

Фемтосекундная динамика релаксации поверхностных плазмон-поляритонов в окрестности резонанса типа Фано

П. П. Вабищевич, В. О. Бессонов¹⁾, Ф. Ю. Сычев, М. Р. Щербаков, Т. В. Долгова, А. А. Федянин²⁾

Физический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова
119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 9 сентября 2010 г.

Экспериментально исследована временная модификация фемтосекундных лазерных импульсов при отражении от металлических планарных периодических наноструктур при условии резонансного возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов. Спектрально-временные измерения кросс-корреляционной функции второго порядка показывают, что при длительности фемтосекундных импульсов, сравнимой со временем релаксации поверхностных плазмон-поляритонов (порядка 100 фс), возникает сильная спектральная зависимость формы огибающей отраженного фемтосекундного импульса, описываемая параметрами резонанса типа Фано.

Поверхностные плазмон-поляритоны (ПП) представляют собой коллективные колебания электронной плазмы и электромагнитного поля, распространяющиеся вдоль границы раздела металл-диэлектрик [1]. Возросший интерес к исследованиям ПП вызван их возможным использованием в ряде задач и приложений, связанных с контролем оптического излучения на микромасштабах. Одним из способов возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов является использование периодически наноструктурированных металлических пленок, в которых наблюдается ряд обнаруженных в последние годы эффектов, таких как “гигантское” оптическое пропускание [2], отрицательный эффективный показатель преломления [3, 4], плазмон-индуцированное оптическое двулучепреломление и дихроизм [5]. С развитием фемтосекундных импульсных лазеров появилась возможность изучать временные характеристики распространения поверхностных плазмон-поляритонов [6 – 9]. В ряде работ показано изменение профиля фемтосекундного импульса при прохождении через наноструктурированную металлическую пленку, связанное с возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов [10 – 13]. В работах [10, 11] обнаружена временная задержка фемтосекундного импульса с длиной волны, близкой к резонансной, при прохождении через металлическую наноструктурированную пленку. В работе [13] было продемонстрировано различное время релаксации ПП на краях запрещенной зоны плазмон-поляритонного кристалла. До настоящего времени не была исследована спектральная зави-

симость изменения параметров фемтосекундных импульсов при взаимодействии с ПП, которая позволит определить динамические характеристики релаксации ПП, а также оптимальные условия возбуждения и управления распространением плазмон-поляритонов на металлических наноструктурированных поверхностях.

В данной работе методом фемтосекундной кросс-корреляционной спектроскопии исследуется временная модификация фемтосекундных импульсов при резонансном возбуждении в одномерной металлической решетке поверхностных плазмон-поляритонов, время релаксации которых сравнимо с длительностью возбуждающего импульса. Модификация проявляется в изменении длительности и временном сдвиге относительно невозмущенного импульса. Спектральная зависимость этих изменений описывается резонансом типа Фано.

Исследуемые образцы представляют собой пленки серебра толщиной 50 нм, напыленные на полимерную подложку с периодическим поверхностным рельефом, изготовленным методом контактной литографии. На рис. 1а представлено изображение поверхности образца, полученное в атомно-силовом микроскопе, показывающее строгую периодичность рельефа и однородность пленок серебра. Сечение профиля поверхности близко к синусоидальному с периодом 750 нм и глубиной модуляции 60 нм. Спектры отражения оптического излучения измерены в диапазоне углов падения от 16° до 70° с шагом 1° и в диапазоне длин волн от 400 до 800 нм с шагом 1 нм. Результаты измерений частотно-угловых спектров отражения $R(\lambda, \theta)$ p -поляризованного излучения представлены на рис. 2а. Наблюдаются три резонанса, обусловленные выполнением условий синхронизма для

¹⁾ Также: Институт физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН, 119991 Москва, Россия.

