

Фемтосекундная динамика поверхностных плазмонов в одномерных плазмонных кристаллах: частотно-разрешающее оптическое стробирование

В. В. Зубюк, А. И. Мусорин, П. П. Вабищевич, М. Р. Щербаков,
 М. И. Шарипова, А. С. Шорохов, Т. В. Долгова, А. А. Федянин*
 Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова,
 физический факультет. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2
 (Статья поступила 01.10.2013; Подписана в печать 04.12.2013)

Продемонстрированы изменения временного профиля электромагнитного поля фемтосекундного импульса при резонансном возбуждении плазмон-поляритонов (ПП) в окрестности краев запрещенной зоны плазмонного кристалла с использованием методики частотно-разрешающего оптического стробирования. Показано, что вблизи краёв запрещенной плазмонной зоны, где время жизни плазмон-поляритонов наибольшее, уширение профиля импульса с р-поляризацией при отражении от образца на 20 % больше, чем в случае отражения с s-поляризацией. Из-за резонансного возбуждения ПП в плазмонном кристалле изменяется форма спектра отраженного импульса — происходит уменьшение интенсивности вблизи длин волн, соответствующих краям запрещенной зоны.

PACS: 73.20.Mf, 42.70.Qs, 06.60.Jn УДК:537.9; 538.958

Ключевые слова: поверхностные плазмон-поляритоны, плазмонная запрещенная зона, плазмонный кристалл, частотно-разрешающее оптическое стробирование.

ВВЕДЕНИЕ

Электромагнитные волны, падающие на границу раздела двух отличных по свойствам сред, при определенных условиях могут распространяться вдоль поверхности раздела, в этом случае они называются поверхностными электромагнитными волнами (ПЭВ). Такие волны обладают свойствами, отличными от обычных объемных волн. Если ПЭВ распространяются на границе раздела металл/диэлектрик, то они представляют собой поверхностные плазмон-поляритоны (ПП), то есть коллективные колебания свободных электронов в металле и падающего электромагнитного поля [1]. Характер взаимодействия света с материалами, структурированными на субдлинноволновых масштабах, существенно отличается от взаимодействия с веществами, из которых эти материалы изготовлены. В тонких наноструктурированных пленках благородных металлов возможно резонансное возбуждение как локальных плазмонов, так и бегущих плазмон-поляритонов, поэтому такие структуры способны приводить к различным эффектам [2, 3], например, к усилению генерации оптических гармоник, усилению линейного двулучепреломления, оптическому магнетизму, экстраординарному оптическому пропусканию, а также оказывать значительное воздействие на состояние поляризации прошедшего и отраженного света [4, 5].

Возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов — это субпикосекундный процесс, поэтому для исследования его динамических характеристик необходимы методы, которые позволяли бы получать субпикосекундное временное разрешение. С развитием фемтосекундных импульсных лазеров стало

возможным изучение таких процессов, например, исследование временных характеристик поверхностных ПП [6]. Для работы с короткими импульсами света применяются различные автокорреляционные и корреляционные схемы [7], позволяющие измерять длительность и форму импульса. Однако подобные схемы не могут дать информацию о фазе импульса. Для получения полной информации о фемтосекундном импульсе необходимы методы, которые восстанавливают как его амплитуду, так и его фазу. Одним из таких методов является частотно-разрешающее оптическое стробирование (Frequency-resolved optical gating - FROG) [8]. Техника FROG включает в себя измерение спектрограмм импульса. Сложность данной методики заключается в обработке данных, так как фаза подбирается методом последовательных приближений.

В настоящей работе представлены экспериментальные результаты исследования фемтосекундных импульсов, отраженных от одномерных металлических наноструктурированных решеток, при резонансном возбуждении бегущих плазмон-поляритонов с помощью методики частотно-разрешающего оптического стробирования.

1. РЕЗУЛЬТАТЫ

Для исследования резонансного возбуждения бегущих плазмон-поляритонов в работе использовалась одномерная структурированная металлическая решетка, полученная методом лазерной интерференционной литографии. На рис. 1б показано изображение структуры в атомно-силовом микроскопе, а на рис. 1а — сечение изображения вдоль белой линии. Образец представляет собой золотую пленку толщиной около 50 нм, нанесенную на решетку из фоторезиста с периодом 0,8 мкм, расположенную на кварцевой подложке.

