

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М. В. ЛОМОНОСОВА

на правах рукописи

Шорохов Александр Сергеевич

Кубичные нелинейно-оптические процессы
в наноструктурах с оптическими
магнитными резонансами

01.04.21 - лазерная физика

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва — 2018

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: **Хохлов Дмитрий Ремович**,
доктор физико-математических наук, профессор
Федеральное государственное образовательное
учреждение высшего образования Московский
государственный университет имени М.В. Ломоносова

Шубина Татьяна Васильевна,
доктор физико-математических наук, главный
научный сотрудник
Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Физико-технический институт имени А.Ф. Иоффе Российской академии наук

Кудряшов Сергей Иванович,
кандидат физико-математических наук, ведущий научный сотрудник
Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования “Университет ИТМО”

Защита диссертации состоится « » _____ 2018 г. в _____ на заседании диссертационного совета МГУ.01.13 Московского государственного университета имени М. В. Ломоносова по адресу: 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 62, корпус нелинейной оптики, аудитория им. С.А. Ахманова.

E-mail: diss.sov.31@physics.msu.ru

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский пр-т, д. 27) и на сайте ИАС «ИСТИНА» https://istina.msu.ru/dissertation_councils/councils/33919655/.

Автореферат разослан « » _____ 2018 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета МГУ.01.13,
кандидат физико-математических наук

А.А. Коновко

Общая характеристика работы

Диссертационная работа посвящена экспериментальному исследованию кубичного нелинейно-оптического отклика металлических и полупроводниковых наноструктур с оптическими магнитными резонансами. Особое внимание уделено новому классу слабопоглощающих в ближнем инфракрасном диапазоне объектов на основе кристаллического и аморфного кремния с электрическими и магнитными Ми-резонансами, а также плазмонным сетчатым метаматериалам с оптическим магнитным откликом. Рассмотрены эффекты генерации третьей оптической гармоники (ГТГ) в подобных структурах, возможность усиления ее интенсивности за счет возбуждения индивидуальных и коллективных магнитных мод, а также сверхбыстрые переходные процессы в плазмонных метаматериалах.

Актуальность работы обусловлена возрастающим интересом к задачам эффективного управления светом на микро- и наномасштабах, а также созданию компактных устройств фотоники, совместимых с современными технологиями. Все чаще для решения данных задач используют особые структуры, которые получили название оптические метаматериалы – искусственно созданные наноструктуры, обладающие оптическими свойствами, не встречающимися в природе в естественном виде. Оптический отклик таких объектов определен не только свойствами вещества, из которого они сделаны, но и во многом геометрической формой и размером самих структур. Изменяя параметры метаматериалов на наномасштабе, можно получить уникальный оптический отклик, не присущий исходному объемному неструктурированному материалу. Подобные объекты могут найти применение во многих приложениях, от суперлинз до полностью оптических переключателей. На протяжении последнего десятилетия область оптических метаматериалов активно развивалась. Большая часть работ в этом направлении была связана с металлическими структурами, в которых возможно возбуждение плазмонных резонансов. Однако металлы обладают существенными омическими потерями в оптическом спектральном диапазоне, что делает их непригодными для многих прикладных задач. Эта проблема становится особенно актуальной для активных устройств фотоники, которые должны обладать не только высокой нелинейно-оптической восприимчивостью, но и

устойчивостью к сильным оптическим полям. Из-за существенного поглощения плазмонные структуры обладают низкими порогами разрушения, что ограничивает возможности для создания активных устройств.

Для решения данной проблемы были предложены разные подходы. Одним из самых успешных направлений оказалась область так называемых полностью диэлектрических метаматериалов, которые основаны на использовании Ми-резонансных наноструктур, изготовленных из диэлектрических и полупроводниковых материалов с высоким показателем преломления. Они состоят из субволновых частиц, в которых возможно возбуждение как электрических, так и магнитных резонансов на оптических частотах. При этом магнитный дипольный резонанс в такой системе возникает в результате оптически индуцированных кольцевых токов смещения, что в зарубежной литературе также принято называть проявлением оптического магнитного отклика или оптическим магнетизмом. В связи с отсутствием существенных потерь такие объекты оказываются перспективными для многих задач управления интенсивностью и фазовым фронтом электромагнитных волн. Тем не менее нелинейно-оптические свойства подобных структур до сих пор не были достаточно хорошо изучены. В отличие от плазмонных аналогов диэлектрические метаматериалы почти не поглощают падающее на них излучение, а потому обладают большей устойчивостью и более высокими порогами разрушения. Кроме того, одним из основных материалов для создания подобных объектов является кремний, который полностью совместим с существующими технологическими стандартами производства микроэлектронной промышленности.

Другим актуальным направлением являются задачи полностью оптического переключения. Под оптическим переключением подразумевается возможность управления одним лазерным импульсом с помощью другого за счет нелинейной среды. Несмотря на существенные потери, плазмонные метаматериалы обладают важным преимуществом. Анализ литературных источников показывает, что электронная подсистема их металлических частей обладает сверхкороткими временами релаксации (порядка 500 фс), что может быть использовано для сверхбыстрого управления фемтосекундными лазерными импульсами. Кроме того, за счет сильной чувствительности

нелинейно-оптической восприимчивости метаматериала к состоянию его электронной подсистемы сверхбыстрые переходные процессы могут быть найдены и в нелинейно-оптическом отклике структуры.

Целями диссертационной работы являются экспериментальное обнаружение усиления кубичного нелинейно-оптического отклика кремниевых наноструктур с оптическими магнитными резонансами на основе одиночных дисков, метаповерхностей, состоящих из упорядоченных массивов наночастиц, кластеров наночастиц с Фано-резонансами, а также демонстрация сверхбыстрого управления эффективной кубичной нелинейно-оптической восприимчивостью плазмонного метаматериала, обладающего оптическим магнитным откликом.

Научная новизна работы заключается в следующем:

1. Обнаружено многократное усиление (более чем на два порядка) интенсивности генерации третьей оптической гармоники в образцах массивов кремниевых нанодисков с магнитными дипольными резонансами по сравнению с неструктурированным объемным кремнием и в 4 раза по сравнению с возбуждением электрического дипольного резонанса в тех же дисках.
2. Экспериментально продемонстрирована модуляция спектра интенсивности третьей гармоники в тримерах кремниевых нанодисков при изменении расстояния между центрами частиц внутри олигомера.
3. Показано, что возбуждение коллективных магнитных мод в квадрумере кремниевых нанодисков приводит к образованию Фано-резонанса и стократному усилению интенсивности генерации третьей оптической гармоники по сравнению с неструктурированной пленкой кремния.
4. Обнаружена фотоиндуцированная модуляция эффективной кубичной восприимчивости плазмонного сетчатого метаматериала типа “fishnet”, обусловленная нагревом электронной плазмы фемтосекундным лазерным импульсом ближнего инфракрасного диапазона. Амплитуда модуляции достигает 70% при плотности энергии в импульсе 20 мкДж/см^2 , характерное время модуляции составляет 500 фс.

Практическая значимость работы заключается в разработке и создании нового класса слабопоглощающих структур для активных устройств нанофотоники на основе кремния, которые обладают высокой эффективной нелинейной восприимчивостью третьего порядка. Подобные объекты полностью КМОП-совместимы, что делает их особенно привлекательными для возможного внедрения в индустриальное производство. Продемонстрирована возможность сверхбыстрого (порядка 500 фс) управления нелинейным откликом плазмонных метаматериалов с оптическими магнитными резонансами, что может быть актуально для задач создания устройств полностью оптического переключения.

На защиту выносятся следующие **основные положения**:

1. Возбуждение магнитных дипольных резонансов в массиве кремниевых дисков субмикронного размера, приводящее к усилению локальных полей в структуре, увеличивает эффективность генерации третьей оптической гармоники более чем на два порядка по сравнению с неструктурированным объемным кремнием.
2. Изменение расстояния между нанодисками кремния в симметричном олигомере из трех частиц — тримере — приводит к изменению ближнепольного взаимодействия между частицами кластера и модификации формы спектра интенсивности генерации третьей оптической гармоники.
3. Возбуждение коллективных магнитных мод в квадрумерах кремниевых нанодисков приводит к образованию Фано-резонансов в спектре рассеяния структуры и связанному с ним усилению на два порядка эффективности генерации третьей оптической гармоники кластерами по сравнению с неструктурированной пленкой кремния.
4. Лазерное фемтосекундное излучение ближнего инфракрасного диапазона модулирует эффективную кубичную восприимчивость плазмонного сетчатого метаматериала типа “fishnet” при возбуждении оптического магнитного резонанса в структуре.

