

на правах рукописи

Вабищевич Полина Петровна

Фемтосекундная динамика оптических,  
магнитооптических и нелинейно-оптических  
эффектов в плазмонных кристаллах  
и кремниевых наноструктурах  
с резонансами Ми

**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**

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией лазерной спектроскопии  
профессор **Балыкин Виктор Иванович**  
Институт спектроскопии Российской академии наук

кандидат физико-математических наук,  
ведущий научный сотрудник

**Мельник Николай Николаевич**

Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук

Ведущая организация: Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики

Защита состоится “ ” 2016 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, МГУ, ул. Академика Хохлова, дом 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) и на сайте физического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова <http://www.phys.msu.ru/rus/research/disser/sovets-D501-001-31/>.

Автореферат разослан “ ” 2016 г.

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

А.А. Коновко

## Общая характеристика работы

Диссертационная работа посвящена экспериментальному исследованию фемтосекундной динамики оптических и магнитооптических эффектов в плазмонных кристаллах, а также наблюдению нелинейно-оптических эффектов в кремниевых наноструктурах с резонансами Ми. Особое внимание уделено изучению влияния возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов (ПП) на фемтосекундные импульсы, отраженные от металлических наноструктур и плазмон-индуцированной эволюции магнитооптического эффекта Керра. Рассмотрены нелинейно-оптические эффекты в массивах кремниевых нанодисков, а также роль фотоиндуцированных процессов в аморфном кремнии на оптической отклик таких наноструктур.

**Актуальность** обусловлена проблемой управления оптическим излучением на микро- и наномасштабах. Тенденция к миниатюризации фотонных устройств и развитие оптической связи в телекоммуникациях приводят к необходимости проведения фундаментальных исследований в области управления электромагнитным излучением с помощью наноструктурированных сред. Этому способствует развитие литографических методик, с помощью которых стало возможно создание наноструктурированных материалов с характерными размерами особенностей порядка десятков и сотен нанометров. Такое наноструктурирование приводит к появлению качественно новых оптических свойств по сравнению с исходным материалом. Например, в металлических периодических субдлинноволновых решетках возможно возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов — связанных колебаний электромагнитного излучения и плазмы свободных электронов металла. По аналогии с фотонными кристаллами, плазмонные решетки часто называют плазмонными кристаллами — за счет возникновения периодичности в законе дисперсии ПП и возможного возникновения запрещенных зон для поверхностных плазмон-поляритонов.

Характерное время жизни ПП в оптическом диапазоне излучения порядка нескольких десятков-сотен фемтосекунд, поэтому представляет особый интерес изучение временных характеристик таких квазичастиц при помощи фемтосекундных лазерных импульсов. Временной профиль отраженного и прошедшего через структуру импульса изменяется в зависимости от поло-

жения на дисперсионной кривой ПП. Модификация импульса зависит от соотношения между параметрами самого импульса и параметрами резонанса ПП. До настоящего времени не были проведены спектральные измерения преобразования огибающей фемтосекундных импульсов при их взаимодействии с плазмонными наноструктурами. При этом необходимость заданного формирования огибающей фемтосекундных импульсов возникает как в прикладных исследованиях, так и в фундаментальной науке, например, в исследованиях взаимодействия света и вещества, в нелинейной оптике, в когерентном контроле квантовых состояний, в полностью оптическом переключении, в биомеханических и биомедицинских применениях, в оптической связи и других.

Возбуждение ПП чаще всего исследуется в таких материалах, как серебро, золото. Значительно реже поверхностные плазмон-поляритоны возбуждаются в магнитных металлах, таких как никель, кобальт и железо. Последние обладают ферромагнитным упорядочением, что приводит к зависимости их диэлектрической проницаемости от магнитного поля, а следовательно, к возможности наблюдения в них магнитооптических эффектов. Внешнее магнитное поле может быть использовано для управления оптическим откликом решеток из магнитных металлов, часто называемых магнитоплазмонными кристаллами. В магнитоплазмонных кристаллах из железа или никеля можно наблюдать усиление магнитооптического эффекта Керра (МОЭК), индуцированное возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов. Такое усиление до сих пор измерялось при помощи непрерывных источников излучения и его временная зависимость не рассматривалась. С другой стороны, ПП имеют время жизни порядка десятков-сотен фемтосекунд в видимом диапазоне оптического излучения, следовательно, эволюция МОЭК в магнитоплазмонных решетках должна наблюдаться на этих масштабах времен. Приложение магнитного поля позволит изменять форму огибающей фемтосекундных лазерных импульсов, соответственно, магнитоплазмонные кристаллы могут использоваться как активные устройства в телекоммуникациях.

Другим объектом повышенного интереса являются уединенные кремниевые наночастицы субдлинноволновых размеров, а также их массивы. Осо-

бую роль играют упорядоченные массивы кремниевых наночастиц, так как они наиболее просты для внедрения в технологию комплиментарных структур металл-оксид-полупроводник (КМОП). В них возможно возбуждение резонансов Ми и наблюдение так называемого оптического магнетизма — существования резонанса с ненулевым магнитным дипольным моментом на оптических частотах, что невозможно в обычных веществах, встречающихся в природе в естественном виде. Возбуждение Ми-резонансов приводит к усилению локального поля, а соответственно, и к усилению нелинейно-оптических эффектов. Кроме того, в отличие от металлов, в наноструктурах на основе кремниевых наночастиц отсутствуют омические потери. Это позволит использовать большие мощности лазерного излучения, и, соответственно, увеличить эффективность нелинейно-оптических процессов в таких наноструктурах. Массивы кремниевых наночастиц являются перспективными материалами для полностью оптических переключателей за счет возможности управления их оптическим откликом при помощи генерации свободных носителей. Временной отклик наноструктур на основе кремниевых наночастиц с характерными размерами  $\lambda/n$ , где  $\lambda$  — длина волны света,  $n$  — показатель преломления, ранее не был изучен и является новой и актуальной задачей.

**Целями** диссертационной работы являются экспериментальное определение временных характеристик оптического отклика плазмонных кристаллов, обнаружение временной зависимости плазмон-индуцированного магнитооптического эффекта Керра в магнитоплазмонных решетках, а также наблюдение явления нелинейно-оптического самовоздействия и полностью оптического переключения фемтосекундных импульсов в кремниевых наноструктурах с резонансами Ми.

**Научная новизна** работы состоит в следующем:

1. В спектрах отражения субдлинноволновых решеток из серебра обнаружены резонансные особенности с контуром резонанса типа Фано, соответствующие возбуждению поверхностных плазмон-поляритонов. Показано, что при длительности фемтосекундных импульсов, сопоставимой с временем релаксации поверхностных плазмон-поляритонов (порядка 30–100 фс), возникает зависимость формы огибающей отраженного фемтосекундного

импульса от длины волны лазерного излучения, описываемая параметрами резонанса типа Фано и используемого лазерного импульса.