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

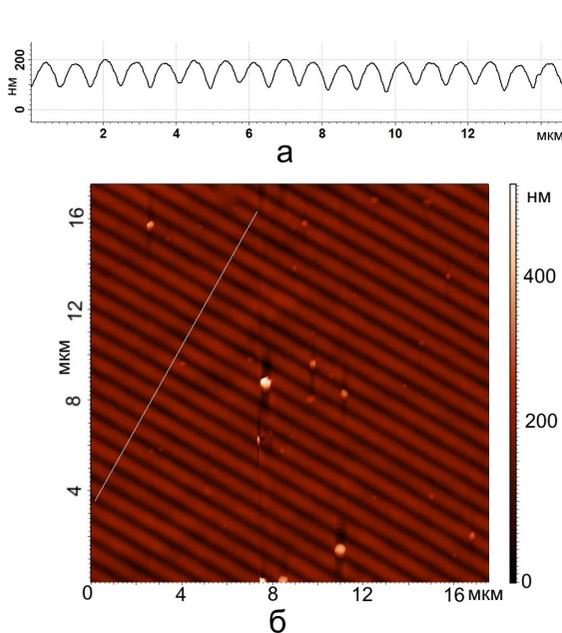


Рис. 1: а — Сечение изображения вдоль белой линии (рис. 1б) в атомно-силовом микроскопе; б — изображение образца в атомно-силовом микроскопе

На рис. 2 представлены спектры отражения образца в диапазоне длин волн 720–900 нм для р- и s-поляризаций излучения при угле падения Θ , близком к нормальному. Черный цвет — спектр отражения образца для р-поляризованного падающего излучения, красный цвет — для s-поляризованного (р-поляризация — плоскость поляризации ориентирована перпендикулярно полоскам решетки, s-поляризация — вдоль).

Измерения спектров отражения и последующие исследования проводились с помощью перестраиваемого в диапазоне 690–1040 нм фемтосекундного титан-сапфирового лазера с длительностью импульсов 130 фс (для длины волны 800 нм). Необходимая поляризация излучения формировалась с помощью ромба Френеля и призмы Глана.

Отсутствие резонансов в спектре отражения для s-поляризации подтверждает, что наблюдаемые резонансы в спектре отражения для р-поляризованного излучения появляются в результате возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов на границе раздела золото-воздух (в силу непрозрачности образца возбуждается только одна плазмонная мода). Периодическое структурирование поверхности металла при определенном соотношении периода структуры и длины волны лазерного излучения приводит к образованию плазмонной запрещенной зоны (одномерной) [10]. Так же как и для электронных волн в кристаллических твердых телах есть два решения стоячих плазмонных мод с различными частотами (ω_+ и ω_-). Плазмонные моды с частотами, находящимися между ω_+ и ω_- не мо-

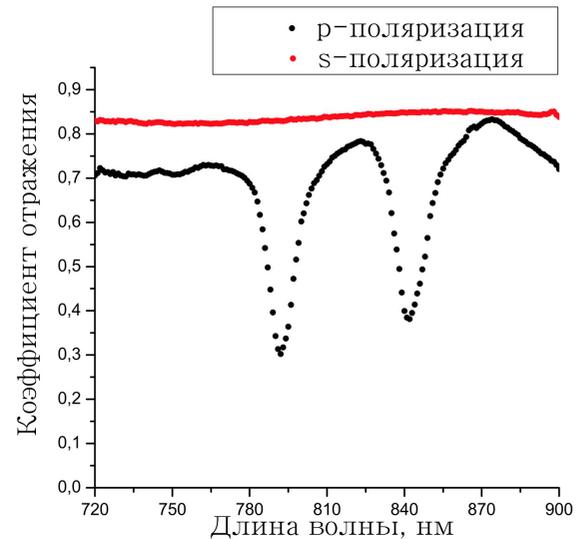


Рис. 2: Спектры отражения плазмонной решетки для р- и s-поляризованного излучения при угле падения, близком к нормальному

гут распространяться и не возбуждаются ни при каких волновых векторах. Два провала в спектре отражения для р-поляризованного излучения (рис. 2) соответствуют двум краям плазмонной запрещенной зоны (792 нм и 842 нм). При увеличении угла падения провал на длине волны $\lambda = 792$ нм смещается в коротковолновую область спектра, а провал на длине волны $\lambda = 842$ нм — в длинноволновую. Таким образом, данная структура является плазмонным кристаллом.

