

На правах рукописи

КОРНЕЕВ Антон Алексеевич

**ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ПОВЫШЕНИЯ ЭФФЕКТИВНОСТИ
ПРОЦЕССА ГЕНЕРАЦИИ ТРЕТЬЕЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ ПРИ
ОТРАЖЕНИИ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ОТ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ
ДИФРАКЦИОННЫХ РЕШЁТОК**

Специальность 01.04.21 – лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва – 2009

Работа выполнена на кафедре общей физики и волновых процессов физического факультета Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова

Научные руководители: доктор физико-математических наук, профессор
Андреев Анатолий Васильевич,

кандидат физико-математических наук,
Прудников Илья Рудольфович

Официальные
оппоненты: доктор физико-математических наук, профессор
Акципетров Олег Андреевич

кандидат физико-математических наук
Семиногов Владимир Николаевич

Ведущая организация: Институт общей физики имени Прохорова РАН

Защита состоится “ 19 “ марта 2009 года в 17³⁰ на заседании диссертационного совета Д 501.001.31 при Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова по адресу: 119991, Москва, улица Академика Хохлова, дом 1, КНО, аудитория имени С.А.Хохлова.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова.

Автореферат разослан “___” февраля 2009 года.

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

Ильинова Т.М.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность исследований

Процесс генерации третьей оптической гармоники (ГТГ) является одним из эффективных инструментов исследования свойств тонких металлических плёнок и наночастиц, находящихся на поверхности подложки. В этой связи следует отметить эксперименты по определению толщины металлической плёнки и численных значений компонент тензора нелинейной восприимчивости третьего порядка на основе анализа сигнала ГТГ. В отличие от процесса генерации второй оптической гармоники, процесс ГТГ может происходить в объеме изотропной среды, что позволяет использовать спектры нелинейного отклика на частоте третьей гармоники для определения формы и размеров одиночных наночастиц, а также их местоположения на поверхности.

Основной трудностью при использовании ГТГ является ее малая эффективность: например, в случае золотой пленки на подложке отношение интенсивности регистрируемого сигнала на частоте третьей гармоники $I(3\omega)$ к интенсивности падающего на среду излучения накачки $I(\omega)$ составляет $I(3\omega)/I(\omega) \approx 10^{-11}$. Одним из возможных методов усиления сигнала третьей гармоники, помимо непосредственного увеличения интенсивности падающего излучения, является усиление нелинейного отклика металла при помощи возбуждения поверхностного плазмона (ПП). ПП представляет собой поверхностную электромагнитную волну, распространяющуюся вдоль границы раздела металл - вакуум. Причиной возникновения ПП являются коллективные колебания электронов проводимости в металле. ПП является частично продольной волной ТМ-типа.

При возбуждении ПП происходит “перекачка” энергии от возбуждающей объемной волны к поверхностной электромагнитной волне. Так как ПП существует лишь в тонком приповерхностном слое (толщина слоя ≈ 10 нм), то плотность энергии его электромагнитного поля в несколько раз превосходит плотность энергии возбуждающей волны накачки. Именно это обстоятельство обуславливает значительное усиление интенсивности нелинейного отклика - а значит и процесса ГТГ - в случае эффективного возбуждения ПП.

Таким образом, процесс ГТГ при участии ПП протекает в три этапа: на первом этапе происходит возбуждение ПП, затем в результате нелинейного плазмон-плазмонного взаимодействия появляется поверхностная электромагнитная волна на частоте третьей оптической гармоники, на последнем этапе ПП на утроенной частоте преобразуется в объёмную волну, которая и регистрируется в экспериментах.

Следует отметить, что при использовании ПП для увеличения эффективности ГТГ возникает препятствие – невозможность прямого возбуждения ПП объемной волной на

гладкой металлической поверхности, т.к. волновой вектор ПП всегда больше волнового вектора объемной волны. Одним из способов компенсации этой разницы является использование дифракционной решетки. В последнем случае металлическая плёнка наносится на дифракционную решётку из диэлектрика, а возбуждение ПП происходит при помощи какого либо из порядков дифракции возбуждающей волны.

Различают две геометрии возбуждения ПП на дифракционной решетке коллинеарную и неколлинеарную. При коллинеарной геометрии возбуждения штрихи дифракционной решетки перпендикулярны плоскости падения волны накачки. В неколлинеарной геометрии возбуждения ПП штрихи решетки параллельны плоскости падения света. Отличительной особенностью неколлинеарной схемы является возможность одновременного возбуждения двух разных ПП с использованием двух порядков дифракции волны накачки. Это обстоятельство значительно расширяет спектр нелинейных взаимодействий различных ПП, а также предоставляет дополнительные возможности для управления эффективностью возбуждения ПП и пространственным распределением его электромагнитного поля вблизи поверхности металла.

Таким образом, создание теоретической модели, которая правильно описывает наблюдаемые в эксперименте особенности нелинейного отклика металлической дифракционной решетки на частоте третьей оптической гармоники, позволяет дать физическую интерпретацию особенностям усиления нелинейного отклика при возбуждении ПП, а также сформулировать критерии для получения наибольшей интенсивности сигнала на частоте третьей гармоники в эксперименте.

Основные цели диссертационной работы

Теоретическое исследование процесса ГТГ в металлической пленке на стеклянной подложке с периодическим рельефом поверхности (в дальнейшем - металлической дифракционной решетке) при возбуждении ПП. Изучение зависимости эффективности нелинейного преобразования от параметров схемы возбуждения ПП, а также их оптимизация для получения максимальной интенсивности сигнала на частоте третьей гармоники.

В работе были поставлены и решены следующие задачи:

1. Развитие аналитического подхода к решению векторных уравнений Максвелла, описывающих нелинейный отклик металлических дифракционных решеток при рассеянии векторного электромагнитного излучения [Andreev A.V. etc.,

- Phys.Rev.B, V.69, p.035403, 2004], для изучения процесса ГТГ в тонких металлических пленках с различным рельефом поверхности.
2. Создание на базе развитого теоретического метода численного алгоритма и программного комплекса для проведения компьютерного моделирования процесса ГТГ в металлической пленке, расположенной на диэлектрической подложке с периодическим рельефом поверхности.
 3. Сравнение результатов теоретических расчетов с экспериментальными данными, полученными к настоящему времени другими исследователями. Физическая интерпретация наблюдаемых в эксперименте эффектов при ГТГ. Развитие методики для определения структурных параметров металлической пленки из экспериментальных угловых спектров ГТГ.
 4. Моделирование процесса возбуждения и линейного взаимодействия ПП на металлической дифракционной решетке в случае различных геометрий возбуждения.
 5. Теоретическое исследование и интерпретация особенностей нелинейного отклика металлической пленки при возбуждении ПП. Анализ возможностей для усиления нелинейного отклика на частоте третьей гармоники.

Научная новизна

1. Впервые теоретически исследован процесс усиления ГТГ в тонких металлических пленках на диэлектрической дифракционной решетке при возбуждении ПП.
2. Теоретически исследованы особенности нелинейного взаимодействия поверхностных плазмонов в коллинеарной и неколлинеарной геометрии возбуждения ПП. Показано как эти особенности влияют на эффективность нелинейного отклика.
3. Аналитически показано, что образование запрещенной зоны при возбуждении ПП в неколлинеарной схеме влияет на интенсивность нелинейного отклика на частоте третьей гармоники. Исследован физический механизм этого влияния.
4. Теоретически исследована связь между анизотропией нелинейных свойств тонкой металлической пленки, расположенной на диэлектрической подложке с периодическим рельефом поверхности, и эффективностью ГТГ в этой пленке.
5. На основе численного моделирования исследовано влияние структурных параметров металлической дифракционной решетки (период, высота рельефа, форма рельефа) на эффективность нелинейного отклика на частоте третьей гармоники.

