

## Сверхбыстрая временная динамика генерации третьей оптической гармоники в сетчатых метаматериалах

А. С. Шорохов, К. И. Охлопков, Д. В. Чичинадзе, М. Р. Щербаков, А. А. Федянин\*  
*Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова,  
 физический факультет. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2*  
 (Статья поступила 10.10.2013; подписана в печать 02.12.2013)

С помощью методики «накачка-зонд» исследована временная динамика генерации третьей оптической гармоники в сетчатых метаматериалах типа «fishnet». Экспериментальные данные свидетельствуют о наличии задержки в нелинейном отклике метаматериала, которая может быть отнесена к сверхбыстрым релаксационным процессам в золоте с характерным временем порядка 1 пс, что сопоставимо с временами электрон-фононной релаксации в тонких пленках благородных металлов.

PACS: 42.65.Re, 78.67.Pt, 42.65.Ky

УДК:537.874

Ключевые слова: метаматериалы, плазмоники, сверхбыстрая динамика, нелинейная оптика.

### ВВЕДЕНИЕ

Оптическими метаматериалами называют искусственно созданные наноструктуры, обладающие оптическими свойствами, не встречающимися в природе в естественном виде. Подобные объекты могут найти применение во многих приложениях, таких как оптический «плащ-невидимка» [1–3] и сверхбыстрые полностью оптические переключатели [4, 5]. Метаматериалы с отрицательным показателем преломления и метаматериалы, обладающие оптическим магнетизмом, представляют собой отдельный класс подобных структур. К нему относятся так называемые сетчатые метаматериалы типа «fishnet», представляющие собой трехслойные наноперфорированные структуры, обычно состоящие из двух слоев благородных металлов, разделенных диэлектрической прослойкой [6]. Возможность использования сетчатых метаматериалов для создания устройств полностью оптического управления информационными оптическими сигналами определяет интерес многих ученых к их исследованию. Несмотря на большое количество работ, посвященных изучению стационарных оптических свойств сетчатых метаматериалов, динамика их оптических и нелинейно-оптических свойств изучена слабо [7, 8]. Анализ существующих литературных источников показывает, что электронная подсистема металлических частей сетчатых метаматериалов обладает субпикосекундными временами релаксации, что может быть использовано для сверхбыстрого управления фемтосекундными лазерными импульсами [9–11]. Кроме того, за счет сильной чувствительности нелинейно-оптической восприимчивости метаматериалов к состоянию электронной подсистемы, сверхбыстрые переходные процессы могут быть найдены и в нелинейно-оптическом отклике.

В данной работе экспериментально исследована

сверхбыстрая временная динамика процессов генерации третьей оптической гармоники (ТГ) сетчатым метаматериалом и установлено, что вклад в сигнал третьей гармоники для резонансного пространственно-невыврожденного случая можно разделить на три составляющие: мгновенную, переходную и медленную. Мгновенный вклад повторяет форму куба временной зависимости интенсивности фемтосекундного импульса лазера; переходный вклад становится заметным на временах от 0.5 до 2 пс и может быть связан со сверхбыстрыми переходными процессами в металлических частях метаматериала; медленный вклад проявляется в понижении сигнала третьей гармоники в одном из каналов при воздействии другого при больших временах задержки между импульсами и может быть связан с нагревом образца и изменением его локальных нелинейно-оптических характеристик. Построено феноменологическое описание когерентной составляющей сигнала третьей гармоники, хорошо описывающее экспериментальные зависимости, полученные при нулевой временной задержке между лазерными импульсами.

### 1. ИССЛЕДУЕМЫЙ ОБРАЗЕЦ

На рис. 1 представлен исследуемый образец сетчатого метаматериала типа «fishnet». Образец изготовлен с помощью метода электронно-лучевой литографии, в поперечном сечении представляет собой наноструктурированную трехслойную структуру Au-MgO-Au. С помощью растрового электронного микроскопа было получено изображение структуры образца (рис. 1а). Период структурирования составил порядка 500 нм, толщина широких полос метаматериала составила 290 нм, узких — 110 нм, толщина металлических слоев 23 нм, а диэлектрической прослойки — 65 нм.