2. Экспериментально продемонстрирована фемтосекундная эволюция магнитооптического эффекта Керра в магнитоплазмонных наноструктурах на основе железа, связанная с возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов. Показано, что временная производная МОЭК зависит от спектрального положения центральной длины волны падающего лазерного импульса относительно резонанса поверхностных плазмон-поляритонов.

3. Показано, что возбуждение резонансов Ми в массиве нанодисков из гидрогенизированного аморфного кремния приводит к усилению эффектов нелинейно-оптического самовоздействия. Имеет место восьмидесятикратное увеличение глубины модуляции коэффициента пропускания образцов по сравнению с пленкой из аморфного кремния, вызванное возбуждением магнитного дипольного резонанса в нанодисках. Получено, что коэффициент двухфотонного поглощения в образцах массивов нанодисков на два порядка величины превышает такое значение для неструктурированной пленки гидрогенизированного аморфного кремния.

4. Обнаружен субпикосекундный нелинейно-оптический отклик наноструктур в виде массива нанодисков из гидрогенизированного аморфного кремния. Экспериментально показано изменение коэффициента пропускания с глубиной модуляции  $\Delta T/T \simeq 1\%$  менее чем за 100 фс для фемтосекундных лазерных импульсов, прошедших через массив субдлинноволновых дисков из аморфного кремния, усиленное магнитным дипольным резонансом. Выбором параметров спектра фемтосекундного импульса относительно спектра резонансов Ми можно обеспечить уменьшение влияния вклада свободных носителей во временной оптический отклик таких наноструктур.

**Практическая значимость** работы заключается в разработке новых методов управления фемтосекундными лазерными импульсами при помощи плазмонных и магнитоплазмонных кристаллов, а также в перспективе создания субволновых КМОП-совместимых полностью оптических переключателей с субпикосекундным откликом.

На защиту выносятся следующие **основные положения**:

1. Резонансное возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов в

плазмонных кристаллах на основе серебряных наноструктурированных пленок приводит к временной модификации отраженных фемтосекундных лазерных импульсов. Вид зависимости определяется параметрами резонанса типа Фано и параметрами используемого лазерного импульса.

2. Фемтосекундная временная зависимость экваториального магнитооптического эффекта Керра в одномерных магнитоплазмонных кристаллах на основе железа обусловлена возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов. Характер временной зависимости экваториального магнитооптического эффекта Керра определяется спектральным положением центральной длины волны лазерного импульса относительно резонансных особенностей в оптическом отклике магнитоплазмонных решеток.

3. Возбуждение резонансов Ми в массиве нанодисков гидрогенизированного аморфного кремния приводит к усилению эффекта нелинейно-оптического самовоздействия. Имеет место восьмидесятикратное увеличение глубины модуляции коэффициента пропускания образцов по сравнению с пленкой гидрогенизированного аморфного кремния, обусловленное локальным усилением поля накачки из-за возбуждения магнитно-дипольного резонанса в нанодисках. Значение коэффициента нелинейного поглощения в образцах нанодисков существенно превышает значение для гидрогенизированного аморфного кремния.

4. Существует фотоиндуцированное оптическое переключение коэффициента пропускания с длительностью менее 100 фс и с глубиной модуляции  $\Delta T/T \simeq 1\%$ , усиленное локализованными магнитно-дипольными резонансами Ми в наноструктурах в виде массива субдлинноволновых дисков из гидрогенизированного аморфного кремния. Выбором параметров спектра фемтосекундного импульса относительно спектра резонансов Ми можно обеспечить уменьшение влияния вклада свободных носителей во временной оптический отклик таких наноструктур.

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

**Апробация работы** проводилась на основных профильных российских и международных конференциях последних лет, в том числе:

- Международная конференция “Days on Diffraction”, Санкт-Петербург, Россия, май 2014.

- Международная конференция “Frontiers in Optics (FIO)”, Флорида, Соединенные штаты Америки, октябрь 2013.
- Международная конференция “The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT) 2013”, Москва, Россия, май 2013.
- Международная конференция “12th Joint MMM/Intermag Conference”, Чикаго, США, январь 2013.
- Международная конференция “5th International Conference on Materials Science and Condensed Matter Physics”, Кишинев, Молдавия, сентябрь 2010.
- Международная конференция “The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT) 2010”, Казань, Россия, май 2010.
- Всероссийская конференция “Оптика-2009”, Санкт-Петербург, Россия, сентябрь 2009.

Основные результаты диссертации **опубликованы** в печатных работах, список которых приводится в конце автореферата, в том числе в 5 публикациях в журналах “Письма в ЖЭТФ” [1, 2], “Journal of Applied Physics” [3], “Physical Review B” [4] и “Nano Letters” [5].

## Содержание работы

**Первая глава** содержит обзор литературы, касающийся возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов, их динамики, магнитооптических эффектов в плазмонных кристаллах, а также понятия оптического магнетизма в кремниевых наноструктурах с резонансами Ми.

**Вторая глава** посвящена экспериментальному исследованию временной модификации фемтосекундных лазерных импульсов при их отражении от плазмонных кристаллов. Показано, что при использовании лазерных импульсов с длительностью, сравнимой с временем жизни поверхностных плазмон-поляритонов, наблюдается сильная спектральная зависимость формы огибающей отраженного фемтосекундного импульса, которая зависит от параметров резонанса типа Фано и параметров используемых лазерных импульсов.

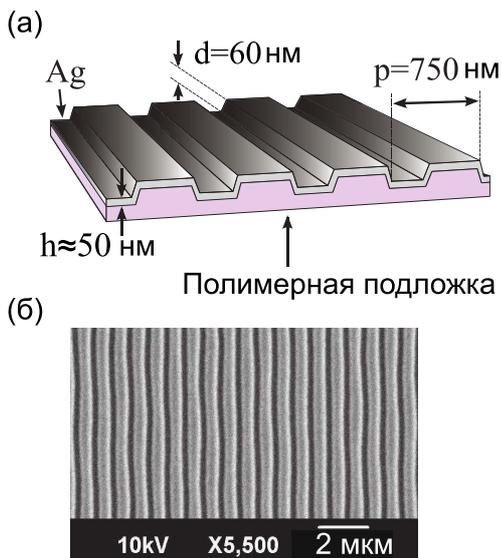


Рис. 1: (а) Схематичное изображение образца. (б) Изображение образца плазмонного кристалла, полученное при помощи растрового электронного микроскопа.

Исследуемые образцы плазмонных кристаллов представляют собой пленки серебра толщиной около 50 нм, напыленные на полимерную подложку с периодическим поверхностным рельефом. На рис. 1 представлено изображение поверхности образца, полученное при помощи растрового электронного микроскопа. Период одномерной решетки равен  $750 \pm 10$  нм, глубина модуляции около 60 нм.