6. Аналитически показано, что существует схема ГТГ в тонких металлических пленках, позволяющая увеличить максимальную интенсивность регистрируемого сигнала на два порядка по сравнению с ранее используемыми экспериментальными схемами.

Практическая ценность представленных в работе исследований

1. В результате теоретического исследования процесса линейного взаимодействия двух возбуждаемых поверхностных плазмонов, показана возможность управления распределением электромагнитного поля накачки внутри металлической пленки путем изменения формы рельефа дифракционной решетки.
2. На основе результатов численного моделирования найдены оптимальные значения для структурных параметров дифракционной решетки и характеристик падающего излучения накачки, которые необходимы для получения наибольшего усиления (в 10^4 раз) интенсивности сигнала на частоте третьей гармоники при возбуждении поверхностного плазмона.

Положения, выносимые на защиту

1. Причиной асимметрии плазмонных резонансов наблюдаемых при малых ($\varphi < 2^\circ$) азимутальных углах поворота решетки вокруг нормали в случае использования неколлинеарной геометрии возбуждения (плоскость падения волны накачки направлена вдоль штрихов решетки) является взаимодействие двух плазмонов. Это взаимодействие возникает в результате рассеяния поверхностного плазмона на второй гармонике рельефа поверхности и приводит к появлению запрещенной зоны для поверхностных плазмонов.

2. При использовании неколлинеарной схемы возбуждения поверхностного плазмона появляются дополнительные каналы обмена энергией между поверхностными электромагнитными волнами и объёмной электромагнитной волной на частоте третьей оптической гармоники, которые связаны с нелинейным взаимодействием поверхностных плазмонов, распространяющихся в различных направлениях. Появление этих каналов приводит к усилению интенсивности сигнала на частоте третьей оптической гармоники и является отличительной особенностью ГТГ в случае неколлинеарной схемы.

3. Учет взаимного пространственного расположения плоскостей поляризации падающей на металлическую дифракционную решетку волны накачки и возбуждаемого ПП открывает новые возможности управления эффективностью нелинейного отклика на частоте третьей гармоники.

Апробация работы

Результаты исследований, вошедших в диссертационную работу, опубликованы в 9 печатных работах, в том числе в 4-х научных статьях (из них 3 в журналах из списка ВАК), а также докладывались на следующих конференциях: “Фундаментальные проблемы оптики”, С. Петербург, 2004; “International Conference on Coherent and Nonlinear Optics” (ICONO), С. Петербург, 2005; “International Conference on Coherent and Nonlinear Optics” (ICONO), Минск, 2007; “Поляризационная оптика”, Москва, 2008; “Bilateral russian-french workshop on Nanosciences and Nanotechnologies”, Москва, 2008.

Личный вклад автора

Автор диссертации участвовал в формировании задач исследований, обсуждении и физической интерпретации полученных результатов. Ему принадлежит разработка и создание программы для математического моделирования исследуемых объектов, а также работа по проведению численных экспериментов.

Структура диссертационной работы:

Диссертационная работа состоит из введения пяти глав и заключения.

Общий объем диссертации 123 страницы, в том числе 50 иллюстраций. Список литературы содержит 156 названий.

СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во **введении** обоснована актуальность диссертационной работы, сформулированы основные цели и кратко изложены результаты проведенных исследований, а также сформулированы защищаемые положения.

Первая глава является обзором литературы и посвящена описанию основных аспектов исследования ПП, а также процесса ГТГ в тонких металлических пленках. В **разделе 1.1** изложены основные исторические этапы исследования ПП с момента его первого наблюдения Робертом Вудом в 1902 году до настоящего времени. **Раздел 1.2** посвящен теоретическому рассмотрению условий существования ПП и выводу его дисперсионного соотношения. Обзор основных схем возбуждения ПП на металлической поверхности приведен в **разделе 1.3**. В **разделе 1.4** представлены различные направления исследований ПП, а основные области его практического применения рассмотрены в **разделе 1.5**. В заключение обзора литературы описаны основные исторические этапы исследования процесса ГТГ при отражении электромагнитного излучения от поверхности

металла. Также рассмотрены примеры использования поверхностного плазмона для увеличения нелинейного отклика на частоте третьей гармоники.

Во **второй главе** представлено подробное описание процесса ГТГ при отражении волны накачки от тонкой металлической пленки, нанесенной на поверхность стеклянной дифракционной решетки с синусоидальным профилем. В **разделе 2.1** исследован процесс генерации ПП на поверхности металлической пленки (см. Рис. 1). Падающая электромагнитная волна с волновым вектором \vec{K} , испытывает дифракцию на решётке, и в случае выполнения условия:

$$|\vec{K} \sin(\theta) + n\vec{Q}| = (K \sin \theta \sin \varphi + Qn)^2 + (K \sin \theta \cos \varphi)^2 = \left| \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}} \right|^2 = K_{ПП} \quad (1)$$

происходит возбуждение ПП с волновым вектором $\vec{K}_{ПП}$ в (n) -ом порядке дифракции падающего излучения. Изучение процесса возбуждения ПП происходит с помощью анализа коэффициента отражения от угла падения волны накачки. В случае возбуждения ПП на кривой зеркального отражения наблюдается минимум, обусловленный обменом энергией между падающей волной и ПП.

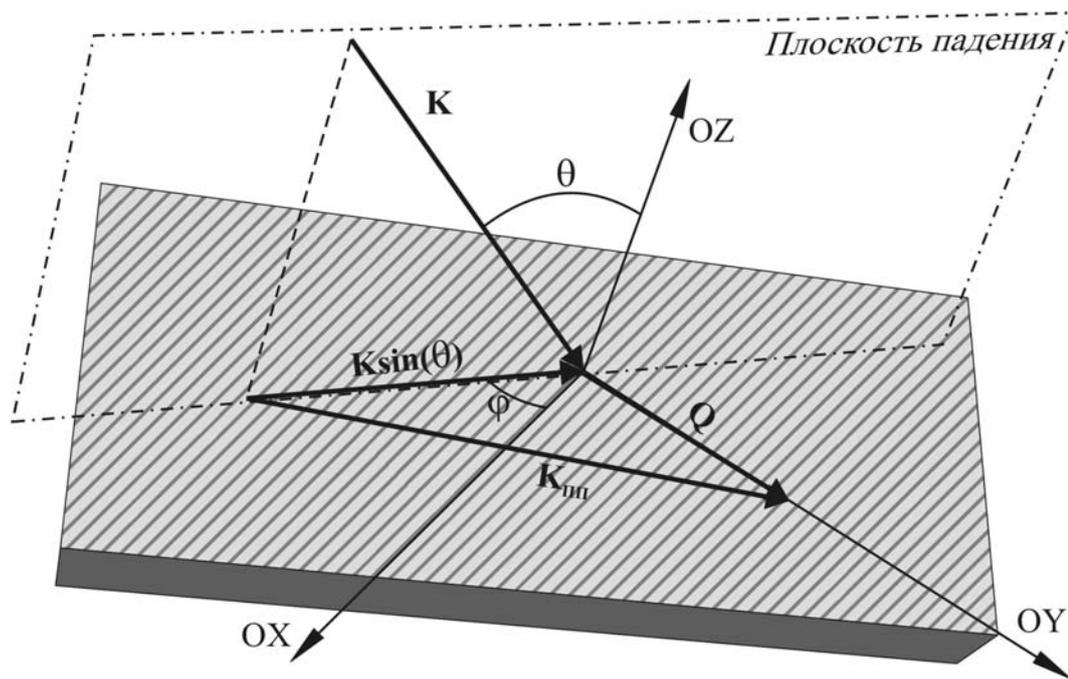


Рис. 1 Схема генерации поверхностного плазмона при рассеянии света на металлической дифракционной решётке. \mathbf{K} -волновой вектор падающей волны, $\mathbf{K} \sin(\theta)$ - проекция волнового вектора падающей волны на подстилающую поверхность дифракционной решетки, $\mathbf{K}_{ПП}$ – волновой вектор поверхностного плазмона, \mathbf{Q} - вектор обратной решётки, θ -угол падения, φ -азимутальный угол.

