

Московский государственный университет

имени М. В. Ломоносова

Физический факультет

на правах рукописи

Афиногенов Борис Игоревич

Фемтосекундная и нелинейно-оптическая спектроскопия фотонных
кристаллов в присутствии таммовских плазмон-поляритонов

01.04.21 – лазерная физика

Диссертация на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук,

профессор А. А. Федянин

Москва — 2016

Оглавление

Введение	5
----------	---

Глава I

Обзор литературы	12
-------------------------	-----------

1. Таммовские плазмон-поляритоны в фотонных кристаллах	12
1.1. Основные понятия	12
1.2. Оптические свойства таммовских плазмон-поляритонов	16
1.3. Гибридные состояния таммовских плазмон-поляритонов	18
2. Оптические методы исследования сверхбыстрых процессов	24
2.1. Методики измерения длительности фемтосекундных оптических импульсов	24
2.2. Методика «накачка-зонд» и её применения	27
3. Усиление нелинейно-оптических эффектов локализованными состояниями электромагнитного поля	35

Глава II

Фемтосекундная динамика релаксации таммовских плазмон-поляритонов	44
--	-----------

1. Измерение стационарных оптических свойств таммовских плазмон-поляритонов	44
1.1. Экспериментальные образцы	44
1.1.1. Образец серии 1	45
1.1.2. Образец серии 2	46
1.1.3. Образец серии 3	46
1.2. Спектроскопия коэффициентов отражения и пропускания исследуемых образцов	48

2. Экспериментальное исследование фемтосекундной динамики релаксации таммовских плазмон-поляритонов	53
3. Численные расчеты фемтосекундной динамики релаксации таммовских плазмон-поляритонов.....	62
4. Фемтосекундная спектроскопия коэффициента отражения структуры фотонный кристалл-металл при возбуждении таммовского плазмон-поляритона.....	67

Глава III

Генерация второй и третьей оптических гармоник в структурах фотонный кристалл-металл при возбуждении таммовских плазмон-поляритонов 78

1. Усиление генерации второй оптической гармоники при возбуждении таммовского плазмон-поляритона в случае резонансной накачки ...	79
1.1. Спектроскопия интенсивности второй оптической гармоники в образцах серии 1.....	79
1.2. Измерение угловой зависимости эффективности генерации второй оптической гармоники в образцах серии 2	86
2. Усиление генерации второй оптической гармоники при возбуждении таммовского плазмон-поляритона в случае резонансной второй гармоники.....	89
3. Усиление генерации третьей оптической гармоники при возбуждении таммовских плазмон-поляритонов в случае двойного резонанса накачки и третьей гармоники	92
4. Численные расчеты усиления генерации второй и третьей оптических гармоник при возбуждении таммовских плазмон-поляритонов	99
4.1. Случай резонансной накачки	100
4.2. Случай резонансной второй гармоники.....	104
4.3. Случай двойного резонанса накачки и третьей гармоники...	105

Глава IV

Гибридное состояние таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов	109
1. Экспериментальное обнаружение гибридного состояния таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов	109
1.1. Экспериментальная установка	109
1.2. Исследование оптических свойств гибридного состояния таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов методом частотно-угловой спектроскопии	111
2. Численные расчеты и аналитическая модель гибридного состояния	115
Заключение	124
Список литературы	126
Приложение	
Метод матриц распространения	141

Введение

Диссертационная работа посвящена экспериментальному исследованию оптических и нелинейно-оптических свойств структур фотонный кристалл-металлическая плёнка (ФК/металл) методами фемтосекундной и нелинейно-оптической спектроскопии. Особое внимание уделено исследованию динамики модификации лазерных импульсов, отраженных от подобных структур, изучению влияния возбуждения локализованных состояний электромагнитного поля на нелинейно-оптический отклик структур ФК/металл и изучению оптических свойств гибридных локализованных состояний в данных структурах.

В последнее десятилетие существенно возрос интерес к созданию новых элементных баз для вычислительных устройств, призванных заменить существующие электронные компоненты. Одной из альтернатив являются оптические компьютеры, в которых источником сигнала служат световые импульсы. Важным направлением исследования в данной области является изучение оптических свойств локализованных состояний электромагнитного поля. К подобным состояниям можно отнести поверхностные плазмон-поляритоны (ППП), поверхностные электромагнитные волны в фотонных кристаллах (ПЭВ) и моды оптических волноводов. Возбуждение описанных состояний характеризуется увеличением локальных электромагнитных полей, что приводит к усилению нелинейно-оптических эффектов, таких как генерация оптических гармоник, нелинейно-оптический эффект Керра и других. Указанные эффекты позволяют говорить о возможности применения локализованных состояний для создания активных элементов фотоники, лазеров и полностью оптических модуляторов излучения.

Актуальность работы обусловлена проблемой полностью оптического управления электромагнитным излучением на фемтосекундных масштабах времени. Исследуемые в данной работе образцы представляют собой набор диэлектрических слоёв (одномерный ФК), покрытый полупрозрачной плёнкой металла. Они обладают уникальными оптическими свойствами, определяющимися преж-

де всего геометрией структуры и, во вторую очередь, диэлектрическими свойствами материалов, входящих в неё. В данных структурах возможно возникновение локализованных состояний электромагнитного поля, получивших название таммовских плазмон-поляритонов (ТПП), во многом схожих по свойствам с ППП, ПЭВ, микрорезонаторными модами в фотонных кристаллах и др. В то же время, ТПП отличаются слабыми требованиями к параметрам возбуждающего излучения, в частности, для возбуждения данных состояний не требуется выполнения условий синхронизма тангенциальных компонент волновых векторов, ТПП могут возбуждаться для любой поляризации падающего излучения. В спектрах коэффициентов отражения и пропускания структур ФК/металл данные состояния проявляются в виде узких резонансов на частотах внутри фотонной запрещённой зоны (ФЗЗ) ФК. За счёт изменения геометрии структуры можно добиться перестройки резонансной частоты возбуждения данных состояний в широком спектральном диапазоне. Поскольку спектральная ширина резонанса ТПП составляет несколько нанометров, ожидается, что время жизни ТПП составляет несколько десятков фемтосекунд. С другой стороны, из-за малой спектральной ширины резонанса ТПП, незначительный сдвиг его центральной частоты должен приводить к существенному изменению условий отражения излучения на длинах волн, соответствующих склонам резонансного контура. Указанные свойства определяют перспективу использования ТПП в новых полностью оптических устройствах управления электромагнитным излучением и мотивируют исследования временной динамики возбуждения и релаксации данных состояний, а также исследования модификации оптического отклика структур ФК/металл при возбуждении ТПП. Систематических исследований данных вопросов до настоящего времени не проводилось.

Как было показано теоретически, возбуждение ТПП связано с существенным усилением электромагнитного поля вблизи границы раздела ФК/металл. Данное явление должно приводить к усилению генерации второй и третьей оптических гармоник в случае совпадения частоты излучения накачки и резонансной частоты возбуждения ТПП. Поскольку в резонансе ТПП максимальное

усиление поля наблюдается внутри объема структуры, можно говорить о перспективности метода нелинейно-оптической спектроскопии для зондирования скрытых границ раздела и активных слоёв.

Большое число работ посвящено исследованию так называемых гибридных состояний, которые определяются возбуждением нескольких мод электромагнитного поля в одном экспериментальном образце. В частности, были исследованы гибридные состояния ТПП и экситонов Ванье-Мотта, ТПП и микрорезонаторных мод, нескольких таммовских плазмонов. Интерес к изучению гибридных состояний связан с возможностью создания компактных лазеров на основе структур, поддерживающих гибридные состояния и позволяющих осуществлять перекачку энергии из одной моды в другую с последующим усилением поля и генерацией когерентного излучения. Другим типом гибридного состояния, изученным в диссертационной работе, является гибридное состояние таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов. Важность исследования его свойств обусловлена необходимостью управления законом дисперсии ППП для расширения возможностей существующих сенсоров на их основе. На момент проведения исследований существовало лишь несколько теоретических работ, посвященных данной проблеме. На текущий момент опубликованы исследования по практическому применению гибридных состояний ТПП и ППП.

Целью диссертационной работы является экспериментальное исследование спектральных, угловых и временных характеристик оптического отклика фотоннокристаллических структур, поддерживающих возбуждение таммовских плазмон-поляритонов, а также исследование нелинейно-оптического отклика данных структур.

Научная новизна работы состоит в следующем:

1. Впервые измерены кросс-корреляционные функции фемтосекундных лазерных импульсов, отраженных от структуры ФК/металл при различных углах падения и поляризации излучения. Показано, что в случае возбуждения ТПП кросс-корреляционные функции деформируются, причем величина деформации зависит от поляризации и угла падения излучения.

2. Проведена фемтосекундная спектроскопия коэффициента отражения структуры фотонный кристалл-металлическая плёнка в схеме «накачка-зонд». Показано, что при перекрытии спектров импульса зонда и резонансного контура ТПП наблюдается существенное усиление модуляции коэффициента отражения, связанное со спектральным сдвигом резонанса таммовского плазмон-поляритона.
3. Впервые экспериментально продемонстрировано резонансное усиление генерации второй и третьей оптических гармоник при возбуждении ТПП в структурах ФК/металл. Изучены поляризационная, угловая и спектральная зависимости коэффициента усиления. Исследован вопрос о механизмах усиления.
4. Экспериментально обнаружено гибридное состояние таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов при условиях полного внутреннего отражения излучения от структуры фотонный кристалл/металлическая плёнка. Показана поляризационная селективность данного состояния и обнаружено расталкивание дисперсионных кривых ТПП и ППП.

Практическая значимость работы заключается в разработке новых подходов к полностью оптическому управлению электромагнитным полем и разработке новых методик оптического зондирования объектов.

Работа имеет следующую структуру:

Первая глава содержит обзор литературы по оптическим свойствам таммовских плазмон-поляритонов и их гибридных состояний, а также обзор исследований, посвященных изучению фемтосекундной динамики поверхностных состояний электромагнитного поля и нелинейно-оптических эффектов в присутствии локализованных состояний электромагнитного поля.

Вторая глава посвящена экспериментальному и численному изучению фемтосекундной динамики ТПП. Приведены характеристики исследуемых образцов, описаны результаты спектроскопии коэффициентов отражения и пропускания в зависимости от углов падения и поляризации излучения. Показаны

измеренные кросс-корреляционные функции фемтосекундных импульсов, отраженных от образца при возбуждении таммовского плазмона и без него, определено характерное время жизни ТПП. С помощью численного моделирования изучено влияние угла падения и поляризации излучения на время жизни. Продemonстрировано усиление сверхбыстрой модуляции коэффициента отражения системы ФК/металл в схеме «накачка-зонд» при условии перекрытия спектров импульса зонда и резонансного контура ТПП.

Третья глава посвящена экспериментальному исследованию усиления нелинейно-оптических эффектов в фотоннокристаллических образцах при возбуждении таммовских плазмон-поляритонов. Приведены результаты частотно-угловой спектроскопии интенсивности второй и третьей оптических гармоник. Обнаружены три механизма усиления генерации оптических гармоник в присутствии ТПП: механизм резонансной накачки, механизм резонансной оптической гармоник и механизм двойного резонанса.

Четвёртая глава посвящена экспериментальному наблюдению гибридных состояний таммовских и поверхностных плазмон-поляритонов в структурах фотонный кристалл-металлическая пленка. Приведены результаты частотно-угловой спектроскопии для различных поляризаций падающего излучения. Изучено влияние толщины металлической плёнки на степень связи компонент гибридного состояния.

На защиту выносятся следующие **основные положения**:

1. Возбуждение таммовских плазмон-поляритонов в структурах фотонный кристалл-металлическая пленка приводит к модификации фемтосекундных лазерных импульсов, отраженных от данных образцов. В частности, наблюдается удлинение заднего фронта импульса, причем величина удлинения зависит от угла падения излучения на структуру и от поляризации падающего излучения.
2. Изменение комплексной диэлектрической проницаемости тонкой плёнки золота, индуцированное фемтосекундным лазерным импульсом, приво-

дит к спектральному сдвигу резонанса таммовского плазмон-поляритона, возбуждаемого в структуре фотонный кристалл-металлическая плёнка. Спектральная зависимость относительного изменения коэффициента отражения структуры имеет асимметричный профиль, причем максимальная величина относительного изменения коэффициента отражения структуры фотонный кристалл-металлическая плёнка в двадцать раз больше, чем металлической плёнки при той же мощности излучения накачки.

3. Эффективность генерации второй и третьей оптических гармоник в структурах фотонный кристалл-металлическая плёнка возрастает при возбуждении таммовских плазмон-поляритонов. Механизмы усиления связаны с локализацией электромагнитного поля накачки в нелинейных слоях структуры в случае совпадения частоты излучения накачки с резонансной частотой таммовского плазмон-поляритона и с увеличением плотности фотонных состояний на частоте резонанса таммовского плазмон-поляритона.
4. В структуре фотонный кристалл-металлическая пленка возникают гибридные состояния таммовских и поверхностных плазмон-поляритонов. При возбуждении гибридного состояния наблюдается спектральный сдвиг поверхностно-плазмонной компоненты дисперсионной кривой гибридного состояния по сравнению с дисперсионной кривой поверхностного плазмона, зависящий от толщины металлической плёнки.

Личный вклад автора является определяющим: все результаты работы получены либо лично автором, либо при его непосредственном участии.

Апробация работы проводилась на основных российских и международных конференциях, в том числе:

- Международная конференция «The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO/LAT) 2016», Минск, Белоруссия, сентябрь 2016.
- Международная конференция «SPIE Photonics West 2016», Сан Франциско, США, февраль 2016.

- Международная конференция «Дни дифракции», Санкт-Петербург, Россия, май 2015.
- Международная конференция «SPIE Photonics Europe 2014», Брюссель, Бельгия, апрель 2014.
- Международная конференция «Дни дифракции», Санкт-Петербург, Россия, май 2014.
- Международная конференция «Frontiers in Optics/Laser Science 2013», Орландо, США, октябрь 2013.
- Международная конференция «The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO/LAT) 2013», Москва, Россия, июнь 2013.
- X Всероссийский молодежный конкурс-конференция научных работ по оптике и лазерной физике, Самара, Россия, ноябрь 2012.

Основные результаты диссертации **опубликованы** в 16 печатных работах, в том числе в 4 публикациях в журналах «Applied Physics Letters» [1,2], «Optics Letters» [3] и «SPIE Proceedings» [4].

Глава I

Обзор литературы

1. Таммовские плазмон-поляритоны в фотонных кристаллах

1.1. Основные понятия

Таммовские плазмон-поляритоны являются оптическими аналогами таммовских состояний в электронных кристаллах. Возникновение локализованных состояний электронов на поверхности кристалла было предсказано Игорем Евгеньевичем Таммом в 1932 году в работе [5]. Он рассматривал одномерный полубесконечный кристалл с потенциалом вида Кронига-Пенни [6] и потенциальной ступенькой на его границе (рис. 1.1) [7]. Пусть решетка описывается потенциальной кривой с прямоугольными ступеньками периода $d = a + b$. Внутри ячейки потенциал равен нулю при $0 \leq x < a$ и U_1 при $a \leq x \leq d$. При $x < 0$ потенциал имеет постоянное значение U_0 . Пусть электрон описывается энергией

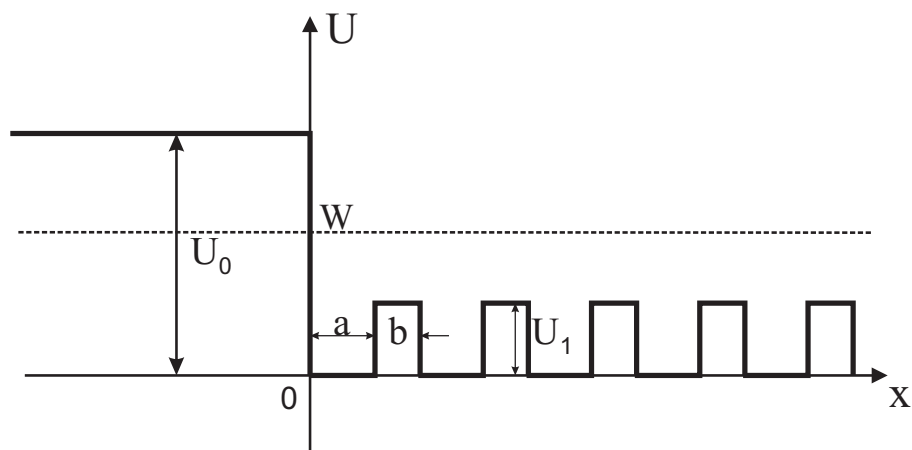


Рис. 1.1: Вид потенциала в задаче Тамма [7].

W и волновой функцией ψ , m — его масса. Рассмотрим уравнение Шредингера вида

$$\psi'' + \kappa^2 [W - U(x)] \psi = 0, \quad \kappa^2 = \frac{2m}{\hbar^2}, \quad (1.1)$$

с условиями непрерывности

$$\psi = \text{const}; \quad \frac{\partial \psi}{\partial x} = \text{const}, \quad (1.2)$$

на границе кристалла. Введем постоянные $k = \kappa\sqrt{W}$ и $k' = \kappa\sqrt{W - U_1}$, по смыслу являющиеся волновыми числами электрона в областях с разной потенциальной энергией. Общее решение уравнения Шредингера записывается в виде:

$$\psi = e^{i\alpha_1 x} u_1(x) + e^{i\alpha_2 x} u_2(x), \quad (1.3)$$

где $u_{1,2}(x)$ — периодические по x функции с периодом d , а $\alpha_{1,2}$ — постоянные. Данный вид решения можно рассматривать как суперпозицию двух блоховских волн, причем постоянные $\alpha_{1,2}$ в этом случае являются блоховскими волновыми числами. Коэффициенты α_1 и $\alpha_2 = -\alpha_1$ определяются из условий непрерывности волновой функции и ее производной. После вычислений можно прийти к уравнению:

$$\cos(\alpha d) = \cos(ka) \cos(k'b) - \frac{k^2 + k'^2}{2kk'} \sin(ka) \sin(k'b). \quad (1.4)$$

Если правая часть этого уравнения по модулю не превосходит единицы, то существует два действительных корня: α_1 и $\alpha_2 = -\alpha_1$ и соответствующее значение энергии электрона W лежит в разрешенной энергетической зоне. Если же правая часть по модулю превосходит единицу, корни уравнения становятся комплексными и соответствующие значения энергии принадлежат запрещенной зоне. Как было показано в работе [7], внутри каждой запрещенной зоны существует строго одно значение энергии электрона, для которого выполняются граничные условия (1.2). Данное состояние электрона называется поверхностным, поскольку волновая функция этого состояния имеет максимальное значение на поверхности кристалла и экспоненциально спадает по обе стороны от его границы. Подход был расширен Уильямом Шокли на случай кристалла конечного размера в работе [8]. Было показано, что если кристаллическая решетка состоит из конечного числа атомов, возможно возникновение поверхностных состояний электронов. Кроме того, был рассмотрен трёхмерный случай задачи и показана возможность существования поверхностных энергетических зон.

Можно провести аналогию между задачей Тамма и следующей задачей: пусть плоская волна распространяется в одномерном фотонном кристалле (ФК) и падает на границу раздела фотонный кристалл – металл. В данном случае слои с низкой и высокой диэлектрической проницаемостью соответствуют большому и малому потенциалу; слой металла соответствует потенциальному барьеру на границе (Рис. 1.2); волна электромагнитного поля соответствует волновой функции электрона. Из уравнений Максвелла можно получить уравнение

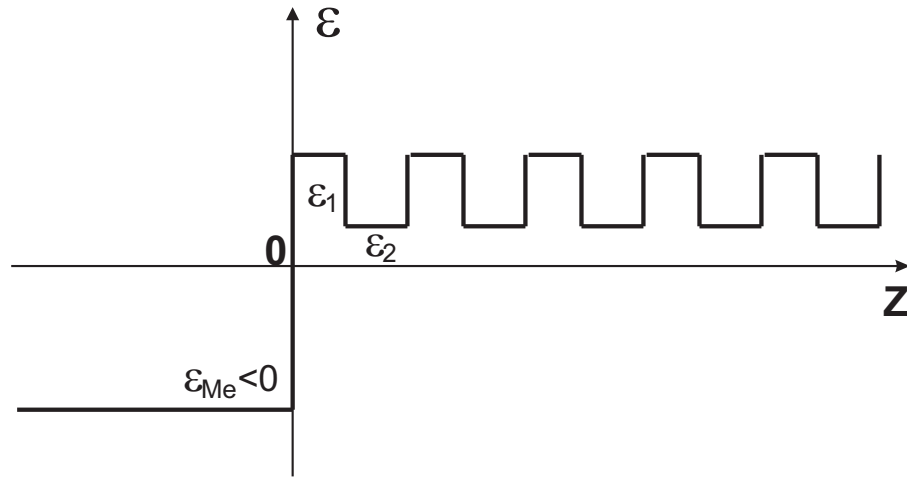


Рис. 1.2: Пространственное распределение диэлектрической проницаемости структуры фотонный кристалл – металл вдоль нормали к её поверхности.

Гельмгольца для компоненты E_y напряженности электрического поля, лежащей в плоскости поверхности фотонного кристалла:

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} E_y + k_0^2 \varepsilon(z) E_y = 0, \quad (1.5)$$

где k_0 — вакуумное волновое число, $\varepsilon(z)$ — диэлектрическая проницаемость. Условия непрерывности для электромагнитной волны имеют вид: $E_y = const$, $H_x = const$. Последнее условие, исходя из уравнений Максвелла, можно переписать в виде $\partial E_y / \partial z = const$. Таким образом, легко видеть, что это уравнение полностью эквивалентно одноэлектронному уравнению Шредингера в задаче Тамма. То есть ожидается возникновение состояния электромагнитной волны, локализованное около границы раздела фотонный кристалл – металл. Данное состояние получило название таммовского плазмон-поляритона (ТПП). В случае нормального падения излучения на образец оно не переносит энергию вдоль

границы раздела, поскольку тангенциальная составляющая волнового вектора состояния равна нулю. Так как поверхностное состояние возникает на частотах, лежащих внутри фотонной запрещенной зоны, интенсивность электромагнитного поля в среднем экспоненциально затухает внутри фотонного кристалла. Экспоненциальное затухание в металле обусловливается отрицательным значением его диэлектрической проницаемости. В общем случае для возникновения локализованного состояния электромагнитного поля на границе раздела двух сред, характеризующихся материальными постоянными ε_1, μ_1 и ε_2, μ_2 необходимо выполнение условия $\varepsilon_1 < 0, \mu_2 < 0$, либо $\varepsilon_2 < 0, \mu_1 < 0$. Одномерный фотонный кристалл можно рассматривать как метасреду с эффективной отрицательной магнитной либо диэлектрической проницаемостью. Таким образом, возможно возбуждение поверхностного состояния на границе раздела двух различных фотонных кристаллов. Подобные состояния в литературе иногда называют «оптическими таммовскими состояниями», чтобы подчеркнуть отличие от таммовских плазмон-поляритонов в смысле отсутствия взаимодействия электромагнитного поля световой волны и электронной плазмы металла. Кроме того, терминология оптических аналогов таммовских состояний может быть расширена на многомерный случай, а также на случай нелинейного взаимодействия электромагнитных волн [9].

Свойства ТПП во многом схожи со свойствами хорошо изученных поверхностных плазмон-поляритонов (ППП) [10, 11] и поверхностных электромагнитных волн (ПЭВ) в фотонных кристаллах [12–14]. В то же время в отличие от указанных состояний ТПП возбуждается как для s так и для p поляризаций падающего излучения. Кроме того, для возбуждения ТПП не нужно использовать призмные [15, 16] или дифракционные [17] методы. Как ППП, так и ПЭВ в настоящее время активно используются для создания активных элементов фотоники и сенсоров биомедицинского назначения [18–23]. Таким образом, исследование оптических и нелинейно-оптических свойств ТПП продиктовано потенциальной возможностью их применения для создания новых классов устройств детектирования и управления электромагнитным излучением.

1.2. Оптические свойства таммовских плазмон-поляритонов

Впервые термин «таммовский плазмон-поляритон», был введён в работе [24], хотя свойства подобных локализованных состояний рассматривались и ранее [25]. В статье [24] была теоретически показана возможность существования локализованных состояний электромагнитного поля на границе раздела одномерной периодической диэлектрической структуры и металла. Методом решения задачи на собственные значения было показано, что подобные состояния возникают на частотах внутри фотонной запрещенной зоны фотонного кристалла и проявляются в виде резонанса в спектрах коэффициентов пропускания и отражения. Было показано, что ТПП должны возбуждаться как для p , так и для s поляризаций падающего излучения. Кроме того, при увеличении угла падения излучения резонансная частота ТПП смещается в коротковолновую область спектра. Закон дисперсии ТПП согласно приведенным расчетам является параболическим, причем эффективная масса таммовского плазмона отличается для s и p поляризаций. Кроме того, были проведены расчеты, демонстрирующие, что частота возбуждения ТПП должна зависеть от толщины слоя фотонного кристалла, граничащего с металлом, и может принимать любые значения, находящиеся внутри фотонной запрещенной зоны (ФЗЗ) ФК.

Первое экспериментальное наблюдение ТПП было описано в работе [26]. Авторы исследовали структуру, представлявшую собой фотонный кристалл, содержащий 19 пар слоев GaAs/Ga_{0.1}Al_{0.9}As и покрытый пленкой золота. Были измерены спектры коэффициентов пропускания и отражения данного образца при комнатной температуре и температуре 77 К для двух толщин пленки золота — 30 и 50 нм. Было показано, что в спектрах коэффициента пропускания и отражения наблюдается узкий резонанс на частоте, лежащей в ФЗЗ ФК (Рис. 1.3(а)), причем его ширина, амплитуда и спектральное положение зависят от температуры и толщины золотой пленки. В частности, при уменьшении температуры ширина уменьшается, а резонансная длина волны смещается в коротковолновую область спектра. При увеличении толщины металлической пленки резонанс сдвигается в коротковолновую область спектра, а его ампли-

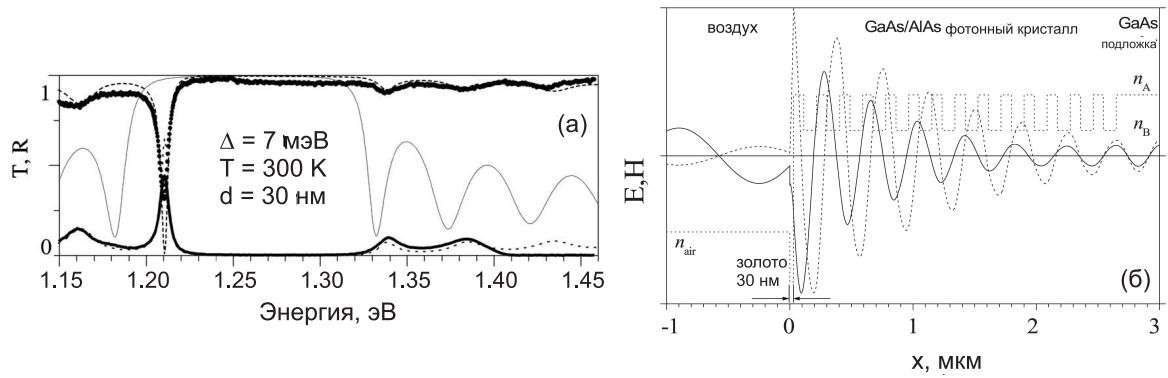


Рис. 1.3: (а) Спектры коэффициентов пропускания и отражения фотонного кристалла, состоящего из пар слоёв GaAs/AlAs, покрытого плёнкой золота толщиной 30 нм. Точками показаны экспериментальные данные, пунктирными кривыми — численный расчёт, сплошной кривой — спектр коэффициента отражения ФК без металлической плёнки [26]. (б) Пространственное распределение электрического (сплошная кривая) и магнитного (пунктирная кривая) полей в моде таммовского плазмон-поляритона, возбуждающегося на границе раздела золотой плёнки толщиной 30 нм и фотонного кристалла, состоящего из 14 пар слоёв GaAs/AlAs [24].

туда уменьшается. Кроме того, была измерена зависимость частоты возбуждения ТПП от угла падения излучения на структуру и показано, что данная зависимость является параболической, причем частота возбуждения ТПП увеличивается с увеличением угла падения. Также было проверено теоретическое предположение о влиянии толщины верхнего слоя ФК на частоту возбуждения ТПП. Авторы ступенчато модифицировали толщину верхнего слоя ФК перед напылением золота, используя метод ионного травления, и далее проводили измерения резонансной частоты возбуждения ТПП на частях образца с различной толщиной верхнего слоя ФК. В результате была получена зависимость, показывающая, что при изменении толщины слоя ФК, граничащего с металлом, резонансная частота возбуждения ТПП изменяется, оставаясь в пределах фотонной запрещенной зоны ФК.

Возбуждение моды ТПП в образце ФК/металлическая плёнка характеризуется пространственным распределением электромагнитного поля, показанным на рисунке 1.3(б). Максимальное абсолютное значение электрического поля до-

стигается примерно в середине слоя ФК, граничащего с металлом (верхний слой ФК). При удалении от границы раздела ФК/металл электрическое поле экспоненциально спадает вглубь металла. Внутри фотонного кристалла распределение электрического поля имеет вид периодической функции с экспоненциальной огибающей, причем максимумы распределения расположены в слоях с нечетным номером, считая от верхнего слоя, а нули — в слоях с чётным номером. Распределение магнитного поля имеет такой же характер, однако является смещенным на один слой (максимумы расположены в чётных слоях, минимумы в нечётных).

В работах [27, 28] изучался вопрос влияния возбуждения ТПП в системах ФК/металл и ФК/ФК на магнитооптические эффекты. Исследуемый образец фотонного кристалла содержал магнитные слои висмут-замещенного иттриевого граната, в которых происходило фарадеевское вращение плоскости поляризации излучения, проходящего через ФК. При возбуждении ТПП на границе раздела такого фотонного кристалла и тонкой немагнитной металлической пленки величина результирующего фарадеевского угла поворота резонансным образом увеличивалась до 4 раз вблизи длины волны возбуждения ТПП.

В работе [29] было показано, что возможно уменьшение величины поглощения электромагнитного поля в металле при возбуждении ТПП в структуре, подобной фотоннокристаллическому микрорезонатору. В подобных структурах возможно возбуждение нескольких мод ТПП, характеризующихся различным пространственным распределением электромагнитного поля. У некоторых мод наблюдается локализация в металлических слоях пучностей поля, что приводит к усилению поглощения. У других мод наблюдается локализация узлов поля, следствием чего является уменьшение поглощения излучения и более высокая добротность резонанса ТПП.

1.3. Гибридные состояния таммовских плазмон-поляритонов

Таммовские плазмон-поляритоны возбуждаются на внутренней границе раздела фотонного кристалла и металла при любом угле падения и поляризации

излучения. Частоту их возбуждения можно варьировать в пределах ФЗЗ ФК путем изменения толщин металла и верхнего слоя ФК. Подобная «неприхотливость» таммовских плазмонов к условиям возбуждения стала определяющей для развития большого направления исследований структур, в которых таммовские плазмон-поляритоны могут быть возбуждены наравне с другими локализованными состояниями (ЛС). Кроме того, была продемонстрирована возможность создания лазеров [30, 31], однофотонных источников [32] и перестраиваемых источников излучения [33] на основе гибридных состояний ТПП и экситонных мод. Большое количество проведенных в этой области исследований объяснялось тем, что закон дисперсии возникающего «гибридного» состояния ТПП-ЛС существенно модифицирован по сравнению с законами дисперсии ТПП и ЛС, возбуждающихся независимо. Кроме того, управляя одним из законов, можно косвенно управлять и вторым, что особенно важно в случае состояний, которые являются немодифицируемыми при независимом возбуждении.

Статья [34] посвящена исследованию гибридного состояния ТПП и микрорезонаторной моды¹. Для экспериментального изучения был изготовлен фотонный кристалл с микрорезонаторным слоем, внутри которого находилась пленка серебра в форме клина толщиной от 0 нм до 40 нм. Схема образца показана на рисунке 1.4(а). В результате спектроскопии коэффициента пропускания образца при различных значениях толщины серебряной пленки было показано, что при увеличении толщины пленки серебра, амплитуда резонанса микрорезонаторной моды уменьшается, в то время как амплитуда резонанса ТПП увеличивается. Были получены зависимости спектральных положений микрорезонаторной моды и ТПП от толщины микрорезонаторного слоя, показанные на рисунке 1.4(б). Оказано, что дисперсионные кривые микрорезонаторной моды и ТПП расталкиваются.

В работе [35] рассматривался фотонный кристалл, состоящий из слоев AlAs/

¹ Авторы статей [31, 34] во введении к [31] говорят о гибридном состоянии микрорезонаторной моды и двух таммовских плазмон-поляритонов и приводят экспериментальные данные, на которых явно видно три возбуждения. Однако далее в численных расчетах и обсуждении речь идет уже только об одном ТПП и микрорезонаторной моде.

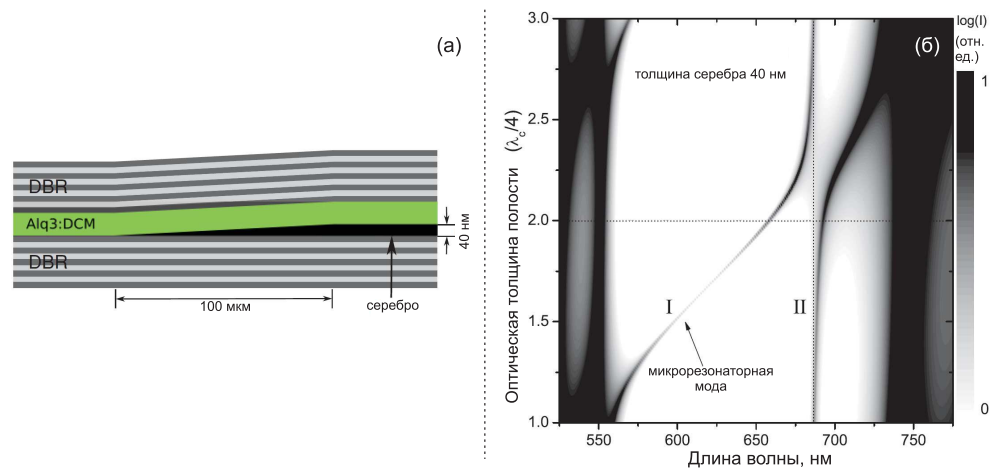


Рис. 1.4: (а) Схема образца. Толщина слоя серебра, внесенного в микрорезонатор меняется плавно от 0 до 40 нм на расстоянии в 100 мкм. (б) Результаты численного расчета коэффициента пропускания образца, показывающие зависимость длины волны возбуждения таммовского плазмон-поляритона от толщины микрорезонаторного слоя. Видно, что два резонанса не могут возбуждаться при одной и той же длине волны [34].

GaAlAs, покрытый серебряной пленкой. Кроме того, слои GaAlAs содержат квантовые ямы InGaAs, обеспечивавшие возбуждение экситона. Измерен частотно-угловой спектр коэффициента отражения образца без серебряной пленки для получения дисперсионной кривой экситона. Затем такие же измерения проводились для образца с нанесенной пленкой металла. При этом в спектре коэффициента отражения наблюдалось несколько резонансов, соответствующих возбуждению ТПП и экситона (рис. 1.5). На рисунке 1.5(а) приведен частотно-угловой спектр образца без серебряной пленки, на котором явно видна дисперсионная кривая экситона. На рисунке 1.5(б) показан спектр образца с серебряной пленкой. На нем видны две непересекающиеся кривые, соответствующие ТПП и экситону. Пунктирными линиями отмечены теоретические дисперсионные кривые каждого возбуждения по отдельности. Видно, что при возбуждении гибридного состояния дисперсионные кривые отталкиваются. Кроме того, измерялись спектры люминесценции структуры для разных углов падения излучения. При возбуждении ТПП в спектре люминесценции появлялись два бо-

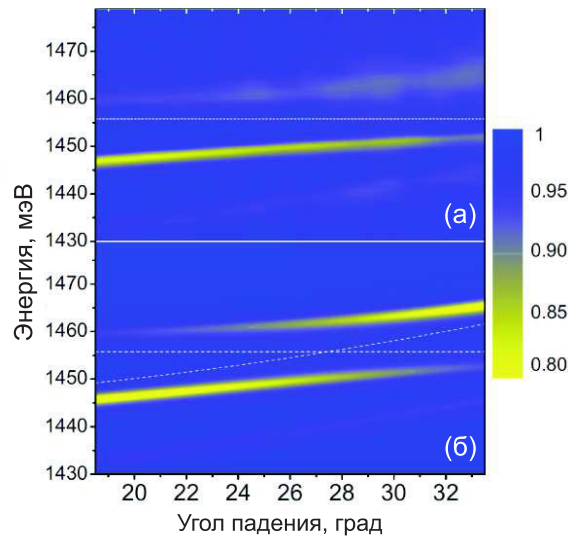


Рис. 1.5: (а) Экспериментальный и (б) численный частотно-угловой спектр коэффициента отражения [35].

ковых пика, спектральные положения которых существенно зависели от угла падения излучения на образец. Был сделан вывод о связи этих пиков с возбуждением гибридных состояний экситона и ТПП. В работе [36], вышедшей сразу после [35], приводится теоретическое обоснование возможности возбуждения гибридного состояния экситона и ТПП. Проведены расчеты количественного сдвига дисперсионных кривых экситона и ТПП.

В работе [31] изучался образец аналогичный образцу из работы [34]. Авторы также исследовали взаимодействие микрорезонаторной моды и ТПП, однако помимо спектральных были получены и угловые зависимости. Было показано, что с увеличением угла падения ТПП расщепляется на две моды с ортогональными поляризациями, а также построена строгая теоретическая модель взаимодействия микрорезонаторной моды и ТПП.

Статья [37] стала продолжением работы [31]. Авторы исследовали структуру, показанную на рисунке 1.6. В такой структуре одновременно возбуждаются два таммовских плазмон-поляритона и микрорезонаторная мода. Дисперсионные кривые этих возбуждений в части 3 образца расталкиваются весьма сложным образом, позволяющим добиться перекачки энергии в то возбуждение, которое может излучать за пределы структуры. Авторам удалось добиться



Рис. 1.6: Схема образца с микрорезонаторным слоем. Область 1 не содержит металла. Область 2 содержит слой серебра толщиной 40 нм. В области 3 все слои периодически структурированы (период полос 7.4 или 11.1 мкм) [37].

когерентного излучения при облучении структурой нерезонансной накачкой.

В работе [38] были проведены исследования свойств ТПП, возникающих на границе раздела ФК – металлический микродиск². В качестве образца использовался одномерный фотонный кристалл GaAs/AlAs с квантовыми точками, внедрёнными в верхний слой, на который были нанесены микродиски золота диаметром от 1.7 до 20 мкм. Исследовались спектры люминесценции квантовых точек над микродисками разного диаметра. На рисунке 1.7 показаны частотно-угловые спектры интенсивности люминесценции квантовых точек в зависимости от размера золотых дисков. Видно, что для диска диаметром 20 мкм, в

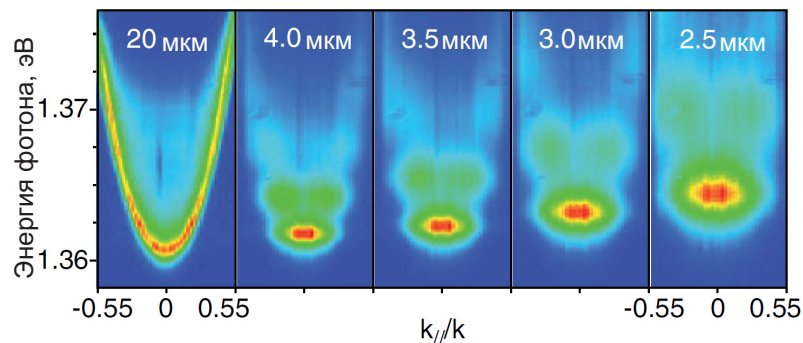


Рис. 1.7: Частотно-угловые спектры интенсивности люминесценции квантовых точек для различного размера золотых микродисков [38].

спектре наблюдается парабола, соответствующая закону дисперсии ТПП. Для дисков диаметров 4 мкм и меньше параболического закона дисперсии не наблю-

²Статья [39] тех же авторов, вышедшая в 2012 году, является определенным повторением данной работы, включающим несколько новых результатов. В частности, в ней приводятся расчеты, позволяющие увеличить эффективность фотолюминесценции структуры, предложенной в работе [38].

дается: в спектрах можно выделить дискретные энергетические моды, энергия которых увеличивается с уменьшением размера дисков.

Статья [40] посвящена теоретическому исследованию одновременного возбуждения таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов. Рассматривается тройная система «одномерный ФК – пленка серебра – планарная золотая наноструктура». ППП в такой структуре может возбуждаться дифракционным образом. В работе теоретически показано, что дисперсионные кривые ТПП, ППП и локализованного плазмона расталкиваются при их одновременном возбуждении (рис. 1.8). Теоретически показано усиление поля в области перекры-

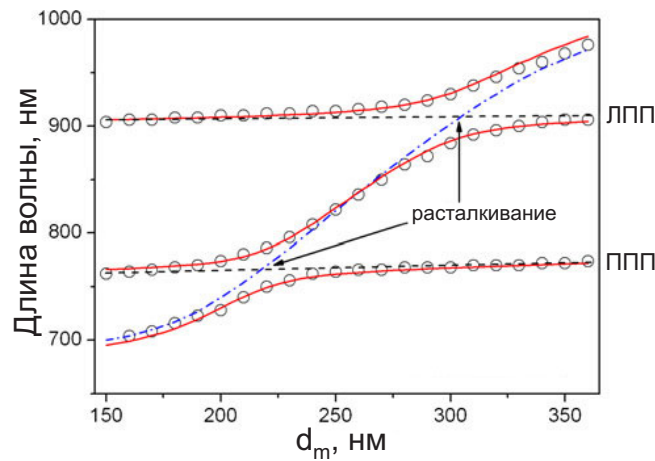


Рис. 1.8: Зависимость длины волны возбуждения поверхностных состояний от толщины верхнего слоя фотонного кристалла. Точки — центральные длины волн резонансов ТПП, локализованного плазмона и ППП в рассчитанных спектрах коэффициента отражения. Сплошные линии — положения резонансов, предсказанные моделью связанных осцилляторов. Горизонтальные штриховые линии — дисперсионные кривые поверхностного и локального плазмонов. Штрихпунктирная линия — дисперсионная кривая таммовского плазмон-поляритона [40].

тия резонансов.

Вслед за работой [1] автора диссертации, было опубликовано несколько работ, описывающих гибридные состояния ТПП и ППП [41–44]. В них, в частности, была показана возможность управления дисперсионными кривыми гибридного состояния и описаны сенсоры показателя преломления, основанные на принципе возбуждения гибридного состояния ТПП и ППП.

Для создания активных устройств фотоники на основе ТПП и их гибридных состояний необходимо изучение временной динамики возбуждения и релаксации ТПП. Второй важной задачей является исследование временных зависимостей коэффициентов отражения и пропускания структур ФК/металл при условии возбуждения ТПП и при модификации параметров структуры внешним воздействием.

2. Оптические методы исследования сверхбыстрых процессов

2.1. Методики измерения длительности фемтосекундных оптических импульсов

Базовые кросс-корреляционные схемы обладают как преимуществами, так и недостатками. К первым необходимо отнести чрезвычайную простоту сборки и настройки таких схем, их универсальность по уровню сигнала и длительности импульса. Из недостатков стоит отметить то, что в случае простейшей интенсивностной схемы невозможно измерить фазу поля внутри импульса, а следовательно восстановить временной профиль частоты излучения.

Принципиальная схема типичного автокоррелятора приведена на рисунке 1.9. Исходный импульс делится на светоделительной пластине на два плеча, в одном

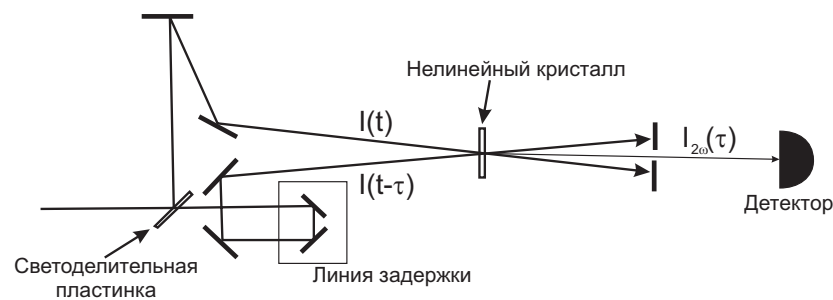


Рис. 1.9: Схема установки для измерения автокорреляционной функции с использованием нелинейного кристалла [45].

