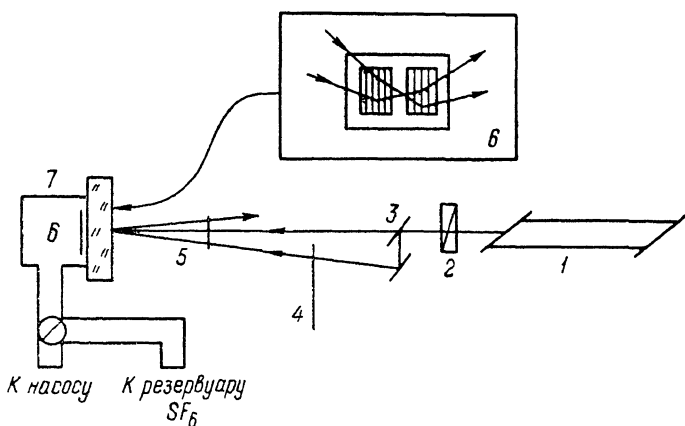


Рис. 1. Схема эксперимента.

1 —  $\text{CO}_2$  лазер, 2 — поляризатор, 3 — делительное стекло, 4 — обтюратор, 5 — линза, 6 — образец, 7 — вакуумная кювета.

покрытую слоем алюминия толщиной  $\sim 2000 \text{ \AA}$ , на которой методом фотолитографии [6] были сделаны две решетки для преобразования излучения в ПЭВ и вывода излучения с поверхности. Входная решетка имела период  $\Lambda \approx 5.9 \text{ мкм}$ , глубину  $2\sigma \approx 0.7 \text{ мкм}$ , выходная —  $7.8$  и  $0.7 \text{ мкм}$  соответственно. Размер решеток  $10 \times 6 \text{ мм}$ , штрихи ориентированы вдоль длинной стороны, расстояние между решетками  $l_0 \approx 2 \text{ мм}$ . Расстояние между оконной кюветы и исследуемой поверхностью образца  $h \approx 1 \text{ мм}$ . Оптическая схема эксперимента обуславливалась требованием максимального перекрытия основной и поверхностной волн. Поэтому угол схождения лучей, падающих на входную решетку, был выбран минимально возможным —  $0.04$ , что соответствовало углу между поверхностными волнами  $0.07$ . Перекрытие волн при этом составляло  $99.6 \%$ . Выходное излучение от пробной ПЭВ регистрировалось Ge—Au приемником. Образец крепился к массивному медному хладопроводу, на самом образце были расположены термометры, что позволяло

изменять и контролировать температуру исследуемой металлической поверхности.

Для определения параметра насыщения в газовой фазе  $SF_6$  были сняты следующие зависимости. Зависимость коэффициента поглощения ПЭВ малой

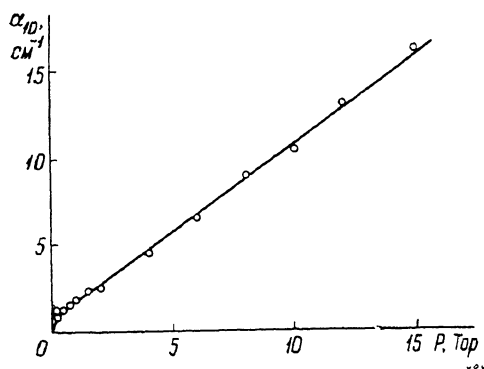


Рис. 2. Зависимость коэффициента поглощения ПЭВ малой интенсивности  $\alpha_{10}$  от давления  $P$ .

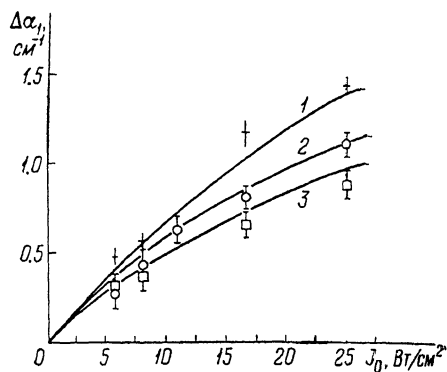
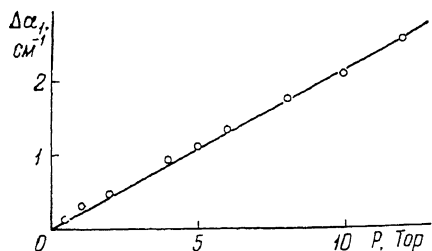