При использовании коллинеарной геометрии возбуждения ($\varphi = 90^\circ$) наибольшая эффективность возбуждения происходит при использовании Р-поляризованной волны накачки, а условие возбуждения ПП (1) выполняется для одного порядка дифракции. При

использовании неколлинеарной геометрии (при $\varphi = 0^\circ$) наибольшая эффективность возбуждения наблюдается при использовании S –поляризованной волны накачки, а условие (1) одновременно (при одном угле падения) выполняется для двух порядков дифракции. В заключении раздела приводятся экспериментальные данные (полученные М.М. Назаровым и А.П. Шкуриновым на кафедре ОФиВП Физического Факультета МГУ) для обеих геометрий возбуждения. Производится сравнение экспериментальных результатов с известными из литературы результатами теоретического моделирования. В случае коллинеарной геометрии теория и эксперимент дают одинаковую картину отражения волны накачки, а в случае неколлинеарной геометрии возбуждения проявляются различия в глубинах плазменных резонансов при изменении азимутального угла φ .

Раздел 2.2 посвящен описанию особенностей ГТГ в условиях возбуждения ПП. Возбуждение ПП приводит к увеличению локального электромагнитного поля вблизи поверхности металла и повышает вероятность нелинейных процессов в приповерхностных слоях металла. В результате нелинейного взаимодействия трех поверхностных плазмонов происходит возбуждение поверхностного плазмона на частоте третьей гармоники (ТГПП) $\vec{K}_{ТГПП} = 3\vec{K}_{ПП}$. Переизлучение сигнала на частоте третьей гармоники в пространство происходит при рассеянии ТГПП на дифракционной решетке. При этом сигнал на частоте третьей гармоники излучается в направлении одного из порядков дифракции объемной волны на частоте третьей гармоники $\vec{K}_n^{3\omega}$:

$$|\vec{K}_{ТГПП} - m\vec{Q}| = K_{3-m}^{3\omega} \sin(\theta), \quad \vec{K}_{3-m}^{3\omega} \sin(\theta) = \vec{K}^{3\omega} \sin(\theta) + (3-m)\vec{Q} \quad (2)$$

где m –число рассеяний на дифракционной решетке. При использовании коллинеарной геометрии возбуждения происходит генерация одного поверхностного плазмона на частоте третьей гармоники, а в случае неколлинеарной геометрии (при $\varphi = 0^\circ$) одновременно генерируется два ТГПП.

В конце второй главы приведены результаты экспериментального изучения процесса усиления эффективности ГТГ при возбуждении ПП. Основными особенностями экспериментальных результатов является расщепление максимума угловой зависимости интенсивности сигнала третьей гармоники относительно положения минимума коэффициента отражения в коллинеарной схеме, и десятикратное уменьшение интенсивности сигнала третьей гармоники при использовании неколлинеарной геометрии (несмотря на одновременное возбуждение двух ПП на частоте третьей гармоники).

Глава три посвящена изложению алгоритма теоретического расчета нелинейного отклика на частоте третьей гармоники от объектов с периодической структурой

поверхности. Алгоритм основан на решении векторных уравнений Максвелла. В разделе 3.1 представлен алгоритм нахождения линейного отклика. Алгоритм основан на методе разбиения профиля поверхности исследуемого объекта на отдельные неоднородные слои, разделенные тонкими вакуумными промежутками. Толщина слоя выбирается исходя из двух условий: 1. Амплитуда отраженной от слоя волны пренебрежимо мала по сравнению с амплитудой прошедшей волны, 2. Относительное изменение амплитуды волны при прохождении через слой также является пренебрежимо малой величиной. Периодичность рельефа поверхности объекта (а значит и его оптических свойств) позволяет представить падающее поле накачки, а также поля в вакуумных промежутках между слоями в виде разложения в ряд по блоховским волнам:

$$\vec{E}^i(\vec{r}, t) = \sum_m E_m^i \exp(ik_x x + ik_y y + iQm y + ik_z^m z - i\omega t) \quad (3)$$

Затем записываются рекуррентные соотношения для векторов из амплитуд блоховских волн $\hat{\Psi}$ внутри вакуумных промежутков, учитывающие все возможные перераспределения от неоднородных слоев (см. Рис. 2):

$$\begin{cases} \hat{\Psi}_j^t = \hat{\tau}_{j-1} \hat{\Psi}_{j-1}^t + \hat{s}'_{j-1} \hat{\Psi}_j^s, \\ \hat{\Psi}_j^s = \hat{s}_j \hat{\Psi}_j^t + \hat{\tau}'_j \hat{\Psi}_{j+1}^s, \end{cases} \quad (4)$$

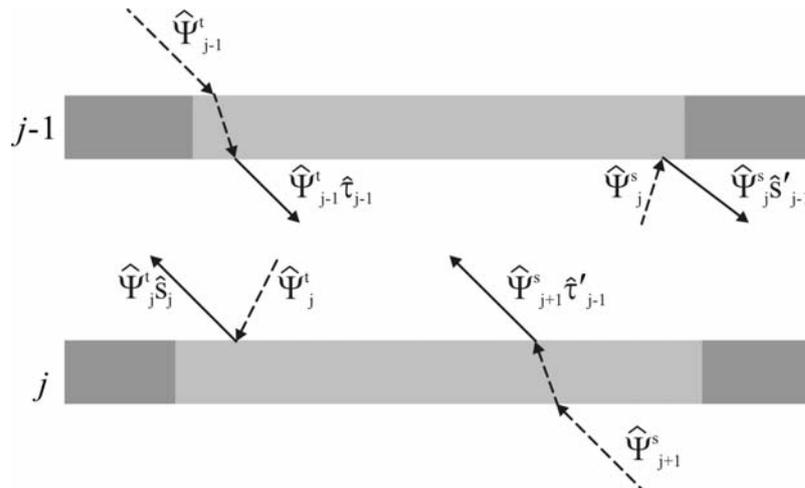


Рис. 2 Схема к рекуррентной формуле для расчета линейного отклика дифракционной решетки. $\hat{\Psi}_j^t, \hat{\Psi}_j^s$ - амплитуды волн, распространяющихся в положительном и отрицательном направлении оси OZ в вакуумном промежутке над слоем j, $\hat{\tau}_j, \hat{s}_j$ - матрицы прохождения и отражения в прямом направлении слоя j, $\hat{\tau}'_j, \hat{s}'_j$ - матрицы прохождения и отражения для обратной стороны слоя j.