из которых находится линия задержки. После этого оба импульса сбиваются на нелинейном кристалле. Измеряется интенсивность неколлинеарной второй гармоники $I_{2\omega}$, которая пропорциональна свертке интенсивностей импульсов $I(t)$

и $I(t - \tau)$, падающих на нелинейный кристалл:

$$I_{2\omega}(\tau) \sim \int I(t)I(t - \tau)dt \quad . \quad (1.6)$$

Для измерения кросс-корреляционной функции используется модифицированная схема автокоррелятора, в которой в один из каналов помещается образец. В этом случае профиль интенсивности неколлинеарной второй гармоники будет зависеть от искажений, которые вносит образец в исходный импульс. Таким образом, можно судить о свойствах состояний возбуждаемых в образце, время жизни которых сравнимо с длительностью импульса.

С помощью кросс-корреляционной методики проведен ряд исследований распространения и искажения фемтосекундных импульсов в плазмонных структурах. Например, проведены исследования модификации импульсов при прохождении через плазмонный кристалл — структуру, обладающую плазмонной запрещенной зоной [46–49]. Так, в [46] использовалась модифицированная кросс-корреляционная схема, позволяющая разрешить высокочастотную набивку импульса [50]. При изменении угла падения излучения на кристалл изменяется доля перекрытия спектра излучения с резонансным контуром ППП, что приводит к изменению формы импульса (рис. 1.10).

Проведено измерение четырех кросс-корреляционных функций импульсов, отраженных от золотого плазмонного кристалла, на длинах волн, лежащих в разных точках дисперсионных кривых ППП [47]. Две из этих функций были измерены на разных краях плазмонной запрещенной зоны, а две — вне запрещенной зоны на разных ветвях дисперсионной кривой (рис. 1.11). Показано, что для импульсов с центральной длиной волны вдалеке от краев плазмонной запрещенной зоны длительность импульса практически не зависит от того, с какой стороны запрещенной зоны спектрально находится импульс. В то же время для импульсов на краю плазмонной запрещенной зоны наблюдается эффект изменения длительности импульса при спектральной перестройке через запрещенную зону. Длительность импульса на коротковолновом крае составляет 250 фс, в то время как на длинноволновом крае — всего 18 фс.

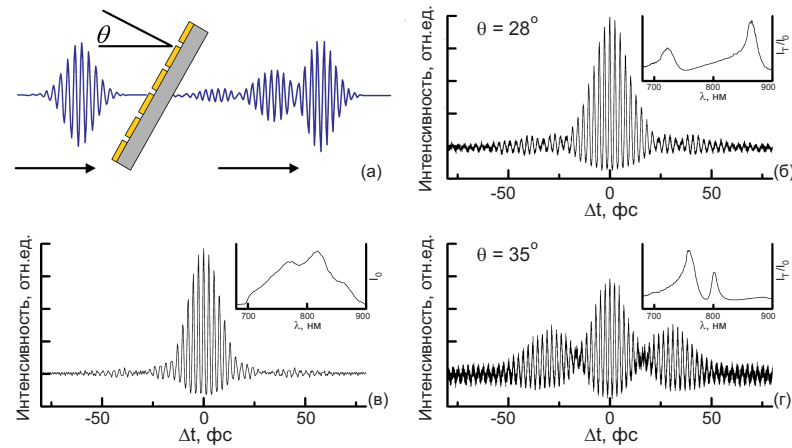


Рис. 1.10: (а) Схема эксперимента. Структура исходного и прошедшего через образец импульсов регистрировались с помощью интерференционного автокоррелятора. (б) Интерференционная автокорреляционная функция (ИАФ) и спектр (на вставке) исходного импульса. (в) ИАФ и спектр прошедшего через образец импульса под углом 28° . (г) То же под углом 35° . При таком угле падения излучения на образец в прошедшем излучении доминирует свет переизлученный из резонансно возбужденного ППП [46].

Также было показано, что при отражении от плазмонного кристалла импульсов, длительность которых сравнима с временем жизни поверхностного плазмон-поляритона, в окрестности длины волны резонанса ППП наблюдаются заметные сдвиги максимума кросс-корреляционной функции и изменение ее ширины (рис. 1.12) [48]. Такой эффект объясняется интерференцией между резонансно и нерезонансно отраженными компонентами импульса, разность фаз между которыми меняется при спектральной перестройке через длину волны возбуждения ППП. Конструктивная интерференция приводит к смещению максимума корреляционной функции в положительную сторону и ее уширению; деструктивная — к смещению максимума в отрицательную сторону и сужению корреляционной функции.

В работе [51] изучается фемтосекундная динамика возбуждения ТПП в образце, состоящем из одномерного ФК и перфорированной металлической плёнки. Авторы использовали метод анализа интерферометрических автокорреляционных функций фемтосекундных импульсов, прошедших через образец. В

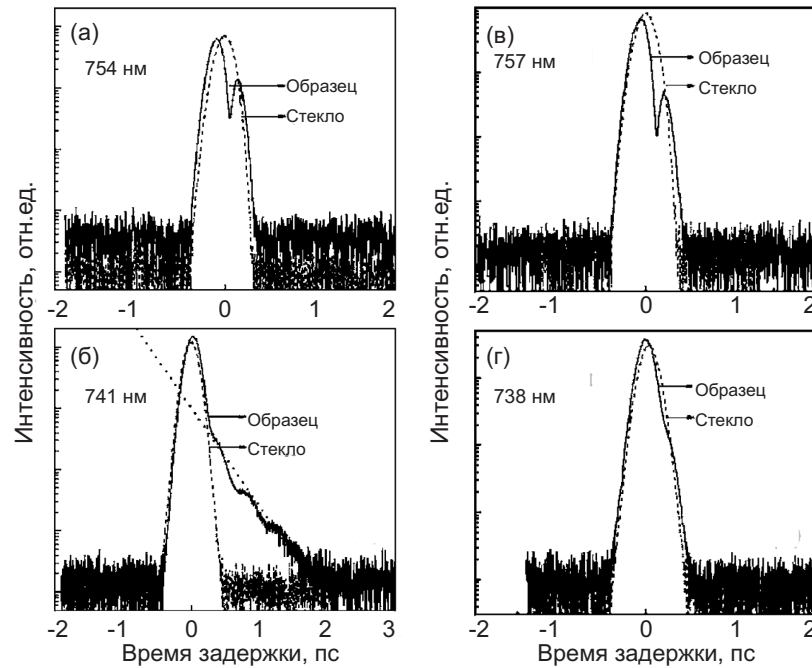


Рис. 1.11: Кросс-корреляционные функции импульсов, прошедших через образец. Длина волны излучения: (а) 754 нм — верхний край плазмонной запрещенной зоны. (б) 741 нм — нижний край плазмонной запрещенной зоны. (в) 757 нм — верхняя часть дисперсионной кривой ППП вдали от края плазмонной запрещенной зоны. (г) 738 нм — нижняя часть дисперсионной кривой ППП вдали от края плазмонной запрещенной зоны. Штриховые линии — кросс-корреляционные функции импульсов, прошедших только через подложку (без возбуждения ППП) [47].

работе указывается, что время жизни ТПП составляет от 100 фс до 300 фс и, кроме того, зависит от длительности импульса возбуждающего излучения. Важно отметить, что прохождение излучения через фотонный кристалл приводит к существенной деформации формы импульса из-за большой эффективной дисперсии групповой скорости, связанной с многократным переотражением импульса от границ раздела слоёв образца.

2.2. Методика «накачка-зонд» и её применения

Для исследования сверхбыстрых процессов, связанных с нелинейными свойствами образца, может применяться метод «накачка-зонд». Общий принцип его работы заключается в следующем: на исследуемый образец падает импульс

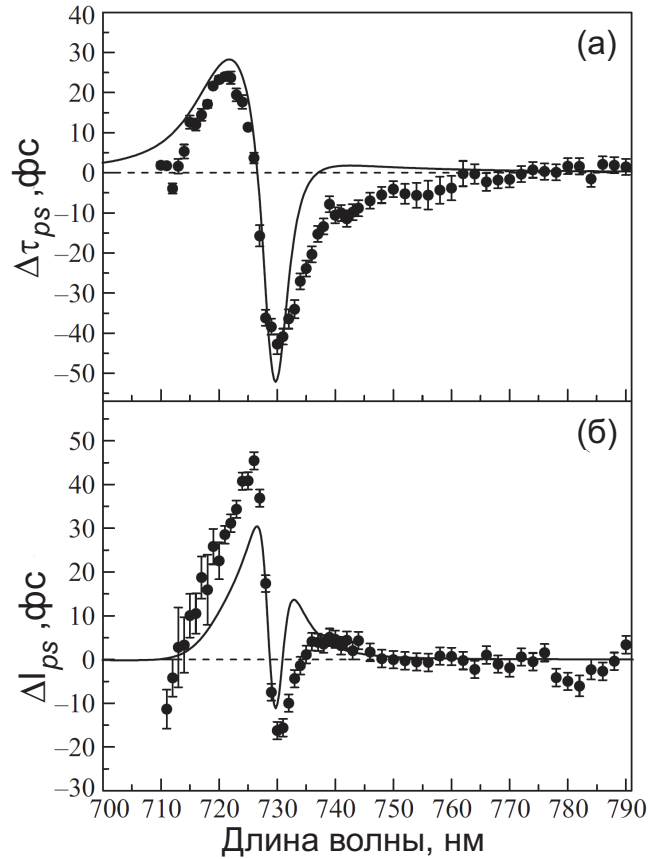


Рис. 1.12: Спектральные зависимости (а) разности положения максимумов $\Delta\tau_{ps}$ и (б) разности ширины на полувысоте Δl_{ps} корреляционных функций для p - и s -поляризованного излучения. Точки — экспериментальные данные. Сплошные линии — численный расчет [48].

накачки, который генерирует возбуждение в образце или модифицирует его оптические свойства. После этого, через некоторое контролируемое время, на образец падает зондирующий импульс. Измеряется коэффициент отражения или пропускания. Измеряя зависимость зондирующего сигнала от временной задержки между импульсами или от мощности излучения накачки, можно получить информацию о времени релаксации возбуждения или других процессах, наведенных импульсом накачки. Поскольку обычно зондирующий сигнал усредняется по большому количеству импульсов, нет необходимости использовать быстрый фотодиод. Временное разрешение такой схемы определяется исключительно длительностью импульса. Принципиальной особенностью схемы зонд-накачка является то, что длины волн импульса накачки и зонда могут не

совпадать. В так называемой «двухцветной» схеме используются два синхронизированных лазерных источника, что открывает дополнительные возможности в спектроскопии. В частности, возможно полное подавление фоновой засветки, связанной с накачкой; мощность излучения накачки можно менять независимо от мощности зонда; возможно перестраивать длину волны зонда независимо от длины волны накачки или наоборот. В двухцветной схеме принципиально важно добиться точной синхронизации двух источников, поскольку джиттер в каком-либо из них может привести к серьезному ухудшению временного разрешения.

Методика «зонд-накачка» широко применяется для исследования динамики возбуждения и релаксации поверхностных состояний электромагнитного поля и их визуализации [52, 53], а также для изучения эффектов оптического переключения в фотонных кристаллах [54], полупроводниковых метаматериалах [55–57], плёнках графена [58, 59] и углеродных нанотрубках [60].

Одно из первых использований методики было связано с изучением временной динамики возбуждения и релаксации носителей заряда в металлах [61–64] и полупроводниках [65–68]. В частности, в работе [69] исследовалась термализация электронов в золоте. Авторы использовали классическую схему «зонд-накачка»: источником излучения служил титан-сапфировый лазер с длительностью импульса 130 фс, излучение делилось пополам в два канала. Первый канал являлся каналом накачки, а во втором канале излучение падало на нелинейный кристалл. В качестве зонда использовалось излучение второй гармоники, генерируемое в кристалле. Для золотых пленок различной толщины измерялись зависимости относительного изменения коэффициентов пропускания и отражения от временной задержки между импульсами, показанные на рисунке 1.13. Было показано, что при задержке между импульсами зонда и накачки порядка 1 пс главную роль в модификации коэффициентов отражения играют процессы, связанные с перераспределением электронной плотности. При задержке более 1 пс главную роль начинают играть эффекты медленной термализации электронов. Подобные исследования были проведены и для тонких плёнок се-

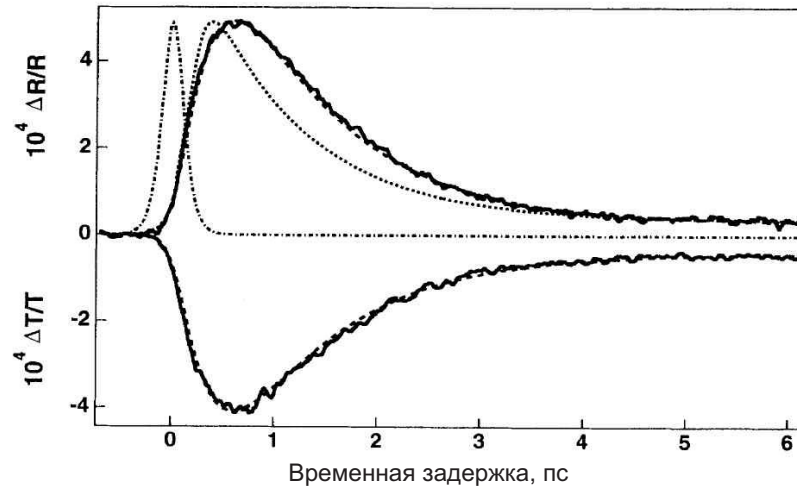


Рис. 1.13: Временная зависимость относительных изменений коэффициентов отражения и пропускания золотой плёнки толщиной 20 нм. Штриховой линией показаны результаты численного расчёта. Пунктирной линией показана функция мгновенной термализации электронов. Штрихпунктирной линией показана кросс-корреляционная функция импульсов зонда и накачки [69].

ребра, меди, платины и других металлов [62, 64]. Наблюдается существенная зависимость величины максимального изменения коэффициентов отражения и пропускания от длины волны зонда и накачки. Данная зависимость связана с тем, что излучение накачки с длиной волны меньше определённой приводит к большему количеству переходов электронов из валентной зоны в зону проводимости. С другой стороны, выбор длины волны зонда определяет то, какая именно часть энергетического спектра электронов будет зондироваться. Поскольку оптические свойства материала определяются прежде всего электронами зоны проводимости, выбор правильных энергий накачки и зонда является определяющим для максимизации наблюдаемых величин модуляции коэффициентов отражения и пропускания. Так, было показано, что в плёнках золота при накачке излучением с длиной волны 400 нм может наблюдаться модуляция коэффициента отражения излучения зонда с длиной волны 500 нм вплоть до 25% при относительно малых мощностях излучения. При использовании нерезонансной накачки и зонда характерные величины модуляции коэффициентов отражения и пропускания составляют порядка 10^{-4} . Характерные времена нарастания мо-

дуляции отличаются для коэффициентов отражения и пропускания. Так, для коэффициента пропускания характерное время сравнимо с длительностью импульса накачки, в то время как для коэффициента отражения оно составляет несколько сотен фемтосекунд. Характерное время релаксации оптических свойств металлических плёнок определяется временем электрон-электронного и электрон-фононного взаимодействий и по порядку величины составляет несколько пикосекунд. В работе [61] было показано, что данные времена определяются характерными скоростями модуляции действительной ε' и мнимой ε'' частей диэлектрической проницаемости металла. В частности временная зависимость ε'' повторяет форму огибающей импульса накачки, поскольку изменение ε'' определяется преимущественно электрон-электронным взаимодействием. Изменение ε' связано в том числе с электрон-фононным взаимодействием, характерная временная постоянная которого в металлах составляет несколько пикосекунд.

Методика «зонд-накачка» широко применяется, например, для исследования свойств поверхностных плазмон-поляритонов. Так, в работе [70] были исследованы возбуждение и релаксация ППП на серебряной пленке. Авторы использовали два пикосекундных лазера с различными длинами волн. Излучение от обоих лазеров коллинеарно падало на серебряную подложку через призму под углом 43° . Один из лазеров использовался в качестве накачки и возбуждал ППП. При фиксированных угле падения и времени задержки между импульсами зонда и накачки измерялось относительное изменение коэффициента отражения излучения второго лазера в зависимости от изменения продольного и поперечного расстояния между точками падения излучения зонда и накачки на образец. Было показано, что длина свободного пробега ППП на серебряной пленке составляла порядка 13 мкм. Также было измерено относительное изменение коэффициента отражения в зависимости от временной задержки между импульсами при постоянных угле падения и пространственном расстоянии между точками падения. Было показано, что после быстрого затухания плазмонного возбуждения, его энергия перераспределяется в акустический фон с

характерным временем жизни 100 пс, а затем — в тепло.

Также проводились исследования возможности сверхбыстрой перекачки энергии в ППП. Поверхностный плазмон-поляритон возбуждался дифракционным способом на границе раздела алюминий-плавленый кварц [71]. После распро-

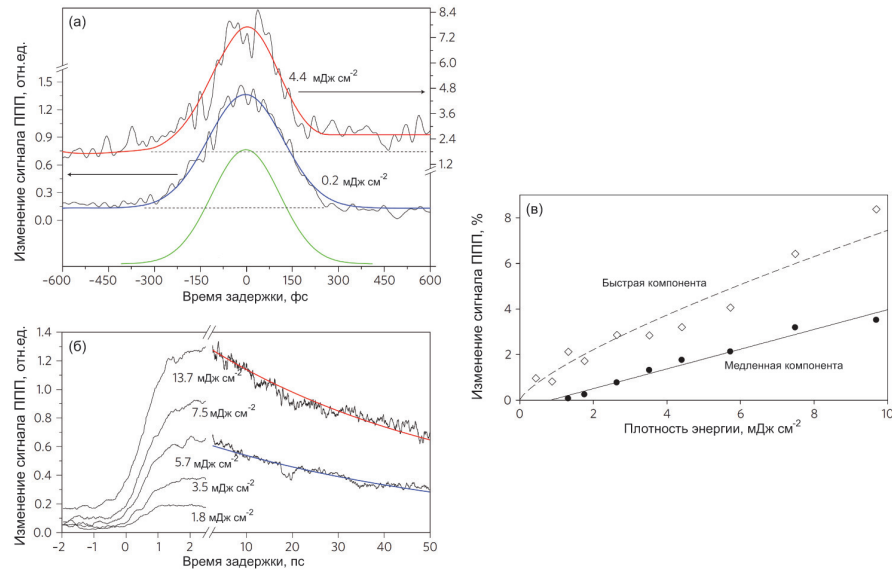


Рис. 1.14: Вызванные накачкой изменения в интенсивности излучения, высвеченного из ППП при поляризации накачки, параллельной направлению распространения ППП (а) и при поляризации накачки, перпендикулярной направлению распространения ППП (б). (в) Соответствующие значения величины модуляции в зависимости от плотности энергии накачки [71].

странения на расстояние 5 мкм по границе раздела с помощью второй дифракционной решетки он переизлучался в воздух, где детектировался. Излучение накачки с длительностью импульса 200 фс и центральной длиной волны 780 нм падало на алюминий в области свободного пробега ППП. Эксперимент проводился при поляризациях луча накачки, перпендикулярной направлению распространения ППП и параллельной ему. Из-за нелинейного взаимодействия ППП и импульса накачки в приповерхностном слое металла возникала модуляция интенсивности излучения, высвеченного из ППП (рис. 1.14). Было показано, что существуют быстрая и медленная компоненты модуляции, причем быстрая компонента наблюдалась только в том случае, когда поляризация излучения накачки была параллельна направлению распространения ППП.

Модификация оптических свойств плазмон-активных структур может быть связана с возбуждением не только поверхностных, но и локальных плазмонов. Например, в [72] исследовался сверхбыстрый оптический отклик золотых наностержней в области плазмонного резонанса. Луч накачки возбуждал локальные плазмоны, измерялось изменение коэффициента поглощения излучения зонда в зависимости от временной задержки между импульсами, а также при перестройке длины волны зонда через плазмонный резонанс (рис. 1.15). Из по-

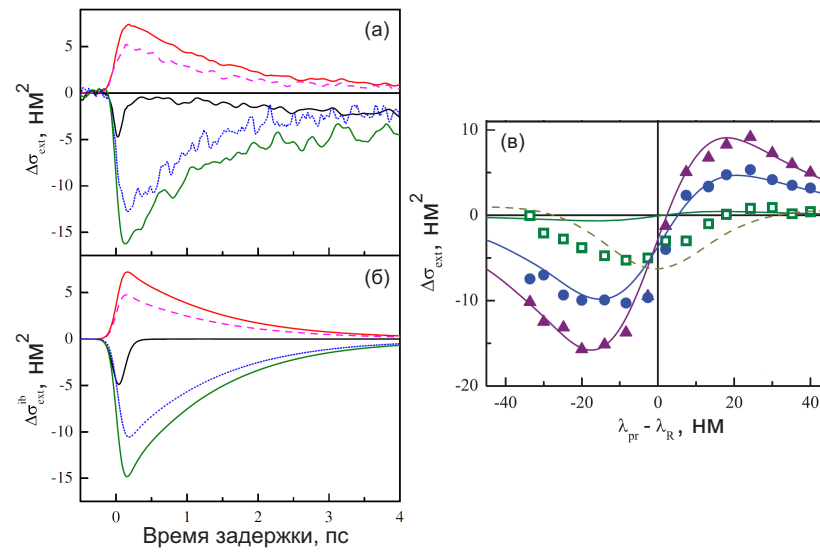


Рис. 1.15: (а) Экспериментальные зависимости изменения коэффициента поглощения золотых стержней от времени задержки для различных значений длины волны зонда λ_{pr} в окрестности плазмонного резонанса с центральной длиной волны $\lambda_R = 810$ нм. Сверху вниз: $\lambda_{pr} - \lambda_R = +30, +40, 0, -30, -20$ нм. (б) Численный расчет тех же зависимостей. (в) Зависимость изменения коэффициента поглощения от разности длины волны зонда и длины волны возбуждения ППП для трех различных значений времени задержки между зондом и накачкой. Круги — 0 фс, треугольники — 200 фс, квадраты — 4 пс. Сплошные линии соответствуют численному расчету [72].

ведения коэффициента поглощения авторами был сделан вывод об усилении нелинейного кубичного отклика золотых стержней локальными плазмонами.

Возможность манипуляции положением и формой дисперсионной кривой ППП с помощью фемтосекундных импульсов продемонстрирована в работе [73]. На рисунке 1.16 показаны зависимости относительного изменения коэффициен-

тов отражения и пропускания от времени задержки между импульсами зонда и накачки для различных значений длины волны накачки. При превышении энер-

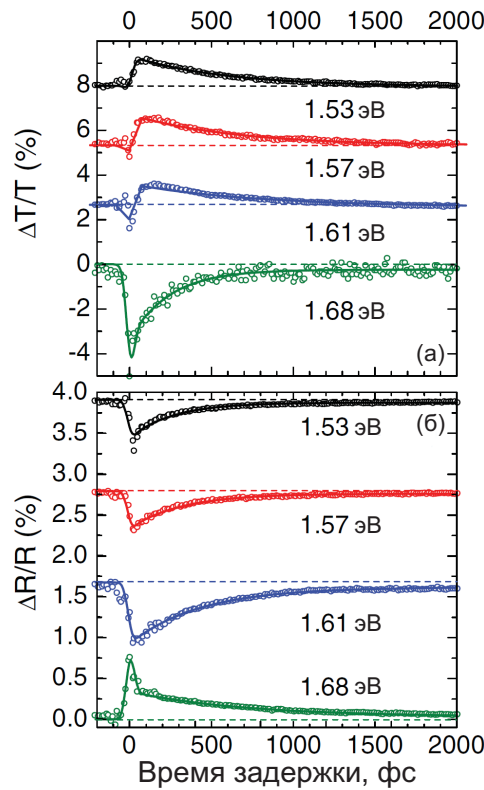


Рис. 1.16: Зависимость относительных изменений коэффициентов (а) пропускания $\Delta T/T$ и (б) отражения $\Delta R/R$ от времени задержки при различных значениях энергии фотона зонда ($\hbar\omega = 1.53, 1.57, 1.61, 1.68$ эВ). Сплошные линии — численный расчет [73].

гией фотона накачки определенного значения зависимость относительного изменения коэффициентов отражения и пропускания меняет свой знак. Подобное поведение, вероятно, обусловлено сдвигом резонанса Фано, соответствующего возбуждению ППП, и его уширением. Кроме того, время релаксации поверхностных плазмон-поляритонов зависит от длины волны импульса накачки.

Кросс-корреляционные методики позволяют с высокой точностью определить времена возбуждения и релаксации поверхностных состояний электромагнитного поля. С помощью методики «накачка-зонд» возможно изучение временных зависимостей оптического отклика систем, поддерживающих возбуждение локализованных состояний. В то же время, указанные методики позволя-

ют лишь косвенно судить о пространственном распределении электромагнитного поля локализованных состояний. Более точным методом является нелинейно-оптическая спектроскопия систем в присутствии локализованных состояний электромагнитного поля.

3. Усиление нелинейно-оптических эффектов локализованными состояниями электромагнитного поля

Описание параметрических нелинейно-оптических процессов сложения частоты в твердом теле основано на разложении вектора поляризации $\mathbf{P}$ в ряд по степеням электрического поля падающего излучения $\mathbf{E}$. В дипольном приближении оно имеет вид [74]:

$$\mathbf{P} = \sum \hat{\chi}^{(m)D}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \dots \pm \omega_m) : \mathbf{E}(\omega_1)\mathbf{E}(\omega_2) \dots \mathbf{E}(\omega_m), \quad (1.7)$$

где $\hat{\chi}^{(m)D}$ — тензор дипольной нелинейной восприимчивости среды порядка m . Данное разложение применимо, когда величина отношения поля излучения к внутриатомному полю (малый параметр разложения) не превышает 10^{-2} . Квадратичная поляризация:

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega) = \hat{\chi}^{(2)D}(\omega = \omega_1 + \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1)\mathbf{E}(\omega_2), \quad (1.8)$$

определяет отклик среды на суммарной частоте. В общем случае отклик среды является нелокальным: нелинейная поляризация в точке зависит от значения внешнего поля в некоторой ее окрестности. Учет нелокальности в разложении производится при помощи мультипольных членов:

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega) = \hat{\chi}^{(2)D}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1)\mathbf{E}(\omega_2) + \hat{\chi}^{(2)Q}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1)\nabla\mathbf{E}(\omega_2) + \dots, \quad (1.9)$$

где $\hat{\chi}^{(2)Q}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2)$ — тензор квадрупольной квадратичной восприимчивости.

В центросимметричных средах, которыми, в частности, являются многие металлы, из-за симметричных свойств тензор дипольной квадратичной восприимчивости в объеме тождественно равен нулю. На поверхности металла, однако,

симметрия нарушается, так что тензор дипольной квадратичной восприимчивости вблизи поверхности отличен от нуля. Таким образом, можно ввести тензор квадратичной нелинейной восприимчивости поверхности $\hat{\chi}^{(2)SD}$, связанный с объемным тензором $\hat{\chi}^{(2)VD}$. Квадрупольный член разложения в объеме также отличен от нуля. Таким образом, выражение для квадратичной поляризации в металле представимо в виде:

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega) = \hat{\chi}^{(2)SD}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1)\mathbf{E}(\omega_2) + \hat{\chi}^{(2)Q}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1)\nabla\mathbf{E}(\omega_2). \quad (1.10)$$

В тонких плёнках металлов, генерация второй оптической гармоники (ВГ) происходит как в объёме, так и в приповерхностных слоях, причём генерация на поверхности описывается дипольными членами разложения и эффективной поверхностной нелинейной восприимчивостью, а генерация в объёме описывается квадрупольными членами разложения. Тензор квадратичной восприимчивости пленки полностью характеризуется параметрами $\chi_{\perp}^{(2)}$, $\chi_{\parallel}^{(2)}$, $\chi_{bulk}^{(2)}$ [75]:

$$\begin{cases} \chi_{\perp}^{(2)} &= a(\omega) \frac{e}{16\pi m \omega^2} (\varepsilon_{\omega} - 1); \\ \chi_{\parallel}^{(2)} &= b(\omega) \frac{e}{16\pi m \omega^2} (\varepsilon_{\omega} - 1); \\ \chi_{bulk}^{(2)} &= d(\omega) \frac{e}{16\pi m \omega^2} (\varepsilon_{\omega} - 1), \end{cases}$$

где e , m — заряд и масса электрона; a , b и d — коэффициенты, зависящие от частоты. Компоненты тензора $\chi^{(2)}$ записываются через эти параметры следующим образом:

$$\begin{cases} \chi_{\parallel}^{(2)} = \chi_{xxz}^{(2)} = \chi_{xzx}^{(2)} = \chi_{yyz}^{(2)} = \chi_{yzy}^{(2)}; \\ \chi_{\perp}^{(2)} = \chi_{zzz}^{(2)} + \frac{\varepsilon_{2\omega}^*}{\varepsilon_{2\omega}} \frac{i\gamma}{2\omega}; \\ \chi_{bulk}^{(2)} = \frac{i\gamma}{2\omega} + \frac{\varepsilon_{2\omega}}{\varepsilon_{2\omega}^*} \chi_{zxx}^{(2)} = \frac{i\gamma}{2\omega} + \frac{\varepsilon_{2\omega}}{\varepsilon_{2\omega}^*} \chi_{zyy}^{(2)}, \end{cases} \quad (1.11)$$

где $\varepsilon_{2\omega}$ — объемная диэлектрическая восприимчивость металла, $\varepsilon_{2\omega}^*$ — поверхностная диэлектрическая восприимчивость металла. В некоторых случаях $\varepsilon_{2\omega}^*$ можно определить как среднее значение диэлектрической восприимчивости металла и диэлектрика, граничащего с поверхностью металла. s -поляризованный нелинейно-оптический отклик среды полностью определяется компонентой $\chi_{\parallel}^{(2)}$,

в то время как p -поляризованный отклик определяется всеми тремя компонентами. Были измерены нелинейно-оптические параметры для золотых пленок толщиной 150 нм при длине волны падающего излучения 810 нм [76]:

$$\begin{cases} \chi_{bulk}^{(2)} = (6 \pm 1) \cdot 10^{-18} \\ \chi_{\perp}^{(2)} = (1500 \pm 180) \cdot 10^{-18} \frac{\text{см}^2}{\text{В}} \\ \chi_{\parallel}^{(2)} = (36 \pm 3) \cdot 10^{-18} \end{cases} \quad (1.12)$$

Детектирование ВГ является точным методом исследования распределения локальных электромагнитных полей [77], и используется для построения изображений биологических объектов с высоким пространственным разрешением [78], а измерение интенсивности поверхностной ВГ позволяет производить зондирование скрытых границ раздела в оптически прозрачных образцах [79]. Поскольку квадратичная поляризация пропорциональна квадрату напряженности электрического поля падающего излучения, сигнал второй гармоники от исследуемого образца существенно усиливается в случае локализации электромагнитного поля. Такой эффект, в частности, наблюдается при возбуждении локализованных плазмонов [80] и поверхностных [81] плазмон-поляритонов, а также в фотонных кристаллах при накачке излучением с длиной волны, соответствующей краю ФЗЗ или частоте микрорезонаторной моды ФК [82–85]. Поскольку возбуждение ТПП сопровождается увеличением локальных электромагнитных полей вблизи границы раздела ФК-металлическая плёнка, ожидается усиление нелинейно-оптических эффектов в образцах, поддерживающих возбуждение ТПП. Существует ряд теоретических работ, в которых предсказывается усиление генерации оптических гармоник, а также нелинейно-оптического эффекта Керра в подобных структурах [86–90].

В случае возбуждения поверхностного плазмон-поляритона наблюдается сильная локализация поля на границе раздела металл-диэлектрик, что приводит к усилению генерации второй гармоники на длине волны плазмонного резонанса. Этот эффект был экспериментально продемонстрирован при возбуждении ТПП на серебряной пленке толщиной 56 нм в геометрии Кречмана [81].

Для накачки использовался рубиновый лазер, работающий в режиме модуляции добротности, с длиной волны 694.3 нм. Интенсивность второй гармоники регистрировалась в зависимости от угла падения излучения на пленку. На рисунке 1.17 видно, что при угле падения, соответствующем возбуждению ППП, наблюдается существенный рост сигнала второй гармоники.

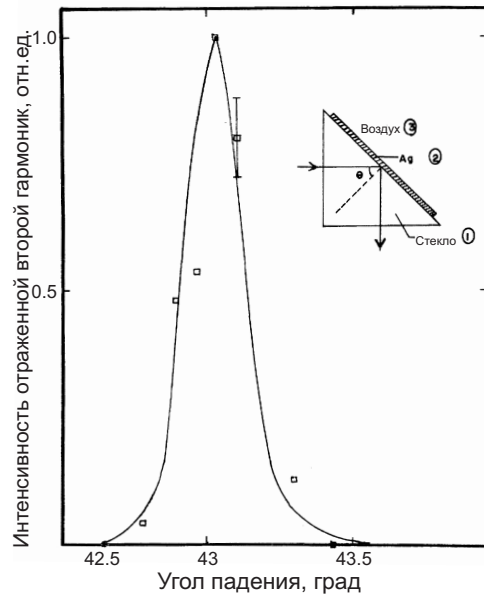


Рис. 1.17: Экспериментальная (точки) и численная (линия) зависимости отраженного сигнала второй гармоники от угла падения накачки. Вставка: схема эксперимента [81].

Усиление генерации второй гармоники при возбуждении локальных плазмонов исследовалось также в золотых стержнях нанометрового размера [91]. Для накачки использовался титан-сапфировый лазер с длительностью импульса 100 фс, перестраиваемый в диапазоне длин волн 740 – 860 нм. При поляризации падающего излучения параллельной оси стержня, в спектре коэффициента поглощения, показанном на рисунке 1.18(а) присутствует пик, связанный с возбуждением локализованных плазмонов. В спектре интенсивности второй гармоники, показанном на рисунке 1.18(б), также наблюдается локальный максимум в окрестности удвоенной частоты возбуждения локальных плазмонов для поляризации падающего излучения вдоль оси стержня. Для поперечной поляризации такая особенность в спектре отсутствует. На рисунке 1.18(в) показана зависимость интенсивности второй гармоники на длине волны 400 нм (в

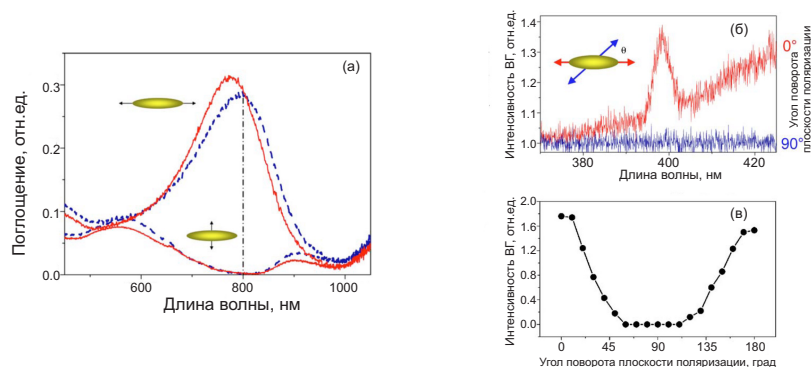


Рис. 1.18: (а) Спектр коэффициента поглощения золотых стержней с длиной большей оси 150 нм (сплошные линии) и 170 нм (пунктирные линии). Направление поляризации показано на вставках. (б) Спектр интенсивности второй гармоники от массива наностержней длиной 150 нм. (в) Полная интенсивность второй гармоники того же массива для различных значений угла поворота плоскости поляризации падающего излучения. Длина волны накачки составляла 800 нм [91].

максимуме) от угла поворота плоскости поляризации падающего излучения.

Процесс генерации второй гармоники изучался не только на гладких, но и на структурированных поверхностях, например, в золотых кластерах размером 4 нм в матрице оксида алюминия Al_2O_3 [92]. В спектре коэффициента экстинкции наблюдается широкий пик поглощения в окрестности длины волны 525 нм, связанный с возбуждением локальных плазмонов. В качестве источника излучения накачки использовался параметрический генератор света. Длина волны накачки изменялась в диапазоне 900 – 1200 нм, длительность импульса составляла 5 нс. В спектре интенсивности второй гармоники, отраженной от структуры под углом 74° , наблюдался пик в окрестности длины волны плазмонного резонанса. Кроме того, в работе приведены численные расчёты интенсивности ВГ и теоретическое обоснование возникающего пика в спектре второй гармоники, основанное на модели свободных электронов. Также показан спектр второй гармоники, рассчитанный с использованием констант для сплошной среды. Сдвиг его максимума в длинноволновую область по сравнению с экспериментальным спектром обусловлен изменением значений диэлектрических констант для нанометровых кластеров.

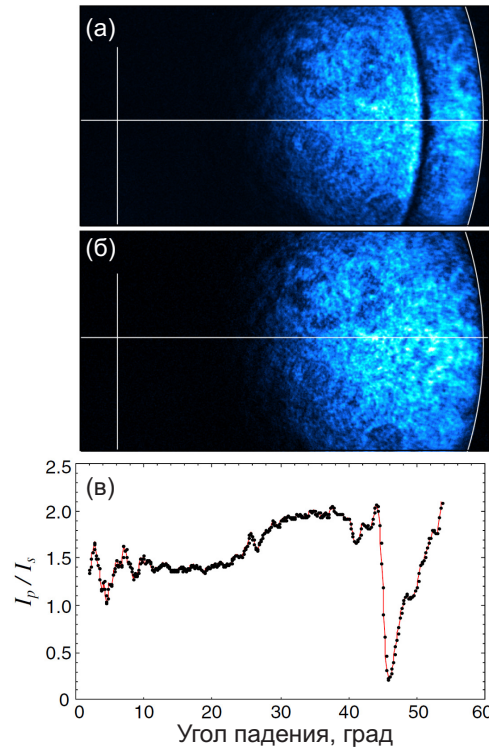


Рис. 1.19: Нелинейное четырехволновое смешение в золотой пленке толщиной 52 нм. (а), (б) Изображения отраженного луча для различных поляризаций падающего излучения: (а) p -поляризация, (б) s -поляризация. (в) Угловой спектр относительной интенсивности излучения (I_p/I_s) на длине волны λ_{4WM} [93].

Может наблюдаться и обратный эффект: излучение на разностной частоте, генерируемое по схеме $\omega_{4WM} = 2\omega_1 - \omega_2$, используется для возбуждения ППП [93]. Источником одной из волн накачки служит титан-сапфировый лазер с длительностью импульса 200 фс, работающий на длине волны $\lambda_1 = 810$ нм. Он же используется в качестве накачки параметрического генератора света, излучающего на длине волны $\lambda_2 = 1162$ нм. Эти две волны падают на золотую пленку через призму в геометрии Кречманна с постоянной длиной волны и изменяющимся углом падения. В результате четырехволнового смешения в золоте генерируется излучение на длине волны $\lambda_{4WM} = 613$ нм. На рисунке 1.19 приведены фотографии пятна и угловой спектр интенсивности отраженного излучения на длине волны λ_{4WM} . По фотографиям видно, что в пятне p -поляризованного излучения (рис. 1.19(а)) присутствует темная полоса, свидетельствующая о перекачке энергии в ППП. В спектре (рис. 1.19(в)) наблюдается

минимум при угле падения 46° , соответствующий возбуждению ППП в золотой пленке.

Нелинейно-оптические эффекты могут быть усилены и в отсутствие усиления электромагнитного поля излучения накачки за счёт нелинейно-оптического аналога эффекта Парселла. В оригинальной статье 1946 года [94] было показано, что при помещении системы в резонатор происходит увеличение вероятности спонтанного излучения, определяющееся добротностью резонатора и связанное с увеличением плотности фотонных состояний на частоте излучения. Данный эффект был использован при изготовлении наноструктур с усиленным излучением и лазеров на их основе. В качестве резонаторов используются одно- и двумерные фотонные и плазмонные кристаллы [95], а в качестве активных сред — квантовые ямы [96], квантовые точки [97, 98] и углеродные нанотрубки [99]. Формализм эффекта Парселла может быть расширен на вынужденное излучение, частным случаем которого являются нелинейно-оптические процессы. Было теоретически показано, что при помещении излучающей системы в резонатор эффективно увеличивается её оптическая нелинейность, что может привести к усилению генерации оптических гармоник [100, 101] и нелинейно-оптического эффекта Керра [102, 103]. Как и в классическом случае, усиление излучения происходит за счёт увеличения плотности фотонных состояний на собственных частотах резонатора, однако в нелинейном режиме такие частоты должны совпадать с частотами оптических гармоник.

На основании проведённого обзора литературы могут быть сделаны следующие заключения:

1. В структурах фотонный кристалл-полупрозрачная металлическая плёнка при определённых условиях возможно возбуждение таммовского плазмон-поляритона — локализованного состояния электромагнитного поля. Резонансная частота возбуждения ТПП находится в области фотонной запрещённой зоны ФЗЗ, причём её точное положение зависит от толщины верхнего слоя ФК, граничащего с металлом. При увеличении угла падения излучения на структуру резонансная частота ТПП смещается в коротковолновую область спектра и наблюдается поляризационное расщепление моды ТПП (таким образом, что частота возбуждения ТПП для ТЕ- и ТМ-поляризованного излучения различна).
2. В вышеописанных структурах возможно возбуждение гибридных состояний ТПП и экситона, ТПП и микрорезонаторной моды ФК. При возбуждении гибридного состояния наблюдается спектральное расталкивание законов дисперсии каждой из компонент гибридного состояния. Величиной смещения можно управлять, варьируя степень пространственного перекрытия моды ТПП и второго локализованного состояния. Возбуждение гибридного состояния ТПП и ППП позволит управлять дисперсионной кривой ППП, однако, экспериментального наблюдения данного состояния не проводилось.
3. Возбуждение локализованных состояний электромагнитного поля импульсами, длительность которых сравнима со временем жизни состояния, приводит к изменению формы отражённого или прошедшего через структуру импульса за счёт перекачки энергии импульса в моду поверхностного состояния и её последующего высвечивания с временной задержкой, определяющейся характерным временем жизни состояния. Динамика возбуждения и релаксации ТПП определяет возможность их применения в устройствах управления излучением и является недостаточно изученной.

4. Модификация оптических свойств структур, поддерживающих возбуждение локализованных состояний, приводит к спектральному сдвигу соответствующих резонансов. При использовании схемы «накачка-зонд» возможно наблюдение временной динамики сдвига резонанса путём измерения зависимостей коэффициентов отражения и пропускания от времени задержки между импульсами зонда и накачки. При перестройке частоты зонда через резонанс локализованного состояния наблюдается асимметричная спектральная зависимость модуляции оптических параметров, имеющая форму производной резонанса. ТПП имеет спектрально узкий резонанс, что обуславливает потенциально большое значение относительного изменения коэффициента отражения при спектральном сдвиге резонанса.
5. Нелинейно-оптический отклик наноструктур может быть усилен за счёт двух независимых процессов. Одним из них является усиление локальных полей накачки в областях структур с высоким значением нелинейно-оптической восприимчивости, вторым является усиление вынужденного излучения на частоте оптической гармоники за счёт увеличения плотности фотонных состояний на данной частоте. При возбуждении ТПП наблюдается локализация электромагнитного поля на границе раздела ФК/металл, а также увеличение плотности фотонных состояний на частоте резонанса.

Таким образом целями диссертационной работы являются:

- Изучение временной динамики релаксации ТПП в зависимости от угла падения и поляризации падающего излучения;
- Исследование влияния возбуждения ТПП на спектральную и временную зависимость коэффициента отражения структур ФК/металл;
- Изучение механизмов усиления нелинейно-оптического отклика структур ФК/металл при возбуждении в них таммовских плазмон-поляритонов;
- Наблюдение гибридного состояния таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов и исследование его свойств.

Глава II

Фемтосекундная динамика релаксации таммовских плазмон-поляритонов

Как показал обзор литературы, исследование временной динамики возбуждения и релаксации локализованных состояний электромагнитного поля представляет большой интерес с точки зрения создания новых типов активных устройств фотоники и оптоэлектроники. Время жизни поверхностных и локализованных плазмон-поляритонов было изучено достаточно подробно, в то время как систематических исследований времени жизни ТПП не проводилось. Перспективность использования ТПП и гибридных состояний ТПП для создания компактных лазеров и сенсоров обуславливает важность исследования временной динамики релаксации ТПП, а также изучение влияния возбуждения данного состояния на временную зависимость оптического и нелинейно-оптического отклика структур, поддерживающих возбуждение ТПП.