²⁾ e-mail: fedyanin@nanolab.phys.msu.ru

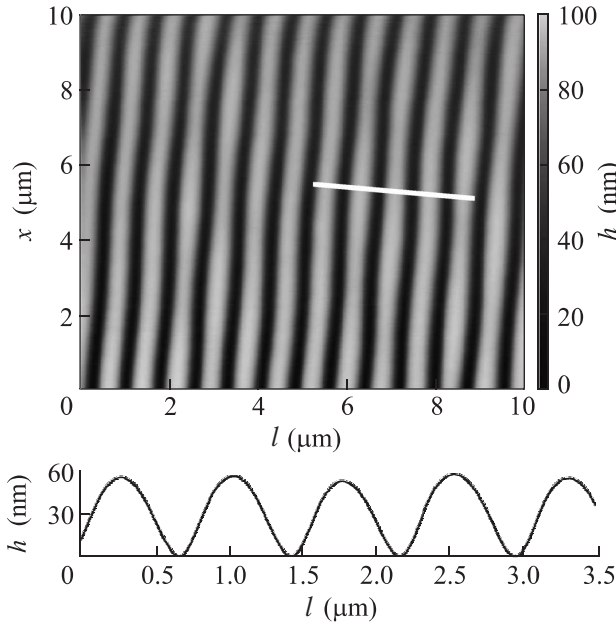


Рис.1. Изображение поверхности образца металлической решетки, полученное в атомно-силовом микроскопе. Поперечный профиль образца вдоль отмеченной линии

возбуждения ПП на границе раздела серебро-воздух для трех порядков дифракции $n = +1, -2$ и -3 : $k_{spp} = k_0 \sin \theta + ng$, где k_0 – модуль волнового вектора падающего излучения, k_{spp} – модуль волнового вектора поверхностного плазмон-поляритона, θ – угол падения оптического излучения на образец, g – модуль вектора обратной решетки. Частотно-угловая зависимость резонансов определяется законом дисперсии ПП [1].

На рис.2b представлен спектр коэффициента отражения p -поляризованного излучения при $\theta = 67^\circ$, при котором в дальнейшем проводилось изучение динамических свойств плазмон-поляритонов. Резонансные особенности в окрестности $\lambda = 500$ нм и $\lambda = 725$ нм связаны с возбуждением ПП, что подтверждается их отсутствием в спектре отражения s -поляризованного излучения. Резонансы имеют характерные контуры типа Фано [14, 15], форма которых обусловлена интерференцией напрямую отраженного света со светом, переизлученным ПП. Такой контур в спектре коэффициента отражения $R(\omega) \equiv |r(\omega)|^2$ может быть представлен в виде комплексной суммы нерезонансного отражения падающего излучения и резонансного контура ПП с лоренцевой формой линии:

$$r(\omega) = C_0 + \frac{f\Gamma e^{i\phi}}{\omega - \omega_R + i\Gamma}, \quad (1)$$

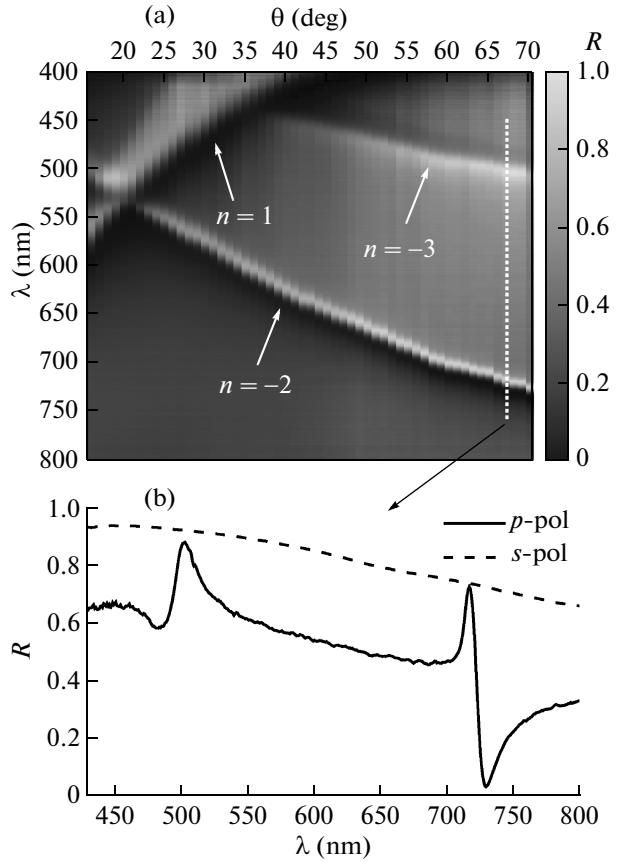


Рис.2. (а) Зависимость коэффициента отражения образца металлической решетки от угла падения и длины волны p -поляризованного излучения, n – порядок дифракции. (б) Спектральная зависимость коэффициента отражения p - и s -поляризованного излучения при $\theta = 67^\circ$, сплошная и штриховая кривые, соответственно

