

Московский государственный университет
имени М. В. Ломоносова

Физический факультет

М. А. Кирьянов

**Фемтосекундная динамика
оптического отклика
металл-диэлектрических
металповерхностей и магнитоплазмонных
кристаллов**

Монография



Издательство Московского университета
2025

УДК 535.3
ББК 22.343
К43

Рецензент:

А. А. Федянин — доктор физико-математических наук,
член-корреспондент РАН, профессор кафедры нанофотоники
физического факультета МГУ им. М. В. Ломоносова

Кириянов М. А.

К43 Фемтосекундная динамика оптического отклика металл-диэлектрических метаповерхностей и магнитоплазмонных кристаллов / М. А. Кириянов. – Москва: Издательство Московского университета, 2025. 194, [2] с.:цв. ил.

ISBN 978-5-19-012342-5

Работа основана на диссертации по теме “Фемтосекундная динамика оптического отклика металл-диэлектрических метаповерхностей и магнитоплазмонных кристаллов” и посвящена экспериментальному и численному исследованию особенностей сверхбыстрой динамики оптического и магнитооптического отклика различных электромагнитных мод в плазмонных структурах при нагреве лазерным фемтосекундным импульсом.

Ключевые слова: нанофотоника, плазмоника, сверхбыстрая оптика, электронная динамика, фемтосекундная спектроскопия “зонд-накачка”.

УДК 535.3
ББК 22.343

© Кириянов М. А., 2025
© Физический факультет
МГУ имени М. В. Ломоносова, 2025
© Издательство Московского
университета, 2025

ISBN 978-5-19-012342-5

Оглавление

Введение 5

Глава I

Обзор литературы 17

1. Поверхностные плазмоны 17
2. Сверхбыстрый нагрев металлических пленок 38
3. Сверхбыстрый нагрев плазмонных структур 59
4. Магнитооптические эффекты Керра 78
5. Сверхбыстрое размагничивание 96
6. Постановка задачи 104

Глава II

Субпикосекундная динамика оптического отклика металл-диэлектрической метаповерхности 105

1. Геометрические параметры исследуемой металл-диэлектрической метаповерхности и метод изготовления 105
2. Расчет спектров пропускания металл-диэлектрической метаповерхности и распределения ближнего поля на длинах волн возбуждаемых электромагнитных мод. 106
3. Экспериментальная реализация спектроскопии с фемтосекундным временным разрешением 110
4. Сверхбыстрая динамика пропускания металл-диэлектрической метаповерхности в спектральной окрестности различных мод. 112
5. Влияние плотности энергии импульса накачки на сверхбыструю динамику пропускания металл-диэлектрической метаповерхности 117
6. Численный анализ зависимостей дифференциального пропускания от длины волны и времени задержки 120

7. Сверхбыстрая динамика дифференциального пропускания в других экспериментальных конфигурациях 131
8. Выводы к главе 135

Глава III

Пикосекундная динамика оптического отклика магнитоплазменных кристаллов 137

1. Геометрические параметры исследуемых магнитоплазменных кристаллов и метод изготовления 137
2. Оптический отклик магнитоплазменных кристаллов с различными геометрическими параметрами 138
3. Сверхбыстрая динамика отражения магнитоплазменных кристаллов 144
4. Численный анализ сверхбыстрой динамики отражения магнитоплазменных кристаллов 148
5. Выводы к главе 156

Глава IV

Субпикосекундная динамика экваториального магнитооптического эффекта Керра при сверхбыстром неоднородном размагничивании магнитоплазменных кристаллов 157

1. Сверхбыстрая динамика экваториального магнитооптического эффекта Керра 157
2. Численный анализ динамики экваториального магнитооптического эффекта Керра при неоднородном размагничивании 162
3. Выводы к главе 169

Заключение 170

Список литературы 175

Введение

Диссертационная работа посвящена экспериментальному и численному исследованию особенностей сверхбыстрой динамики оптического отклика различных электромагнитных мод в плазмонных структурах при нагреве лазерным фемтосекундным импульсом. Рассмотрена субпикосекундная эволюция коэффициента пропускания на длинах волн решеточных плазмонных и квазиволноводных мод металл-диэлектрической метаповерхности, основанной на двумерном периодическом массиве золотых наносфер, покрытых слоем висмут-замещенного железо-иттриевого граната. Изучено влияние глубины профиля одномерных никелевых магнитоплазмонных кристаллов на пикосекундную динамику температуры и коэффициента отражения на длинах волн возбуждения бегущих и стоячих плазмонов зондирующим импульсом, а также сверхбыстрое лазерное неоднородное размагничивание в таких системах.

Актуальность темы обусловлена интересом научного сообщества к сверхбыстрым процессам, протекающим в твердых телах. Ультракороткие лазерные импульсы позволяют напрямую наблюдать процессы, протекающие на фемтосекундном временном масштабе. С помощью методики “зонд-накачка”, когда один мощный лазерный импульс вызывает изменения в среде, а второй - их детектирует, были исследованы процессы электронной динамики [1, 2], внутри- и межзонных переходов [3], оптического размагничивания [4] и перемангничивания [5], плавления [6], кристаллизации и аморфизации [7], и многие другие. В металлах фемтосекундный лазерный импульс накачки переводит электроны вблизи уровня Ферми на более высокие энергетические состояния, создавая неравновесное электронное распределение [8]. За счет электрон-электронных столкновений электронная система термализуется, электронный газ переходит из неравновесного в равновесное состояние с высокой температурой [9]. Горячий электронный газ взаимодей-

ствует с ионными остовами, передавая энергию системе фононов [10]. Высокая подвижность горячих электронов существенно ускоряет диффузию тепла вдоль поверхности [11]. Если система обладает магнитной упорядоченностью, лазерный импульс может вызывать прецессию намагниченности [12, 13], а электрон-фононное рассеяние приводит к перевороту спина частиц и размагничиванию вещества [14]. Все эти процессы вызывают модификацию диэлектрической проницаемости [15], изменения которой можно наблюдать с помощью зондирующего импульса. Увеличение электронной и фононной температур повышает вероятность электрон-электронного [16] и электрон-фононного [17] рассеяний, что вносит наибольший вклад в изменение диэлектрической проницаемости друдевских металлов. При зондировании в спектральной окрестности межзонных переходов изменение энергетической функции распределения электронов влияет на вероятность поглощения фотона в металле, что вызывает изменение диэлектрической проницаемости. Возбуждение плазмонных резонансов позволяет локализовать энергию электромагнитной волны на наномасштабе [18], что приводит к увеличению степени взаимодействия лазерных импульсов со средой, более эффективному лазерному нагреву [19] и размагничиванию [20], а также к более чувствительному детектированию сверхбыстрого оптического отклика [21]. Наноструктурирование поверхности может существенно модифицировать сверхбыструю оптическую динамику и приводить к появлению новых, недоступных для объемных материалов, процессов: температурная нелинейность горячих электронов вблизи межзонных переходов [22] позволяет управлять временной зависимостью сверхбыстрого оптического отклика, меняя взаимное спектральное положение плазмонного и материального резонансов [23]; сверхбыстрая электронная диффузия может существенно менять пространственное неоднородное распределение температур внутри плазмонных наночастиц, что приводит к сверхбыстрому изменению степени симметрии системы [24, 25]; пикосекундный нагрев фононов

вызывает тепловое расширение плазмонных частиц и возбуждает собственные механические колебания их объема [26]; в гибридных системах возбуждение поверхностных плазмонных импульсом накачки может эффективно индуцировать переходы свободных носителей между металлами [27] или из металла в зону проводимости полупроводника [28] и приводить к когерентному переносу энергии из металла в полупроводник за счет диполь-дипольного взаимодействия [29].

Степень разработанности темы исследований. Хотя лазерно-индуцированные сверхбыстрые процессы в объемных металлах и гладких металлических пленках широко изучены, существует развитый экспериментальный и теоретический аппарат методов их описания, фемтосекундная динамика оптического отклика в плазмонных наноструктурах может включать несколько параллельно протекающих процессов, иметь сложную интерпретацию и остается актуальной темой научных исследований.

Целью диссертационной работы является экспериментальное исследование особенностей сверхбыстрого оптического и магнитооптического отклика металл-диэлектрической плазмонной метаповерхности и одномерных никелевых плазмонных кристаллов с различной глубиной пространственного профиля.

Задачи, поставленные в рамках диссертационной работы:

1. Экспериментальное исследование оптически индуцированной субпикосекундной динамики спектров коэффициента пропускания плазмонной метаповерхности на основе двумерного периодического массива золотых наносфер, покрытых слоем висмут-замещенного железо-иттриевого граната, поддерживающей возбуждение электромагнитных мод разного типа в видимом спектральном диапазоне; изучение влияния ориентации поляризаций импульсов зонда и накачки на наблюдаемую динамику.
2. Экспериментальное исследование оптически индуциро-

ванной субпикосекундной динамики спектров коэффициента отражения никелевых плазмонных кристаллов с различной глубиной модуляции пространственного профиля.

3. Построение феноменологической модели, описывающей влияние глубины модуляции пространственного профиля плазмонных кристаллов на субпикосекундную динамику спектров коэффициента отражения.
4. Экспериментальное исследование оптически индуцированной субпикосекундной динамики спектров экваториального магнитооптического эффекта Керра никелевых магнитоплазмонных кристаллов с различной глубиной модуляции пространственного профиля.
5. Построение феноменологической модели, описывающей влияние неоднородного размагничивания на экваториальный магнитооптический эффект Керра.

Объект и предмет исследования. Объектами исследования являются плазмонные метаповерхности на основе двумерного периодического массива золотых наносфер, покрытых слоем висмут-замещенного железо-иттриевого граната, и никелевые магнитоплазмонные одномерные кристаллы с синусоидальной формой поверхности. Предметом исследования являются спектры дифференциального пропускания, дифференциального отражения и экваториального магнитооптического эффекта Керра под действием фемтосекундного лазерного излучения.

Научная новизна:

1. Обнаружено значительное усиление величины дифференциального пропускания металл-диэлектрической плазмонной метаповерхности в спектральной окрестности возбуждения решеточных плазмонных мод зондирующим

импульсом под действием резонансно поглощенного импульса накачки.

2. Экспериментально продемонстрировано, что сверхбыстрая динамика коэффициента пропускания металл-диэлектрической плазмонной метаповерхности на длинах волн возбуждения решеточных плазмонных мод описывается субпикосекундными процессами в золоте, в то время как динамика коэффициента пропускания при резонансном возбуждении квазиволноводных мод требует учета плазмон-индуцированной инжекции электронов из золота в гранат с характерным временем релаксации 7 пс.
3. Обнаружено, что соотношение между вкладами электронной и фононной температур в сверхбыструю динамику коэффициента отражения никелевых одномерных плазмонных кристаллов определяется глубиной пространственной модуляции их поверхности.
4. Экспериментально обнаружен дополнительный экстремум в зависимости дифференциального коэффициента отражения от времени одномерного плазмонного кристалла в узком спектральном окне на синем краю поверхностного плазмонного резонанса. Эффект наблюдается только в образце, поддерживающем оптимальное связывание падающей волны и поверхностного плазмона. Для описания явления предложена численная модель на основе температурной нелинейности диэлектрической проницаемости и чувствительности поверхностных плазмонов к ней.
5. Показано, что значения экваториального магнитооптического эффекта Керра в спектральной окрестности возбуждения бегущих поверхностных плазмонов при фемтосекундном лазерном неоднородном размагничивании никелевого одномерного плазмонного кристалла соответ-

ствуют усредненному состоянию намагниченности по области локализации ближнего поля плазмонов.

6. Экспериментально продемонстрировано изменение знака экваториального магнитооптического эффекта Керра в спектральной окрестности возбуждения стоячих поверхностных плазмонов при фемтосекундном лазерном неоднородном размагничивании никелевого одномерного плазмонного кристалла, происходящее за первые 150 фемтосекунд после начала воздействия лазерным импульсом. С помощью численных расчетов показано, что явление вызвано пространственной неоднородностью размагничивания.

Личный вклад Кирьянова М.А. является определяющим. Все представленные в диссертации результаты получены автором лично или при его непосредственном участии. Автором осуществлялись сбор и юстировка экспериментальных установок, автоматизация эксперимента, проведение измерений, обработка и анализ полученных данных, выполнение аналитических и численных расчетов.

Теоретическая и практическая значимость диссертационной работы заключается в потенциальном использовании полученных результатов для расширения функциональных возможностей уже существующих и разрабатываемых нанофотонных устройств, реализующих активное управление светом в видимом спектральном диапазоне [30–34]. В настоящее время активно развиваются оптические нейроморфные вычисления, имплементирующие принципы работы мозга с помощью методов фотоники [35, 36]. В частности, спайковые нейронные сети имитируют долгосрочную и краткосрочную нейропластичность синапсов в мозге [37, 38]. Фотонные синапсы — ключевые компоненты оптических спайковых нейронных сетей — определяют весовые коэффициенты входных сигналов для оптических нейронов. Для воспроизведения пластичности человеческого мозга эти устройства должны демонстриро-

вать переменный во времени оптический отклик на импульсы. Адаптивные искусственные синапсы используют биэкспоненциальные процессы затухания для имитации кратко- и долговременной памяти. Электрон-фононная и фонон-фононная релаксации могут выполнять эту роль в пикосекундном диапазоне. Синапс на основе плазмонных структур может обеспечить контролируемый сверхбыстрый отклик, регулировку относительного вклада кратко- и долговременной памяти, переключение между потенциацией и депрессией. Нелинейная функциональность устройств критична для реализации сложных синаптических функций, в сверхбыстрых плазмонных синапсах она может быть обеспечена температурной нелинейностью горячих электронов. Помимо задач активного управления света, многокомпонентные плазмонные металповерхности широко используются в фотовольтаике, фотокатализе и фотохимии [39–42]: возбуждение поверхностных плазмонов фемтосекундным импульсом приводит к генерации большого количества высокоэнергетических свободных носителей вблизи границы раздела, что может не только увеличивать фототок и эффективность фотохимических реакций, но и понижать энергетический порог. Подобные эффекты нашли применение в таких прикладных областях как производство водорода [43] и в солнечной энергетике [44], однако в настоящее время субпикосекундная кинетика таких процессов изучена недостаточно, что необходимо для большего увеличения эффективности.

Методология и методы исследования. Сверхбыстрая динамика коэффициента пропускания металл-диэлектрической металповерхности, коэффициента отражения и экваториального магнитооптического эффекта Керра никелевых плазмонных кристаллах исследовались в схеме фемтосекундной спектроскопии с временным разрешением методом “зонд-накачка”. Численные расчеты статических и динамических коэффициентов пропускания и отражения образцов, распределения компонент ближнего поля, температуры и состояния намагниченности проводились методом конечных элементов (FEM) в

программном пакете Comsol Multiphysics. Методами оптической спектроскопии были получены спектры отражения никелевых плазмонных кристаллов в видимом спектральном диапазоне для p -поляризованного излучения и различных углов падения электромагнитной волны. Характеризация профиля поверхности никелевых плазмонных кристаллов проводилась методами атомносиловой и сканирующей электронной микроскопии.

Положения, выносимые на защиту

1. В схеме фемтосекундной спектроскопии “зонд-накачка” метаповерхности, состоящей из периодического массива золотых наносфер в слое железо-иттриевого граната, при поглощении импульса накачки спектр дифференциального пропускания определяется типом моды, возбуждаемой импульсом зонда: в случае квазиволноводных мод изменяется амплитуда и фаза резонанса типа Фано в спектре пропускания; в случае решеточных плазмонных мод изменяется преимущественно амплитуда резонансов.
2. При фемтосекундном нагреве одномерных никелевых плазмонных кристаллов форма релаксационных кривых дифференциального отражения определяется высотой плазмонного кристалла, которая влияет на эффективность возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов зондирующим импульсом.
3. Неоднородное фемтосекундное размагничивание никелевого плазмонного кристалла вызывает изменения величины магнитооптического эффекта Керра, определяемые типом возбуждаемых поверхностных плазмон-поляритонов: в случае бегущих волн величина эффекта уменьшается с сохранением знака; в случае стоячих волн – уменьшается с изменением знака.

Степень достоверности полученных результатов подтверждается их воспроизводимостью при повторных измерениях в

пределах погрешности и соответствием существующим литературным данным. Экспериментальные результаты находятся в хорошем согласии с численным моделированием и аналитическими расчетами исследуемых сверхбыстрых процессов. Результаты диссертационной работы прошли стадии рецензирования при их публикации в научных изданиях.

Апробация работы. Результаты, отраженные в настоящей диссертации, представлены на следующих всероссийских и международных научных конференциях:

- XVI Всероссийская школа-семинар “Волновые явления в неоднородных средах” имени профессора А.П. Сухорукова (“Волны-2018”), Красновидово, Россия (2018)
- 11th International Conference of Electrical, Transport, and Optical Properties on Inhomogeneous Media (ЕТОРІМ11), Краков, Польша (2018)
- Swiss-Russian Workshop “Materials of electronics in ultrashort ultrastrong electromagnetic field” 2018, Москва, Россия (2018)
- 13th International Summer School “N&N, Organic Electronics & Nanomedicine” (ISSON13), Салоники, Греция (2019)
- The third International Baltic Conference on Magnetism (ІВСМ 2019), Светлогорск, Россия (2019)
- International Conference on Ultrafast Optical Science “UltrafastLight-2019”, Москва, Россия (2019)
- SPIE Photonics Europe, онлайн, Франция (2020)
- V International Conference on Metamaterials and Nanophotonics METANANO 2020, онлайн, Грузия (2020)
- Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых “Ломоносов-2021”., Москва, Россия, 2021

- IV International Baltic Conference on Magnetism: focus on nanobiomedicine and smart materials (IBCM-2021), г. Светлогорск, Калининградская область, Россия, 2021.
- XXIX Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых учёных “Ломоносов-2022” Секция “Физика”, Москва, Россия, 2022
- Smart Composites International School, г. Калининград, Россия, 2022
- XXX Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых учёных “Ломоносов-2023”. Секция «Физика», Москва, Россия, 2023
- 11th International Conference on Materials for Advanced Technologies (ICMAT), Сингапур, Сингапур, 2023.
- 20th International Conference on Nanosciences & Nanotechnologies (NN23), Салоники, Греция, 2023
- V International Baltic Conference on Magnetism 2023 (IBCM 2023), Светлогорск, Калининградская область, Россия, 2023
- 31th International conference on Advanced Laser Technologies (ALT-2024), Владивосток, Россия, 2024
- 12th International Conference on Materials for Advanced Technologies (ICMAT), Сингапур, Сингапур, 2025.
- Fundamentals of Laser-Assisted micro and Nanotechnologies 2025 (FLAMN-25), Санкт-Петербург, Россия, 2025
- VOLGA NEUROSCIENCE MEETING 2025 (VNM2025), Нижний Новгород, Россия, 2025

Публикации. Основные результаты диссертации опубликованы в 5 публикациях [45–49], включая 4 статьи [45–48] в рецензируемых научных изданиях, индексируемых базами данных Web of Science, Scopus, РИНЦ.

Объем и структура диссертации. Диссертация состоит из введения, четырёх глав и заключения. Полный объём диссертации составляет 152 страницы с 70 рисунками. Список литературы содержит 156 наименований.

Глава I

Обзор литературы

1. Поверхностные плазмоны

Наноразмерные объекты позволяют возбуждать различные электромагнитные резонансы вблизи границы раздела двух сред, например поверхностные плазмоны на границе металл-диэлектрик. Поверхностные плазмоны - это связанные колебания электромагнитного поля и электронного газа [18]. Их возбуждение приводит к большой локализации поля в области возбуждения, резонансному усилению поглощения и рассеяния света (рис. 1.1), а длина волны возбуждения существенно зависит от диэлектрической проницаемости металла и окружающей среды. Поверхностные плазмоны делятся на две основные группы: поверхностные плазмон-поляритоны (ППП) [50], распространяющиеся вдоль поверхности раздела металл-диэлектрик, и локализованные поверхностные плазмоны (ЛП) [51], возбуждаемые в металлических наночастицах с характерными размерами меньше оптической длины волны.

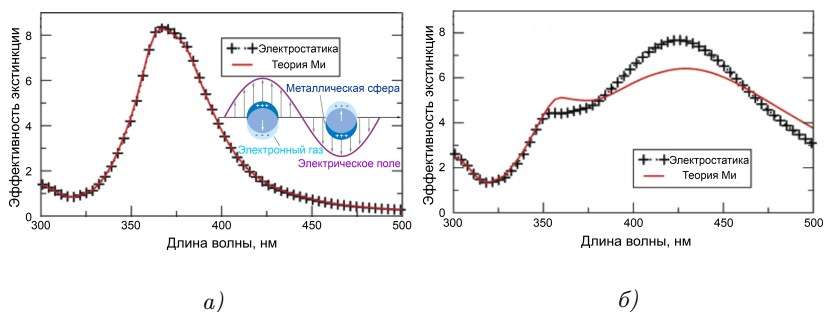


Рис. 1.1: а) - расчет спектра экстинкции в квазистатическом приближении и при помощи теории Ми для серебряной сферы с радиусом 30 нм; вложение - связанные колебания электронного газа и электрического поля. б) - Расчет для сфер с радиусом 60 нм [51].

Рассмотрим взаимодействие света с амплитудой E_0 и ме-

таллической сферой, радиус которой много меньше длины волны $a \ll \lambda$ [18]. В таком случае выполняется приближение квазистатической аппроксимации, когда электрическое поле можно считать однородным внутри сферы. Свободные электроны будут коллективно колебаться когерентно с электрическим полем падающего света (рис. 1.1 а). Пусть ε_m и ε_d - диэлектрические проницаемости металла и диэлектрика. Рассматривая задачу как электростатическую, необходимо решить уравнение Лапласа: $\nabla^2 \Phi = 0$, Φ - электростатический потенциал $\mathbf{E} = -\nabla \Phi$. Учитывая сферическую симметрию, задачу можно решать в сферической системе координат. Направим ось z вдоль направления $\mathbf{E}$, r и θ - модуль радиус-вектора и угол наклона к оси z для произвольной точки. Тогда ее общее решение будет:

$$\Phi(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} (A_l r^l + B_l r^{-(l+1)}) P_l(\cos \theta),$$

где $P_l(\cos \theta)$ - полиномы Лежандра порядка l . Решение не должно уходить на бесконечность при $r \rightarrow 0$. Решение можно разделить на потенциал внутри сферы и вне сферы:

$$\begin{aligned} \Phi_{in} &= \sum_{l=0}^{\infty} A_l r^l P_l(\cos \theta), \\ \Phi_{out} &= \sum_{l=0}^{\infty} (B_l r^l + C_l r^{-(r+1)}) P_l(\cos \theta). \end{aligned}$$

Для нахождения коэффициентов A_l , B_l и C_l необходимо учесть граничные условия для $\mathbf{E}$ и $\mathbf{D}$ и условие на бесконечности:

$$\begin{aligned} \Phi_{out} &\rightarrow E_0 z = E_0 r \cos \theta \text{ при } r \rightarrow \infty, \\ -\frac{1}{a} \frac{\partial \Phi_{in}}{\partial \theta} \Big|_{r=a} &= -\frac{1}{a} \frac{\partial \Phi_{out}}{\partial \theta} \Big|_{r=a}, \\ \varepsilon_m \frac{\partial \Phi_{in}}{\partial r} \Big|_{r=a} &= \varepsilon_d \frac{\partial \Phi_{out}}{\partial r} \Big|_{r=a}. \end{aligned}$$

Тогда $B_1 = E_0$, $A_l = B_l = C_l = 0$ при $l \neq 1$ и решение прини-

мает вид:

$$\begin{aligned}\Phi_{in} &= -\frac{3\varepsilon_m}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_d}E_0rcos\theta, \\ \Phi_{out} &= -E_0rcos\theta + \frac{\varepsilon_d - \varepsilon_m}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_d}E_0a^3cos\theta/r^2.\end{aligned}$$

Первое слагаемое в Φ_{out} отвечает за внешнее поле, а второе слагаемое - это поле диполя, помещенного в центр шара. Обозначив его дипольный момент как $\mathbf{p}$, решение можно представить как:

$$\begin{aligned}\Phi_{out} &= -E_0rcos\theta + \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}}{\varepsilon_m r^3}, \\ \mathbf{p} &= \varepsilon_m a^3 \frac{\varepsilon_d - \varepsilon_m}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_d} \mathbf{E}_0.\end{aligned}$$

Таким образом, внешнее электрическое поле будет создавать дипольный момент, пропорциональный полю, и поляризуемость металлической сфер будет определяться как:

$$\alpha = \frac{p}{\varepsilon_m E_0} = a^3 \frac{\varepsilon_d - \varepsilon_m}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_d}. \quad (1.1)$$

Поляризуемость будет испытывать резонансное усиление при обращении действительной части знаменателя в 0. Это приводит к резонансному усилению поля вокруг сферы (рис. 1.2 а) и большой чувствительности к диэлектрическим проницаемостям металла и внешней среды [52]. При переходе от задачи электростатики к оптической задаче, возбуждение ЛП можно интерпретировать как когерентное колебание электрического поля и электронного газа внутри металлической сферы. Условие обращения действительной части знаменателя в 0:

$$Re[\varepsilon_d] = -2\varepsilon_m \quad (1.2)$$

называется условием Фрёлиха возбуждения дипольного поверхностного плазмона. Значение поляризуемости при выпол-

нении этого условия будет определяться мнимой частью диэлектрической проницаемости металла, ей же определяется и спектральная ширина резонанса. Поэтому наиболее выраженными и добротными резонансами обладают наночастицы из благородных металлов.

Для одиночной частицы можно определить сечения поглощения σ_{abs} и рассеяния σ_{scat} , их сумма будет сечением экстинкции σ_{ext} [51]:

$$\sigma_{abs} = 4\pi k \text{Im}[\alpha], \sigma_{scat} = \frac{8}{3}\pi k^4 |\alpha|^2, \sigma_{ext} = \sigma_{abs} + \sigma_{scat}, \quad (1.3)$$

где k - модуль волнового вектора.

Увеличение диаметра приводит к сдвигу дипольного плазмонного резонанса в красную область и появлению новых мод большей мультипольности, в первую очередь, к появлению квадрупольной моды (рис. 1.1 в). Появление квадрупольной моды связано с неоднородностью поля внутри сферы. Внешнее электрическое поле при возбуждении квадрупольной моды будет записываться как [51]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{out} = & E_0 \mathbf{z} + ik(x\mathbf{x} + z\mathbf{z}) - \alpha E_0 \left[\frac{\mathbf{z}}{r^3} - \frac{3z}{r^5} \mathbf{r} \right] - \\ & - \beta E_0 \left[\frac{x\mathbf{x} + z\mathbf{z}}{r^5} - \frac{5x}{r^7} (z^2 \mathbf{z} + y^2 \mathbf{y} + zx\mathbf{x}) \right] \end{aligned}$$

где β - поляризуемость квадруполья:

$$\beta = a^5 \frac{\varepsilon_d - \varepsilon_m}{\varepsilon_m + 3/2\varepsilon_d}. \quad (1.4)$$

Сдвиг плазмонного резонанса при увеличении радиуса связан с возникновением деполяризации: разные удаленные друг от друга части сферы начинают излучать с некоторой задержкой по фазе, пространственная когерентность колебаний электронов снижается. Модель, учитывающая это явление называется модифицированным длинноволновым приближением,

поляризуемость сферы в этой модели определяется выражением [53]:

$$\alpha' = \frac{\alpha}{1 - \alpha k^2/a - i2\alpha k^3/3},$$

где α определяется выражением 1.1, k - модуль волнового вектора падающего света. При дальнейшем увеличении диаметра и это приближение начинает переставать выполняться (рис. 1.1 в), и необходимо рассматривать более строгую теорию рассеяния Ми [54].

Характерное распределение ближнего поля при возбуждении квадрупольной моды представлено на рис. 1.2 б). В случае для больших мультиполей коэффициент в знаменателе при ε_d определяется выражением $(l + 1)/l$. Длина волны возбуждения высших порядков стремится к плазмонной частоте, и высшие моды ЛПП соответствуют возбуждению объемного плазмона [55].

ЛПП могут возбуждаться не только в сферах, но и в частицах произвольной формы [52]. При этом длина волны будет меняться. И если в случае сфер в однородной среде симметрия задачи приводит к независимости условий возбуждения от угла падения и поляризации света, наличие пространственной асимметрии позволяет управлять свойствами резонанса при помощи взаимной ориентации наноструктуры и поляризации падающего света. В частности, задачу можно решить аналитически для случая эллипсоида [18]. Длина волны возбуждения будет перемещаться в более красную область при вращении линейной поляризации от ориентации, параллельной меньшей оси, к ориентации, параллельной большой оси.

Чувствительность к свойствам среды и большая локализация поля позволяют использовать ЛПП во многих практических целях, большое распространение такие моды получили в задачах сенсорики [56], применяются для усиления комбинационного рассеяния [57], генерации нелинейных эффектов [58]. Для улучшения свойств плазмонных резонансов варьируется

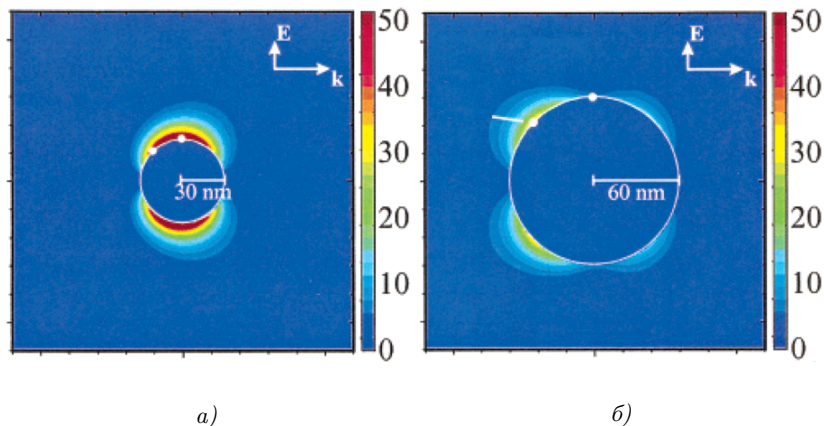


Рис. 1.2: а) - Характерное распределение поля на длине волны возбуждения диполя для серебряной сферы радиусом 30 нм б) - Характерное распределение поля на длине волны возбуждения квадруполь для серебряной сферы радиусом 60 нм. Белыми стрелочками указано направление волнового вектора и поляризация падающего света [51].

форма и размер наночастиц [52], создаются сложные многослойные структуры или системы из взаимодействующих между собой частиц [59]. Для увеличения добротности резонанса активно используется пространственное упорядочение наночастиц на поверхности (рис. 1.3 а). Возникающую моду в этом случае называют поверхностным решеточным резонансом (ПРР), а покрытые упорядоченными наночастицами поверхности - плазмонными метаповерхностями или плазмонными кристаллами [60]. Если образовать массив из наночастиц, то их оптический отклик можно описать как интерференцию точечных диполей. Такой подход называется приближением связанных диполей [61]. Рассмотрим массив из N наночастиц, $\alpha_i, \mathbf{r}_i$ - поляризуемость и радиус вектор i -той частицы. Дипольный момент i -той частицы $\mathbf{P}_i = \alpha_i \mathbf{E}_{loc}(\mathbf{r}_i)$ определяется локальным полем. Локальное поле, в свою очередь, определяется интерференцией падающего поля $\mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}_i)$ с полем от

оставшихся $N-1$ диполей $\mathbf{E}_{dip}(\mathbf{r}_i)$:

$$\mathbf{E}_{loc}(\mathbf{r}_i) = \mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}_i) + \mathbf{E}_{dip}(\mathbf{r}_i) = \mathbf{E}_0 e^{-ik\mathbf{r}_i} - \sum_{j=0, \neq i}^N A_{ij} \mathbf{P}_j,$$

где A_{ij} - матрица взаимодействия диполей. $A_{ij} \mathbf{P}_j$ - это поле j -диполя в точке $\mathbf{r}_i$, оно определяется взаимным расположением частиц $\mathbf{r}_{ij}$. Для нахождения всех $\mathbf{P}_j$ необходимо решить систему из $3N$ уравнений. Решение можно получить аналитически для бесконечного массива одинаковых наночастиц. Поляризуемость одной частицы будет определяться выражением:

$$\alpha^* = \frac{1}{1/\alpha - S}, \quad (1.5)$$

где α - поляризуемость уединенной частицы, S - параметр массива частиц, называемый дипольной суммой. S определяется упорядочением частиц в массиве. Поляризуемость будет испытывать резонансное усиление при обращении действительной части знаменателя в ноль.

На рисунке 1.3 б) показаны действительные и мнимые части $1/\alpha$ и S . Член $1/\alpha$ проходит через ноль при выполнении условия Фрёлиха (1.2), а дипольная сумма испытывает резонансный переход через ноль при исчезновении одного из дифракционных порядков (аномалия Рэлея). Поэтому если длина волны возбуждения ЛП уединенной частицы будет близка к аномалии Рэлея, найдется длина волны, при которой действительная часть знаменателя обратится в ноль, и это позволяет понимать ПРР как возбуждение ЛП при помощи распространяющегося вдоль поверхности дифракционного порядка. На рисунке 1.3 б) значение $1/\alpha + S$ два раза обращается в ноль, но с левой стороны от аномалии Рэлея $Im[S]$ имеет положительное значение, складывается с $Im[1/\alpha]$, и результирующая мода имеет большую ширину. Однако с правой стороны от аномалии Рэлея $Im[S]$ отрицательна и близка по значениям

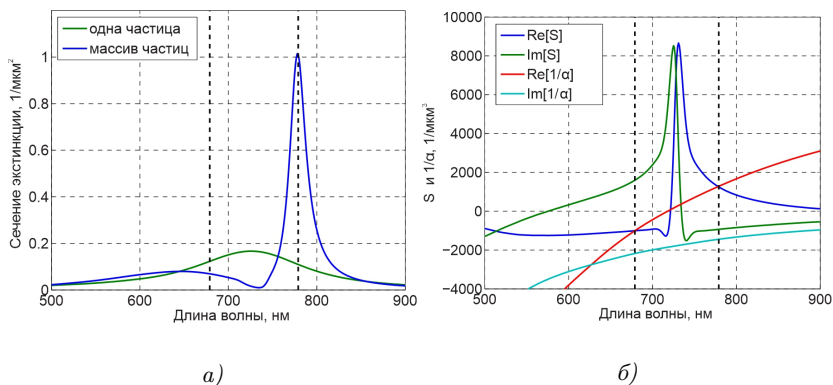


Рис. 1.3: а) - Расчетные спектры сечения экстинкции уединенной частицы и частицы в гексагональном массиве массиве из серебряных дисков, расстояние между дисками 555 нм, аномалия Рэлея на 727 нм. б) - Спектры действительных и мнимых частей дипольной суммы S и $1/\alpha$, пунктирными линиями отмечены длины волн возбуждения PPP [61].

к $\text{Im}[1/\alpha]$, благодаря чему PPP становится гораздо уже, чем ЛП уединенной частицы.

ППП, также как и ЛП, являются связанными колебания электромагнитного поля и свободных электронов на границе раздела металла и диэлектрика, но в отличие от ЛП, PPP являются распространяющейся волной и переносят энергию электромагнитного поля. При возбуждении PPP образуются резкие особенности в спектрах отражения и пропускания, которые наблюдаются только для p -поляризованного света (рис. 1.4). Впервые эти особенности были обнаружены Р.В. Вудом в 1902 году в спектрах отражения металлических дифракционных решеток [62] и спектрально примерно совпадали с исчезновением дифракционного порядка. Впоследствии они были названы аномалиями Вуда. Первое теоретическое обоснование было предложено лордом Рэлеем [63], определяющим фактором он считал исчезновение дифракционного порядка. Но в 1936 году было показано [64], что форма аномалий и их спектральное положение отличались для решеток из разных

металлов и разных форм поверхности, но одним периодом, тогда как исчезновение дифракционных порядков связано только с геометрическими параметрами. Позднее, основываясь на основе опубликованных результатов, Уго Фано выделил две особенности: одна представляла собой резкое повышение интенсивности и определялась периодом решетки, другая образовывалась на чуть больших длинах волн и обычно состояла из максимума и минимума. Первую особенность Фано связал с исчезновением дифракционного порядка, позднее она была названа аномалией Рэлея, вторую особенность - с образованием поверхностных волн [65]. Эта особенность возникает из-за интерференции переизлученной в дальнюю зону поверхностной волны и нерезонансно отраженной волны.

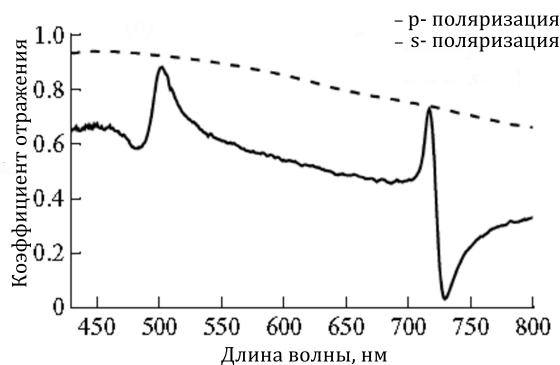


Рис. 1.4: Спектр отражения при возбуждении ППП двух порядков [66].

Асимметричные особенности в спектрах отражения и пропускания (рис. 1.4), возникающие вследствие интерференции двух волн, называют резонансами типа Фано [59,66,67]. Спектр отражения в окрестности таких особенностей можно описать

следующей формулой ([66]):

$$R(\omega) = |r(\omega)|^2, \quad r(\omega) = C_0 + \frac{A\Gamma e^{i\phi}}{\omega - \omega_0 + i\Gamma}, \quad (1.6)$$

где R - энергетический коэффициент отражения, r - полевой коэффициент отражения, C_0 - амплитуда нерезонансно отраженной волны, дробь описывает резонансно переизлученный свет с лоренцевой формой линии, A - амплитуда резонанса, ω_0 - центральная частота Γ - обратное время жизни, обусловленное потерями, ϕ - разность фаз между резонансной и нерезонансной компонентами. Аналогичной формулой описывается коэффициент пропускания. Развитие лазерных технологий и методов создания дифракционных решеток субмикронного периода дало сильный толчок экспериментальному исследованию аномалий Вуда и привело к созданию теоретического аппарата ППП [18, 68].

Рассмотрим рассеяние света на плоской границе раздела двух сред с показателями преломления n_1 и n_2 [69]. Отложим систему координат так, чтобы граница раздела лежала в плоскости xz , первая среда в находилась области $y > 0$, вторая - $y < 0$. Пусть на границу раздела падает волна под углом θ к оси y в плоскости xy , тогда уравнению Гельмгольца $\Delta F + k^2 F = 0$ для поля вдоль оси z будет удовлетворять следующее решение (опуская временной множитель $e^{-i\omega t}$):

$$\begin{cases} F^i = e^{ik_1(\alpha x - \beta y)} \\ F^r = r e^{ik_1(\alpha x + \beta y)} \\ F^t = t e^{ik_1(\alpha x - \gamma y)} \end{cases} \quad (1.7)$$

$$F = \begin{cases} E, & \text{для } s\text{-поляризации} \\ H, & \text{для } p\text{-поляризации} \end{cases}$$

где $\alpha = \cos\theta$, $\beta = \sin\theta$, $\gamma = \sqrt{\eta^2 - \alpha^2}$, $\eta = n_2/n_1$, $k_1 = n_1 k_0 = n_1 \omega/c$, r и t - коэффициенты Френеля для отражения и пропускания, получаемые из граничных условий для магнитного и электрического полей:

$$\left\{ \begin{array}{l} r = \frac{\beta - \gamma}{\beta + \gamma} \\ t = \frac{2\beta}{\beta + \gamma} \end{array} \right. \quad \text{для } s\text{-поляризации.}$$

$$\left\{ \begin{array}{l} r = \frac{\beta/\varepsilon_1 - \gamma/\varepsilon_2}{\beta/\varepsilon_1 + \gamma/\varepsilon_2} \\ t = \frac{2\beta/\varepsilon_1}{\beta/\varepsilon_1 + \gamma/\varepsilon_2} \end{array} \right. \quad \text{для } p\text{-поляризации.} \quad (1.8)$$

Так как η является комплексным числом, константа γ может принимать два значения. Если вторая среда является диэлектриком, $\eta = Re[\eta] > 0$, выбор γ должен соответствовать распространению волны вниз от границы раздела, $Im[\gamma] = 0$, $Re[\gamma] > 0$. С другой стороны, если показатель преломления второй среды чисто является мнимым, $\eta = Im[\eta] > 0$, волна должна затухать при распространении во второй среде, и должно выполняться $Im[\gamma] > 0$, $Re[\gamma] = 0$. Выбор константы γ , удовлетворяющий этим двум частным случаям, можно определить как:

$$Re[\gamma] + Im[\gamma] > 0. \quad (1.9)$$

Теперь рассмотрим распространение поверхностных волн (ПВ) вдоль плоской границы диэлектрик-металл [69]. ПВ - это волны, распространяющиеся вдоль поверхности и удовлетворяющие радиационным условиям на бесконечности:

$$\left\{ \begin{array}{l} y \rightarrow \infty, \text{ волна распространяется вверх или исчезает,} \\ y \rightarrow -\infty, \text{ волна распространяется вниз или исчезает.} \end{array} \right.$$

Из радиационных условий на бесконечности следует, что ПВ соответствует наличию отраженной и преломленной волн, но отсутствию падающей. ПВ должны удовлетворять уравнениям Максвелла и граничным условиям на поверхности раздела. Решение будем искать в виде F^r и F^t в системе уравнений 1.7. Константы α , β , γ оказываются неопределенными,

однако для удовлетворения уравнения Гельмгольца должны выполняться соотношения $\alpha^2 + \beta^2 = 1$ и $\alpha^2 + \gamma^2 = \eta^2$. В общем случае, α , β также могут являться комплексными и иметь по два решения. Выбор значения этих константы β сделаем аналогичным выбору константы γ (1.9): $Re[\beta] + Im[\beta] > 0$. Выбор константы α должен соответствовать затуханию волны при распространении.

Удовлетворение граничных условий для ПВ приводит к формулам Френеля, однако отсутствие падающей волны соответствует полюсу в r и t . Для s -поляризации это выполняется при $\beta + \gamma = 0$. Решением этого уравнения будет $\eta^2 = 1$. Корень $\eta = 1$ соответствует отсутствию границы раздела, корень $\eta = -1$ не реализуется для обычных материалов. Следовательно, ПВ не могут обладать s -поляризацией.

Случай p -поляризации соответствует уравнению:

$$\beta/\varepsilon_1 + \gamma/\varepsilon_2 = 0.$$

Его решение:

$$\tilde{\alpha} = \frac{\pm\eta}{\sqrt{1+\eta^2}}. \quad (1.10)$$

Из чего следует выражение для проекции волнового вектора на границу раздела:

$$k_{spp} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}}. \quad (1.11)$$

Проекция волнового вектора на ось y в первой и второй средах принимают вид:

$$k_{yi} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_i^2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}},$$

где i - индекс, соответствующий первой или второй среде.

Так как для металлов в оптическом и инфракрасном диапазонах выполняется $\sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}} > \varepsilon_1$, ПВ не могут быть возбуж-

дены падением плоской волны на гладкую поверхность. Импульс ПВ оказывается всегда строго больше импульса падающей плоской волны.

Рассмотрим поведение электронов при возбуждении ПВ. Из уравнений Максвелла можно получить, что токи будут себя вести следующим образом:

$$\begin{aligned} \mathbf{j} &= i\omega\varepsilon_0(1 - \varepsilon_1)\mathbf{E}, & y > 0, \\ \mathbf{j} &= i\omega\varepsilon_0(1 - \varepsilon_2)\mathbf{E}, & y > 0. \end{aligned}$$

Токи и заряд связаны соотношением $\text{div } \mathbf{j} = i\omega\rho$. Так как $\text{div } \mathbf{E} = 0$ в металле и диэлектрике, объемные заряды не появляются. Но из-за отличия проекций электрического поля E_{y1} и E_{y2} в диэлектрике и металле, возникают поверхностные заряды:

$$\rho = \varepsilon_0(E_{y1} - E_{y2}) = \frac{k_{spp}}{\omega} \left(\frac{1}{\varepsilon_1} - \frac{1}{\varepsilon_2} \right) e^{ik_{spp}x}.$$

Считая $\eta = i\eta''$, $\eta'' \gg 1$, можно получить выражения для полей, порождаемых поверхностными зарядами:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &\simeq \frac{-k_{spp}}{\omega\eta''\varepsilon_1\varepsilon_0} (i\mathbf{x} - \eta''\mathbf{y}) e^{ik_{spp}x - k_1y/\eta''}, & \text{в диэлектрике,} \\ \mathbf{E} &\simeq \frac{-k_{spp}}{\omega\eta''\varepsilon_0} \left(i\mathbf{x} + \frac{\mathbf{y}}{\eta''} \right) e^{ik_{spp}x + k_1\eta''y}, & \text{в металле,} \end{aligned}$$

где $\mathbf{x}$, $\mathbf{y}$ - единичные вектора вдоль осей x и y . Возникающие объемные токи пропорциональны этим полям и отстают по фазе на $\pi/2$, которые переносят поверхностные заряды. Полные токи в воздухе и в металле дают разный вклад в поверхностный заряд, однако токи в воздухе оказываются существенно меньше. В связи с этим возникает изменение поверхностных зарядов во времени, появляется продольная волна: положительные заряды из точки $-\lambda/4$ переносятся токами в точку $+\lambda/4$, максимумы отрицательных и положительных заря-

дов смещаются вправо также, как и электромагнитная волна (рис. 1.5). Из-за этих связанных колебаний электромагнитного поля и поверхностных зарядов ПВ называют ППП.

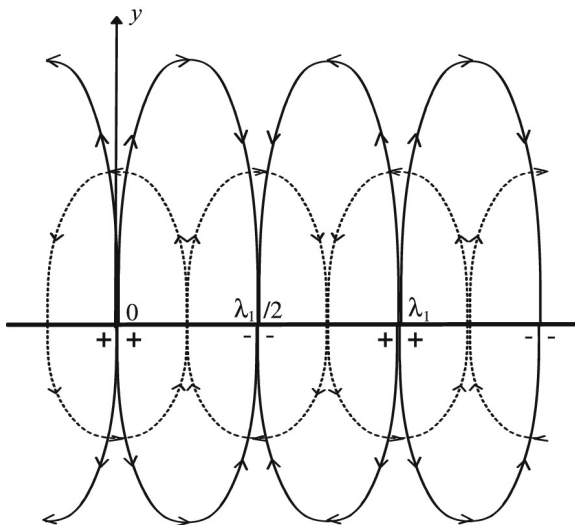


Рис. 1.5: Граница раздела в момент времени $t = 0$, сплошные линии - силовые линии электрического поля, пунктирные линии - плотность токов, $+$ и $-$ обозначены положения положительных и отрицательных зарядов [69].

При создании электронным пучком такого распределения зарядов, возникнет ППП. Существуют различные оптические методы, компенсирующие отличие в импульсах фотона и ППП, и позволяющие возбудить ППП плоской оптической волной. Одним из них является возбуждение эванесцентных оптических волн вблизи исчезновения дифракционного порядка в субмикронных одномерных решетках.

