

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М. В. ЛОМОНОСОВА
ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

Зубюк Варвара Владимировна

**ЭФФЕКТЫ ОПТИЧЕСКОГО ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ
И НАСЫЩЕНИЯ ПОГЛОЩЕНИЯ
В МЕТАПОВЕРХНОСТЯХ НА ОСНОВЕ
АРСЕНИДА ГАЛЛИЯ И ГЕРМАНИЯ**

1.3.19. Лазерная физика

Диссертация на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук, профессор
Федянин Андрей Анатольевич

Москва — 2025

Оглавление

	Стр.
Введение	5
Глава 1. Обзор литературы	13
1.1 Нанопотоника и оптические наноантенны	15
1.1.1 Преимущества неметаллических наноантенн	16
1.1.2 Активная нанопотоника	33
1.2 Метаповерхности с высокочастотными резонансами	49
1.3 Преобразование частоты в среде с зависящим от времени показателем преломления	53
1.3.1 Преобразование частоты в метаматериалах	57
1.3.2 Фемтосекундная спектроскопия, полученная с помощью методики “накачка-зондирование”	66
1.4 Изменение показателя преломления в полупроводниках за счет инжекции свободных носителей	69
Глава 2. Эффект насыщения поглощения в метаповерхностях на основе арсенида галлия	76
2.1 Образцы метаповерхностей из арсенида галлия	76
2.1.1 Проектирование метаповерхностей	77
2.1.2 Изготовление метаповерхностей	79
2.2 Линейная спектроскопия коэффициента отражения метаповерхностей из арсенида галлия	82
2.2.1 Экспериментальная установка для измерения спектров отражения	82
2.2.2 Сравнение модельных спектров отражения метаповерхностей с экспериментальными спектрами	85
2.3 Экспериментальное исследование эффекта насыщения поглощения в метаповерхностях из арсенида галлия	89
2.3.1 Схема экспериментальной установки I-сканирования	89

2.3.2	Коэффициент отражения в зависимости от падающей мощности	91
2.4	Численное моделирование эффекта насыщения поглощения	97
2.4.1	Феноменологическая модель для коэффициента отражения с насыщением	97
2.4.2	Изменение комплексного показателя преломления полупроводника при индуцировании свободных носителей	99
2.4.3	Эффект насыщения поглощения для высокодобротной метаповерхности на основе арсенида галлия	105
2.5	Анализ полученных результатов для эффекта насыщения поглощения в метаповерхностях на основе арсенида галлия	111

Глава 3. Оптическое переключение в метаповерхностях на основе арсенида галлия	116	
3.1	Образцы метаповерхностей на основе арсенида галлия	116
3.2	Линейная спектроскопия коэффициента отражения метаповерхностей на основе арсенида галлия	117
3.2.1	Экспериментальная установка для измерения спектров отражения	117
3.2.2	Численный расчет коэффициента отражения метаповерхности	119
3.3	Экспериментальная установка для исследования временных характеристик	120
3.3.1	Схема установки “накачка-зондирование” с широкополосным излучением в качестве зонда	120
3.3.2	Измерение длительности импульса накачки	124
3.3.3	Схема сбора и анализа данных дифференциального коэффициента отражения метаповерхности	128
3.3.4	Измерение дифференциального коэффициента отражения	138
3.3.5	Определение максимальной мощности накачки для метаповерхностей	146
3.4	Численное моделирование дифференциального коэффициента отражения	147
3.5	Анализ результатов эффекта модуляции коэффициента отражения метаповерхности на основе арсенида галлия	152

Глава 4. Фемтосекундное преобразование частоты в метаповерхностях на основе аморфного германия	155
4.1 Образцы метаповерхностей на основе аморфного германия	155
4.1.1 Проектирование метаповерхностей	156
4.1.2 Изготовление метаповерхностей	159
4.2 Линейная спектроскопия коэффициентов пропускания и отражения метаповерхностей на основе аморфного германия	160
4.2.1 Экспериментальная установка для измерения спектров	160
4.3 Экспериментальная установка для исследования временных характеристик	165
4.3.1 Схема установки “накачка-зондирование” с использованием излучения параметрического усилителя в качестве зонда	165
4.3.2 Юстировка схемы “накачка-зондирование” с разными оптическими частотами и определение длительности импульса параметрического усилителя света	169
4.3.3 Дифференциальный коэффициент пропускания и спектроскопия третьей гармоники	175
4.4 Преобразование частоты в метаповерхностях из аморфного германия с внутриимпульсным изменением диэлектрической проницаемости	178
4.4.1 Преобразование частоты в линейном случае	180
4.4.2 Преобразование частоты в нелинейном случае	181
4.4.3 Численное моделирование динамики по теории связанных мод	184
4.4.4 Анализ результатов эффекта преобразования частоты в метаповерхностях с внутриимпульсным изменением диэлектрической проницаемости	193
Заключение	205
Список сокращений и условных обозначений	208
Список литературы	210

Введение

Диссертационная работа посвящена экспериментальному исследованию оптических эффектов переключения и насыщения поглощения в полупроводниковых метаповерхностях методами оптической и нелинейно-оптической микроспектроскопии и фемтосекундной спектроскопии. Особое внимание уделено изучению влияния метаповерхностей на взаимодействующее с ними электромагнитное излучение, исследованию динамики импульсов, отраженных и прошедших через полупроводниковые метаповерхности, а также влиянию резонансов типа Ми на оптические и нелинейно-оптические свойства метаповерхностей, обладающих оптическим магнетизмом.

Актуальность темы обусловлена необходимостью поиска новых материалов, обеспечивающих эффективный отклик на внешнее электромагнитное поле и при этом совместимых с основными этапами производства устройств в микроэлектронике. В эру информационных технологий этому уделяется значительное внимание, как и анализу возможностей увеличения скорости передачи информации, пропускной способности каналов, изготовлению фотонных устройств, обеспечивающих потребности современного общества в сверхскоростной передаче и обработке информации. Попытка увеличить эффективность работы фотонных устройств приводит к созданию структур с новыми свойствами, не характерными для материалов, из которых изготовлены такие структуры. Так, для увеличения отклика структур используются различные резонансные взаимодействия, например, возбуждение плазмон-поляритонов [1], которое усиливает нелинейные эффекты и может приводить к модуляции электромагнитного излучения, что, в свою очередь, можно использовать в различных системах оптической связи, в оптоэлектронике, фотонике и других областях, в основе которых лежит оптический сигнал и где требуется полностью оптическое переключение и модуляция лазерного излучения. Для контроля параметров оптического излучения широко применяются метаповерхности, которые представляют собой массив периодически расположенных наноантенн [2–5]. Однако использование плазмонных метаповерхностей, в основе которых лежат металлические материалы, не могут проявлять высокоэффективный оптический отклик из-за омических потерь в металле, кроме того, вследствие этого имеют низкий порог разруше-

ния. Тем не менее, плазмонные структуры при этом обладают сверхбыстрым, а именно субпикосекундным откликом, что важно для задач управления светом, а также обладают высокой чувствительностью к изменению параметров окружающей среды, что очень важно для сенсорики. Но в ряде задач управления излучением необходимо использование других материалов, которые бы демонстрировали хороший отклик, но обладали бы меньшими потерями. Благодаря небольшим потерям в определенной области в последнее время активно развиваются диэлектрические метаповерхности, которые характеризуются хорошей эффективностью и применяются в различных областях [6–8]. Так, в работах [6; 7] были продемонстрированы эффективные линзы на основе кремниевых метаповерхностей и метаповерхностей из оксида титана соответственно. Существует множество работ по исследованию диэлектрических структур на основе кремния. В кремниевых метаповерхностях возможно возбуждение резонансов типа Ми, волноводных мод, которые приводят к увеличению эффективности оптического отклика таких структур [9–12]. В работах [10; 12] было показано, что с помощью кремниевой частицы и кремниевой метаповерхности можно получить модуляцию оптического излучения, но полученные значения модуляции либо не очень эффективны, либо имеют довольно длительные времена релаксации. Так как кремний — это непрямозонный полупроводник, то использование его в качестве активного элемента имеет некие ограничения, не позволяя использовать такой материал для задач, в которых необходимо высокоэффективное и сверхбыстрое взаимодействие. Существуют другие полупроводниковые материалы, такие как арсенид галлия (GaAs), фосфид индия (InP) с прямой запрещенной зоной, которые используются в оптоэлектронике, или германий (Ge), который является непрямозонным полупроводником, но довольно близок к прямозонным полупроводникам по некоторым характеристикам. Из таких материалов довольно тяжело изготавливать наноструктуры, но в последние годы были достигнуты значительные успехи в этой области и наноструктуры из III–V полупроводников были получены в ходе монолитного изготовления [13; 14]. Тем не менее, это лишь начальный этап работы с такими материалами, и необходимы систематическое исследование, оптимизация полученных эффектов и исследование новых эффектов в структурах такого типа. Поэтому изучение стационарных свойств таких структурированных полупроводниковых материалов, которые, кроме того, могут быть интегрированы на фотонный чип, а также исследова-

ние их нестационарных свойств при помещении в лазерные поля являются актуальными и важными задачами. Так, например, насыщающийся поглотитель играет важную роль во многих современных оптических системах, а в силу того, что метаповерхности усиливают нелинейно оптические процессы, то такие субволновые полупроводниковые наноструктуры могут потенциально работать в качестве насыщающегося поглотителя. Кроме того, полупроводниковые метаповерхности, обладающие эффективным и быстрым оптическим откликом, могут найти применение в области полностью оптических модуляторов и переключателей лазерного излучения в заданном спектральном диапазоне.

Степень разработанности темы исследований. Исследование оптического и нелинейно-оптического отклика наноантенн и метаповерхностей — это активно развивающаяся область фотоники. Такие структуры находят широкое применение для управления различными параметрами оптического излучения. Тем не менее, их потенциальные возможности изучены не до конца. Поиск материалов, которые используются для создания микро- и наноструктур и при этом распространены в микроэлектронике, а также необходимость изучения процессов взаимодействия таких структур с лазерным излучением являются не только важными фундаментальными задачами, но и имеют практическую значимость для прикладных областей современной науки.

Целями диссертационной работы является обнаружение эффекта насыщения поглощения в метаповерхностях, состоящих из упорядоченных массивов нанодисков прямозонных полупроводников, а также демонстрация сверхбыстрого управления оптическим и нелинейно-оптическим откликом полупроводниковых метаповерхностей, обладающих оптическим магнетизмом.

Для достижения поставленных целей необходимо было решить следующие **задачи**.

1. Моделирование и изготовление полупроводниковых метаповерхностей в виде нанодисков и прямоугольных параллелепипедов с эффективным оптическим откликом; исследование их оптического отклика и определение порогов разрушения.
2. Экспериментальное исследование эффекта модуляции коэффициента отражения метаповерхностей из нанодисков на основе арсенида галлия вблизи запрещенной зоны полупроводника методом безапертурного I-сканирова-

ния и моделирование эффекта насыщения поглощения в таких метаповерхностях.

3. Экспериментальное исследование пикосекундной динамики модуляции коэффициента отражения метаповерхностей из нанодисков арсенида галлия с помощью методики “накачка-зондирование”, с использованием широкополосного излучения в качестве зонда.
4. Экспериментальное исследование с помощью фемтосекундной спектроскопии методики “накачка-зондирование” динамики модуляции лазерного излучения, прошедшего через метаповерхность из прямоугольных параллелепипедов аморфного германия, и модуляции интенсивности оптической гармоники, генерируемой зондирующим излучением в метаповерхности.
5. Построение феноменологической модели для определения параметров насыщения. Расчет вариации комплексного показателя преломления полупроводника при генерации свободных носителей под действием фемтосекундного лазерного излучения и моделирование соответствующего изменения коэффициента отражения метаповерхности. Разработка методики расчетов по теории связанных мод.

Объект и предмет исследования. Объектом исследования являются оптические метаповерхности, в которых возможен процесс фотоиндуцированного изменения свойств. Предметом исследования являются эффект насыщения поглощения в прямозонных полупроводниковых метаповерхностях и оптическое переключение линейного и нелинейного отклика в полупроводниковых метаповерхностях под действием фемтосекундного лазерного излучения.

Научная новизна:

1. Обнаружено значительное усиление (более чем на порядок) модуляции коэффициента отражения в зависимости от падающей интенсивности и уменьшение интенсивности насыщения в образцах массивов нанодисков из арсенида галлия при возбуждении резонансов типа Ми по сравнению с нерезонансным случаем.
2. Экспериментально продемонстрировано пикосекундное оптическое переключение в метаповерхностях на основе нанодисков из арсенида галлия, обусловленное генерацией свободных носителей под действием фемтосекундных лазерных импульсов и проявляющееся в модуляции спектра отражения и сдвиге ми-резонанса в коротковолновую область на 30 нм за

1 пс с последующей пикосекундной релаксацией. Обнаружено пятидесятикратное увеличение глубины модуляции коэффициента отражения для метаповерхности из арсенида галлия по сравнению с объемным арсенидом галлия. Глубина модуляции коэффициента отражения метаповерхности из нанодисков арсенида галлия достигает 90% при плотности энергии накачки 380 мкДж/см².

3. Показано, что возбуждение коллективных мод в двумерных массивах из прямоугольных параллелепипедов аморфного германия приводит к образованию высокодобротных резонансов в инфракрасном диапазоне и фотоиндуцированной субпикосекундной модуляции коэффициента пропускания до 80% под действием фемтосекундных лазерных импульсов с плотностью энергии накачки 3 мДж/см², вызывающих внутриимпульсное изменение диэлектрической проницаемости полупроводника.
4. Впервые продемонстрирована фемтосекундная динамика генерации третьей оптической гармоники в метаповерхностях из прямоугольных параллелепипедов аморфного германия, обусловленная внутриимпульсным изменением диэлектрической проницаемости полупроводника под действием фотоиндуцированных свободных носителей и наличием высокодобротного резонанса метаповерхности, и проявляющаяся в сдвиге частоты с 3ω на 3.05ω за 100 фс при плотности энергии накачки 3 мДж/см², глубина модуляции интенсивности кубического нелинейно-оптического сигнала при этом достигает 100%.

Личный вклад. Зубюк В.В. является определяющим. Все представленные в диссертации результаты получены либо лично автором, либо при его непосредственном участии. Автором осуществлялись сбор и юстировка экспериментальных установок, автоматизация эксперимента, проведение измерений и обработка полученных данных, реализация аналитических и численных расчетов, написание публикаций совместно с другими соавторами.

Теоретическая и практическая значимость работы заключается в перспективах применения полученных результатов для увеличения функциональности существующих устройств нанофотоники, совмещения с электронными устройствами для увеличения эффективности работы или снижения энергозатрат, а также для разработки новых устройств интегральной оптики. Полученные в работе результаты также могут быть использованы для разработки

новых методов управления лазерным излучением при помощи полупроводниковых метаповерхностей. Кроме того, было получено, что полупроводниковая метаповерхность из арсенида галлия имеет интенсивность насыщения сравнимую с характерными значениями для других устройств насыщающихся поглотителей, при этом метаповерхность имеет достаточно компактные размеры, а в силу технологических особенностей производства может быть легко интегрирована в современные оптические системы. Это может быть использовано для создания компактных и эффективных фотонных устройств. На основании результатов работы получен патент.

Методология и методы исследования. Для решения задач взаимодействия фемтосекундного лазерного излучения с наноструктурированными полупроводниками необходимы методики исследования как статических и нелинейных свойств, так и сверхбыстрых процессов. В работе использовались методы оптической спектроскопии для получения спектров отражения/пропускания образцов в видимом и ближнем инфракрасном диапазоне для р- и s-поляризаций излучения и различных углов падения электромагнитной волны. Метод I-сканирования, то есть измерение оптического отклика образцов как функции мощности электромагнитного излучения, и метод накачки-зондирования, то есть возбуждение материала с помощью мощной накачки и зондирование динамики, происходящих процессов более слабым излучением, применялись для исследования стационарных эффектов и релаксационных процессов, происходящих в метаповерхностях под действием мощного лазерного импульса. В качестве исследуемых структур использовались полупроводниковые наноструктуры с субволновой периодичностью, поэтому для диагностики полученных материалов необходимо использовать методики, применяющиеся для определения рельефа поверхности с высоким пространственным разрешением, такие как сканирующая электронная и атомно-силовая микроскопия. Для исследования временных характеристик сверхбыстрых процессов (пикосекундный масштаб времени) необходимы фемтосекундные источники излучения, а чтобы исключить температурные эффекты, необходимо использовать мощные лазерные импульсы с высокой скважностью, кроме того, требуются специальные методики для регистрации столь коротких импульсов. Для моделирования наноструктур необходимы программы, позволяющие реализовать метод конечных разностей во

временной области, а для анализа и построения моделей, описывающих наблюдаемые эффекты, — программы для инженерных и научных расчетов.

Положения, выносимые на защиту:

1. Отражение света от метаповерхностей из нанодисков арсенида галлия зависит от интенсивности падающего излучения, что обусловлено эффектом насыщения поглощения и спектральным сдвигом профиля резонанса типа Ми вблизи края запрещенной зоны полупроводника. Изменение коэффициента отражения на порядок больше, чем для объемного арсенида галлия или неструктурированной пленки при одинаковой плотности энергии падающих фемтосекундных лазерных импульсов.
2. Пикосекундное фотоиндуцированное переключение коэффициента отражения метаповерхности из нанодисков арсенида галлия усиливается за счет возбуждения резонансов типа Ми. Глубина модуляции коэффициента отражения $\Delta R/R$ достигает значения 0,9 при плотности энергии фемтосекундного импульса накачки 380 мкДж/см^2 .
3. Фемтосекундное фотоиндуцированное изменение оптических свойств мезорезонансной метаповерхности из аморфного германия приводит к внутриимпульсной эволюции параметров резонанса и, как следствие, к перераспределению спектрального состава прошедшего излучения и фемтосекундной динамике интенсивности третьей оптической гармоники, генерируемой в полупроводнике.

Степень достоверности полученных результатов обеспечивается их воспроизводимостью при повторных измерениях и соответствием существующим литературным данным. Кроме того, экспериментальные результаты находятся в хорошем согласии с численным моделированием и аналитическими расчетами исследуемых оптических и нелинейно-оптических эффектов.

Апробация работы. Основные результаты работы были представлены на следующих конференциях: Metamaterials'2020, METANANO-2020, ICMAT-2019, Swiss-Russian Workshop "Materials of electronics in ultrashort ultrastrong electromagnetic field" 2018, UltrafastLight-2018, METANANO-2017, ICMAT-2017, II Международная научно-практическая конференция «Магнитные наноматериалы в биомедицине: получение, свойства, применение» 2017, ICONO/LAT-2016, а также на научном семинаре Johannes Kepler University 2019.

Публикации. Основные результаты диссертации опубликованы в 6 печатных работах, в том числе в 5 публикациях [15—20] в рецензируемых научных изданиях, индексируемых базами данных Web of Science, Scopus, РИНЦ и в 1 патенте [16].

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, четырёх глав и заключения. Полный объём диссертации составляет 222 страницы с 102 рисунками и 1 таблицей. Список литературы содержит 145 наименований.

Глава 1. Обзор литературы

С помощью физических теорий мы пытаемся найти себе путь сквозь лабиринт наблюденных фактов, упорядочить и постичь мир наших чувственных восприятий.

Альберт Эйнштейн [21]

Нашу повседневную жизнь окружает множество явлений и предметов, которые создала не только природа, но и в большинстве своем было создано человеком. Свет — это природное явление, которое встречается повсюду и делает нашу жизнь не просто интереснее и ярче, но и вообще видимой. Немало источников света было придумано человеком, начиная от приручения огня в древности, ставшее начальной точкой в долгой эволюции человека, заканчивая созданием Эдисона в 1879 году лампы накаливания и созданием синего светодиода, который позволил производить энергоэффективные и более экономически выгодные белые светодиоды.

Оптика, является областью физики, направленной на исследование и описание различных явлений генерации, передачи, управления, а также описание использования и свойств света. В силу корпускулярно-волнового дуализма света, корпускулярную часть которого описал Эйнштейн, опираясь и развивая идеи Ньютона и Планка (в 1918 году Макс Планк был удостоен Нобелевской премии по физике за открытие квантов энергии), в оптике можно выделить три основные части. Геометрическая оптика, описывающая свет как совокупность прямолинейно распространяющихся лучей, их отражение от поверхности и преломление при прохождении через среду. Физическая оптика — включает волновые эффекты света, такие как интерференция, дифракция и рассеяние. И квантовая оптика, рождение которой можно считать с момента описания Эйнштейном фотоэффекта в 1905 году (за что в 1921 году он был удостоен Нобелевской премии по физике), — описывает взаимодействие света в виде квантов с веществом.

Независимое, одновременное изобретение мазера Прохоровым, Басовым и Таунсом и последующее активное развитие лазеров положило начало новой современной оптики и эры фотоники. Фотоника тесно связана с оптикой, также исследующей световые явления, но в фотонике сделан упор на применении света в различных технологиях и создании различных устройств для приложений. Фотоника включает создание высокоточных оптических компонентов, систем линз, оптико-механического оборудования для различных приложений для широкого спектрального диапазона от УФ лучей до ИК диапазона. Фотоника стала частью оптики необходимой для описания и создания таких сложных устройств как лазеры, полупроводниковые детекторы, модуляторы света [22; 23]. Ведь классическая оптика первоначально занималась описанием более простых устройств линз, зеркал, фильтров и т.п.

Фотоника выступает аналогом электроники, при этом описывая не поток электронов и электронные устройства, а поток фотонов и фотонные устройства. Кроме того, стоит подчеркнуть тесную взаимосвязь электроники и фотоники. Ведь как фотоны могут управлять потоком электронов, например, как в случае детекторов на основе полупроводников, так и электроны могут определять свойства распространения света, как в случае полупроводниковых лазеров или электро-оптических модуляторов. При этом в фотонике можно создать аналогичные компактные устройства не уступающие своими свойствами или даже превосходящими электронные аналоги.

Появление в оптике идей, связанных с наномасштабами, нанотехнологиями и наносистемами привело к возникновению нанофотоники, которая объединяет нанотехнологии и фотонику и направлена на создание микро- и наномасштабных устройств, систем на основе оптических и электронных принципов, а также на их описание. Нанофотоника на самом деле в некотором смысле берет свое начало из древней Греции, когда греки создавали красители с небольшими металлическими частицами. Но настоящее развитие и прогресс нанофотоника получила после создания лазера в 1960 году (созданный Мейманом с использованием рубина в качестве рабочего тела). В СССР первый лазер был создан в 1961 году, где также использовался рубин, который Прохоров долгое время тщательно исследовал методами электронного парамагнитного резонанса и еще в 1957 предложил рубин в качестве рабочего тела.

1.1 Нанопотоника и оптические наноантенны

Нанопотоника — прогрессивная область науки, описывающая наноразмерную оптику и технологии. Эта область получила значительное внимание не только со стороны мировой фундаментальной науки, но и нашла широкое использование в промышленности. Нанопотоника продолжает активно развиваться и находит применения в различных областях, начиная с солнечных элементов, биосенсоров и продолжая применениями в оптике, фотонике, биомедицине, биофотонике и многих других областях. Создание элементной базы фотонных устройств на основе резонансных наночастиц и структур — одна из основных задач нанопотоники. Так например оптические наноантенны, необходимые для управления оптическим излучением, требуют определенных технологий изготовления в силу небольшого размера, в отличие от обычных антенн повсеместно используемых в радио- и микроволновом диапазоне. Кроме того, в эру информационных технологий значительное внимание уделяется поиску материалов и возможностей для увеличения скорости передачи информации, пропускной способности каналов, изготовлению фотонных устройств, которые бы обеспечивали потребности современного общества в сверхскоростной передаче и обработке информации. Попытка увеличить эффективность работы фотонных устройств приводит к созданию структур с новыми свойствами, не характерными для материалов, из которых изготовлены такие структуры. Так, для увеличения отклика структур используются различные резонансные взаимодействия, которые усиливают нелинейные эффекты и могут приводить к модуляции электромагнитного излучения, что, в свою очередь, можно использовать в различных системах оптической связи, в оптоэлектронике, фотонике и других областях, в основе которых лежит оптический сигнал. С другой стороны, нанопотонные устройства, например наноантенны (рис. 1.1), главным элементом которых являются металлы, проявляют не очень высокую эффективность из-за омических потерь.

А при создании фотонных устройств особое внимание необходимо уделять материалам из которых изготовлены данные устройства, так как необходимы среды, которые бы обеспечивали эффективное взаимодействие излучения с веществом, но не обладали большими паразитными эффектами. В связи с этим

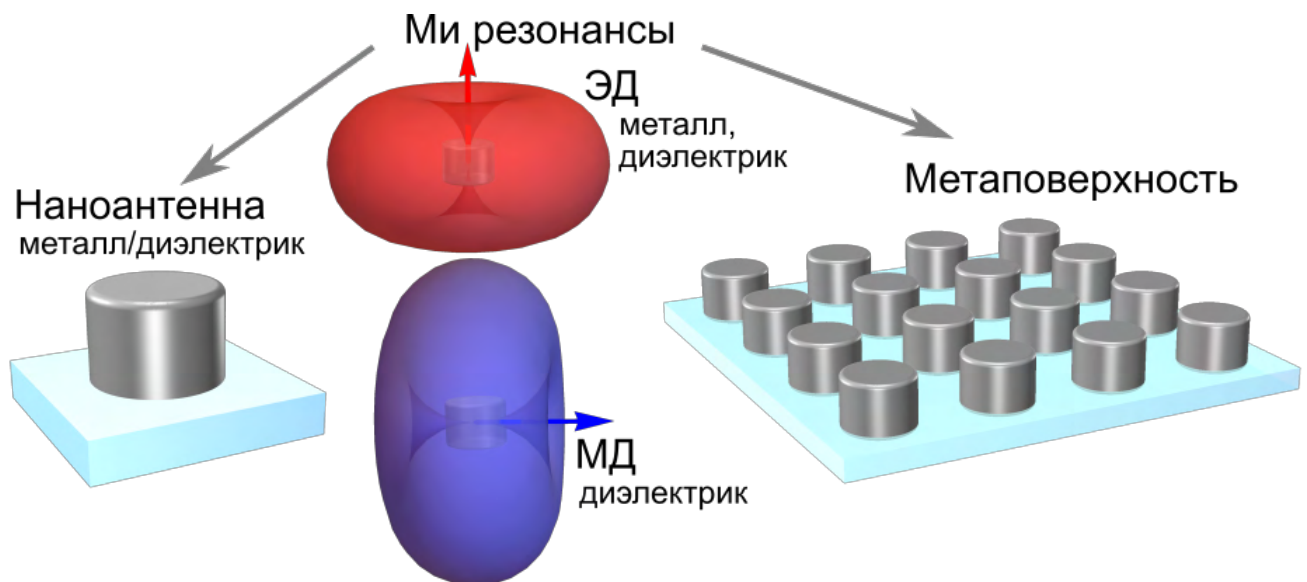


Рисунок 1.1 — Пример nanoантенны, возбуждаемых в такой nanoантенне фундаментальных резонансов Ми типа (ЭД — электродипольного, МД — магнитодипольного) и составленной из таких nanoантенн метаповерхности.

необходимо использование материалов, активно использующихся в современной оптоэлектронике, изготовление из них специальных структур для увеличения эффективности работы и изучение взаимодействия таких устройств с излучением. А увеличения отклика структур можно получить, используя различные резонансные взаимодействия.

1.1.1 Преимущества неметаллических nanoантенн

В последнее время активно развиваются диэлектрические nanoантенны, так как они характеризуются хорошей эффективностью и небольшими потерями в определенной области и являются перспективными для оптоэлектроники и фотоники. Nanoантенны и геометрически упорядоченные массивы из них — это активно развивающаяся область и, кроме того, такие структуры находят широкое применение для управления различными параметрами оптического излучения. Важным вопросом является поиск материалов, которые используются для создания микро- и наноструктур, но при этом широко распространены в микроэлектронике.

Согласно теории Ми, резонансы рассеяния при мультипольном возбуждении субволновой частицы зависят только от резонансной частоты, а не от типа материала. Поэтому альтернативный подход для получения аналогичных плазмонных эффектов, наблюдаемых при рассеянии света металлическими частицами, заключается в использовании диэлектрических частиц с высоким показателем преломления. В случае материалов без потерь и немагнитных материалов их рассеивающие свойства зависят от размерного параметра $x = 2\pi R/\lambda$, где R - радиус частицы, λ - длина волны падающего света. При фиксированном размерном параметре разница между металлическими и диэлектрическими частицами заключается в знаке диэлектрической проницаемости, которая отрицательна для первых. В этом случае в небольших металлических частицах ($x < 1$) могут возникать локализованные поверхностные плазмонные резонансы, вследствие колебаний свободных электронов на поверхности материала, причем только электрического типа - дипольные, квадрупольные и т. д. 1.2(а,в), а резонансы магнитного типа из-за сильно затухающего электрического поля внутри частицы исчезающе малы.

Примечательно, что для показателей преломления n выше определенного значения существует четко установленная последовательность магнитных и электрических резонансов, которая показывает, что при $n > 2$ положение всех мультипольных резонансов точно определено и соответствует фиксированному отношению длины волны внутри частицы к ее геометрическому радиусу $((\lambda/n)/(2R))$. Эффективность рассеяния всех мультиполей также увеличивается с увеличением n .

Как видно из рисунка 1.2(д) в металлической структуре возбуждение магнитного диполя **B** возможно при определенной неэлементарной геометрии, в отличие от диэлектрических частиц простой формы, в которых может наблюдаться как электрический так и магнитный резонанс. Исходя из точного решения Ми для рассеяния света сферической частицей, существует определенная область параметров, в которой может быть достигнут эффективный магнитный дипольный резонанс. Магнитно-дипольный резонанс возбуждается, когда длина волны света λ_0 внутри частицы с показателем преломления n становится сравнимой с диаметром частицы $D \approx \lambda_0/n$. В результате возникает сильная связь с падающим излучением — поляризация электрического поля, находящаяся в противофазе на противоположных границах сферы приводит к токам сме-

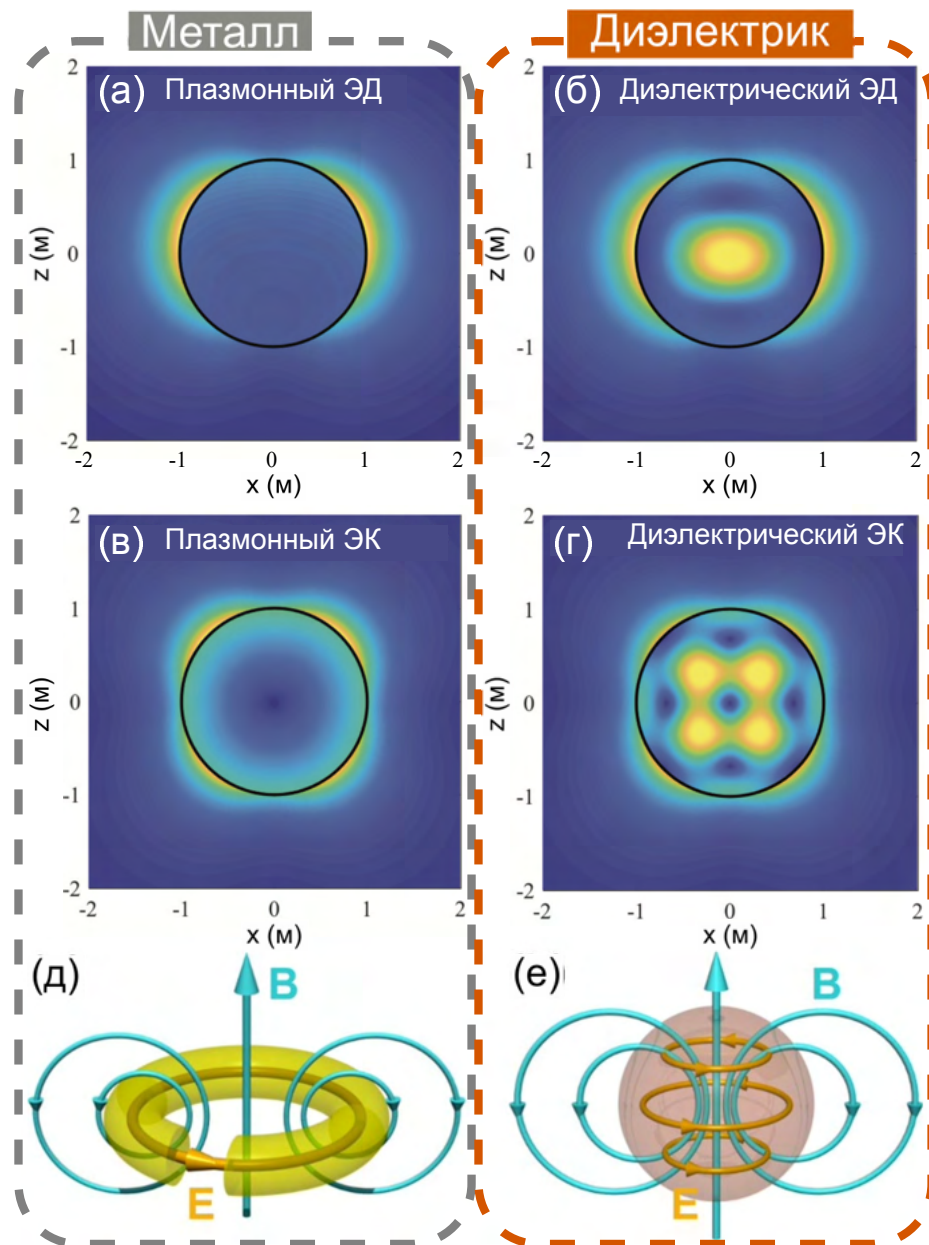


Рисунок 1.2 — Амплитуда распределения рассеянного электрического поля для сферы с размерным параметром $x = 0.75$ при: (а) $\varepsilon_1 \approx -3.5$, (б) $\varepsilon_1 \approx -1.754$, (в) $\varepsilon_1 \approx 32.9$, (г) $\varepsilon_1 \approx 57.93$. Эти резонансы соответствуют первым двум плазмонным и диэлектрическим резонансам, а именно электродипольному (а,б) и электроквадрупольному (в,г) [24]. Магнитный дипольный резонанс и схематическое распределение электрического и магнитного полей внутри (д) металлического резонатора с разорванным кольцом и (е) диэлектрической наночастицы с высоким показателем преломления [25].

щения \mathbf{E} из-за проникновения поля и задержки фазы внутри частицы, которые в свою очередь порождают магнитный диполь в середине частицы (рис. 1.2(е)).

Теоретические работы с возможными реалистическими материалами для магнито-оптического отклика появились 20 лет назад в начале для ТГц и инфракрасного диапазонов, затем через пару лет для видимого диапазона. В это же время появляются первые экспериментальные работы, демонстрирующие магнитный отклик диэлектрических частиц для СВЧ, дециметрового и среднего инфракрасного диапазонов. А первая экспериментальная работа по демонстрации магнитного отклика диэлектрической частицы в видимом спектральном диапазоне вышла только чуть больше 10 лет назад [25].

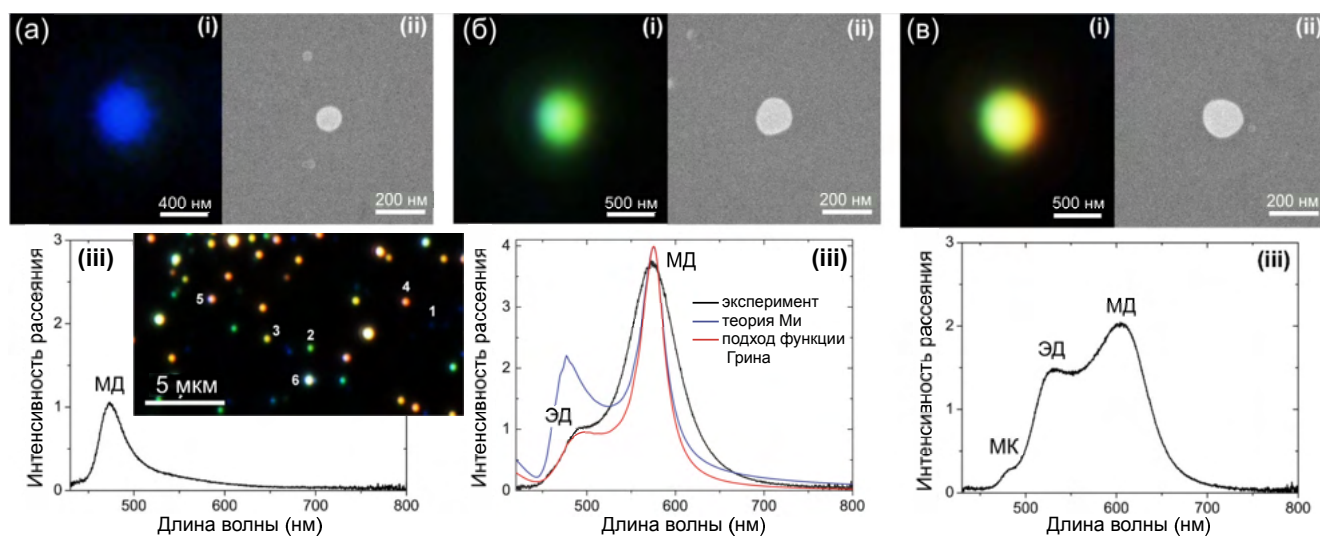


Рисунок 1.3 — Оптический магнитный отклик и примеры резонансных кремниевых наночастиц. (а-в) Изображения с темнопольного оптического микроскопа (вверху слева панель (i)), изображения с растрового электронного микроскопа (вверху справа панель (ii)) и спектры темнопольного рассеяния (внизу панель (iii)) сферических наночастиц Si с диаметром (а) 100 нм, (б) 140 нм и (в) 180 нм. Вставка на панели (а) — изображение с темнопольного микроскопа вид сверху.

В этой работе [25] авторы выбрали полупроводник Si, основываясь на теоретических работах, где показано, что наночастицы кремния размером порядка 150 нм должны иметь сильный магнитный и электрический отклики в видимом диапазоне. Кроме того, данный материал в видимом диапазоне имеет достаточно высокий показатель преломления, а поглощение при этом еще не очень большое (значительное возрастание поглощения наблюдается для частот > 750 ТГц, то есть меньше 400 нм, при это показатель преломления тоже значительно падает). Наночастицы Si различных размеров были изготовлены методом фемтосекундной лазерной абляции кремниевой пластины.

На рисунке 1.3 показан оптический магнитный отклик резонансных кремниевых наночастиц в темнопольном оптическом микроскопе и спектры темнопольного рассеяния, демонстрирующие фундаментальные моды диэлектрической частицы в видимом спектральном диапазоне. На вставка панели (а) с изображением в темнопольном микроскопе, номерами 1, 2, 3 отмечены частицы (а), (б) и (в) соответственно.

Также авторы используя теорию рассеяния Ми провели теоретический анализ экспериментальных данных для сферических частиц в свободном пространстве. И получили хорошее согласие со всеми наблюдаемыми резонансами на основе коэффициентов рассеяния. Один пример расчетов представлен на рис. 1.3(б панель (iii) синяя кривая). При этом было также проведено исследование влияния подложки на рассеяние света для наночастицы размером 140 нм, для которой наблюдаются как электрический дипольный резонанс, так и магнитный дипольный, и показано, что наличие подложки приводит к красному смещению электрического дипольного резонанса и значительному подавлению интенсивности рассеяния (по отношению к решению теории Ми в свободном пространстве), в то время как магнитный дипольный резонанс практически не изменяется. Это связано с тем, что электрический диполь излучает преимущественно в подложку, а магнитный диполь излучает преимущественно в свободное пространство, в результате чего влияние подложки для магнитного диполя нивелируется. Наличие подложки можно учесть с помощью подхода диадической функции Грина (рис. 1.3(б панель (iii) красная кривая)), такие расчеты дают очень хорошее согласие с экспериментальными данными.

Эффективные магнитные дипольные резонансы в диэлектрических частицах с высоким показателем преломления могут быть достигнуты не только для сфер, но и для других геометрий, дисков, цилиндров, колец и иных геометрий (средняя часть рисунка 1.1 иллюстрирует рассеяние света при освещении плоской волной полупроводникового нанодиска и возбуждении электрического и магнитного резонансов). Это позволяет создавать разнообразные структуры с желаемым спектральным положением резонансов. Так например, в силу того, что при выборе диска в качестве формы частицы можно изменять 2 его геометрических параметра независимо, то спектральные положения электрического и магнитного дипольного резонанса можно тоже настраивать независимо, что позволяет например перекрывать спектры на одной частоте.

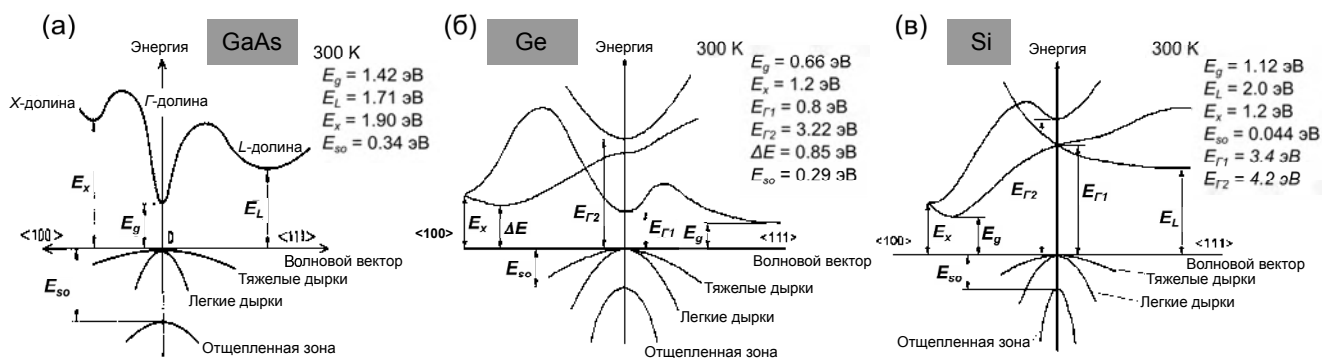


Рисунок 1.4 — Зонная структура полупроводников [26]. (а) Прямозонного арсенид галлия (GaAs). (б) Непрямозонного германия (Ge). (в) Непрямозонного кремния (Si).

Помимо кремния [27], хорошими материалами для резонансов Ми типа являются полупроводники IV и III-V групп с показателем преломления выше 2, так как они имеют схожие оптические свойства в зависимости от их поглощения и показателя преломления в определенном диапазоне длин волн. Арсенид галлия (GaAs), AlGaAs, германий (Ge) [28] позволяют возбуждать резонансы в видимом и ИК-диапазонах, теллур (Te), PbTe, и такой полярный кристалл как SiC в среднем ИК-диапазоне. Зонная структура некоторых полупроводников представлена на рис. 1.4.

Метаповерхности — плоские оптические элементы состоящие из плотного высокоупорядоченного массива сильно рассеивающих металлических или полупроводниковых наночастиц, которые могут обеспечивать локальные изменения амплитуды, фазы или состояния поляризации световых волн [29]. Такие массивы периодически расположенных наночастиц [30; 31] зарекомендовали себя как перспективная альтернатива различным элементам оптики, в том числе нелинейной оптики 1.5(а). Такими примерами могут служить дефлекторы [32; 33] 1.5(а), поляризационные элементы [31] 1.5(б), линзы [7; 34] 1.5(в), голограммы [35; 36] и т.п. Резонансные фотонные наноструктуры, ставшие новой платформой в нелинейной оптике, демонстрируют усиленный нелинейный отклик и эффективное преобразование частоты.

Нелинейно-оптические эффекты

В общем случае сдвиг электронов молекул вещества в достаточно большом внешнем электрическом поле, сравнимым с внутренним полем E_0 , но при $E/E_0 < 1$, и результирующий отклик объемного материала на такое воздействие могут быть описаны вектором поляризации $\mathbf{P} = \mathbf{P}^L + \mathbf{P}_i^{\text{NL}}$, имеющим как линейный \mathbf{P}^L , так и нелинейные члены \mathbf{P}^{NL} более высокого порядка. При этом поляризация \mathbf{P} является функцией внешнего электрического поля \mathbf{E} и полностью описывает отклик среды на действие этого поля.

$$\begin{aligned}
 P^L(\omega) &= \varepsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)}(\omega) E_j(\omega), \\
 P^{\text{NL}}(\omega_p) &= \varepsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_p, \omega_q, \omega_r) E_j(\omega_q) E_k(\omega_r) + \\
 &+ \varepsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_p, \omega_q, \omega_r, \omega_s) E_j(\omega_q) E_k(\omega_r) E_l(\omega_s) + \dots,
 \end{aligned} \tag{1.1}$$

где \mathbf{E} — локальное поле, ε_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума, $\hat{\chi}^{(1)}$ — тензор линейной восприимчивости среды, $\hat{\chi}^{(n)}$ — тензор нелинейной восприимчивости n -ого порядка, которые связаны с микроскопической структурой среды и определяются её физическими свойствами. С увеличением напряженности поля отклик материала становится нелинейным, вклад членов $\hat{\chi}^{(2)}:\mathbf{E}\mathbf{E}$, $\hat{\chi}^{(3)}:\mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E}$ и высших порядков возрастает и наблюдаются различные нелинейно-оптические эффекты такие как, например, эффект Керра, генерация второй, третьей гармоники [37] и много других интересных явлений [38; 39]. Кроме того, стоит отметить, что нелинейные эффекты возникают не только из-за движения электронов под действием мощного электрического поля, но и из-за взаимодействиями с акустическими фоновыми, спиновыми волнами и подобного рода движениями среды.

Конфигурационные оптические резонансы, возбуждаемые в метаповерхностях играют важную роль в области наноразмерной нелинейной оптики, так как резонансные эффекты могут на порядки усиливать электромагнитные поля внутри нелинейных материалов, таким образом значительно повышая эффективность нелинейного взаимодействия света с веществом.

Применение метаповерхностей в различных приложениях

Для большинства потенциальных применений метаповерхностей, особенно в нелинейном случае и в случае перестраиваемых метаповерхностей, требуются острые спектральные особенности и сильные локальные электрические поля. Для выполнения этих условий широко используются резонансы типа Ми [40], которые были впервые экспериментально продемонстрированы на сферических частицах с высоким показателем преломления [25], а затем и для других форм, например частиц в форме диска [30; 41].

Резонансы типа Ми в одиночных диэлектрических наночастицах обеспечивают высокую локализацию поля и большие значения добротности, что может быть использовано для приложений, требующих сильного резонансного отклика и значительного усиления взаимодействия света с веществом.

Благодаря большому количеству исследований роли нелинейного магнитного отклика в оптике в 2014 году было продемонстрировано повышение эффективности генерации гармоник с использованием нового типа оптически магнитных наноструктур [42] (рис. 1.5(a,i)). При этом использовались полупроводниковые наночастицы кремния, обладающие как большим показателем преломления, так и высокой объемной восприимчивостью третьего порядка. Как уже отмечалось выше, в наночастицах кремния возможно возбуждение мод типа Ми [43], включая фундаментальную магнитную дипольную моду (рис. 1.2 и 1.3). Измеренные линейные спектры подтвердили эффективное возбуждение МД-моды с добротностью порядка 10 в кремниевых нанодисках на длине волны накачки. Было экспериментально продемонстрировано значительное усиление генерации третьей гармоники (ГТГ) для одиночных кремниевых нанодисков (диски с большим периодом: $p = 2.85$ мкм при диаметре диска $d = 0.36$ мкм), изготовленных из пластины кремний-на-изоляторе. Нанодиски освещались интенсивным ИК фемтосекундным лазерным импульсом в районе центральной длины волны МД резонанса. В ходе эксперимента нанодиски возбуждались через подложку, и генерируемый сигнал ТГ собирался в геометрии на пропускание. С помощью методов микроскопии ГТГ и спектроскопии ГТГ было показано, что отклик УФ-излучения сгенерированной ТГ от кремниевых нанодисков преобладает над ТГ от объемного кремния. Анализ передаваемого сигнала

третьей гармоники показал, что резонансный отклик ГТГ от кремниевого нанодиска почти в 10 раз превышает сигнал ГТГ от подложки. Относительная плотность дисков на подложке очень важна для более высокого выхода излучения ТГ, поэтому был также рассмотрен массив нанодисков с меньшим периодом: $p = 0.8$ мкм при диаметре диска $d = 0.5$ мкм. При этом резонансный отклик ГТГ от плотного массива кремниевых нанодисков примерно в 100 раз превысил сигнал ГТГ от подложки. При этом максимальная эффективность преобразования ИК-сигнала в видимый для массива дисков достигла значений 10^{-7} и ограничивается только двухфотонным поглощением в подложке. Кроме того, низкие собственные потери нанодисков кремния позволили достичь такой высокой эффективности преобразования, что генерируемый сигнал третьей гармоники в случае массива кремниевых нанодисков можно наблюдать даже невооруженным глазом.

Эффективность ГТГ в аналогичных кремниевых нанодисках, но при электродипольном резонансе была рассмотрена и сопоставлена с этими результатами в случае МД резонанса [11], и обнаружено, что МД-резонанс обеспечивает более высокую эффективность преобразования, что соответствует теоретическим предсказаниям [44]. Это связано с бóльшим усилением локального поля в магнитных резонансах, что делает их более подходящими для эффективной ГТГ, а приведение нанодисков в структуру олигомеров обеспечивает еще бóльшую эффективность и добавляет еще одну степень свободы при реализации в приложениях [45].

Диэлектрические метаповерхности могут значительно улучшить нелинейное преобразование как в случае нелинейных процессов третьего порядка, так и второго порядка, кроме того, такие структуры обладают оптическим магнетизмом, не претерпевают собственные потери в инфракрасном диапазоне и совместимы с КМОП.

Другим примером использования нелинейных метаповерхностей может служить демонстрация нелинейного зеркала на основе генерации гармоник в диэлектрических метаповерхностях. Нелинейные зеркала, основанные на генерации гармоник, обычно можно разделить на два класса: один класс, когда основной сигнал полностью проходит через структуру, а гармоника излучается только в обратном направлении; и 2ой — когда основной сигнал полностью отражается от метаповерхности, а гармоника излучается только в прямом на-

закодировать необходимый фазовый профиль в метаповерхности для обеспечения желаемых функциональностей. Дефлекторы луча — являются одним из примеров функциональных возможностей управления фазой, которые легко достигаемы при помощи метаповерхностей.

В работе [33] исследовалась кремниевая метаповерхность для обеспечения эффективного отклонения луча и управление фазой видимого света (рис. 1.5(a,iii)). Был использован тонкопленочный кристаллический кремний в качестве материала метаповерхности для работы в видимом свете и демонстрации работы с высокой эффективностью для длины волны 532 нм. Кроме того, для создания метаповерхности была использована технология переноса слоев, при которой слои устройства из кристаллического кремния с пластины кремний на изоляторе (SOI) переносились на прозрачную кварцевую подложку. Такая технология упрощает изготовление по сравнению с сопоставимыми устройствами на основе Si_3N_4 или TiO_2 . В эксперименте было получено полное регулирование фазы в 2π , независимая от поляризации эффективность передачи 71% при эффективности дифракции 95% в желаемый порядок дифракции, а соответствующая эффективность отклонения составила 67% (определяется как произведение эффективности дифракции и эффективности передачи в желаемый порядок дифракции). Ограничивающими факторами при этом являются поглощение в кремнии, коэффициент отражения границы раздела и дифракция в другие порядки.

Аналогичный пример дефлектора луча, но уже для нелинейного случая был рассмотрен в работе [32]. Нелинейный дефлектор луча, устройство, которое генерирует луч света на длине волны гармоники и распространяющийся под углом к направлению распространения накачки (рис. 1.5(a,iv)). Был предложен новый подход для достижения нелинейного управления волновым фронтом с использованием высокоэффективных нелинейных диэлектрических метаповерхностей. В работе рассматривался метод, основанный на обобщенном принципе Гюйгенса, распространённом на нелинейную оптику, позволяющий создавать произвольные фазовые градиенты и волновые фронты в нелинейной оптике посредством возбуждения электрических и магнитных резонансов типа Ми. Была впервые спроектирована и экспериментально продемонстрирована нелинейная полностью диэлектрическая метаповерхность, способная генерировать сигналы третьей гармоники с точным управлением волнового фронта. Была продемон-

стрирована способность контролировать направленность сигнала третьей гармоники и достижение высокого соотношения излучения нелинейного сигнала “вперед-назад” (более 90% ТГ генерировалось в прямом направлении, а ГТГ в обратном направлении подавлялось). Для демонстрации возможности нелинейного управления волновым фронтом, было изготовлено две метаповерхности: нелинейный дефлектор луча и нелинейный фокусирующий генератор вихревого луча. Вторая метаповерхность представляет собой пример более сложного управления волновым фронтом, это структура, которая генерирует фокусирующий пучок ТГ с орбитальным угловым моментом $m = 1$. Метаповерхности представляют собой набор различных эллиптических наностолбиков аморфного кремния на стеклянной подложке, которые создают суммарный градиент фазы покрывающий весь диапазон фаз $0-2\pi$. В случае нелинейного дефлектора почти идеальное отклонение луча ТГ наблюдается под углом $\theta = 5.6^\circ$ относительно направления накачки с 92% дифракционной эффективностью в прямом направлении, при этом вдоль направления накачки (т. е. в нулевой порядок дифракции) ТГ практически не генерируется.