Спектры отражения оптического излучения измерены в диапазонах углов падения от  $-4^\circ$  до  $4^\circ$  и от  $16^\circ$  до  $70^\circ$  с шагом  $1^\circ$  в диапазоне длин волн от 400 до 800 нм. Результаты измерений частотно-угловых спектров отражения  $R(\lambda, \theta)$   $p$ -поляризованного излучения представлены на рис. 2(а). Наблюдаются четыре резонанса, обусловленные выполнением условий синхронизма для возбуждения ПП на границе раздела серебро-воздух для порядков дифракции  $n = \pm 1, -2$  и  $-3$ . Вектор обратной решетки  $\mathbf{G}$  связан с волновым вектором ПП  $\mathbf{k}_{sp}$  и векторной проекцией  $\mathbf{k}_{inc}$  волнового вектора падающего на поверхность излучения  $\mathbf{k}_0$  равенством:  $\mathbf{k}_{sp} = \mathbf{k}_{inc} + n\mathbf{G}$ ,  $n \in Z$ ,  $k_{inc} = k_0 \sin \theta$ , где  $k_0$  — модуль волнового вектора падающего излучения,  $k_{spp}$  — модуль волнового вектора поверхностного плазмон-поляритона,  $\theta$  — угол падения оптического излучения на образец. Частотно-угловая зависимость (рис. 2(а)) соответствует закону дисперсии ПП при его возбуждении решеточным методом.

На рис. 2(б) представлен спектр коэффициента отражения  $p$ -поляризованного излучения при  $\theta = 67^\circ$ . Резонанс имеет характерный контур типа Фано. Такой контур в спектре коэффициента отражения  $R(\omega) \equiv |r(\omega)|^2$  может быть представлен в виде комплексной суммы нерезонансного отражения падающего излучения и резонансного возбуждения ПП с лоренцевой формой линии:  $r(\omega) = C_0 + \frac{f\Gamma e^{i\phi}}{\omega - \omega_R + i\Gamma}$ , где  $C_0$  — амплитуда нерезонансного

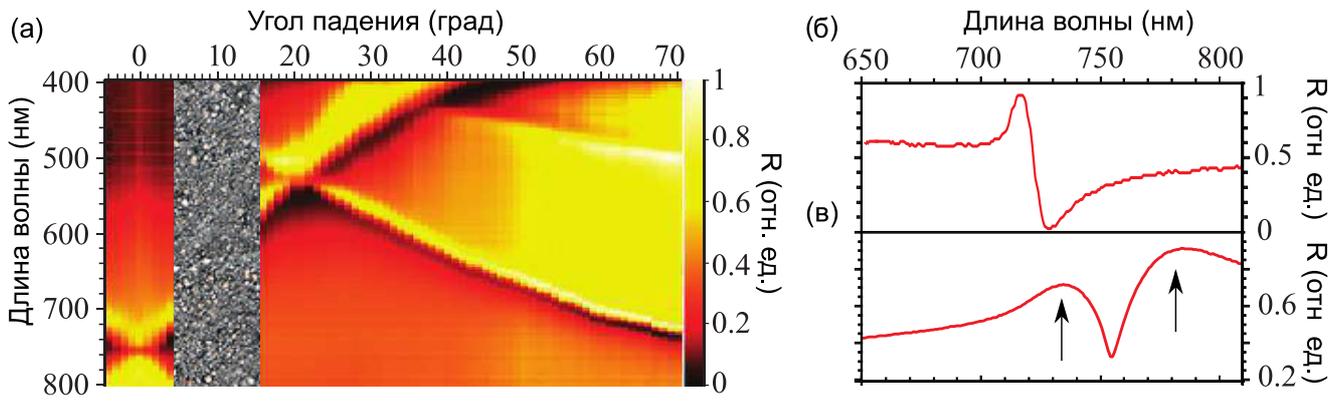


Рис. 2: (а) Зависимость коэффициента отражения образца плазмонного кристалла от угла падения и длины волны  $p$ -поляризованного излучения. Спектральная зависимость коэффициента отражения  $p$ -поляризованного излучения при  $\theta = 67^\circ$  (б), при  $\theta = 1^\circ$  (в).

отражения,  $\phi$  — разность фаз между резонансной и нерезонансной компонентами,  $f$  — сила осциллятора,  $\omega_R$  — частота лоренцева резонанса,  $\Gamma$  — ширина резонанса, обусловленная затуханием ПП.

Спектр коэффициента отражения для угла падения  $\theta = 1^\circ$ , представленный на рис. 2(в), содержит два максимума, которые соответствуют резонансам ПП. Расстояние между ними является минимальным при нормальном падении, постепенно увеличиваясь при увеличении угла падения. При  $n = \pm 1$  резонансы должны пересекаться при  $\theta = 0^\circ$  в окрестности длины волны  $\lambda \approx 750$  нм. На графиках спектров коэффициента отражения это не наблюдается, поэтому можно предположить о существовании запрещенной зоны ПП.

Временная модификация фемтосекундных импульсов исследовалась методом измерения интенсивностных кросс-корреляционных функций. В качестве источника излучения использовался титан-сапфировый лазер с длительностью импульсов 150–200 фс, частотой повторения 80 МГц и центральной длиной волны  $\lambda_0$ , перестраиваемой в диапазоне от 710 до 1020 нм. Лазерный импульс разделялся на светоделительной пластинке на два, один из которых, опорный, проходил через оптическую линию задержки, второй, сигнальный, отражался от образца. Далее они сводились на нелинейном кристалле бета-бората бария (ВВО), и импульс неколлинеарной второй

гармоники регистрировался фотоэлектронным умножителем (ФЭУ). Зависимость сигнала ФЭУ от времени задержки между импульсами  $\tau$  представляла собой кросс-корреляционную функцию (КФ) второго порядка:

$$I_{CF}(\tau) \sim \int_{-\infty}^{+\infty} (E_1(t)E_2(\tau - t))^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} I_1(t)I_2(\tau - t)dt, \quad (1)$$

где  $E_1(t)$  — напряженность электрического поля в импульсе, выходящем из лазера, и  $E_2(t)$  — напряженность электрического поля импульса, преобразованного образцом. При использовании  $p$ -поляризованного излучения регистрировалась КФ. В случае  $s$ -поляризованного излучения регистрировалась автокорреляционная функция (АФ), так как возбуждения ПП не происходило и импульс отражался от образца без изменений.

Измерения кросс-корреляционных функций второго порядка были проведены в диапазоне длин волн от 710 до 800 нм с шагом 1 нм. На рис. 3 представлены нормированные КФ, измеренные при резонансных ( $\lambda_0 = 722$  нм,  $\lambda_0 = 726$  нм,  $\lambda_0 = 730$  нм) и нерезонансной ( $\lambda_0 = 780$  нм) длинах волн. Ноль на графиках соответствует положению максимума автокорреляционной функции. Для длины волны  $\lambda_0 = 722$  нм было задетектировано как смещение максимума КФ, так и увеличение ширины на полувысоте по сравнению с автокорреляционной функцией. Уширение связано с переизлучением поверхностных плазмон-поляритонов. С использованием параметров эксперимента и значений, полученных из аппроксимации спектра отражения спектральным контуром Фано по теореме о Фурье-образе свертки двух функций, был посчитан временной профиль фемтосекундного импульса  $E_2(t)$ , отраженного от образца (серая кривая). Для данной длины волны импульс так же удлиняется по сравнению с нерезонансным при  $\lambda_0 = 780$  нм. Для длины волны, соответствующей перегибу на спектре коэффициента отражения,  $\lambda_0 = 726$  нм, наблюдается как уширение КФ, равное  $45 \pm 2$  фс, так и уширение рассчитанного импульса. Для длины волны  $\lambda_0 = 730$  нм, соответствующей минимуму резонанса типа Фано, наблюдается сужение КФ на  $16 \pm 5$  фс и смещение ее максимума в область отрицательных значений, которое равно  $-43 \pm 5$  фс. В восстановленном импульсе наблюдается сильное изменение формы  $E_2(t)$  — возникает локальный минимум огибающей отраженного импульса.