Рассмотрим падение плоской волны на металлическую дифракционную решетку с периодом d и высотой h . Пусть волна падает в плоскости xy под углом θ , $\alpha = \sin\theta$ к оси y , решетка лежит в плоскости xz , полосы направлены вдоль z . Аналогич-

но случаю плоской поверхности, ППП не могут быть возбуждены волной с s -поляризацией. В случае p -поляризации магнитное поле направленно вдоль z и не зависит от z : $\mathbf{H}(x, y) = H(x, y)\mathbf{z}$. Очевидно, что для H верно $H(x+d, y) = H(x, y)e^{ik_1\alpha d}$. Следовательно, функция $H(x, y)e^{-ik_1\alpha d}$ является периодической. Раскладывая ее в ряд Фурье и подставляя в уравнение Гельмгольца, можно показать, что H представляется в виде разложения Рэлея:

$$H = e^{ik_1\alpha x - ik_1\beta y} + \sum_{n=-\infty}^{\infty} b_n e^{ik_1\alpha_n x + ik_1\beta_n y}, \quad y > y_{\max},$$

$$H = \sum_{n=-\infty}^{\infty} b_n e^{ik_1\alpha_n x - ik_1\gamma_n y}, \quad y < y_{\min},$$

$$\beta = \cos\theta, \quad \alpha_n = \alpha + n\lambda/d, \quad \beta_n = \sqrt{1 - \alpha_n^2}, \quad \gamma_n = \sqrt{\eta^2 - \alpha_n^2}.$$

Как видно, у отраженных волн появляется добавка к волновому вектору $nG = k_1\lambda n/d = 2\pi/d$, кратная векторам обратной решетки. При $\alpha_n < 1$ существуют дифракционные порядки, при $\alpha_n = 1$ дифракционный порядок распространяется вдоль поверхности решетки, при $\alpha_n > 1$ появляется мнимая часть проекции волнового вектора, направленного вдоль поверхности, и дифракционный порядок быстро затухает за счет переизлучения в другие дифракционные порядки. Благодаря добавке α_n может существовать дифракционный порядок с волновым вектором, равным k_{spp} . Ввиду того, что $Re[\tilde{\alpha}]$ немного больше 1, соответствующий порядок уже отсутствует, но спектральное положение его исчезновения должно быть близко. Условие возбуждения ППП записывает в виде:

$$k_{spp} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}} = k_1 \sin\theta + nG. \quad (1.12)$$

Это уравнение является условием возбуждения ППП на периодически расположенных неоднородностях. За счет перио-

дичности возбужденные на каждой отдельной неоднородности ППП оказываются когерентны с падающей плоской волной. Поэтому уравнение 1.12 также называют условием фазового синхронизма, а число n - порядком ППП, а субмикронные металлические решетки - плазмонными кристаллами [70–72].

Аналогичное разложение можно записать для поля ППП:

$$H = \sum_{n=-\infty}^{\infty} b_n e^{ik_1 \alpha_n^G x + ik_1 \beta_n^G y}, \quad y > y_{\max}.$$

$$H = \sum_{n=-\infty}^{\infty} n e^{ik_1 \alpha_n^G x - ik_1 \gamma_n^G y}, \quad y < y_{\min}.$$

$$\alpha_n^G = \alpha_0^G + n\lambda/d, \quad \beta_n^G = \sqrt{1 - \alpha_n^{G2}}, \quad \gamma_n^G = \sqrt{\eta^2 - \alpha_n^{G2}}.$$

Так как замена $n \rightarrow n + p$ не меняет вид суммы, выбор начала отсчета $n = 0$ задается условием $\lim_{h \rightarrow 0} \alpha_0^G = \tilde{\alpha}$, где $\tilde{\alpha}$ определяется формулой (1.10) (данная индексация не связана напрямую с номером дифракционного порядка, вблизи которого возбуждается ППП). Только для $n = -1, -2$ выполняется $|Re[\alpha_0^G]| < 1$, и β_n^G близко к действительной оси, что соответствует волне, распространяющейся в диэлектрике от границы раздела на бесконечность. Наличие таких волн приводит к дополнительным радиационным потерям энергии, следовательно $Im[\alpha_0^G] > Im[\tilde{\alpha}]$. γ_n^G всегда близко к мнимой оси из-за большого поглощения в металле.

Если падающая волна будет удовлетворять условию $\alpha = \alpha_n^G$, то α_0 отраженной волны будет совпадать с α_n^G , что приведет к образованию полюса в b_0 . Но так как константа α всегда действительна, а α_n^G комплексна, это условие не выполняется точно, приближенно оно выполняется только для $n = -1, -2$. Тогда $b_0(\alpha)$ является комплексной функцией действительной переменной, имеющей полюсы в точках α_n^G при продолжении на комплексную плоскость. Рассмотрим случай $\alpha \simeq Re[\alpha_{-1}^G]$. $b_0(\alpha)$ может быть представлено в виде разложения в ряд Ло-

рана в окрестности точки α_{-1}^G :

$$b(\alpha) = \frac{G_{-1}}{\alpha - \alpha_{-1}^G} + G_0 + (\alpha - \alpha_{-1}^G)u(\alpha) \simeq \frac{G_{-1}}{\alpha - \alpha_{-1}^G} + G_0.$$

Обозначая $\alpha^p = \alpha_{-1}^G$, $\alpha^z = \alpha^p - \frac{G_{-1}}{G_0}$ - корень $b(\alpha)$, G_0, G_{-1} - комплексные коэффициенты, приходим к выражению:

$$b(\alpha) \simeq G_0 \frac{\alpha - \alpha^p}{\alpha - \alpha^z}.$$

Учитывая, что при $h = 0$ резонанс отсутствует, $G_{-1} = 0$, $G_0 = r$ и $\alpha_0^G \rightarrow \tilde{\alpha}$, получаем:

$$\lim_{h \rightarrow 0} \alpha^z = \lim_{h \rightarrow 0} \alpha^p = \tilde{\alpha} - \lambda/d,$$

$$|b_0(\alpha)|^2 \simeq R \left| \frac{\alpha - \alpha^p}{\alpha - \alpha^z} \right|^2,$$

что является одной из форм записи резонансов типа Фано [73]. Считая, что действительные части α^p и α^z близки, можно получить выражения для минимума коэффициента отражения R_{min} и ширины на полувысоте Γ :

$$R_{min} = R \left| \frac{Im[\alpha^z]}{Im[\alpha^p]} \right|^2, \quad \Gamma = 2Im[\alpha^p]. \quad (1.13)$$

При увеличении h будет увеличиваться $Im(\alpha^p)$ (рис. 1.6), и ширина резонанса будет расти. Можно показать [69], что $Im[\alpha^p] > 0$ при любых условиях, и что в случае идеального проводника выполняется $\alpha^p = \alpha^{z*}$, следовательно $Im[\alpha^z] < 0$. Идеальному проводнику соответствует $\varepsilon' = -\infty, \varepsilon'' = 0$. Зафиксируем h и будем изменять ε до значений реального металла, после зафиксируем ε и будем изменять h до 0. Предполагая непрерывность этой траектории (рис. 1.6), α^z должен пересечь действительную ось, следовательно должно достигаться нуле-

вое отражение.

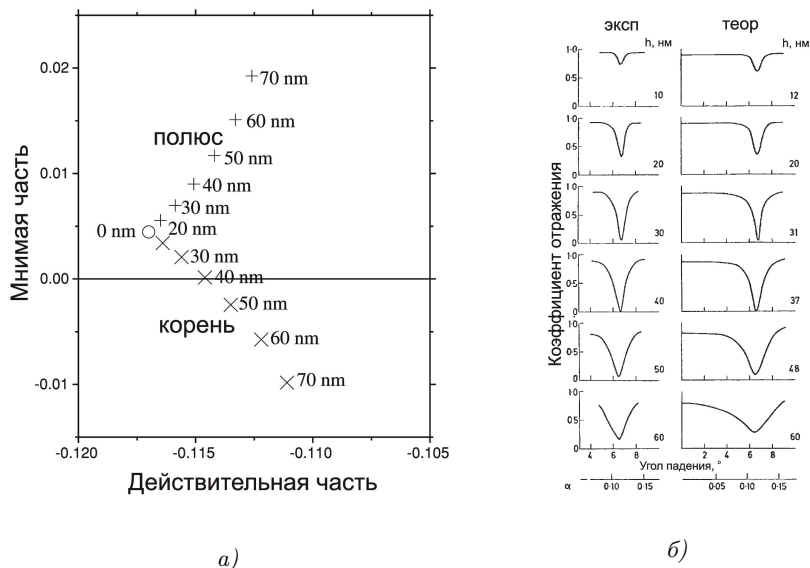


Рис. 1.6: а) - Траектории полюса α^p и корня α^z функции b_0 при изменении высоты решетки для синусоидальной золотой решетки с периодом 555 нм и длины волны 647 нм. б) - Спектры экспериментальные и теоретические спектры отражения для разных высот [74].

У данного эффекта есть наглядная физическая интерпретация. При распространении вдоль дифракционной решетки ППП имеют два основных канала потерь: омические потери, Γ_{ohm} связанные с переходом электромагнитной энергии в тепловую, и радиационные потери, Γ_{rad} , связанные с рассеянием ППП на периодически расположенных неоднородностях и переизлучением в дальнюю зону. Спектральная ширина резонанса и обратное время жизни ППП (1.6) определяются суммой этих потерь: $\Gamma = \Gamma_{ohm} + \Gamma_{rad}$. Омические потери преимущественно зависят от диэлектрических проницаемостей металла и диэлектрика $\Gamma_{ohm} \approx Im[k_{spp}]v_g$, v_g - групповая скорость ППП, и слабо зависят от геометрических параметров палзмон-

ного кристалла [73]. Радиационные потери, напротив, определяются сечением рассеяния поверхностной волны на неоднородности, которая, в свою очередь, пропорциональна площади рассеивателя. В случае одномерных плазмонных кристаллов $\Gamma_{rad} \sim h$ [73], h - высота решетки. Таким образом, время жизни ППП растет с уменьшением h и будет максимально при $h \rightarrow 0$. Качественные зависимости Γ_{ohm} и Γ_{rad} представлены на рисунке 1.7. С другой стороны, при уменьшении h снижается сечение рассеяния падающей волны на периодических неоднородностях плазмонного кристалла, следовательно, падает вероятность преобразования падающего фотона в ППП и амплитуда плазмонного резонанса (A в формуле (1.6)). В пределе малых высот решетки ППП будут обладать высокой добротностью, но резонанс будет иметь низкую амплитуду. В случае больших высот большая часть падающего света будет преобразовываться в ППП, однако поверхностная волна будет быстро рассеиваться. Оба этих случая соответствуют низкой концентрации электромагнитной энергии вблизи поверхности. Существует оптимальная высота (для каждого набора остальных параметров системы), при которой оптическая энергия падающей волны наиболее эффективно переходит в энергию ППП, тогда концентрация электромагнитной энергии вблизи поверхности максимальна. Тогда вторичное излучение отсутствует, и на центральной длине волны резонанса наблюдается нулевое отражение. Это условие называется условием оптимальной (или критической) связи, и выполняется при равенстве потерь на отражение и излучение [73, 75]:

$$\Gamma_{ohm} = \Gamma_{rad}. \quad (1.14)$$

Данное условие применимо не только в случае возбуждения ППП в одномерных плазмонных кристаллах, но и применимо в более сложных плазмонных системах [76, 77], двумерных материалах [78], интегральной фотонике [79]. Условие оптимальной связи является общим для связанных резонансных систем

и может быть продемонстрировано на примере двух связанных RLC контуров [80]. Случай, когда радиационные потери меньше омических, $\Gamma_{rad} < \Gamma_{ohm}$, называют режимом слабой связи. Когда потери на излучение превышают потери на поглощение, $\Gamma_{rad} > \Gamma_{ohm}$, выполняется режим избыточной связи.

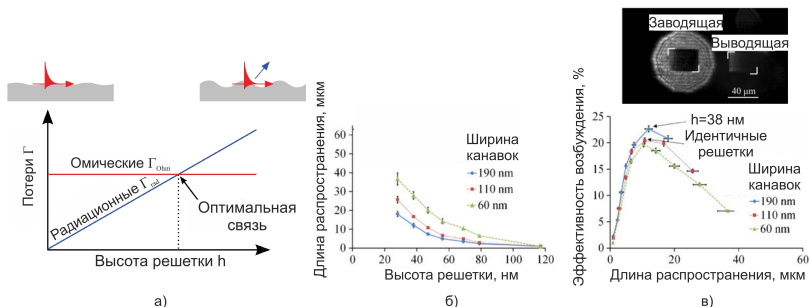


Рис. 1.7: а) Качественная зависимость омических Γ_{ohm} и радиационных Γ_{rad} потерь от высоты решетки h , точка пересечения линий соответствует условию оптимальной связи [73]; Зависимость полной длины распространения L_{tot} от высоты заводящей решетки [75]; Зависимость эффективности возбуждения ППП от длины распространения L_{tot} и изображение исследованного образца [75].

В работе [75] реализация режима оптимальной связи была продемонстрирована в явном виде с помощью наблюдения за распространением ППП вдоль дифракционной решетки. В качестве образца использовалась оптически толстая пленка золота, на которую с помощью ионного пучка наносились две разнесенные в пространстве дифракционные решетки (рис. 1.7 в). Одна решетка использовалась для заведения падающей волны в систему, вторая, выводящая, использовалась для наблюдения распространения ППП вдоль решетки с помощью оптической микроскопии. Использовалось лазерное излучение с длиной волны 780 нм, периоды решеток были фиксированы и составляли 560 нм, параметры выводящей решетки не менялись во время экспериментов, глубина канавок составляла 50 нм, ширина канавок - 110 нм. Использовались заводящие

решетки с различными глубинами канавок от 28 до 117 нм и тремя разными ширинами канавок 60, 110 и 190 нм, также менялось расстояние между заводящей и выводящей решетками. Сначала была измерена длина распространения ППП вдоль гладкой поверхности золота, которая определяется омическими потерями, $L_{abs} = 1/2\text{Im}[k_{spp}] = v_g/2\Gamma_{ohm}$. Для этого варьировалось расстояние между двумя решетками и измерялась рассеянная на выводящей решетке мощность, была получена длина распространения $L_{abs} = 62,5$ нм. В случае дифракционных решеток можно ввести длину распространения, вызванную рассеянием, $L_{scat} = v_g/2\Gamma_{rad}$. Тогда полная длина распространения L_{tot} будет определяться выражением $1/L_{tot} = 1/L_{abs} + 1/L_{scat}$. Далее заводящую и выводящую решетки поменяли местами и были измерены полные длины распространения L_{tot} нескольких заводящих решеток (рис. 1.7 б) с помощью микроскопии рассеяния. Снижение длины распространения с увеличением высоты и ширины канавок соответствует увеличению радиационных потерь. После чего решетки поменяли обратно, и были измерены эффективности возбуждения ППП для всех заводящих решеток. Эффективность возбуждения ППП определялась как отношение падающей мощности на заводящую решетку к полной рассеянной мощности на выводящей решетке с поправкой на потери при распространении поверхностной волны вдоль гладкого участка золота. На рисунке 1.7 показана зависимость эффективности возбуждения ППП от длины распространения ППП в заводящих решетках. Для трех ширин канавок максимальная эффективность наблюдалась вблизи одной длины распространения $L_{tot} = 12$ нм, однако это значение соответствовало разным комбинациям ширин и высот канавок. Из условия оптимальной связи следует, что $L_{abs} = L_{rad} = 2L_{tot} = 24$ нм. Отличие этого значения, от полученного для гладкой поверхности золота, авторы связывают с возникновением паразитных шероховатостей и дефектов при фабрикации.

Таким образом, свойства плазмонных резонансов существен-

но зависят от формы поверхности плазмонного кристалла. Однако, управление плазмонными резонансами возможно и в реальном времени не меняя геометрических параметров системы. Различные способы модификации свойств плазмонных резонансов при помощи внешних воздействий объединяются под понятием "активная плазмоника" [30, 33, 81]. Концепция активной плазмоники предполагает возможность эффективно управление оптическим откликом плазмонных наноструктур при помощи активного изменения параметров среды внешними воздействиями, такими как изменение температуры [82], приложение электрических [83] и магнитных полей [84], воздействие мощным лазерным импульсом [85].

2. Сверхбыстрый нагрев металлических пленок

Фемтосекундный лазерный импульс нагревает электронный газ в металле, приводя к изменению диэлектрической проницаемости. В статье [10] была представлена теоретическая модель, описывающая температуру металла в случае нагрева пикосекундным импульсом, также известная как двухтемпературная модель. Металл рассматривался как двухтемпературная система, состоящая из подсистемы электронов и подсистемы фононов. Модель предполагает, что в начале электронный газ нагревается под действием падающего импульса, оставаясь все время в равновесном состоянии. Далее, электронный газ путем электрон-фононных взаимодействий передает энергию решетке.

В статье [86] было показано, что переход энергии от электронов к решетке в единицу объема в единицу времени определяется выражением:

$$\Delta E_{ei} = G(T_e - T_p), G = \frac{\pi^2 m_e \eta_e v_s^2}{6 \tau_e T_e}, \quad (1.15)$$

где v_s - скорость звука в металле, τ_e - время электронной ре-

лаксации, m_e - масса электрона. Выражение верно в случае, когда T_e и T_p много больше температуры Дебая, в этом же случае выполняется $\tau_e \sim 1/T_e$, следовательно коэффициент пропорциональности G не зависит от T_e . Уравнения энергетического баланса в случае нагрева металла принимают вид:

$$\begin{cases} \gamma T_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \chi \nabla^2 T_e + G(T_p - T_e) + P(t, \mathbf{r}), \\ C_p \frac{\partial T_p}{\partial t} = G(T_e - T_p), \end{cases} \quad (1.16)$$

где $c_e = \gamma T_e$, c_p - теплоемкости электронного газа и фононов, G - константа электрон-фононного связывания, χ - теплопроводность электронного газа, $P(t, \mathbf{r})$ описывает временную и пространственную зависимость поглощенной мощности лазерного импульса.

Можно пренебречь распространением тепла вдоль поверхности и перейти к одномерной задаче. Перейдем к безразмерным переменным, характеризующим температуру, время и координату:

$$\theta_{e,i}(\xi, \eta) = \sqrt{G\chi} \frac{T_{e,i}}{I(1-R)},$$

$$\xi = x\sqrt{G/\chi}, \quad \eta = t/\tau,$$

где τ - длительность импульса, I - пиковая интенсивность, R - коэффициент отражения. В этих переменных уравнения принимают вид:

$$\begin{cases} \delta\theta_e \frac{\partial \theta_e}{\partial \eta} = \frac{\partial^2 \theta_e}{\partial \xi^2} + \theta_p - \theta_e - \varepsilon g(\eta)e^{-\varepsilon\xi}, \\ \frac{\partial \theta_p}{\partial \eta} = \mu(\theta_e - \theta_p), \end{cases} \quad (1.17)$$

где учтено, что при температурах много меньше энергии Ферми, теплоемкость электронного газа пропорциональна темпе-

ратуре. $g(\eta)$ - безразмерная функция, описывающая временную форму импульса. Решение этих уравнений определяются тремя безразмерными параметрами:

$$\delta = \frac{I(1-R)\pi^2\eta k^2}{G\tau\sqrt{G\chi\varepsilon_F}}, \mu = \frac{G\tau}{c_i}, \varepsilon = \kappa\frac{\chi}{G}.$$

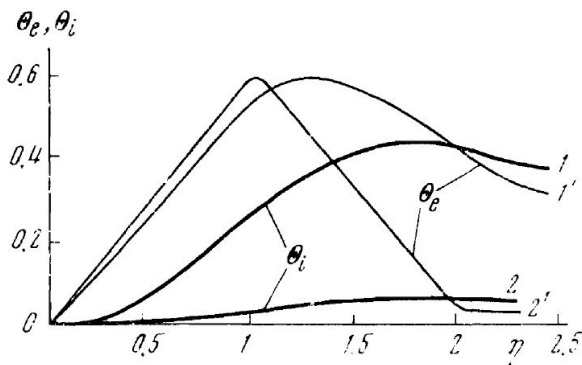


Рис. 1.8: Численный расчет системы уравнений [1.17]. Кривые 1 и 1' соответствуют $\delta = \mu = 1$, кривые 2 и 2' - $\delta = 0,03$, $\mu = 0,1$ [10].

В случае $\delta \ll 1, \mu \ll 1$ решение для температуры электронного газа на поверхности принимает вид:

$$\theta(0, \eta) \approx \frac{\varepsilon}{\varepsilon + 1} g(\eta).$$

В этом случае температура электронного газа повторяет форму лазерного импульса. Этому случаю соответствует оценка $I(1-R) \ll 5 \times 10^{20} \tau$. Это происходит из-за того, что теплоемкость электронного газа $c_e \sim \delta \mu c_i$ становится пренебрежимо мала. Для случая фемтосекундного лазера с пиковой мощностью $\sim \text{ГВт/см}^2$ выполняется обратное соотношение. При уве-

личении δ теплоемкость c_e будет увеличиваться, зависимость температуры электронного газа от времени будет уширяться и отставать от лазерного импульса по времени, приобретая асимметричную форму. Температура подсистемы фононов в свою очередь будет забирать энергию из подсистемы электронов, пока их температуры не уравниются, это произойдет за время электрон-фононной релаксации $\tau_{ep} \sim 1$ пс. Далее обе системы будут развиваться как целое и описываться диффузией фононов. На рисунке 1.8 показан численный расчет системы [1.17] для случаев $\delta = \mu = 1$ и $\delta = 0,03$, $\mu = 0,1$ при использовании треугольного импульса.

Однако, в реальных металлах существует дополнительная задержка температуры электронного газа от импульса накачки. Она связана с тем, что в начальный момент времени лазерный импульс с энергией $\hbar\omega$ создает неравновесное распределение электронного газа в окрестности энергии Ферми E_f : часть электронов, с энергиями от $E_f - \hbar\omega$ до E_f перемещаются на свободные состояния с энергиями от E_f до $E_f + \hbar\omega$. Этот процесс описывается при помощи рассмотрения кинетики электронов [8]. Временную эволюцию неравновесного электронного газа можно описать при помощи кинетического уравнения Больцмана:

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt} = \left. \frac{df(\mathbf{k})}{dt} \right|_{ee} + \left. \frac{df(\mathbf{k})}{dt} \right|_{ep} + H(\mathbf{k}, t), \quad (1.18)$$

где $f(\mathbf{k})$ - число заполнения для состояния с волновым вектором $\mathbf{k}$, $H(\mathbf{k}, t)$ описывает воздействие лазерного излучения, $df(\mathbf{k})/dt|_{ee}$, $df(\mathbf{k})/dt|_{ep}$ - интегралы электрон-электронных и электрон-фононных столкновений. Само по себе уравнение Больцмана не включает законы сохранения, поэтому на каждом временном шаге требуется учитывать законы сохранения числа частиц и энергии. Термализация электронного газа определяется электрон-электронным рассеянием, которое может быть описано как рассеяние в начальном и конечном состоянии:

$$\left. \frac{df(\mathbf{k})}{dt} \right|_{ee} = [1 - f(\mathbf{k})]S_e^+ + f(\mathbf{k})S_e^-,$$

где $S_e^\pm$ - вероятности рассеяния. В благородных металлах термализация электронов занимает время τ_{ee} порядка сотен фемтосекунд, после чего система описывается двухтемпературной моделью. В переходных металлах τ_{ee} существенно ниже и составляет несколько десятков фемтосекунд [87], что связано с высокой плотностью состояний вблизи энергии Ферми.

Вычислительно сложное кинетическое уравнение 1.18 в случае слабого возбуждения электронной подсистемы можно заменить на более простую феноменологическую систему трех дифференциальных уравнений [88]:

$$\begin{cases} \frac{\partial N}{\partial t} = -\alpha N - \beta N + P(t, \mathbf{r}), \\ \gamma T_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \chi \nabla^2 T_e + G(T_p - T_e) + \alpha N, \\ C_p \frac{\partial T_p}{\partial t} = G(T_e - T_p) + \beta N, \end{cases} \quad (1.19)$$

которая представляет собой двухтемпературную модуль (1.16), дополненную кинетическим уравнением. Первое уравнение описывает кинетику неравновесного электронного газа с плотностью энергии N , α - скорость термализации электронного газа, $\beta = G/\gamma T_e$ - скорость электрон-фононного взаимодействия, остальные константы соответствуют уравнению 1.16. В этой модели фемтосекундный импульс сначала переводит электроны в неравновесное состояние, после чего неравновесные электроны термализуются и передают энергию возбуждения на нагрев равновесного электронного газа и решетки. После чего подсистемы равновесного электронного газа и фононов взаимодействуют согласно двухтемпературной модели.

Константа α определяется частотой электрон-электронного рассеяния. Согласно теории Ферми-жидкости [89], в прибли-

жении двухчастичных взаимодействий эта частота квадратична по энергии:

$$\frac{1}{\tau_{ee}} = \frac{1}{\tau_0} \left(\frac{E - E_f}{E_f} \right)^2,$$

где E - энергия электрона, τ_0 - константа, определяемая металлом и составляющая несколько единиц фс. Так как энергии неравновесных электронов лежат в диапазоне от E_f до энергии фотона $E_f \pm \hbar\omega$, константа α , описывающая термализацию электронного газа в среднем, определяется выражением [22, 24]:

$$\alpha = \frac{1}{2\tau_0} \left(\frac{\hbar\omega}{E_f} \right)^2. \quad (1.20)$$

Подход с усреднением времен термализации применимы в случае слабых возбуждений, когда полная энергия электронного газа меняется незначительно, и не позволяет описывать спектральные особенности диэлектрической проницаемости, возникающие в процессе термализации. Поэтому система уравнений 1.19 применима только для качественного описания электронной динамики.

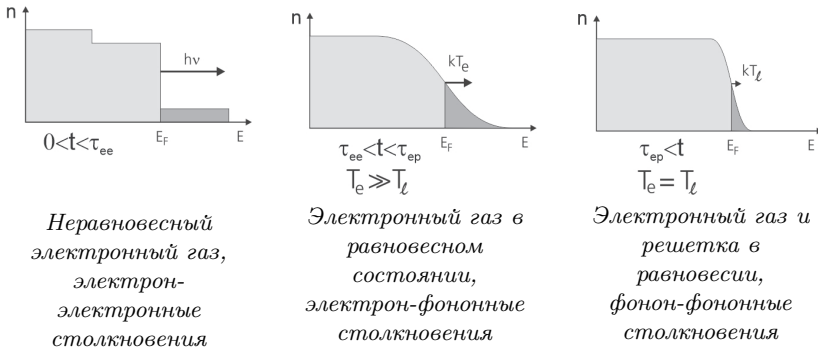


Рис. 1.9: Эволюция электронного газа.

Таким образом, температурный отклик металлов на возбуждение лазерным импульсом можно разделить на три ха-

рактерных процесса с разными временами: термализация электронов, в течении которой ферми-газ приобретает максимальную температуру, электрон-фононная релаксация, в течении которой температуры электронного газа и решетки уравниваются, фонон-фононная релаксация, в течении которой происходит тепловая диффузия фононов (рис. 1.9)

В статьях [9, 88] исследовались золотые пленки методом зонд-накачка. Были измерены дифференциальное отражение и пропускание

$$\frac{\Delta R}{R}(\tau) = \frac{R_{pump}(\tau) - R_{no pump}}{R_{no pump}}, \quad \frac{\Delta T}{T} = \frac{T_{pump} - T_{no pump}}{T_{no pump}}, \quad (1.21)$$

где индекс *pump* соответствует оптическому отклику спустя время τ после воздействия импульса накачки, индекс *no pump* - невозмущенному оптическому отклику. Длина волны импульса накачки была выбрана удаленной от области d -перехода в золоте для исследования временной эволюции только свободных носителей. В случае оптически тонкого образца, каким является золотая пленка толщиной 200 Å, тепловой диффузией можно пренебречь, и нагрев будет происходить равномерно внутри сечения импульса накачки. В случае небольших отклонений температуры, дифференциальное отражение и пропускание линейно по отношению к отклонению температуры. Приближенно можно записать соотношение [90]:

$$\frac{\Delta R}{R} \approx a\Delta T_e + b\Delta T_l. \quad (1.22)$$

Отклик системы на лазерный импульс можно записать в виде следующей функции [88]:

$$S(t) = H(t) \otimes (u(t)[S_{NT}e^{-t/\tau_{ee}} + S_T(1 - e^{-t/\tau_{ee}})e^{-t/\tau_{ep}} + S_L(1 - e^{-t/\tau_{ep}})e^{-t/\tau_{pp}}], \quad (1.23)$$

где $S(t)$ - дифференциальное отражение или пропускание, S_{NT} ,

S_T - константы, соответствующие вкладам от неравновесного и равновесного распределения электронов, S_L - вкладу решетки, τ_{ee} , τ_{ep} и τ_{pp} - времена электрон-электронной, электрон-фононной и фонон-фононной релаксации, $u(t)$ - ступенчатая функция, $H(t)$ - кросс-корреляционная функция импульсов зонда и накачки. Первое, второе и третье слагаемые в скобках справа от свертки описывают процессы электронной термализации, электрон-фононной релаксации и диффузии тепла, соответственно.

На рисунке 1.10 а) показаны экспериментальные значения дифференциального отражения и аппроксимация уравнением 1.23. Полученные времена электрон-электронной и электрон-фононной релаксации составляли 0,5 пс и 1 пс, соответственно.

Переходы через ноль при энергиях фотонов зонда 2,34 эВ и 2,73 эВ связаны с вкладом нетермализованных электронов. Распределение электронов в неравновесном состоянии отличается от распределения Ферми в широком диапазоне энергий, что приводит к наличию свободных состояний вдали от энергии Ферми. Это позволяет осуществить межзонный переход фотоном, энергия которого недостаточна в случае более узкого равновесного распределения. При удалении от энергии межзонного перехода это проявляется сильнее, и вклад неравновесных электронов становится доминирующим. На рисунке 1.10 а) показан расчет для энергии фотонов зонда 2 эВ, выполненный при помощи моделирования кинетического уравнения Больцмана (1.18), при этом учитывался только вклад от перехода вблизи точки симметрии L и не учитывался вклад от изменения в модели Друде и от перехода вблизи точки X.

Также в статье [9] были измерены дифференциальное отражение и дифференциальное пропускание для импульсов накачки с различной плотностью энергии вплоть до 3 мДж/см². Рост максимальных значений можно было считать линейным вплоть до 200 мкДж/см², а затухание переставало описываться экспоненциальным убыванием и имело большие характерные времена (рис. 1.10 в). Это связано с тем, что теплом-

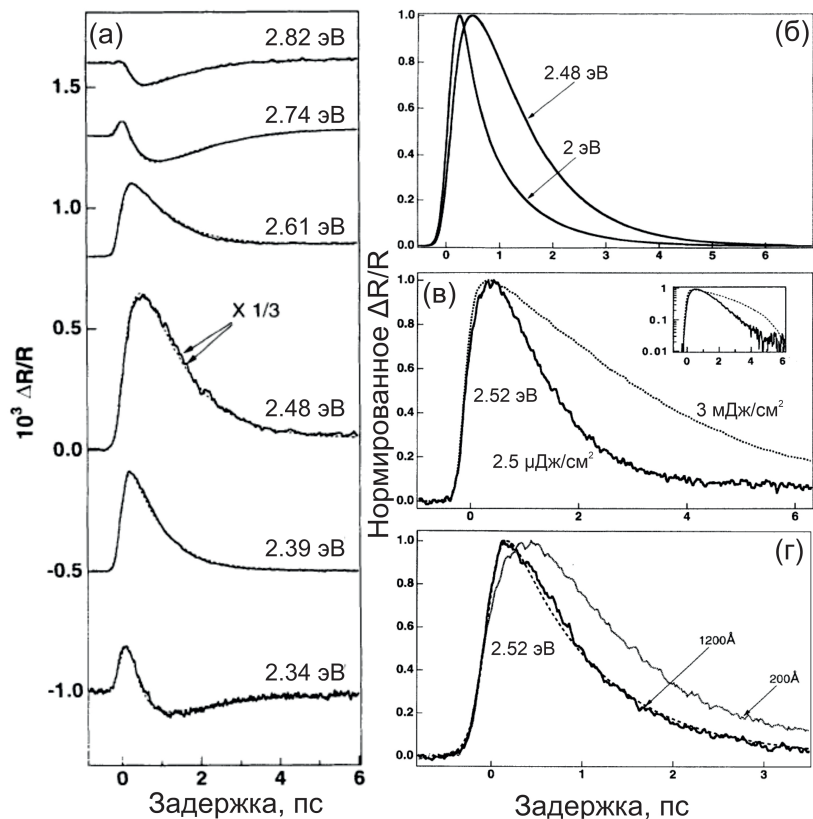


Рис. 1.10: а) - Сплошная линия - экспериментальные зависимости дифференциального отражения от задержки между импульсом зонда и накачки для разных энергий фотонов зонда, плотность энергии накачки 3 мкДж/см^2 ; пунктирная линия - аппроксимация формулой (1.23); б) - расчет дифференциального отражения при помощи уравнения 1.18 для энергий импульса зонда вблизи и вдали от межзонного перехода. в) - дифференциальное отражения для плотностей энергии импульса накачки $2,5 \text{ мкДж/см}^2$ и 3 мДж/см^2 внутри и вне линейного приближения, энергия зонда $2,52 \text{ эВ}$; г) - дифференциальное отражение для оптически тонкой пленки толщиной 200 Å и оптически толстой 1200 Å , плотность энергии импульса накачки 200 мкДж/см^2 , энергия фотонов зонда $2,52 \text{ эВ}$ [9, 88].

кость электронного газа пропорциональна температуре, поэтому время электрон-фононной релаксации $\tau_{ep} \approx c_e/G = \frac{\gamma}{G}(T_0 + \Delta T_e)$ при малых плотностях энергии можно считать независимым от T_e , но нельзя при $T_e \sim T_0$.

Кроме пленки толщиной $200 \text{ \AA}$, использовалась оптически толстая пленка толщиной $1200 \text{ \AA}$. В этом случае нужно учитывать баллистическое движение электронов и диффузию электронного газа. Этот процесс происходит одновременно с термализацией электронного газа. Отвод электронов с наибольшей энергией от поверхности приводит к ускоренной термализации внутри скин-слоя и быстрого достижения максимума дифференциального отражения. На рисунке 1.10 г) пунктирной линией изображена аппроксимация функцией 1.23 экспериментальных значений дифференциального отражения от толстой пленки, предполагая мгновенную электронную термализацию. τ_{ep} принимает значение 1 пс, как и в случае оптически тонкого образца.

Процесс диффузии электронов и баллистическое движение были исследованы в статье [6]. В начальный момент времени электрон получает от фотона большую кинетическую энергию и проходит некоторое расстояние, не испытывая столкновений. Если плотность состояний на уровне Ферми небольшая, что выполняется для благородных металлов, это расстояние может существенно превышать глубину скин-слоя. Среднее значение этого расстояния называется баллистической длиной. Электронный газ можно считать равномерно нагретым внутри слоя такой толщины. Учет баллистического движения в двухтемпературной модели можно произвести при помощи изменения в системе 1.16 члена $f(t, z)$, отвечающего за источник:

$$f(t, z) = I(t)(1 - R - T) \frac{e^{-z/(\lambda_0 + \lambda_{ball})}}{(\lambda_0 + \lambda_{ball})(1 - e^{-d/(\lambda_0 + \lambda_{ball})})},$$

где $I(t)$ - временная огибающая, λ_{ball} - баллистическая длина, λ_0 - глубина скин-слоя, d - толщина пленки. На рисун-

ке 1.11 а) показан расчет дифференциального пропускания в золотой пленке толщиной 300 нм при помощи двухтемпературной модели без учета баллистических электронов и с их учетом при баллистической длине $\lambda_{ball} = 105$ нм. При этом, так как прогревается в начальный момент более глубокий слой, градиент температуры становится меньше и уменьшается поток энергии от поверхности, следовательно, учет баллистического движения замедляет остывание электронов на поверхности.

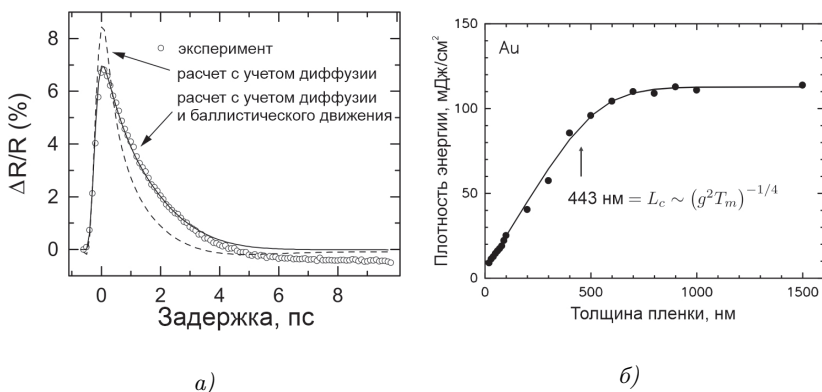


Рис. 1.11: а) - Открытые круги - экспериментальная зависимость дифференциального отражения от времени задержки для пленки толщиной 300 нм и плотности мощности накачки 1 мДж/см²; пунктирная линия - расчет при помощи двухтемпературной модели без учета баллистического движения; сплошной - расчет с учетом баллистического движения; б) - зависимости предельной плотности энергии, необходимой для начала плавления в золоте; точки - эксперимент, линия - расчет при помощи двухтемпературной модели [6].

Существенную роль в снижении температуры на поверхности в толстых пленках является диффузия нагретого электронного газа, которая входит в двухтемпературную модель. Низкая плотность состояний вблизи уровня Ферми в благородных металлах также приводит к слабому электрон-фононному взаимодействию. Электроны будут отводить тепло от поверхности, снижая плотность энергии и ускоряя термализацию.

Также это приводит к существенно меньшим температурам нагрева подсистемы фононов по сравнению с d-металлами. Пренебрегая температурой фононов в течение электрон-фононной релаксации, двухтемпературную модель можно упростить до уравнения:

$$\gamma \frac{\partial T_e^2}{\partial t} = \frac{\chi_0}{T_p} \frac{\partial T_e^2}{\partial z} + 2f(t, z),$$

являющееся уравнением диффузии для T_e^2 . Тогда за время электрон-фононной релаксации нагретый электронный газ распространится на расстояние:

$$L_c = \sqrt{\frac{2\chi_0}{\gamma T_p} \tau_{ep}}.$$

Нагретый электронный газ, сосредоточенный в этой толщине, передает свою энергию подсистеме фононов, которые продолжают тепловую диффузию. Поэтому максимальная температура фононов тоже будет достигаться внутри слоя такой толщины. Если толщина пленки будет меньше L_c , электронный газ будет сконцентрирован в меньшей толщине, его плотность энергии будет выше, и подсистема фононов нагреется быстрее. Наиболее явно это проявляется при критической мощности импульсов накачки, когда образец начинает плавиться. Длина диффузии электроного газа при достижении фононной подсистемой температуры плавления T_m определяется соотношением:

$$L_c = \left(\frac{128}{\pi} \right)^{1/8} \left(\frac{\chi_0^2 c_p}{\gamma T_m G^2} \right)^{1/4}.$$

В золоте оно равно 443 нм. На рисунке 1.11 б) показана зависимости предельной плотности энергии импульса накачки от толщины пленки. Предельная энергия накачки выходит в насыщение на расстоянии L_c . При меньших значениях толщины электронный газ концентрируется в слое меньшей толщины, а при больших значениях успевает отдать всю энергию

фононам, пока распространяется на глубину L_c .

В работе [91] методикой “зонд-накачка” исследовались оптически тонкие пленки никеля и платины, расположенных на кремниевой подложке. Был использован титан-сапфировый лазер с импульсами длительностью 190 фс, частотой следования 76 МГц и работающим в диапазоне длин волн 885-730 нм. С целью нахождения коэффициента G_{ep} было измерено дифференциальное отражение для различных длин волн импульса накачки (рис. 1.12 а) и различных плотностей энергии импульса накачки (рис. 1.12 б). G_{ep} находился при помощи численного решения системы уравнений 1.16, считая слагаемое $f(t, \mathbf{r})$, отвечающее за нагрев образца лазерным импульсом, равным:

$$f(t, x) = 0.94 \frac{(1 - R)}{\tau_p \delta} J \exp \left[-\frac{x}{\delta} - 2.77 \left(\frac{t}{\tau_p} \right)^2 \right],$$

где J - плотность энергии, δ - глубина скин-слоя, τ_p - длительность импульса. Найденные численно температуры T_e и T_l аппроксимировали полученное экспериментально дифференциальное отражение при помощи формулы (1.22).

Также в статье [91] были изучены оптически толстые пленки. Зная значение G_{ep} , можно решить систему уравнений 1.16 в случае наличия тепловой диффузии и найти коэффициент теплопроводности электронного газа χ . Полученные результаты подтвердили предположение о независимости G_{ep} и χ от длины волны импульса накачки и от температуры электронного газа при малых отклонениях температуры.

Предположения о постоянности коэффициента G_{ep} и линейности теплоемкости электронного газа по отношению к температуре выполняются только в некотором приближении. В статье [92] на основе результатов исследования 8 металлов рассматриваются отклонения от этих предположений.

Теплоемкость электронного газа может быть найдена по

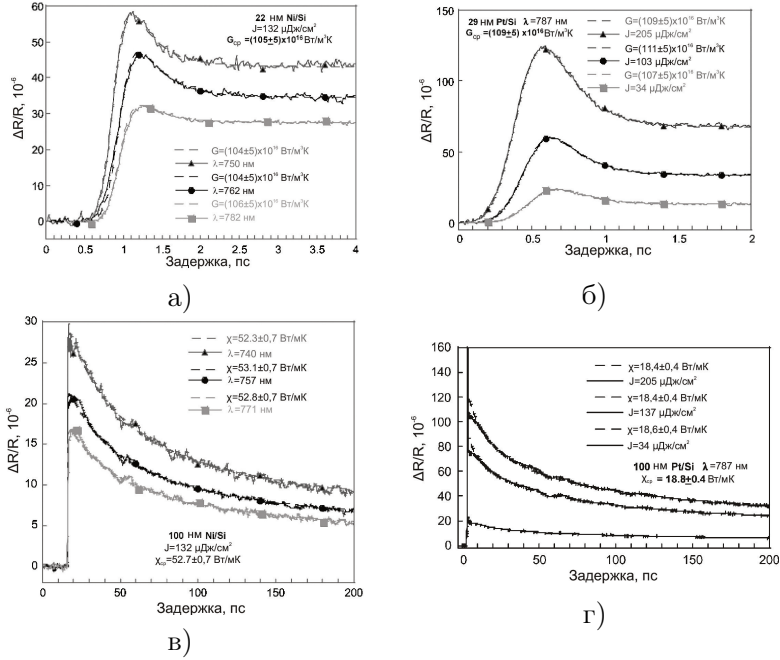


Рис. 1.12: а) - Дифференциальное отражение от пленки никеля толщиной 22 нм при разных длинах волн импульса накачки (сплошные линии) и расчет при указанных коэффициентах $G_{ср}$ (пунктирные линии); б) - дифференциальное отражение от пленки платины толщиной 29 нм при разных плотностях энергии импульса накачки (сплошные линии) и расчет при указанных коэффициентах $G_{ср}$ (пунктирные линии); в) - дифференциальное отражение от пленки никеля толщиной 100 нм при разных длинах волн импульса накачки (сплошные линии) и расчет при указанных коэффициентах $G_{ср}$ (пунктирные линии); г) - дифференциальное отражение от пленки платины толщиной 100 нм при разных плотностях энергии импульса накачки (сплошные линии) и расчет при указанных коэффициентах $G_{ср}$ (пунктирные линии) [91].

следующей формуле:

$$c_e(T_e) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\partial f(\varepsilon, \mu, T_e)}{\partial T_e} g(\varepsilon) \varepsilon d\varepsilon,$$

где ε - удельная энергия, μ - химический потенциал, $f(\varepsilon, \mu, T_e)$ - распределение ферми, $g(\varepsilon)$ - плотность состояний. Первый член разложения этого интеграла в асимптотический ряд по степеням kT_e/ε_f равен $c_e = \gamma T_e$, $\gamma = \pi^2 k^2 g(\varepsilon_f)/3$, $g(\varepsilon_f) = \eta_e$ - плотность свободных зарядов. При больших температурах первый член недостаточно точно описывает теплоемкость. В этом случае требуется полный расчет интеграла. Для расчета $\frac{\partial f(\varepsilon, \mu, T_e)}{\partial T_e}$ требуется знание μ как функции $\mu(T_e)$, ее можно найти из выражения $N_e = \int_{-\infty}^{\infty} f(\varepsilon, \mu(T_e), T_e) g(\varepsilon) d\varepsilon$, что соответствует нормировке на полное число электронов.

Введенный в статье [86] коэффициент G_{ep} из формулы (1.15) предполагался не зависящим от температуры при $T_e \gg T_D$. Однако, при больших интенсивностях это не выполняется, что подтверждает сравнение результатов [4], [91] и [6]. Для нахождения истинной зависимости от T_e требуется учитывать плотность состояний металла. В статье [92] было показано, что коэффициент G_{ep} определяется выражением:

$$G_{ep}(T_e) = \frac{2\hbar k \lambda \langle \omega^2 \rangle}{g(\varepsilon_f)} \int_{-\infty}^{\infty} g(\varepsilon) \left(-\frac{\partial f}{\partial \varepsilon} \right) d\varepsilon$$

где λ - электрон-фононный параметр увеличения массы [93], $\langle \omega^2 \rangle$ - второй момент спектра фононов, определенный в [94]. Очевидно, что при низких температурах значение $\frac{\partial f}{\partial \varepsilon}$ близко к дельта-функции.

Одними из 8 исследованных в статье [92] металлов были никель и платина, имеющие близкие свойства. У никеля почти полностью заполнена d - подболочка, что ведет к высокой плотности состояний в окрестности уровня Ферми (рис. 1.13 а). d-электроны в окрестности энергии ферми могут быть легко возбуждены даже при низкой температуре электронного газа, сдвигая химический потенциал (рис. 1.13 в) и вызывая сильные отклонения теплоемкости и коэффициента G_{ep} от предполагаемых (рис. 1.13 б и г). Удаление химического потенциала от максимума плотности состояний уменьшает вклад

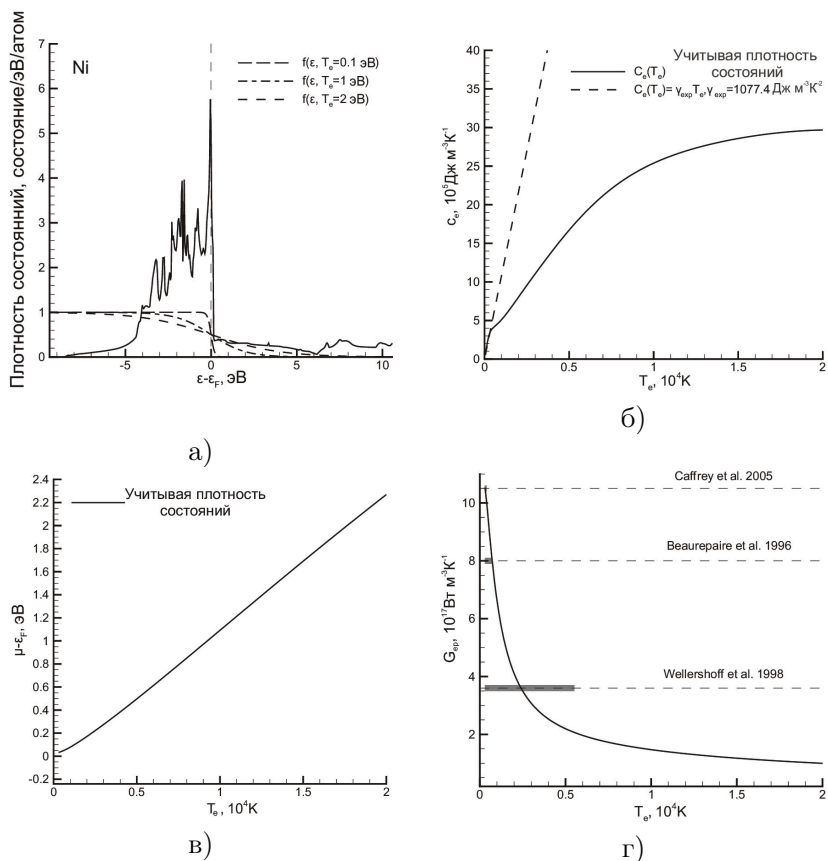


Рис. 1.13: а) - Плотность состояний электронов в никеле (сплошная кривая) и распределения Ферми для различных температур (пунктирные линии); б) - теплоемкость электронного газа, предполагая линейность по температуре (пунктирная линия) и рассчитанная с учетом плотности состояний (сплошная линия); в) - рассчитанный химический потенциал в зависимости от температуры электронного газа; г) - коэффициент G_{ep} рассчитанный с учетом плотности состояний (сплошная линия) и полученный в [4, 6, 91] (пунктирная прямая), жирным выделены достигнутые температуры [92].

d-электронов в электрон-фононные взаимодействия, это вы-

зывает резкое падение коэффициента G_{ep} вплоть до нескольких тысяч Кельвинов. Дальнейшее падение G_{ep} определяется балансом между увеличивающейся вероятностью электронов оказаться в возбужденном состоянии в следствии повышения температуры и продолжающимся увеличением химического потенциала. Отрицательные отклонения от линейной зависимости теплоемкости говорят о том, что значения температуры в работах [4, 6, 91] были занижены. Увеличение температуры и быстрое снижение взаимодействия электронов и фононов увеличивает время электрон-фононной релаксации и уменьшает степень локализации лазерной энергии в приповерхностном слое.