Помимо структурирования материалов, одним из способов для повышения эффективности нелинейных эффектов является использование альтернативных и инновационных платформ таких как гибридные структуры. Нелинейная метаповерхность, сочетающая массивы плазмонных наночастиц с многослойной квантоворазмерной наноструктурой (multiquantum-well структура с множественными квантовыми ямами (МКЯ)¹), поддерживающей межподзонами переходы, обеспечивает эффективную связь света с межподзонами переходами в МКЯ с эффективностью ГВГ порядка 2×10^{-6} при интенсивности накачки всего 15 кВт см^{-2} , демонстрируя усиление на порядки величины [47] (рис. 1.5(a,v)). Использование плазмонных частиц и метаповерхности поверх МКЯ необходимо, чтобы обеспечить связь нормально падающего света с продольными электрическими полями внутри МКЯ, так как ограничивающим фактором использования МКЯ для нелинейного управления светом является то, что переходы поляризованы в направлении, перпендикулярном слоям, и поэто-

¹Структура с множественными квантовыми ямами (МКЯ) — это новый класс искусственных полупроводниковых сред, обладающие сильными объемными нелинейностями. МКЯ состоят из последовательности различных III-V полупроводниковых слоев, служащих набором потенциальных ям и барьеров для носителей заряда, движущихся в поперечном направлении. Электроны и дырки, заключенные в этих ямах, занимают дискретные энергетические уровни, которые можно точно спроектировать, контролируя толщину слоя с помощью современных технологий выращивания полупроводников. МКЯ позволяют использовать меньшие объемы для нелинейных процессов, значительно ослабляя требования к фазовому синхронизму [52].

му они недоступны для плоских волн при нормальном падении. Такие гибридные структуры из асимметричных наноантенн в виде золотых крестов поверх гетероструктуры МКЯ обеспечивают связь между фотонным и электронным резонансами, что приводит к рекордно высокой нелинейности второго порядка в среднем ИК-диапазоне спектра. Данная гибридная структура является еще одним примером нелинейного зеркала, но с нелинейностью второго порядка. Помимо удвоения частоты, подобная структура может быть разработана для генерации суммарной или разностной частоты, а также для различных процессов четырехволнового смешения.

Так например большое количество процессов параметрического смешивания, таких как ГВГ, ГТГ, генерация суммарной и разностной частоты, генерация четвертой гармоники, четырехволновое и шестиволновое смешивание, одновременно наблюдалось в метаповерхностях GaAs, при облучении двумя мощными лазерными импульсами разной длины волны [48]. Это возможно, так как в результате субволновой толщины метаповерхностей требования фазового синхронизма ослабляются, что позволяет протекать множественным нелинейным процессам с сопоставимой эффективностью в объемных средах. В этом случае метаповерхность представляла собой периодическую решетку III–V полупроводниковых резонаторов в виде наноцилиндров из трех слоев на полупроводниковой подложке: верхний — маска для травления SiO_x , представляющая собой экспонированный фоторезист, средний — слой GaAs, нижний слой — оксид $(\text{Al}_{0.85}\text{Ga}_{0.15})_2\text{O}_3$ с низким показателем преломления для изоляции среднего слоя GaAs от подложки GaAs. Резонансно усиленное смешение частот достигается за счет одновременного возбуждения магнитного дипольного и электрического дипольного резонансов Ми в наноцилиндрах GaAs. Когда два фемтосекундных луча накачки одновременно облучают метаповерхность GaAs с длинами волн, перекрывающимися и МД и ЕД резонансы, то можно обнаружить нелинейную генерацию 11 новых частот, таким образом, охватывая широкий спектральный диапазон от ультрафиолетового до ближнего инфракрасного (рис. 1.5(a,vi)). Новые генерируемые частоты можно разделить на две группы. Первая группа возникает при облучении одного луча накачки — ГВГ (SHG: $2\omega_{1,2}$), ГТГ (THG: $3\omega_{1,2}$), генерация четвертой гармоники (FHG: $4\omega_1$) и фотолюминесценция (PL). Вторая группа сигналов появляется только при наличии и временном перекрытии двух накачек на разных частотах — генерация суммар-

ных частот (SFG: $\omega_1 + \omega_2$), шестиволновое смешивание (SWM: $4\omega_1 - \omega_2$) и три пика, соответствующие процессам четырехволнового смешения (FWM: $2\omega_1 + \omega_2$; $\omega_1 + 2\omega_2$; $2\omega_2 - \omega_1$). Хочется отметить, что нелинейно генерируемые сигналы измерялись, когда угол сбора в дальней зоне был оптимизирован для интенсивности SFG, так как спектр SFG находится примерно посередине полученного спектрального диапазона генерации новых частот. При этом наблюдалось значительное увеличение интенсивностей для генерируемых частот, когда углы сбора оптимизируются индивидуально. Это указывает на разнообразие профилей излучения в дальней зоне для различных нелинейных сигналов, что существенно ограничивает измеряемую эффективность преобразования. Более того, большинство нелинейно генерируемых частот лежат выше запрещенной зоны GaAs и, следовательно, подвержены сильному поглощению. Эффективность преобразования можно повысить, используя материалы с большей запрещенной зоной, такие как AlGaAs, для уменьшения потерь на поглощение, или путем изготовления резонаторов большего размера, чтобы резонансы Ми возникали на более длинных волнах. Таким образом данная метаповерхность продемонстрировала свойства смесителя частот, то есть нелинейного устройства, которое объединяет электромагнитные волны для создания волн на новых частотах. Смесители являются часто используемыми элементами современной радиочастотной техники и обработки микроволновых сигналов, а разработка универсальных смесителей оптических частот остается сложной задачей и требует дальнейших исследований.

Метаповерхности могут также использоваться в качестве поляризационных элементов планарной оптики, так как помимо контроля фазы, диэлектрические наночастицы позволяют управлять поляризацией света посредством двулучепреломления. Причем, если обычный двулучепреломляющий отклик оптических материалов возникает из-за анизотропии их кристаллических решеток, то наночастица, изготовленная из изотропного материала, может изменять поляризацию света благодаря своей анизотропной форме, поскольку ее спектр мультипольного рассеяния становится поляризационно-зависимым (так называемое двойное лучепреломление, вызванное анизотропией формы). Подобно оптическому магнетизму, двулучепреломление наноразмерных объектов зависит от их геометрии, а не свойств материала. Массив анизотропных наночастиц может изменять поляризацию света желаемым образом. Возможность управления

поляризационным вращением демонстрирует волновые пластинки и векторные q-пластины [6; 49]. В работе [49] был продемонстрирован новый подход к созданию диэлектрических метаповерхностей, работающих в широкой полосе частот, который возможен при перекрытии вкладов рассеяния нескольких мультиполей (как электрических, так и магнитных) составляющих наночастиц, обеспечивая таким образом поляризационный и фазовый контроль при высоком пропускании в широкой полосе частот. При этом демонстрируются метаповерхности для эффективного управления поляризацией, включая полу- или четвертьволновые пластины и q-пластины векторного пучка². Такие структуры в эксперименте демонстрируют эффективность передачи 90%, а эффективность преобразования поляризации 99% в нескольких диапазонах телекоммуникаций (рис. 1.5(б,i)). Экспериментальная энергоэффективность ниже 100% прогнозируемой теоретически из-за несовершенства изготовления структур. Наночастицы метаповерхности представляют собой ассиметричные наностолбики, изготовленные из поликристаллического кремния на кварцевой подложке. Полуволновая пластинка состоит из наночастиц, организованных в квадратную решетку. Q-пластина состоит из таких же наночастиц, но собранных в гексагональную решетку с такой же плотностью частиц на единицу площади. Однако пространственная ориентация наночастиц пространственно меняется поперек q-пластины. Четвертьволновая пластинка состоит из наночастиц другого поперечного размера и расположенных в квадратной решетке такого же периода как и в случае полуволновой и q-пластин.

В работе [6] также использовалась аналогичная метаповерхность из ассиметричных наностолбиков аморфного кремния на стекле в качестве высокопроизводительного преобразователя линейной поляризации в азимутальную и радиальную для определенной рабочей длины волны (рис. 1.5(б,ii)). При этом было показано, что такую структуру можно спроектировать для получения преобразования поляризации при одновременной фокусировке света. Кроме того, с помощью метаповерхности можно фокусировать циркулярно поляризованный свет либо в пятно, ограниченное дифракцией, либо в фокус в форме пончика, в

²Полуволновая пластинка — это элемент, который добавляет разность фаз π между двумя основными линейными поляризациями света. Он используется для поворота поляризации до 90° . Четвертьволновая пластинка представляет собой элемент, который добавляет разность фаз $\pi/2$ между двумя основными линейными поляризациями света. Используется для преобразования поляризации между линейной, круговой и промежуточной эллиптической поляризацией. Q-пластины используются для преобразования линейно поляризованного света в радиально или азимутально поляризованный.

зависимости от направленности поляризации падающего излучения. Комбинируя наночастицы различной формы, можно создавать субволновые градиенты поляризации высокого разрешения, чего трудно достичь с помощью обычных анизотропных кристаллов или даже с помощью жидкокристаллических модуляторов света.

Управление фазой и поляризацией с помощью планарных метаустройств позволяет использовать такие структуры также в системах визуализации например в качестве металинз, голограмм [34; 50; 51]. Кроме того, одним из наиболее явных преимуществ металинз перед обычными является их многофункциональность, то есть разный режим работы в зависимости от падающего света как было продемонстрировано в работе [6]. Более того с помощью металинз оказалось возможным получить очень большое поле зрения, что недостижимо с помощью традиционной объемной оптики [53]. Одной из основных проблем металинз является сильные хроматических aberrаций и таким образом работа на определенных дискретных длинах волн. И хотя монохроматические металинзы все равно представляют большой интерес для некоторых применений, но ахроматические металинзы могут быть гораздо более привлекательными с точки зрения универсальности в приложениях для обработки изображений, так как рабочая полоса пропускания является важным параметром для многих типов оптических устройств. В работе [34] была продемонстрирована отражающая металинза с ахроматическим откликом, у которой фокусное расстояние остается неизменным при небольшой ширине полосы пропускания 60 нм в видимом диапазоне (рис. 1.5(v,i)). Была получена числовая апертура 0.2 и дифракционная эффективность 15%. Металинза состояла из наностолбиков диоксида титана (TiO_2) (с квадратным поперечным сечением) на металлическом зеркале с тонким слоем диоксида кремния. С помощью оптимизационного алгоритма были подобраны параметры наностолбиков, одновременно обладающих одинаковыми фазами, но различной дисперсией на желаемых длинах волн. Также была показана металинза с обратной хроматической дисперсией, в которой фокусное расстояние увеличивается с увеличением длины волны, в отличие от обычных дифракционных линз.

Демонстрация подобной ахроматической металинзы, наряду с разработкой металинз с обратной хроматической дисперсией, показывает, что визуализация с помощью металинз может преодолеть ограничения традиционной ди-

фракционной оптики, а дальнейшие исследования в этой области позволят разработать новые компоненты с желаемой дисперсией. Так например, последовательно соединяя металлинзы с противоположной дисперсией, можно реализовать ахроматические линзы с большей полосой пропускания. Кроме того, используя подобную конструкцию, но другие материалы, например с более высоким показателем преломления, такой как фосфид галлия (GaP) можно получить ахроматические пропускающие металлинзы и металлинзы с более высокой полосой пропускания.

Метаповерхности могут также успешно применяться в качестве голограмм с широкой полосой работы. Метаголограммы заслуживают особого внимания, поскольку они основаны на сложной разработке волнового фронта и, следовательно, демонстрируют потенциал метаоптических устройств. В работе [50] были продемонстрированы голограммы, состоящих из субдифракционных решеток кремниевых наностолбиков, каждая из которых поддерживает несколько электрических и магнитных резонансов Ми (рис. 1.5(v,ii)). Наностолбики имеют фазовую задержку, зависящую от размера, что позволяет добиться изменения фазы на 2π по всей голограмме с изменением более 2π по всей рабочей спектральной полосе пропускания. Метаголограммы демонстрируют эффективность дифракции более 99% при эффективности пропускания более 90% на длине волны 1600 нм, рабочая спектральная полоса пропускания составляет 375 нм. Благодаря такой концепции разработки сложного волнового фронта и мультипольного резонансного отклика метаповерхностей получены высокопрозрачные кремниевые голограммы, которые позволяют кодировать изображения в оттенках серого цвета с высоким разрешением.

Сочетание управления фазой и поляризацией приводит к разработке новых типов оптических элементов, таких как линзы с фокусом, переключаемым по поляризации [51] или голограммы с поляризационно-зависимым восстановленным изображением [6; 54]. Реализация подобных многофункциональных систем визуализации может быть получена путем последовательного соединения оптических компонентов. Но обычные системы визуализации при этом будут состоять из множества оптических элементов, включая поляризаторы, волновые пластины, что приводит к усложнению такой системы и ограничивает ее интеграцию в небольшие объемы. В работе [51] были продемонстрированы металлинзы с фокусом, меняющимся в зависимости от поляризации падающего

света (рис. 1.5(в,iii)). В каждой такой металинзе две разные функции фокусировки закодированы в одном оптическом элементе. Для кодирования фазы, зависящей от поляризации использовалась двумерная решетка из ассиметричных нанопроволок (высоких овальных наностолбиков) аморфного кремния. Высота наностолбиков была порядка 1 мкм с радиусом до 100 нм. Первая металинза из нанопроволоки имеет разное фокусное расстояние для каждого состояния линейной поляризации. Две закодированные функции линзы имеют одну и ту же оптическую ось, но разные фокусные расстояния для разных поляризаций (180 и 120 мкм). Полученное увеличение при этом составило 1.12 и 0.59. Вторая линза из нанопроволок имеет разные оптические оси для каждого состояния линейной поляризации: фокусное расстояние составляет 150 мкм для обеих поляризаций, но оптическая ось смещается от центра на 3 мкм по вертикали в зависимости от падающей поляризации. Благодаря такому контролю фазы и поляризации разные волновые фронты могут быть встроены в одну метаповерхность и по отдельности извлекаться при разных поляризациях. Подобные методы поляризационного мультиплексирования особенно полезны в микрооптических системах формирования изображения, где обычно сложно динамически регулировать свойства изображения.

1.1.2 Активная нанофотоника

Одной из слабых сторон большинства метаповерхностей является их фиксированные оптические свойства после изготовления, что накладывает ограничения на использование метаповерхностей в ряде приложений. Поэтому было приложено не мало усилий для поиска решения данной проблемы. Большое количество недавних исследований были посвящены так называемым активным или настраиваемым метаповерхностям, где внешнее воздействие изменяет свойства структур. Например механическое [55], электрическое [56; 57] или термическое воздействие [58], оптическое возбуждение [12; 59; 60], магнитооптическое управление [61–63], использование материалов с фазовым переходом [64; 65] или химических методик [66], а также гибридных систем, таких как жидкие

кристаллы [67; 68], позволяет перестраивать начальное спектральное положение резонансов метаповерхностей.

Плоские неметаллические структуры с возможностью управления их свойствами могут реализовать большое количество важных применений, таких как управление лучом, оптический зум, голографические дисплеи, а также позволяют достичь увеличения скорости передачи и обработки информации в телекоммуникационных системах. Возможность динамической настройки может быть достигнута различными способами.

1. Механическая деформация — создание геометрических изменений это один из прямых подходов для достижения настраиваемого отклика метаповерхностей. Применяется несколько различных методов, например помещение структуры в упругий полимер при растяжении или изгибе которого изменяется межэлементное расстояние, таким образом приводящее к изменению оптического отклика [69].

2. Термическое воздействие — при наличии ненулевой мнимой части показателя преломления внутри материалов под действием света происходит поглощение, в результате чего изменяется температура системы. Повышение температуры под действием падающего света или при помещении в горячую среду приводит к изменению показателя преломления материала, приводящее к изменению оптического отклика (термооптический эффект). Взаимодействие между оптическим и тепловым откликом в наноструктурах может быть использовано для активного управления физическими свойствами системы [70].

3. Электрический — с помощью электрического воздействия. Одним из основных механизмов электро-оптической модуляции — это электрооптический эффект, когда при приложении электрического поля изменяется показатель преломления материала. Эффект Керра, представляет собой один из примеров электрооптических эффектов и описывает изменение показателя преломления материала под воздействием сильного электрического поля. Данный эффект является одним из главных инструментов для управления оптическими свойствами материалов. Кроме того, электрическая модуляция позволяет достигать высоких скоростей переключения (см. рис. 1.6), что особенно важно для оптических коммуникаций.

4. Жидкие кристаллы³ — резонансы типа Ми очень чувствительны к оптическим свойствам внешней среды, таким образом легко изменить оптический отклик системы нанорезонаторов путем изменения показателя преломления окружающей среды. Если поместить резонансную структуру в ЖК, то изменение ориентации или фазы жидких кристаллов оказывает сильное влияние на её оптические характеристики.

5. Фазоизменяющиеся материалы — материалы с фазовым переходом могут быть использованы для изменения оптических свойств и соответствующего управления физическими свойствами системы при фазовом переходе [71]. Так например в материале VO_2 фазовый переход может перевести материал из диэлектрической фазы в металлическую, а в случае сплавов GeSbTe — из кристаллической структуры в аморфный материал. Изменение оптических свойств можно наблюдать, когда фазовый материал переключается между аморфной и кристаллической фазами под действием термического, электрического или оптического воздействия.

6. Полностью оптическое переключение — изменения свойств среды (индуцированные изменения показателя преломления материала [72]), в результате которых происходит модификация света, вызваны падающим излучением накачки. Множество видов модуляции света, которые отличаются способами внешнего воздействия, начиная от прямого механического воздействия на среду, термического, электрического и заканчивая оптическим возбуждением, характеризуются различными показателями. В качестве наиболее важных параметров модуляторов света можно указать скорость модуляции (скорость переключения между состояниями “включено-выключено”), потребляемую мощностью и глубину модуляции (отношение сигнала в состоянии “включено-выключено”). Оптическое возбуждение может обеспечить самую высокую скорость модуляции среди перечисленных методов воздействия. Кроме того, одним из наиболее распространенных подходов к реконфигурации оптических свойств является генерация свободных носителей под действием излучения, наряду с изменением плотности свободных носителей посредством электрооптики.

Модуляция света может быть достигнута за счет реконфигурации и настройки резонансных структур. Для этого могут быть использованы процессы

³ЖК обладают оптическим двулучепреломлением, которое можно регулировать путем приложения внешнего электрического поля или за счет повышения рабочей температуры.

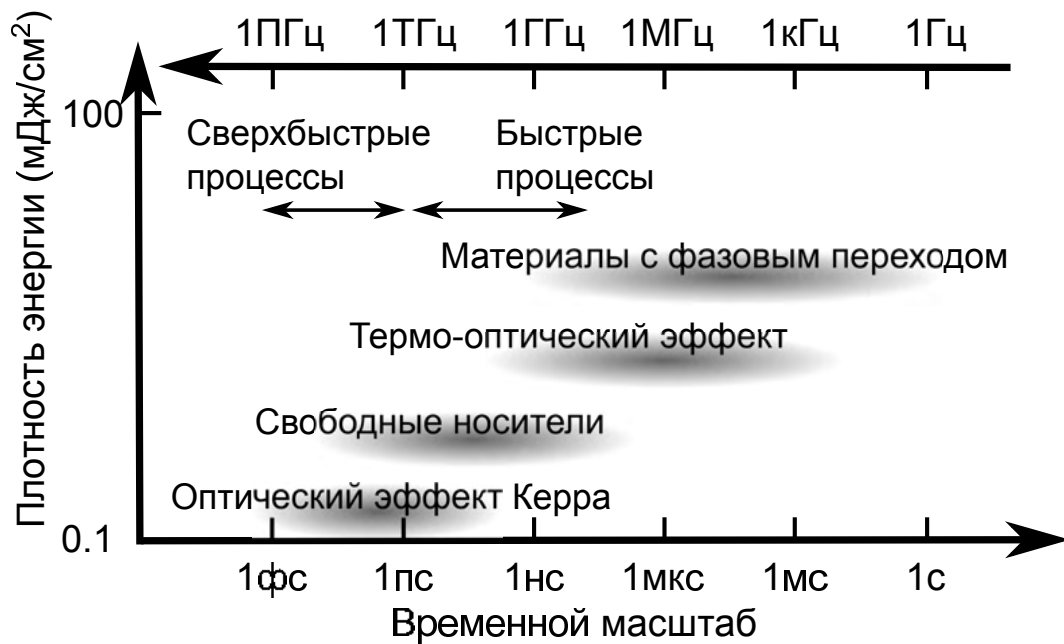


Рисунок 1.6 — Характерный временной масштаб и требуемое энергопотребление для различных оптических эффектов, приводящих к изменению показателя преломления материала.

изменения диэлектрической проницаемости под действием внешнего возбуждения, так как диэлектрическая проницаемость существенно влияет на характеристики света при его взаимодействии с веществом. В зависимости от задачи и требований конкретного приложения реконфигурация устройства может осуществляться с разным временным масштабом начиная от работы на кГц частотах, до приложений требующих больших частот модуляции в диапазоне ГГц. Эти требования будут определять материалы и механизмы, которые необходимо использовать для достижения надлежащих параметров и функций.

Среди многообразных способов модуляции, характеризующихся различным внешним воздействием, таким как механическое, термическое, электрическое или полностью оптическое возбуждение, последний метод обеспечивает самую быструю скорость модуляции и обеспечивает достаточную глубину модуляции при низких энергозатратах. При этом хотелось бы отметить, что электрооптические модуляторы все еще являются наиболее развитыми и более широко применяемыми в отличие от полностью оптических модуляторов. Комбинация оптических и электрических модуляторов способствует снижению энергопотребления, увеличению скорости производительности и уменьшению физических размеров устройств.

Оптическое возбуждение материала может быть вызвано разнообразными механизмами, которые имеют различную динамику, как медленную и быструю, так и сверхбыструю. В зависимости от природы механизма достигаемые скорости модуляции концептуально показаны на рис. 1.6 с требуемым энергопотреблением для обратимых процессов под действием оптического возбуждения. Под действием излучения небольшой интенсивности в диэлектриках происходит одно- или двухфотонное поглощение [73] и возникает оптический эффект Керра. Генерация свободных носителей в диэлектрических структурах возникает и становится значимой при достаточно высокой интенсивности падающего излучения или при эффективном процессе двух- и многофотонного поглощения, что приводит к более высоким плотностям электронно-дырочных пар. В случае металлов, основным механизмом является нагрев свободных носителей заряда, который влияет главным образом на мнимую часть диэлектрической проницаемости. При еще большем увеличении интенсивности возбуждения происходит значительное преобразование энергии в тепло и в материалах возникает температурная модуляция оптических свойств. В этой концепции рис. 1.6 большая интенсивность оптического возбуждения приводит к более сложным и медленным эффектам.

В предельном случае, когда резонансы метаповерхностей перестраиваются мгновенно, возникает новый класс эффектов, связанных с изменяющимися во времени свойствами метаповерхностей. В рамках этой концепции гармонические волны перестают быть решениями уравнений Максвелла и возникают такие эффекты, как преобразование частоты [74–76], ускорение фотонов [77], невзаимное отражение света, управление направлением излучения или его фокусировкой [78–80], которые невозможны в стационарных системах. Данные эффекты возникают аналогично эффектам в быстро генерируемой плазме [81; 82].

Несмотря на то, что во многих системах проявляется преобразование частоты фундаментальной составляющей из-за мгновенной временной модуляции свойств метаповерхности, исследования нелинейного отклика [83–86] еще не раскрыли возможность управления частотой света для нелинейно генерируемых волн. В свою очередь, нелинейный отклик является существенным в резонансных метаповерхностях благодаря локализации электромагнитных волн, что может привести к новым эффектам связанным с временной модуляцией

свойств среды. Кроме того, управление частотой волн в нелинейном случае имеет важное значение для аттосекундной физики и генерации высоких гармоник.

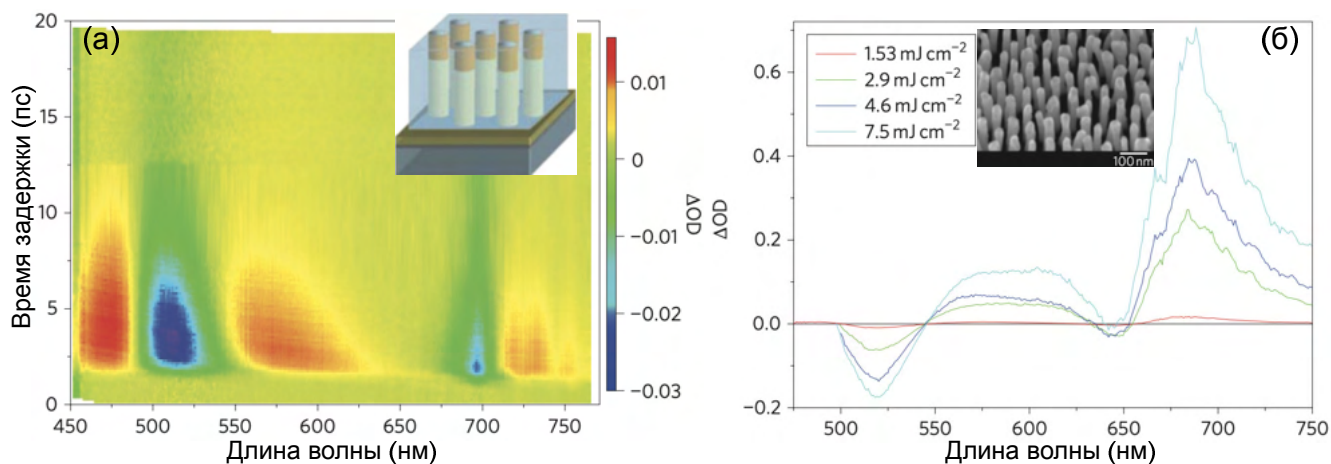


Рисунок 1.7 — (а) Дифференциальная экстинкция массива золотых стержней для ТМ-поляризованного зондирующего излучения при угле падения 20° . Длина волны накачки 465 нм; плотность энергии 0.7 мДж/см^2 . Вставка: Схема массива золотых наностержней, встроенных в матрицу из оксида алюминия. (б) Дифференциальная экстинкция для различных плотностей накачки. Вставка: Изображение массива наностержней, измеренное с помощью растрового электронного микроскопа. [1]

Исследования последних 15 лет показывают значимый прогресс в полностью оптическом переключении и модуляции с использованием плазмонных метаматериалов и метаповерхностей, демонстрируя перспективы активной плазмоники. Плазмонные материалы интересны для оптического переключения благодаря возможности настройки оптических свойств за счет плазмонных резонансов и их высокой чувствительности к показателю преломления материала и среды. Таким образом, изменение показателя преломления диэлектрической проницаемости материала или подложки приводит к модификации резонансов, а также к усилению нелинейного отклика.

Так например с помощью плазмонного метаматериала из золотых стержней была достигнута высокая модуляция пропускания порядка 80% в пикосекундном масштабе времени [1]. Это возможно благодаря тому, что использование металлов в качестве активной среды позволяет увеличить нелинейно оптический отклик за счет усиления электромагнитного поля вблизи границы металла, а также очень большой чувствительности плазмонных резонансов к диэлек-

трической проницаемости металла и окружающего диэлектрика. Кроме того, временное поведение таких структур достаточно быстрое.

В работе был использован плазмонный метаматериал, схема которого представлена на вставке рис. 1.7(а). Золотые наностержни размещены вертикально на стеклянной подложке, помещены в матрицу из оксида алюминия и имеют среднюю длину, диаметр и межцентровое расстояние 400 нм, 20 нм и 70 нм соответственно (на изображении образца в растровом микроскопе, вставка рис. 1.7(б), матрица из оксида алюминия предварительно удалена).

В данном плазмонном материале, так как стержни близко расположены друг к другу, в линейном отклике наблюдается 2 резонанса при освещении структуры со стороны подложки ТМ⁴ поляризованным излучением в диапазоне падающих углов 10-60°. Коротковолновый резонанс соответствует Т-моду (поперечный) и возникает из-за возбуждения в отдельных стержнях плазмонных резонансов вдоль короткой оси стержня. Данный резонанс наблюдается при всех углах падения излучения, включая нормальное падения, и в том числе в случае ТЕ поляризации. Длинноволновый резонанс соответствует L-моду (продольный) и возникает в результате сильной связи отдельных дипольных плазмонных мод, параллельных длинной оси наностержня, которые объединяются в поперечно-магнитные (ТМ) волны, поддерживаемые золотыми наностержнями. Ранее эти авторы показали, что такой продольный резонанс возможен при небольшом расстоянии между стержнями (< 150 нм). При переходе от больших расстояний между стержнями к небольшим, когда возможна сильная связь между стержнями, электрическое поле начинает локализовываться не на концах стержня, а внутри, перпендикулярно длинным осям стержня. Возникает квазиволна, распространяющаяся от стержня к стержню. Этот резонанс, вызванный нелокальностью, имеет сложную зависимость от угла падения света и, как и любой интерференционный процесс, является очень чувствительным к изменениям материала и геометрическим параметрам системы, что может быть использовано для полностью оптического переключения.

Нелинейный отклик такой структуры значительно усилен, так как электрическое поле в одной конфигурации внутри метаматериала влияет на поляризацию в другой конфигурации. При этом эффективная диэлектрическая прони-

⁴ТМ (Transverse Magnetic) — вектор электрического поля E, параллельный плоскости падения (p-поляризованная волна). ТЕ (Transverse Electric) — вектор электрического поля E, перпендикулярный плоскости падения (s-поляризованная волна).

цаемостью, зависящая от падающего излучения, задает нелокальный отклик. А нелокальность продольных мод в метаматериале наностержней приводит к аномально большим изменениям оптической плотности.

Были проведены измерения спектроскопии дифференциального затухания методикой накачка-зонд. Спектр дифференциального затухания $\Delta OD = -\log_{10}(T_{\text{вкл}}/T_{\text{выкл}})$ для ТМ-поляризованного зондирующего света при угле падения 20° , плотность энергии 0.7 мДж/см^2 . Где $T_{\text{вкл}}$ — пропускание образца в момент задержки τ после возбуждения излучением накачки, а $T_{\text{выкл}}$ — пропускание образца в основном состоянии (при $\tau \rightarrow \infty$), показан на рис. 1.7(а).

Динамика спектрального отклика, наблюдаемая на рис. 1.7(а), в случае Т-моды характерна для локализованной моды, для которой плазмонный резонанс перекрывает межзонные переходы. В свою очередь динамика L-моды демонстрирует поведение дисперсионного типа, обусловленное изменениями ширины линии и спектрального положения L-моды, которые также типичны для изолированных плазмонных резонансов в отсутствие сильного затухания из-за межзонного рассеяния. Стоит отметить, хотя изолированные плазмонные системы не демонстрируют никакой угловой зависимости дисперсионного поведения, L-мода демонстрирует резкие изменения в своем дифференциальном спектральном отклике в зависимости от угла падения.

Под действием излучения накачки возникает изменение диэлектрической проницаемости золота, обусловленное изменением температуры электронов. При этом, основной вклад в наблюдаемый нелинейный отклик вносит увеличение константы внутризонного поглощения, приводящее к изменению не только действительной, но и мнимой частей диэлектрической проницаемости золота $Im(\varepsilon_{\text{Au}})$. При этом в модуляцию ТМ-мод наиболее существенный вклад вносит увеличение мнимой части. Зависимость дифференциального затухания при увеличении интенсивности накачки показана на рис. 1.7(б) при времени задержки $\tau = 600 \text{ фс}$ и демонстрирует значительный вклад L-моды в модуляцию в результате более значительных изменений $Im(\varepsilon_{\text{Au}})$. Помимо большой модуляции полученной в районе L-моды (изменение $\Delta OD = 0.7$ соответствует изменению пропускания на величину порядка 80%), временной отклик L-моды быстрее Т-моды, благодаря дополнительному каналу релаксации в виде квази-волноводной моды, что важно для приложений.

В практических приложениях оптические потери металлов и выделение тепла в плазмонных наноструктурах препятствуют их работе и производительности. А с помощью использования диэлектрических метаповерхностей и метаматериалов, может быть достигнут другой подход к оптическому переключению и модуляции. Тем более, в этом случае аналогичное устройство будет работать практически без потерь и, кроме того, с меньшим энергопотреблением.

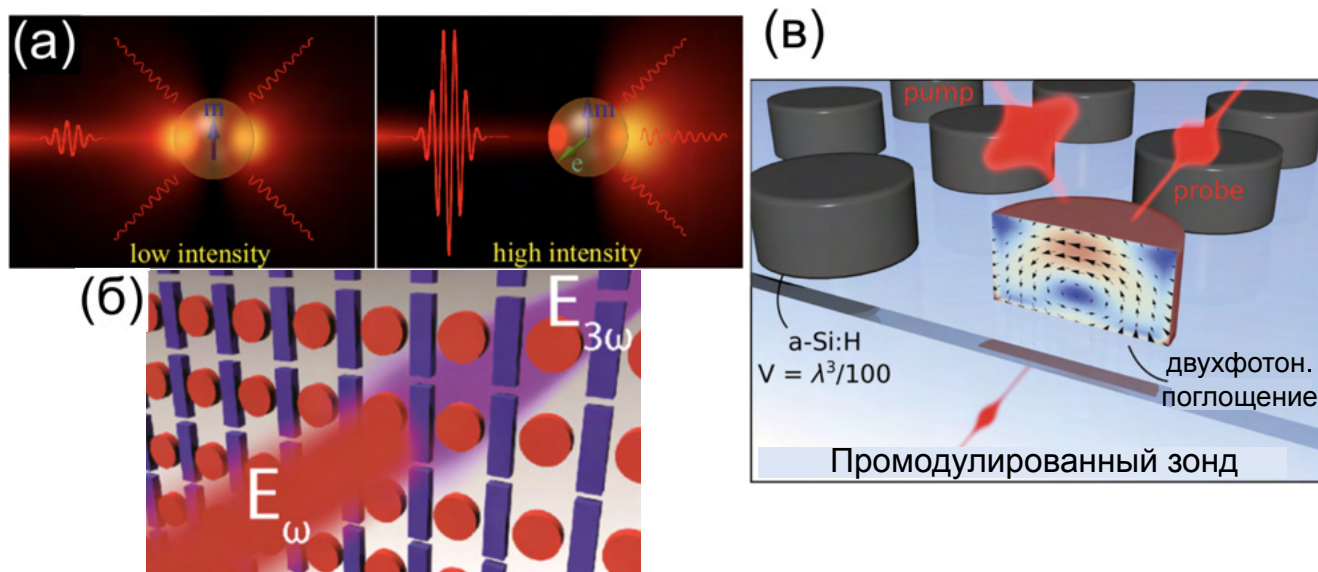


Рисунок 1.8 — (а) Схема управления рассеянием с помощью разной интенсивности лазерного импульса. При этом интенсивный лазерный импульс приводит к режиму источника Гюйгенса, то есть падающий свет рассеивается только в прямом направлении [10]. (б) Резонансная кремниевая метаповерхность Фано, где в прямоугольных резонаторах возбуждается “светлая” мода, а в дисках — “темная” [59]. (в) Иллюстрация сверхбыстрого полностью оптического переключения в резонансных кремниевых нанодисках [12].

Изменение магнито-оптического отклика полупроводниковых частиц с высоким показателем преломления посредством сверхбыстрой фотогенерации электронно-дырочной плазмы с высокой плотностью свободных носителей внутри частиц. При этом сгенерированные свободные носители изменяют диэлектрическую проницаемость, вследствие чего изменяются резонансные свойства частиц, в результате чего возможно управление диэлектрическими и магнитными свойствами полупроводниковых частиц под действием лазерного излучения, генерирующего плотную электронно-дырочную плазму.

В работе была продемонстрирована теоретическая возможность эффективного управления оптическими свойствами одиночной частицы. Для этого были взяты экспериментальные зависимости изменения диэлектрической проницаемости атомно-гладкой поверхности кремния под действием мощного фемтосекундного излучения. Плотность мощности при этом достаточна для значительных изменений в объемном кремнии или кремниевых наночастицах, так как плотность генерации носителей при $F=100$ мДж/см² составляет порядка 10^{21} см⁻³, но ниже значений порогов разрушения ($F=170$ мДж/см² — плавление кремния и 250 — порог абляции). Была рассмотрена кремниевая частица диаметром 210 нм под действием лазерного излучения с центральной длиной волны порядка 800 нм. В этом случае в частице возможно возбуждение значительного МД и слабого ЭД резонансов типа Ми. Сечение рассеяния и диаграмма рассеяния вблизи МД резонанса имеют сильную спектральную зависимость и описываются 3 случаями: вблизи центральной длины волны резонанса диаграмма рассеяния имеет симметричный характер; по краям резонанса, при условии наличия электродипольного резонанса с равной МД резонансу амплитудой и в фазе - источник Гюйгенса — в этом случае частица переизлучает вперед (правая часть рис.1.8(a)), практически полностью подавляется переизлучение назад; или “обратный” источник Гюйгенса — в этом случае ЭД и МД имеют разность фаз $\pi/2$. При 100 мДж фемтосекундного излучения с 800 нм длиной волны амплитуда сечения рассеяния становится в 3 раза меньше по сравнению с необлучаемой частицей, а диаграмма рассеяния меняется с характерной симметричной дипольной диаграммы рассеяния на ассиметричную диаграмму рассеяния источника Гюйгенса в прямом направлении.

Кроме расчетов, для подтверждения теории управления оптическими свойствами полупроводниковых частиц посредством генерации электронно-дырочной плазмы, были проведены эксперименты с усечёнными коническими кремниевыми частицами. Массив был достаточно разрежен, чтобы наблюдать сигнал от одиночных частиц. Размеры частицы были выбраны так, что вблизи 800 нм наблюдалось возбуждение ЭД и МД резонансов. При этом был изготовлен также массив нерезонансных частиц с МД резонансом, лежащим в значительно более коротковолновой области спектра от возбуждающего 100 фс импульса с 790 нм длиной волны и 20 нм спектральной шириной ($\lambda = 500$ нм). Было получено возрастание отражения при увеличении плотности мощности

падающего излучения от одиночных частиц. Изменения отражения составило порядка 20% по сравнению с нерезонансными частицами и тонкой пленкой объемного кремния. Такое поведение резонансных полупроводниковых частиц под действием лазерного излучения и генерации электронно-дырочной плазмы позволяет управлять не только сечением рассеяния, но и диаграммой рассеяния.

При этом такое управление оптическими свойствами полупроводников возможно, когда плотность свободных носителей составляет $> 10^{20} \text{ см}^{-3}$. Пикосекундные времена релаксации свободных носителей определяют ТГц скорость такого управления, поскольку рекомбинация свободных носителей в кристаллическом кремнии порядка 6-7 пс обусловлена 3х частичной Оже-рекомбинацией и порядка 1 пс в аморфном кремнии.

В металлических структурах при возбуждении резонансов поле локализуется на границе металл-диэлектрик в результате чего нелинейность металла использует не весь его объем, приводя к уменьшению эффективности нелинейных процессов. Одним из решений данной проблемы является помещение нелинейного материала вблизи максимума поля. Но ряд недостатков таких как невысокий порог повреждения из-за большого оптического поглощения в металлах и низкая температура плавления все еще остается при использовании металлических материалов.

Еще одним примером альтернативного подхода, использующего неметаллические среды с усиленными нелинейными оптическими процессами, является применение Фано-резонансной кремниевой метаповерхности. В такой структуре совокупность усиленной нелинейности и резких спектральных особенностей вследствие добротного резонанса возможна значительная модуляция пропускания.

В работе была продемонстрирована метаповерхность из поликристаллического кремния, обладающая высокой эффективной нелинейностью третьего порядка благодаря высоко добротному резонансу Фано, усиливающему локальные поля внутри кремния. Метаповерхность продемонстрирована на рис. 1.8(б) и представляет собой совокупность кремниевых брусков и дисков. При нормальном падении электромагнитного излучения с поляризацией электрического поля вдоль брусков в них возбуждается ЭД резонанс, который в свою очередь приводит к возбуждению МД резонанса в дисках с поперечным плоскости диска магнитным моментом. Такое возбуждение МД резонанса возможно только

благодаря ближнепольному взаимодействию с модой в кремниевых брусках и недостижимо при нормальном падении излучения в отсутствие брусков. Подобное коллективное возбуждение приводит к высокодобротному Фано резонансу в спектре пропускания с $Q = 466$ на длине волны 1350 нм. При этом такая метаповерхность в резонансе демонстрирует значительное усиление электрического поля $|E|/|E_0| = 45$ внутри значительного объема диска, в отличие от аналогичных плазмонных устройств, что является существенным преимуществом.

Значительное усиление ближнего поля вследствие комбинации нелинейного эффекта Керра, эффекта двухфотонного поглощения, поглощения свободных носителей и термооптического эффекта приводит к значительному изменению показателя преломления Si на основной длине волны падающего излучения λ_0 . В результате чего происходит смещение центральной длины волны пика резонанса Фано. Такое сочетание нелинейно-оптических эффектов и узкой полосы пропускания структуры приводят к значительной полностью оптической модуляции. Глубина модуляции пропускания составила 36% в эксперименте сканирования интенсивности (I-скан — измерение пропускания при изменении падающей интенсивности). При этом было обнаружено красное смещение пика пропускания при увеличении интенсивности падающего излучения. А для понимания того, какие все-таки механизмы влияют на данную модуляцию и определения их вклада необходимы времяразрешающие эксперименты. Поэтому было проведено два эксперимента накачка-зонд. В первом случае было зафиксировано время задержки между накачкой и зондом таким образом, что зонд приходил на 2 пс раньше накачки, а так как частота следования импульсов накачки составляет 80 МГц, то при данных условиях модуляция проба должна происходить под действием термооптических эффектов в кремнии, так как другие эффекты являются более быстрыми и затухают до прихода зондирующего излучения (релаксация фононов в кремнии больше 12 нс). При этом при увеличении интенсивности накачки до 2 ГВт/см² модуляция пропускания составила — 32%. Отрицательный знак как и положительная модуляция в случае I-сканирования возникает в результате красного смещения пика резонанса под действием термооптических эффектов.

Второй времяразрешающий эксперимент с более редкими импульсами накачки с частотой 1 кГц необходим, чтобы отделить более быстрые процессы Керра и ДФП. Так как при 1мс интервале между импульсами накачки не столь

медленные термооптические эффекты успевают срелаксировать к приходу следующего импульса. В такой конфигурации была обнаружена модуляция пропускания с временем переключения 490 фс, определяемым почти мгновенным эффектом Керра и эффектом двухфотонного поглощения. Глубина модуляции при этом составила 0.2%. Небольшая глубина модуляции обуславливается в том числе техническими особенностями установки накачка-зонд такими как уширение резонанса Фано из-за ненормального падения зонда и усреднение пропускания детектирующей системой. Кроме того, помимо быстрой модуляции наблюдается медленный хвост с временем порядка 24 пс, связанный с релаксацией свободных носителей.

Подобная модуляция, но с более быстрыми временами переключения из-за того, что структура имеет меньшую добротность была продемонстрирована в том же году [12]. В работе была представлена метаповерхность из аморфного гидрогенизированного кремния $a\text{-Si:H}^5$, в которой возможно возбуждение магнитных резонансов типа Ми, а нелинейно-оптические эффекты позволяют достичь быстрой 65 фс полностью оптической модуляции (рис. 1.8(в)). Эта быстрая модуляция с временами сравнимыми с длительностью падающего фемтосекундного импульса ($\tau_{\text{импульса}} = 45$ фс) может быть достигнута путем подавления эффектов свободных носителей, релаксационные процессы которых в кремнии составляют десятки пс, за счет оптимизации положения магнитного резонанса относительно спектра падающего импульса. Структура представляет собой массив дисков $a\text{-Si:H}$. При этом было изготовлено несколько массивов с разными диаметрами дисков порядка 200 нм и одинаковой периодичностью структур. Форма диска была выбрана в силу наличия в геометрии 2х степеней свободы и поперечной изотропии. Такие структуры демонстрируют в спектрах пропускания ЭД и МД резонансы вблизи спектра падающего импульса ($\lambda_0 = 780$ нм) с разной степенью перекрытия резонансов. Было также проведено 2 типа экспериментов. 1ый — z-скан и I-скан для определения величины модуляции самовоздействия (как свет модулирует себя при прохождении через массив дисков) и 2ой — времяразрешающие эксперименты накачка-зонд для определения скорости модуляции. Z-скан эксперимент показал, что для образца с ЭД и МД резо-

⁵Аморфный гидрогенизированный кремний ($a\text{-Si:H}$) — материал, в котором как и в случае поликристаллического кремния отсутствует дальний порядок (в отличие от монокристаллического кремния). При этом в $a\text{-Si:H}$ присутствует большое количество структурных и связующих дефектов, называемых оборванные связи. Эти связи обеспечивают места для рекомбинации электронов с дырками, но в отличие от аморфного кремния, пассивируются водородом образуя цепочки ковалентных связей Si-H.[87]

нансами на 710 нм и 750 нм, соответственно, при возбуждении 780 нм лазерным излучением пропускание падает на 60% при вдвигании образца в перетяжку излучения. При этом был также измерен z-скан со спектральным разрешением (вместо фотодетектора при этом использовался спектрометр) демонстрирующим как увеличение на 21% при 757 нм (на левом краю резонанса), так и уменьшение на 50% при 775 нм (в районе резонанса) пропускания в результате красного смещения магнитного резонанса на величину порядка 6 нм. Это красное смещение можно также объяснить следующими нелинейными процессами: эффект Керра, включая нелинейную рефракцию и эффект двухфотонное поглощение, которые имеют характерные времена масштаба фемтосекунд и являются самыми быстрыми; эффекты свободных носителей с характерными временами пикосекундного масштаба и тепловые процессы, которые оказывают наиболее сильное воздействие, но характеризуются наиболее длительным временным масштабом (порядка наносекунд).

При этом действительная часть восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ отвечает за эффект Керра и оказывается менее значимой эффекта двухфотонного поглощения, который зависит от мнимой части $\chi^{(3)}$, но при этом эффект Керра в данном случае все равно необходимо учитывать.

Процесс двухфотонного поглощения в данном случае должен вносить существенный вклад, так как энергия возбуждаемого излучения $\hbar\omega = 1.6$ эВ находится немного ниже края запрещенной зоны аморфного кремния $\hbar\omega \approx 1.7$ эВ. Двухфотонное поглощение в свою очередь приводит к генерации свободных носителей N , вклад в изменение показателя преломления Δn в этом случае оказывается отрицательным при любом N . Красное смещение МД резонанса на 6 нм описывается совокупностью факторов, наибольший вклад из которых вносит нагрев структуры, приводящий к положительному изменению Δn , отрицательный вклад в Δn вносят свободные носители, а небольшой вклад Керра вносит небольшую поправку. При этом необходимы времяразрешающие эксперименты накачка-зонд для определения быстрого процесса двухфотонного поглощения от вклада свободных носителей, которые не разделимы в статических экспериментах z-скан и I-скан. Для образцов с МД резонансами, для которых спектр падающего излучения лежит в районе красного края резонанса (например $\lambda = 750$ нм, а $\lambda_0 = 780$ нм), в эксперименте накачка-зонд наблюдается два основных вклада — вклад двухфотонного поглощения, который вносит наиболь-

шие изменения с временем модуляции 65 фс, и термический вклад, который вносит небольшую длительную модуляцию с постоянным на пс масштабе значением. При этом эффект от свободных носителей оказывается нивелированным. Для образцов с большими диаметрами дисков, для которых спектр падающего излучения попадает в коротковолновую часть резонанса (например $\lambda = 800$ нм, а $\lambda_0 = 780$ нм) в эксперименте накачка-зонд наблюдается релаксация свободных носителей с временами порядка 30 пс. Также отмечается, что вклад от термических эффектов можно значительно уменьшить при энергиях излучения ниже запрещенной зоны и при использовании теплоотводящих подложек.

Таким образом подобные структуры и методы могут быть использованы для полностью оптического переключения в различных приложениях.

Насыщающийся поглотитель как элемент импульсных лазеров

Если в резонатор лазера поместить нелинейный элемент, например насыщающийся поглотитель, то нелинейность приведет к срыву стационарного непрерывного режима, позволяя получить импульсную генерацию лазера. Насыщающийся поглотитель — это элемент, обладающий следующими свойствами: при увеличении падающего на него излучения коэффициент пропускания такого элемента увеличивается (рис. 1.9). Данное свойство используется не только при создании импульсных лазерных систем, но также и в качестве фильтров в оптических системах для подавления шумов. Насыщающийся поглотитель является важным, хотя и не самым распространенным оптическим элементом.

Для различных приложений применяются насыщающиеся поглотители с разными параметрами, поэтому существуют различные типы насыщающихся поглотителей. Наиболее распространенными насыщающимися поглотителями являются так называемые полупроводниковые насыщающиеся поглотители с зеркалом (SESAM — Semiconductor Saturable Absorber Mirror), также в качестве насыщающихся поглотителей используются и другие материалы: квантовые точки, полупроводник арсенида галлия, углеродные нанотрубки и один или несколько слоев графена. Основное применение насыщающихся поглотителей — использование для синхронизации мод для получения импульсного режима ра-

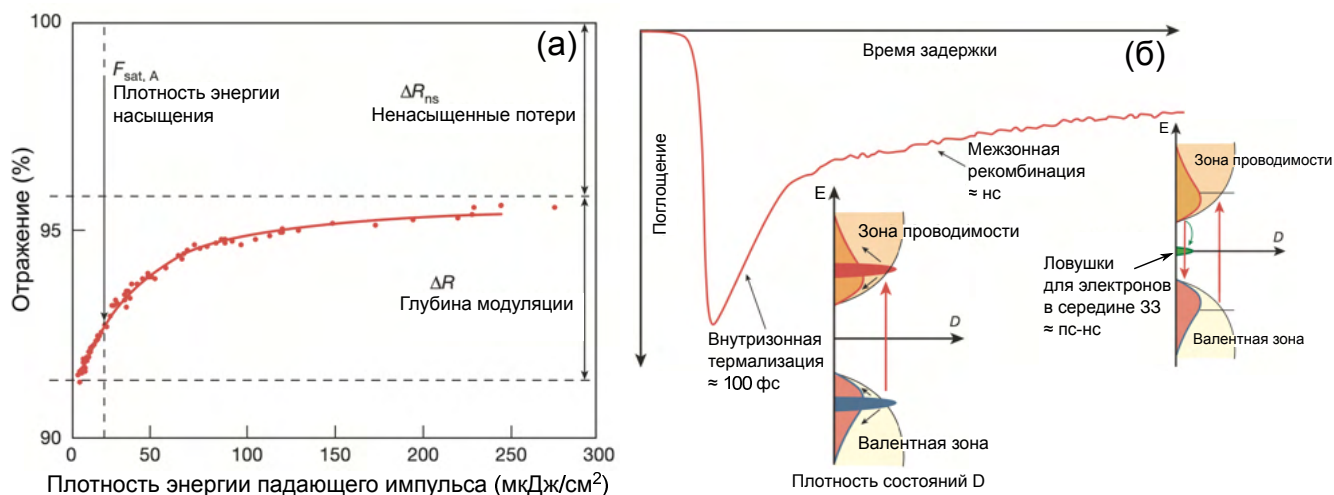


Рисунок 1.9 — (а) Пример насыщающегося поглотителя, работающего в режиме отражения, то есть отражательная способность увеличивается с увеличением интенсивности падающего импульса. (б) Временные характеристики насыщающегося поглотителя. [88]

боты лазера. Благодаря полупроводниковым насыщающимся поглотителям был достигнут значительный прогресс в генерации коротких импульсов позволяя генерировать еще гораздо более короткие и мощные импульсы. А сверхбыстрые лазеры, изначально представляющие сложные и специализированные лабораторные системы смогли превратиться в компактные и надежные приборы в том числе при помощи насыщающегося поглотителя, одного из принципиальных элементов, необходимых для создания компактных и энергоэффективных импульсных лазерных систем [88]. Короткие лазерные импульсы, которые в настоящее время можно легко получить благодаря развитию и совершенствованию методов синхронизации мод в лазерных системах, стали очень важным инструментом для изучения сверхбыстрых явлений в физике и химии.

Важнейшими параметрами насыщающихся поглотителей являются: глубина модуляции — максимально возможное изменение потерь/пропускания/отражения; плотность энергии насыщения — плотность падающего потока, необходимая для получения достаточного эффекта насыщения; время восстановления насыщающегося элемента и нежелательные потери.

Существуют также некоторые типы искусственных насыщающихся поглотителей. Такие устройства, которые характеризуются уменьшением оптических потерь при увеличении интенсивности, но могут при этом даже не использовать поглощение [89—93].

Создание элементной базы фотонных устройств на основе резонансных наночастиц и структур является важной задачей, так как наноструктурированные материалы, имея компактные размеры, позволяют получать оптический и нелинейно-оптический отклик сравнимый или даже больше чем для объемной среды, что является привлекательным для применения в качестве различных нанофотонных устройств. Кроме того, в силу технологических особенностей производства они могут быть легко интегрированы в современные оптические схемы, что может быть использовано для создания компактных и эффективных фотонных устройств. Поэтому метаповерхность, которая может демонстрировать свойства насыщающегося поглотителя, а ее производство может быть полностью совместимо с производством современной микроэлектроники, является важным элементом исследования для возможности создания компактных и энергоэффективных лазерных источников или оптических фильтров.