1. Измерение стационарных оптических свойств таммовских плазмон-поляритонов

1.1. Экспериментальные образцы

В ходе выполнения работы было изготовлено три серии экспериментальных образцов. Образцы представляли собой набор диэлектрических слоёв (брэгговский отражатель или одномерный фотонный кристалл), покрытый сверху тонкой полупрозрачной плёнкой металла. Параметры структуры образцов, такие как толщина и материал, количество слоёв диэлектрика, толщина и тип слоя металла, оптимизировались с помощью расчёта оптических и нелинейно-оптических спектров методом матриц распространения. При расчётах была учтена дисперсия материалов, описанная в работах [104–108]. Схемы образцов представлены на рисунке 2.1. Все образцы изготавливались методом послойного магнетронного напыления в вакуумной камере. Значения показателей прелом-

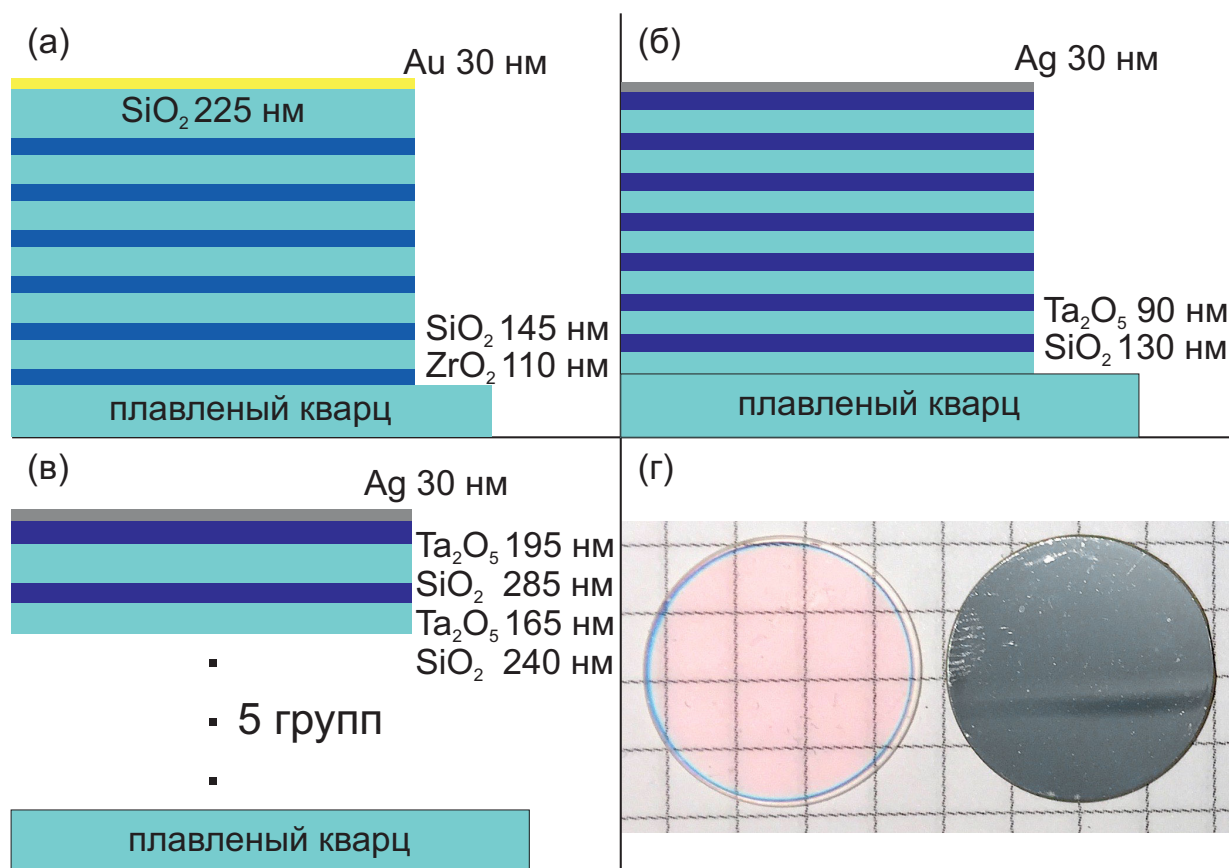


Рис. 2.1: Поперечное сечение образцов серии 1 (а), серии 2 (б), серии 3 (в). Фотография образца серии 2 без плёнки металла (слева) и с ней (справа) (г).

ления материалов были определены с помощью эллипсометрии. Оперативный контроль толщины напыляемых слоёв проводился с помощью кварцевого резонатора, а для итогового контроля толщины и однородности напыления использовались методы сканирующей электронной и атомно-силовой микроскопии. Кроме основных образцов, представлявших собой структуры «подложка-ФК-металлическая плёнка», были изготовлены образцы сравнения, представлявшие собой следующие структуры: «подложка», «подложка-ФК», «подложка-металлическая плёнка».

1.1.1 Образец серии 1

В качестве основы образца серии 1 был выбран фотонный кристалл, состоящий из 6 пар слоев $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ на подложке из плавленого кварца. Показатели преломления слоев на длине волны 800 нм составляли 1.95 и 1.46 соответствен-

но; средние толщины слоев составляли 109 нм (ZrO_2) и 146 нм (SiO_2), что соответствует длине волны центра ФЗЗ $\lambda_B = 850$ нм. Спектральное положение таммовского плазмона зависит от толщины слоя фотонного кристалла, граничащего с металлом. В случае, когда верхним слоем ФК является слой с низким показателем преломления (SiO_2) толщиной $\lambda_B/4$, ТПП возбуждается на коротковолновом краю ФЗЗ и практически совпадает с одной из волноводных мод ФК. Для сдвига длины волны резонанса ТПП в область запрещенной зоны, толщина верхнего слоя SiO_2 была увеличена на 80 нм SiO_2 . На итоговый образец была напылена плёнка золота толщиной 30 нм.

1.1.2 Образец серии 2

Фотонный кристалл образца серии 2 представлял собой набор из 7 пар слоёв $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ на подложке из плавленого кварца толщиной 500 мкм. Показатели преломления на длине волны 800 нм составляли 1.45 и 2.07 соответственно, а средние толщины составляли 90 нм для слоёв Ta_2O_5 и 130 нм для слоёв SiO_2 . Параметры структуры были выбраны таким образом, чтобы ТПП возбуждался в образце серии 2 на длине волны 800 нм при угле падения 20° . В отличие от образца серии 1 верхним слоем ФК, граничащим с металлом, был слой с высоким показателем преломления. В работе использовались две модификации данного образца: в первой на ФК напылялся слой серебра толщиной 30 нм, во второй — слой золота той же толщины. Образец покрытый серебряной плёнкой был дополнительно пассивирован слоем оксида алюминия Al_2O_3 толщиной 10 нм, который не влиял на оптические свойства образца, однако препятствовал деградации серебра из-за взаимодействия с воздухом [109].

1.1.3 Образец серии 3

Структура фотонного кристалла образца серии 3 представляла собой пять групп, каждая из которых состояла из четырех слоев, т.е. была следующей: $(\text{ABA}^*\text{B}^*)_5$. Слои типа А состояли из SiO_2 , причем толщина слоёв А составляла 240 нм, а слоёв A^* — 285 нм. Слои типа В состояли из Ta_2O_5 , причем толщина слоёв В

составляла 165 нм, а слоёв В* — 195 нм. Верхним слоем ФК был слой Ta_2O_5 толщиной 195 нм. ФК был напылён на подложку из плавленого кварца толщиной 500 мкм. Сверху на ФК был напылён слой серебра толщиной 30 нм. Фотография образца серии 3, полученная с помощью сканирующего электронного микроскопа, показана на рисунке 2.2. В классических брэгговских отражате-

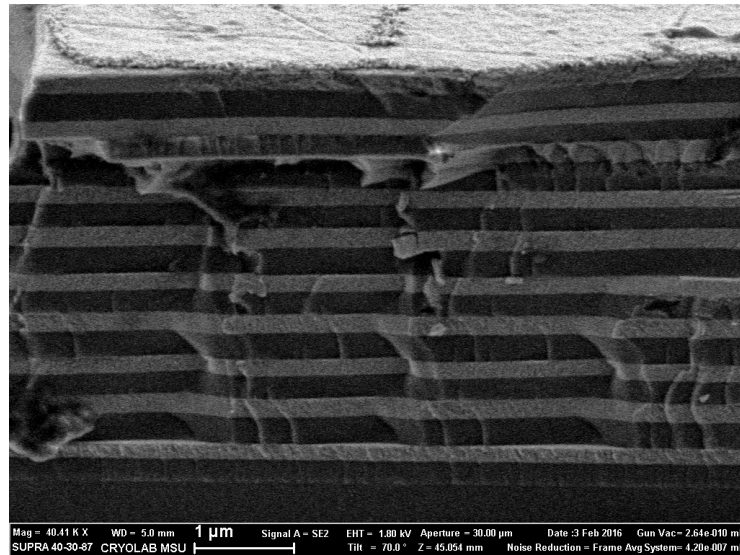


Рис. 2.2: Микрофотография среза образца серии 3, полученная с помощью сканирующего электронного микроскопа.

лях фотонный кристалл представляет собой набор пар слоёв четвертьволновой толщины, поскольку в этом случае реализуется наибольшая ширина фотонной запрещённой зоны ФК [110]. Оптическая толщина слоёв ФК определяет спектральное положение фундаментальной ФЗЗ, однако существуют также кратные запрещённые зоны. В общем случае из-за нелинейности закона дисперсии материалов слоёв ФК центральные частоты кратных ФЗЗ не равны в точности произведению центральной частоты фундаментальной ФЗЗ на натуральные числа. Вышесказанное справедливо и для резонансных частот таммовских плазмон-поляритонов. Однако в работах [86, 111] было показано, что при использовании «двухпарной» геометрии, когда ФК состоит из двух подрешеток с отличающимися периодами, можно добиться того, что частота возбуждения ТПП, например, третьего порядка, в точности равна утроенной частоте возбуждения фундаментального ТПП при определённом угле падения излучения

на структуру. Необходимость выполнения именно этого условия будет подробно объяснена в **части 3 главы III**.

1.2. Спектроскопия коэффициентов отражения и пропускания исследуемых образцов

Для исследования стационарных оптических свойств таммовских плазмон-поляритонов была проведена серия измерений спектров коэффициентов отражения и пропускания структур ФК/металл и образцов сравнения для различных углов падения и поляризаций падающего излучения. Спектры коэффициента пропускания и отражения образца серии 1 при угле падения излучения 10° показаны на рисунке 2.3 красными и чёрными точками соответственно. В спек-

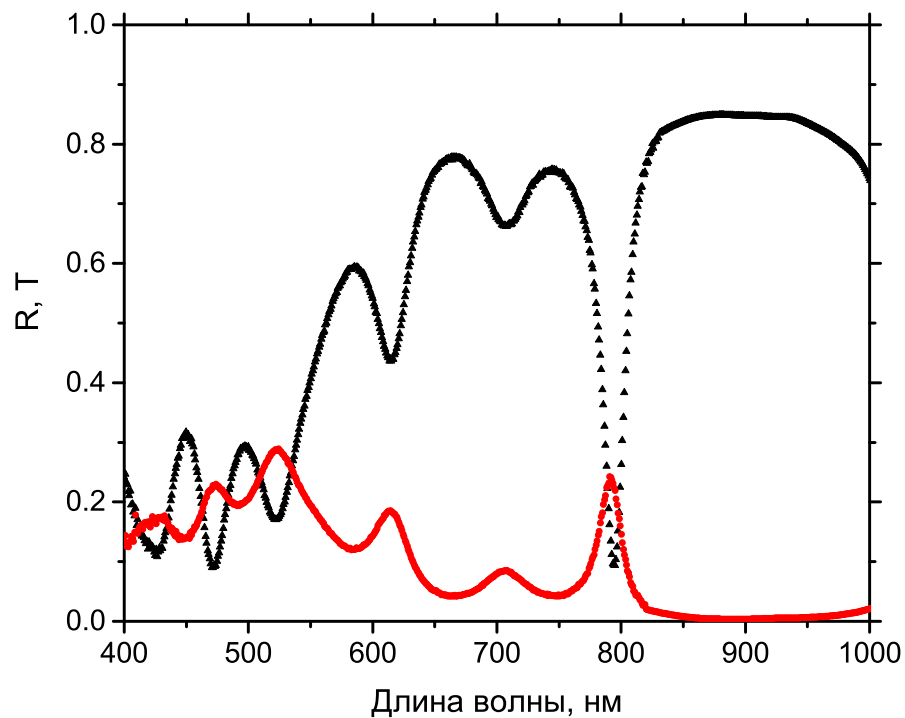


Рис. 2.3: Спектры коэффициентов пропускания (красные точки) и отражения (чёрные точки) образца серии 1 при угле падения излучения на структуру равном 10° .

трах можно выделить области фотонной запрещённой зоны ФК, находящейся на длинах волн между 700 нм и 1050 нм. На длине волны 790 нм в спектрах видны резонансы, соответствующие возбуждению таммовского плазмон-поляритона, причём его возбуждение приводит к уменьшению коэффициента отра-

жения от 0.8 — в центре ФЗЗ до 0.1 — в минимуме резонанса и к увеличению коэффициента пропускания от 0.01 — в центре ФЗЗ до 0.25 — в максимуме резонанса. При увеличении угла падения излучения θ на структуру, наблюдается смещение спектрального резонанса ТПП в коротковолновую область. Смещение резонанса ТПП при увеличении угла падения излучения связано со смещением фотонной запрещенной зоны из-за уменьшения нормальной компоненты волнового вектора падающего излучения. Кроме того, существует зависимость центральной длины волны резонанса ТПП λ_c от поляризации падающего излучения. На рисунке 2.4 приведены зависимости спектрального положения резонанса таммовского плазмон-поляритона от угла падения для s и p поляризаций излучения. С увеличением угла падения положение резонанса как для s , так и

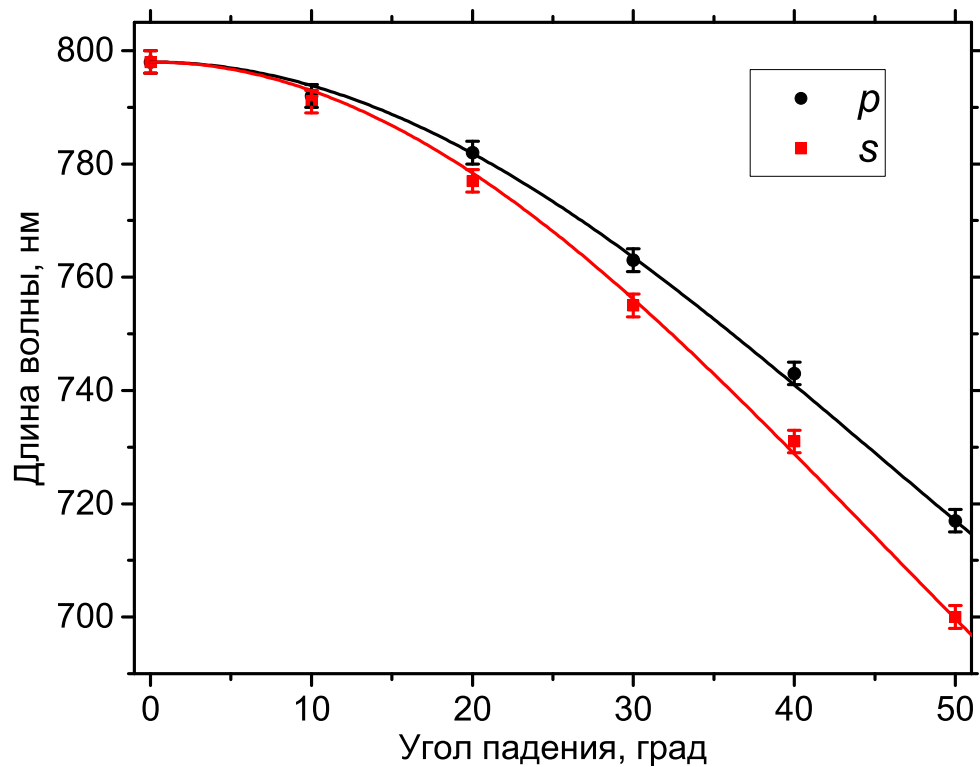


Рис. 2.4: Зависимость центральной длины волны резонанса таммовского плазмон-поляритона от угла падения излучения. Чёрные точки — p поляризация, красные квадраты — s поляризация. Сплошными кривыми показаны результаты численного расчёта.

для p поляризации смещается в коротковолновую область спектра, при этом спектральное расстояние между резонансами для различных поляризаций па-

дающего излучения увеличивается. Сплошными кривыми на рисунке показаны результаты численного расчета дисперсионных кривых ТПП для различных поляризаций. Зависимости $\lambda_c(\theta)$ описываются формулой

$$\lambda_c = \lambda_0 - \beta \sin^2(\theta), \quad (2.1)$$

причем $\lambda_0 = 798$ нм, а параметр β отличается для s и p поляризаций.

На рисунке 2.5 красными точками показан спектр коэффициента пропускания фотонного кристалла образца серии 2 при нормальном падении излучения на структуру, измеренный на спектрофотометре Shimadzu. В спектре видна

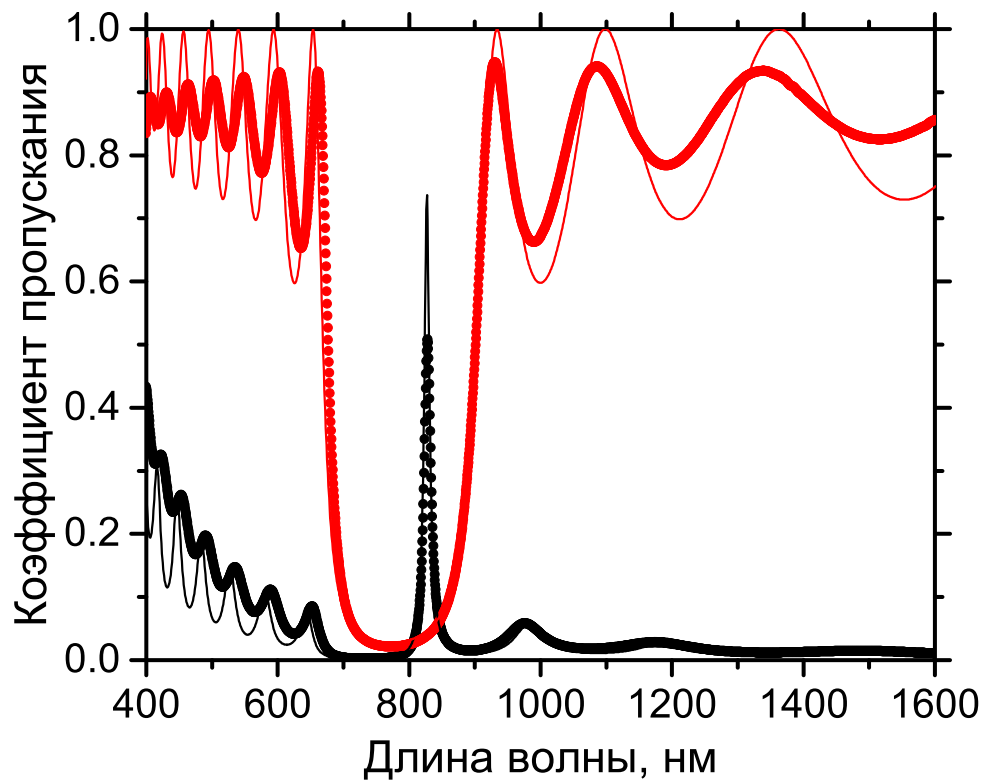


Рис. 2.5: Спектры коэффициента пропускания фотонного кристалла образца серии 2 (красные точки) и фотонного кристалла покрытого плёнкой серебра толщиной 30 нм (чёрные точки), измеренные при нормальном падении излучения на структуру. Сплошными кривыми показаны результаты численного расчёта методом матриц распространения.

фотонная запрещенная зона ФК на длинах волн между 660 нм и 920 нм. Чёрными точками на том же рисунке показан спектр коэффициента пропускания

ФК с напылённой плёнкой серебра толщиной 30 нм. Коэффициент пропускания образца с металлической плёнкой в среднем меньше, чем «чистого» фотонного кристалла, однако в окрестности длины волны 820 нм наблюдается резонансное увеличение пропускания, связанное с возбуждением ТПП. Значение коэффициента пропускания в максимуме резонанса ТПП достигает 0.52, в то время как в центре ФЗЗ оно не превосходит 0.01. Сплошными кривыми на рисунке 2.5 показаны результаты численного расчёта спектров коэффициента пропускания методом матриц распространения. Расчёты в целом хорошо совпадают с результатами эксперимента. Отличия могут быть объяснены тем, что в эксперименте существовала небольшая угловая расходимость пучка падающего излучения и, кроме того, излучение на выходе из монохроматора имело конечную ширину спектра, в то время как в численных расчётах падающее излучение считалось строго монохроматическим с плоским волновым фронтом.

Спектры коэффициента пропускания фотонного кристалла и образца серии 3 при нормальном падении излучения показаны на рисунке 2.6 чёрной и красной кривыми соответственно. В спектре ФК видны фундаментальная запрещённая зона на длинах волн между 1320 нм и 1720 нм, а также ФЗЗ третьего порядка на длинах волн между 490 нм и 535 нм. Легко заметить, что центральная частота ФЗЗ третьего порядка не равна утроенной частоте фундаментальной ФЗЗ, что связано с нелинейным законом дисперсии материалов, составляющих ФК. При напылении металла на ФК происходит существенное уменьшение коэффициента пропускания, связанное с поглощением в металле. Одновременно внутри ФЗЗ возникают резонансы пропускания, связанные с возбуждением таммовских плазмон-поляритонов. Центральные длины волн данных резонансов равны 1570 нм и 530 нм для фундаментального ТПП и ТПП третьего порядка соответственно. Максимальная величина коэффициента пропускания в резонансе фундаментального ТПП составляет 0.21, а в резонансе ТПП третьего порядка — 0.5. Можно отметить, что спектральное положение резонанса ТПП третьего порядка практически совпадает с длинноволновым краем ФЗЗ третьего порядка. Однако расчёты пространственного распределения электромагнитно-

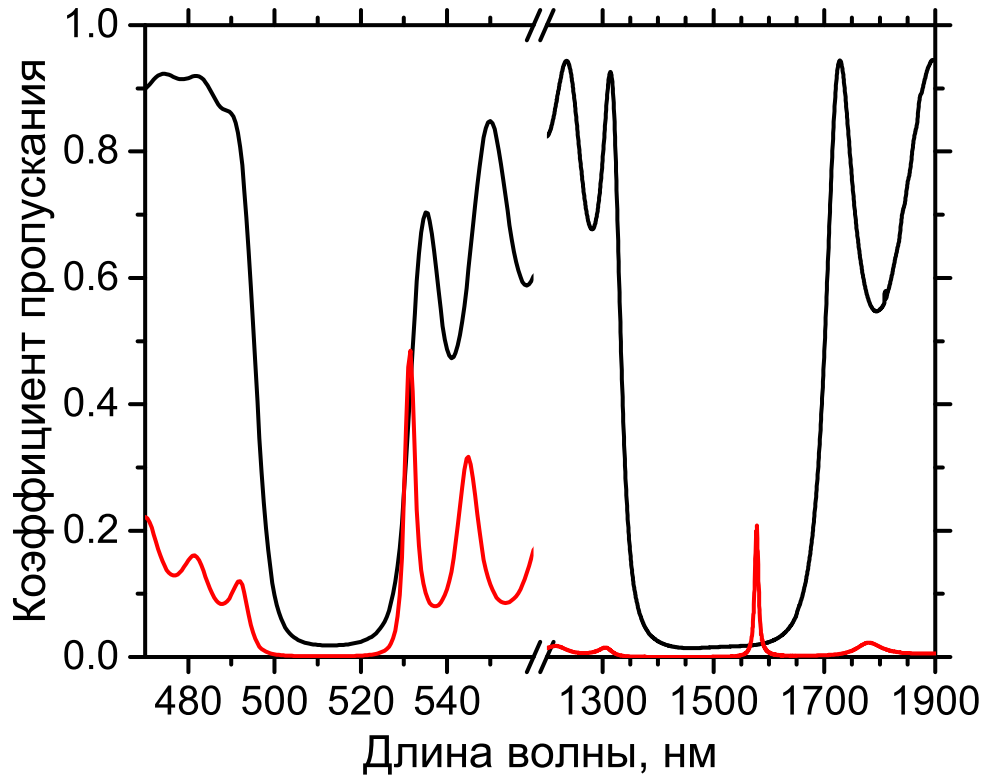


Рис. 2.6: Спектры коэффициента пропускания фотонного кристалла образца серии 3 (чёрная кривая) и фотонного кристалла, покрытого плёнкой серебра толщиной 30 нм (красная кривая), измеренные при нормальном падении излучения на структуру.

го поля на длине волны 530 нм показали, что данное распределение имеет вид, характерный именно для моды ТПП. При увеличении угла падения излучения на образец оба резонанса ТПП смещаются в коротковолновую область спектра вслед за фотонными запрещенными зонами. Важно отметить, что при увеличении угла падения, спектральное смещение фундаментального резонанса ТПП много больше спектрального смещения резонанса ТПП третьего порядка. Таким образом, при угле падения, равном примерно 20° , выполняются условия, при которых длина волны фундаментального резонанса ТПП в точности равна утроенной длине волны резонанса ТПП третьего порядка.

В таблице 1 приведена информация о том образцы какой серии использовались в экспериментах.

Таблица 1: Использование образцов в экспериментах.

Серия	Тип эксперимента	Раздел диссертации
1	Фемтосекундная спектроскопия отражения	часть 4 Главы II
	Генерация второй гармоники	часть 1 Главы III
	Гибридные состояния ТПП и ППП	Глава IV
2	Измерение времени жизни ТПП	часть 2 Главы II
	Генерация второй гармоники	части 1,2 Главы III
3	Генерация третьей гармоники	часть 3 Главы III

2. Экспериментальное исследование фемтосекундной динамики релаксации таммовских плазмон-поляритонов

Поверхностное состояние характеризуется собственной энергией $\hbar\omega_T$, причем её действительная часть определяет спектральное положение резонанса, а мнимая — его ширину. Добротность резонанса ТПП Q_T задается формулой

$$Q_T = \frac{\text{Re}\omega_T}{2\text{Im}\omega_T}, \quad (2.2)$$

причем она определяется как радиационными потерями, связанными в основном с контрастностью ФЗЗ ФК, так и нерадиационными потерями, связанными с поглощением в слое металла. Можно ввести эффективное время жизни таммовского плазмон-поляритона τ_T по формуле

$$\tau_T = \frac{1}{4\pi\text{Im}\omega_T}. \quad (2.3)$$

Таким образом, из анализа спектров коэффициента отражения и пропускания может быть сделан вывод о времени жизни ТПП. На рисунке 2.7 приведены спектры коэффициента отражения образца серии 2 при угле падения излучения равном 45° для s и p поляризации падающего излучения. Можно отметить, что спектральное положение резонанса и его ширина отличаются для различных поляризаций излучения, причем в s поляризации ширина резонанса меньше, чем в p поляризации. Синей кривой на рисунке 2.7 показана аппроксимация резонанса кривой Лоренца, из которой была определена центральная длина

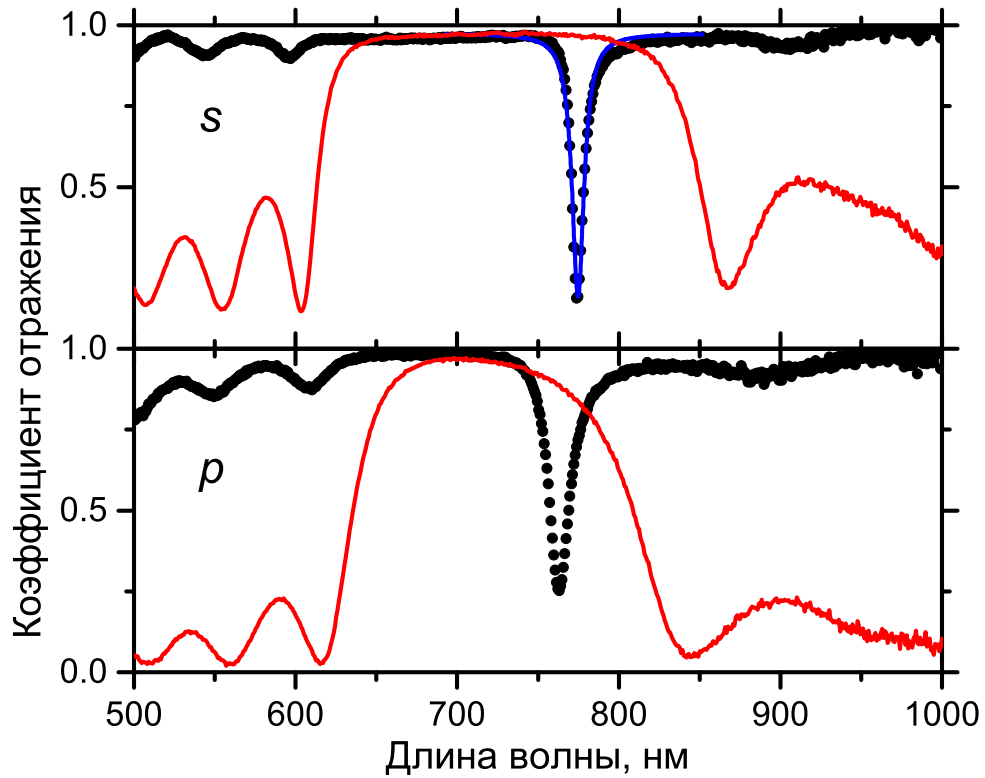


Рис. 2.7: Спектры коэффициента отражения фотонного кристалла (красные кривые) и образца серии 2 (черные точки) при угле падения излучения равном 45° для s -поляризованного (сверху) and p -поляризованного (снизу) излучения. Синей кривой показана аппроксимация резонанса ТПП функцией Лоренца.

волны резонанса λ_T , равная 775 нм и его ширина $\Delta\lambda$, составившая 9 нм. По формуле

$$c\tau_T = \frac{\lambda_T^2}{\Delta\lambda} \quad (2.4)$$

можно оценить время жизни ТПП как $\tau_T = 35$ фс.

Для детального исследования фемтосекундной динамики таммовских плазмон-поляритонов была использована кросс-корреляционная схема, изображенная на рисунке 2.8. Источником излучения являлся титан-сапфировый лазер, генерировавший импульсы длительностью 100 фс с частотой повторения 80 МГц. Центральная длина волны излучения перестраивалась в диапазоне 760 – 810 нм, а энергия в импульсе на выходе из лазера не превышала 2 нДж. Далее импульсы проходили через прекомпрессор, вносящий отрицательную дисперсию групповой скорости для компенсации дисперсии в элементах схемы. Широкополосная

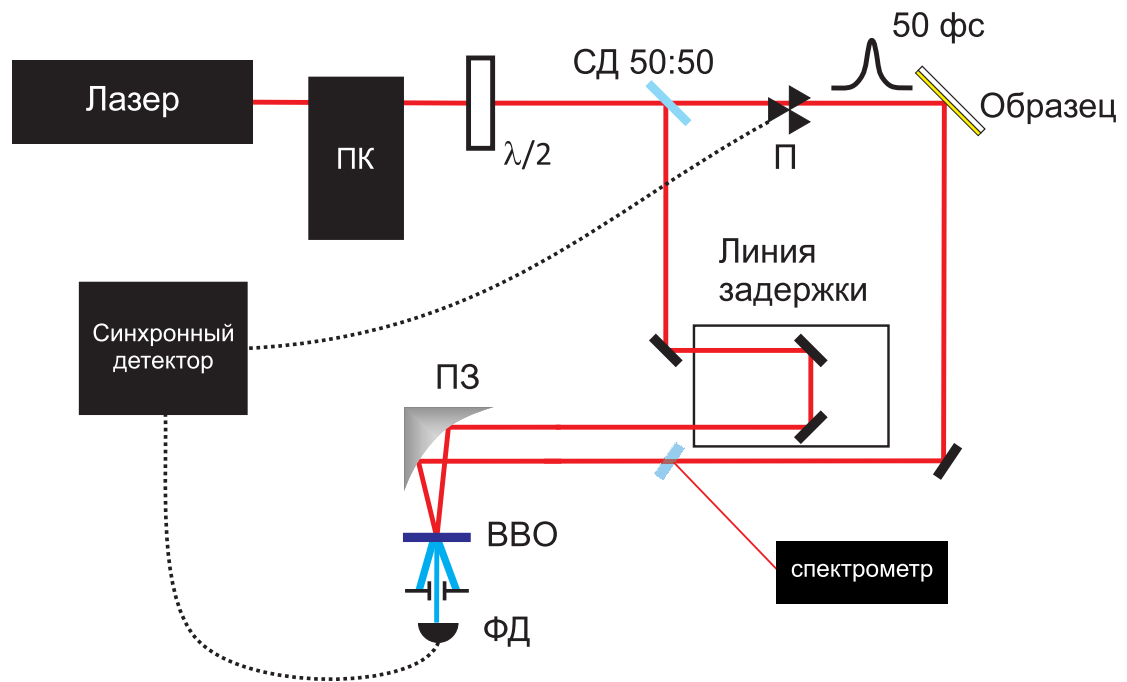


Рис. 2.8: Схема установки для исследования временной динамики возбуждения таммовских плазмон-поляритонов. лазер — титан-сапфировый лазер; ПК — прекомпрессор; $\lambda/2$ — полуволновая пластина, работающая в интервале длин волн 600 – 1100 нм; СД 50:50 — светоделительная пластина, пропускающая и отражающая 50% интенсивности падающего излучения; П — прерыватель пучка; ПЗ — параболическое зеркало; ВВО — нелинейный кристалл $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$; ФД — фотодиод.

полуволновая пластина позволяла задавать поляризацию падающего на образец излучения на всем диапазоне длин волн излучения лазера. Светоделитель разделял исходный импульс на два канала с одинаковой интенсивностью в каждом. Далее излучение в сигнальном канале падало на образец, установленный на трехкоординатной подставке, и отражалось от него, а в опорном — проходило через линию задержки, после чего оба импульса фокусировались на нелинейный кристалл $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ (ВВО) с помощью параболического зеркала. В указанной конфигурации в геометрии пропускания, в кристалле ВВО возможна генерация второй оптической гармоники в трёх направлениях. Две волны ВГ распространялись в тех же направлениях, что и падающие излучения сигнального и опорного каналов и соответствовали случаю коллинеарной ВГ. Третья волна ВГ (неколлинеарная ВГ) распространялась вдоль биссектрисы угла,

образованного направлениями распространения сигнального и опорного излучений. Неколлинеарная ВГ генерируется только в случае пространственного и временного перекрытия сигнального и опорного импульсов в кристалле ВВО, а её интенсивность $I_{2\omega}$, зависящая от временной задержки между импульсами τ , пропорциональна интенсивностной кросс-корреляционной функции импульсов второго порядка:

$$I_{2\omega}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I_{sig}(t) I_{ref}(t - \tau) dt, \quad (2.5)$$

где I_{sig} , I_{ref} — интенсивности излучения в сигнальном и опорном каналах соответственно. Интенсивность неколлинеарной ВГ измерялась в схеме синхронного детектирования с помощью кремниевого фотодиода. Опорной частотой синхронного детектора служила частота оптического прерывателя, установленного в сигнальном канале. Использование данной схемы позволяло снизить влияние внешней засветки и существенно увеличить соотношение сигнал/шум. Линия задержки представляла собой ретрорефлектор, установленный на механизированном трансляторе. Точность позиционирования транслятора составляла 100 нм, что соответствует точности контроля временной задержки в 1 фс. В схеме практически отсутствовали оптические элементы, работавшие в геометрии пропускания, что позволяло минимизировать влияние элементов на расплывание импульса во времени и изменение его формы после отражения от образца. Угол падения излучения на образец изменялся от 7° до 45° , причем при изменении угла падения излучения перестраивался и спектр излучения лазера для выполнения условия возбуждения ТПП в образце. Контроль возбуждения ТПП осуществлялся с помощью спектрометра путём измерения спектра коэффициента отражения образца. Вместо образца в схему могло быть установлено непрозрачное зеркало для проведения опорных измерений.

Кросс-корреляционная функция (ККФ) определяется для двух импульсов, одним из которых является импульс, отражённый от образца, а вторым — импульс сравнения. В дальнейшем, для краткости изложения, вместо полной фразы «ККФ импульса, отражённого от образца под углом θ , и импульса сравнения при X поляризации излучения», будет использоваться фраза «ККФ для угла

падения θ и X поляризации излучения». На рисунке 2.9, в логарифмическом масштабе по оси ординат, показана кросс-корреляционная функция импульса канала сравнения и импульса, отраженного от серебряного зеркала под углом 30° . Излучение в данном случае было p -поляризованным. Кросс-корреляционная

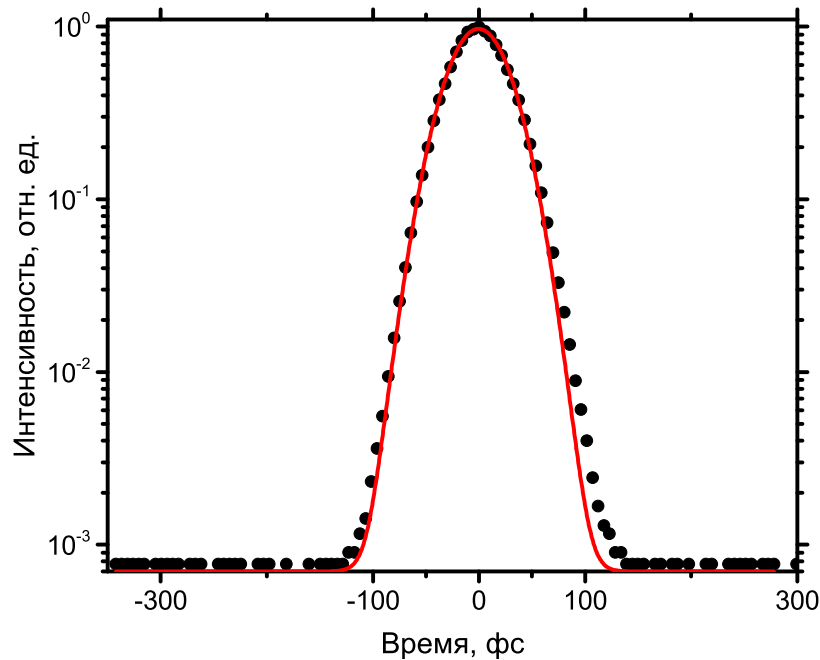


Рис. 2.9: Кросс-корреляционная функция p -поляризованных импульсов канала сравнения и отражённого от серебряного зеркала под углом 30° . Красной кривой показана аппроксимация гауссовой функцией со значением ширины на полувысоте, равном 63 фс. Зависимости показаны в логарифмическом масштабе по оси ординат.

функция имеет симметричную форму и хорошо аппроксимируется функцией Гаусса, описывающей форму фемтосекундных лазерных импульсов и их кросс-корреляционных функций. Ширина на полувысоте аппроксимирующей функции составила 63 фс, что соответствует длительности импульса 45 фс. Данный результат совпадает с результатами измерений интерферометрической автокорреляционной функции импульса. Ненулевое значение кросс-корреляционной функции вдали от нулевой задержки между импульсами определяется шумами экспериментальной установки, и минимум на три порядка величины меньше значения максимума ККФ. При отражении сигнального импульса от образца серии 2 наблюдается изменение формы кросс-корреляционной функции в слу-

чае, если спектр импульса перекрывается с резонансным контуром таммовского плазмон-поляритона, возбуждаемого в образце. На рисунке 2.10 черными точками показана ККФ p -поляризованных импульсов при угле падения 30° . На вставке показан спектр сигнального импульса после отражения от образца. В

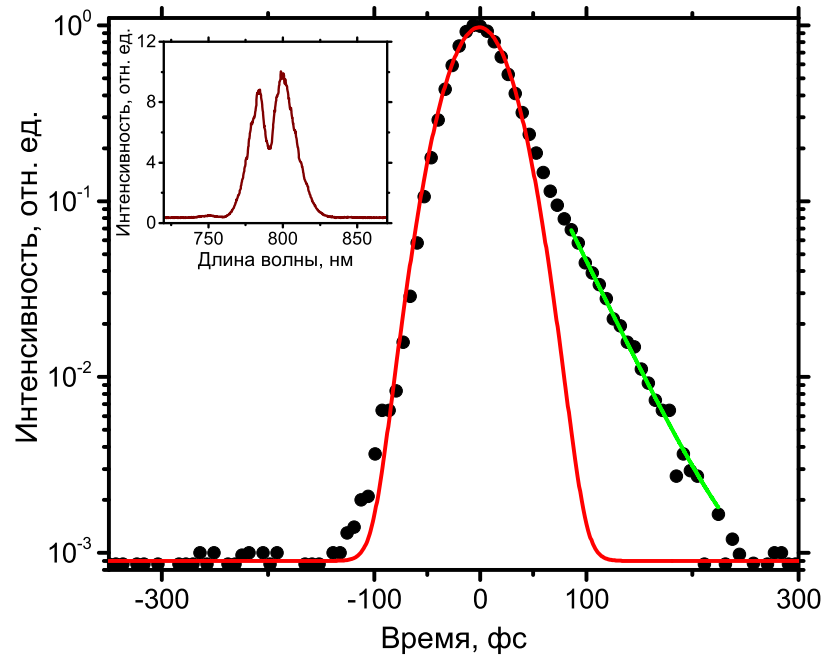


Рис. 2.10: Кросс-корреляционная функция p -поляризованных импульсов при угле падения 30° . Красной кривой показана аппроксимация гауссовой функцией со значением ширины на полувысоте равным 63 фс. Зелёной линией показана аппроксимация заднего фронта ККФ функцией $I = I_0 + \exp(-t/\tau)$ со значениями параметров $I_0 = 9 \cdot 10^{-4}$ отн. ед., $\tau = 26$ фс. Зависимости показаны в логарифмическом масштабе по оси ординат. Вставка: спектр импульса, отражённого от образца.

нём наблюдается минимум на длине волны 780 нм, соответствующий резонансу ТПП. Красной кривой на основном графике показана аппроксимация гауссовой функцией с шириной на полувысоте равной 63 фс. Видно, что при отрицательных значениях времени задержки, которые соответствуют перекрытию передних фронтов импульсов, ККФ имеет гауссову форму, однако начиная с времени задержки равного +50 фс, наблюдается расхождение между измеренной ККФ и гауссовой функцией, что соответствует затягиванию заднего фронта импульса, отражённого от образца. Затянутый задний фронт ККФ был аппроксимиро-

ван функцией $I = I_0 + \exp(-t/\tau)$, показанной на рисунке 2.10 зелёной линией. Значение постоянной τ , определяющей время жизни таммовского плазмон-поляритона, составило 26 ± 1 фс.

При увеличении угла падения излучения на образец характеристики резонанса ТПП меняются по-разному для p - и s -поляризованного излучения. Центральная длина волны резонанса смещается в коротковолновую область спектра, однако для p поляризации данное смещение сильнее чем для s . Ширина резонанса увеличивается для p -поляризованного излучения и уменьшается для s -поляризованного при увеличении угла падения излучения. Поскольку время жизни ТПП может быть соотнесено с шириной резонанса по формуле 2.4, ожидается, что при больших углах падения излучения времена жизни ТПП p и s поляризаций будут существенно отличаться. На рисунке 2.11 красными и черными точками соответственно показаны измеренные ККФ импульсов p - и s -поляризаций при угле падения 45° , а синей кривой показана автокорреляционная функция импульса, падающего на образец. Видно, что как у p -, так и у s -

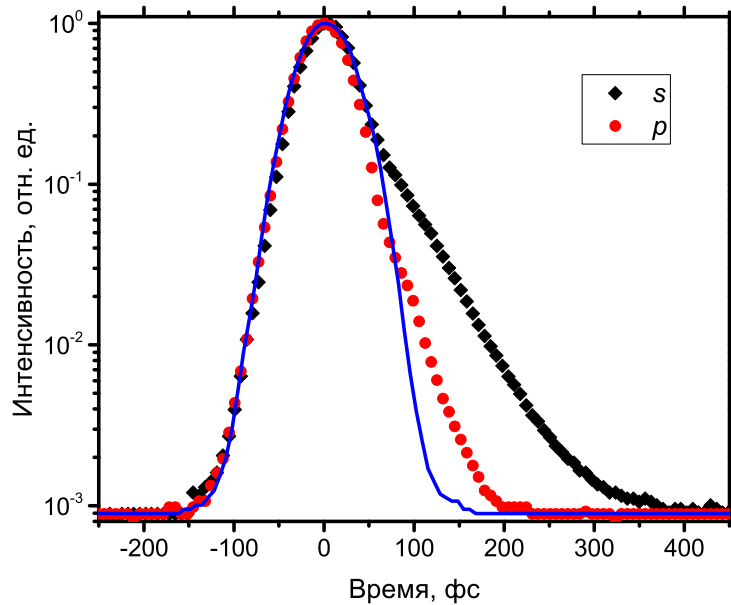


Рис. 2.11: Кросс-корреляционные функции при угле падения 45° для p - (красные точки) и s - (чёрные ромбы) поляризованного излучения. Синей кривой показана автокорреляционная функция импульса, падающего на образец. Зависимости показаны в логарифмическом масштабе по оси ординат.