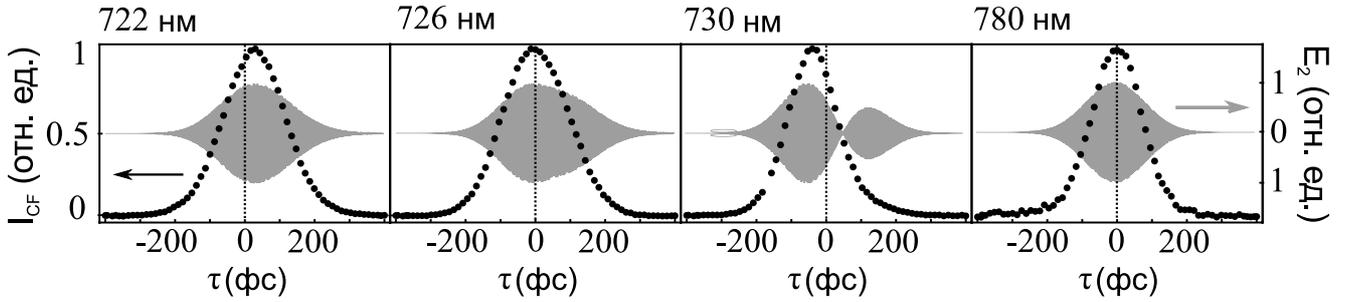


Рис. 3: Результаты измерений нормированных кросс-корреляционных функции второго порядка ( $\tau$  — время задержки между двумя импульсами) при возбуждении поверхностных плазмон-поляритонов (черные точки) при различных центральных длинах волн лазерных импульсов:  $\lambda_0 = 722$  нм,  $\lambda_0 = 726$  нм,  $\lambda_0 = 730$  нм. Длина волны  $\lambda_0 = 780$  нм соответствует нерезонансному случаю. Численный расчет временной зависимости напряженности электрического поля импульса, отраженного от образца (серый график).

Изменения в импульсе могут быть описаны моделью резонанса типа Фано, который представляет из себя сумму нерезонансного отражения падающего излучения и резонансного возбуждения ПП. Если нерезонансно отраженный и резонансно переизлученный импульсы синфазны, то они интерферируют конструктивно и происходит смещение максимума КФ в положительную сторону по шкале времени и ее уширение ( $\lambda_0 = 722$  нм,  $\lambda_0 = 726$  нм). Если импульсы находятся в противофазе, они интерферируют деструктивно, что обуславливает смещение максимума КФ в отрицательную сторону и сужение КФ ( $\lambda_0 = 730$  нм). В этом случае в самом импульсе заметно сильное изменение профиля, и при совпадении амплитуд этих двух вкладов возникает локальный минимум  $E_2(t)$ .

Рассмотрим угол падения оптического излучения на образец, равный  $\theta = 1^\circ$ , при котором наблюдается два резонанса возбуждения ПП. Для длинноволнового резонанса было задетектировано небольшое изменение КФ в пределах экспериментальных ошибок. Следовательно, или время жизни ПП, или амплитуда возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов малы по сравнению с нерезонансным вкладом в отраженный импульс. На рисунке 4 показана серия КФ, измеренная в окрестности коротковолнового резонанса  $\lambda_0 = 740$  нм. Наблюдается сильное изменение формы корреляционной функ-

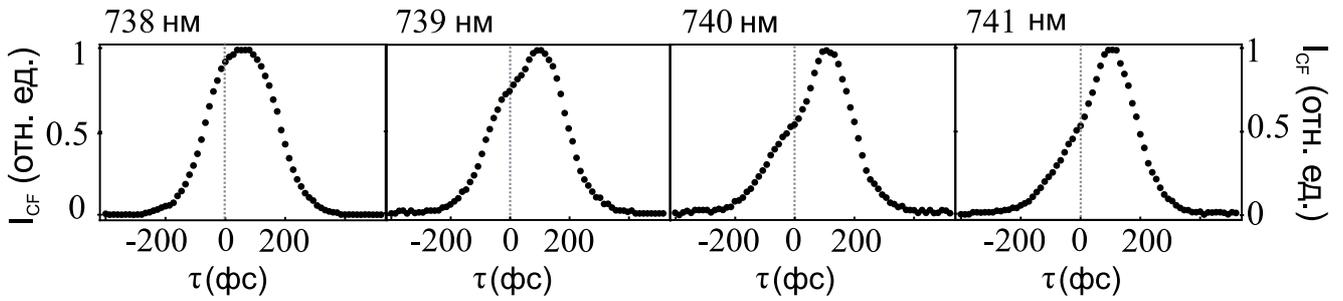


Рис. 4: Нормированная кросс-корреляционная функция для длин волн  $\lambda_0$  от 738 до 741 нм в области плазмонной запрещенной зоны ПП.

ции — как уширение КФ, так и возникновение второго максимума, который соответствует переизлучению ПП.

Управление оптическим откликом плазмонных наноструктур, включая его усиление или подавление в определенные моменты времени, осуществимо, когда время жизни ПП сопоставимо с длительностью используемых лазерных импульсов. Это невозможно ни в случае сверхкоротких импульсов, когда оптический отклик определяется переизлученной плазмон-поляритонной компонентой, ни в случае непрерывной накачки. Показано, что при использовании лазерных импульсов с длительностью, сравнимой с временем жизни поверхностных плазмон-поляритонов, наблюдается сильная спектральная зависимость формы огибающей отраженного фемтосекундного импульса, которая зависит от параметров резонанса типа Фано и параметров используемых лазерных импульсов.