Личный вклад автора является определяющим. Все результаты работы

получены либо лично автором, либо при его непосредственном участии, как то: изготовление образцов наноструктур, сбор и юстировка экспериментальных установок, автоматизация эксперимента, получение и обработка данных, численное моделирование и аналитическое описание. **Апробация работы** проводилась более чем на 20 профильных российских и международных конференциях последних лет, в том числе:

- Международная конференция “9th International Conference on Materials for Advanced Technologies (ICMAT)”, Сингапур, июнь 2017.
- Международная конференция “The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT)”, Минск, Республика Беларусь, сентябрь 2016.
- Международная конференция “Days on Diffraction”, Санкт-Петербург, Россия, июнь 2016.
- Международная конференция “Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)”, Сан-Хосе, Соединенные штаты Америки, май 2016.
- Международная конференция “SPIE Micro+Nano Materials, Devices, and Applications”, Сидней, Австралия, декабрь 2015.
- Международная конференция “SPIE Optics+Photonics”, Сан-Диего, Соединенные Штаты Америки, август 2014.
- Международная конференция “SPIE Photonics Europe”, Брюссель, Бельгия, апрель 2014.

Основные результаты диссертации опубликованы в печатных работах, список которых приводится в конце автореферата, в том числе в 10 публикациях, среди которых статьи в журналах “Nano Letters” [1–3], “ACS Photonics” [4, 5] и “Scientific Reports” [6].

Содержание работы

Первая глава содержит обзор литературы по оптическим метаматериалам, оптическим магнитным резонансам в плазмонных, а также диэлектрических

и полупроводниковых структурах, резонансам Ми в одиночных наночастицах из материалов с высоким показателем преломления и в кластерах подобных частиц, а также нелинейно-оптическому отклику упомянутых выше объектов.

В первой части **второй главы** подробно описаны методы изготовления образцов кремниевых наноструктур, которые были исследованы в рамках данной диссертационной работы. Рассмотрены способы получения тонких пленок кремния, техники электронно-лучевой литографии и реактивного ионного травления. Часть образцов, созданных на основе пленок кремния-на-изоляторе (КНИ), была изготовлена коллегами из Сандийских Национальных Лабораторий (США). Образцы на основе гидрогенизированного аморфного кремния ($a\text{-Si:H}$) на стеклянных подложках были изготовлены автором диссертационной работы во время научной стажировки в Австралийском Национальном Университете.

Вторая часть **второй главы** посвящена исследованию усиления интенсивности ГТГ в кремниевых нанодисках субмикронного размера за счет возбуждения в них электрических и магнитных дипольных резонансов Ми. В работе рассмотрено два класса объектов: одиночные кремниевые нанодиски, далеко расположенные друг от друга, и субволновые массивы таких частиц (метаповерхности).

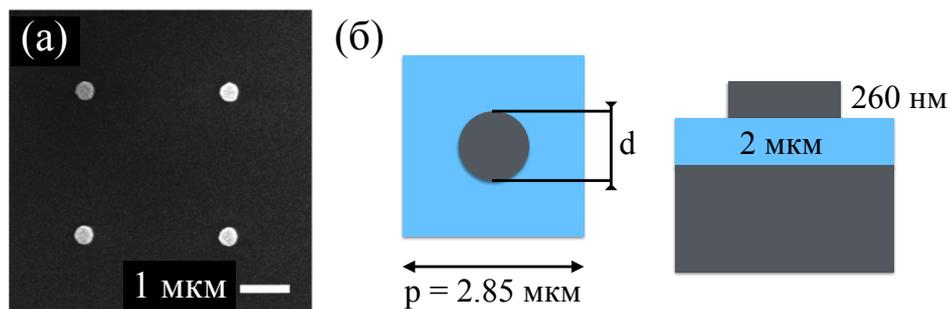


Рис. 1: (а) Изображение образца одиночных кремниевых нанодисков, полученное с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ). (б) Схематическое изображение образца.

Исследуемый образец одиночных кремниевых нанодисков схематически представлен на рис. 1. Диаметр дисков на подложке варьировался от 320 до

380 нм.

Характеризация линейно-оптических свойств образцов проводилась с помощью спектроскопии коэффициента пропускания. Результаты эксперимента представлены на рис. 2.

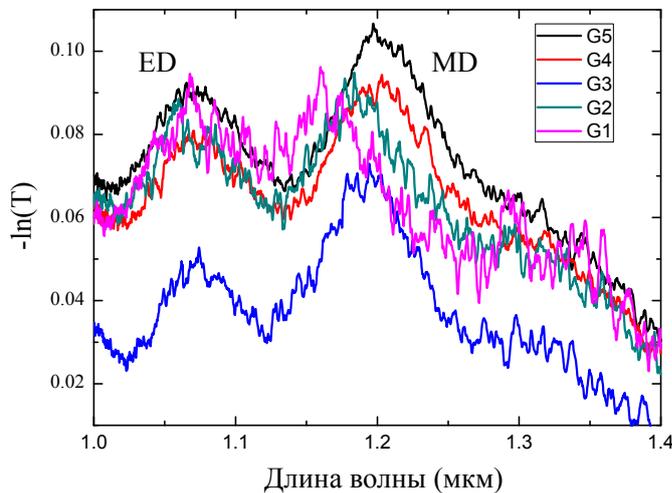


Рис. 2: Спектр экстинкции для нескольких образцов одиночных кремниевых нанодисков разного диаметра.

ми расчетами, проведенными с помощью метода конечных разностей во временной области (FDTD). Также на основе полученных численных данных с помощью метода мультипольного разложения был проведен анализ вклада от различных мод, возбуждаемых в кремниевых нанодисках, в спектр рассеяния образца для дополнительного подтверждения природы наблюдаемых в эксперименте резонансных особенностей. Подробно процедура описана в тексте диссертационной работы.

Исследование ГТГ в образцах кремниевых нанодисков проводилось на конфокальном сканирующем микроскопе в комбинации с излучением параметрического генератора света (ПГС). Накачкой для ПГС служило излучение фемтосекундного титан-сапфирового лазера с центральной длиной волны 776 нм. Изображение образца было получено в конфокальном режиме с помощью встроенного полупроводникового лазера с длиной волны 559 нм. Параллельно с этим было получено изображение третьей гармоники (ТГ) от образца при облучении его излучением ПГС. Для визуализации были

На представленном графике можно выделить две характерные резонансные особенности. Первый провал в пропускании вблизи 1.07 мкм можно отнести к возбуждению электрического дипольного резонанса в нанодиске, в то время как второй провал вблизи 1.2 мкм можно отнести к возбуждению магнитного дипольного резонанса. Это подтверждается численными

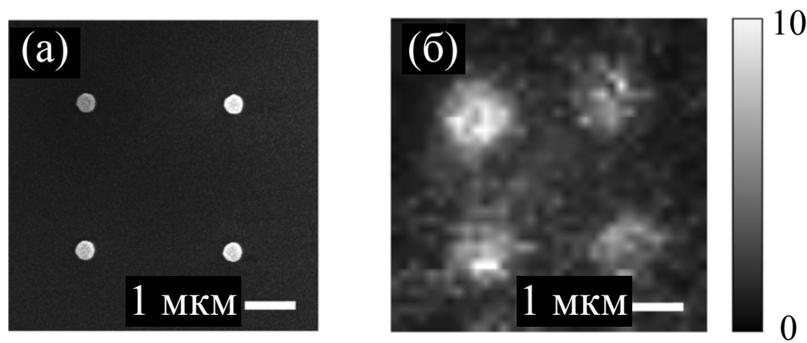


Рис. 3: (а) РЭМ изображение образца кремниевых нанодисков. (б) Пространственное распределение излучения ТГ от образца. Нормированная интенсивность ТГ передана цветовой гаммой.