В работе [12] было показано, что вблизи длины волны электромагнитного излучения, равной 1.5 мкм, электрические поля в металлических слоях метаматериала находятся в противофазе, что соответствует

\*E-mail: fedyanin@nanolab.phys.msu.ru

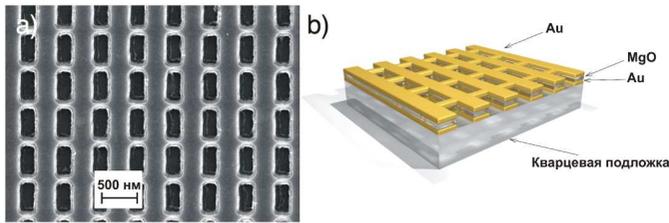


Рис. 1: Исследуемый метаматериал. (а) — изображение, полученное с помощью РЭМ, (b) — схематический вид

противоположно текущим токам, в свою очередь приводящим к возбуждению эффективного магнитного момента в данной структуре, который обеспечивает отрицательность эффективной магнитной проницаемости  $\mu_{eff}$  в этой области спектра электромагнитного излучения. Зависимость линейного поглощения от длины волны электромагнитного излучения также подтверждает идею о возбуждении магнитного резонанса в данной структуре для длин волн вблизи 1.5 мкм.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Для изучения сверхбыстрых переходных процессов в нелинейном отклике исследуемого образца была собрана экспериментальная установка (рис. 2), реализующая методику «накачка-зонд» [5].

В качестве источника излучения был использован инфракрасный фемтосекундный волоконный лазер на основе кварцевого волокна, легированного ионами эрбия, генерирующего лазерные импульсы с центральной длиной волны 1.56 мкм, паспортной длительностью 130 фс и частотой повторения 70 МГц. Средняя мощность излучения, используемая при измерениях, находилась в пределах до 40 мВт в плоскости образца, пиковые интенсивности — до  $10^8$  Вт/см<sup>2</sup>. С помощью поляризационного светоделителя лазерный луч разделялся на два канала, в одном из которых была собрана система оптической задержки с помощью двух зеркал и механического транслятора, минимальный шаг перемещения которого равнялся 2.5 мкм, что в пересчете на задержку между импульсами составило величину порядка 17 фс. В другом канале находилась полуволновая пластина и призма Глана, что позволило плавно изменять интенсивность и контролировать состояние поляризации падающего на образец излучения. Перед поляризационным светоделителем находилась четвертьволновая пластина, которая позволяла перераспределять мощность лазерного излучения между двумя каналами. После того, как лазерные лучи проходили систему задержки, они параллельно друг другу попадали на объектив с фокусным расстоянием 14 мм и фокусировались на образец. Перетяжка лазерного пучка в области образца была измерена методом оптического ножа и составила вели-

чину порядка 25 мкм. После образца один из пучков заглушался с помощью экрана, а второй после фокусировки дополнительной линзой детектировался с помощью InGaAs-фотодиода, включенного в режим обратного смещения. Для увеличения точности измерений была использована система синхронного детектирования. Для этого был использован двухчастотный прерыватель, установленный перед объективом — пучок в одном из каналов модулировался с частотой  $f_1 = 600$  Гц, в другом —  $f_2 = 500$  Гц. Особенность модулятора состоит в том, что он позволяет посылать на синхронный усилитель опорный сигнал на двух разных частотах, а также на суммарной частоте. После образца была установлена линза, которая собирала излучение третьей гармоники, излученное образцом в конусе с углом раствора  $112^\circ$ . В качестве детектора был использован фотоэлектронный умножитель в пропорциональном режиме работы. Перед ним был установлен фильтр ВГ-39 толщиной 4 мм, который пропускал электромагнитное излучение только на частоте третьей гармоники и поглощал более низкочастотное излучение. С помощью фильтра ЖС-18, который пропускает излучение с длиной волны, большей 500 нм, и фильтра ОС-14, который пропускает излучение с длиной волны, большей 580 нм, было установлено, что длина волны электромагнитного излучения, детектируемого ФЭУ, лежит в диапазоне от 500 до 580 нм, что подтверждает его отношение к третьей оптической гармонике, генерируемой метаматериалом, имеющей длину волны  $\lambda = 520$  нм.