Наблюдаемые эффекты изменения отражения и пропускания связаны с модификацией диэлектрической проницаемости при увеличении температуры электронного газа. Можно выделить два основных вклада: изменение частоты электронных столкновений и модификация межзонных переходов. Рассмотрим первый вклад. Диэлектрическая проницаемость многих металлов описывается моделью Друде для свободных электронов [18]:

$$\varepsilon^D = \varepsilon_1^D + i\varepsilon_2^D = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega},$$

где ω_p -плазменная частота, γ -частота электронных столкновений. Частота электронных столкновений определяется электрон-электронными столкновениями и электрон-фононными $\gamma = \gamma_{ee} + \gamma_{ep}$. Увеличение температуры приводит к учащению обоих видов столкновений. Первое из слагаемых определяется электронной температурой, а второе - фононной [16, 17]:

$$\gamma_{ee} = \omega_p \left(\frac{k_b T_e}{\hbar \omega_p} \right)^2 \left(1 + \left(\frac{\hbar \omega}{k_b T_e} \right)^2 \right), \quad \gamma_{ep} = \gamma_{ep}^0 T_p,$$

где γ_{ep}^0 при температурах выше температуры Дебая не зависит от T_p . В золоте $\gamma_{ep}^0 \approx 0,125 \text{ мЭВ/К}$ [17]. Так как γ почти

не влияет на ε_1 , изменение температуры приведет только к изменению мнимой части диэлектрической проницаемости:

$$\Delta\varepsilon_2^D(T_e, T_p) = \frac{\omega_p^2}{\omega^3}(\Delta\gamma_e e(T_e) + \Delta\gamma_e p(T_p)). \quad (1.24)$$

Второй вклад в изменение диэлектрической проницаемости связан с изменением вероятности межзонных переходов при увеличении температуры, так как при уширении распределения Ферми количество свободных состояний с энергией меньше E_f увеличивается, а с энергией больше E_f -уменьшается. В золоте в видимом диапазоне основной вклад вносят переходы из d-зоны в p-зону в окрестности L и X точек высокой симметрии [95, 96]. Вклад в мнимую часть диэлектрической проницаемости от межзонного перехода определяется общей плотностью состояний, доступных для перехода:

$$\varepsilon_2^{ib}(\omega, T_e) \sim \frac{1}{(\hbar\omega)^2} J(\omega, T_e),$$

$$J = \int_{E_{min}}^{E_{max}} D(E, \hbar\omega) f(E, T_e) (1 - f(E + \hbar\omega, T_e)) dE,$$

где $D(E, \hbar\omega)$ - распределение плотности возможных для $d \rightarrow p$ перехода состояний, которое определяется законом дисперсии электронов в окрестности точек симметрии, $f(E, T_e) = \frac{1}{1+e^{E/kT_e}}$ - распределение Ферми-Дирака, интегрирование производится по всем возможным для перехода энергиям. Изменение мнимой части диэлектрической проницаемости с учетом переходов в окрестности L и X точек определяется выражением:

$$\begin{aligned} \Delta\varepsilon_2^{ib} = & \frac{8\pi^2 e^2 \hbar^4}{3m_e^2 (\hbar\omega)^2} [|P^L|^2 (J^L(\omega, T_e) - J^L(\omega, T_0)) + \\ & + |P^X|^2 (J^X(\omega, T_e) - J^X(\omega, T_0))], \end{aligned} \quad (1.25)$$

где P^L и P^X - дипольные матричные элементы, которые можно считать независимыми от длины волны. Изменения ε_2 также приводят по соотношениям Крамерса-Кронига и к изменению ε_1 .

Вклад от увеличения частоты электронных столкновений проявляется сильнее на больших длинах волн, в то время как вклад от межзонных переходов проявляется больше всего в диапазоне 450-650 нм в окрестности переходов. Так как вклад $\Delta\varepsilon_2^D$ квадратично зависит от температуры электронного газа, при больших мощностях он начинает доминировать и в окрестности переходов. На рисунке 1.14 показаны спектры разных вкладов в изменение диэлектрической проницаемости золота при различных температурах нагрева.

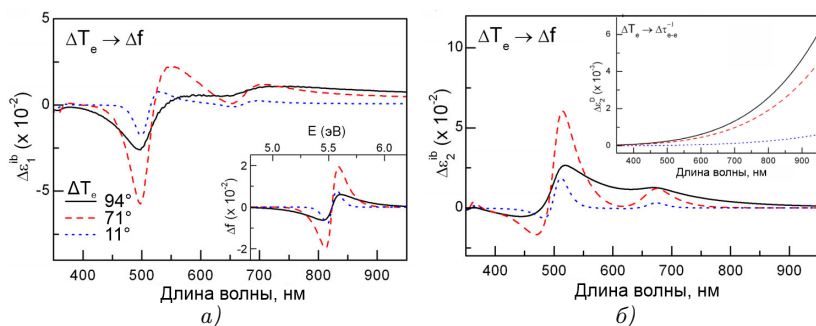


Рис. 1.14: а) - Спектр изменения действительной части диэлектрической проницаемости $\Delta\varepsilon_1^r$, вызванный уширением распределения Ферми при разных температурах нагрева; во вложении - изменение распределения Ферми в окрестности энергии Ферми; б) - спектр изменения мнимой части диэлектрической проницаемости $\Delta\varepsilon_2^r$, вызванный уширением распределения Ферми; во вложении - спектр изменения мнимой части диэлектрической проницаемости $\Delta\varepsilon_2^D$, вызванный увеличением частоты электрон-электронных столкновений [15].

Качественно изменение диэлектрической проницаемости под действием нагрева для переходных металлов объясняется аналогичными эффектами, однако сложность зонной структуры вблизи поверхности Ферми не позволяет построить аналити-

ческой модели.

Зависимость $\Delta\epsilon_2^{ib}$ от температуры T_e (1.25) является линейной только при слабом нагреве. Это не позволяет напрямую связать наблюдаемый сверхбыстрый оптический отклик с электронной температурой и может существенно усложнить интерпретацию экспериментальных результатов. В линейном приближении увеличение температуры приводит к уменьшению или увеличению вероятности обнаружить электрон с данной энергией вблизи уровня Ферми, что приводит к увеличению или уменьшению вероятности межзонного перехода. Однако, также при увеличении температуры распределение Ферми уширяется, что позволяет более удаленным от уровня Ферми электронам совершить межзонный переход при данной энергии фотона.

В работе [22] была исследована температурная нелинейность диэлектрической проницаемости и ее влияние на динамику дифференциального пропускания коллоидного раствора золотых наночастиц 1.15. В качестве наночастиц использовались наностержни с характерными размерами 20×40 нм в воде, частицы поддерживали возбуждение ЛП на длинах волн ~ 500 нм и ~ 620 нм. С помощью системы уравнений 1.19 была рассчитана динамика электронной температуры под действием импульса накачки, после чего с помощью уравнения 1.25 (с учетом только одного межзонного перехода) были получены спектры изменения мнимой части диэлектрической проницаемости при различных временах. Используя соотношения Крамерса-Кронига, были получены спектры изменения действительной диэлектрической проницаемости. Для сравнения с линейным случаем также были посчитаны спектры диэлектрической проницаемости, предполагая линейное изменение распределения электронов с температурой $\Delta f(E, T_e) = \partial f / \partial T_e|_{T_e=300K} \Delta T_e$. На основе квазистатического приближения для эллипсоидов [18] и полученных диэлектрических проницаемостей была рассчитана зависимость коэффициента пропускания коллоидного раствора наночастиц от времени.

Нелинейность зависимости ε от температуры электронов начинала иметь существенный вклад при максимальной температуре нагрева, превышающей 2000 К. На длинах волн, превышающих энергию межзонного перехода, наблюдался эффект насыщения (рис. 1.15, $\lambda_1 = 505$ нм), мнимая и действительная часть диэлектрической проницаемости достигали меньших абсолютных значений по сравнению с линейным случаем. Дифференциальное пропускание также достигало меньших максимальных значений, но форма зависимости от времени сохранялась. На больших длинах волн вдали от межзонного перехода с повышением температуры возникали электронные состояния, допускающие межзонный переход. Поэтому в линейном приближении мнимая часть ε была близка к нулю, а в полной модели значительно увеличивалась (рис. 1.15, $\lambda_3 = 661$ нм). На длине волны $\lambda_3 = 661$ изменение ε' и ε'' внесли вклады с разным знаком в диэлектрическую проницаемость. Так как ε' и ε'' по-разному зависят от температуры, мнимая часть проявляет большую нелинейность, их временные огибающие не совпадают.

В результате, зависимость $\Delta T/T(\tau)$ вместо экспоненциального затухания демонстрировала дополнительный экстремум во время остывания электронного газа. Увеличение ε'' на больших длинах волн за счет соотношений Крамерса-Кронига приводило к снижению ε' вблизи центральной длины волны межзонного перехода (рис. 1.15, $\lambda_2 = 546$ нм), зависимость $\varepsilon'(\tau)$ вместо положительной оказалась знакопеременной, что также привело к появлению дополнительного экстремума в зависимости $\Delta T/T(\tau)$. Если зависимость дифференциального пропускания от времени на коротких длинах волн качественно воспроизводила электронную динамику, то при энергиях фотона импульса зонда, недостаточных для возбуждения межзонного перехода, прямое соотношение между дифференциальным пропусканием и температурой исчезало. Данный эффект может возникать и в металлических пленках, но наиболее остро проявляется в системах с наноструктурированием.

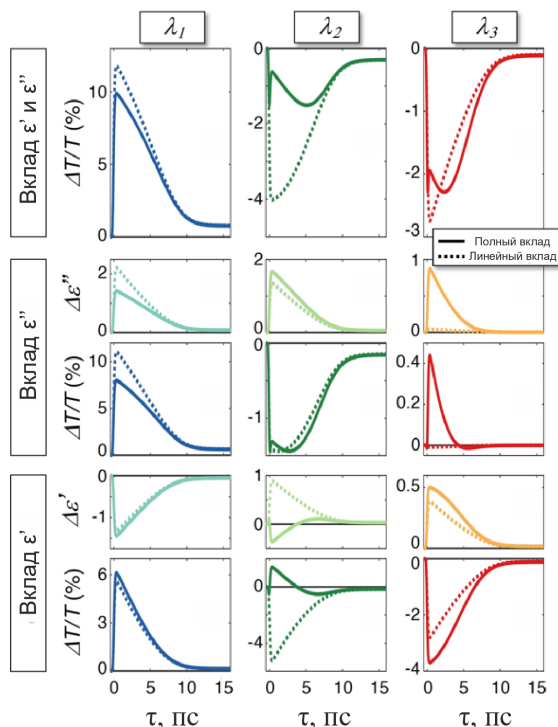


Рис. 1.15: Расчет зависимостей дифференциального пропускания коллоидного раствора золотых наночастиц на трех длинах волн: вблизи межзонного перехода с коротковолновой стороны $\lambda_1 = 505$ нм, вблизи с длиноволновой стороны $\lambda_1 = 546$ нм и вдали от межзонного перехода $\lambda_1 = 661$ нм [22].

3. Сверхбыстрый нагрев плазмонных структур

Нагрев наноструктур имеет свои особенности, связанные не только с возбуждением электромагнитных мод, но и с изменениями электронной динамики, связанные с небольшими пространственными размерами. В статье [26] представлен обзор на процесс нагрева наносфер из благородных металлов. Одно из основных отличий динамики электронов в наноструктурах возникает, когда характерный размер локализации волновой функции электронов становится больше, чем характерный размер частиц. Это приводит к снижению электронной плотности вблизи поверхности частиц (вытекание электронов) и, следовательно, к снижению экранирования электронов и увеличению чис-

ла свободных состояний. Связанные электроны в d-зоне, в свою очередь, наоборот локализованы ближе к ядру сферы и не оказывают влияния на приповерхностный слой, что также снижает экранирование свободных электронов. Увеличение числа свободных состояний приводит к большей вероятности электрон-электронных и электрон-фононных столкновений, которые определяют скорости электрон-электронной термализации и электрон-фононной релаксации. На рисунках 1.16 а) и б) показаны зависимости времен электрон-электронной термализации τ_{ee} и электрон-фононной релаксации τ_{ep} от радиуса серебряных наносфер, показывающие существенное ускорение динамики. При достижении радиуса 15 нм, сферы слабо отличаются от объемного серебра, и времена перестают зависеть от радиуса. Эксперименты были проведены при различных материалах, окружающих сферы. Времена при изменении материала не изменялись, что подтверждает связь ускорения релаксаций с влиянием именно электронов в серебре.

Другой особенностью динамики нагрева наноструктур является колебание объема частиц. Нагрев решеточной системы наносфер приводит к увеличению объема, но из-за наличия сил упругости, это вызывает нормальные колебания радиуса сферы. Увеличение объема вызывает снижение плотности электронного газа и, следовательно, изменению диэлектрической проницаемости (рис. 1.16 в). При больших температурах нагрева электронного газа, когда теплоемкость электронов становится сравнимой с теплоемкостью решетки, колебания объема могут быть вызваны электронным давлением на ионы, такое возмущение на масштабах колебаний радиуса будет представлять собой δ -функцию. Так как модуль упругости падает с температурой, частота осцилляций будет снижаться при увеличении мощности лазерного импульса (вложение, рис. 1.16 в).

Однако основное отличие оптического отклика на нагрев проявляется при возбуждении пучком зонда или накачки электромагнитных мод. В работе [15] исследовался сверхбыстрый

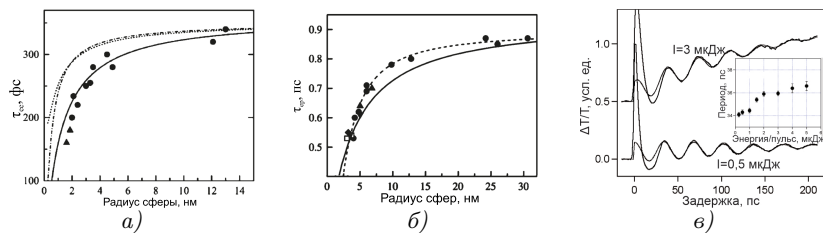


Рис. 1.16: а) - Зависимость времени электронной термализации τ_{ee} от радиуса серебряных сфер, круги и треугольники соответствуют экспериментальным значениям с различными материалами окружающей среды, сплошная линия - расчет с учетом локализации d-электронов и эффекта вытекания электронов, штрих-пунктирная и пунктирная линии - эти вклады по отдельности; б) - зависимость времени электронной термализации τ_{ep} от радиуса серебряных сфер, круги, треугольники, ромбы и квадраты - экспериментальные значения с различными материалами окружающей среды, сплошная линия - расчет с учетом локализации d-электронов и эффекта вытекания электронов, пунктирная линия - интерполяция экспериментальных значений; в) - экспериментальная зависимость дифференциального пропускания коллоидного раствора золотых сфер с диаметром 100 нм при разных энергиях импульса; вложение - зависимость периода осцилляций радиуса сферы от энергии импульса [26].

нагрев золотых стержней и серебряных сфер при возбуждении ЛП в плече зонда. Чтобы рассматривать только вклад от плазмонов, длина волны возбуждения ЛП была удалена от межзонного перехода. Серебряные сферы для этого достаточно поместить в стекло, а для удаления длины волны возбуждения от межзонного перехода в золоте использовали золотые наностержни при ориентации поляризации вдоль большей оси.

При исследовании уединенных частиц дифференциальное пропускание, измеряемое при фокусировании света на изолированную частицу, связано с изменением сечения экстинкции выражением

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{\Delta \sigma_{ext}}{S},$$

где S - площадь пучка зонда в фокусе. Изменение сечения

экстинкции, в свою очередь, может быть записано через изменение диэлектрической проницаемости:

$$\Delta\sigma_{ext} = \frac{\partial\sigma}{\partial\varepsilon_1}\Delta\varepsilon_1 + \frac{\partial\sigma}{\partial\varepsilon_2}\Delta\varepsilon_2.$$

На рисунке 1.17 а) показаны экспериментально измеренные изменения сечения экстинкции от уединенного наностержня размерами 43x12 нм для разных длин волн. Длина волны возбуждения ЛПП составляла 810 нм. Изменение диэлектрической проницаемости в окрестности этой длины волны складывается из слабо зависящего от частоты вклада $\Delta\varepsilon_1^{ib}$, вызванного нагревом термализованных электронов, и быстрым вкладом от нетермализованных электронов $\Delta\varepsilon_2^{ib}$. Таким образом, дифференциальное отражение с двух сторон от резонанса определяется изменением действительной части диэлектрической проницаемости, причем вклад от этого с разных сторон имеет разный знак (так как $\frac{\partial\sigma}{\partial\varepsilon_1}$ меняет знак). В центре резонанса $\frac{\partial\sigma}{\partial\varepsilon_1}$ равно 0, и динамика сечения рассеяния определяется вкладом от неравновесных электронов.

В случае ансамбля случайно расположенных небольших частиц дифференциальное пропускание можно выразить как разность прошедшей и падающей мощности, нормированную на падающую мощность:

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{P(t, \lambda) - P_{\text{пад}}}{P_{\text{пад}}} = -\Delta K(t, \lambda)L = -\eta\Delta\sigma'(t, \lambda)L,$$

где K - коэффициент поглощения, L - длина образца, η - плотность наночастиц, σ' - эффективное сечение экстинкции. Так как существует неоднородность в форме и размере наночастиц, экспериментально определить зависимость $\Delta\sigma'$ от изменения диэлектрической проницаемости становится затруднительно, и требуется иная интерпретация.

Оптический отклик наноструктур можно интерпретировать в терминах изменения положения и ширины оптического ре-

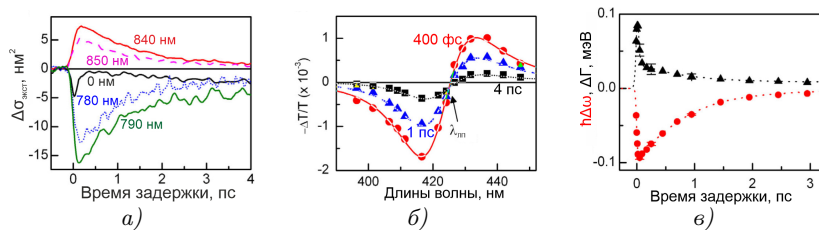


Рис. 1.17: а) - Экспериментальная зависимость сечения экстинкции уединенного золотого наностержня 43×12 нм от времени задержки для разных длин волн пучка зонда, длина волны пучка накачки 400 нм; б) символы - экспериментальный спектр дифференциального пропускания для разных времен задержки от серебряных наносфер радиусом 26 нм, помещенных в стекло, длина волны пучка накачки находится в ближнем инфракрасном диапазоне; сплошные линии - расчет при помощи двухтемпературной модели и зависимости диэлектрической проницаемости от температуры; в) - треугольники и круги - зависимости величин уширения и сдвига резонанса от времени задержки соответственно, пунктирные линии - расчет [15].

резонанса. На рисунке 1.17 б) показан спектр дифференциального пропускания при разных задержках от серебряных наносфер радиусом 26 нм, помещенных в стекло. Плазмонный резонанс в этом случае находится на длине волны $\lambda_{\text{ЛП}} = 425$ нм. Наличие минимума и максимума с переходом через ноль в спектральной форме линии говорит о том, что под действием накачки резонанс сдвигается в красную область ($\Delta\omega$). Асимметричность резонанса говорит о появлении дополнительного уширения ($\Delta\Gamma$). Эти два вклада могут быть разделены. На рисунке 1.17 в) показана зависимость величины сдвига и уширения плазмонного резонанса от времени. Сдвиг и уширение связаны с изменением действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости, соответственно. Изменение действительной части связано с вкладом равновесных электронов от изменения d-перехода, а мнимой части - с быстрым вкладом неравновесных электронов от изменения d-перехода и медленным вкладом равновесных электронов от изменения

частоты рассеивания электронов.

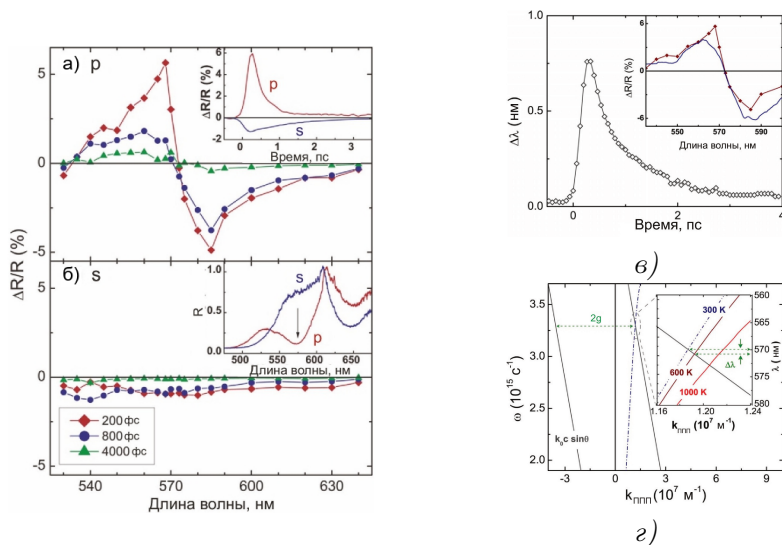


Рис. 1.18: Спектры дифференциального отражения для p - (а) и s - (б) поляризацій при різних часових затримках, вставка а) - залежність дифференциального отраження від часу при $\lambda = 568$ нм для 2 поляризацій, вставка б) - спектри коефіцієнта отраження для 2 поляризацій; в) - залежність сдвига резонанса від часу, во вставці - спектр дифференциального отраження при затримці 200 фс і нормированне изменение коефіцієнта отраження при сдвиге резонанса на $\Delta\lambda = 0,75$ нм; г) - закон дисперсії світла і зсунутий на $2g$ закон дисперсії світла (сплошні лінії), закон дисперсії ППП при 300 К (штрих-пунктирна лінія), в вклученні - закони дисперсії ППП при різних температурах [21].

Аналогічні результати спостерігаються при возбужденні ППП. В роботі [21] були досліджені два золотих плазмонних кристала методом зонд-накачка. Перва решітка "А" с періодом 830 нм мала зубчастий профіль с кутом раствора $= 29,9^\circ$. Угол падіння становляв $= 18^\circ$. Згідно умові фазового синхронізму 1.12, возбуждался ППП 2 порядку на довжині волни 570 нм, що спектрально близько к d-переходу в золоті. Були вимірені спектри дифференциального отра-

жения для p - и s -поляризаций при различных задержках (рис. 1.18 а и б). В спектре коэффициента отражения для p -поляризации наблюдался резонансный провал, ассоциируемый с аномалией Вуда, в спектральной окрестности этого провала наблюдалось резонансное усиление дифференциального отражения. Максимум достигался при длине волны 568 нм и задержке 200 фс, и составлял $\sim 6\%$. Зависимость дифференциального отражения от задержки при длине волны 568 нм на временах порядка 1 пс качественно совпадает с электрон-фононной релаксацией для пленки. В спектре отражения и дифференциального отражения для s -поляризации резонансных особенностей не наблюдалось, дифференциальное отражение было отрицательным, минимальное значение составляло $\sim -1\%$.

Резонансное усиление дифференциального отражения вызвано модификацией условия фазового синхронизма: при нагреве электронного газа изменяются ϵ' и ϵ'' , что вызывает изменение длины волны возбуждения ППП и ширины резонанса. В этом спектральном диапазоне преимущественно увеличивается ϵ' , что приводит к отрицательному дифференциальному отражению для s -поляризации. Спектр дифференциального отражения для p -поляризации имеет асимметричную форму линии и меняет знак внутри резонанса, что говорит о смещении центральной длины волны, которое определяется изменением действительной части k_{spp} . Уширение резонанса определяется изменением мнимой части k_{spp} . Был оценен сдвиг резонанса в зависимости от задержки (рис. 1.18 в) при помощи аппроксимации статическим спектром коэффициента отражения, сдвинутым по длине волны.

Численно рассчитанная температура электронного газа достигала 600 К, температура решетки оставалась близкой к комнатной. Изменение ϵ рассчитывалось на основе модели, представленной в [97]. Из полученных изменений ϵ строились законы дисперсии ППП (рис. 1.18 г) при различных температурах. Точки пересечения законов дисперсии фотона, сдвину-

тая на $2g$, и ППП для температур электронного газа 300 К и 600 К отличались на $\Delta\lambda = 0,9$ нм, что близко к полученному экспериментальному значению. При температуре 1000 К сдвиг резонанса увеличивается более чем в 3 раза.

Также была исследован образец “В” с периодом 500 нм. При угле падения $= 10^\circ$ возникал резонанс на длине волны 595 нм. Зависимость дифференциального отражения от времени для двух образцов аналогичны, однако максимальное значение эффекта для образца “В” составляло $\sim 1\%$, что связывалось с удаленностью резонанса от d-перехода в золоте. Для подтверждения этого было измерено дифференциальное отражение решетки “А”, при таком угле падения, что резонанс ППП возбуждался при длине волны 600 нм, что привело к снижению максимальных значений дифференциального отражения, сопоставимых с результатами для образца “В”.

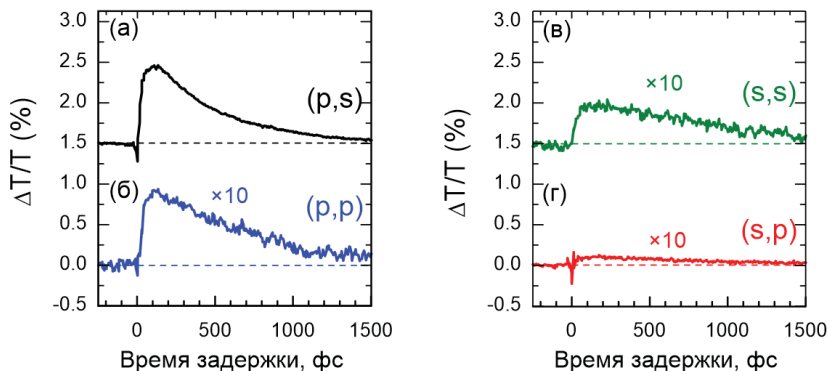


Рис. 1.19: Зависимость дифференциального отражения от времени при разных поляризациях, энергия фотонов в плече накачки - 1,55 эВ, в плече зонда - 1,63 эВ, углы падения 17° , плотность энергии пучка накачки $0,5$ мДж/см² пунктирными линиями обозначен нулевой уровень; а) - пучок зонда имеет резонансную s поляризацию, пучок накачки - резонансную p -поляризацию; б) - пучок зонда имеет нерезонансную поляризацию, пучок накачки - резонансную; в) - пучок зонда имеет резонансную поляризацию, пучок накачки - нерезонансную; г) - оба пучка имеют нерезонансную поляризацию. Значения в б), в) и г) домножены на 10 [19].

Возбуждение электромагнитных мод пучком зонда позволяет улучшить чувствительность к изменению диэлектрической проницаемости. Но их возбуждение также приводит и к увеличению поглощения падающего электромагнитного поля, что может быть использовано для увеличения температур нагрева, если возбудить моду пучком накачки. В работе [19] была реализована двухрезонансная схема, в которой и в плече накачки, и в плече зонда возбуждались поверхностные плазмон-поляритоны. Исследовалась периодически перфорированная пленка золота, помещенная на Bi:YIG, период решетки 595 нм, толщина золота 120 нм, ширина перфорации 110 нм. В такой структуре можно возбудить ППП при помощи р-поляризации, если волновой вектор будет направлен вдоль направления периодичности, и s-поляризацией, если волновой вектор направлен вдоль золотых полос. На рисунке 1.19 показаны зависимости дифференциального пропускания от времени задержки при разных конфигурациях пучков накачки и зонда. Длины волн и углы падения выбраны так, чтобы ППП возбуждался в плече накачки при р-поляризации, а в плече зонда - s-поляризацией, энергии пучков накачки и зонда удалены от d-перехода в золоте. Использование резонансной поляризации в одном из плеч приводило к увеличению оптического отклика на порядок величины по сравнению с нерезонансным откликом. Двухрезонансная конфигурация (рис. 1.19 а) приводила к увеличению дифференциального отражения на два порядка по сравнению с нерезонансной конфигурацией (рис. 1.19 г).

В случае наноструктур со сложной геометрией поглощенная мощность импульса накачки может иметь пространственное существенно неоднородное распределение. Неоднородность профиля индуцированных изменений диэлектрической проницаемости также может менять свойства плазмонных мод, так как меняет эффективную геометрию наноструктур. В свою очередь, температурная неоднородность приводит к диффузии подвижных горячих электронов внутри наноструктур. За сотни фемтосекунд горячие электроны в золоте распространя-

ются на расстояние порядка 100 нм [6, 11, 98]. В результате, за время электрон-фононной релаксации изменяются не только электронная и фононная температуры, но и пространственная неоднородность индуцированных за счет нагрева изменений диэлектрической проницаемости.

Благодаря этому эффекту было продемонстрировано явление сверхбыстрого линейного дихроизма в плазмонной метаповерхности на основе золотых нанокрестов [24]. В качестве образца использовался двумерный квадратный массив наночастиц в виде золотых крестов (скрещенных стержней), лежащих на подложке, с периодом 270 нм, толщиной нанокрестов 45 нм, шириной стержней 60 нм и длиной стержней 165 нм, стержни были ориентированы вдоль направлений периодичности. Образец имел ось симметрии четвертого порядка C_4 , при нормальном его оптические свойства не зависели от того, вдоль какого из направлений периодичности направлена поляризация, линейный дихроизм отсутствовал. Нанокресты поддерживали возбуждение продольного ЛП на длине волны $\lambda = 800$ нм при ориентации поляризации падающего излучения вдоль длины стержня, зависимость центральной длины волны от угла отсутствовала, ширина резонанса превышала 100 нм.

В экспериментах методом зонд-накачка импульс накачки с длиной волны 860 нм и s -поляризацией падал на образец под углом 5° . В качестве зонда использовалось излучение суперконтинуума, спектр которого покрывал коротковолновый склон плазмонного резонанса. Импульс зонда падал на образец под нормалью и обладал линейной поляризацией, повернутой на 45° относительно стержней. С помощью поляризатора отдельно измерялись дифференциальные пропускания для частот импульса зонда с ориентацией поляризации, параллельной $\Delta_{||}$ или перпендикулярной $\Delta_{\perp}$ поляризации импульса на-

качки.

$$\Delta_{||} = \frac{T_{pump}^{||} - T_{поритр}}{T_{поритр}}, \Delta_{\perp} = \frac{T_{pump}^{\perp} - T_{поритр}}{T_{поритр}},$$

где $T_{pump}^{||}$, $T_{pump}^{\perp}$ - коэффициенты пропускания под действием импульса накачки с параллельной и ортогональной поляризациями по отношению к поляризации импульса зонда. На рисунке 1.20 в) представлены экспериментальные спектры $\Delta_{||}$ и $\Delta_{\perp}$ и их зависимости от времени. В течение первых нескольких сотен фс наблюдалось отличие дифференциального пропускания для двух ортогональных поляризаций, разница $\Delta_{||} - \Delta_{\perp}$ достигала 1-2% в широкой области спектра, максимальное значение $\Delta_{||}$ по спектру при задержке 100 фс составляло 4%, $\Delta_{\perp}$ - 2%. Спустя 900 фс после начала действия импульса накачки $\Delta_{||}$ и $\Delta_{\perp}$ выравнивались и оставались не равны нулю. Таким образом, на субпикосекундном временном масштабе коэффициенты пропускания для двух ортогональных линейных поляризаций импульса зонда отличались, что авторы называли сверхбыстрым дихроизмом. Для объяснения возникновения сверхбыстрого линейного дихроизма авторы провели температурные расчеты с помощью связанных двухтемпературной модели и кинетического уравнения (1.19), на основе которых были получены распределения индуцированных изменений диэлектрической проницаемости с помощью уравнений 1.24, 1.25. После чего был рассчитан коэффициент пропускания плазменной метаповерхности для двух поляризаций. Импульс накачки преимущественно поглощался внутри стержня, параллельно которому была ориентирована поляризация (рис. 1.20 а). Такой неоднородный нагрев понижал симметрию системы до C_2 : зонд с параллельной поляризацией преимущественно чувствовал нагретый стержень, зонд с перпендикулярной поляризацией зондировал холодный стержень и горячую область перекрытия стержней, в результате чего его дифференциальное пропускание было ниже. Наибольший контраст между $\Delta_{||}$ и

$\Delta_{\perp}$ наблюдался в течении электронной термализации, так как на краях перпендикулярного к поляризации импульса накачки стержня неравновесные электроны отсутствовали (рис. 1.20 б). Со временем температура внутри нанокреста выравнивалась, что приводило к снижению $\Delta_{\parallel}$ и увеличению $\Delta_{\perp}$. Спустя 900 фс электронные температуры выравнивались, симметрия восстанавливалась, и дихроизм исчезал.

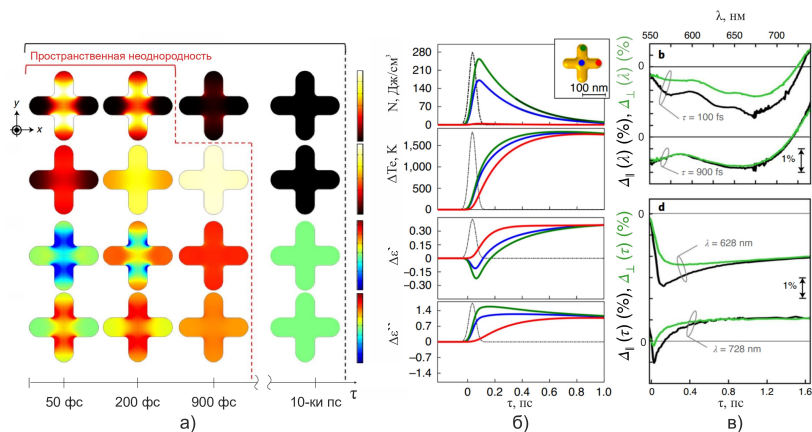


Рис. 1.20: а) - Распределение плотности неравновесных электронов (первый ряд), равновесных электронов (второй ряд) и индуцированных изменений действительной (третий ряд) и мнимой (четвертый ряд) частей диэлектрической проницаемости в нанокресте; б) - зависимости плотности неравновесных электронов, электронной температуры, изменения мнимой и действительной частей диэлектрической проницаемости от времени для трех точек в нанокресте; в) - зависимости дифференциального пропускания для двух ортогональных поляризаций импульса зонда от длины волны и от времени [24].

При помощи возбуждения плазмонов пучком накачки в метал-диэлектрических структурах можно вызывать дополнительные процессы на границе раздела металл-диэлектрик (или широкозонный полупроводник). В статье [99] исследовался двумерный квадратный массив нанодисков радиусом 150 нм и периодом 250 нм, помещенных на слой диэлектрика толщиной

несколько единиц нанометров, слой диэлектрика находился на золотой пленке толщиной 30 нм. Возбуждение плазмонов в таких системах приводит к поляризации электронов в золотой пленке таким образом, чтобы они экранировали поле плазмона. Это вызывает сильную локализацию поля внутри слоя диэлектрика (рис. 1.21 а) и создает большую плотность поверхностного заряда. Чем толще слой диэлектрика, тем слабее локализуется поле. Если возбудить ЛП пучком накачки в такой структуре, могут происходить плазмон-индуцированные межзонные переходы свободных электронов золота в зону проводимости диэлектрика. Снижение плотности электронного газа в нанодисках за счет переходов будет существенно менять свойства ЛП.

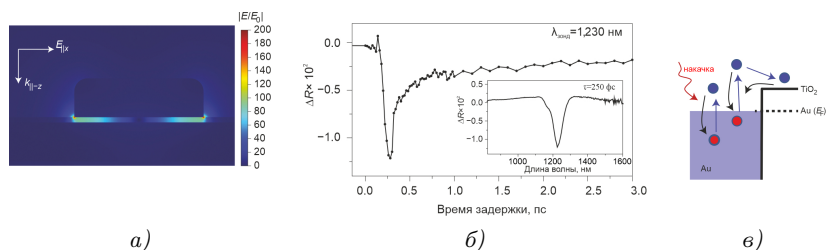


Рис. 1.21: а) - Численно рассчитанное распределение ближнего поля при возбуждении ЛП в нанодиске, помещенном на слой TiO_2 толщиной 4 нм и золотую пленку толщиной 30 нм; б) - экспериментальная зависимость изменения отражения от времени задержки, длины волн пучков накачки и зонда соответствуют возбуждению ЛП, длительность пучков составляла 130 фс; вложение - спектр изменения дифференциального пропускания при задержке 250 фс; в) - схематичное изображение уровней в структуре [99].

На рисунке 1.21 б) показана зависимость изменения отражения от времени задержки в подобной структуре, когда в роли диэлектрика выступает оксид титана. Пучки зонда и накачки имеют длины волн возбуждения ЛП. Наблюдается глубокий провал в изменении отражения, длительность которого близка к ширине кросс-корреляции пучков накачки и зонда,

что гораздо быстрее характерных времен термализации в золоте. При удалении длины волны накачки от условия возбуждения ЛП амплитуда быстрого провала уменьшается, как и при увеличении толщины оксида титана. Подобное аномальное поведение объясняется генерацией электронов проводимости в оксиде титана. Запрещенная зона в TiO_2 составляет 3 эВ, однако разница энергий между уровнем Ферми в золоте и зоной проводимости в TiO_2 меньше 1 эВ, поэтому плазмоны с энергией 1 эВ могут индуцировать переходы приповерхностных электронов из золота в зону проводимости (рис. 1.21 в).

Время жизни электронов в зоне проводимости определяется геометрией системы и свойствами диэлектрика. В работе [99] оно составляло десятки фс (~ 45 фс), после чего электрон возвращается в металл, и будет происходить медленная электрон-фононная релаксация. Такое короткое время обусловлено большой кулоновской возвращающей силой, возникающей за счет экранировки зарядов в пленке металла. При отсутствии экранирующего слоя время рекомбинации составляет единицы пс [100, 101].

Данный эффект называют инжекцией (или транспортом) горячих носителей [41, 102, 103]. Под горячими понимают не только термализованные электроны, характеризующиеся высокой температурой, но и нетермализованные электроны, обладающие большой энергией относительно уровня Ферми. Возможен и процесс инжекции дырок, если уровень Ферми металла находится достаточно близко к валентной зоне полупроводника, например в случае границы Au-GaN [104]. Инжекция возникает, когда высокоэнергетический электрон налетает на границу раздела, у него появляется вероятность преодолеть барьер Шоттки.

Данный процесс возможен и при отсутствии наноструктурирования на плоской границе раздела, однако его вероятность будет существенно ниже. Скорость инжекции определяется нормальной составляющей электрического поля к границе раздела, приближенно она описывается следующим поверх-

ностным интегралом [44, 102]:

$$Rate \approx \frac{2}{\pi^2} \frac{e^2 E_F^2}{\hbar} \frac{\hbar\omega - \Delta E_{Sch}}{(\hbar\omega)^4} \int_{S_{if}} |E_n|^2 dS,$$

где ΔE_{Sch} - высота энергетического барьера, $|E_n|$ - проекция модуля электрического поля на нормаль к границе раздела, S_{if} - площадь границы раздела.

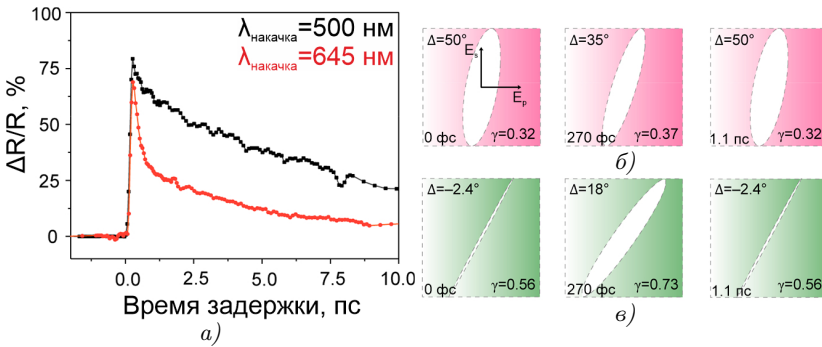


Рис. 1.22: а) - Экспериментальные зависимости дифференциального отражения от двумерного квадратного массива золотых квадратов, угол падения пучка зонда 60° , длина волны пучка зонда 680 нм, угол падения пучка накачки 50° , красная кривая соответствует резонансной длине волны накачки 645 нм, черная - длине волны накачки 500 нм, пучки зонда и накачки имеют р-поляризацию, длительность импульсов 150 фс; б) - эллипс поляризации при разных временных задержках для длины волны зонда 670 нм и длины волны накачки 645 нм, падающий свет имеет линейную поляризацию, повернутую на 45° относительно плоскости падения; в) - эллипс поляризации при разных временных задержках для длины волны зонда 678 нм. [28]

Помимо управления интенсивностью, подобные гибридные плазмонные структуры позволяют управлять поляризацией света при помощи лазерного излучения. В работе [28] исследовался квадратный массив золотых квадратов со стороной 110 нм, периодом 360 нм, толщиной 100 нм, помещенный на пленку оксида индий-олово ИТО толщиной 10 нм, пленка оксида

находилась на пленке золота. В таких структурах возможно возбуждение решеточных плазмонных резонансов, управляемых при помощи угла падения. Причем эти резонансы являются селективными по поляризации: р-поляризация будет возбуждать решеточные моды, при распространении одного из дифракционных порядков параллельно плоскости падения, s-поляризация в этом случае моды возбуждать не будет. Это приводит к повороту поляризации при отражении от плазмонного кристалла. Так как у плазмона есть время жизни, в течение которого он излучает, возникает дополнительная задержка по фазе между разными поляризациями, приводящая к дополнительной эллиптичности (так как у металлов ненулевая мнимая часть диэлектрической проницаемости, существует задержка по фазе между s- и р- поляризациями и при отражении от плоской поверхности). Так как воздействие импульса накачки приводит к изменению свойств плазмона, можно получить изменение поляризации импульса зонда при использовании света, поляризованного под углом к плоскости падения.

На рисунке 1.22 а) показана зависимость дифференциального отражения от плазмонного кристалла, пучок зонда имел р-поляризацию, падал под углом падения 60° и имел резонансную длину волны $\lambda_{\text{зонд}} = 670$ нм, пучок накачки имел р-поляризацию падал под углом падения 50° . При длине волны накачки $\lambda_{\text{накачка}} = 500$ нм импульс возбуждает межзонный d-переход, процессы релаксации электронов аналогичны процессам в объемном золоте. Но при резонансной длине волны $\lambda_{\text{накачка}} = \lambda_{\text{лп}} = 645$ нм наблюдается пик с узкой временной шириной, его природа аналогична плазмон-индуцированным межзонным переходам из золота в диэлектрик в статье [99]. На рисунках 1.22 б) и в) показаны эллипсы поляризации для длин волн зонда в резонансе $\lambda_{\text{зонд}} = 670$ (б), когда достигается минимальное значение отношения амплитуд поляризаций $\gamma = |E_p/E_s|$, и на длине волны $\lambda_{\text{зонд}} = 678$ (в), при которой достигается минимальная задержка по фазе $\Delta = \text{Arg}[E_p/E_s]$ между двумя поляризациями. Исходная поляризация - линей-

ная поляризация, повернутая на 45° относительно плоскости падения ($\gamma = 1, \Delta = 0^\circ$). При воздействии импульса накачки изменяется коэффициент отражения для р-поляризации, что приводит к изменению γ и повороту поляризации. Изменение по фазе связано со сдвигом и уширением резонанса: фаза плазмона меняется на π внутри резонанса и проходит через $\pi/2$ в центре, изменение центрального положения или ширины приводит к изменению фазы плазмона на выбранной длине волны и, соответственно, фазы переизлученного света. В случае б) достигается наибольший поворот поляризации в статическом режиме. Увеличение отражения приводит к повороту поляризации ближе к р-поляризации, а сдвиг резонанса дает небольшое изменение в эллиптичности. Однако наибольшее изменение эллипса поляризации достигается в случае в), когда в статическом случае фаза при отражении остается почти линейной. Под действием накачки у отраженного пучка появляется эллиптичность, поворот поляризации в этом случае является наибольшим.

Эффект плазмон-индуцированной инжекции горячих носителей нашел широкое применение в областях фотокатализа и фотовольтаики [39–44, 104] так как позволяет существенно понизить энергетический порог фотореакций. В работе [101] инвертированная плазмонная метаповерхность (рис. 1.23 а) использовалась для увеличения фототока и усиления реакции разложения органических молекул. На подложке из проводящего фторидного стекла находился слой золота толщиной 60 нм, в котором с помощью электронного пучка создавались круглые полости различного диаметра, полости формировали гексагональную решетку с расстоянием между полостями 125 нм. Решетка покрывалась слоем TiO_2 толщиной 15 нм, поверх слоя равномерно наносились платиновые наночастицы диаметром 2 нм. В расчетах образец поддерживал возбуждение трех решеточных плазмонных мод на длинах волн 516, 585 и 639 нм. Мода с центральной длиной волны 585 локализована преимущественно вдоль границы раздела Au-TiO_2 , две другие

моды локализованы внутри полостей. Однако, в эксперименте моды слились в один резонанс с центральной длиной волны 575 нм.

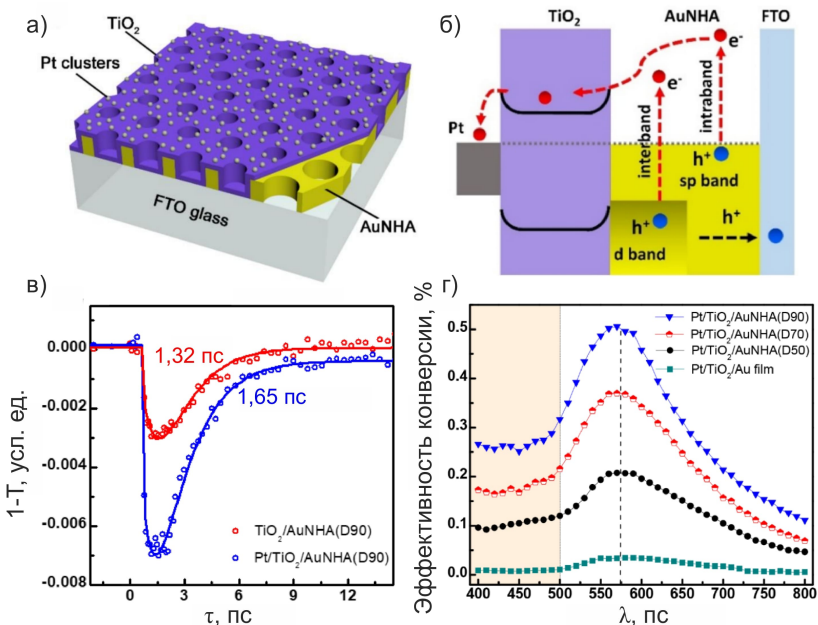


Рис. 1.23: а) - Схематическое изображение образца (AuNHA - Au nanopore array, золотая инвертированная метаповерхность); б) - качественное изображение зонной структуры системы; в) - зависимости коэффициента экстинкции двух образцов от времени после возбуждения системы фемтосекундным импульсом с длиной волны 500 нм и плотностью энергии 5 мкДж/см², длина волны зондирующего импульса 530 нм; г) - спектры эффективности конверсии падающих фотонов в фототок для нескольких образцов при облучении образца непрерывным излучением [101].