Рис. 3. Зависимости изменения коэффициента поглощения пробной ПЭВ  $\Delta\alpha_1$  от интенсивности основной волны  $J_0$  при различных температурах.

$$T_1=238 \text{ (1)}, T_2=291 \text{ (2)}, T_3=319 \text{ K (3)}.$$

интенсивности от давления  $\alpha_{10} = -\ln(J_{p1}^0(P)/J_{p1}^0)/l$  (рис. 2), где  $l \approx l_0 + 1$  мм — расстояние от места возбуждения до места излучения ПЭВ,  $J_0^0$  и  $J_{p1}^0$  — интенсивности излучения ПЭВ без газа и с газом соответственно. Зависимость изменения коэффициента поглощения



коэффициента поглощения пробной ПЭВ в присутствии основной от интенсивности основной волны  $J_0$  при различных температурах  $\Delta\alpha_1 = \ln(J_{p1} \times (J_0/J_{p1}^0))/l$  (рис. 3), а также зависимость изменения коэффициента

Рис. 4. Зависимость изменения коэффициента поглощения пробной ПЭВ в присутствии основной волны  $\Delta\alpha_1$  от давления  $P$ .

поглощения в присутствии основной ( $J_0 = J_{0 \text{ max}}$ ) от давления  $\Delta\alpha_1 = \ln(J_{p1}(P)/J_{p1}^0(P))/l$  (рис. 4). При построении графиков учтено затухание излучения в газе на пути от входного окна до поверхности и обратно. Пересчет мощности падающего излучения в интенсивность ПЭВ производился в соответствии с распределениями интенсивностей объемной волны и ПЭВ [6].

### Обсуждение результатов

Зависимость коэффициента поглощения ПЭВ малой интенсивности от давления с хорошей точностью аппроксимируется прямой с наклоном  $1.0 \text{ см}^{-1} \times \text{Тор}^{-1}$ . Отличие этого результата от значения  $1.2 \text{ см}^{-1} \cdot \text{Тор}^{-1}$  для линии  $P$  (16)  $CO_2$  лазера [7] может быть объяснено погрешностью в определении пути распространения ПЭВ между решетками на поверхности. Как видно из рис. 2, при  $P < 1$  Тор зависимость  $\alpha_{10}(P)$  отклоняется от линейной. В этой области давлений вклад в коэффициент поглощения ПЭВ адсорбированного слоя молекул сравним с вкладом от газа в объеме. Линейная зависимость  $\Delta\alpha_1(P)$  (рис. 4) проходит через начало координат. Это означает, что основная волна не приводит к насыщению адсорбированных молекул и их вклад в  $\Delta\alpha_1(P)$  в присутствии основной ПЭВ и без нее взаимно сокращается.

Рассмотрим изменение коэффициента поглощения пробной ПЭВ в зависимости от интенсивности основной волны более подробно. Заметим, что роль времени  $\tau$  в уравнении (2) играет время жизни вращательного подуровня возбужденного колебательного состояния резонансного перехода, а время поперечной релаксации  $\tau_{\perp}$  определяется не только процессами смена фазы, но и временем перехода на соседние вращательные подуровни. Согласно работе [8], при давлении газа  $P=5$  Торр  $\tau \approx 3.7 \cdot 10^{-3}$  с,  $\tau_{\perp} \sim 10^{-8}$  с. Коэффициент диффузии можно оценить по времени свободного пробега молекул  $SF_6$  [9]  $D \approx 2.4$  см<sup>2</sup>/с. Глубина проникновения в газ ПЭВ, возбуждаемой на границе с алюминием излучением  $CO_2$  лазера ( $\lambda=10.6$  мкм), составляет  $\delta \approx 100$  мкм [1]. Таким образом, выполняется неравенство  $\sqrt{D\tau} \gg \delta$  и условие быстрой фазовой релаксации  $\tau_{\perp} \ll \delta^2/D \ll \tau$ .

Подчеркнем, что использование модели насыщения двухуровневой системы в случае молекулы  $SF_6$  не совсем корректно. Однако, как показано в работе [8], аналитическая зависимость коэффициента поглощения газа  $SF_6$  от интенсивности 10.6 мкм излучения такая же, как для двухуровневой системы; интенсивность же насыщения многоуровневой системы значительно выше. Это обстоятельство учитывается введением параметра  $\varepsilon$ , имеющего смысл относи-

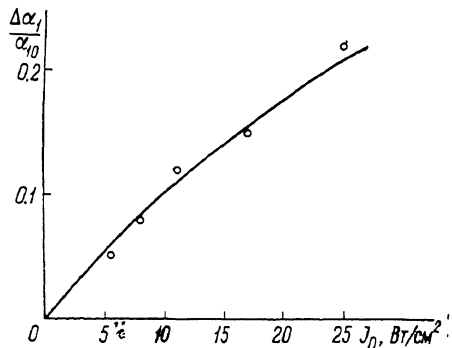


Рис. 5. Зависимость изменения коэффициента поглощения пробной ПЭВ  $\Delta\alpha_1$  от интенсивности основной волны  $J_0$  при температуре  $T_2=291$  К.