Длительность импульсов и положение нулевой задержки были определены по кросс-корреляционной функции импульсов накачки и зонда, полученной с помощью кристалла бета-бората бария (рис. 3), который помещался на место образца. По ширине кросс-корреляционной функции была оценена длительность импульсов, которая составила 180 фс, что дает значение ширины импульса, равное  $180/\sqrt{2} = 127$  фс, что соответствует паспортной величине длительности импульсов.

## 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В результате экспериментальных измерений было установлено, что в направлении каждого из пучков по отдельности происходит генерация третьей гармоники (так называемый пространственно вырожденный случай). Сигнал третьей гармоники, полученный от метаматериала при поляризации падающего электромагнитного излучения, соответствующего возбуждению магнитного резонанса в структуре, более чем в 30 раз больше сигнала, полученного от подложки плавленого кварца, на которой изготовлен образец. При этом для ортогональной поляризации интенсивность третьей гармоники оказалась почти в 100 раз меньше, чем для резонансной. Была измерена зависимость интенсивности третьей гармоники, полученной от мета-

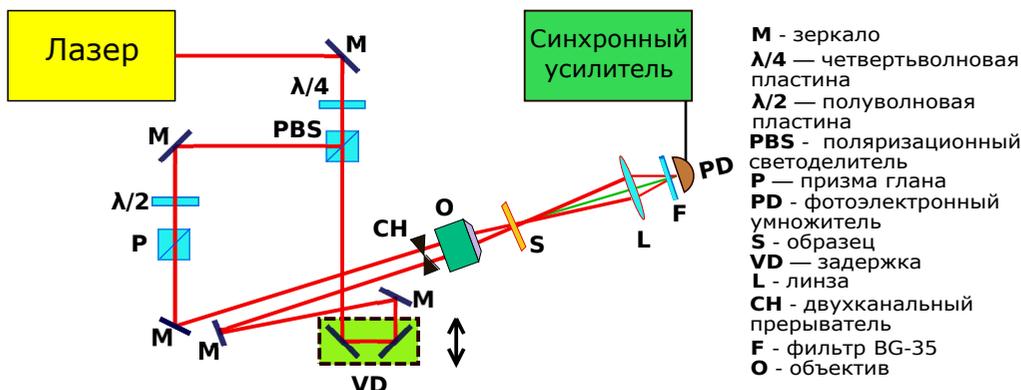


Рис. 2: Схема экспериментальной установки для исследования временной динамики процессов генерации третьей гармоники в сетчатых метаматериалах

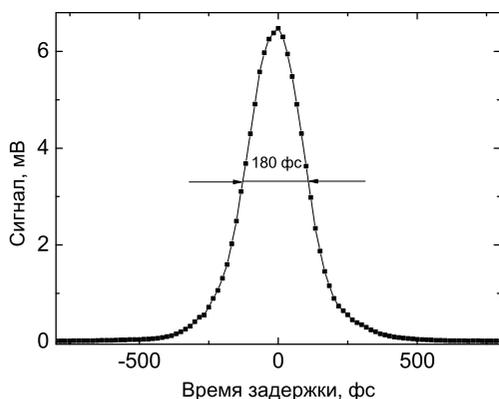


Рис. 3: Кросс-корреляционная функция импульсов накачки и зонда, полученная с помощью кристалла бета-бората бария

материала в пространственно-вырожденном случае от мощности падающего электромагнитного излучения. Данная зависимость, нормированная на максимальное значение, представлена на рис. 4 в логарифмической шкале красными треугольниками и близка к кубической.