Матрицы рассеяния $\hat{s}'_{j-1}, \hat{s}_j$ и пропускания $\hat{\tau}_{j-1}, \hat{\tau}'_j$ отдельного слоя находятся при помощи векторных уравнений Максвелла, записанных в интегральной форме:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{1}{4\pi c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int \chi(\vec{r}') \frac{\vec{E}^i(\vec{r}', t - \frac{R}{c})}{R} d\vec{r}' + \frac{1}{4\pi} \int \chi(\vec{r}') \text{grad div}_{\vec{r}} \frac{\vec{E}^i(\vec{r}', t - \frac{R}{c})}{R} d\vec{r}' + \vec{E}^i(\vec{r}, t) \quad (5)$$

Где в качестве \vec{E}^i выступает поле в вакуумном промежутке над слоем, представленное в виде (3), а $\chi(\vec{r}')$ также разлагается в ряд в силу периодичности изменения оптических свойств слоя. Последовательное применение рекуррентных соотношений (4) ко всем неоднородным слоям позволяет найти матрицу отражения от всего объекта.

Раздел 3.2 посвящен изложению алгоритма нахождения нелинейного отклика объекта. Зная линейный отклик системы неоднородных слоев, и применяя соотношения (4) становится возможным вычисление поля накачки внутри каждого неоднородного слоя. Поляризация на частоте третьей гармоники вычисляется в соответствии с выражением:

$$P_{\alpha}^{(3\omega)}(\vec{r}, t) = \chi_{\alpha\beta\gamma\sigma}^{(3)}(\vec{r}) E_{\beta}(\vec{r}, t) E_{\gamma}(\vec{r}, t) E_{\sigma}(\vec{r}, t) \quad (6)$$

где $E_{\beta}(\vec{r}, t)$ - поле внутри слоя, а полученное значение поляризации также представимо в виде разложения по блоховским волнам (3). Нелинейный отклик на частоте третьей гармоники от неоднородного слоя находится с помощью интегрального уравнения (5), представленного в виде:

$$\vec{E}^{(3\omega)}(\vec{r}, t) = -\frac{1}{4\pi c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int \frac{\vec{P}^{(3\omega)}(\vec{r}', t - \frac{R}{c})}{R} d\vec{r}' + \frac{1}{4\pi} \int \text{graddiv}_{\vec{r}} \frac{\vec{P}^{(3\omega)}(\vec{r}', t - \frac{R}{c})}{R} d\vec{r}' \quad (7)$$

Далее записываются рекуррентные соотношения для полей на частоте третьей гармоники внутри вакуумных промежутков, учитывающих наличие источников поля на частоте нелинейного отклика внутри слоев:

$$\begin{cases} \hat{\Psi}_j^t = \hat{t}_{j-1} \hat{\Psi}_{j-1}^t + \hat{s}_{j-1} \hat{\Psi}_j^s + \hat{\Psi}_{j-1}^{t, nl} \\ \hat{\Psi}_j^s = \hat{s}_j \hat{\Psi}_j^t + \hat{t}_j \hat{\Psi}_{j+1}^s + \hat{\Psi}_j^{s, nl} \end{cases} \quad (8)$$

Последовательное применение соотношений (8) ко всем неоднородным слоям позволяет вычислить интенсивность сигналов на частоте третьей гармоники для всех порядков дифракции как отраженного, так и прошедшего сквозь исследуемый объект излучения.

Представленный алгоритм позволяет также вычислять пространственное распределение поля накачки и поля на частоте третьей гармоники вблизи поверхности объекта исследования и изучать взаимодействие между различными порядками дифракции.

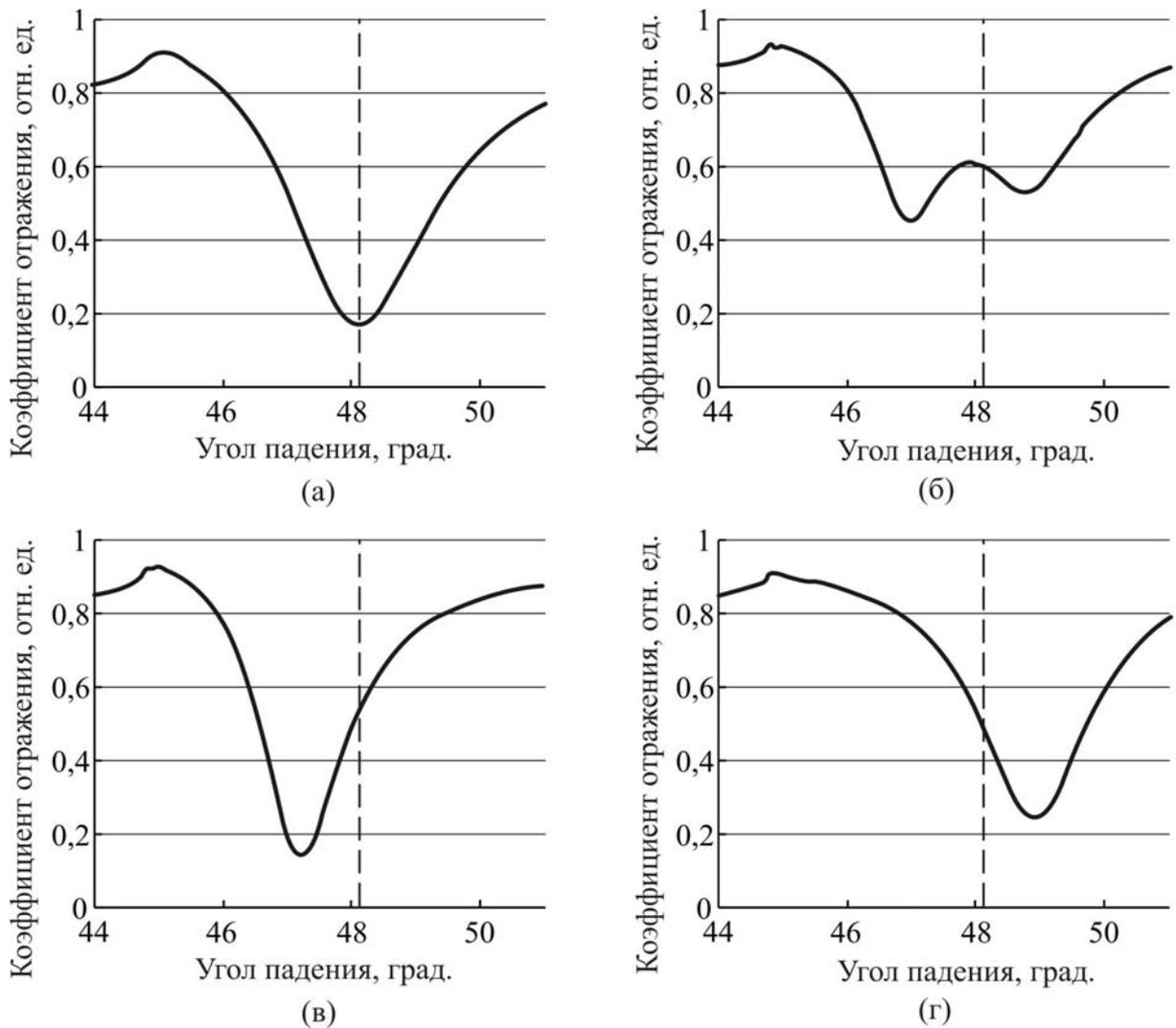


Рис. 3 Зависимость коэффициента отражения от угла падения при неколлинеарном возбуждении поверхностного плазмона S – поляризованным излучением, азимутальный угол $\varphi = 0^\circ$, для случаев (а) – синусоидального рельефа, (б) – асимметричного рельефа, (в) – рельефа с острой вершиной, (г) – рельефа с плоской вершиной. Пунктирной кривой на всех графиках обозначена угловая координата минимума коэффициента отражения для синусоидального рельефа.