Кружки — эксперимент, сплошная линия — расчет.

тельной доли молекул, находящихся на резонансных подуровнях. Сделаем, следуя работе [10], замену  $D \rightarrow D/\varepsilon$ , тогда

$$J_s = \frac{h\omega D}{2\sigma\varepsilon\delta^2}, \quad (8)$$

где величину  $\sigma\varepsilon$  можно оценить по значению  $\alpha_{10}$ .

Полагая  $\alpha_0 \approx 1.2$  см<sup>-1</sup> [3] и используя формулу (7), можно определить из графика зависимости  $\Delta\alpha_1(J_0)$  для  $T_2$  (рис. 3, кривая 2) интенсивность насыщения  $J_s^{\text{экс}} \approx 8.3$  Вт/см<sup>2</sup>. Это значение находится в хорошем согласии с теоретическим значением, найденным по формуле (8)  $J_s^{\text{теор}} \approx 5.6$  Вт/см<sup>2</sup>. На рис. 5 представлено сравнение зависимости  $\Delta\alpha_1(J_0)$  с результатами расчета по формуле (6) с параметром  $J_s^{\text{экс}}$ . Зависимость  $\Delta\alpha_1$  от температуры (рис. 3) обусловлена главным образом изменением с температурой концентрации газа в исследуемом объеме.

Следует отметить, что в наших экспериментах уменьшение поглощения при увеличении интенсивности ПЭВ не было вызвано уменьшением концентрации газа или заселением верхнего колебательного уровня молекул вследствие нагревания приповерхностного слоя излучением ПЭВ. Это подтверждается слабыми зависимостями температуры подложки от интенсивности волны и коэффициента поглощения ПЭВ от температуры подложки.

Таким образом, нами предложена модель поглощения инфракрасной ПЭВ, распространяющейся по границе раздела металл—поглощающий газ. Модель включает процессы, которые влияют на насыщение поглощения. Для подтверждения модели были проведены эксперименты. В отличие от работы [3] была рассмотрена область давлений газа, в которой вклад адсорбированного слоя молекул в коэффициент поглощения ПЭВ мал по сравнению с вкладом газа в объеме. Получено хорошее согласие расчетных данных с экспериментальными результатами. В случае газа  $SF_6$  при давлении в несколько торр насыщение определяется главным образом диффузией возбужденных молекул из приповерхностного слоя газа, в котором распространяется ПЭВ.

### Список литературы

- [1] Поверхностные поляритоны. Электромагнитные волны на поверхностях и границах раздела сред / Под ред. В. М. Аграновича, Д. Л. Миллса. М.: Наука, 1985. 526 с.
- [2] Бордо В. Г. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. Вып. 13. С. 1169—1172.
- [3] Кравченко В. А., Петров Ю. Н., Суров С. П., Сычугов В. А. // Высокочистые вещества. 1987. Т. 3. С. 94—98.
- [4] Бордо В. Г., Кравченко В. А., Петров Ю. Н. и др. Препринт ИОФАН. № 11. М., 1988. 17 с.
- [5] Бордо В. Г. // ЖЭТФ. 1989. Т. 95. № 2. С. 594—600.
- [6] Суров С. П., Сычугов В. А. // ЖТФ. 1985. Т. 55. Вып. 6. С. 1136—1141.
- [7] Shimizu F. // Appl. Phys. Lett. 1969. Vol. 14. N 12. P. 378—380.
- [8] Wood O. R., Gordon P. L., Schwarz S. E. // IEEE J. Quantum Electron. 1969. Vol. 5. N 10. P. 502—513.
- [9] Bott J. E., Jacobs T. A. // J. Chem. Phys. 1969. Vol. 50. N 9. P. 3850—3855.
- [10] Christensen C. P., Freed C., Haus H. A. // IEEE J. Quantum Electron. 1969. Vol. 5. N 6. P. 276—283.

Институт общей физики  
АН СССР  
Москва

Поступило в Редакцию  
5 декабря 1988 г.