Наночастицы платины не использовались в качестве оптических резонаторов, но выполняли двойную роль: они были сокатализаторами для реакции распада органических молекул и являлись коллекторами инжектированных электронов. После плазмон-индуцированного переноса электронов из золота в

слой TiO_2 , возбужденным носителям было энергетически выгоднее перейти на платиновые наночастицы, так как работа выхода Pt выше работы выхода Au [105, 106]. Схематическая структура энергетических уровней системы изображена на рисунке 1.23 б). Добавление наночастиц платины позволило увеличить время, в течении которого заряды были разделены. С помощью методики "зонд-накачка" были исследованы зависимости экстинкции (определенной авторами какой $1 - T$, T - коэффициент пропускания образца в условных единицах) от времени для метаповерхности с радиусом отверстий 90 нм с платиновыми наночастицами и без них (рис. 1.23 в). В качестве накачки использовался импульс с центральной длиной волны 500 нм, в качестве зонда - импульс с длиной волны 530 нм. Экспериментальные результаты были аппроксимированы с помощью функции 1.23. Добавление наночастиц платины на метаповерхность привело к увеличению времени релаксации экстинкции после начального возбуждения. Для плотности энергии импульса накачки 5 мкДж/см^2 время релаксации увеличилось с 1,32 до 1,65 пс. С увеличением плотности энергии времена релаксаций линейно росли в обоих случаях, при 50 мкДж/см^2 составляли ≈ 3 и 4 пс, соответственно.

С помощью электрохимической трехэлектродной схемы был исследован генерируемый фототок различных метаповерхностей. Один из электродов был соединен с проводящей подложкой метаповерхности. В качестве источника использовалась ксеноновая лампа, свет от которой проходил через длинноволновый фильтр с длиной волны отсечки 420 нм, чтобы блокировать межзонный переход в TiO_2 . Наибольшая плотность фототока была достигнута метаповерхностью с диаметром отверстий 90 нм, превышала в 4,1 раз плотность фототока для плоского двуслоя Au- TiO_2 , покрытого платиновыми наночастицами, и в ~ 80 раз плотность фототока для слоя оксида с частицами без золота. Также была измерена спектральная эффективность конверсии фотонов в электрический ток (рис. 1.23 г). С помощью монохроматора из спектра лампы вы-

делялись узкие диапазоны, которыми генерировался фототок. Эффективность конверсии определялась авторами по формуле:

$$E = \frac{1240 \times I[\text{А/см}^2]}{P[\text{Вт/см}^2] \times \lambda[\text{нм}]} \times \%,$$

где I - плотность фототока, P - интенсивность падающего излучения выделенного спектрального окна. Для всех метаповерхностей максимум эффективности конверсии наблюдался в окрестности возбуждения плазмонной моды на длине волны 575 нм, в том время как в случае двуслоя Au-TiO₂ спектральных особенностей не наблюдалось. Наибольшая эффективность конверсии была достигнута для образца с диаметром отверстий 90 нм и превышала в ~15 раз эффективность двуслоя Au-TiO₂.

Также были исследованы фотокаталитические свойства метаповерхности при расщеплении молекул токсичного синтетического органического красителя метилоранжа (C₁₄H₁₄N₃O₃SNa). Под действием напряжения краситель диссоциирует, частицы платины укоряют этот процесс вблизи поверхности. Возбужденные электроны взаимодействуют с растворенными в воде молекулами кислорода O₂ и превращают их в анион O₂⁻, которые взаимодействуют с продуктами диссоциации красителя. Скорость разрушения метилоранжа под действием облучения ксеноновой лампой метаповерхности с диаметром отверстий 90 нм была в 9,4 раза выше, чем при облучения двуслоя Au-TiO₂, и в 13 раз выше, чем в случае электрокаталитического разрушения без использования лампы.

4. Магнитооптические эффекты Керра

Другим способом активного управления свойствами материала является приложение внешнего магнитного поля. Намагниченность вещества может приводить к возникновению различных магнитооптических эффектов, аналогичных эффекту

Холла для стационарного тока. Магнитооптическими эффектами Керра (МОЭК) называют группу явлений, вызванных появлением оптической анизотропии в намагниченных материалах и проявляющихся в изменении отражения и пропускания света [107]. Различают три вида эффектов Керра в зависимости от взаимной ориентации намагниченности, направления распространения света и нормали к поверхности: полярный, меридиональный и экваториальный (рис. 1.24).

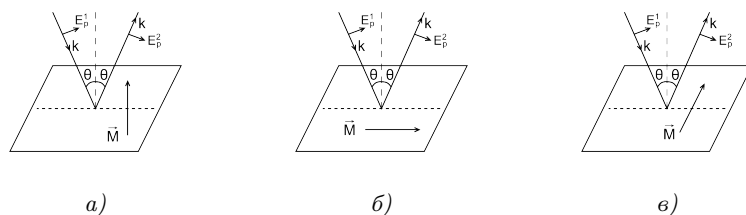


Рис. 1.24: Магнитооптические эффекты Керра: а) - полярный, б) - меридиональный, в) - экваториальный [107].

Полярный и меридиональный МОЭК заключаются в изменении плоскости поляризации (Керрровское вращение) и появлении эллиптичности при отражении и пропускании линейно поляризованного света. В случае экваториального МОЭК (ЭМОЭК) происходит изменение интенсивности и сдвиг по фазе линейно поляризованного света, без изменения плоскости поляризации. Полярный и меридиональный эффекты также называют поперечными, экваториальный - продольным. Полярный эффект на пропускание называют эффектом Фарадея.

Рассмотрим подробнее экваториальный МОЭК при прохождении света через границу раздела из немагнитной среды в магнитную. Направим ось z вдоль намагниченности, ось x - вдоль нормали к поверхности, n_1 - показатель преломления немагнитной среды, $n_2 = \sqrt{\epsilon}$ - показатель преломления магнитной среды, $\eta = \frac{n_2}{n_1}$, $\mu = 1$. Тогда в случае оптически изотропного ферромагнетика симметрия понижается до одноосной, и тензор диэлектрической проницаемости можно пред-

ставить в виде суммы симметричного и антисимметричного тензоров, которые имеют вид:

$$\begin{aligned}\widehat{\varepsilon} &= \begin{pmatrix} \varepsilon & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & ig & 0 \\ -ig & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \\ &= n_2^2 \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} + n_2^2 \begin{pmatrix} 0 & iQ & 0 \\ -iQ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix},\end{aligned}$$

где g называется гирацией среды, обычно $g(M) = aM$, $g \ll \varepsilon$.

Рассмотрим p -поляризованную волну, падающую в плоскости xy под углом ϕ к нормали. В этом случае поля падающей и отраженной волны примут вид:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_i &= E_i \begin{pmatrix} -\sin\phi \\ -\cos\phi \\ 0 \end{pmatrix} e^{-i\omega t + i(\omega/c)\mathbf{n}_i \mathbf{r}}, \\ \mathbf{E}_r &= E_r \begin{pmatrix} -\sin\phi \\ \cos\phi \\ 0 \end{pmatrix} e^{-i\omega t + i(\omega/c)\mathbf{n}_r \mathbf{r}},\end{aligned}$$

где $n_i = n_1(-\cos\phi, \sin\phi, 0)$, $n_r = n_1(\cos\phi, \sin\phi, 0)$.

Из волнового уравнения для плоских волн $n^2 \mathbf{E} - \mathbf{n}(\mathbf{nE}) = \widehat{\varepsilon} \mathbf{E}$ можно показать, что поле прошедшей волны будет иметь вид:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_t &= E_t \begin{pmatrix} -\sin\phi_t + iQ/\cos\phi_t \\ -\cos\phi_t \\ 0 \end{pmatrix} e^{-i\omega t + i(\omega/c)\mathbf{n}_t \mathbf{r}} \\ \mathbf{n}_t &= n_t(-\cos\phi_t, \sin\phi_t, 0), n_t = n_2(1 - Q^2) \approx n_2, \\ \sin\phi_t &= \frac{n_1}{n_2} \sin\phi, \cos\phi_t = \sqrt{1 - \sin^2\phi_t}.\end{aligned}$$

В дополнение к поперечной компоненте, существующей и без намагнитченности, добавляется продольная компонента, про-

порциональная Q . Эта компонента приводит к эллиптической поляризации проходящего света в плоскости падения и существованию магнитооптических эффектов. Учитывая граничные условия для электромагнитных волн, можно получить коэффициенты пропускания и отражения:

$$\tilde{r}_{12}^p = \frac{E_r}{E_i} = r_{12}^p(1 + i\rho_{12}^p), \quad \rho_{12}^p = \frac{r_{12}^p Q \sin\phi}{2\sqrt{\eta^2 - \sin^2\phi}},$$

$$\tilde{t}_{12}^p = \frac{E_t}{E_i} = t_{12}^p(1 + i\tau_{12}^p), \quad \tau_{12}^p = \frac{(1 + r_{12}^p)Q \sin\phi}{2\sqrt{\eta^2 - \sin^2\phi}},$$

где r_{12}^p и t_{12}^p - френелевские полевые коэффициенты отражения и пропускания.

Таким образом, при прикладывании внешнего магнитного поля у отраженного и прошедшего света изменяется интенсивность и появляется сдвиг по фазе. В случае s -поляризованного света $\mathbf{E}_t$ является чисто поперечной, потому что не содержит линейных по Q компонент, поэтому эффект в этом случае не проявляется.

Экспериментально значение ЭМОЭК определяется с помощью следующего выражения:

$$\delta = \frac{R(\mathbf{H}) - R(-\mathbf{H})}{R(0)}, \quad (1.26)$$

где $R(\pm\mathbf{H})$ - коэффициент отражения под действием внешнего магнитного поля в экваториальной геометрии, $R(0)$ - коэффициент отражения в отсутствии магнитного поля. Аналогично нагреву, приложение магнитного поля к плазмонным наноструктурам приводит к изменению условий возбуждения ЛП и ППП, а сильная локализация ближнего поля вблизи поверхности металла при возбуждении плазмонных резонансов усиливает эффективную магнитооптическую активность среды. Благодаря этому в спектрах МОЭК наблюдается резонансное

усиление магнито-оптического отклика. Изучением подобных эффектов занимается магнитоплазмоника [108–112] - одна из активно развивающихся подобластей нанофотоники.

Аналитически возможность усиления МОЭК при помощи возбуждения ЛП была показана в работах [113,114]. К диэлектрической среде, включающей в себя металлические многослойные сферы диаметра много меньше длины волны, применялось приближение эффективной среды, магнитооптической активностью мог обладать как металл, так и диэлектрик. Возбуждение ЛП соответствовало возбуждению точечных диполей с большим дипольным моментом и резонансному изменению поляризуемости эффективной среды, а спектры действительной $\langle \tilde{\epsilon}_{xx}' \rangle$ и мнимой $\langle \tilde{\epsilon}_{xx}'' \rangle$ части эффективной диэлектрической проницаемости имели особенность $1/(\epsilon_m + 2\epsilon_d)$. При намагничивании появлялись и недиагональные компоненты тензора диэлектрической эффективной среды $\langle \tilde{\epsilon}_{xy}' \rangle$ и $\langle \tilde{\epsilon}_{xy}'' \rangle$, которые также испытывали резонансное усиление при возбуждении ЛП (рис. 1.25 а), что можно интерпретировать как усиление магнитооптической активности среды. Причем из-за антисимметричности компонент гирации и их малости по сравнению с ϵ металла и диэлектрика, часть членов сокращается и остается особенность $1/(\epsilon_m + 2\epsilon_d)^2$. Применяя приближение эффективной среды к случайно расположенным в воздухе натриевым шарам с полостью, было аналитически продемонстрировано усиление МОЭК. Резонансное поведение $\langle \tilde{\epsilon} \rangle$ может привести к усилению МОЭК более чем на порядок величины (рис. 1.25 б). Авторы подчеркивают, что величина усиления очень сильно зависит от значений поглощения металла и добротности плазмонного резонанса. Так, при уменьшении константы релаксации электронов натрия в 5 раз, аналитическое значение МОЭК вырастает на 3 порядка в области образования ЛП.

Самым простым способом реализовать усиление МОЭК при помощи возбуждения ЛП является использование наночастиц из ферромагнитных d-металлов [115]. Однако, так как фер-

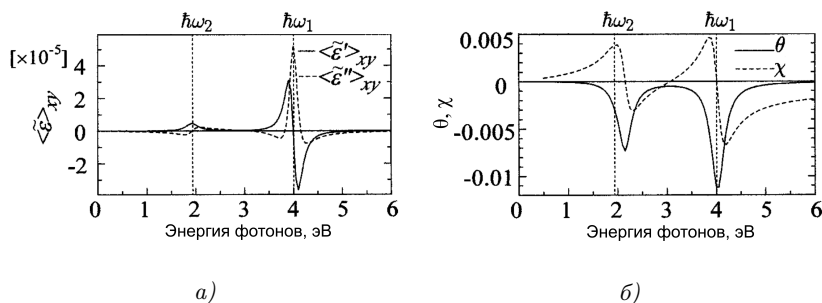


Рис. 1.25: а) - спектры действительной и мнимой частей недиагональной компоненты эффективного тензора диэлектрической проницаемости для диэлектрика со случайно расположенными натриевыми шарами с полостью. б) - Спектры угла Керровского вращения θ и эллиптичности χ [114]. $\hbar\omega_1$ и $\hbar\omega_2$ - энергии возбуждения симметричной и асимметричной мод ЛП.

ромагнетизм в таких металлах обусловлен большой плотностью электронных состояний вблизи уровня Ферми, они обладают также и высокими показателями поглощения. Из-за этого плазмонные резонансы будут обладать низкой добротностью и создавать небольшое усиление ближнего поля. Одним из решений является использование наноструктур, включающих себя одновременно ферромагнитные и благородные металлы. Это позволяет увеличить локализацию поля в ферромагнетике, однако снижает долю магнитного материала и, соответственно, магнитные свойства частиц. В работе [116] в полярной геометрии экспериментально и численно исследовались сферы кобальта, покрытые оболочкой из серебра (вложение рис. 1.26 а). При изменении соотношения между концентрациями кобальта и серебра меняя радиус сердцевинки, авторы наблюдали изменение локализации электрического поля и значения фарадеевского вращения. Размер структуры при этом сохранялся, внешний радиус оболочки составлял 20 ± 5 нм, плотность частиц также сохранялась. При таких размерах частицу можно считать однородной.

Экспериментально были исследованы наночастицы с соот-

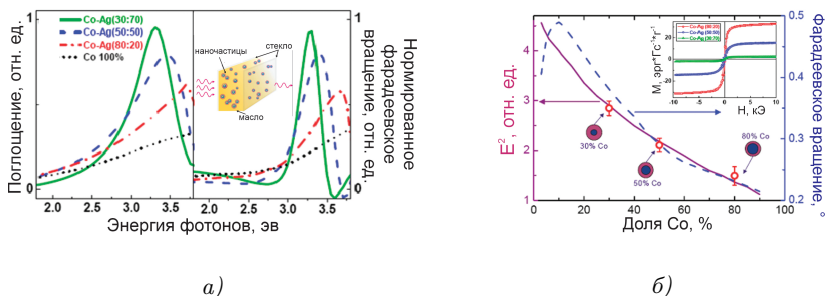


Рис. 1.26: а) - Нормированные спектры поглощения и фарадеевского вращения для сфер с различными соотношениями кобальта и серебра; вложение - исследуемый образец. б) - Численный расчет интеграла квадрата электрического поля внутри сферы и максимального угла фарадеевского вращения в зависимости от доли кобальта, красные точки - экспериментальные значения; вложение петли гистерезиса для сфер различными соотношениями кобальта и серебра [116].

ношениями кобальт-серебро, равными 30:70, 50:50, 80:20. Во вложении к рисунку 1.26 б) изображены петли гистерезиса для наночастиц с такими соотношениями, снижение концентрации кобальта приводило к ухудшению магнитных свойств наночастиц. Частицы были помещены в слой масла с показателем преломления $n = 1,5$, частота возбуждения увеличивалась с увеличением концентрации кобальта (рис. 1.26 а). Увеличение концентрации кобальта приводило и к увеличению поглощения, следовательно, и к ухудшению плазмонных свойств: увеличивалась ширина резонанса, снижались максимальное поглощение (рис. 1.26 а) и локализация электрического поля внутри частицы (рис. 1.26 б), что приводило к снижению величины фарадеевского вращения (рис. 1.26 а и б). Расчеты показали, что фарадеевское вращение имеет экстремум при определенной концентрации кобальта (рис. 1.26 б). Пик возникает, так как с одной стороны снижение концентрации кобальта увеличивает локализацию поля внутри частицы, а с другой снижает ее ферромагнитные свойства.

Другим подходом является использование сфер из благо-

родных металлов, помещенных в магнитные диэлектрики. Это позволяет получить большие значения локализации электрического поля внутри ферромагнетика, не теряя при этом его концентрации. Экспериментальное подтверждение влияния возбуждения ЛП на МОЭК в диэлектрических пленках было продемонстрировано в работе [117]. В статье исследовались пленки железо-иттриевого граната, включающие случайно расположенные золотые наносферы (вложение рис. 1.27), использовались коэффициенты заполнения граната золотом $v_{Au} = 0\%$, $1,7\%$, $10,9\%$. Условие Фрëлиха (1.2) для сред железо-иттриевый гранат-золото выполняется примерно на длине волны 600 нм (рис. 1.27).

Спектры полярного МОЭК представлены на рисунке 1.27. Возбуждение ЛП привело к перемене знака и снижению абсолютного значения угла Керровского вращения. Значение МОЭК в видимой области в пленках без сфер определяется переходом с переносом заряда, расположенным на длине волны 490 нм. Помимо этого, в видимой области присутствуют запрещенные $d - d$ переходы на длинах волн 610 нм и 700 нм, которые при обычных условиях не вносят вклада в магнитооптическую активность. Авторы считают, что изменение знака МОЭК связано с усилением запрещенного перехода на 610 нм за счет большой локализации ближнего поля при возбуждении дипольного ЛП, и сила осциллятора этого резонанса становится достаточно большой для компенсации влияния резонанса, расположенного на длине волны 490 нм.

Очень важным параметром является качество используемых сфер, что было продемонстрировано в работе [118]. На кварцевую подложку методом магнетронного напыления наносилась пленка золота толщиной 5 нм, после пленка нагревалась при разных температурах в течении 10 минут. Размер и форма образованных в следствии нагрева наночастиц определялись температурой. На образованные частицы наносился слой висмут-замещенного железо-иттриевого граната (Bi:YIG) толщиной 60 нм. Минимальная использованная температура

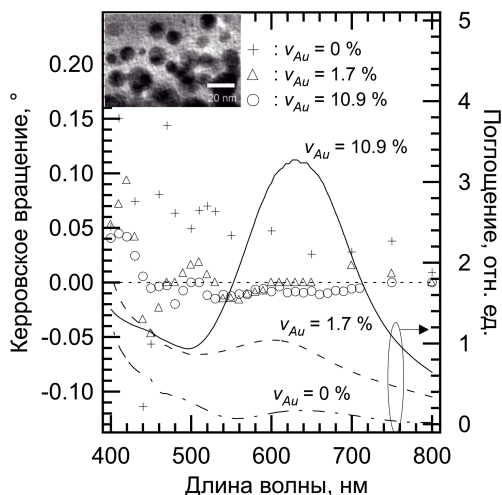


Рис. 1.27: Символами показаны спектры керровского вращения для пленок с разным фактором заполнения граната золотом, линиями - спектры поглощения; во вложении показано изображение образца с фактором заполнения 10,9%, полученное на растровом электронном микроскопе [117].

составляла 300°C, размер и форма частиц при этой температуре сильно варьировались (вложение рис. 1.28 а). При увеличении температуры частицы стабилизировались и принимали фиксированную сферическую форму и диаметр, равный 59 нм, при температурах, больших 1000°C (вложение рис. 1.28 б).

Так как положение и свойства ЛП зависят от размеров и формы наноструктур, неоднородность частиц приводила к уширению и снижению амплитуды плазмонного резонанса в спектре пропускания (рис. 1.28 а). Фарадеевское вращение испытывало резонансное усиление в области возбуждения ЛП, причем ширина и величина резонансного вращения демонстрировали схожее поведение с резонансом в спектре пропускания, однако вращение менялось с изменением температуры более резко. Иными словами, качество плазмонных структур сильнее влияет на резонанс в магнитооптических спектрах, чем в оптических. Это подтверждает теоретические выводы, полученные в работах [113, 114] касательно спектральной зависимости недиагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости.

Существенно увеличить эффективность усиления магнито-

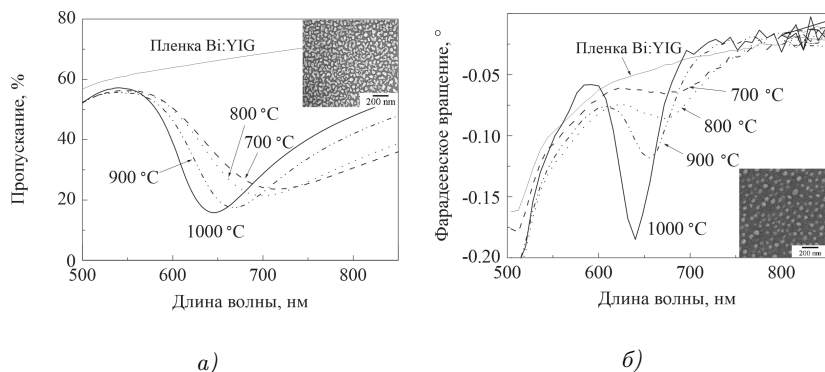


Рис. 1.28: а) - Спектры пропускания образцов с наноструктурами, полученными при различных температурах нагрева; вложение - изображение образца, полученное на растровом электронном микроскопе, наноструктуры изготовлены нагревом золота при 300 °C. б) - спектры фарадеевского вращения образцов с наноструктурами, полученными при различных температурах нагрева; вложение - изображение образца, наноструктуры которого получены нагревом золота при 1000 °C [118].

оптической активности можно при помощи пространственного упорядочения наночастиц. Более добротные ПРР позволяют локализовать поле сильнее, чем ЛПП в хаотично расположенных наночастицах. Плазмонные метаповерхности, включающие магнитные материалы называются магнитоплазмонными метаповерхностями (МППМ) [119] или магнитоплазмонными кристаллами (МПК) [72]. В работе [120] исследовались МППМ из никелевых эллиптических нанодисков и поверхность с хаотично распределенными нанодисками (рис. 1.29 а). На рисунке 1.29 б) показаны спектры экстинкции в случаях упорядоченных и хаотично расположенных нанодисков. Метаповерхность демонстрирует более добротные и выраженные резонансы. Длина волны возбуждения ЛПП в уединенном диске увеличивается при вращении поляризации от ориентации вдоль меньшей оси к ориентации вдоль большей оси, поэтому будут меняться и условия возбуждения ПРР. Иными словами, пространственная анизотропия дисков позволяла управлять спек-

тральной формой резонансов при помощи изменения азимутального угла.

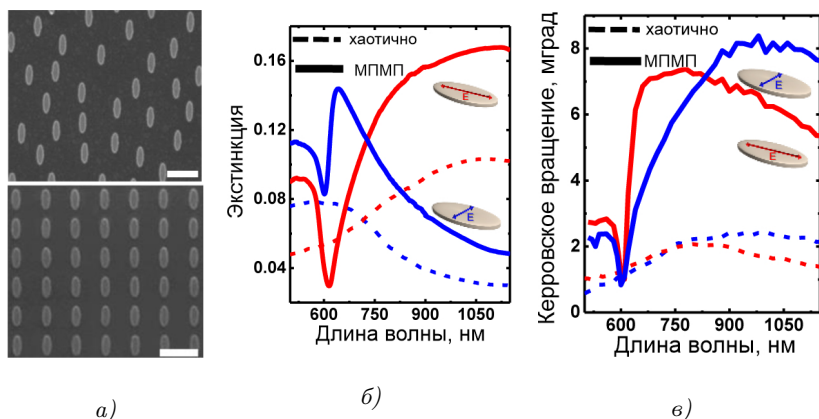


Рис. 1.29: а) - Растровая электронная микроскопия поверхности, покрытой хаотично расположенными никелевыми нанодисками, и квадратный массив нанодисков с периодом 400 нм (МППМ); фактор заполнения одинаков для двух образцов; толщина диска 30 нм, радиус большей полуоси 125 нм, радиус меньшей полуоси 50 нм. б) - Спектры экстинкции для МППМ и хаотично структурированных нанодисков при нормальном падении, красные линии соответствуют поляризации вдоль большей полуоси, синие - вдоль меньшей. в) - Спектры Керровского вращения для МППМ и хаотично структурированных нанодисков [120].

МППМ при возбуждении ПРР демонстрирует гораздо большие значения полярного эффекта Керра (рис. 1.29 б). Максимумы в спектрах эффекта Керра соответствуют максимумам в спектрах экстинкции, но для перпендикулярной поляризации. Эффект Керра в полярной ориентации можно рассматривать как появление новой волны за счет спин-орбитального взаимодействия с поляризацией, перпендикулярной к исходной. Такая волна тоже будет возбуждать ЛП и ПРР, причем амплитуда этой волны определяется поляризуемостью наночастиц. Поэтому оптические свойства определяются полуосью, параллельной исходной поляризации, а магнито-оптические - перпендикулярной.

Пространственное упорядочение наночастиц из благородных металлов, помещенных в магнитный диэлектрик, позволяет еще сильнее увеличить добротность резонансов. В работах [119, 121] экспериментально и численно исследовались МПМП на основе золотых наносфер, помещенных на кварцевую подложку и покрытых слоем Bi:YIG. Квадратный массив из золотых нанодисков формировался из золотой пленки при помощи метода электронно-лучевой литографии, после чего создавались сферы и наносился слой Bi:YIG, аналогично статье [118]. Радиус сфер составлял 55 нм, период 600 нм, толщина слоя Bi:YIG 95 нм, слой диэлектрика над золотыми сферами образовывал полусферы с радиусом 80 нм. Наличие трех областей с различными показателями преломления открывает большие возможности для управления оптическим откликом структуры. Аномалии Рэлея в слоях определяются выражением:

$$(\sin\theta\sin\psi/n + \frac{m_x\lambda}{dn})^2 + (\sin\theta\cos\psi/n + \frac{m_y\lambda}{dn})^2 = 1, \quad (1.27)$$

где θ - угол падения на образец, ψ - азимутальный угол, n - показатель преломления слоя, m_x и m_y - целые числа. Хотя исчезновение дифракционных порядков в отражении и пропускании соответствуют $n = 1$ (исчезновение порядков в воздухе), возбуждение ПРР связано с исчезновением дифракционных порядков внутри слоев Bi:YIG и кварца. Это позволяет эффективно управлять резонансами при помощи угла падения и азимутального угла. На рисунках 1.30 а) и б) показаны спектры пропускания для разных углов падения и азимутальных углов.

Особенности в спектрах пропускания существенно меняются с углом и следуют за аномалиями Рэлея. Особенность на длине волны 820 нм. при нормальном падении обусловлена возбуждением ПРР, связанного с дипольным ЛП и аномалией Рэлея в кварце для $(\pm 1, 0)$ порядков. Особенность на длине волны 675 нм. обусловлена возбуждением ПРР, свя-

занного с исчезновением $(\pm 2, 0)$ порядков в Bi:YIG и квадрупольным ЛП. При увеличении угла падения, ПРР следуют за $(\pm 1, 0)$ порядками в кварце и за $(-2, 0)$ порядком в Bi:YIG. Аналогично при угле падения 20° и изменении азимутального угла.

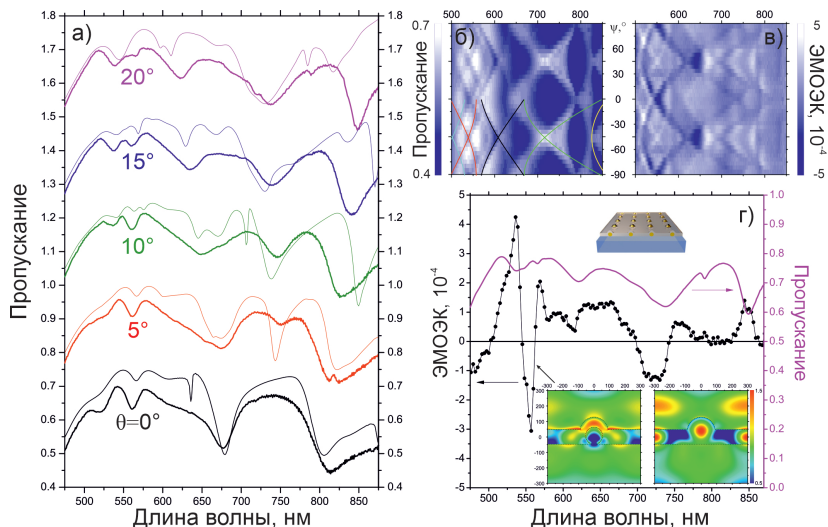


Рис. 1.30: а) - Рассчитанные (тонкие линии) и полученные экспериментально (толстые линии) спектры пропускания для разных углов падения θ от МПМП на основе золотых наносфер с радиусом 55 нм, покрытых слоем Bi:YIG толщиной 95 нм. б) - Рассчитанные спектры пропускания и ЭМОЭК для различных азимутальных углов ψ , зелеными линиями показаны $(0, \pm 1)$ дифракционные порядки в SiO₂, желтыми - $(0, \pm 1)$, черными - $(-2, 0)$, красными - $(0, \pm 3)$ и голубыми - $(3, 0)$ порядки в Bi:YIG. в) - Спектры ЭМОЭК и пропускания для угла падения 20° , во вложениях: сверху - схематичное изображение образца, снизу - распределение модуля напряженности электрического поля на длине волны 550 нм при наличии и отсутствии золотых сфер [119, 121].

Были измерены спектры МОЭК в экваториальной геометрии при угле падения 20° (рис. 1.30 в) и г). Наблюдается усиление эффекта Керра вблизи возбуждения ПРР, однако наибольшие значения эффект принимает в той области, где не

наблюдается выраженных резонансов в спектре пропускания (550 нм при нулевом азимутальном угле). Расчеты ближнего поля (вложение рис. 1.30 г) показали, что в этой области поле преимущественно локализуется вдоль слоя Bi:YIG и в диэлектрических полусферах над золотыми сферами. Авторами было предположено, что данный резонанс является квази-волноводной модой, распространяющей вдоль слоя граната. Чтобы убедиться в этом, в численных расчетах были удалены золотые сферы, но диэлектрические сферы были оставлены на месте. Оказалось, электрическое поле на той же длине волны также концентрируется внутри полусфер и слоя Bi:YIG, что подтверждает предположение о связи этой моды именно со свойствами и геометрией Bi:YIG.

Благодаря вихревой конфигурации электрического поля при возбуждении ППП, такие моды оказываются особенно чувствительны к недиагональным компонентам тензора диэлектрической проницаемости в экваториальной геометрии. Теоретически было показано [122], что при падении p -поляризованного света на МПК, состоящий из слоя ферромагнитного диэлектрика, покрытого периодически расположенными металлическими полосами, центральная длина волны ППП сдвигается под действием магнитного поля в экваториальной геометрии. Закон дисперсии ППП для гетероструктуры намагниченный диэлектрик-металл-воздух имеет трансцендентный вид:

$$\eta_1(\eta_0 + \eta_2 - gk_{spp}/\varepsilon_2^2) + [\eta_0(\eta_2 - gk_{spp}/\varepsilon_2^2) + \eta_1^2] \tanh(\gamma_1 d) = 0,$$

где $\eta_i = \gamma_i/\varepsilon_i$, $\gamma_{0,1} = \sqrt{k_{spp}^2 - \varepsilon_{0,1}k_0^2}$, $\gamma_2 = \sqrt{k_{spp}^2 - \varepsilon_2k_0^2 + k_0^2g^2/\varepsilon_2}$, $k_0 = \omega/c$, k_{spp} - волновой вектор ППП, ε_0 - диэлектрическая проницаемость внешней среды, ε_1 - диэлектрическая проницаемость металла, ε - диэлектрическая проницаемость диэлектрика, g - константа гирации диэлектрика. Возбуждающийся при таких условиях ППП называется магнитоплазмоном [122].

Если толщина металлического слоя превышает несколько десятков нанометров, то плазмоны на границе воздух-металл

и диэлектрик-металл становятся независимыми, $\gamma_1 d \rightarrow \infty$, и закон дисперсии становится линейным относительно g и преобразуется в

$$k_{spp} = \kappa_0(1 + \alpha g), \quad (1.28)$$

где $\kappa_0 = k_0[\varepsilon_1\varepsilon_2/(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)]^{1/2}$, $\alpha = (-\varepsilon_1\varepsilon_2)^{-1/2}(1 - \varepsilon_2^2/\varepsilon_1^2)^{-1}$.

Закон дисперсии для случая решетки будет отличаться от предыдущего. Но если толщина металлического слоя превышает глубину скин-слоя и расстояние между полосами много меньше длины волны ППП, различие несущественно. Объединяя уравнение 1.28 и условие фазового синхронизма 1.12, выражение для сдвига центральной длины волны плазмонного резонанса принимает вид:

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} = \frac{\kappa_0\alpha}{nG}g, \quad (1.29)$$

где G - вектор обратной решетки, n - порядок ППП. Сдвиг аномалии Вуда обеспечивает усиление ЭМОЭК и асимметричный вид резонанса, т.к. величина сдвига линейна относительно g . Более того, т.к. знак сдвига зависит от порядка ППП, резонансы ЭМОЭК для $+1$ и -1 порядков будут зеркально отражены. В рамках модели Друде выражение для сдвига преобразуется в $\Delta\lambda = g d \omega / n \omega_p$, где ω_p - плазменная частота, $\omega_p \gg \omega$.

Теоретические зависимости были проиллюстрированы моделированием частотно-угловой зависимости спектров коэффициента отражения $R(\lambda, \theta)$ для перфорированной металлической решетки с периодом $d = 480$ нм. Из спектра можно выделить три характерных угла падения, определяющие относительное спектральное положение ППП разных порядков. Первый - $\theta = 20^\circ$, $+1$ и -2 порядки ППП спектрально разнесены (рис. 1.31 а), в этом случае возникают два асимметричных резонанса в спектре ЭМОЭК, имеющих схожую, но зеркально отраженную форму. Второй - $\theta = 28^\circ$, $+1$ и -2 порядки возбуждаются на близких длинах волн (рис. 1.31 б), образуется один

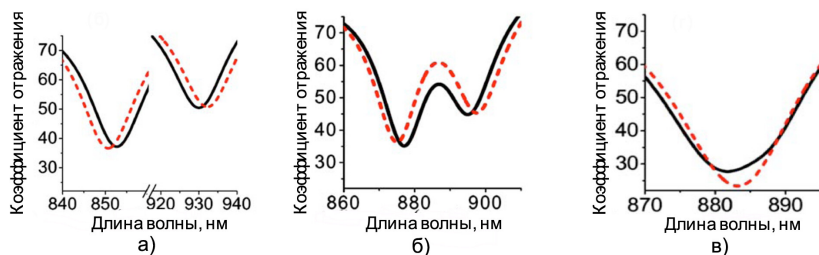


Рис. 1.31: Рассчитанный спектр отражения МПК при углах а) 20° , б) 28° , в) 30°
сплошная кривая соответствует $R(M)$, пунктирная - $R(-M)$ [122].

широкий симметричный резонанс в спектре ЭМОЭК. В третьем случае ППП разных порядков и бегущие в разные стороны гибридизуются (рис. 1.31 в). Это приводит к возбуждению стоячих ППП, в следствии чего минимумы спектров отражения $R(M)$ и $R(-M)$ будут иметь разную глубину, но исчезнет сдвиг между ними.

Экспериментальное исследование подобного гетероструктурного МПК представлено в работе [109]. В качестве образца использовалась висмутсодержащая феррит-гранатовая пленка, покрытая полосами из золота (рис. 1.32 а). Высота полос $h = 120$ нм, ширина щелей $a = 110$ нм, период решетки $d = 595$ нм. В работе был произведен численный расчет, показавший, что в случае отсутствия полос из золота на ферромагнитном диэлектрике величина эффекта составляет $\delta \approx 10^{-5}$. В случае напыления золотой пленки на ферромагнитный диэлектрик величина эффекта в области возбуждения ППП повышалась до $\delta \approx 5 \times 10^{-3}$. Перфорация золотой пленки увеличивала максимальную величина ЭМОЭК в области возбуждения ППП до $\delta \approx 1,5 \times 10^{-2}$.

В работе был измерен спектр пропускания ЭМОЭК при угле падения $\theta = 0^\circ$ (рис. 1.32 б), что показало отсутствие эффекта при нормальном падении, но при небольшом угле падения $\theta = 0,8^\circ$ в спектре ЭМОЭК наблюдалось резкое возрас-

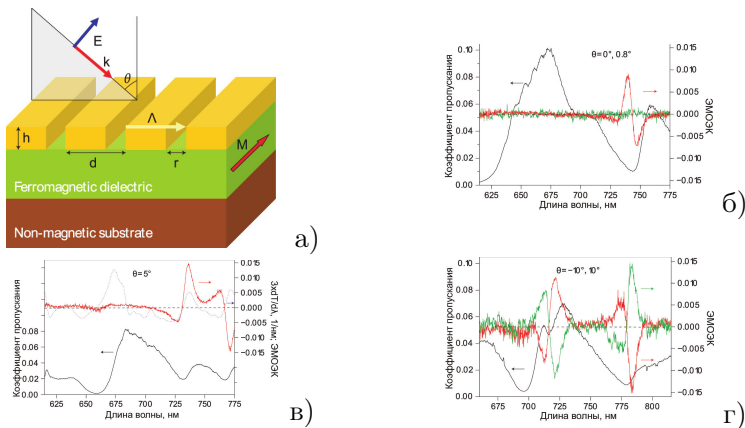


Рис. 1.32: а) - Схематичное изображение образца, б) - спектр коэффициента пропускания (черная кривая) и спектр ЭМОЭК для р-поляризованного света при углах падения $\theta = 0^\circ$ (зеленая кривая) и $\theta = 0,8^\circ$ (красная кривая), в) - спектр коэффициента пропускания (черная кривая), спектр ЭМОЭК (красная кривая) для р-поляризованного света при угле падения $\theta = 5^\circ$ и утроенная производная коэффициента пропускания по длине волны $3 \times dT/d\lambda$ (синяя кривая), г) - спектр коэффициента пропускания (черная кривая) и спектр ЭМОЭК для р-поляризованного света при углах падения $\theta = 10^\circ$ (зеленая кривая) и $\theta = -10^\circ$ (красная кривая) [109].

тание эффекта в области возбуждения возбуждении ППП.

На примере спектров коэффициента пропускания и ЭМОЭК для угла падения $\theta = 5^\circ$ (рис. 1.32 в) показано, что спектральное положение экстремумов ЭМОЭК не всегда совпадает с центральной длиной волны возбуждения ППП, но соответствует максимумам и минимумам производной коэффициента пропускания от длины волны $dT/d\lambda$.

Так же в работе были получены спектры коэффициентов пропускания и ЭМОЭК для углов $\theta = \pm 10^\circ$ (рис. 1.32 г). В этом случае для обоих углов наблюдались две зеркальных области усиления ЭМОЭК в окрестности возбуждения ППП $m = -1$ ($\lambda = 715$ нм) и $m = +1$ ($\lambda = 778$ нм) порядков.

Экспериментальное усиление ЭМОЭК также было проде-

монстрировано в более простых структурах, состоящих из одного ферромагнитного металла. В работах [71,72] исследовался МПК, изготовленный из никелевой пленки толщиной $h \approx 100$ нм, размещенной на полимерном субстрате и имеющей одномерный пространственный профиль в виде меандра с периодом $d \approx 320$ нм и глубиной $a \approx 50$ нм (рис. 1.33 а).

ЭМОЭК измерялся при угле падения $\theta = 68^\circ$, азимутальном угле $\psi = 0^\circ$ и магнитном поле $H = 1,5$ кЭ (рис. 1.33 б). Для p -поляризованного света наблюдалось резонансное усиление ЭМОЭК в спектральной окрестности возбуждения ППП –1 порядка. Усиление составляло примерно один порядок относительно гладкой никелевой пленки. Спектр ЭМОЭК имеет асимметричный резонанс и меняет знак в спектральной окрестности минимума в спектре коэффициента отражения. Для s -поляризованного света усиление не наблюдалось.

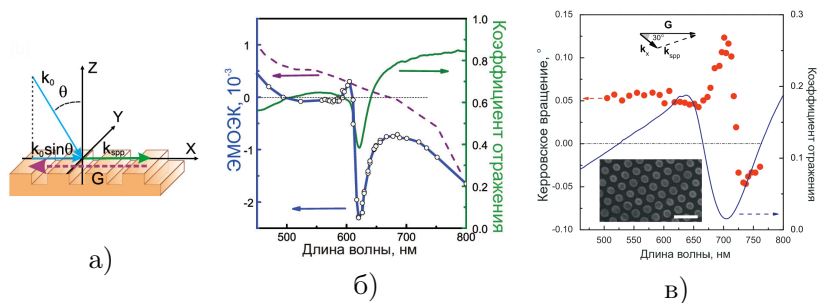


Рис. 1.33: а) - Схематичное изображение одномерного никелевого МПК, б) - синяя кривая - спектр ЭМОЭК для p -поляризованного света при угле падения $\theta = 68^\circ$, пунктирная кривая - спектр ЭМОЭК для s -поляризованного света, зеленая кривая - спектр коэффициента отражения [71], в) - спектр отражения и спектр меридионального МОЭК для двумерного МПК, вставка - растровая электронная микроскопия двумерного МПК [72].

В работе [72] также был исследован двумерный МПК на основе никеля (рис. 1.33 б). МПК состоял из никелевых дисков, образующих гексагональную решетку, помещенных на никелевую подложку толщиной 500 мкм, высота дисков состав-

ляла 50 нм, диаметр - 250 нм, расстояние между ближайшими центрами дисков - 465 нм. Плоскость падения света была направлена между векторами обратной решетки под углом 30° к каждому, угол падения составлял 45° , величина магнитного поля составляла 3 кЭ. В спектре отражения для p -поляризованного света наблюдался минимум, ассоциируемый с аномалией Вуда, при длине волны 700 нм. В спектре меридионального МОЭК наблюдался резонанс типа Фано в окрестности 700 нм и меняющий знак в спектральной вблизи аномалии Вуда, максимальный угол поворота плоскости поляризации составлял $0,15^\circ$.

5. Сверхбыстрое размагничивание

Воздействие фемтосекундным лазерным импульсом на магнитную систему приводит не только к сверхбыстрому нагреву, но и изменению состояния намагниченности. В работе [4] был впервые экспериментально продемонстрирован эффект сверхбыстрого размагничивания ферромагнитного металла под действием лазерного импульса. Исследовалась оптически тонкая пленка никеля толщиной 22 нм методом зонд-накачка. Использовался лазер на красителях с длиной волны 620 нм, длительностью импульсов 60 фс и частотой следования 5 кГц, плотность энергии пучка накачки составляла 7 мДж/см^2 . Были измерены дифференциальное пропускание $\Delta T/T$ и меридиональный эффект Керра в зависимости от времени задержки, для каждой задержки были получены петли гистерезиса с помощью измерения меридионального МОЭК в переменном магнитном поле, наиболее выраженную зависимость от времени задержки имела остаточная намагниченность (рис. 1.34 а). Наблюдаемое явление связали с взаимодействием электронной и фононной подсистем со спиновой подсистемой на субпикосекундном временном диапазоне. Для численного описания динамики спиновой подсистемы двухтемпературная модель (1.16) была расширена до феноменологической трехтемпературной:

$$\begin{cases} C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \chi \nabla^2 T_e + G_{ep}(T_p - T_e) + G_{es}(T_s - T_e) + P(t), \\ C_p(T_p) \frac{\partial T_p}{\partial t} = G_{ep}(T_e - T_p) + G_{ps}(T_s - T_p), \\ C_s(T_s) \frac{\partial T_s}{\partial t} = G_{es}(T_e - T_s) + G_{ps}(T_p - T_s), \end{cases} \quad (1.30)$$

в которой третью “спиновую” температуру T_s связали с состоянием намагниченности никеля, G_{ps}, G_{es} и $C_s(T_s)$ - константы спин-фононного, спин-электронного взаимодействия и теплоемкость спиновой подсистемы.

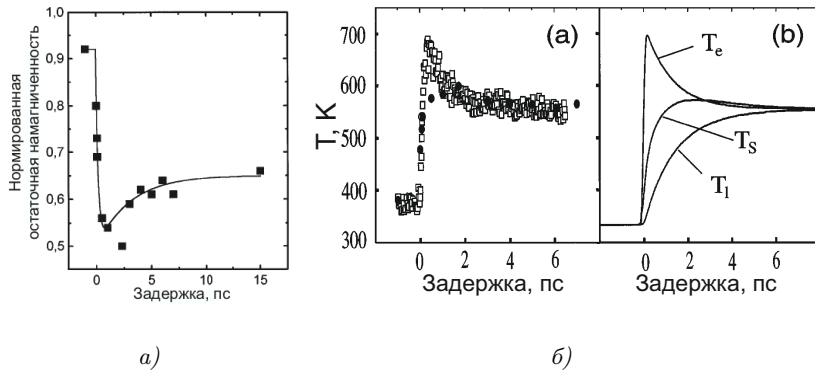


Рис. 1.34: Рис 16: а) Зависимость остаточной намагниченности, нормированной на значение в отсутствии пучка накачки, от задержки; б) экспериментально полученные температуры электронной (белые квадраты) и спиновой (черные круги) подсистем - (а), численное решение системы 1.30 - (б) [4].

Из значений остаточной намагниченности была получена зависимость температуры спиновой подсистемы T_s от задержки (рис. 1.34 б). Считая, что температура электронной подсистемы T_e при больших временах равна T_s , и дифференциальное пропускание $\Delta T/T$ пропорционально изменению температуры ΔT_e , была найдена зависимость T_e от времени за-

держки (рис. 1.34 б). Время электронной термализации составляло $\tau_{ee} \approx 260$ фс, при этой задержке достигалась максимальная температура электронного газа $T_e = 675$ К, далее температура экспоненциально убывала с характерным временем порядка 1 пс за счет электрон-фононной релаксации, достигнув значения 550 К, после чего электронный газ достигал равновесия с решеткой, и температура медленно убывала за счет фонон-фононной релаксации. Максимум температуры спиновой подсистемы отставал от максимума T_e , достигался при задержке 2 пс и составлял 580 К, далее T_s была близка к T_e . Решение системы 1.30 наилучшим образом аппроксимировало T_e и T_s при выборе значений коэффициентов $G_{el} = 8 \times 10^{17} \frac{\text{Вт}}{\text{К м}^3}$, $G_{es} = 6 \times 10^{17} \frac{\text{Вт}}{\text{К м}^3}$, $G_{sl} = 0.3 \times 10^{17} \frac{\text{Вт}}{\text{К м}^3}$ (рис. 1.34 б).

Трехтемпературная модель активно развивалась и применялась для описания сверхбыстрой динамики намагниченности в различных ферромагнитных системах [123–127], однако она является, скорее, феноменологической. В работе [14] представлена более фундаментальная микроскопическая трехтемпературная модель, в которой макроскопическая намагниченность описывается с помощью усреднения микроскопических спинов. За счет спин-орбитального взаимодействия при рассеянии на фононе электрон имеет вероятность перевернуть свой спин с вероятностью a_{sfp} (spin-flip probability) и передать угловой момент фонону (рис. 1.35 а). Данный процесс называют рассеянием Эллиотта-Яфета. На основе этого механизма и исходя из первопринципов была построена система трех связанных дифференциальных уравнений:

$$\begin{cases} \gamma T_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \chi \nabla^2 T_e + G(T_p - T_e), \\ C_p \frac{\partial T_p}{\partial t} = G(T_e - T_p), \\ \frac{dm}{dt} = Rm \frac{T_p}{T_K} \left(1 - m \coth \left(\frac{m T_K}{T_e} \right) \right), \end{cases} \quad (1.31)$$

где $m = M(t)/M_s$, $M(t)$ - намагниченность в момент времени t , M_s - намагниченность при 0K, T_K - температура Кюри, R - скорость размагничивания

$$R = \frac{8a_{spf}Gk_B T_K V_{at}}{\mu_{at}\mu_B E_D^2}$$

V_{at} - объем атома, μ_{at} - магнитный момент атома, μ_B - магнетон Бора, E_D - энергия Дебая. Параметр a_{spf} является варьируемым. В этой модели, в отличие от трехтемпературной (1.30), сохраняется полный орбитальный момент системы. Но все так же не учитываются неравновесные высокоэнергетические электроны, электронный газ считается все время термализованным.