где C_0 – амплитуда нерезонансного отражения, ϕ – разность фаз между резонансной и нерезонансной компонентами, f – сила осциллятора, ω_R – частота лоренцева резонанса, Γ – ширина резонанса, обусловленная затуханием ПП. При аппроксимации экспериментальной зависимости $R(\omega)$ для p -поляризованного излучения (рис.2b) с использованием выражения (1) были получены следующие значения параметров длинноволнового плазмонного резонанса: $\lambda_R \equiv 2\pi c/\omega_R = 723 \pm 1$ нм, $\Gamma = (2.3 \pm 0.6) \cdot 10^{13}$ рад/с ($\Delta\lambda \simeq 7$ нм). Время затухания ПП, рассчитанное из ширины резонанса Γ , составило $t_{spp} \simeq 90$ фс.

Временная модификация фемтосекундных импульсов исследовалась методом кросс-корреляционной спектроскопии (рис.3а). В качестве источника излучения использовался титан-сапфировый лазер с длительностью импульсов около 200 фс, частотой повторения 80 МГц и длиной волны λ , пере-

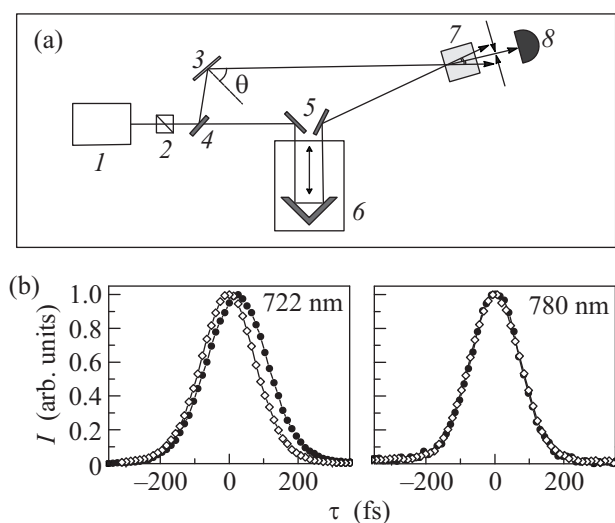


Рис.3.(а) Схема фемтосекундной кросс-корреляционной спектроскопии: 1 – титан-сапфировый лазер; 2 – поляризатор; 3 – образец; 4 – светоделительная пластинка; 5 – поворотные зеркала; 6 – линия задержки; 7 – кристалл ВВО; 8 – ФЭУ. (б) Нормированная кросс-корреляционная функция второго порядка (τ – время задержки между двумя импульсами) для случая p -поляризации (черные точки) и s -поляризации (светлые точки) при $\lambda = 722$ нм и $\lambda = 780$ нм

страиваемой в диапазоне от 690 до 1020 нм. Средняя мощность лазерного излучения на образце составляла 100 мВт. Лазерный импульс разделялся на светоделительной пластинке на два импульса, один из которых, опорный, проходил через оптическую линию задержки, второй, сигнальный, отражался от образца. Далее они сводились на нелинейном кристалле ВВО и импульс неколлинеарной второй гармоники регистрировался фотоэлектронным умножителем (ФЭУ). Угол падения лазерного излучения на образец θ подбирался таким образом, чтобы спектральная область плазмонного резонанса перекрывалась диапазоном перестройки лазера, в данном эксперименте $\theta = 67^\circ$. Схема позволяла проводить измерения для p - и s -поляризованного излучения. Зависимость сигнала ФЭУ от времени задержки между импульсами τ представляет собой кросс-корреляционную функцию (КФ) второго порядка или, иначе, кросс-корреляционную функцию интенсивностей импульсов. КФ s -поляризованного импульса является автокорреляционной функцией, так как в этом случае не происходит возбуждения ПП и импульс отражается от образца без изменений.

Измерения кросс-корреляционных функций второго порядка были проведены в диапазоне длин волн от 710 до 800 нм с шагом 1 нм. На рис.3б представле-

ны нормированные КФ при резонансной ($\lambda = 722$ нм) и нерезонансной ($\lambda = 780$ нм) длинах волн p - и s -поляризованного излучения. При резонансной длине волны видно заметное изменение формы КФ p -поляризованного импульса и сдвиг ее максимума относительно s -поляризованного, вдали от резонанса КФ p - и s -поляризованных импульсов полностью совпадают. Измеренные КФ аппроксимировались гауссовой функцией, из которой определялись положение максимума КФ $\tau_p^{\max}$ и $\tau_s^{\max}$, и ширина КФ на полувысоте $l_p^{\max}$ и $l_s^{\max}$ для p - и s -поляризованного импульса, соответственно. На рис.4а представлена спектральная зависимость разности положений миниму-

