на правах рукописи

Афиногенов Борис Игоревич

Фемтосекундная и нелинейно-оптическая спектроскопия фотонных кристаллов в присутствии таммовских плазмонполяритонов

01.04.21 - лазерная физика

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Москва — 2016

Работа выполнена на кафедре квантовой электроники физического факультета Московского государственного университета имени М. В. Ломоносова

Научный руководитель:	доктор физико-математических наук, профессор Федянин Андрей Анатольевич
Научный консультант:	доктор физико-математических наук, профессор Панов Владимир Иванович
Официальные оппоненты:	доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Мерзликин Александр Михайлович Институт теоретической и прикладной электро- динамики Российской академии наук кандидат физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Мелентьев Павел Николаевич Институт спектроскопии Российской академии наук
Ведущая организация:	Санкт-Петербургский национальный исследо- вательский университет информационных тех- нологий, механики и оптики

Защита состоится « » 2017 г. в 15:00 на заседании диссертационного совета Д 501.001.31 при Московском государственном университете имени М. В. Ломоносова по адресу: 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 62, корпус нелинейной оптики, аудитория им. С. А. Ахманова. С текстом диссертации можно ознакомиться в Отделе диссертаций Научной библиотеки МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский пр-т, д. 27), на сайте физического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова phys.msu.ru/rus/research/disser/sovet-D501-001-31/, и на сайте диссертационного совета istina.msu.ru/dissertation_councils/287244/.

Автореферат разослан « » 2017 г.

Ученый секретарь диссертационного совета Д 501.001.31, кандидат физико-математических наук

А.А. Коновко

Общая характеристика работы

Диссертационная работа посвящена экспериментальному исследованию оптических и нелинейно-оптических свойств структур «фотонный кристаллметаллическая 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 плазмонполяритоны (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 обусловливают применение 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 прежде 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 струткур 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 гибрид-

ных 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 созданием компактных лазеров на основе структур, поддерживающих гибридные состояния. В подобных структурах возможна перекачка 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 временны́х характеристик оптического отклика фотоннокристаллических структур, поддерживающих возбуждение таммовских плазмон-поляритонов, а также исследование нелинейно-оптического отклика данных структур.

Научная новизна работы состоит в следующем:

- 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.
- 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 моду-

ляции 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 ФК/металл. 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.

На защиту выносятся следующие основные положения:

- 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, приводит 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.
- Х Всероссийский молодежный конкурс-конференция научных работ по оптике и лазерной физике, Самара, Россия, ноябрь 2012.

Основные результаты диссертации **опубликованы** в 16 печатных работах, полный список которых приведён в конце автореферата, в том числе в 4 публикациях в журналах «Applied Physics Letters», «Optics Letters» и «SPIE Proceedings» [1–4].

Содержание работы

Первая глава содержит обзор литературы по оптическим свойствам таммовских плазмон-поляритонов и их гибридных состояний, по оптическим методикам изучения сверхбыстрых процессов и по исследованию нелинейно-оптических эффектов в присутствии локализованных состояний электромагнитного поля.

Во второй главе приведены характеристики экспериментальных образцов ФК/металл, показаны результаты частотно-угловой спектроскопии коэффициентов отражения и пропускания, результаты измерения кросс-корреляционных функций фемтосекундных лазерных импульсов, отражённых от образцов при условии возбуждения ТПП, а также результаты фемтосекундной спектроскопии коэффициента отражения образцов при возбуждении ТПП.

Исследуемые образцы представляют собой наборы диэлектрических слоёв с чередующимся показателем преломления (одномерные фотонные кристаллы), покрытые сверху полупрозрачными плёнками благородных металлов. Структура образцов приведена на рисунках 1(a)-(B). Использовались три серии образцов, отличающихся спектральным положением фотонной запрещённой зоны ФК и, как следствие, резонансной частотой возбуждения ТПП. Так, в образцах серии 1 ТПП возбуждается на длине волны 800 нм при нормальном падении излучения, в образцах серии 2 — на длине волны 820 нм, а в образцах серии 3 — на длине волны 1570 нм. Структура образца серии 3 была оптимизирована таким образом, чтобы при угле падения 20°, длина волны возбуждения фундаментальной моды ТПП была равна в точности утроенной длине волны возбуждения ТПП третьего порядка, что не реализуется в образцах иной геометрии. На рисунке $1(\Gamma)$ показан спектр коэффициента пропускания образца серии 2 и соответствующего фотонного кристалла без металлической плёнки при нормальном падении излучения.