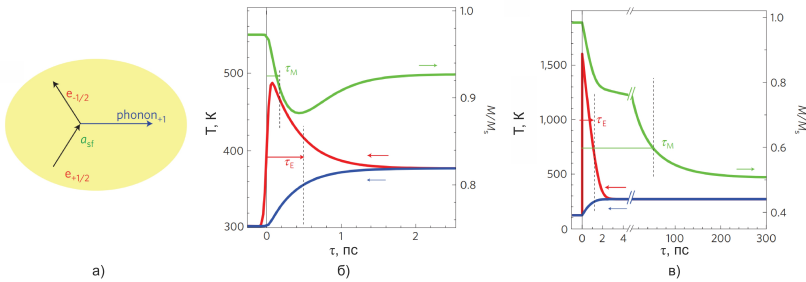


Рис. 1.35: а) - Качественное изображение рассеяния Эллиотта-Яфета; б) - расчет динамики намагниченности (зеленая линия), электронной (красная линия) и фононной (синяя линия) температур с помощью системы уравнений 1.31 для никеля, случай одноступенчатого размагничивания; в) - аналогичные зависимости для гадолиния, случай двухступенчатого размагничивания [14].

У данной системы есть два характерных решения. В одном случае размагничивание происходит в один шаг: система успевает размагнититься за время электрон-фононной релаксации, тогда намагниченность падает до минимального значения, пока электроны горячие, и намагниченность восстанавливается во время остывания электронов. В другом случае размагничи-

вание происходит в два шага: система не успевает размагнититься за время электрон-фононной релаксации, намагниченность продолжает падать после выравнивания электронной и фононной температур. Грубо эти два случая можно разделить как $R\tau_{ep} \gg 1$ и $R\tau_{ep} \ll 1$, однако поведение решения также сложным образом зависит от плотности энергии фемтосекундного импульса и начальной температуры. Первый случай выполняется для никеля (рис. 1.35 б), а второй - для гадолиния (рис. 1.35 в). В отличие от переходных $3d$ металлов, таких как Ni и Co, Gd является лантаноидом, его магнитные свойства определяются полузаполненной $4f$ оболочкой, в результате чего его атомный магнитный момент на порядок больше, чем в никеле. При этом остальные константы, определяющие скорость размагничивания R , близки. Это приводит к качественно разной динамике намагниченности под действием импульса накачки.

В ферромагнитных диэлектриках при увеличении температуры ключевым эффектом, помимо размагничивания [128], является изменение параметров магнитной анизотропии, вызывающее прецессию намагниченности [12, 13, 129]. Также фемтосекундный импульс может менять состояние намагниченности вещества путем взаимодействия собственного орбитального момента фотона со спином электрона, такие явления называют обратными оптомагнитными эффектами [130–133].

Наноструктурирование позволяет увеличить эффективность размагничивания [20, 32] и локально управлять оптически индуцированной магнитной динамикой [134–136]. В работе [137] представлен пример магнитоплазмонной метаповерхности, поддерживающей различные режимы размагничивания в зависимости от возбуждаемой плазмонной моды импульсом накачки. Образец представлял собой прямоугольный массив конусообразных золотых частиц, вершины которых покрыты дисками из $\text{Tb}_{18}\text{Co}_{82}$. Состав сплава обеспечивал высокую перпендикулярную магнитную анизотропию, имея при этом невысокую коэрцитивную силу. Наноконусы были расположены в массив

с двумя периодами $d_l = 340$ нм и $d_{s+l} = 425$ нм. При облучении метаповерхности p -поляризованным излучением и ориентацией волнового вектора вдоль оси с периодом d_l возбуждался локализованный плазмонный резонанс на длине волны 760 нм. При p -поляризации и ориентации волнового вектора вдоль оси с периодом d_{s+l} ЛПП гибридизовывался с решеточной плазмонной модой, при света падении на образец под углом 10° ЛПП находился на длине волны 720 нм, ПРР - на 650 нм.

В экспериментах использовались импульсы накачки с длинами волн вблизи возбуждения ЛПП (720 нм) и вдали от него (630 нм), на образец импульсы падали под углом падения 10° вдоль одной из осей периодичности и вызывали размагничивание. Состояние намагниченности детектировалось с помощью измерения полярного эффекта Керра зондовым импульсом с длиной волны 800 нм, падающим под нормалью и ориентацией поляризации вдоль оси с периодом d_{s+l} . Были измерены зависимости намагниченности нанодисков и коэффициента пропускания от времени для двух длин волн и двух направлений волнового вектора (рис. 1.36). TbCo демонстрировал двухступенчатое размагничивание (вложение, рис. 1.36). В первой фазе в течение первых 10 пс намагниченность падала и восстанавливалась, качественно повторяя динамику дифференциального пропускания, во второй фазе на масштабах десятков пс намагниченность снова падала.

При обеих ориентациях волнового вектора импульс накачки, возбуждающий ЛПП, примерно в 3 раза сильнее размагничивал образец, чем импульс накачки спектрально удаленный от ЛПП. Однако в случае ориентации волнового вектора, приводящей к гибридизации ЛПП и ПРР, размагничивание было в два раза менее эффективным, чем при ориентации, поддерживающей только ЛПП. Это верно для резонансной и нерезонансной длин волн импульса накачки. При этом коэффициент пропускания на длинах волн импульса накачки во втором случае был выше. Значения дифференциального пропускания для двух случаев были близки. Авторы связывают разную эффектив-

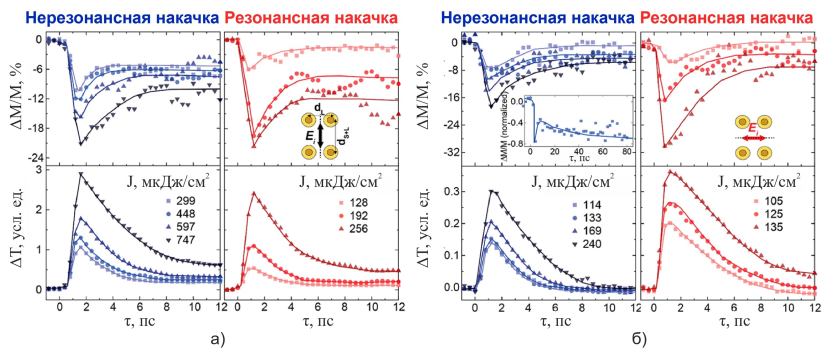


Рис. 1.36: Зависимости намагниченности (верхний ряд) и коэффициента пропускания (нижний ряд) от времени для двух длин волн импульса накачки и ориентацией волнового вектора вдоль оси с периодами d_{s+1} (а) и d_s (б) для различных плотностей энергии импульса накачки; во вложениях изображены ориентации электрического поля импульса накачки относительно метаповерхности и динамика намагниченности на временном масштабе десятков пс [137].

ность размагничивания с отличием локализации ЛП и ПРР: локализованные плазмоны возбуждаются в уединенных наноконусах, электромагнитная энергия сконцентрирована вблизи поверхности, металла, в то время как решеточная мода локализована в пространстве между наночастицами. В результате, при возбуждении ЛП нанодиски TbCo нагреваются сильнее, чем в случае гибридизации ЛП и ПРР.

Долгое время после открытия сверхбыстрого размагничивания велись споры о природе этого явления и роли изменения оптических свойств в нем [138]. В статье [139] показано, что прямое соответствие между магнитооптическим откликом и состоянием намагниченности может нарушаться на временных масштабах порядка 10 фс. В работе [140] было исследовано влияние конечной толщины пленки никеля на сверхбыстрое размагничивание. С другой стороны, и в стационарном случае величина и знак магнитооптических эффектов определяются не только вектором намагниченности, существенную роль иг-

рает толщина пленок [107,141,142]. В случае наноструктурированных поверхностей сложная знакопеременная форма спектров магнитооптических эффектов определяется геометрией поверхности, поэтому неоднородный нагрев может менять магнитооптический отклик плазмонных метаповерхностей нетривиальным образом.

6. Постановка задачи

Лазерный нагрев металлов на субпикосекундном временном масштабе и оптических индуцированное размагничивание исследуются несколько десятков лет и широко изучен в объемных материалах и тонких пленках. В металлических наноструктурах возбуждение поверхностных плазмонов долгое время использовалось для увеличения эффективности воздействия лазерного излучения на металл или как способ более чувствительного детектирования состояния среды. Однако в последние несколько лет активно исследуется влияние наноструктурирования на динамику сверхбыстрых процессов. В связи с этим в рамках диссертационной работы были поставлены следующие задачи:

1. Исследование лазерно-индуцированной субпикосекундной динамики коэффициента пропускания гибридной плазмонной метаповерхности на основе золотых наносфер, покрытых слоем висмут-замещенного железо-иттриевого граната.
2. Изучение влияния пространственного профиля одномерного никелевого плазмонного кристалла на динамику коэффициента отражения при нерезонансном фемтосекундном нагреве.
3. Сравнение динамики экваториального магнитооптического эффекта Керра при сверхбыстром размагничивании в окрестности резонансов бегущих и стоячих поверхностных плазмонов.

Глава II

Субпикосекундная динамика оптического отклика металл-диэлектрической метаповерхности

Вторая глава посвящена исследованию лазерно-индуцированной суб- и пикосекундной динамики оптического отклика в спектральной окрестности плазмонных и волноводных резонансов металл-диэлектрической метаповерхности на основе золотых наносфер, помещенных в слой висмут-замещенного железо-иттриевого граната. Исследование проводилось методом спектроскопии с временным разрешением “зонд-накачка”.

1. Геометрические параметры исследуемой металл-диэлектрической метаповерхности и метод изготовления

В качестве исследуемого образца была выбрана магнитоплазмонная метаповерхность, использованная в работах [119, 121]. Схематическое изображение образца и изображение, полученное с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ), представлены на рисунке 2.1. Образец является двумерной квадратной решеткой из золотых наносфер, покрытых слоем висмут-замещенного железо-иттриевого граната (Bi:YIG). Периодически расположенные нанодиски были образованы на кварцевой подложке методом электронно-лучевой литографии. Далее нанодиски обжигались при температуре 950°C в течение 10 минут и расплавлились, формируя сферообразные капли. Слой Bi:YIG помещался поверх наносфер с помощью магнетронного напыления и обжигался при температуре 750°C в течение 15 минут для кристаллизации. Радиус золотых наносфер $R = 55$ нм, период решетки в обоих направлениях $d = 600$ нм, толщина слоя Bi:YIG $H = 95$ нм, над сферами слой ферромагнетика формирует полусферы высотой $h = 80$ нм.

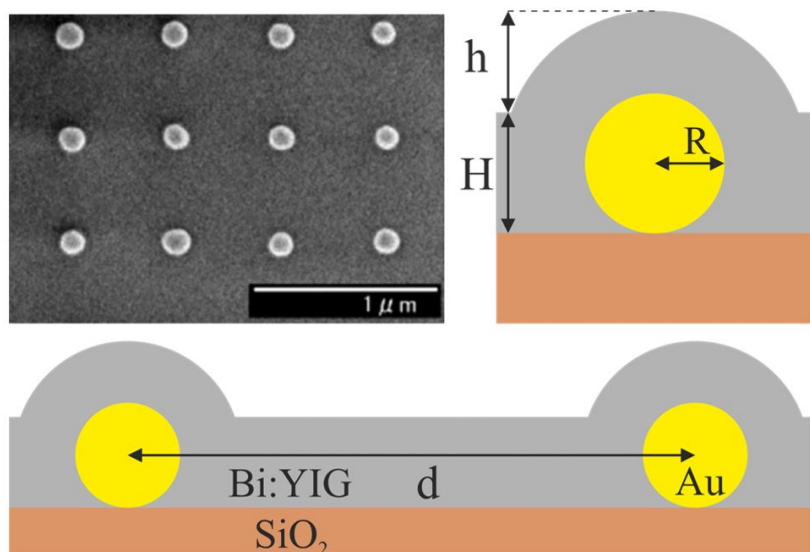


Рис. 2.1: Изображение образца, полученное при помощи РЭМ [119] и схематичное изображение образца, вид сбоку.

2. Расчет спектров пропускания металл-диэлектрической метаповерхности и распределения ближнего поля на длинах волн возбуждаемых электромагнитных мод

Перед исследованием сверхбыстрой динамики сначала необходимо исследовать электромагнитные моды, которые способны поддерживать образец. Это исследование было проведено численно в программном пакете COMSOL Multiphysics. На рисунке 2.2 а) показан спектр пропускания образца при нормальном падении (волновой вектор направлен вдоль оси z) и ориентации поляризации вдоль оси периодичности (напряженность электрического поля направлена вдоль оси x), взаимная ориентация координатных осей и образца показана на рисунке 2.2 б). Полученная форма линии близка к спектру, представленному в [121]. Наблюдаются провалы на длинах волн

870 нм, 800 нм, 670 нм, 630 нм и 560 нм.

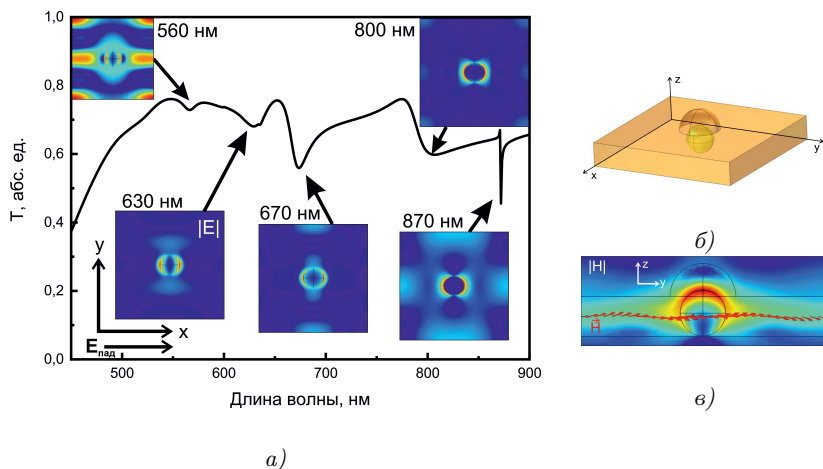


Рис. 2.2: а) - Расчетный спектр пропускания образца при нормальном падении, свет линейно поляризован вдоль одной из осей периодичности (ось x); вложения - распределения модуля напряженности электрического поля в плоскости xy , проходящей через середину толщины пленки, на длинах волн провалов в спектре; б) - взаимная ориентация координатных осей и элементарной ячейки образца; в) распределение модуля магнитной индукции на длине волн 560 нм, красными линиями показаны направления векторов магнитной индукции.

На вложениях рисунке 2.2 а) изображены распределения модуля напряженности электрического поля в плоскости xy , проходящей через середину пленки по оси z . На длинах волн 870 нм и 800 нм наблюдаются характерные для дипольного ЛП распределения поля. При этом, согласно формуле (1.27), на длине волны 870 исчезают ± 1 дифракционные порядки в кварце, что создает возможность для возбуждения ПРР. Наличие двух резонансов с существенно разной добротностью объясняется тем, что величина $Re[1/\alpha(\lambda)]$ в формуле (1.5) может дважды пересекать зависимость дипольной суммы от длины волны $Re[S(\lambda)]$, обнуляя действительную часть знаменателя [61]. При этом пересечение на больших длинах волн будет приво-

дить к меньшему значению мнимой части поляризуемости и большей добротности.

Распределения электрического поля на длинах волн 670 нм и 630 нм имеют дополнительные пучности вдоль оси y , что соответствует возбуждению квадрупольного ЛП. Эти два провала могут соответствовать возбуждению квадрупольных ППР, связанных с исчезновением дифракционных порядков в Bi:YIG ($\pm 2, 0$) на длине волны 690 нм и ($\pm 2, \pm 1$) на длине волны 640 нм.

Распределение поля на длине волны 560 нм показывает, что эта мода локализована не вокруг золотой сферы, а внутри слоя граната. На рисунке 2.2 в) показано распределение индукции магнитного поля в плоскости zy , проходящей через середину элементарной ячейки по оси x и направления векторов магнитной индукции. Вектор магнитной индукции несколько раз меняет знак проекции на ось z , в то время как напряженность электрического поля направлена вдоль оси x почти во всем объеме пленки. Это можно интерпретировать как переотражение волны от границ раздела Bi:YIG -воздух и Bi:YIG -кварц, поляризованной вдоль оси x . Иначе говоря, это можно рассматривать как волноводное распространение волны в слое граната. Волноводные моды появляются при выполнении условия [143]:

$$\phi = 2dk_z - \phi_{\text{Bi:YIG-воздух}} - \phi_{\text{Bi:YIG-кварц}} = 2\pi n, \quad (2.1)$$

где d - толщина пленки, k_z - проекция волнового вектора в среде на ось z , $\phi_{\text{Bi:YIG-воздух}}$ и $\phi_{\text{Bi:YIG-кварц}}$ - задержки по фазе при отражении от границ Bi:YIG -воздух и Bi:YIG -кварц. Такие моды могут появиться при углах падения, больших угла полного внутреннего отражения. Однако в случае планарного волновода волноводные моды являются безызлучательными, поэтому их нельзя возбудить с помощью плоской волны. В случае метаповерхности это возможно благодаря дифракции: угол отражения дифракционного порядка всегда отлича-

ется от угла падения и может оказаться больше угла полного внутреннего отражения. При выполнении условия 2.1 такой дифракционный порядок не покидает пленку граната после переотражений. Возможен и обратный процесс, распространяющиеся волноводные моды могут когерентно рассеиваться в дальнюю зону на периодических неоднородностях, мода становится излучательной, поэтому волноводные моды в метаповерхностях называют квазиволноводными модами (КВМ). При нормальном угле падения условие 2.1 выполняется для дифракционного порядка $(0, \pm 2)$ при длине волны 550 нм для $n=1$ и s -поляризации, что соответствует основной моде TE_0 , что подтверждается (рис. 2.2 в) наличием одной пучности в пленке. Отличие длин волн возбуждения вызвано наличием сфер золота и граната, вызывающие отклонение от планарной геометрии и дополнительный сдвиг по фазе.

При изменении угла падения аномалии Рэлея смещаются по длине волны, следовательно, смещаются вместе с ними и решеточные электромагнитные моды. На рис. 2.3 показан расчетный спектр отражения при угле падения 20° , плоскость падения находится в плоскости xu , волна имеет p -поляризацию. Во вложениях показаны распределения модуля напряженности электрического поля на длинах волн провалов, наблюдаются картины, аналогичные нормальному падению. Распределения на длинах волн 840 нм и 730 нм характерны для возбуждения дипольного ЛП, ПРР возбуждаются благодаря аномалиям Рэлея на 800 нм и 715 нм для $(-2, 0)$ и $(-2, \pm 1)$ порядков в гранате, соответственно. На длинах волн 665 нм и 630 нм наблюдаются квадрупольные распределения, ПРР возникают при исчезновении $(+1, 0)$ порядка в кварце на 665 нм и $(+2, 0)$ порядка в $Bi:YIG$ на 620 нм. Провал на 540 нм аналогичен провалу на 560 нм при нормальном падении - квазиволноводной моде TE_0 , возникающей от $(0, \pm 2)$ порядка в $Bi:YIG$. На длине волны 560 нм есть схожий провал, однако теперь модуль магнитной индукции направлен вдоль оси y , а проекция вектора напряженности электрического поля на ось z меняет знак

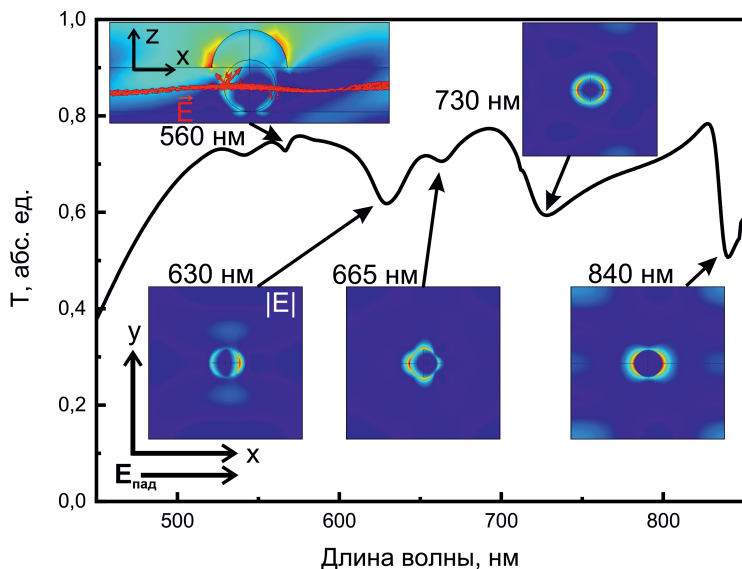


Рис. 2.3: Расчетный спектр пропускания образца при угле падения 20° , свет имеет р-поляризацию, плоскость падения совпадает с плоскостью xz ; вложения - распределения модуля напряженности электрического поля в плоскости xz , проходящей через середину толщины пленки, на длинах волн провалов в спектре, в верхнем левом углу - распределение модуля напряженности электрического поля в плоскости xz на длине волны 560 нм, красными линиями показаны направления векторов напряженности электрического поля.

(вложение, рис. 2.3). Это соответствует квазиволноводной моде TM_0 . Условие 2.1 для такой поляризации, угла падения 20° и дифракционного порядка $(2,0)$ выполняется на длине волны 565 нм.

3. Экспериментальная реализация спектроскопии с фемтосекундным временным разрешением

Для измерения сверхбыстрой динамики пропускания была собрана экспериментальная установка, реализующая схему спек-

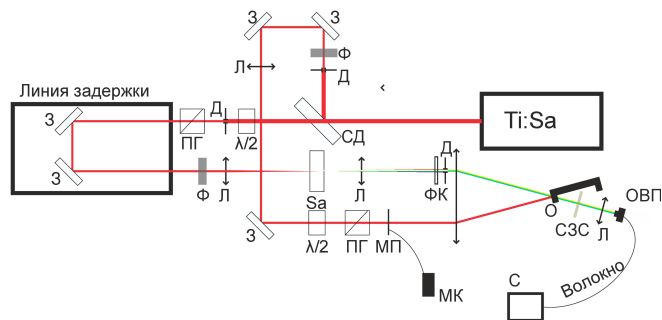


Рис. 2.4: Экспериментальная схема для измерения дифференциального пропускания. *Ti:Sa* - титан-сапфировый лазер, *СД* - светодели-
тель 80:20, *Л* - собирающая линза, *З* - зеркало, *Д* - диафрагма, *Ф* -
интенсивностный фильтр, *Sa* - кристалл сапфира, *ФК* - фотонно-
кристаллический фильтр, *МП* - механический прерыватель, *О* - обра-
зец, *СЗС* - сине-зеленый светофильтр, *ОВП* - оптоволоконный порт,
С - спектрометр, *МК* - микроконтроллер, *ПГ* - призма Глана, $\lambda/2$ - по-
луволновая пластина.

троскопии с фемтосекундным временным разрешением “зонд-накачка” (рис. 2.4): в качестве источника фемтосекундных импульсов использовалось излучение фемтосекундного титан-сапфирового лазера с длиной волны 800 нм, частотой следования импульсов 1 кГц, длительностью импульсов 70 фс. На светодели-
теле импульс разделялся на два - импульс зонда и импульс накачки. Зондовый импульс проходил через диафрагму, по-
падал на линию задержки и систему фильтров. Далее пучок фокусировался собирающей линзой на кристалле сапфира, в
котором генерировался суперконтинуум. При помощи призмы Глана и полуволновой пластины контролировалась интен-
сивность пучка зонда перед кристаллом сапфира для стабили-
зации генерации суперконтинуума. Суперконтинуум проходил
через фотонно-кристаллический фильтр, пропускающий спек-
тральные компоненты с длинами волн меньше 750 нм, чтобы
обрезать основную компоненту с длиной волны 800 нм. Им-
пульс зонда фокусировался на образце под углом падения 17°

и был p -поляризован, одна из осей периодичности образца была параллельна плоскости падения. Диаметр зондового пучка составлял 200 мкм. Далее зондовый импульс проходил сквозь образец и попадал в спектрометр Ocean Flame T. Пучок накачки проходил через систему зеркал и фильтров, с помощью полуволновой пластины и призмы Глана контролировалась падающая на образец энергия импульса. Далее импульс накачки проходил через механический прерыватель, при помощи которого создавалась модуляция импульса накачки, и фокусировался на образец под нормалью с направлением напряженности электрического поля параллельно оси периодичности, диаметр пучка накачки – 800 мкм. В качестве механического прерывателя использовался картон, обмотанный изолентой, прикрепленный к сервоприводу, который управлялся при помощи микроконтроллера. Из-за разной длины оптических путей лучей зонда и накачки, импульсы на образец приходят в разные моменты времени, этим временем можно управлять при помощи линии задержки. Из полученных спектров прошедшего через образец импульса зонда при открытом и закрытом прерывателе вычислялось дифференциальное пропускание $\Delta T/T$ по формуле (1.21):

$$\frac{\Delta T}{T}(\tau, \lambda) = \frac{T_{pump}(\tau, \lambda) - T_{no\ pump}(\lambda)}{T_{no\ pump}(\lambda)}.$$

4. Сверхбыстрая динамика пропускания металл-диэлектрической метаповерхности в спектральной окрестности различных мод

Попадая на образец, импульс накачки частично поглощался золотыми сферами, вызывал нагрев электронного газа и изменение диэлектрической проницаемости золота. Как показали расчеты, лазерный импульс на длине волны 800 нм при нормальном падении возбуждает дипольный ПРР. Следовательно, под действием импульса накачки в образце возбуждает-

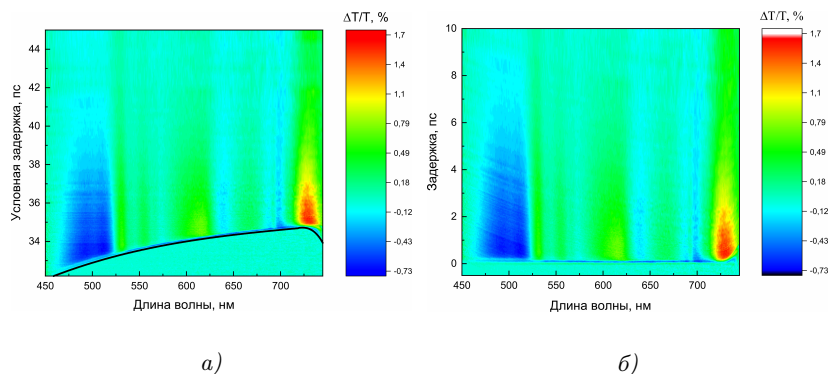


Рис. 2.5: а) - Экспериментальная зависимость дифференциального пропускания от длины волны импульса зонда и условного времени задержки, определяемого положением транслятора, черная линия - зависимость времени перекрытия пучков накачки и зонда в условных временах от длины волны $\tau_0(\lambda)$, плотность энергии импульса накачки $0,6 \text{ мДж/см}^2$. б) - Экспериментальная зависимость дифференциального пропускания от длины волны и скорректированного времени задержки между импульсами накачки и зонда.

ся плазмон, резонансно увеличивающий температуру нагрева. Приходящий с некоторой задержкой импульс зонда детектировал индуцированные изменения. Были измерены спектры дифференциального пропускания на различных задержках между импульсами зонда и накачки (рис. 2.5 а). Указанные задержки являются условными и соответствуют конкретному положению транслятора. Широкий спектральный диапазон суперконтинуума и его прохождение через несколько диспергирующих стеклянных элементов приводят к тому, что разные спектральные компоненты зонда имеют разный оптический путь до попадания на образец. Это приводит к пересечению отдельных спектральных компонент зонда с импульсом накачки в разные моменты времени, калибровка временной шкалы становится спектрально-зависимой. Эту калибровку можно получить, если на каждой длине волны зонда найти задержку, соответствующую началу роста дифференциального пропускания.

Это позволяет установить функциональную связь $\tau_0(\lambda)$ между длиной волны зонда и временем перекрытия импульсов. Она представлена черной кривой на рисунке 2.5 а). С помощью этой зависимости можно привести временные сечения $\Delta T/T$ для каждой длины волны к корректному нулю времени. На рисунке 2.5 б) показана зависимость дифференциального пропускания от длины волны и истинного времени задержки. Подобная процедура проводилась для всех экспериментальных результатов, полученных с помощью методики “зонд-накачка”, и при последующем повествовании будет опущена.

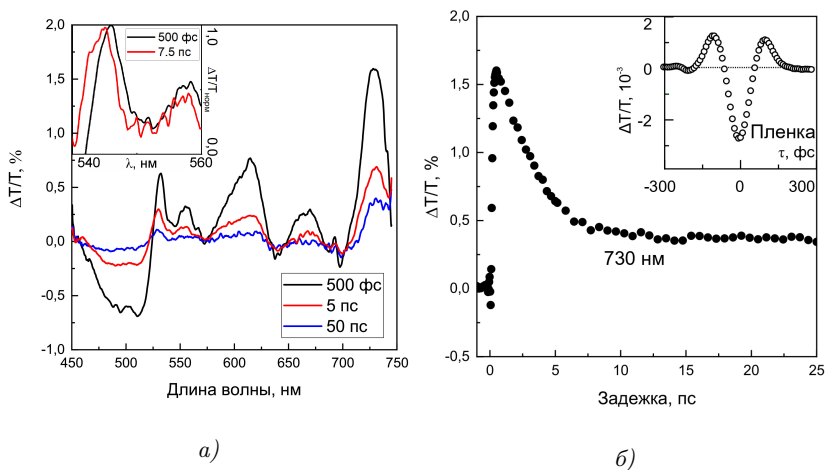


Рис. 2.6: а) - Экспериментальный спектр дифференциального пропускания при различных временах задержки, плотность энергии импульса накачки $0,6 \text{ мДж/см}^2$, вложение - спектры дифференциального пропускания в окрестности возбуждения КВМ, нормированные на максимум; б) - экспериментальная зависимость дифференциального пропускания от времени задержки на длине волны зонда 730 нм ; во вложении показана зависимость дифференциального пропускания при замене образца на пленку граната на кварцевой подложке.

На рисунке 2.6 а) показан спектр дифференциального пропускания при нескольких задержках и с плотностью энергии импульса накачки $0,6 \text{ мДж/см}^2$. Наблюдаемые экстремумы в

спектре дифференциального пропускания возникают благодаря возбуждению различных резонансов импульсом зонда и находятся в спектральной окрестности провалов в рассчитанном спектре коэффициента пропускания (рис. 2.3): пик на длине волн 730 нм соответствует возбуждению дипольного ПРР импульсом зонда, пики на длинах волн 620 нм и 670 нм - квадрупольным ПРР, пики на длинах 530 нм и 550 нм - TE_0 и TM_0 квазиволноводным модам. Исключение представляет широкий провал в окрестности длины волны зонда 500 нм. Он связан не с возбуждением электромагнитных мод импульсом зонда, а с большим вкладом в изменение диэлектрической проницаемости от d-перехода в окрестности точки высокой симметрии L [15]. Максимальных значений по спектру дифференциальное пропускание достигает при возбуждении дипольного резонанса на длине волны зонда 730 нм, $\frac{\Delta T}{T}_{max} = 1.6\%$. На рисунке 2.6 б) показана зависимость дифференциального пропускания от времени задержки на этой длине волны зонда. Максимум достигается при задержке 500 фс, в течение которых происходит термализация электронного газа, время термализации с учетом длительности пучков зонда и накачки можно оценить как $\tau_{ee} = 200$ фс. Это время близко к значениям в золотых сферах, полученным ранее в литературе [15, 26]. Далее идет электрон-фононная релаксация, длящаяся несколько пс, $\tau_{ep} = 2,4$ пс, что тоже согласуется с литературными значениями. Фононная релаксация наблюдается на гораздо большем диапазоне времен, так как золотые сферы помещены в гранат и отвод тепла от них затруднен.

Зависимости дифференциального пропускания от задержки почти во всем спектральном диапазоне близки к зависимости на длине волны зонда 730 нм, однако динамика пропускания при возбуждении КВМ на 530 нм отличается. На рисунке 2.7 а) изображены нормированные на максимум зависимости $\frac{\Delta T}{T}(\tau)$ на длинах волн возбуждения дипольного плазмона (730 нм), квадрупольного плазмона (615 нм) и квазиволноводной моды (528 нм). Электронная динамика при воз-

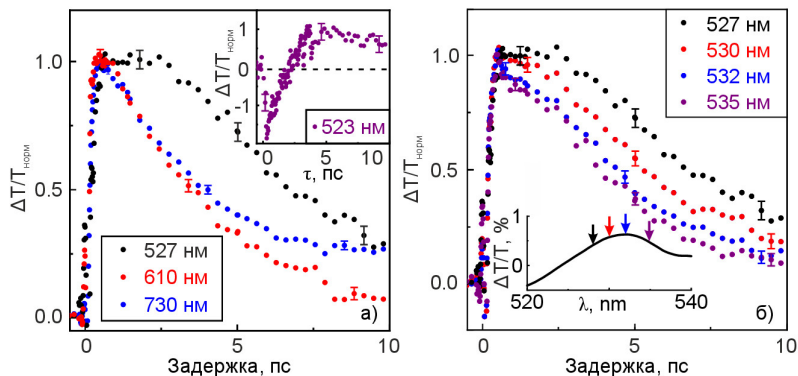


Рис. 2.7: а) - Экспериментальная зависимость нормированного на максимум дифференциального пропускания на различных длинах волн зонда, плотность энергии импульса накачки $0,6 \text{ мДж/см}^2$; б) - экспериментальная зависимость нормированного на максимум дифференциального пропускания для длин волн в окрестности возбуждения волноводной моды; вложение - положение длин волн зонда относительно резонанса в спектре дифференциального пропускания.

буждении квадрупольного и дипольного плазмонов совпадает, однако проявляются отличия на больших задержках. Это связано как с разным соотношением вкладов фононной и электронной температур в изменение действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости в разных спектральных диапазонах, так и с разной чувствительностью дипольного и квадрупольного ПРР к изменению свойств среды. Динамика пропускания в окрестности другого квадрупольного плазмона на 670 нм и в области межзонного перехода качественно воспроизводит временную зависимость на длине волны 615 нм.

Однако дифференциальное пропускание на длинах волн возбуждения КВМ демонстрирует качественно отличную динамику: максимум достигается на несколько сотен фс позже и, в отличие от других спектральных областей, дифференциальное пропускание сохраняет максимальные значения в течение нескольких пикосекунд, после чего начинает релаксировать.

Причем характерные времена, определяющие динамику дифференциального пропускания, существенно меняются в узком спектральном диапазоне. На рисунке 2.7 а) изображены нормированные зависимости дифференциального пропускания на разных длинах волн в окрестности КВМ. Во вложении указаны положения этих длин волн относительно резонанса в спектре. Коротковолновая часть резонанса демонстрирует замедление, в то время как на длинноволновой части пика (длина волны зонда 535 нм) динамика совпадает с плазмонными резонансами. При удалении от центра пика в синюю область тренд сохраняется, в области перехода спектра $\Delta T/T$ через 0 вблизи длины волны 523 нм также наблюдается переход через ноль в временном сечении (вложение, рис. 2.7 а)). Подобную динамику можно интерпретировать как спектральный сдвиг пиков в спектре $\Delta T/T(\lambda)$, связанных с КВМ, в синюю область со временем, что наблюдается на рисунке 2.6 а). Пик на длине волны 730 нм также смещается (в красную область), но величина этого сдвига мала по сравнению с шириной пика.

Вблизи нулевой задержки наблюдается особенность в виде пика-провала-пика во всем спектральном диапазоне, но эта же особенность есть и при измерении дифференциального пропускания, заменив образец на пленку граната на кварцевой подложке (вложение, рис. 2.6 б)). Данная особенность возникает из-за когерентного четырехволнового смешения импульсов зонда и накачки. На рис. 2.5 эта особенность выглядит как светло-зеленая и синяя линии.

5. Влияние плотности энергии импульса накачки на сверхбыструю динамику пропускания металл-диэлектрической метаповерхности

Чтобы глубже исследовать особенность на длине волны зонда 530 нм были проведены исследования при других плотностях энергии пучка накачки $J = 0,35$ и $0,86$ мДж/см². На рисунке 2.8 а) показаны зависимости нормированного дифференци-

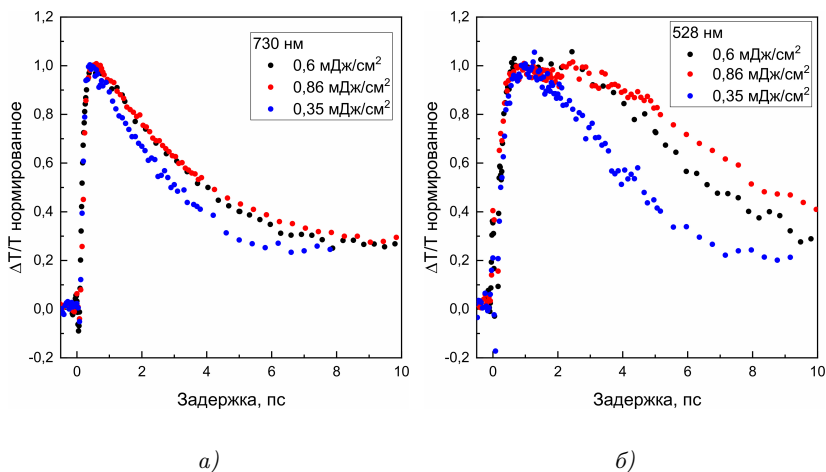


Рис. 2.8: а) - Экспериментальная зависимость нормированного на максимум дифференциального пропускания на длине волны зонда 730 нм для разных плотностей энергий пучка накачки; б) - экспериментальная зависимость нормированного на максимум дифференциального пропускания на длине волны зонда 530 нм для разных плотностей энергий импульса накачки.

ального пропускания от времени на этих плотностях энергии на длине волны зонда 730 нм. Изменения динамики связаны с замедлением электрон-фононной релаксации с увеличением температуры: время электрон-фононной релаксации можно оценить как $\tau_{ep} \approx c_e/G = \frac{\gamma}{G}(T_0 + \Delta T_e)$ [6], причем изменение температуры пропорционально корню от поглощенной энергии импульса накачки $\Delta T_e \sim \sqrt{Q} \sim \sqrt{J}$. Поэтому увеличение времени релаксации с увеличением плотности энергии происходит медленнее, чем линейно. Более заметные отличия при увеличении плотности энергии наблюдаются вблизи квазиволноводной моды (рис. 2.8 б): дифференциальное пропускание дольше сохраняет свои максимальные значения с увеличением плотности энергии импульса накачки, последующая релаксация замедляется. Увеличение J приводит к более выраженному отличию динамики пропускания на длинах волн

возбуждения КВМ и ПРР.

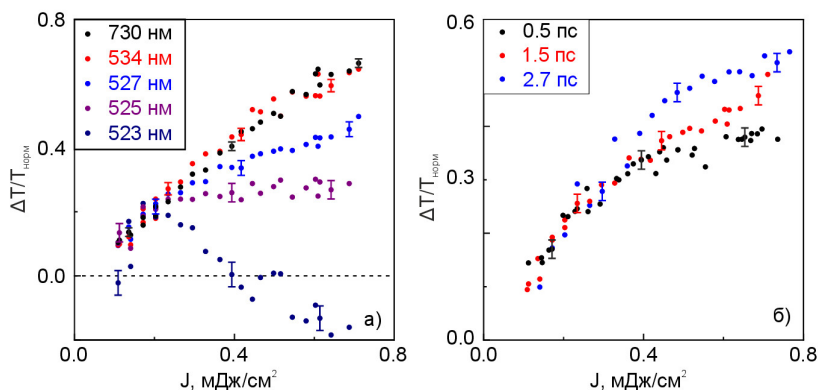


Рис. 2.9: а) - Экспериментальная зависимость нормированного на линейный участок дифференциального пропускания для различных длин волн на задержке 1,5 пс от плотности энергии импульса накачки; б) - экспериментальная зависимость нормированного на линейный участок дифференциального пропускания на длине волны зонда 527 нм для разных задержек от плотности энергии импульса накачки.

Помимо временных сечений, спектры дифференциального пропускания исследовались как функция плотности энергии импульса накачки при фиксированных временных задержках (рис. 2.9). В спектральных областях плазменных резонансов и межзонного перехода наблюдались линейные зависимости $\Delta T/T(J)$, однако на длинах волн возбуждения КВМ $\Delta T/T(J)$ существенно отклонялась от линейной. Для сравнения этих зависимостей на различных длинах волн выполнялась следующая процедура: выделялся линейный участок при малых плотностях энергии, данная область аппроксимировалась зависимостью $\Delta T/T = kJ$, экспериментальные кривые нормировались на полученный коэффициент k , полученные нормированные значения при малых плотностях энергий совпадали для всех длин волн. Данная процедура демонстрирует переход от линейного отклика к существенно нелинейному при смещении длины волны зонда в синюю область вдоль спектральной

окрестности КВМ (рис. 2.9 а). В области спектра, где значения дифференциальное пропускание близки к нулю, зависимость $\Delta T/T(J)$ имеет экстремум и меняет знак. Отличие от линейной зависимости проявлялось больше всего для малых задержек (рис. 2.9 б).

6. Численный анализ зависимостей дифференциального пропускания от длины волны и времени задержки

Так как зависимости $\Delta T/T(\tau)$ в спектральной окрестности КВМ сильно зависят от длины волны, становится сложно получить связанные характерные времена и выяснить физическую природу возникающей особенности. Для этого необходимо исследовать поведение пика как целого. Подобный анализ был проведен для зависимостей $\Delta T/T(\lambda, \tau)$ при плотности энергии импульса накачки $0,86 \text{ мДж/см}^2$.

Сначала были исследованы спектры дифференциального пропускания для различных задержек (рис. 2.10 а). При данной плотности энергии также наблюдался сдвиг пиков в спектральной окрестности КВМ в синюю область и сдвиг пика, связанного с дипольным ПРР, в красную область. Такой сдвиг пиков в спектре дифференциального пропускания не связан с изменением центральной длины резонансов в спектре коэффициента пропускания. Известно, что изменение центральной длины приводит к появлению асимметричных знакопеременных особенностей в спектрах различных дифференциальных эффектов, вызванных не только нагревом [19,21], но и магнитным полем [122], что было показано в том числе и для данного образца [119,121]. Наблюдаемый в эксперименте сдвиг связан с изменением разности фаз между резонансно переизлученной и нерезонансно прошедшей через метаповерхность электромагнитными волнами, что можно продемонстрировать с помощью аппроксимации резонансом типа Фано (рис. 2.11).

Нестабильность излучения суперконтинуума не позволила

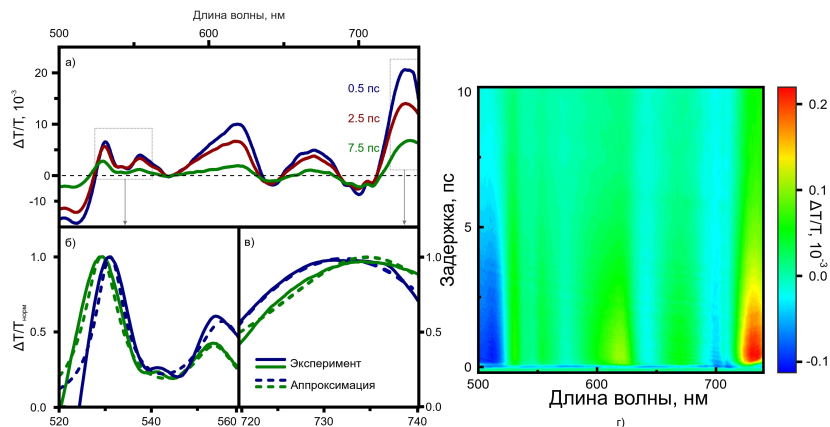


Рис. 2.10: а) - Спектры дифференциального пропускания для различных времен задержки при плотности энергии импульса накачки $0,86 \text{ мДж/см}^2$; б) - нормированные на максимум спектры дифференциального пропускания в окрестности КВМ и их аппроксимация с помощью двух лоренцианов; в) нормированные на максимум спектры дифференциального пропускания в окрестности ПРР и их аппроксимация с помощью гауссиана; г) - Зависимость дифференциального пропускания от длины волны и времени задержки.

измерить экспериментально спектр коэффициента пропускания, поэтому в качестве начального спектра коэффициента пропускания был использован расчетный, полученный с помощью COMSOL Multiphysics. В качестве аппроксимирующей функции была использована сумма двух разнесенных резонансных линий типа Фано, аналогично функции 1.6:

$$T(\lambda, A, \Gamma, \lambda_0, \phi) = \left| C_0 + \frac{A_1 \Gamma_1 e^{i\phi_1}}{c/\lambda - c/\lambda_{01} + i\Gamma_1} + \frac{A_2 \Gamma_2 e^{i\phi_2}}{c/\lambda - c/\lambda_{02} + i\Gamma_2} \right|^2, \quad (2.2)$$

где C_0 - нерезонансный фон, A , λ_0 , Γ и ϕ - амплитуды, центральные длины волн, ширины и фазы резонансов, индекс 1 соответствует коротковолновому резонансу, индекс 2 - длинноволновому. Результаты аппроксимации представлены на ри-

сунке 2.11 а). Далее рассчитывались спектры дифференциального пропускания, в котором T_{pump} соответствовало спектру коэффициента пропускания с измененными амплитудами, фазами и центральными длинами волн:

$$\frac{\Delta T}{T}(\lambda) = \frac{T(\lambda, A + dA, \Gamma, \lambda_0 + d\lambda, \phi + d\phi) - T(\lambda, A, \Gamma, \lambda_0, \phi)}{T(\lambda, A, \Gamma, \lambda_0, \phi)} \quad (2.3)$$

На рисунке 2.11 б) красной линией показан спектр дифференциального пропускания при изменении только амплитуд резонансов (A_1 уменьшено на $\sim 10\%$, A_2 - на $\sim 10\%$), положения пиков в спектре $\Delta T/T(\lambda)$ совпадает с положением провалов в спектре T . При изменении дополнительно фаз резонансов (черная линия, рис. 2.11 б) положения пиков в спектре $\Delta T/T(\lambda)$ смещаются, также меняются их максимальные значения. При добавлении вместо изменения фаз, смещения центральных длин волн, дающих эквивалентный сдвиг пиков в спектре $\Delta T/T(\lambda)$, форма спектральных особенностей существенно искажается, появляется дополнительный выраженный экстремум.

С помощью изменения только амплитуд и фаз резонансов удалось качественно восстановить форму спектров $\Delta T/T(\lambda)$ и смещение пиков в спектре со временем (рис. 2.11 в и г). Однако, наблюдаются заметные отличия. Они связаны, с одной стороны, с неидеальным соответствием расчетного спектра коэффициента пропускания экспериментальному, с другой - неточностью модели, не учитывающей изменения спектральных свойств нерезонансного фона. На самом деле, нерезонансное слагаемое имеет свою спектральную огибающую, обусловленную близостью к межзонному переходу в золоте, и ее свойства должны меняться при нагреве. Если учесть все эти поправки в виде свободных параметров, задача аппроксимации будет иметь множество решений, и полученные временные зависимости не будут достоверными. Однако можно утверждать, что наблюдаемые в эксперименте особенности динамики

ки дифференциального пропускания в спектральной окрестности КВМ связаны с изменением разности фаз между резонансной переизлученной и нерезонансно прошедшей волн.