1.2 Метаповерхности с высокодобротными резонансами

Индивидуальные резонансные наночастицы могут быть объединены в сильно связанные массивы, в результате чего можно создавать метаповерхности с высокодобротными модами, что позволяет получить метаповерхности с острыми спектральными характеристиками, а также усиленным взаимодействием света с веществом [94; 95], а это в свою очередь приводит к множеству интересных эффектов [96; 97]. Используя структуры с высокой добротностью, можно получить фотонные устройства со свойствами, превосходящими возможности объемных материалов или метаповерхностей с низкой добротностью [77; 98]. Полупроводниковые метаповерхности с высоким показателем преломления и специальным образом смоделированными высокодобротными резонансами обладают большими возможностями для усиления нелинейных оптических эффектов и другими преимуществами для создания различных компактных устройств нелинейной фотоники.

Остановимся подробнее на структуре [94], которая позволяет получить усиленное взаимодействие с веществом, а именно повышенное поглощение. Это реализуемо благодаря конструированию полупроводниковой наноантенны опре-

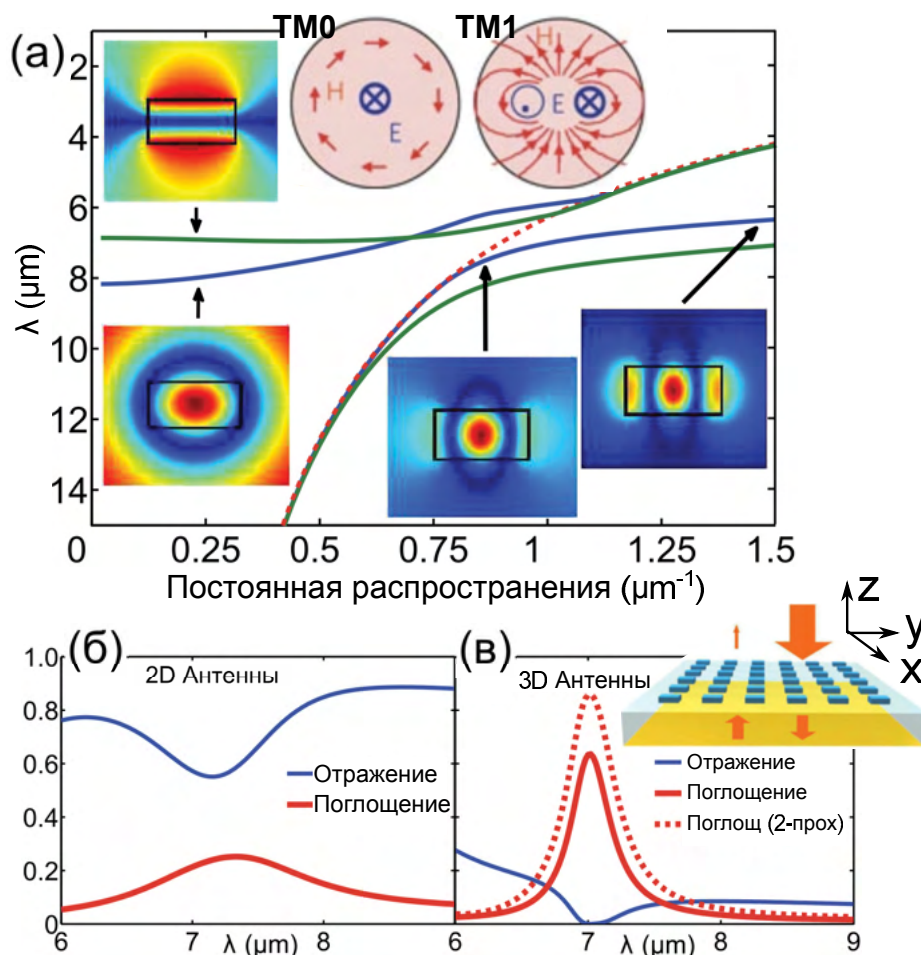


Рисунок 1.10 — Снижение отражательной способности и повышение поглотительной способности полупроводниковой Ge метаповерхности [94]. (а) Дисперсионные соотношения $\lambda(\beta_y)$ мод TM_0 (синие кривые) и TM_1 (зеленые кривые) массива бесконечно длинных нанопроволок Ge (сечение: $L_x \times L_z = 2.25\text{мкм} \times 1.05\text{мкм}$). Красная пунктирная кривая: световая линия $\lambda \equiv 2\pi/\beta_y$. Цветные вставки с распределением полей: $|E_y|$ для режимов TM_0/TM_1 . Верхняя вставка посередине: схематичный профиль полей аналогичных TM_0 и TM_1 мод в волноводе карбида кремния [99].

Моделирование отражения (синяя кривая) и одно-/двухпроходного поглощения (красная кривая) для (б) 2D антенны бесконечной длины и (в) Ge метаповерхности с 3D антеннами конечной длины. Правая вставка: схема двухпроходной решетки (антенны конечной длины) с отражающей заземляющей пластиной.

деленной формы с длиной больше λ/n и достаточно большой диэлектрической проницаемостью, упаковки таких наноприемников в метаповерхность с определенным диаметром, и возможностью регулирования электрического и магнитного

отклика метаповерхности. При этом метаповерхность проектируется так, чтобы электрический и магнитный резонансы спектрально перекрывались.

Диэлектрическая проницаемость полупроводника была выбрана больше 10 ($\varepsilon \geq 10$), для эффективного возбуждения Ми резонансов и получения небольшого размера наноантенны ($< \lambda/2$). На рис. 1.10(а) представлен численный расчет собственных мод и частот массива бесконечно длинных германиевых нанопроволок без подложки как функция постоянной распространения вдоль волновода $\beta_y(\lambda)$ при у-поляризованном падающем излучении. При небольших β_y в таком массиве существуют две собственные моды TM_0 (отмечена синей кривой) и TM_1 (отмечена зеленой кривой, а распределение полей $|E_y|$ для этих мод показано на средней вставке рис. 1.10(а), кроме того, схематичный профиль полей аналогичных TM_0 и TM_1 мод в волноводе карбида кремния [99] представлен на средней вставке). При этом спектр отражения и поглощения такого массива показан на рис. 1.10(б) и характеризуется высоким отражением и небольшим поглощением из-за сильного электрического резонанса, создаваемого TM_0 модой, и к тому же дополнительно усиливаемого магнитным резонансом, создаваемым TM_1 модой.

Для больших $\beta_y > 2\pi/\lambda$ и наноантенн конечного размера по y , с полу-волновой длиной $L_y \approx \pi/\beta_y$, TM_0 и TM_1 моды могут возбуждаться из-за нарушения трансляционной симметрии при разбиении бесконечных нанопроволок на конечные в y -направлении антенны. При определенной длине антенны электрический и магнитный резонансы спектрально перекрываются в результате чего возникает повышенное поглощение и меньший коэффициент отражения. Спектр поглощения и отражения массива 3D антенн с оптимизированной длиной $L_y = 2.25$ мкм показан на рис. 1.10(в) и характеризуется в 10 раз более низким отражением по сравнению с 2D бесконечными антеннами и более высоким поглощением. Поглощение составляет порядка 65% в случае однократного прохода структуры и около 90% для двухкратного распространения (как показано на вставке рис. 1.10(в)), в то время как для 2D антенн поглощение всего 25% (рис. 1.10(б)).

Авторы также представили экспериментальные результаты, но для 3D антенн из карбида кремния (SiC), так как этот полупроводник не требует дополнительного легирования для данной задачи усиленного поглощения. В работе продемонстрировано, что отражение такой метаповерхности ниже, чем у рефе-

ренного гладкого SiC или подложки из Si. В свою очередь поглощение в 3 раза больше поглощения в подложке Si и более чем в два раза превышает поглощение для гладкого SiC и составляет порядка 50%.

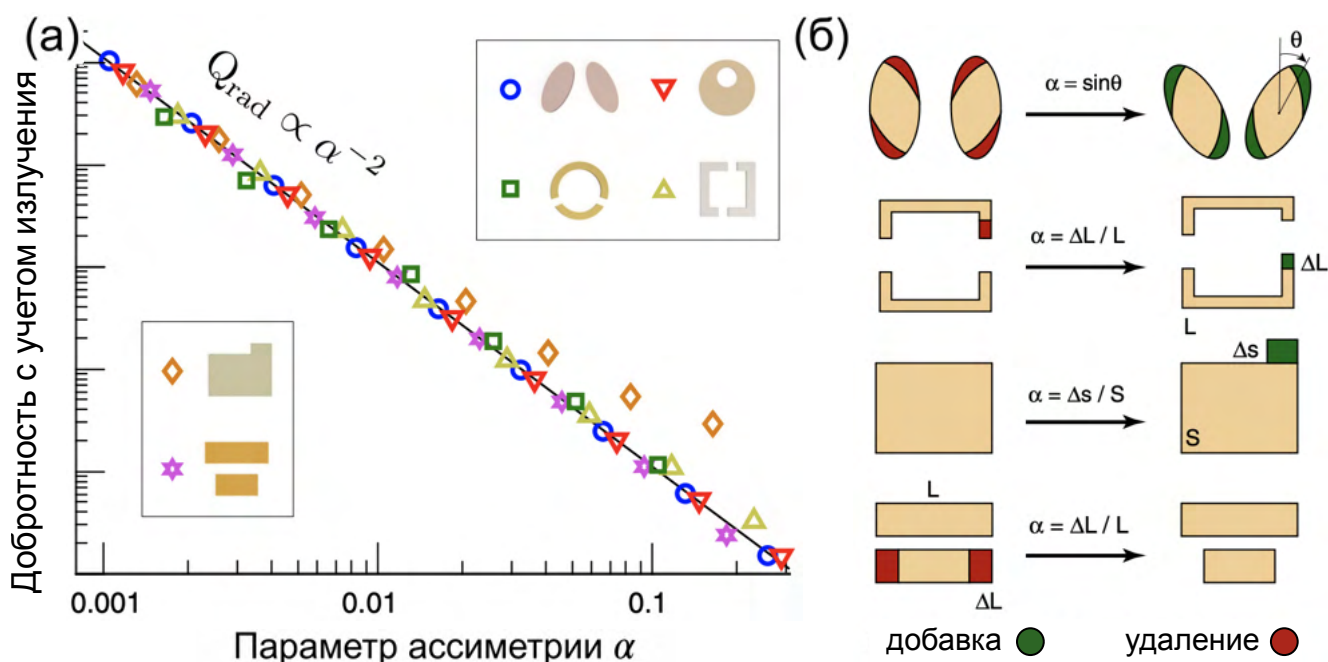


Рисунок 1.11 — (а) Влияние асимметрии в плоскости на радиационную добротность. Зависимость добротности от параметра асимметрии α в двойном логарифмическом масштабе. (б) Определение параметра асимметрии α для различных метаатомов. [100]

В структурах с нарушением симметрии инверсии в плоскости возможно возбуждение резонансов с очень большими добротностями. А в последние годы метаповерхности с высокодобротными резонансами привлекают достаточно много внимания и открывают новые возможности конструированию резонансов в нанооптике для лазеров, оптических датчиков, нелинейной нанофотоники и сверхбыстрых активных устройств. Авторы [100] провели тщательный анализ и всестороннее исследование разнообразных структур с большой добротностью и показали, что различные метаповерхности созданные из диэлектрических или металлических метаатомов с какой-либо нарушенной симметрией инверсии в плоскости демонстрируют одинаковое поведение и обеспечивают возбуждение резких высоко добротных резонансов. При этом для таких асимметричных периодических метаповерхностей была построена детальная аналитическая теория и утверждается, что столь разные структуры с нарушенной симметрией

могут быть объединены общей концепцией связанных состояний в континууме (ССК)⁶.

На рис. 1.11(а) показана зависимость поведения радиационной добротности квази-ССК для различных метаповерхностей с нарушенной симметрией в двойном логарифмическом масштабе, найденная с помощью численных расчетов собственных мод и спектров отражения. При этом был введен обобщенный параметр асимметрии α , принимающий значения от 0 до 1, и определяющийся индивидуально для разных структур как показано на рис. 1.11(б). Продемонстрирована универсальная обратная квадратичная зависимость для таких структур при малых значениях α . При этом все кривые сдвинуты относительно вертикального направления для удобства визуализации и построены из одной и той же точки. Кроме того, стоит отметить, что для большинства структур зависимость α^{-2} справедлива и при значительных величинах α .

1.3 Преобразование частоты в среде с зависящим от времени показателем преломления

Первоначально процесс преобразования частоты, который рассматривается как концепция ускорения фотонов, так как энергия фотонов зачастую меняется в большую сторону, был введен в газовой плазме, и происходит при распространении электромагнитных волн в среде с зависящим от времени показателем преломления [101]. В такой меняющейся во времени среде, диэлектрическая или магнитная проницаемость которой имеют зависимость от времени, плоские волны перестают быть решением уравнений Максвелла [102].

Полвека назад были продемонстрированы эффекты синего сдвига длины волны (увеличение частоты) излучения CO₂-лазера при самогенерации плазмы в газах [101]. Из-за резкого изменения показателя преломления от 1 до 0, длина волны изменяется в меньшую сторону с 10.6 мкм излучения CO₂-лазера до примерно 10.1 мкм, что составляет порядка 5% изменения.

⁶Bound states in the continuum (BIC) это локализованные состояния, лежащей в области непрерывного спектра. С точки зрения рассеяния, ССК представляет собой резонанс нулевой ширины, то есть математическая модель идеальной системы, но даже небольшие радиационные потери в физических системах, приводят в рассеянии к резонансам с конечной добротностью, при сверхвысокой добротностью так называемые квази-ССК.

Преобразование частоты света очень важно для различных оптических технологий, особенно для обработки и передачи информации. Обычно для преобразования длины волны используются нелинейные оптические процессы, например генерацию второй гармоники, но в случае нелинейных кристаллов сложно получить высокую эффективность для падающего света небольшой интенсивности при условии миниатюрных размеров кристалла.

В одной из теоретических работ было показано, что длина волны света может быть изменена из-за динамических процессов в небольшом резонаторе фотонного кристалла (с большим временем жизни фотонов). При этом частота захваченных резонатором фотонов может быть сдвинута путем изменения резонанса резонатора за более короткое время, чем время жизни фотона. Процесс соответствует адиабатической настройке колебательных систем (можно изменить тон струны, изменив натяжение струны, даже после воспроизведения).

Для этого авторы провели расчеты методом конечной разности во временной области (FDTD) в случае одиночного резонатора с высокой добротностью в двумерном кремниевом фотонном кристалле (ФК). Схема резонатора представлена на рис. 1.12(а). Резонатор имеет моду на длине волны $\lambda_1 = 1623.2$ нм. При условии возбуждения данной моды показатель преломления в районе резонатора, область изменения показана серым цветом на рис. 1.12(а), увеличивается на $\Delta n/n_1 = 0.5\%$. При этом продемонстрировано смещение спектра, изображенное на рис. 1.12(б), которое происходит так же в большую сторону длин волн на $\Delta\lambda/\lambda_1 = 0.41\%$, то есть порядка изменения $\Delta n/n_1$. Небольшое отличие величин $\Delta\lambda/\lambda_1$ и $\Delta n/n_1$ может быть связано с тем, что не учитывается изменение показателя преломления воздуха, в котором существует световое поле. Стоит отметить, что конечная длина волны λ_2 оказывается равной новой резонансной длине волны резонатора с показателем преломления n_2 , то есть резонансной длине волны резонатора с измененным n . Переключение показателя производится с разным временем Δt , отличающимся на порядки (рис. 1.12(в)). При этом оказывается, что данный сдвиг длины волны не зависит от скорости переключения свойств резонатора. А это является прямым доказательством, что такой процесс преобразования частоты принципиально отличается от различных эффектов преобразования спектра импульса, вызванных эффектом Керра или генерацией боковой полосы высокоскоростными оптическими модуляторами. Важно отметить, что в случае неоднородного изменения показателя пре-

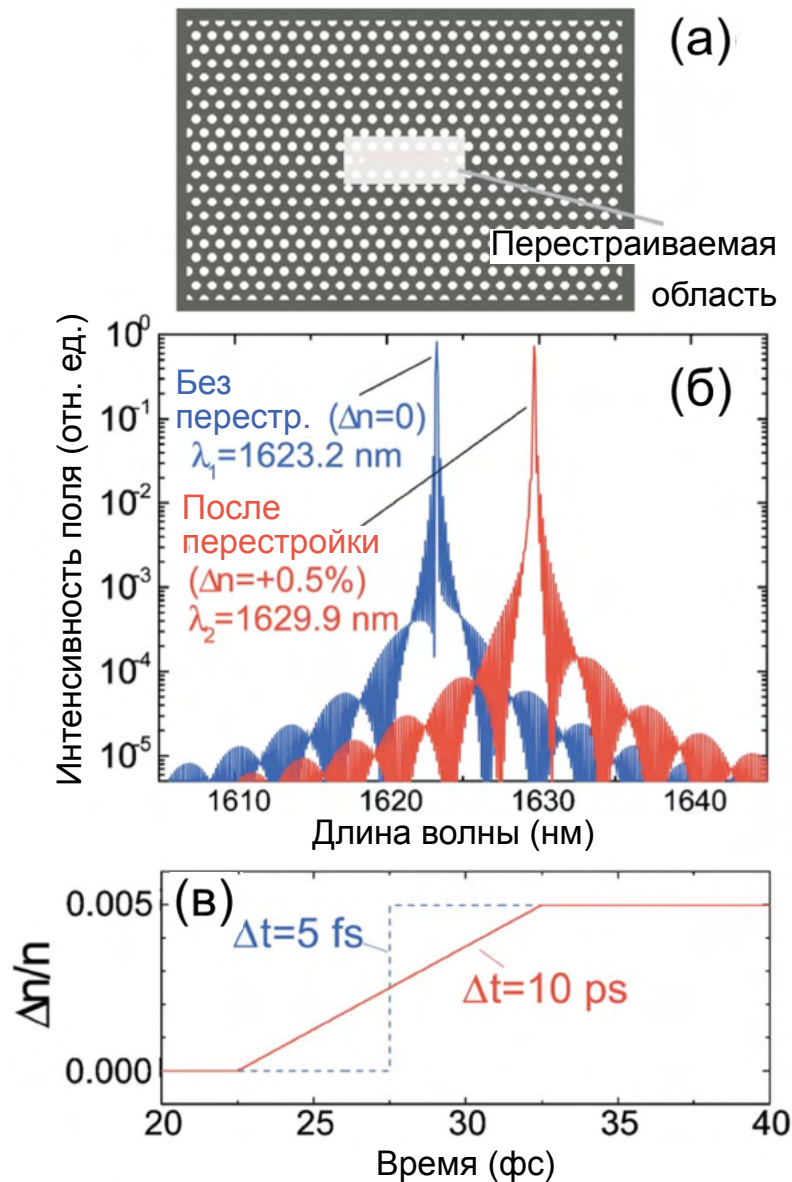


Рисунок 1.12 — Преобразование длины волны в резонаторе фотонного кристалла (ФК) с четырьмя точечными дефектами. [103] (а) Схема полости в двумерной гексагональной фотонно-кристаллической пластине с воздушными отверстиями. Постоянная решетки $a = 420$ нм (расстояние между отверстиями), радиус отверстия $r = 0.275a$ и $n = 2.78$. Показатель преломления серой области изменяется. (б) Спектры длин волн с перестройкой показателя преломления и без нее, рассчитанные с помощью 2Д FDTD. (в) Временное изменение показателя преломления.

ломления короткого резонатора (серая область в 2 раза меньше, то есть показатель преломления половины резонатора не модулируется), показанного на рис. 1.12(а), происходит возбуждение других мод, но является незначительным даже при мгновенном изменении n показателя преломления. В свою очередь,

для длинного резонатора (с десятью точечными дефектами, а не с четырьмя как на рис. 1.12(a)) при неоднородном изменении n внутри резонатора, адиабатическая непрерывность (то есть без возбуждения других мод) сохраняется только в случае медленного переключения показателя преломления $\Delta t = 10$ пс. При однородном изменении n адиабатическая непрерывность сохраняется для любой скорости переключения свойств резонатора.

Если говорить о законе сохранения энергии для данного процесса, то энергия поля U в этом случае зависит от показателя преломления n , поэтому не сохраняется, но при этом было найдено, что сохраняется величина $U\lambda$, а в свою очередь $U/\omega \sim U\lambda$ — это интеграл действия, являющийся адиабатическим инвариантом для классических осцилляторов при адиабатическом изменении параметров осциллятора (число квантов энергии сохраняется).

Кроме адиабатической непрерывности процесса должны выполняться следующие условия: время жизни фотона должно быть больше времени переключения показателя преломления (является наиболее важным критерием), из чего следует что для таких задач хорошо подходят резонаторы с высокой добротностью или волноводы; и сдвиг длины волны должен быть больше спектральной ширины резонанса, которая также определяется временем жизни фотона ($\tau_{\text{ф}} = \lambda_0^2 / 2\pi c \Delta\lambda_{\text{FWHM}}$).

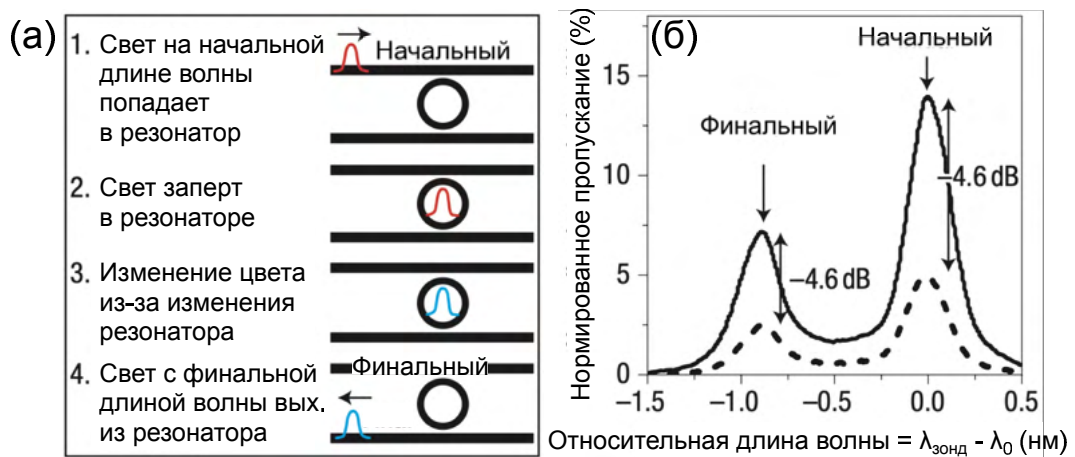


Рисунок 1.13 — (а) Спектры пропускания при совпадении длины волны падающего зондирующего света с модой резонатора. (б) Иллюстрация процесса преобразования длины волны. Пунктирная линия — спектр при уменьшенной входной мощности зондирующего излучения на 4.6 дБ. Конечная длина волны определяется только степенью динамического изменения резонатора. [104]

Вскоре после вышеупомянутой теоретической работы была экспериментальная демонстрация данного процесса преобразования длины волны (схематически показанная на рис. 1.13(а)) в методике накачка-зонд для кремниевого микрокольцевого резонатора [104]. При этом также наблюдается измененный выходной спектр. С помощью накачки освещалась верхняя часть резонатора для генерации свободных носителей, приводящих к быстрым динамическим изменениям в резонаторе, а именно к уменьшению показателя преломления, в результате чего происходит синий сдвиг резонанса резонатора (рис. 1.13(а)) в то время как зондирующий свет удерживается в этом кольцевом резонаторе и как следствие возникает синее смещение длины волны зондирующего света. Максимальное преобразование происходит при настройке зондирующего излучения на моду резонатора ($\lambda_{\text{зонд}} - \lambda_0 = 0$). Однако в данной работе всегда наблюдается пик на основной частоте (рис. 1.13(б)), который должен исчезать при адиабатической перестройке. Данный пик может пропасть при использовании более короткого импульса зондирования, позволяющий наблюдать одиночный пик после перестройки, как показано в работе для кремниевого фотонно-кристаллического резонатора [105]. Для получения непосредственного представления о динамике требуется использовать не интегрированные по времени спектры, а необходимо, чтобы выходной сигнал разрешался как во времени так и по спектру [106].

Эта технология линейного преобразования длины волны может стать очень полезной, так как позволяет свободно изменять частоту фотонов в фотонном устройстве, аналогично управлению напряжению в электрических устройствах. Однако сдвиги полученные для фотонно-кристаллических резонаторов или кольцевых микрорезонаторов все еще остаются достаточно небольшими и требуют достаточно больших интенсивностей, в свою очередь метаповерхности могут усиливать подобные оптические эффекты.

1.3.1 Преобразование частоты в метаматериалах

В работе [77] было экспериментально показано ускорение фотонов с помощью полупроводниковой инфракрасной метаповерхности и стандартного нели-

нейного процесса генерации третьей гармоники. Для этого была изготовлена кремниевая метаповерхность на сапфировой подложке с резонансом $\lambda_R = 3.62$ мкм и добротностью $Q = 72$. На вставке рис. 1.14(а) показана схема метаповерхности и ее элементарный блок с распределением интенсивности электрического поля $|\mathbf{E}^2|$ при возбуждении резонанса. Очень близко расположенные прямоугольные наноантенны приводят к возбуждению высокодобротной коллективной моды с локальным усилением поля около 350. Импульс среднего инфракрасного (СИК) диапазона длительностью $\tau_L \approx 200$ фс и спектральной шириной порядка 150 нм фокусировался на метаповерхность с пиковой интенсивностью в диапазоне $5 < I < 30$ ГВт/см² (плотность энергии $1 < F < 6$ мДж/см² соответственно). Для достижения максимального эффекта частота лазерного импульса ω_L совпадала с резонансной частотой метаповерхности ω_R . При этом СИК-импульс взаимодействует с метаповерхностью и захватывается ею, а в результате четырехфотонного поглощения под действием этого же импульса происходит генерация свободных носителей (СН), таким образом уменьшается показатель преломления ($\Delta n \propto -N_{\text{СН}}\lambda^2$, где $N_{\text{СН}}$ число свободных носителей) и резонансная частота метаповерхности увеличивается (синее смещение частоты), по этой причине смещается и частота захваченного фотона. После чего, фотоны третьей гармоники, образовавшиеся в результате нелинейного процесса на $\hat{\chi}^{(3)}$ полупроводника Si, оказываются тоже с большей чем $3\omega_L$ частотой, то есть также сдвинуты в синюю область.

На рис. 1.14 представлены измеренные спектры ТГ для кремниевой метаповерхности и для неструктурированной пленки кремния такой же толщины при разной плотности мощности падающего излучения. На панели (б) видно значительное смещение спектра относительно невозмущенной ТГ $3\omega_L$ (серая заштрихованная область соответствует не сдвинутой ТГ $3\omega_L$ и измерена для неструктурированной пленки кремния при $F = 5.5$ мДж/см², красная кривая на панели (а)). При этом при увеличении плотности энергии в случае метаповерхности наблюдается увеличение сдвига, что и ожидается из-за большего числа сгенерированных свободных носителей при большей плотности. Синее смещение центральной длины волны ТГ для метаповерхности порядка 50 нм, то есть до $\approx 3.1\omega_L$ является одной из особенностей данного процесса. Другая особенность заключается в том, что для полученного спектра ТГ существует высокочастотная его область ($\lambda_{\text{ТГ}} < 1.17$ мкм, эта коротковолновая часть спек-

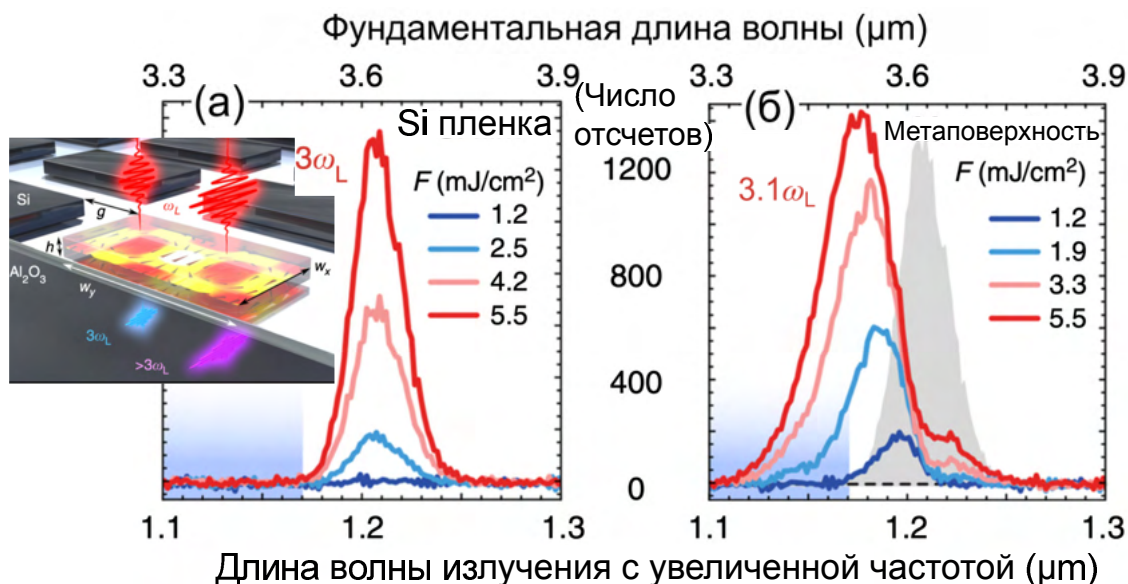


Рисунок 1.14 — Самоиндуцированное синее смещение гармоник в нелинейной полупроводниковой инфракрасной метасверхности. Спектры генерации третьей гармоники (ГТГ), измеренные при различной падающей плотности энергии накачки в случае (а) неструктурированной пленки кремния и (б) кремниевой метасверхности. Заштрихованная серая область: ГТГ от неструктурированной пленки при максимальной плотности энергии $F_{\text{макс}} = 5.5$ мДж/см². На вставке: схема образца и хода лучей в эксперименте. [77]

тра отмечена заштрихованной синей областью на рис. 1.14), где сигнал ТГ для метасверхности более чем на два порядка выше, чем для неструктурированной пленки Si (это отчетливо видно при спектральном интегрировании данного диапазона). И оказывается, что для метасверхности сигнал ТГ на длине волны $\lambda_{\text{ТГ}} \sim 1.06$ мкм, что на 100 нм от центрального пика, все еще может быть зарегистрирован, в то время как для неструктурированной пленки это значение < 50 нм. Так например, если взять эту длину волны $\lambda_{\text{ТГ}} \sim 1.06$ мкм и длину волны $\lambda_{\text{ТГ}} \sim 1.12$ мкм, то измеренные интенсивности ТГ для $F = 2$ мДж/см² от метасверхности на четыре и восемь порядков соответственно больше, чем аналогичные аппроксимированные значения для спектра неструктурированной пленки. И наконец, третьей особенностью является то, что такой резонансно усиленный нелинейный процесс не уменьшает спектральную полосу пропускания, в то время как обычно резонансное усиление ТГ сопровождается сужением спектра.

Таким образом, помимо уже наблюдавшегося ранее в других работах усиления генерации ТГ в такой метаповерхности по сравнению с неструктурированным материалом той же толщины обнаруживаются три особенности спектра ТГ. Это приводит к тому, что спектральный пик и ширину света ТГ, можно контролировать с помощью падающей плотности энергии, также позволяет получить ТГ с нецелочисленными частотами и спектр до 50% шире, чем в случае неструктурированной пленки.

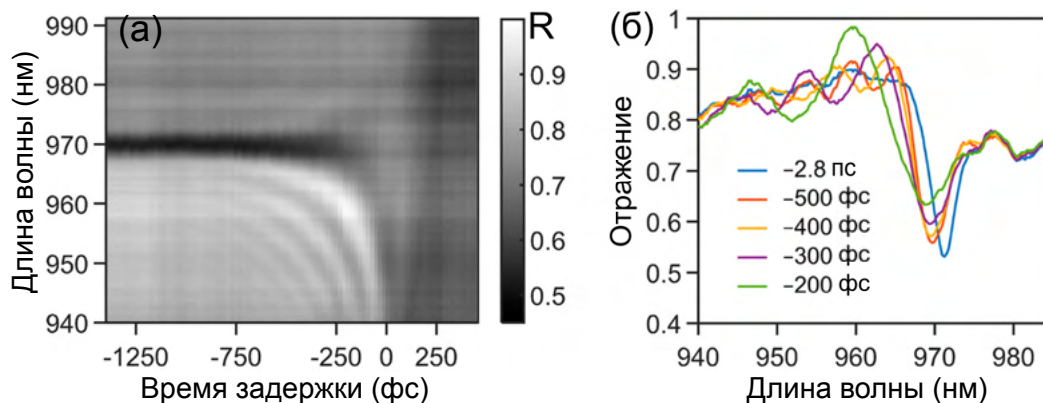


Рисунок 1.15 — (а) Экспериментальные спектры дифференциального отражения, измеренные при плотности энергии накачки 740 мкДж/см^2 с длительностью импульса 80 фс . Интерференционные полосы встречаются между временами задержки $\tau = -750$ и 0 фс . Эти особенности являются результатом интерференции между зондирующим излучением с преобразованной частотой и частью зондирующего излучения, которая не является резонансной. (б) Спектры отражения для метаповерхности, соответствующие некоторым вертикальным сечениям панели (а), при различных значениях времени задержки накачка-зонд τ . Интервал между интерференционными полосами изменяется при изменении τ . [76]

Подобное “линейное” преобразование частоты с использованием изменяющихся во времени фотонных систем обычно требует оптических резонаторов с достаточно высокой добротностью, а изменение показателя преломления должно происходить за время сравнимое с временем жизни фотона в резонаторе. Ведь чем выше добротность Q , тем больше возможная модуляция. Однако при этом, если для увеличения скорости модуляции, а также увеличения эффектов сделать длительность модулирующего оптического импульса короче, чем время жизни резонанса $\tau_{\text{ф}}$ (а $\tau_{\text{ф}} \propto Q$), то спектральный состав импульса будет превышать резонансную полосу пропускания, и лишь небольшая его часть будет

взаимодействовать с резонатором. В работе [76] был рассмотрен процесс «линейного» преобразование частоты в высокодобротной метаповерхности, а также впервые проведен анализ влияния длительности импульса накачки на процесс преобразования частоты в изменяющемся во времени резонаторе.

Метаповерхность, используемая в работе, представляет собой массив кубов из GaAs с нарушенной симметрией. Использование прямого полупроводника позволяет достичь высокой плотности свободных носителей до $N \sim 10^{19} - 10^{20} \text{ см}^{-3}$, что обеспечивает значительное изменение показателя преломления. Период массива составляет 470 нм, элементарная ячейка массива — куб со стороной 300 нм и одним обрезанным углом $230 \times 80 \text{ нм}$, таким образом параметр асимметрии равняется 0.085. Такая метаповерхность обеспечивает возбуждение резонанса типа Фано на длине волны 970 нм и добротностью $Q = 500$, рассчитанной из спектра отражения структуры. При этом время жизни в резонаторе $\tau_{\text{ф}} = 2Q/\omega_0 \sim 500$. Такая высокая добротность достигается за счет интерференции «светлой» моды электрического диполя, колеблющегося в плоскости куба и «темной» моды поперечного магнитного диполя, приводя к асимметричному профилю резонанса.

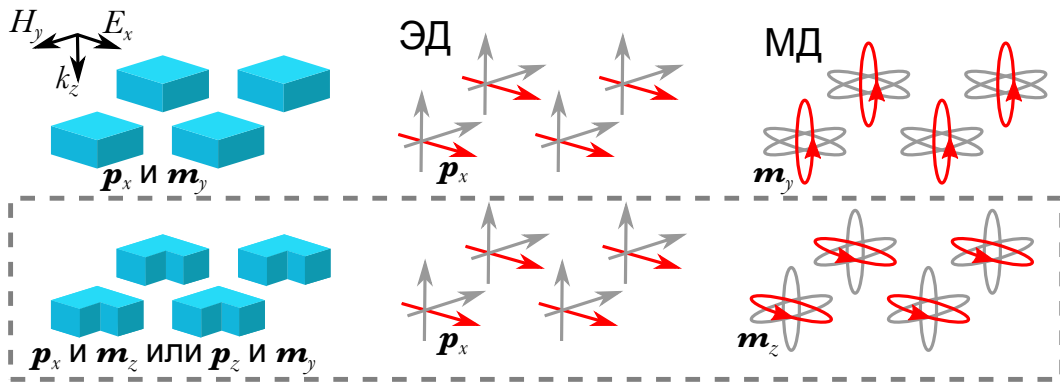


Рисунок 1.16 — Схематическое изображение принципа работы метаповерхностей Фано [107]. Верхний ряд показывает, что электрическое поле падающего излучения возбуждает только электрическую дипольную моду **p_x** или магнитный диполь **m_y** в кубических резонаторах (красные стрелки). Нижний ряд показывает структуру с нарушением симметрии, которая обеспечивает связь диполя **p_x** с продольным магнитным диполем **m_z**.

В массиве из симметричных кубов при нормальном падении могут возбуждаться только электрический **p_x** или магнитный диполь **m_y** в плоскости куба (поперечные моды), приводя к обычным достаточно широким резонансам в

пропускании/отражении. Однако, если нарушить геометрию, то это может привести не только к смещению положения резонансов, но и даже к возбуждению продольных мод, запрещенных симметрией [107]. При этом может возникать поперечный электрический диполь \mathbf{p}_x и продольный магнитный диполь \mathbf{m}_z , интерференция которых приводит к наблюдаемым резонансам типа Фано с высокой добротностью. Большие Q являются результатом «темной» моды магнитного диполя \mathbf{m}_z в диэлектрических материалах с низкими потерями, который в отличие от \mathbf{p}_x подвержен только безызлучательному затуханию, обусловленному поглощением в материалах, а «светлая» мода диполя \mathbf{p}_x подвержена также процессам излучательных потерь. Аналогичный процесс возможен и в случае «светлой» моды поперечного магнитного диполя \mathbf{m}_y и «темной» моды продольного электрического диполя \mathbf{p}_z , приводящему к следующему резонансу типа Фано при более высоких энергиях.

При этом, как отмечалось выше в разделе 1.2, Q можно регулировать, изменяя степень нарушения симметрии кубического резонатора (то есть параметр асимметрии α рис. 1.11).

Для измерения временного отклика данной метаповерхности была использована методика накачка-зондирования. При этом генерация свободных носителей в полупроводнике осуществлялась накачкой 800 нм и частотой повторения 1 кГц. Длительность импульса варьировалась от 80 до 500 фс с помощью chirпирования импульса через дисперсионное стекло BK7. Импульс зондирования является частью накачки, которая прошла через сапфировую пластинку для генерации суперконтинуума (СК), используемый спектральный диапазон СК при этом составляет от 935 до 1200 нм. Накачка и зонд фокусировались на образце под некоторым углом друг по отношению к другу. А размер пятна накачки на метаповерхности в 2.5 раза больше, чем пятно импульса зондирования, при этом из-за перекрытия происходит лишь небольшая модуляция интенсивности накачки порядка 10%. Измеренный спектр отражения метаповерхности как функция времени задержки между импульсами накачки длительностью 80 фс и плотностью энергии 740 мкДж/см² (что соответствует концентрации носителей $N = 1.05 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$) и импульсом зондирования $\tau = t_{\text{зонд}} - t_{\text{накачка}}$ представлен на рис. 1.15 и демонстрирует сдвиг резонанса в синюю область при приближении τ к нулю (то есть когда накачка и зонд пришли одновременно). На рис. 1.15(а) можно выделить три основные временные области:

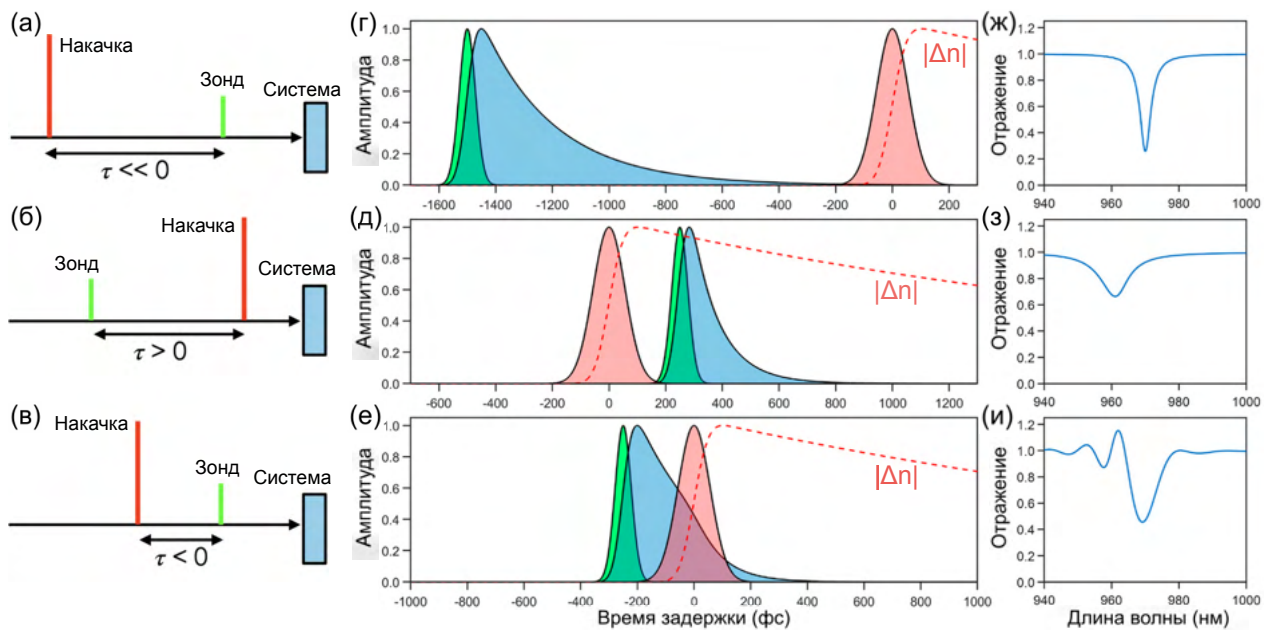


Рисунок 1.17 — С моделированной временной динамикой взаимодействия импульсов в случае нестационарной системы [76]. На средних графиках (г)-(е) показаны нормированные огибающие поля зондирующего импульса (зеленый), импульса накачки (красный) и режима резонансной моды (синий); также пунктирной красной кривой показано нормированное изменение показателя преломления резонатора $|\Delta n|$ под действием накачки. Правые графики (ж)-(и) демонстрируют соответствующий коэффициент отражения, полученный как спектр отраженного поля, нормированный на спектр зонда. (а, г) Импульс накачки достигает метаповерхности после того, как фотоны зондирующего излучения полностью вышли из резонатора ($\tau \ll 0$), поэтому в спектре отражения (ж) наблюдается невозмущенный высокодобротный резонанс. (д) Зондирующий импульс приходит вскоре после накачки ($\tau > 0$); зонд чувствителен к изменению показателя преломления резонатора, в результате в спектре отражения (з) наблюдается уменьшение добротности и синее смещение резонанса. (е) Резонансная мода присутствует в резонаторе одновременно с изменением показателя преломления резонатора; фаза и амплитуда моды при этом модифицируются изменяющейся во времени средой, и в спектре отражения (и) наблюдается преобразование частоты.

– $|\tau| \gg 0$, время задержки соответствует режиму, когда зондирующий импульс не чувствует влияния накачки на метаповерхность, то есть, например, зондирующий импульс попадает на метаповерхность первым (рис. 1.17(а),(г)), и сильно заранее до импульса накачки, воз-

бужденный резонанс успевает затухнуть к моменту прихода накачки (рис. 1.17(и) — синяя область, соответствующая возбужденной моде резонатора, не пересекается с красной областью, соответствующей огибающей импульса накачки). В этом случае спектр метаповерхности соответствует обычному стационарному спектру отражения для данной структуры (рис. 1.15(и)), который также изображен на рис. 1.15(а) для всех $\tau < -750$ фс.

- $0 < \tau < \tau_{\text{сн}}$, импульс накачки попадает на метаповерхность первым (рис. 1.17(а)) и приводит к изменению показателя преломления (рис. 1.17(д) красная пунктирная кривая), вскоре после этого, до того как сгенерированные накачкой свободные носители полностью рекомбинируют, на метаповерхность попадает импульс зондирования, возбуждая резонанс в то время как показатель преломления уменьшился под действием носителей. В этом случае спектр метаповерхности соответствует спектру отражения для данной структуры но с уменьшенным показателем преломления, проявляя синий сдвиг резонансной частоты (рис. 1.15(и)).
- Отрицательная задержка накачка-зонд $-\tau_{\text{ф}} < \tau < 0$, зондирующий импульс попадает на метаповерхность первым, но незадолго до накачки, и захватывается резонансом (рис. 1.17(а),(е),(и)). После чего приходит накачка и возмущает метаповерхность, то есть изменяет показатель преломления полупроводника, в то время как зондирующий свет все еще находится в резонаторе. На рис. 1.17(и) показан спектр, измеренный в этом режиме при плотности энергии накачки 740 мкДж/см^2 . При этом в районе длин волн $940 \div 970$ нм наблюдаются полосы, являющиеся непосредственным проявлением процесса «линейного» преобразования частоты, происходящего в изменяющейся во времени метаповерхности. Эти особенности являются результатом интерференции между преобразованным по частоте светом и нерезонансной частью зондирующего излучения. Спектральные сечения двумерного графика 1.15(а) для разного времени задержки τ из этого диапазона представлены на рис. 1.15(б) и демонстрируют, что спектральная протяженность полос, которая качественно показывает полосу пропускания преобразования частоты, варьируется в зависимости от времени задержки τ . Кроме то-

го, эффективность процесса линейного преобразования частоты возрастает по мере того, как задержка τ накачка-зонда приближается к нулю слева.

Также была построена теория СМТ, результаты которой хорошо согласуются с экспериментом. Кроме того, были проведены измерения спектра отражения при плотности энергии накачки 185 мкДж/см^2 (что соответствует концентрации носителей $N = 3.75 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$) при длительности импульса 80 фс и для chirпированного импульса накачки длительностью 490 фс. При этом в спектре отражения для эксперимента и расчета наблюдается явное смещение резонанса на 10 нм. А полосы, характерные для процесса «линейного» преобразования частоты оказываются более выражены и имеют большую ширину полосы для более короткого импульса накачки. Авторы предположили, что хотя общее количество генерируемых носителей N не зависит от длительности накачки, а является лишь функцией энергии импульса, но более короткий импульс накачки приводит к более быстрому изменению показателя преломления полупроводника, изменяя адиабатичность данного процесса. В свою очередь адиабатичность процесса влияет на его полосу пропускания и является критическим показателем для систем, изменяющихся во времени. Стоит отметить, что chirпированный импульс зонда также может быть использован, так как спектры отражения как функция времени задержки τ для широкого и сжатого зондирующего импульса идентичны друг другу.

Кроме того, были проведены измерения для разной поляризации излучения накачки и показано, что полосы, характерные для процесса «линейного» преобразования частоты, не зависят от поляризации пучка накачки и спектры отражения показывают схожие результаты независимо от того, поляризована ли накачка параллельно или перпендикулярно зондирующему импульсу. Таким образом измеренные полосы не являются результатом когерентного артефакта, который может наблюдаться в спектроскопии полупроводников.

Таким образом излучение накачки генерирует свободные носители, которые приводят к уменьшению действительной части показателя преломления GaAs, тогда как мнимая часть показателя преломления увеличивается за счет поглощения свободных носителей. Эти изменения, в свою очередь, приводят к смещению резонансной частоты резонатора ω_r и изменению безизлучательного затухания γ_{nr} .

1.3.2 Фемтосекундная спектроскопия, полученная с помощью методики “накачка-зондирование”

Фемтосекундная спектроскопия методики “накачки-зондирование” — универсальный инструмент для исследования динамики физических, химических или биологических систем. Измерение сигнала как по частоте, так и по времени используется для извлечения как можно большего количества информации. При этом двумерный спектр накачка-зонд как функция временной задержки τ между ними демонстрирует осцилляции при τ близком к 0 в когерентных системах, где время дефазировки больше длительности импульса. Это происходит из-за возмущенного затухания свободной индукции (PFID — perturbed free-induction decay, вызванного взаимодействием накачки с поляризацией, наведенной зондом) и зонда, которые перекрываются и интерферируют после временного растяжения спектрометра. Этот эффект приводит к запутанным спектрам накачки-зонда, которые можно ошибочно интерпретировать как внутреннюю некогерентную временную динамику образца [108].

“Линейное” преобразование частоты, которое было показано для металлоповерхностей [74–76] имеет происхождение, подобное возникновению когерентного артефакта в сверхбыстрой инфракрасной спектроскопии с временным разрешением для колебательных переходов в химических системах [108; 109] и в полупроводниках [110; 111], который проявляется при отрицательном времени задержки накачки-зонда, когда зондирующий импульс предшествует импульсу накачки. Такие когерентные эффекты носят весьма общий характер и при рассмотрении например полупроводников не зависят от конкретного полупроводника. Так в одной из работ [109], это было показано путем рассмотрения когерентного взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с тонкими образцами CdSe и GaAs (рис. 1.19). Когерентные осцилляции в пропускании зондирующего излучения (под действием излучения накачки) вокруг экситонного резонанса и частоты накачки наблюдаются, когда зондирующий импульс предшествует накачке. Сравнение эксперимента с теорией позволяет объяснить наблюдаемые осцилляции когерентной связью между световым полем и электронно-дырочными переходами в полупроводнике.

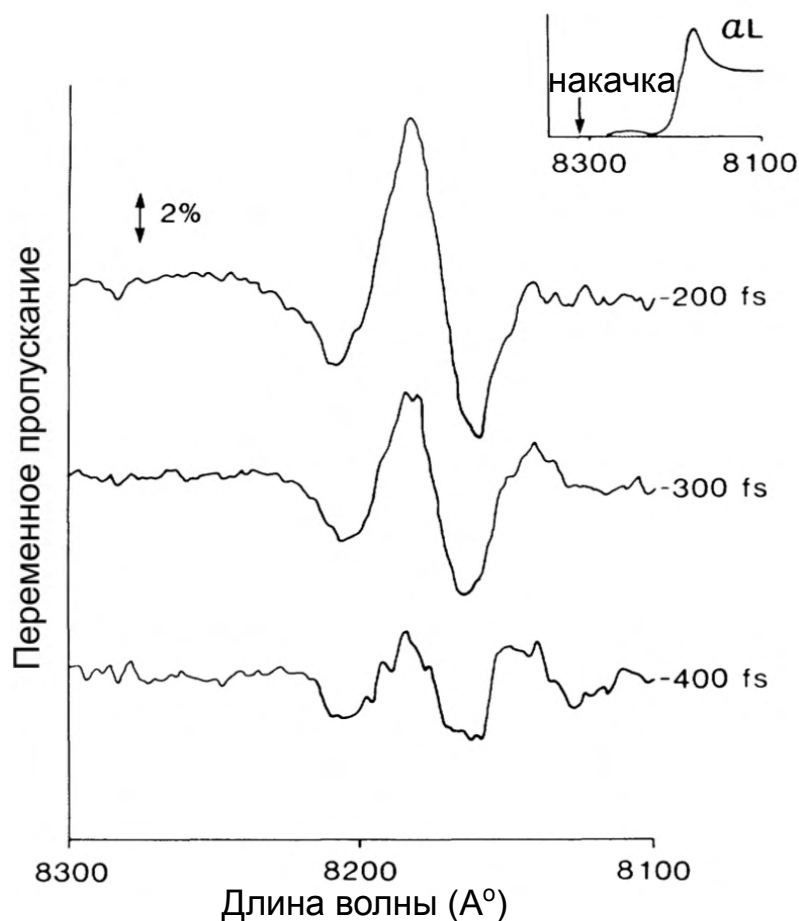


Рисунок 1.18 — Дифференциальные спектры пропускания для накачки ниже экситонного резонанса в объемном GaAs при трех различных временных задержках: -400, -300 и -200 фс между импульсами накачки и зондирования. Импульс накачки имеет длительность порядка 200 фс с центральной длины волны около 832 нм. Вставка: Поглощения образца. [110]

На рис. 1.18 показаны дифференциальные спектры пропускания тонкой пластинки GaAs толщиной порядка 0.5 мкм при температуре 15 К для трех различных временных отрицательных задержек. Эксперименты проводились в геометрии накачка-зонд с длительностью импульсов порядка 200 фс. Лазерная система для эксперимента с GaAs представляла собой лазер на красителе с синхронизацией мод встречных мод с длиной волны 620 нм, усиливаемого в усилителе на красителе с помощью лазера Nd:YAG (Иттрий-алюминиевый гранат легированный неодимом) с частотой 10 Гц. Часть усиленных импульсов, длительность которых составляла 80 фс, фокусировалась в струю этиленгликоля для генерации суперконтинуума (СК) белого света⁷, использующегося в

⁷СК — свет с очень широким спектром, более 0.5-1 мкм [112]. Впервые фемтосекундный СК был создан именно таким способом в 1983 году, когда Форк и соавторы сообщили об уширении спектра в диапазоне от

качестве зондирующего импульса. Часть континуума выделялась с помощью интерференционных фильтров и усиливалась для дальнейшего использования в качестве импульса накачки. Импульсы накачки и зондирования ортогонально поляризованы друг другу, а угол между ними составляет 15° друг к другу. Интенсивность накачки примерно в 100 раз превышает интенсивность зондирующего импульса.