При исследовании времени жизни поверхностных плазмон-поляритонов в отражательной геометрии необходимо использовать схемы, позволяющие регистрировать длительность коротких импульсов. В данной работе такие измерения проводились с помощью автокорреляционной методики.

Автокорреляционные функции (АКФ) были измерены для длин волн падающего излучения в диапазоне 785–855 нм с шагом 2 нм для р- и s-поляризованного излучения, на основе которых были рассчитаны ширины АКФ импульсов. Для сравнения были проведены тестовые измерения — вместо образца помещалось гладкое серебряное зеркало. При этом не наблюдалось никаких изменений ширины импульса, отраженного от зеркала. На рис. 3 показаны спектр отражения структуры для р-поляризованного падающего излучения (синий цвет) и относительное изменение ширины АКФ импульса (разность ширин р- и s-поляризаций; красный цвет), отраженного от плазмонной решетки. Видны существенные изменения ширины фемтосекундного импульса вблизи двух краёв запрещенной зоны (792 нм и 842 нм), в диапазонах 785–791 нм и 835–839 нм импульс заметно уширяется (рис. 3) в результате возбуждения ПП и последующего переизлучения с запаздыванием, а в областях 793–797 нм, 841–845 нм, наоборот, происходит сужение импульса в результате деструк-

тивной интерференции с отраженным излучением.

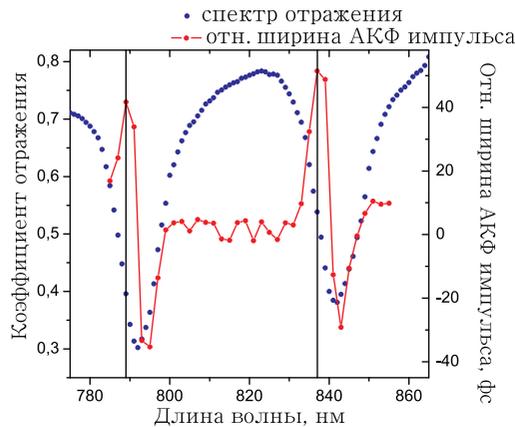


Рис. 3: Спектр отражения плазмонной решетки для р-поляризации падающего излучения и рассчитанные ширины импульсов. Синие точки — коэффициент отражения для р-поляризации, красные — относительное изменение ширины АКФ импульса, отраженного от плазмонной структуры

Различия между шириной импульса для р- и s-поляризованного излучения, отраженного от образца, не наблюдаются для длин волн 799–831 нм, соответствующих запрещенной зоне.

Стоит отметить, что ширина импульса для р-поляризации максимальна по сравнению с s-поляризацией в точках, которые не соответствуют минимумам в спектре отражения (рис. 3). Изменение ширины падающего импульса при отражении от структуры происходит в результате возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов для р-поляризации, что подтверждается различием для р- и s-поляризаций вблизи двух краёв запрещенной зоны.

Исследование динамики бегущих плазмон-поляритонов осуществляется с помощью методики частотно-разрешающего оптического стробирования. Техническое отличие от предыдущей схемы заключается в использовании монохроматора [8].

Фемтосекундный импульс, выходящий из лазера, проходит через оптический прерыватель, далее — через двойной ромб Френеля и призму Глана (как и в случае автокорреляционной схемы), падает на плазмонную решетку под углом, близким к нормальному, и делится на два луча на неполяризованном светоделителе. В плечо одного из импульсов помещена оптическая линия задержки. Другой импульс проходит через систему зеркал, после чего оба сигнала сбиваются на нелинейном кристалле, настроенного на синхронизм генерации суммарной частоты. Излучение на удвоенной частоте фокусируется линзой в оптическое волокно, по которому сигнал поступает в монохроматор, после чего для каждой точки спектра измеряются АКФ (сигнал детектируется с помощью фотоэлектронного умножителя).

Такая схема позволяет измерять спектрограммы фемтосекундных импульсов и с помощью алгоритма FROG восстанавливать отраженный от плазмонной решетки импульс, включая его фазу, чего нельзя было сделать с помощью корреляционной методики.

Для измерения спектрограмм импульса были выбраны длины волн, для которых наблюдаются наибольшие изменения в р- и s-поляризации, т. е. $\lambda = 788, 795, 836, 842$ нм (рис. 3). Сигнал регистрируется на суммарной частоте, поэтому длины волн на спектрограммах в 2 раза меньше.