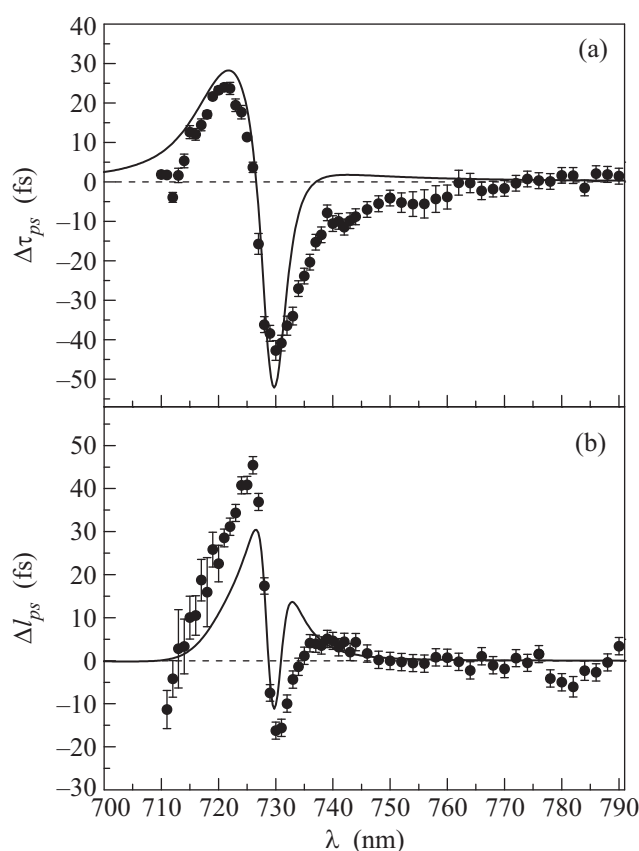


Рис.4. Спектральные зависимости разности положения максимумов КФ $\Delta\tau_{ps}$ (а) и разности ширины КФ на полувысоте Δl_{ps} (б). Точки – экспериментальные данные, сплошные кривые – численный расчет

мов $\Delta\tau_{ps} = \tau_p^{\max} - \tau_s^{\max}$. В спектральной области от 713 до 726 нм отраженный p -поляризованный импульс отстает от s -поляризованного, максимальная задержка КФ достигает 24 ± 2 фс при $\lambda = 722$ нм, близкой к значению резонансной длины волны $\lambda_R = 723 \pm 1$ нм, полученной из аппроксимации экспериментального спектра отражения (рис.2б). В области от 726 до 762 нм наблюдается опережение p -поля-

ризованным импульсом s -поляризованного, которое принимает максимальное значение 43 ± 2 фс при $\lambda = 730$ нм. Спектральная зависимость разности ширины корреляционных функций $\Delta I_{ps} = I_p^{\max} - I_s^{\max}$ представлена на рис.4б. В диапазоне от 713 до 728 нм КФ p -поляризованного импульса уширена относительно s -поляризованного, максимальное уширение составляет 45 ± 2 фс при $\lambda = 726$ нм. В области от 728 нм до 736 нм наблюдается сужение КФ p -поляризованного импульса, достигающее 16 ± 2 фс при $\lambda = 730$ нм.

Уширение КФ p -поляризованного импульса и его запаздывание относительно нерезонансного импульса связано с релаксацией резонансно возбужденных плазмон-поляритонов. Природа опережения s -поляризованного импульса p -поляризованным в спектральной области от 726 до 762 нм может быть описана в рамках следующего подхода. В окрестности минимума резонанса Фано (730 нм) интенсивность КФ p -поляризованного импульса, а значит, и интенсивность самого отраженного от образца импульса значительно меньше s -поляризованного (рис.5а), при этом заметна асимметрия ее формы и смещение