В **четвертой главе** представлены результаты теоретического исследования особенностей линейного отклика металлической дифракционной решетки, проведенных на основе численного алгоритма решения векторных уравнений Максвелла, изложенного в главе 3. В **разделе 4.1** приведены результаты исследования влияния формы профиля дифракционной решетки на возбуждение ПП. Исследован случай неколлинеарной геометрии возбуждения поверхностного плазмона, так как одновременное возбуждение двух ПП позволяет исследовать их взаимодействие. Для моделирования использовался рельеф, содержащий в своем профиле две пространственные гармоники:

$$Z(y) = A_1 \sin(y) + A_2 \sin(2y + \Psi) \quad (9)$$

Отметим, что при фиксированном отношении амплитуд первой и второй пространственной гармоники конкретный вид рельефа определялся разностью фаз Ψ .

Были рассмотрены четыре основных типов рельефа: синусоидальный рельеф ($A_1 / A_2 = 0, \Psi = 0$), асимметричный рельеф ($A_1 / A_2 = 0,2, \Psi = 0$) и два симметричных рельефа: рельеф с острой вершиной ($A_1 / A_2 = 0,2, \Psi = -\pi/2$), рельеф с плоской вершиной ($A_1 / A_2 = 0,2, \Psi = \pi/2$). Остальные параметры модели выбирались из условия соответствия параметрам эксперимента ($\lambda_{\text{накачки}}=810$ нм, $T_{\text{решётки}}=1140$ нм, $H_{\text{рельефа}}=100$ нм, $h_{\text{плёнки}}=35$ нм).

На рисунке 3 представлены результаты расчета зависимости коэффициента зеркального отражения волны накачки от угла падения для всех типов рельефа. В случае синусоидального рельефа на кривой зеркального отражения наблюдается один вырожденный минимум, обусловленный возбуждением ПП в (1)-ом и (-1)-ом порядках дифракции (см. Рис 3.а) Появление второй пространственной гармоники приводит к образованию канала для линейного взаимодействия ПП, возбуждаемых в (1)-ом (\vec{K}_{III}) и (-1)-ом (\vec{K}'_{III}) порядках дифракции:

$$\vec{K}_{III} + 2\vec{Q} = \vec{K}'_{III} \quad (10)$$

В результате взаимодействия происходит образование запрещенной зоны для ПП, что приводит к расщеплению плазмонного резонанса и появлению двух минимумов на кривой зеркального отражения (см. Рис. 3.б).

В случае использования рельефа с острой и плоской вершиной общая симметрия задачи об отражении волны накачки относительно вершины рельефа приводит к появлению дополнительного правила отбора для возбуждения поверхностных плазмонов. Это правило связано с требованием симметрии электромагнитного поля поверхностного плазмона относительно вершины рельефа. Проведенное численное моделирование показало, что пространственные распределения полей ПП для случаев правого (для рельефа с острой вершиной Рис 3.в) и левого (для рельефа с острой вершиной Рис 3.г) резонансов не являются симметричными по отношению к вершине рельефа. Следовательно, эти резонансы являются запрещенными, и на кривых зеркального отражения Рис. 3.в, г) присутствует только один минимум.

Результаты исследования влияния изменения азимутального угла на кривые зеркального отражения приведены в **разделе 4.2**. На рисунке 4 представлена зависимость коэффициента отражения от угла падения и азимутального угла. При изменении угла φ ПП в (1)-ом и (-1)-ом порядках дифракции будут возбуждаться при различных углах падения (см. выражение (1)). Таким образом, в случае синусоидального рельефа поверхности это изменение приводит к расщеплению плазмонных резонансов и появлению двух минимумов коэффициента отражения. В случае рельефов со второй

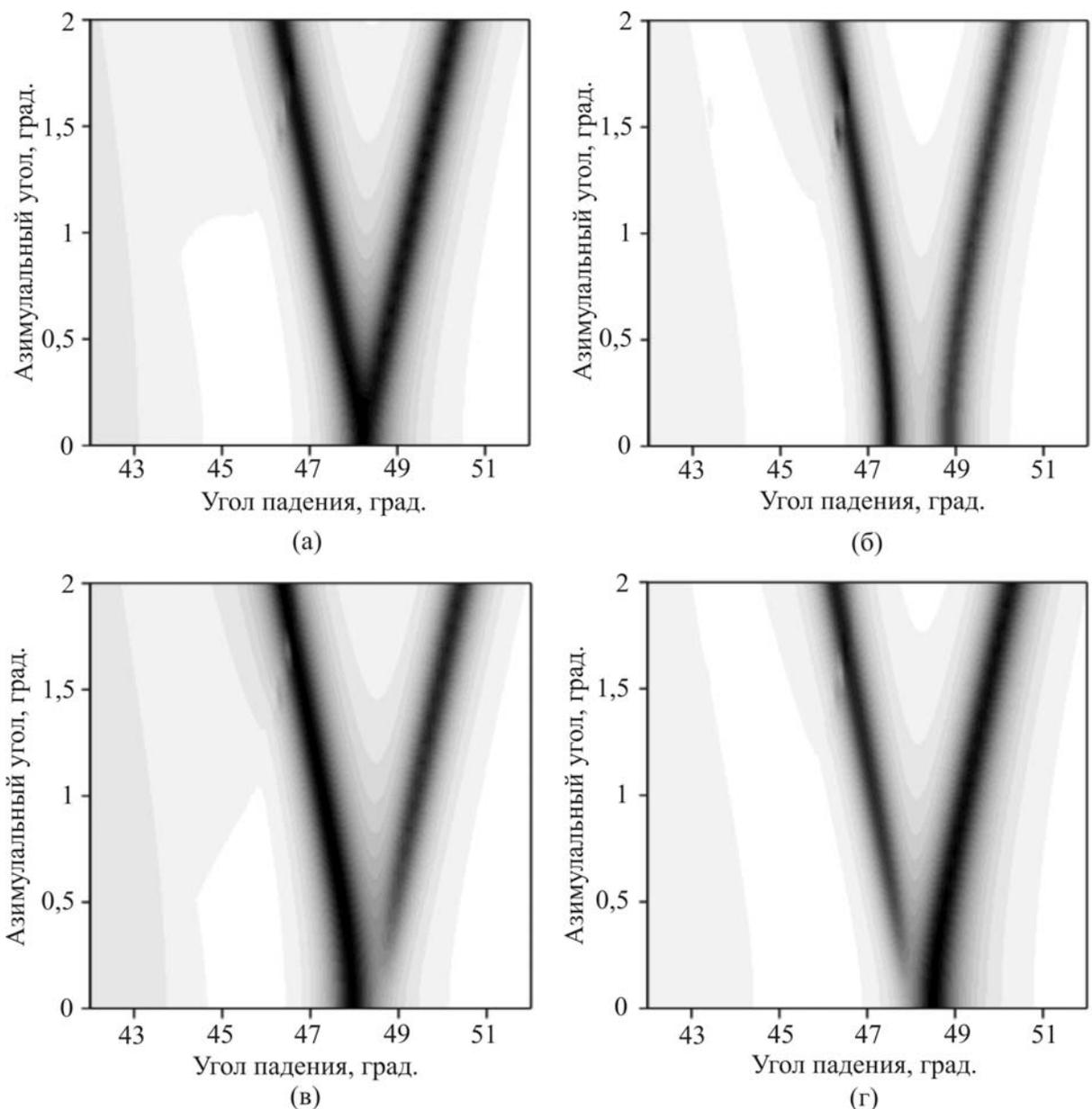


Рис. 4 Визуализация дисперсионной кривой поверхностного плазмона, возбуждаемого в неколлинеарной геометрии, на плоскости (θ, φ) при использовании различных профилей рельефа: (а) – синусоидального рельефа, (б) – асимметричного рельефа, (в) – рельефа с острой вершиной, (г) – рельефа с плоской вершиной. Темные участки соответствуют минимуму коэффициента отражения, белые – максимуму.