Длина волны накачки была настроена на 832 нм, ниже экситонного резонанса. В дифференциальных спектрах пропускания в районе экситонного резонанса на ранних временах наблюдаются осцилляции. Причем структура осцилляций асимметрична: наибольший положительный пик расположен на высокоэнергетической стороне, а наибольший отрицательный пик — на низкоэнергетической стороне экситона соответственно. В более поздние моменты времени колебания приобретают характер дисперсии.

Осцилляции в дифференциальных спектрах пропускания полупроводников происходят вокруг экситона, а также вокруг центральной частоты накачки при резонансном межзонном возбуждении. Время дефазировки экситона при этом превышает длительность используемых фемтосекундных импульсов. Колебания вокруг частоты накачки можно рассматривать как возникающие в результате интерференции между зондом и той частью накачки, которая рассеивается в направлении зонда. Рассеяние вызывается решеткой возбуждения, генерируемой зондом, и большей частью импульса накачки. Кроме того, этот механизм не зависит критически от времени дефазировки и, следовательно, может наблюдаться и в системах с быстрой дефазировкой. Наблюдаемые осцилляции не являются артефактами, поскольку они возникают не только вокруг частоты накачки, но и в экситонной области, где центральные частоты накачки и зонда различны.

Кроме того, для минимизации такого паразитного сигнала используют ортогональные поляризации излучений накачки и зонда или невырожденную схему “накачка-зондирование-[114; 115].

Такой когерентный артефакт может быть хорошо смоделирован, кроме того, эти осцилляции можно подавить, если они мешают исследуемой динамике, с помощью двумерного метода фильтрации Фурье [109]. На рис. 1.19 показаны измеренные экспериментальные результаты дифференциального спектра

коротковолнового ультрафиолета до ближнего инфракрасного диапазона за счет фокусировки интенсивных импульсов длительностью 80 фс и длиной волны 627 нм от лазера на красителе в струю этиленгликоля [113]

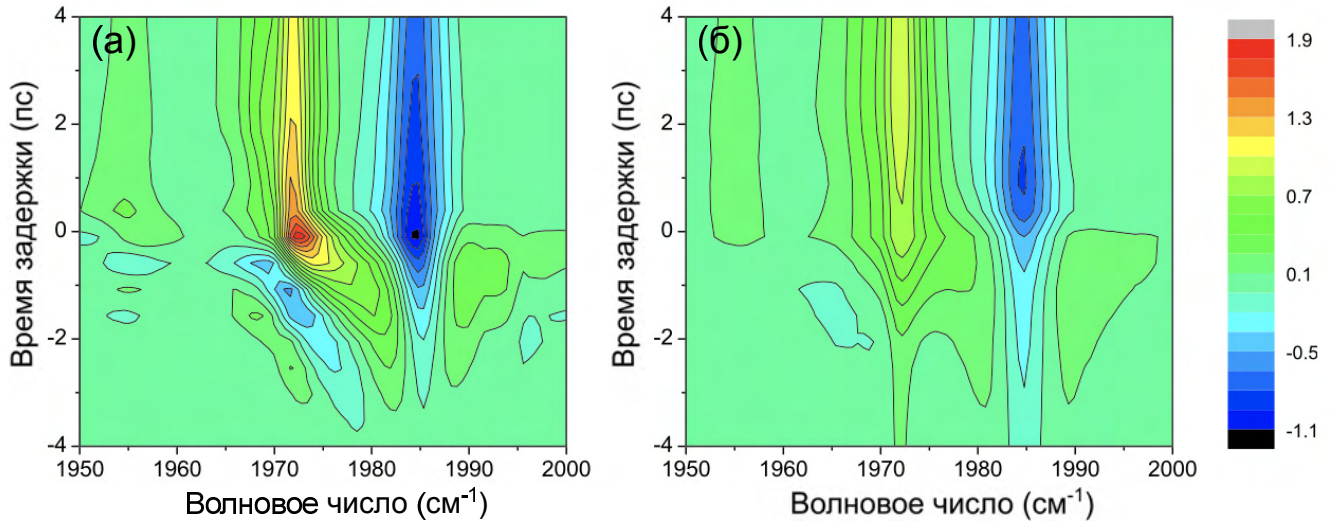


Рисунок 1.19 — (а) Экспериментальные данные до и (б) после процедуры 2Д-фильтрации Фурье. Осцилляции и когерентный пик успешно подавляются. [109]

поглощения молекулы с колебательными уровнями, а также эти результаты после фильтрации. Осцилляции при этом успешно подавляются, а также минимизируется когерентный всплеск около 0 пс. Кроме того, такая процедура фильтрации не влияет на долгосрочную динамику для больших положительных времен.

1.4 Изменение показателя преломления в полупроводниках за счет инжекции свободных носителей

Эффект заполнения зон, который в случае вырожденных полупроводников, то есть высоколегированных, известен как сдвиг Бурштейна-Мосса. В приближении параболичности зон в прямозонных полупроводниках изменение поглощения α_0 вблизи зоны принимает вид [116]:

$$\alpha_0 = \begin{cases} \frac{C}{E} \sqrt{E - E_g}, & E \geq E_g \\ 0, & E < E_g, \end{cases} \quad (1.2)$$

где $E = \hbar\omega$ — энергия фотона, E_g — энергия запрещенной зоны, а C — константа, включающая параметры материала, которую можно определить из экспери-

ментальных данных поглощения, аппроксимируя их уравнением (1.2). Валентная зона при этом является неоднозначной и имеет разные ветви для дырок с разными эффективными массами m_{eff} (рис. 1.4(a)), которые вносят свой вклад в процесс поглощения. При этом, чтобы учесть явную роль легких и тяжелых дырок в поглощении (с константами C_{lh} и C_{hh} и эффективными массами m_{lh} и m_{hh} соответственно), уравнение (1.2) надо переписать в виде:

$$\alpha_0 = \begin{cases} \frac{C_{hh}}{E} \sqrt{E - E_g} + \frac{C_{lh}}{E} \sqrt{E - E_g}, & E \geq E_g \\ 0, & E < E_g, \end{cases} \quad (1.3)$$

При этом C_{lh} и $C_{hh} \approx m_{eff}^{3/2}$ поэтому:

$$\begin{aligned} C_{hh} &= C \left(\frac{\mu_{ehh}^{3/2}}{\mu_{ehh}^{3/2} + \mu_{elh}^{3/2}} \right), \\ C_{lh} &= C \left(\frac{\mu_{elh}^{3/2}}{\mu_{ehh}^{3/2} + \mu_{elh}^{3/2}} \right). \end{aligned} \quad (1.4)$$

Где параметры μ_{elh} и μ_{ehh} — приведенные эффективные массы пар электрон-дырка:

$$\begin{aligned} \mu_{elh} &= \left(\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_{lh}} \right)^{-1}, \\ \mu_{ehh} &= \left(\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_{hh}} \right)^{-1}, \end{aligned} \quad (1.5)$$

а m_e , m_{lh} и m_{hh} — эффективные массы электронов, легких и тяжелых дырок соответственно.

Если $\alpha_0(E)$ — поглощение полупроводника с собственной проводимостью, а N и P — концентрации свободных электронов и дырок, то в случае инжекции свободных носителей поглощение полупроводника принимает вид:

$$\alpha(N, P, E) = \alpha_0(E)[f_v(E_a) - f_c(E_b)], \quad (1.6)$$

где E_a и E_b — энергия в валентной зоне и зоне проводимости соответственно, а $f_v(E_a)$ и $f_c(E_b)$, вероятность того, что состояние зоны валентной/проводимости с энергией E_a/E_b будет занято электроном. При этом из-за наличия нескольких

ветвей валентной зоны величины E_a и E_b принимают несколько значений:

$$\begin{aligned} E_{ah,al} &= (E_g - E) \left(\frac{m_e}{m_e + m_{hh,hl}} \right) - E_g, \\ E_{bh,bl} &= (E - E_g) \left(\frac{m_{hh,lh}}{m_e + m_{hh,hl}} \right). \end{aligned} \quad (1.7)$$

А вероятности $f_v(E_a)$ и $f_c(E_b)$ задаются функциями распределения Ферми-Дирака:

$$\begin{aligned} f_c(E_{bh,bl}) &= \left[1 + e^{(E_{bh,bl} - E_{F_c})/k_B T} \right], \\ f_v(E_{ah,al}) &= \left[1 + e^{(E_{ah,al} - E_{F_v})/k_B T} \right], \end{aligned} \quad (1.8)$$

где k_B — постоянная Больцмана, а T — абсолютная температура. E_{F_c} и E_{F_v} — зависящие от носителей квазиуровни Ферми:

$$\begin{aligned} E_{F_c} &= \left\{ \ln \left(\frac{N}{N_c} \right) + \frac{N}{N_c} \left[64 + 0.05524 \frac{N}{N_c} \left(64 + \sqrt{\frac{N}{N_c}} \right) \right]^{-1/4} \right\} k_B T, \\ E_{F_v} &= - \left\{ \ln \left(\frac{P}{N_v} \right) + \frac{P}{N_v} \left[64 + 0.05524 \frac{P}{N_v} \left(64 + \sqrt{\frac{P}{N_v}} \right) \right]^{-1/4} \right\} k_B T - E_g, \end{aligned} \quad (1.9)$$

где ноль энергии определяется как минимум в зоне проводимости. А N_v/N_c — эффективная плотность состояний в зоне валентной/проводимости:

$$\begin{aligned} N_v &= 2 \left(\frac{m_{dh} k_B T}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2}, \\ N_c &= 2 \left(\frac{m_e k_B T}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2}. \end{aligned} \quad (1.10)$$

$m_{dh} = (m_{hh}^{3/2} + m_{lh}^{3/2})^{2/3}$ — эффективная масса плотности состояний для дырок. Следует заметить, что формула 1.9 для E_{F_v} имеет другой вид, отличный от формулы (8b) [116] из-за опечатки в публикации.

Таким образом изменение поглощения, вызванное эффектом заполнения зон, учитывая уравнения (1.3) и (1.6), показано на рис. 1.20(а) и выражается в

виде:

$$\begin{aligned} \Delta\alpha(N, P, E) &= \alpha(N, P, E) - \alpha_0(E) = \\ &= \frac{C_{hh}}{E} \sqrt{E - E_g} [f_v(E_{ah}) - f_c(E_{bh}) - 1] + \frac{C_{lh}}{E} \sqrt{E - E_g} [f_v(E_{al}) - f_c(E_{bl}) - 1]. \end{aligned} \quad (1.11)$$

Механизм эффекта сокращения зоны или эффекта перенормировки в полупроводниках заключается в том, что при достаточно высокой концентрации свободных носителей (когда межчастичное расстояние сопоставимо с эффективным Боровским радиусом носителя) их волновые функции начинают перекрываться, приводя к экранированию и изменению энергии носителей, в результате чего уменьшается энергия края зоны проводимости, а энергия края валентной зоны увеличивается, приводя к изменению энергии запрещенной зоны на величину (показанную на рис. 1.20(б)):

$$\Delta E_g(N) = \begin{cases} \frac{\kappa}{\varepsilon_s} \left(1 - \frac{N}{N_{cr}}\right)^{1/3}, & N \geq N_{cr} \\ 0, & N < N_{cr}, \end{cases} \quad (1.12)$$

где $\kappa = 0.13$ — феноменологический параметр, $\varepsilon_s = 13.1$ — статическая относительная диэлектрическая проницаемость полупроводника GaAs, N_{cr} — критическое значение концентрации свободных носителей в $[\text{см}^{-3}]$, определяемое следующим выражением:

$$N_{cr} = 1.6 \times 10^{24} \left(\frac{m_e}{1.4\varepsilon_s} \right).$$

Стоит отметить, что новое значение E_g^* , это кажущаяся ширина запрещенной зоны $E_g^* = E_g + \Delta E_g$. Таким образом изменение поглощения, вызванное эффектом сокращения зоны выражается в виде:

$$\Delta\alpha(E, N_{cr}) = \frac{C}{E} \sqrt{E - E_g - \Delta E_g(N_{cr})} - \frac{C}{E} \sqrt{E - E_g}, \quad (1.13)$$

Так как действительная и мнимая части комплексного показателя преломления $\hat{n} = n + i\kappa$ являются зависимыми и связаны соотношением Крамерса-Кронига, а $\alpha = 4\pi\kappa/\lambda$ (κ — коэффициент экстинкции), то любое изменение коэффициента поглощения $\Delta\alpha$ сопровождается изменением действительной части показателя преломления Δn . Таким образом индуцированное изменение

действительной части показателя преломления выражается через изменение коэффициента поглощения в следующем виде:

$$n(E) = 1 + \frac{2c\hbar}{e^2} PV \int_0^{\infty} \frac{\alpha(E')}{E'^2 - E^2} dE', \quad (1.14)$$

где c — скорость света, e — заряд электрона, $E = \hbar\omega$ — энергия фотона, а PV — главное значение интеграла.

Из уравнений 1.11 и 1.13 для изменений коэффициента поглощения $\Delta\alpha$ и используя выражение Крамерса-Кронига 1.14 можно рассчитать изменения показателя преломления:

$$\Delta n(N, P, E) = n(N, P, E) - n_0(E) = \frac{2c\hbar}{e^2} PV \int_0^{\infty} \frac{\Delta\alpha(N, P, E')}{E'^2 - E^2} dE', \quad (1.15)$$

Для этих двух межзонных эффектов наибольшие изменения показателя преломления происходят вблизи запрещенной зоны. Вследствие большого количества инжектированных электронов, начинает вносить вклад в изменение показателя преломления и внутризонный эффект поглощения свободных носителей или плазменный эффект, который играет огромную роль в металлах, но также может быть существенен и в полупроводниках.

Изменение действительной части показателя преломления, обусловленное поглощением свободных носителей, согласно модели Друде представлено на рис. 1.20(в) и записывается следующим образом [117]:

$$\Delta n_{\text{Dr}}(N, E) = -\frac{r_0}{2\pi n E^2} \left\{ \frac{N}{m_e} + P \left(\frac{m_{hh}^{1/2} + m_{lh}^{1/2}}{m_{hh}^{3/2} + m_{lh}^{3/2}} \right) \right\}, \quad (1.16)$$

где n — показатель преломления полупроводника, $r_0 = 1/(4\pi\epsilon_0) \cdot e^2/(m_0c^2) = 2.8 \times 10^{-13}$ см — классический радиус электрона, E — энергия фотона в $[\text{см}^{-1}]$.

При этом следует рассматривать эффекты зависимым образом, то есть необходимо оценивать заполнение зоны носителями, но в случае уже смещенной запрещенной зоны вследствие ее сокращения из-за эффекта экранировки.

Относительные величины трех эффектов и общее изменение показателя преломления показаны на рис. 1.20(в) для концентрации носителей $3 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$ в полупроводнике InP с энергией запрещенной зоны $E_g = 1.34$ эВ. Наибольшие

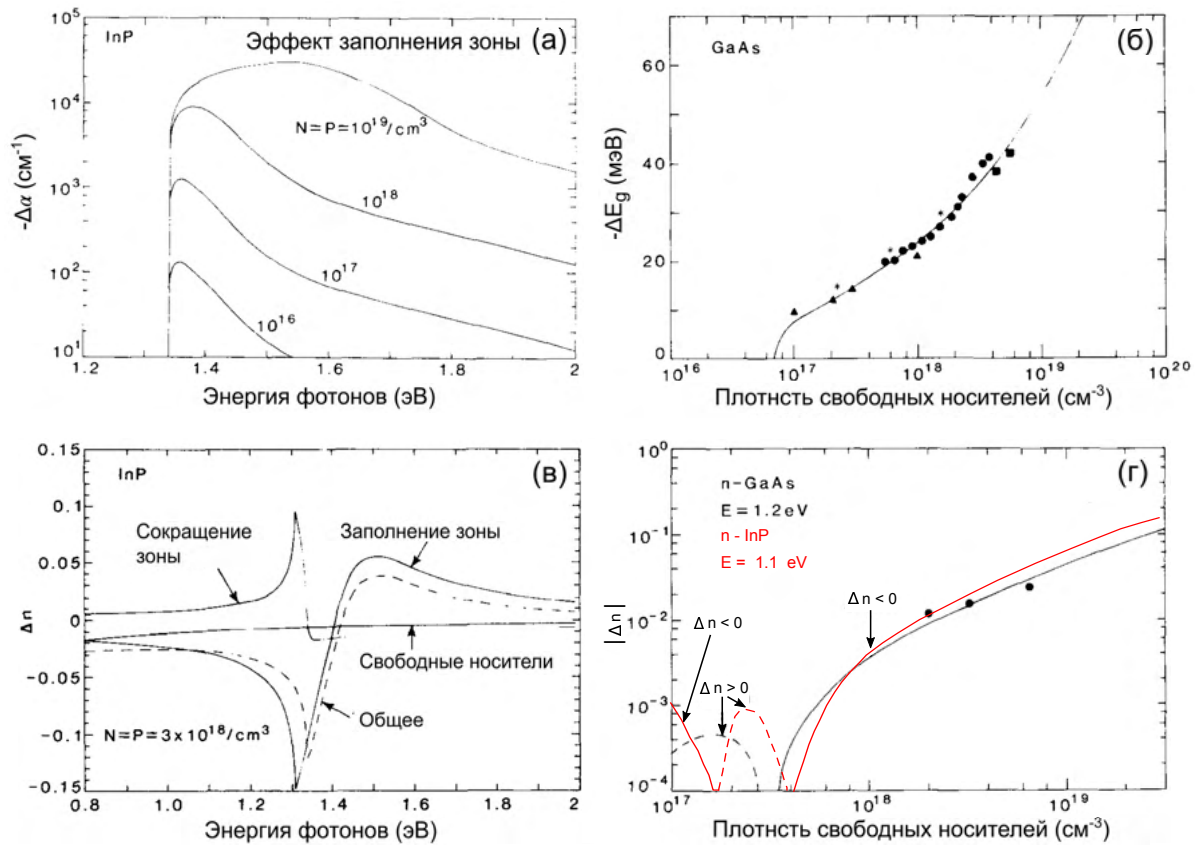


Рисунок 1.20 — (а) Изменение поглощения за счет инжекции свободных носителей приводящее к эффекту заполнения зон в InP (рассчитано с помощью ур. 1.11). (б) Эффект сокращения запрещенной зоны в GaAs.

Сплошная кривая рассчитана с помощью ур. 1.12 при $\kappa = 0.13$ и $N_{cr} = 7 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$, точки — величины взятые из экспериментальных работ. (в) Рассчитанные изменения показателя преломления в результате связанных эффектов заполнения зон, сокращения запрещенной зоны и поглощения свободных носителей при инжекции в InP ($N = P = 3 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$). (г) Сравнение расчетных (черная кривая) и экспериментальных данных (точки) Δn в зависимости от плотности свободных носителей для n-GaAs при 1.2 эВ. Красная кривая соответствует расчетам Δn для n-InP при 1.1 эВ.

изменения происходят в районе запрещенной зоны и для большой концентрации носителей доминирующий вклад дает эффект заполнения зон.

На рис. 1.20(г) также представлено аналитически рассчитанное из вышеуказанных формул общее изменение показателя преломления (черная кривая для GaAs при 1.2 эВ и красная кривая для InP при 1.1 эВ) и сравнение с экспериментальными данными для GaAs (черные точки) в случае изменений, вызванных легированием. Для большой концентрации носителей, а именно для

$N > 10^{18} \text{ см}^{-3}$ доминирующий вклад вносит эффект заполнения зон и поэтому $\Delta n < 0$.

Глава 2. Эффект насыщения поглощения в метаповерхностях на основе арсенида галлия

Наноструктурированные материалы позволяют получить новые свойства, не характерные для исходных неструктурированных материалов, такие как усиление линейно-оптического и нелинейно-оптического откликов, делая такие структурированные материалы очень привлекательными для применения в качестве различных нанопотонных устройств. Полупроводниковая метаповерхность, представляющая собой квазиплоскую структуру в виде периодического массива и демонстрирующая усиление линейных и нелинейно-оптических свойств, может быть использована в качестве насыщающегося поглотителя. При создании такой метаповерхности могут быть использованы технологии, полностью совместимые с производством современной микроэлектроники, что значительно упрощает внедрение новых фотонных устройств в существующие системы, а компактные размеры структурированных материалов являются бесспорным преимуществом их использования.

В данной главе с помощью установки для измерения интенсивности фемтосекундных импульсов, отраженных от структуры, как функции падающей мощности были проведены исследования для демонстрации использования метаповерхностей в качестве насыщающихся поглотителей. Длина волны импульсов должна быть достаточно близкой к запрещенной зоне прямозонного полупроводника для более значительного изменения поглощения вследствие генерации свободных носителей под действием лазерного излучения [17].

2.1 Образцы метаповерхностей из арсенида галлия

Структура представляет собой массив наноантенн, изготовленных из материала с высоким показателем преломления, расположенный на подложке GaAs. В качестве формы наноантенн была выбрана форма диска, что позволяет возбуждать в такой системе коллективные моды в ближнем инфракрасном диапазоне, а изменяя диаметр или высоту диска можно варьировать положения

резонанса. При этом подложка является непрозрачной в данном диапазоне, из-за чего возможны эксперименты только в отражательной геометрии. Характерный вид структуры представлен на рис. 2.1.

2.1.1 Проектирование метаповерхностей

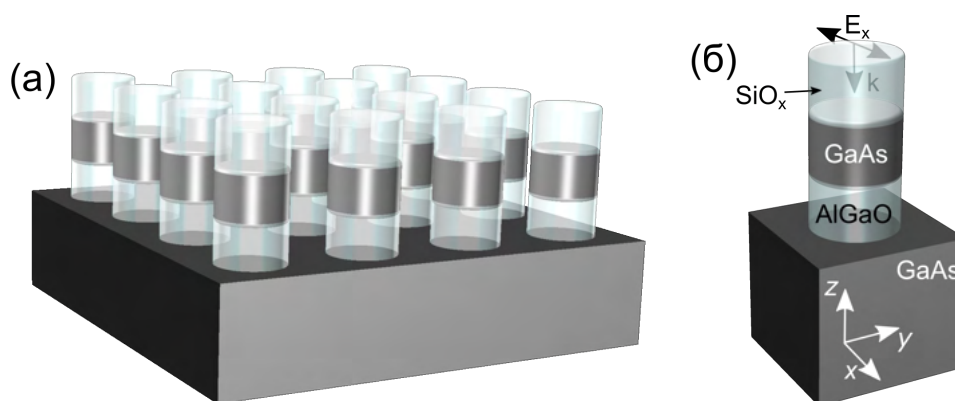


Рисунок 2.1 — (а) Схематическое изображение дизайна метаповерхности. Темным цветом изображен арсенид галлия (GaAs), светлым — оксиды. (б) Структура наноантенны: GaAs на подложке GaAs с промежуточным слоем оксида AlGaO для контраста показателей преломления, сверху структуры оксидный слой SiO_x.

В качестве основного материала метаповерхности был выбран широко используемый прямозонный полупроводник арсенид галлия, а в качестве элементарной ячейки для удобства оптимизации геометрических параметров был выбран диск. Схематичное представление метаповерхности дано на рис. 2.1. Арсенид галлия на рисунке изображен темным цветом, светлым цветом показаны оксиды, представляющие собой дополнительные слои, так как изготовление подобной метаповерхности не является тривиальным и требует вспомогательных слоев для получения эффективных резонансных свойств.

Методом конечных разностей во временной области (FDTD), с помощью коммерческого пакета программного обеспечения Lumerical FDTD Solutions была смоделирована метаповерхность, в которой возможно возбуждение резонансов типа Ми, и рассчитаны спектры отражения и распределения электромагнитных полей для такой структуры. На рис. 2.2 показаны спектры отражения

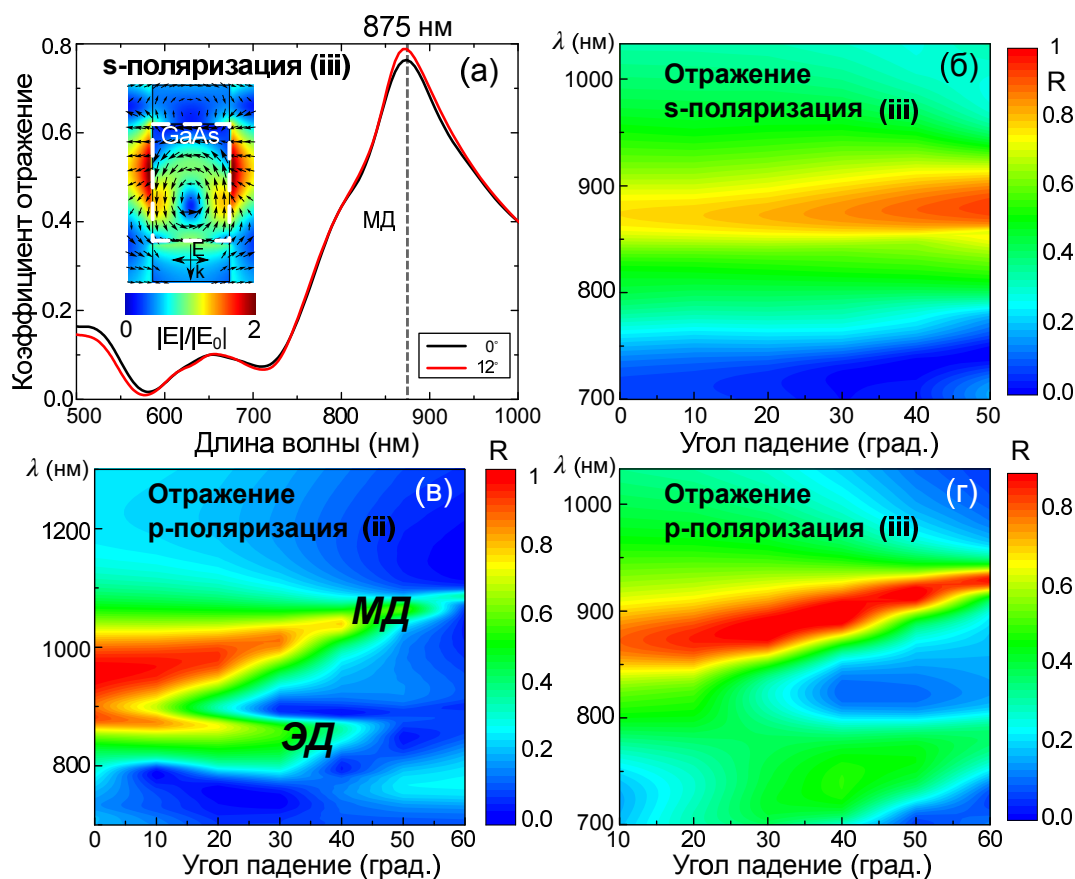


Рисунок 2.2 — Расчеты спектров отражения для метаповерхности с резонансами в ближней ИК области для двух ортогональных поляризаций падающего электромагнитного излучения (s- и p-поляризация). (а) Спектр отражения при нормальном угле падения θ и при $\theta = 12^\circ$ для метаповерхностей со следующими параметрами: (iii) диаметр дисков $d = 196$ нм, период $P = 238$ нм и (ii) — $d = 238$ нм, период $P = 480$ нм. Вертикальной штриховой прямой обозначена длина волны резонанса, соответствующая максимуму коэффициента отражения образца $\lambda_R = 875$ нм. Вставка: интенсивность электрического поля $|E|^2$ (представлено цветом: красным показан максимум, синим — минимум) для длины волны падающего излучения $\lambda = 875$ нм, черные стрелки соответствуют направлению электрического поля E . Прямоугольник, отмеченный белыми штриховыми линиями, соответствует области полупроводника GaAs (вид сбоку на элементарную ячейку на рис. 2.1(б)). Сечение распределения электрического поля было взято по центру GaAs. Спектр отражения для (iii) метаповерхности при s-поляризации падающего излучения (б) и при p-поляризации для (ii) метаповерхности (в). (г) Спектр отражения при p-поляризации падающего излучения для (iii) метаповерхности.

для двух линейных поляризаций и для углов падения излучения в диапазоне от $\theta = 0$ до $\theta = 60$ градусов для двух метаповерхностей с различными геометрическими параметрами. Параметры структур, использованных в расчетах: диаметр диска $d = 196$ нм и период $P = 385$ нм для (iii) структуры и $d = 238$ нм и $P = 480$ нм для (ii) структуры, высота диска 300 нм, верхнего оксида — 200 нм, нижнего — 330 нм, толщина подложки бралась на порядок больше толщины диска арсенида галлия. В качестве значений дисперсии арсенида галлия были взяты экспериментальные данные Палика [118], показатели преломления верхнего и нижнего оксида были взяты постоянными ввиду незначительной дисперсии n в заданном спектральном диапазоне и равны $n = 1.45$ и $n = 1.6$ соответственно. Для моделирования периодической структуры метаповерхности использовались периодические граничные условия, а в направлении z — поглощающие граничные условия. Плоская волна была направлена сверху под нормальным или наклонным углом падения с поляризацией в плоскости диска (внизу вставки на рис. 2.2(а) стрелками указано направление вектора E и k).

На рис. 2.2(а) длинноволновый пик в спектре коэффициента отражения соответствует магнитодипольному (МД) резонансу типа Ми, так как рассчитанные распределения электрического и магнитного поля внутри диска имеют характерный для такой моды вид (вставка на рисунке). Для структуры с большими диаметрами и периодом при больших углах падения наблюдаются хорошо разделенные фундаментальные моды — ЭД (электродипольный резонанс) и МД (рис. 2.2(в)). Расчеты для s-поляризованного падающего излучения показывают, что положение максимума резонанса не зависит от угла падения на структуру.

2.1.2 Изготовление метаповерхностей

Образцы были изготовлены Г. Пиком и Г. Килером в Национальных лабораториях Сандиа, США (G. Peake, G. Keeler, Sandia National Laboratories). В ходе расчетов были определены оптимальные параметры структур, в которых возможно возбуждение резонансов типа Ми в ближнем ИК-диапазоне. Исходя из этих параметров, была изготовлена серия образцов метаповерхностей из пря-

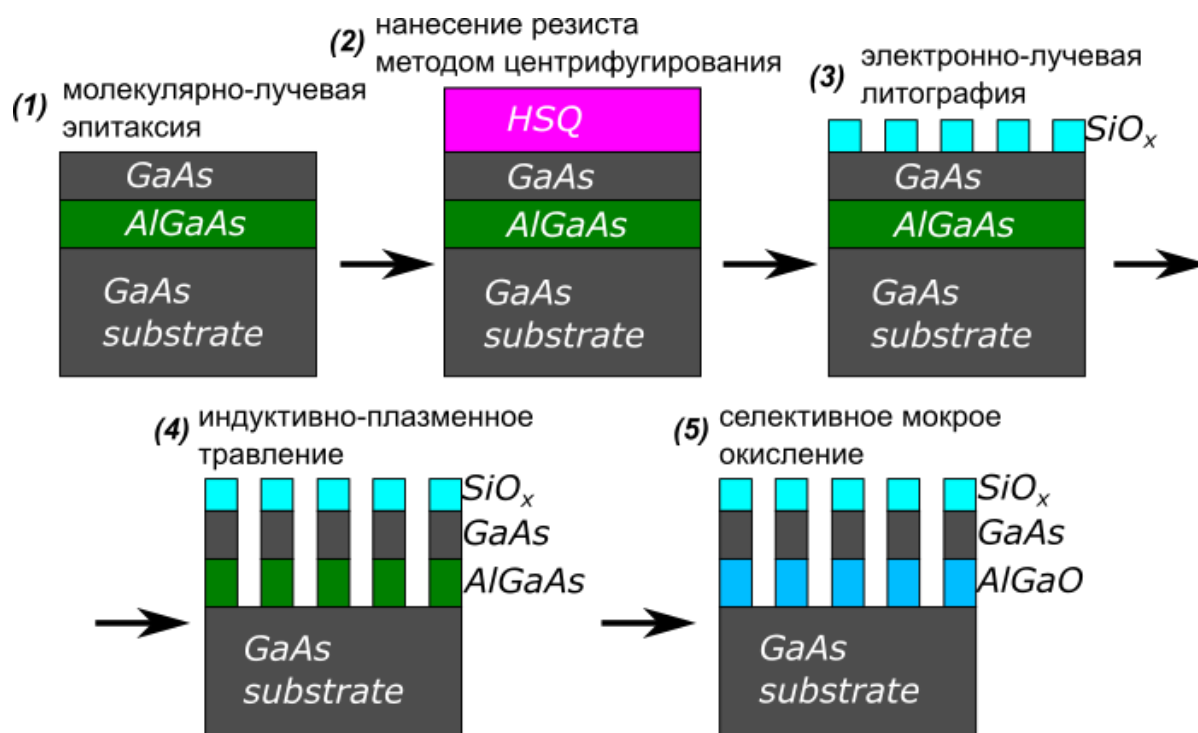


Рисунок 2.3 — Основные этапы процесса изготовления наноструктур на основе III-V полупроводниковых материалов [13].

мозонного полупроводника арсенида галлия (GaAs) для экспериментального наблюдения эффекта насыщения. Структура представляет собой периодический массив нанодисков GaAs, изготовленный с помощью методики с использованием упрощенной схемы создания маски травления [13]. Применялась полимерная маска из класса водород-силсесквиоксана (hydrogen silsesquioxane — HSQ), которая в отличие от органических масок выдерживает высокую температуру процесса окисления, обычно составляющую 900°C и выше, кроме того, маска должна обладать низкими оптическими потерями, так как может частично остаться на изготовленной структуре. Помимо этого, HSQ уже давно применяется в полупроводниковой промышленности как материал с небольшой диэлектрической проницаемостью относительно диоксида кремния, а также широко используется в качестве отрицательного электронного резиста и позволяет получить высокое разрешение порядка 10 нм в фотолитографии и электронно-лучевой литографии, а при специальных методиках достичь разрешение и менее 5 нм. Использование резиста HSQ, который может быть легко структурирован с помощью электронно-лучевой литографии, дает возможность упростить дополнительный этап создания маски травления, кроме того, отжиг HSQ при высоких температурах в богатой кислородом среде или электронно-лучевое экспонирование HSQ позволяют получить из него стеклообразное соединение с хорошими

оптическими свойствами, что может быть использовано также и при создании волноводных структур [119]. Основные этапы изготовления таких структур на основе прямозонных полупроводников представлены на рис. 2.3. Первым этапом на подложке объемного GaAs с кристаллической осью (100) с помощью молекулярно-лучевой эпитаксии растится примерно 300 нм слой $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, где ($x = 0.85$), поверх которого происходит рост слоя GaAs такой же толщины. Затем слой GaAs с помощью метода центрифугирования (spin-coating) покрывается слоем резиста (HSQ Fox-16) толщиной порядка 500 нм, структурирование которого затем выполняется с помощью электронно-лучевой литографии, при этом экспонировании происходит преобразование слоя HSQ в диски SiO_x , которые используются в качестве маски для индуктивно-плазменного травления в хлоре. Так как $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, имеет достаточно высокий показатель преломления, близкий к показателю преломления GaAs, а для получения эффективных резонансных свойств структуры необходим контраст показателей преломления, то используется селективный процесс окисления в жидкости, который позволяет получить из $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ оксид в виде $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$ с более низким показателем преломления со значением, близким к значению показателя преломления оксида кремния. При такой методике изготовления метаповерхностей на дисках GaAs остается верхний слой оксидных дисков SiO_x , снятие которых является сложным процессом, а их наличие из-за большой разницы показателей преломления с GaAs не оказывает сильного влияния на оптические свойства метаповерхности.

Параметры масок для структурирования и создания серии метаповерхностей имели диапазон диаметров от 140 до 480 нм и 2 типа скважности (отношение диаметра диска к периоду массива) — 40% и 50%, чтобы получить метаповерхности с нужными оптическими свойствами, так как из-за особенностей индуктивно-плазменного травления параметры полученных дисков могут отличаться от параметров маски. Толщина материалов при этом составила 300 нм для GaAs, 330 нм для оксидного слоя AlGaO и 200 нм для верхнего слоя оксида кремния. Размеры изготовленных метаповерхностей были определены при помощи растровой электронной микроскопии и составили значения большие по сравнению с размерами масок. Значения диаметров, извлеченные из изображений микроскопии, оказались от 220 до 380 нм. На рис. 2.4 представлены изображения растровой электронной микроскопии для нескольких метаповерхностей

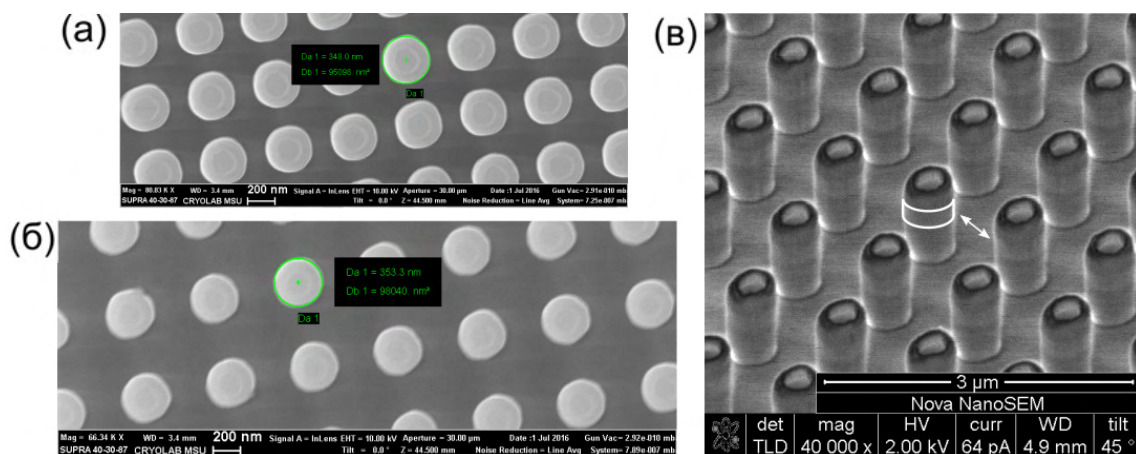


Рисунок 2.4 — Характерный вид образца метаповерхности в растровом электронном микроскопе: светло-серые области соответствуют материалу GaAs. (а) Вид сверху на метаповерхность (ii) с диаметром 350 нм и скважностью 50 %. (б) Метаповерхность (i) с диаметром 350 нм и скважностью 40 %. (в) Метаповерхность (iii), вид сбоку; белой линией и стрелкой показана более светлая область с GaAs.

различной скважности. Для изображения “вид сбоку” на рис. 2.4(в) наблюдается небольшое различие контраста материалов, составляющих метаповерхность, демонстрирующее характерную структуру образца: более светлые области в центре цилиндра, также показанные белой линией на одном из цилиндров, соответствуют полупроводнику GaAs с более высоким показателем преломления.

2.2 Линейная спектроскопия коэффициента отражения метаповерхностей из арсенида галлия

2.2.1 Экспериментальная установка для измерения спектров отражения

Для оптической характеристики резонансов изготовленных метаповерхностей была собрана схема линейной спектроскопии коэффициента отражения в видимом диапазоне (схема аналогична схеме, представленной в главе 4 раздела 4.2.1). В качестве источника света использовалась вольфрамовая галогеновая

лампа накаливая. Набор линз и диафрагм использовался для получения изображения источника света в плоскости образца с наибольшей и равномерной освещенностью. Для фокусировки света на образец использовалась дополнительная собирающая линза для получения меньшего диаметра перетяжки, так как размер массива составляет порядка 500×500 мкм. При этом наименьший возможный угол падения света на образец при измерении спектров отражения составил 12° , а наибольший 60° . С помощью поляризатора, установленного во вращающуюся оправу, возможно измерение спектров для различных линейных поляризаций. При измерениях использовались две ортогональные поляризации: s-поляризация (колебания вектора E перпендикулярны плоскости падения света) и p-поляризация (колебания лежат в плоскости падения света). Образец был помещен на гониометр для возможности измерения коэффициентов отражения при различных углах падения и на трехмерный линейный транслятор для изменения положения образца относительно перетяжки и перемещения между массивами. Для нормировки спектров отражения и получения

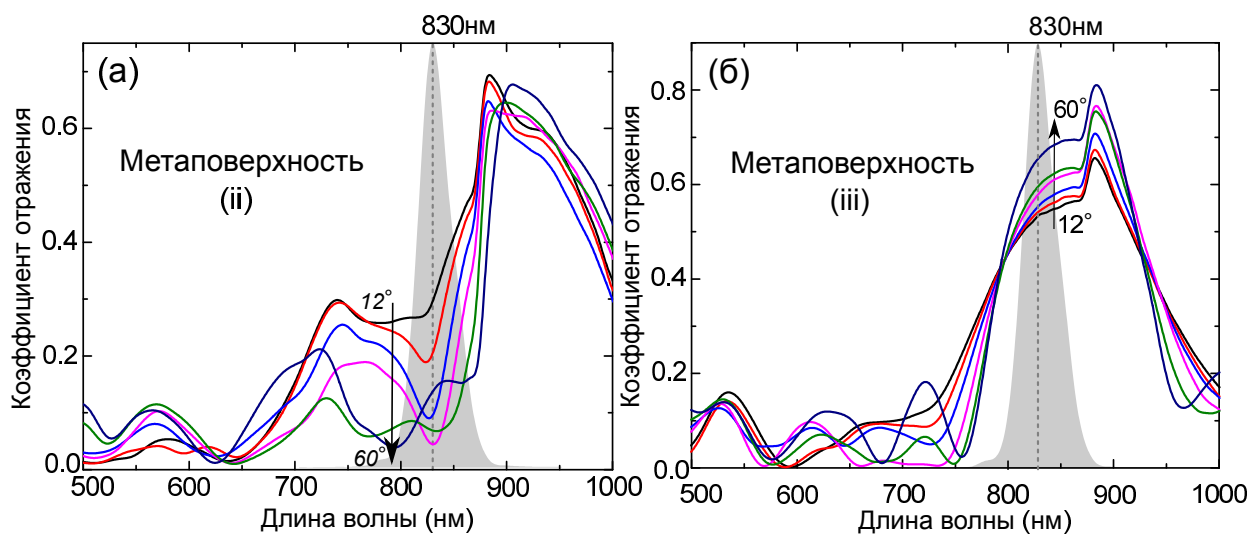


Рисунок 2.5 — Спектры отражения для метаповерхностей при s-поляризации падающего электромагнитного излучения в диапазоне углов падения света от $\theta = 12$ до $\theta = 60^\circ$. (а) Спектры отражения для (ii) метаповерхности с диаметрами дисков GaAs $d = 238$ нм и периодом $= 480$ нм. (б) Спектры отражения для (iii) метаповерхности с диаметрами $d = 196$ нм и периодом $= 385$ нм. Черными стрелками показано направление изменения спектров отражения при увеличении угла падения. Серая область показывает спектр лазерного импульса.

абсолютных единиц коэффициента отражения вместо образца помещалось серебряное зеркало.

На рис. 2.5 показаны экспериментальные спектры отражения для метаповерхностей при s-поляризации падающего электромагнитного излучения в диапазоне углов падения света от 12 до 60 град. Слева на рисунке представлены спектры отражения для метаповерхности с большими диаметрами дисков GaAs 238 нм и периодом 480 нм. Исходя из модельных спектров отражения, полученных при выполнении работы по численной оптимизации образцов насыщающихся поглотителей на основе полупроводниковых метаповерхностей, и распределению локального электрического поля, демонстрирующего характерный профиль магнитодипольного резонанса Ми-типа в частицах, можно сделать вывод, что основной пик на 950 нм соответствует возбуждению МД моды в диске GaAs. Для случая s-поляризованного излучения при увеличении угла падения положение резонанса не меняется, в отличие от случая р-поляризованного излучения (рис. 2.7д). Справа на рис. 2.5 представлены спектры отражения для метаповерхности с меньшими диаметрами 196 нм и периодом 385 нм. Положение МД резонанса Ми-типа соответствует длине волны порядка 875 нм и также не изменяется при увеличении угла падения только в случае s-поляризованного излучения. На графиках черными стрелками показаны направления изменения спектров отражения при увеличении угла падения.

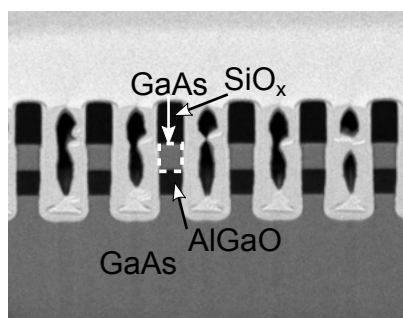


Рисунок 2.6 — Изображение среза образца метаповерхности в растровом электронном микроскопе: светло-серые области соответствуют материалу GaAs.

Для образцов с меньшими диаметрами положение МД моды соответствует длинам волн, лежащих ниже края поглощения GaAs (870 нм), и в результате межзонного поглощения в GaAs резонансы имеют низкую добротность (см. (iv) метаповерхность на правой панели рис. 2.14).

Диаметры дисков GaAs, полученные путем сопоставления расчетов методом конечных разностей во временной области (FDTD) и спектров линейного отклика, составили величины меньшие, чем величины дисков, полученные из изображений микроскопии “вид

сверху”. Это расхождение связано с тем, что диск диоксида кремния, находящийся сверху дисков GaAs и AlGaAs, из-за особенностей травления имеет больший диаметр. На рис. 2.6 показан срез образца. Помимо этого, из-за особенностей индуктивно-плазменного травления на подложке образуется пьедестал из GaAs, что также не оказывает значительного эффекта на оптические свойства метаповерхности, но может несколько видоизменять результат, полученный при численном моделировании метаповерхностей.

2.2.2 Сравнение модельных спектров отражения метаповерхностей с экспериментальными спектрами

На рис. 2.7 представлено сравнение рассчитанных спектров отражения метаповерхностей с экспериментальными спектрами для двух линейных поляризаций падающего электромагнитного излучения в диапазоне углов падения от 0 до 60 град. Расчетные графики являются повтором графиков, изображенных на рис. 2.2, и представлены для удобства сравнения и визуализации. Для (iii) метаповерхности (рис. 2.7(а),(б)), как и для (ii) метаповерхности (рис. 2.7(д),(е)), положение МД-резонанса в случае р-поляризованного излучения смещается в длинноволновую часть спектра при увеличении угла падения. В то время как для s-поляризованного излучения положение резонанса не меняется при изменении угла (рис. 2.7(в),(г)). При этом так как диаметры дисков (ii) метаповерхности больше, чем для (iii) метаповерхности, положение МД моды для такой структуры имеет бóльшую центральную длину волны резонанса. Экспериментальные данные демонстрируют очень хорошее согласие с результатами численным моделированием. Таким образом, в серии изготовленных образцов есть 3 метаповерхности с наибольшими значениями диаметров, в которых возможно возбуждение МД моды вблизи края запрещенной зоны, а для максимального эффекта насыщения поглощения резонанс структуры должен располагаться вблизи запрещенной зоны полупроводника. При этом для s-поляризованного излучения положение резонанса не изменяется, что позволяет использовать метаповерхность в широком диапазоне углов падения.

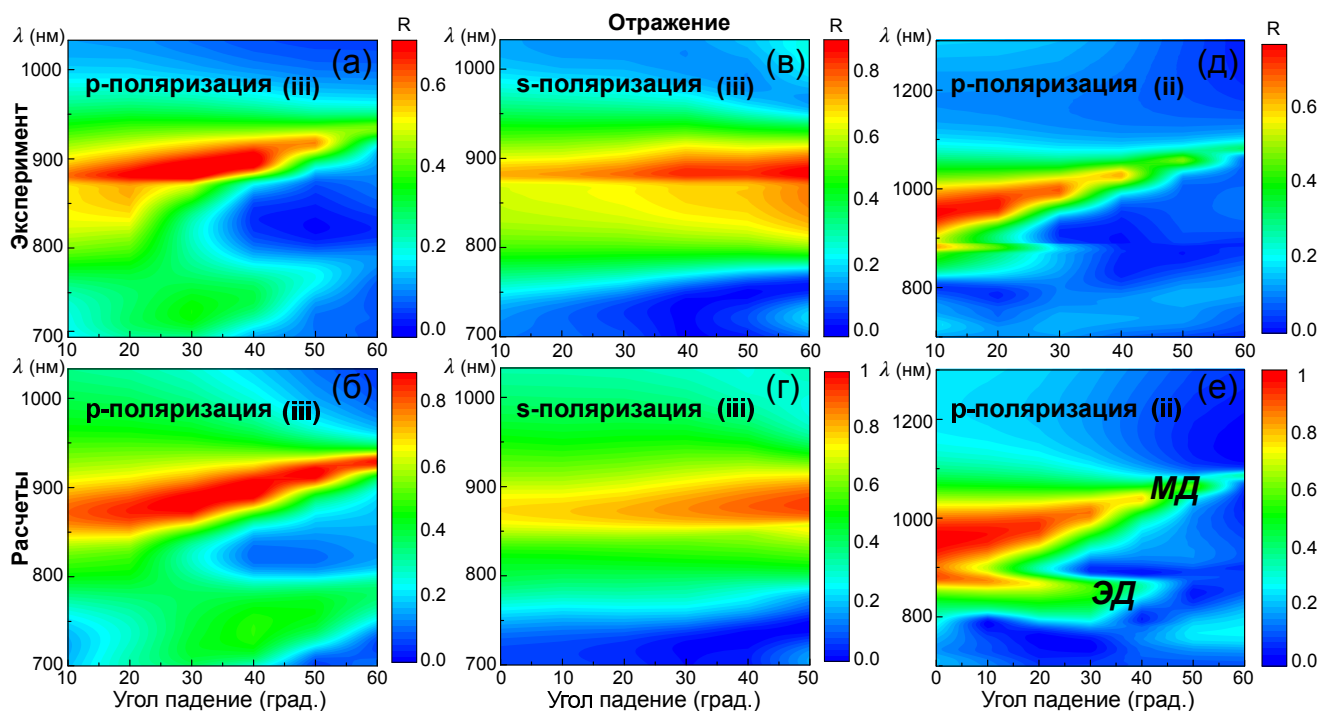


Рисунок 2.7 — Сравнение рассчитанных ранее спектров отражения метаповерхностей с экспериментальными спектрами для двух ортогональных поляризаций падающего электромагнитного излучения (s и p-поляризация) и диапазона углов падения от $\theta = 0$ до $\theta = 60^\circ$. (а)-(г) Спектры отражения для (iii) метаповерхности с диаметрами дисков GaAs $d = 196$ нм и периодом $= 385$ нм. (д)-(е) Спектры отражения для (ii) метаповерхности с диаметрами $d = 238$ нм и периодом $= 480$ нм.

Расчет спектроскопии одиночного нанодиска арсенида галлия и его мультипольных вкладов, а также массива нанодисков

Кроме того, очень важно определить вклады мультипольных моментов при определении резонансных особенностей, обнаруживаемых в спектрах отражения. Был проведен дополнительный мультипольный анализ для одиночного GaAs-диска тех же размеров с диаметром $d = 195$ нм с использованием пакета программ FDTD для дискретизации дифференциальных уравнений Максвелла для их последующего решения (рис. 2.8). Как видно из рис. 2.8, главный мультипольный момент резонанса, который и представляет наибольший интерес, на самом деле является магнитным диполем, хотя также присутствует заметное количество электрического квадрупольного момента. Также был проведен мультипольный анализ для больших диаметров $d = 240$ и $d = 250$ нм, который показал анало-

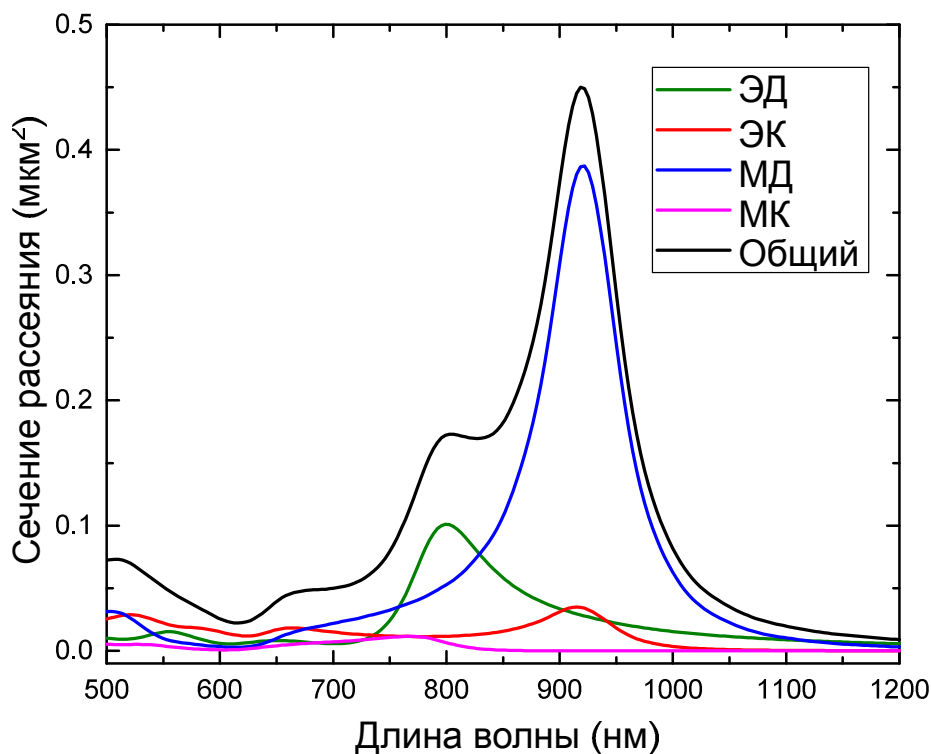


Рисунок 2.8 — Сечение рассеяния для одиночного диска GaAs в воздухе с диаметром $d = 195$ нм (диаметр диска соответствует диаметру дисков (iii) метаповерхности) для электрического диполя (ЭД — зеленая кривая), магнитного диполя (МД — синяя кривая), электрического квадруполь (ЭК — красная кривая) и магнитного квадруполь (МК — розовая кривая) и общее сечение рассеяние (черная кривая).