Кроме того, было установлено, что при совмещении пучков в плоскости образца, а также во времени (когда импульсы приходят одновременно), происходит генерация третьей гармоники в пространственно-невырожденном случае, то есть когда происходит нелинейное взаимодействие между лазерными импульсами внутри структуры. При этом для одинаковых поляризаций в обоих каналах, соответствующих возбуждению магнитного резонанса в метаматериале, сигнал третьей гармоники на суммарной частоте прерывателей  $f_1 + f_2$  при совмещении лазерных импульсов во времени примерно в 2 раза больше, чем в вырожденном случае для каждого из каналов на частотах  $f_1$  и  $f_2$ , соответственно, а в случае ортого-

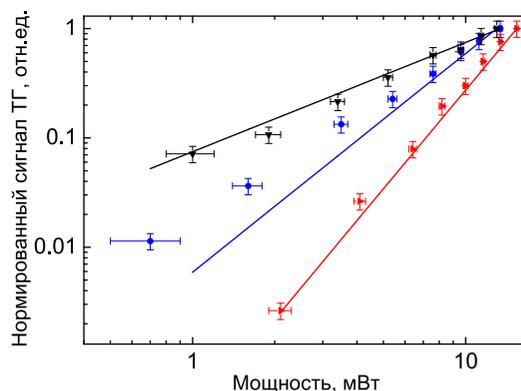


Рис. 4: Зависимости интенсивности излучения третьей гармоники от мощности накачки в канале 1. Сплошной черной линией показана линейная функция, черными треугольниками — экспериментальные данные для пространственно-невырожденного случая, когда поляризации в двух каналах ортогональны; синей сплошной линией показана квадратичная функция, синими кругами — экспериментальные данные для пространственно-невырожденного случая, когда поляризации в двух каналах параллельны; красной сплошной линией показана кубическая функция, красными треугольниками — экспериментальные данные для пространственно-вырожденного случая в одном из каналов

нальной поляризации в одном из каналов примерно в 20 раз меньше. Для совместного пространственно-невырожденного эффекта была измерена зависимость интенсивности третьей гармоники от мощности излучения в одном из каналов. Соответствующие зависимости для резонансной и ортогональной поляризаций представлены на рис. 4 в логарифмической шкале синими точками и черными треугольниками, соответственно. Можно заметить, что в случае ортогональной поляризации в одном из каналов, зависимость близка к линейной, а для резонансной — находится между

линейной и квадратичной. Кроме того, интенсивность третьей гармоники в невырожденном случае зависит от времени задержки между импульсами в разных каналах. Соответствующая нормированная на максимум сигнала зависимость для разных поляризаций в одном из каналов представлена на рис. 5. Там же для сравнения приведен нормированный график полуторной степени кросс-корреляционной функции импульсов, полученный с помощью нелинейного кристалла бета-бората бария (необходимость возведения в полуторную степень будет объяснена ниже в обсуждении).

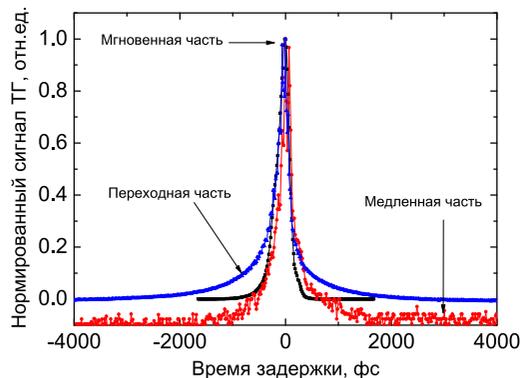


Рис. 5: Зависимость нормированной интенсивности излучения третьей гармоники на частоте  $f_1 + f_2$  от времени задержки между импульсами. Синие точки соответствуют случаю параллельных поляризаций в двух каналах, красные — ортогональных; черные точки соответствуют кубу временной зависимости интенсивности фемтосекундного импульса лазера

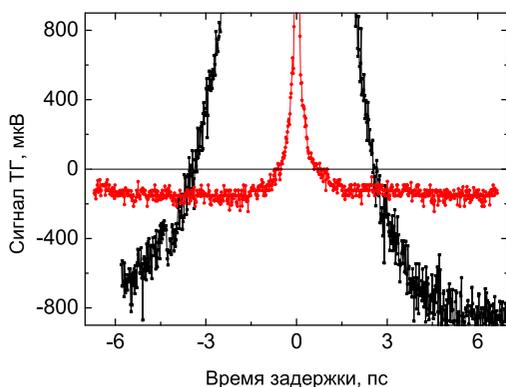


Рис. 6: Масштабированная зависимость ненормированной интенсивности излучения третьей гармоники на частоте  $f_1 + f_2$  от времени задержки между импульсами. Черные точки соответствуют случаю параллельных поляризаций в двух каналах, красные — ортогональных поляризаций