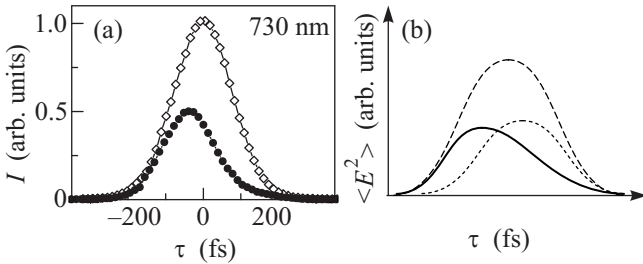


Рис.5. (а) Кросс-корреляционная функция второго порядка p -поляризованного (черные точки) и s -поляризованного (светлые точки) импульсов при $\lambda = 730$ нм. (б) Схематичное изображение деструктивной интерференции нерезонансно отраженного импульса (штриховая линия) с запаздывающим плазмон-поляритонным возбуждением (пунктирная линия). Сплошная линия – результирующий импульс, отраженный от образца

максимума. Это обусловлено деструктивной интерференцией между нерезонансно и резонансно отраженными компонентами p -поляризованного импульса вследствие возникновения между ними дополнительной разности фаз, приобретаемой при перестройке длины волны через резонанс возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов (рис.5б). Если нерезонансно отраженный и резонансно переизлученный импульсы синфазны, то они интерферируют конструктивно и происходит смещение максимума КФ в положительную сторону по шкале $\Delta\tau_{ps}$ и ее уши-

рение. Если импульсы находятся в противофазе, они интерферируют деструктивно, что обуславливает смещение максимума КФ в отрицательную сторону и сужение КФ. Вдали от резонанса, при $\lambda > 750$ нм, максимумы и ширины кросс-корреляционных функций для обеих поляризаций почти совпадают.

Пусть $E_1(\omega)$ – напряженность электрического поля исходного импульса, имеющего гауссову форму с центральной частотой ω_0 , амплитудой A_ω и длительностью импульса t_0 :

$$E_1(\omega) = A_\omega e^{-\frac{1}{2}t_0^2(\omega-\omega_0)^2}. \quad (2)$$

Во временном представлении исходный импульс имеет вид

$$E_1(t) = A e^{-t^2/2t_0^2} e^{-i\omega_0 t}. \quad (3)$$

Используя выражение (1), напряженность электрического поля $E_2(\omega)$ импульса, отраженного от образца, записывается в следующем виде:

$$E_2(\omega) = E_1(\omega) r(\omega) = A_\omega e^{-t_0^2(\omega-\omega_0)^2/2} \left(C_0 + \frac{f \Gamma e^{i\phi}}{\omega - \omega_R + i\Gamma} \right). \quad (4)$$

По теореме свертки, во временном представлении этот импульс имеет вид

$$E_2(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} A e^{-t'^2/2t_0^2} e^{-i\omega_0 t'} \times \left(f \Gamma e^{i\phi - (i\omega_R + \Gamma)(t-t')} H(t-t') + C_0 \delta(t-t') \right) dt', \quad (5)$$

где $H(t)$ – функция Хевисайда. Импульс E_2 пространственно совмещается на нелинейном кристалле с задержанным на время τ опорным импульсом, тождественным исходному E_1 . Регистрируемая интенсивность второй гармоники пропорциональна кросс-корреляционной функции второго порядка:

$$I_{\text{out}}(\tau) \sim \int_{-\infty}^{+\infty} |E_1(\tau - t')|^2 |E_2(t')|^2 dt' = \int_{-\infty}^{+\infty} I_1(\tau - t') I_2(t') dt'. \quad (6)$$

Численный расчет кросс-корреляционных функций проводился с использованием параметров, полученных из аппроксимации экспериментальной спектральной зависимости коэффициента отражения (рис.2б): $\omega_R = 2.61 \cdot 10^{15}$ рад/с ($\lambda_R = 723$ нм); $\Gamma = 2.3 \cdot 10^{13}$ рад/с; $f = 0.74$; $\phi = 0.22 \cdot \pi$ рад; $A = 1$; $C_0 = 0.63$; $t_0 = 200$ фс. КФ рассчитывалась для каждой длины волны с использованием выражений (3) –

(6). Расчетные спектральные зависимости смещения максимума и изменения ширины КФ по сравнению с невозмущенным импульсом представлены на рис.4. Форма модельных кривых хорошо совпадает с экспериментальными зависимостями $\Delta\tau_{ps}(\lambda)$ и $\Delta l_{ps}(\lambda)$, что позволяет восстановить напряженность электрического поля импульса $E_2(t)$, отраженного от образца. При $\lambda = 726$ нм (рис.6а), соответствующей максимальному уширению КФ, профиль напряжен-