**Третья глава** посвящена экспериментальному исследованию временной зависимости экваториального магнитооптического эффекта Керра в магнито-плазмонных кристаллах. В качестве объектов изучения рассматриваются одномерные субволновые решетки с периодом  $750 \pm 10$  нм, на которые напылена железная пленка толщиной 100 нм и слой  $\text{SiO}_2$  толщиной 10 нм. Геометрия образцов аналогична рассмотренной в предыдущей главе. Экспериментально обнаружено резонансное возбуждение ПП в частотно-угловом спектре коэффициента отражения. Для угла падения оптического излучения на образец  $\theta = 5^\circ$  задетектировано плазмон-индуцированное усиление экваториального эффекта Керра (рис. 5(а)) по сравнению со значением для железной пленки. Эффект для данной геометрии состоит в относительном

изменении интенсивности  $p$ -поляризованного излучения при отражении от намагниченной среды. Эффект Керра выражается безразмерной величиной  $\delta = \frac{\Delta I}{I_0}$ , где  $\Delta I$  — изменение интенсивности света при приложении к образцу магнитного поля, а  $I_0$  — интенсивность света, отраженного от ненамагниченного образца. Для данного резонанса значение экваториального МОЭК  $\delta$  убывает в диапазоне длин волн от 760 до 795 нм и принимает минимальное значение  $\delta = 0.9 \pm 0.5\%$  при  $\lambda \approx 795$  нм. Затем наблюдается рост значения экваториального МОЭК, которое принимает максимальное значение  $\delta = 7.5 \pm 0.5\%$ .

Для исследования временной зависимости экваториального магнитооптического эффекта Керра была собрана экспериментальная установка, аналогичная представленной в предыдущей главе. Использовался титан-сапфировый лазер с длительностью импульсов 45–50 фс, частотой повторений 80 МГц, диапазоном перестройки от 770 нм до 840 нм, а также электромагнит с амплитудой поля между катушками 300 Гс. В этой схеме кросс-корреляционные функции регистрировались на двух частотах. Одна на частоте оптического прерывателя  $I_{CF,fc}$ , для регистрации КФ как в предыдущей главе. Другая — на частоте магнитного поля. В этом случае, детектируемая КФ пропорциональна изменениям в лазерном импульсе  $\Delta I_{magn}(M, t)$ , связанным с намагниченностью образца:  $I_{CF,fc}(M, \tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \Delta I_{magn}(M, t) I_1(t - \tau) dt = \int_{-\infty}^{\infty} \delta(t) I_2(0, t) I_1(t - \tau) dt$ .

Для подтверждения возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов во временной зависимости экваториального МОЭК для данных импульсов сначала были измерены ширины кросс-корреляционных функций на частоте оптического прерывателя  $I_{CF,fc}$  для импульса, отраженного от образца. На рисунке 5(б) приведена зависимость ширины КФ для случая возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов. Для сравнения показано значение ширин автокорреляционных функций импульсов, измеренных при помощи автокоррелятора, помещенного до образца. Наблюдается увеличение ширины КФ, которое хорошо коррелирует со спектром отражения (серая кривая). Следовательно, в отраженном от магнитоплазмонного кристалла импульсе присутствует вклад от возбуждения ПП с временем жизни, сопоставимым с длительностью фемтосекундных импульсов.

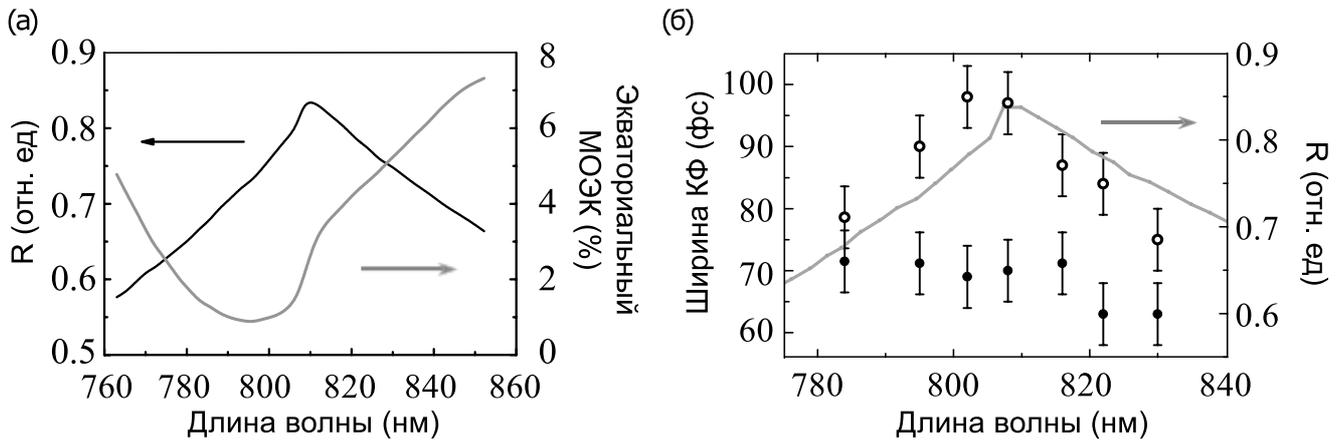


Рис. 5: (а) Спектральная зависимость коэффициента отражения и экваториального МОЭК одномерной магнитоплазмонной решетки в случае возбуждения ПП. Серая кривая — экваториальный МОЭК, черная кривая — коэффициент отражения. (б) Белые точки: значения ширины кросс-корреляционных функций для импульсов, отраженных от образца магнитоплазмонного кристалла. Черные точки: значения автокорреляционных функций для тех же импульсов. Серая кривая: график спектральной зависимости коэффициента отражения магнитоплазмонного кристалла.

Для подтверждения наличия плазмон-индуцированной временной зависимости магнитооптического эффекта Керра была измерена величина  $\Delta(M, \tau) = \frac{I_{CF, f_M}(M, \tau)}{I_{CF, f_C}(\tau)}$  для различных центральных длин волн лазерных импульсов. На рисунке 6(а) приведена зависимость величины  $\Delta(M, \tau)$  и соответствующая ей КФ для трех характерных случаев. На рисунке 6(б) показан спектр используемых лазерных импульсов на фоне спектра экваториального МОЭК: при  $\lambda_0 = 784$  нм, когда спектр импульса находится в коротковолновой области резонанса, при  $\lambda_0 = 808$  нм — в максимуме резонанса, и когда центральная длина волны импульса  $\lambda_0 = 830$  нм соответствует длинноволновой области резонанса. На графиках  $\Delta(M, \tau)$  наблюдается спад значений на временах от 0 до 100 фс, когда спектр лазерного импульса находится в коротковолновой области резонанса, а при увеличении длины волны величина  $\Delta(M, \tau)$  начинает расти со временем. Следовательно, в зависимости от спектрального положения лазерного импульса относительно резонанса ПП наблюдается либо положительная, либо отрицательная про-

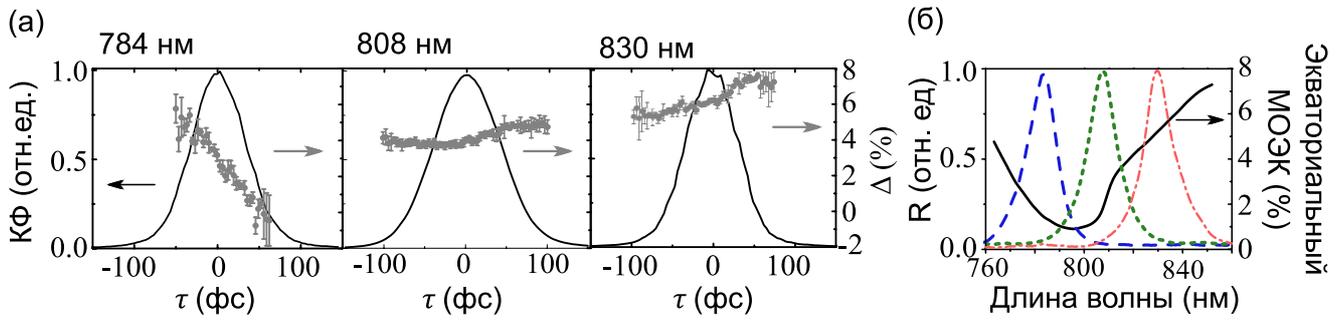


Рис. 6: (а) Фемтосекундная временная зависимость  $\Delta(M, \tau)$  (серые точки) и КФ импульсов (черная кривая) при возбуждении ПП, центральная длина волны импульса  $\lambda_0$  указана над графиком. (б) Спектры использованных лазерных импульсов (штриховые кривые) и спектр экваториального МОЭК  $\delta(M)$  (черная кривая).