На графике видно различие между формой импульса, полученной с помощью нелинейного кристал-

ла, и динамической характеристикой генерации третьей гармоники метаматериалом, которое проявляется в более медленном спаде на временах, больших 0.5 пс. Кроме того, на больших временах наблюдается отрицательный вклад в сигнал третьей гармоники, генерируемой в одном из каналов, от излучения в другом канале. Это наиболее отчетливо видно на ненормированном графике сигнала третьей гармоники, увеличенная область которого представлена на рис. 6.

Также с помощью щели шириной порядка 1 мм, установленной на механическом трансляторе после линзы, собирающей излучение третьей гармоники на ФЭУ, были произведены измерения направления пучков третьей гармоники для случая параллельных резонансных поляризаций при совмещении во времени двух лазерных импульсов. Соответствующие графики представлены на рис. 7.

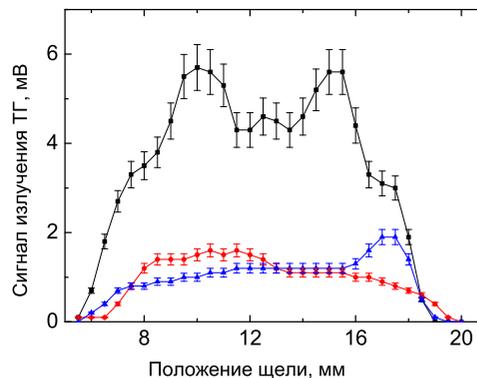


Рис. 7: Зависимость сигнала излучения третьей гармоники от положения щели. Черным цветом показан сигнал для суммарной частоты  $f_1 + f_2$ , красным и синим — для каждой из частот по отдельности

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Увеличение эффективности нелинейно-оптических эффектов в сетчатом метаматериале связано с усилением электромагнитного поля за счет его локализации в условиях плазмонного резонанса [8]. Источником генерации  $n$ -ой гармоники в метаматериале является поляризация среды на  $n$ -ой гармонике частоты накачки, индуцированная на каждой элементарной периодической ячейке метаматериала:

$$\mathbf{p}^{(n)} = \int_V \hat{L}(\mathbf{r}, n\omega) : \hat{\chi}^{(n)}(\mathbf{r}) : [\mathbf{E}_{loc}(\mathbf{r}, \omega)]^n dV, \quad (1)$$

где интегрирование производится по объему отдельной ячейки,  $\hat{\chi}^{(n)}$  — тензор локальной восприимчивости  $n$ -ого порядка,  $\hat{L}(\mathbf{r}, n\omega)$  — фактор локального поля на частоте  $n$ -ой гармоники,  $\mathbf{E}_{loc}(\mathbf{r}, \omega) = \hat{L}(\mathbf{r}, \omega) :$

$\mathbf{E}_0(\omega)$  — напряженность локального поля на частоте накачки,  $\mathbf{E}_0(\omega)$  — напряженность электрического поля падающей волны. Интенсивность излучения  $n$ -ой гармоники с поляризацией вдоль вектора  $\mathbf{e}$  будет пропорциональна  $|\mathbf{e} \cdot \mathbf{p}^{(n)}|^2$ . Фактор локального поля  $\hat{L}(\mathbf{r}, \omega)$  пропорционален  $1/D(\omega)$ , где  $D(\omega) = \omega - \omega_0 + i\Gamma$  описывает резонансный характер отклика, связанный с возбуждением магнитного плазмонного резонанса ( $\omega_0$  — частота резонанса,  $\Gamma$  — коэффициент затухания). Поэтому при приближении частоты падающего излучения к резонансной частоте локальные поля существенно усиливаются, а из (1) видно, что это приводит к увеличению интенсивности нелинейно-оптических эффектов.