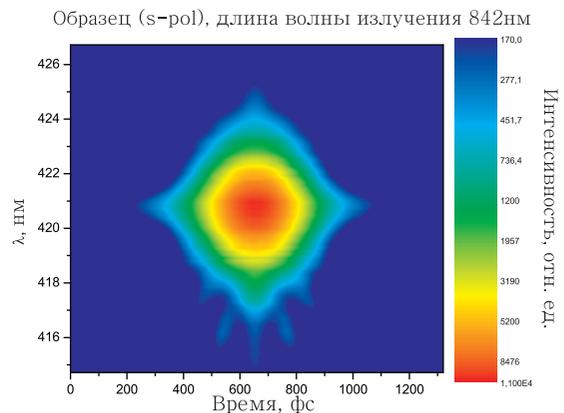


Рис. 4: Спектрограмма импульса, отраженного от плазмонного кристалла (падающий лазерный импульс с $\lambda = 842$ нм и s-поляризацией)

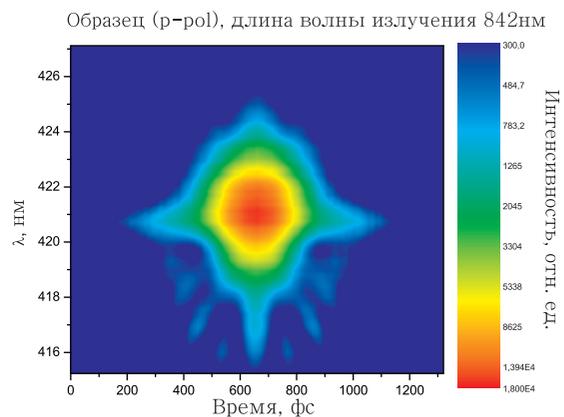


Рис. 5: Спектрограмма импульса, отраженного от плазмонного кристалла (падающий лазерный импульс с $\lambda = 842$ нм и р-поляризацией)

Для сравнения были измерены спектрограммы р- и s-поляризаций без образца — вместо образца помещалось серебряное зеркало. Спектрограммы для излучения с р- и s-поляризацией, падающего на зеркало, и для излучения с s-поляризацией, падающего на

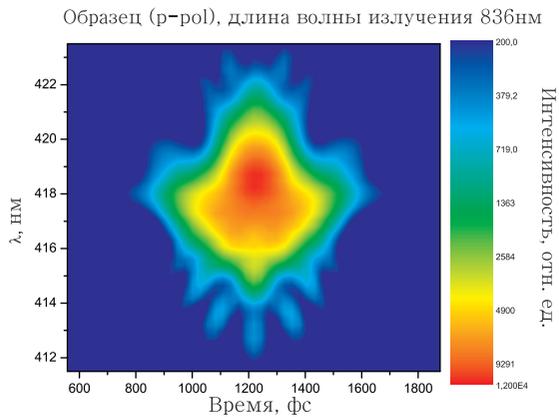


Рис. 6: Спектрограмма импульса, отраженного от плазмонного кристалла (падающий лазерный импульс с $\lambda = 836$ нм и р-поляризацией)

образец, имеют одинаковый характер (рис. 4; спектрограммы для зеркала и других длин волн имеют точно такой же вид и в настоящей работе не представлены.). Так как в этих случаях поверхностные плазмон-поляритоны не возбуждаются, то ни временных, ни спектральных изменений импульса не происходит.

Небольшие модуляции, наблюдаемые на всех спектрограммах, обусловлены тем, что форма, и, как следствие, АКФ лазерного импульса, может незначительно искажаться в результате прохождения через поляризационные элементы схемы и отражения от различных оптических компонентов установки, таких как зеркала и светоделитель.