изводная по времени для  $\Delta(M, \tau)$ . Аналогичные измерения были проведены для различных конфигураций эксперимента, в которых не возбуждается ПП, и получено внутриимпульсное изменение значения  $\Delta(M, \tau)$  в диапазоне 1%. На основе модели резонанса с лоренцевой спектральной линией контура был проведен численный расчет и получено, что аналогичная внутриимпульсная динамика наблюдается и для временной зависимости МОЭК,  $\delta(t)$ . При приложении магнитного поля изменяются значения недиагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости, а, соответственно, изменяются условия возбуждения ПП. Показано, что для железа в данной спектральной области основной вклад вносит мнимая часть вектора гирации, что приводит к изменениям времени жизни ПП, то есть ширины резонанса, и смещению резонансной длины волны ПП. Эти изменения и вносят вклад во временную зависимость магнитооптического эффекта Керра.

**Четвертая глава** посвящена экспериментальному изучению субпикосекундного нелинейно-оптического отклика полностью диэлектрических наноструктур в виде массива субдлинноволновых дисков из гидрогенизированного аморфного кремния.

Образцы полностью диэлектрических наноструктур были изготовлены А. С. Шороховым из гидрогенизированного аморфного кремния (a-Si:H), обладающим большим значением нелинейно-оптических восприимчивостей.

Времена релаксации носителей в нем существенно быстрее, например по сравнению с кристаллическим кремнием. Изготовлена серия массивов нанодисков высотой  $130 \pm 5$  нм с различным радиусом — от  $105 \pm 5$  до  $140 \pm 5$  нм. Период структуры для всех образцов равнялся 400 нм. На рисунке 7(а) представлено изображение образца с радиусом диска  $d \approx 125$  нм, полученное при помощи электронного микроскопа.

В спектрах коэффициента пропускания данных образцов задетектировано два резонанса, которые соответствуют возбуждению магнитно-дипольного резонанса и электрического дипольного резонанса. На рисунке 7(б) показан спектр одного из образцов и стрелками указано положение резонансов.

Для характеристики нелинейно-оптических свойств образцов была измерена зависимость коэффициента пропускания от мощности падающего излучения, метод  $I$ -сканирования. Использовалось излучение титан-сапфирового лазера с центральной длиной волны  $\lambda_0 = 775$  нм и спектральной шириной импульсов  $\Delta\lambda \approx 27$  нм, с частотой повторения импульсов  $\nu = 80$  МГц. Длительность лазерных импульсов составляла  $\tau \approx 45$  фс. Падающая на образец интенсивность была равна  $I \approx 25$  ГВт/см<sup>2</sup>. На рисунке 7(б) показан спектр образца и спектр лазерного импульса, находящийся в длинноволновой области магнитного резонанса. На рисунке 7(в) представ-

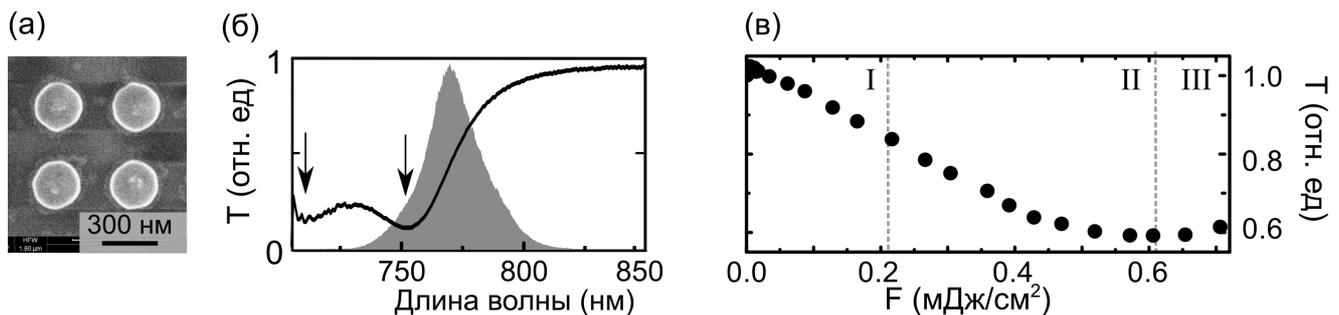


Рис. 7: (а) Изображение образца массива кремниевых нанодисков, полученное при помощи сканирующего электронного микроскопа. (б) Спектр коэффициента пропускания образца. Стрелками указано положение резонансов Ми. Серым нанесен спектр используемого лазерного импульса. (в) Зависимость коэффициента пропускания образца от значения падающего на него оптического потока.

лена зависимость коэффициента пропускания образца  $T$  от величины падающего на образец оптического потока  $F$ . Линейный спад интенсивности прошедшего излучения при увеличении мощности падающего излучения на образец характерен для процесса двухфотонного поглощения, на рисунке область I. При увеличении падающей мощности оптического излучения образец начинает нагреваться, что приводит уже к возникновению нелинейной зависимости, область II. Далее в образце возникают необратимые изменения, которые ведут к увеличению пропускания в образце (область III). Для данного образца и используемого лазерного импульса модуляция коэффициента пропускания достигает 40%. Были рассмотрены другие случаи спектрального положения резонанса Ми относительно центральной длины волны используемого лазерного импульса, но значения модуляции коэффициента пропускания были существенно меньше. В случае, когда центральная длина волны импульса совпадает с положением резонанса — модуляция равна лишь 2%, так как почти весь импульс поглощается при прохождении через образец.

С использованием методики  $z$ -сканирования были измерены зависимости коэффициента пропускания от положения образца относительно положения перетяжки лазерного пучка и рассчитан коэффициент нелинейного поглощения. Для образца массива нанодисков значение коэффициента нелинейного поглощения составило  $\beta_{sam} \approx 4$  см/МВт, что почти на два порядка величины превысило полученное значение для неструктурированной пленки аморфного кремния,  $\beta_{film} \approx 0.04$  см/МВт. Следовательно, возбуждение резонансов Ми в массиве нанодисков из гидрогенизированного аморфного кремния приводит к усилению эффектов самовоздействия. Имеет место восьмидесятикратное увеличение значения модуляции коэффициента пропускания образцов по сравнению с пленкой из аморфного кремния, вызванное возбуждением магнитного дипольного резонанса в нанодисках.