Рассмотрим зависимости интенсивности генерации третьей гармоники от мощности излучения в первом канале. Как было замечено выше, интенсивность излучения  $n$ -ой гармоники пропорциональна  $|\mathbf{p}^{(n)}|^2$ . Из формулы (1) можно сделать вывод, что поляризация на  $n$ -ой частоте пропорциональна  $n$ -ой степени свертки фактора локального поля с напряженностью поля падающей электромагнитной волны, т. к.  $\mathbf{E}_{loc}(\mathbf{r}, \omega) = \hat{L}(\mathbf{r}, \omega) : \mathbf{E}_0(\omega)$ , где  $\mathbf{E}_0(\omega)$  — напряженность электрического поля падающей волны. Можно представить напряженность электрического поля падающей волны как сумму напряженностей волн в одном и другом каналах:

$$\mathbf{E}_0(\omega) = \mathbf{E}_1(\omega) + \mathbf{E}_2(\omega). \quad (2)$$

Фактор локального поля в произвольной точке метаматериала представляет собой следующий тензор (переменные  $\mathbf{r}$  и  $\omega$  опустим):

$$\hat{L} = \begin{pmatrix} L_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & L_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & L_{zz} \end{pmatrix}. \quad (3)$$

Напряженность локального поля запишется в виде:

$$\mathbf{E}_{loc} = \hat{L}\mathbf{E}_0 = \begin{pmatrix} L_{xx}E_x \\ L_{yy}E_y \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (4)$$

Здесь, ввиду малости угла падения пучков на образец, мы пренебрегаем  $z$ -компонентой напряженности электрического поля падающей волны. В случае, когда поляризации в обоих каналах одинаковые и соответствуют возбуждению магнитного резонанса в метаматериале, можно записать, используя формулу (1):

$$p_x^{(3)} \sim L^3 [E_{1x} + E_{2x}]^3 = L^3 [E_{1x}^3 + 3E_{1x}^2E_{2x} + 3E_{1x}E_{2x}^2 + E_{2x}^3]. \quad (5)$$

Первое и последнее слагаемое в формуле (5) отвечают пространственно вырожденному случаю; соответствующие сигналы третьей гармоники наблюдаются на частотах  $f_1$  и  $f_2$  соответственно. Учти-

вая, что интенсивность излучения третьей гармоники пропорциональна  $|\mathbf{p}^{(3)}|^2$ , получаем, что интенсивность излучения третьей гармоники, генерируемой метаматериалом в пространственно вырожденном случае, пропорциональна кубу интенсивности падающего электромагнитного излучения. Это согласуется с полученными экспериментальными данными (см. рис. 4). Из этой же формулы можно заключить, что в пространственно-невырожденном случае при взаимодействии двух лазерных импульсов интенсивность излучения третьей гармоники должна иметь степенную зависимость (или сумму степенных зависимостей) со степенью, меньшей 3. Это также находится в согласии с полученными экспериментальными данными (см. рис. 4).

В случае ортогональных поляризаций формула (5) переписывается в следующем виде для  $x$  и  $y$  проекций поляризации:

$$\begin{aligned} p_x^{(3)} &= \chi_{xxxx}E_{loc,x}^3 + (\chi_{xyxy} + \chi_{xxyy} + \chi_{xyyx})E_{loc,x}E_{loc,y}^2, \\ p_y^{(3)} &= \chi_{yyyy}E_{loc,y}^3 + (\chi_{yxyx} + \chi_{yxxy} + \chi_{yuyx})E_{loc,x}^2E_{loc,y}, \end{aligned} \quad (6)$$

где  $E_{loc,x}E_{loc,y}^2 \ll E_{loc,x}^2E_{loc,y}$ , т. к.  $y$ -поляризация не соответствует возбуждению резонанса в структуре. Учитывая этот факт и используя рассуждения, аналогичные предыдущим, можно заключить, что на частоте  $f_1 + f_2$ :

$$I_{THG} \sim L^4(\omega)I_1I_2^2, \quad (7)$$

т. е. интенсивность третьей гармоники, генерируемой метаматериалом в этом случае, пропорциональна интенсивности падающего излучения в первом канале. Этот вывод также находится в согласии с полученными экспериментальными данными для ортогональных поляризаций (см. рис. 4). Таким образом, построенное феноменологическое описание процессов генерации третьей гармоники находится в согласии с экспериментальными результатами.