гичные результаты, но спектры мультиполей, как и ожидалось, при этом смещаются в длинноволновую область с увеличением диаметров. Следует, однако, отметить, что такой анализ для одиночного диска дает только грубую оценку мультипольного разложения для случая периодической структуры на подложке. В качестве дополнительного доказательства справедливости этого метода было проанализировано, как подложка и периодичность влияют на положение мультиполей. Это хорошо видно для доминирующих мультиполей электрического диполя (ЭД) и магнитного диполя (МД) при изменении периода структуры (рис. 2.9). С увеличением периода взаимодействие между дисками уменьшается, и пики ЭД- и МД-резонансов становятся различимыми, и результат становится ближе к случаю одиночного диска. Основываясь на результатах мультипольного разложения и на зависимости спектров отражения от периода структуры, предполагается, что природа резонансов для метаповерхности такая же, как и для одиночных дисков. Такие результаты получены как для эксперимента, так

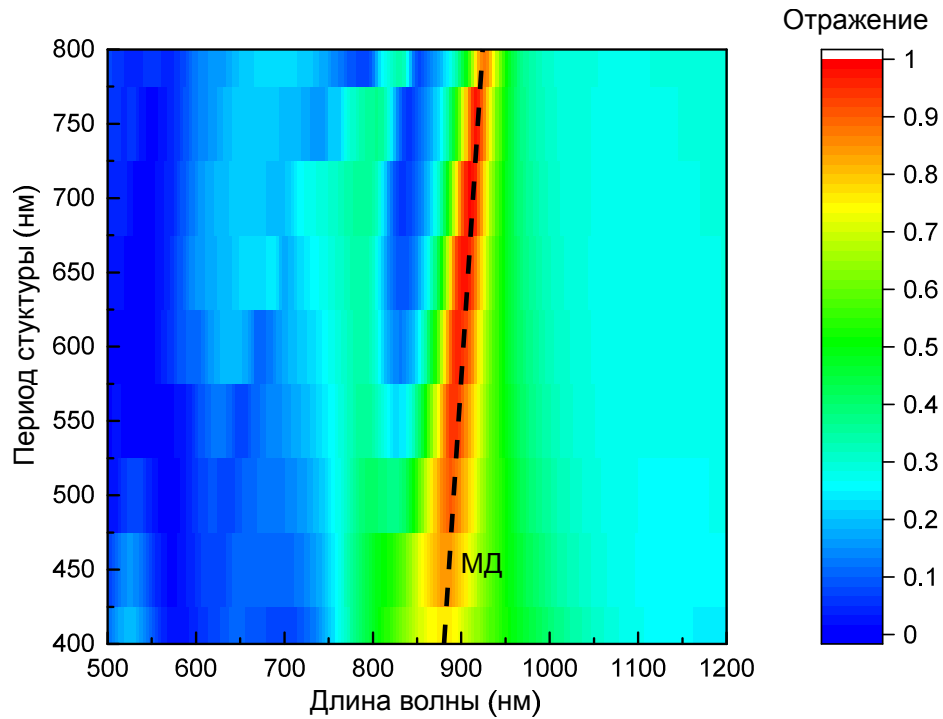


Рисунок 2.9 — Коэффициент отражения для метаповерхности с $d = 195$ нм. Период структуры 400 нм соответствует периоду метаповерхности (iii).

и для расчетов (рис. 2.14(б) 3 верхних панели, серая пунктирная кривая указывает на положение МД резонанса, черная — на ЭД резонанс). Диаметры (i) и (ii) метаповерхностей близки по размерами ($d_{(i)} = 250$ нм и $d_{(ii)} = 240$ нм), но периоды структур разные ($P_{(i)} = 635$ нм и $P_{(ii)} = 480$ нм). Поскольку распределения электрического и магнитного полей типичны для резонансов ЭД и МД (резонанс ЭД отчетливо виден для (i) метаповерхности при нормальном падении (рис. 2.14(б) коричневые кривые), а также для (ii) метаповерхности для р-поляризации падающего света под большими углами (рис. 2.7(д),(е)), когда резонанс МД смещается далеко от ЭД. Таким образом, можно сделать вывод, что МД-резонанс вносит доминирующий вклад в спектры отражения вблизи используемых в дальнейшем длин волн лазера, так ЭД резонанс вблизи МД имеет пренебрежимо малое значение.

2.3 Экспериментальное исследование эффекта насыщения поглощения в метаповерхностях из арсенида галлия

Для исследования эффекта насыщения в полупроводниковых метаповерхностях была собрана установка для измерения интенсивности фемтосекундных импульсов, отраженных от структуры, как функции падающей мощности.

2.3.1 Схема экспериментальной установки I-сканирования

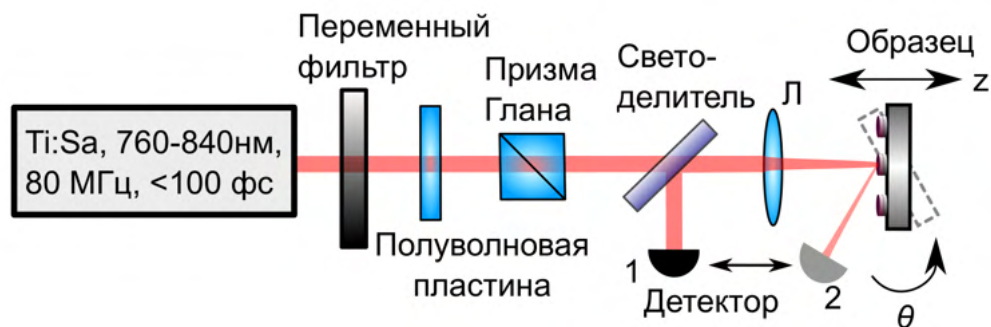


Рисунок 2.10 — Схема для I-сканирования: измерение коэффициента отражения как функции мощности падающего излучения.

На рис. 2.10 схематично представлено расположение элементов для измерения интенсивности безапертурным методом (*I*-скан). Существует два основных метода *I*-сканирования для характеристики оптической нелинейности образцов третьего порядка: *I*-сканирование с открытой апертурой и *I*-сканирование с закрытой апертурой [120]. Основное отличие этих методов заключается в апертуре, которая размещается перед детектором, регистрирующим проходящие лазерные импульсы. *I*-скан с открытой апертурой используется для характеристики нелинейного поглощения и насыщения поглощения, а *I*-скан с закрытой апертурой (в этом случае апертура частично закрыта и можно зарегистрировать смещение сигнала) используется для характеристики нелинейной рефракции. Так как в данной работе основной интерес представляет исследование эффекта насыщения поглощения, то используется схема *I*-сканирования с открытой апертурой (безапертурный метод). В качестве

источника излучения используются фемтосекундные импульсы титан-сапфирового лазера со средней выходной мощностью 250 мВт и частотой следования 80 МГц. Лазерное излучение проходит через фильтр с переменной плотностью для плавного изменения падающей мощности в диапазоне от 0,01 до 40 мВт, широкополосную полуволновой пластину (спектральный диапазон 600-1100 нм) для поворота плоскости поляризации и призму Глана для устранения эллиптичности поляризации. Комбинация из полуволновой пластины и призмы Глана также используется для существенного уменьшения падающей мощности. Неполаризационный светоделитель и фотодетектор в положении 1, как показано на рис. 2.10, позволяет измерять интенсивность отраженных импульсов при нормальном падении. Положение 2 фотодетектора допускает измерение отражения при наклонных углах падения излучения от 12 до 60 град. Для устранения хроматических aberrаций лазерные импульсы фокусируются линзовым дуплетом, с фокусным расстоянием $f = 45$ мм, в плоскости образца в пятно диаметром ≈ 20 мкм. Образец располагается на гониометре для возможности измерения коэффициентов отражения при различных углах падения и на трехмерном линейном трансляторе — для изменения положения образца относительно перетяжки и перемещения между массивами. Эксперименты по I -сканированию проводились на длине волны $\lambda_0 \approx 830$ нм и 800 нм с полной спектральной шириной импульса на полувысоте 40 нм, длительностью импульса 60 фс. Принимая во внимание результаты линейной спектроскопии и численного моделирования, для исследования эффекта насыщения был выбран случай s -поляризации падающего излучения. Длина волны лазера $\lambda_0 \approx 830$ нм была выбрана в качестве накачки, так как в этом случае энергия фотонов $\hbar\omega_0$ больше энергии запрещенной зоны $E_g = 1.42$ эВ (≈ 870 нм) и линейное поглощение по-прежнему заметно для длины волны накачки, но при этом оно еще достаточно мало и резонансы Ми-типа в дисках GaAs эффективно возбуждаются в этом диапазоне длин волн. При энергии фотонов, близких к краю запрещенной зоны, ожидаются значительные изменения оптического отклика метаповерхностей, обусловленные чувствительностью резонанса Ми-типа к дисперсионным параметрам полупроводника, которые изменяются при фотоиндуцировании электронно-дырочных пар под воздействием лазерного излучения. Такая схема (рис. 2.10) позволяет получить коэффициент отражения структуры в зависимости от мощности и продемонстрировать самомодуляцию отражения с

помощью метаповерхности. Из-за особенностей метода изготовления, которым были получены метаповерхности, подложка образца является оптически непрозрачной и в эксперименте доступно измерение только в геометрии на отражение, без возможности прямого измерения коэффициента пропускания.

2.3.2 Коэффициент отражения в зависимости от падающей мощности

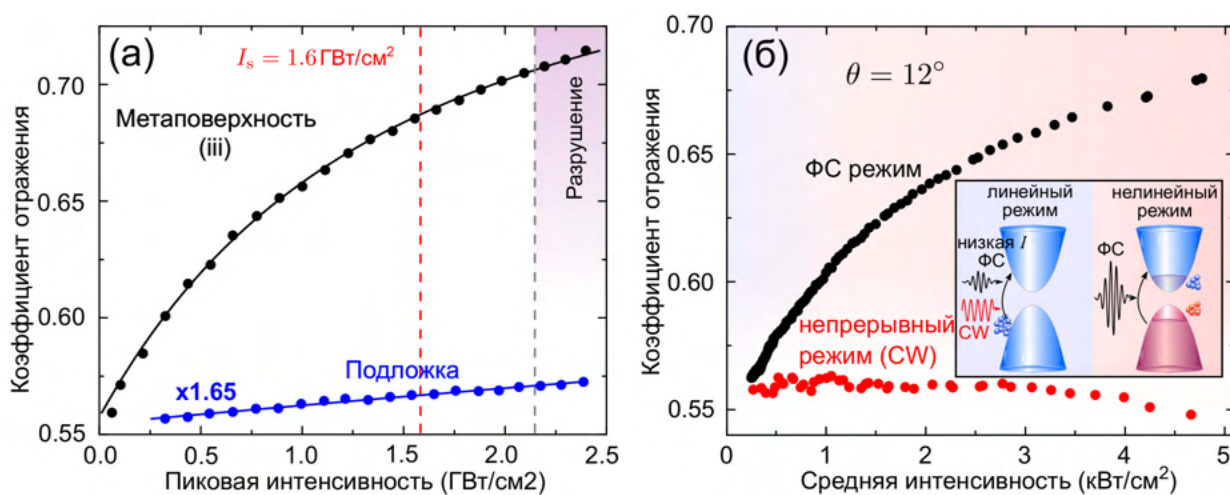


Рисунок 2.11 — Экспериментальная самомодуляция отражения метаповерхности GaAs. (а) Коэффициент отражения как функция падающей мощности для метаповерхности (черные точки) и для подложки (синие точки, значения умножены на 1.65 для наглядности представления). Сплошные кривые соответствующих цветов являются численными расчетами по формуле (2.1), красная пунктирная прямая соответствует интенсивности насыщения I_s . Заштрихованная область соответствует диапазону необратимого повреждения. (б) Коэффициент отражения как функция интенсивности для метаповерхности в фемтосекундном режиме (ФС, черные точки) и непрерывном режиме (CW, красные точки) работы лазера. Вставка иллюстрирует запрещенную зону GaAs в двух случаях: непрерывный CW и низкоинтенсивностный ФС-режим (ненасыщенная зона, линейный режим) и в случае состояний, близких к запрещенной зоне при больших интенсивностях в ФС-режиме (насыщение зоны, нелинейный режим).

Основные исследования были проведены для метаповерхности с $d = 195$ нм, с соответствующим МД-резонансом на центральной длине волны $\lambda_{\text{МД}} = 875$ нм. Коэффициент отражения был измерен как функция пиковой интенсивности. На рис. 2.11(а) показано нелинейное поведение и значительное увеличение коэффициента отражения метаповерхности (черные точки) по сравнению с объемной подложкой GaAs (синие точки — значения на графике для подложки GaAs были умножены на коэффициент 1.65 для просты сравнения). Модификация отражения усиливается более чем на порядок для метаповерхности по сравнению с подложкой GaAs. Сплошные кривые соответствующих цветов являются численными расчетами отвечающими феноменологической модели, обсуждаемой ниже 2.1. Красная пунктирная линия обозначает параметр I_s — характерную интенсивность, при которой нелинейная добавка к отражению составляет половину ее максимального значения. Заштрихованная область при высоких интенсивностях на рис. 2.11(а) соответствует предполагаемому диапазону интенсивности выше порога необратимого повреждения для метаповерхности. Значения интенсивности для порога повреждения было определено следующим образом: пошаговым увеличением падающей мощности и уменьшением ее до исходного значения. Если после некоторой мощности отражение метаповерхности уменьшалось по сравнению с исходным и не восстанавливалось после того, как лазерное излучение было заблокировано некоторое время, то это значение мощности было определено как порог повреждения.

Измерения I -скан для метаповерхностей в непрерывном режиме работы лазера CW (рис. 2.11(б)) проводились для одной и той же центральной длины волны и того же диапазона средних интенсивностей, как и в фемтосекундном (ФС) режиме, чтобы продемонстрировать, что увеличение коэффициента отражения не может быть вызвано изменением температуры и в первую очередь является результатом генерации свободных носителей (красные точки). Измерения I -скан проводились под небольшим углом падения $\theta = 12^\circ$ (при положении детектора 2 на рис. 2.10) для увеличения сигнала, который иначе значительно уменьшается при переотражениях на светоделителе. Зависимость коэффициента отражения в непрерывном режиме CW показывает постоянное поведение с небольшим уменьшением, которое связано с нестабильностью лазера в режиме CW и изменением отражения, обусловленным нагревом образца. Схематические изображения запрещенной зоны в двух случаях показаны на вставке на

рис. 2.11(б). Линейный режим демонстрирует поглощение при непрерывном режиме CW и при низкой мощности в ФС-режиме и показывает возможность линейного и независимого от мощности поглощения. Нелинейный режим, полученный для мощных фс импульсов, иллюстрирует населенность состояний, близких к запрещенной зоне, из-за сгенерированных свободных носителей, что приводит к изменению отражения.

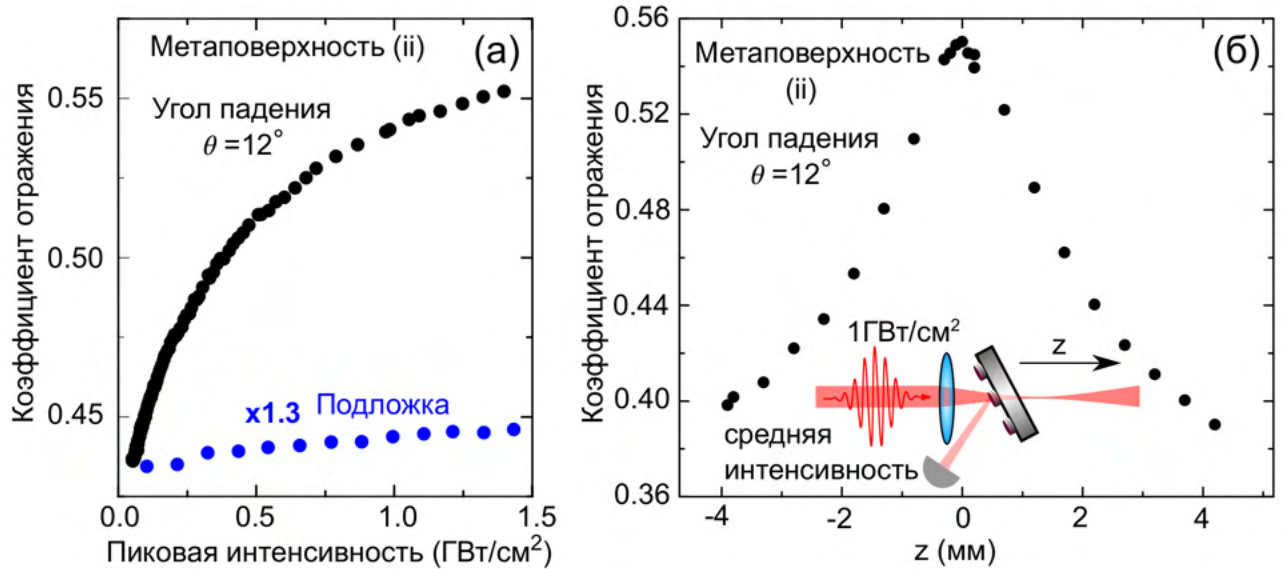


Рисунок 2.12 — Коэффициент отражения для метаповерхности (ii) с диаметрами дисков GaAs $d = 238$ нм и с периодом структуры $P = 480$ нм при угле падения излучения $\theta = 12^\circ$. (а) I -сканирование для метаповерхности (черные точки) и для подложки GaAs (синие точки) в области лазерной перетяжки $z = 0$. (б) Z -сканирование. Вставка: схематичное представление z -сканирования, 1 ГВт/см^2 , используемая пиковая интенсивность падающего импульса.

На рисунке 2.12(а) представлен соответствующий I -скан для метаповерхности (ii) (черные точки) и подложки GaAs (синие точки). Зависимость также демонстрирует нелинейное поведение и значительное увеличение коэффициента отражения метаповерхности (черные точки) по сравнению с объемной подложкой GaAs (голубые точки). Модификация отражения усиливается более чем на порядок для метаповерхности по сравнению с подложкой GaAs. Значения интенсивности лежат ниже порога повреждения метаповерхностей.

Также для подтверждения нетепловой природы эффекта самомодуляции были проведены измерения z -сканирования (рис. 2.12(а)), когда метаповерх-

ность перемещается вблизи перетяжки лазерного луча вдоль оптической оси фокусирующей системы, чтобы изменить пиковую интенсивность фемтосекундных импульсов, не изменяя среднюю мощность. Измерения z-сканирования проводились с помощью той же установки для I-сканирования (рис. 2.10). Z-сканирование было измерено при значении интенсивности ниже среднего, используемого в эксперименте по I-сканированию, а именно 1 ГВт/см^2 и при наименьшем доступном угле падения, равным 12° . На рис. 2.12(а) виден заметный спад коэффициента отражения для метаповерхности (ii) при отдалении от минимального размера перетяжки луча в фокусе линзы, соответствующего координате $z = 0$, то есть при уменьшении падающей интенсивности. При z-сканировании, так как падающая мощность фиксирована и фильтр переменной плотности не вращается, то исключается как влияние нелинейности фильтра, так и тепловое воздействие излучения на величину эффекта. Положение вблизи $z = 0$ было выбрано в качестве положения образца при всех измерениях I-сканирования.

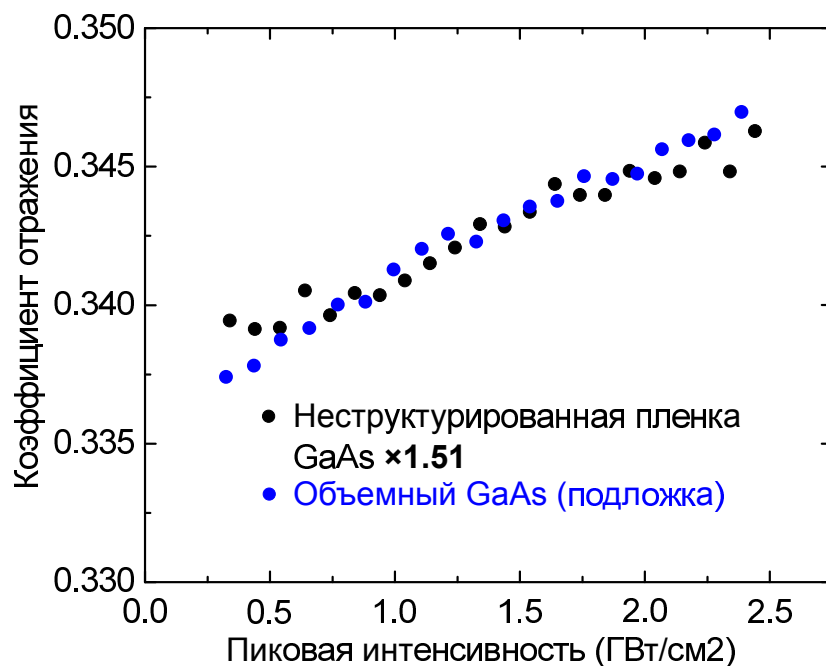


Рисунок 2.13 — Коэффициент отражения как функция пиковой мощности падающего импульса при нормальном угле падения излучения для неструктурированной поверхности образца (черные точки) и для подложки, представляющей собой объемный материал GaAs (синие точки). Значения неструктурированного образца были умножены на 1.51 для наглядного представления и простоты сравнения.

Помимо объемной подложки GaAs, которая использовалась для референсных измерений (рис. 2.11(а) и рис. 2.12(а) синие точки), экспериментальные

данные по I -сканированию были также получены для неструктурированного образца, трехслойной пленки $\text{SiO}_x/\text{GaAs}/\text{AlGaO}$ на подложке GaAs. Данные для неструктурированной пленки (рис. 2.13 черные точки) демонстрируют схожее с объемным материалом GaAs поведение, то есть незначительное изменение коэффициента отражения при увеличении падающей мощности (значения на графике для неструктурированной пленки были умножены на коэффициент 1.51).

Аналогичные измерения коэффициента отражения были проведены для всей серии изготовленных метаповерхностей. Результаты измерений показаны точками на левой панели рис. 2.14(а). Нижний график ((s), фиолетовый цвет) соответствует подложке из объемного GaAs, далее метаповерхности с различными геометрическими параметрами, снизу вверх стрелкой показано направление увеличения диаметров дисков метаповерхностей (синий цвет, метаповерхность (iv) — наименьшее значение диаметров дисков GaAs; коричневый, метаповерхность (i) — наибольшее). При этом для наглядного сравнения и построения графиков в одних осях, измеренные значения отражения были умножены на различные коэффициенты. Соответствующие спектры отражения метаповерхностей изображены на рис. 2.14(б) справа, сплошные и пунктирные кривые относятся к экспериментальным спектрам при угле падения 12 град. и смоделированным спектрам при нормальном падении соответственно. МД-резонанс Ми-типа для метаповерхности (iii) с центральной длиной волны порядка 875 нм находится вблизи длины волны используемого лазерного излучения, спектр которого показан серой заштрихованной областью. При увеличении диаметров дисков положение резонанса смещается вправо и для метаповерхности (i) соответствует длине волны порядка 1050 нм, при этом для данной метаповерхности в районе 900 нм наблюдается другой резонанс, который относится к электродипольной моде. Для образца с меньшими диаметрами (iv) положение МД смещено в более короткие длины волн, лежащее ниже края поглощения GaAs (870 нм), и, в результате возрастания коэффициента поглощения, резонанс имеет очень низкую добротность, вследствие чего спектр отражения по форме становятся почти нерезонансными и близкими к форме спектра подложки (фиолетовая кривая на нижней панели). Кривые I -сканирования демонстрируют значительные изменения отражения только для резонансных метаповерхностей

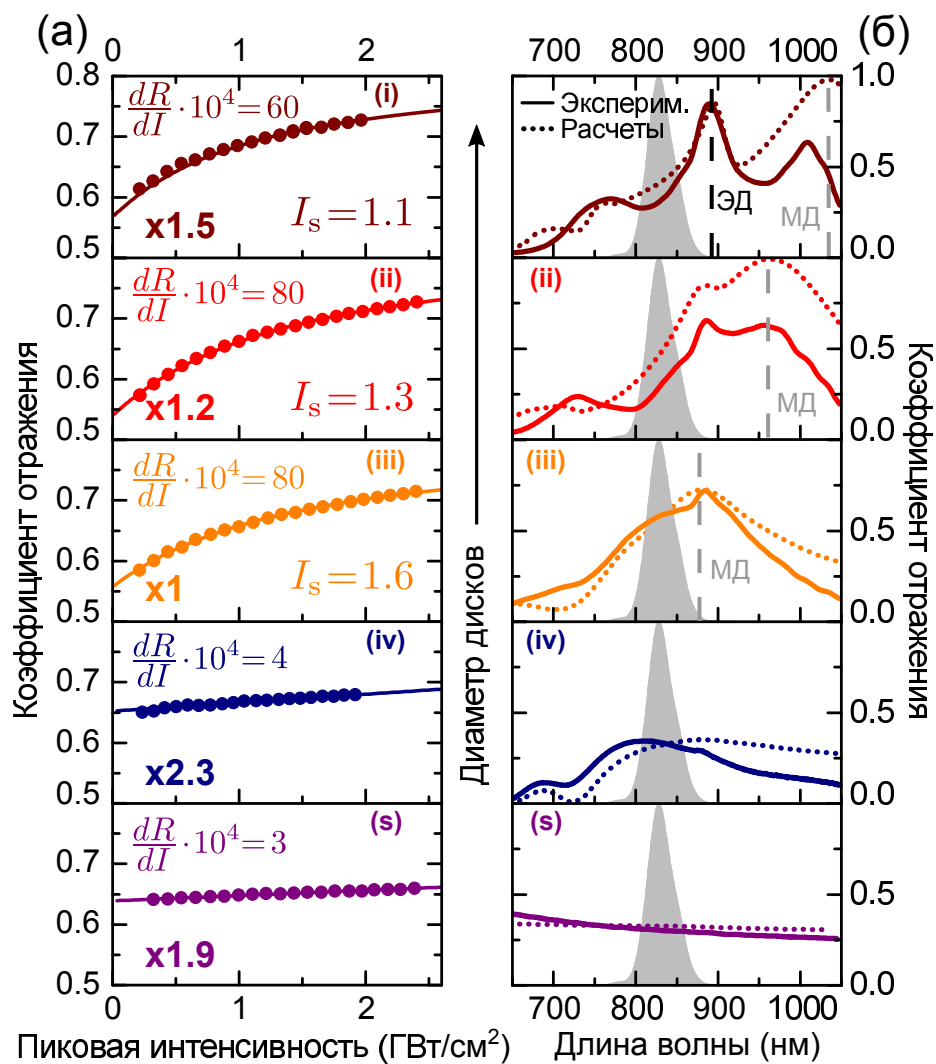


Рисунок 2.14 — Экспериментальные кривые коэффициента отражения как функции пиковой мощности падающего излучения (точки) и их наилучшая численная аппроксимация по формуле (2.1) (кривые) для метаповерхностей (i)-(iv) с различными диаметрами и подложки GaAs (s). Коэффициенты вводятся для наглядного сравнения и при аппроксимация не используются. Параметр I_s приведен в $\text{ГВт}/\text{см}^2$ и наклон $dR/dI|_{I \approx 0}$ являются значениями, полученными в результате аппроксимации. Справа — соответствующие спектры отражения; сплошные и пунктирные кривые относятся к экспериментальным и смоделированным спектрам соответственно; серой областью показан спектр фемтосекундного импульса. Черной стрелкой указано направление увеличения размеров диаметров. Три верхних графика относятся к образцам (i)–(iii) со спектральным положением резонансов типа Ми вблизи центральной длины волны лазерного излучения.

Стоит отметить, что на всех экспериментальных спектрах отражения метаповерхностей обнаруживается особенность в области длины волны $\lambda = 880$ нм

(рис. 2.5, рис. 2.14(б) сплошные кривые), отсутствующая в модельных спектрах. Различие с теоретическими расчетами и особенность в экспериментальных данных предположительно связаны со свойствами дисперсии показателя преломления GaAs вблизи его запрещенной зоны; эти измерения согласуются с результатами, полученными для объемного GaAs. Эта особенность при наложении на резонанс Ми приводит к наибольшему расхождению между расчетным и экспериментальным спектрами. Она возникает из-за резкого изменения поглощения вблизи ширины запрещенной зоны, которое нельзя было учесть в программном обеспечении, используемом для расчета коэффициента отражения метаповерхности, так как не поддерживался такой тип дисперсии материала. Поэтому была взята имеющаяся более плавная зависимость дисперсии, предусмотренная доступной стандартной моделью Друде-Лоренца. Тем не менее, и положение, и форма, и смещение резонансов, которые получены в расчетах, хорошо согласуются с экспериментальными результатами, что отражено на рисунке 2.14(б) (сплошные кривые в сравнении с пунктирными кривыми) и рисунке 2.7.

2.4 Численное моделирование эффекта насыщения поглощения

2.4.1 Феноменологическая модель для коэффициента отражения с насыщением

Кривые I -сканирования демонстрируют типичное поведение насыщения. Перед тем как обсуждать микроскопическую природу насыщения в метаповерхностях, построим феноменологическую модель для экспериментальных кривых, которая насыщается при увеличении интенсивности I :

$$R(I) = R_1 - \frac{\Delta R}{1 + I/I_s}, \quad (2.1)$$

где $R(I)$ — зависящий от интенсивности коэффициент отражения, $\Delta R = R_1 - R_0$ — модуляция коэффициента отражения, R_1 — коэффициент отражения при высоких интенсивностях ($I \gg I_s$), R_0 — коэффициент отражения для

близкой к нулю интенсивности падающего излучения, I — интенсивность падающего излучения, а I_s — интенсивность насыщения, характерная интенсивность, при которой нелинейное добавление к коэффициенту отражения составляет половину его максимального значения. В случае классических насыщающихся поглотителей параметр I_s определяется как интенсивность света, при которой коэффициент поглощения уменьшается в 2 раза и является важным значением, определяющим энергетические параметры работы лазера на основе насыщающегося поглотителя; в частности, оптические компоненты с малой величиной параметра I_s могут быть использованы для импульсных лазерных источников с малым потреблением мощности.

Такая зависимость демонстрирует отличное описание экспериментальных данных, как показано на рис. 2.11(а) и 2.14(б) сплошными кривыми и точками (модель и экспериментальные результаты соответственно). Кривые были построены путем аппроксимации экспериментальных данных с помощью уравнения 2.1, и был определен параметр I_s для каждого из резонансных образцов. Параметр I_s характеризует чувствительность метаповерхности к падающему излучению: чем меньше параметр I_s , тем меньше энергии требуется для насыщения системы и значительного изменения коэффициента отражения. Наклон dR/dI около $I \approx 0$ также может быть использован для характеристики нелинейного поведения и эффективности модуляции отражения. Значения, полученные из аппроксимации для резонансного случая, равны $I_s = 1.1$ ГВт/см² для образца (i), 1.3 ГВт/см² для образца (ii) и 1.6 ГВт/см² для образца (iii), как показано на рис. 2.14(а). В случае нерезонансного образца (iv) и подложки (s) на рис. 2.14(а) измеренные данные соответствуют началу кривой насыщения, поэтому значение I_s является некорректно определенным, так как выходит за пределы экспериментального диапазона и не может быть однозначно определено из аппроксимации. Таким образом, резонансы Ми-типа для трех метаповерхностей с большими диаметрами находятся в спектральном диапазоне работы лазера. Кроме того, в этих метаповерхностях, для которых диски имеют оптимальные геометрические параметры, чтобы в них было возможно эффективное возбуждение резонансов Ми-типа вблизи края запрещенной зоны GaAs, наблюдается значительное уменьшение интенсивности насыщения I_s по сравнению с нерезонансными метаповерхностями и объемным материалом полупроводника. Сравнение $dR/dI|_{I \approx 0}$ также указывает на то, что эти метаповерхности на

порядок более чувствительны к падающему излучению, чем нерезонансная метаповерхность и объемный GaAs, как показано на рис. 2.14(а).

Возможны два объяснения повышенной насыщаемости, наблюдаемой в резонансных метаповерхностях. Во-первых, локальное электромагнитное поле усиливается при резонансах Ми-типа, обеспечивая генерации большего числа свободных носителей (СН) для того же уровня интенсивности, по сравнению с объемным полупроводником. Во-вторых, спектр отражения чувствителен к концентрации СН и, следовательно, к падающей мощности. Согласно распределению локального поля на рис. 2.2, общее усиление интенсивности внутри дисков довольно небольшое, с коэффициентом < 1.5 , что не может приводить к наблюдаемому насыщению. Поэтому можно воспроизвести насыщаемое поведение метаповерхностей путем моделирования отклика полупроводника GaAs на генерацию свободных носителей под действием лазерного излучения.

2.4.2 Изменение комплексного показателя преломления полупроводника при индуцировании свободных носителей

Наблюдаемая модуляция отражения обусловлена изменениями значений действительной и мнимой частей показателя преломления в GaAs при инжектировании свободных носителей. Разработана модель на основе трех механизмов, связанных с эффектами поглощения света свободными носителями, с заполнением зоны и сокращением запрещенной зоны:

$$\begin{aligned}\Delta n &= \Delta n_{Dt} + \Delta n_{BF} + \Delta n_{BS}, \\ \Delta \kappa &= \Delta \kappa_{BF} + \Delta \kappa_{BS} + \Delta \kappa_{Dt} < 0,\end{aligned}\tag{2.2}$$

где Δn и $\Delta \kappa$ — изменения действительной и мнимой частей показателя преломления GaAs соответственно, а индексы Dt, BF и BS обозначают три слагаемых: член Друде, эффект заполнения зоны (bandfilling) и сокращение (bandgap shrinkage) запрещенной зоны (перенормировка) соответственно. Эти члены могут приводить как к положительному, так и к отрицательному вкладам в действительную часть показателя преломления n и к отрицательным вкладам в коэффициент экстинкции κ .

При изменении числа свободных носителей изменяется коэффициент поглощения материала, что в силу соотношения Крамерса-Кронига приводит к изменению действительной части показателя преломления. Изменение коэффициента поглощения прямозонного полупроводника, обусловленное эффектом заполнения зон, в приближении параболичности зон при $E \geq E_g$ определяется следующим соотношением [116]:

$$\Delta\alpha_{\text{BF}}(E, N_e, N_h) = \alpha(E, N_e, N_h) - \alpha_0(E) = \frac{C}{E} \sqrt{E - E_g} [f_v(E_a) - f_c(E_b) - 1], \quad (2.3)$$

где E — энергия фотона, E_g — ширина запрещенной зоны, N_e, N_h — концентрация свободных электронов и дырок соответственно (предполагая, что $N_e = N_h$, индексы $N_{e,h}$ в дальнейшем будут опущены), α_0 — коэффициент поглощения полупроводника в отсутствие инжекции, C — константа, характеризующая параметры материала, E_a — энергия в валентной зоне, E_b — энергия в зоне проводимости, $f_v(E_a)$ — вероятность того, что энергетическое состояние E_a в валентной зоне будет занято электроном, $f_c(E_b)$ — вероятность того, что энергетическое состояние E_b в зоне проводимости будет занято электроном, описывается распределением Ферми-Дирака. При этом предполагается, что температура $T = 300$ К.

$$\begin{aligned} N_c &= 2 \left(\frac{m_e k_B T \times 1.6 \times 10^{-19}}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2} \times 10^{-6}, \\ N_v &= 2 \left(\frac{m_{dh} k_B T \times 1.6 \times 10^{-19}}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2} \times 10^{-6}, \end{aligned} \quad (2.4)$$

где $k_B = 8.617 \times 10^{-5}$ эВ·К⁻¹, $\hbar = 1.054 \times 10^{-34}$ Дж·с, коэффициент 1.6×10^{-19} — перевод [эВ] в [Дж], а коэффициент 10^{-6} — перевод [м] в [см], так как 1 Дж = 1 кг·м²/с², $m_e = 0.066m_0$, $m_{hh} = 0.45m_0$, $m_{lh} = 0.084m_0$, $m_0 = 9.1 \times 10^{-31}$ кг. Тогда получается $N_c = 4.2 \times 10^{17}$ см⁻³, $N_v = 8.2 \times 10^{18}$ см⁻³.

Изменение коэффициента поглощения из-за эффекта сокращения зоны описывается следующим образом:

$$\Delta\alpha_{\text{BS}}(E, N) = \frac{C}{E} \sqrt{E - E_g - \Delta E_g(N)} + \frac{C}{E} \sqrt{E - E_g}, \quad (2.5)$$

где N концентрация свободных электронов или дырок. При этом

$$\Delta E_g(N) = \begin{cases} \frac{\kappa}{\varepsilon_s} \left(1 - \frac{N}{N_{cr}}\right)^{1/3}, & N \geq N_{cr} \\ 0, & N < N_{cr}, \end{cases} \quad (2.6)$$

где $\kappa = 0.13$ — феноменологический параметр, $\varepsilon_s = 13.1$ — статическая относительная диэлектрическая проницаемость полупроводника GaAs, $N_{cr} = 7.4 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$ — критическое значение концентрации свободных носителей.

Так как действительная и мнимая части комплексного показателя преломления $\hat{n} = n + i\chi$ являются зависимыми и связаны соотношением Крамерса-Кронига, то любое изменение коэффициента поглощения $\Delta\alpha$ сопровождается изменением действительной части показателя преломления Δn . Это означает, что индуцированное изменение действительной части показателя преломления может быть выражено через изменение коэффициента поглощения в следующем виде:

$$\Delta n_{\text{BF,BS}}(N, E) = \frac{2c\hbar}{e^2} PV \int_0^\infty \frac{\Delta\alpha_{\text{BF,BS}}(E', N)}{E'^2 - E^2} dE', \quad (2.7)$$

где $\Delta\alpha_{\text{BF,BS}}(E, N)$ является изменением поглощения согласно уравнениям (2.3) и (2.5) для энергий фотонов E , а “ PV ” обозначает главное значение; c — скорость света в вакууме, \hbar — приведенная постоянная Планка, e — элементарный заряд электрона, E — энергия фотона в электрон-вольтах.

Изменения действительной части показателя преломления, обусловленные внутризонным поглощением свободных носителей, могут быть записаны, согласно модели Друде, следующим образом [117]:

$$\begin{aligned} \Delta n_{\text{dt}}(N, E) &= -\frac{r_0}{2\pi E^2 n \times (1.2 \times 10^{-4})^2} \left\{ \frac{N_e}{m_e} + \frac{N_h}{m_h} \right\} = \\ &= \frac{-6.9 \times 10^{-22}}{nE^2} \left\{ \frac{N_e}{m_e} + N_h \left(\frac{m_{\text{hh}}^{1/2} + m_{\text{lh}}^{1/2}}{m_{\text{hh}}^{3/2} + m_{\text{lh}}^{3/2}} \right) \right\}, \end{aligned} \quad (2.8)$$

при этом $m_h = (m_{\text{hh}}^{3/2} + m_{\text{lh}}^{3/2}) / (m_{\text{hh}}^{1/2} + m_{\text{lh}}^{1/2})$ [116], где m_e , m_{lh} , и m_{hh} — эффективные массы электронов, легких дырок и тяжелых дырок соответственно; n — показатель преломления GaAs, классический радиус электрона $r_0 = 2.8 \times 10^{-13} \text{ см}$, 1.2×10^{-4} — коэффициент для перевода единиц энергии из [эВ] в

$[\text{см}^{-1}]$, ε_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума. Плотность индуцированных свободных носителей оценивается как $N = EA_0/(E_{\text{накачка}}VN_d)$, где E — энергия импульса в [эВ], A_0 — коэффициент поглощения для малого сигнала, $E_{\text{накачка}} = E_0 = 1.49$ эВ для расчетов эффекта насыщения в метаповерхности и $E_0 = 1.42001$ эВ для расчетов эффекта насыщения в высокочастотной метаповерхности, V — объем диска GaAs, а N_d — количество GaAs дисков.

С помощью разработанной модели были аналитически рассчитаны изменения действительной и мнимой частей показателя преломления с учетом трех вышеперечисленных эффектов как функции концентрации инжектированных свободных носителей. При этом было получено, что при используемых значениях энергии, то есть при энергии фотона ниже и вблизи запрещенной зоны полупроводника, суммарный вклад в $\Delta\kappa < 0$ и суммарный вклад в Δn преимущественно меньше нуля. Было проведено FDTD-моделирование спектров отражения, чтобы продемонстрировать, что метаповерхности с резонансами Ми-типа в нанодисках GaAs гораздо более чувствительны к маломощному лазерному возбуждению, чем нерезонансные структуры или объемные материалы, и могут проявлять нелинейное поведение, вызванное индуцированными свободными носителями, как насыщающиеся оптические поглотители. Получены соответствующие изменения спектров коэффициента отражения в результате уменьшения коэффициента поглощения при инжектировании свободных носителей. Вычислены значения коэффициента отражения как функция свободных носителей для фиксированной длины волны вблизи края запрещенной зоны арсенида галлия. Спектры отражения метаповерхности моделируются с помощью диэлектрической функции GaAs, модифицированной соответствующими изменениями показателя преломления для различных значений падающей мощности в соответствии с уравнениями 2.2-2.8. Смоделированное отражение на длине волны 830 нм изображено на рис. 2.15(а) как функция мощности падающего излучения, на вставке представлены соответствующие изменения действительной и мнимой части показателя преломления. Немонотонное поведение Δn и $\Delta\kappa$ как функций падающей мощности показано на рис. 2.15(б) штриховыми и сплошными кривыми соответственно. В Δn есть как отрицательный вклад, так и положительный, что позволяет сдвигать резонанс как в красную, так и в синюю спектральную область. Преимуществом работы с энергией фотонов, превышающей величину запрещенной зоны, является наличие поглощения, что

позволяет получить значительные изменения мнимой части показателя прелом-

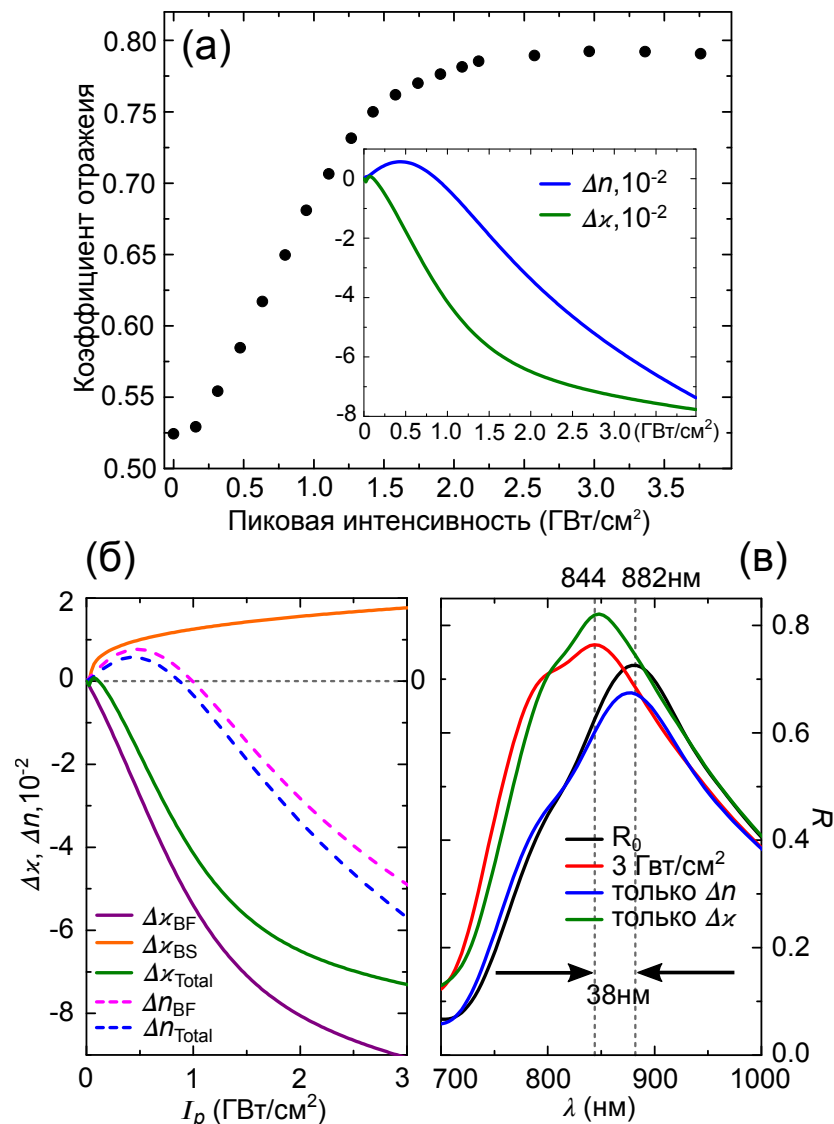


Рисунок 2.15 — Моделирование эффекта насыщения. (а) Коэффициент отражения как функция мощности падающего пучка для метаповерхности (iii). Вставка: изменения показателя преломления n (синяя кривая) и коэффициента экстинкции κ (зеленая кривая). (б) Доминирующие эффекты: заполнение зоны (BF, фиолетовая и розовая кривые) и сокращение запрещенной зоны (BS, оранжевая кривая) и общий вклад в изменения реальной и мнимой частей показателя преломления в зависимости от мощности падающего луча (синяя и зеленая кривые соответственно). (в) Невозмущенный спектр отражения (черная кривая), спектр отражения с измененными $\Delta \kappa$ и Δn из-за генерации свободных носителей, индуцированных при 3 ГВт/см^2 (красная кривая), спектры отражения с изменениями только в Δn или $\Delta \kappa$ (синяя и зеленая кривые соответственно).

ления за счет генерации СН, в дополнение к изменениям действительной части. При инжектировании свободных носителей и соответствующему изменению показателя преломления (рис. 2.15(а) вставка) наблюдается смещение спектра отражения в коротковолновую область, а также возрастание абсолютного значения максимума спектра (рис. 2.15(в) красная кривая в сравнении с черной кривой невозмущенного спектра), при дальнейшем увеличении свободных носителей материал уже не может больше поглощать электромагнитное излучения в результате эффекта насыщения, и поэтому коэффициент отражения почти не изменяется (пиковая интенсивность $> 3 \text{ ГВт/см}^2$). Доминирующим вкладом в изменение коэффициента экстинкции являются BS и VF, вклад Dt в 20 раз меньше по сравнению с VF и поэтому не учитывается. Было проведено численное моделирование отклика метаповерхности, а именно коэффициента отражения, для четырех случаев, чтобы показать, как резонанс изменяется при генерации СН.

Первый случай — равновесное состояние метаповерхности с комплексной диэлектрической проницаемостью GaAs, с использованием литературных данных дисперсии Palik [118] (рис. 2.2(а) и рис. 2.15(в) — черные кривые). Вторым случаем — это те же данные комплексной диэлектрической проницаемости GaAs, но с измененными показателем преломления и коэффициентом экстинкции, определяемыми СН, индуцированными при падающей интенсивности $\simeq 3 \text{ ГВт/см}^2$ (красная кривая на рис. 2.15(в)), при этом плотность плазмы оценивается равной $N = 5 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Другие случаи включают изменение либо только для действительной части показателя преломления, либо только для коэффициента экстинкции, синяя и зеленая кривые соответственно. На рис. 2.15(в) показано, что для данной GaAs метаповерхности коэффициент отражения увеличивается в основном из-за уменьшения поглощения.

Также было рассчитано, что изменение комплексной диэлектрической проницаемости в подложке GaAs не влияет на спектр отражения метаповерхности при возбуждении накачкой. Следовательно, можно сделать вывод, что исследуемые метаповерхности демонстрируют насыщение коэффициента отражения из-за насыщения поглощения в нанодисках GaAs.

2.4.3 Эффект насыщения поглощения для высокодобротной метаповерхности на основе арсенида галлия

Исследуемые резонансные метаповерхности из GaAs проявляют сильное нелинейное поведение коэффициента отражения и имеют низкие значения I_s . Однако добротности резонансов (Q) исследуемых метаповерхностей имеют достаточно небольшие значения. Так как изменение значения коэффициента отражения происходит вследствие сдвига и модификации спектра отражения, то для резонанса с высокой добротностью даже незначительные сдвиги должны приводить к значительным изменениям величины коэффициента отражения на заданной длине волны. Поэтому ожидается, что использование высокодобротных резонансов может привести к еще более резкому уменьшению I_s .

Нарушение симметрии в плоскости металлических и диэлектрических структур может приводить к резонансам с высокой добротностью [100; 121—123]. Для исследования эффекта насыщения в структурах с нарушенной симметрией в качестве элементарной ячейки метаповерхности был выбран нанодиск со смещенным от центра диска воздушным отверстием. Для структуры такого типа, в случае упрощенной модели: материал без дисперсии и поглощения, отсутствие подложки, — были проведены расчеты методом конечных разностей во временной области и подобраны параметры диска и воздушного отверстия, при которых высокодобротная мода наблюдается в оптическом диапазоне. На рис. 2.16(а) показаны спектры отражения и пропускания для упорядоченного массива таких дисков в случае материала без поглощения для линейной поляризации вдоль оси z и нормального падения электромагнитного излучения (рис. 2.16(б) — черными окружностями указаны положения диска и воздушного отверстия). На рис. 2.16(б) представлено характерное для такой высокодобротной моды распределение квадрата модуля электрического поля, стрелками показано векторное распределение электрического поля. Параметры структуры, используемые для расчета: диаметр диска $d = 250$ нм, период $P = 693$ нм, высота диска $h = 125$ нм, диаметр воздушного отверстия $d_a = 66$ нм, расстояние центра воздушного отверстия от центра диска $y = 70$ нм, показатель преломления $n = 3.61$ и поглощение $\kappa = 0$.

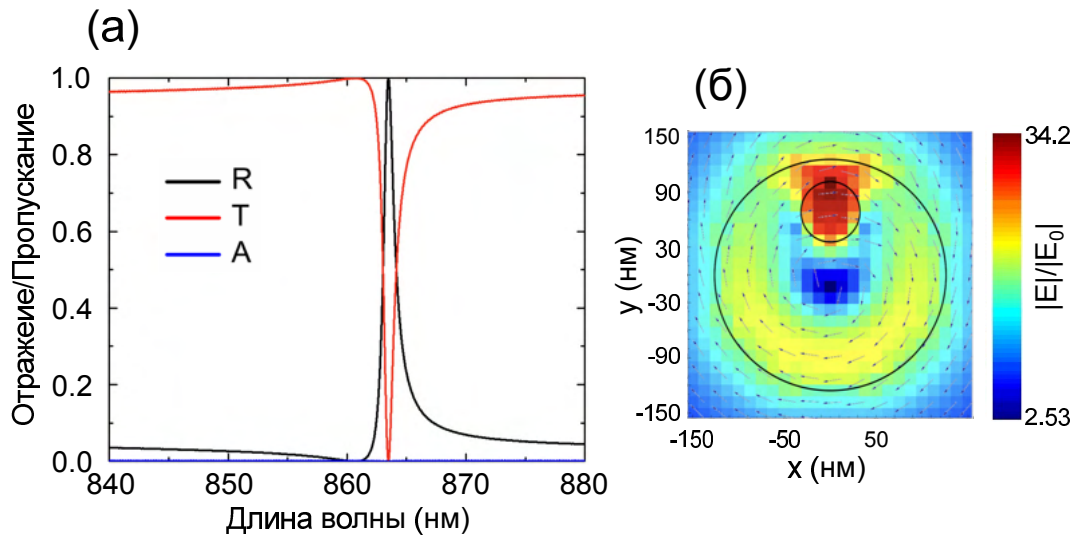


Рисунок 2.16 — Расчеты для метаповерхности из дисков с воздушными отверстиями. (а) Спектры коэффициента отражения R , пропускания T (поглощение $A = 0$) для структуры со следующими параметрами: диаметр диска $d = 250$ нм, период $P = 693$ нм, высота диска $h = 125$ нм, диаметр воздушного отверстия $d_a = 66$ нм, расстояние центра воздушного отверстия от центра диска $y = 70$ нм, показатель преломления $n = 3.61$ и поглощение $\kappa = 0$. (б) Соответствующее распределение квадрата модуля электрического поля, красным показан максимум, синим — минимум, черными окружностями отмечено положение диска и воздушного отверстия внутри диска (вид сверху).