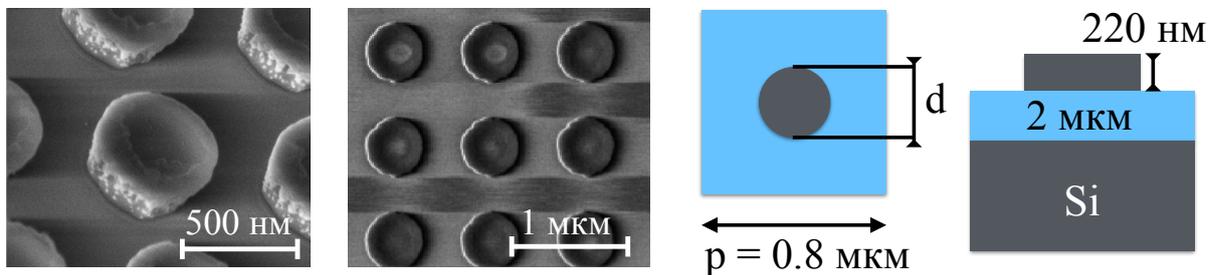


Рис. 4: Образец метаповерхности кремниевых нанодисков.

использованы встроенные в микроскоп фотоэлектронные умножители. Характерное изображение ГТГ от образца, полученное с помощью описанной выше системы, представлено на рис. 3(б). Для излучения с длиной волны 1.24 мкм в таких дисках возбуждается магнитный дипольный резонанс, который приводит к увеличению локального поля в дисках. Это в свою очередь ведет к значительному усилению сигнала ТГ, генерируемого в образце. Можно заметить, что сигнал от нанодисков примерно в 10 раз превышает характерный сигнал от объемной кремниевой подложки.

Для спектроскопии ГТГ в кремниевых нанодисках с электрическими и магнитными дипольными Ми резонансами был изготовлен образец с плотной упаковкой частиц – метаповерхность (см. рис. 4). Для исследований был выбран массив с диаметром дисков 500 нм и периодом 800 нм соответственно.

Характеризация линейно-оптического отклика образцов метаповерхностей проводилась с помощью спектроскопии коэффициента пропускания.

Полученные результаты представлены на рис. 5 (черная кривая). Можно увидеть характерный провал в пропускании (или пик в спектре экстинкции) для длины волны примерно 1.24 мкм. Расчеты, проведенные методом FDTD, дают схожие с экспериментом результаты (см. рис. 5, серая область). Для того чтобы идентифицировать природу резонансной особенности в районе 1.2-1.3 мкм, было проведено численное моделирование методом FDTD распределения локальных электрических полей в нанодисках вблизи спектрального положения рассматриваемой особенности. По картине распределения поля было определено, что для длины волны 1.21 мкм мода соответствует электрическому дипольному резонансу, а для 1.28 мкм – магнитному дипольному резонансу. Таким образом, наблюдаемая особенность является спектральным наложением электрического и магнитного дипольного резонансов, возбуждаемых в кремниевых нанодисках метаповерхности.

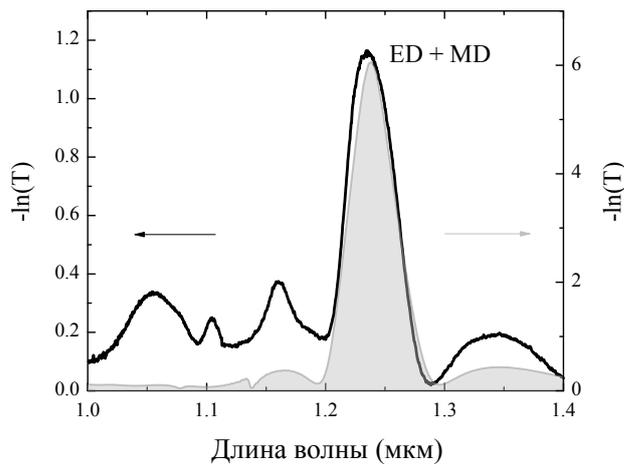


Рис. 5: Спектр экстинкции для образца метаповерхности кремниевых нанодисков (черная кривая). Серым цветом показан расчетный спектр экстинкции, полученный методом FDTD.

Результат усиления интенсивности ГТГ для образца метаповерхности как функция центральной длины волны излучения накачки представлен на рис. 6(a). Интенсивность ГТГ, полученная от образца, нормировалась на интенсивность ГТГ от подложки. Полученный спектр обладает двумя ха-

Как и в случае нелинейной микроскопии ГТГ в одиночных кремниевых нанодисках, для спектроскопии усиления интенсивности ГТГ в образцах метаповерхностей было использовано излучение ПГС, накачкой для которого служил фемтосекундный титан-сапфировый лазер с центральной длиной волны 776 нм и длительностью импульса 150 фс. Была собрана экспериментальная установка, излучение ГТГ де-

раактерными особенностями вблизи 1.21 мкм и 1.28 мкм. Как было показано выше с помощью численного моделирования, эти особенности соответствуют возбуждению электрического и магнитного дипольных резонансов в кремниевых нанодисках метаповерхности. Примечательно, что усиление в случае магнитного дипольного резонанса оказалось примерно в 4 раза больше, чем в случае электрического. Это связано с особой конфигурацией локальных полей в нанодисках, которая эффективно задействует большой объем нелинейного материала, что приводит к большей эффективности нелинейного процесса. Была измерена зависимость интенсивности ГТГ образца при возбуждении его вблизи магнитного дипольного резонанса нанодисков от мощности падающего излучения накачки (см. рис. 6(б)). Можно заметить, что кубическая зависимость наблюдается вплоть до пиковой мощности накачки, равной 5 ГВт/см², после чего она выходит на насыщение. Это связано с процессами нелинейного поглощения в толстой кремниевой подложке, через которую излучение накачки попадает на исследуемую структуру. Несмотря на это, эффективность перекачки излучения накачки в излучение ГТГ составила по порядку величины 10^{-7} , что сравнимо с ранее полученными результатами для кремниевых фотонных кристаллов [25]. В то же время рассматриваемые нанодиски являются субволновыми объектами, что дает преимущества с точки зрения возможной миниатюризации. Стоит отметить, что излучение ГТГ от исследуемой метаповерхности видно даже невооруженным глазом (см. вставку на рис. 6(б)), что наглядно демонстрирует высокую эффективность нелинейно-оптического преобразования.

Третья глава посвящена экспериментальному исследованию усиления нелинейно-оптических эффектов в образцах олигомеров кремниевых нанодисков, в которых могут возбуждаться коллективные резонансы электрического и магнитного типа.

Первая рассмотренная в рамках данной главы система представляет собой массив олигомеров, состоящих из трех кремниевых нанодисков, расположенных в вершинах правильного треугольника (тример). Экспериментальный образец был изготовлен в Сандийских Национальных Лабораториях на основе пластины КНИ. Вторая система представляет собой так называемый квадрумер – олигомер, состоящий из четырех кремниевых нанодисков, рас-

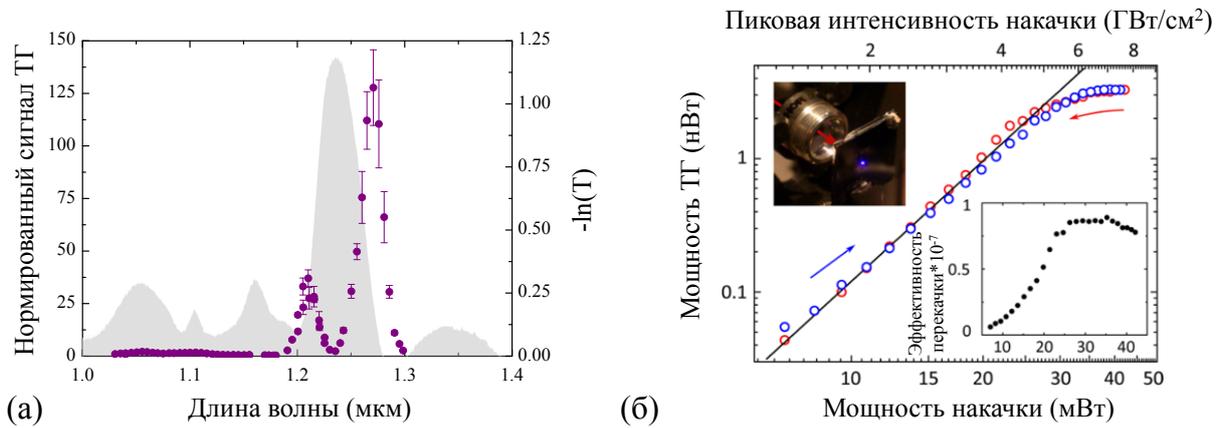


Рис. 6: (а) Спектр нормированной интенсивности ГТГ для металлоповерхности (серый – спектр экстинкции). (б) Зависимость мощности ТГ от мощности накачки; на вставке – зависимость эффективности преобразования излучения накачки в излучение ТГ.