Рис. 1: (а)–(в) Схемы образцов. (г) Спектр коэффициента пропускания образца серии 2.

В спектре ФК можно выделить фотонную запрещённую зону (ФЗЗ) на длинах волн 660–920 нм в которой пропускание составляет не более 5%. В спектре коэффициента пропускания образца внутри ФЗЗ наблюдается узкий резонанс на длине волны 820 нм, соответствующий возбуждению ТПП. Сплошными кривыми показаны результаты чис-

ленного расчёта методом матриц распространения, которые в целом хорошо совпадают с экспериментальными данными. При увеличении угла падения излучения на образцы ФК/металл длина волны возбуждения ТПП смещается в коротковолновую область спектра. Кроме того, снимается вырождение резонансной длины волны ТПП по поляризации падающего излучения.

Время жизни ТПП определялось методом измерения кросс-корреляционных функций лазерного импульса, отраженного от образца (импульс сигнала) и импульса сравнения (далее ККФ) в стандартной схеме, описанной в работе [17]. В качестве источника излучения использовался титансапфировый лазер, генерирующий импульсы длительностью 50 фс с частотой повторения 80 МГц. Регистрировалась интенсивность неколлинеарной второй оптической гармоники $I_{2\omega}$, генерированной в нелинейном кристалле импульсами сигнала и сравнения, в зависимости от времени задержки между ними τ , пропорциональная интенсивностной ККФ второго порядка:

$$I_{2\omega}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} E_{sig}^2(t) E_{ref}^2(t-\tau) dt \quad , \tag{1}$$

где E_{sig} и E_{ref} — электрические поля импульса сигнала и сравнения, соответственно. На вставке (а) рисунка 2 показан спектр *p*-поляризованного импульса, отражённого от образца серии 2 под углом 30°, в котором наблюдается резонанс на длине волны 790 нм, связанный с возбуждением ТПП.

Точками на основном рисунке в логарифмическом масштабе по оси ординат показана измеренная ККФ, а сплошной красной кривой показана аппроксимация гауссовой функцией, соответствующей автокорреляционной функции импульса, падающего на структуру. Видно, что при отражении от образца возникает удлинение заднего фронта импульса. Форма заднего фронта хорошо аппроксимируется функцией вида $y = exp(-t/\tau_T)$, где величина $\tau_T = 26 \pm 1$ фс соответствет времени жизни ТПП. Методом конечных разностей во временной области был проведён расчёт огибающих электрического поля импульсов сигнала и сравнения и построена чис-



Рис. 2: Точки — ККФ *p*-поляризованного импульса, отражённого от образца серии 2 при угле падения 30°. Красная кривая — аппроксимация гауссовой функцией, зелёная кривая — аппроксимация функцией $y = exp(-t/\tau)$. Вставка (а): спектр отражённого импульса. Вставка (б): численный расчёт огибающей электрического поля падающего и отражённого импульсов.

ленная ККФ. Рассчитанные огибающие показаны на вставке (б) красной

кривой для импульса сравнения и синей кривой для импульса сигнала. Изменение формы отражённого импульса связано с перекачкой энергии в моду ТПП и последующим высвечиванием из неё спустя время жизни ТПП.

Подобные расчёты были измерения И численные проведены на образец и углов падения излучения ДЛЯ ДЛЯ других различных поляризаций излучения. На рисунке 3 точками показана зависимость времени жизни ТПП от угла падения, измеренная экспериментально, а сплошными кривыми рассчитанная численно. ____



Рис. 3: Зависимость времени жизни ТПП, возбуждаемого *p*- и *s*-поляризованным излучением, от угла падения излучения. Вставка: ККФ *p*- и *s*-поляризованных импульсов, отражённых от образца при угле падения 45° (точки), автокорреляционная функция падающего импульса (сплошная кривая).