Для невозмущенного спектра отражения наличие поглощения существенным образом не влияет на резонанс, а лишь приводит к изменению его спектрального положения и глубины, поэтому может быть использовано для упрощения расчетов при нахождении высокодобротной моды в нужном диапазоне длин волн. Но так как поглощение в полупроводнике играет доминирующую роль в эффекте насыщения и модуляции коэффициента отражения, то при генерации свободных носителей под действием лазерного излучения поглощение необходимо учитывать. Варьируя высоту диска, можно изменять спектральное положение высокодобротной моды (рис. 2.17(а)), также незначительного изменения спектрального положения моды можно достичь изменением положения воздушного отверстия относительно центра диска.

Наличие подложки и нанодиска AlGaO существенным образом не влияет на резонанс, но приводит к небольшим изменениям свойств резонанса, таким как центральная длина волны, глубина модуляции и добротность. Чтобы это продемонстрировать, были проведены дополнительные расчеты с подложкой

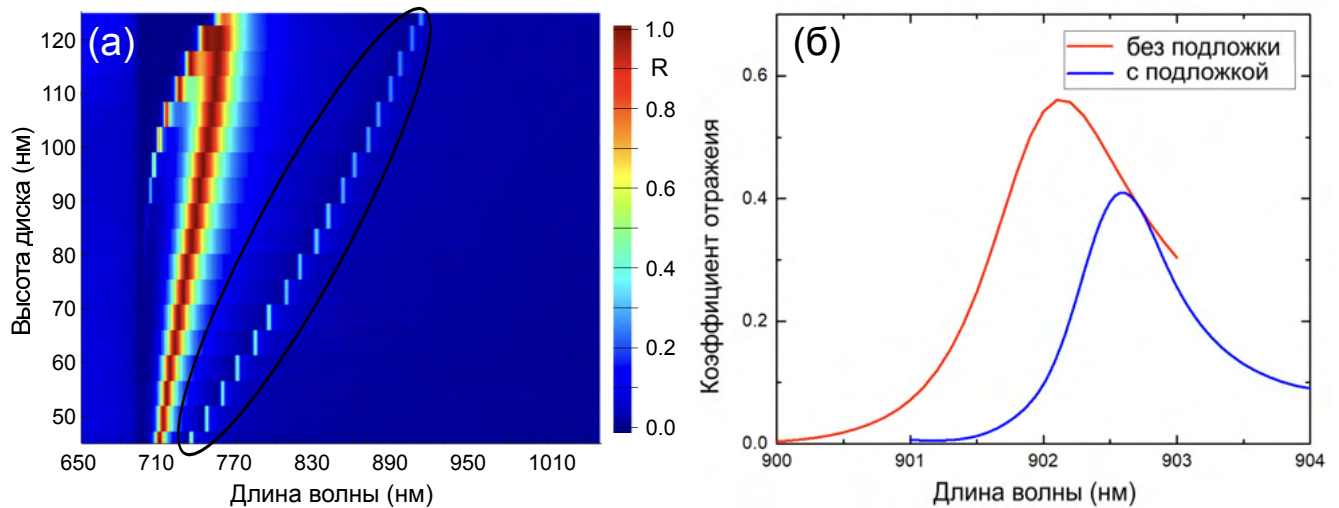


Рисунок 2.17 — Расчеты для метаповерхности из дисков с воздушными отверстиями. (а) Спектры коэффициента отражения R как функция высоты диска (поглощение $A \neq 0$). Черным эллипсом показано положение высокодобротной моды. При этом параметры структуры: диаметр диска $d = 264$ нм, период $P = 693$ нм, высота диска варьировалась от $h = 25$ нм до $h = 125$ нм, диаметр воздушного отверстия $d_a = 66$ нм, расстояние между центром воздушного отверстия и центром диска $y = 59$ нм, показатель преломления $n = 3.61$ и поглощение $\kappa = 0$. (б) Спектры коэффициента отражения R , красная кривая — диски расположены в воздухе, синяя — на подложке с промежуточным слоем оксида.

из арсенида галлия и промежуточным слоем оксида (нанодиск оксида под нанодиском полупроводника используется для хорошего контраста показателей преломления и, как следствие, для эффективного возбуждения резонанса). На рис. 2.17(б) синей кривой показан спектр отражения расположенного на подложке упорядоченного массива дисков с воздушными отверстиями при наличии поглощения в материале. Для сравнения, красной кривой показан спектр такой структуры без подложки. При этом наблюдается спектральный сдвиг максимума резонанса менее чем на 1 нм и проседание резонанса на 0.16. В дальнейшем расчеты проводились без учета подложки для уменьшения времени расчетов.

Для максимального эффекта модуляции коэффициента отражения/пропускания резонанс должен располагаться вблизи запрещенной зоны полупроводника. В случае арсенида галлия значение запрещенной зоны соответствует длине волны порядка 873 нм. Варьированием геометрических размеров структуры, были найдены оптимальные параметры, при которых склон резонанса

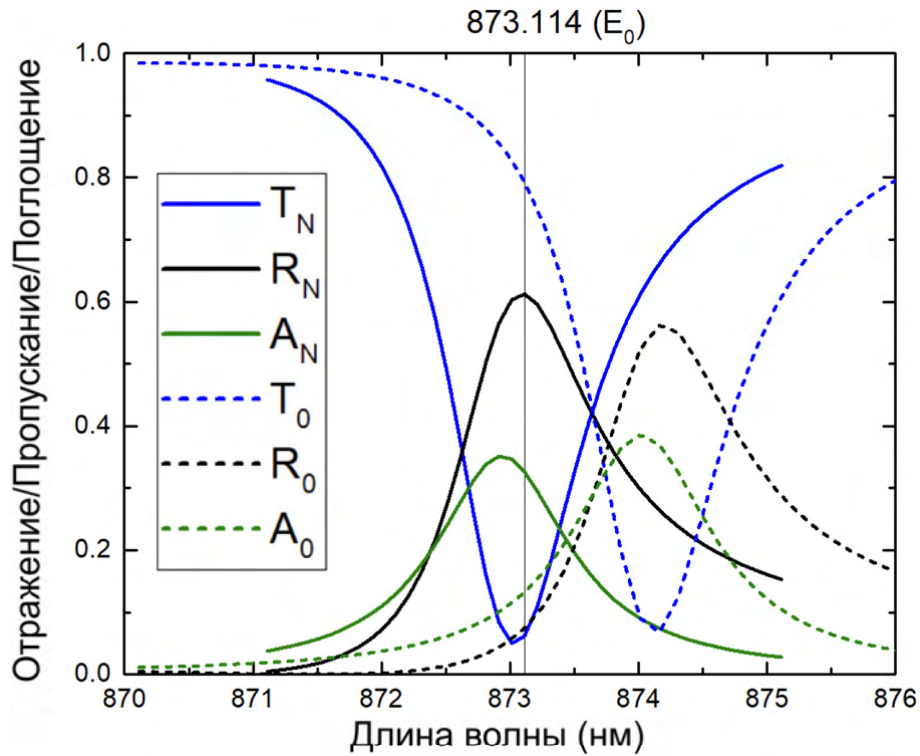


Рисунок 2.18 — Расчеты для метаповерхности из дисков с воздушными отверстиями. Спектры коэффициента отражения R , пропускания T и поглощения A при двух значениях параметра преломления n_0 и κ_0 (пунктирные кривые) и n_N и κ_N (сплошные кривые). При этом

$$n_0, \kappa_0 > n_N, \kappa_N.$$

находится вблизи края запрещенной зоны и добротность резонанса $Q > 100$. При этом параметры структуры следующие: диаметр диска $d = 256$ нм, период $P = 671.5$ нм, высота диска $h = 117$ нм, диаметр воздушного отверстия $d_a = 64$ нм $= d/4$, расстояние центра воздушного отверстия от центра диска $y = 57$ нм. Показатель преломления и коэффициент экстинкции для невозмущенного спектра R_0 были выбраны постоянными $n_0 = 3.5932$ и $\kappa_0 = 8.95 \times 10^{-4}$ ($\alpha_0 = 129$ см $^{-1}$) соответственно. Эти значения даны для энергии $E_0 = 1,42001$ эВ, используемой для расчетов индуцированных зарядом изменений комплексного показателя преломления. Добротность резонанса при этом составляет порядка 500. Высокодобротная мода возбуждается, когда поляризация входного света направлена вдоль оси асимметрии (вдоль оси Ox на рис. 2.1(б) и рис. 2.16(б)). Кроме того, такая система является зеркально-симметричной, то есть системой, в которой входная линейная поляризация не изменяется при отражении, что важно для лазерных приложений. При моделировании высокодобротной метаповерхности, как и в случае метаповерхности со

сплошными дисками, использовалась комнатная температура $T = 300^\circ \text{ К}$. Численное моделирование спектров отражения проводилось в спектральном диапазоне около E_0 , но только эта точка использовалась для определения величины коэффициента отражения. Учет дисперсии материала несколько модифицирует спектр в окрестности этой энергетической точки в отличие от бездисперсионной структуры с n_0 и κ_0 . На рис. 2.18 пунктирными кривыми показаны спектры отражения, пропускания и поглощения такой структуры с постоянными показателем преломления и поглощения n_0 и κ_0 соответственно. Значения n_0 и κ_0 соответствуют значениям для длины волны 873.114 нм. Сплошными кривыми показаны спектры отражения, пропускания и поглощения такой структуры с меньшими значениями показателя преломления и поглощения n_N и κ_N соответственно. Таким образом, при уменьшении показателя преломления как его действительной, так и его мнимой части, происходит синий сдвиг спектров отражения/пропускания.

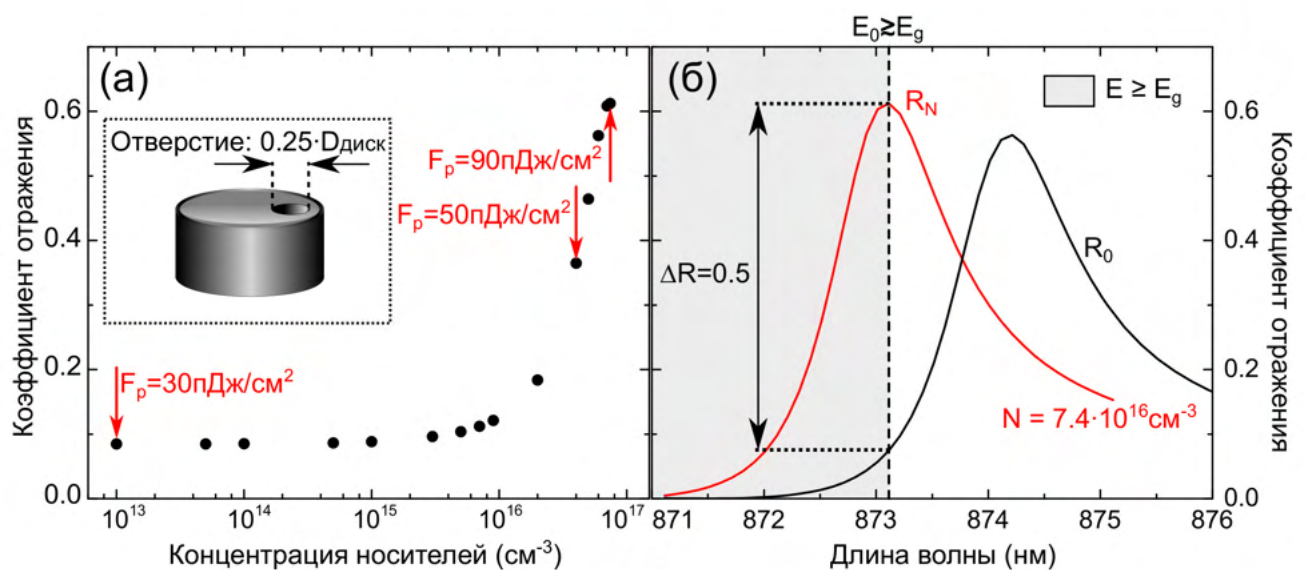


Рисунок 2.19 — Расчеты для метаповерхности из дисков с воздушными отверстиями. (а) Зависимость коэффициента отражения от числа инжектированных свободных носителей N_e в логарифмическом масштабе.

Вставка: ячейка высокочастотной метаповерхности. Красные стрелки указывают на некоторые соответствующие плотности энергии накачки. (б) Невозмущенный спектр отражения R_0 (черная кривая) и спектр отражения R_N (красная кривая) с измененными Δn и $\Delta \alpha$ в соответствии с концентрацией свободных носителей $N = 7.4 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$ при энергии E_0 в окрестности края запрещенной зоны E_g .

Методом FDTD, как и в случае метаповерхности со сплошными дисками, для метаповерхности из дисков с воздушными отверстиями получены значения коэффициента отражения как функция инжектированных носителей для фиксированной длины волны вблизи края запрещенной зоны арсенида галлия. На рис. 2.19(а) представлены численные расчеты коэффициента отражения при энергии $E_0 \gtrsim E_g$ как функции свободных носителей в логарифмическом масштабе для метаповерхности с элементарной ячейкой в виде дисков с воздушными отверстиями. Значение E_0 было выбрано очень близко к краю запрещенной зоны, чтобы получить поглощение, достаточно малое для проявления высокодобротного резонанса, но не равное нулю, чтобы получить вклад от изменения поглощения. При непертурбативных интенсивностях (то есть при низких интенсивностях) коэффициент поглощения $\alpha_0 = 129 \text{ см}^{-1}$, показатель преломления $n_0 = 3.5932$. При плотности свободных носителей $N = 7.4 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$ при энергии E_0 показатель преломления и коэффициент поглощения уменьшаются на $\Delta n = -5.7 \times 10^{-3}$ и $\Delta \alpha = 21$. Это приводит к смещению и увеличению R_0 до R_N , как показано на рис. 2.19(б) для такой метаповерхности. Где R_0 и R_N — численные расчеты спектров коэффициента отражения в случае двух значений показателя преломления n_0, \varkappa_0 и n_N, \varkappa_N соответственно, где 2-е значение показателя преломления взято при $N = 7.4 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$. При такой плотности свободных носителей при энергии E_0 показатель преломления и коэффициент поглощения уменьшаются на $\Delta n = -5.7 \times 10^{-3}$ и $\Delta \alpha = 21$, что приводит к соответствующим изменениям коэффициента отражения. При инжектировании свободных носителей и соответствующему модели изменению показателя преломления (рис. 2.15(б)), как и в случае с метаповерхностью из сплошных дисков, также наблюдаются смещение спектра отражения в коротковолновую область и возрастание абсолютного значения максимума спектра, но при этом существенная модуляция коэффициента отражения метаповерхности с высокодобротным резонансом происходит при значительно меньших значениях инжектированных носителей. Число инжектированных свободных электронов, в свою очередь, зависит от плотности энергии падающего излучения, что принципиально уменьшает значение плотности энергии насыщения в случае высокодобротной метаповерхности. Характерные плотности энергии, необходимые для инъекции соответствующего количества свободных носителей, отмечены красными стрелками и показывают, что требуется всего 50 нДж/см^2 для достижения более чем

50% глубины модуляции по отношению к R_0 (рис. 2.19(a)). При этом плотность энергии насыщения является одним из ключевых параметров насыщающегося поглотителя, из чего следует, что данный метод позволяет получить энергоэффективное устройство на основе полупроводниковой метаповерхности. Стоит заметить, что существует определенный спад коэффициента отражения при более высоких значениях плотности потока энергии $F_p > 90$ нДж/см², связанный с эффектом сокращения запрещенной зоны, который приводит к $\Delta\alpha > 0$, кроме того, ожидается довольно низкий порог разрушения. Это накладывает некоторое ограничение на диапазон рабочих мощностей и тем самым ограничивает, например, энергию лазерного импульса и ее стабильность в реальных приложениях. Тем не менее такая конструкция кажется довольно привлекательной для создания лазерных систем, требующих сверхнизких мощностей.

В случае метаповерхности I типа (со сплошными дисками) максимальному N_e на рис. 2.15(a) соответствует плотность энергии $F = 180$ мкДж/см², а для метаповерхности II типа (диски с воздушными отверстиями) максимальному N_e на рис. 2.19(a) — $F = 90$ нДж/см². Плотность энергии насыщения $F_{\text{нас}}$ — это значение плотности энергии, достаточное для начала эффекта насыщения поглощения, то есть плотность энергии, при которой коэффициент пропускания/отражения испытывает заметную модуляцию по сравнению с начальным значением. Характерные значения, рассчитанные для метаповерхности I типа $F_{\text{нас}} = 140$ мкДж/см², а для метаповерхности II типа — $F_{\text{нас}} = 50$ нДж/см².

2.5 Анализ полученных результатов для эффекта насыщения поглощения в метаповерхностях на основе арсенида галлия

Таким образом, основная идея исследования эффекта насыщения (рис. 2.20) в полупроводниковых метаповерхностях заключается в следующем: метаповерхность с активными элементами в виде дисков GaAs освещается последовательностью фемтосекундных импульсов и при этом измеряется отраженная интенсивность. По мере увеличения интенсивности входящих импульсов состояния в зоне проводимости (верхние энергетические состояния) заселяются, а состояния в валентной зоне (нижние энергетические состояния) опустошаются

ся, в конечном итоге блокируя дальнейшее поглощение света, см. области (1), (2) и (3) на рис. 2.20. Оптические свойства метаповерхностей на длинах волн в спектральной окрестности их собственных резонансов чувствительны к концентрации свободных носителей, поскольку комплексный показатель преломления материала метаповерхности зависит от числа носителей. Увеличение заселенности носителей проявляется как нелинейное увеличение коэффициента отражения резонансной метаповерхности с увеличением падающей интенсивности, то есть происходит самомодуляция фемтосекундных импульсов в результате эффекта насыщения поглощения, что и наблюдается как в экспериментах, так и в численных расчетах (черная кривая и точки на рис. 2.20).

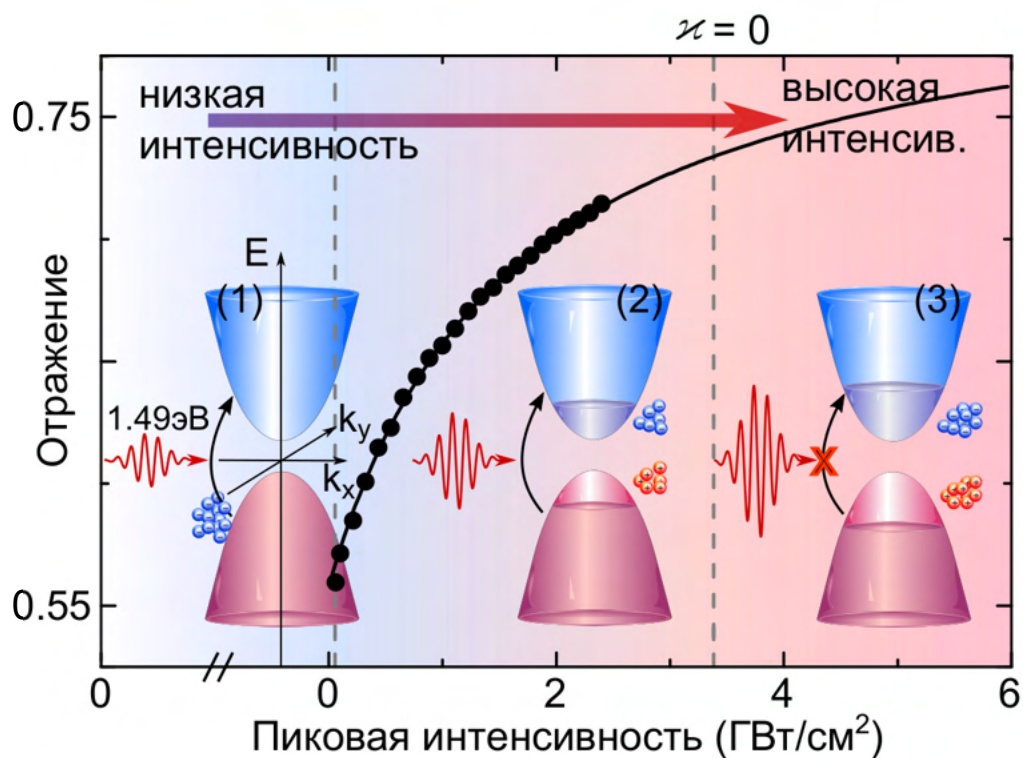


Рисунок 2.20 — Эффект самомодуляции в резонансных дисках GaAs. Черная кривая и точки показывают модуляцию отражения из-за эффекта насыщения поглощения, механизм которого изображен тремя областями: (1) — низкая интенсивность с линейным поглощением; средняя область (2), когда генерируемые носители изменяют параметры среды, тем самым изменяя коэффициент отражения и (3) — с высокой интенсивностью, когда среда больше не может поглощать входное излучение из-за запрета Паули.

Исследуемые низкодобротные и высокодобротные резонансные метаповерхности из GaAs проявляют сильное нелинейное поведение коэффициента

отражения и имеют низкие значения I_s . При сопоставлении результатов с данными предыдущих работ, рабочие плотности энергии метаповерхностей GaAs оказываются намного ниже, чем те, которые необходимы для метаповерхностей, например, на основе металла или кремния [1; 12]; в частности, в образце (iii) с небольшой добротностью наблюдаемое изменение относительной отражательной способности составляет 0.3 при плотности энергии 140 мкДж/см² (2.3 ГВт/см²). А модельные метаповерхности с высокой добротностью демонстрируют значительное уменьшение плотности энергии насыщения, которая в свою очередь играет ключевую роль в характеристике насыщающихся поглотителей.

Было проведено сравнение насыщающегося поглотителя на основе метаповерхности с другими насыщающимися поглотителями — с широко используемыми (коммерчески доступными) и иными устройствами. Это сравнение представлено на рис. 2.21. Зеркала с насыщающимся поглотителем SAM [124], резонансные зеркала с насыщающимся поглотителем RSAM [125] и LOFERS — устройства резонансного типа [126], представляющие собой наиболее распространенные насыщающиеся поглотители, пунктирные эллипсы на рисунке — насыщающиеся поглотители на основе метаповерхностей двух типов (для метаповерхности I типа получены экспериментальные и теоретические значения, для метаповерхности II типа — теоретические значения параметров). Глубина модуляции ΔR этих насыщающихся поглотителей из формулы (2.1) показана заштрихованными кружками, а соответствующие ненасыщенные потери ΔR_{ns} — теми же цветами и светлыми кружками. При этом $\Delta R_{ns} = 1 - R_1$, где R_0 — коэффициент отражения при “нулевой” плотности энергии импульса, R_1 — коэффициент отражения при “бесконечно-большой” плотности энергии импульса. Зеркало с насыщающимся поглотителем SAM800 [124], а также SESAM Reflektion с аналогичными параметрами [132] и резонансное зеркало с насыщающимся поглотителем RSAM980 [125] имеются в продаже. Из рисунка видно, что метаповерхность I типа имеет характеристики, сравнимые с альтернативными коммерческими устройствами, но метаповерхность имеет более компактные размеры и в силу технологических особенностей производства может быть легко интегрирована в современные оптические системы. Метаповерхность II типа с высокодобротным резонансом $Q \cong 500$, параметры которой получены численным расчетом, обладает принципиальным преимуществом по сравнению

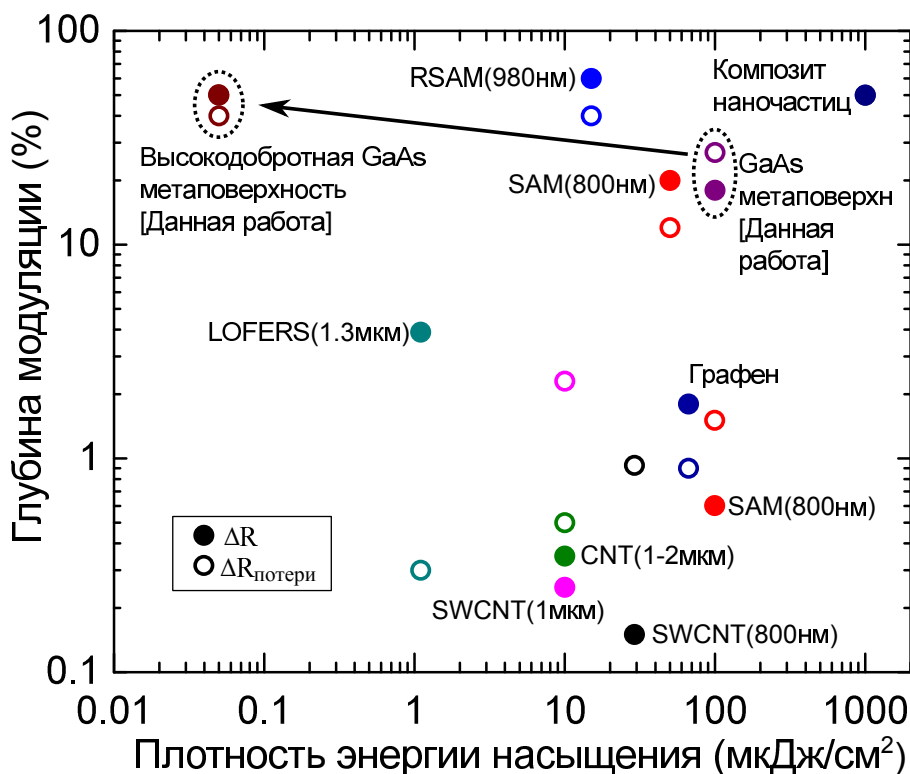


Рисунок 2.21 — Сравнение параметров глубины модуляции ΔR (заштрихованные круги) и соответствующие ненасыщенные потери $\Delta R_{\text{потери}}$ (показаны тем же цветом, но незаштрихованными кругами) для различных типов насыщающихся поглотителей как функция плотности потока энергии насыщения. Сокращения: SAM — saturable absorber mirror (зеркало с насыщающимся поглотителем) [124], RSAM — resonant saturable absorber mirror (резонансное зеркало с насыщающимся поглотителем) [125], SESAM (semiconductor saturable absorber mirror — полупроводниковое зеркало с насыщающимся поглотителем), LOFERS — low-field-enhancement resonant-like SESAM device (устройство резонансного типа SESAM с усилением при низких полях) [126], CNT — carbon nanotube (углеродные нанотрубки) [127], SWCNT — single-walled carbon nanotube (одностенные углеродные нанотрубки) [128; 129]. Данные для графена взяты из работы [130], для композита наночастиц из работы [131]. Пунктирные эллипсы обозначают метаповерхности GaAs для данной работы; значительное уменьшение интенсивности насыщения (показанное черной стрелкой) может быть достигнуто с использованием высокодобротной метаповерхности GaAs.

со всеми имеющимися насыщающимися поглотителями (проявляет значительное снижение плотности потока энергии насыщения, показанное черной стрелкой). С такой системой возможна высокая глубина модуляции при очень низких

плотностях энергии. Также структура может быть использована для создания сверхэнергоэффективных лазерных систем, так как для достижения эффекта насыщения в этом случае требуются очень небольшие значения плотности энергии электромагнитного излучения. Вследствие того, что производство метаповерхности II типа является более громоздким и метаповерхность II оказывается чувствительной к направлению поляризации при нормальном падении, в сравнении с метаповерхностью I типа, для некоторых систем целесообразнее использование метаповерхности I типа.

Глава 3. Оптическое переключение в метаповерхностях на основе арсенида галлия

Данная глава посвящена исследованию динамики оптической модуляции фемтосекундного импульса при взаимодействии со структурой из прямозонного полупроводника GaAs, в которой происходит возбуждение резонансов типа Ми в ближнем инфракрасном диапазоне [15; 133; 134]. Благодаря использованию прямозонного полупроводника возможен быстрый отклик системы на воздействии внешнего излучения.

3.1 Образцы метаповерхностей на основе арсенида галлия

Структура метаповерхности представляет собой аналогичную структуру, в виде упорядоченного массива нанодисков арсенида галлия, рассмотренную в главе 2, изображенную на рис. 2.1 изготовленную с использованием ранее описанной процедуры (раздел 2.1.2 [13]), которая включает травление гетероструктур GaAs/AlGaAs по маске до наностолбиков и последующее окисление слоя AlGaAs до AlGaO. Изображение полученного образца в различных растровых микроскопах представлено на рис. 3.1. Нижний слой из оксида AlGaO, как уже отмечалось ранее в главе 2 обеспечивает согласование индексов между верхней и нижней границами раздела нанодисков GaAs, что приводит к более выраженным резонансам. Остаточный слой из оксида кремния поверх структуры на верхней части нанодиска GaAs незначительно влияет на резонансные свойства. Наностолбики расположены на объемной подложке GaAs, которая была использована для юстировки схемы и контрольных измерений. Размеры изготовленной метаповерхности: диаметр и высота дисков GaAs $d_{\text{GaAs}} = 236$ нм, $h_{\text{GaAs}} = 300$ нм, период структуры $P = 620$ нм, толщина оксидного слоя $h_{\text{AlGaO}} = 330$ нм, толщина оксида кремния $h_{\text{SiO}_x} = 300$ нм. МД резонанс нанодиска GaAs показан на вставке рис. 3.2, где приведено локальное электрическое поле. При этом амплитуда и направление электрического поля образуют

вихревой профиль, характерный для магнито-дипольного резонанса в нанодисках [135].

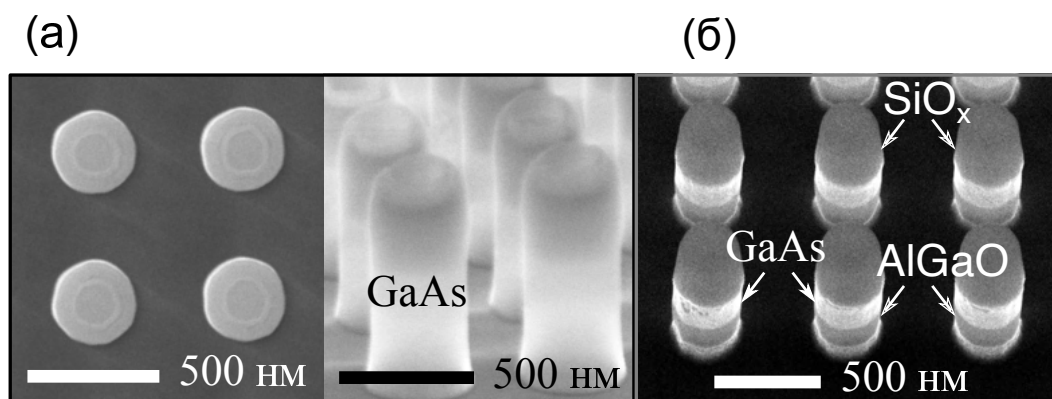


Рисунок 3.1 — Характерный вид образца метаповерхности в растровом электронном микроскопе: светло-серые области соответствуют материалу GaAs. (а) Один растровый микроскоп. (б) Другой растровый микроскоп. Белыми стрелками показаны материалы образцов.

3.2 Линейная спектроскопия коэффициента отражения метаповерхностей на основе арсенида галлия

3.2.1 Экспериментальная установка для измерения спектров отражения

Для невозмущающей оптической характеристики резонансов изготовленных метаповерхностей была собрана схема линейной спектроскопии коэффициента отражения в ближнем инфракрасном диапазоне с возможностью проведения спектроскопии образцов с угловым разрешением. В качестве источника света использовалась вольфрамовая галогеновая лампа накаливая, соединенная с монохроматором. Набор линз и диафрагм использовался для получения изображения источника света в плоскости образца с наибольшей и равномерной освещенностью и с числовой апертурой < 0.1 . С помощью поляризатора призмы Глана-Тейлора, установленного во вращающуюся оправу, возможно измерение спектров для различных линейных поляризаций. Образец помещался

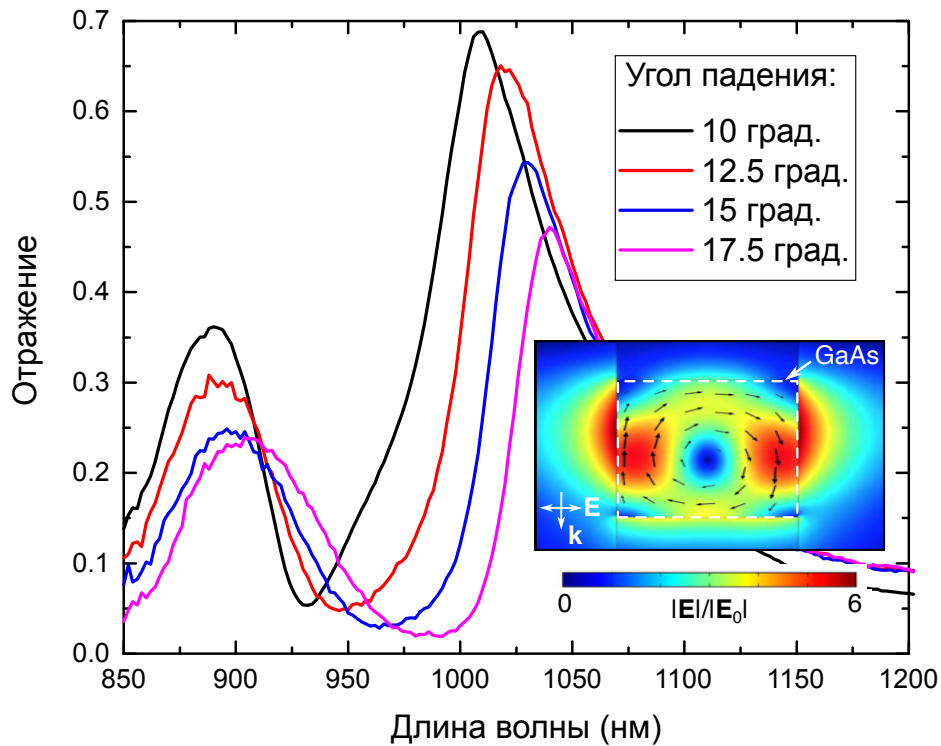


Рисунок 3.2 — Спектры отражения для метаповерхностей при р-поляризации падающего электромагнитного излучения в диапазоне углов падения света от $\theta = 10^\circ$ до $\theta = 17.5^\circ$. Вставка: интенсивность электрического поля $|E|^2$ (представлено цветом: красным показан максимум, синим — минимум) для длины волны падающего излучения $\lambda = 1020$ нм и угла падения $\theta = 12^\circ$, черные стрелки соответствуют направлению электрического поля E . Прямоугольник, отмеченный белыми пунктирными линиями, соответствует области полупроводника GaAs (вид сбоку на элементарную ячейку на рис. 2.1(б))

на трехмерный XYZ-линейный транслятор для изменения положения образца относительно перетяжки и перемещения по образцу. Выходной луч монохроматора модулировался оптическим прерывателем на частоте 170 Гц, при этом регистрировался сигнал с InGaAs-фотодиода. С помощью данной схемы линейной спектроскопии были измерены спектры пропускания образца для р-поляризованного излучения в диапазоне 850 нм — 1200 нм и углов падения излучения от $\theta = 10^\circ$ до $\theta = 55^\circ$ с шагом $d\theta = 2.5^\circ$. Для каждой длины волны и угла падения измеренные значения были нормированы на значения, полученные для серебряного зеркала установленного вместо образца. Измеренные спектры отражения образца нанодисков GaAs демонстрируют пики, соответствующие

электрическому (коротковолновый пик) и магнитному дипольным (длинноволновый пик) резонансам в ближней инфракрасной области спектра (рис. 3.2).

3.2.2 Численный расчет коэффициента отражения метаповерхности

Для численного расчета коэффициента отражения метаповерхности GaAs использовался коммерческий пакет программы COMSOL Multiphysical с периодическими граничными условиями Флоке и возбуждением плоской волны сверху. В плоскости симметрии были использованы граничные условия идеального магнитного проводника. Данный способ позволяет уменьшить размер вычислительного объема в два раза. Со стороны подложки GaAs был использован идеально согласованный слой (искусственный поглощающий слой), имитирующий отклик объемной подложки GaAs. Для комплексной функции диэлектрической проницаемости GaAs были использованы экспериментальные данные Palik [118]. Слой оксида AlGaO и верхний слой SiO_x моделировались как недисперсионные диэлектрические среды с показателем преломления $n = 1.6$ и $n = 1.45$ соответственно.

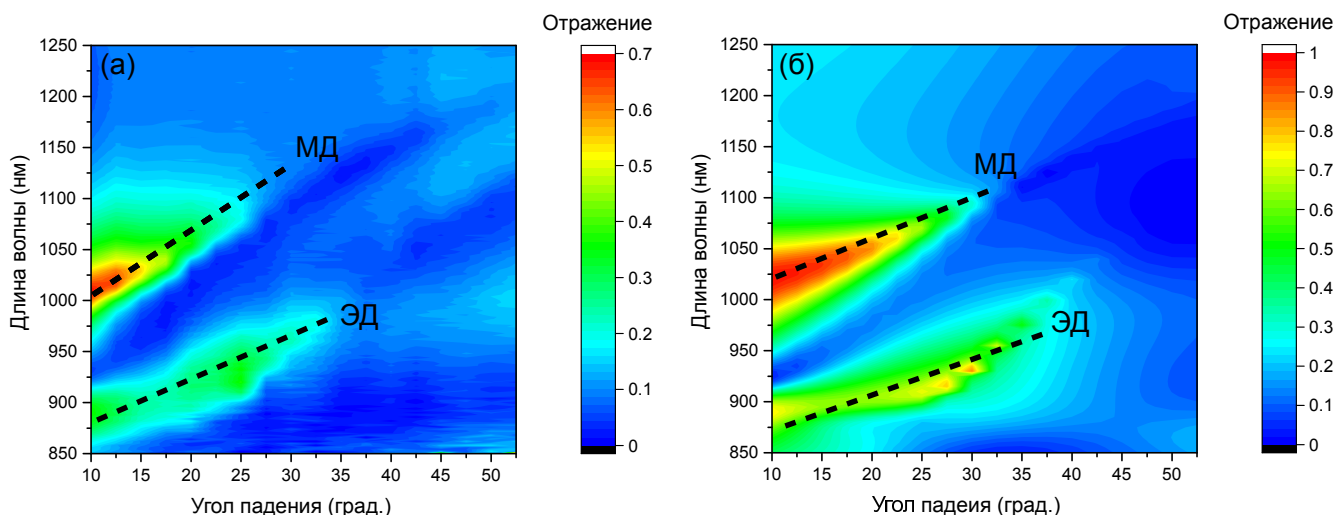


Рисунок 3.3 — Сравнение (а) экспериментальных спектров отражения метаповерхностей с (б) рассчитанными спектрами для р-поляризации падающего электромагнитного излучения и диапазона углов падения от $\theta = 10^\circ$ до $\theta = 55^\circ$. Черными пунктирными прямыми показаны изменение положения ЭД и МД мод.

Несоответствие диаметра, полученного на РЭМ-изображениях, и диаметра, использованного в моделировании, может быть связано как уже отмечалось в главе 2.2.1 с нецилиндрической формой изготовленного наностолбика материалов в образце 2.6. На рис. 3.3 представлено сравнение угловой зависимости экспериментальных спектров отражения метаповерхностей с расчетными спектрами для р-поляризации падающего электромагнитного излучения. Диапазона углов падения при этом от $\theta = 10$ до $\theta = 55^\circ$. Экспериментальные данные демонстрируют очень хорошее согласие с численным моделированием: положение ЭД и МД резонансов и их изменение с увеличением угла падения, отмеченное черными пунктирными прямыми.

3.3 Экспериментальная установка для исследования временных характеристик

3.3.1 Схема установки “накачка-зондирование” с широкополосным излучением в качестве зонда

Для создания установки “накачка-зондирование” с разными оптическими частотами, с помощью которой будет осуществляться фотогенерация свободных носителей и исследоваться их сверхбыстрая динамика в GaAs метаповерхностях, использовалось следующее лазерное оборудование (рис. 3.4): регенеративный усилитель (Ti:Sa) в качестве оптической накачки GaAs метаповерхности и генерации свободных носителей в полупроводнике; излучение регенеративного усилителя также использовалось для генерации электромагнитного излучения со сверхшироким спектром, которое применялось в качестве зондирующего излучения. Светоделитель после Ti:Sa отражает 80% и пропускает 20%, эти 20% использовались для генерации суперконтинуума в пластине сапфира толщиной 4 мм, используемого в качестве зонда. 80% излучения титан-сапфирового лазера после прохождения системы компенсации оптического пути, состоящей из набора оптических элементов, использовалось в качестве накачки. Для создания стабильной генерации зондирующего излучения требовалась дополнитель-

ная настройка накачки, которая осуществлялась с помощью диафрагмы перед фокусирующей линзой на пластину сапфира.

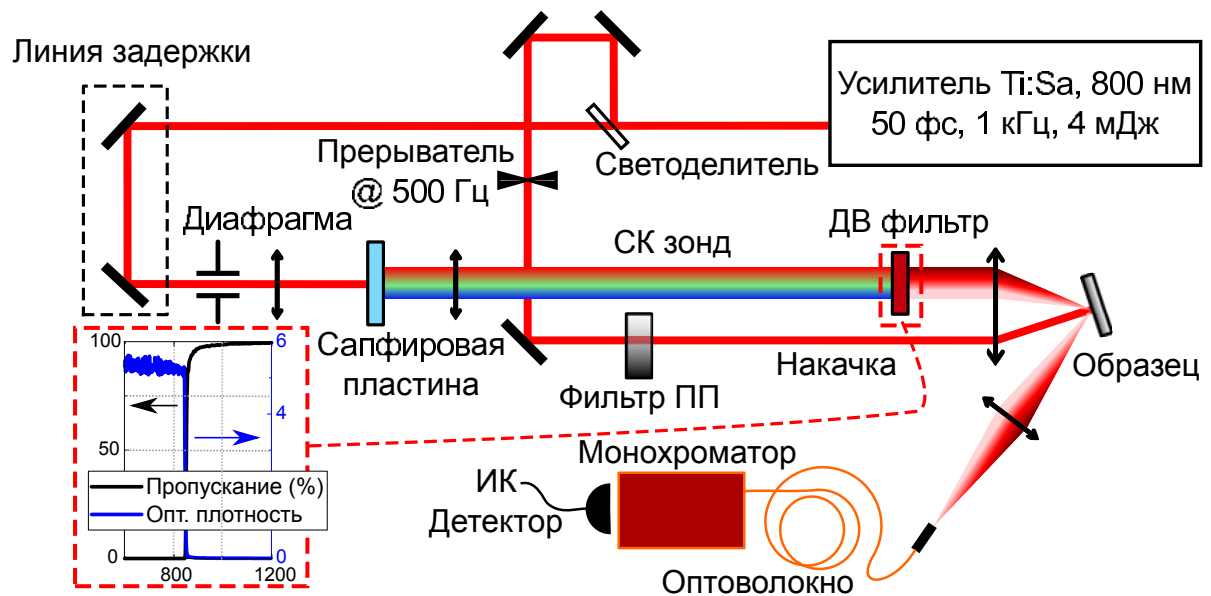


Рисунок 3.4 — Схема установки для методики “накачка-зондирование” с разными оптическими частотами. Фемтосекундные импульсы регенеративного усилителя Ti:Sa используются как в качестве накачки, так и для создания широкополосного зондирующего излучения — генерации суперконтинуума (СК) в сапфировой пластине. ДВ фильтр — длинноволновый интерференционный светофильтр позволяющий убрать мощное излучение накачки, фильтр ПП — фильтр переменной плотности для уменьшения мощности накачки падающей на образец.

Частота повторения зондирующего излучения составляет 1 кГц, после прохождения интерференционного светофильтра, позволяющего убрать паразитное остаточное излучение накачки 800 нм, диапазон длин волн излучения составил порядка 500 нм. Спектр полученного суперконтинуума представлен на рис. 3.5 и имеет максимум интенсивности в районе 1000 нм.

Средняя мощность при этом составила 0.3 мкВт. Размер перетяжки зондирующего излучения на образце измерялся с помощью методики “ножа” и составил 80 мкм (рис. 3.6). Излучение для генерации суперконтинуума проходит линию задержки, варьируемую автоматизированным микрометрическим транслятором с помощью контроллера для его управления с шагом 20 мкм, что эквивалентно 133 фс для создания временной задержки между зондирующим излучением и излучением накачки.

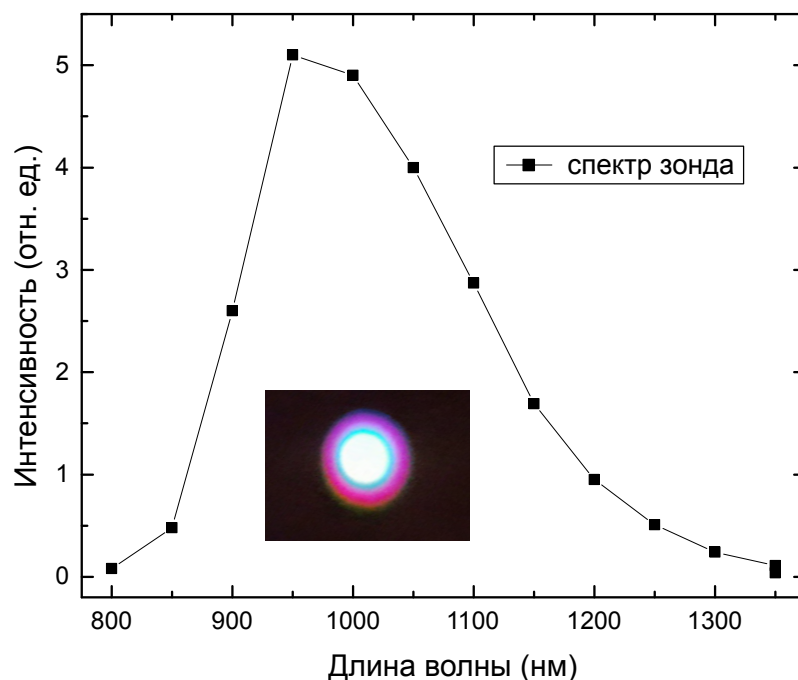


Рисунок 3.5 — Спектр суперконтинуума зондирующего излучения генерируемого в сапфировой пластине после прохождения интерференционного светофильтра, пропускающего длины волн больше 800 нм.

Накачка представляет собой излучение 800 нм (энергия фотонов ≈ 1.55 эВ) с длительностью импульса порядка 80 фс (методику измерения см. в подразделе 3.3.2), частотой следования 1 кГц и с энергией в импульсе до 2.5 мДж. Так как энергия в импульсе накачки достаточно велика требуется дополнительные светофильтры для уменьшения интенсивности накачки. Мощность излучения изменялась от 0.01 до 0.6 мВт (0,25 до 3 мДж/см²) с помощью фильтра с переменной оптической плотностью. Размер пятна оценивался из изображения накачки в камере с КМОП матрицей (Thorlabs DCC1545M), показанном на рис. 3.7 (на изображении исследуемого образца, отмеченного красным квадратом также заметны темные области в виде кругов, которые соответствуют поврежденным областям в результате более жесткой фокусировки накачки с мощностью превышающей порог разрушения, размер образца составляет порядка 500 × 500 мкм) и составил около 400 мкм.

Диаметр пятна накачки должен превышать диаметр пятна зонда в несколько раз для обеспечения однородной модуляции зондирующего излучения и получения стабильного сигнала переменного коэффициента отражения. Импульс накачки прерывался на частоте 500 Гц с помощью прерывателя с триг-

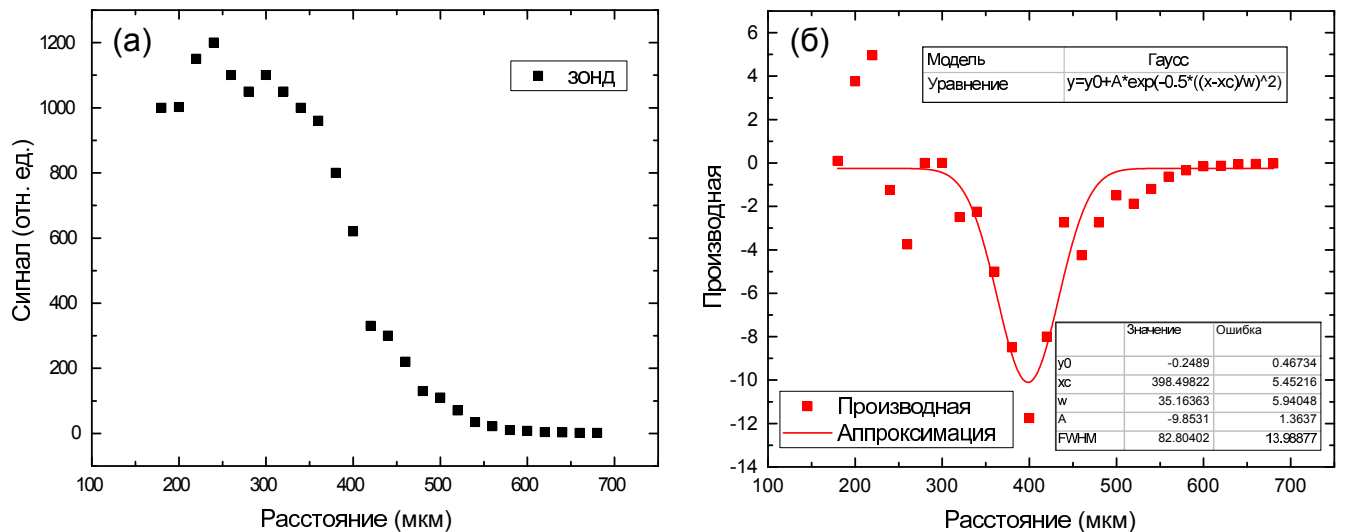


Рисунок 3.6 — Определение диаметра перетяжки зондирующего излучения методом “ножа”. (а) Перемещение экрана перпендикулярно распространению излучения в области перетяжки и измерение мощности излучения после экрана. (б) Производная мощности излучения после экрана.

герным управлением (ThorLabs MC2000B), триггер при этом подавался с регенеративного усилителя Ti:Sa. Фильтр с переменной оптической плотностью используется для ослабления луча накачки ниже значений плотности энергии ≈ 600 мкДж/см² для образца и ≈ 1.2 мДж/см² для подложки.

Оба луча были р-поляризованы в плоскости метаповерхности. Зондирующий импульс и импульс накачки фокусировались на образце под небольшим углом порядка $\theta = 11.5^\circ$. Образец при этом установлен на xuz транслятор, позволяющий перемещаться по фокусу вдоль оси для точного попадания в фокус линзы. Движение вдоль двух других осей позволяет перемещаться по образцу. При таком угле падения МД резонанс исследуемой метаповерхности в невозмущенном состоянии оказывается на длине волны порядка 1020 нм с добротностью $Q_0 \approx 15$. Для определения положения перетяжки на образце была собрана дополнительная система визуализации изображения образца с помощью лампы, системы собирающих линз для увеличения изображения, зеркал и камеры.

При отражении от образца зондирующий луч попадет на входную щель монохроматора (Avesta ASP-IR), и регистрируется с помощью фотодиода InGaAs; спектральное разрешение составило порядка 5 нм. Изменение коэффициента отражения, вызванное накачкой, определяется программным обеспечением на частоте оптического прерывателя ($\Delta R_{500 \text{ Гц}}$) вместе с амплитудой самого отраженного сигнала ($I_{1 \text{ кГц}}$). Собранная установка “накачка-зондирование” позво-

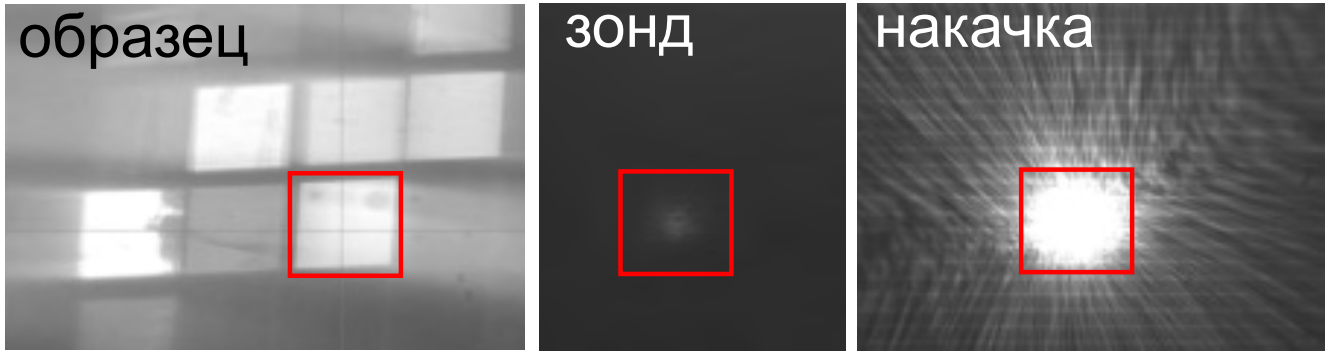


Рисунок 3.7 — Изображение на ПЗС камере: набора массивов образцов (слева) в свете лампы, рассеяния зондирующего излучения (по центру), рассеяния излучения накачки (справа). Красным квадратом отмечена исследуемая метаповерхность, размер которой порядка 500×500 мкм.