положенных в вершинах квадрата. Данный образец был изготовлен автором диссертационной работы во время научной стажировки в Австралийском Национальном Университете на основе гидрогенизированного аморфного кремния. Подробно процедура изготовления описана в тексте диссертации.

Первая часть **третьей главы** посвящена исследованию возможности управления нелинейно-оптическим откликом тримеров кремниевых нанодисков за счет изменения оптической связи между частицами внутри кластера при варьировании расстояния между ними. Схематично образец изображен на рис. 7. Там же приведены микрофотографии, полученные с помощью РЭМ. Диаметр дисков в кластере изменялся от 350 до 375 нм, высота была зафиксирована и равна 260 нм, расстояние между центрами дисков внутри кластера варьировалось от 460 до 555 нм, а расстояние между кластерами было зафиксировано и составляло 2 мкм.

Характеризации оптического отклика образцов проводилась с помощью собранной экспериментальной установки линейной спектроскопии коэффициента пропускания. Экспериментальные спектры для серии образцов представлены на рис. 8. Для удобства визуализации графики смещены по отношению друг к другу на величину 0.15 по вертикали. На зависимостях можно заметить две особенности, которые соответствуют возбуждению электрической (более коротковолновой) и магнитной (более длинноволновой) дипольных мод в нанодисках, что подтверждается расчетами FDTD. Можно

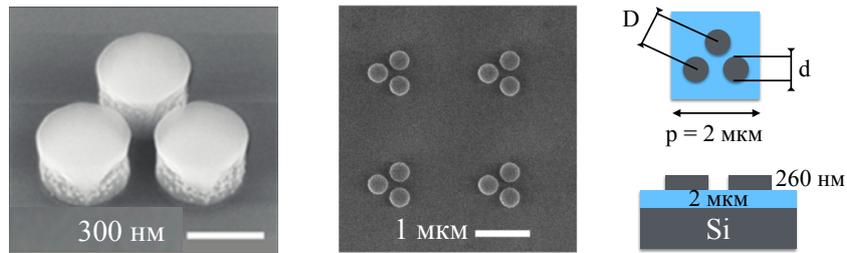


Рис. 7: РЭМ изображения и схематическая иллюстрация образцов тримеров. Диаметр диска d и расстояние между центрами дисков D изменялись для разных массивов образцов.

заметить, что спектральное положение, а также степень перекрытия между данными резонансами изменяется при изменении размера нанодисков, а также междискового расстояния внутри кластера. РЭМ изображения двух образцов, для которых резонансы максимально и минимально перекрыты между собой (нижняя и верхняя кривая), также представлены на рис. 8. Для первой структуры $d = 350$ нм и $D = 465$ нм, а для второй – 375 нм и 550 нм соответственно. В дальнейшем эти образцы были выбраны для изучения методами нелинейно-оптической спектроскопии.

Для исследования нелинейно-оптического отклика образцов тримеров кремниевых нанодисков была собрана и отъюстирована экспериментальная установка на основе ПГС, накачкой для которого выступало излучение фемтосекундного титан-сапфирового лазера с центральной длиной волны 778 нм и длительностью импульса 150 фс. Спектральный диапазон перестройки ПГС составлял от 1.05 мкм до 1.4 мкм, что позволило покрыть всю интересующую область положения резонансных мод образца. Спектры нормированной интенсивности ТГ

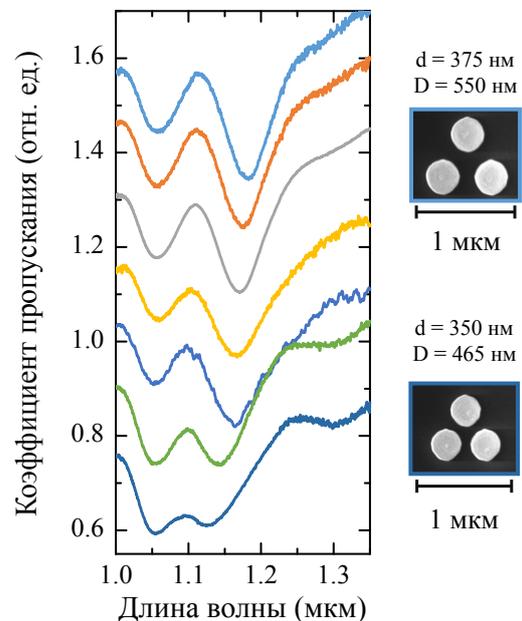


Рис. 8: Спектры пропускания тримеров. Справа – РЭМ изображения, отвечающие нижнему и верхнему графику.

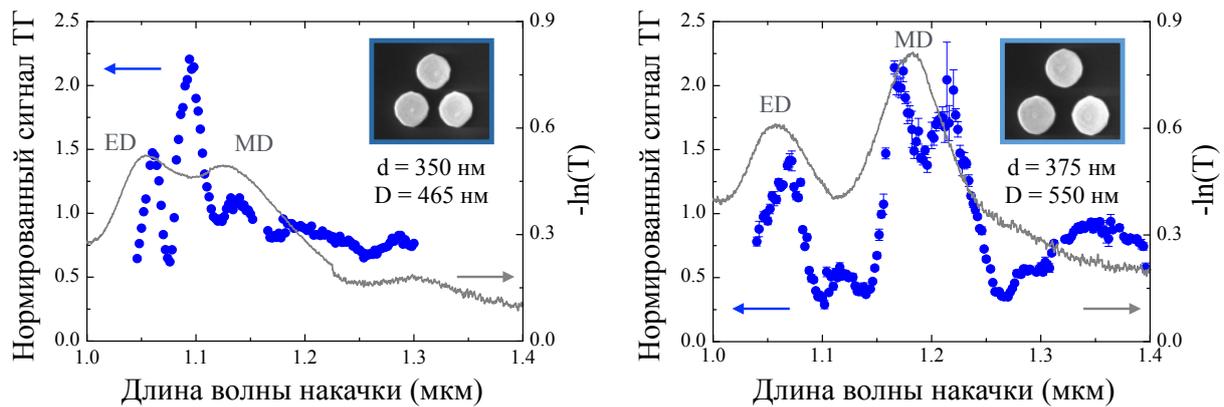


Рис. 9: Спектры интенсивности ТГ, нормированной на ТГ от кремниевой подложки, для двух образцов тримеров кремниевых нанодисков (синие точки) с меньшим (слева) и большим (справа) расстоянием между центрами дисков. Серым показаны спектры экстинкции образцов. На вставках представлены РЭМ изображения тримеров.

для двух образцов тримеров, для которых в линейных спектрах коэффициента пропускания наблюдалось наибольшее и наименьшее перекрытие между электрическими и магнитными дипольными модами, представлены на рис. 9. Из полученных спектральных зависимостей можно заметить, что смещение положения магнитного дипольного резонанса на 50 нм приводит к значительному изменению зависимости ТГ. Если резонансы разделены спектрально, то существенное усиление нелинейного сигнала происходит в области электрического (ЭД) и магнитного (МД) дипольных резонансов (1.06 мкм и 1.18 мкм соответственно). В то же время, в случае спектрального перекрытия ЭД и МД резонансов выраженный пик ТГ наблюдается между ними (1.1 мкм). Кроме того, эта особенность ведет к большим значениям интенсивности ТГ, чем каждый из резонансов по отдельности.