Для р-поляризованного излучения, падающего на образец, наблюдаются сильные изменения как ширины импульса, так и спектральных характеристик при длинах волн 788, 795, 836 и 842 нм, соответствующих наибольшему изменению ширины АКФ импульсов, поскольку при этом возможно резонансное возбуждение ПП (рис. 5, 6; на другом краю ЗЗ наблюдаются аналогичные изменения). Все полученные спектрограммы являются симметричными по времени (горизонтальная ось), так как спектрограмма — это набор АКФ (а они являются симметричными) для различных длин волн. Для 836 нм спектрограмма растянута по времени, так как импульс более широкий. Для 842 нм появляются «хвосты» (200–400 фс и 900–1100 фс), что свидетельствует об изменении формы импульса, при этом ширина импульса меньше чем для s-поляризации на той же длине волны. Модуляции в спектре (вертикальная ось) наблюдаются из-за наличия провалов для р-поляризации в спектре отражения, связанных с ПП. Насколько сильными будут модификации спектра зависит от глубины провала, его ширины и длины волны, соответствующей минимуму (центральная длина волны провала). Варьируя эти параметры, можно добиться значительных изменений спектра (центральная

длина волны зависит от угла падения Θ на образец, глубина и ширина провала зависят от толщины пленки). В данном эксперименте центральные длины волн для двух провалов 792 нм и 842 нм (рис. 2), глубина и ширина провала для 792 нм — 0.3 и 11.75 нм, для 842 нм — 0.38 и 13.6 нм, соответственно. На рис. 5, 6 видно существенное уменьшение интенсивности вблизи длины волны 421 нм, что соответствует центральной длине волны провала 842 нм.

Для некоторых длин волн, соответствующих наибольшим различиям АКФ импульса между р- и s-поляризацией, было осуществлено восстановление временного профиля и фазы импульса из измеренных спектрограмм, используя основной алгоритм FROG [9]. На рис. 7 представлены полученные амплитуды и фазы для этих длин волн.

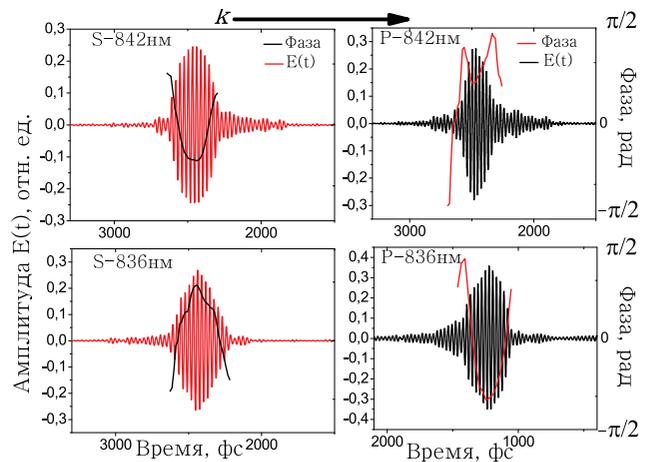


Рис. 7: Восстановленные амплитуды $E(t)$ и фазы $\phi(t)$ импульса, отраженного от плазмонной структуры, для р- и s-поляризованного излучения с длинами волн $\lambda = 836, 842$ нм, соответствующим максимумам изменения ширины АКФ импульса

Для импульса с р-поляризацией, отраженного от плазмонного кристалла, при длине волны $\lambda = 836$ нм (рис. 7) виден «хвост» импульса, который возникает из-за запаздывающего переизлучения ПП. При этом для импульса с s-поляризацией на той же длине волны и на длине волны $\lambda = 842$ нм такого эффекта не наблюдается, так как ПП не возбуждаются. А для р-поляризованного излучения на длине волны $\lambda = 842$ нм наблюдается резкое уменьшение амплитуды поля заднего фронта импульса, это происходит из-за деструктивной интерференции ПП и отраженного излучения. Восстановленные фазы $\phi(t)$ демонстрируют резкий скачок в случае возбуждения поверхностных ПП.

Восстановленные из спектрограмм FROG профили импульса, отраженного от плазмонного кристалла, дают информацию, которая теряется при измерении с помощью автокорреляционной методики. Алгоритм был проверен на устойчивость и на воспроизводимость — алгоритм сходится и обладает свойством воспроиз-

димости.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С помощью частотно-разрешающего оптического стробирования продемонстрированы изменения временного профиля электромагнитного поля фемтосекундного импульса при резонансном возбуждении плазмон-поляритонов в окрестности краев плазмонной запрещенной зоны плазмонного кристалла. Показано, что вблизи края плазмонной запрещенной зоны, для длин волн $\lambda = 836$ и 842 нм, где вре-

мя жизни плазмон-поляритонов наибольшее, происходит, соответственно, уширение и сужение профиля р-поляризованного импульса, отраженного от образца. Из-за резонансного возбуждения ПП в плазмонном кристалле также наблюдаются изменения спектральных характеристик отраженного импульса. Методика частотно-разрешающего оптического стробирования позволяет увидеть внутренние изменения формы импульса, которые обусловлены возбуждением плазмон-поляритонов.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ.