пространственной гармоникой существование углового расстояния между плазмонными резонансами приводит к ослаблению взаимодействия между ПП. Поэтому для области углов $\varphi > 2^\circ$ картина отражения волны накачки идентична для всех четырех типов рельефа. При использовании рельефов с острой и плоской вершинами изменение азимутального угла также приводит к снятию запрета на возбуждение второго плазмонного резонанса, т.к. задача об отражении волны накачки уже не является симметричной относительно вершины рельефа (см. рис. 4.в,г). Проведенные исследования позволили предположить, что использовавшаяся в экспериментах дифракционная решетка соответствовала модели рельефа с острой вершиной.

В заключение главы в **разделе 4.3** представлен еще один способ задания рельефа поверхности, основанный на представлении профиля рельефа как суммы периодической и случайной составляющей:

$$Z(y) = H \cdot \sin(y) + f(y), \quad (11)$$

где $f(y)$ - некая случайная функция своего аргумента. Возможность введения такого вида рельефа обусловлена тем, в экспериментальном образце толщина пленки может меняться случайным образом, а, следовательно, спектр профиля поверхности заведомо будет непрерывным. Использование такого способа задания профиля поверхности также позволяет правильно описывать наблюдаемые в эксперименте особенности линейного отклика.

Результаты теоретического исследования процесса ГТГ в условиях возбуждения ПП представлены в **пятой главе**. **Раздел 5.1** посвящен исследованию случая коллинеарной геометрии. В начале раздела конкретизируется вид тензора нелинейной восприимчивости третьего порядка используемого для вычисления нелинейной поляризации (3). В нулевом приближении выбран вид тензора, отвечающий модели однородной изотропной среды. Также исследована проблема выполнения фазового синхронизма для генерации ТГПП при нелинейном взаимодействии трех ПП на частоте накачки. Установлено, что генерация ТГПП будет происходить, но ее эффективность не будет максимальной.

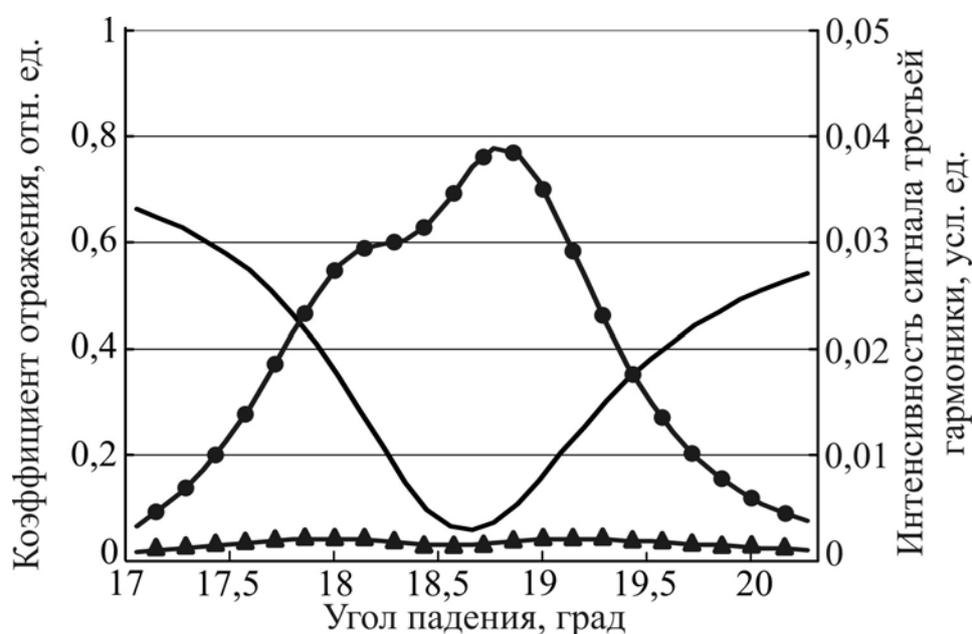


Рис. 5 График теоретической зависимости коэффициента отражения (черная кривая) и интенсивности сигнала третьей гармоники от первого (черные треугольники) и второго (черные кружки) порядков дифракции от угла падения при коллинеарной геометрии возбуждения поверхностного плазмона (азимутальный угол $\varphi = 90^\circ$)

На основе сравнения теоретических и экспериментальных данных уточнен вид тензора нелинейной восприимчивости, учитывающий анизотропию нелинейных свойств металлической пленки (различие нелинейных свойств вдоль нормали к поверхности пленки и в плоскости поверхности). Результат моделирования нелинейного отклика с использованием скорректированного тензора нелинейной восприимчивости представлен в **разделе 5.3** (см. Рис. 5). Из рисунка видно, что возбуждение ПП приводит к значительному увеличению интенсивности сигналов на частоте третьей гармоники. Наибольшую интенсивность имеет (2)-ой порядок дифракции, т.к. сигнал третьей гармоники переизлучается в него при однократном рассеянии ТГПП на дифракционной решетке, а в случае (1)-го порядка – при двукратном рассеянии.

Рассмотрение особенностей ГТГ в неколлинеарной схеме представлено в **разделе 5.2**. В отличие от случая коллинеарной геометрии возможность нелинейного взаимодействия двух различных ПП (\vec{K}_{III} и \vec{K}'_{III}) делает возможным переизлучение сигнала на частоте третьей гармоники в пространство без рассеяния на дифракционной решетке:

$$|\vec{K}_{III} + \vec{K}_{III} + \vec{K}'_{III}| = |\vec{K}_1^{3\omega}| < |\vec{K}^{3\omega}|, \quad |\vec{K}'_{III} + \vec{K}'_{III} + \vec{K}_{III}| = |\vec{K}_{-1}^{3\omega}| < |\vec{K}^{3\omega}| \quad (12)$$

Таким образом, в случае использования неколлинеарной геометрии возбуждения нелинейное взаимодействие трех плазмонов с одинаковыми волновыми векторами приводит к усилению сигналов от (2)-го и (-2)-го порядка дифракции, а нелинейное взаимодействие плазмонов с различными волновыми векторами к усилению сигнала в (1)-ом и (-1)-ом порядках (см. Рис. 6). Общая симметрия неколлинеарной схемы (при $\varphi=0^\circ$) возбуждения ПП является причиной равенства интенсивностей сигнала ГТГ от (2)-го и (-2)-го а также (1)-го и (-1)-го порядков дифракции (см. Рис. 6). При изменении азимутального угла нелинейное взаимодействие, описываемое выражением (12) становится невозможным, и переизлучение сигналов третьей гармоники в пространство происходит только через рассеяние ТГПП (см. выражение (2)).

В **разделе 5.3** исследуется причины различия максимальных интенсивностей сигналов на частоте третьей гармоники для коллинеарной и неколлинеарной геометрии (см. Рис. 5, 6). Проведенные исследования показали, что причиной различия является взаимная ориентация плоскостей поляризации поверхностного плазмона и волны накачки. При использовании коллинеарной геометрии плоскости поляризации совпадают, обеспечивая наиболее эффективный обмен энергией между ПП и волной накачки. В случае неколлинеарной геометрии плоскости поляризации расположены под углом друг к

другу, что снижает эффективность перекачки энергии и приводит к уменьшению интенсивности сигнала третьей гармоники.