поляризованного импульса наблюдается экспоненциальное затягивание заднего фронта, причём для s поляризации оно проявляется сильнее, что свидетельствует о большем времени жизни ТПП, возбуждаемого s -поляризованным излучением. Из аппроксимации затянутых фронтов функцией $I = I_0 + \exp(-t/\tau)$ было определено время жизни ТПП, которое составило 21 ± 1 фс для p поляризации и 42 ± 1 фс для s поляризации. Подобные измерения были проведены для четырёх различных углов падения на образец равных 7° , 15° , 30° и 45° . На рисунке 2.12 показаны зависимости времени жизни ТПП для p - и s -поляризованного излучения от угла падения излучения на образец. Кроме того, данные зависимости

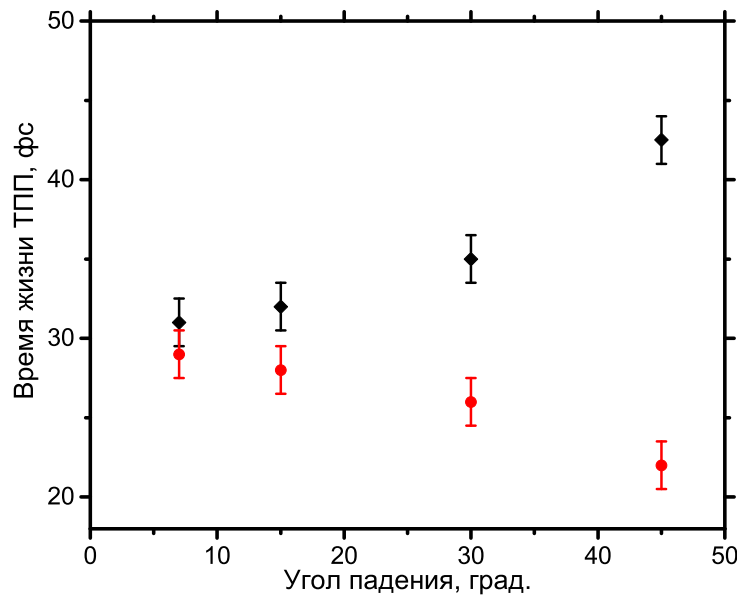


Рис. 2.12: Зависимость времени жизни ТПП от угла падения излучения на образец серии 2 покрытый плёнкой серебра. Красные точки соответствуют p -поляризованному излучению, чёрные точки — s -поляризованному излучению.

были рассчитаны численно. Подробное сравнение экспериментальных и численных результатов, а так же их обсуждение приведено в следующем разделе.

Как было указано ранее, время жизни ТПП определяется в том числе нерадикационными потерями, связанными с поглощением в металле, или с мнимой частью диэлектрической проницаемости $\varepsilon''_{\text{Me}}$. С другой стороны, резонансная длина волны возбуждения ТПП зависит от действительной части диэлектрической проницаемости металла ε'_{Me} . Согласно работе [105], на частотах работы

титан-сапфирового лазера выполняются следующие условия:

$$\begin{cases} \varepsilon'_{\text{Au}} \approx \varepsilon'_{\text{Ag}} \\ \varepsilon''_{\text{Au}} \approx 3\varepsilon''_{\text{Ag}} \end{cases} . \quad (2.6)$$

Это означает, что длина волны возбуждения ТПП в образцах серии 2, покрытых серебряной и золотой пленками, должна быть примерно одинаковой, а ширина резонанса и, как следствие, время жизни ТПП должна существенно отличаться. Для проверки данного предположения на фотонный кристалл образца серии 2 был напылён слой золота толщиной 30 нм. Были измерены ККФ импульсов p и s поляризации при различных углах падения излучения. Кроме того, были измерены ККФ импульсов, отражённых от фотонного кристалла образца серии 2 без напылённой металлической плёнки. На рисунке 2.13 синей кривой показана ККФ s -поляризованного импульса, отражённого от ФК серии 2 без металлической плёнки под углом 45° . Видно, что при отражении от чистого ФК

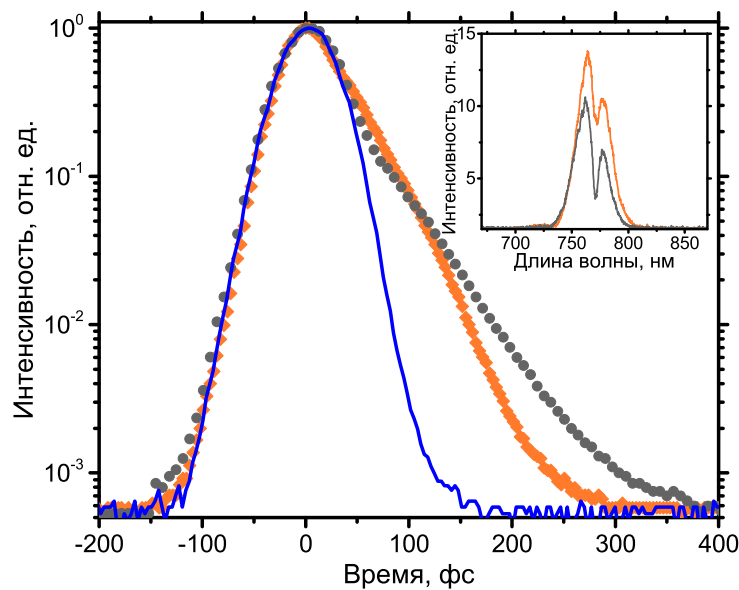


Рис. 2.13: Кросс-корреляционные функции s -поляризованных импульсов при угле падения 45° в случае отражения от образца серии 2, покрытого плёнкой серебра (серые точки) и золота (оранжевые ромбы). Синей кривой показана кросс-корреляционная функция импульса, отражённого от фотонного кристалла серии 2 под углом 45° . Зависимости показаны в логарифмическом масштабе по оси ординат. На вставке показаны соответствующие спектры отражённых импульсов.

импульс не претерпевает изменений, форма его ККФ остается симметричной и хорошо описывается гауссовой функцией. Серыми точками показана ККФ s -поляризованного импульса при угле падения 45° для образца серии 2, покрытого плёнкой серебра, а оранжевыми ромбами — для образца, покрытого плёнкой золота. На вставке показаны спектры соответствующих импульсов. Видно, что центральная длина волны резонанса ТПП практически одинакова для обоих образцов, а ширина резонанса меньше в случае использования плёнки серебра. Затягивание заднего фронта отраженного импульса наблюдается как в случае образца с золотом, так и в случае с серебром, однако постоянная экспоненты больше в случае отражения от образца покрытого серебряной плёнкой. Время жизни ТПП, определенное из аппроксимации затянутого фронта ККФ составило 42 ± 1 фс в образце серии 2 с плёнкой серебра и 25 ± 1 фс в образце серии 2 с плёнкой золота.

3. Численные расчеты фемтосекундной динамики релаксации таммовских плазмон-поляритонов

Для подтверждения достоверности экспериментальных результатов были проведены расчеты методом конечных разностей во временной области [112]. Параметры расчетного образца, такие как толщины, количество и порядок слоев были такими же, как и в экспериментальном образце. При расчетах учитывалась дисперсия материалов слоев образца, заданная в виде таблицы со столбцами, содержащими длину волны, показатель преломления и коэффициент поглощения. Внешний вид окна расчетной программы с исследуемой структурой показан на рисунке 2.14. Геометрия счетного объема была выбрана двумерной, причём размер счётной области вдоль плоскости поверхности образца был много меньше размера вдоль нормали к поверхности. Кроме того, расчёт производился с использованием плоских волн, поскольку в эксперименте использовались слабо расходящиеся пучки. Данные допущения существенно уменьшали время расчёта. Граничные условия объема были установлены блоховскими по сторонам А и В, таким образом, счетный объем периодическим образом продолжался на

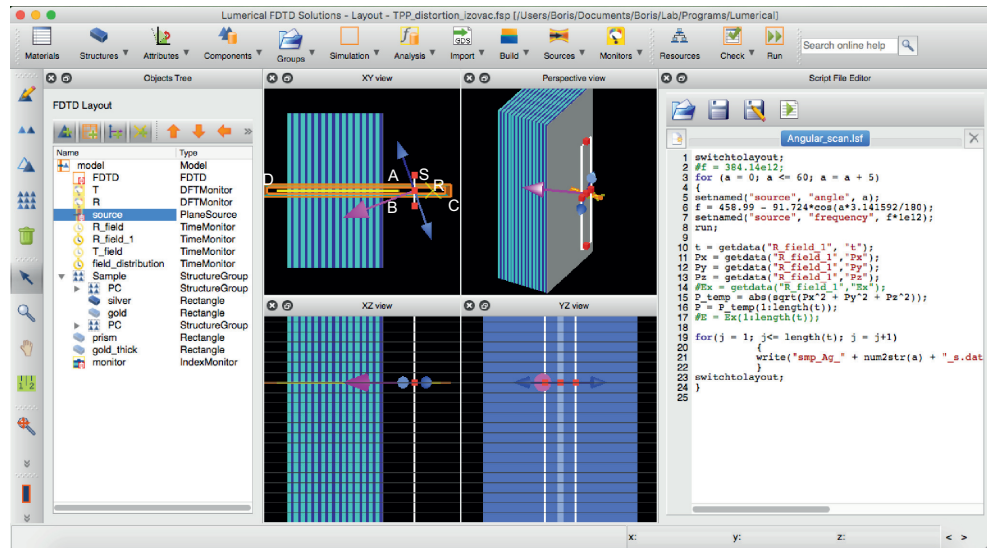


Рис. 2.14: Внешний вид окна программы Lumerical, использовавшейся для численных расчётов временной динамики распространения фемтосекундных импульсов в образце серии 2.

бесконечность с правильным учетом фаз волн, распространяющихся под углом к границам объема. По сторонам C и D, были установлены идеально согласованные слои, моделирующие уход волны на бесконечность без паразитных отражений обратно в объем расчета. Источник излучения был расположен в точке S, его параметры, такие как длительность импульса, направление поляризации и угол падения излучения варьировались. В точке R записывались значения рассчитанных электрических и магнитных полей в зависимости от времени, которые соответствовали отраженному излучению. Кроме того, рассчитывались поля импульсов, отраженных от непрозрачных слоёв серебра, что в экспериментальном случае соответствует импульсу в канале сравнения. Затем производилась численная свертка импульса, отраженного от образца, и импульса сравнения для получения расчетной кросс-корреляционной функции, и результат сравнивался с экспериментальными данными.

На рисунке 2.15 красной кривой показана расчётная огибающая p -поляризованного импульса с центральной длиной волны 790 нм, падающего на образец под углом 30° , а чёрной кривой — огибающая импульса, отражённого от образца. При указанных условиях в образце возбуждается таммовский плаз-

мон-поляритон, что приводит к существенному изменению формы отраженного импульса. Процесс модификации огибающей может быть описан следующим

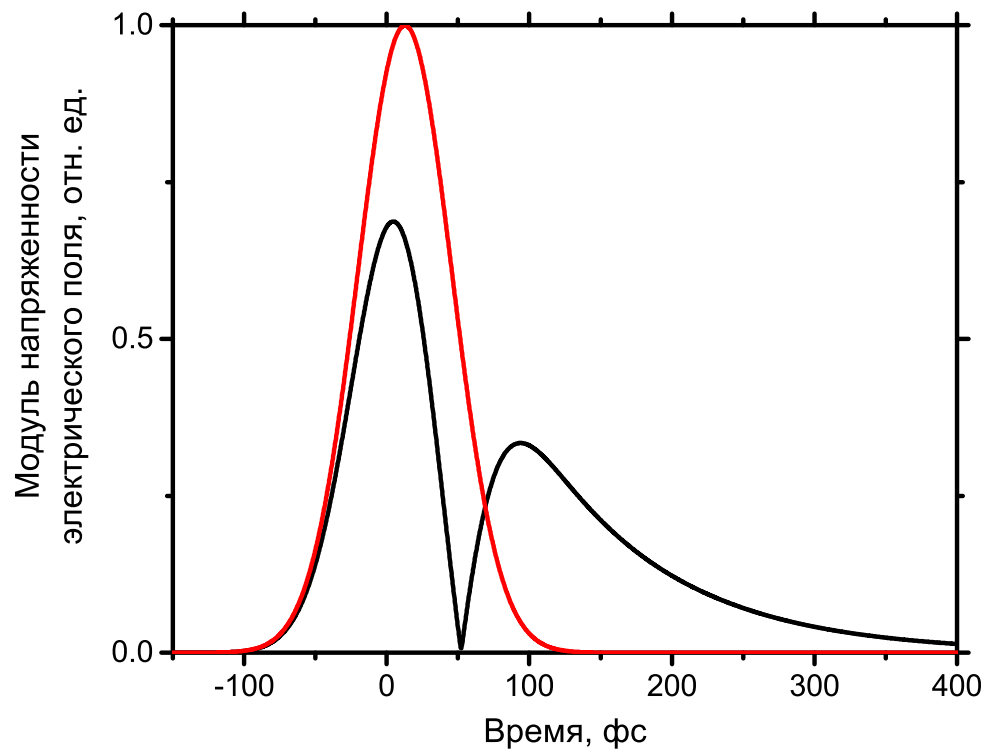


Рис. 2.15: Численно рассчитанные огибающие импульсов, падающих на образец ФК/металл (красная кривая) и отражённых от него (чёрная кривая), при условии возбуждения моды таммовского плазмон-поляритона в образце.

образом: при падении излучения на структуру часть энергии импульса начинает перераспределяться в моду таммовского плазмона, в то время как вторая часть отражается от структуры нерезонансным образом. Как видно из сравнения амплитуд огибающих при отрицательных временах, перекачка энергии в моду ТПП начинается сразу после падения импульса на структуру. Энергия, затянута в моду ТПП, начинает высвечиваться в отражённую объемную волну через некоторое характерное время, определяемое временем жизни ТПП. При этом итоговый отражённый импульс является результатом интерференции излучения, отражённого нерезонансно и переизлучённого из моды таммовского плазмона. Из-за конечного времени жизни ТПП в огибающей отражённого импульса возникает затянутый задний фронт, причём его амплитуда спадает по экспоненциальному закону. Подобные зависимости были рассчитаны для слу-

чая отражения от полубесконечного слоя металла, что в эксперименте соответствовало излучению в канале сравнения. В случае отражения от слоя металла не наблюдалось модификации формы огибающей импульса, однако было отмечено уменьшение её амплитуды, связанное с поглощением в металле.

Для получения расчётной кросс-корреляционной функции $C(\tau)$ производилась численная свёртка огибающих электрического поля E импульсов, отражённых от образца, и полубесконечной плёнки металла по формуле

$$C(\tau) = C_0 + \int_{-\infty}^{+\infty} E_{ref}^2(t) E_{spl}^2(t - \tau) dt \quad , \quad (2.7)$$

где индекс «ref» соответствует импульсу, отражённому от плёнки металла (или каналу сравнения), а индекс «spl» соответствует импульсу, отражённому от образца. Константа C_0 была введена для сравнения расчётных и экспериментальных ККФ и соответствует экспериментальному фоновому сигналу. На рисунке 2.16 точками показаны экспериментальные результаты измерения кросс-корреляционной функции, а сплошной кривой — результаты численных расчетов. Обе зависимости соответствуют углу падения излучения равному 45° и s

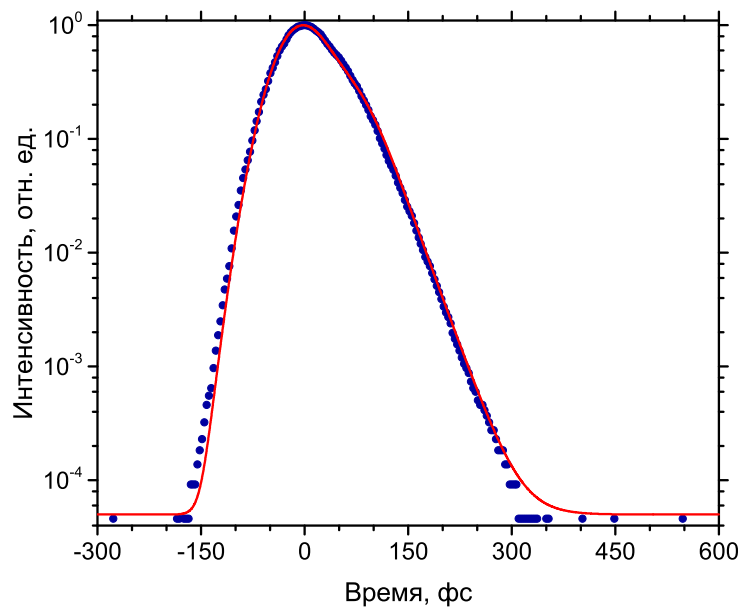


Рис. 2.16: Кросс-корреляционные функции s -поляризованных импульса, отражённного от образца серии 2 под углом 45° , и импульса сравнения. Точки — экспериментальные данные, сплошная кривая — численный расчёт.

поляризации излучения. Наблюдается хорошее соответствие результатов экспе-

римента и расчета, что свидетельствует о правильной интерпретации экспериментальных данных.

Описанным методом был произведён численный расчёт зависимости времени жизни ТПП от угла падения излучения для s и p поляризаций и проведено сравнение с экспериментальными данными. На рисунке 2.17 точками показаны измеренные времена жизни, а сплошными кривыми приведены результаты численного расчёта. Экспериментальные значения с хорошей точностью совпадают

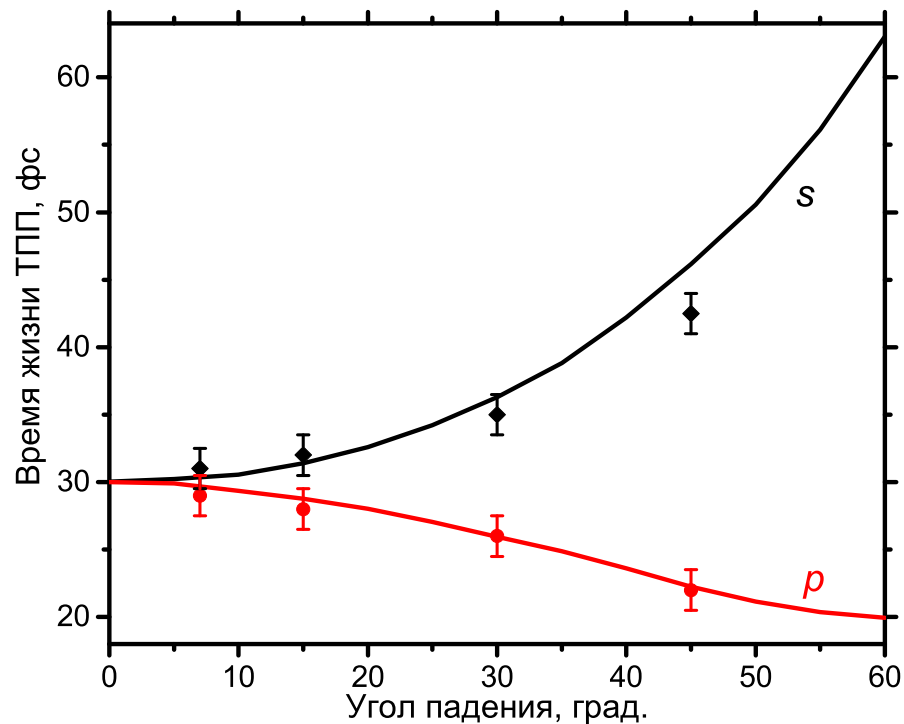


Рис. 2.17: Зависимость времени жизни ТПП от угла падения излучения на структуру ФК/металл. Красными точками показаны экспериментальные данные для p -поляризованного излучения, красной кривой — результат соответствующего численного расчёта. Чёрными точками показаны результаты эксперимента для s -поляризованного излучения, чёрной кривой — соответствующий численный расчёт.

с результатами расчёта. Можно заметить, что характер зависимости отличается для s и p поляризаций. Время жизни ТПП, возбуждаемого p -поляризованным излучением, монотонно уменьшается с увеличением угла падения излучения, в то время как время жизни ТПП, возбуждаемого s -поляризованным излучением, монотонно растёт. Полученные зависимости могут быть объяснены исходя из

законов отражения Френеля [113] для поляризованного излучения. Как было указано выше, добротность резонанса определяется нерадиационными потерями, связанными с поглощением в металле, и радиационными, определяющимися ФЗЗ фотонного кристалла. Формирование ФЗЗ является результатом многолучевой интерференции излучения, прошедшего и отражённого от каждой из границ раздела внутри ФК. Если применить формулы Френеля для расчёта коэффициентов отражения и пропускания каждой границы, можно заметить, что излучения p и s поляризации будут вести себя в ФК по-разному. Например, для p -поляризованного излучения при приближении угла падения к углу Брюстера наблюдается уменьшение коэффициента отражения на каждой из границ раздела слоёв ФК, что приводит к уменьшению добротности резонанса ТПП. В то же время для s -поляризованного излучения коэффициенты отражения каждой границы раздела растут при увеличении угла падения излучения, что приводит к увеличению добротности резонанса ТПП.

4. Фемтосекундная спектроскопия коэффициента отражения структуры фотонный кристалл-металл при возбуждении таммовского плазмон-поляритона

Наличие фемтосекундной динамики релаксации ТПП мотивировало исследование влияния данного состояния на модуляцию оптического отклика структуры ФК/металл. Измерения проводились методом «накачка-зонд» в схеме, представленной на рисунке 2.18(а). В качестве источника излучения использовался лазер Coherent Mira на основе кристалла титан-сапфира, генерировавший импульсы длительностью 120 фс с частотой повторения 80 МГц. Центральная длина волны излучения и ширина спектра могли быть перестроены в ручном режиме, однако для проведения эксперимента лазер был настроен таким образом, что центральная длина волны составляла 780 нм, а ширина спектра была равна 32 нм. Излучение проходило через оптический прекомпрессор, обеспечивавший длительность импульса на образце равную 50 фс. Далее излучение делилось на каналы зонда и накачки с помощью светоделителя, причём коэф-

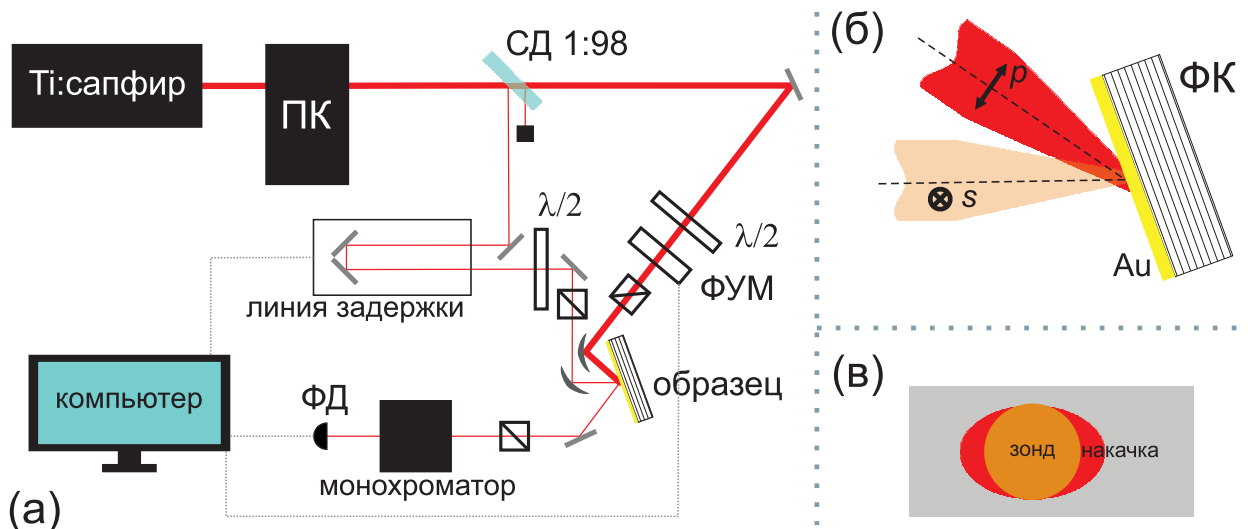


Рис. 2.18: (а) Схема установки по измерению модуляции коэффициента отражения образцов ФК/металл методом «накачка-зонд». Ti:сапфир — лазер на основе кристалла титан-сапфира, ПК — прекомпрессор лазерных импульсов, СД — светоделительная пластина с коэффициентом пропускания, равным 98% и коэффициентом отражения, равным 1%, $\lambda/2$ — полуволновая фазовая пластинка, ФУМ — фотоупругий модулятор, ФД — кремниевый фотодиод. (б) Схема падения лучей накачки и зонда на образец. Угол падения p -поляризованного излучения накачки составляет 45° , угол падения s -поляризованного излучения зонда составляет 20° . Излучение падает на образец со стороны металла. (в) Положение пятен накачки и зонда на образце. Диаметр пятна зонда равен 10 мкм, длины осей эллипса пятна накачки составляют 25 мкм и 15 мкм.

коэффициент пропускания светоделителя составлял 98%, а коэффициент отражения каждой границы светоделителя составлял 1% для p -поляризованного излучения. Излучение накачки проходило через полуволновую фазовую пластину, поворачивавшую его поляризацию на 90° таким образом, чтобы оно стало s -поляризованным, далее через фотоупругий модулятор (ФУМ), и призму Глана, установленную в p -поляризации. Излучение зонда проходило через моторизованную линию задержки, позволявшую задавать временную задержку между импульсами накачки и зонда с точностью не хуже 1 фс. Далее поляризация излучения изменялась с p на s с помощью полуволновой пластины и призмы Глана. Излучения накачки и зонда независимо фокусировались на образец с помощью параболических зеркал с фокусными расстояниями 10 см и 5 см со-

ответственно. Угол падения зонда составлял 20° , а угол падения накачки был равен 45° , как показано на рисунке 2.18(б). Данные углы падения были выбраны с тем расчётом, чтобы для накачки не выполнялись условия возбуждения ТПП, а для зонда — выполнялись в районе длины волны 780 нм. Далее излучение зонда, отражённое от образца, коллимировалось линзой, проходило через призму Глана, установленную в s -поляризации, и падало на волоконный коллиматор. С помощью оптического волокна излучение зонда попадало в монохроматор, на выходе из которого был установлен кремниевый фотодиод. Интенсивность излучения регистрировалась в схеме синхронного детектирования, причем опорной частотой служила удвоенная³ частота фотоупругого модулятора. Таким образом напрямую измерялась величина изменения интенсивности луча зонда, вызванная взаимодействием с излучением накачки. Схема с ортогонально поляризованными лучами накачки и зонда была выбрана для уменьшения засветки детектора мощным модулированным излучением накачки. Плотность энергии накачки и зонда на образце составляла $270 \text{ мкДж}\cdot\text{см}^{-2}$ и $8 \text{ мкДж}\cdot\text{см}^{-2}$ соответственно. Перетяжки пучков в плоскости образца имели эллиптическую форму (рис. 2.18(в)), связанную с ненулевым углом падения на образец, причем пятно зонда было слабоэллиптическим с характерным диаметром равным 10 мкм, а длины осей эллипса пятна накачки составляли 25 мкм и 15 мкм по горизонтали и вертикали соответственно. Сведение лучей накачки и зонда в пространстве и времени осуществлялось с помощью нелинейного кристалла бета-бората бария по максимуму интенсивности неколлинеарной второй оптической гармоники.

Поскольку спектральная плотность шума синхронного детектора обратно пропорциональна частоте модуляции излучения, использование системы из по-

³Принцип действия фотоупругого модулятора основан на возникновении двулучепреломления в среде под действием механического напряжения. Амплитуда деформации определяет фазовую задержку между обыкновенным и необыкновенным лучами и, как следствие, вращение плоскости поляризации света, проходящего через модулятор. В используемом устройстве пластина плавленого кварца деформируется с частотой 47 кГц, однако частота модуляции поляризации является удвоенной — 96 кГц поскольку вектор поляризации проходит одни и те же положения дважды за период механической деформации.

лувошной пластины, призмы Глана и ФУМ в качестве оптического прерывателя позволяло существенно увеличить соотношение сигнал/шум. Использование p -поляризованной накачки было обусловлено малым коэффициентом отражения p -поляризованного излучения по сравнению с s -поляризованным, что приводило к уменьшению засветки системы регистрации диффузно отражённой накачкой.

В данной схеме были измерены зависимости относительного изменения коэффициента отражения $\Delta R/R$ образца серии 1 и образца сравнения, представлявшего собой плёнку золота толщиной 30 нм, от времени задержки между импульсами зонда и накачки. Измерялась интегральная мощность импульса зонда на всех длинах волн, составляющих спектр импульса. Результаты приведены на рисунке 2.19, а на вставке показаны соответствующие спектры отражённого излучения зонда. Красными ромбами показана временная зависимость

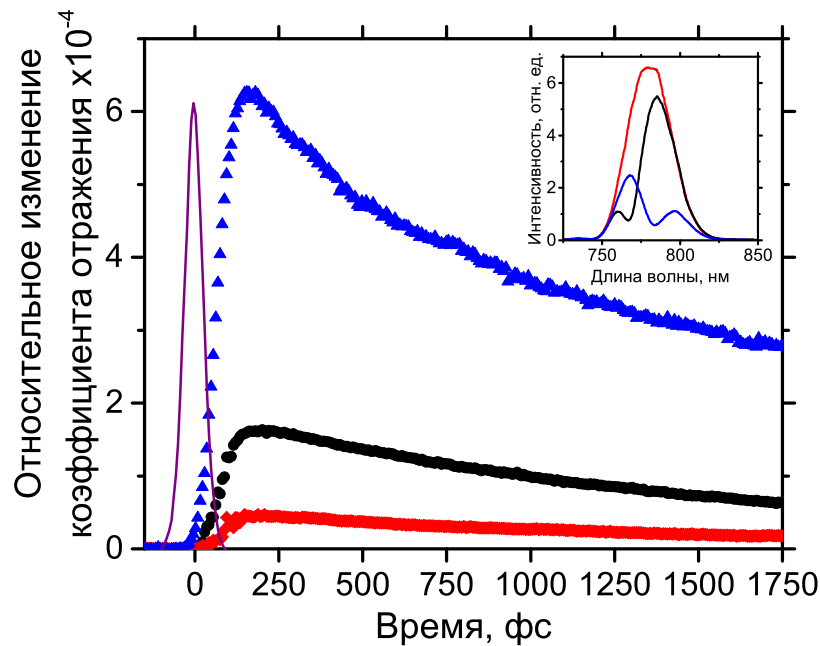


Рис. 2.19: Зависимость относительного изменения коэффициента отражения от времени задержки между импульсами зонда и накачки. Красные ромбы — золотая плёнка, синие треугольники и чёрные точки — образец серии 1. Фиолетовая кривая соответствует кросс-корреляционной функции импульсов зонда и накачки. На вставке показаны спектры импульса зонда, отраженного от образца.

$\Delta R/R$ для золотой плёнки, чёрными точками и синими треугольниками — за-

висимости для образца при различной величине перекрытия спектра лазера и резонансного контура ТПП. Видно, что величина $\Delta R/R$ при отражении от образца больше, чем при отражении от золота. Кроме того, в случае, когда резонансная длина волны возбуждения ТПП находится в окрестности центральной длины волны спектра импульса, наблюдается увеличение относительного изменения коэффициента отражения. Так, если для золотой плёнки максимальная измеренная величина $\Delta R/R$ составила $4 \cdot 10^{-5}$, то для образца серии 1 в случае максимального перекрытия спектра импульса и резонансного контура ТПП относительное изменение коэффициента отражения достигает $7 \cdot 10^{-4}$, что в 17 раз больше, чем для образца сравнения. Можно также отметить, что не наблюдается внутриимпульсной модуляции $\Delta R/R$ на временах порядка времени жизни ТПП.

Характер зависимости от времени является одинаковым для всех кривых, как можно видеть на рисунке 2.20, где зависимость относительного изменения коэффициента отражения приведена в логарифмическом масштабе по шкале ординат. В момент времени, соответствующий нулевой задержке между импуль-

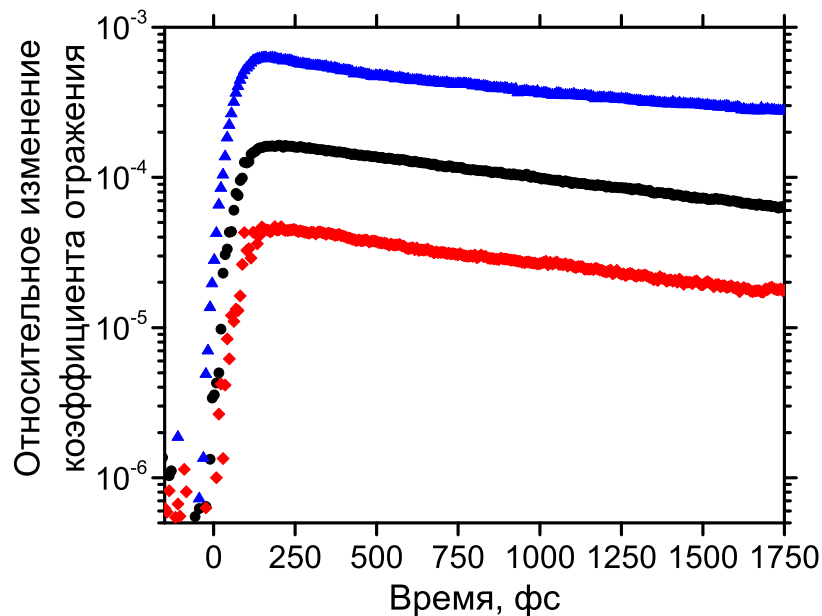


Рис. 2.20: Те же зависимости, что и на рисунке 2.19 в логарифмическом масштабе по шкале ординат.

сами, начинается резкий рост $\Delta R/R$, связанный с модуляцией диэлектрической

функции золота за счёт термализации части электронов выше энергии Ферми. Данный процесс занимает около 150 фс, после чего начинается релаксация «горячих» электронов к равновесной температуре за счёт столкновений друг с другом и кристаллической решёткой и, как следствие, уменьшение $\Delta R/R$. Данный процесс хорошо описывается на малых временах законом $\Delta R \propto \exp(-t/\tau)$ с постоянной релаксации τ равной примерно 1 пс. Измеренные зависимости относительного изменения коэффициента отражения от времени хорошо согласуются с представленными в литературе данными для тонких поликристаллических плёнок золота. Таким образом, можно сделать вывод, что возбуждение ТПП в образце ФК/металл не вносит вклада во временную зависимость $\Delta R/R$, а влияет лишь на абсолютные значения модуляции.

Ширина спектра сравнима с шириной резонансного контура ТПП, что может приводить к усреднению зависимостей $\Delta R/R$ по спектру. Для проведения спектроскопии относительного изменения коэффициента отражения импульс зонда, отражённый от образца, направлялся в монохроматор, а фотодиодом регистрировалось излучение только в окрестности фиксированной длины волны. Кроме того, в канал зонда мог быть установлен оптический прерыватель, частота которого использовалась как опорная для синхронного детектора, что позволяло измерять спектр коэффициента отражения образца. Таким образом была измерена зависимость $\Delta R/R$ от длины волны излучения зонда и временной задержки между импульсами зонда и накачки. Измеренная двумерная карта показана на рисунке 2.21, причем по горизонтальной оси отложена длина волны зондирующего излучения, по вертикальной оси отложена временная задержка между импульсами зонда и накачки, а относительное изменение коэффициента отражения показано цветом. При длинах волн излучения зонда от 766 до 775 нм коэффициент отражения структуры уменьшается в результате действия накачки, что соответствует отрицательным значениям $\Delta R/R$, а начиная от значения длины волны равного 775 нм растёт, что соответствует положительным значениям $\Delta R/R$. При этом характерные времена релаксации остаются одинаковыми для излучения на всех длинах волн. На рисунке 2.22

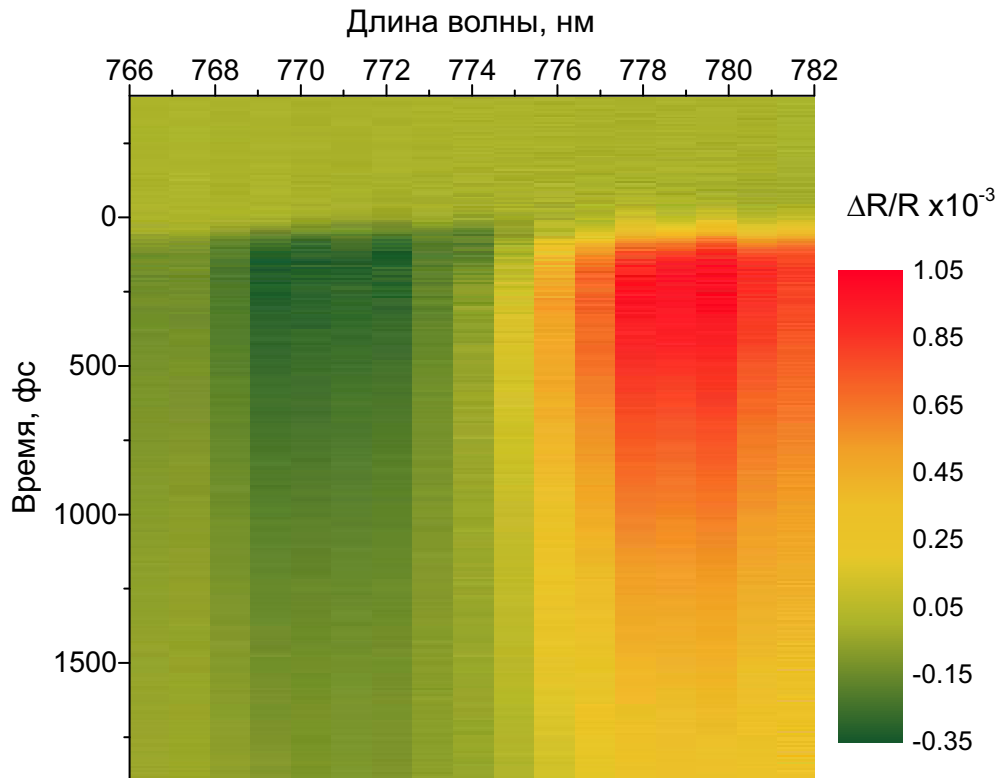


Рис. 2.21: Двумерная карта зависимости относительного изменения коэффициента отражения $\Delta R/R$ образца серии 1 от длины волны излучения зонда и временной задержки между импульсами зонда и накачки.

красной кривой показан спектр коэффициента отражения образца серии 1 для луча зонда, измеренный с помощью монохроматора. В спектре виден резонанс в окрестности длины волны 776 нм, соответствующий возбуждению таммовского плазмон-поляритона. Чёрными точками показан срез распределения, показанного на рисунке 2.21, при времени задержки равном 200 фс. Данная зависимость является немонотонной по длине волны и кроме того, как было указано выше, $\Delta R/R$ является отрицательным на длинах волн 766 – 775 нм и положительным на длинах волн 775 – 782 нм. Абсолютный минимум модуляции $\Delta R/R = -0.035\%$ достигается при длине волны равной 770 нм. Абсолютный максимум модуляции $\Delta R/R = 0.095\%$ достигается при длине волны равной 780 нм. Оранжевыми ромбами показана зависимость максимальной величины относительного изменения коэффициента отражения от длины волны для тонкой плёнки золота. Видно, что $\Delta R/R$ в золоте не зависит от длины волны в ис-

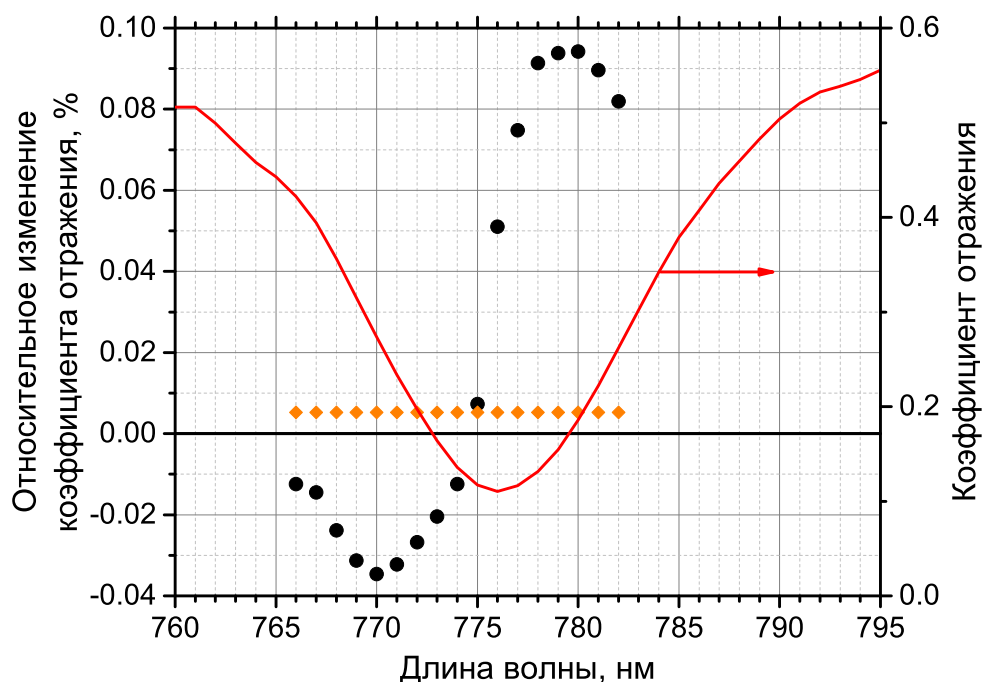


Рис. 2.22: Красная кривая — спектр коэффициента отражения образца серии 1 (правая шкала ординат). Чёрные точки — зависимость относительного изменения коэффициента отражения $\Delta R/R$ образца серии 1 от длины волны излучения зонда; оранжевые ромбы — зависимость $\Delta R/R$ золотой плёнки толщиной 30 нм от длины волны излучения зонда (левая шкала ординат).

следованном диапазоне, а абсолютное значение модуляции составляет 0.005%, что в 20 раз меньше, чем максимальное измеренное значение модуляции в образце ФК/металлическая плёнка.

Характер зависимости $\Delta R/R$ от длины волны излучения зонда в образце серии 1 может быть объяснён из соображений сдвига резонанса ТПП под действием накачки. Как было показано в работах [61, 62], облучение плёнки металла мощным лазерным излучением приводит к изменению действительной и мнимой частей диэлектрической постоянной металла $\epsilon_{\text{Me}} = \epsilon' + i\epsilon''$. Условия возбуждения ТПП существенно зависят от ϵ_{Me} , причём ϵ' определяет спектральное положение резонанса ТПП, а ϵ'' его ширину. Таким образом, при изменении ϵ_{Me} наблюдается спектральный сдвиг и изменение формы резонанса ТПП. На рисунке 2.23 чёрной кривой показан численно рассчитанный спектр коэффициента отражения образца серии 1 в невозмущённом случае, соответствующем

отрицательной задержке между импульсами накачки и зонда. Красной кривой

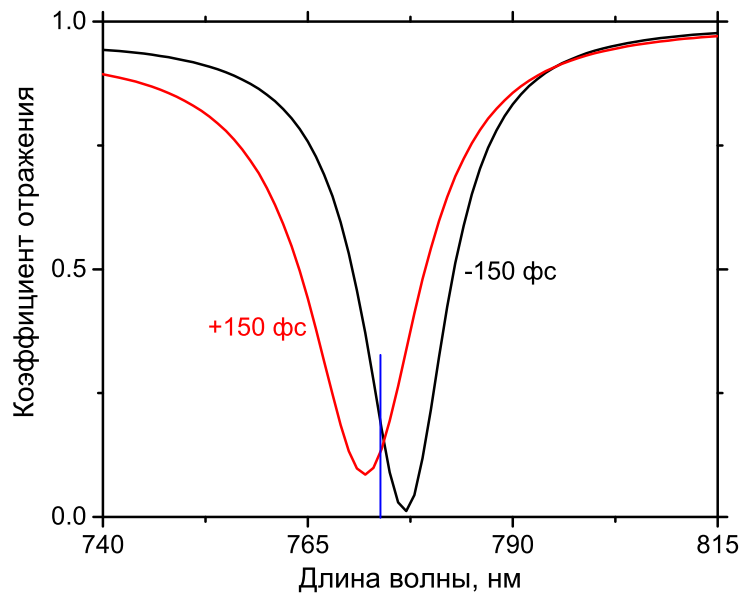


Рис. 2.23: Численно рассчитанные спектры коэффициента отражения образца в невозмущённом (-150 фс) и возмущённом (+150 фс) случаях. Величины сдвига и деформации резонанса ТПП увеличены для наглядности.

на том же рисунке показан спектр коэффициента отражения образца через 150 фс после взаимодействия накачки с образцом (для наглядности величины смещения и деформации резонанса существенно увеличены по сравнению с наблюдаемыми экспериментально). Можно отметить, что на коротковолновом склоне резонанса ТПП происходит уменьшение коэффициента отражения (отрицательные значения $\Delta R/R$), а на длинноволновом склоне — увеличение коэффициента отражения (положительные значения $\Delta R/R$). Вдали от резонанса $\Delta R/R$ выходит на постоянное значение не равное нулю и характерное для плёнки золота без фотонного кристалла.