Для серии образцов были проведены измерения временного отклика методом накачка–зондирование. Средняя мощность излучения накачки была равна 20 мВт, диаметр перетяжки лазерных пучков составлял 25–35 мкм. Длительность лазерного импульса 45 фс, частота повторений 80 МГц. Два импульса пересекались в пространстве и во времени на поверхно-

сти образца. Детектировалось изменение коэффициента пропускания образца от времени задержки между импульсами накачки и зонда. На рисунке 8 представлены экспериментальные результаты зависимости отношения  $\Delta T/T$  от времени задержки между импульсами. Для сравнения серым представлена автокорреляционная функция импульса, полученная при помощи нелинейного кристалла ВВО. Справа приведен спектр образцов и ширина на полувысоте спектра используемого лазерного импульса.

Задетектировано три процесса. Первый — нагрев образца. На графиках  $\Delta T/T$  это соответствует наличию отрицательного фона, поэтому на рис. 8 он вычтен. Второй процесс характеризуется провалом  $\Delta T/T$ , возникающим в момент одновременного прихода лазерных импульсов накачки и зонда на образец. Полуширина этого провала совпадает с полушириной автокорреляционной функции, поэтому можно сделать вывод, что это мгновенный отклик двухфотонного поглощения. Третий процесс наблюдается для образцов (i–iv) — удлинение временного отклика системы для времен задержки между импульсами  $\tau > 150$  фс. Он соответствует релаксации фотоиндуцированных свободных носителей и имеет характерные времена отклика около 30 пс. В спектре пропускания данных

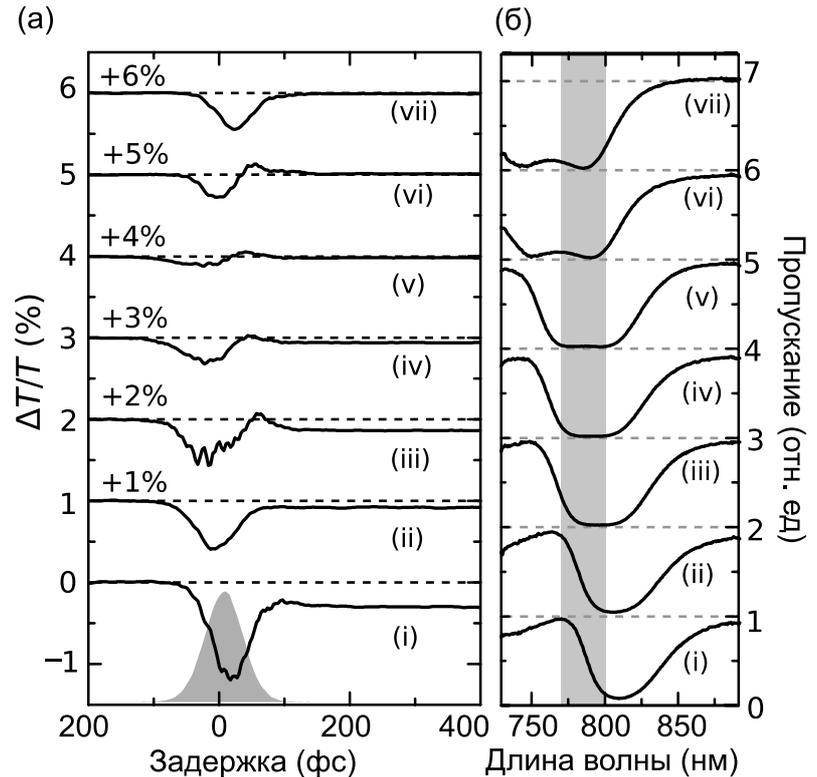


Рис. 8: (а) Графики зависимости изменения коэффициента пропускания образцов от времени. Серый график — КФ используемого лазерного импульса. (б) Спектры коэффициента пропускания образцов. Серым выделена спектральная ширина на полувысоте используемого лазерного импульса.

образцов наблюдается перекрытие магнитного и электрического дипольных резонансов. Для образцов (v), (vi), (vii) пикосекундного затухания не наблюдается.

При фотоиндуцированной генерации свободных носителей происходит изменение показателей преломления и поглощения  $\Delta n$ ,  $\Delta k$ . Численный расчет спектров пропускания нанодисков показывает, что вклад в изменение контуров резонансов  $M_i$  больше в случае, когда наблюдается перекрытие магнитного и электрического дипольных резонансов. Поэтому, пикосекундная релаксация свободных носителей наблюдалась для образцов (i–iv) и не наблюдалась для образцов (v–vii). Следовательно, выбором параметров спектра фемтосекундного импульса и спектра резонансов  $M_i$  можно обеспечить уменьшение влияния вклада свободных носителей во временной оптический отклик таких наноструктур.

## Заключение

Основные результаты диссертационной работы можно сформулировать следующим образом.

1. Экспериментально обнаружена временная модификация фемтосекундных лазерных импульсов при отражении от образцов одномерных серебряных решеток с периодом  $d \approx 750$  нм при условии резонансного возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов. Спектрально-временные измерения интенсивностных кросс-корреляционных функции второго порядка показывают, что при длительности фемтосекундных импульсов, сопоставимой со временем релаксации поверхностных плазмон-поляритонов (30–100 фс), возникает сильная спектральная зависимость формы огибающей отраженного фемтосекундного импульса, описываемая параметрами резонанса типа Фано. Обнаружено как уменьшение, так и увеличение длительности отраженного фемтосекундного импульса, проявляющееся в смещении максимума и изменении ширины кросс-корреляционной функции второго порядка. Численный расчет кросс-корреляционной функции на основе модели резонанса типа Фано показывает качественное согласие экспериментальных и численных результатов.

2. Впервые экспериментально продемонстрирована плазмон-

индуцированная фемтосекундная временная зависимость экваториального магнитооптического эффекта Керра в одномерной магнитоплазмонной решетке с периодом  $d = 750 \pm 10$  нм на основе пленки железа. Обнаружена положительная и отрицательная производная величины эффекта Керра по времени, внутриимпульсный рост или спад величины определяется спектральным положением центральной длины волны падающего импульса по отношению к положению резонанса поверхностных плазмон-поляритонов. Для лазерного импульса с длиной волны  $\lambda = 784$  нм максимальное изменение величины, характеризующей внутриимпульсную зависимость экваториального МОЭК, составило  $\Delta = 5 \pm 1\%$  в течение 90 фс для магнитоплазмонной решетки, тогда как для железной пленки  $\Delta = 1 \pm 0.5\%$ . Получено качественное согласие экспериментальных и расчетных данных, основывающихся на модели лоренцевой линии резонанса.