ляет измерять дифференциальное отражение в относительных единицах определяемое как: $\Delta R = (R_{\text{pump}}(\tau) - R) = I_{500\text{Гц}}$, где R — спектр отражения образца, а $R_{\text{pump}}(\tau)$ спектр отражения образца при наличии излучения накачки для определенного времени задержки τ между накачкой и зондом. При этом нормированное дифференциальное отражение $\Delta R/R = (R_{\text{pump}}(\tau) - R)/R = I_{500\text{Гц}}/(I_{1\text{кГц}} - I_{500\text{Гц}}/2)$. Измеренные данные представляют собой серию разностных спектров отражения $\Delta R/R$ для различного времени задержки между накачкой и зондом как функция длины волны зондирующего излучения. (Более подробно методика измерения и определения изменений коэффициента отражения изложена в подразделе 3.3.3).

3.3.2 Измерение длительности импульса накачки

Запишем импульс с гауссовой огибающей единичной амплитуды в виде $I_{\text{gauss}}(t) = e^{-4\ln 2(t/w)^2}$, для данной записи огибающей полная ширина на полувысоте $FWHM = w$ и определяется как длительность импульса. При этом $I(t) = |E(t)|^2$, где $E_{\text{gauss}}(t) = e^{-4\ln 2(t/w_E)^2}$, $w_E = FWHM$ — длительность импульса по полю, а длительность импульса по полю в $\sqrt{2}$ шире длительности импульса по интенсивности $w_E = w\sqrt{2}$. Вычисляя интеграл для автокорреля-

ционной функции (АКФ) в случае гауссового импульса:

$$I_{\text{gauss}}^{\text{ACF}}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{gauss}}(t) I_{\text{gauss}}(t - \tau) dt,$$

получаем:

$$I_{\text{gauss}}^{\text{ACF}}(\tau) = w \sqrt{\frac{\pi}{4 \ln 4}} e^{-4 \ln 2 \left(\frac{\tau}{w\sqrt{2}}\right)^2}. \quad (3.1)$$

Таким образом АКФ гауссового импульса также является функцией с гауссо-

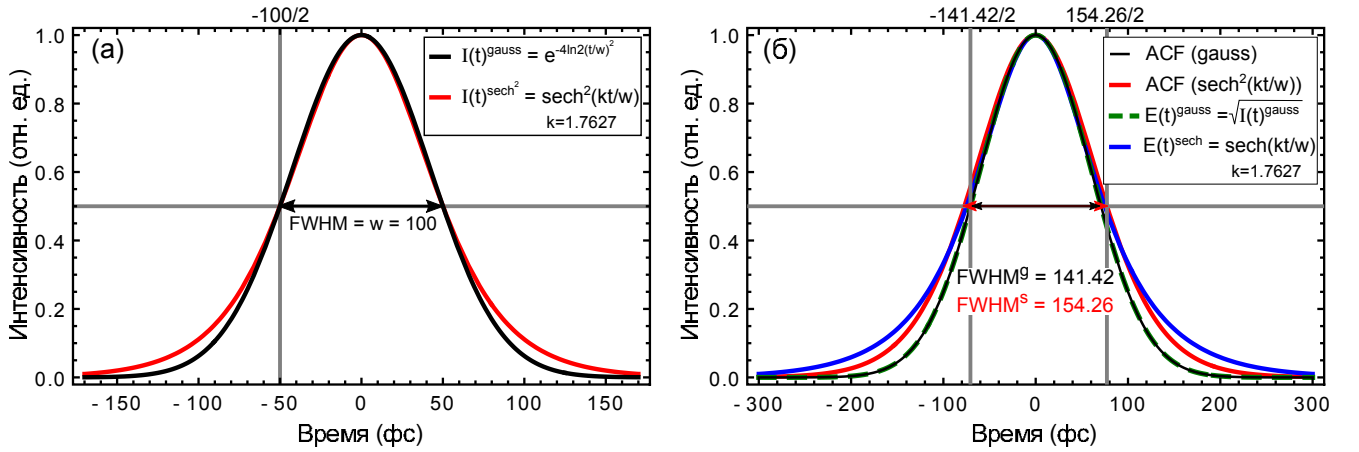


Рисунок 3.8 — Временные профили импульсов в виде sech^2 и гауссовой функций единичной амплитуды $I_{\text{gauss}}(t) = |E_{\text{gauss}}(t)|^2 = e^{-4 \ln 2 (t/w)^2}$ и $I_{\text{sech}^2}(t) = |E_{\text{sech}}(t)|^2 = (\text{sech}(kt/w))^2$ соответственно (коэффициент $k = 1.7627$). (а) Интенсивность импульсов $I_{\text{gauss}}(t)$ и $I_{\text{sech}^2}(t)$ одинаковой ширины $FWHM = 100$ фс. (б) Соответствующие автокорреляционные функции (АКФ) импульсов $I_{\text{gauss}}(t)$ и $I_{\text{sech}^2}(t)$ одинаковой ширины и их поля $E_{\text{gauss}}(t)$ и $E_{\text{sech}}(t)$.

вой огибающей, но в $\sqrt{2}$ раз уже исходного импульса $I_{\text{gauss}}(t)$. В случае импульса с огибающей единичной амплитуды в форме гиперболического секанса sech $I(t)_{\text{sech}^2} = |E_{\text{sech}}(t)|^2 = (\text{sech}(t/w))^2$, где длительность импульса $\tau_{\text{и}}$ определяется как полная ширина на полувысоте $FWHM$, при этом $FWHM = 1.7627w$, но иногда и сам параметр w называют длительностью sech^2 импульса. Интеграл для автокорреляционной функции в этом случае:

$$\begin{aligned} I_{\text{sech}}^{\text{ACF}}(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{sech}}(t) I_{\text{sech}}(t - \tau) dt = \\ &= 4w \text{csch}^2(\tau/w) [-1 + (\tau/w) \coth(\tau/w)], \end{aligned} \quad (3.2)$$

где $\operatorname{sech} x = \frac{2}{e^x + e^{-x}}$ — гиперболический секанс, $\operatorname{csch} x = \frac{2}{e^x - e^{-x}}$ — гиперболический косеканс и $\operatorname{coth} x = \frac{e^x + e^{-x}}{e^x - e^{-x}}$ — гиперболический котангенс.

Из уравнения (3.2) следует, что АКФ для импульса с формой sech^2 не может быть представлена той же аналитической формой sech^2 , полученная форма АКФ математически сложнее, но ее можно вычислить аналитически.

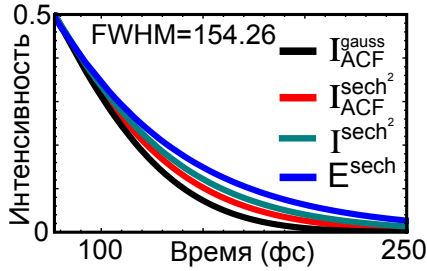


Рисунок 3.9 — АКФ для гауссовой функции $I_{\text{gauss}}^{\text{ACF}}(\tau)$, секанса $I_{\text{sech}^2}^{\text{ACF}}(\tau)$, интенсивность $I_{\text{sech}^2}(t)$ и поле секанса $E_{\text{sech}}(t)$ одинаковой ширины $FWHM$.

На рисунке 3.8 представлены временные профили импульсов в виде sech^2 и гауссовой функций единичной амплитуды и их АКФ. Коэффициент $k = 1.7627$ в аргументе sech задан для достижения одинаковой с гауссовым импульсом ширины на полувысоте $FWHM$. По сравнению с импульсом, заданным гауссовой функцией той же ширины, функция sech^2 имеет более широкие крылья, как видно из рисунка 3.8(a). На панели (б) этого рисунка показаны соответствующие автокорреляционные функции заданных импульсов $I_{\text{gauss}}(t)$ и $I_{\text{sech}^2}(t)$ с одинаковой шириной, а также их поля $E_{\text{gauss}}(t)$ и $E_{\text{sech}}(t)$. АКФ для функции Гаусса совпадает с полем гауссова импульса $E_{\text{gauss}}(t)$, в то время как свертка двух sech^2 не является функцией sech , хотя и близка по форме к $I_{\text{sech}^2}(t)$ (см. рис. 3.9). На рисунке 3.9 представлены четыре функции одинаковой ширины $FWHM$: АКФ для функции Гаусса и секанса $I_{\text{gauss}}^{\text{ACF}}(\tau)$, $I_{\text{sech}^2}^{\text{ACF}}(\tau)$, интенсивность $I_{\text{sech}^2}(t)$ и поле секанса $E_{\text{sech}}(t)$. Таким образом для оценки ширины АКФ можно в том числе использовать аппроксимацию функцией $I_{\text{sech}^2}(t)$. Из формулы 3.1 и рис. 3.8 следует, что для гауссового временного профиля длительность импульса $\tau_{\text{и}}$ по интенсивности меньше ширины АКФ в $\sqrt{2} = 1.4142$, для sech^2 эта зависимость получена только численно и из рисунка 3.8 следует, что в этом случае ширина АКФ $FWHM^s = 1.5426 \cdot \tau_{\text{и}}$.

Длительность лазерного импульса накачки была измерена несколькими способами. 1 способ — сразу после лазера с помощью одноимпульсного автокоррелятора Avesta ASF-20 (прибор был изготовлен на заказ из-за нестандартных характеристик), предназначенного для измерения импульсов в диапазоне 20-200 фс. Скриншот программы при измерении автокоррелятором представ-

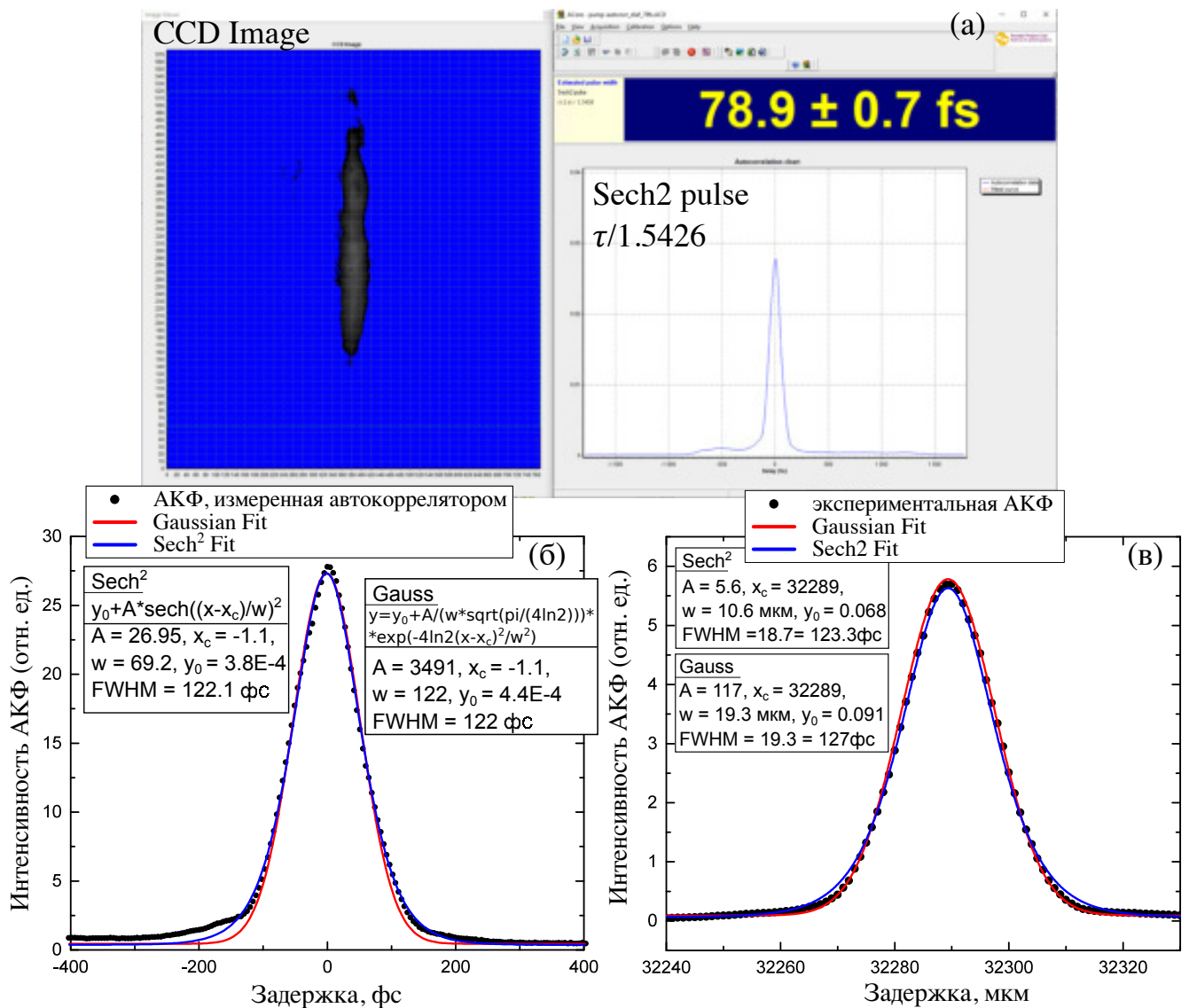


Рисунок 3.10 — АКФ фемтосекундного лазерного импульса. (а) Скриншот программы одноимпульсного автокоррелятора Avesta ASF-20: левая часть — изображение импульса на ПЗС-матрице, справа — полученная АКФ и значение длительности импульса для функции sech^2 . (б) Данные для АКФ, измеренной автокоррелятором и соответствующая аппроксимация гауссовой:

$$y = y_0 + A / (w \sqrt{\pi / (4 \ln 2)}) \exp[-4 \ln 2 ((x - x_c) / w)^2], \text{ и } \operatorname{sech}^2:$$

$y = y_0 + A \operatorname{sech}^2((x - x_c) / w)$ функциями. (в) АКФ, измеренная с помощью экспериментальной установки 3.4 с заменой образца на нелинейный кристалл

ВВО и без длинноволнового фильтра; соответствующая аппроксимация гауссовой и sech^2 функциями.

лен на рис. 3.10(а), левая часть которого это изображение импульса на ПЗС-матрице, правая — полученная АКФ и вычисленное значение длительности импульса $\tau_{\text{и}} = 79$ фс для случая sech^2 . На рис. 3.10(б) представлены полу-

ченные автокоррелятором данные АКФ и её аппроксимация гауссовой функцией $y = y_0 + A/(w\sqrt{\pi/(4 \ln 2)}) \exp[-4 \ln 2((x - x_c)/w)^2]$, и sech^2 функцией $y = y_0 + A \operatorname{sech}^2((x - x_c)/w)$, а также соответствующие параметры аппроксимации. Несимметричность АКФ на рис. 3.10(а,б), которая должна быть симметрична при любой форме импульса, обусловлена неоптимальной юстировкой завода излучения в автокоррелятор. Из аппроксимации следует, что импульс имеет временной профиль квадрата гиперболического секанса sech (эта зависимость более явно прослеживается на рис. 4.13 в силу более оптимальной юстировки завода излучения в автокоррелятор и соответственно более симметричной АКФ). 2 способ — измерение АКФ с помощью экспериментальной установки 3.4 без длинноволнового фильтра, при замене образца на нелинейный кристалл ВВО и последующей регистрацией неколлинеарной второй гармоники ИК-детектором (в этом случае экспериментальная установка аналогична автокорреляционной схеме). На рис. 3.10(в) показана АКФ, полученная таким образом, как функция задержки между двумя импульсами, а также соответствующая аппроксимация гауссовой и sech^2 функциями и ее параметры (задержка между импульсами соответствует шагу транслятора в линии задержки на рис. 3.4, поэтому оптический путь в 2 раза больше, а временная задержка между импульсами таким образом составляет $\tau[\text{фс}] = \text{шаг}[\text{мкм}] \times 2 \times 3.3$). Длительность импульса как и при измерении 1ым способом имеет величину $\tau_{\text{и}} = FWHM/1.5426 = 79$ фс для случая sech^2 . Кривая чувствительности используемого InGaAs фотодиода показана на рис. 3.12(а).

3.3.3 Схема сбора и анализа данных дифференциального коэффициента отражения метаповерхности

Определение модуляции зондирующего излучения методом синхронного детектирования, используемого для измерения слабых сигналов, находящихся даже в тысячи раз ниже уровня шумов, в силу невысокой частоты следования импульсов (1 кГц) и высокой скважностью (отношение периода следования к ширине импульсного сигнала) не может быть достигнуто и необходима специальная методика измерения. Импульсный интегратор (Voxcar, в работе

использовалась модель SR250 stanford), представляет собой модульную инструментальную платформу, предназначенную для сбора и анализа быстрых аналоговых сигналов и позволяет работать с шириной импульсного сигнала от 100 пс до 150 мкс, частотой повторения до 50 кГц. Voxcar обеспечивает измерение быстрых аналоговых сигналов на фоне шумов при работе с сигналами высокой скважности, где полезная информация содержится только в незначительной части периода, большую долю которого составляет шум. Интегратор собирает сигнал в четко определенном временном окне (Gate, прямоугольный сигнал, изображенный голубой кривой на рис. 3.11 и 3.12(б)) в каждом периоде, а весь сигнал вне этого окна отбрасывается.

На рис. 3.11 слева в пунктирном эллипсе показаны некоторые элементы оптической схемы (блок 1: лазер, генерирующий импульсы зонда и накачки, оптический прерыватель Chopper, образец O, монохроматор M, детектор Det), блоки 3, 4 для сбора и анализа сигналов, а также триггеры tr и tr2. Триггер (tr) с частотой 1 кГц при этом был взят из блока управления лазером накачки, то есть был синхронизован с импульсами накачки и используется для оптического прерывателя, а также Voxcar. Триггер 2 (tr2) с частотой 500 Гц — выходной сигнал от оптического прерывателя используется в блоке 4. Блок 1 демонстрирует последовательность 100 фс импульсов зонда, показанных красными кривыми, следующими с частотой 1 кГц (1 мс), импульсы накачки, показанные розовым цветом. Блоки 2,3, демонстрируют влияние накачки на зондирующие импульсы, как уже отмечалось, накачка перекрывается оптическим прерывателем с частотой 500 Гц (2 мс), то есть импульсы зонда через один подвергаются воздействию накачки (что показано розовым цветом в верхнем ряду блока 2). Соответствующий сигнал на детекторе (оранжевые кривые), который, предположим, уменьшается при освещении образца накачкой, при этом регистрируется во временном окне Voxcar (голубые кривые), длительность которого была выбрана порядка 50 нс (увеличенное изображение сигнала с детектора и окна Voxcar для двух случаев наличия и отсутствия накачки также показано на рис. 3.11 в серых эллипсах).

Такое изображение сигнала детектора и окна Voxcar можно наблюдать на экране цифрового осциллографа, фотография которого представлена на рис. 3.12(б), где желтой кривой показан характерный вид сигнала детектора, а голубой — соответствующее подобранное окно Voxcar.

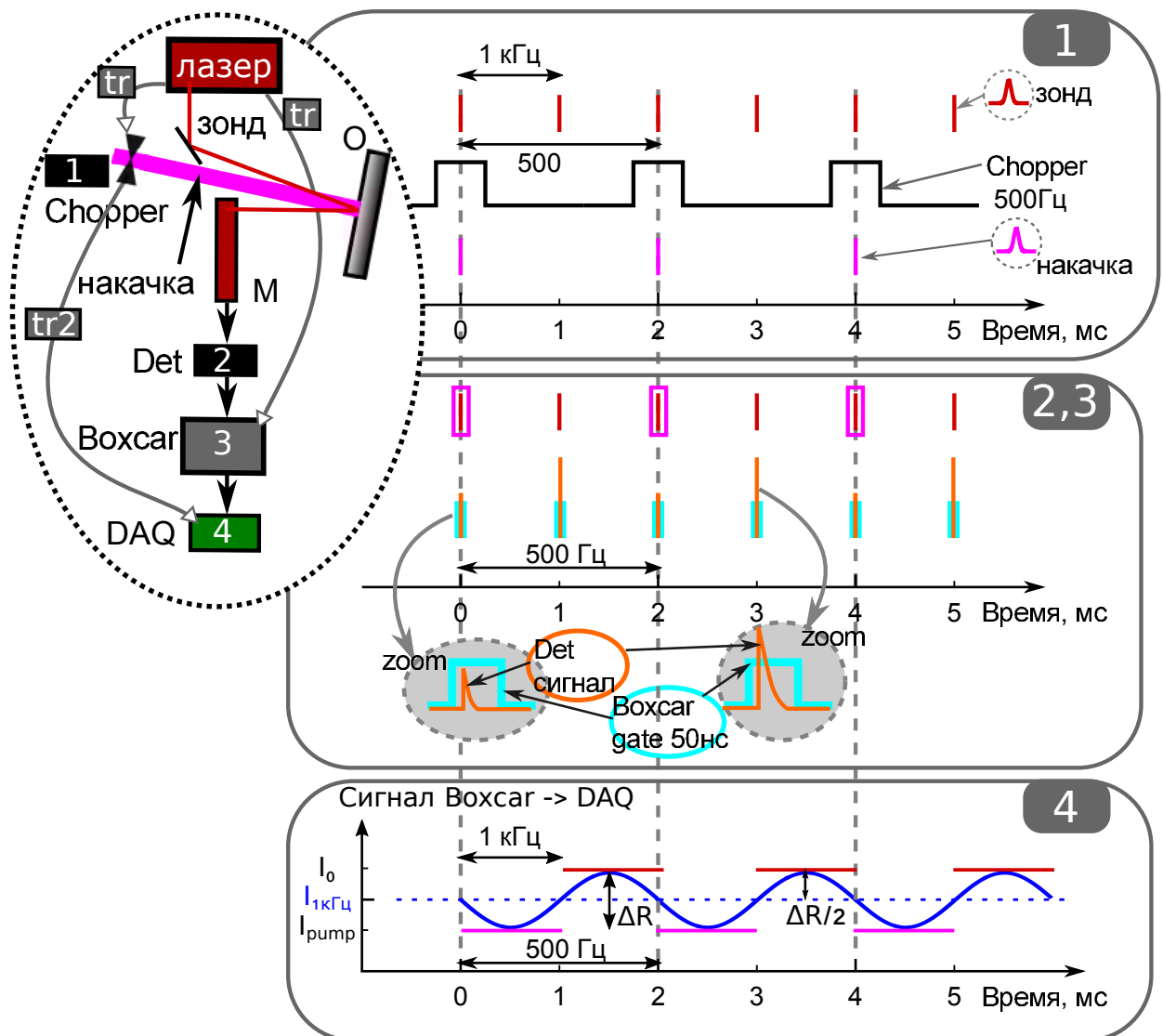


Рисунок 3.11 — Схема измерительной части дифференциального отражения образца. Chopper — оптический прерыватель, O — образец, M — монохроматор, tr — триггер 1кГц, tr2 — триггер 500Гц, Det — детектор, Вохсар — интегратор, DAQ — система сбора данных.

Аналоговый сигнал после обработки Вохсар, данные при этом были взяты без дополнительного усреднения Вохсар, то есть значение для каждого импульса с частотой 1 кГц (розовые и красные прямые в блоке 4), передавался в модуль сбора данных (DAQ — data acquisition). В работе использовалась четырехканальная карточка NI-4462 National Instruments. При этом использовался 0 и 3ий канал, чтобы избежать наводок каналов друг от друга. Выходной сигнал tr2 с частотой 500 Гц от оптического прерывателя поступал на модуль DAQ. Кроме того, с помощью системы сбора данных NI-4462 в программе LabVIEW была реализована функция двухфазного синхронного детектора для определения

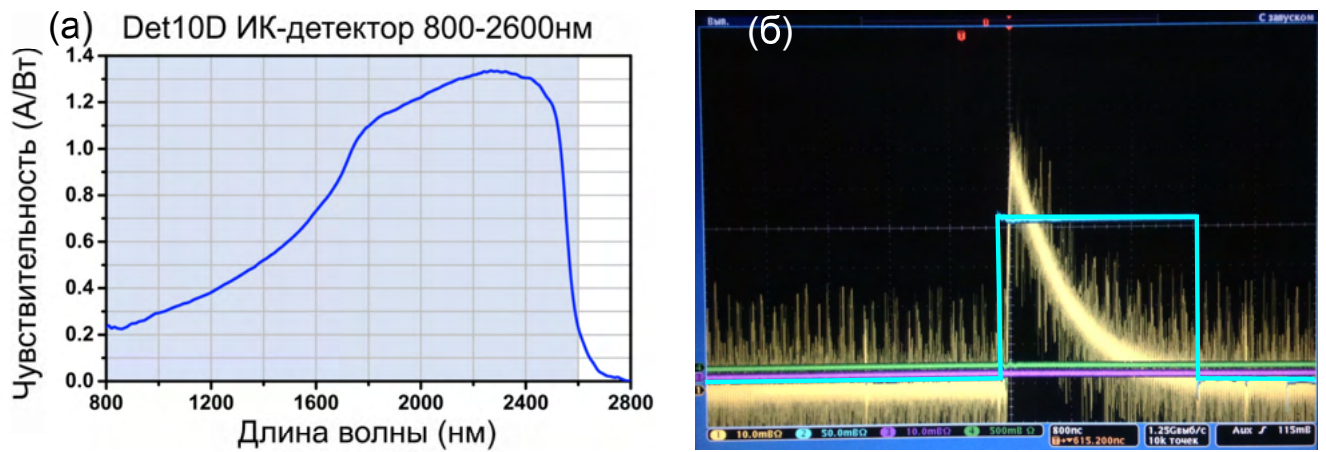


Рисунок 3.12 — (а) Кривая чувствительности используемого InGaAs фотодиода. (б) Характерное изображение на экране цифрового осциллографа сигнала с детектора (желтая кривая) и временного окна интегратора Voxcar (голубая кривая).

значения модуляции зондирующего излучения под действием накачки. В основе двухфазного синхронного детектора лежит перемножение опорного сигнала V_{ref} с фазой θ_{ref} (а также с фазой сдвинутой на $\pi/2$) и измеряемого сигнала V_{sig} с фазой θ_{sig} , а также фильтр низких частот, подавляющий высокочастотные компоненты, то есть при этом сохраняются только сигналы с частотами близкими к опорной частоте. На выходе синхронного детектора имеются синфазная компонента $X = V_{\text{ref}} \cos(\theta_{\text{sig}} - \theta_{\text{ref}})$, квадратурная компонента $Y = V_{\text{ref}} \sin(\theta_{\text{sig}} - \theta_{\text{ref}})$ и величина $r = \sqrt{X^2 + Y^2} = V_{\text{sig}}$. Для сигналов с частотами близкими к опорной частоте доминирующий вклад будет содержаться в компоненте X , кроме того, в отличие от r , величина X , фазочувствительный сигнал, поэтому содержит в себе знак модуляции зондирующего излучения. Таким образом изменение отражение зонда $\Delta R = R_{\text{pump}} - R_0 = X_{500 \text{ Гц}}$ (индекс “500 Гц” далее будет опущен), вызванное излучением накачки, фиксировалось на частоте оптического прерывателя с помощью программного обеспечения. Дополнительно, для возможности определения безразмерных величин модуляции, определялась также амплитуда отраженного сигнала зонда на удвоенной частоте оптического прерывателя $I_{1 \text{ кГц}} = r$. При этом $\Delta R/R_0 = (I_{\text{pump}} - I_0)/I_0 = X/(I_{1 \text{ кГц}} - X/2)$ (см. рис. 3.11 4 блок). Кроме того, одновременно измерение X и $I_{1 \text{ кГц}}$ и последующая нормировка позволяет уменьшить влияние флуктуаций интенсивности зондирующего излучения.

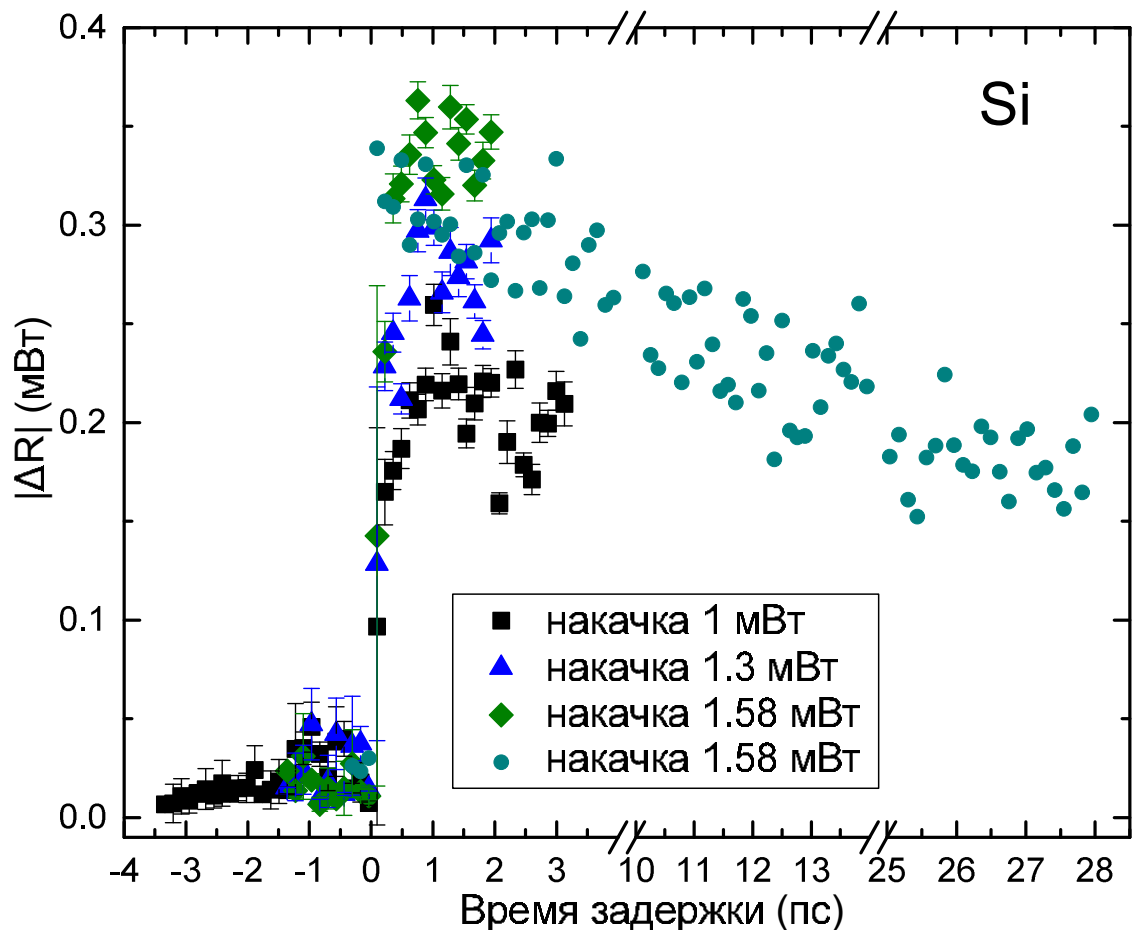


Рисунок 3.13 — Дифференциальное отражение кремния Si как функция времени задержки накачка-зонд для мощности накачки 1 мВт, 1.3 мВт и 1.58 мВт.

Нахождение нулевого времени задержки (τ_0) между излучением накачки и зонда проводилось с помощью пластины кремния Si. В этом полупроводнике под воздействием излучения накачки происходит генерация свободных носителей, изменение числа которых приводит к изменению коэффициента пропускания и отражения, кроме того, динамика релаксации свободных носителей составляет более 100 пс, таким образом позволяя задавать шаг транслятора достаточно большим и сканировать сразу широкую область времен задержки (100 пс соответствует шагу транслятора порядка 1.5 см, то есть оптическому пути между накачкой и зондом 3 см). Дифференциальное отражение кремния Si как функция времени задержки накачка-зонд для мощности накачки 1 мВт (черные точки), 1.3 мВт (синие точки) и 1.58 мВт (зеленые) представлено на рис. 3.13 и показывает резкое изменение отражения при одновременном приходе накачки и зонда ($\tau = 0$) и дальнейшую медленную пикосекундную релаксацию, кроме того, при большей мощности накачки наблюдаются большие

изменения отражения. Изменение отражения кремния было измерено с помощью ИК-детектора без разрешения по спектру (при отсутствии монохроматора в схеме на рис. 3.4).

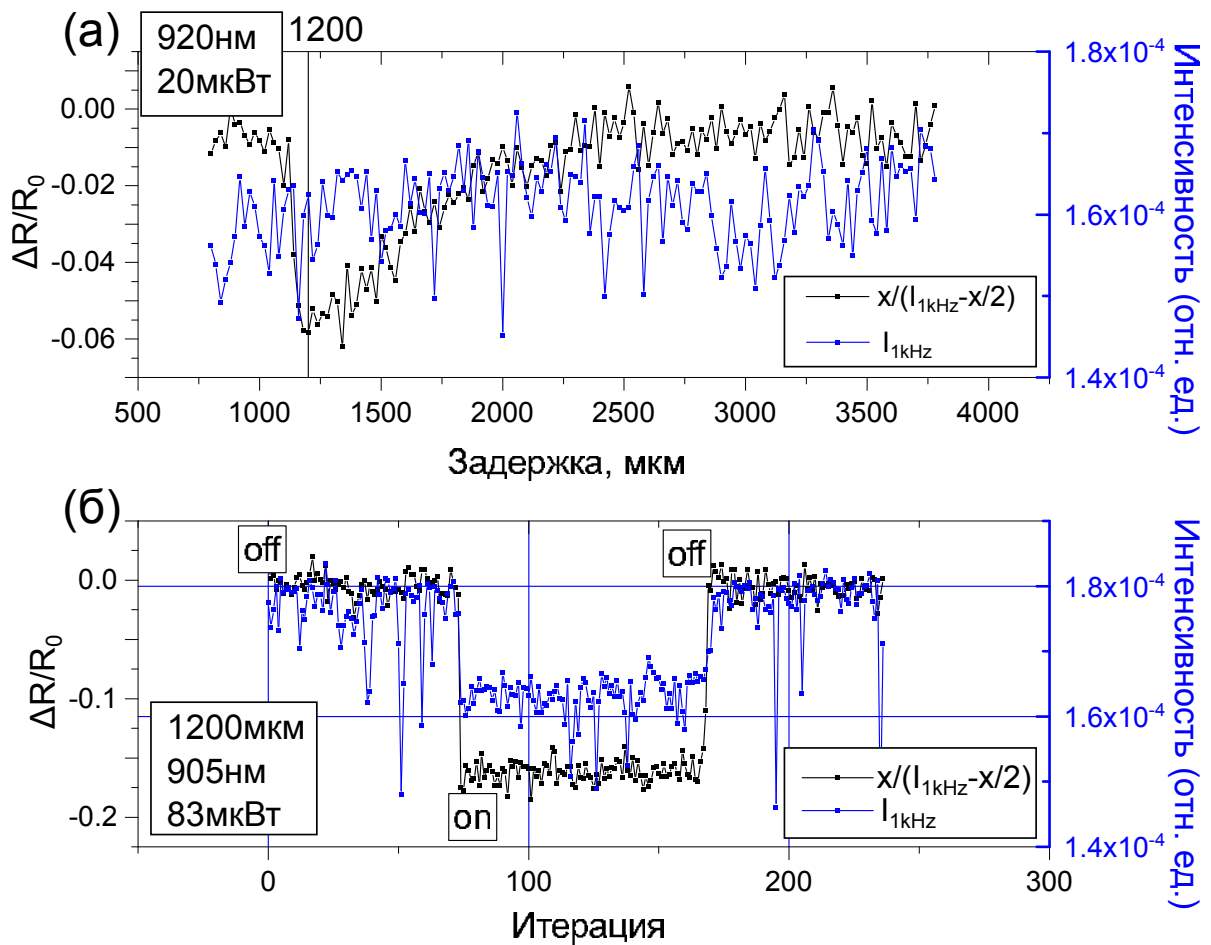


Рисунок 3.14 — Дифференциальное отражение метаповерхности GaAs (черная кривая) и отраженная интенсивность зонда (синяя кривая) (а) как функция задержки накачка-зонд (шаг транслятора линии задержки) при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 920$ нм на длинноволновом склоне ЭД резонанса, для мощности накачки 20 мкВт и (б) как функция итерации измерения при закрытии/открытии излучения накачки (off — без воздействия излучение накачки, on — при облучении метаповерхности накачкой) на длине волны зондирующего излучения $\lambda = 905$ нм при шаге транслятора 1200 мкм (на панели (а) эта задержка обозначена вертикальной прямой и соответствует максимуму изменения отражения), для мощности накачки 83 мкВт.

На рис. 3.14 показано дифференциальное отражение для GaAs метаповерхности $\Delta R/R_0 = X/(I_{1\text{кГц}} - X/2)$ (черная кривая) и отраженная интен-

сивность зонда $I_{1\text{кГц}}$ (синяя кривая) как функция задержки накачка-зонд при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 920$ нм, для мощности накачки 20 мкВт (панель (а)). Кроме того, было измерено дифференциальное отражение $\Delta R/R_0$ и $(I_{1\text{кГц}})$ (черная и синяя кривая соответственно на рис. 3.14(б)) как функция итерации при закрытии/открытии излучения накачки (off) — без воздействия излучение накачки, on) — при облучении метаповерхности накачкой) на длине волны зондирующего излучения $\lambda = 905$ нм при задержке 1200 мкм (на панели (а) эта задержка обозначена вертикальной прямой и соответствует максимальному изменению отражения), для мощности накачки 83 мкВт. Длины волн $\lambda = 905$ и 920 нм находятся на длинноволновом склоне ЭД резонанса и имеют схожее отрицательное изменение отражения зонда в коротковолновой части исследуемого спектра. Как видно из панелей (а) на рис. 3.14 и рис. 3.15 синхронное детектирование позволяет измерить слабые изменения отражения зондирующего излучения. На рис. 3.14(б) для интенсивности зонда $I_{1\text{кГц}}$ (синяя кривая) отчетливо наблюдается область уменьшения интенсивности под воздействием излучения накачки (мощность излучения накачки была увеличена для лучшей визуализации изменений). Заметим, что величина интенсивности зонда под действием накачки I_p не измеряется напрямую (частота оптического прерывателя 500 Гц, поэтому на частоте 1 кГц регистрируется среднее между I_p и I_0 значение, см. рис. 3.11(блок 4)), а определяется как $I_p = I_0 + 2(I_{1\text{кГц}} - I_0) = 2I_{1\text{кГц}} - I_0$. Величина $X/(I_{1\text{кГц}} - X/2)$ (черная кривая) при этом, как и ожидалось, демонстрирует аналогичные изменения.

Кроме того, аналогичные измерения были проведены для положительной модуляции зондирующего излучения. На рис. 3.15 показано дифференциальное отражение для GaAs метаповерхности $\Delta R/R_0 = X/(I_{1\text{кГц}} - X/2)$ (черная кривая) и отраженная интенсивность зонда $I_{1\text{кГц}}$ (синяя кривая) как функция задержки накачка-зонд при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 995$ нм, для мощности накачки 20 мкВт (панель (а)). На панели (б) показано дифференциальное отражение $\Delta R/R_0$ и $(I_{1\text{кГц}})$ (черная и синяя кривая соответственно) как функция итерации при закрытии/открытии излучения накачки (off) — без воздействия излучение накачки, on) — при облучении метаповерхности накачкой) на длине волны зондирующего излучения $\lambda = 995$ нм при задержке 1200 мкм (на панели (а) эта задержка обозначена вертикальной прямой и соответствует максимальному изменению отражения), для мощности накачки 83 мкВт. Дли-

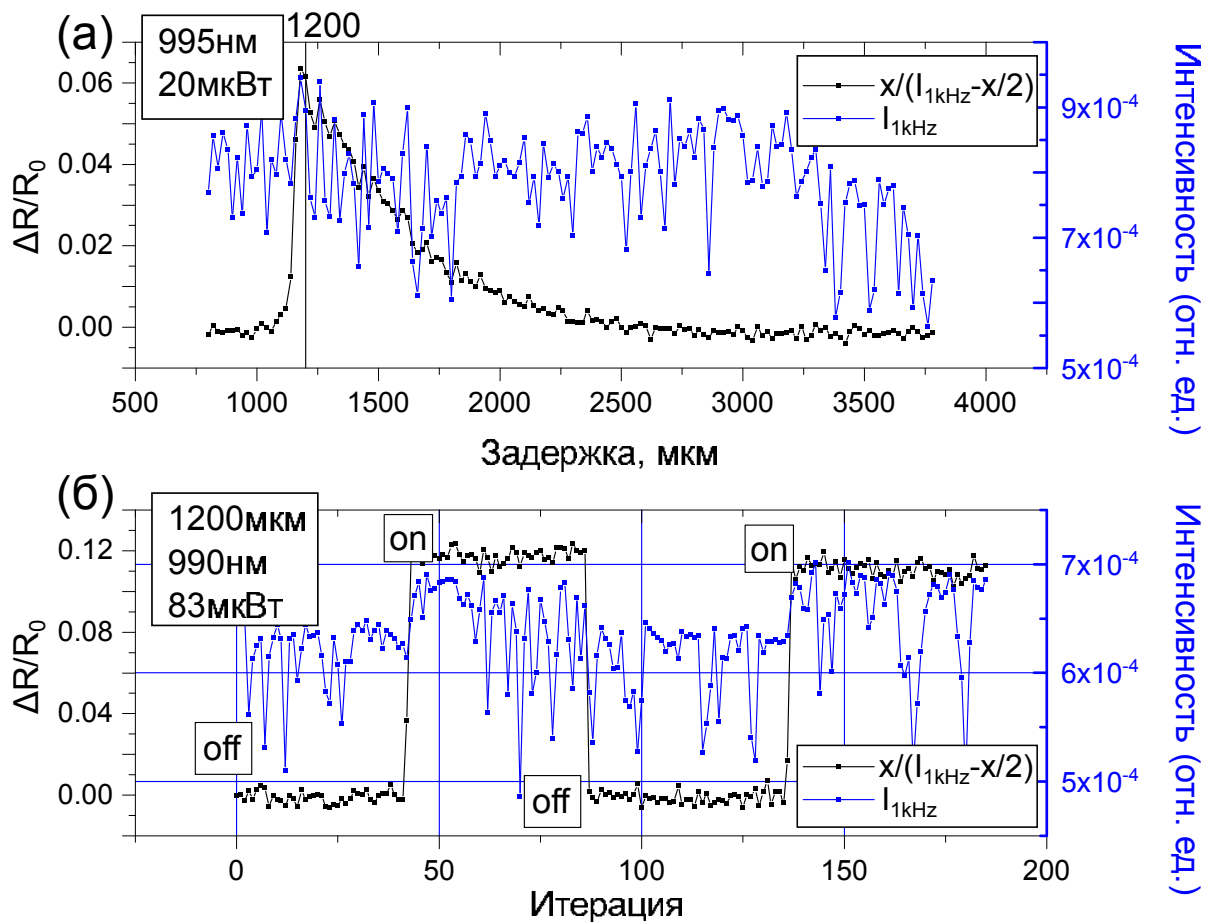


Рисунок 3.15 — Дифференциальное отражение метаповерхности GaAs (черная кривая) и отраженная интенсивность зонда (синяя кривая) (а) как функция задержки накачка-зонд (шаг транслятора линии задержки) при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 995$ нм на коротковолновом склоне МД резонанса, для мощности накачки 20 мкВт и (б) как функция итерации измерения при закрытии/открытии излучения накачки ($\boxed{\text{off}}$ — без воздействия излучение накачки, $\boxed{\text{on}}$ — при облучении метаповерхности накачкой) на длине волны зондирующего излучения $\lambda = 990$ нм при шаге транслятора 1200 мкм (на панели (а) эта задержка обозначена вертикальной прямой и соответствует максимуму изменения отражения), для мощности накачки 83 мкВт.

ны волн $\lambda = 995$ и 990 нм находятся на коротковолновом склоне МД резонанса и имеют схожее положительное изменение отражения зонда в средней части исследуемого спектра. На рис. 3.15(б) для интенсивности зонда $I_{1\text{кГц}}$ (синяя кривая), также как и для случая отрицательной модуляции, наблюдаются области изменения интенсивности, а именно, увеличения под воздействием из-

лучения накачки. Величина $X/(I_{1\text{кГц}} - X/2)$ (черная кривая) при этом, также демонстрирует схожие изменения.

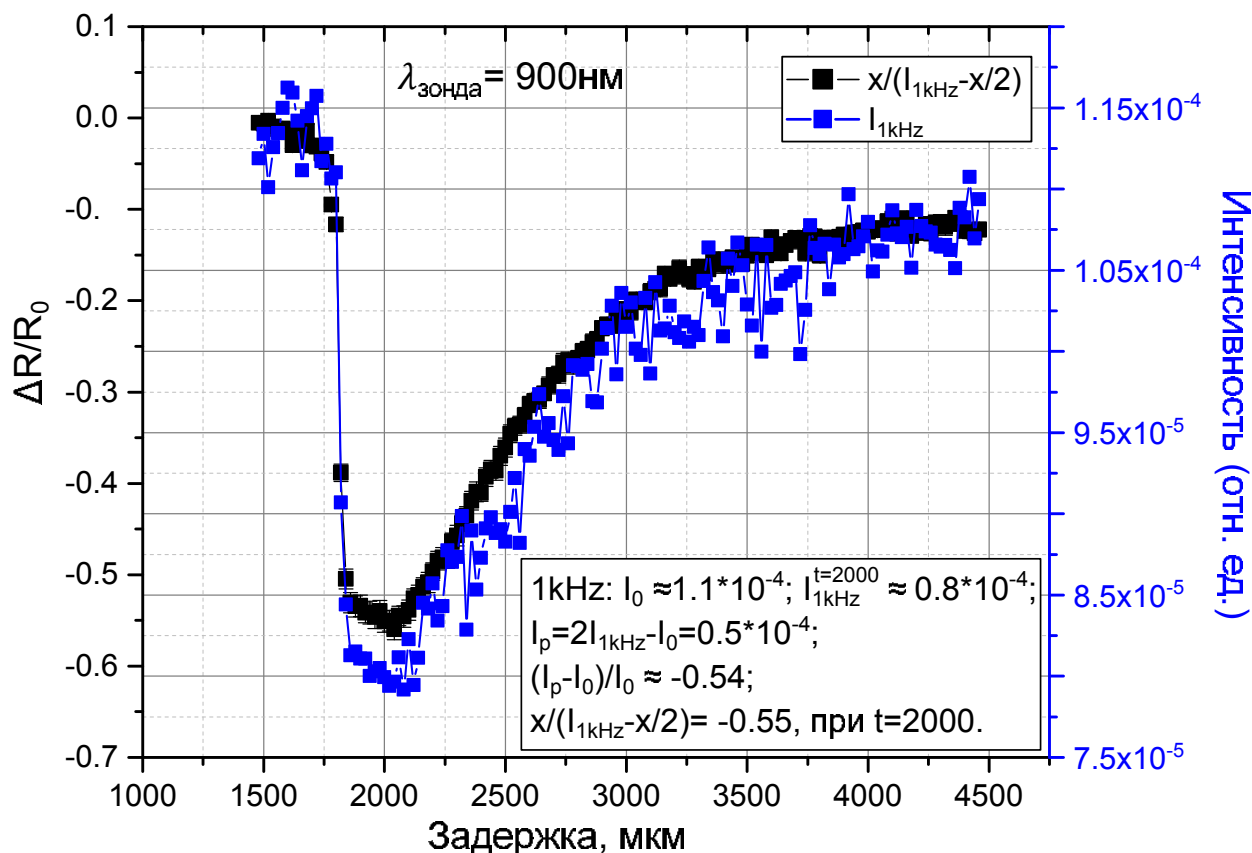


Рисунок 3.16 — Дифференциальное отражение метаповерхности GaAs (черная кривая) и отраженная интенсивность зонда (синяя кривая) как функция задержки накачка-зонд (шаг транслятора линии задержки) при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 900$ нм на длинноволновом склоне ЭД резонанса, для мощности накачки 480 мВт.

Под действием излучения накачки, соответствующего увеличению числа свободных носителей в полупроводнике GaAs, изменяется показатель преломления материала метаповерхности и как следствие ее оптические свойства. В центре склона ЭД резонанса ожидается увидеть максимальные отрицательные изменения отражения, а в центре склона МД резонанса ожидается увидеть максимальные положительные изменения отражения из-за синего смещения резонанса метаповерхности при излучении накачки. Для дальнейшего исследования образца GaAs метаповерхности и получения наибольшего эффекта модуляции зондирующего излучения установка, изображенная на рис. 3.4, была оптимизирована, в частности, проверено сведение пучков накачки и зонда на метаповерхности, заведение зондирующего излучения в волокно, монохроматор, детектор,

определена максимально допустимая мощность накачки < 600 мкВт (рис. 3.24), а также выбрано новое положение зондирующего излучения на метаповерхности, в области вдали от видимых повреждений (на рис. 3.7(а) темные круги, возникшие из-за жесткой фокусировки излучения накачки, превышающей порог повреждения).

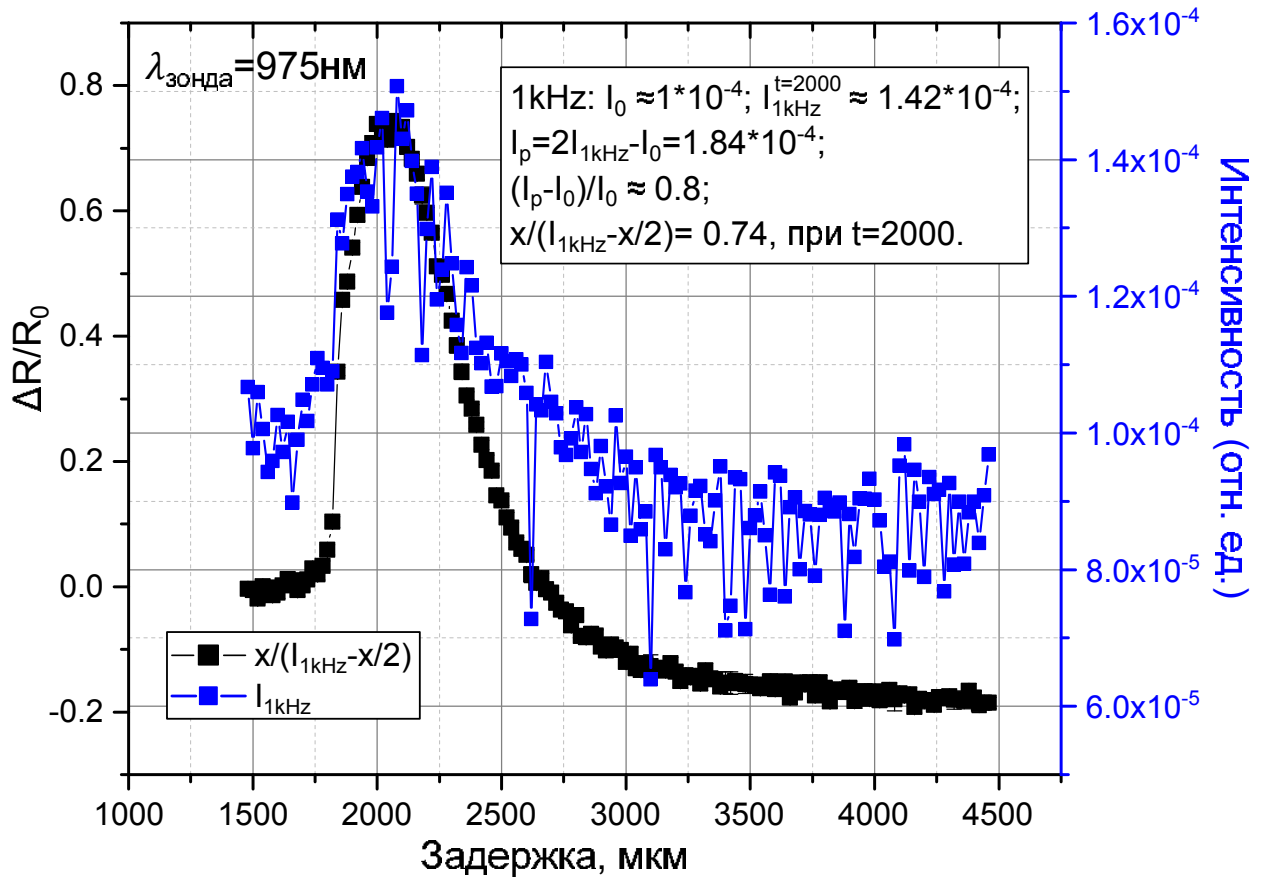


Рисунок 3.17 — Дифференциальное отражение метаповерхности GaAs (черная кривая) и отраженная интенсивность зонда (синяя кривая) как функция задержки накачка-зонд (шаг транслятора линии задержки) при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 975$ нм на коротковолновом склоне МД резонанса, для мощности накачки 480 мкВт.

В этих условиях были проведены аналогичные измерения дифференциального отражения GaAs метаповерхности $\Delta R/R_0 = X/(I_{1\text{кГц}} - X/2)$ и отраженная интенсивность зонда $I_{1\text{кГц}}$ (черная и синяя кривые соответственно на рис. 3.16) как функция задержки накачка-зонд при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 900$ нм в центре длинноволнового склона ЭД резонанса, где ожидается максимальная отрицательная модуляция, для мощности накачки порядка 480 мкВт, достаточно большой мощности, что приводит к значительной модуляции, но заведомо не превышающей при этом порог разрушения образца.

На рисунке также показаны значения величины интенсивности зонда под действием накачки I_p , при отсутствии накачки I_0 , вычисленные из данных графика и показано, что величины $\Delta R/R_0$ и $(I_p - I_0)/I_0$ имеют схожие значения для задержки $t = 2000$ мкм.