Чтобы объяснить наблюдаемый эффект, была предложена феноменологическая модель, рассматривающая интерференцию излучения ТГ от подложки, которое слабо зависит от длины волны накачки, и излучения от резонансных дисков, которое может быть представлено в виде суперпозиции ЭД и МД источников. В рамках данной модели удалось получить хорошее соответствие между экспериментальными данными и результатами численной оценки. Результат аппроксимации для образца с малым расстоянием

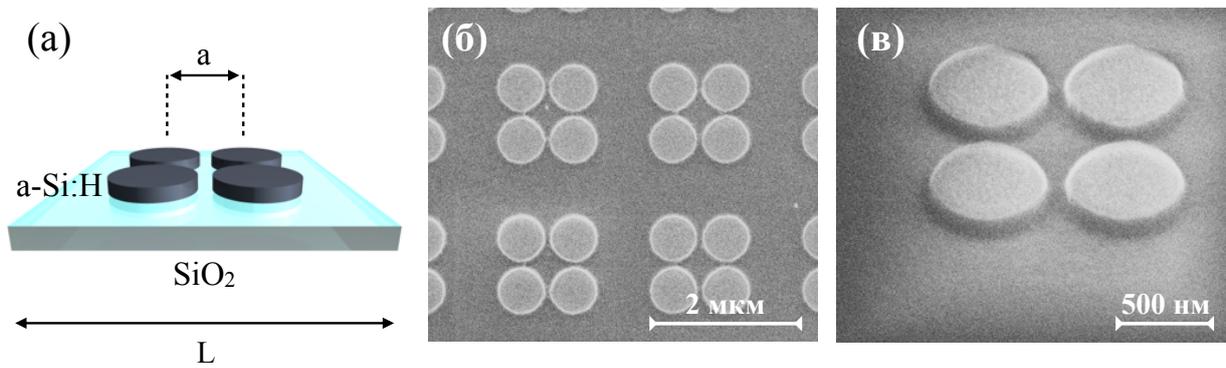


Рис. 11: (а) Схематическое изображение квадрумеров кремниевых нанодисков. (б-в) РЭМ изображения структуры.

между дисками внутри тримера, для которого электрическая и магнитная мода максимально перекрыты, представлен на рис. 10. Особенности в более красной области спектра, которые наблюдаются в эксперименте, связаны с интерференцией Фабри-Перо излучения ТГ в диэлектрической пленке SiO_2 .

Во второй части **третьей главы** проведено исследование линейно- и нелинейно-оптического отклика квадрумеров кремниевых нанодисков, поддерживающих возбуждение коллективных магнитных мод, интерференция которых приводит к появлению Фано-резонансов. Схематично экспериментальный образец изображен на рис. 7. Там же приведены микрофотографии, полученные с помощью РЭМ. Диаметр дисков в изготовленной структуре изменялся от 550 до 600 нм, высота была зафиксирована и равна 100 нм, расстояние между центрами дисков внутри кластера варьировалось от 100 до 200 нм, расстояние между кластерами изменялось от 1.6 до 2 мкм.

Для характеристики линейно-оптического отклика образцов была собрана экспериментальная установка линейной спектроскопии коэффициента

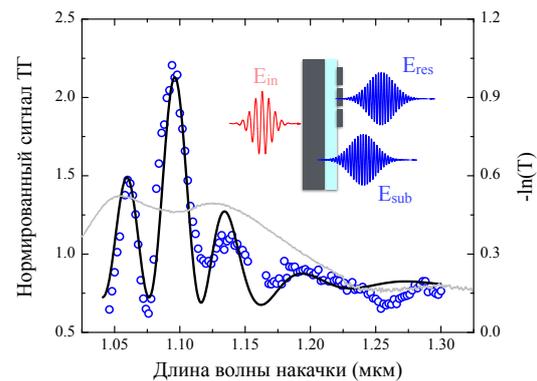


Рис. 10: Спектры нормированной интенсивности ТГ для тримеров кремниевых нанодисков (синие точки), а также результат численной модели (черная линия), который отображает интерференцию сигналов от кремниевой подложки и образца. Серым показан измеренный спектр экстинкции образца.

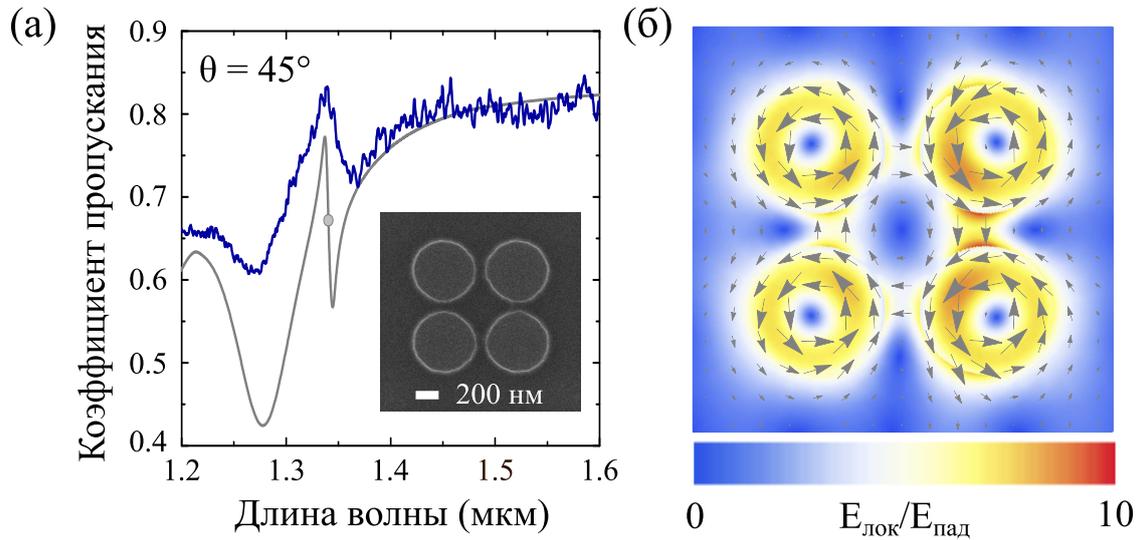


Рис. 12: Результаты линейной спектроскопии образца для угла падения излучения 45° . (а) Экспериментальный (синий) и численный (серый) спектры коэффициента пропускания. (б) Картина распределения локальных электрических полей в квадрумере, рассчитанная для спектральной точки, отмеченной серым кругом на графике.

пропускания, аналогичная той, что использовалась в случае с тримерами. Полученные результаты для образца с диаметром нанодисков 550 нм, расстоянием между центрами соседних дисков 650 нм и периодом решетки 1760 нм представлены на рис. 12. Там же показано его РЭМ изображение и рассчитанная методом FDTD картина распределения локальных электрических полей.

Чтобы идентифицировать спектральные особенности, соответствующие провалам вблизи 1.3 и 1.35 мкм, были произведены численные расчеты распределения локальных электрических полей. На рис. 12(б) представлен результат для случая более длинноволновой особенности в спектре. В тексте диссертационной работы было показано, что первая (коротковолновая) резонансная мода представляет собой результат суперпозиции магнитных диполей, возбуждаемых в каждом из дисков и направленных в противоположные стороны перпендикулярно плоскости образца для верхних и нижних частиц квадрумера. В противовес этому вторая мода является результатом суперпозиции магнитных диполей, возбуждаемых в каждом из дисков и направленных в одну сторону перпендикулярно плоскости образца. Кроме того, в формировании этой моды также участвуют электрические дипольные моменты, возбуждаемые в каждом из дисков. Благодаря ближнепольной

связи они гибридизуются и образуют эффективный магнитный момент, направленный в противоположную сторону относительно собственных моментов каждой из частиц. Деструктивная интерференция между данной коллективной магнитной модой и собственными магнитными модами частиц приводит к выраженному провалу в спектре пропускания, который соответствует возбуждению Фано-резонанса в исследуемом кластере.

По аналогии с тримерами для исследования нелинейно-оптического отклика образцов квадрумеров была собрана экспериментальная установка на основе ПГС, накачкой для которого выступало излучение титан-сапфирового лазера с центральной длиной волны 778 нм и длительностью импульса 150 фс. В качестве референсного образца для канала сравнения использовалась тонкая пленка a-Si:H на стекле (эквивалентная той, из которой был сделан образец). С помощью собранной установки была проведена спектроскопия интенсивности ГТГ в образцах квадрумеров кремниевых нанодисков. Результаты для одного из образцов представлены на рис. 13. Угол падения на образец составлял 45° . Из приведенной зависимости следует, что возбуждение магнитного Фано-резонанса в системе приводит к увеличению эффективности ГТГ примерно в 50 раз по сравнению с неструктурированной пленкой кремния.