При увеличении угла падения излучения время жизни ΤΠΠ, возбуждаемого *р*-поляризованным излучением, уменьшается, а вревозбуждаемого ΤΠΠ, МЯ ЖИЗНИ *s*-поляризованным излучением, увеличивается. Данное поведение определяется различной добротностью ТПП для р и в поляризаций при ненулевом угле падения излучения. В соответствии с законом Френеля коэффициент отражения *р*-поляризованного излучения уменьшается при увеличении угла падения, а *s*-поляризованного увеличивается. Таким образом, больших при углах падения, р-поляризованное излучение пере-

стаёт «чувствовать» периодическую структуру ФК и условия возбуждения ТПП не выполняются. На вставке к рисунку 3 показаны ККФ импульсов p и s поляризации при угле падения 45°, а также автокорреляционная функция падающего импульса. Времена жизни ТПП при данных условиях отличаются почти в два раза и составляют 21 ± 1 фс и 42 ± 1 фс для p и sполяризации соответственно.

Исследование влияния возбуждения ТПП на амплитудные и времен-

ные харакетристики сверхбыстрой модуляции коэффициента отражения структур ФК/металл было проведено с использованием методики «накачказонд» [18], источником излучения в которой служил титан-сапфировый лазер, генерировавший импульсы длительностью 45 фс с центральной длиной волны 780 нм. Плотность энергии накачки на образце составляла 270 мкДж·см⁻², а зонда — 8 мкДж·см⁻². На рисунке 4 красными точками показана временная зависимость относительного изменения коэффициента отражения ($\Delta R/R$) плёнки золота толщиной 30 нм, а чёрными точками — $\Delta R/R$ образца серии 1 при условии совпадения центральной длины волны импульса зонда и резонансной длины волны возбуждения ТПП.

Синей кривой на том же рисунке показана кросс-корреляционная функция импульсов накачки и зонда. Можно отметить, что $\Delta R/R$ и в золотой плёнке и в образце нарастает на временах -50 - +150 фс, после чего достигает максимального значения и далее спадает по закону $\Delta R/R \propto exp(-t/\tau_R)$, причем характерное время релаксации $\tau_R = 1$ пс одинаково для образца и золотой плёнки. В то же время максимальное значение $\Delta R/R$ образца серии 1 превосходит $\Delta R/R$ золотой плёнки в 15 раз. Для изучения механизмов усиления модуляции коэффициента



Рис. 4: Временная зависимость относительного изменения коэффициента отражения золотой плёнки (красные ромбы) и образца серии 1 при возбуждении ТПП (чёрные точки). Кросс-корреляционная функция импульсов накачки и зонда (синяя кривая).

отражения при возбуждении ТПП были измерены зависимости $\Delta R/R$ образца и золотой плёнки от длины волны излучения зонда и от временной задержки между импульсами зонда и накачки. На рисунке 5 сплошной кривой показана зависимость коэффициента отражения образца от длины волны излучения зонда. Показанный спектральный диапазон соответствует окрестности резонанса ТПП, характеризующегося уменьшением коэффициента отражения. Оранжевыми ромбами показан спектр относительного изменения коэффициента отражения плёнки золота толщиной 30 нм при временной задержке между импульсами зонда и накачки +150 фс. Абсолютная величина модуляции составляет 0.005% и не зависит от длины волны зондирующего излучения. Чёрными точками показана спектральная зависимость $\Delta R/R$ образца при той же временной задержке. Она имеет асимметричный вид, причём на коротковолновом склоне резонанса изменение коэфициента отражения отрицательно, а на длинноволновом — положительно. Максимальные значения модуляции $\Delta R/R$ составляют -0.035% и +0.095% на длинах волн 770 нм и 780 нм соответственно.



Рис. 5: Спектр коэффициента отражения образца (сплошная кривая). Спектры $\Delta R/R$ образца (чёрные точки) и золотой плёнки (оранжевые ромбы). Вставка: спектры коэффициента отражения образца в невозмущённом и возмущённом случаях. Величины сдвига и деформации резонанса ТПП увеличены для наглядности.