Поэтому был применен другой подход, описанный в литературе для анализа сверхбыстрого отклика плазмонных частиц [144]. Были рассмотрены два спектральных окна: вблизи двух КВМ (520-560 нм, рис. 2.10 б) и в окрестности возбуждения ПРР (720-740 нм, рис. 2.10 в). На каждой временной задержки спектры в этих двух окнах были аппроксимированы пиковыми функциями. В окрестности КВМ наибольшая сходимость достигалась при использовании двух лоренцианов:

$$\begin{aligned} \left. \frac{\Delta T}{T} \right|_{KBM}(\lambda, \tau) = & \frac{A_1^{KBM}(\tau) \left(\Gamma_1^{KBM}(\tau) \right)^2}{\left(\Gamma_1^{KBM}(\tau) \right)^2 + \left(c/\lambda - c/\lambda_{01}^{KBM}(\tau) \right)^2} + \\ & + \frac{A_2^{KBM}(\tau) \left(\Gamma_2^{KBM}(\tau) \right)^2}{\left(\Gamma_2^{KBM}(\tau) \right)^2 + \left(c/\lambda - c/\lambda_{02}^{KBM}(\tau) \right)^2}, \end{aligned} \quad (2.4)$$

где A^{KBM} - амплитуды пиков в спектре $\Delta T/T(\lambda)$, Γ^{KBM} - ширины пиков, λ_0^{KBM} - центральные длины волн, индексы 1 и 2 относятся к коротковолновой и длинноволновой модам. Для аппроксимации пика в спектральной окрестности ПРР был использован гауссиан:

$$\left. \frac{\Delta T}{T} \right|_{PRR}(\lambda, \tau) = A^{PRP}(\tau) \exp \left[- \left(\frac{c/\lambda - c/\lambda_0^{PRP}(\tau)}{\Gamma^{PRP}(\tau)} \right)^2 \right], \quad (2.5)$$

A^{PRP} , Γ^{PRP} и λ_0^{PRP} - амплитуда, спектральная ширина и центральная длина волны пика в спектре $\Delta T/T(\lambda)$ вблизи 730 нм. Благодаря такой процедуре были получены зависимости амплитуд, положений и ширин пиков от времени задержки. Отличие выбора аппроксимирующих функций связано с более выраженной зависимостью положения ПРР от угла паде-

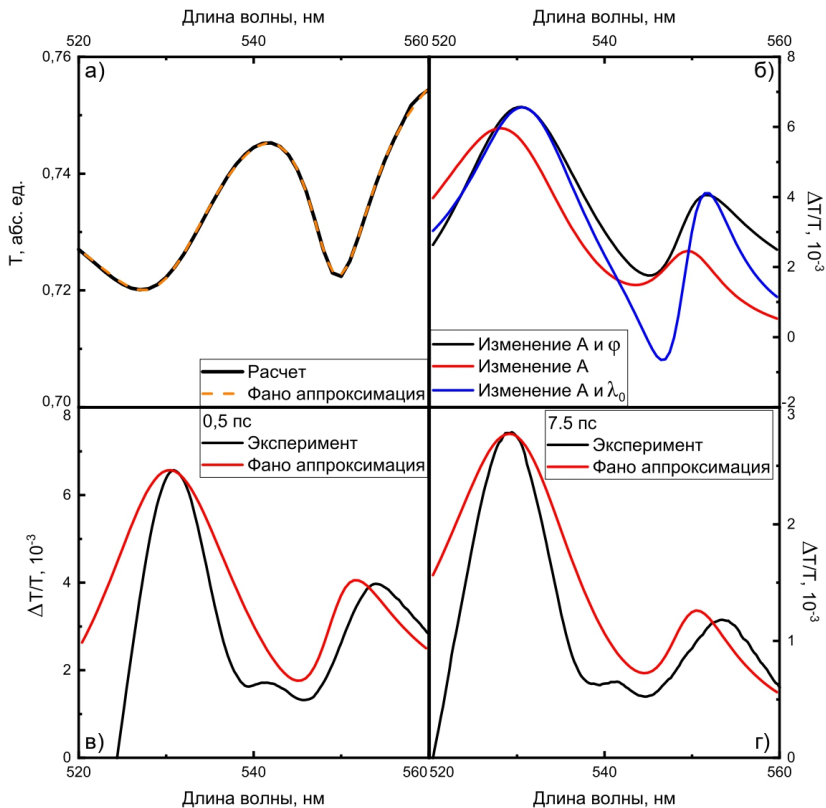


Рис. 2.11: а) - Расчетный спектр коэффициента пропускания (черная сплошная линия) и его аппроксимация с помощью формулы (2.2) (пунктирная оранжевая линия); б) - спектры дифференциального пропускания, полученные с помощью формулы (2.3): черная линия - изменение амплитуд A_1 на 10% и A_2 на 5%, фаз ϕ_1 на 5° , ϕ_2 на 2.5° , красная линия - изменение амплитуд A_1 на 10% и A_2 на 5%, синяя линия - изменение амплитуд A_1 на 10% и A_2 на 5%, центральных длин волн λ_1 на 0,5 нм и λ_2 на 0,3 нм; в) - Экспериментальный спектр дифференциального пропускания при задержке 0,5 пс и плотности энергии импульса накачки 0,86 мДж/см² и его аппроксимация с помощью формулы (2.3) не используя изменение центральных длин волн; г) - Аналогичные спектры для задержки 7,5 пс.

ния. В результате чего угловая расходимость импульса зонда проявляется сильнее, спектральная форма пика определяется распределением угловых компонент, которое описывается распределением Гаусса.

Далее были численно исследованы временные зависимости. Сначала из оптических расчетов была получена поглощенная золотой наносферой энергия при воздействии импульса накачки. Так как длина баллистического движения электронов в золоте превышает диаметр наносферы [6], поглощенная энергия считалась равномерно распределенной внутри объема частицы. Далее, с помощью системы 1.19 связанных кинетического уравнения и двухтемпературной модели были посчитаны зависимости плотности энергии неравновесных электронов N , температуры электронов T_e и температуры решетки T_p от времени τ (рис. 2.12 б). В расчетах были использованы время термализации $\tau_{ee} = 150$ фс, константа электрон-фононного связывания $G = 2,1 \times 10^{16}$ Вт/м³К, коэффициент пропорциональности при теплоемкости электронного газа $\gamma = 71$ Дж/м³К² и теплоемкость решетки $C_p = 2,5 \times 10^6$ Дж/м³К, известные из литературы [6, 22, 24]. Максимальная температура нагрева электронов составила ~ 1100 К, решетки - ~ 40 К, время электрон-фононной релаксации $\tau_{ep} = 3,5$ пс.

С помощью полученного решения сначала был исследован пик в спектре дифференциального отражения на длине волны 620, связанный с возбуждением квадрупольного ПРР, который не смещается со временем (рис. 2.12 а). Нормированная на максимум зависимость дифференциального пропускания от времени была аппроксимирована функцией, аналогичной формуле (1.22):

$$\frac{\Delta T}{T}(\tau) = AN(\tau) + B\Delta T_e(\tau) + C\Delta T_e^2(\tau) + DT_p(\tau), \quad (2.6)$$

где константы пропорциональности A, B, C, D были свободными параметрами. Квадратичный член был добавлен, чтобы описать температурную нелинейность горячих электронов [22].

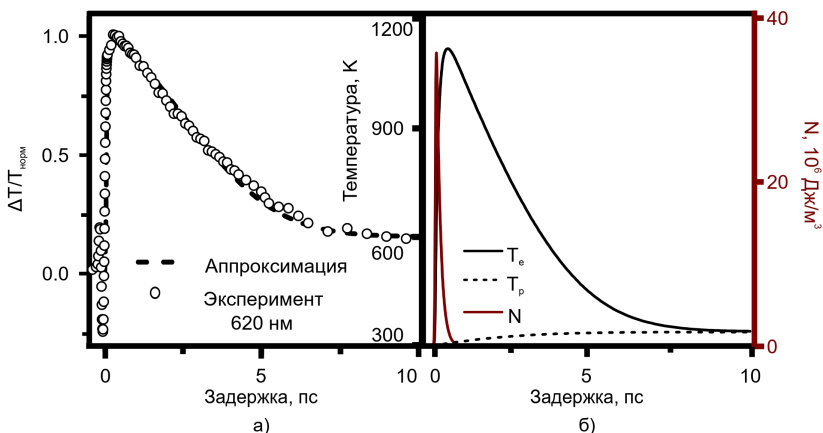


Рис. 2.12: а) - пунктирная Экспериментальная зависимость нормированного на максимум дифференциального пропускания от времени на длине волны зонда 620 нм и при плотности энергии импульса накачки $0,86$ мДж/см² (белые круги) и аппроксимация этой зависимости функцией 2.6 (пунктирная линия); б) - расчетные зависимости плотности энергии неравновесных электронов N (красная линия), температуры электронов T_e (черная линия) и температуры решетки T_r (пунктирная линия) от времени.

Экспериментальную зависимость удалось с большой точностью описать с помощью аппроксимирующей функции. Основной вклад в динамику дифференциального пропускания обеспечивался линейным вкладом горячих электронов, параметр B был в 4 раз больше остальных.

Далее были исследованы зависимости амплитуд, ширин и центральных положений $A(\tau)$, $\Gamma(\tau)$, $\lambda_0(\tau)$, полученные с помощью аппроксимации спектров формулами (2.4) и (2.5) (рис. 2.13). Ширины пиков от времени не зависели и составляли $\Gamma_1^{KBM} \approx \Gamma_2^{KBM} \approx 4,5$ ТГц, (4,5 нм), $\Gamma^{PPP} \approx 9$ ТГц (16,5 нм). Зависимости амплитуд от времени имели вид, качественно похожий на зависимость $\Delta T/T(\tau)$ на фиксированной длине волны (рис. 2.12 а): быстрый рост, экстремум и релаксация, однако $A^{KBM}(\tau)$ и $A^{PPP}(\tau)$ демонстрировали различные характерные времена.

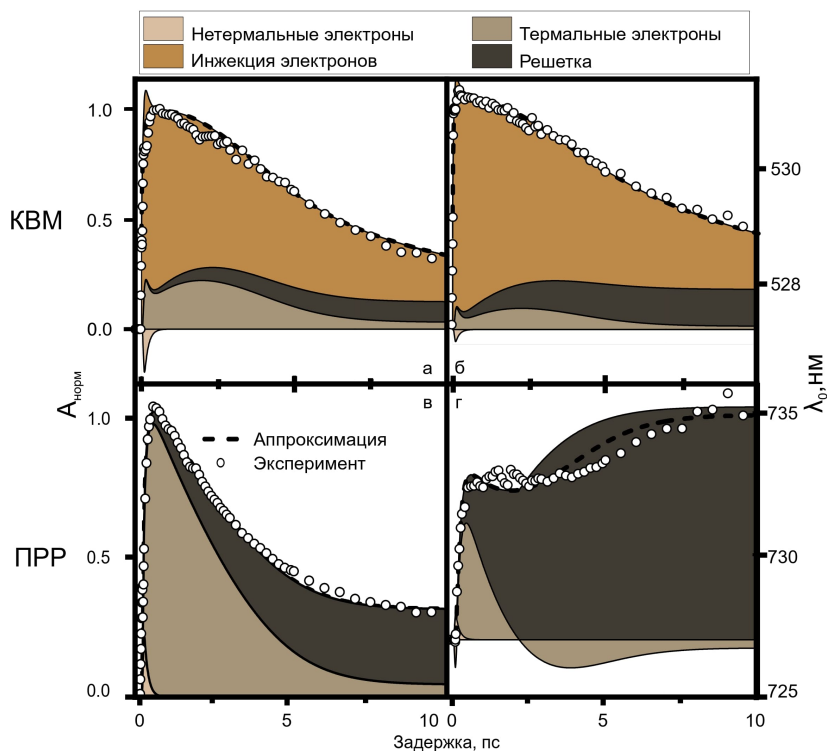


Рис. 2.13: а) - Нормированная зависимость амплитуды пика A_1^{KVM} в спектре $\Delta T/T$ вблизи коротковолновой KBM от времени и аппроксимация этой зависимости с помощью функции 2.8; б) - зависимость центрального положения пика λ_{01}^{KVM} в спектре $\Delta T/T$ вблизи коротковолновой KBM от времени и аппроксимация этой зависимости с помощью функции 2.9; в) - нормированная зависимость амплитуды пика A^{PRP} в спектре $\Delta T/T$ вблизи дипольного PRP от времени и аппроксимация этой зависимости с помощью функции 2.6; г) - зависимость центрального положения пика λ_0^{PRP} в спектре $\Delta T/T$ вблизи дипольного PRP от времени и аппроксимация этой зависимости с помощью функции 2.7. Оттенками коричневого обозначены вклады различных слагаемых в общую динамику.

Зависимость $\lambda_0^{KVM}(\tau)$ демонстрировала аналогичную динамику

ку: пики в спектре дифференциального пропускания сначала смещались в красную область, потом в синюю. Пик, связанный с возбуждением дипольного ПРР, в свою очередь, на протяжении всего исследуемого отрезка времени смещался в красную область.

Далее полученные зависимости были аппроксимированы с помощью различных функций. Зависимость $A^{PPP}(\tau)$ была аппроксимирована функцией 2.6. Для аппроксимации $\lambda_0^{PPP}(\tau)$ к функции 2.6 была добавлена константа Λ , соответствующая начальной длине волны:

$$\lambda_0^{PPP}(\tau) = AN(\tau) + B\Delta T_e(\tau) + C\Delta T_e^2(\tau) + DT_p(\tau) + \Lambda. \quad (2.7)$$

Результаты аппроксимации представлены на рисунках 2.13 в) и г). Также на рисунках обозначены вклады неравновесных электронов, равновесных электронов и решетки в общую динамику. Зависимость $A^{PPP}(\tau)$ в большей степени обусловлена динамикой термализованных электронов, аналогично зависимости $\Delta T/T(\tau, 620 \text{ нм})$ вблизи квадрупольного ПРР. В свою очередь, сдвиг пика в красную область и на субпикосекундных, и на пикосекундных временных масштабах связан с двумя факторами: вклады от электронной и фононной температур имели один знак, причем вклад от нагрева решетки был выше.

Однако зависимости $A^{KBM}(\tau)$ и $\lambda_0^{KBM}(\tau)$ не удалось аппроксимировать с помощью этих функций, так как они демонстрируют большие характерные времена релаксации. Для их аппроксимации в функции 2.6 и 2.7 было добавлено релаксационное слагаемое:

$$A^{KBM}(\tau) = AN(\tau) + B\Delta T_e(\tau) + C\Delta T_e^2(\tau) + DT_p(\tau) + \\ + \exp\left(-\frac{4 \ln 2 \cdot \tau^2}{\tau_{pump}^2}\right) \otimes H(\tau)E \exp\left(-\frac{\tau}{\bar{\tau}}\right) \otimes \exp\left(-\frac{4 \ln 2 \cdot \tau^2}{\tau_{probe}^2}\right), \quad (2.8)$$

$$\lambda_0^{KBM}(\tau) = AN(\tau) + B\Delta T_e(\tau) + C\Delta T_e^2(\tau) + DT_p(\tau) + \Lambda + \\ + \exp\left(-\frac{4\ln 2 \cdot \tau^2}{\tau_{pump}^2}\right) \otimes H(\tau)E \exp\left(-\frac{\tau}{\tilde{\tau}}\right) \otimes \exp\left(-\frac{4\ln 2 \cdot \tau^2}{\tau_{probe}^2}\right), \quad (2.9)$$

где $\otimes$ - операция свертки, τ_{probe}^2 и τ_{pump}^2 - длительности импульсов накачки и зондирования, $H(\tau)$ - функция Хевисайда, E и $\tilde{\tau}$ - свободные параметры. С помощью данных функций удалось воспроизвести зависимости амплитуд и центральных длин волн пиков от времени (рис. 2.13 а и б), наилучшая сходимость была достигнута при $\tilde{\tau} \approx 7$ пс, дополнительное слабое вносило наибольший вклад в общую динамику в обоих случаях.

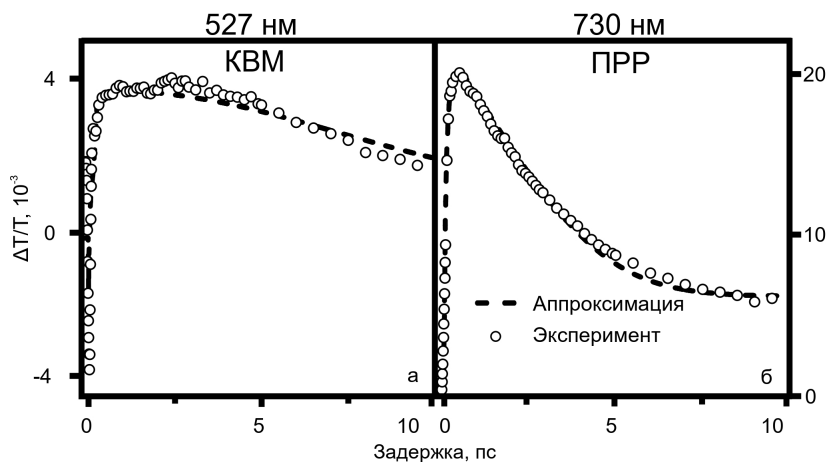


Рис. 2.14: а) - Экспериментальная зависимость дифференциального пропускания от времени в спектральной окрестности КВМ и ее аппроксимация с помощью функций 2.4, 2.8 и 2.9; б) - Экспериментальная зависимость дифференциального пропускания от времени на длине волны возбуждения дипольного ПРР и ее аппроксимация с помощью функций 2.5, 2.6 и 2.7.

Совмещая аппроксимирующие функции по длинам волн и времени (2.4)-(2.9) удалось воспроизвести сложную зависи-

мость дифференциального пропускания от времени в спектральной окрестности КВМ (рис. 2.14). Спектральная зависимость характерных времен, определяющих динамику дифференциального пропускания на фиксированной длине волны, связана с комбинацией двух экспоненциальных функций, относительный вклад которых меняется с длиной волны.

Появление дополнительного релаксационного слагаемого может быть связано с плазмон-индуцированной инжекцией горячих электронов из золота в слой железо-иттриевого граната и их последующей рекомбинацией. В данной модели перенос электронов считается мгновенным. Этот процесс занимает десятки фс [41, 102], что пренебрежимо на пикосекундном временном масштабе. Ранее в литературе данное явление не было продемонстрировано на примере Bi:YIG или магнитных диэлектриков в общем. Висмут-замещенный железо-иттриевый гранат является широкозонным полупроводником, межзонные переходы, ответственные за магнитооптическую активность имеют ширины запрещенных зон в зависимости от концентрации висмута от 2,4 и 2,9 эВ для полностью легированного до 3,2 и 3,7 для незамещенного граната [145, 146]. Типичное значение работы выхода для оксидов переходных металлов, к которым относится и Bi:YIG , составляет $\approx 4,9$ эВ [147]. Работа выхода золота составляет 4,8-5,3 эВ [148, 149]. Таким образом, процесс инжекции электронов из золота в Bi:YIG является потенциально возможным с энергетической точки зрения. Характерное время рекомбинации 7 пс согласуется с результатами, полученными для других материалов [100, 101]. Влияние инжекции горячих электронов на динамику дифференциального пропускания только в спектральной окрестности КВМ может быть связано с эффектом просветления гранта, который не проявляется на длинах волн плазмонных резонансов, или с рассеянием волноводных мод на индуцированной зарядовой плотности вблизи наносфер.

7. Сверхбыстрая динамика дифференциального пропускания в других экспериментальных конфигурациях

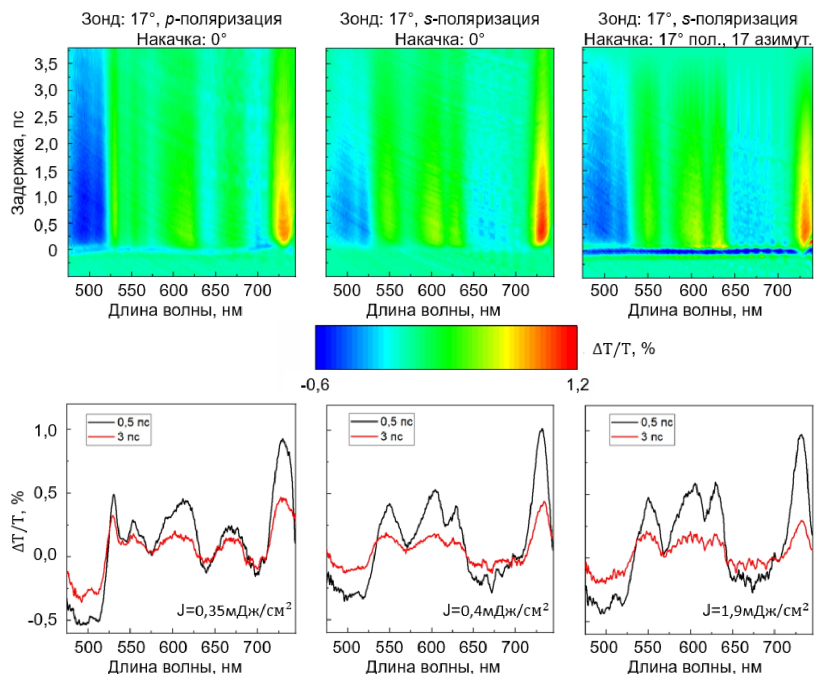


Рис. 2.15: Верхний ряд - Экспериментальная зависимость дифференциального пропускания от длины волны и времени задержки для трех конфигураций импульсов зонда и накачки; нижний ряд - спектры дифференциального пропускания при задержках 0,5 пс и 3 пс для трех конфигураций импульсов зонда и накачки.

Аналогичные измерения были проведены для двух других конфигураций импульсов зонда и накачки (рис. 2.15). В обоих дополнительных конфигурациях импульс зонда был s -поляризован, угол падения оставался 17° . Это привело к спектральному сдвигу квадрупольных ПРР в синюю область: мода с центральной

длины волны 670 нм при p -поляризации наблюдалась при 630 нм, а мода с длиной волны 620 нм - на 600 нм. Положение дипольного ПРР не изменилось. Пик в спектре дифференциального пропускания в окрестности КВМ с центральной длиной 550 нм увеличился относительно пика вблизи дипольного ПРР и стал шире примерно в 2 раза, при этом пик на 530 нм пропал. Такое поведение волноводных мод противоречит формуле (2.1), так как волноводная мода TM_0 на длине волны 565 нм для s -поляризованного излучения должна быть запрещена, а мода TE_0 - разрешена. Такая особенность может быть вызвана рассеянием на наносферах.

Две дополнительные конфигурации отличались геометрией падения импульса накачки. В одном случае импульс накачки падал под нормалью и возбуждал дипольный ПРР, как и в предыдущей геометрии. В другом случае импульс падал под углом, плоскость падения луча накачки была направлена под углом к осям периодичности, p -поляризованный импульс падал под полярным и азимутальным углами $\theta = \psi = 17^\circ$. Это позволило максимально удалить дипольный ПРР по спектру от 800 нм в доступной для эксперимента геометрии. Плотность энергии импульсов накачки подбиралась так, чтобы воспроизвести максимум дифференциального пропускания в окрестности дипольного ПРР. Для резонансной накачки требовалась чуть большая мощность в случае s -поляризации, что может быть связано с неидеальностью юстировки. Для нерезонансной накачки требовалась примерно в 5 раз большая плотность энергии, чтобы воспроизвести максимум дифференциального пропускания.

Нормированные зависимости дифференциального пропускания от времени на длине волны возбуждения дипольного ПРР (рис. 2.16) для трех случаев были идентичными. Максимальные значения дифференциального пропускания могли быть разными для s - и p -поляризаций из-за отличий в свойствах плазмонных резонансов, однако равенство времен релаксаций явно говорит об одинаковых температурах нагрева в

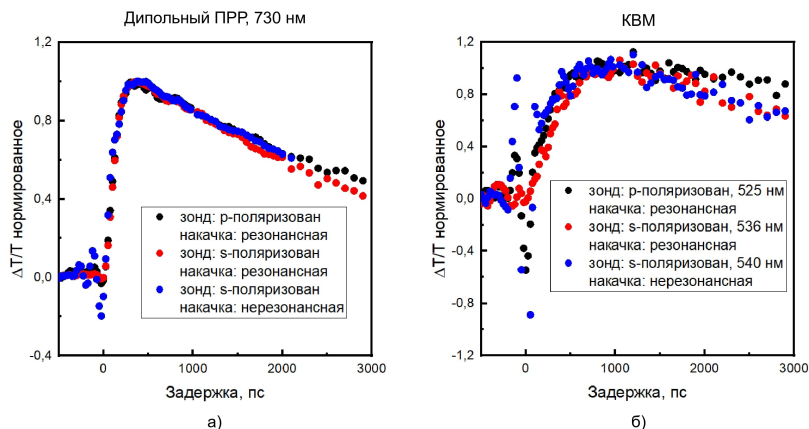


Рис. 2.16: а) - Зависимость нормированного на максимум дифференциального пропускания от времени на длине волны дипольного ПРР для трех экспериментальных конфигураций; б) - аналогичная зависимость в спектральной окрестности КВМ.

этих трех случаях. В спектральной окрестности КВМ зависимости $\Delta T/T(\tau)$ были качественно близки, наблюдалось аналогичное запаздывание сверхбыстрого отклика относительно динамики горячих электронов в золоте. Так как зависимости дифференциального пропускания от времени в окрестности КВМ существенно зависят от длин волн, для сравнения трех экспериментальных конфигураций показаны длины волн, на которых пик в спектре $\Delta T/T(\lambda)$. Качественно зависимости близки, однако наблюдается отличие между p - и s -поляризациями зонда и небольшое запаздывание динамики дифференциального пропускания в резонансном случае относительно нерезонансного.

Более заметные отличия между случаями резонансной и нерезонансной накачки заметны при сравнении спектров дифференциального пропускания в окрестности КВМ, нормированных на максимум (рис. 2.17 а и б). Левый склон в резонансном случае перемещается на 5,5 нм в синюю область при изме-



Рис. 2.17: а) - Спектры нормированного дифференциального пропускания в спектральной окрестности КВМ для двух задержек (черная линия - 500 фс, красная линия - 3000 фс) в случае резонансной накачки; б) - аналогичные спектры в случае нерезонансной накачки; в) - зависимости положения пика в спектре дифференциального пропускания от времени в случаях резонансной (черные точки) и нерезонансной (красные точки) накачки; вложение - нормированные зависимости амплитуд пиков от времени.

нении задержки с 500 фс до 3000 фс, за то же время в нерезонансном случае склон смещается на 3 нм. Для анализа спектров была проведена процедура, описанная выше. Высокий уровень шума не позволил провести анализ для начальных задержек мень 150 фс. В резонансном случае центральное положение пика сместилось на 7 нм, в то время как в нерезонансном на 3 нм, что подтверждает связь сдвига пиков в спектре дифференциального пропускания и возбуждением ПРР импульсом накачки. Динамика амплитуд в двух случаях совпадает. Также, в отличие от случая p -поляризованного зонда, меняются ширины пиков: в случае резонансной накачки ширина меняется с 14 до 18 нм за 3 пс, в нерезонансном - с 12 до 15 нм.

8. Выводы к главе

1. Сверхбыстрый лазерный нагрев плазмонной метаповерхности, состоящей из золотых наночастиц, покрытых слоем Bi:YIG, фемтосекундным импульсом с плотностью энергии импульса накачки $0,8 \text{ мДж/см}^2$ может приводить к изменению коэффициента пропускания на 2% на зондирующих длинах волн возбуждения решеточных плазмонных резонансов.
2. Динамика дифференциального пропускания на длинах волн возбуждения решеточных плазмонных резонансов и в спектральной области межзонного перехода в золоте описывается двухтемпературной моделью с характерными для золота параметрами и дополненной скоростным уравнением с временем термализации 200 фс. Для описания динамики дифференциального пропускания в спектральной окрестности квазиволноводных мод необходимо учесть дополнительный процесс с характерным временем релаксации 7 пс.
3. Дифференциальное пропускание на длинах волн возбуждения решеточных плазмонных резонансов и в спектральной области межзонного перехода в золоте линейно зависит от плотности энергии импульса накачки. Аналогичная зависимость в спектральной окрестности квазиволноводных мод нелинейна и степень нелинейности меняется в узком спектральном окне.

Глава III

Пикосекундная динамика оптического отклика магнитоплазмонных кристаллов

Третья глава посвящена экспериментальному и численному исследованию лазерно-индуцированной суб- и пикосекундной динамики оптического отклика в спектральной окрестности возбуждения плазмонных резонансов магнитоплазмонных кристаллов. Были исследованы три кристалла на основе оптически толстых пленок никеля, обладающих синусоидальным профилем поверхности. Проанализировано влияние их геометрических параметров на наблюдаемую динамику. Измерения проводились методом спектроскопии с временным разрешением “зонд-накачка”. Расчеты были выполнены методом конечных элементов в программном пакете Comsol Multiphysics.

1. Геометрические параметры исследуемых магнито-плазмонных кристаллов и метод изготовления

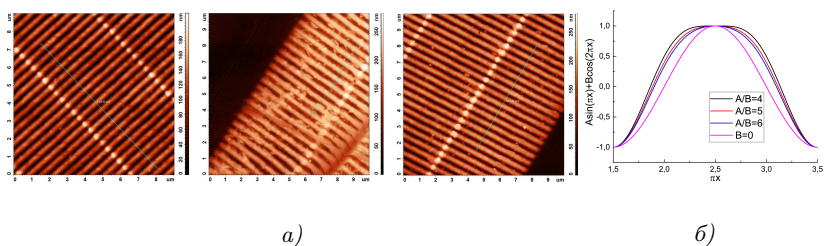


Рис. 3.1: а) - АСМ-изображения образцов; б) - влияние второй пространственной гармоники на форму поверхности.

Плазмонные кристаллы были изготовлены методами электронно-лучевой литографии и гальванопластики. Стекланную подложку толщиной 2,5 мм, предварительно покрытую 50-нм адгезионным слоем хрома, покрыли электроночувствительным резистом (ЭРП-40, толщина 200–500 нм). Форма профиля по-

верхности контролировались временем экспонирования и шириной пучка электронно-лучевого литографа (ZBA-20), после чего проводилось проявление резиста в растворе изопропанол-/метилэтилкетон. На структурированный резист термическим напылением наносился 50-нм слой серебра для обеспечения электропроводности, после чего электрохимическим осаждением формировался никелевый слой (100–200 мкм). Металлические структуры механически отделили от резиста с последующим химическим удалением остаточного серебряного слоя.

В данной работе использовались 3 образца, в последующем изложении образцы будут обозначены индексами 1, 2 и 3. Профиль поверхности образца 1 описывался функцией $y = \frac{A}{2} \sin(2\pi x/D)$, образцы 2 и 3 имели форму, близкую к $y = \frac{A}{2} \sin(\pi x/D) + \frac{B}{2} \cos(2\pi x/D)$, где $A_1 = 90 \pm 5$ нм, $A_2 = 125 \pm 5$ нм, $A_3 = 165 \pm 5$ нм, $B_2 = 8 \pm 5$ нм, $B_3 = 18 \pm 5$ нм, $D = 503$ нм. Рельеф образцов был охарактеризован с помощью атомно-силового (рис. 3.1 а) и растрового электронного (рис. 3.2, верхние панели) микроскопов (АСМ и РЭМ). Пространственные гармоники были получены с помощью Фурье преобразования результатов атомно-силовой микроскопии. При выполнении условия $|A| > 4|B|$ наличие второй пространственной гармоники в форме рельефа не изменяет высоту решетки h и не приводит к появлению дополнительных экстремумов, а только увеличивает ширину полос (рис. 3.1 б). Период образцов был получен с помощью измерения углов дифракции.

2. Оптический отклик магниоплазмонных кристаллов с различными геометрическими параметрами

Были измерены спектры отражения образцов для углов падения θ в диапазоне от 5° до 45° для p -поляризованного света (рис. 3.2, нижние панели). Все спектры демонстрируют асимметричный резонанс Фано, состоящий из острого пика в синей части резонанса и провала в красной части. Пик соответствует аномалии Рэлея, связанной с исчезновением дифракцион-

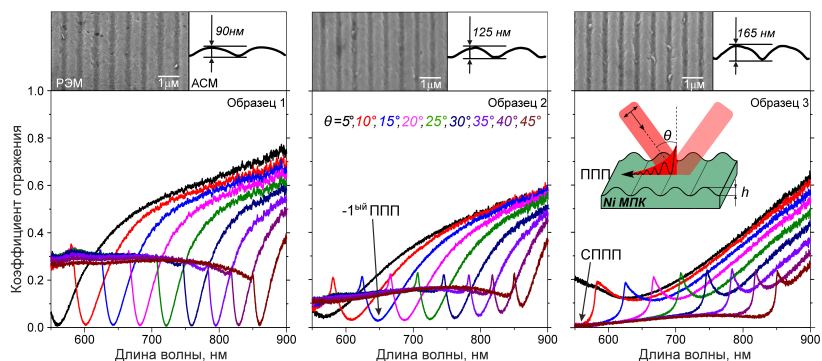


Рис. 3.2: Нижние панели - экспериментальные спектры коэффициента отражения исследуемых МПК для р-поляризованного света и различных углов падения; верхние панели - РЭМ-изображения и сечения АСМ-изображений, представленных на рисунке 3.1.

ного порядка, тогда как провал относится к аномалии Вуда, его спектральное положение определяется формулой 1.12 для ППП -1-го порядка. Спектры отражения существенно зависят от геометрических параметров МПК. Рост высоты дифракционной решетки приводит к уширению плазмонного резонанса и росту коэффициента отражения в минимуме. Наиболее выраженный резонанс с максимальным значением производной $\partial R/\partial \lambda$ наблюдается для образца с минимальной высотой решетки. Снижение нерезонансного плато левее аномалии Рэлея при увеличении h объясняется перераспределением энергии между 0-м и -1-м дифракционными порядками [150].

Экспериментально полученные спектры коэффициента отражения были воспроизведены расчетно (рис. 3.3) в программном пакете Comsol Multiphysics, амплитуды пространственных гармоник варьировались вблизи результатов АСМ-микроскопии. В минимумах резонансов были посчитаны распределения ближних полей, образец с наименьшей высотой решетки продемонстрировал наибольшую локализацию энергии электромагнитного поля вблизи поверхности при возбуждении ППП (рис. 3.3,

верхние панели). Также были посчитаны спектры коэффициента отражения для МПК с не исследованными экспериментально высотами (вложение, рис. 3.3), демонстрирующие немонотонную зависимость минимума R при увеличении h .

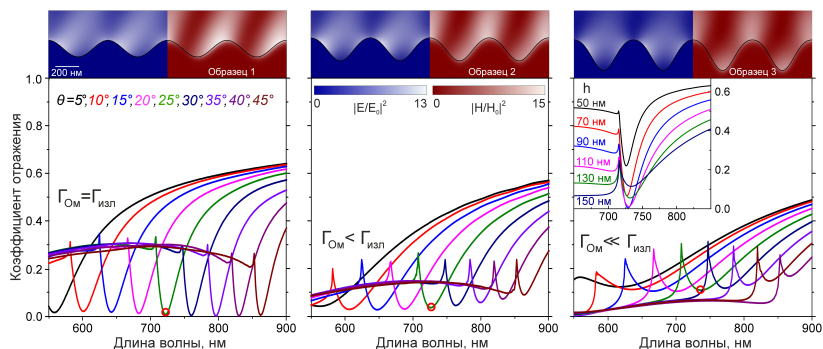


Рис. 3.3: Нижние панели - расчетные спектры коэффициента отражения исследуемых МПК для p -поляризованного света и различных углов падения; верхние панели - распределения ближнего электрического и магнитного полей на длинах волн и углах падения, обозначенных красными кружками; вложение - расчетные спектры коэффициента отражения для МПК с различными высотами.

Такая зависимость спектров оптического отклика от геометрических параметров связана с изменением соотношения между омическими и излучательными потерями. Достижение нуля отражения в минимуме резонанса и максимизация плотности энергии электромагнитного поля подтверждают выполнение условия (1.14) баланса потерь $\Gamma_{rad} = \Gamma_{ohm}$ оптимального связывания падающей волны и ППП для образца 1 с высотой решетки $h \sim 90$ нм. При высотах $h < 90$ нм потери на излучение уменьшаются, омические потери преобладают, падающая волна имеет низкую вероятность преобразоваться в ППП, что соответствует режиму недостаточного связывания. Для образцов 2 и 3 выполняется обратный случай, при $h > 90$ нм потери на излучение оказываются доминирующими, ППП имеет высокую вероятность излучить фотон, выполняется ре-

жим избыточного связывания.

В образце 3 с наибольшей высотой решетки наблюдается дополнительное возбуждение на длине волны $\lambda \sim 550$ нм, характеризующееся широкой спектральной полосой и отсутствием угловой дисперсии. Расчеты подтвердили отсутствие зависимости спектров отражения в окрестности этого возбуждения от угла падения (рис. 3.4 а). Более того, увеличение высоты решетки в численной модели приводило к смещению резонанса в красную область, а зависимость коэффициента отражения от высоты при фиксированной длине волны имела осциллирующий характер (рис. 3.4 б). Данные признаки позволяют идентифицировать это возбуждение как СППП.

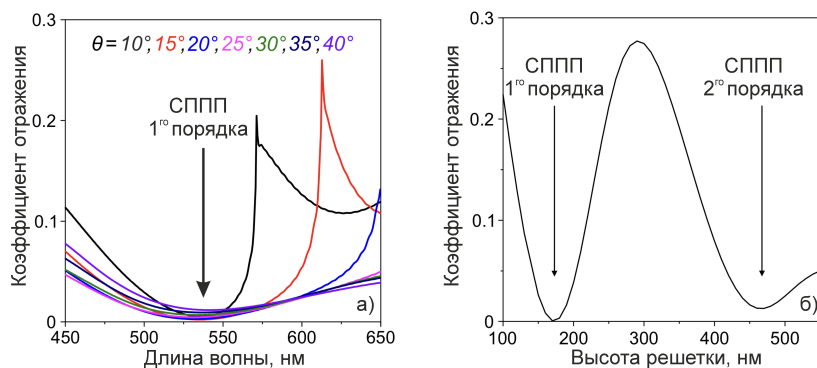


Рис. 3.4: а) - расчетные спектры коэффициента отражения образца 3 в спектральной окрестности СППП для р-поляризованного света и различных углов падения; б) - зависимость коэффициента отражения от высоты решетки при угле падения $\theta = 25^\circ$ и длине волны $\lambda = 550$ нм.

Изменение диэлектрической проницаемости окружающей среды или материала приводит к изменению свойств плазмонного резонанса. Чтобы количественно оценить это влияние, была исследована чувствительность коэффициента отражения МПК к изменению действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости никеля σ_1, σ_2 в виде нормированных

на коэффициент отражения частных производных:

$$\begin{aligned}\sigma_1 &= \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon'} = \frac{R(\varepsilon'_0 + d\varepsilon', \varepsilon''_0) - R(\varepsilon'_0, \varepsilon''_0)}{R(\varepsilon'_0, \varepsilon''_0) d\varepsilon'}, \\ \sigma_2 &= \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon''} = \frac{R(\varepsilon'_0, \varepsilon''_0 + d\varepsilon'') - R(\varepsilon'_0, \varepsilon''_0)}{R(\varepsilon'_0, \varepsilon''_0) d\varepsilon''},\end{aligned}\quad (3.1)$$

где $\varepsilon'_0, \varepsilon''_0$ - действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости никеля, $d\varepsilon'^{(n)} \ll \varepsilon'^{(n)}$ - малая поправка к диэлектрической проницаемости, $R(\varepsilon'_0, \varepsilon''_0)$, $R(\varepsilon'_0 + d\varepsilon', \varepsilon''_0)$, $R(\varepsilon'_0, \varepsilon''_0 + d\varepsilon'')$ - рассчитанные коэффициенты отражения МПК. Спектры чувствительности к диэлектрической проницаемости трех исследуемых образцов представлены на рисунке 3.5. Образец 1, поддерживающий оптимальное связывание и имеющий наиболее острую спектральную особенность, демонстрирует наибольшую чувствительность, причем спектр σ_1 имеет симметричный пик, а спектр σ_2 представляет собой асимметричную форму линии. Отклонение от условия баланса потерь приводит к снижению чувствительности коэффициента отражения к диэлектрической проницаемости, особенно к ее мнимой части.

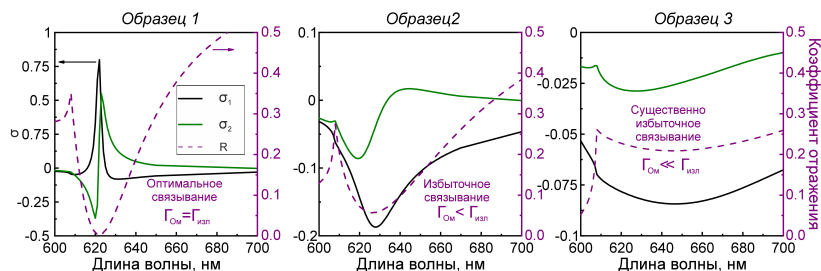


Рис. 3.5: а) - расчетные спектры чувствительности коэффициента отражения МПК к изменению действительной (черная линия) и мнимой (зеленая линия) частей диэлектрической проницаемости и коэффициента отражения (фиолетовая пунктирная линия), угол падения 12° .

Спектры σ_1 и σ_2 , как и влияние высоты решетки на них,

можно объяснить следующим образом. Малая поправка к диэлектрической проницаемости модифицирует комплексный волновой вектор ППП. Дифференцирование закона дисперсии ППП (1.11) по действительной и мнимой частям при значениях $\varepsilon_{Ni}(\lambda = 620 \text{ нм})$ [151] дает:

$$\frac{\partial k_{sp}}{\partial \varepsilon'} = \frac{\omega}{c}(-4 + 12i)10^{-3}, \quad \frac{\partial k_{sp}}{\partial \varepsilon''} = \frac{\omega}{c}(-12 - 4i)10^{-3}.$$

Изменение ε' преимущественно воздействует на мнимую часть волнового вектора, соответствующую омическим потерям ППП Γ_{ohm} , меняя ширину резонанса и его амплитуду через эффективности связывания падающей волны и ППП. Это проявляется симметричным пиком в спектре σ_1 для всех образцов. Образец 1 демонстрирует наибольшую чувствительность к ε' из-за близкого к нулю коэффициента отражения в центре резонанса, хотя величины $\partial R/\partial \varepsilon'$ сопоставимы для всех трех образцов. В свою очередь, изменение ε'' в основном влияет на $Re[k_{ППП}]$, вызывая сдвиг плазмонного резонанса. Поскольку Образец 1 поддерживает наиболее узкий и выраженный резонанс, влияние сдвига на $1/R \cdot \partial R/\partial \varepsilon''$ максимально в изучаемой серии и проявляется асимметричной спектральной особенностью. Для двух других образцов влияние спектрального сдвига ППП на отражение существенно слабее, что объясняет их меньшие значения как σ_2 , так и $\partial R/\partial \varepsilon''$.

Спектр активного плазмонного эффекта может быть описан суперпозицией спектров σ_1 и σ_2 (зеленая и черная кривые на рис. 3.5). Например, дифференциальное отражение при нагреве МПК (1.21). Рост температуры изменяет диэлектрическую проницаемость, модифицируя отражение. Спектр дифференциального отражения можно выразить следующим об-

разом:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta R}{R}(\lambda) &= \int \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon'}(\lambda) d\varepsilon' + \int \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon''}(\lambda) d\varepsilon'' = \\ &= \left[\frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon'}(\lambda) \right] \int \left(\frac{\partial \varepsilon'}{\partial T} \right) dT + \left[\frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon''}(\lambda) \right] \int \left(\frac{\partial \varepsilon''}{\partial T} \right) dT, \end{aligned} \quad (3.2)$$

где члены в квадратных скобках соответствуют плазмонным свойствам, определяемым геометрией МПК, и вносят основной вклад в спектральную форму линии. Члены в круглых скобках определяются материальными свойствами металла и одинаковы для всех образцов. Значения интегралов определяются термодинамическими характеристиками металла и процессом нагрева, выступая в качестве весовых коэффициентов для спектров σ_1 и σ_2 .

3. Сверхбыстрая динамика отражения магнитоплазмонных кристаллов

Сверхбыстрая динамика оптического отклика проводилась с помощью методики “зонд-накачка”. Была использована экспериментальная схема, аналогичная представленной в Главе 2, но детектировался отраженный луч и использовался другой спектрометр Ocean Optics 4000+ с меньшим диапазоном длин волн. Измеряемой величиной выступало дифференциальное отражение, определяемое аналогично формуле (1.21):

$$\frac{\Delta R}{R}(\tau, \lambda) = \frac{R_{pump}(\tau, \lambda) - R_{no pump}(\lambda)}{R_{no pump}(\lambda)}.$$

Зонд падал на образец под углом $\theta = 12^\circ$ и был p -поляризован, вектор обратной решетки МПК лежал параллельно плоскости падения. Импульс накачки имел плотность энергии $J = 7$ мДж/см², падал под нормалью и спектрально находился вдали от плазмонного резонанса. Были получены спектры диф-

ференциального отражения трех МПК и референсной гладкой пластины никеля для широкого диапазона задержек между импульсами накачки и зонда (рис. 3.6, верхний ряд).

Спектры коэффициента отражения (рис. 3.6), нижний ряд) указывают на возбуждение ППП для всех трех образцов с центральными длинами волн 625 нм, 635 нм и 675 нм: пики соответствуют аномалии Рэлея, провалы обусловлены аномалией Вуда. В спектрах дифференциального отражения наблюдаются спектральные особенности вблизи резонансов ППП. Высота решетки влияет как на амплитуду этих особенностей, так и на форму линии спектров. Нагрев поверхности образца импульсом накачки приводит к изменению действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости, что вызывает сдвиг положения плазмонного резонанса, его уширение, изменение амплитуды. Наиболее выраженные изменения оптического отклика (максимальная среди представленных МПК разница $\Delta R/R$ между двумя экстремумами, 13%) наблюдаются для образца 1, поддерживающим оптимальное связывание, спектр дифференциального отражения имеет асимметричную форму линии, характерную для спектрального сдвига ППП. Симметричная кривая с одним экстремумом в спектре $\Delta R/R$ для образца 3 указывает на доминирование вклада от уменьшения амплитуды резонанса. Спектр образца 2 демонстрирует промежуточный случай и максимальные абсолютные значения $\Delta R/R$ (-10%) среди исследуемых образцов. Экспериментальные спектры качественно описываются суперпозицией кривых на рисунке 3.5, но имеют большее уширение по сравнению с расчетными, что объясняется конечной угловой шириной зондового пучка ($\sim 2^\circ$). Коротковолновые части спектров коэффициента отражения и дифференциального отражения образцов 2 и 3 также включают спектральные особенности, обусловленные возбуждением СППП (провал в R , пик в $\Delta R/R$).

Временные зависимости $\Delta R/R$ (рис. 3.7 а) согласуется с ранее опубликованными данными для никеля [1, 4, 6, 87, 91,

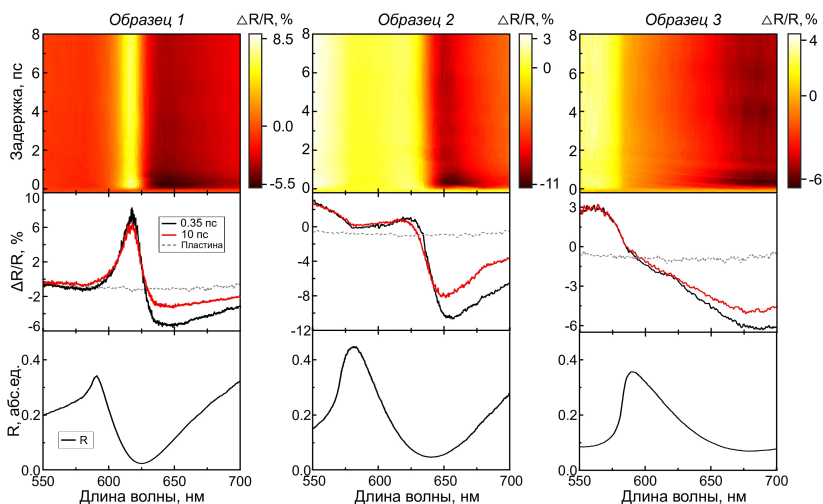


Рис. 3.6: Верхний ряд - экспериментальные зависимости дифференциального отражения от длины волны импульса зонда и времени задержки для трех МПК; средний ряд - спектры дифференциального отражения при различных задержках для трех МПК и референсной никелевой пластины; нижний ряд - экспериментальные спектры коэффициента отражения трех МПК при угле падения $\theta = 12^\circ$.