Для корректного описания следующего эффекта важно отметить, что взаимодействие импульса накачки с образцом начинается не в момент времени, равный нулю, а примерно в момент времени, равный -50 фс. Вид зависимости $\Delta R/R$ от времени повторяет показанный на рисунке 2.19 практически на всех длинах волн с разницей в амплитудах и знаке модуляции. В то же время вблизи минимума резонанса ТПП наблюдается иной вид зависимости, показанный на

рисунке 2.24. Коэффициент отражения от образца серии 1 для излучения на

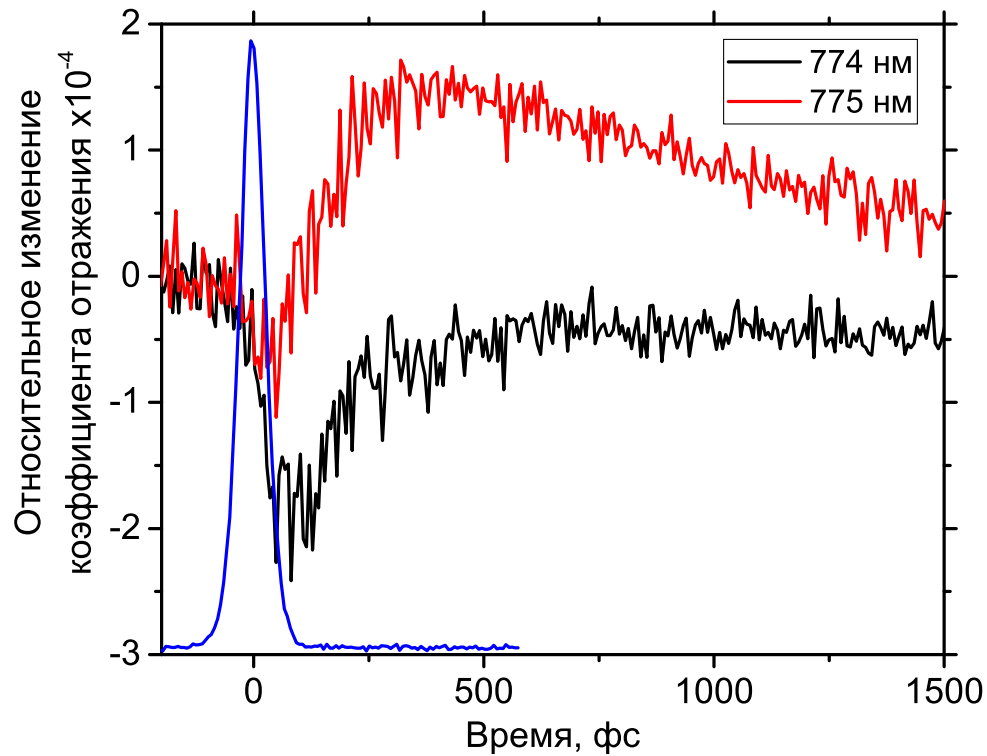


Рис. 2.24: Зависимость относительного изменения коэффициента отражения образца серии 1 от временной задержки между импульсами зонда и накачки. Чёрная кривая соответствует длине волны зонда равной 774 нм, красная кривая — длине волны равной 775 нм. Синей кривой показана кросс-корреляционная функция импульсов зонда и накачки.

длине волны 775 нм уменьшается на временах задержки от -25 фс до 50 фс, затем начинает расти на временах от 50 фс до 300 фс, а затем релаксирует по описанному выше закону к своему стационарному значению. Для излучения на длине волны 774 нм наблюдается такой же характер зависимости коэффициента отражения от времени с той лишь разницей, что модуляция $\Delta R/R$ всюду отрицательная. Сдвиг резонанса ТПП происходит из невозмущённого состояния за конечное время, которое определяется скоростью изменения ϵ_{Me} за счёт электрон-электронного взаимодействия. Характерное время нарастания диэлектрической проницаемости до максимального значения ϵ_{Me}^{max} составляет несколько сотен фемтосекунд. В течении этого времени ϵ_{Me} проходит монотонно все значения от невозмущённого ϵ_{Me}^0 до ϵ_{Me}^{max} , а спектр коэффициента отражения изме-

няет форму как показано на рисунке 2.23. Теперь рассмотрим поведение излучения с длиной волны $\lambda_0 = 774$ нм, отмеченной на рисунке 2.23 синей линией. В невозмущённом случае λ_0 соответствует коротковолновому склону резонанса ТПП и имеет коэффициент отражения $R = 0.15$. При сдвиге резонанса ТПП в коротковолновую область спектра $R(\lambda_0)$ начинает уменьшаться до тех пор, пока λ_0 не будет соответствовать центральной длине волны резонанса ТПП, имеющей минимальный коэффициент отражения. При дальнейшем сдвиге резонанса $R(\lambda_0)$ увеличивается пока не достигнет возмущенного значения, соответствующего длинноволновому склону резонанса. После того как вся энергия импульса накачки перекачана в электронную подсистему металла, начинается процесс её диссипации путём электрон-фононного взаимодействия, имеющего характерное время около 1 пс. Процесс диссипации энергии сопровождается обратным движением резонанса на более длинном масштабе времён и медленному возврату $R(\lambda_0)$ к равновесному значению.

Глава III

Генерация второй и третьей оптических гармоник в структурах фотонный кристалл-металл при возбуждении таммовских плазмон-поляритонов

Усиление нелинейно-оптических эффектов в наноструктурах может быть описано с точки зрения обобщённого закона Парселла, согласно которому интенсивность излучения оптической гармоники определяется величиной электромагнитного поля излучения накачки в соответствующей степени, а также плотностью фотонных состояний на частоте оптической гармоники. Возбуждение локализованных состояний электромагнитного поля, таких как поверхностные и локализованные плазмон-поляритоны, микрорезонаторные моды в фотонных кристаллах и др. приводит к увеличению локальных электромагнитных полей и, как следствие, к усилению нелинейно-оптических эффектов. Увеличение плотности фотонных состояний достигается в микро- и наноразмерных резонаторах, например, в фотонных кристаллах. В структурах специальной конструкции возможно одновременное выполнение условий локального усиления электромагнитного поля накачки в среде с оптической нелинейностью и увеличения плотности фотонных состояний на частоте оптической гармоники.

В наноструктурах, состоящих из centrosymmetric материалов, генерация объемной второй оптической гармоники запрещена в дипольном приближении. Единственными источниками данного излучения являются атомно-тонкие приповерхностные слои, в которых симметрия кристаллической решетки нарушается. Измерение интенсивности поверхностной второй оптической гармоники является важным инструментом исследования биологических объектов и зондирования скрытых границ раздела.

1. Усиление генерации второй оптической гармоники при возбуждении таммовского плазмон-поляритона в случае резонансной накачки

1.1. Спектроскопия интенсивности второй оптической гармоники в образцах серии 1

Для исследования усиления генерации второй гармоники при возбуждении таммовского плазмон-поляритона использовалась экспериментальная установка, схема которой приведена на рисунке 3.1. Источником излучения служил титан-

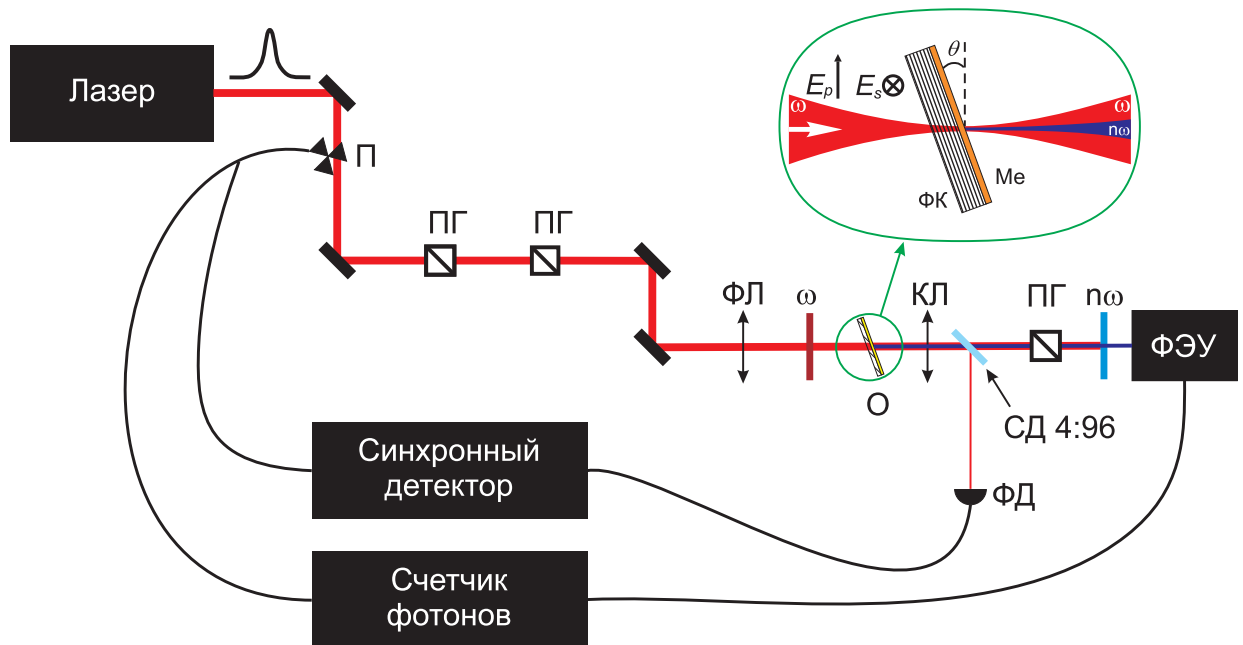


Рис. 3.1: Схема установки для исследования генерации второй гармоники в присутствии таммовских плазмон-поляритонов. П — прерыватель пучка; ПГ — призмы Глана, задающие мощность и поляризацию излучения, падающего на образец; ФЛ — фокусирующая линза; ω — фильтр, пропускающий излучение накачки, и отсекающий излучение многофотонной люминесценции элементов схемы; О — образец; СД — светоделительная пластина, пропускающая 96% излучения и отражающая 4%; КЛ — коллимирующая линза; $n\omega$ — фильтр, пропускающий излучение n -той оптической гармоники, и отсекающий излучение накачки; ФЭУ — фотоэлектронный умножитель, работающий в схеме счета фотонов; ФД — фотодиод.

сапфировый лазер Coherent Chameleon, генерирующий импульсы длительностью 130 фс с частотой повторения 80 МГц. Диапазон перестройки длины волны излучения составлял 680 – 1000 нм. Излучение проходило через прерыватель, задававший опорную частоту для синхронного детектора и счетчика фотонов. Две призмы Глана позволяли контролировать поляризацию излучения и его мощность. Далее излучение фокусировалось линзой в перетяжку диаметром 40 мкм на образце. При средней мощности излучения накачки превышающей 50 мВт происходило плавление слоя золота в области перетяжки пучка, поэтому в качестве рабочей была выбрана плотность мощности равная $1 \text{ ГВт} \cdot \text{см}^{-2}$. Линза была установлена на механизированном трансляторе, позволявшем с точностью до 0.5 мкм контролировать положение перетяжки пучка. После линзы находился светофильтр КС18, пропускающий излучение в диапазоне 680 – 2800 нм. Его использование позволяло отфильтровать излучение двухфотонной люминесценции оптических элементов схемы, а также внешнюю засветку в исследуемом диапазоне длин волн. После образца часть излучения накачки отводилась в канал линейной регистрации, позволявший измерять спектр пропускания образца. В основном канале излучение проходило через призму Глана, служившую анализатором, и коллимировалось в фотоэлектронный умножитель (ФЭУ), перед входным окном которого был установлен набор светофильтров BG39 общей толщиной 9 мм. Данные фильтры пропускают излучение на длине волны второй гармоники и полностью поглощают излучение накачки. Сигнал с ФЭУ поступал на стробируемый счетчик фотонов, подключенный к компьютеру. Образец был установлен на механизированном поворотном столе, позволявшем контролируемо и автоматизированно менять угол падения излучения. Анализатор был также установлен в механизированную оправу, позволявшую с высокой точностью автоматизированно изменять угол поворота оси анализатора. На вставке к рисунку 3.1 схематично показана геометрия падения излучения на образец и отмечены направления векторов напряженности электрического поля для *p*- и *s*-поляризаций. Для автоматизированного управления установкой и проведения измерений была создана программа в пакете LabView,

позволявшая контролировать углы поворота образца, анализатора, положение фокусирующей линзы, задавать длину волны излучения накачки. Кроме того, программа позволяла проводить автоматизированные измерения зависимости интенсивности ВГ от различных параметров.

Существует четыре комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ, а именно pp , ps , sp и ss , причём эффективность ГВГ в них определяется различными компонентами тензора квадратичной восприимчивости $\hat{\chi}_{ijk}^{(2)}$. Как было показано в Главе I (см. формулу (1.12)), в случае ГВГ в тонкой плёнке металла максимальное значение имеет компонента $\hat{\chi}_{zzz}^{(2)}$, определяющая нелинейно-оптический отклик в pp комбинации поляризаций, в то время как остальные ненулевые компоненты тензора меньше $\hat{\chi}_{zzz}^{(2)}$ на два порядка величины.

На рисунке 3.2 красной кривой показан спектр коэффициента пропускания образца серии 1 при угле падения 20° . Вся спектральная область, показанная на

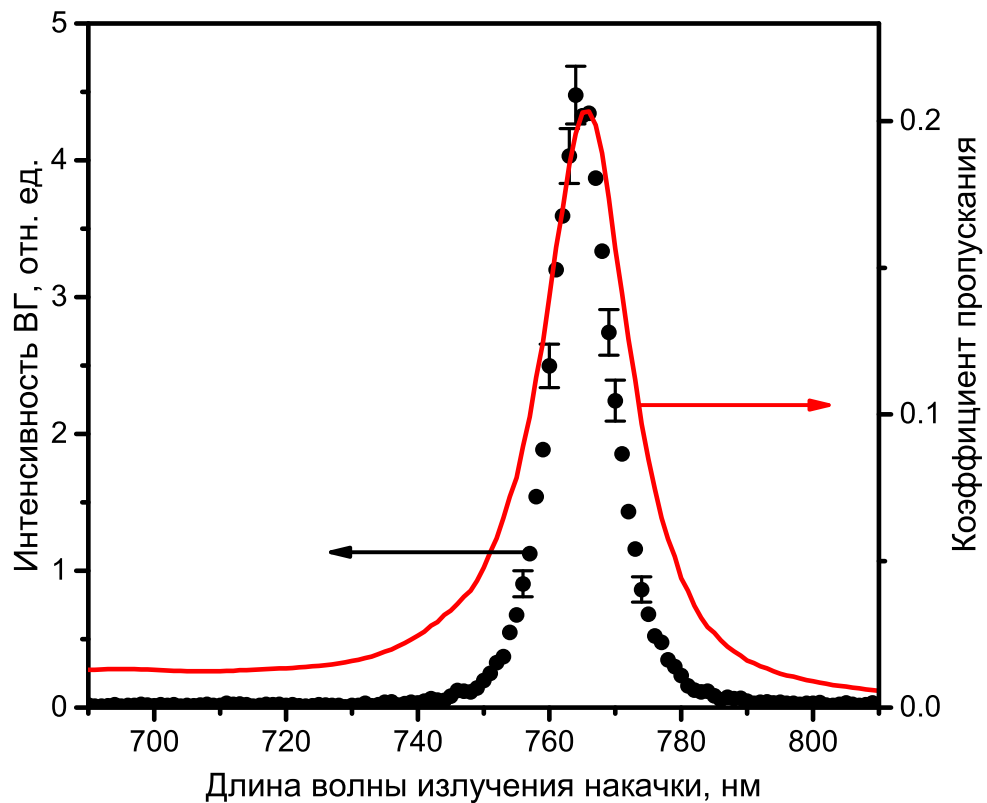


Рис. 3.2: Точки — экспериментальный спектр интенсивности второй гармоники в образце серии 1. Красная линия — спектр коэффициента пропускания образца.

графике, принадлежит фотонной запрещенной зоне фотонного кристалла, поэтому пропускание мало, однако в окрестности длины волны 768 нм наблюдается резкий пик, соответствующий возбуждению ТПП. Соответствующий спектр интенсивности второй гармоники, генерированной в образце при pp комбинации поляризаций излучения накачки и второй гармоники, показан черными точками. В окрестности резонанса ТПП интенсивность второй гармоники существенно возрастает по сравнению со значениями вдали от резонанса, причем коэффициент усиления по сравнению с фоном составляет 240. Измерения спектров интенсивности ВГ были также проведены отдельно для фотонного кристалла и металлической пленки, причем интенсивности накачки были увеличены в 30 раз для разрешения слабых нелинейно-оптических эффектов. Ни один из спектров не демонстрировал резонансных особенностей, однако характерные значения интенсивности ВГ от фотонного кристалла были на три порядка величины меньше, чем от золотой плёнки. Данный эксперимент подтвердил предположение о том, что нелинейность металлической пленки является определяющей для генерации ВГ в образце ФК/металл.

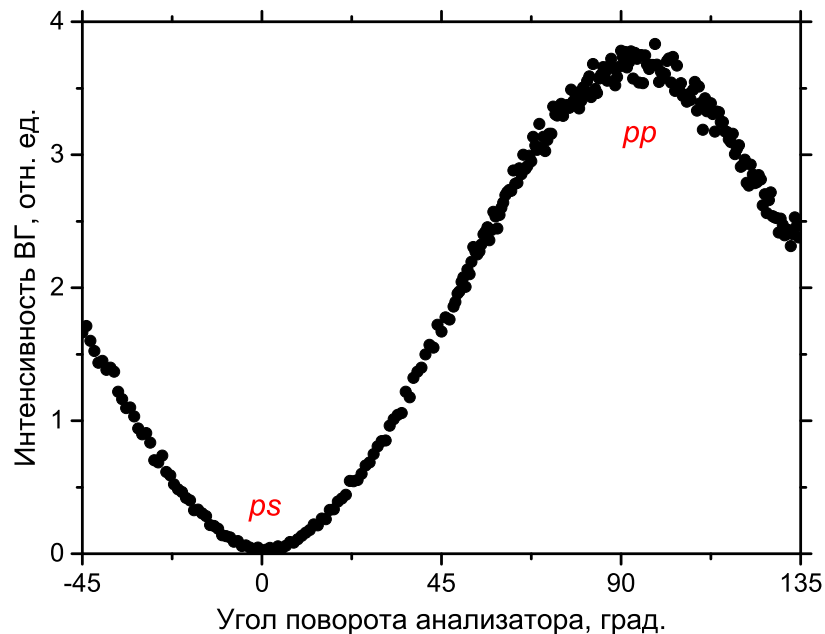


Рис. 3.3: Экспериментальная зависимость интенсивности ВГ на длине волны 768 нм при p -поляризованной накачке от угла поворота анализатора. 0° соответствует s -поляризованной ВГ, 90° соответствует p -поляризованной ВГ.

Для исследования поляризационной зависимости амплитуды резонанса была измерена зависимость интенсивности ВГ на длине волны 768 нм, соответствующей спектральному положению максимума резонанса, от угла поворота анализатора. Результаты измерений приведены на рисунке 3.3. Угол поворота анализатора 0° соответствует ps комбинации поляризаций накачки и ВГ, угол поворота 90° соответствует pp комбинации. Амплитуда резонанса при ps комбинации поляризаций примерно в 200 раз меньше соответствующей амплитуды при pp комбинации. Кроме того, были измерены спектры интенсивности ВГ для ps , sp и ss комбинаций, результаты спектроскопии приведены на рисунке 3.4. Для каждой из комбинаций в спектре интенсивности ВГ наблюдается локаль-

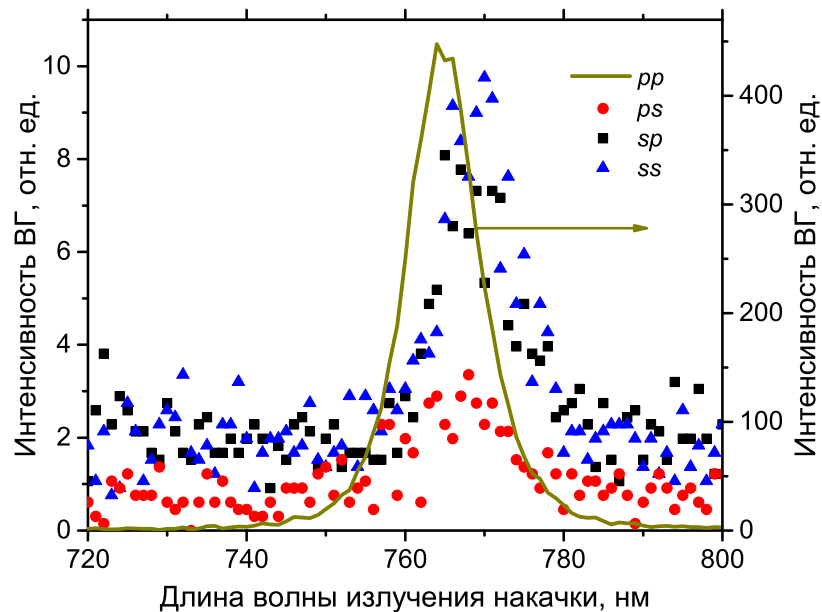


Рис. 3.4: Экспериментальные спектры интенсивности ВГ в образце ФК/металл. Красные точки — ps геометрия, черные квадраты — sp геометрия, синие треугольники — ss геометрия. Сплошной линией показан спектр интенсивности ВГ в pp геометрии.

ное увеличение интенсивности в окрестности резонанса ТПП, причем для s -поляризованной накачки эти максимумы сдвинуты в длинноволновую область спектра из-за поляризационного расщепления моды таммовского плазмона. Интенсивности пиков при всех комбинациях отличных от pp являются примерно одинаковыми, что позволяет говорить о том, что доминирующим фактором, влияющим на ГВГ, является гиперрэлееское рассеяние света [114], которое воз-

никает из-за шероховатостей поверхности пленки и является деполаризованным и изотропным.

Для исследования угловой зависимости величины усиления ГВГ в присутствии ТПП была измерена серия спектров интенсивности ВГ в образце ФК/металл для различных углов падения излучения накачки от 10° до 45° с шагом 5° . Результаты измерений для pp комбинации поляризаций накачки и ВГ приведены на рисунке 3.5. Можно отметить, что центральная длина волны резонанса ВГ

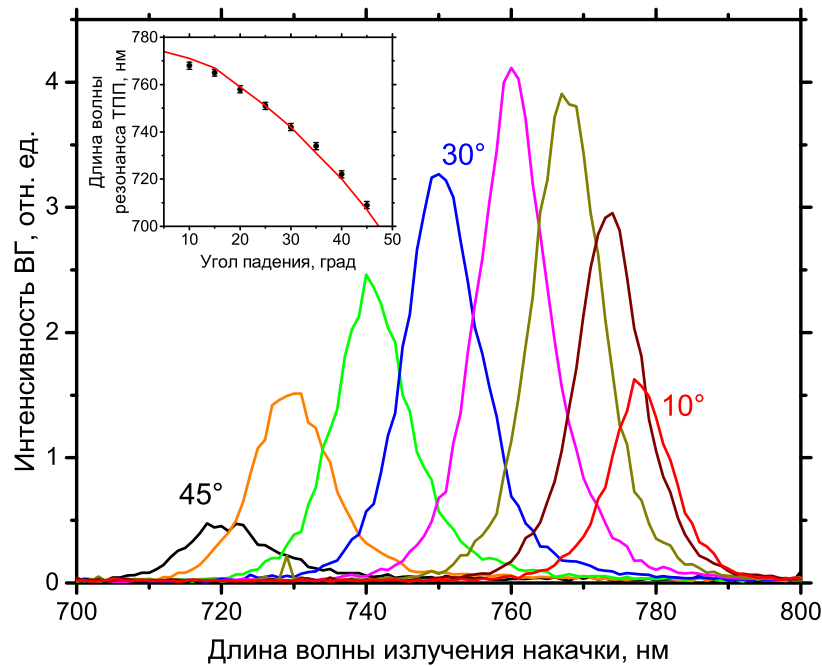


Рис. 3.5: Экспериментальные спектры интенсивности ВГ в образце ФК/металлическая пленка, измеренные в pp геометрии накачки и второй гармоники для различных углов падения θ излучения накачки на образец. Красная кривая соответствует $\theta = 10^\circ$, коричневая — $\theta = 15^\circ$, желтая — $\theta = 20^\circ$, розовая — $\theta = 25^\circ$, синяя — $\theta = 30^\circ$, зеленая — $\theta = 35^\circ$, оранжевая — $\theta = 40^\circ$, черная — $\theta = 45^\circ$.

смещается в коротковолновую область спектра при увеличении угла падения, что соответствует поведению резонанса таммовского плазмон-поляритона при увеличении угла падения. На вставке рисунка 3.5 точками показана зависимость длины волны максимума резонанса ВГ от угла падения излучения, а сплошной кривой показана дисперсионная кривая таммовского плазмона. Хо-

рошее совпадение данных зависимостей подтверждает то, что усиление ВГ связано с возбуждением ТПП. Кроме того, можно отметить немонотонность зависимости амплитуды резонанса ВГ от угла падения. Изначально малое значение амплитуды связано с тем, что при малых углах величина компоненты E_z электрического поля, нормальная к поверхности металла, мала; при увеличении угла падения она растет, и, как следствие, растет интенсивность ВГ, определяющейся компонентой $\hat{\chi}_{zzz}^{(2)}$ тензора квадратичной восприимчивости. При дальнейшем увеличении угла начинают сказываться эффекты, связанные с увеличением площади пятна накачки на образце. В этом случае плотность мощности накачки падает, что приводит к уменьшению интенсивности ВГ. Для устранения влияния аппаратной функции установки были проведены измерения спектров интенсивности ВГ от золотой пленки без ФК. В дальнейшем спектры ВГ образца были нормированы на спектры ВГ золота, что позволило построить частотно-угловой спектр коэффициента усиления ВГ, связанного исключительно с возбуждением ТПП. Данная нормированная зависимость приведена на рисунке 3.6. Можно отметить, что амплитуда коэффициента усиления ВГ умень-

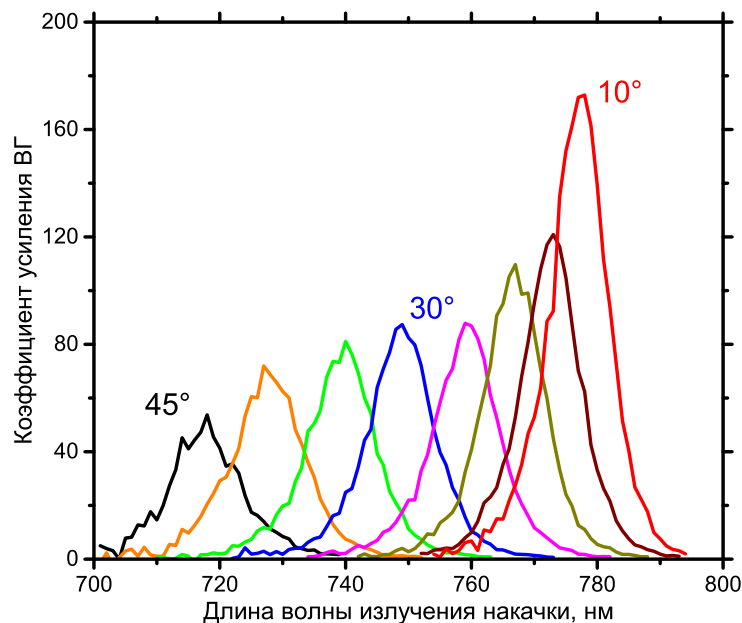


Рис. 3.6: Спектры коэффициента усиления ГВГ в образце серии 1 по сравнению с тонкой плёнкой металла. Экспериментальные условия соответствуют указанным в подписи к рисунку 3.5.

шается при увеличении угла, а ширина резонанса, напротив, увеличивается при увеличении угла падения излучения накачки. При падении излучения близком к нормальному интенсивности ВГ, генерированной в образце и в золотой плёнке, обращаются практически в ноль. Для того чтобы избежать неопределённости вида 0/0 при нормировке, измерения и дальнейшие расчёты коэффициента усиления производились для углов падения, превышающих 5° .

1.2. Измерение угловой зависимости эффективности генерации второй оптической гармоники в образцах серии 2

Отдельно были проведены измерения угловой зависимости эффективности ГВГ в образце серии 2 при фиксированной длине волны излучения накачки. Установка, использовавшаяся для данных измерений, аналогична показанной на рисунке 3.1. В качестве источника излучения использовался титан-сапфировый лазер Coherent Mira, генерирующий импульсы длительностью 50 фс энергией 3 нДж с частотой повторения 80 МГц. Центральная длина волны излучения составляла 780 нм. На рисунке 3.7 сплошной кривой показана зависимость коэффициента пропускания образца от угла падения p -поляризованного излучения накачки. При падении, близком к нормальному, пропускание образца мало, поскольку длина волны излучения накачки лежит в ФЗЗ ФК. В образцах серии 2 резонансная длина волны таммовского плазмон-поляритона при нормальном падении излучения составляет 820 нм, а при увеличении угла падения она смещается в коротковолновую область спектра. При углах падения около 33° пропускание образца существенно увеличивается из-за возбуждения ТПП. При дальнейшем увеличении угла падения излучения коэффициент пропускания падает, а при углах больше 50° вновь растёт, что соответствует краю фотонной запрещённой зоны ФК.

Точками на рисунке 3.7 показана зависимость интенсивности второй оптической гармоники от угла падения излучения накачки при pp -комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ. Вне резонанса ТПП интенсивность ВГ мала, однако в окрестностях угла падения 33° она резонансным образом увеличивает-

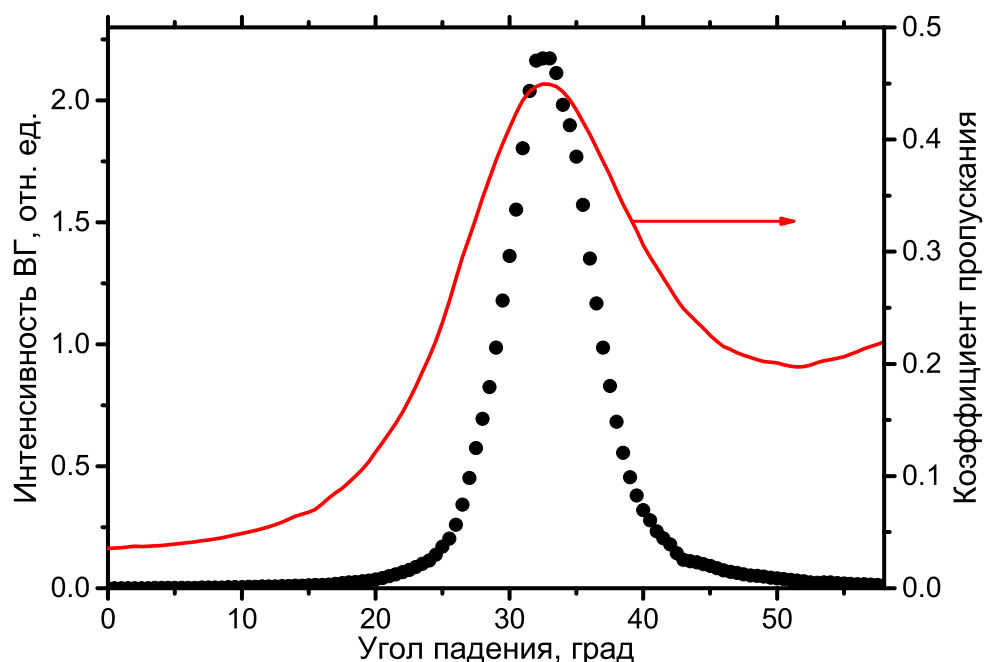


Рис. 3.7: Точки: Зависимость интенсивности ВГ в образце серии 2, измеренная в *pp*-комбинации поляризаций излучения накачки и второй гармоники при длине волны излучения накачки 780 нм от угла падения излучения. Сплошная кривая: Угловая зависимость коэффициента пропускания образца серии 2.

ся, достигая максимума в точке, соответствующей максимальному перекрытию спектров излучения накачки и ТПП. Ошибка измерения интенсивности ВГ по порядку величины меньше размера точки. Максимальное измеренное значение интенсивности ВГ, генерированной в образце серии 2, превосходит фон на четыре порядка величины, а интенсивность ВГ, генерированной в пленке серебра той же толщины — на два порядка величины. На рисунке 3.8 точками приведена зависимость интенсивности ВГ в максимуме резонанса от мощности излучения накачки, а линией показана аппроксимация степенной функцией вида $y = ax^b$. Показатель степени функции, реализующей наилучшую аппроксимацию, составляет 1.96 ± 0.05 , что соответствует квадратичному закону с точностью до ошибки.

Приемником излучения служил модуль Hamamatsu H10682-210, содержащий фотоэлектронный умножитель, работающий в схеме счета фотонов. Зная характеристики модуля, такие как чувствительность и коэффициент умноже-

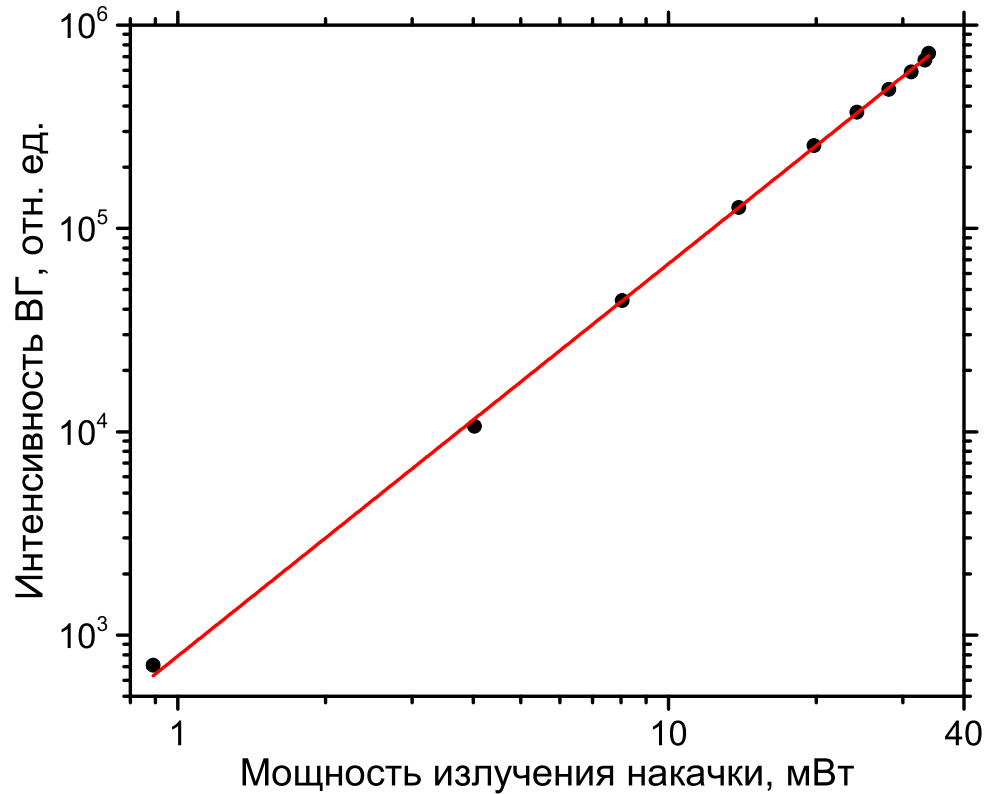


Рис. 3.8: Точки: Зависимость интенсивности ВГ в образце серии 2, измеренная в *pp*-комбинации поляризаций излучения накачки и второй гармоники при длине волны излучения накачки 780 нм, от мощности излучения накачки (показана в двойном логарифмическом масштабе). Линия: Аппроксимация функцией вида $y = ax^b$ со значениями параметров $a = 790 \pm 70$, $b = 1.96 \pm 0.05$.

ния, можно определить мощность второй оптической гармоники, генерированной в образце, исходя из количества отсчетов, измеренного системой регистрации. Кроме того, необходимо учесть поглощение ВГ в фильтрах и отражение от оптических элементов, расположенных между образцом и приемником излучения. Согласно спецификации чувствительность ФЭУ на длине волны 390 нм составляет $6.1 \cdot 10^5$ Гц·пВт⁻¹. Коэффициент пропускания фильтра BG39 толщиной 1 мм равен 0.845 на длине волны 390 нм и $5.1 \cdot 10^{-5}$ на длине волны 780 нм, а коэффициент отражения на границе раздела воздух-плавленый кварц равен 0.035. Таким образом была рассчитана мощность ВГ непосредственно после образца. Нормированная эффективность ГВГ η_2 была определена как отношение мощности ВГ $P_{2\omega}$ к квадрату мощности излучения накачки P_ω . Данное опре-

деление позволяет сравнивать эффективности ГВГ, измеренные в разных образцах при различных мощностях накачки. В описанном случае максимальная измеренная нормированная эффективность ГВГ в образце ФК/металл составила $2 \cdot 10^{-9} \text{ Вт}^{-1}$.

2. Усиление генерации второй оптической гармоники при возбуждении таммовского плазмон-поляритона в случае резонансной второй гармоники

Как было сказано ранее, эффективность генерации спонтанного и вынужденного излучения в структуре зависит от двух факторов: напряженности электрического поля волны накачки в активной области и плотности фотонных состояний на частоте излучения. Увеличение плотности конечных состояний достигается различными способами, в частности, в резонаторах, в фотонных кристаллах на краю фотонной запрещенной зоны и др. Возбуждение таммовского плазмон-поляритона также приводит к увеличению плотности фотонных состояний на частоте резонанса. Таким образом, ожидается, что ГВГ будет усилена, если ее частота совпадает с резонансной частотой возбуждения ТПП.

Для измерения угловых зависимостей интенсивности второй оптической гармоники в случае резонансной ВГ использовалась установка, аналогичная показанной на рисунке 3.1. Источником излучения в данном случае служил эрбиевый волоконный лазер Авеста ЕФОА-Т/Р, генерирующий импульсы длительностью 200 фс, энергией 2.5 нДж, с центральной длиной волны спектра 1560 нм. Для отсека многофотонной люминесценции использовался светофильтр ИКС5, а для подавления излучения накачки перед ФЭУ — комбинация светофильтров KG1 и BG39. Длина волны излучения ВГ равна 780 нм, что соответствует длине волны возбуждения ТПП в образце серии 2 при угле падения излучения около 35° . Длина волны излучения накачки лежит в области разрешенной зоны ФК, таким образом, не возникает локализации электромагнитного поля внутри образца. Приемником излучения служил модуль Hamamatsu H9307-03, работающий в пропорциональном режиме.

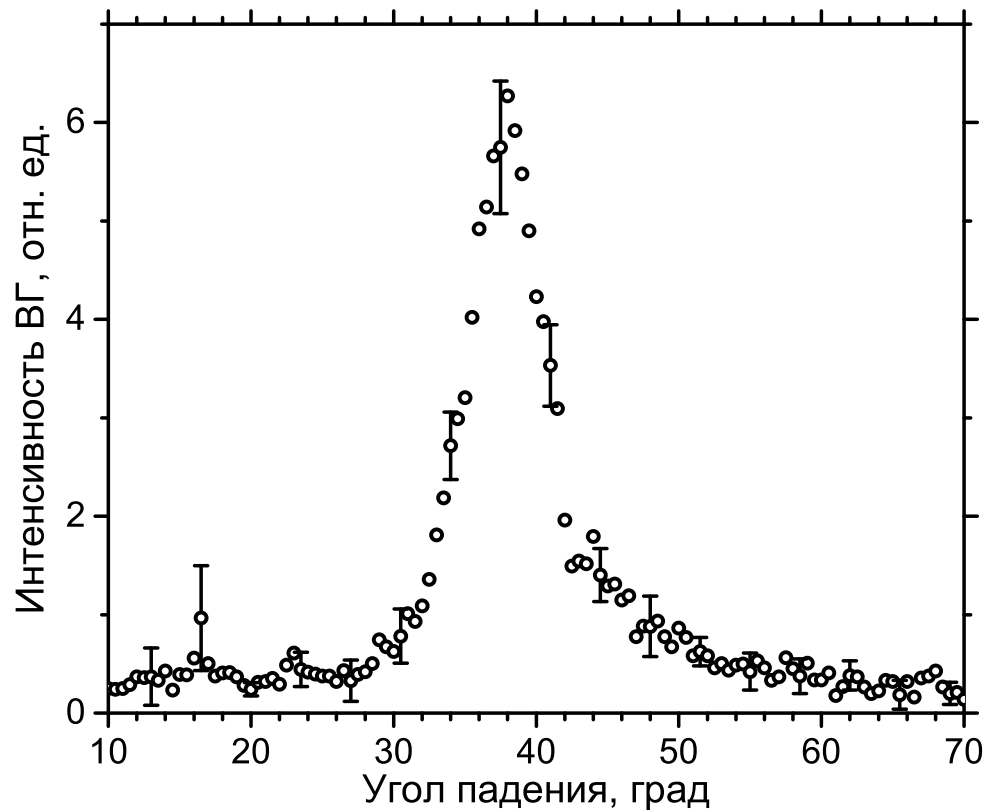


Рис. 3.9: Зависимость интенсивности ВГ в образце серии 2, измеренная в *pp*-комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ при длине волны излучения накачки 1560 нм, от угла падения излучения на образец. Характерный уровень фонового сигнала составляет 0.3 отн. ед.

На рисунке 3.9 показана зависимость интенсивности второй оптической гармоники, генерированной в образце серии 2 в *pp* комбинации поляризаций в геометрии пропускания, от угла падения излучения накачки. При малых углах падения излучения сигнал с ФЭУ практически не отличается по величине от фонового сигнала, измеренного при выключенном лазере. При увеличении угла падения излучения сигнал начинает расти и достигает максимума при угле падения 38° , что соответствует условиям возбуждения ТПП на частоте второй гармоники. Несовпадение углов, при которых наблюдается резонанс ГВГ в данном и описанном выше случае, может быть объяснено исходя из закона Снеллиуса. Излучение ВГ из-за дисперсии материалов, составляющих образец, распространяется в нем под меньшим углом по сравнению с излучением накачки. Поскольку необходимым условием резонанса интенсивности ВГ является

перекрывание спектров излучения ВГ и ТПП, пик ГВГ наблюдается при угле распространения излучения длиной волны 780 нм равном 33° . Для выполнения данного условия угол падения и распространения излучения накачки должен быть больше 33° , что и наблюдается на экспериментальной зависимости. Измерения зависимости интенсивности ВГ от угла падения излучения на образец были проведены также для комбинаций поляризаций излучения накачки и ВГ, отличных от pp , однако в этих случаях резонансных особенностей не наблюдалось, и сигнал по порядку величины был равен фоновому. На рисунке 3.10 показана зависимость интенсивности ВГ в максимуме резонанса при угле падения 38° от мощности излучения накачки в двойном логарифмическом масштабе. Кроме того, показана линия наилучшей аппроксимации зависимости функцией вида $y = ax^b$. Параметры функции аппроксимации были определены как $a = 0.02 \pm 0.01$ и $b = 2.30 \pm 0.32$ соответственно. Учитывая большую величину погрешности измерения интенсивности пика при малых мощностях накачки, данный закон можно считать квадратичным, что подтверждает факт регистрации второй оптической гармоники.

Таким же образом, как и в предыдущем случае, зная характеристики фотоприемного модуля, можно рассчитать интенсивность второй оптической гармоники, генерированной в образце в случае резонансной ВГ. Чувствительность ФЭУ на длине волны 780 нм составляет $0.3 \text{ В} \cdot \text{нВт}^{-1}$; коэффициент пропускания светофильтра Schott KG1 толщиной 2 мм, использовавшегося для фильтрации излучения ВГ, составляет 0.366 на длине волны 780 нм и 0.02 на длине волны 1560 нм; коэффициент отражения излучения второй гармоники на границе раздела воздух-плавленый кварц равен 0.034. Рассчитанная пиковая эффективность генерации ВГ составила $5 \cdot 10^{-11} \text{ Вт}^{-1}$, что в 40 раз меньше, чем в случае резонансной накачки. Следует отметить, что в случае резонансной ВГ не возникает локализации электромагнитного поля в металлическом слое, в то время как в случае резонансной накачки данный эффект приводит к плавлению металлической пленки при относительно малой плотности мощности излучения, превышающей $5 \text{ ГВт} \cdot \text{см}^{-2}$.