Поведение спектральной зависимости $\Delta R/R$ в образце серии 1 на длинах волн в окрестности резо-ТΠП объясняется нанса спектральным сдвигом резонанса ТПП. При взаимодействии импульса накачки с металлической плёнкой происходит перекачка энергии из лазерного импульса в электронную подсистему металла, прихарактерное чем время данного взаимодействия в золоте составляет около 200 фс. Изменение функ-

ции распределения электронов по энергиям f(E) приводит к изменению комплексной диэлектрической проницаемости золота. С другой стороны, резонансная частота возбуждения ТПП зависит от действительной части диэлектрической проницаемости ε' , а ширина резонанса ТПП определяется в том числе мнимой частью диэлектрической проницаемости ε'' . Таким образом, после взаимодействия образца с импульсом накачки происходит сдвиг резонанса ТПП в коротковолновую область спектра, а также изменение его формы. На вставке к рисунку 5 чёрной кривой показан спектр резонанса ТПП при временной задержке между импульсами накачки и зонда -150 фс, что соответствует невозмущённому случаю. Красной кривой показан спектр резонанса ТПП при временной задержке +150 фс, когда в электроную подсистему металла перекачана максимально возможная часть энергии импульса накачки. Величины сдвига и деформации увеличены по сравнению с наблюдаемыми в эксперименте для наглядности. Видно, что изменение коэффициента отражения образца является отрицательным на коротковолновом склоне резонанса и положительным на его длинноволновом склоне, что и наблюдается в эксперименте. В дальнейшем путём электрон-фононного взаимодействия происходит релаксация f(E) и R к равновесным значениям.

Третья глава посвящена экспериментальному исследованию усиления нелинейно-оптических эффектов в образцах ФК/металл при возбуждении таммовских плазмон-поляритонов.

Нелинейно-оптические эффекты, в частности, генерация оптических гармоник, могут быть усилены за счёт двух механизмов. Первым из них является усиление локального электромагнитного поля накачки в областях образцов, обладающих большой нелинейной восприимчивостью. На частоте возбуждения ТПП наблюдается локализация электромагнитного поля вблизи границы раздела фотонный кристалл-металлическая плёнка. При рассмотрении случая генерации второй оптической гармоники (ГВГ) в исследуемых образцах, состоящих из слоёв центросимметричных материалов, источниками ВГ служат тонкие слои материалов, расположенные вблизи границ раздела слоёв. Таким образом, ожидается усиление ГВГ в образцах в случае, если частота излучения накачки совпадает с резонансной частотой ТПП.

Для подтверждения данного предположения была проведена спектроскопия интенсивности ВГ, генерированной в образце серии 1 в геометрии пропускания. Источником излучения служил титан-сапфировый лазер, генерировавший импульсы длительностью 130 фс. Плотность мощности излучения накачки на образце составляла 1 ГВт·см⁻². Часть излучения накачки, прошедшего через образец, направлялась в канал линейной регистрации, позволявший измерить спектр коэффициента пропускания образца. На рисунке 6 красной кривой показан спектр коэффициента пропускания образца серии 1 при угле падения излучения 20°, в котором наблюдается узкий пик в окрестности длины волны 765 нм, связанный с возбуждением ТПП.



Рис. 6: Красная кривая — спектр коэффициента пропускания образца. Чёрные точки — спектр интенсивности ВГ в *pp* комбинации поляризаций. Синие открытые точки то же в *ps* комбинации. На вставке показана зависимость интенсивности ВГ от угла поворота анализатора при длине волны накачки 765 нм. Угол падения составляет 20°.

В спектре интенсивности ВГ, генерированной в *pp* комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ, показанном чёрными точками, также наблюдается резонанс на длине волны 765 нм. На вставке показана зависимость интенсивности ВГ в максимуме резонанса от угла поворота анализатора. Соотношение интенсивностей ВГ *pp* и *ps* комбинаций составляет 200. Синими открытыми точками на основном графике показан спектр интенсивности ВГ *ps* комбинации, увеличенный в 20 раз. В нём наблюдается небольшой пик в окрестности резонансной длины волны ТПП. Усиление ГВГ в

симметрийно-запрещенной комбинации связано с деполяризованным и изотропным гиперрэлеевским рассеянием света на шероховатостях металлической плёнки. Спектроскопия интенсивности ВГ была проведена также для образца сравнения, представлявшего собой плёнку золота толщиной 30 нм. Коэффициент усиления ГВГ в образце серии 1 по сравнению с металлической плёнкой составил 120 на длине волны резонанса ТПП.