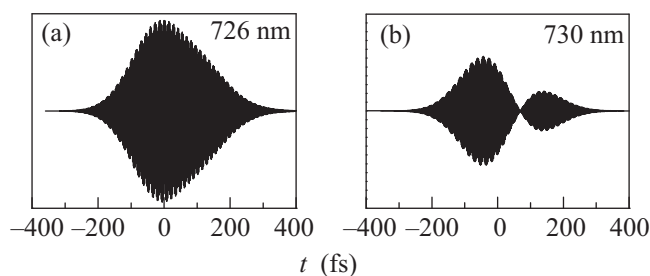


Рис.6. Численный расчет временной зависимости напряженности электрического поля импульса, отраженного от образца. (а) Длина волны $\lambda = 726$ нм, соответствующая максимальному уширению КФ. (б) Длина волны $\lambda = 730$ нм, соответствующая минимуму резонанса Фано

ности электрического поля отраженного импульса $E_2(t)$ также уширен относительно исходного за счет возбуждения ПП. В минимуме резонанса Фано ($\lambda = 730$ нм) заметно сильное изменение профиля $E_2(t)$ (рис.6б), в этом случае резонансная компонента отраженного импульса находится в противофазе с нерезонансной, и при совпадении их амплитуд возникает локальный минимум $E_2(t)$. Такое управление оптическим откликом плазмонных наноструктур, включая его усиление или подавление в определенные моменты времени, осуществимо при условии $t_0 \sim t_{spp}$. Это невозможно ни в случае сверхкоротких импульсов $t_0 \ll t_{spp}$, когда оптический отклик определяется переизлученной плазмон-поляритонной компонентой, ни в случае непрерывной накачки $t_0 \gg t_{spp}$, когда в отклике преобладает нерезонансно отраженное излучение.

Таким образом, обнаружена заметная временная модификация фемтосекундных лазерных импульсов, отраженных от одномерной металлической решетки, вызванная резонансным возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов, время жизни которых сравнимо с длительностью импульсов. Изменение формы импульсов обусловлено фемтосекундной

динамикой релаксации поверхностных плазмон-поляритонов, которая описывается резонансом типа Фано. Обнаружено как уменьшение, так и увеличение длительности отраженного фемтосекундного импульса, проявляющиеся в смещении максимума и изменении ширины кросс-корреляционной функции второго порядка. При длительности импульса $t_0 \simeq 200$ фс и характерном времени жизни ПП $t_{spp} \simeq 90$ фс опережение и запаздывание отраженного от образца импульса относительно невозмущенного достигает 24 ± 2 фс и 43 ± 2 фс, соответственно.

Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований # 10-02-91170-ГФЕН и # 10-02-92115-ЯФ, а также государственными контрактами Министерства науки и образования РФ П918, П946 и П1465. Авторы выражают благодарность Е.Д. Мишиной (МИРЭА) за плодотворные дискуссии и предоставление лазерного оборудования.

1. H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and Gratings*, Springer Tracts on Modern Physics **111**, New York: Springer-Verlag, 1988.
2. T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi et al., *Nature* **391**, 667 (1998).
3. B. Г. Веселого, УФН **92**, 517 (1967).
4. R. Shelby, D. Smith, and S. Schultz, *Science* **292**, 77 (2001).
5. М. Р. Щербakov, П. П. Вабищевич, М. И. Добындэ и др., *Письма в ЖЭТФ* **90**, 478 (2009).
6. N. Rotenberg, M. Betz, and H. M. van Driel, *Opt. Lett.* **33**, 2137 (2008).
7. A. Kubo, N. Pontius, and H. Petek, *Nano Lett.* **7**, 470 (2007).
8. M. Tong, A. S. Kirakosyan, T. V. Shahbazyan et al., *Phys. Rev. Lett.* **100**, 056808 (2008).
9. Yu. E. Lozovik, S. P. Merkulova, M. M. Nazarov et al. *Phys. Lett. A* **276**, 127 (2000).
10. A. Dogariu, T. Thio, and L. J. Wang, *Opt. Lett.* **26**, 450 (2001).
11. D. S. Kim, S. C. Hohng, V. Malyarchuk et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 143901 (2003).
12. C. Ropers, D. J. Park, G. Stibenz et al., *Phys. Rev. Lett.* **94**, 113901 (2005).
13. A. S. Vengurlekar, A. V. Gopal, and T. Ishihara, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 181927 (2006).
14. U. Fano, *Ann. Phys* **32**, 393 (1938).
15. C. Genet, M. P. van Exter, and J. P. Woerdman, *Opt. Comm.* **225**, 331 (2003).