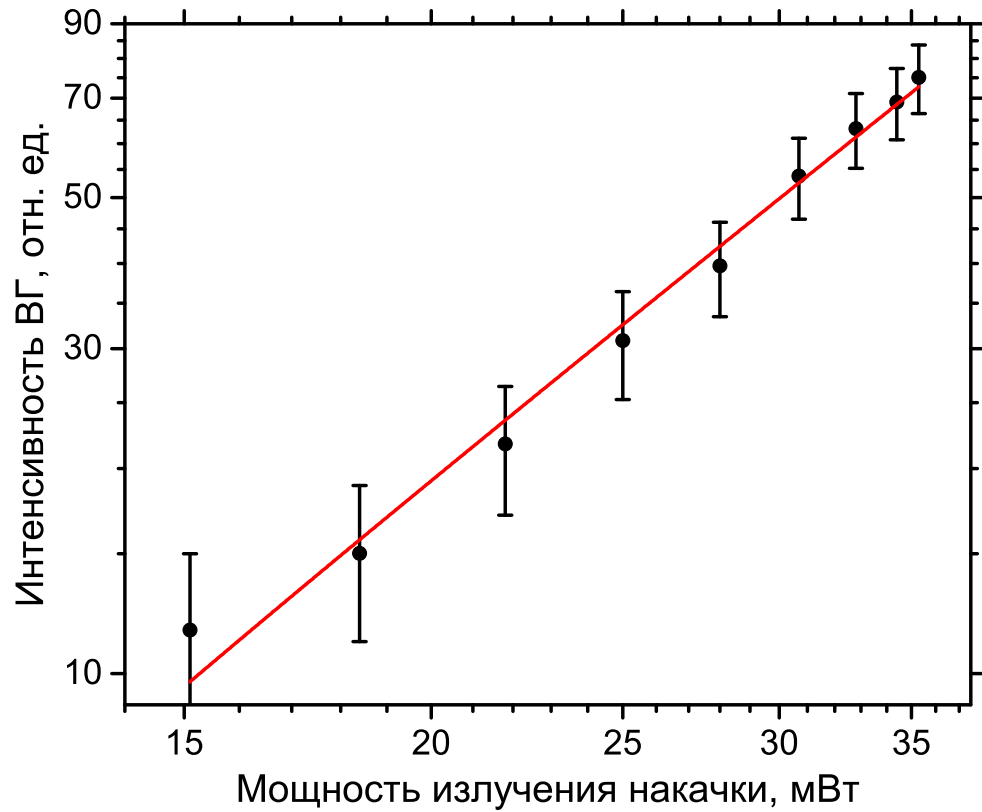


Рис. 3.10: Точки: Зависимость интенсивности ВГ в образце серии 2, измеренная в *pp*-комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ при длине волны излучения накачки 1560 нм, от мощности излучения накачки (показана в двойном логарифмическом масштабе). Линия: Аппроксимация функцией вида $y = ax^b$ со значениями параметров $a = 0.02 \pm 0.01$, $b = 2.30 \pm 0.32$.

3. Усиление генерации третьей оптической гармоники при возбуждении таммовских плазмон-поляритонов в случае двойного резонанса накачки и третьей гармоники

Случаем двойного резонанса будем называть ситуацию, когда частота излучения накачки равна частоте фундаментального ТПП, а частота n -той оптической гармоники равна частоте ТПП порядка n . Резонансы ТПП проявляются во всех фотонных запрещенных зонах образца ФК/металл, однако появление кратных ФЗЗ зависит от геометрии образца. Так, для ФК, состоящего из пар строго четвертьволновых слоев (для которых выполнено условие $n_1 d_1 = n_2 d_2 = \lambda_B/4$, где λ_B — центральная длина волны фундаментальной запрещенной зоны) наблю-

даются только нечетные ФЗЗ, центральные частоты которых лежат в окрестностях утроенной и т.д. центральной частоты фундаментальной ФЗЗ соответственно. В случае, если хотя бы для одной пары слоев условие $n_i d_i = \lambda_B/4$ не выполняется, возникают и четные ФЗЗ, центральные частоты которых лежат в окрестностях центральной частоты фундаментальной ФЗЗ, умноженной на 2, 4, 6 и т.д. В то же время, при небольшой отстройке толщин от четвертьволновых, чётные ФЗЗ выражены слабо. В общем случае, из-за дисперсии материалов, составляющих ФК, центральные частоты ФЗЗ высших порядков не равны в точности произведению центральной частоты фундаментальной ФЗЗ на натуральное число. То же верно для частот краев ФЗЗ и для частот резонансов ТПП. Однако путём использования специальной геометрии структуры, описанной в [Главе II](#), можно добиться того, чтобы частота таммовского плазмона высшего порядка была кратна частоте фундаментального таммовского плазмона при единственном угле падения излучения на структуру.

Если описанные выше условия выполнены, процесс генерации оптической гармоники оказывается усиленным за счет двух процессов. С одной стороны, электромагнитное поле излучения накачки оказывается локализованным в образце в металлической пленке и нескольких слоях диэлектрика, примыкающих к ней, за счет возбуждения ТПП. С другой стороны, возбуждение ТПП высшего порядка приводит к увеличению плотности фотонных состояний на частоте оптической гармоники, что сказывается на эффективности её генерации. Поскольку низшим кратным резонансом ТПП является резонанс третьего порядка, возбуждающийся на утроенной частоте, для исследования усиления генерации оптических гармоник в случае двойного резонанса была создана установка, реализующая детектирование третьей оптической гармоники (ТГ), генерируемой в образце серии 3. В качестве источника излучения использовался эрбиевый волоконный лазер Авеста EFOA-T/P, генерирующий импульсы длительностью 200 фс, энергией 2.5 нДж, с центральной длиной волны спектра 1560 нм. Приемником излучения служил модуль Hamamatsu H10682-210, содержащий фотоэлектронный умножитель, работающий в схеме счета фотонов.

Излучение накачки после образца отсекалось фильтрами Schott KG1 и BG39, чьи коэффициенты пропускания были равны $1.5 \cdot 10^{-2}$ и 0.262 на длине волны 1560 нм и 0.936 и 0.967 на длине волны 520 нм соответственно. Одновременно с регистрацией интенсивности ТГ измерялся коэффициент пропускания образца с помощью InGaAs фотодиода.

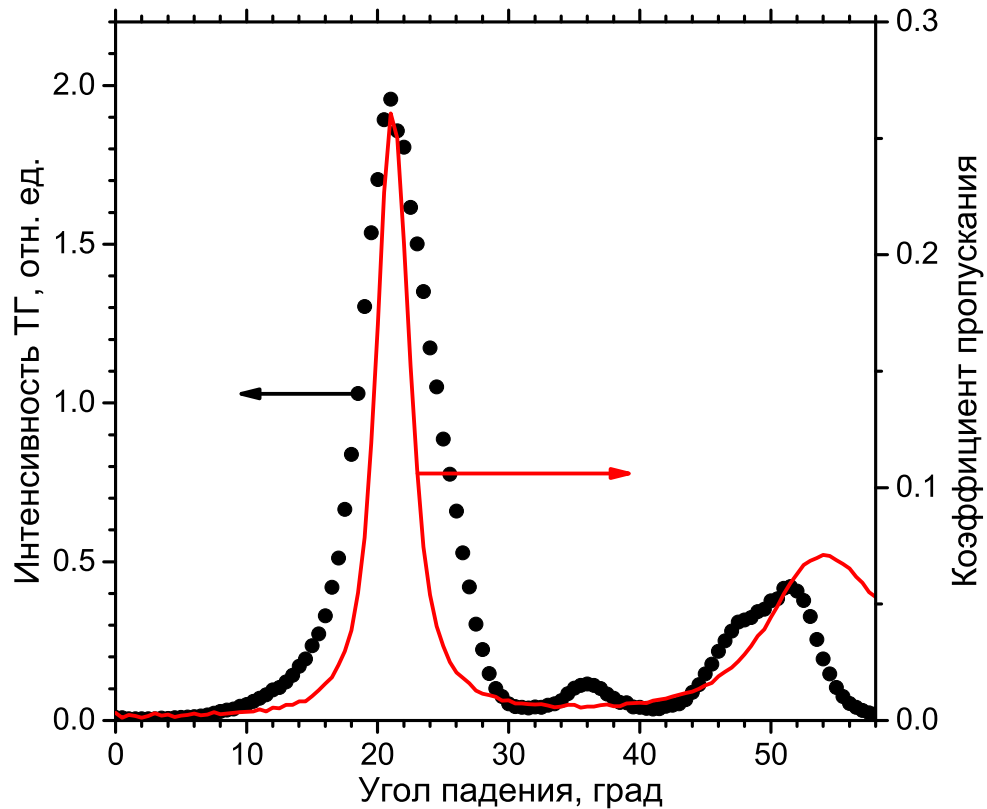


Рис. 3.11: Точки: Зависимость интенсивности ТГ, генерированной в образце серии 3 в геометрии пропускания при pp комбинации поляризаций излучения накачки и третьей гармоники, от угла падения излучения накачки. Сплошная кривая: Зависимость коэффициента пропускания образца от угла падения излучения с длиной волны 1560 нм.

На рисунке 3.11 сплошной красной кривой показана зависимость коэффициента пропускания образца серии 3 от угла падения p -поляризованного излучения с длиной волны 1560 нм. В зависимости можно выделить две резонансные особенности в окрестности углов 21° и 55° . Первая из них связана с возбуждением ТПП, а вторая — с увеличением пропускания вблизи края ФЗЗ ФК. В обоих случаях коэффициент пропускания образца увеличивается от 0.01 вне

резонансов до значений 0.26 и 0.07 вблизи резонанса ТПП и вблизи края ФЗЗ соответственно. Зависимость интенсивности ТГ от угла падения излучения накачки на структуру показана точками, причем ошибки измерения не превосходят размера точек. В ней наблюдаются три особенности вблизи углов 21° , 36° и 52° . Увеличение интенсивности ТГ при углах около 52° связано с относительно равномерной по слоям локализацией излучения накачки в ФК на длинах волн вблизи края фундаментальной ФЗЗ ФК. Небольшой пик в районе 36° соответствует случаю резонансной ТГ: при данном угле падения, на частоте ТГ возбуждается волноводная мода, которая приводит к увеличению плотности фотонных состояний. В результате, даже в отсутствии локализации поля накачки в слоях с нелинейностью, наблюдается усиление генерации третьей гармоники (ГТГ). Пик при угле падения 21° связан с возбуждением таммовских плазмон-поляритонов и является результатом двух процессов: локализации электромагнитного поля излучения накачки в слоях ФК и увеличения плотности фотонных состояний на частоте ТГ. Интенсивность пика ТГ при угле падения 21° превосходит фоновую интенсивность ТГ вдали от резонансов на три порядка величины. Кроме того, интенсивность пика ТГ, соответствующего возбуждению ТПП в 5 раз больше интенсивности пика, связанного с краем ФЗЗ ФК. Можно отметить, что ширина резонанса интенсивности ТГ больше ширины резонанса коэффициента пропускания. Данный эффект объясняется большой шириной спектра лазера накачки, которая составляет 45 нм, и связан с тем, что различные частотные компоненты излучения накачки оказываются в резонансе с ТПП при разных углах падения излучения на образец.

Также были измерены угловые зависимости интенсивности ТГ при различных комбинациях поляризаций излучения накачки и ТГ. Результаты показаны на рисунке 3.12 черными квадратами для *ss* комбинации, красными точками — для *sr* комбинации, зелеными треугольниками, направленными вверх — для *ps* комбинации и синими треугольниками, направленными вниз — для *pr* комбинации в логарифмическом масштабе по оси ординат. Зависимости интенсивности ТГ, измеренные в *ps* и *sr* комбинациях, не проявляют резонансных осо-

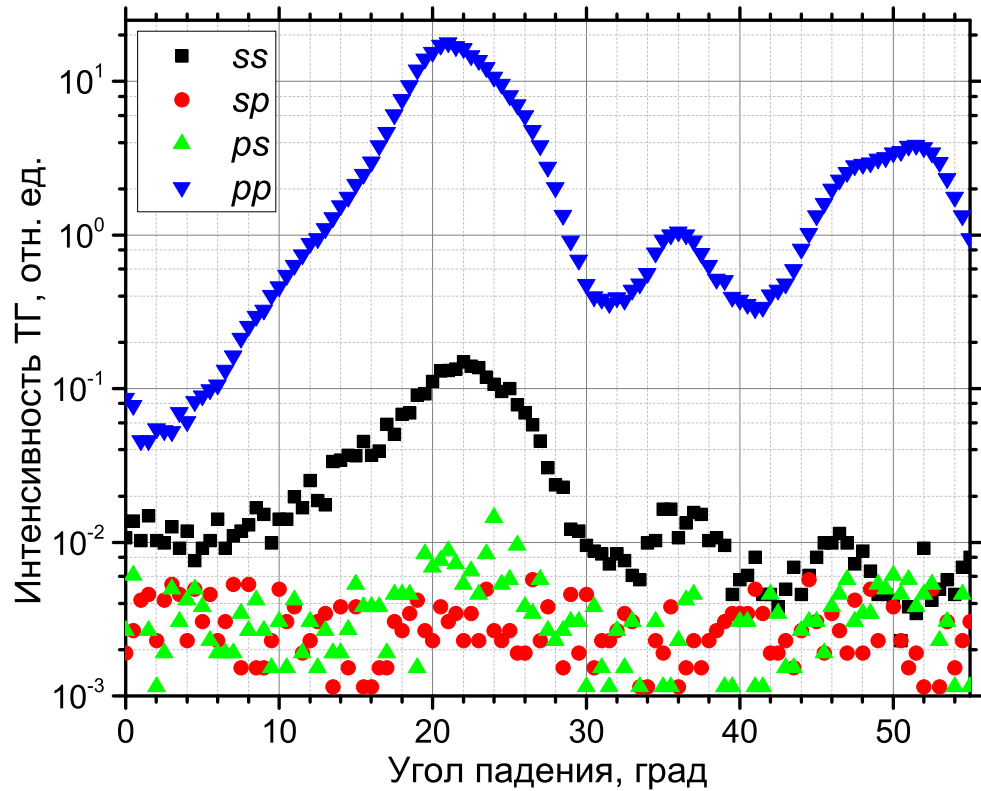


Рис. 3.12: Зависимость интенсивности ТГ, генерированной в образце серии 3, от угла падения излучения накачки, показанная в логарифмическом масштабе по оси ординат при различных комбинациях поляризаций излучения накачки и ТГ. Черные квадраты — ss , красные точки — sp , зеленые треугольники, направленные вверх — ps , синие треугольники, направленные вниз — pp .

бенностей, а уровень сигнала находится на уровне фона, который составляет $3 \cdot 10^{-3}$ отн. ед. Интенсивность ТГ, генерированной в ss комбинации, превосходит фон в среднем на порядок величины, поскольку данная комбинация является разрешенной в случае генерации третьей гармоники. В угловой зависимости интенсивности можно выделить три пика в окрестностях углов 22° , 36° и 47° , которые соответствуют механизмам усиления, описанным в предыдущем абзаце. Можно отметить, что угловая ширина резонанса ТГ, соответствующая краю ФЗЗ ФК, меньше в случае s -поляризованной накачки, поскольку фотонный кристалл является более добротной структурой для s -поляризованного излучения, как было описано в [Главе II](#). Кроме того, угловое положение максимума пика ТГ, связанного с возбуждением ТПП, при ss комбинации отличается на

1° от положения пика при pp комбинации, что связано с поляризационным расщеплением моды ТПП, описанным в Главе II. Различие в абсолютной величине интенсивности ТГ, генерированной в pp и ss комбинациях, объясняется прежде всего тем, что вклад в ГТГ вносится различными компонентами тензора кубичной нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}_{ijkl}^{(3)}$.

Зависимость интенсивности ТГ от мощности накачки, измеренная при угле падения излучения 21° в pp комбинации поляризаций, показана на рисунке 3.13 в двойном логарифмическом масштабе. Зависимость хорошо аппроксими-

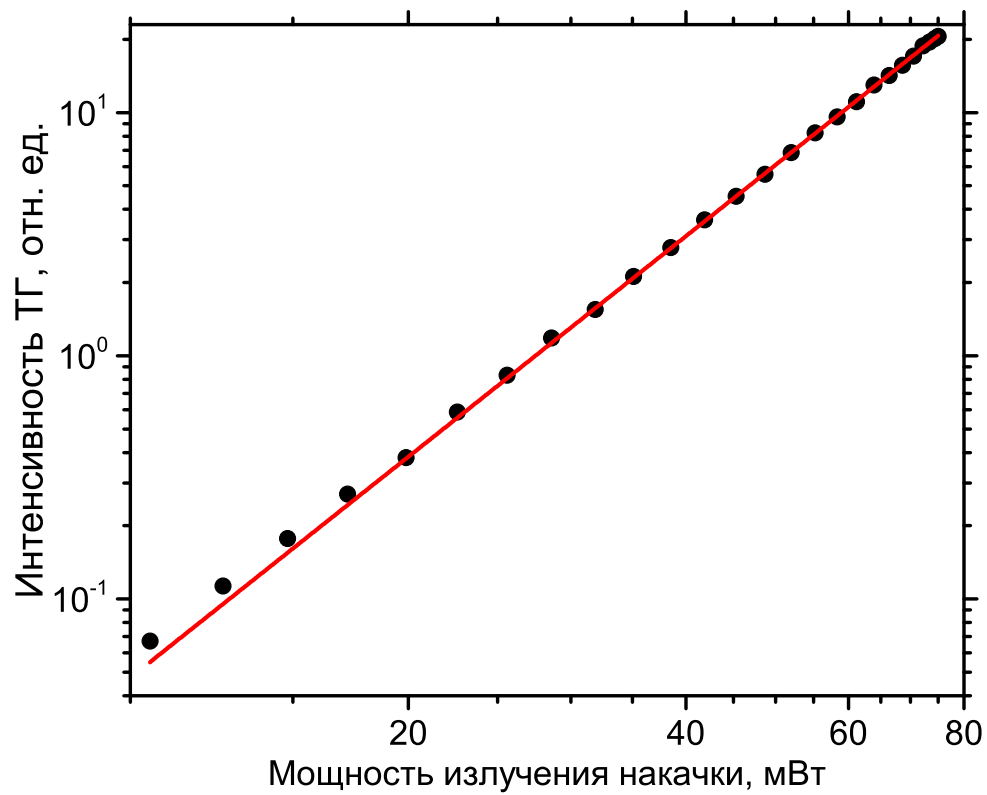


Рис. 3.13: Точки: Зависимость интенсивности третьей оптической гармоники, генерированной в образце серии 3 в pp комбинации поляризаций излучения накачки и третьей гармоники и при угле падения 21° от мощности излучения накачки (показана в двойном логарифмическом масштабе). Линия: Аппроксимация функцией вида $y = ax^b$ со значениями параметров $a = 0.05 \pm 0.01$, $b = 3.02 \pm 0.02$.

мируется функцией вида $y = ax^b$ со следующими значениями коэффициентов: $a = 0.05 \pm 0.01$, $b = 3.02 \pm 0.02$. Кубичный характер зависимости подтверждает то, что измеренная величина является интенсивностью ТГ $I_{3\omega}$, которая связана

с мощностью накачки P_ω законом вида $I_{3\omega} \propto P_\omega^3$.

В зависимости от ориентации образца относительно падающего излучения наблюдается разный характер угловой зависимости интенсивности ТГ, показанный на рисунке 3.14. Черными ромбами показана угловая зависимость ТГ, соот-

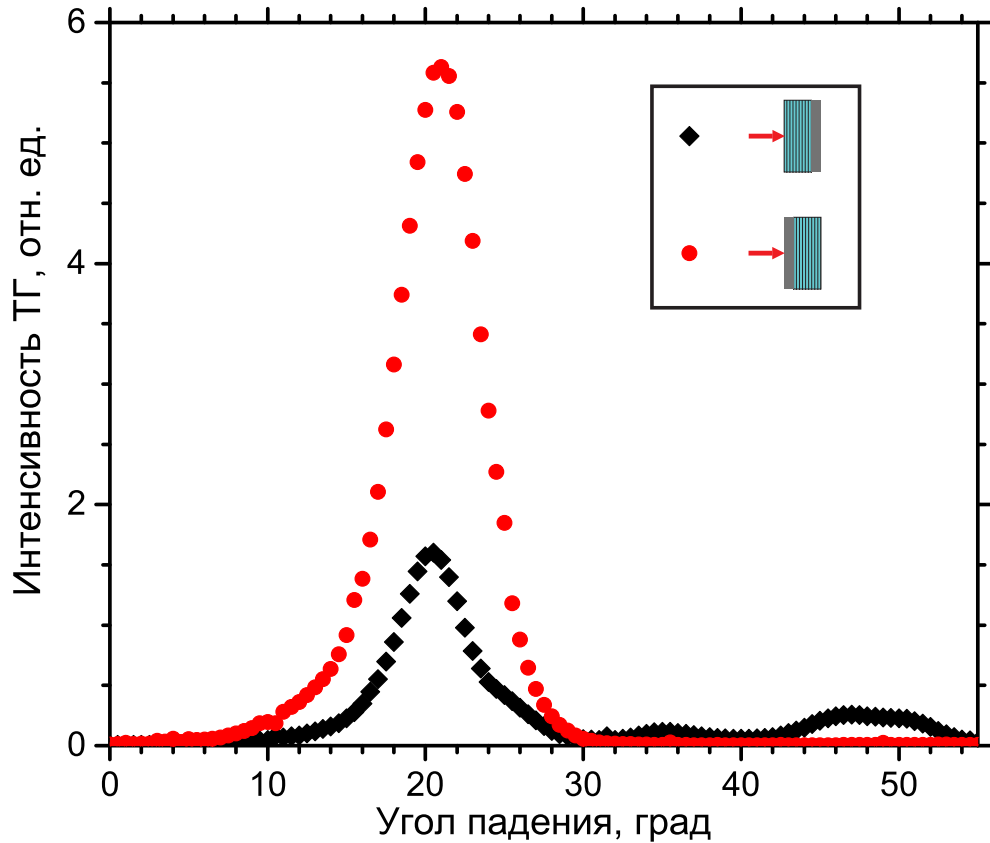


Рис. 3.14: Зависимость интенсивности ТГ, генерированной в образце серии 3 в pp комбинации поляризаций излучения накачки и ТГ, от угла падения излучения накачки. Черные ромбы соответствуют случаю падения излучения на структуру со стороны ФК. Красные точки — со стороны металлической плёнки.

ветствующая описанному выше случаю падения излучения накачки со стороны фотонного кристалла. В данном случае четко различимы три пика интенсивности, причем амплитуда пика, соответствующего возбуждению ТПП, в четыре раза больше амплитуды пика, связанного с краем ФЗЗ. Красными точками показана зависимость в случае падения излучения накачки со стороны металлической пленки. Пик, соответствующий возбуждению ТПП оказывается усиленным в три раза по сравнению с предыдущим случаем, а остальные пики оказыва-

ются существенно подавленными. Результаты численных расчетов качественно подтверждают экспериментальные данные, хотя относительные амплитуды пиков имеют разные значения в расчетных и экспериментальных зависимостях. Причиной отличия угловых спектров ТГ является разный характер пространственного распределения электромагнитного поля при различных ориентациях образца.

Аналогично процедуре, описанной в предыдущих разделах, можно вычислить эффективность ГТГ в образце серии 3. Абсолютное значение частоты отсчетов в пике составило $1.58 \cdot 10^6$, в то время как заявленная производителем чувствительность модуля ФЭУ на длине волны 520 нм равна $3 \cdot 10^5$ Гц/пВт. Характеристики светофильтров, использовавшихся для выделения излучения ТГ, приведены в начале раздела. Мощность излучения накачки P_ω составила 75 мВт, таким образом, для определения нормированной эффективности ГТГ, не зависящей от мощности накачки, необходимо вычислить отношение $P_{3\omega}/P_\omega^3$, где $P_{3\omega}$ — измеренная мощность излучения ТГ. Полученные результаты: пиковое значение нормированной эффективности ГТГ в образце серии 3 при условии возбуждения ТПП в случае падения излучения накачки со стороны металлической плёнки составляет $2 \cdot 10^{-8}$ Вт⁻², что превосходит значение эффективности ГТГ в серебряной пленке в $6 \cdot 10^4$ раз.

4. Численные расчеты усиления генерации второй и третьей оптических гармоник при возбуждении таммовских плазмон-поляритонов

Для проведения численных расчетов использовался метод матриц распространения с учетом нелинейности слоев (Nonlinear Transfer Matrix Method, NTMM). Вкратце суть базового метода состоит в последовательном расчете величин напряженности электрических и магнитных полей на границе каждого слоя, а затем домножении векторов напряженности полей на матрицы двух типов. Матрицы одного типа называются матрицами распространения и описывают набег фазы и поглощение при прохождении каждого слоя, матрицы второго типа на-

зываются матрицами перехода и состоят из элементов, представляющих формулы Френеля для прохождения и отражения на границе раздела двух сред. Подробно метод описан в **Приложении** к диссертации. В методе NTMM, кроме того, рассчитывается нелинейная поляризация, индуцируемая в каждом из слоев. Поскольку основой для расчета вектора нелинейной поляризации служит вектор электрического поля, данным методом можно рассчитывать нелинейно-оптические эффекты любого порядка при условии, что задан тензор соответствующей нелинейной восприимчивости.

Для расчетов была написана программа, реализующая расчет методом матриц распространения, причем при расчете учитывалась реальная дисперсия материалов, взятая из работ [104–106]. При расчетах интенсивности ВГ полагалось, что единственным слоем с оптической нелинейностью является тонкий пограничный слой металла, при расчетах интенсивности ТГ учитывалась нелинейность всех слоев образца. Тензоры нелинейной восприимчивости были сконструированы на основании данных из работ [76, 115, 116]. При расчётах не учитывалась шероховатость нелинейных слоёв образца, приводящая к гиперрэлеевскому рассеянию света и возникновению сигнала оптических гармоник в симметрично-запрещённых комбинациях поляризаций излучения накачки и ВГ.

4.1. Случай резонансной накачки

На рисунке 3.15 точками показан экспериментально измеренный спектр интенсивности ВГ, генерированной в образце серии 1 в *pp* комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ при падении излучения накачки под углом 20° . Была проведена серия численных расчётов, в которых учитывались нелинейности различных приповерхностных слоёв в образце, а также различные компоненты тензоров $\hat{\chi}^{(2)}$. Наилучшее согласие с экспериментом было достигнуто в случае учёта единственного нелинейного слоя, а именно слоя золота толщиной 1 нм, расположенного вблизи границы раздела ФК/металл, обладающего единственной ненулевой компонентой тензора квадратичной восприимчивости

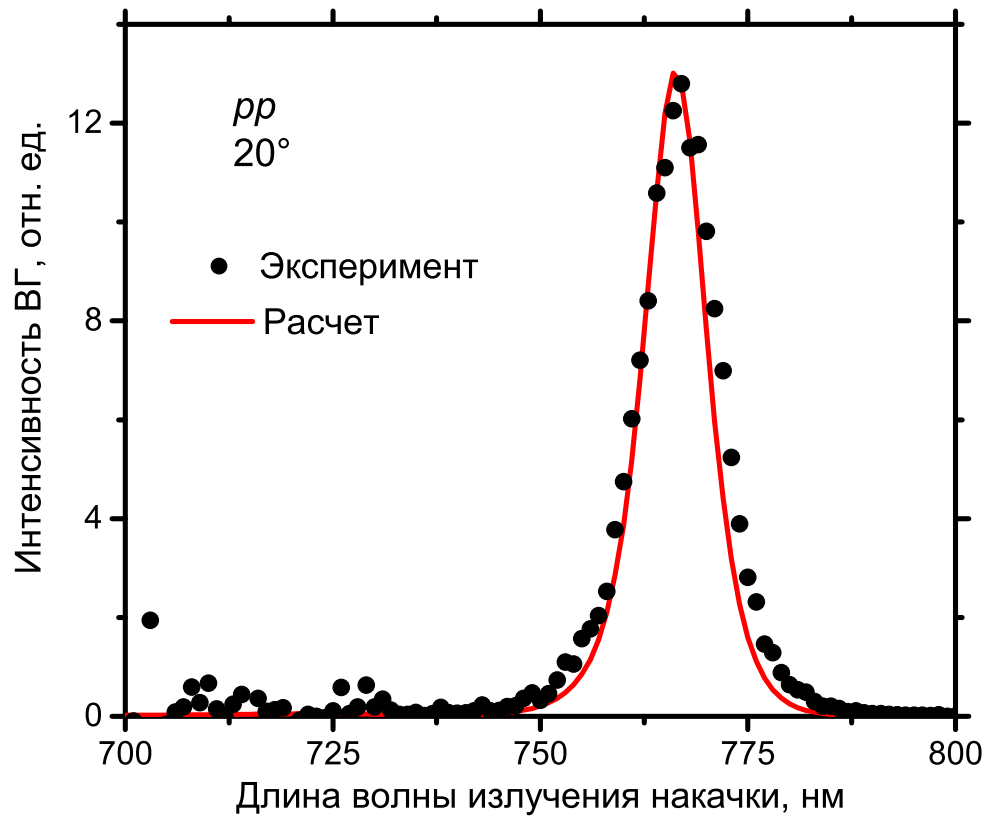


Рис. 3.15: Спектр интенсивности второй оптической гармоники, генерированной в образце серии 1 в pp комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ при падении излучения накачки под углом 20° . Точки — экспериментальные данные, сплошная кривая — результат численного расчёта методом матриц распространения с учётом нелинейности слоёв.

$\hat{\chi}_{zzz}^{(2)}$. Результаты данного расчёта показаны сплошной кривой на рисунке 3.15. Значения, полученные в результате численного расчёта, были нормированы на максимум экспериментально измеренной интенсивности ВГ для сравнения формы зависимостей. Можно отметить хорошее совпадение результатов расчёта и экспериментальных данных.

Данным методом был проведён расчёт интенсивности ВГ, генерированной в образце серии 1, в зависимости от длины волны и угла падения излучения накачки, а также такой же расчёт для плёнки золота толщиной 30 нм. После этого значения интенсивности ВГ в образце были поделены на соответствующие значения интенсивности ВГ в плёнке для получения коэффициента усиления ГВГ. Результаты приведены в виде двумерной карты на рисунке 3.16. На

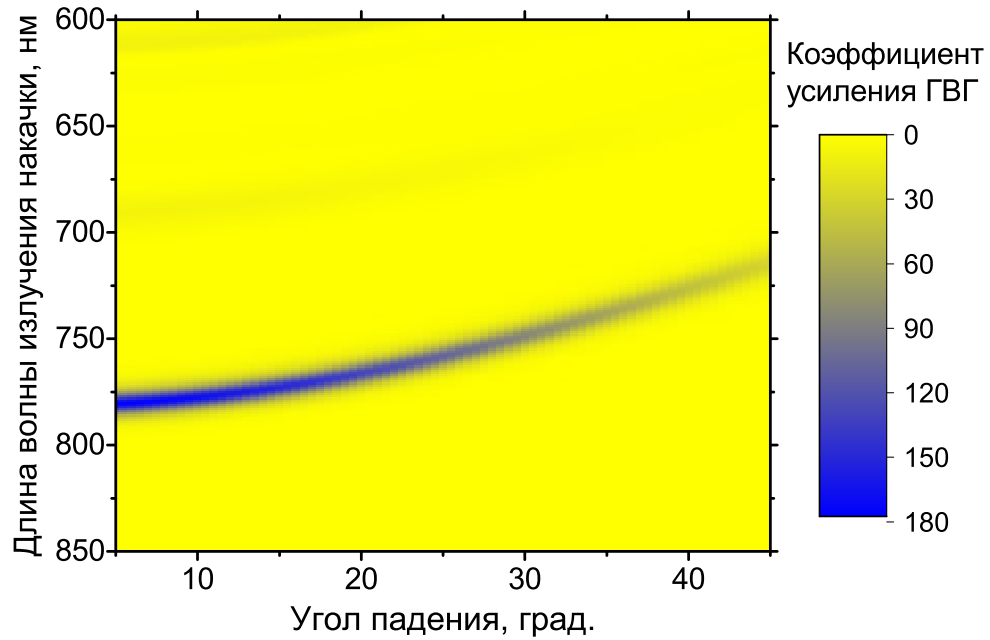


Рис. 3.16: Численно рассчитанная карта зависимости коэффициента усиления ГВГ в образце серии 1 от длины волны и угла падения излучения накачки. Расчёт соответствует pp комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ.

рисунке можно выделить несколько тёмно-синих полос, соответствующих резонансам усиления ГВГ. Два из них, расположенные при угле падения излучения 5° на длинах волн 610 нм и 690 нм, соответствуют усилению ГВГ в волноводных модах ФК. Третий, расположенный на длине волны 780 нм при том же угле падения излучения, соответствует усилению ГВГ, связанному с возбуждением ТПП. При увеличении угла падения излучения спектральное положение резонансов ВГ смещается в коротковолновую область спектра в соответствии с дисперсионными законами соответствующих возбуждений. Кроме того, можно отметить уменьшение амплитуды усиления ГВГ во всех резонансах, связанное с тем, что при увеличении угла падения p -поляризованного излучения ухудшается локализация электромагнитного поля внутри структуры по причинам, описанным в [части 3 Главы II](#). При уменьшении амплитуды электрического поля накачки в слоях с оптической нелинейностью уменьшается и интенсивность ВГ, генерированной в образце.

На рисунке [3.17\(а\)](#) точками показана экспериментальная зависимость коэффициента усиления ГВГ в максимуме резонанса ТПП от угла падения из-

лучения накачки, а сплошной линией показаны результаты численного расчёта. Поведение численной зависимости в целом совпадает с экспериментальной. Экспериментальная и рассчитанная численно зависимости ширины резонанса

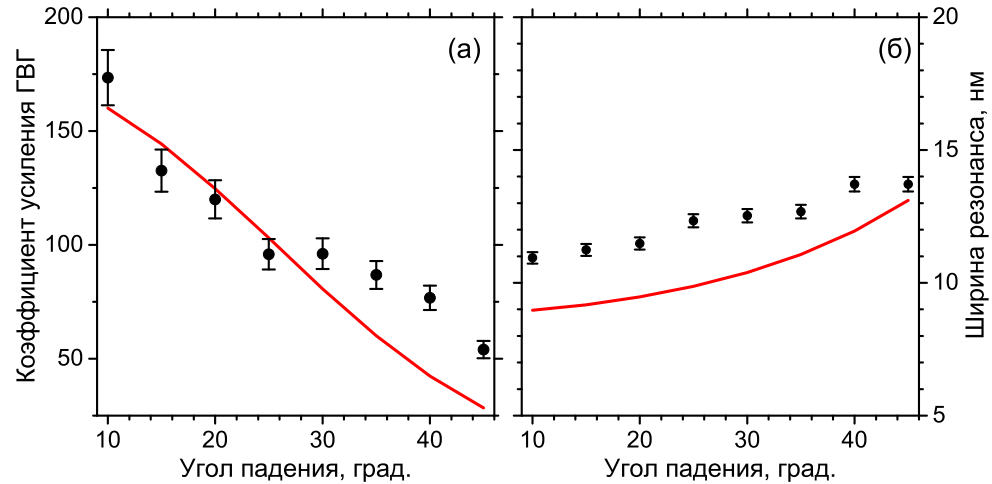


Рис. 3.17: (а) Экспериментально измеренная (точки) и численно рассчитанная (сплошная кривая) зависимости коэффициента усиления ГВГ в максимуме резонанса ТПП в образце серии 1 по сравнению с плёнкой золота от угла падения излучения накачки. (б) Экспериментально измеренная (точки) и численно рассчитанная (сплошная кривая) зависимости ширины резонанса интенсивности ВГ, связанного с возбуждением ТПП, от угла падения излучения накачки.

ВГ от угла падения излучения показаны на рисунке 3.17(б). Отличие экспериментальных данных и результатов численного расчёта составляет не более 2 нм и определяется конечной шириной спектра излучения накачки (составившей примерно 5 нм) в эксперименте. При данных условиях экспериментально измеренная ширина резонанса ТПП определяется свёрткой резонансного контура ТПП с импульсом излучения. В расчётах же излучение накачки полагалось монохроматическим. Большие значения коэффициента усиления ГВГ при малых углах определяются низкой эффективностью ГВГ в золотой плёнке при падении близком к нормальному. В результате, при делении интенсивности ВГ в образце на близкую к нулю интенсивность ВГ в золоте, наблюдается резкий рост коэффициента усиления. Увеличение ширины резонанса интенсивности ВГ при увеличении угла падения связано с уменьшением добротности моды ТПП,

возбуждающейся p -поляризованным излучением.

4.2. Случай резонансной второй гармоники

Расчеты интенсивности ВГ от угла падения излучения с помощью метода NTMM были проведены для образца серии 2 и для образца сравнения — пленки серебра толщиной 30 нм. Затем значения интенсивности, рассчитанные для образца, были разделены на соответствующие значения интенсивности, рассчитанные для плёнки серебра. Таким образом можно сравнить зависимости коэффициента усиления ГВГ — измеренную экспериментально с рассчитанной численно. На рисунке 3.18 точками показан измеренный коэффициент усиления ВГ в об-

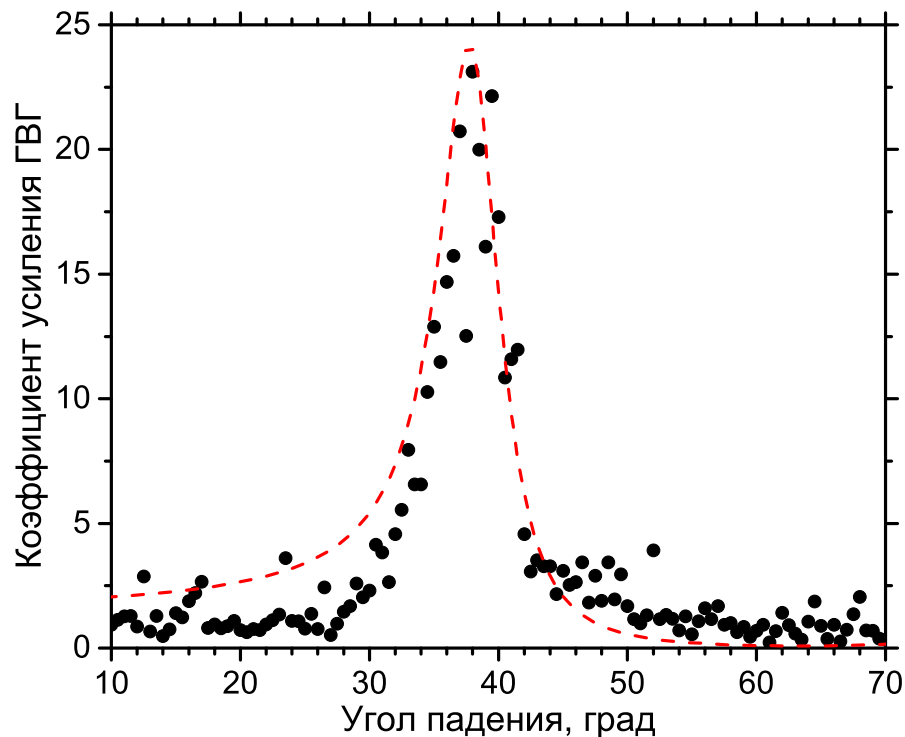


Рис. 3.18: Точки: Экспериментально измеренная зависимость усиления ГВГ в образце серии 2 от угла падения излучения на образец при длине волны излучения накачки 1560 нм и в pp комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ. Пунктирная кривая: Численный расчет методом матриц распространения с учетом нелинейности слоёв.

разце серии 2 по сравнению с плёнкой серебра, а пунктирной кривой показан результат численного расчёта. В обоих случаях ГВГ оказывается существенно усиленной в окрестности резонанса ТПП, в то время как вдали от резонанса

интенсивности ВГ от образца серии 2 и металлической плёнки примерно равны. Максимальный коэффициент усиления ГВГ равный 23 в образце серии 2 по сравнению с металлической пленкой достигается при угле падения излучения накачки равном 38° . Усиление ГВГ в случае совпадения частот ВГ и ТПП является следствием увеличения плотности фотонных состояний в структуре ФК/металл на данной частоте. В методе NTMM учитываются факторы локального поля на частоте ВГ, которые связаны с плотностью фотонных состояний. Хорошее совпадение экспериментальных данных и результатов расчёта позволяет говорить о правильности интерпретации экспериментальных результатов.

4.3. Случай двойного резонанса накачки и третьей гармоники

Случай двойного резонанса реализуется в образце, только если параметры слоёв (толщина и показатель преломления) находятся в определённом диапазоне оптимальных значений. Для проверки соответствия реальных параметров образца условиям двойного резонанса образец был охарактеризован методами сканирующей электронной микроскопии и эллипсометрии. Данные методики позволили определить толщины слоёв с точностью до 1 нм, а показатели преломления — с точностью до 0.01. Далее была построена модель образца с использованием измеренных параметров и проведён численный расчёт частотно-угловых спектров коэффициента пропускания и интенсивности ТГ. Было продемонстрировано хорошее согласие с экспериментом, что дополнительно подтвердило правильность определения параметров образца. Кроме того, был проведен расчёт зависимостей коэффициентов пропускания модельного образца на длинах волн накачки (1560 нм) и ТГ (520 нм) от угла падения излучения и от толщины верхнего слоя ФК. Поскольку спектрально-угловое положение резонансов ТПП наиболее чувствительно именно к толщине верхнего слоя ФК, последняя была выбрана в качестве параметра расчётов. Для удобства представления и анализа зависимостей коэффициентов пропускания T на длинах волн фундаментального ТПП (1560 нм) и ТПП третьего порядка (520 нм) от угла падения излучения и от толщины верхнего слоя ФК, была рассчитана сумма $T(1560) + T(520)$. На рисун-

ке 3.19 показаны результаты расчёта данной величины. На зависимости видны

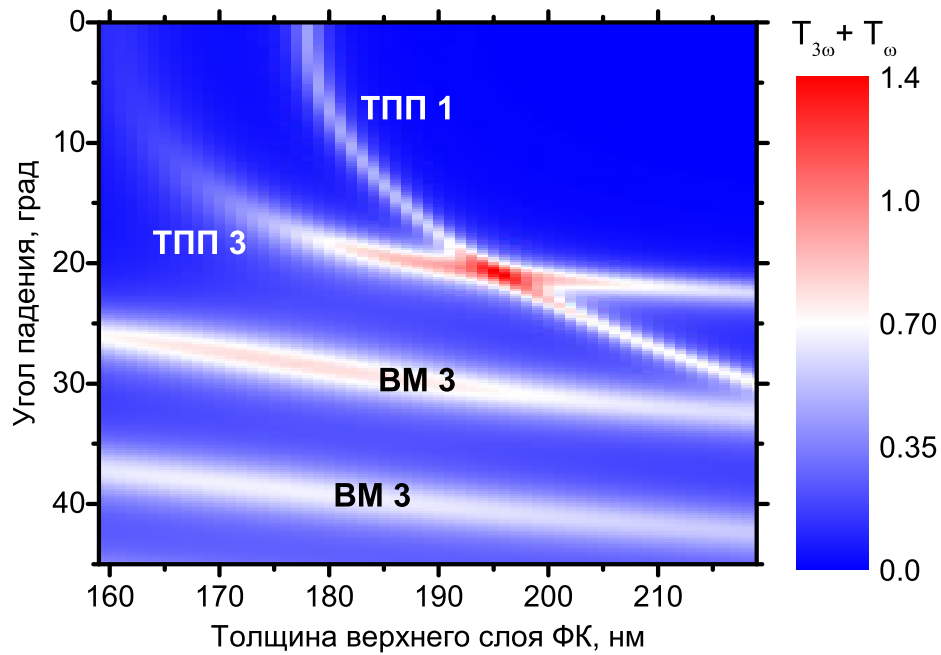


Рис. 3.19: Численно рассчитанная зависимость суммы коэффициентов пропускания образца серии 3 на длинах волн 520 нм и 1560 нм от угла падения p -поляризованного излучения и от толщины верхнего слоя ФК.

несколько резонансов, соответствующих фундаментальной моде ТПП («ТПП 1»), моде ТПП третьего порядка («ТПП 3») и волноводным модам ФК третьего порядка («ВМ 3»). Наиболее интересным является поведение резонансов «ТПП 1» и «ТПП 3». При увеличении толщины верхнего слоя ФК угол падения излучения, соответствующий возбуждению резонансов на заданных длинах волн, увеличивается. При толщине верхнего слоя ФК около 195 нм резонансы «ТПП 1» и «ТПП 3» возбуждаются на длинах волн 1560 нм и 520 нм соответственно при угле падения излучения равном 21° . Данное спектрально-угловое положение «ТПП 1» и «ТПП 3» соответствует выполнению условий двойного резонанса излучения накачки и ТГ и должно приводить к дополнительному усилению ГТГ.