-
- [1] *Raether H.* Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings. Springer, Berlin, (1988).
- [2] *Ebbesen T.W., Lezec H.J., Ghaemi H.F., Thio T., Wolff P.A.* Nature. **391**, N 6668. P. 667. (1998).
- [3] *Щербakov M.P., Вабищевич П.П., Добындэ М.И., Долгова Т.В., Сигов А.С., Ванг Ч.М., Тсай Д.П., Федянин А.А.* Письма в ЖЭТФ **90**, №.6. С. 478. (2009).
- [4] *Shcherbakov M.R., Vabishchevich P.P., Fedyanin A.A., Zaitsev A.A., Sigov A.S.* SPIE Proceedings. **7359**. P. 73530T. (2009).
- [5] *Shcherbakov M.R., Vabishchevich P.P., Komarova V.V., Dolgova T.V., Panov V.I., Moshchalkov V.V., Fedyanin A.A.* Phys. Rev. Lett. **108**, N 25. P. 253903. (2012).
- [6] *Peatross J., Rundquist A.* JOSA B. **15**, N 15. P. 216. (1998).
- [7] *Akturk S., Gu X., Kimmel M., Trebino, R. et. al.* Opt. Express. **14**, N 21. P. 10101. (2006).
- [8] *Trebino R., DeLong K.W., Fittinghoff D.N., Sweetser J.N., Krumbügel M.A., Richman B.A., Kane D.J.* Rev. of Sci. Instr. **68**. P. 3277. (1997).
- [9] *DeLong K.W., Trebino R.* JOSA A. **11**, N 9. P 2429. (1994).
- [10] *Barnes W.L., Dereux A., Ebbesen T.W.* Nature. **424**, N 14. P 824. (2003).

Femtosecond dynamics of surface plasmons in one-dimensional plasmonic crystals: frequency-resolved optical gating (FROG)

V. V. Zubuyuk, A. I. Musorin, P. P. Vabishchevich, M. R. Shcherbakov, M. I. Sharipova, A. S. Shorokhov, T. V. Dolgova, A. A. Fedyanin^a

Faculty of Physics, M.V.Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia
E-mail: ^afedyanin@nanolab.phys.msu.ru

Changes in the temporal profile of the electromagnetic field of a femtosecond pulse at the resonant excitation of plasmon-polaritons (PP) in the vicinity of the band gap edges of plasmonic crystal were demonstrated using the frequency-resolved optical gating (FROG) technique. It is shown that the broadening of the p-polarized pulse reflected from the plasmonic crystal is 20% more than in the case of s-polarized light in the vicinity of band gap edges where the lifetime of plasmon-polaritons is highest. The spectrum of the reflected pulse is significantly modified because of the resonant excitation of the PP in the crystal — the intensity decreases near the wavelengths corresponding to the band gap edges.

PACS: 73.20.Mf, 42.70.Qs, 06.60.Jn

Keywords: surface plasmon polariton, plasmonic band gap, plasmonic crystal, frequency-resolved optical gating (FROG).

Received 01.10.2013

Сведения об авторах

1. Зубюк Варвара Владимировна — аспирант физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: komarova@nanolab.phys.msu.ru.
2. Мусорин Александр Игоревич — аспирант физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: musorin@nanolab.phys.msu.ru.
3. Вабищевич Полина Петровна — младший научный сотрудник физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: vabishchevich@nanolab.phys.msu.ru.

4. Щербаков Максим Радикович — канд. физ.-мат. наук, младший научный сотрудник МЛЦ МГУ имени М. В. Ломоносова; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: shcherbakov@nanolab.phys.msu.ru.
5. Шарипова Маргарита Ильгизовна — аспирант физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: sharipova@nanolab.phys.msu.ru.
6. Шорохов Александр Сергеевич — аспирант физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: shorokhov@nanolab.phys.msu.ru.
7. Долгова Татьяна Викторовна — канд. физ.-мат. наук, научный сотрудник физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: dolgova@nanolab.phys.msu.ru.
8. Федянин Андрей Анатольевич — докт. физ.-мат. наук, профессор физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова; тел.: (495) 939-39-10, e-mail: fedyanin@nanolab.phys.msu.ru.