Также была проведена угловая спектроскопия ГТГ. Экспериментальные результаты представлены на рис. 14. Наибольшая эффективность генерации соответствует углу падения 50° , для которого сигнал ГТГ оказался на два порядка выше, чем для пленки неструктурированного кремния. Это объясняется тем, что магнитный Фано-резонанс в квадрумерах кремниевых нанодисков наиболее эффективно возбуждается для наклонного падения излучения на образец. Максимальное усиление ло-

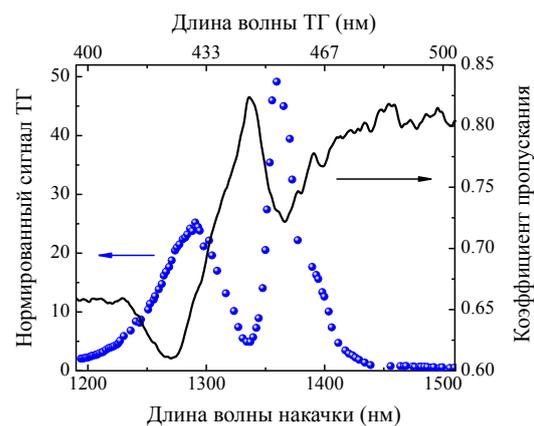


Рис. 13: Спектр нормированного сигнала ГТГ для угла падения 45° (синие точки). Черная линия — график коэффициента пропускания для данного образца.

кальных полей при интерференции магнитных мод внутри структуры достигается именно при условии, когда излучение накачки падает под углом в 50° . Заметим, что усиление в спектральной области магнитного Фано-резонанса при этом в 10 раз больше, чем в более коротковолновой коллективной моде кластера, положение которой почти не зависит от угла падения на образец, в отличие от Фано-резонанса.

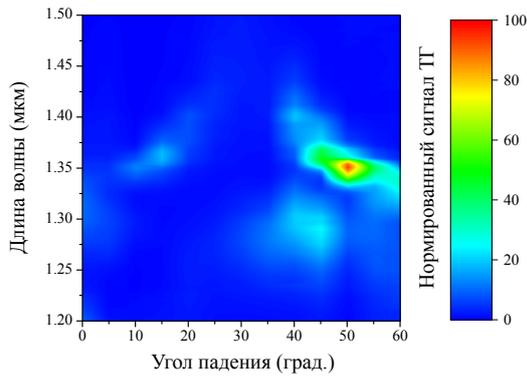


Рис. 14: Угловой спектр нормированного сигнала ТГ для углов падения излучения накачки от 0° до 60° .

На основе полученных экспериментальных результатов также была проведена оценка коэффициента перекачки мощности падающего на образец ИК излучения в излучение ТГ. Максимальное значение этой величины составило 10^{-6} , что на порядок больше, чем для образцов метасурfaces из кремниевых нанодисков, рассмотренных в главе II.

Четвёртая глава посвящена экспериментальному исследованию нелинейных переходных процессов в плазмонных метаматериалах с оптическим магнитным откликом, в частности, измерению и анализу динамики ГТГ в таких системах.

В работе была рассмотрена сетчатая структура типа “fishnet”, ранее предложенная в [26]. Образец был создан с помощью метода электронно-лучевой и взрывной литографии коллегами из Йенского университета имени Фридриха Шиллера в Германии. Подробно процедура изготовления описана в основном тексте диссертационной работы. Образец представлял собой сетчатую структуру в виде прямоугольных отверстий в трехслойной пленке Au/MgO/Au. Его схематическое изображение представлено на рис. 15.

Характеризации оптического отклика структуры была проведена с помощью спектроскопии линейного коэффициента поглощения. Экспериментальные результаты для нормального падения представлены на рис. 16(a). Пик поглощения, наблюдаемый вблизи 1550 нм, соответствует возбужде-

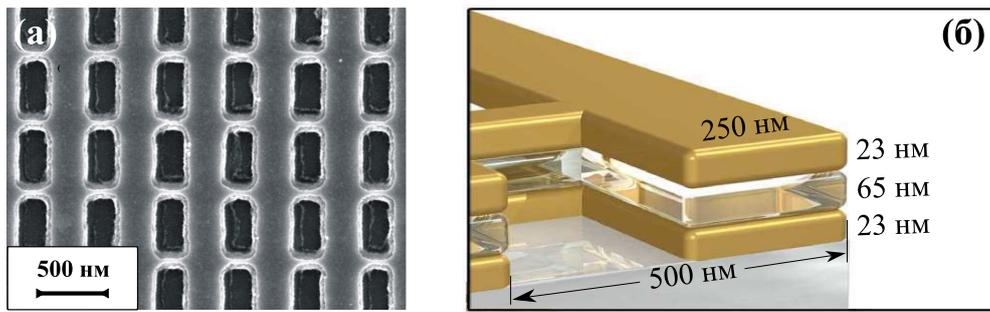


Рис. 15: Образец плазмонного сетчатого метаматериала: (а) изображение, полученное с помощью РЭМ; (б) иллюстрация метаматериала.

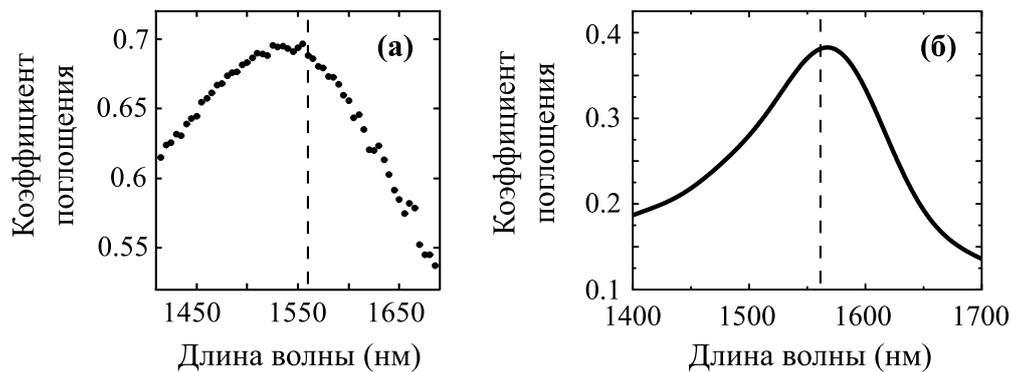


Рис. 16: Спектр линейного коэффициента поглощения для образца сетчатого метаматериала: (а) экспериментальные данные; (б) результат численного расчета. Вертикальная штриховая линия показывает рабочую длину волны лазера накачки, используемую в эксперименте.

нию противоположно направленных плазмонных токов в верхних и нижних металлических слоях метаматериала, что приводит к появлению эффективного магнитного резонанса в структуре. Это было подтверждено с помощью численных расчетов методом FDTD.

Для изучения переходных фотоиндуцированных процессов в образце была собрана экспериментальная установка, реализующая методику “накачка-зонд”. В качестве источника излучения был использован фемтосекундный волоконный лазер с центральной длиной волны излучения $\lambda = 1.56$ мкм, длительностью импульса $\Delta t = 150$ фс и частотой повторения $\nu = 70$ МГц. Лазерный луч разбивался на два канала (зонда и накачки), в одном из которых была предусмотрена механическая линия задержки. Максимальная средняя мощность излучения в канале накачки достигала 30 мВт в плоскости образца, а максимальная пиковая интенсивность составляла 90 МВт/см², что с учетом

длительности импульса дает плотность потока энергии порядка 20 мкДж/см^2 .

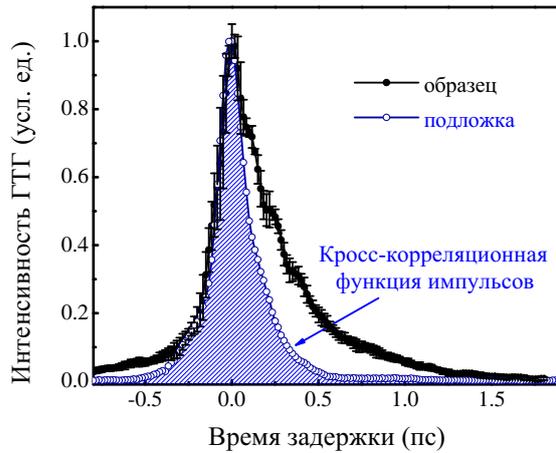


Рис. 17: Нормированная интенсивность ГТГ от образца как функция времени задержки между импульсами накачки и зонда (черные точки). Синими точками указана кросс-корреляционная функция импульсов накачки и зонда, полученная путем детектирования сигнала ГТГ от кварцевой подложки.