152]. Наблюдаемые процессы включают начальный рост сигнала (0–200 фс), обусловленный переходом электронов на уровни выше фермиевского под действием импульса накачки и их последующей термализацией за счет электрон-электронных столкновений (десятки фемтосекунд для никеля [87], временное разрешение установки не позволяет получить точное значения для исследуемых образцов), максимум дифференциального отражения достигается при задержке 250 фс, что соответствует литературным данным для аналогичных условий эксперимента; далее следует экспоненциальная релаксация с характерным временем ~ 1 пс, отражающий электрон-фононные взаимодействия [4, 152]; после система возвращается к исходному состоянию за счет диссипации тепла вглубь никеля (времена порядка сотен пикосекунд).

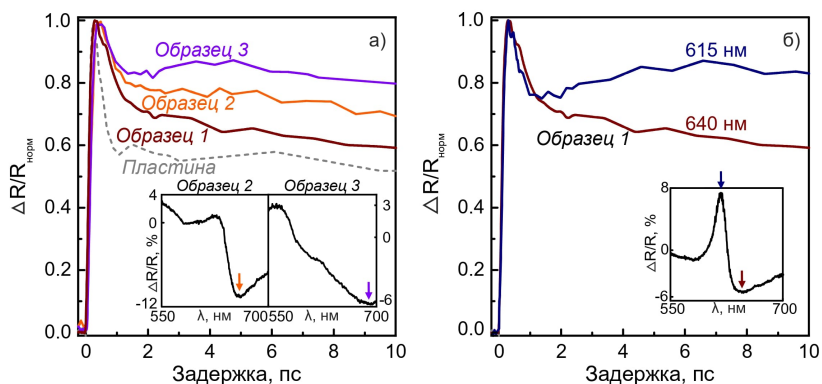


Рис. 3.7: а) - Нормированные на максимум зависимости дифференциального отражения от задержки для трех образцов на длинах волн провалов в спектре $\Delta R/R$ и для референсной никелевой пластины; б) - нормированные на максимум зависимости дифференциального отражения от задержки для образца 1 на длинах волн экстремумов в спектре $\Delta R/R$; вставки а) и б) - спектры $\Delta R/R$, стрелочками обозначены длины волн представленных временных сечений.

Представленные на рисунке 3.7 а) зависимости получены на длинах волн, соответствующих минимумам в спектрах $\Delta R/R$. Увеличение высоты решетки приводит к большим значениям дифференциального отражения по завершению электрон-фононной релаксации, что соответствует увеличению вклада фононов в изменение оптического отклика относительно электронов. Для референсной пластины никеля динамика дифференциального отражения не зависит от длины волны импульса зонда. Временные зависимости $\Delta R/R(\tau)$ для МПК изменяются с длиной волны и могут качественно отличаться от типичных объемных металлов. Существенное отклонение от динамики объемного никеля наблюдается для образца 1 на длинах волн вблизи максимума в спектре $\Delta R/R$ (рис. 3.7 б): возникает дополнительный пик длительностью в несколько пикосекунд. При этом на длине волны провала $\Delta R/R(\tau)$ сохраняется монотонная релаксация, типичная для никеля. Спектральная

зависимость эволюции оптического отклика также проявляется в двух других образцах, однако вариации релаксационных кривых с длиной волны зонда максимальны для образца 1 с оптимальным связыванием и минимальны для образца 3.

Аналогичные временные особенности ранее наблюдались при сверхбыстром нагреве плазмонных и зондировании вблизи межзонного перехода в золоте. Высокая температурная нелинейность оптического отклика горячих электронов за пределами возмущающего режима приводила к немонотонным релаксационным кривым и зависимости эволюции диэлектрической проницаемости от длины волны [22]. Указанные эффекты обусловлены материальными резонансами в золоте, тогда как никель не обладает выраженными резонансами в оптическом диапазоне. Следовательно, наблюдаемые особенности в никелевых плазмонных кристаллах могут быть отнесены к конфигурационным резонансам.

4. Численный анализ сверхбыстрой динамики отражения магнитоплазмонных кристаллов

Для анализа динамики дифференциального отражения применим качественный математический подход, основанный на чувствительности коэффициента отражения к диэлектрической проницаемости и двухтемпературной модели (1.16), в которой теплопроводность задается как $\chi = \chi_0 T_e / T_e^0$ [6], T_e^0 - начальная температура. Эволюция оптического отклика определяется производной dR/dt . Для упрощения предположим, что поверхностный слой никеля равномерно нагрет до некоторых эффективных температур электронов $T_{эфф}^e$ и фононов $T_{эфф}^p$. Тогда множитель $\partial \varepsilon^{(n)} / \partial T \cdot dT$ в уравнении 3.2 можно преобразовать в сумму $\partial \varepsilon^{(n)} / \partial T_{эфф}^e \cdot dT_{эфф}^e + \partial \varepsilon^{(n)} / \partial T_{эфф}^p \cdot dT_{эфф}^p$. Дифференцирование уравнения (3.2) по времени приводит к

выражению:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \left(\frac{\Delta R}{R} \right) = \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon'} (\lambda) \left(\frac{\partial \varepsilon'}{\partial T_{\varepsilon\phi\phi}^e} \frac{dT_{\varepsilon\phi\phi}^e}{dt} + \frac{\partial \varepsilon'}{\partial T_{\varepsilon\phi\phi}^p} \frac{dT_{\varepsilon\phi\phi}^p}{dt} \right) + \\ + \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon''} (\lambda) \left(\frac{\partial \varepsilon''}{\partial T_{\varepsilon\phi\phi}^e} \frac{dT_{\varepsilon\phi\phi}^e}{dt} + \frac{\partial \varepsilon''}{\partial T_{\varepsilon\phi\phi}^p} \frac{dT_{\varepsilon\phi\phi}^p}{dt} \right). \end{aligned} \quad (3.3)$$

Аномальный экстремум в сечении дифференциального отражения по времени возникает в процессе электрон-фононной релаксации в течение первых нескольких пикосекунд. К этому моменту лазерное воздействие завершено, а тепловой поток пренебрежимо мал, так как диффузия горячих электронов происходит за сотни фемтосекунд, а рассеяние тепла в объеме металла имеет характерный временной масштаб сотни пикосекунд [6, 11]. Эти допущения позволяют вывести из двухтемпературной модели соотношение между температурами электронов и фононов:

$$\gamma T_{\varepsilon\phi\phi}^e \frac{dT_{\varepsilon\phi\phi}^e}{dt} = -C_p \frac{dT_{\varepsilon\phi\phi}^p}{dt}.$$

Подстановка этого выражения в уравнение (3.3) дает:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \left(\frac{\Delta R}{R} \right) = \left[\frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon'} (\lambda) \left(-\frac{C_p}{\gamma T_e} \frac{\partial \varepsilon'}{\partial T_{\varepsilon\phi\phi}^e} + \frac{\partial \varepsilon'}{\partial T_{\varepsilon\phi\phi}^p} \right) + \right. \\ \left. + \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon''} (\lambda) \left(-\frac{C_p}{\gamma T_e} \frac{\partial \varepsilon''}{\partial T_{\varepsilon\phi\phi}^e} + \frac{\partial \varepsilon''}{\partial T_{\varepsilon\phi\phi}^p} \right) \right] \frac{dT_{\varepsilon\phi\phi}^p}{dt}. \end{aligned} \quad (3.4)$$

Таким образом, динамика дифференциального отражения определяется тремя факторами:

1. Чувствительностью оптического отклика к диэлектрической проницаемости ($1/R \cdot \partial R / \partial \varepsilon$),
2. Зависимостью диэлектрической проницаемости от температуры ($\partial \varepsilon / \partial T_{\varepsilon\phi\phi}$),

3. Динамикой температуры фононов ($dT_{эфф}^p/dt$).

Первый член отражает плазмонные свойства системы, второй определяется оптическими характеристиками материала, а третий связан с термодинамическими свойствами. Поскольку плазмонный член может существенно изменяться в зависимости от длины волны, это позволяет варьировать соотношение вкладов от изменения действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости в общую эволюцию дифференциального отражения и настраивать временной отклик путем выбора длины волны зондирующего импульса.

На исследуемом временном масштабе температура фононов монотонно возрастает, $dT_{эфф}^p/dt > 0$, а производная зависимости $\Delta R/R(\tau)$ меняет знак или остается знакопостоянной в зависимости от длины волны и образца (рис. 3.7). Тогда для воспроизведения динамики, наблюдаемой в эксперименте, выражения в квадратных скобках уравнения (3.4) должны зависеть как от времени, так и от длины волны. Временная зависимость обеспечивается членами в круглых скобках, тогда как плазмонные компоненты ($1/R \cdot \partial R/\partial \varepsilon$) выступают в роли весовых коэффициентов в суперпозиции. Варьируя длину волны, можно сохранять или изменять знак выражения (3.4) в течение времени релаксации электрон-фононной системы (τ_{ep}).

Зависимость от времени множителей в круглых скобках уравнения (3.4) определяется зависимостью диэлектрической проницаемости от $T_{эфф}^e$ и $T_{эфф}^p$. Поскольку теплоемкость электронного газа линейно зависит от температуры, его количество теплоты имеет квадратичную зависимость от $T_{эфф}^e$, в то время как тепловая энергия фононов линейна по $T_{эфф}^p$. Для металлов, описываемых моделью Друде, изменения скорости столкновений электронов при нагреве влияют на диэлектрическую проницаемость [15]. Она линейно зависит от T^p [15, 16] и квадратично — от T^e [17], но в обоих случаях связь с плотностью энергии импульса накачки остается линейной. Подстановка $\varepsilon(T_{эфф}^e, T_{эфф}^p) = aT_{эфф}^e{}^2 + bT_{эфф}^p$ в уравнение (3.4) приводит

к тому, что множители в круглых скобках перестают зависеть от времени. Это указывает на необходимость учета нелинейной поправки диэлектрической проницаемости по плотности энергии импульса накачки. Поскольку дополнительный экстремум $\Delta R/R(\tau)$ наблюдаются при задержках, значительно превышающих начальный пик горячих электронов, можно предположить нелинейность только от фононной температуры:

$$\varepsilon'^{(n)}(T_{эфф}^e, T_{эфф}^p) = a'^{(n)}[T_{эфф}^e]^2 + b'^{(n)}T_{эфф}^p + c'^{(n)}[T_{эфф}^p]^2 + const, \quad (3.5)$$

где $a', a'', b', b'', c', c''$ — константы. Нелинейная температурная зависимость диэлектрической проницаемости была экспериментально подтверждена для никеля в стационарных условиях [153]. Подставляя зависимость (3.5) в уравнение (3.4), получаем:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \left(\frac{\Delta R}{R} \right) = & \left[\frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon'}(\lambda) \left(-\frac{2a'C_p}{\gamma} + b' + 2c'T_{эфф}^p \right) + \right. \\ & \left. + \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon''}(\lambda) \left(-\frac{2a''C_p}{\gamma} + b'' + 2c''T_{эфф}^p \right) \right] \frac{dT_{эфф}^p}{dt}. \end{aligned} \quad (3.6)$$

Для проверки гипотезы были проведены оптические и температурные расчеты в программном пакете Comsol Multiphysics. При моделировании воспроизводились геометрическая конфигурация образцов (период, форма поверхности, высота решеток) и условия эксперимента (угол падения, поляризация, плотность энергии импульса накачки). Сначала выполнялись электромагнитные расчеты для импульсов накачки и зондирования (рис. 3.8, верхний ряд).

Пространственное распределение поглощенной мощности импульса накачки соответствует нагреву МПК и определяет профиль теплового источника $P(t, x, y)$ в расчетах двухтемпературной модели. Временная огибающая $P(t, x, y)$ задавалась гауссовым импульсом длительностью 70 фс. В результате расчетов ТТМ получены пространственно-временные распределе-

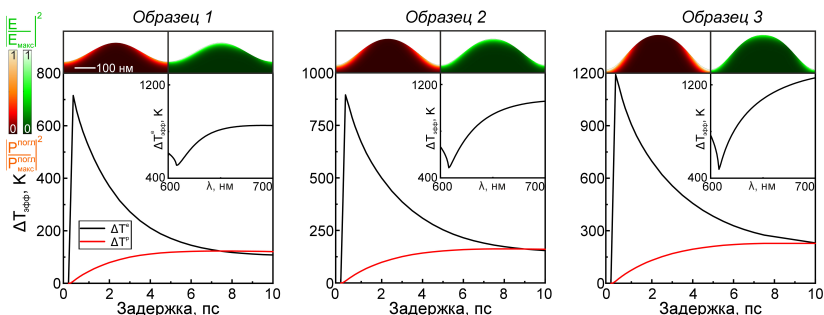


Рис. 3.8: Верхний ряд - распределение поглощенной мощности импульса накачки (оранжевый) и ближнего электрического поля импульса зонда на длине волны возбуждения ППП для трех образцов; нижний панели - зависимость эффективных фоновой и электронной температур от ряд для трех образцов; вставки - спектры эффективных электронных температур при задержке 250 фс.

ния температур электронов $T^e(x, y, t)$ и фононов $T^p(x, y, t)$.

Из-за неоднородного распределения температуры и ближнего поля зондирующего импульса нельзя однозначно связать измеряемый коэффициент отражения с конкретным значением температуры. Поэтому введены эффективные температуры $T_{\text{эфф}}^{e(p)}(t, \lambda_{\text{зонд}})$ - средние температуры, детектируемые ближним полем зонда (рис. 3.8, нижний ряд):

$$T_{\text{эфф}}^{e(p)}(t, \lambda_{\text{зонд}}) = \frac{\int_V |E(x, y, \lambda_{\text{зонд}})|^2 T^{e(p)}(x, y, t) dV}{\int_V |E(x, y, \lambda_{\text{зонд}})|^2 dV}, \quad (3.7)$$

где $E(x, y, \lambda)$ — электрическое поле зондирующего импульса в МПК, а V — его объем. Спектральная зависимость $T_{\text{эфф}}^{e(p)}$ обусловлена разным перекрытием ближнего электрического поля зондирующего импульса и пространственного распределения температур. В центре резонанса поле локализовано вдоль поверхности кристалла, что приводит к детектированию как холодных, так и горячих областей. Вне резонанса поле концентрируется в углублениях решетки, совпадая с зонами нагрева.

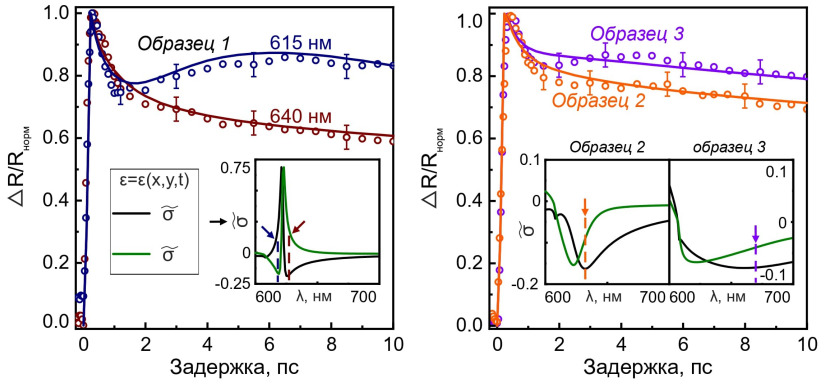


Рис. 3.9: Рассчитанные и экспериментальные нормированные на максимум зависимости дифференциального отражения от задержки для трех образцов; вложения - скорректированные чувствительности коэффициента отражения МПК к изменению диэлектрической проницаемости

Рост поглощения вне резонанса с увеличением высоты решетки повышает максимальную эффективную температуру (рис. 3.8), что объясняет расхождение между близкими максимальными абсолютными значениями dR/R (рис. 3.6) и существенно разной чувствительностью образцов (рис. 3.5). Помимо различий в абсолютных значениях, температурная динамика в образцах также отличается: равновесие между T_e и T_p достигается быстрее в МПК с меньшей высотой рельефа. Замедление процесса связано с тепловой диффузией вдоль стенок плазмонного кристалла.

Для учета неоднородного нагрева были скорректированы производные коэффициента отражения по диэлектрической проницаемости (вложения, рис. 3.9). Вместо пространственно однородного возмущения $\varepsilon = \varepsilon_0 + d\varepsilon$ в уравнении (3.1) использовалось локальное возмущение:

$$\tilde{\varepsilon}_{e(p)}^{(n)}(x, y, t) = \varepsilon_0^{(n)} + d\varepsilon \cdot \frac{T^{e(p)}(x, y, t) - T_0}{T_{эфф}^{e(p)}(t) - T_0},$$

где $d\varepsilon \ll \varepsilon$, $T_0 = 293$ К — начальная температура. Спектры отражения образцов были пересчитаны, а скорректированные производные для температур электронов и фононов получены с использованием уравнения:

$$\widetilde{\sigma}_1 = \frac{\partial \widetilde{R}}{\partial \varepsilon'_{e(p)}} = \frac{R(\widetilde{\varepsilon}'_{e(p)}(x, y, t), \varepsilon''_0) - R(\varepsilon'_0, \varepsilon''_0)}{d\varepsilon}. \quad (3.8)$$

Аналогично рассчитывается $\widetilde{\sigma}_2$. Производные зависят от времени из-за тепловой диффузии, однако эта зависимость слабая. В отличие от рисунка 3.5, где для каждого образца амплитуды черной и зеленой кривых отличаются друг от друга, на рисунке 3.9 соответствующие кривые имеют сопоставимые амплитуды, но спектрально разделенные экстремумы. Образец с оптимальным связыванием демонстрирует наиболее острый контраст между $\widetilde{\sigma}_1$ и $\widetilde{\sigma}_2$.

Динамика температур и скорректированные производные использовались для аппроксимации экспериментальных кривых $\Delta R/R(\lambda, \tau)$ (рис. 3.7). В качестве аппроксимирующей функции использовался интеграл по времени уравнения (3.6):

$$\begin{aligned} \frac{\Delta R}{R}(\tau, \lambda) = & \alpha(\tau, \lambda) ([T_{\text{эфф}}^e(\tau, \lambda)]^2 - [T_{\text{эфф}}^e(0, \lambda)]^2) + \\ & + \beta(\tau, \lambda) ([T_{\text{эфф}}^p(\tau, \lambda)]^2 - [T_{\text{эфф}}^p(0, \lambda)]^2) + \gamma(\tau, \lambda) \Delta T_{\text{эфф}}^p(\tau, \lambda), \end{aligned}$$

где функции $\alpha(\tau, \lambda)$, $\beta(\tau, \lambda)$, $\gamma(\tau, \lambda)$ определялись скорректированными чувствительностями коэффициента отражения:

$$\begin{aligned} \alpha(\tau, \lambda) &= a' \widetilde{\sigma}_1(\tau, \lambda) + a'' \widetilde{\sigma}_2(\tau, \lambda), \\ \beta(\tau, \lambda) &= b' \widetilde{\sigma}_1(\tau, \lambda) + b'' \widetilde{\sigma}_2(\tau, \lambda), \\ \gamma(\tau, \lambda) &= c' \widetilde{\sigma}_1(\tau, \lambda) + c'' \widetilde{\sigma}_2(\tau, \lambda), \end{aligned}$$

а a' , a'' , b' , b'' , c' , c'' — константы. Параметры ТТМ (g, γ, k, C_P) и константы a' , a'' , b' , b'' , c' , c'' были едиными для всех образцов и оптимизированы для наилучшего воспроизведения экспери-

ментальных данных. Длины волн зондирования также подбирались для каждой кривой и совпали с экстремумами скорректированных производных (стрелки на вставках рис. 3.9). Аппроксимация проводилась одновременно для трех образцов. Наилучшее соответствие расчетных и экспериментальных данных достигнуто при параметрах: $g = 27 \times 10^{16}$ Вт/м³К, $\gamma = 1670$ Дж/м³К, $k_0 = 99,3$ Вт/мК, $C_p = 3,26 \times 10^6$ Дж/мК, что согласуется с предыдущими исследованиями [1, 4, 6, 87, 92].

Хотя квадратичная зависимость диэлектрической проницаемости от температуры фононов учитывалась для всех образцов, она проявилась лишь в узком спектральном окне для образца 1. Это связано с тем, что области резонансной чувствительности коэффициента отражения к мнимой и действительной частям диэлектрической проницаемости спектрально сепарированы благодаря оптимальному связыванию. Это приводит к тому, что квадратичный по фононной температуре вклад от действительной части диэлектрической проницаемости только в узком спектральном окне оказывается достаточно большим, чтобы изменить знак производной в уравнении (3.6). Для двух других образцов зависимости $\widetilde{\sigma}_1(\lambda)$ и $\widetilde{\sigma}_2(\lambda)$ спектрально более однородны, и такие области отсутствуют.

5. Выводы к главе

1. Сверхбыстрый лазерный нагрев никелевого плазмонного кристалла с синусоидальной формой поверхности фемтосекундным импульсом с плотностью энергии импульса накачки 7 мДж/см^2 может приводить к изменению коэффициента пропускания вплоть до 10% при зондировании в спектральной окрестности плазмонного резонанса.
2. Геометрические параметры плазмонного кристалла определяют соотношение вкладов электронной и фононной температур в дифференциальное отражение на длинах волн возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов зондирующим импульсом.
3. Оптимальное связывание падающей волны и поверхностного плазмон-поляритона приводит к спектральной сепарации вкладов изменения действительной и мнимой частей в сверхбыстрый оптический отклик, что позволяет управлять формой релаксационной линии дифференциального отражения длиной волны импульса зонда.

Глава IV

Субпикосекундная динамика экваториального магнитооптического эффекта Керра при сверхбыстром неоднородном размагничивании магнитоплазменных кристаллов

Четвертая глава посвящена экспериментальному и численному исследованию субпикосекундной динамики экваториального магнитооптического эффекта Керра в спектральной окрестности возбуждения стоячих и бегущих поверхностных плазмон-ов при неоднородном лазерно-индуцированном сверхбыстром размагничивании магнитоплазменных кристаллов. Были исследованы три МПК, описанные в предыдущей главе. Измерения проводились методом спектроскопии с временным разрешением “зонд-накачка”. Расчеты были выполнены методом конечных элементов в программном пакете Comsol Multiphysics. Магнитооптические свойства данных образцов в постоянном магнитном поле были исследованы ранее в работе [154].

1. Сверхбыстрая динамика экваториального магнитооптического эффекта Керра

Для измерения сверхбыстрой динамики ЭМОЭК использовалась установка, описанная в Главе 2. Детектировался отраженный луч, спектры образцов 1 и 2 были получены с помощью спектрометра Ocean Optics 4000+, для получения спектров образца 3 использовался другой спектрометр Ocean Flame T с большим диапазоном длин волн для наблюдения динамики ЭМОЭК на длинах волн возбуждения СППП. Импульс зонда был p -поляризован, на образцы 1 и 2 падал под углом $\theta = 12^\circ$. Угол падения для образца 3 был увеличен до $\theta = 13^\circ$, чтобы спектрально отдалить СППП и ППП. Вектор обратной решетки МПК лежал параллельно плоскости падения. Как и в предыдущей главе, импульс накачки имел плотность энергии $J = 7 \text{ мДж/см}^2$, падал под нормалью и спектрально находился

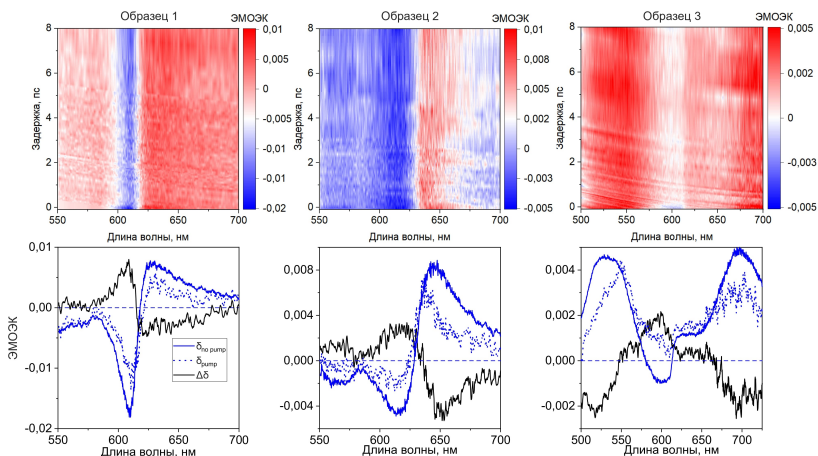


Рис. 4.1: Верхний ряд - экспериментальная зависимость ЭМОЭК от длины волны и времени задержки для трех образцов; нижний ряд - спектры ЭМОЭК $\delta_{\text{питр}}$ спустя $\tau = 700$ фс после воздействия импульсом накачки, спектры ЭМОЭК при отсутствии накачки $\delta_{\text{по питр}}$ и их разница $\Delta\delta$ для трех образцов.

вдали от плазмонного резонанса. Основным отличием экспериментальной установки от Глав 2 и 3 было наличие постоянного магнитного поля, приложенного к образцу в экваториальной геометрии (перпендикулярно плоскости падения) с помощью постоянных магнитов, изменение ориентации магнитного поля производилось заменой магнитов разной полярности один на другой сервоприводом, подключенным к микроконтроллеру. Индукция магнитного поля в области образца составляла 500 Гс, что превышает поле насыщения никеля. Для измерения значений ЭМОЭК формула (1.26) была преобразована для ускорения детектирования:

$$\delta(\tau) = \frac{R(\mathbf{H}, \tau) - R(-\mathbf{H}, \tau)}{R(0, \tau)} \approx 2 \frac{R(\mathbf{H}, \tau) - R(-\mathbf{H}, \tau)}{R(\mathbf{H}, \tau) + R(-\mathbf{H}, \tau)}, \quad (4.1)$$

где τ - время задержки между импульсами зонда и накачки. Были получены спектры ЭМОЭК для трех образцов при

различных задержках (рис. 4.1). Также были измерены спектры ЭМОЭК трех образцов при отсутствии импульса накачки $\delta_{\text{по румр}}$. Величина $\Delta\delta(\tau) = \delta_{\text{румр}}(\tau) - \delta_{\text{по румр}}$ показывает, насколько изменился спектр ЭМОЭК под действием импульса накачки.

Невозмущенные спектры ЭМОЭК $\delta_{\text{по румр}}$ для образцов 1 и 2 имеют знакопеременные формы линии с двумя экстремумами в окрестности плазмонного резонанса, для образца 1 значения $\delta_{\text{по румр}}$ меняются от $\approx -1,75\%$ до $\approx 0,75\%$, для образца 2 – от $\approx -0,45\%$ до $\approx 0,85\%$. В спектре $\delta_{\text{по румр}}$ образца 3 присутствуют две резонансных особенности: при возбуждении ППП спектр ЭМОЭК имеет симметричный максимум со значением $\delta \approx 0,5\%$, при возбуждении стоячего плазмона $\delta(\lambda)$ представляет собой асимметричную знакопеременную кривую с максимальным значением $\delta \approx 0,45\%$ и минимальным $\delta \approx -0,1\%$. Под действием импульса накачки значения ЭМОЭК в спектральной окрестности плазмонного резонанса для образцов 1 и 2 уменьшаются, при задержке 700 фс на значения $\delta_{\text{румр}}$ снижаются на $\sim 60\%$. В случае образца 3 при возбуждении ППП импульсом зонда значения ЭМОЭК снижаются на $\sim 40\%$. Форма спектра вблизи плазмонного резонанса для всех тех образцов не меняется. Также в спектрах образцов 1 и 2 наблюдается спектральный сдвиг кривой $\delta_{\text{румр}}$ относительно $\delta_{\text{по румр}}$ на 3 нм, что связано со сдвигом плазмонного резонанса из-за изменением мнимой части диэлектрической проницаемости при нагреве элеронного газа.

Уменьшение значений ЭМОЭК $\delta_{\text{румр}}$ под действием импульса накачки связано со сверхбыстрым размагничиванием образца при увеличении электронной и фононной температур. При электрон-фононном рассеянии электрон имеет вероятность изменить ориентацию своего спина через механизм Эллиотта–Яфета, обусловленного спин-орбитальным взаимодействием [14]. Поскольку образец изначально намагничен, такие случайные изменения спинов в нагретой области статистически уменьшают общую намагниченность.

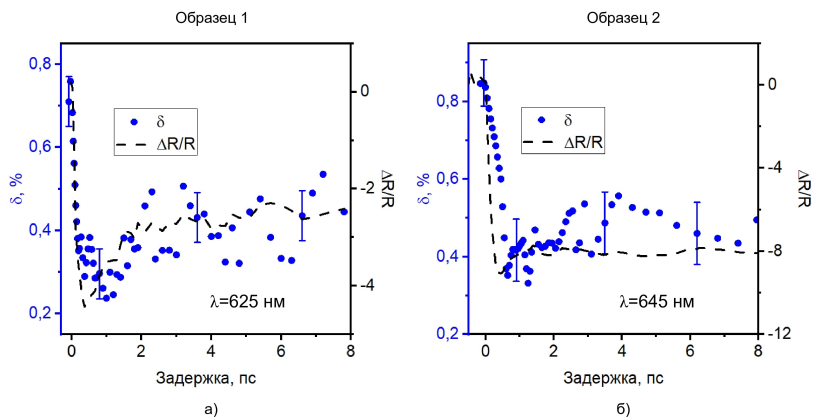


Рис. 4.2: Зависимость ЭМОЭК δ (синие точки) и дифференциального отражения $\Delta R/R$ (черный пунктир) от времени задержки на длинах волн возбуждения ППП для образца 1 (625 нм, рис. а) образца 2 (645 нм, рис. б).

В случае образца 3 в области возбуждения СППП спектральная зависимость ЭМОЭК $\delta_{\text{рнтр}}(\lambda)$ качественно отличается от $\delta_{\text{порнтр}}(\lambda)$: знакопеременная кривая с двумя экстремумами преобразуется в знакпостоянную кривую с одним максимумом, достигающим значений $\delta \approx 0,4\%$. В результате, величина ЭМОЭК на коротковолновом склоне резонанса уменьшается, в центре резонанса – сохраняется, а на длинноволновом склоне резонанса значения δ увеличиваются и меняют знак с отрицательного на положительный. Данные особенности нельзя связать с изменением диэлектрической проницаемости при нагреве, так как спектры дифференциального пропускания образца 3 демонстрируют изменение ширины и амплитуды резонанса, но не сдвиг (Глава 3). Также переворот знака $\delta_{\text{рнтр}}$ не может быть связан с локальным перемagnetизацией никеля. Экспериментально переворот намагнитченности никеля еще не наблюдался, теоретически подобное явление предсказано для больших длительностей импульса и меньших плотностей энергии [132]. Однако даже если такой эффект про-

являлся, он бы приводил к изменению знака ЭМОЭК как в спектральной окрестности СППП, так и ППП.

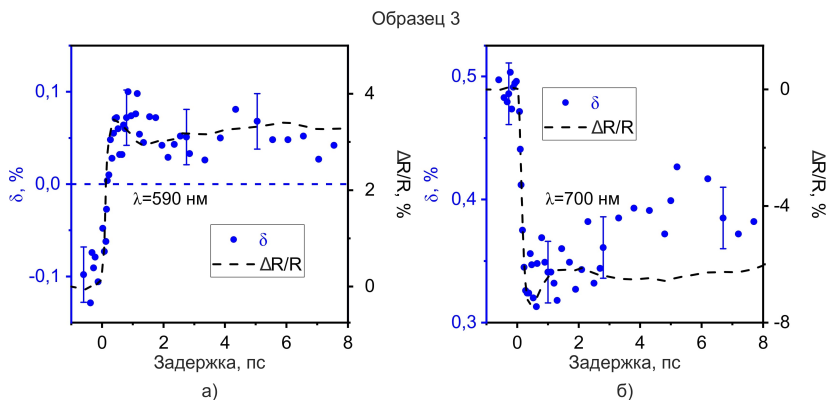


Рис. 4.3: Зависимость ЭМОЭК δ (синие точки) и дифференциального отражения $\Delta R/R$ (черный пунктир) от времени задержки для образца 3 на длинах волн возбуждения стоячего поверхностного плазмона (590 нм, рис. а) и поверхностного плазмон-поляритона (700 нм, рис. б).

Динамика процесса размагничивания следует за динамикой электронной температуры с небольшим запаздыванием. На рисунке 4.2 (синие точки) представлена зависимость $\delta(\tau)$ на длине волны возбуждения ППП для образцов 1 и 2, кривая $\delta_{\text{rump}}(\tau)$ представляет типичную зависимость от времени для сверхбыстрого размагничивания никеля [4, 14]. Под действием импульса накачки величина ЭМОЭК начинает снижаться и достигает минимального значения при временной задержке 700 фс, знак δ не меняется. После чего ЭМОЭК начинает расти - происходит процесс восстановления намагниченности. Аналогичная зависимость наблюдается для образца 3 в спектральной окрестности плазмонного резонанса (синие точки, рис. 4.3, б). Зависимость $\delta(\tau)$ на длинноволновом склоне резонанса стоячего плазмона имеет близкую форму (синие точки, рис. 4.3, а): рост, максимум при $\tau \approx 700$ фс, релаксация. Однако в этом случае $\delta(\tau)$ меняет знак с отрицательного на

положительный и переходит через нулевое значение при времени задержки $\tau = 150$ фс, при этом производная по времени $\partial\delta_{\text{pump}}(\tau)/\partial\tau$ не имеет особенностей, что говорит об отсутствии какого-либо характерного процесса, ответственного за изменение знака ЭМОЭК.

2. Численный анализ динамики экваториального магнитооптического эффекта Керра при неоднородном размагничивании

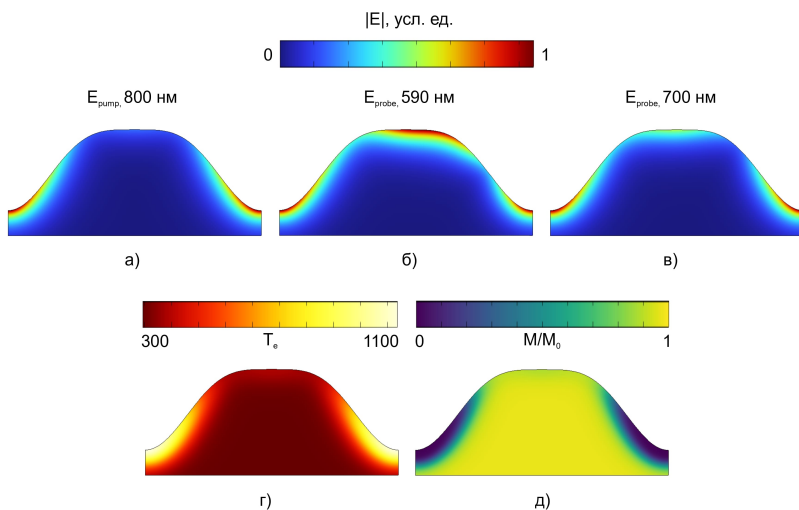


Рис. 4.4: Верхний ряд - распределение ближних электрических полей импульса накачки (а) и импульса зонда на длинах волн возбуждения СППП (590 нм, б) и ППП (700 нм, в); нижний ряд - электронная температура (г) и нормированная намагниченность (д) при задержке между импульсами зонда и накачки 700 фс и при плотности энергии импульса накачки $J = 2, 3 \text{ мДж/см}^2$.

Как было показано в Главе 3, импульс накачки вызывает неоднородный нагрев поверхности МПК. На рисунке 4.4 а) показано распределение ближнего электрического поля импульса накачки в образе 3. Импульс накачки преимущественно по-

глощается в дне образца и почти не затрагивает вершины. При этом импульс зонда локализован как на дне, так и в вершинах МПК (рис. 4.4 б и в). Особенно это проявляется на длинах волн возбуждения СППП (590 нм).

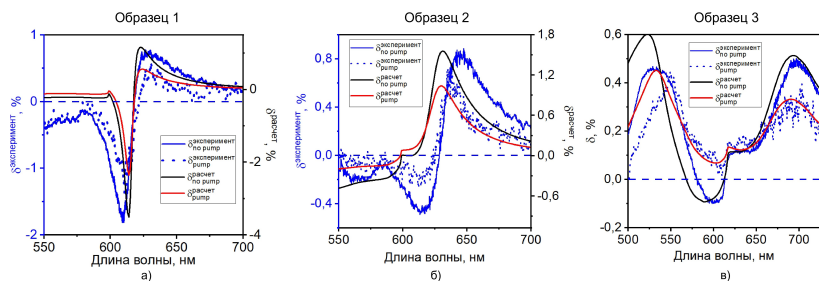


Рис. 4.5: Экспериментальные (синие линии и синие точки) и расчетные (черные и красные линии) спектры ЭМОЭК спустя $\tau = 700$ фс после воздействия импульсом накачки δ_{pump} и при отсутствии накачки $\delta_{\text{no pump}}$ для трех образцов. Плотность энергии импульса накачки в расчетах $J = 2, 3$ мДж/см².

Для исследования влияния этой неоднородности, состояние намагниченности поверхности МПК $m(x, y, \tau)$ было посчитано на основе трех связанных дифференциальных уравнений (1.31): двухтемпературной модели 1.16 и рассеяния Эллиота–Яфета. Параметры двухтемпературной модели были взяты из Главы 3, константа $R = 15$ пс⁻¹. Полученные распределения намагниченности образцов были использованы для расчета ЭМОЭК, константа гирации была взята из [155], спектр ЭМОЭК в стационарном случае был рассчитан при намагниченности насыщения всего образца (рис. 4.5, черные линии). Расчетные значения ЭМОЭК завышены по сравнению с экспериментальными, что связано с высокой угловой расходимостью пучка зонда и низкой чувствительностью к околонулевым значениям отражения. Наиболее сильно это проявляется для образцов 1 и 2. Так как у образца 3 гораздо ниже добротность и выше коэффициент отражения в центре резонанса, эти факторы имеют меньшее влияние на значения ЭМОЭК. Каче-

ственно воспроизвести экспериментально наблюдаемое изменение ЭМОЭК удалось при существенно заниженной плотности энергии импульса накачки $J = 2, 3$ мДж/см² по сравнению с используемой в эксперименте (7 мДж/см²) (рис. 4.5, красные линии). В спектральной окрестности возбуждения ППП также наблюдается снижение ЭМОЭК на $\sim 60\%$ для образца 1, для образцов 2 и 3 - на $\sim 40\%$. Вблизи СППП наблюдается снижения значений ЭМОЭК и спектральный сдвиг положительного экстремума, отрицательный экстремум переходит из отрицательной полуплоскости в положительную, воспроизводится изменение знака ЭМОЭК при размагничивании.

На рисунке 4.4 г) показано распределение электронной температуры спустя 700 фс после воздействия импульса накачки при плотности энергии $J = 2, 3$ мДж/см². Температура на дне образца существенно превышает температуру Кюри никеля (630 К), вершины остаются при температуре, близкой к комнатной. Это приводит к полному размагничиванию дна МПК, частичному размагничиванию стенок, вершины при этом остаются намагничены (рис. 4.4 д). Температура и намагниченность двух других образцов имеют аналогичные распределения.

На рисунке 4.6 представлены экспериментальные (синие точки) и расчетные (черные линии) временные зависимости ЭМОЭК для трех образцов. С помощью численной модели удалось воспроизвести экспериментальные данные для образцов 1 и 3 на масштабах времени 0-3 пс, когда происходит процесс размагничивания и начинается восстановление намагниченности. Однако, в расчетах значения ЭМОЭК восстанавливаются до стационарных гораздо быстрее, из-за чего на временах больше 3 пс начинает наблюдаться заметное расхождение. Для образца 3 на длине волны 590 нм удалось воспроизвести изменение знака δ . Переход через ноль происходит при задержке $\tau = 200$ фс без заметных изменений в производной по времени. Таким образом, эффект изменения знака ЭМОЭК связан размагничиванием. В случае образца 2 форма расчет-

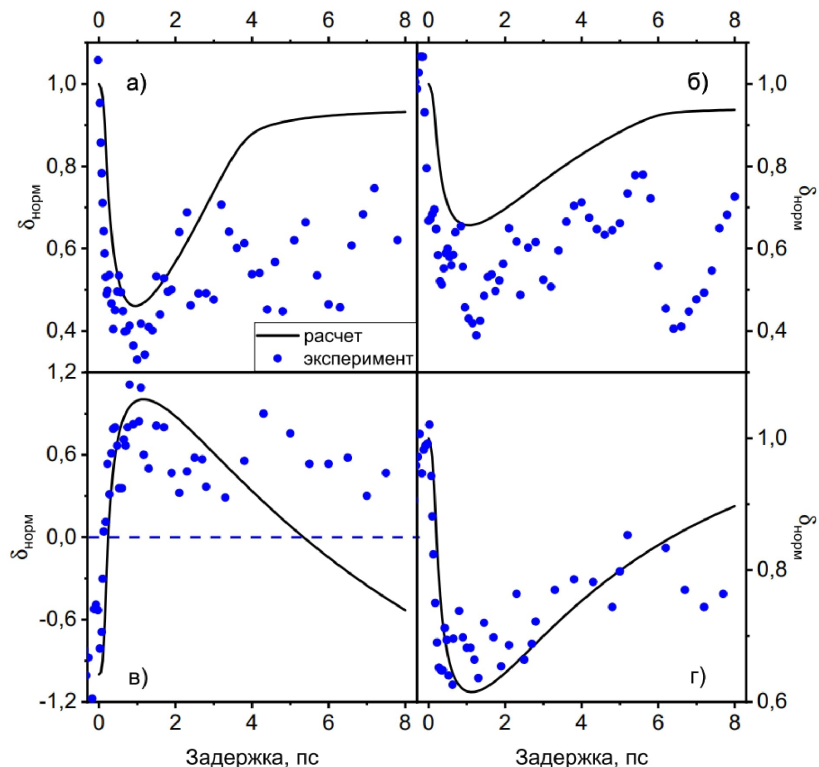


Рис. 4.6: а) - Нормированные на максимум экспериментальная (синие точки) и расчетная (черная линия) зависимости ЭМОЭК от времени задержки в спектральной окрестности возбуждения ППП (625 нм) для образца 1; б) - аналогичная зависимость для образца 2 (640 нм); в) Зависимость ЭМОЭК от времени на длине волны возбуждения стоячего ПП для образца 3 (590 нм); г) Зависимость ЭМОЭК от времени на длине волны возбуждения ППП для образца 3 (700 нм).

ной временной зависимости близка к экспериментальной, однако в эксперименте значения ЭМОЭК снижаются на 60%, а в расчетах на 40%.

Для качественного объяснения эффекта была рассчитана эффективная намагниченность МПК для 3 образцов (рис. 4.7,

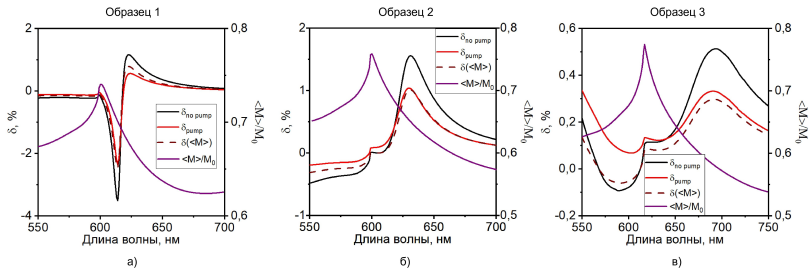


Рис. 4.7: Расчетные спектры ЭМОЭК спустя $\tau = 700$ фс после воздействия импульсом накачки $\delta_{\text{ритр}}$ (красные линии) и при отсутствии накачки $\delta_{\text{норитр}}$ (черные линии), спектры эффективной намагниченности $\langle M \rangle / M_0$, рассчитанные по формуле 4.2 (фиолетовые линии), и расчетные спектры ЭМОЭК для пространственно однородно намагниченных образцов до значений эффективной намагниченности $\delta(\langle M \rangle)$.

фиолетовые линии), определенная аналогично эффективной температуре в Главе 3:

$$\langle M \rangle(\tau, \lambda_{\text{зонд}}) = \frac{\int_V |E(x, y, \lambda_{\text{зонд}})| M(x, y, \tau) dV}{\int_V |E(x, y, \lambda_{\text{зонд}})| dV}. \quad (4.2)$$

Данная величина характеризует среднюю намагниченность, которую "чувствует" импульс зонда на длине волны $\lambda_{\text{зонд}}$. $\langle M \rangle$ в спектральной окрестности аномалий Рэля имеет пик из-за того, что падающая волна рассеивается на вершинах МПК и не попадает в области размагничивания. При возбуждении ППП и СППП электромагнитное поле зондирует в том числе дно решетки. Для проверки влияния неоднородности намагниченности были рассчитаны спектры ЭМОЭК $\delta(\langle M \rangle)$, считая МПК однородно размагниченным до $\langle M \rangle(\tau, \lambda)$ (рис. 4.7, пунктирные линии). Спектры $\delta(\langle M \rangle)$ равномерно уменьшаются по сравнению с $\delta_{\text{норитр}}$, экстремумы спектрально не смещаются. В окрестности возбуждения ППП спектры $\delta(\langle M \rangle)$ совпадают с $\delta_{\text{ритр}}$, полученной из прямых расчетов. Следовательно, значение ЭМОЭК на длинах волн возбуждения ППП позволяют определить среднюю намагниченность по

области локализации импульса зонда. На красном краю возбуждения СППП кривая $\delta(< M >)$ качественно отличается от $\delta_{ритр}$, пространственно однородное размагничивание не приводит к изменению знака ЭМОЭК. Соответственно, данный эффект связан с пространственной неоднородностью намагниченности по поверхности.

Чтобы проверить эту гипотезу, были проведены расчеты ЭМОЭК для образца 3, в которых была намагничена верхняя часть МПК, от вершин вглубь на высоту h^M (рис. 4.8 а). Уменьшение глубины намагничивания МПК приводит к равномерному снижению значений ЭМОЭК в спектральной окрестности ППП, в то время как кривая $\delta_{ритр}(\lambda)$ на длинах волн возбуждения СППП меняет форму. Изменения спектров аналогичны наблюдаемым в эксперименте: положительный экстремум смещается в красную область и снижается по амплитуде, отрицательный экстремум переходит из отрицательной полуплоскости в положительную. Наиболее близкий к экспериментальному спектр ЭМОЭК достигается при наполовину намагниченных вершинах (h^M/h). Данный эффект связан с различной природой плазменных мод. ППП распространяется вдоль поверхности МПК и взаимодействует как с намагниченными, так и с размагниченными областями. В свою очередь, из литературы известно [156], что в квазисинусоидальных решетках СППП локализован вблизи дна канавок. Область с высокой амплитудой электрического поля вблизи дна канавок наблюдается также в случае образца 3 (рис. 1.2 б). Также наблюдается вторая пучность вблизи вершин МПК, которая связана с не резонансным рассеянием падающей волны. Следовательно, резонансно переизлученная и нерезонансно отраженная волны “чувствуют” намагниченность разных областей МПК. Пространственно неоднородное размагничивание приводит к изменению фазового соотношения между этими двумя волнами, что вызывает изменение формы спектра ЭМОЭК.

Несоответствие плотностей энергии в расчетах и экспери-

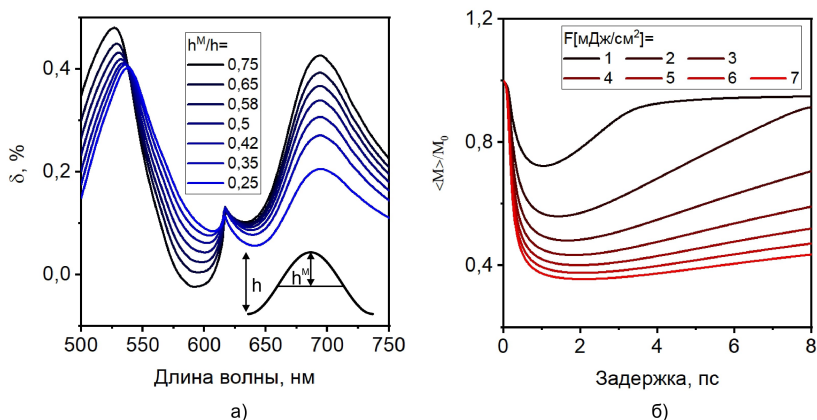


Рис. 4.8: а) - Расчетные спектры ЭМОЭК для образца 3 при однородно намагниченных вершинах МПК, h^M/h - отношение глубины, на которой образец намагничен, к глубине МПК (пояснительный рисунок во вложении); б) - расчетные зависимости эффективной намагниченности для образца 3 на длине волны возбуждения ППП (700 нм) от времени задержки для различных плотностей энергии импульса накачки F .