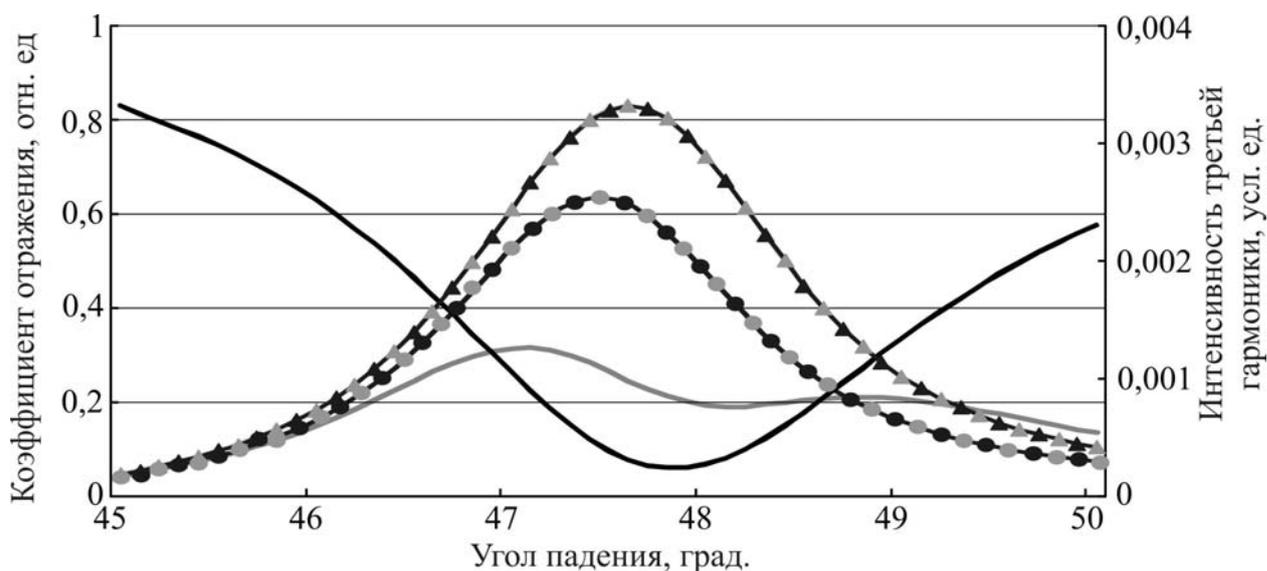


Рис. 6 График теоретической зависимости коэффициента отражения (черная кривая) и интенсивности сигнала третьей гармоники от минус второго (серые кружки), минус первого (серые треугольники) первого (черные треугольники), второго (черные кружки) и нулевого (серая кривая) порядков дифракции от угла падения при неколлинеарной геометрии возбуждения поверхностного плазмона (азимутальный угол $\varphi = 0^\circ$)

Одним из способов уменьшения угла между поляризационными плоскостями ПП и волны накачки, рассмотренным в **разделе 5.4** является уменьшение периода дифракционной решетки. Результаты вычисления нелинейного отклика для неколлинеарной геометрии возбуждения при периоде решетки $T_{\text{решетки}}=815$ нм приведены на рисунке 7.а.

Раздел 5.5 посвящен исследованию влияния высоты рельефа дифракционной решетки на эффективность ГТГ. При увеличении высоты дифракционной решетки происходит усиление эффективности процессов рассеяния как на ТПП, так и волны накачки, что приводит к увеличению эффективности процесса ГТГ. Максимальный сигнал на частоте третьей гармоники для периода решетки 1140 нм наблюдался при высоте рельефа 160 нм. Дальнейшее увеличение высоты приводило к снижению интенсивности сигналов третьей гармоники связанное с уменьшением эффективности возбуждения ПП.

Анализ влияния второй пространственной гармоники рельефа на процесс ГТГ приведен в **разделе 5.6**. Результаты моделирования для случая неколлинеарной геометрии с использованием трех типов рельефа представлены на рисунке 7. Из сравнительного анализа приведенных зависимостей видно, что наибольшее усиление эффективности ГТГ наблюдается при использовании рельефа с плоской вершиной. Это связано с тем, что в случае рельефа с острой вершиной максимумы поля ПП находятся вне пленки металла,

тогда как в случае рельефа с плоской вершиной они расположены внутри металлической пленки, что приводит к увеличению эффективности нелинейных процессов.

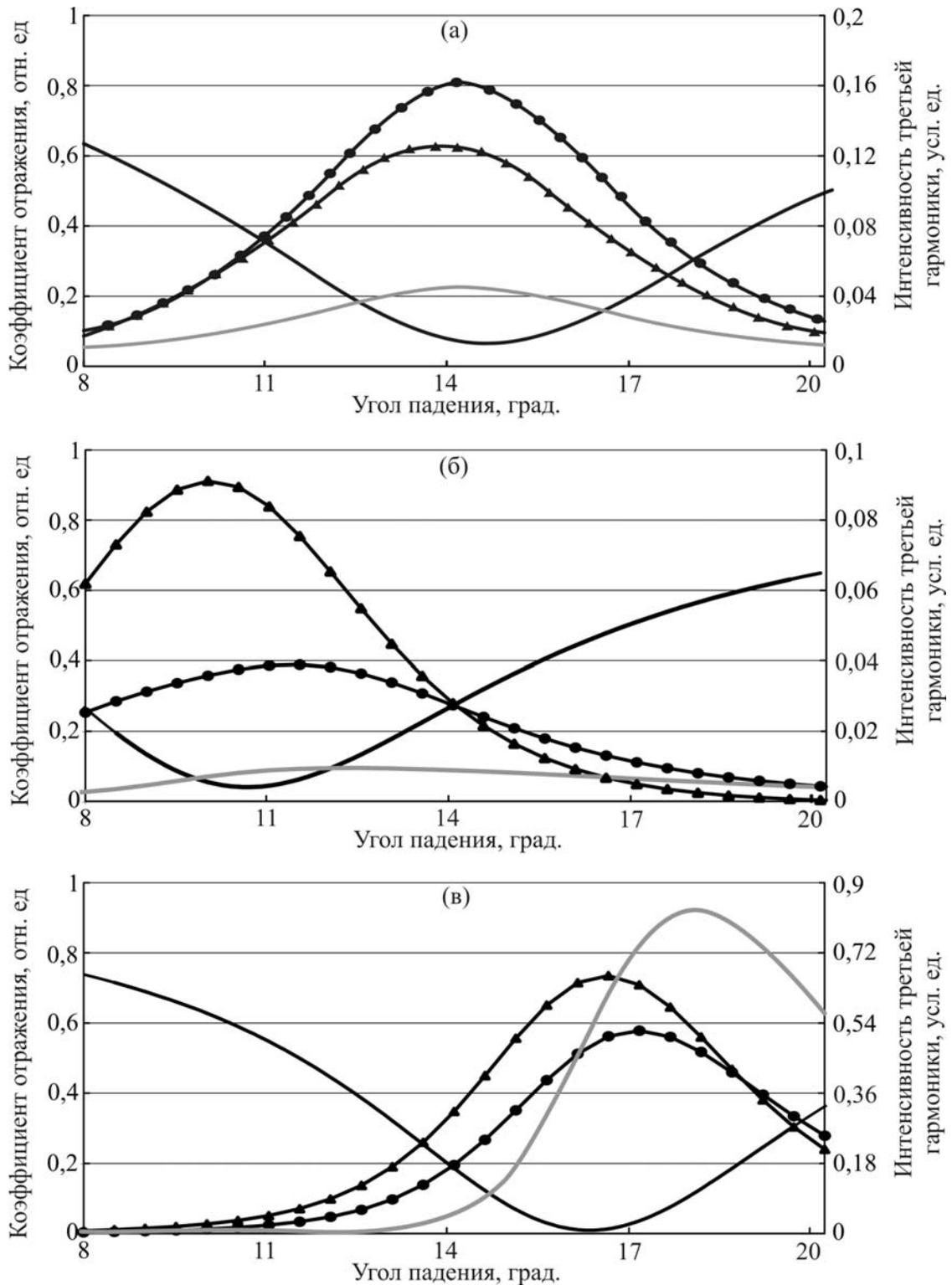


Рис. 7 Графики теоретической зависимости коэффициента отражения (черная кривая) и интенсивности третьей гармоники от второго (черные треугольники), первого (черные кружки) и нулевого (серая кривая) порядков дифракции от угла падения при неколлинеарной геометрии возбуждения поверхностного плазмона ($\varphi = 0^\circ$, $T = 815$ нм) для различных профилей рельефа дифракционной решетки (а) – синусоидальный рельеф (б) – рельеф с острой вершиной, (в) – рельеф с острой вершиной.