Подобные измерения были проведены для других углов падения излучения на образец и металлическую плёнку. Кроме того, методом матриц распространения с учётом нелинейности слоёв [19] был проведён расчёт зависимости коэффициента усиления ГВГ от угла падения и длины волны излучения накачки, результаты которого показаны на рисунке 7. В спектре можно отметить несколько резонансов усиления ГВГ. Два менее интенсивных спектрально расположены на длинах волн 610 нм и 690 нм при угле падения излучения 5° и связаны с локализацией излучения накачки в нелинейных слоях образца из-за возбуждения волноводных мод ФК. Наиболее интенсивный резонанс связан с возбуждением ТПП и усилением локального электромагнитного поля накачки на границе раздела Φ K/металл. Можно отметить, что при увеличении угла падения излучения на образец резонансы усиления ГВГ смещаются в коротковолновую область спектра, повторяя дисперсионные законы соответствующих возбуждений. При малых углах падения излучения наблюдается бо́льшее усиление ГВГ, что в первую очередь связано с малой интенсивностью ВГ, генерируемой в золотой плёнке. При увеличении угла падения коэффициент усиления ГВГ в резонансе ТПП уменьшается, а ширина резонанса увеличивается, что связано с уменьшением добротности резонанса ТПП для *p*-поляризованного излучения.

Сравнение расчётов и экспериментальных данных показало, что единственным источником сигнала ВГ является слой золота, толщиной в несколько атомов, расположенный на границе раздела ФК/металл. Вклад противоположной поверхности золота, а также приповерхностных слоёв диэлектриков является пренебрежимо малым в данных условиях.

Вторым механизмом усиления



Рис. 7: Численный расчёт частотно-углового спектра коэффициента усиления ГВГ в образце серии 1 по сравнению с плёнкой золота толщиной 30 нм.

генерации оптических гармоник является увеличение плотности фотонных состояний на частоте оптической гармоники за счёт нелинейно-оптического аналога эффекта Парселла. Для исследования данного механизма было проведено измерение зависимости интенсивности ВГ от угла падения излучения накачки на образец серии 2. Длина волны излучения накачки составляла 1560 нм таким образом, чтобы излучение ВГ на длине волны 780 нм оказалось в резонансе ТПП при угле падения около 35°. При этом длина волны излучения накачки находится в разрешенной зоне ФК, то есть отсутствует усиление соответствующего электромагнитного поля в нелинейно-активном слое образца. Измерения интенсивности ВГ показали, что при угле падения 38° возникает резонанс интенсивности, связанный с возбуждением ТПП на частоте ВГ. При этом интенсивность ВГ в максимуме резонанса превосходит интенсивность ВГ, генерированной в тонкой плёнке серебра, в 25 раз.

В образцах серии 3 возможна комбинация описанных выше механизмов; параметры слоёв были подобраны таким образом, чтобы при угле падения около 21° фундаментальный резонанс ТПП возбуждался на длине волны 1560 нм, а резонанс третьего порядка — на длине волны 520 нм. В таком случае происходит как увеличение локального электромагнитного поля излучения накачки, так и увеличение плотности фотонных состояний на частоте оптической гармоники (в данном случае третьей).



Рис. 8: Сплошная кривая — угловая зависимость коэффициента пропускания образца серии 3 на длине волны 1560 нм. Чёрные точки — угловая зависимость интенсивности ТГ в *pp* комбинации поляризаций. На вставке в двойном логарифмическом масштабе точками показана зависимость интенсивности ТГ от мощности излучения накачки при угле падения 21°, а сплошной линией — аппроксимация степенной функцией.

На рисунке 8 сплошной кривой показана зависимость коэффициента пропускания образца серии 3 на длине волны 1560 нм от угла падения излучения. В угловом спектре коэффициента пропускания можно выделить две резонансные особенности. Первая, расположенная в окрестности угла падения 21°, соответствует возбуждению ТПП, вторая, в окрестности 54°, — краю фундаментальной ФЗЗ ФК. Чёрными точками показана угловая зависимость интенсивности третьей оптической гармоники (ТГ), генерированной в геометрии пропускания в рр комбинации поляризаций. Можно отметить, что ГТГ усиливается на краю ФЗЗ и в резонансе ТПП, а