На рисунке 3.20 показана численно рассчитанная зависимость логарифма интенсивности ТГ, генерированной в модельном образце серии 3, от угла падения излучения накачки и от толщины верхнего слоя ФК. В зависимости можно

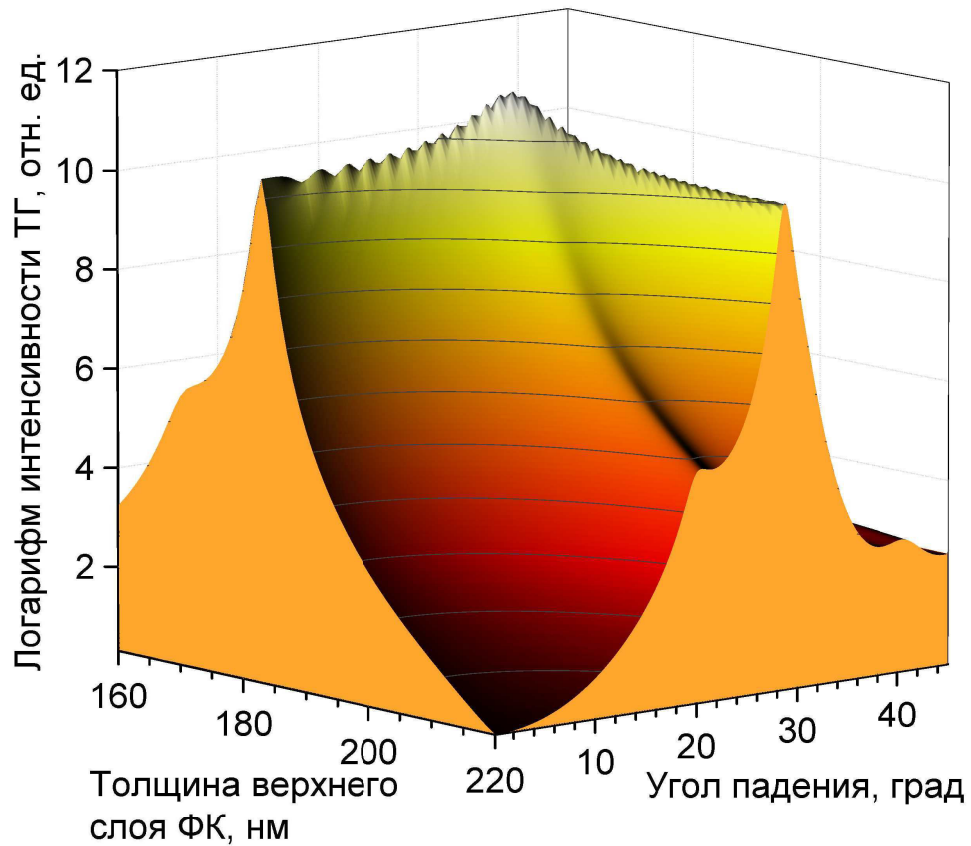


Рис. 3.20: Численно рассчитанная зависимость логарифма интенсивности третьей оптической гармоники, генерированной в образце серии 3 в *pp* комбинации поляризаций излучения накачки и ТГ, от угла падения излучения накачки и толщины верхнего слоя ФК. Линии уровня расположены через 1 отн.ед. Рябь на графике является артефактом построения.

выделить несколько пиков, меняющих своё угловое положение при изменении толщины верхнего слоя ФК. Одним из них, находящимся на угле 29° при толщине верхнего слоя ФК равной 220 нм, является резонанс интенсивности ТГ, связанный с возбуждением фундаментальной моды ТПП. При той же толщине верхнего слоя ФК данный пик имеет менее интенсивный пик-спутник, расположенный на угле 23° , и соответствующий усилению ГТГ за счёт увеличения плотности фотонных состояний в резонансе ТПП третьего порядка. При изменении толщины верхнего слоя ФК пик фундаментальной моды смещается по углу, однако интенсивность ТГ остается примерно постоянной и равной 10^{10} отн.ед. В то же время, при толщине верхнего слоя равной 194 нм и угле падения 21°

резонансы фундаментального ТПП и ТПП третьего порядка перекрываются и наблюдается дополнительное усиление интенсивности ТГ на два порядка величины. Важно отметить, что указанные параметры образца (толщины слоёв) и излучения накачки (длина волны и угол падения) соответствуют экспериментальным условиям, что является подтверждением того, что в эксперименте были реализованы условия двойного резонанса излучений накачки и третьей оптической гармоники.

Глава IV

Гибридное состояние таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов

Исследования гибридных состояний таммовских плазмон-поляритонов и других возбуждений, таких как микрорезонаторные моды и экситоны, привели к разработке и созданию набора активных устройств фотоники. К таким устройствам относятся лазеры, однофотонные источники и сенсоры. Возбуждение гибридных состояний приводит к изменению закона дисперсии элементарных возбуждений, например, к спектральному смещению их резонансных частот. Исследования гибридных состояний ТПП и поверхностных плазмон-поляритонов не проводились вплоть до работы автора [1]. В то же время вопрос управления законом дисперсии ППП является важным как с фундаментальной, так и с прикладной точек зрения. Возможность такого управления позволит существенно расширить диапазон использования существующих биомедицинских сенсоров, основанных на эффекте возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов. Простота перестройки резонансных параметров возбуждения ТПП позволяет говорить о перспективности использования гибридных состояний ППП и ТПП для вышеуказанных целей.

1. Экспериментальное обнаружение гибридного состояния таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов

1.1. Экспериментальная установка

Для измерения частотно-угловых спектров была создана экспериментальная установка, схема которой приведена на рисунке 4.1. В качестве источника света использовалась лампа накаливания (1). Свет коллимировался линзой (2), и при помощи диафрагмы (3) вырезался параллельный пучок диаметром 2 мм. Призма Глана (4), установленная во вращающейся с точностью до 0.2° оправе, позволяла контролировать поляризацию света, падающего на образец. Для

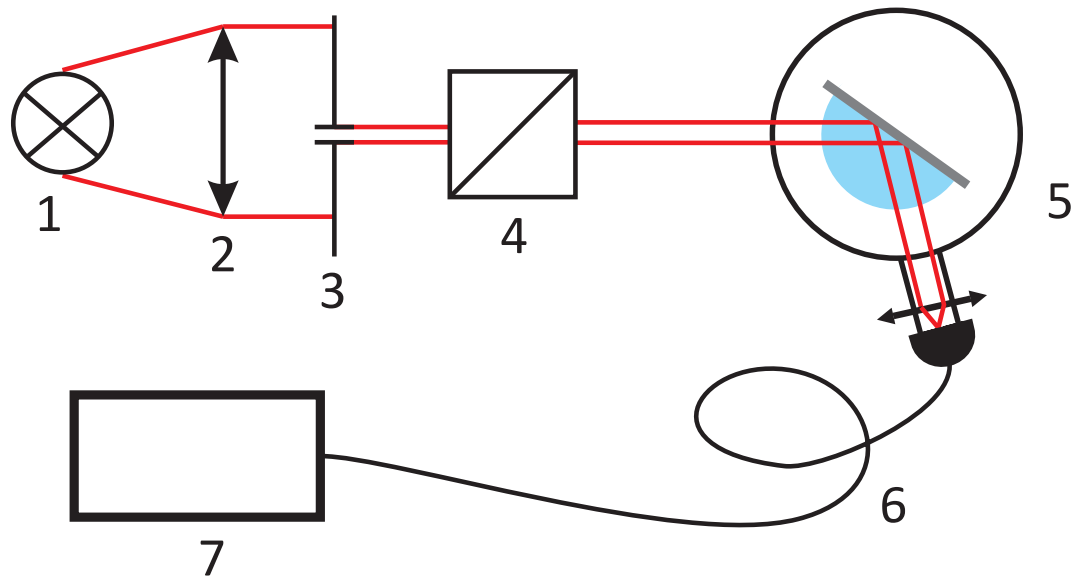


Рис. 4.1: Схема установки для частотно-угловой спектроскопии коэффициента отражения. (1) — лампа накаливания, (2) — коллимирующая линза, (3) — диафрагма, (4) — призма Глана во вращающемся держателе, (5) — механизированный гониометр $\varphi - 2\varphi$ с установленным на нем образцом, (6) — волокно с фокусирующей линзой, установленное на поворотном держателе, (7) — спектральный прибор.

возбуждения поверхностного плазмон-поляритона на границе раздела металл – вакуум использовалась схема Кречманна: образцы при помощи иммерсионного масла крепились к стеклянной цилиндрической призме (показатель преломления материала $n = 1.51$). Полученная система устанавливалась на механизированный гониометр $\varphi - 2\varphi$ (5), позволяющий задавать угол поворота образца с точностью 0.005° . Благодаря цилиндрической форме призмы углы падения излучения на образец соответствуют углам падения излучения из материала призмы. В дальнейшем на всех экспериментальных и расчетных зависимостях угол падения соответствует углу падения излучения из призмы. Установка оптического волокна (6) на поворотный держатель позволяла измерять спектры отражения при различных углах падения света на образец, сохраняя при этом фиксированное расстояние между образцом и входным торцом волокна (это необходимо для получения правильных значений коэффициента отражения образца при последующей нормировке измеренных спектров). Спектральный прибор (7) представлял собой спектрометр SOLAR S100 со спектральным разреше-

нием 1 нм и диапазоном измерения 400 – 1100 нм. Для проведения эксперимента в автоматическом режиме была создана программа в пакете LabView, позволявшая при помощи компьютера контролировать угол поворота образца и измерительного плеча, диапазон изменения угла поворота, угловой шаг, а также время измерения одного спектра. Перед каждой серией измерений частотно-угловых спектров образца проводилось измерение спектра лампы накаливания, который впоследствии использовался для нормировки. Данные, полученные со спектрометра в результате одного сканирования, представляли собой двумерный массив значений коэффициента отражения, который легко преобразовывался к виду, удобному для обработки.

1.2. Исследование оптических свойств гибридного состояния таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов методом частотно-угловой спектроскопии

На установке для частотно-угловой спектроскопии была измерена серия спектров коэффициента отражения образца серии 1 для углов падения света от 25° до 60° . На рисунке 4.2 показан частотно-угловой спектр коэффициента отражения для p поляризации падающего излучения. Для углов, не превосходящих угол полного внутреннего отражения (около 42° для данной призмы) внутри ФЗЗ фотонного кристалла, лежащей между 650 нм и 950 нм для угла падения 25° , наблюдается узкий резонанс поглощения, соответствующий возбуждению ТПП. На рис. 4.2 данная особенность проявляется в виде светлой полосы, обозначенной стрелкой с подписью ТПП. При увеличении угла падения излучения на образец уменьшается нормальная компонента волнового вектора, поэтому центр фотонной запрещенной зоны и дисперсионная кривая ТПП сдвигаются в коротковолновую область спектра. При углах, превосходящих угол полного внутреннего отражения, могут выполняться условия фазового синхронизма для ППП. На длине волны 990 нм при угле падения 43° наблюдается резонанс, соответствующий возбуждению ППП. При увеличении угла падения он смещается в коротковолновую область спектра. Резонанс, соответствующий ТПП, снова

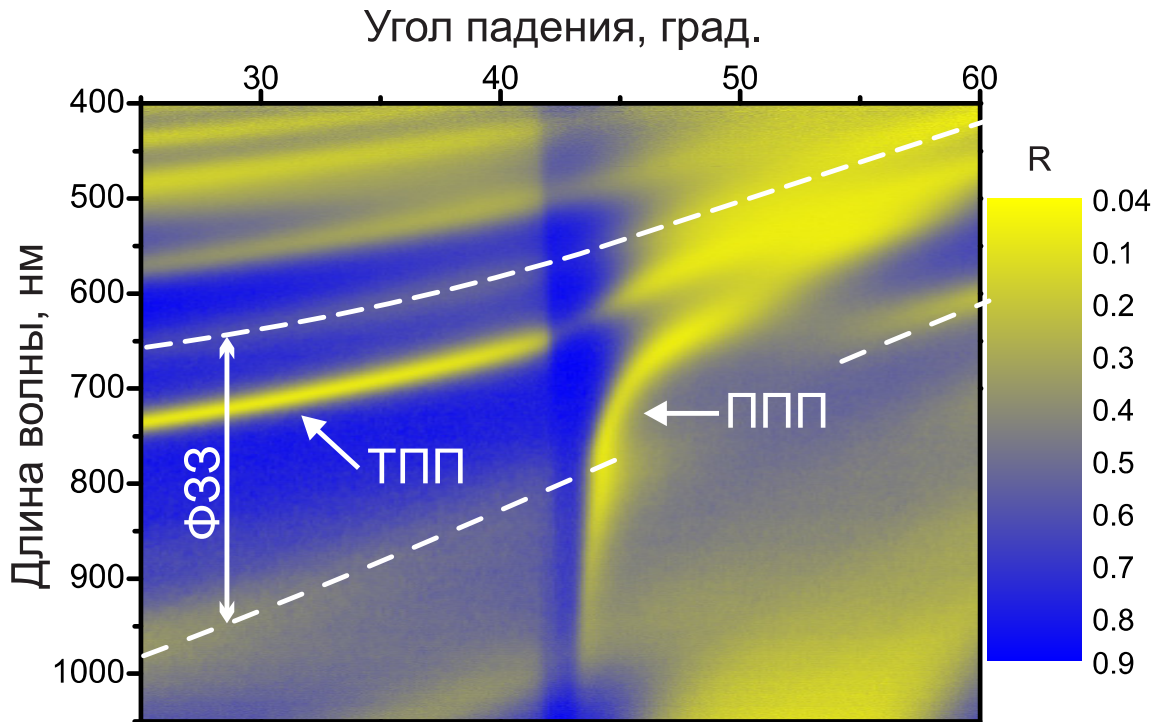


Рис. 4.2: Частотно-угловой спектр коэффициента отражения образца серии 1 для p -поляризованного излучения. Отмечены дисперсионные кривые таммовского плазмон-поляритона (ТПП), поверхностного плазмон-поляритона (ППП) и фотонная запрещенная зона (ФЗЗ).

появляется при угле падения 43° на длине волны 620 нм. В диапазоне углов $45^\circ - 50^\circ$ дисперсионные кривые ТПП и ППП располагаются практически параллельно друг другу. Спектральное расстояние между резонансами составляет 75 ± 5 нм. При углах больше 50° в спектре коэффициента отражения нельзя выделить резонансные особенности, связанные с возбуждением какого-либо из поверхностных состояний. На рисунке 4.3 показаны срезы частотно-углового спектра коэффициента отражения для угла падения излучения равного 30° , когда в образце возбуждается только ТПП, и для угла падения 46° , при котором в образце возбуждается гибридное состояние. Важно отметить, что при возбуждении гибридного состояния нельзя говорить о наличии двух разных поверхностных мод, поскольку собственным решением волнового уравнения будет их суперпозиция. Однако можно выделить две компоненты состояния, отличающиеся собственной энергией для фиксированного угла падения излучения.

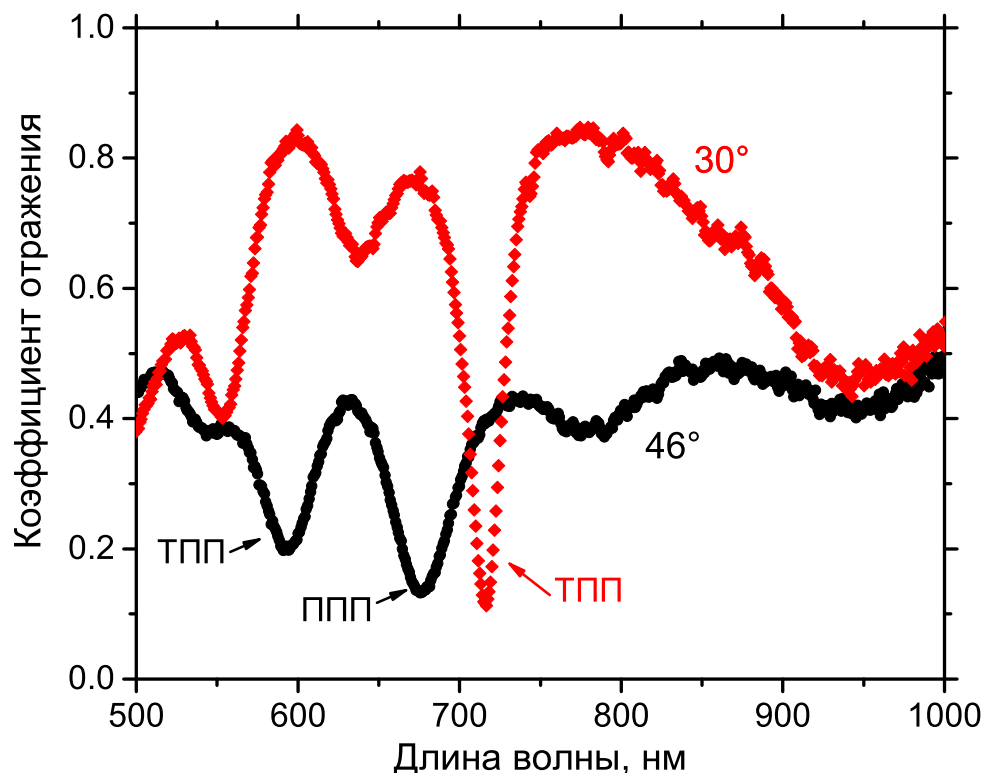


Рис. 4.3: Спектры коэффициента отражения образца серии 1 при угле падения 30° (красные точки) и 46° (чёрные точки).

Аналогичные измерения были проведены и для металлической плёнки толщиной 30 нм, в которой ППП возбуждается в отсутствии таммовского. На рисунке 4.4 приведен частотно-угловой спектр коэффициента отражения металлической плёнки при изменении угла падения от 39° до 60° . Резонанс, соответствующий возбуждению ППП, появляется при угле падения 43° на длине волны 1000 нм. Стоит заметить, что длина волны возбуждения ППП на плёнке золота при угле падения 50° составляет примерно 530 нм, в то время как длина волны возбуждения ППП, возбужденного на образце серии 1 при том же угле падения, составляет 610 нм. Таким образом, можно отметить, что компонента гибридного состояния, соответствующая возбуждению поверхностного плазмон-поляритона, сдвигается на 80 нм в длинноволновую область по сравнению с дисперсионной кривой ППП, возбуждаемого на металлической плёнке (в отсутствии ТПП).

На рисунке 4.5 показан частотно-угловой спектр коэффициента отражения

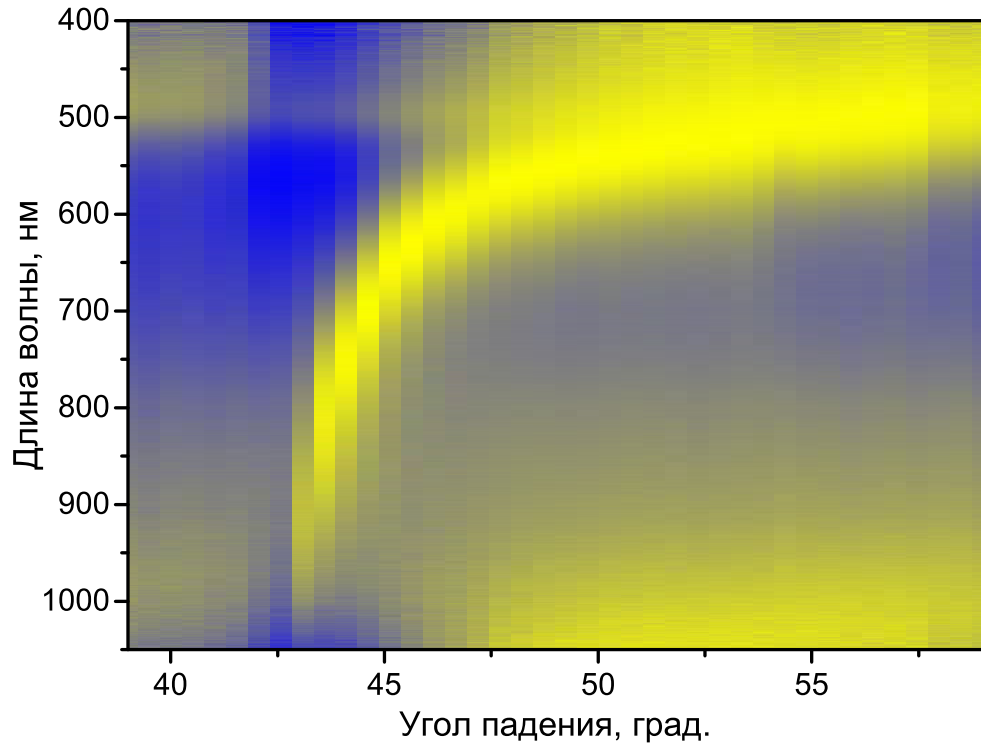


Рис. 4.4: Частотно-угловой спектр коэффициента отражения плёнки золота толщиной 30 нм для p -поляризованного излучения.

образца серии 1 для s -поляризованного излучения. В случае s поляризации ППП возбуждаться не может, поэтому структура спектра коэффициента отражения не претерпевает никаких изменений при увеличении угла падения света. Видно, что при увеличении угла падения излучения центр фотонной запрещенной зоны фотонного кристалла и дисперсионная кривая ТПП смещаются в коротковолновую область спектра. Стоит заметить, что при увеличении угла падения амплитуда резонанса, соответствующего ТПП, постепенно уменьшается, и в итоге, резонанс исчезает. Данное поведение можно объяснить из следующих соображений: при увеличении угла падения частота возбуждения ТПП увеличивается, смещаясь в коротковолновую область спектра. В то же время, коэффициент пропускания тонкой золотой плёнки увеличивается при уменьшении длины волны, что приводит к уменьшению добротности резонанса ТПП и его исчезновению.

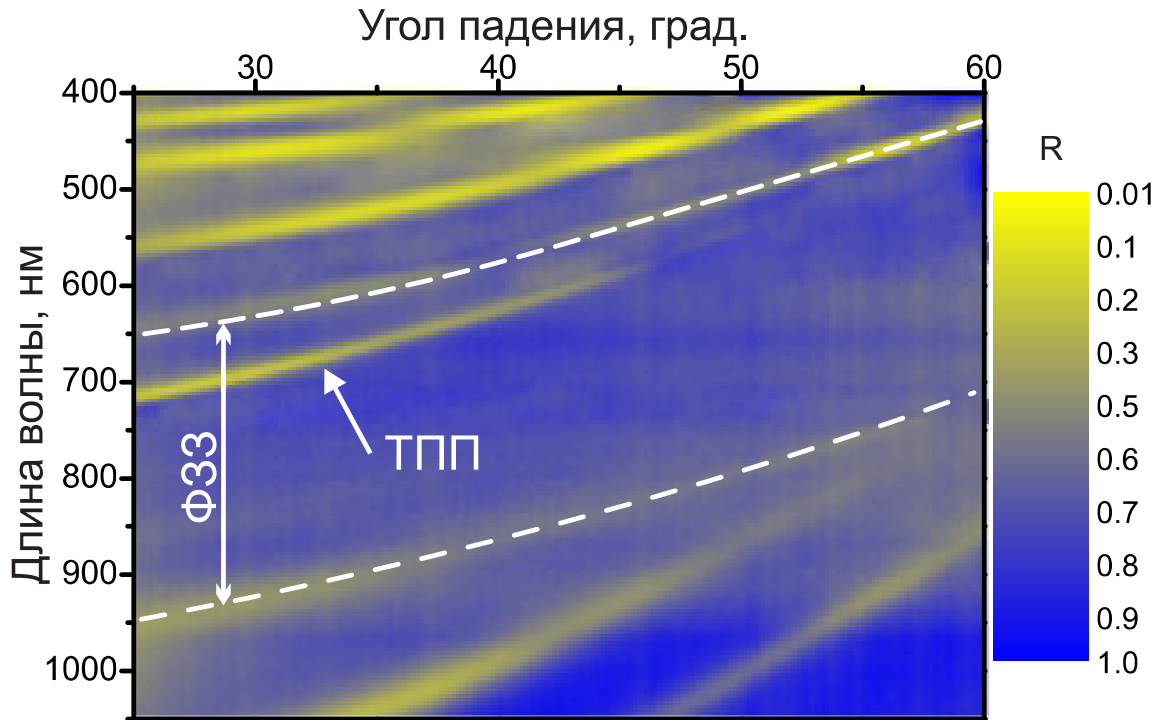


Рис. 4.5: Частотно-угловой спектр коэффициента отражения образца серии 1 для s -поляризованного излучения. Отмечены дисперсионные кривые таммовского плазмон-поляритона (ТПП) и фотонная запрещенная зона (ФЗЗ).

2. Численные расчеты и аналитическая модель гибридного состояния

Для интерпретации экспериментальных данных были проведены численные расчеты методом матриц распространения, суть которого изложена в [Приложении](#). В качестве модельного образца рассматривался образец, состоящий из 6 пар слоев $\text{SiO}_2/\text{ZrO}_2$, причём верхним слоем фотонного кристалла является слой SiO_2 , и слоя золота толщиной 30 нм. Толщины слоев составляли $d_{\text{SiO}_2} = 109$ нм, $d_{\text{ZrO}_2} = 146$ нм, однако толщина верхнего слоя SiO_2 составляла 226 нм. При расчетах учитывалась реальная дисперсия материалов, из статей [104–106]. Результаты численного расчета коэффициента отражения для p - и s -поляризованного излучения приведены на рисунках 4.6 и 4.7 соответственно.

Экспериментальные результаты находятся в хорошем согласии с численными расчетами. Небольшие расхождения можно объяснить угловой расходимостью пучка и его фокусировкой цилиндрической призмой.

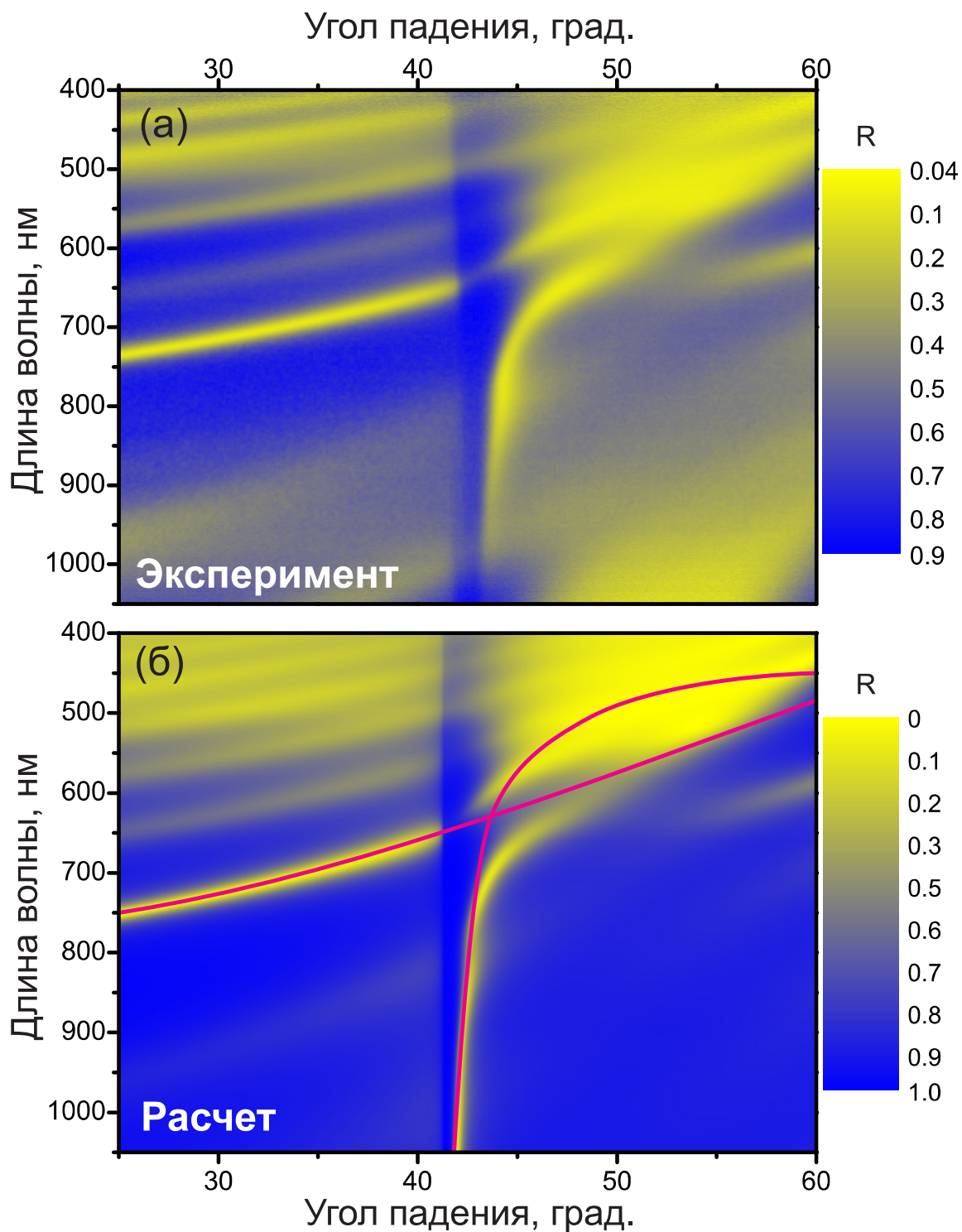


Рис. 4.6: (а) Частотно-угловой спектр коэффициента отражения образца серии 1 для p -поляризованного излучения. (б) Численный расчет частотно-углового спектра коэффициента отражения модельного образца для p -поляризованного излучения. Красные кривые показывают характерное поведение дисперсионных кривых таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов.

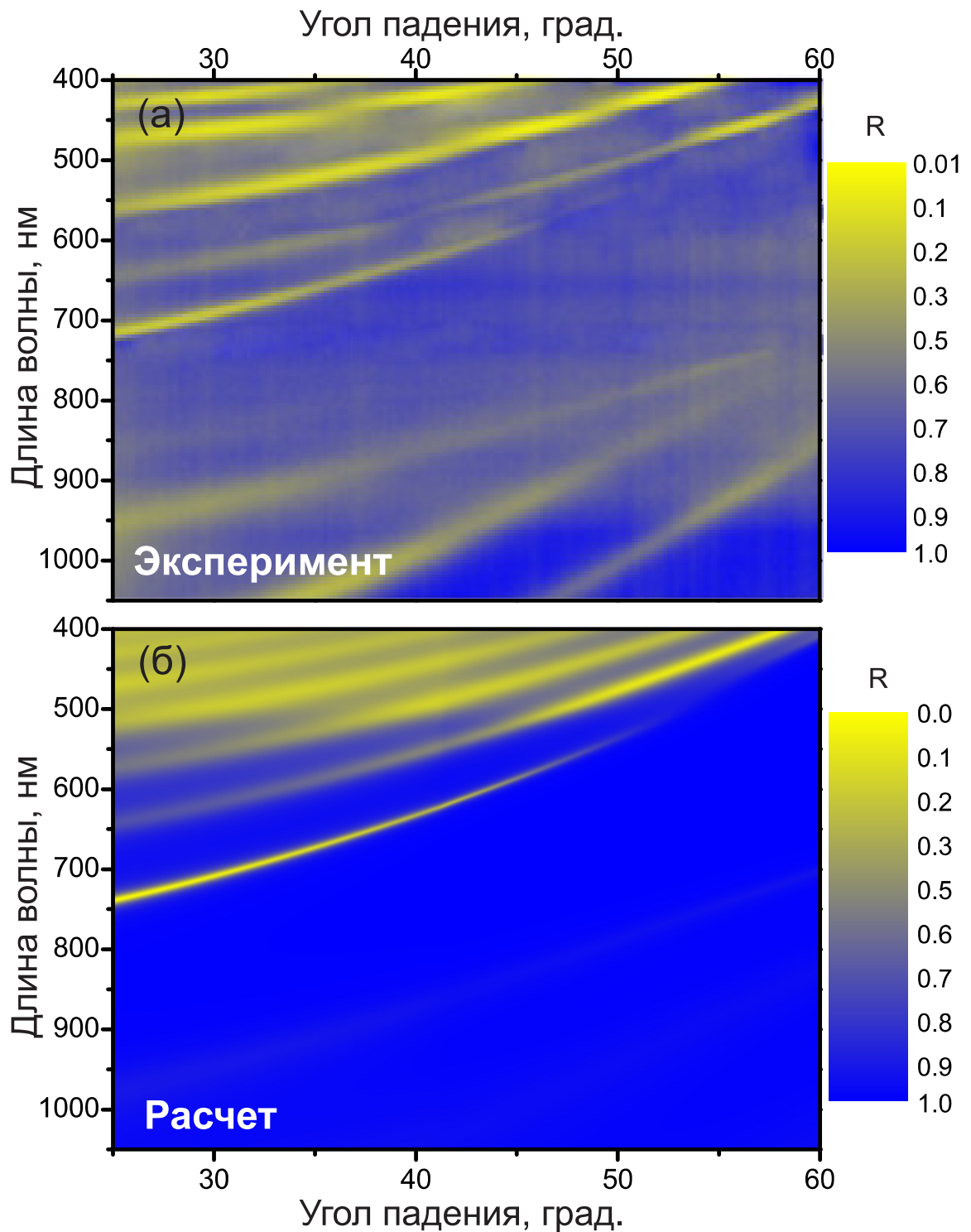


Рис. 4.7: (а) Частотно-угловой спектр коэффициента отражения образца серии 1 для s -поляризованного излучения. (б) Численный расчет частотно-углового спектра коэффициента отражения модельного образца для s -поляризованного излучения.

Обратимся теперь к обсуждению полученных результатов. Как уже было сказано, дисперсионные кривые ППП, возбуждаемых на пленке золота и на об-

разце серии 1, имеют существенные различия. Дисперсионная кривая ППП, возбуждаемого на образце серии 1, имеет более резкий излом при приближении к коротковолновой части спектра. Это связано с расталкиванием дисперсионных кривых таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов. При распространении излучения в системе фотонный кристалл-металл при условиях полного внутреннего отражения решение волнового уравнения представляет собой суперпозицию решения, локализованного на границе раздела фотонный кристалл-металл (ТПП) и решения, локализованного на границе раздела металл-вакуум (ППП). В этом случае данные поверхностные состояния нельзя рассматривать по отдельности. Можно сказать, что возникает некое гибридное состояние таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов. Стоит подчеркнуть, что речь не идет о взаимодействии ТПП и ППП в терминах переноса энергии, поскольку все эффекты, наблюдаемые в данной работе, являются линейными.

Степень связи компонент гибридного состояния зависит от толщины металла, поскольку электромагнитные поля обеих компонент экспоненциально затухают в этом слое. Для более детального изучения гибридного поверхностного состояния была проведена серия расчетов частотно-угловых спектров коэффициента отражения для различной толщины слоя золота, показанная на рисунке 4.8. При толщине золотой плёнки равной 20 нм наблюдается наиболее сильное расталкивание дисперсионных кривых ТПП и ППП. Кроме того можно отметить гибридизацию ППП и одной из волноводных мод фотонного кристалла. При увеличении толщины слоя металла величина расталкивания дисперсионных кривых ТПП и ППП уменьшается. При толщине слоя более 70 нм дисперсионные кривые перестают расталкиваться и начинают пересекаться, что свидетельствует о том, что ТПП и ППП перестают «чувствовать» друг друга и возбуждаются как два независимых состояния.

В аналитическом виде дисперсионные законы гибридного состояния могут быть получены из следующих соображений. Рассмотрим структуру, изображённую на рисунке 4.9, состоящую из слоя металла толщиной d_M и полубесконечного одномерного фотонного кристалла, состоящего из чередующихся слоёв

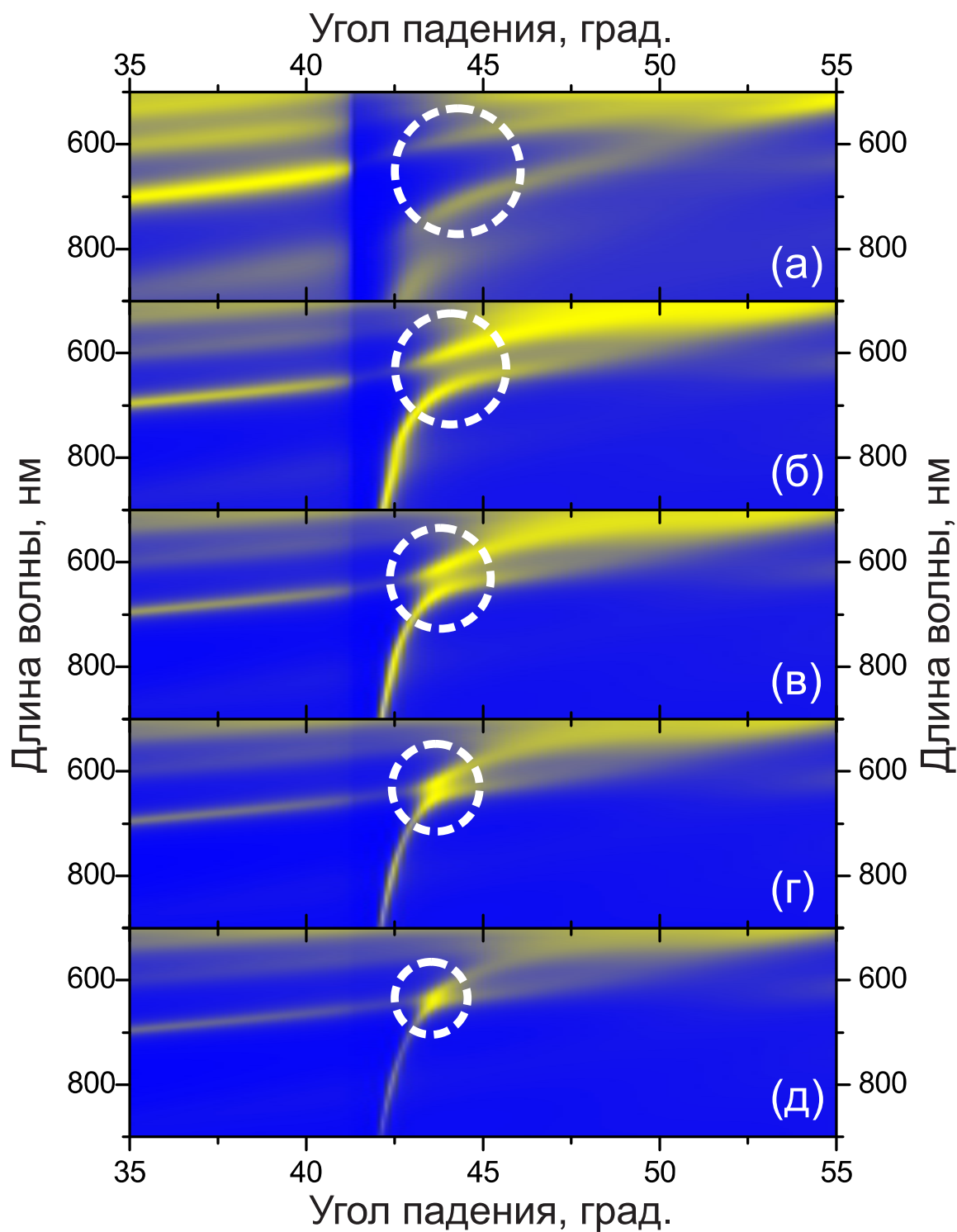


Рис. 4.8: Численный расчет частотно-угловых спектров коэффициента отражения модельного образца для p -поляризованного излучения. Толщины слоя золота составляют (сверху вниз) 20, 40, 50, 60, 70 нм соответственно.

диэлектриков толщиной d_1 и d_2 . Диэлектрические проницаемости металла и ди-

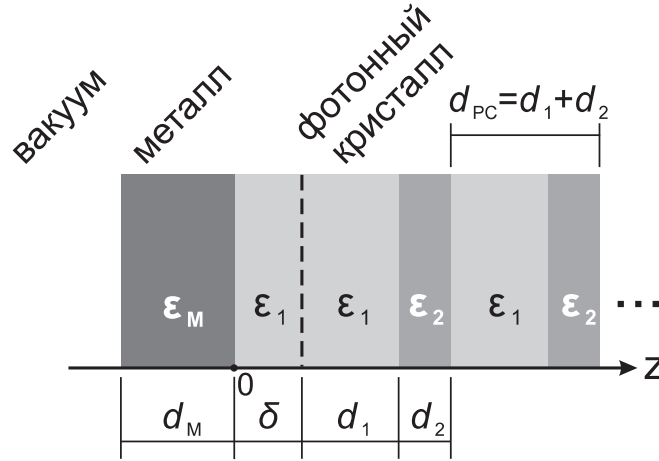


Рис. 4.9: Вид модельной структуры, состоящей из полубесконечного фотонного кристалла и тонкой плёнки металла.

электриков, ε_M , ε_1 и ε_2 будем считать действительными и удовлетворяющими следующим условиям: $\varepsilon_M < 0$ и $\varepsilon_{1,2} > 0$. Слой диэлектрика, прилегающий к металлу, имеет толщину $d_1 + \delta$. В собственной моде структуры с частотой ω электрическое и магнитное поля, $\mathbf{E}$ и $\mathbf{H}$, имеют вид

$$\mathbf{F}(\mathbf{R}, z, t) = \mathbf{F}(z)e^{i(\mathbf{K} \cdot \mathbf{R} - \omega t)}, \quad (4.1)$$

где $\mathbf{F}$ обозначает $\mathbf{E}$ или $\mathbf{H}$, $\mathbf{R}$ — радиус-вектор на поверхности в плоскости xy и $\mathbf{K}$ — волновой вектор. Ось x была выбрана параллельной $\mathbf{K}$. Для ТМ-моды неисчезающими компонентами поля являются H_y , $E_x = -i[\varepsilon(z)k]^{-1}dH_y/dz$, $E_z = -K[\varepsilon(z)k]^{-1}H_y$, в то время как для ТЕ-моды такими компонентами являются E_y , $H_x = ik^{-1}dE_y/dz$, $H_z = Kk^{-1}H_y$ (где $k = \omega/c$, а кусочно-непрерывная функция $\varepsilon(z)$ описывает пространственную зависимость диэлектрической проницаемости). Удобно ввести обозначение $F_{\text{ТМ}}(z) \equiv H_y(z)$, $F_{\text{ТЕ}}(z) \equiv E_y(z)$. Тогда поле в собственной моде ТПП зависит от z следующим образом ($\alpha = \text{ТМ}, \text{ТЕ}$):

$$F_\alpha(z) = \begin{cases} A_\alpha e^{-iqz}, & z < -d_M \\ B_\alpha e^{-\kappa_M z} + C_\alpha e^{\kappa_M z}, & -d_M < z < 0, \\ D_\alpha u_\alpha(z) e^{iQ_\alpha z}, & z > 0 \end{cases} \quad (4.2)$$

где A_α , B_α , C_α , D_α являются комплексными постоянными, $q = \sqrt{k^2 - K^2}$, $\kappa_M = \sqrt{K^2 - \varepsilon_M k^2}$. Величина Q_α является блоховским волновым числом, соответ-

ствующим затухающей блоховской волне на частоте, лежащей в ФЗЗ фотонного кристалла. При $z > \delta$ функция $u_\alpha(z)$ является периодической с периодом $d_{\text{PC}} = d_1 + d_2$. Точные выражения для Q_α и $u_\alpha(z)$ можно найти в работе [110].

Учёт условия непрерывности тангенциальных компонент поля на границах раздела вакуум/металл и металл/ФК приводит к системе четырёх однородных линейных уравнений относительно четырёх констант: A_α , B_α , C_α , и D_α . Совместимость этих уравнений достигается путём приравнивания определителя соответствующей матрицы к нулю. Данное условие может быть записано в следующей форме:

$$\frac{e^{-2i\Delta} - b_\alpha}{e^{-2i\Delta} + b_\alpha} = -\mu_\alpha \frac{\cosh L_M + \nu_\alpha \sinh L_M}{\nu_\alpha \cosh L_M + \sinh L_M}, \quad (4.3)$$

где

$$b_\alpha = \frac{(1 - r_\alpha^2) e^{i\Lambda_\alpha} + e^{iL_1} (r_\alpha^2 e^{-iL_2} - e^{iL_2})}{2ir_\alpha e^{-iL_1} \sin L_2},$$

$$r_{\text{TM}} = \frac{\varepsilon_1 q_2 - \varepsilon_2 q_1}{\varepsilon_1 q_2 + \varepsilon_2 q_1}, \quad r_{\text{TE}} = \frac{q_2 - q_1}{q_1 + q_2}.$$

Причем $\mu_{\text{TM}} = i\varepsilon_1 \kappa_M / (\varepsilon_M q_1)$, $\mu_{\text{TE}} = i\kappa_M / q_1$, $\nu_{\text{TM}} = i\kappa_M / (\varepsilon_M q)$, $\nu_{\text{TE}} = i\kappa_M / q$, $\Delta = q_1 \delta$, $L_M = \kappa_M d_M$, $\Lambda_\alpha = Q_\alpha d_{\text{PC}}$, $L_j = q_j d_j$, $q_j = \sqrt{\varepsilon_j k^2 - K^2}$, $j = 1, 2$. Корни уравнения 4.3 определяют дисперсионный закон ТПП: $\omega = \Omega_\alpha(K)$. При условии $\omega < cK$ волна в вакууме становится затухающей при $z < -d_M$, что соответствует неизлучающей моде ТПП (при произвольном значении d_M). В этом случае уравнение 4.3 имеет корни при действительных значениях как ω , так и K . При $\omega > cK$ мода ТПП затухает излучательным образом из-за переноса энергии в область $z < -d_M$, в которой вектор Пойнтинга имеет ненулевую z компоненту. В результате, при действительных K , собственные частоты ТПП являются комплексными: $\omega = \Omega_\alpha(K) - i\gamma_\alpha(K)$, где $\gamma_\alpha(K) \rightarrow 0$ при $d_M \rightarrow \infty$.

Поскольку в эксперименте использовалась призма, продольная компонента волнового вектора связана с углом падения θ как $\sqrt{\varepsilon_P} \omega \sin \theta / c$, где ε_P — диэлектрическая проницаемость призмы. Следовательно, все полученные дисперсионные законы должны быть записаны с учётом правильно масштабированного аргумента $\omega = \Omega_\alpha(\sqrt{\varepsilon_P} K)$.