Рассмотрим динамику нелинейно-оптических эффектов в исследуемом метаматериале. Согласно работе [13] в пространственно ограниченных золотых областях существует три основных вклада в кубичную нелинейность среды: межзонные переходы, внутризонные переходы, которые отвечают когерентному отклику, и некогерентные процессы, которые связаны с нагревом и термализацией электронов плазмы в металле. Первый вклад не относится к рассматриваемому нами случаю, так как энергия, которая необходима для перехода  $d$ -электронов из валентной зоны в зону проводимости, составляет порядка 1.7 эВ для золота, что соответствует длине волны излучения около 730 нм. Таким образом, остается два зависимых от времени вклада в генерацию третьей гармоники ограниченными металлическими частями. Как уже было отмечено выше, первый процесс, связанный с внутризонными переходами, является когерентным, а значит

мгновенным. Второй, некогерентный переходный процесс обладает характерными временами релаксации 0.5 пс для термализации электронной плазмы металла и 1–10 пс для электрон-фонной релаксации. На микроскопическом уровне нелинейность ограниченных металлических областей связана с ангармонизмом свободных электронов, усиленных эффектом локализации или связывания их волновой функции в пределах ограниченной части.

Рассмотрим экспериментально полученные временные зависимости интенсивности третьей гармоники, изображенные на рис. 5. Вклад в сигнал третьей гармоники для резонансного пространственно-невырожденного случая можно разделить на три составляющие. Первая составляющая, так называемая «мгновенная часть», повторяет форму полуторной степени кросс-корреляционной функции, полученной с помощью нелинейного кристалла бета-бората бария. Полуторная степень здесь берется из следующих соображений: сигнал кросс-корреляционной функции, полученный с помощью нелинейного кристалла, зависит от интенсивности падающих лазерных импульсов следующим образом (считаем, что импульсы идентичны):

$$I_{\text{crosscorr}}(\tau) \sim \int I(t)I(\tau - t)dt, \quad (8)$$

где  $\tau$  — время задержки между импульсами, а интегрирование происходит в бесконечных пределах. Видно, что интенсивность в этом случае пропорциональна квадрату интенсивности падающего электромагнитного импульса. В случае же третьей гармоники, генерируемой метаматериалом, интенсивность зависит от куба интенсивности падающего излучения (что было показано выше, см. (5) при учете, что интенсивность лазерных импульсов одинакова). Поэтому для сопоставления двух экспериментальных графиков они были приведены к одинаковой степени. Вторая составляющая, так называемая «переходная часть», становится заметна на временах от 0.5 до 2 пс. Эта составляющая может быть связана со сверхбыстрыми электрон-фонными релаксационными процессами в металлических частях метаматериала, на что указывает сравнение характерных времен процесса с данными для релаксационных процессов в металлических пленках и наночастицах [14]. Последняя, так называемая «медленная» составляющая, которая проявляется в понижении сигнала третьей гармоники в одном из каналов при воздействии другого, может быть связана с нагревом образца и изменением его локальных диэлектрических характеристик, в свою очередь влияющих на условия возбуждения магнитного резонан-

са в метаматериале. На нормированном экспериментальном графике эта часть хорошо видна для ортогональных поляризаций в связи с тем, что величина этого эффекта по отношению к сигналу третьей гармоники в максимуме при временном совмещении двух лазерных импульсов больше, чем для аналогичного отношения при параллельных поляризациях. Однако на исходных ненормированных графиках эффект наблюдается для обеих экспериментальных конфигураций (см. рис. 6). Таким образом, полученные динамические характеристики находятся в согласии с представлениями о микроскопической природе нелинейного отклика ограниченных металлических областей.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментально исследована временная динамика процессов генерации третьей оптической гармоники сетчатым метаматериалом «fishnet». Установлено, что вклад в сигнал третьей гармоники для резонансного пространственно-невырожденного случая можно разделить на три составляющие: мгновенную, переходную и медленную. Мгновенный вклад повторяет форму куба временной зависимости интенсивности фемтосекундного импульса лазера; переходный вклад становится заметным на временах от 0.5 до 2 пс и может быть связан со сверхбыстрыми переходными процессами в металлических частях метаматериала; медленный вклад проявляется в понижении сигнала третьей гармоники в одном из каналов при воздействии другого при больших временах задержки между импульсами и может быть связан с нагревом образца и изменением его локальных нелинейно-оптических характеристик. Построено феноменологическое описание когерентной составляющей сигнала третьей гармоники, хорошо описывающее экспериментальные зависимости, полученные при нулевой временной задержке между лазерными импульсами.