дополнительный пик в окрестности 36° связан с увеличением плотности фотонных состояний на частоте ТГ в волноводной моде третьего порядка. ГТГ в окрестности угла падения 21° усиливается за счёт двух процессов: локализации электромагнитного поля накачки в образце и увеличения плотности фотонных состояний на частоте ТГ за счёт возбуждения моды ТПП третьего порядка. Интенсивность ТГ в максимуме двойного резонанса превосходит интенсивность пика, связанного с краем ФЗЗ ФК, в пять раз. На вставке показана зависимость интенсивности ТГ при угле падения 21° от мощности излучения накачки. Зависимость хорошо аппроксимируется степенной функцией с показателем степени, равным 3. Показанная на рисунке 8 зависимость измерена для случая, когда излучение накачки падает на образец со стороны ФК. В случае падения излучения со стороны слоя металла интенсивность резонанса ТГ, связанного с возбуждением ТПП, дополнительно увеличивается в три раза, в то время как резонанс, связанный с краем ФЗЗ ФК, оказывается полностью подавленным. Максимальное измеренное усиление ГТГ в образце серии 3 по сравнению с серебряной плёнкой толщиной 30 нм составило $6 \cdot 10^4$.

Четвёртая глава посвящена экспериментальному наблюдению гибридного состояния таммовского и поверхностного плазмон-поляритонов, а также изучению его свойств.

Для возбуждения гибридного состояния использовался образец серии 1, помещённый на цилиндрическую призму с помощью иммерсионного масла таким образом, чтобы к призме крепилась подложка образца, а слой металла граничил с воздухом. Система призма/образец была помещена на моторизованный гониометр $\varphi - 2\varphi$, а источником излучения служила лампа накаливания, что позволяло измерять частотно-угловые спектры коэффициента отражения образца в автоматизированном режиме с разрешением по длине волны 1 нм, а по углу 0.5°. На рисунке 9(а) показана экспериментальная зависимость коэффициента отражения образца от длины волны и угла падения *p*-поляризованного излучения. При угле падения излучения 25° в зависимости можно выделить Φ 33 на длинах волн между 650 нм и 950 нм, характеризующуюся большим коэффициентом отражения. На длине волны 740 нм внутри ФЗЗ возбуждается ТПП, что приводит к уменьшению отражения в окрестности его резонанса. При увеличении угла падения ФЗЗ и резонанс ТПП смещаются в коротковолновую область спектра. При углах падения больше угла полного внутреннего отражения (около 42°) выполняются условия возбуждения поверхностного плазмон-поляритона на границе раздела металлическая плёнка-воздух. При угле падения 43° ППП возбуждается на длине волны 1000 нм, а при дальнейшем увеличении угла падения его резонансная длина волны быстро смещается в коротковолновую область спектра.



Рис. 9: (а) Экспериментально измеренный частотноугловой спектр коэффициента отражения образца серии 1 для *p*-поляризованного излучения. (б) Численный расчёт частотно-углового спектра методом матриц распространения. Сплошными кривыми показаны дисперсионные кривые ТПП и ППП в случае независимого возбуждения.

При углах падения от 45° до 50° дисперсионные кривые ТПП и ППП располагаются параллельно с характерным спектральным расстоянием между ними порядка 75 ± 5 нм. На рисунке 9(б) показаны результаты численного расчёта частотно-углового спектра коэффициента отражения образца, а также форма дисперсионных зависимостей ТПП и ППП, в том случае, если бы они возбуждались независимо. Видно, что возбуждение гибридного состояния приводит к расталкиванию дисперсионных кривых, причём резонансная длина волны возбуждения ТПП смещается в коротковолновую область, а длина волны возбуждения

ППП — в длинноволновую. Величина смещения зависит от толщины метал-

лической плёнки, поскольку моды ТПП и ППП возбуждаются на её противоположных поверхностях. Численные расчёты показали, что при толщине плёнки металла больше 70 нм ТПП и ППП не образуют гибридное состояние и возбуждаются независимо, а их дисперсионные кривые перестают расталкиваться. Для *s*-поляризованного излучения поверхностный плазмон не возбуждается, и в частотно-угловом спектре коэффициента отражения можно выделить только резонанс ТПП, который при увеличении угла падения излучения смещается в коротковолновую область спектра и уменьшается по амплитуде.