Результаты численного решения уравнения 4.3 показаны на рисунке 4.10. Серые области соответствуют разрешенным зонам полубесконечного фотонного кристалла, а белая область — запрещённой зоне ФК. Пунктирная линия отмечает световую линию, разделяющую излучательный ($\gamma > 0$) и неизлучательный ($\gamma = 0$) регионы. Штриховая линия соответствует дисперсионному за-

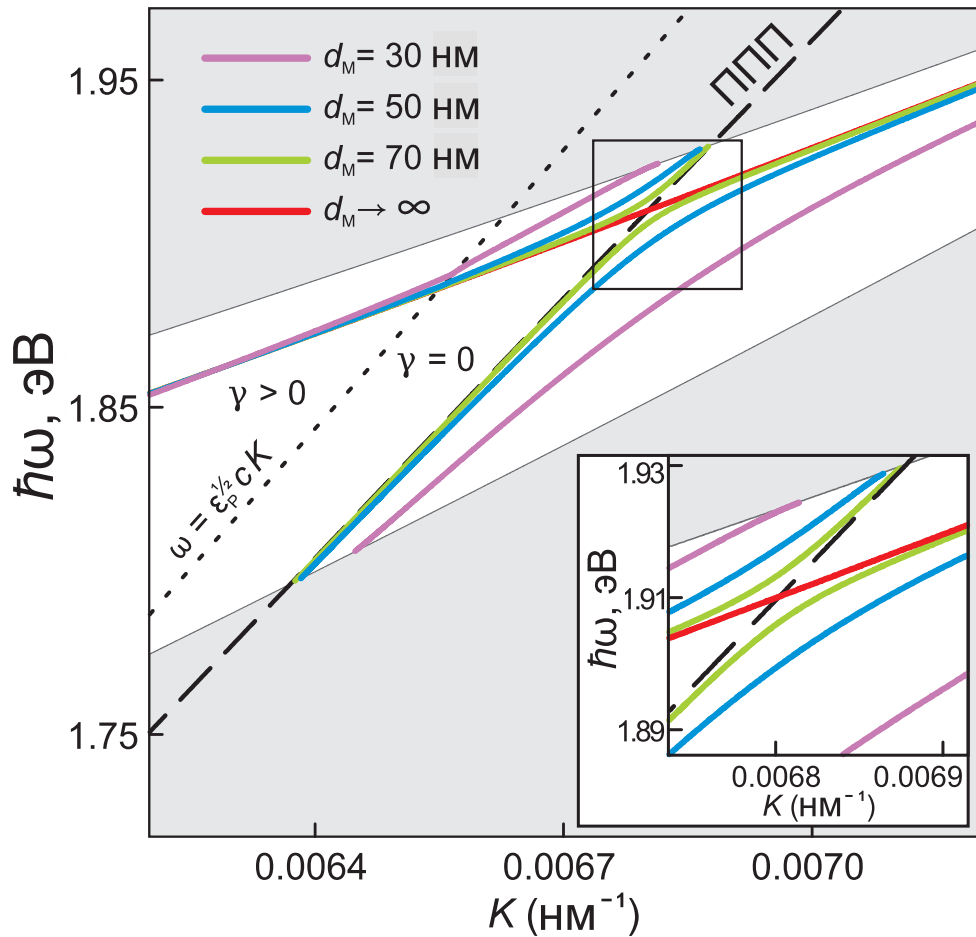


Рис. 4.10: Численный расчёт дисперсионных законов гибридного состояния ТПП и ППП в модельном образце. На вставке показан увеличенный вид области, обозначенной квадратом.

кону ППП, возбуждающегося на полубесконечном слое металла. Цветные линии показывают дисперсионные законы гибридного состояния ТПП и ППП, рассчитанные для различных значений толщины металлического слоя. Можно отметить, что наибольшее расталкивание дисперсионных кривых наблюдается при толщине слоя равной 30 нм (фиолетовые кривые на рисунке 4.10). При увеличении толщины металла спектральное расстояние между дисперсионными

кривыми уменьшается. В случае полубесконечной плёнки металла в модельной структуре возбуждается только ТПП (красная линия на рисунке 4.10).

Результаты аналитического и численного расчётов совпадают с экспериментальными данными, что подтверждает правильность их интерпретации.

Заклучение

Основные результаты диссертационной работы могут быть сформулированы следующим образом:

1. Продемонстрирована модификация фемтосекундных лазерных импульсов, отраженных от структуры фотонный кристалл-металлическая плёнка, при условии перекрытия спектра импульса и резонансного контура таммовского плазмон-поляритона. Показано, что время жизни ТПП зависит от угла падения и поляризации излучения. Характерные значения времени жизни ТПП составляют 31 ± 1 и 29 ± 1 фс при угле падения 7° для s и p поляризации падающего излучения соответственно. При угле падения излучения равном 45° время жизни составляет 43 ± 1 и 22 ± 1 фс для s и p поляризации падающего излучения соответственно.
2. В схеме «накачка-зонд» исследована спектральная зависимость относительного изменения коэффициента отражения $\Delta R/R$ структуры ФК/металл в окрестности резонанса ТПП. Показано, что при накачке излучением с длиной волны 780 нм и энергией в импульсе 1 нДж, спектральная зависимость $\Delta R/R$ имеет асимметричный профиль. Максимальная величина $\Delta R/R$ составляет 0.095%, что соответствует 25-кратному усилению по сравнению с величиной эффекта в золотой плёнке.
3. Обнаружено усиление генерации второй оптической гармоники в структуре ФК/металл в присутствии ТПП. Показано, что при выполнении условий резонанса ТПП по длине волны и углу падения излучения накачки, наблюдается усиление ГВГ в 170 раз по сравнению с тонкой плёнкой металла. Показано, что при выполнении условий резонанса ТПП по длине волны и углу падения излучения оптической гармоники, наблюдается усиление ГВГ в 30 раз по сравнению с тонкой плёнкой металла.
4. Обнаружено усиление генерации третьей оптической гармоники в структуре ФК/металл при реализации двойного резонанса ТПП. При выполне-

нии условий резонанса ТПП первого порядка на частоте накачки и условий резонанса ТПП третьего порядка на частоте третьей оптической гармоники, наблюдается усиление ГТГ на четыре порядка величины по сравнению с тонкой плёнкой металла. Максимальная нормированная эффективность генерации третьей оптической гармоники составляет в данном случае $2 \cdot 10^{-8} \text{ Вт}^{-2}$.

5. Обнаружено гибридное состояние таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов при углах падения излучения на структуру ФК/металл, превышающих угол полного внутреннего отражения. Дисперсионный закон гибридного состояния имеет две компоненты: таммовскую и поверхностно-плазмонную, которые спектрально не пересекаются, а расстояние между ними составляет 75 ± 5 нм при толщине золотой плёнки 30 нм. Поверхностно-плазмонная компонента при этом смещена в длинноволновую область спектра на 80 нм по сравнению с дисперсионным законом поверхностного плазмона, возбуждающегося в отсутствии таммовского. Спектральное расстояние между дисперсионными законами компонент гибридного состояния уменьшается с ростом толщины металлической плёнки. При толщине больше 70 нм, дисперсионные кривые ТПП и ППП пересекаются

В заключение автор выражает благодарность своему научному руководителю Андрею Анатольевичу Федянину за постановку интересных научных задач, помощь в планировании, проведении и обсуждении результатов исследований по теме диссертации; Владимиру Олеговичу Бессонову и Ирине Владимировне Соболевой за помощь в освоении научного оборудования, техники и методики эксперимента и методов анализа экспериментальных данных; Полине Петровне Вабищевич за полезные дискуссии, а также своей семье за веру и поддержку.

Список литературы

- [1] *Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Nikulin A. A., Fedyanin A. A.* Observation of hybrid state of Tamm and surface plasmon-polaritons in one-dimensional photonic crystals // *Appl. Phys. Lett.* — 2013. — т. 103, № 6. — с. 061112. **11, 23, 109**
- [2] *Afinogenov B. I., Popkova A. A., Bessonov V. O., Fedyanin A. A.* Measurements of the femtosecond relaxation dynamics of Tamm plasmon-polaritons // *Appl. Phys. Lett.* — 2016. — т. 109, № 17. — с. 171107. **11**
- [3] *Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Fedyanin A. A.* Second-harmonic generation enhancement in the presence of Tamm plasmon-polaritons // *Opt. Lett.* — 2014. — т. 39, № 24. — с. 6895–6898. **11**
- [4] *Afinogenov B. I., Popkova A. A., Bessonov V. O., Fedyanin A. A.* Optical harmonics generation in metal/dielectric heterostructures in the presence of Tamm plasmon-polaritons // *Proc. SPIE.* — 2016. — т. 9756. — с. 975611–975611–7. **11**
- [5] *Тамм И. Е.* О возможной связи электронов на поверхностях кристалла // *ЖЭТФ.* — 1933. — т. 3. — с. 34–35. **12**
- [6] *Kronig R. d. L., Penney W.* Quantum mechanics of electrons in crystal lattices // *Proc. Roy. Soc. London Ser. A / The Royal Society.* — т. 130. — 1931. — с. 499–513. **12**
- [7] *Тамм И. Е.* Собрание научных трудов в двух томах. Том 1. — М.: Наука, 1975. — с. 216–227. **12, 13**
- [8] *Shockley W.* On the surface states associated with a periodic potential // *Phys. Rev.* — 1939. — т. 56, № 4. — с. 317. **13**
- [9] *Kivshar Y. S.* Nonlinear Tamm states and surface effects in periodic photonic structures // *Las. Phys. Lett.* — 2008. — т. 5, № 10. — с. 703. **15**

- [10] Брандт Н. Б., Кульбачинский В. А. Квазичастицы в физике конденсированного состояния. — М.:Физматлит, 2005. 15
- [11] Raether H. Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings. — Springer-Verlag, 1988. 15
- [12] Yeh P., Yariv A., Cho A. Optical surface waves in periodic layered media // *Appl. Phys. Lett.* — 1978. — т. 32. — с. 104. 15
- [13] Meade R., Brommer K., Rappe A., Joannopoulos J. Electromagnetic Bloch waves at the surface of a photonic crystal // *Phys. Rev. B.* — 1991. — т. 44, № 19. — с. 10961–10964. 15
- [14] Soboleva I. V., Moskalenko V. V., Fedyanin A. A. Giant Goos-Hänchen effect and Fano resonance at photonic crystal surfaces // *Phys. Rev. Lett.* — 2012. — т. 108. — с. 123901. 15
- [15] Kretschmann E. Decay of non radiative surface plasmons into light on rough silver films. comparison of experimental and theoretical results // *Opt. Comm.* — 1972. — т. 6, № 2. — с. 185–187. 15
- [16] Otto A. Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection // *Z. Phys. A.* — 1968. — т. 216. — с. 398–410. 15
- [17] Teng Y.-Y., Stern E. Plasma radiation from metal grating surfaces // *Phys. Rev. Lett.* — 1967. — т. 19. — с. 511–514. 15
- [18] Lesuffleur A., Im H., Lindquist N., Oh S.-H. Periodic nanohole arrays with shape-enhanced plasmon resonance as real-time biosensors // *Appl. Phys. Lett.* — 2007. — т. 90, № 24. — с. 243110. 15
- [19] Kabashin A. V., Evans P., Pastkovsky S., Hendren W., A.Wurtz G., Atkinson R., Pollard R., Podolskiy V. A., Zayats A. V. Plasmonic nanorod metamaterials for biosensing // *Nat. Materials.* — 2009. — т. 8. — с. 867–871. 15

- [20] Galush W., Shelby S., Mulvihill M., Tao A., Yang P., Groves J. A nanocube plasmonic sensor for molecular binding on membrane surfaces // *Nano Lett.* — 2009. — т. 9, № 5. — с. 2077–2082. 15
- [21] Guillermain E., Lysenko V., Benyattou T. Surface wave photonic device based on porous silicon multilayers // *J. Lumin.* — 2006. — т. 121, № 2. — с. 319–321. 15
- [22] Shinn M., Robertson W. Surface plasmon-like sensor based on surface electromagnetic waves in a photonic band-gap material // *Sens. Act. B.* — 2005. — т. 105, № 2. — с. 360–364. 15
- [23] Michelotti F., Sciacca B., Dominici L., Quaglio M., Descrovi E., Giorgis F., Geobaldo F. Fast optical vapour sensing by Bloch surface waves on porous silicon membranes // *Phys. Chem. Chem. Phys.* — 2009. — т. 12, № 2. — с. 502–506. 15
- [24] Kaliteevski M., Iorsh I., Brand S., Abram R. A., Chamberlain J. M., Kavokin A. V., Shelykh I. A. Tamm plasmon-polaritons: Possible electromagnetic states at the interface of a metal and a dielectric Bragg mirror // *Phys. Rev. B.* — 2007. — т. 76. — с. 165415. 16, 17
- [25] Gaspar-Armenta J. A., Villa F. Photonic surface-wave excitation: photonic crystal-metal interface // *J. Opt. Soc. Am. B.* — 2003. — т. 20, № 11. — с. 2349–2354. 16
- [26] Sasin M. E., Seisyan R. P., Kalitseevski M. A., Brand S., Abram R. A., Chamberlain J. M., Egorov A. Y., Vasil'ev A. P., Mikhlin V. S., Kavokin A. V. Tamm plasmon polaritons: Slow and spatially compact light // *Appl. Phys. Lett.* — 2008. — т. 92, № 25. — с. 251112. 16, 17
- [27] Goto T., Baryshev A., Inoue M., Dorofeenko A., Merzlikin A., Vinogradov A., Lisyansky A., Granovsky A. Tailoring surfaces of one-dimensional

- magnetophotonic crystals: Optical Tamm state and Faraday rotation // *Phys. Rev. B*. — 2009. — т. 79, № 12. — с. 125103. 18
- [28] Виноградов А. П., Дорофеев А. В., Мерзликин А. М., Лисянский А. А. Поверхностные состояния в фотонных кристаллах // *УФН*. — 2010. — т. 180, № 3. — с. 249–263. 18
- [29] Kaliteevski M., Lazarenko A., Il'inskaya N., Zadiranov Y. M., Sasin M., Zaitsev D., Mazlin V., Brunkov P., Pavlov S., Egorov A. Y. Experimental demonstration of reduced light absorption by intracavity metallic layers in Tamm plasmon-based microcavity // *Plasmonics*. — 2015. — т. 10, № 2. — с. 281–284. 18
- [30] Lheureux G., Azzini S., Symonds C., Senellart P., Lemaître A., Sauvan C., Hugonin J.-P., Greffet J.-J., Bellessa J. Polarization-controlled confined Tamm plasmon lasers // *ACS Photonics*. — 2015. — т. 2, № 7. — с. 842–848. 19
- [31] Brückner R., Sudzius M., Hintschich S. I., Fröb H., Lyssenko V. G., Kaliteevski M. A., Iorsh I., Abram R. A., Kavokin A. V., Leo K. Parabolic polarization splitting of Tamm states in a metal-organic microcavity // *Appl. Phys. Lett.* — 2012. — т. 100, № 6. — с. 062101. 19, 21
- [32] Braun T., Baumann V., Iff O., Höfling S., Schneider C., Kamp M. Enhanced single photon emission from positioned InP/GaInP quantum dots coupled to a confined Tamm-plasmon mode // *Appl. Phys. Lett.* — 2015. — т. 106, № 4. — с. 041113. 19
- [33] Gessler J., Baumann V., Emmerling M., Amthor M., Winkler K., Höfling S., Schneider C., Kamp M. Electro optical tuning of Tamm-plasmon exciton-polaritons // *Appl. Phys. Lett.* — 2014. — т. 105, № 18. — с. 181107. 19

- [34] Brückner R., Sudzius M., Hintschich S. I., Fröb H., Lyssenko V. G., Leo K. Hybrid optical Tamm states in a planar dielectric microcavity // *Phys. Rev. B*. — 2011. — т. 83. — с. 033405. 19, 20, 21
- [35] Symonds C., Lemaître A., Homeyer E., Plenet J. C., Bellessa J. Emission of Tamm plasmon/exciton polaritons // *Appl. Phys. Lett.* — 2009. — т. 95, № 15. — с. 151114. 19, 21
- [36] Kaliteevski M., Brand S., Abram R. A., Iorsh I., Kavokin A. V., Shelykh I. A. Hybrid states of Tamm plasmons and exciton polaritons // *Appl. Phys. Lett.* — 2009. — т. 95, № 25. — с. 251108. 21
- [37] Brückner R., Zakhidov A., Scholz R., Sudzius M., Hintschich S., Fröb H., Lyssenko V., Leo K. Phase-locked coherent modes in a patterned metal-organic microcavity // *Nat. Photonics*. — 2012. — т. 6. — с. 322–326. 21, 22
- [38] Gazzano O., de Vasconcellos S. M., Gauthron K., Symonds C., Bloch J., Voisin P., Bellessa J., Lemaitre A., Senellart P. Evidence for confined Tamm plasmon modes under metallic microdisks and application to the control of spontaneous optical emission // *Phys. Rev. Lett.* — 2011. — т. 107. — с. 247402. 22
- [39] Gazzano O., de Vasconcellos S. M., Gauthron K., Symonds C., Voisin P., Bellessa J., Lemaître A., Senellart P. Single photon source using confined Tamm plasmon modes // *Appl. Phys. Lett.* — 2012. — т. 100, № 23. — с. 232111. 22
- [40] Liu H., Sun X., Yao F., Pei Y., Yuan H., Zhao H. Controllable coupling of localized and propagating surface plasmons to Tamm plasmons // *Plasmonics*. — 2012. — т. 7. — с. 749–754. 23
- [41] Auguie B., Fuertes M. C., Angelomé P. C., Abdala N. L., Soler Illia G. J., Fainstein A. Tamm plasmon resonance in mesoporous multilayers: toward a sensing application // *ACS Photonics*. — 2014. — т. 1, № 9. — с. 775–780. 23

- [42] *Das R., Srivastava T., Jha R.* Tamm-plasmon and surface-plasmon hybrid-mode based refractometry in photonic bandgap structures // *Opt. Lett.* — 2014. — т. 39, № 4. — с. 896–899. [23](#)
- [43] *Badugu R., Lakowicz J. R.* Tamm state-coupled emission: Effect of probe location and emission wavelength // *J. Phys. Chem. C.* — 2014. — т. 118, № 37. — с. 21558–21571. [23](#)
- [44] *Azzini S., Lheureux G., Symonds C., Benoit J.-M., Senellart P., Lemaitre A., Greffet J.-J., Blanchard C., Sauvan C., Bellessa J.* Generation and spatial control of hybrid Tamm plasmon/surface plasmon modes // *ACS Photonics.* — 2016. — т. 3, № 10. — с. 1776–1781. [23](#)
- [45] *Peatross J., Rundquist A.* Temporal decorrelation of short laser pulses // *J. Opt. Soc. Am. B.* — 1998. — т. 15, № 1. — с. 216–222. [24](#)
- [46] *Ropers C., Stibenz G., Steinmeyer G., Müller R., Park D., Lee K., Kihm J., Kim J., Park Q., Kim D., Lienau C.* Ultrafast dynamics of surface plasmon polaritons in plasmonic metamaterials // *Appl. Phys. B.* — 2006. — т. 84. — с. 183–189. [25](#), [26](#)
- [47] *Vengurlekar A. S., Gopal A. V., Ishihara T.* Femtosecond pulse distortion at surface plasmon resonances in a plasmonic crystal: Effect of surface plasmon lifetime // *Appl. Phys. Lett.* — 2006. — т. 89, № 18. — с. 181927. [25](#), [27](#)
- [48] *Vabishchevich P., Bessonov V., Sychev F., Shcherbakov M., Dolgova T., Fedyanin A.* Femtosecond relaxation dynamics of surface plasmon-polaritons in the vicinity of Fano-type resonance // *JETP Lett.* — 2011. — т. 92, № 9. — с. 575–579. [25](#), [26](#), [28](#)
- [49] *Vabishchevich P. P., Shcherbakov M., Bessonov V., Dolgova T., Fedyanin A.* Femtosecond pulse shaping with plasmonic crystals // *JETP Lett.* — 2015. — т. 101, № 12. — с. 787–792. [25](#)

- [50] *Ropers C., Elsaesser T., Cerullo G., Zavelani-Rossi M., Lienau C.* Ultrafast optical excitations of metallic nanostructures: from light confinement to a novel electron source // *New J. Phys.* — 2007. — т. 9, № 10. — с. 397. 25
- [51] *Melentiev P., Afanasiev A., Balykin V.* Optical Tamm state on a femtosecond time scale // *Phys. Rev. A.* — 2013. — т. 88, № 5. — с. 053841. 26
- [52] *Kubo A., Onda K., Petek H., Sun Z., Jung Y. S., Kim H. K.* Femtosecond imaging of surface plasmon dynamics in a nanostructured silver film // *Nano Lett.* — 2005. — т. 5, № 6. — с. 1123–1127. 29
- [53] *Kubo A., Pontius N., Petek H.* Femtosecond microscopy of surface plasmon polariton wave packet evolution at the silver/vacuum interface // *Nano Lett.* — 2007. — т. 7, № 2. — с. 470–475. 29
- [54] *Nozaki K., Tanabe T., Shinya A., Matsuo S., Sato T., Taniyama H., Notomi M.* Sub-femtojoule all-optical switching using a photonic-crystal nanocavity // *Nat. Photonics.* — 2010. — т. 4, № 7. — с. 477–483. 29
- [55] *Van V., Ibrahim T., Ritter K., Absil P., Johnson F., Grover R., Goldhar J., Ho P.-T.* All-optical nonlinear switching in GaAs-AlGaAs microring resonators // *IEEE Photon. Technol. Lett.* — 2002. — т. 14, № 1. — с. 74–76. 29
- [56] *Shcherbakov M. R., Vabishchevich P. P., Shorokhov A. S., Chong K. E., Choi D.-Y., Staude I., Miroshnichenko A. E., Neshev D. N., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Ultrafast all-optical switching with magnetic resonances in nonlinear dielectric nanostructures // *Nano Lett.* — 2015. — т. 15, № 10. — с. 6985–6990. 29
- [57] *Almeida V. R., Barrios C. A., Panepucci R. R., Lipson M.* All-optical control of light on a silicon chip // *Nature.* — 2004. — т. 431, № 7012. — с. 1081–1084. 29

- [58] *Wagner M., Fei Z., McLeod A. S., Rodin A. S., Bao W., Iwinski E. G., Zhao Z., Goldflam M., Liu M., Dominguez G. u dp.* Ultrafast and nanoscale plasmonic phenomena in exfoliated graphene revealed by infrared pump-probe nanoscopy // *Nano Lett.* — 2014. — т. 14, № 2. — с. 894–900. 29
- [59] *Ni G., Wang L., Goldflam M., Wagner M., Fei Z., McLeod A., Liu M., Keilmann F., Özyilmaz B., Neto A. C. u dp.* Ultrafast optical switching of infrared plasmon polaritons in high-mobility graphene // *Nat. Photonics.* — 2016. — т. 10, № 4. — с. 244–247. 29
- [60] *Chen Y.-C., Raravikar N., Schadler L., Ajayan P., Zhao Y.-P., Lu T.-M., Wang G.-C., Zhang X.-C.* Ultrafast optical switching properties of single-wall carbon nanotube polymer composites at 1.55 μm // *Appl. Phys. Lett.* — 2002. — т. 81, № 6. — с. 975–977. 29
- [61] *Del Fatti N., Voisin C., Achermann M., Tzortzakis S., Christofilos D., Vallée F.* Nonequilibrium electron dynamics in noble metals // *Phys. Rev. B.* — 2000. — т. 61, № 24. — с. 16956. 29, 31, 74
- [62] *Del Fatti N., Bouffanais R., Vallée F., Flytzanis C.* Nonequilibrium electron interactions in metal films // *Phys. Rev. Lett.* — 1998. — т. 81, № 4. — с. 922. 29, 30, 74
- [63] *Groeneveld R. H., Sprik R., Lagendijk A.* Femtosecond spectroscopy of electron-electron and electron-phonon energy relaxation in Ag and Au // *Phys. Rev. B.* — 1995. — т. 51, № 17. — с. 11433. 29
- [64] *Hohlfeld J., Wellershoff S.-S., Güttele J., Conrad U., Jähnke V., Matthias E.* Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals // *Chem. Phys.* — 2000. — т. 251, № 1. — с. 237–258. 29, 30
- [65] *Sabbah A., Riffe D. M.* Femtosecond pump-probe reflectivity study of silicon carrier dynamics // *Phys. Rev. B.* — 2002. — т. 66, № 16. — с. 165217. 29

- [66] *Cho G., Kütt W., Kurz H.* Subpicosecond time-resolved coherent-phonon oscillations in GaAs // *Phys. Rev. Lett.* — 1990. — т. 65, № 6. — с. 764. 29
- [67] *Goldman J., Prybyla J.* Ultrafast dynamics of laser-excited electron distributions in silicon // *Phys. Rev. Lett.* — 1994. — т. 72, № 9. — с. 1364. 29
- [68] *Zielbauer J., Wegener M.* Ultrafast optical pump THz-probe spectroscopy on silicon // *Appl. Phys. Lett.* — 1996. — т. 68, № 9. — с. 1223–1225. 29
- [69] *Sun C.-K., Vallée F., Acioli L. H., Ippen E. P., Fujimoto J. G.* Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold // *Phys. Rev. B.* — 1994. — т. 50. — с. 15337–15348. 29, 30
- [70] *van Exter M., Lagendijk A.* Ultrashort surface-plasmon and phonon dynamics // *Phys. Rev. Lett.* — 1988. — т. 60. — с. 49–52. 31
- [71] *MacDonald K. F., Samson Z. L., Stockman M. I., Zheludev N. I.* Ultrafast active plasmonics // *Nat. Photonics.* — 2008. — т. 3. — с. 55–58. 32
- [72] *Baida H., Mongin D., Christofilos D., Bachelier G., Crut A., Maioli P., Del Fatti N., Vallée F.* Ultrafast nonlinear optical response of a single gold nanorod near its surface plasmon resonance // *Phys. Rev. Lett.* — 2011. — т. 107. — с. 057402. 33
- [73] *Pohl M., Belotelov V. I., Akimov I. A., Kasture S., Vengurlekar A. S., Gopal A. V., Zvezdin A. K., Yakovlev D. R., Bayer M.* Plasmonic crystals for ultrafast nanophotonics: Optical switching of surface plasmon polaritons // *Phys. Rev. B.* — 2012. — т. 85. — с. 081401. 33, 34
- [74] *Клычко Д. Н.* Физические основы квантовой электроники. — М.:Наука, 1986. 35
- [75] *Rudnick J., Stern E. A.* Second-harmonic radiation from metal surfaces // *Phys. Rev. B.* — 1971. — т. 4. — с. 4274–4290. 36

- [76] *Krause D., Teplin C. W., Rogers C. T.* Optical surface second harmonic measurements of isotropic thin-film metals: Gold, silver, copper, aluminum, and tantalum // *J. Appl. Phys.* — 2004. — т. 96, № 7. — с. 3626–3634. 37, 100
- [77] *Nakayama Y., Pauzauskie P. J., Radenovic A., Onorato R. M., Saykally R. J., Liphardt J., Yang P.* Tunable nanowire nonlinear optical probe // *Nature*. — 2007. — т. 447, № 7148. — с. 1098–1101. 37
- [78] *Campagnola P. J., Clark H. A., Mohler W. A., Lewis A., Loew L. M.* Second-harmonic imaging microscopy of living cells // *J. Biomed. Opt.* — 2001. — т. 6, № 3. — с. 277–286. 37
- [79] *Williams C. T., Beattie D. A.* Probing buried interfaces with non-linear optical spectroscopy // *Surf. Sci.* — 2002. — т. 500, № 1–3. — с. 545 – 576. 37
- [80] *Kim S., Jin J., Kim Y.-J., Park I.-Y., Kim Y., Kim S.-W.* High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement // *Nature*. — 2008. — т. 453, № 7196. — с. 757–760. 37
- [81] *Simon H. J., Mitchell D. E., Watson J. G.* Optical second-harmonic generation with surface plasmons in silver films // *Phys. Rev. Lett.* — 1974. — т. 33. — с. 1531–1534. 37, 38
- [82] *Corcoran B., Monat C., Grillet C., Moss D. J., Eggleton B. J., White T. P., O’Faolain L., Krauss T. F.* Green light emission in silicon through slow-light enhanced third-harmonic generation in photonic-crystal waveguides // *Nat. Photonics*. — 2009. — т. 3, № 4. — с. 206–210. 37
- [83] *Soboleva I., Murchikova E., Fedyanin A., Aktsipetrov O.* Second- and third-harmonic generation in birefringent photonic crystals and microcavities based on anisotropic porous silicon // *Appl. Phys. Lett.* — 2005. — т. 87. — с. 241110. 37
- [84] *Balakin A. V., Bushuev V. A., Koroteev N. I., Mantsyzov B. I., Ozheredov I. A., Shkurinov A. P., Boucher D., Masselin P.* Enhancement of

- second-harmonic generation with femtosecond laser pulses near the photonic band edge for different polarizations of incident light // *Opt. Lett.* — 1999. — т. 24, № 12. — с. 793–795. 37
- [85] *Dolgova T., Maidikovskii A., Martem'yanov M., Marovsky G., Mattei G., Schuhmacher D., Yakovlev V., Fedyanin A., Aktsipetrov O.* Giant second harmonic generation in microcavities based on porous silicon photonic crystals // *JETP Lett.* — 2001. — т. 73. — с. 6–9. 37
- [86] *Lee K. J., Wu J. W., Kim K.* Enhanced nonlinear optical effects due to the excitation of optical Tamm plasmon polaritons in one-dimensional photonic crystal structures // *Opt. Express.* — 2013. — т. 21, № 23. — с. 28817–28823. 37, 47
- [87] *Du G.-q., Jiang H.-t., Wang Z.-s., Chen H.* Optical nonlinearity enhancement in heterostructures with thick metallic film and truncated photonic crystals // *Opt. Lett.* — 2009. — т. 34, № 5. — с. 578–580. 37
- [88] *Zhang W. L., Jiang Y., Zhu Y. Y., Wang F., Rao Y. J.* All-optical bistable logic control based on coupled Tamm plasmons // *Opt. Lett.* — 2013. — т. 38, № 20. — с. 4092–4095. 37
- [89] *Xue C., Jiang H., Chen H.* Highly efficient all-optical diode action based on light-tunneling heterostructures // *Opt. express.* — 2010. — т. 18, № 7. — с. 7479–7487. 37
- [90] *Jiang H., Chen H., Li Y., Du G., Xue C., Lu H.* Enhancement of optical effects in zero-reflection metal slabs based on light-tunneling mechanism in metamaterials // *AIP Advances.* — 2012. — т. 2, № 4. — с. 041412. 37
- [91] *Hubert C., Billot L., Adam P.-M., Bachelot R., Royer P., Grand J., Gindre D., Dorkenoo K. D., Fort A.* Role of surface plasmon in second harmonic generation from gold nanorods // *Appl. Phys. Lett.* — 2007. — т. 90, № 18. — с. 181105. 38, 39

- [92] *Antoine R., Pellarin M., Palpant B., Broyer M., Prével B., Galletto P., Brevet P. F., Girault H. H.* Surface plasmon enhanced second harmonic response from gold clusters embedded in an alumina matrix // *J. Appl. Phys.* — 1998. — т. 84, № 8. — с. 4532–4536. 39
- [93] *Palomba S., Novotny L.* Nonlinear excitation of surface plasmon polaritons by four-wave mixing // *Phys. Rev. Lett.* — 2008. — т. 101. — с. 056802. 40
- [94] *Purcell E. M.* Spontaneous emission probabilities at radio frequencies // *Phys. Rev.* — 1946. — т. 69. — с. 681. 41
- [95] *Noda S., Fujita M., Asano T.* Spontaneous-emission control by photonic crystals and nanocavities // *Nat. photonics.* — 2007. — т. 1, № 8. — с. 449–458. 41
- [96] *Gérard J. M., Sermage B., Gayral B., Legrand B., Costard E., Thierry-Mieg V.* Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity // *Phys. Rev. Lett.* — 1998. — т. 81. — с. 1110–1113. 41
- [97] *Altug H., Englund D., Vučković J.* Ultrafast photonic crystal nanocavity laser // *Nat. Phys.* — 2006. — т. 2, № 7. — с. 484–488. 41
- [98] *Wu S., Buckley S., Schaibley J. R., Feng L., Yan J., Mandrus D. G., Hatami F., Yao W., Vučković J., Majumdar A. u dp.* Monolayer semiconductor nanocavity lasers with ultralow thresholds // *Nature.* — 2015. — т. 520, № 7545. — с. 69–72. 41
- [99] *Zakharko Y., Graf A., Schießl S. P., Hähnlein B., Pezoldt J., Gather M. C., Zaumseil J.* Broadband tunable, polarization-selective and directional emission of (6,5) carbon nanotubes coupled to plasmonic crystals // *Nano Lett.* — 2016. — т. 16, № 5. — с. 3278–3284. 41
- [100] *Voytova T., Yulin A., Krasnok A., Baryshnikova K., Belov P.* The role of Purcell effect for third harmonic generation // *J. Phys. Conf. Series / IOP Publishing.* — т. 690. — 2016. — с. 012034. 41

- [101] Auffèves-Garnier A., Simon C., Gérard J.-M., Poizat J.-P. Giant optical nonlinearity induced by a single two-level system interacting with a cavity in the Purcell regime // *Phys. Rev. A.* — 2007. — т. 75, № 5. — с. 053823. 41
- [102] Bermel P., Rodriguez A., Joannopoulos J. D., Soljačić M. Tailoring optical nonlinearities via the Purcell effect // *Phys. Rev. Lett.* — 2007. — т. 99, № 5. — с. 053601. 41
- [103] Bravo-Abad J., Rodriguez A., Bermel P., Johnson S. G., Joannopoulos J. D., Soljačić M. Enhanced nonlinear optics in photonic-crystal microcavities // *Opt. express.* — 2007. — т. 15, № 24. — с. 16161–16176. 41
- [104] Wood D. L., Nassau K. Refractive index of cubic zirconia stabilized with yttria // *Appl. Opt.* — 1982. — т. 21, № 16. — с. 2978–2981. 44, 100, 115
- [105] Johnson P. B., Christy R. W. Optical constants of the noble metals // *Phys. Rev. B.* — 1972. — т. 6. — с. 4370–4379. 44, 60, 100, 115
- [106] Malitson I. Interspecimen comparison of the refractive index of fused silica // *J. Opt. Soc. Am.* — 1965. — т. 55, № 10. — с. 1205–1209. 44, 100, 115
- [107] Bright T. J., Watjen J., Zhang Z., Muratore C., Voevodin A. A., Koukis D., Tanner D. B., Arenas D. J. Infrared optical properties of amorphous and nanocrystalline Ta₂O₅ thin films // *J. Appl. Phys.* — 2013. — т. 114, № 8. — с. 083515. 44
- [108] Kischkat J., Peters S., Gruska B., Semtsiv M., Chashnikova M., Klinkmüller M., Fedosenko O., Machulik S., Aleksandrova A., Monastyrskiy G. u dp. Mid-infrared optical properties of thin films of aluminum oxide, titanium dioxide, silicon dioxide, aluminum nitride, and silicon nitride // *Appl. Opt.* — 2012. — т. 51, № 28. — с. 6789–6798. 44
- [109] Stambolov T. The corrosion and conservation of metallic antiquities and works of art-a preliminary survey. — Amsterdam: Central research laboratory for objects of art and science, 1985. — с. 182–198. 46

- [110] Yariv A., Yeh P. Optical waves in crystals. — Wiley, New York, 1984. — т. 10. 47, 121
- [111] Lu W., Xie P., Zhang Z.-Q., Wong G. K. L., Wong K. S. Simultaneous perfect phase matching for second and third harmonic generations in ZnS/YF₃ photonic crystal for visible emissions // *Opt. Express*. — 2006. — т. 14, № 25. — с. 12353–12358. 47
- [112] Yee K. S. и др. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media // *IEEE Trans. Antennas Propag.* — 1966. — т. 14, № 3. — с. 302–307. 62
- [113] Борн М., Вольф Э. Основы Оптики. — М.:Наука, 1973. — с. 55–114. 67
- [114] Aktsipetrov O. A., Fedyanin A. A., Murzina T. V., Borisevich G. P., Kononenko A. A. Electroinduced and photoinduced effects in optical second-harmonic generation and hyper-Rayleigh scattering from thin films of bacteriorhodopsin // *J. Opt. Soc. Am. B*. — 1997. — т. 14, № 4. — с. 771–776. 83
- [115] Boyd R. W. Nonlinear optics. — Cambridge: Academic press, 2008. 100
- [116] Chen R. Y., Charlton M. D., Lagoudakis P. G. Chi 3 dispersion in planar tantalum pentoxide waveguides in the telecommunications window // *Opt. Lett.* — 2009. — т. 34, № 7. — с. 1135–1137. 100
- [117] Heavens O. S. Optical properties of thin films // *Rep. Prog. Phys.* — 1960. — т. 23, № 1. — с. 1. 141
- [118] Bethune D. Optical harmonic generation and mixing in multilayer media: analysis using optical transfer matrix techniques // *J. Opt. Soc. Am. B*. — 1989. — т. 6, № 5. — с. 910–916. 141
- [119] Weinstein W. The reflectivity and transmissivity of multiple thin coatings // *J. Opt. Soc. Am.* — 1947. — т. 37, № 7. — с. 576–577. 141

Приложение

Метод матриц распространения

Для расчета коэффициентов отражения света от исследуемых слоистых структур использовался метод матриц распространения [117–119]. Суть метода заключается в следующем. Рассмотрим систему, состоящую из слоев толщиной d_i с диэлектрической проницаемостью ε_i (Рис. 4.11). Падающая на среду электро-

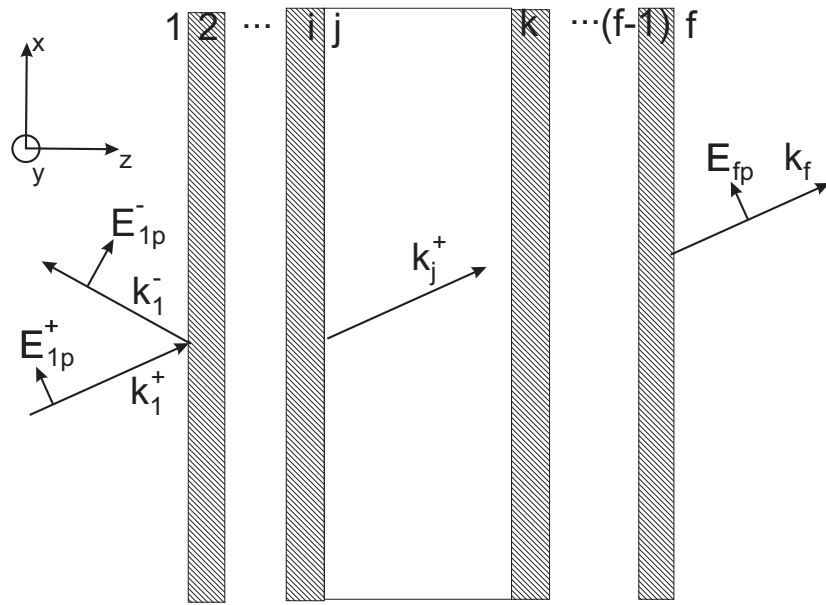


Рис. 4.11: Схема многослойной среды. Отмечены волновые вектора падающего, прошедшего и отраженного излучения и соответствующие им вектора напряженностей электрического поля [118].

магнитная волна определяется частотой ω и вакуумным волновым вектором k_0 с тангенциальной компонентой k_x . Электрическую компоненту в слое i запишем в виде:

$$\mathbf{E}_i^\pm(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_i^\pm \exp\{(\pm i N_i k_0 z) + (i k_x x - i \omega t)\}, \quad (4.4)$$

где $N_i = \frac{k_{zi}}{k_0}$; k_{zi} — z компонента волнового вектора в i -том слое. Знаки «+» и «−» определяют волны, распространяющиеся вправо и влево соответственно. Величина N_i может быть переписана через параметры слоя и геометрические

параметры задачи в виде: $N_i = \sqrt{\varepsilon_i(\omega) - \kappa^2}$, где $\kappa = \frac{k_x}{k_0}$. В случае слоя с действительным показателем преломления n , $N_i = n \cos \theta$, где θ — угол падения волны. Из условий непрерывности на границе слоя получаем уравнение, связывающее напряженности полей в i -том и j -том слоях:

$$\vec{\mathbf{E}}_i = \mathbf{M}_{ij} \vec{\mathbf{E}}_j, \quad (4.5)$$

где через $\vec{\mathbf{E}}$ обозначены двухкомпонентные векторы, элементами которых являются положительная $\mathbf{E}_i^+$ и отрицательная $\mathbf{E}_i^-$ волны. Можно показать, что матрица перехода $\mathbf{M}$ имеет вид:

$$\mathbf{M}_{ij} = \frac{1}{t_{ij}} \begin{bmatrix} 1 & r_{ij} \\ r_{ij} & 1 \end{bmatrix}, \quad (4.6)$$

где r_{ij} и t_{ij} — коэффициенты отражения и прохождения соответственно. Вторым шагом вводится матрица распространения Φ_i , которая определяет изменение амплитуды и фазы поля при прохождении одного слоя:

$$\vec{\mathbf{E}}_i(z_i + d_i) = \Phi_i \vec{\mathbf{E}}_i(z_i), \quad (4.7)$$

причем она имеет вид:

$$\Phi_i = \begin{bmatrix} \phi_i & 0 \\ 0 & \bar{\phi}_i \end{bmatrix}, \quad (4.8)$$

где $\phi_i = \exp(iN_i k_0 d_i)$, а $\bar{\phi}_i = \phi_i^{-1}$. С использованием этих символов общая матрица прохождения системы, состоящей из f слоев, запишется в виде:

$$\mathbf{T}(\omega) = \mathbf{M}_{f(f-1)} \Phi_{f-1} \mathbf{M}_{(f-1)(f-2)} \Phi_{f-2} \dots \mathbf{M}_{21}. \quad (4.9)$$

Коэффициенты отражения и прохождения для волны, падающей слева, определяются выражениями:

$$r = -\frac{T_{21}}{T_{22}} \quad t = T_{11} - \frac{T_{21}T_{12}}{T_{22}}, \quad (4.10)$$

где T_{21} и T_{22} — соответствующие элементы матрицы $\mathbf{T}(\omega)$. Амплитуды поля на левой границе каждого слоя могут быть найдены по формуле:

$$\vec{\mathbf{E}}_j = \mathbf{M}_{j(j-1)} \Phi_{j-1} \mathbf{M}_{(j-1)(j-2)} \dots \Phi_2 \mathbf{M}_{21} \begin{bmatrix} 1 \\ r \end{bmatrix}. \quad (4.11)$$

Полученные значения электрического поля могут быть использованы для нахождения амплитуд связанной волны оптической гармоники в слое j , индуцируемой нелинейной поляризацией в слое $\vec{\mathbf{P}}_j^{NL}$, и связанной с $\vec{\mathbf{E}}_j$ выражением:

$$\vec{\mathbf{P}}_j^{NL}(m\omega) = \hat{\chi}_j^{(m)}[\vec{\mathbf{E}}_j^+(\omega)\exp(iN_jk_0z) + \vec{\mathbf{E}}_j^-(\omega)\exp(-iN_jk_0z)]^m \cdot \exp(i(k_{sx}x - m\omega t)), \quad (4.12)$$

где $\hat{\chi}_j^{(m)}$ — нелинейная восприимчивость j -того слоя порядка m . Распространение связанных волн оптической гармоники описывается матрицами, аналогичными матрицам $\mathbf{M}_{ij}$, однако величины n, ε и N в них отличаются. Помимо связанных волн необходимо учитывать также свободные волны оптической гармоники, распространение которых описывается матрицами $\mathbf{M}_{ij}$ с коэффициентами n, ε и N , взятыми на частоте оптической гармоники. С использованием указанных матриц можно построить уравнение, описывающее распространение оптической гармоники влево и вправо от нелинейного j -того слоя и рассчитать амплитуды полей «отражённой» и «прошедшей» гармоники:

$$\bar{\mathbf{T}} \begin{bmatrix} E_f^+(j) \\ 0 \end{bmatrix} - \begin{bmatrix} 0 \\ E_1^-(j) \end{bmatrix} = \bar{\mathbf{S}}_j, \quad (4.13)$$

где $\bar{\mathbf{T}}$ — матрица пропускания структуры на частоте оптической гармоники, а $\bar{\mathbf{S}}_j$ — вектор нелинейных источников. $E_f^+(j)$ соответствует амплитуде поля гармоники, генерированной в геометрии пропускания, а $E_1^-(j)$ — амплитуде поля гармоники, генерированной в геометрии отражения. Если в системе существует несколько нелинейных слоёв, итоговая амплитуда прошедшей или отражённой гармоники является суммой вкладов от каждого из слоёв, рассчитанных по формуле 4.13.