## Благодарности

Авторы благодарят проф. Томаса Пертча (Университет Фридриха Шиллера, Йена, ФРГ) за предоставление образцов сетчатых метаматериалов. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (ФЦП «Кадры») и, частично, Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 12-02-31349, 12-02-12092, 13-02-01336).

[1] Leonhardt U. Science. **312**. P. 1777. (2006).  
 [2] Cai W., Chettiar U., Kildishev A. and Shalaev V. Nat.

Photonics. **1**. P. 224. (2007).  
 [3] Pendry J. Phys. Rev. Lett. **85**. P. 3966. (2000).

- [4] *Kim E., Wu W., Ponizovskaya E., Yu Z., Bratkovsky A., Wang S.-Y., Williams R. and Shen Y.* Appl. Phys. Lett. **91**. P. 173105. (2007).
- [5] *Dani K., Ku Z., Upadhyay P., Prasankumar R., Taylor A. and Brueck S.* Opt. Express. **19**. P. 3973. (2011).
- [6] *Dolling G., Soukoulis C., Linden S. and Wegener M.* Opt. Lett. **32**. P. 53. (2007).
- [7] *Klein M., Enkrich C., Linden S. and Wegener M.* Science. **313**. P. 502. (2006).
- [8] *Kim E., Wang F., Wu W., Yu Z. and Shen Y.* Phys. Rev. B. **78**. P. 113102. (2008).
- [9] *Sun C.-K., Vallée F., Acioli L., Ippen E. and Fujimoto J.* Phys. Rev. B. **48**. P. 12365. (1993).
- [10] *Del Fatti N., Bouffanais R., Vallée F. and Flytzanis C.* Phys. Rev. Lett. **81**. P. 922. (1998).
- [11] *Del Fatti N. and Vallée F.* Appl. Phys. B. **73**. P. 383. (2001).
- [12] *Reinhold, J. et al.* Phys. Rev. B. **86**. P. 115401. (2012).
- [13] *Hache F., Ricard D., Flytzanis C. and Kreibig U.* Appl. Phys. A. **47**. P. 347. (1988).
- [14] *Voisin C., Del Fatti N., Christofilos D. and Vallée F.* J. Phys. Chem. B. **105**. P. 2264. (2001).

## Ultrafast dynamics of third harmonic generation in fishnet metamaterials

A. S. Shorokhov, K. I. Okhlopkov, D. V. Chichinadze, M. R. Shcherbakov, A. A. Fedyanin

*Faculty of Physics, M.V. Lomonosov Moscow State University. Moscow 119991, Russia*

*E-mail: fedyanin@nanolab.phys.msu.ru*

Ultrafast temporal evolution of the third harmonic generated by a fishnet metamaterial was studied using the pump-probe technique. The experimental data indicate the existence of a delay in the nonlinear response of the metamaterial. The delay is attributed to the ultrafast relaxation processes in gold characterized by a time constant of 1 ps that is comparable to the electron-phonon relaxation time.

PACS:42.65.Re, 78.67.Pt, 42.65.Ky.

Keywords: metamaterials, plasmonics, ultrafast dynamics, nonlinear optics.

*Received 10.10.2013.*

### Сведения об авторах

1. Шорохов Александр Сергеевич — аспирант; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: shorokhov@nanolab.phys.msu.ru.
2. Охлопков Кирилл Игоревич — студент; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: okhlopkov@nanolab.phys.msu.ru.
3. Чичинадзе Дмитрий Владимирович — студент; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: chichinadze@nanolab.phys.msu.ru.
4. Щербakov Максим Радикович — канд. физ.-мат. наук, мл. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: shcherbakov@nanolab.phys.msu.ru.
5. Федянин Андрей Анатольевич — докт. физ.-мат. наук, профессор; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: fedyanin@nanolab.phys.msu.ru.