Заключение

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 ΦK /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 25кратному усилению по сравнению с величиной эффекта в золотой плёнке.
- 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 выполнении 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 2.10⁻⁸ 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

Список работ, опубликованных по теме диссертации

 Afinogenov B. I., Popkova A. A., Bessonov V. O., Fedyanin A. A. Measurements of the femtosecond relaxation dynamics of Tamm plasmonpolaritons // Appl. Phys. Lett. - 2016. - т. 109, № 17. - с. 171107.

- [2] 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. - T. 9756 - C. 975611.
- [3] Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Fedyanin A. A. Second-harmonic generation enhancement in the presence of Tamm plasmon-polaritons // Opt. Lett. - 2014. - T. 39, № 24. - c. 6895-6898.
- [4] 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.
- [5] Afinogenov B. I., Popkova A. A., Bessonov V. O., Fedyanin A. A. Direct measurements of the femtosecond dynamics of Tamm plasmonpolaritons // SPIE Optics+Photonics / International Society for Optics and Photonics. — 2016. — c. 992136.
- [6] Afinogenov B. I., Popkova A. A., Bessonov V. O., Fedyanin A. A. Efficient optical-harmonics generation and nonlinear Purcell effect in metal/photonic crystal structures // Technical digest of The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT), Minsk, Belarus. — 2016. — CD–ROM.
- [7] Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Fedyanin A. A. Femtosecond spectroscopy of the electron thermalization in gold in the vicinity of Tamm plasmon resonance // Book of abstracts of the International Conference «Days on Diffraction», Saint-Petersburg, Russia. — 2015. — CD–ROM.
- [8] Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Fedyanin A. A. Giant second-harmonic generation enhancement in the presence of Tamm plasmon-polariton // Book of abstracts of the International Conference «Days on Diffraction», Saint-Petersburg, Russia. — 2014. — CD–ROM.
- [9] Bessonov V. O., Afinogenov B. I., Fedyanin A. A. Tamm plasmonpolariton induced second-harmonic generation enhancement in photonic crystal structure // SPIE Photonics Europe / International Society for Optics and Photonics. - 2014. - c. 912745.
- [10] Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Fedyanin A. A. Femtosecond pulse distortion induced by Tamm plasmon polaritons in a metal/photonic crystal system // SPIE Photonics Europe / International Society for Optics and Photonics. - 2014. - c. 913666.
- [11] Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Fedyanin A. A. Ultrafast dynamics of Tamm plasmon-polaritons in metal/photonic crystal system // Frontiers in Optics / Optical Society of America. — 2013. — c. FTu4D–5.

- [12] Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Soboleva I. V., Fedyanin A. A. Observation of hybrid states of Tamm and surface plasmon-polaritons in photonic crystals // Frontiers in Optics / Optical Society of America. — 2013. — c. FTu4D-4.
- [13] Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Fedyanin A. A. Giant second-harmonic generation enhancement in the presence of Tamm plasmon-polariton // Frontiers in Optics / Optical Society of America. - 2013. - c. FW5C-4.
- [14] Afinogenov B. I., Bessonov V. O., Soboleva I. V., Fedyanin A. A. Hybrid states of surface and Tamm plasmon-polaritons in photonic crystals // Technical digest of The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT), Moscow, Russia. — 2013. — CD–ROM.
- [15] Афиногенов Б. И., Бессонов В. О., Соболева И. В., Федянин А. А. Гибридные состояния таммовских и поверхностных плазмон-поляритонов в одномерных фотонных кристаллах // Материалы X всероссийской конференции по оптике и лазерной физике, Самара, Россия. — 2012. — CD–ROM.
- [16] *Афиногенов Б. И., Бессонов В. О.* Оптические таммовские состояния в фотонных кристаллах // Материалы XIX международной конференции «Ломоносов», Москва, Россия. 2012. CD–ROM.

Список цитированной литературы

- [17] Peatross J., Rundquist A. Temporal decorrelation of short laser pulses // J. Opt. Soc. Am. B. — 1998. — т. 15, № 1. — с. 216—222.
- [18] Ippen E. P., Shank C. V., Bergman A. Picosecond recovery dynamics of malachite green // Chem. Phys. Lett.. 1976. т. 38, № 3. с. 611–614.
- [19] 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.