Зависимость сигнала ГТГ от времени задержки между импульсами накачки и зонда представлен на рис. 17 (черные точки). На данном графике также представлена кросс-корреляционная функция импульсов накачки и зонда (синие точки), которая была измерена за счет ГТГ от кварцевой подложки, на которой был размещен образец. Можно заметить, что для времени задержки вблизи точки $\tau = 0$, когда импульсы накачки и зонда приходили на образец одновременно, зависимость сигнала ГТГ повторяла форму их кросс-корреляционной функции, отображая тем самым когерентные процессы усиления сигнала за счет непосредственного взаимодействия импульсов внутри нелинейной среды. При этом для интервала времени задержки примерно от 0.5 пс до 1.5 пс, для которого кросс-корреляционная функция уже равна нулю, наблюдается существенная модуляция сигнала третьей гармоники в канале зонда, вызванная запаздывающим откликом среды на воздействие со стороны импульса накачки.

В основном тексте диссертационной работы подробно рассмотрены различные механизмы, которые могут отвечать за наблюдаемые в эксперименте зависимости. В частности, проанализированы три эф-

С помощью собранной экспериментальной установки были проведены исследования динамики ГТГ в образце. Для обнаружения модуляции оптического отклика структуры сигнал ГТГ в канале зонда измерялся с помощью синхронного детектирования на опорной частоте $f_1 + f_2$ (равной сумме частот прерывателей в каналах зонда и накачки). Экспериментальный результат зависимости сигнала от времени за-

факта, связанные с термализацией и релаксацией электронного газа в металлических частях структуры: (1) изменение коэффициента пропускания как для излучения накачки, так и для излучения ТГ из-за изменения диэлектрической проницаемости вещества; (2) модуляция фактора локального поля в структуре на частоте накачки или ТГ; (3) модификация эффективной нелинейной восприимчивости образца.

На основе проведенного качественного анализа и численных оценок была построена феноменологическая модель, также подробно описанная в тексте диссертации. На ее базе была получена зависимость относительной фото-индуцированной модуляции эффективной нелинейной восприимчивости образца, результаты которой представлены на рис. 18. На основе полученных данных для зависимости $\delta\chi^{(3)}/\chi_0^{(3)}$ были оценены характерные времена

релаксации в системе. Результаты аппроксимации находятся в хорошем согласии с экспериментальными данными для $\tau_1 = 280 \pm 70$ фс и $\tau_2 = 500 \pm 40$ фс. Полученные величины времен релаксации близки к значениям, представленным ранее другими научными группами [27].

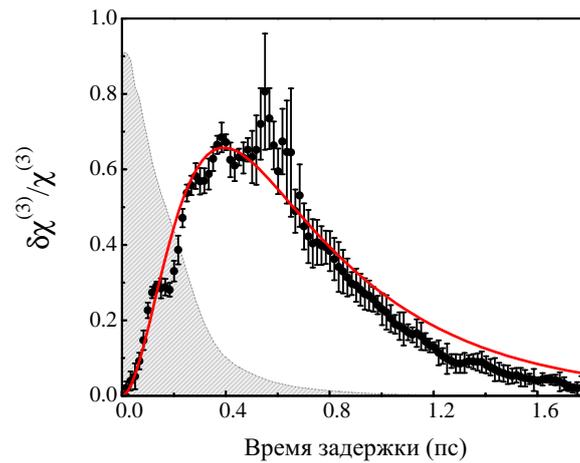


Рис. 18: Модуляция эффективной нелинейной восприимчивости как функция времени задержки между импульсами накачки и зонда. Красной линией показана аппроксимация данных. Серым представлена нормированная кросс-корреляционная функция импульсов.

Заключение

Основные результаты диссертационной работы могут быть сформулированы следующим образом:

1. Исследованы кубические нелинейно-оптические процессы в одиночных полупроводниковых наночастицах и в субволновых массивах таких частиц при возбуждении в них магнитного дипольного резонанса. Эксперимен-

тально продемонстрировано усиление более чем на два порядка интенсивности генерации третьей оптической гармоники массивом кремниевых дисков субволнового размера по сравнению с объемным кремнием. Показано, что усиление интенсивности третьей гармоники при перестройке центральной длины волны импульса накачки через магнитный дипольный резонанс в 4 раза больше, чем в случае электрического дипольного резонанса. Данный эффект обусловлен пространственной конфигурацией оптической магнитной моды в структуре, которая распределена по всей частице и эффективно увеличивает объем участвующего в процессе генерации нелинейного материала.

2. Изучены механизмы генерации третьей оптической гармоники в кластерах близко расположенных кремниевых наночастиц при возбуждении в них магнитных дипольных резонансов. Обнаружена модификация спектра интенсивности третьей оптической гармоники олигомеров кремниевых нанодисков в виде тримеров при изменении расстояния между центрами частиц от 460 до 550 нм, обусловленная когерентной суперпозицией вкладов от нанодисков и кремниевой подложки, а также изменением ближнепольного взаимодействия между частицами в кластере.
3. Впервые исследованы магнитные Фано-резонансы в кластерах полупроводниковых наночастиц на оптических частотах. Экспериментально продемонстрировано стократное усиление эффективности генерации третьей оптической гармоники в квадрумерах кремниевых нанодисков по сравнению с объемным кремнием за счет коллективных магнитных мод, приводящих к возбуждению магнитного Фано-резонанса в структуре.
4. Выполнены измерения временной зависимости кубичного нелинейно-оптического отклика плазмонных сетчатых метаматериалов, связанной с процессами термализации и релаксации электронного газа в металлических частях наноструктуры. В экспериментальной схеме накачка-зонд обнаружена сверхбыстрая (порядка 500 фс) модуляция сигнала третьей оптической гармоники, обусловленная модификацией эффективной нелинейной кубичной восприимчивости исследуемой структуры при воздействии фемтосекундного лазерного импульса. Полученная величи-

на изменения эффективной кубичной восприимчивости метаматериала составила 70% при плотности энергии в импульсе 20 мкДж/см².

Список работ, опубликованных по теме диссертации в рецензируемых журналах

- [1] *Shcherbakov M. R., Neshev D. N., Hopkins B., Shorokhov A. S., Staude I., Melik-Gaykazyan E. V., Decker M., Ezhov A. A., Miroshnichenko A. E., Brener I., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Enhanced Third-Harmonic Generation in Silicon Nanoparticles Driven by Magnetic Response // *Nano Lett.* — 2014. — т. 14, № 11. — с. 6488–6492.
- [2] *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.
- [3] *Shorokhov A. S., Melik-Gaykazyan E. V., Smirnova D. A., Hopkins B., Chong K. E., Choi D.-Y., Shcherbakov M. R., Miroshnichenko A. E., Neshev D. N., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Multifold Enhancement of Third-Harmonic Generation in Dielectric Nanoparticles Driven by Magnetic Fano Resonances // *Nano Lett.* — 2016. — т. 16, № 8. — с. 4857–4861.
- [4] *Shcherbakov M. R., Shorokhov A. S., Neshev D. N., Hopkins B., Staude I., Melik-Gaykazyan E. V., Ezhov A. A., Miroshnichenko A. E., Brener I., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Nonlinear Interference and Tailorable Third-Harmonic Generation from Dielectric Oligomers // *ACS Photonics.* — 2015. — т. 2, № 5. — с. 578–582.
- [5] *Wang L., Shorokhov A. S., Melentiev P. N., Kruk S., Decker M., Helgert C., Setzpfandt F., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S., Neshev D. N.* Multipolar Third-Harmonic Generation in Fishnet Metamaterials // *ACS Photonics.* — 2016. — т. 3, № 8. — с. 1494–1499.
- [6] *Shorokhov A. S., Okhlopkov K. I., Reinhold J., Helgert C., Shcherbakov M. R., Pertsch T., Fedyanin A. A.* Ultrafast control of third-order optical nonlinearities in fishnet metamaterials // *Sci. Rep.* — 2016. — т. 6, — с. 28440.
- [7] *Shorokhov A. S., Melik-Gaykazyan E. V., Smirnova D. A., Hopkins B., Chong K. E., Choi D.-Y., Shcherbakov M. R., Miroshnichenko A. E., Neshev D. N., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Enhanced third-harmonic generation in silicon oligomers driven by magnetic Fano resonance // *CLEO:16 / Optical Society of America.* — 2016. — с. FTh3A.3.