менте может быть связано с конечным размером пучка накачки и неточностью зонда. Хотя размер пучков зонда и накачки на образце был специально выставлен так, чтобы импульс зонда зондировал область, в которой интенсивность импульса накачки однородна, в данном случае этого оказалось недостаточно. Процесс размагничивания является пороговым и, следовательно, существенно нелинейным. На рисунке 4.8 б) представлены зависимости эффективно намагниченности от времени для различных плотностей энергии. Кривые не скалируются линейно и имеют разные характерные времена. Неидеальность юстировки луча зонда и неоднородность профиля интенсивности пучка накачки привели к усреднению областей с различной намагниченностью. Так как высокие плотности энергии, при которых дно МПК размагничено, дают примерно одинаковый вклад, на начальных временах в общее измеряемое значение ЭМОЭК дают больший вклад области с низкой

плотностью энергии. Поэтому в расчетах такому изменению δ соответствует заниженная плотность энергии. Однако на временах порядка единиц пс в этих областях быстро происходит обратное намагничивание, а области, соответствующие высокой плотности энергии остаются размагниченными. Из-за этого в расчетах не удалось воспроизвести одновременно изменение ЭМОЭК и в процессе размагничивания, и в процессе восстановления намагниченности.

3. Выводы к главе

1. Сверхбыстрое размагничивание никелевых магнитоплазмонных кристаллов фемтосекундным лазерным импульсом с плотностью энергии импульса накачки 7 мДж/см^2 при зондировании на длинах волн возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов уменьшает значения экваториального магнитооптического эффекта Керра на 60%.
2. Синусоидальность пространственного профиля никелевых магнитоплазмонных кристаллов приводит к неоднородному нагреву и полному размагничиванию локальных участков поверхности. Измерение экваториального магнитооптического эффекта Керра в спектральной окрестности бегущего плазмонного резонанса позволяет детектировать состояние намагниченности, усредненное внутри области локализации возбужденной электромагнитной моды.
3. При сверхбыстром размагничивании магнитоплазмонных кристаллов значения экваториальный магнитооптический эффект Керра при зондировании на длинах волн возбуждения стоячего плазмон-поляритона меняет знак в течение 150 фемтосекунд после воздействия индуцирующим импульсом и не позволяет восстановить состояние намагниченности вблизи поверхности.

Заключение

Основные результаты диссертационной работы могут быть сформулированы следующим образом.

1. Обнаружен эффект изменения коэффициента пропускания металл - диэлектрической плазмонной метаповерхности, состоящей из золотых наносфер, покрытых слоем висмут-замещенного железо-иттриевого граната, при резонансном поглощении фемтосекундных лазерных импульсов. Изменения наблюдаются в спектральных окрестностях решеточных плазмонных резонансов, квазиволноводных мод и межзонного перехода в золоте. Максимальное значение дифференциального пропускания $\Delta T/T$ достигается в спектральной окрестности решеточной дипольной плазмонной моды и составляет 2% при плотности энергии импульса накачки $J = 0,8$ мДж/см². Дифференциальное пропускание линейно зависит от J для всех длин волн импульса зонда, кроме узкого спектрального диапазона вблизи квазиволноводных мод, где зависимость $\Delta T/T(J)$ нелинейна.
2. С помощью методики “зонд-накачка” экспериментально продемонстрирована субпикосекундная оптически индуцированная динамика коэффициента пропускания металл-диэлектрической плазмонной метаповерхности. На длинах волн возбуждения решеточных плазмонных мод зависимость дифференциального пропускания от времени задержки $\Delta T/T(\tau)$ обусловлена динамикой горячих электронов в золоте и обусловлено термализацией электронов с характерным временем $\tau_{ee} = 150$ фс и электрон-фононной релаксацией с характерным временем $\tau_{ep} = 3,5$ пс. В спектральной окрестности квазиволноводных резонансов зависимость $\Delta T/T(\tau)$ описывается модифицированной моделью, включающей плазмон-индуцированный перенос горячих электронов из металла в диэлек-

трик вблизи границы раздела с характерным временем затухания 7 пс.

3. Методом фемтосекундной спектроскопии “зонд-накачка” обнаружен эффект увеличения дифференциального отражения одномерных никелевых плазмонных кристаллов с синусоидальной формой поверхности по сравнению с оптически толстой пластиной никеля. При нерезонансном лазерном нагреве плазмонного кристалла с периодом 500 нм и глубиной пространственной модуляции 125 нм фемтосекундным импульсом с плотностью энергии 7 мДж/см² коэффициент отражения на длинах волн возбуждения поверхностных плазмонных резонансов уменьшается более, чем на 10%. Увеличение глубины поверхностной модуляции плазмонного кристалла приводит к увеличению соотношения вкладов электрон-фононной и фонон-фононной релаксаций от 0,6 для плоской поверхности до 0,85 для плазмонного кристалла с глубиной модуляции поверхности 165 нм.
4. Для никелевого плазмонного кристалла, поддерживающего режим оптимальной связи, в зависимости дифференциального отражения $\Delta R/R$ от временной задержки τ на длинах волн коротковолнового склона плазмонного резонанса обнаружен дополнительный экстремум при $\tau = 7$ пс, обусловленный максимальным контрастом между $\partial R/\partial \epsilon'$ и $\partial R/\partial \epsilon''$ в этой спектральной области.
5. Методом фемтосекундной спектроскопии “зонд-накачка” экспериментально исследована зависимость от времени и длины волны экваториального магнитооптического эффекта Керра одномерных никелевых плазмонных кристаллов. Для плазмонного кристалла, поддерживающего режим оптимальной связи, при плотности энергии импульса накачки 7 мДж/см² обнаружено 60%-ное снижение величины ЭМОЭК на длинах волн возбуждения бе-

гущих поверхностных плазмон-поляритонов. Для образца с глубиной модуляции 165 нм, поддерживающего возбуждение стоячих поверхностных плазмонов, на длинноволновом склоне резонанса величина ЭМОЭК меняется от -0,1% до +0,07%, изменение знака обусловлено пространственной неоднородностью размагничивания.

Список использованных аббревиатур

ППП — Поверхностные плазмон-поляритоны

ЛП — Локализованные плазмоны

ПРР — Поверхностный решеточный резонанс

ПВ — Поверхностные волны

МОЭК — Магнито-оптический эффект Керра

ЭМОЭК — Экваториальный магнито-оптический эффект Керра

МППП — Магнито-плазмонная метаповерхность

МПК — Магнито-плазмонный кристалл

Bi:YIG — Висмут-замещенный железо-иттриевый гранат

КВМ — Квазиволноводная мода

СППП — Стоячий поверхностный плазмон-поляритон

АСМ — Атомно-силовая микроскопия

РЭМ — Растровая электронная микроскопия

Благодарности

В завершении работы автор хотел бы от всего сердца выразить глубокую благодарность всем, кто способствовал созданию этой диссертации. Особую признательность хотелось бы выразить Долговой Татьяне Викторовне и Федянину Андрею Анатольевичу за научное руководство и приобщение к научной школе, которая стала фундаментом для развития моих научных компетенций. Искренне благодарен Фролову Александру Юрьевичу за научное руководство на ранних этапах обучения, постоянную поддержку и наставничество на всём протяжении дальнейшего пути. Сердечно признателен Новикову Илье Алексеевичу за длительное плодотворное сотрудничество и проведение совместных экспериментов, которые значительно обогатили содержание работы. Выражаю глубокую благодарность Назаренко Алене Андреевне за неоценимую поддержку в процессе написания диссертации. От всей души благодарю своих талантливых студентов: Григория Останина, Даниила Сафиуллина, Илью Демидова, Марию Гречухину, Максима Сивкова и Артемия Месяца. В процессе наставничества я почерпнул гораздо больше мудрости и опыта, чем сумел вложить. Спасибо Варваре Зубюк, Александру Мусорину, Анне Попковой и всем остальным членам лаборатории нанооптики и метаматериалов, ваша профессиональная помощь и создание благоприятной творческой атмосферы были неоценимы. Безграничную признательность хочу выразить своим родителям — Кирьяновой Ольге Федоровне и Кирьянову Андрею Владимировичу — за их любовь, поддержку и веру в мои силы. Эта диссертация стала возможной благодаря совместным усилиям всех перечисленных людей, и я глубоко ценю каждый вклад в её создание.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского Научного Фонда, грант №24-12-00210

Список литературы

- [1] J. Hohlfeld, S.-S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, E. Matthias, Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals // Chemical Physics – 2000. – Vol. 251, №1-3. – p. 237–258.
- [2] Н. А. Иногамов, В. А. Хохлов, С. А. Ромашевский, Ю. В. Петров, М. А. Овчинников, С. И. Ашитков, Сильное возбуждение электронной подсистемы золота ультракоротким лазерным импульсом и процессы релаксации около температуры плавления // Журнал экспериментальной и теоретической физики – 2024. – т. 165, №2. – с. 165.
- [3] V. I. Klimov, C. J. Schwarz, D. W. McBranch, C. A. Leatherdale, M. G. Bawendi, Ultrafast dynamics of inter- and intraband transitions in semiconductor nanocrystals: Implications for quantum-dot lasers // Physical Review B – 1999. – Vol. 60, №4. – p. R2177.
- [4] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, J.-Y. Bigot, Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel // Physical Review Letters – 1996. – Vol. 76, №22. – p. 4250.
- [5] T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, U. Atxitia, O. Chubykalo-Fesenko, S. El Moussaoui, L. B. P. J. Le Guyader, E. Mengotti, L. J. Heyderman, others, Ultrafast heating as a sufficient stimulus for magnetization reversal in a ferrimagnet // Nature Communications – 2012. – Vol. 3, №1. – p. 666.
- [6] S.-S. Wellershoff, J. Hohlfeld, J. Güdde, E. Matthias, The role of electron–phonon coupling in femtosecond laser damage of metals // Applied Physics A – 1999. – Vol. 69, №1. – p. S99–S107.
- [7] H. Wu, W. Han, X. Zhang, Ultrafast dynamics of different phase states Ge₂Sb₂Te₅ film induced by a femtosecond

- laser pulse irradiation // Materials – 2022. – Vol. 15, №19. – p. 6760.
- [8] N. Del Fatti, C. Voisin, M. Achermann, S. Tzortzakis, D. Christofilos, F. Vallée, Nonequilibrium electron dynamics in noble metals // Physical Review B – 2000. – Vol. 61, №24. – p. 16956.
- [9] C.-K. Sun, F. Vallee, L. Acioli, E. P. Ippen, J.G. Fujimoto, Femtosecond investigation of electron thermalization in gold // Physical Review B – 1993. – Vol. 48, №16. – p. 12365.
- [10] С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман,, Электронная эмиссия с поверхности металлов под действием ультракоротких лазерных импульсов // Журнал экспериментальной и теоретической физики – 1974. – т. 66, №2. – с. 776–781.
- [11] A. Block, M. Liebel, R. Yu, M. Spector, Y. Sivan, F. J. Abajo, N. F. Hulst, Tracking ultrafast hot-electron diffusion in space and time by ultrafast thermomodulation microscopy // Science Advances – 2019. – Vol. 5, №5. – p. eaav8965.
- [12] M. Gaponov, S. Ovcharenko, N. Ilyin, E. Mishina, Laser-induced magnetization dynamics in si-doped yttrium-iron garnet film // Condensed Matter – 2022. – Vol. 7, №4. – p. 55.
- [13] A. M. Kalashnikova, N. E. Khokhlov, L. A. Shelukhin, A. V. Scherbakov, Ultrafast laser-induced control of magnetic anisotropy in nanostructures // Technical Physics – 2023. – Vol. 68, №12. – p. 574–601.
- [14] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, M. Aeschlimann, Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization // Nature Materials – 2010. – Vol. 9, №3. – p. 259–265.

-
- [15] T. Stoll, P. Maioli, A. Crut, N. Del Fatti, F. Vallée, Advances in femto-nano-optics: ultrafast nonlinearity of metal nanoparticles // The European Physical Journal B – 2014. – Vol. 87, №11. – p. 1–19.
- [16] J. B. Smith, H. Ehrenreich, Frequency dependence of the optical relaxation time in metals // Physical Review B – 1982. – Vol. 25, №2. – p. 923.
- [17] G. R. Parkins, W. E. Lawrence, R. W. Christy, Intraband optical conductivity $\sigma(\omega, t)$ of Cu, Ag, and Au: Contribution from electron-electron scattering // Physical Review B – 1981. – Vol. 23, №12. – p. 6408.
- [18] S. A. Maier, *Plasmonics: fundamentals and applications*. – Springer Science & Business Media, 2007.
- [19] M. Pohl, V. I. Belotelov, I. A. Akimov, S. Kature, A. S. Vengurlekar, A. V. Gopal, A. K. Zvezdin, D. R. Yakovlev, M. Bayer, Plasmonic crystals for ultrafast nanophotonics: optical switching of surface plasmon polaritons // Physical Review B – 2012. – Vol. 85, №8. – p. 081401.
- [20] M. Kataja, F. Freire-Fernández, J. P. Witteveen, T. K. Hakala, P. Törmä, S. Van Dijken, Plasmon-induced demagnetization and magnetic switching in nickel nanoparticle arrays // Applied Physics Letters – 2018. – Vol. 112, №7. – .
- [21] N. Rotenberg, J. Caspers, H. M. Driel, Tunable ultrafast control of plasmonic coupling to gold films // Physical Review B – 2009. – Vol. 80, .
- [22] A. Schirato, G. Crotti, M. Gonçalves Silva, D. C. Teles-Ferreira, C. Manzoni, R. Proietti Zaccaria, P. Laporta, A. M. Paula, G. Cerullo, G. Della Valle, Ultrafast plasmonics beyond the perturbative regime: Breaking the electronic-optical dynamics correspondence // Nano Letters – 2022. – Vol. 22, №7. – p. 2748–2754.

- [23] X. Dong, Y. He, R. Gao, K. Yang, J. Wang, W. Yang, J. Li, B. Ren, M.-D. Li, Z. Yang, Plasmonic ultrafast all-optical switching with a superior on-off ratio//Nano Letters – 2025. – Vol. 25, №10.– p. 4005–4012.
- [24] A. Schirato, M. Maiuri, A. Toma, S. Fugattini, R. Proietti Zaccaria, P. Laporta, P. Nordlander, G. Cerullo, A. Alabastri, G. Della Valle, Transient optical symmetry breaking for ultrafast broadband dichroism in plasmonic metasurfaces // Nature Photonics – 2020. – Vol. 14, №12.– p. 723–727.
- [25] G. Crotti, A. Schirato, O. Pashina, O. Sergaeva, M. Petrov, C. De Angelis, G. Della Valle, Ultrafast switching of a metasurface quasi-bound state in the continuum via transient optical symmetry breaking // Light: Science & Applications – 2025. – Vol. 14, №1.– p. 240.
- [26] G. V. Hartland, Optical studies of dynamics in noble metal nanostructures//Chemical Reviews – 2011. – Vol. 111, №6.– p. 3858–3887.
- [27] A. Avdizhiyan, W. Janus, M. Szpytma, T. Slezak, M. Przybylski, M. Chrobak, V. Roddatis, A. Stupakiewicz, I. Razdolski, Ultrafast laser-induced dynamics of non-equilibrium electron spill-out in nanoplasmonic bilayers // Nano Letters – 2023. – Vol. 24, №1.– p. 466–471.
- [28] M. Taghinejad, H. Taghinejad, Z. Xu, K.-T. Lee, S. P. Rodrigues, J. Yan, A. Adibi, T. Lian, W. Cai, Ultrafast control of phase and polarization of light expedited by hot-electron transfer // Nano Letters – 2018. – Vol. 18, №9.– p. 5544–5551.
- [29] J. Li, S. K. Cushing, F. Meng, T. R. Senty, A. D. Bristow, N. Wu, Plasmon-induced resonance energy transfer for solar energy conversion//Nature Photonics – 2015. – Vol. 9, №9.– p. 601–607.

- [30] K. F. MacDonald, Z. L. Sámson, M. I. Stockman, N. I. Zheludev, Ultrafast active plasmonics // Nature Photonics – 2009. – Vol. 3, №1. – p. 55–58.
- [31] M. R. Shcherbakov, S. Liu, V. V. Zubyuk, A. Vaskin, P. P. Vabishchevich, G. Keeler, T. Pertsch, T. V. Dolgova, I. Staude, I. Brener, others, Ultrafast all-optical tuning of direct-gap semiconductor metasurfaces // Nature Communications – 2017. – Vol. 8, №1. – p. 17.
- [32] A. N. Koya, M. Romanelli, J. Kuttruff, N. Henriksson, A. Stefancu, G. Grinblat, A. De Andres, F. Schnur, M. Vanzan, M. Marsili, others, Advances in ultrafast plasmonics // Applied Physics Reviews – 2023. – Vol. 10, №2. – .
- [33] N. Jiang, X. Zhuo, J. Wang, Active plasmonics: principles, structures, and applications // Chemical Reviews – 2017. – Vol. 118, №6. – p. 3054–3099.
- [34] M. Maiuri, A. Schirato, G. Cerullo, G. Della Valle, Ultrafast all-optical metasurfaces: Challenges and new frontiers // ACS Photonics – 2024. – Vol. 11, №8. – p. 2888–2905.
- [35] X. Guo, J. Xiang, Y. Zhang, Y. Su, Integrated neuromorphic photonics: synapses, neurons, and neural networks // Advanced Photonics Research – 2021. – Vol. 2, №6. – p. 2000212.
- [36] D. Ivanov, A. Chezhegov, M. Kiselev, A. Grunin, D. Larionov, Neuromorphic artificial intelligence systems // Frontiers in Neuroscience – 2022. – Vol. 16, p. 959626.
- [37] X. Chen, Y. Xue, Y. Sun, J. Shen, S. Song, M. Zhu, Z. Song, Z. Cheng, P. Zhou, Neuromorphic photonic memory devices using ultrafast, non-volatile phase-change materials // Advanced Materials – 2023. – Vol. 35, №37. – p. 2203909.
- [38] I. S. Balashov, A. A. Chezhegov, A. S. Chizhov, A. A. Grunin, K. V. Anokhin, A. A. Fedyanin, Light-stimulated

- adaptive artificial synapse based on nanocrystalline metal-oxide film// Opto-Electronic Science – 2023. – Vol. 2, №10. – p. 230016–1.
- [39] H. Zhang, M. Ijaz, R. J. Blaikie, Recent review of surface plasmons and plasmonic hot electron effects in metallic nanostructures// Frontiers of Physics – 2023. – Vol. 18, №6. – p. 63602.
- [40] R. Verma, G. Sharma, V. Polshettiwar, The paradox of thermal vs. non-thermal effects in plasmonic photocatalysis // Nature Communications – 2024. – Vol. 15, №1. – p. 7974.
- [41] L. Zhou, Q. Huang, Y. Xia, Plasmon-induced hot electrons in nanostructured materials: generation, collection, and application to photochemistry// Chemical Reviews – 2024. – Vol. 124, №14. – p. 8597–8619.
- [42] D. Lei, D. Su, S. A. Maier, New insights into plasmonic hot-electron dynamics// Light: Science & Applications – 2024. – Vol. 13, №1. – p. 243.
- [43] L. Mascaretti, A. Dutta, Š. Kment, V. M. Shalaeв, A. Boltasseva, R. Zbořil, A. Naldoni, Plasmon-enhanced photoelectrochemical water splitting for efficient renewable energy storage // Advanced Materials – 2019. – Vol. 31, №31. – p. 1805513.
- [44] H. Jia, C. C. Tsoi, A. E. Abed, W. Yu, A. Jian, S. Sang, X. Zhang, Metallic plasmonic nanostructure arrays for enhanced solar photocatalysis// Laser & Photonics Reviews – 2023. – Vol. 17, №5. – p. 2200700.
- [45] I. A. Novikov, M. A. Kiryanov, P. K. Nurgalieva, A. Y. Frolov, V. V. Popov, T. V. Dolgova, A. A. Fedyanin, Ultrafast magneto-optics in nickel magnetoplasmonic crystals // Nano Letters – 2020. – Vol. 20, №12. – p. 8615–8619.
- [46] М. А. Кирьянов, Г. С. Останин, Т. В. Долгова, М. Иноуэ, А. А. Федянин, Аномальная пикосекундная дина-

мика оптического пропускания гибридной метаповерхности Au-Bi: YIG // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики – 2023. – т. 117, №3. – с. 201–206.

- [47] И. А. Новиков, М. А. Кирьянов, А. Ю. Фролов, В. В. Попов, Т. В. Долгова, А. А. Федянин, Пространственно неоднородное сверхбыстрое размагничивание никелевого магнитоплазмонного кристалла // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики – 2023. – т. 118, №8. – с. 584–589.
- [48] M. A. Kiryanov, I. A. Novikov, A. Y. Frolov, T. V. Dolgova, A. A. Fedyanin, Surface-plasmon-assisted control of ultrafast optical relaxation traces // Laser & Photonics Reviews – 2025. – , p. 2500053.
- [49] T. V. Dolgova, M. A. Kiryanov, P. K. Nurgalieva, G. S. Ostanin, A. I. Musorin, H. Uchida, M. Inoue, A. A. Fedyanin, Pump-probe spectroscopy in gold-garnet magnetoplasmonic metasurfaces // 2021. – Vol. 2015, №1. – p. 012034.
- [50] W. L. Barnes, A. Dereux, T. W. Ebbesen, Surface plasmon subwavelength optics // Nature – 2003. – Vol. 424, №6950. – p. 824–830.
- [51] K. L. Kelly, E. Coronado, L. L. Zhao, G. C. Schatz, The optical properties of metal nanoparticles: the influence of size, shape, and dielectric environment // The Journal of Physical Chemistry B – 2003. – Vol. 107, №3. – p. 668–677.
- [52] K. A. Willets, R. P. Van Duyne, Localized surface plasmon resonance spectroscopy and sensing // Annual Review of Physical Chemistry – 2007. – Vol. 58, p. 267–297.
- [53] A. Moroz, Depolarization field of spheroidal particles // Journal of the Optical Society of America B: Optical Physics – 2009. – Vol. 26, №3. – p. 517–527.

- [54] G. Mie, Beiträge zur optik trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen // Annalen der Physik – 1908. – Vol. 330, №3. – p. 377–445.
- [55] C. Kittel, P. McEuen, *Introduction to solid state physics*. – V. 8 Wiley New York, 1996.
- [56] K. M. Mayer, J. H. Hafner, Localized surface plasmon resonance sensors // Chemical Reviews – 2011. – Vol. 111, №6. – p. 3828–3857.
- [57] B. Sharma, R. R. Frontiera, A.-I. Henry, E. Ringe, R. P. Van Duyne, Sers: Materials, applications, and the future // Materials Today – 2012. – Vol. 15, №1-2. – p. 16–25.
- [58] M. Kauranen, A. V. Zayats, Nonlinear plasmonics // Nature Photonics – 2012. – Vol. 6, №11. – p. 737–748.
- [59] B. Luk'yanchuk, N. I. Zheludev, S. A. Maier, N. J. Halas, P. Nordlander, H. Giessen, C. T. Chong, The fano resonance in plasmonic nanostructures and metamaterials // Nature Materials – 2010. – Vol. 9, №9. – p. 707–715.
- [60] V. G. Kravets, A. V. Kabashin, W. L. Barnes, A. N. Grigorenko, Plasmonic surface lattice resonances: a review of properties and applications // Chemical Reviews – 2018. – Vol. 118, №12. – p. 5912–5951.
- [61] A. D. Humphrey, W. L. Barnes, Plasmonic surface lattice resonances on arrays of different lattice symmetry // Physical Review B – 2014. – Vol. 90, №7. – p. 075404.
- [62] R. W. Wood, J. Hopkins, On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum // Proceedings of the Physical Society of London – 1902. – Vol. 18, p. 396–402.
- [63] L. Rayleigh, Note on the remarkable case of diffraction spectra described by prof. Wood. // Philosophical Magazine – 1907. – Vol. 14, p. 60–65.

- [64] J. Strong, Effect of evaporated films on energy distribution in grating spectra// Physical Review – 1936. – Vol. 49, №4. – p. 291.
- [65] U. Fano, The theory of anomalous diffraction gratings and of quasi-stationary waves on metallic surfaces (sommerfeld's waves)// Journal of the Optical Society of America – 1941. – Vol. 31, №3. – p. 213–222.
- [66] П. П. Вабищевич, В. О. Бессонов, Ф. Ю. Сычев, М. Р. Щербаков, Т. В. Долгова, А. А. Федянин, Фемтосекундная динамика релаксации поверхностных плазмон-поляритонов в окрестности резонанса типа Фано// Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики – 2010. – т. 92, с. 639–643.
- [67] M. F. Limonov, Fano resonance for applications// Advances in Optics and Photonics – 2021. – Vol. 13, №3. – p. 703–771.
- [68] H. Raether, *Surface plasmons on smooth surfaces*. – Springer, 1988.
- [69] S. Enoch, N. Bonod, *Plasmonics: from basics to advanced topics*. – V. 167 Springer, 2012.
- [70] A. V. Zayats, I. I. Smolyaninov, A. A. Maradudin, Nanooptics of surface plasmon polaritons // Physics Reports – 2005. – Vol. 408, №3-4. – p. 131–314.
- [71] A. A. Grunin, A. G. Zhdanov, A. A. Ezhov, E. A. Ganshina, A. A. Fedyanin, Surface-plasmon-induced enhancement of magneto-optical kerr effect in all-nickel subwavelength nanogratings// Applied Physics Letters – 2010. – Vol. 97, p. 261908–261908.
- [72] A. V. Chetvertukhin, A. A. Grunin, A. V. Baryshev, T. V. Dolgova, H. Uchida, M. Inoue, A. A. Fedyanin, Magneto-optical kerr effect enhancement at the wood's anomaly in magnetoplasmonic crystals// Journal of Magnetism and Magnetic Materials – 2012. – Vol. 324, p. 3516–3518.

- [73] S. Collin, Nanostructure arrays in free-space: optical properties and applications//Reports on Progress in Physics – 2014. – Vol. 77, №12.– p. 126402.
- [74] M. C. Hutley, D. Maystre, The total absorption of light by a diffraction grating// Optics Communications – 1976. – Vol. 19, №3.– p. 431–436.
- [75] S. T. Koev, A. Agrawal, H. J. Lezec, V. A. Aksyuk, An efficient large-area grating coupler for surface plasmon polaritons// Plasmonics – 2012. – Vol. 7, №2.– p. 269–277.
- [76] J. Wang, T. Weber, A. Aigner, S. A. Maier, A. Tittl, Mirror-coupled plasmonic bound states in the continuum for tunable perfect absorption// Laser & Photonics Reviews – 2023. – Vol. 17, №11.– p. 2300294.
- [77] M. Crouzier, F. Mao, G. Magno, V. Yam, C. Alonso-Ramos, J.-R. Coudeville, E. Herth, C. Dupuis, X. Leroux, T. Lopez, others, Critical coupling in plasmonic chain for efficient energy trapping// Scientific Reports – 2025. – Vol. 15, №1.– p. 22072.
- [78] H. Li, M. Qin, L. Wang, X. Zhai, R. Ren, J. Hu, Total absorption of light in monolayer transition-metal dichalcogenides by critical coupling// Optics express – 2017. – Vol. 25, №25.– p. 31612–31621.
- [79] J. Hinney, S. Kim, G. J. K. Flatt, I. Datta, A. Alù, M. Lipson, Efficient excitation and control of integrated photonic circuits with virtual critical coupling // Nature Communications – 2024. – Vol. 15, №1.– p. 2741.
- [80] C. K. Alexander, M. N. O. Sadiku, M. Sadiku, *Fundamentals of electric circuits*. – McGraw-Hill Higher Education Boston, MA, USA, 2007.
- [81] V. V. Temnov, Ultrafast acousto-magneto-plasmonics // Nature Photonics – 2012. – Vol. 6, №11.– p. 728.

- [82] M. A. Kats, R. Blanchard, P. Genevet, Z. Yang, M. M. Qazilbash, D. N. Basov, S. Ramanathan, F. Capasso, Thermal tuning of mid-infrared plasmonic antenna arrays using a phase change material// Optics Letters – 2013. – Vol. 38, №3. – p. 368–370.
- [83] J. Svanda, Y. Kalachyova, P. Slepicka, V. Svorcik, O. Lyutakov, Smart component for switching of plasmon resonance by external electric field// ACS Applied Materials & Interfaces – 2016. – Vol. 8, №1. – p. 225–231.
- [84] N. Maccaferri, A. Gabbani, F. Pineider, T. Kaihara, T. Tapani, P. Vavassori, Magnetoplasmonics in confined geometries: Current challenges and future opportunities // Applied Physics Letters – 2023. – Vol. 122, №12. – .
- [85] Y. Luo, Z. Sun, Z. Sun, Q. Dai, Ultrafast infrared plasmonics // Advanced Materials – 2025. – Vol. 37, №10. – p. 2413748.
- [86] М. И. Каганов, Е. М. Лифшиц, Л. В. Танатаров, Релаксация между электронами и решеткой// Журнал экспериментальной и теоретической физики – 1956. – т. 31, №2. – с. 232–237.
- [87] Maarten Kampen, J. T. Kohlhepp, W. J. M. Jonge, Bert Koopmans, Reinder Coehoorn, Sub-picosecond electron and phonon dynamics in nickel// Journal of Physics: Condensed Matter – 2005. – Vol. 17, p. 6823.
- [88] C.-K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli, E. P. Ippen, J. G. Fujimoto, Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold// Physical Review B – 1994. – Vol. 50, №20. – p. 15337.
- [89] D. Pines, *Theory of quantum liquids: normal Fermi liquids*. – CRC Press, 2018.
- [90] S. D. Brorson, A. Kazeroonian, J. S. Moodera, D. Face, T. K. Cheng, E. P. Ippen, M. S. Dresselhaus, G. Dresselhaus, Femtosecond room-temperature measurement of the

- electron-phonon coupling constant- λ in metallic superconductors. 64, 2172-2175// *Physical Review Letters* – 05 1990. – Vol. 64, p. 2172–2175.
- [91] A. P. Caffrey, P. E. Hopkins, J. M. Klopff, P. M. Norris, Thin film non-noble transition metal thermophysical properties // *Microscale Thermophysical Engineering* – 2005. – Vol. 9, №4.– p. 365–377.
- [92] Z. Lin, L. V. Zhigilei, V. Celli, Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium// *Physical Review B* – 2008. – Vol. 77, №7.– p. 075133.
- [93] G. Grimvall, *The Electron–Phonon Interaction in Metals*. – North-Holland Publishing Co., 1981.
- [94] W. L. McMillan, Transition temperature of strong-coupled superconductors// *Physical Review* – 1968. – Vol. 167, №2.– p. 331.
- [95] R. Rosei, F. Antonangeli, U. M. Grassano, D bands position and width in gold from very low temperature thermomodulation measurements// *Surface Science* – 1973. – Vol. 37, p. 689–699.
- [96] M. Guerrisi, R. Rosei, P. Winsemius, Splitting of the interband absorption edge in au//*Physical Review B* – 1975. – Vol. 12, №2.– p. 557.
- [97] R. Rosei, F. Antonangeli, U. M. Grassano, D bands position and width in gold from very low temperature thermomodulation measurements// *Surface Science* – 1973. – Vol. 37, p. 689–699.
- [98] A. Schirato, G. Crotti, R. P. Zaccaria, A. Alabastri, G. Della Valle, Hot carrier spatio-temporal inhomogeneities in ultrafast nanophotonics// *New Journal of Physics* – 2022. – Vol. 24, №4.– p. 045001.

- [99] H. Harutyunyan, A. B. F. Martinson, D. Rosenmann, L. K. Khorashad, L. V. Besteiro, A. O. Govorov, G. P. Wiederrecht, Anomalous ultrafast dynamics of hot plasmonic electrons in nanostructures with hot spots // Nature Nanotechnology – 2015. – Vol. 10, №9. – p. 770–774.
- [100] Y. Liu, Q. Chen, D. A. Cullen, Z. Xie, T. Lian, Efficient hot electron transfer from small Au nanoparticles // Nano Letters – 2020. – Vol. 20, №6. – p. 4322–4329.
- [101] H. Jia, Z. Li, B. Wang, G. Xing, Y. L. Wong, H. Ren, M. Li, K.-Y. Wong, D. Lei, L.-W. Wong, others, Plasmonic nanohole arrays with enhanced visible light photoelectrocatalytic activity // ACS Photonics – 2022. – Vol. 9, №2. – p. 652–663.
- [102] L. V. Besteiro, X.-T. Kong, Z. Wang, G. Hartland, A. O. Govorov, Understanding hot-electron generation and plasmon relaxation in metal nanocrystals: quantum and classical mechanisms // ACS Photonics – 2017. – Vol. 4, №11. – p. 2759–2781.
- [103] T. Kong, A. Liao, Y. Xu, X. Qiao, H. Zhang, L. Zhang, C. Zhang, Recent advances and mechanism of plasmonic metal–semiconductor photocatalysis // RSC Advances – 2024. – Vol. 14, №24. – p. 17041–17050.
- [104] M. Ahlawat, D. Mittal, V. Govind Rao, Plasmon-induced hot-hole generation and extraction at nano-heterointerfaces for photocatalysis // Communications Materials – 2021. – Vol. 2, №1. – p. 114.
- [105] N. D. Lang, W. J. P. R. B. C. M. Kohn, Theory of metal surfaces: work function // Physical Review B – 1971. – Vol. 3, №4. – p. 1215.
- [106] G. N. Derry, Z. Ji-Zhong, Work function of pt (111) // Physical Review B – 1989. – Vol. 39, №3. – p. 1940.
- [107] А. К. Звездин, В. А. Котов, *Магнитооптика тонких пленок*. – Москва: Наука, 1988.

- [108] V. V. Temnov, G. Armelles, U. Woggon, D. Guzatov, A. Cebollada, A. Garcia-Martin, J. M. Garcia-Martin, T. Thomay, A. Leitenstorfer, R. Bratschitsch, Active magneto-plasmonics in hybrid metal–ferromagnet structures // *Nature Photonics* – 2010. – Vol. 4, №2. – p. 107–111.
- [109] V. I. Belotelov, I. A. Akimov, M. Pohl, V. A. Kotov, S. Kasture, A. S. Vengurlekar, A. V. Gopal, D. R. Yakovlev, A. K. Zvezdin, M. Bayer, Enhanced magneto-optical effects in magnetoplasmonic crystals // *Nature Nanotechnology* – 2011. – Vol. 6, p. 370–376.
- [110] G. Armelles, A. Cebollada, A. Garc'ia-Mart'in, M. U. Gonz'alez, Magnetoplasmonics: combining magnetic and plasmonic functionalities // *Advanced Optical Materials* – 2013. – Vol. 1, №1. – p. 10–35.
- [111] G. A. Knyazev, P. O. Kapralov, N. A. Gusev, A. N. Kalish, P. M. Vetoshko, S. A. Dagesyan, A. N. Shaposhnikov, A. R. Prokopov, V. N. Berzhansky, A. K. Zvezdin, others, Magnetoplasmonic crystals for highly sensitive magnetometry // *ACS Photonics* – 2018. – Vol. 5, №12. – p. 4951–4959.
- [112] D. O. Ignatyeva, G. A. Knyazev, P. O. Kapralov, G. Dietler, S. K. Sekatskii, V. I. Belotelov, Magneto-optical plasmonic heterostructure with ultranarrow resonance for sensing applications // *Scientific Reports* – 2016. – Vol. 6, №1. – p. 28077.
- [113] M. Abe, Derivation of nondiagonal effective dielectric-permeability tensors for magnetized granular composites // *Physical Review B* – 1996. – Vol. 53, №11. – p. 7065.
- [114] M. Abe, T. Suwa, Surface plasma resonance and magneto-optical enhancement in composites containing multicore-shell structured nanoparticles // *Physical Review B* – 2004. – Vol. 70, №23. – p. 235103.

- [115] V. Bonanni, S. Bonetti, T. Pakizeh, Z. Pirzadeh, J. Chen, J. Nogués, P. Vavassori, R. Hillenbrand, J. Åkerman, A. Dmitriev, Designer magnetoplasmonics with nickel nanoferro magnets // Nano Letters – 2011. – Vol. 11, №12. – p. 5333–5338.
- [116] L. Wang, C. Clavero, Z. Huba, K. J. Carroll, E. E. Carpenter, D. Gu, R. A. Lukaszew, Plasmonics and enhanced magneto-optics in core-shell co-ag nanoparticles // Nano Letters – 2011. – Vol. 11, №3. – p. 1237–1240.
- [117] S. Tomita, T. Kato, S. Tsunashima, S. Iwata, M. Fujii, S. Hayashi, Magneto-optical kerr effects of yttrium-iron garnet thin films incorporating gold nanoparticles // Physical Review Letters – 2006. – Vol. 96, №16. – p. 167402.
- [118] H. Uchida, Y. Masuda, R. Fujikawa, A. V. Baryshev, M. Inoue, Large enhancement of faraday rotation by localized surface plasmon resonance in Au nanoparticles embedded in bi: Yig film // Journal of Magnetism and Magnetic Materials – 2009. – Vol. 321, №7. – p. 843–845.
- [119] A. I. Musorin, A. V. Chetvertukhin, T. V. Dolgova, H. Uchida, M. Inoue, B. S. Luk'yanchuk, A. A. Fedyanin, Tunable multimodal magnetoplasmonic metasurfaces // Applied Physics Letters – 2019. – Vol. 115, №15. – p. 151102.
- [120] N. Maccaferri, L. Bergamini, M. Pancaldi, M. K. Schmidt, M. Kataja, S. v. Dijken, N. Zabala, J. Aizpurua, P. Vavassori, Anisotropic nanoantenna-based magnetoplasmonic crystals for highly enhanced and tunable magneto-optical activity // Nano Letters – 2016. – Vol. 16, №4. – p. 2533–2542.
- [121] A. V. Chetvertukhin, A. I. Musorin, T. V. Dolgova, H. Uchida, M. Inoue, A. A. Fedyanin, Transverse magneto-optical kerr effect in 2d gold-garnet nanogratings // Journal

- of Magnetism and Magnetic Materials – 2015. – Vol. 383, p. 110–113.
- [122] V. I. Belotelov, D. A. Bykov, L. L. Doskolovich, A. N. Kalish, A. K. Zvezdin, Extraordinary transmission and giant magneto-optical transverse kerr effect in plasmonic nanostructured films // Journal of the Optical Society of America B – 2009. – Vol. 26, p. 1594–1598.
- [123] M. Weissenhofer, P. M. Oppeneer, Ultrafast demagnetization through femtosecond generation of non-thermal magnons // Advanced Physics Research – 2025. – Vol. 4, №8. – p. 2300103.
- [124] M. Pankratova, I. P. Miranda, D. Thonig, M. Pereiro, E. Sjoqvist, A. Delin, O. Eriksson, A. Bergman, Heat-conserving three-temperature model for ultrafast demagnetization in nickel // Physical Review B – 2022. – Vol. 106, №17. – p. 174407.
- [125] M. Pankratova, I. P. Miranda, D. Thonig, M. Pereiro, E. Sjoqvist, A. Delin, P. Scheid, O. Eriksson, A. Bergman, Coupled atomistic spin-lattice simulations of ultrafast demagnetization in 3d ferromagnets // Scientific Reports – 2024. – Vol. 14, №1. – p. 8138.
- [126] P. Scheid, Q. Remy, S. Lebegue, G. Malinowski, S. Mangin, Light induced ultrafast magnetization dynamics in metallic compounds // Journal of Magnetism and Magnetic Materials – 2022. – Vol. 560, p. 169596.
- [127] X. Chen, R. Adam, D. E. Burgler, F. Wang, Z. Lu, L. Pan, S. Heidtfeld, C. Greb, M. Liu, Q. Liu, others, Ultrafast demagnetization in ferromagnetic materials: Origins and progress // Physics Reports – 2025. – Vol. 1102, p. 1–63.
- [128] W. Di, J. Jiang, J. Shang, L. Su, Z. Zhang, A. Stupakiewicz, A. M. Kalashnikova, A. Wu, Magneto-optical kerr effect and ultrafast demagnetization in the bi, mn: Yig films with

- perpendicular magnetic anisotropy // Crystal Research and Technology – 2025. – Vol. 60, №6. – p. 2400223.
- [129] L. A. Shelukhin, V. V. Pavlov, P. A. Usachev, P. Yu. Shamray, R. V. Pisarev, A. M. Kalashnikova, Ultrafast laser-induced changes of the magnetic anisotropy in a low-symmetry iron garnet film // Physical Review B – 2018. – Vol. 97, №1. – p. 014422.
- [130] А. М. Калашникова, А. В. Кимель, Р. В. Писарев, Сверхбыстрый оптомагнетизм // Успехи физических наук – 2015. – т. 185, №10. – с. 1064–1076.
- [131] A. Stupakiewicz, T. Satoh, Ultrafast optomagnonics in ferrimagnetic multi-sublattice garnets // Journal of the Physical Society of Japan – 2021. – Vol. 90, №8. – p. 081008.
- [132] H. Hamamera, F. S. M. Guimarães, M. Santos Dias, S. Lounis, Polarisation-dependent single-pulse ultrafast optical switching of an elementary ferromagnet // Communications Physics – 2022. – Vol. 5, №1. – p. 16.
- [133] O. H.-C. Cheng, D. H. Son, M. Sheldon, Light-induced magnetism in plasmonic gold nanoparticles // Nature Photonics – 2020. – Vol. 14, №6. – p. 365–368.
- [134] D. O. Ignatyeva, D. Karki, A. A. Voronov, M. A. Kozhaev, D. M. Krichevsky, A. I. Chernov, M. Levy, V. I. Belotelov, All-dielectric magnetic metasurface for advanced light control in dual polarizations combined with high-q resonances // Nature Communications – 2020. – Vol. 11, №1. – p. 5487.
- [135] D. Bossini, V. I. Belotelov, A. K. Zvezdin, A. N. Kalish, A. V. Kimel, Magnetoplasmonics and femtosecond optomagnetism at the nanoscale // ACS Photonics – 2016. – Vol. 3, №8. – p. 1385–1400.
- [136] D. A. Sylgacheva, N. E. Khokhlov, P. I. Gerevenkov, I. A. Filatov, M. A. Kozhaev, I. V. Savochkin, A. N. Kalish, A. M.

- Kalashnikova, V. I. Belotelov, Spatially selective excitation of spin dynamics in magneto-phonic crystals by spectrally tunable ultrashort laser pulses // *Nanophotonics* – 2022. – Vol. 11, №13.– p. 3169–3176.
- [137] K. Mishra, R. M. Rowan-Robinson, A. Ciuciulkaite, C. S. Davies, A. Dmitriev, V. Kapaklis, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, Ultrafast demagnetization control in magnetophonic surface crystals // *Nano Letters* – 2022. – Vol. 22, №23.– p. 9773–9780.
- [138] B. Koopmans, M. Van Kampen, J. T. Kohlhepp, W. J. M. De Jonge, Ultrafast magneto-optics in nickel: magnetism or optics? // *Physical Review Letters* – 2000. – Vol. 85, №4.– p. 844.
- [139] G. P. Zhang, W. Hübner, G. Lefkidis, Y. Bai, T. F. George, Paradigm of the time-resolved magneto-optical kerr effect for femtosecond magnetism // *Nature Physics* – 2009. – Vol. 5, №7.– p. 499–502.
- [140] K. C. Kuiper, G. Malinowski, F. D. Longa, B. Koopmans, Nonlocal ultrafast magnetization dynamics in the high fluence limit // *Journal of Applied Physics* – 2011. – Vol. 109, №7.– .
- [141] R. Carey, D. M. Newman, B. W. J. Thomas, Thickness dependence of the transverse kerr effect in thin ferromagnetic films // *Journal of Physics D: Applied Physics* – 1977. – Vol. 10, №10.– p. L131.
- [142] H. Hashim, M. Kozhaev, P. Kapralov, L. Panina, V. Belotelov, I. V'ishov'a, D. Chvostov'a, A. Dejneka, I. Shpetnyi, V. Latyshev, others, Controlling the transverse magneto-optical kerr effect in cr/nife bilayer thin films by changing the thicknesses of the cr layer // *Nanomaterials* – 2020. – Vol. 10, №2.– p. 256.
- [143] B. E. A. Saleh, M. C. Teich, *Fundamentals of photonics*. – John Wiley & sons, 2019.

- [144] A. Schirato, M. G. Silva, D. C. Teles-Ferreira, C. Manzoni, A. M. Paula, G. Cerullo, G. Della Valle, M. Di Vece, Disentangling the ultrafast nonlinear optical behavior of plasmonic resonances near the interband transition // *Advanced Photonics Research* – 2023. – Vol. 4, №1. – p. 2200081.
- [145] M. Deb, E. Popova, A. Fouchet, N. Keller, Magneto-optical faraday spectroscopy of completely bismuth-substituted $\text{bi}_3\text{fe}_5\text{o}_{12}$ garnet thin films // *Journal of Physics D: Applied Physics* – 2012. – Vol. 45, №45. – p. 455001.
- [146] G. F. Dionne, *Magnetic oxides*. – V. 14 Springer, 2009.
- [147] K. J. Rietwyk, D. A. Keller, A. Ginsburg, H.-N. Barad, M. Priel, K. Majhi, Z. Yan, S. Tirosh, A. Y. Anderson, L. Ley, others, Universal work function of metal oxides exposed to air // *Advanced Materials Interfaces* – 2019. – Vol. 6, №12. – p. 1802058.
- [148] P. A. Anderson, Work function of gold // *Physical Review* – 1959. – Vol. 115, №3. – p. 553.
- [149] W. M. H. Sachtler, G. J. H. Dorgelo, A. A. Holscher, The work function of gold // *Surface Science* – 1966. – Vol. 5, №2. – p. 221–229.
- [150] E. Loewen, E. Popov, *Diffraction Gratings and Applications*. – Marcel Dekker, 1997.
- [151] P. B. Johnson, R. W. Christy, Optical constants of transition metals: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, and Pd // *Physical Review B* – 1974. – Vol. 9, №12. – p. 5056.
- [152] J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, K. H. Bennemann, Nonequilibrium magnetization dynamics of nickel // *Physical Review Letters* – 1997. – Vol. 78, p. 4861.
- [153] S. Zollner, T. N. Nunley, D. P. Trujillo, L. G. Pineda, L. S. Abdallah, Temperature-dependent dielectric function

- of nickel // Applied Surface Science – 2017. – Vol. 421, p. 913–916.
- [154] M. A. Kiryanov, A. Yu. Frolov, I. A. Novikov, P. A. Kipp, P. K. Nurgalieva, V. V. Popov, A. A. Ezhov, T. V. Dolgova, A. A. Fedyanin, Surface profile-tailored magneto-optics in magnetoplasmonic crystals // APL Photonics – 2022. – Vol. 7, №2. – p. 026104.
- [155] Г.С. Кринчик, В.А. Артемьев, Магнитооптические свойства Ni, Fe и Co в ультрафиолетовой, видимой и инфракрасной областях спектра // Журнал экспериментальной и теоретической физики – 1967. – т. 53, №6. – с. 1901.
- [156] M. B. Sobnack, W. C. Tan, N. P. Wanstall, T. W. Preist, J. R. Sambles, Stationary surface plasmons on a zero-order metal grating // Physical Review Letters – 1998. – Vol. 80, p. 5667.

M. A. Kiryanov

Femtosecond optical response dynamics of metal-dielectric metasurfaces and magnetoplasmonic crystals / M. A. Kiryanov. Moscow University Press, 2025. 194 p.

The book is based on the thesis “Femtosecond optical response dynamics of metal-dielectric metasurfaces and magnetoplasmonic crystals” and presents an experimental and numerical study of peculiarities of the ultrafast optical and magneto-optical dynamics of various electromagnetic modes in plasmonic structures subjected to femtosecond laser excitation.

Keywords: nanophotonics, plasmonics, ultrafast optics, electron dynamics, femtosecond “pump-probe” spectroscopy