В заключительном **разделе 5.7** приводятся результаты поиска оптимальных параметров дифракционной решетки, которые необходимы для получения максимального сигнала на частоте третьей гармоники. Для используемого в эксперименте излучения накачки и металлической пленке ($\lambda_{\text{накачки}}=810$ нм, $h_{\text{пленки}}=35$ нм) наибольшая эффективность процесса ГТГ наблюдалась в случае неколлинеарной геометрии при использовании решетки с периодом 793 нм, высотой рельефа 118 нм и профилем поверхности соответствующего модели с плоской вершиной. Использование дифракционной решетки с оптимальными параметрами позволяет увеличить интенсивность регистрируемого сигнала третьей гармоники на два порядка по сравнению со схемой, применявшейся при экспериментальных исследованиях процесса ГТГ.

Основные выводы и результаты диссертационной работы сформулированы в **заключении**:

1. Причиной асимметрии плазмонных резонансов при малых азимутальных углах $\varphi < 2^\circ$ является взаимодействие двух плазмонов. Это взаимодействие осуществляется путём рассеяния поверхностного плазмона на второй гармонике рельефа поверхности и приводит к появлению запрещенной зоны.

2. В условиях возбуждения поверхностного плазмона возникают пространственные моды стоячего электромагнитного поля, положение которых жестко связано со второй пространственной гармоникой рельефа. Взаимное расположение двух пространственных гармоник существенно влияет на эффективность генерации плазмонов и определяет особенности кривых зеркального отражения в условиях перекрытия резонансов двух возбуждаемых поверхностных плазмонов.

3. При значении разности фаз между первой и второй гармониками рельефа равным $+\pi/2$ и $-\pi/2$, профиль рельефа поверхности является симметричным относительно его вершины. В этих случаях появляется дополнительное правило отбора для плазмонных резонансов, связанное с требованием симметрии поля поверхностного плазмона относительно вершины рельефа.

4. В случае использования коллинеарной схемы возбуждения поверхностного плазмона в угловом спектре интенсивности сигнала на частоте третьей оптической гармоники появляются два максимума, смещённых относительно минимума коэффициента линейного отражения. Это связано с анизотропией нелинейных свойств металлической плёнки, напылённой на стеклянную дифракционную решетку.

5. Отличительной особенностью процесса генерации третьей гармоники при использовании неколлинеарной схемы возбуждения поверхностного плазмона является появление дополнительных каналов обмена энергией между поверхностными

электромагнитными волнами и объёмной электромагнитной волной на частоте третьей оптической гармоники, связанного с нелинейным взаимодействием поверхностных плазмонов, распространяющихся в различных направлениях.

6. Эффективность процесса генерации третьей гармоники сильно зависит от взаимного расположения вектора электромагнитного поля волны накачки и плоскости поляризации поверхностного плазмона, определяющего эффективность перекачки энергии от волны накачки к поверхностному плазмону.

7. При уменьшении периода металлической дифракционной решетки в случае неколлинеарной геометрии возбуждения происходит увеличение интенсивности сигналов на частоте третьей гармоники. Это связано с увеличением проекции электрического поля волны накачки на плоскость поляризации поверхностного плазмона, приводящее к увеличению локального поля на частоте волны накачки.

8. Присутствие второй пространственной гармоники в спектре профиля поверхности существенно образом изменяет взаимную интенсивность сигналов третьей гармоники, регистрируемых в различных порядках дифракции. В случае, когда разность фаз между первой и второй гармониками рельефа равна $+\pi/2$, наибольшую интенсивность имеет нулевой порядок дифракции, что значительно упрощает процедуру регистрации сигнала.

Материалы диссертационной работы отражены в следующих публикациях:

1. А. В. Андреев, А. А. Корнеев, М. М. Назаров, И. Р. Прудников, А. П. Шкуринов, О возбуждении поверхностных плазмонов при рассеянии света на дифракционной решетке в неколлинеарной геометрии. //Сборник трудов международной конференции “Фундаментальные проблемы оптики”, С.Петербург, Россия, 18-21 октября, с.242, 2004.
2. А. В. Андреев, А. А. Корнеев, Л. С. Мукина, М. М. Назаров, И. Р. Прудников, А. П. Шкуринов, Особенности возбуждения поверхностных плазмонов при неколлинеарном рассеянии света. // Квантовая электроника, Т. 35, N1, с.27-32, 2005.
3. A.V.Andreev, A.A.Korneev, L.S.Mukina, M.M.Nazarov, I.R.Prudnikov, A.P.Shkurinov, Peculiarities of surface plasmon enhanced third-harmonic generation on a metal grating for different surface plasmon excitation geometries // “International conference on coherent and nonlinear optics”, St. Petersburg, Russia, May 11-15, I02-15, 2005.
4. A.V.Andreev, A.A.Korneev, L.S.Mukina, M.M.Nazarov, I.R.Prudnikov, A.P.Shkurinov, Simultaneous generation of second and third optical harmonics on a metal grating. // Phys. Rev. B, V.74, p.235421-235421-7, 2006.

5. A.V.Andreev, A.A. Korneev, I.R.Prudnikov, Peculiarities of surface plasmon enhanced third-harmonic generation on a metal grating for different surface Plasmon excitation geometries// International conference on coherent and nonlinear optics, Minsk, Belarus, May 28–June 1, IThS10, 2007.
6. А.В. Андреев, А.А. Корнеев, И.Р. Прудников Особенности усиления процесса генерации третьей гармоники в условиях неколлинеарной геометрии возбуждения поверхностного плазмона на металлической дифракционной решётке. // Квантовая электроника, Т.37, N3, с.259-265, 2007.
7. A.V.Andreev, A.A.Korneev, I.R.Prudnikov, Peculiarities of surface plasmon enhanced third-harmonic generation on a metal grating for different surface plasmon excitation geometries. // Proceeding of SPIE, V.6728, p.67281v-1-67281v-6, 2007.
8. А. В. Андреев, А. А. Корнеев, И. Р. Прудников, Исследование взаимодействия линейно поляризованного излучения с металлической дифракционной решеткой из наноцилиндров. // Тезисы докладов международной конференции “Поляризационная оптика”, Москва, Россия, 1-4 Октября, с.13-14, 2008.
- 9 A.V.Andreev, A.A.Korneev, I.R.Prudnikov, Third-harmonic generation on a metal grating for different surface plasmon excitation geometries // Book of abstracts of “5-th bilateral russian-french workshop on nanosciences and nanotechnologies”, Moscow, Russia, December 1-2, p.52, 2008.