-
- [8] *Shcherbakov M. R., Vabishchevich P. P., Shorokhov A. S., Melik-Gaykazyan E. V., Chong K. E., Choi D.-Y., Staude I., Miroshnichenko A. E., Neshev D. N., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Ultrafast Nonlinearities Driven by Magnetic Response in All-Dielectric Nanostructures // CLEO:16 / Optical Society of America. — 2016. — с. FM1D.3.
- [9] *Shcherbakov M. R., Neshev D. N., Hopkins B., Shorokhov A. S., Staude I., Melik-Gaykazyan E. V., Decker M., Ezhov A. A., Miroshnichenko A. E., Brener I., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Third-harmonic generation from silicon oligomers and metasurfaces // CLEO:15 / Optical Society of America. — 2015. — с. FM1C.2.
- [10] *Shcherbakov M. R., Neshev D. N., Shorokhov A. S., Staude I., Melik-Gaykazyan E. V., Hopkins B., Dominguez J., Miroshnichenko A. E., Brener I., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Third-harmonic spectroscopy of all-dielectric oligomers with both electric and magnetic resonances // CLEO:14 / Optical Society of America. — 2014. — с. FTh3D.3.

Список работ, опубликованных по теме диссертации в рецензируемых журналах

- [11] *Shorokhov A. S., Melik-Gaykazyan E. V., Smirnova D. A., Hopkins B., Chong K. E., Choi D.-Y., Shcherbakov M. R., Miroshnichenko A. E., Neshev D. N., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Magnetic Fano resonances in quadrumers of all-dielectric nanoparticles // Technical digest of The 9th International Conference on Materials for Advanced Technologies (ICMAT), Singapore, Singapore. — 2017. — CD-ROM.
- [12] *Shorokhov A. S., Melik-Gaykazyan E. V., Smirnova D. A., Hopkins B., Chong K. E., Choi D.-Y., Shcherbakov M. R., Miroshnichenko A. E., Neshev D. N., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Third-harmonic generation from silicon nanodisks clusters with magnetic Fano resonances // Technical digest of The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT), Minsk, Belarus. — 2016. — CD-ROM.
- [13] *Shorokhov A. S., Melik-Gaykazyan E. V., Smirnova D. A., Hopkins B., Chong K. E., Choi D.-Y., Shcherbakov M. R., Miroshnichenko A. E., Neshev D. N., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Third-harmonic generation spectroscopy of magnetic Fano resonance in oligomers of silicon nanoparticles // Book of abstracts of the International Conference «Days on Diffraction», Saint-Petersburg, Russia. — 2016. — CD-ROM.
- [14] *Shorokhov A. S., Hopkins B., Chong K. E., Neshev D. N., Choi D.-Y., Shcherbakov M. R., Miroshnichenko A. E., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Experimental observation of magnetic Fano resonances in all-dielectric

- quadrumers // Book of abstracts of the International Conference SPIE Micro+Nano Materials, Devices, and Applications, Sydney, Australia. — 2015. — CD-ROM.
- [15] *Shcherbakov M. R., Neshev D. N., Hopkins B., Shorokhov A. S., Staude I., Melik-Gaykazyan E. V., Decker M., Ezhov A. A., Miroshnichenko A. E., Brener I., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Nonlinear Optics of Dielectric Nanoparticles and Metasurfaces Assisted by Magnetic Mie-type Resonances // Book of abstracts of the International Conference PIERS:2015, Prague, Czech Republic. — 2015. — CD-ROM.
- [16] *Shorokhov A. S., Fedotova A. N., Melik-Gaykazyan E. V., Shcherbakov M. R., Fedyanin A. A., Lodewijks K., Dmitriev A., Vevellen N., Moshchalkov V. V.* Third harmonic generation spectroscopy of plasmonic meta-atoms in the vicinity of the magnetic dipolar resonance // Book of abstracts of the International Conference «Days on Diffraction», Saint-Petersburg, Russia. — 2015. — CD-ROM.
- [17] *Shorokhov A. S., Melik-Gaykazyan E. V., Shcherbakov M. R., Neshev D. N., Staude I., Miroshnichenko A. E., Dominguez J., Brener I., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Third-harmonic generation spectroscopy of all-dielectric oligomers and metasurfaces // Book of abstracts of the International CUDOS workshop, Hunter Valley, New South Wales, Australia. — 2015. — CD-ROM.
- [18] *Shcherbakov M. R., Neshev D. N., Shorokhov A. S., Staude I., Melik-Gaykazyan E. V., Hopkins B., Dominguez J., Miroshnichenko A. E., Brener I., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Nonlinear spectroscopy of electric and magnetic resonances in all-dielectric oligomers // Book of abstracts of the Metamaterials'2014 The 8th International Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics, Copenhagen, Denmark. — 2014. — CD-ROM.
- [19] *Shorokhov A. S., Shcherbakov M. R., Reinhold J., Fedyanin A. A., Pertsch T.* Subpicosecond relaxation of the third-order nonlinear susceptibility in fishnet metamaterials // Book of abstracts of the International Conference SPIE Optics+Photonics, San Diego, USA. — 2014. — CD-ROM.
- [20] *Shcherbakov M. R., Neshev D. N., Shorokhov A. S., Staude I., Melik-Gaykazyan E. V., Hopkins B., Dominguez J., Miroshnichenko A. E., Brener I., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Third-Harmonic Spectroscopy of Electric and Magnetic Resonances in Silicon Nanodisks // Book of abstracts of the International Conference Nano-2014, Moscow, Russia. — 2014. — CD-ROM.
- [21] *Shorokhov A. S., Shcherbakov M. R., Fedyanin A. A., Neshev D. N., Staude I., Miroshnichenko A. E., Kivshar Y. S., Dominguez J., Brener I.*

-
- Third-harmonic generation spectroscopy of Mie resonances in silicon nanoparticles // Book of abstracts of the International Conference «Days on Diffraction», Saint-Petersburg, Russia. — 2014. — CD-ROM.
- [22] *Shorokhov A. S., Shcherbakov M. R., Reinhold J., Helgert C., Pertsch T., Fedyanin A. A.* Static and dynamic properties of third harmonic generation in fishnet metamaterials // Book of abstracts of the International Conference SPIE Europe, Brussels, Belgium. — 2014. — CD-ROM.
- [23] *Shcherbakov M. R., Neshev D. N., Shorokhov A. S., Staude I., Melik-Gaykazyan E. V., Hopkins B., Dominguez J., Miroshnichenko A., Brener I., Fedyanin A. A., Kivshar Y. S.* Third-harmonic spectroscopy of electric and magnetic resonances in all-dielectrical oligomers // Book of abstracts of the International Conference Meta'2014, Singapore, Singapore. — 2014. — CD-ROM.
- [24] *Shorokhov A. S., Shcherbakov M. R., Fedyanin A. A., Reinhold J., Helgert C., Chipouline A., Pertsch T.* Third harmonic generation in fishnet metamaterials // Technical digest of The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT), Moscow, Russia. — 2013. — CD-ROM.

Список цитированной литературы

- [25] *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. Photon.* — 2009. — т. 3. — с. 206–210.
- [26] *Reinhold J., Shcherbakov M. R., Chipouline A., Panov V. I., Helgert C., Paul T., Rockstuhl C., Lederer F., Kley E. B., Tünnermann A., Fedyanin A. A., Pertsch T.* Contribution of the magnetic resonance to the third harmonic generation from a fishnet metamaterial // *Phys. Rev. B.* — 2012. — т. 86, № 11. — с. 115401.
- [27] *Guo C., Rodriguez G., Taylor A. J.* Ultrafast Dynamics of Electron Thermalization in Gold // *Phys. Rev. Lett.* — 2001. — т. 86, № 8. — с. 1638–1641.