3. При помощи методики z-сканирования экспериментально продемонстрирован эффект нелинейно-оптического самовоздействия фемтосекундных лазерных импульсов в образцах массивов нанодисков, изготовленных из гидрогенизированного аморфного кремния, поддерживающих возбуждение резонансов Ми. Полученное значение модуляции коэффициента пропускания составило  $\Delta T \approx 40\%$ . Показано, что коэффициент двухфотонного поглощения в массивах нанодисков из гидрогенизированного аморфного кремния достигает  $\beta_{sam} \approx 4$  см/МВт, что на два порядка превышает это значение для пленки из гидрогенизированного аморфного кремния.

4. Экспериментально продемонстрирована возможность полностью оптического переключения коэффициента пропускания с длительностью менее 100 фс в образцах нанодисков, изготовленных из гидрогенизированного аморфного кремния. Оптическое переключение обусловлено возбуждением локализованных резонансов Ми в субволновом режиме. Показана возможность уменьшения пикосекундной модуляции пропускания фемтосекундных импульсов, возникающей из-за релаксации свободных носителей, в зависимости от расстройки лазерного импульса относительно минимума коэффициента пропускания, соответствующего положению резонансов Ми.

---

**Список работ, опубликованных по теме диссертации**

- [1] *Вабищевич П. П., Бессонов В. О., Сычев Ф. Ю., Щербakov М. Р., Долгова Т. В., Федянин А. А.* Фемтосекундная динамика релаксации поверхностных плазмон-поляритонов в окрестности резонанса типа Фано // *Письма в ЖЭТФ*. — 2010. — т. 92, № 9. — сс. 639–643.
- [2] *Vabishchevich P. P., Shcherbakov M. R., Bessonov V. O., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Femtosecond pulse shaping with plasmonic crystals // *Письма в ЖЭТФ*. — 2015. — т. 101, № 12. — сс. 885–890.
- [3] *Vabishchevich P. P., Frolov A. Y., Shcherbakov M. R., Grunin A. A., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Magnetic field-controlled femtosecond pulse shaping by magnetoplasmonic crystals // *J. Appl. Phys.* — 2013. — v. 113, no. 17. — p. 17A947.
- [4] *Shcherbakov M. R., Vabishchevich P. P., Frolov A. Y., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Femtosecond intrapulse evolution of the magneto-optic Kerr effect in magnetoplasmonic crystals // *Phys. Rev. B*. — 2014. — v. 90, no. 20. — p. 201405.
- [5] *Shcherbakov M. R., Vabishchevich P. P., Shorokhov A. S., Chong K., 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. — v. 15, no. 10. — pp. 6985—6990.
- [6] *Chetvertukhin A. V., Shcherbakov M. R., Vabishchevich P., Frolov A. Y., Dolgova T. V., Inoue M., Fedyanin A. A.* Femtosecond control of magneto-optical effects in magnetoplasmonic crystals // *SPIE Nanoscience+ Engineering Conference Proceedings / International Society for Optics and Photonics*. — 2015. — pp. 95471A–95471A.
- [7] *Vabishchevich P. P., Frolov A. Y., Shcherbakov M. R., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Femtosecond intrapulse evolution of the magneto-optical Kerr effect in iron-based magneto-plasmonic crystals // *Book of abstracts of*

---

the International Conference “Days on Diffraction”, Saint-Petersburg, Russia. — 2014. — p. 154.

- [8] *Frolov A. Y., Vabishchevich P. P., Shcherbakov M. R., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Femtosecond intrapulse evolution of the transverse magneto-optic Kerr effect in one-dimensional iron-based magnetoplasmonic crystal // Book of abstracts of the XII International Conference on Nanostructured Materials (NANO 2014), Moscow, Russia. — 2014.
- [9] *Vabishchevich P. P., Frolov A. Y., Shcherbakov M. R., Grunin A. A., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Magnetic field-controlled femtosecond pulse shaping by magnetoplasmonic crystals // Technical digest of The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT), Moscow, Russia. — 2013. — CD-ROM.
- [10] *Frolov A. Y., Vabishchevich P. P., Shcherbakov M. R., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Femtosecond time-resolved transverse Kerr effect measurements in magnetoplasmonic crystals // Technical digest of The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT), Moscow, Russia. — 2013. — CD-ROM.
- [11] *Frolov A. Y., Vabishchevich P. P., Shcherbakov M. R., Grunin A. A., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Femtosecond Time-Resolved Transverse Kerr Effect Measurements in Magnetoplasmonic Crystals // Technical digest of The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT), Moscow, Russia. — 2013. — CD-ROM.
- [12] *Vabishchevich P. P., Frolov A. Y., Shcherbakov M. R., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Magnetic-field-controlled femtosecond pulse shaping by magnetoplasmonic crystals // Technical digest of The Joint Magnetism and Magnetic Materials/Intermag Conference (12th Joint MMM/Intermag Conference), Chicago, USA. — 2013. — CD-ROM.
- [13] *Shcherbakov M. R., Vabishchevich P. P., Zubjuk V. V., Al-Shedivat M. F., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Shaping of femtosecond laser pulses with

plasmonic crystals // *Frontiers in Optics 2013*; OSA Technical Digest / Optical Society of America. — 2013. — FTu4D–3.

- [14] *Vabishchevich P. P., Frolov A. Y., Shcherbakov M. R., Grunin A. A., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Magnetic field-controlled shaping of femtosecond laser pulses reflected from magnetoplasmonic crystals // *Frontiers in Optics 2013*; OSA Technical Digest / Optical Society of America. — 2013. — FTu4D–7.
- [15] *Bessonov V. O., Vabishchevich P. P., Sychev F. Y., Shcherbakov M. R., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Femtosecond cross-correlation spectroscopy of resonantly enhanced surface plasmons in planar plasmonic crystals // *Frontiers in Optics 2010*; OSA Technical Digest / Optical Society of America. — 2010. — FThS2.
- [16] *Vabishchevich P. P., Sychev F. Y., Bessonov V. O., Shcherbakov M. R., Dolgova T. V., Mishina E. D., Sigov A. S., Fedyanin A. A.* Femtosecond dynamics of resonantly enhanced surface plasmons in planar plasmonic crystals // *SPIE Photonics Europe Conference Proceedings / International Society for Optics and Photonics*. — 2010. — pp. 771312–771312.
- [17] *Vabishchevich P. P., Sychev F. Y., Bessonov V. O., Shcherbakov M. R., Dolgova T. V., Fedyanin A. A.* Femtosecond dynamics of resonantly enhanced surface plasmons in planar plasmonic crystals // *Technical digest of The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT), Moscow, Russia*. — 2010. — CD-ROM.
- [18] *Вабищевич П. П., Бессонов В. О., Сычев Ф. Ю., Щербakov М. Р., Долгова Т. В., Мишина Е. Д., Федянин А. А.* Фемтосекундная кросс-корреляционная спектроскопия Фано-резонансов в плазмон-поляритонных фотонных кристаллах // *Труды шестой международной конференции молодых ученых и специалистов «Оптика-2009», Санкт-Петербург, Россия* — 2009. — сс. 169–170.