На рис. 3.17 показаны результаты измерений дифференциального отражения GaAs метаповерхности $\Delta R/R_0 = X/(I_{1\text{кГц}} - X/2)$ и отраженной интенсивности зонда $I_{1\text{кГц}}$ (черная и синяя кривые соответственно) как функция задержки накачка-зонд при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 975$ нм в центре коротковолнового склона МД резонанса, где ожидается максимальная положительная модуляция, для мощности накачки порядка 480 мкВт. На рисунке также показаны значения величины интенсивности зонда под действием накачки I_p , при отсутствии накачки I_0 , вычисленные из данных графика и показано, что величины $\Delta R/R_0$ и $(I_p - I_0)/I_0$ также имеют схожие значения для задержки $t = 2000$ мкм.

Таким образом величины, определяемые в эксперименте $X/(I_{1\text{кГц}} - X/2) = \Delta R/R_0$ и $(I_p - I_0)/I_0$ хорошо согласуются. И далее в результатах эксперимента будет использоваться величина $\Delta R/R_0$, а индекс R_0 будет опущен.

3.3.4 Измерение дифференциального коэффициента отражения

На рис. 3.18 показано измеренное дифференциальное отражение $\Delta R/R$ излучения зонда в зависимости от времени задержки между зондом и накачкой для объемного материала GaAs (черная кривая), используемого в качестве подложки образца, при длине волны 985 нм. При возрастании задержки (задержка $\tau = 0$ соответствует времени, когда зонд и накачка приходят одновременно) отражение начинает падать из-за того, что накачка генерирует свободные носители. Значения для подложки при этом умножены на 20 для более наглядного сравнения. Ожидается, что изменение отражения в случае объемного GaAs имеет отрицательный знак во всем спектральном диапазоне и совпадает для всех длин волн зонда, в отличие от метаповерхности, для которой в силу резонансных особенностей под действием накачки может происходить как увеличение коэффициента отражения, так и его уменьшение. Красной и розовой кривы-

ми показано дифференциальное отражение в случае метаповерхности для длины волны 1020 нм, соответствующей МД резонансу при различной плотности мощности накачки (370 мкДж/см^2 и 155 мкДж/см^2 соответственно). В образце GaAs наблюдается усиленная модуляция коэффициента отражения, на 2 порядка больше, чем в случае с подложкой GaAs, знак изменения коэффициента отражения в районе МД резонанса совпадает с объемным материалом GaAs, но при этом для метаповерхности наблюдается более быстрая релаксация.

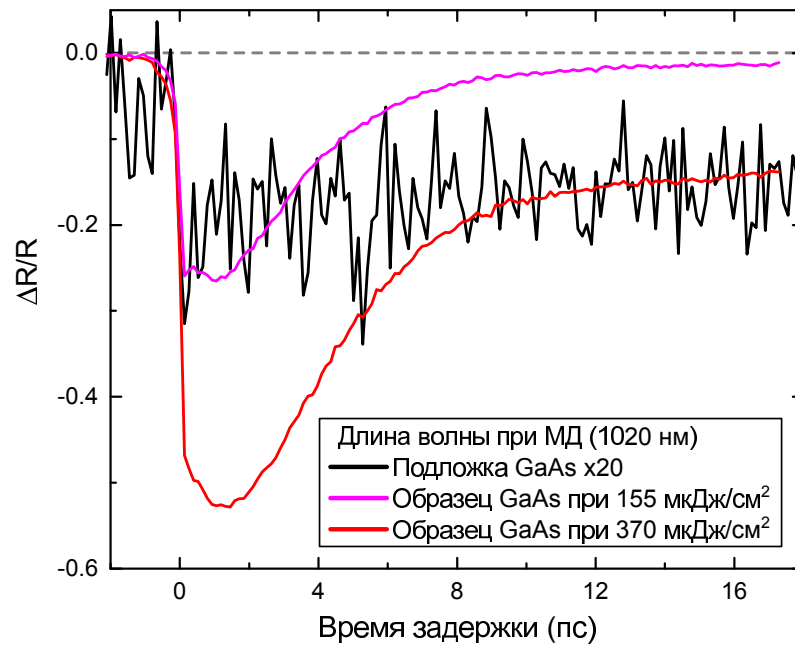


Рисунок 3.18 — Дифференциальное отражение как функция времени задержки накачка-зонд на длине волны в районе МД резонанса для образца при плотности энергии накачки 155 мкДж/см^2 (розовая кривая) и 370 мкДж/см^2 (красная кривая), и для подложки GaAs (черная кривая) при плотности энергии накачки 370 мкДж/см^2 . Значения для подложки при этом умножены на 20.

На рис. 3.19 представлена соответствующая спектроскопия дифференциального отражения для метаповерхности с ЭД и МД модами на длине волны $\lambda_{\text{ЭД}} = 890 \text{ нм}$ и $\lambda_{\text{МД}} = 1020 \text{ нм}$ для мощности накачки (а) 480 мкВт и (б) 195 мкВт и пятном диаметром 400 мкм на образце (соответствующая плотность энергии накачки 370 мкДж/см^2 и 150 мкДж/см^2). Как и ожидалось, из-за наличия Ми резонансов дифференциальное отражение имеет сложную спектральную структуру и наблюдаются как отрицательные так и положительные изменения спектра, в случае отрицательного изменения коэффициент отражения уменьшается. Панели (а) и (б) рис. 3.19 построены в одинаковом масштабе

($-0.6 < \Delta R/R < 0.8$) для удобства сравнения, при этом на вставке рис. 3.19(б) представлено тоже самое дифференциальное отражение для 150 мкДж/см^2 , но в других пределах $\Delta R/R$. Высокая положительная модуляция порядка 80% достигается при плотности энергии накачки 370 мкДж/см^2 в области $\lambda = 970 \text{ нм}$ на склоне МД резонанса и отрицательная порядка 60% $\lambda = 1020 \text{ нм}$ в районе центральной длины волны МД резонанса соответственно.

Отрицательные изменения спектра наблюдаются в районе ЭД и МД резонансов, а положительные изменения на склоне МД резонанса.

Для меньшей мощности накачки наблюдаются менее глубокая модуляция отражения из-за меньшего сдвига спектра метаповерхности. При этом характерные времена, на которых происходят основные изменения, как видно из рисунка происходят на масштабе 7 пс.

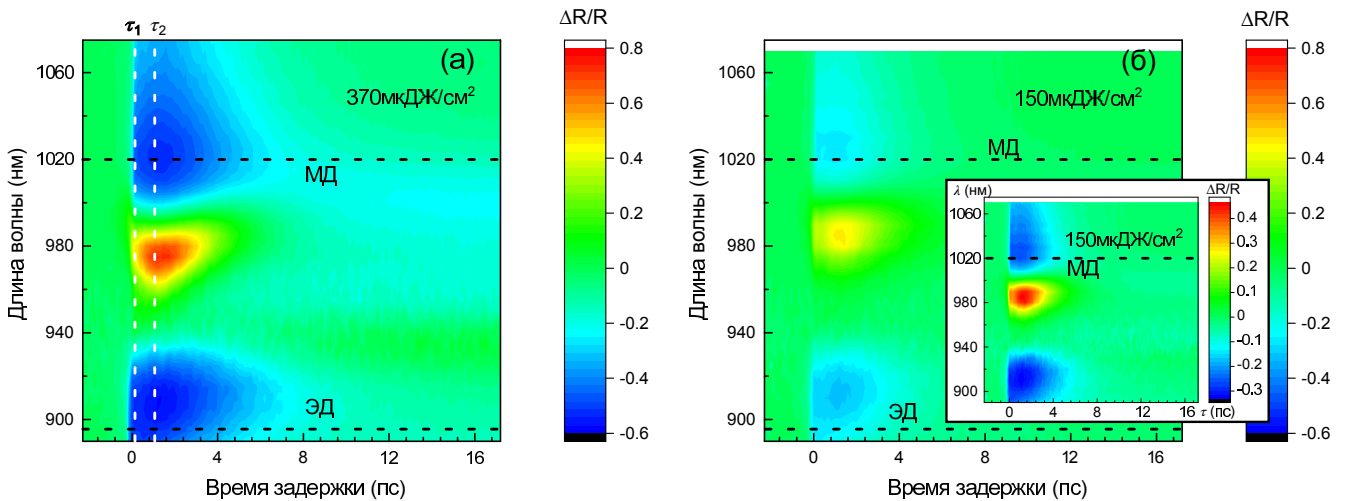


Рисунок 3.19 — 3д изображение дифференциального отражения (как функция времени задержки накачка-зонд и длины волны зонда) для метаповерхности GaAs при плотности энергии накачки (а) 370 мкДж/см^2 и (б) 150 мкДж/см^2 . Черные пунктирные прямые показывают положение МД резонанса, белыми вертикальными пунктирными прямыми показаны задержки $\tau_1 = 0.1 \text{ пс}$ и $\tau_2 = 1 \text{ пс}$, используемые для рисунков 3.23 и 3.20(а). На вставке панели (б) показано дифференциальное отражение при плотности энергии накачки 150 мкДж/см^2 в другом масштабе.

Эти изменения связаны с генерацией свободных носителей под действием накачки, соответствующей модификацией показателя преломления полупроводника GaAs и как следствие — смещением спектра метаповерхности. Это смещение продемонстрировано на рис. 3.20. Данные для коэффициента отражения метаповерхности при излучении накачки $R_{\text{с накачкой}}$ получены из эксперименталь-

ных данных дифференциального отражения $\Delta R/R = (R_{\text{pump}}(\tau) - R)/R$ с учетом спектра отражения образца R из линейной спектроскопии. На рис. 3.20(а) данный спектр невозмущенной метаповерхности показан пунктирной черной кривой и совпадает со спектрами образца при наличии излучения накачки для времени задержки $\tau \leq -1$ пс ($R_{\text{pump}}(\tau = -1$ пс) показан черной кривой). Также на графике представлены спектры для времени задержки $\tau_2 = 1$ пс и $\tau_3 = 7$ пс (красная и синяя кривая соответственно), которые показывают характерные изменения коэффициента отражения под действием накачки. График демонстрирует смещение спектра в синюю область на $\Delta\lambda = 30$ нм и последующую релаксацию к начальному положению резонанса за время порядка 7 пс. В то же время наблюдается проседание интенсивности, которое связано с и уменьшением добротности с $Q_0 \approx 15$ до $Q_{1\text{пс}} \approx 9$. Уменьшение добротности связано с тем, что под действием генерации свободных носителей показатель преломления полупроводника GaAs уменьшается (см. раздел 3.4) и среда становится менее эффективной для возбуждения Ми резонансов из-за уменьшения контраста показателей преломления полупроводник/внешняя среда. Динамика коэффициента отражения хорошо видна на 3д изображении спектров отражения при наличии накачки как функции задержки накачка-зонд в диапазоне $\tau = -2 \div 17$ пс, показывающее сверхбыструю модуляцию резонанса (рис. 3.20(б)). Задержки $\tau = -1$ пс, $\tau_2 = 1$ пс и $\tau_3 = 7$ пс при этом показаны серыми пунктирными прямыми.

На рис. 3.21(а) показаны сечения 3д изображения дифференциального отражения как функция времени задержки накачка-зонд для разных длин волн зондирующего излучения в окрестности МД резонанса при плотности энергии накачки 370 мкДж/см². На панели (б) рисунка стрелками соответствующих цветов указаны положения данных длин волн зондирующего излучения относительно спектра метаповерхности. На вставке панели (б) показан полный спектр метаповерхности, а серым пунктирным прямоугольником — рассматриваемая область МД резонанса для построения сечений. Сечения графика демонстрируют сложную релаксационную динамику, в которой можно выделить три основные области для времени задержки ($\tau \geq -1$): область с возбуждением свободных носителей в полупроводнике GaAs под действием накачки, область с преобладанием рекомбинации свободных носителей под действием различных рекомбинационных процессов ($\tau = 0 \div 7$ пс) и область с преобладанием фононов

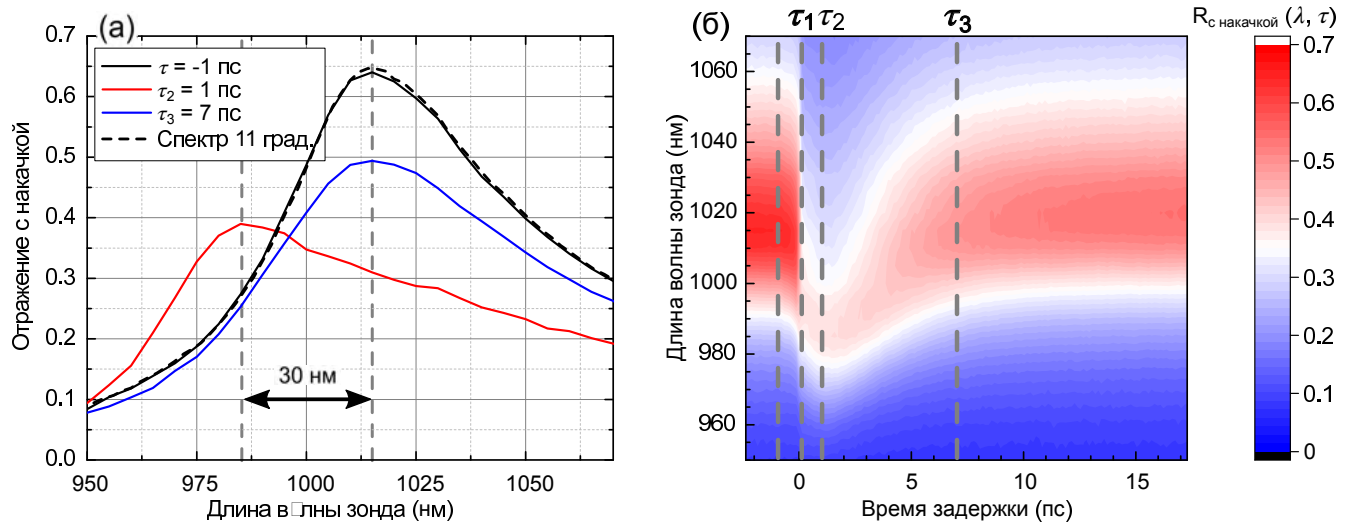


Рисунок 3.20 — (а) Коэффициент отражения образца под действием накачки для различных задержек накачка-зонд. Синее смещение МД-моды на 30 нм наблюдается при плотности мощности накачки 370 мкДж/см^2 . Коэффициент отражения для задержки $\tau = -1$ пс (черная сплошная кривая) соответствует невозмущенному коэффициенту отражения образца (черная пунктирная кривая). (б) 3д изображение спектров отражения при наличии накачки как функция задержки накачка-зонд, показывающее сверхбыструю модуляцию резонанса на временном масштабе порядка 7 пс. Серыми вертикальными пунктирными прямыми показаны задержки $\tau = -1, \tau_1 = 0.1, \tau_2 = 1, \tau_3 = 7$ пс, используемые для панели (а) и рисунка 3.23.

(> 7 пс). Область для времени задержки ($\tau \leq -1$) совпадает с невозмущенной метаповерхностью. При этом будем считать, что возбуждение свободных носителей можно считать мгновенным процессом, пренебрегая немгновенной генерацией электронно-дырочных пар, так как длительность импульсов накачки и зондирующего излучения составляет порядка 50 фс, и таким образом процесс генерации не разрешим во времени в данной схеме измерений.

На рис. 3.22 показано дифференциальное отражение как функция времени задержки накачка-зонд при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 990$ нм для различных плотностей энергии накачки. Для излучения накачки порядка 45 мкДж/см^2 (черная кривая) релаксация сгенерированных свободных носителей имеет вид, близкий к экспоненциальному затуханию. При этом, при больших плотностях энергии накачки 90 мкДж/см^2 (синяя кривая) и 155 мкДж/см^2 (красная кривая) на рис. 3.22(а) характер затухания демонстрирует более сложную релаксационную динамику. Помимо когерентного пика при

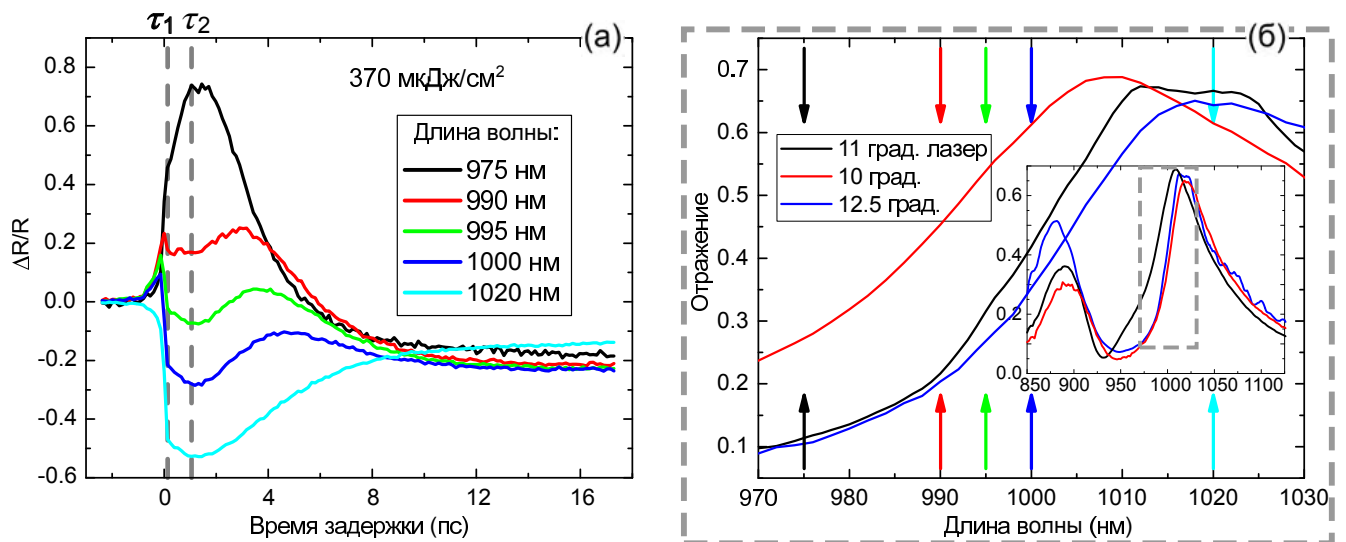


Рисунок 3.21 — (а) Дифференциальное отражение метаповерхности GaAs как функция времени задержки накачка-зонд для различных длин волн в районе МД резонанса при плотности энергии накачки 370 мкДж/см^2 . Серыми вертикальными пунктирными прямыми показаны задержки $\tau_1 = 0.1$ и $\tau_2 = 1$ пс, используемые для рисунков 3.20(а) и 3.23. (б) Спектр в районе МД резонанса, стрелками соответствующих цветов показаны положения длин волн использующихся на панели (а). На вставке показан весь спектр исследуемой метаповерхности. Серым пунктирным прямоугольником показан район МД резонанса.

задержке $\tau \approx 0$ (который также отчетливо виден на рис. 3.18 и рис. 3.21(а)), для синей и красной кривых наблюдаются локальные максимумы дифференциального отражения при $\tau = 1$ и $\tau = 1.5$ пс соответственно. Такая динамика дифференциального отражения является следствием достаточно значительного возбуждения полупроводника GaAs под действием накачки, то есть возникает непертурбативный режим из-за генерации большого количества электронно-дырочных пар. В результате чего сильно изменяется среда для возбуждения МД резонанса, что приводит к его модификации и смещению в синюю область спектрального диапазона (рис. 3.20). На рис. 3.22(б) показано дифференциальное отражение при малой плотности энергии накачки 45 мкДж/см^2 , которая не приводит к значительному пертурбативному режиму. При аппроксимации черной кривой выражением $y = A * \exp(-x/t) + y_0$ (красная кривая) можно определить постоянную затухания t , которая равна времени релаксации сгенерированных свободных носителей $\tau_{\text{релакс}}$ при низкой плотности энергии, и ее

значение составляет $t = 2.4$ пс (значения аппроксимации отражены в табличке на панели (б)).

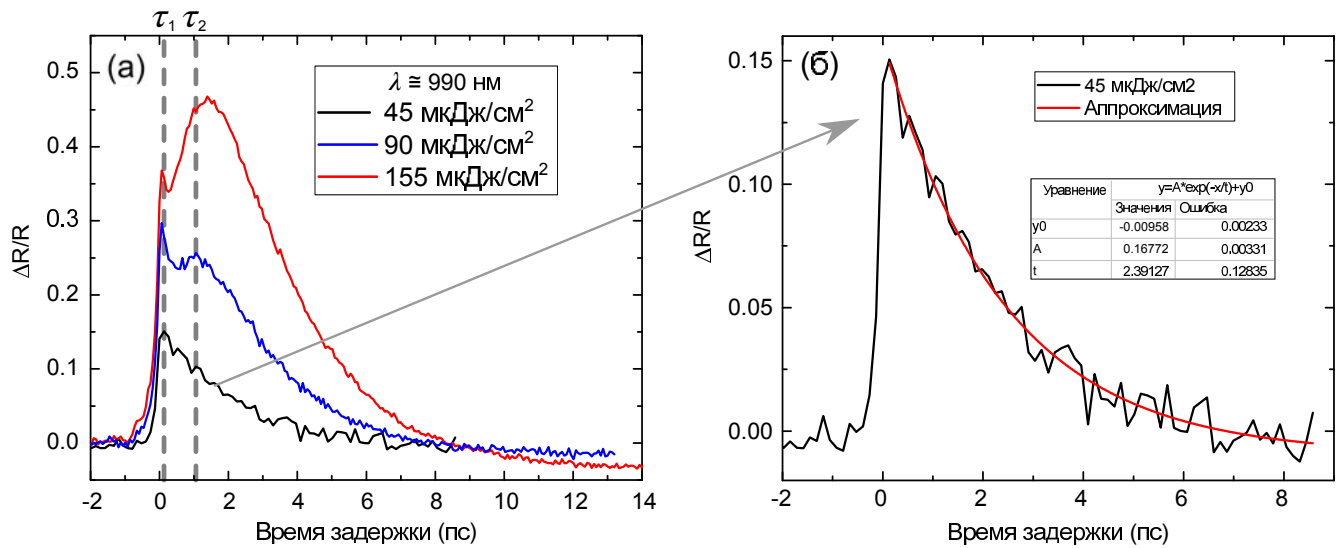


Рисунок 3.22 — Дифференциальное отражение метаповерхности GaAs как функция времени задержки накачка-зонд при длине волны зондирующего излучения $\lambda = 990$ нм. (а) Для плотности энергии накачки 45 мкДж/см² (черная кривая), 90 мкДж/см² (синяя кривая) и 155 мкДж/см² (красная кривая). Серыми вертикальными пунктирными прямыми показаны задержки $\tau_1 = 0.1$ и $\tau_2 = 1$ пс, используемые для рисунков 3.20(а) и 3.23. (б) Аппроксимация дифференциального отражения метаповерхности при малой плотности энергии 45 мкДж/см² для определения характерного времени релаксации.

В то время как для плотности энергии 370 мкДж/см², наблюдается значительная относительная модуляция отражения в диапазоне от $\Delta R/R = -50\%$ до 73% (рис. 3.19), максимальная относительная модуляция отражения порядка 90% была достигнута при плотности энергии 380 мкДж/см² на склоне МД резонанса $\lambda_{\text{зонд}} \approx 970$ нм (рис. 3.23(а) красная кривая), дальнейшее увеличение мощности накачки приводит к необратимым процессам изменения резонансных свойств метаповерхности (см. раздел 3.3.5). На рис. 3.23 показано относительное изменение отражения метаповерхности GaAs как функция длины волны зондирующего излучения для двух характерных задержек накачка-зонд: $\tau_1 = 0.1$ пс и $\tau_2 = 1$ пс; при плотности энергии накачки 380 мкДж/см². Серой областью на рисунке изображен соответствующий спектр метаповерхности, показывающий, что отрицательные изменения наблюдаются в районе МД и ЭД резонансов, а положительные — на склоне МД, что связано с синим смещением спектра мета-

поверхности под действием излучения накачки и соответствующим изменением коэффициента отражения. Кроме того, на рис. 3.23(б) изображены спектры дифференциального отражения образца GaAs для различной плотности энергии накачки в диапазоне $8 \div 380$ мкДж/см² для времени задержки накачка-зонд близкой к нулю $\tau_1 = 0.1$ пс, демонстрирующие возрастающую модуляцию и увеличение синего смещения с возрастанием мощности накачки. При этом розовые кривые на панели (а) и (б) совпадают.

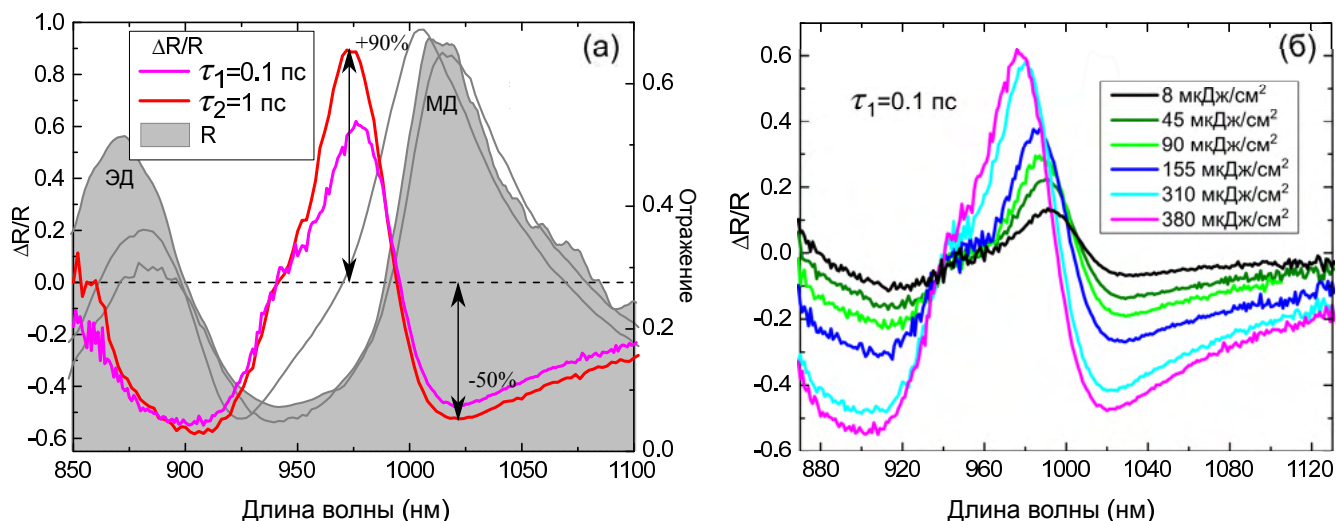


Рисунок 3.23 — (а) Дифференциальное отражение метаповерхности GaAs как функция длины волны зондирующего излучения для двух характерных задержек накачка-зонд: $\tau_1 = 0.1$ пс и $\tau_2 = 1$ пс; при плотности энергии накачки 380 мкДж/см². (б) Спектры дифференциального отражения образца GaAs для различной плотности энергии накачки для времени задержки накачка-зонд близкой к нулю $\tau_1 = 0.1$ пс. Розовые кривые на панели (а) и (б) совпадают.

Стоит заметить, что максимальная положительная относительная модуляция отражения составила $\Delta R/R \approx 73\%$ при 370 мкДж/см² (рис. 3.19) и $\Delta R/R \approx 90\%$ при 380 мкДж/см² (рис. 3.23(а)), при этом исходя из рисунка 3.23(б), значения относительной модуляции отражения для накачки 310 мкДж/см² (голубая кривая) и 380 мкДж/см² (розовая кривая) должны быть близки. Такое различие предположительно связано с тем, что образец перед измерениями 3д изображения дифференциального отражения для накачки 370 мкДж/см² возможно был подвергнут излучению накачки близким к порогу повреждения и в результате чего спектр стал менее добротным, что привело

к меньшим значениям модуляции (см. следующий раздел определения порога повреждения образца 3.3.5).

3.3.5 Определение максимальной мощности накачки для метаповерхностей

При проведении измерений в разделе 3.3 значения мощности накачки лежат ниже порога повреждения метаповерхности. Значения мощности накачки для порога повреждения было определено следующим образом: пошаговым увеличением падающей мощности, измерением спектра дифференциального отражения, уменьшением мощности до исходного значения с измерением спектра дифференциального отражения и сравнением с изначальным спектром. Если после некоторой мощности спектр дифференциального отражения метаповерхности изменялся по сравнению с исходным и не восстанавливался после того, как лазерное излучение было заблокировано некоторое время, то это значение мощности определялось как порог повреждения. На рис. 3.24 представлены два

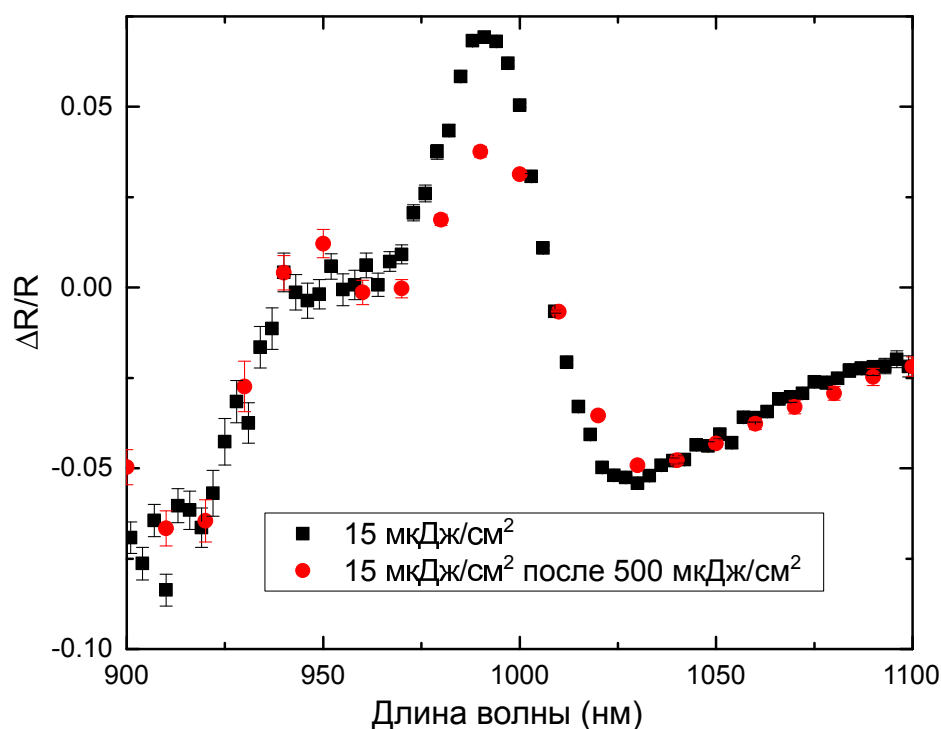


Рисунок 3.24 — Дифференциальное отражение при одинаковой малой мощности накачки, но в одном из случаев после воздействия высокой мощностью накачки.

спектра дифференциального отражения метаповерхности при небольшой мощности накачки 15 мкДж/см^2 . В тоже время спектр, изображенный красными точками измерен после воздействия накачки мощностью 600 мкВт (порядка 500 мкДж/см^2). Так как условия измерения дифференциального отражения, такие как положение образца, фокусировка накачки, зонда и другие характеристики не изменялись, и только мощность накачки пошагово увеличивалась, то накачка мощностью 600 мкВт , после которой произошли необратимые изменения, была определена как порог повреждения и исследуемой метаповерхности. При этом максимальная мощность накачки после фильтров составила 1.2 мВт и для подложки образца это значение оказалось ниже порога повреждения объемного GaAs. Подложка GaAs обладает большим коэффициентом теплопроводности, чем наноструктура из того же материала, поэтому порог повреждения объемного GaAs выше порога повреждения образца.

3.4 Численное моделирование дифференциального коэффициента отражения

Для численного расчета переменного коэффициента отражения метаповерхности GaAs был также использован коммерческий пакет программы COMSOL Multiphysical с ранее описанными условиями (раздел 3.2.2) для угла падения 12° . При этом для комплексной функции диэлектрической проницаемости GaAs были использованы экспериментальные данные Palik [118], к которым был добавлена часть, изменяющаяся во времени под действием сгенерированных свободных носителей.

После генерации плазмы свободных носителей существует несколько путей релаксации обратно в исходное состояние. Предполагая, что плотность свободных носителей равна N , можно записать систему уравнений, описывающее динамику электронно-дырочной плазмы, в виде:

$$\begin{cases} \frac{dN}{dt} = -AN - BN^2 - C_{\text{eff}}N^3, \\ N|_{t=0} = N_0, \end{cases} \quad (3.3)$$

где A — мономолекулярный коэффициент, ответственный за безызлучательный распад через дефекты и поверхностные состояния, B — бимолекулярная рекомбинация с излучением, а C_{eff} — эффективный коэффициент Оже-рекомбинации, N_0 — плотность сгенерированных свободных носителей под действием накачки в начальный момент времени.

Начальную скорость релаксации Γ можно оценить представив решение $N(t)$ в виде $N(t) = N_0 \exp(-t/\Gamma)$ и подставив его в систему уравнений (3.3). При этом получается следующее выражение:

$$1/\Gamma = A + BN_0 + C_{\text{eff}}N_0^2, \quad (3.4)$$

Для установления влияния одно-, двух- и трехчастичных процессов на релаксацию электронно-дырочной плазмы были проведены следующие расчеты начальной скорости релаксации Γ в зависимости от плотности сгенерированных свободных носителей:

1) определение начальной скорости релаксации электронно-дырочной плазмы при условии отсутствия влияния поверхностной рекомбинации, то есть в предположении, что $A = 0$. Используя известные параметры для коэффициентов $B = 7.2 \times 10^{-10} \text{ см}^3\text{s}^{-1}$ [136] и $C_{\text{eff}} = 7 \times 10^{-30} \text{ см}^6\text{s}^{-1}$ [137] была построена зависимость Γ от начальной плотности свободных носителей N_0 , как показано на рис. 3.25(а);

2) определение начальной скорости релаксации электронно-дырочной плазмы с учетом всех процессов рекомбинации. В то время как объемное значение скорости мономолекулярной релаксации $A_{\text{объемн.}} = 7 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ [137], то есть $1/A \approx 14000 \text{ пс}$, таким образом такое большое время релаксации не может быть связано с пикосекундной релаксацией наблюдаемой в данном эксперименте. Вместе с тем известно из литературы, что наноструктурирование сильно влияет на мономолекулярную рекомбинацию через поверхностные состояния с уровнями энергии внутри запрещенной зоны [138; 139]. Кроме того, в эксперименте с GaAs метаповерхностью была найдена постоянная затухания при низкой плотности энергии $t = 2.4 \text{ пс}$ (рис. 3.22(б)), значение которой можно принять равным времени релаксации сгенерированных свободных носителей $\tau_{\text{релакс.}}$. Двух- и трехчастичные процессы релаксации при низкой плотности свободных носителей приводят к характерным временам $\gg \tau_{\text{релакс.}}$ (объединение двух вкладов B и C_{eff} при $A = 0$ в уравнении (3.4) дает значение времени релаксации 340 пс для

$N_0 = 4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (при мощности 45 мкДж/см^2). Таким образом столь быстрая релаксация, обнаруженная в эксперименте не может быть отнесена к процессам высокого порядка и можно определить эффективный мономолекулярный коэффициент для данного эксперимента как $A_{\text{eff}} = 1/\tau_{\text{релакс}} \approx 4.0 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$. Полагая $A = A_{\text{eff}}$, была построена зависимость Γ , изображенная на рис. 3.25(б) с учетом всех процессов.

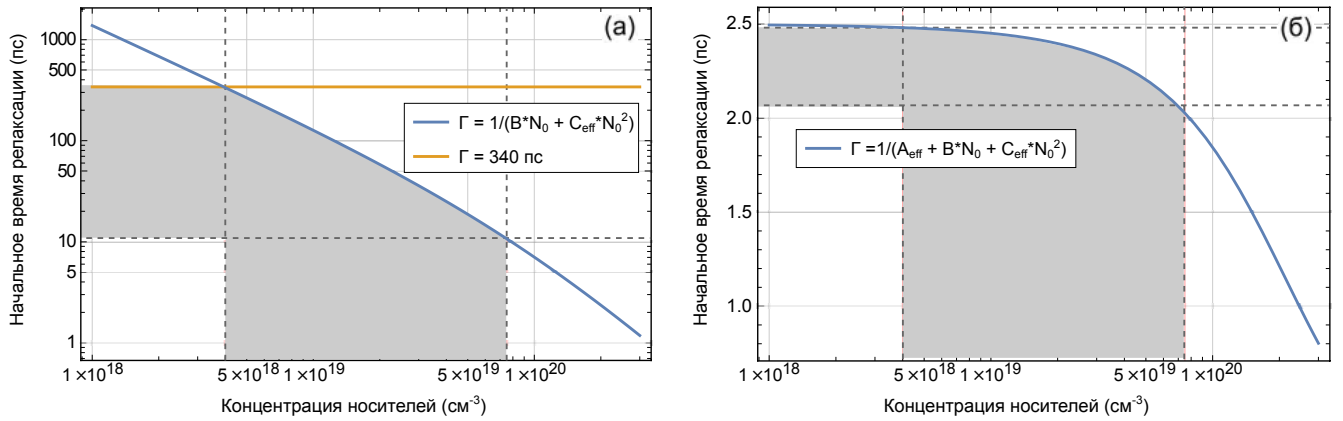


Рисунок 3.25 — Начальное время релаксации Γ . (а) Без учета поверхностных состояний ($A = 0$). (б) С учетом всех коэффициентов, при этом $A = A_{\text{eff}}$, где A_{eff} — найденное в эксперименте значение (рис. 3.22(б)).

При учете всех вкладов в релаксационные процессы наименьшее значение Γ оценивается в $\approx 2 \text{ пс}$, при этом преобладает вклад процессов поверхностной рекомбинации, в то время как рекомбинационные процессы второго и третьего порядка приводят лишь к незначительному уменьшению скорости релаксации свободных носителей; самая быстрая релаксация для процессов высокого порядка составляет около 10 пс в диапазоне плотностей свободных носителей, рассчитанных для эксперимента с GaAs метаповерхностью (рис. 3.25(а)).

Для уравнения (3.3) было найдено численное решение с помощью Wolfram Mathematica с учетом известных параметров B , C_{eff} и извлеченного из эксперимента значения A_{eff} . Полученная зависимость $N(t)$ при начальной плотности плазмы $N_0 = 7.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ показана на рис. 3.26(а). За время 17 пс , рассматриваемая в эксперименте плотность сгенерированных носителей падает на 3 порядка.

Стоит отметить, что сгенерированные под действием мощной накачки свободные носители имеют высокую температуру, оцениваемую около $T_{\text{макс}} = 15000 \text{ К}$ [140]. Это значение больше начальной избыточной энергии носителей, поэтому статистика Ферми-Дирака неприменима, а численные результаты явля-

ются приближением. И так как в выражении для $\Delta\alpha$ многие величины зависят от температуры T свободных носителей, то для уравнения $\Delta\alpha(T)$ необходимо записать функцию для неравновесной температуры. Феноменологическое выражение температурной зависимости свободных носителей с учетом процессов нагрева носителей под действием накачки и охлаждения носителей через решетку за счет фононного взаимодействия имеет следующий вид:

$$T(t) = T_{\text{комн}} + (T_{\text{макс}} - T_{\text{комн}}) \exp(-t/\tau_T), \quad (3.5)$$

где τ_T взято равным 0.3 пс.

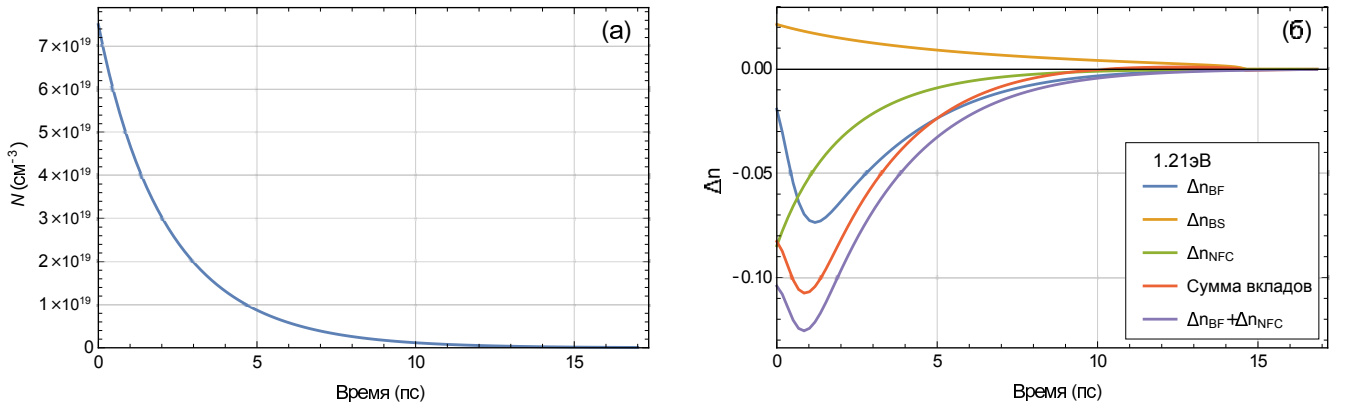


Рисунок 3.26 — (а) Решение уравнения (3.3) с учетом начальных условий $N_0 = 7.5 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$. (б) Изменение показателя преломления вследствие генерации свободных носителей в полупроводнике GaAs при энергии фотонов в районе МД-моды $E = 1.21 \text{ эВ}$ ($\lambda_{\text{МД}} \approx 1020 \text{ нм}$).

Изменение показателя преломления GaAs из-за изменения количества свободных носителей обусловлено эффектами заполнения зоны, сокращения запрещенной зоны и эффектом поглощения света свободными носителями (член Друдэ) — уравнение 3.6 [116]:

$$\Delta n = \Delta n_{\text{BF}} + \Delta n_{\text{Dt}} + \Delta n_{\text{BS}}, \quad (3.6)$$

индексы BF, Dt и BS обозначают три слагаемых: эффект заполнения зоны (BandFilling), член Друдэ и сокращение запрещенной зоны (Bandgap Shrinkage) соответственно.

Принимая во внимание генерацию свободных носителей в полупроводнике GaAs под действием накачки и их последующую релаксацию с учетом известных коэффициентов B , C_{eff} и A_{eff} в уравнении (3.3), а также учитывая вре-

менную температурную зависимость уравнения (3.5) можно найти изменение показателя преломления GaAs во времени. При этом предполагается, что число сгенерированных свободных носителей N связано с числом сгенерированных электронов N_e и дырок N_h следующим образом: $N_e = N_h = N/2$. Численное решение уравнений (3.3), (3.5), (3.6), а также уравнений (2.7) и (2.8) раздела 2.4.2 дает следующие значения для изменения показателя преломления во времени представленные на рис. 3.26(б). Неэкспоненциальное поведение Δn объясняется температурной зависимостью члена заполнения зоны $\Delta n_{\text{ВФ}}$.

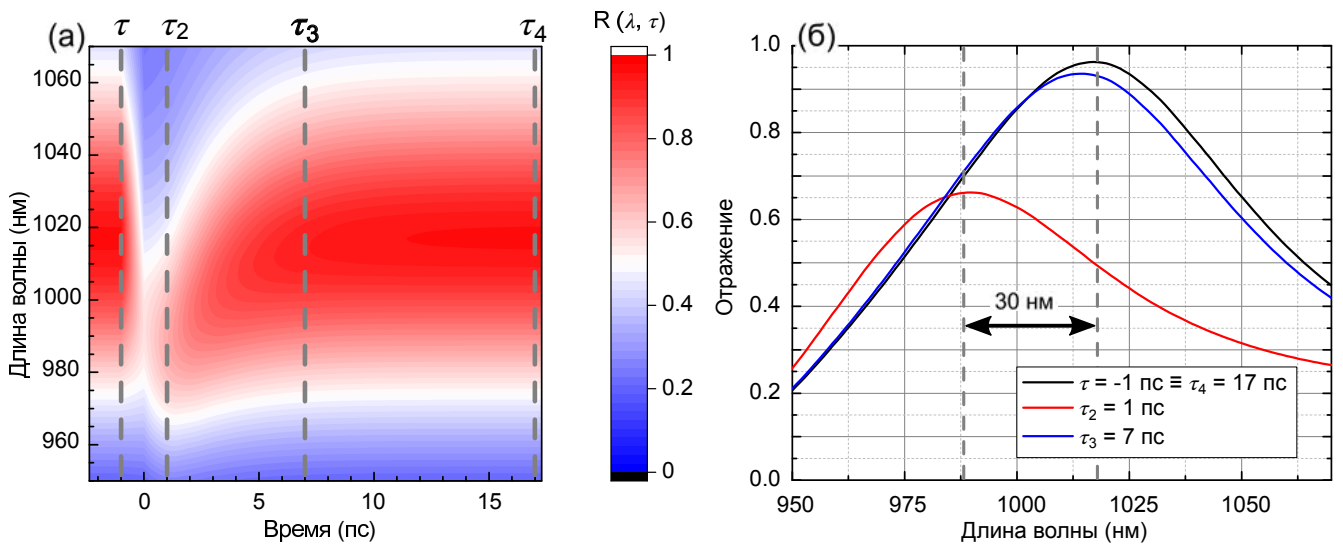


Рисунок 3.27 — (а) 3д изображение спектров дифференциального отражения как функция задержки накачка-зонд, показывающее сверхбыструю модуляцию резонанса на временном масштабе порядка 7 пс. Вертикальными пунктирными прямыми показаны задержки $\tau = -1, \tau_2 = 1, \tau_3 = 7$ и $\tau_4 = 17$ пс, используемые на панели (б). (б) Сечения для различного времени τ . Наблюдается синее смещение МД-моды порядка 30 нм. Коэффициенты отражения для $\tau = -1$ пс (черная сплошная кривая) тождественен коэффициенту отражения метаповерхности для времени $\tau = 17$ пс.

Для подтверждения экспериментальных данных и лучшего понимания динамики системы было проведено численное моделирование коэффициента отражения метаповерхности с использованием COMSOL, как уже отмечалось выше. В ходе моделирования спектры отражения метаповерхности рассчитывались как функция времени с диэлектрической проницаемостью GaAs, модифицированной в соответствии с уравнениями (3.3), (3.5), (3.6) и при начальной плотности плазмы $N_0 = 7.5 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$. Вклады заполнения зоны (зеленая кривая) и член Друдэ (синяя кривая) играют доминирующую роль и приво-

дят к отрицательной добавке к показателю преломления (фиолетовая кривая на рис. 3.26(б)). Сумма этих двух вкладов была добавлена к известной диэлектрической проницаемости GaAs [118] для численного расчета коэффициента отражения метаповерхности GaAs как функции времени. Рассчитанный коэффициент отражения показан на рис. 3.27 как функция времени и длины волны. При построении отрицательных времен для рассчитанного коэффициента отражения, значения для отрицательного времени $\tau \leq -1$ пс были приравнены к коэффициенту отражения метаповерхности для больших времен $\tau = 17$ пс, когда Δn близко к нулю (рис. 3.26(б)) и вносит пренебрежимо малые изменения в коэффициент отражения. Соответствующие сечения в моменты времени $\tau = -1$ пс, 1 пс и 6 пс, демонстрирующие синий сдвиг спектра отражения из-за изменения показателя преломления, изображены на рис. 3.27(б). С точки зрения динамики МД моды, характеризующейся такими параметрами как сдвиг центральной длины волны на 30 нм при задержке 1 пс и характерное восстановление центральной длины волны МД резонанса примерно за 7 пс, в теории наблюдается очень хорошее согласие с экспериментом.

3.5 Анализ результатов эффекта модуляции коэффициента отражения метаповерхности на основе арсенида галлия

В изменении показателя преломления основную роль играет эффект Друде и эффект заполнения зоны. Эти вклады приводят к отрицательной добавке к показателю преломления, в результате чего экспериментально наблюдается эффективная сверхбыстрая модуляция лазерных импульсов в структурах из GaAs с локализованными резонансами Ми при низких плотностях энергии накачки порядка 380 мкДж/см². При этом происходит синий сдвиг спектра отражения на 30 нм из-за изменения показателя преломления под действием сгенерированных свободных носителей. Последующее восстановление центральной длины волны резонанса метаповерхности происходит на пикосекундном масштабе за время порядка 7 пс вследствие процессов рекомбинации инжектированной плазмы. При этом доминирующий вклад в релаксацию носителей вносят быстрые процессы поверхностной рекомбинации. При этом при увеличении мощности на-

качки увеличивается начальное число сгенерированных свободных носителей, что приводит к большему изменению показателя преломления и как следствие к большей модуляции коэффициента отражения.

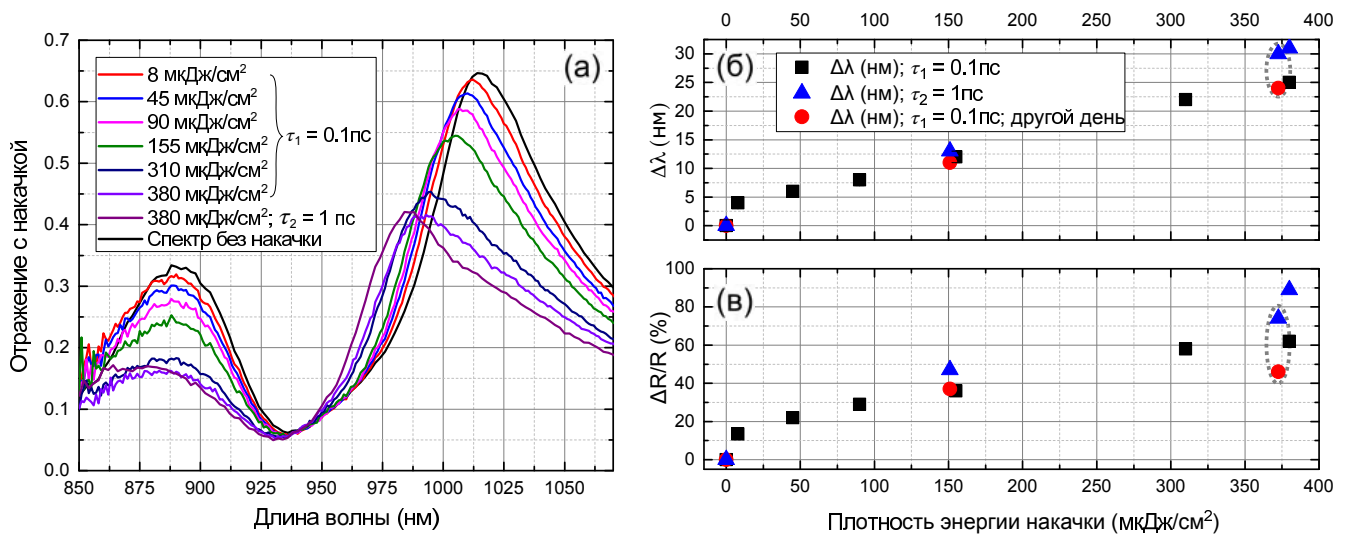


Рисунок 3.28 — (а) Коэффициент отражения образца при различных плотностях мощности накачки для задержки $\tau = 0.1$ пс и при накачке 380 мкДж/см² для $\tau = 0.1$ и $\tau = 1$ пс. Черная кривая соответствует невозмущенному коэффициенту отражения образца. Наблюдается увеличение синего смещения МД-моды с увеличением накачки. (б) Величина синего сдвига $\Delta\lambda$ как функция плотности энергии накачки. Черные точки соответствуют времени задержки $\tau = 0.1$ пс, синие — $\tau = 1$ пс; красные точки — соответствуют значениям при времени задержки $\tau = 0.1$ пс, полученным в другой день. Пунктирные эллипсы обозначают значения при накачке 370 мкДж/см² из данных рис. 3.19. (в) Соответствующая максимальная величина модуляции коэффициента отражения.

На рис. 3.28 представлен коэффициент отражения метаповерхности при различных плотностях энергии накачки для времени задержки $\tau = 0.1$ пс. Для накачки 380 мкДж/см² коэффициент отражения показан для времени задержки $\tau = 0.1$ и $\tau = 1$ пс. Данные для коэффициента отражения при излучении накачки получены из экспериментальных данных дифференциального отражения (рис. 3.23) с учетом спектра отражения образца из линейной спектроскопии. Черная кривая соответствует этому невозмущенному спектру отражения метаповерхности. При этом наблюдается монотонное увеличение синего смещения МД-моды $\Delta\lambda$ и величины модуляции $\Delta R/R$ при увеличении мощности накачки (рис. 3.23(б),(в)). Как уже отмечалось выше, несколько заниженные значения

модуляции для плотности энергии накачки 370 мкДж/см^2 (рис. 3.19), значения которой отмечены пунктирными эллипсами на панелях (б) и (в) рис. 3.23 могут быть связаны с необратимыми повреждениями образца под действием накачки близкой к порогу повреждения (см. раздел 3.3.5). Стоит заметить, что данные изменения в образце сильнее отразились на эффективности модуляции и дали большее отклонение в максимальную величину $\Delta R/R$, в то время как значение смещения $\Delta\lambda$ изменилось в пределах погрешности (погрешность лежит в пределах точки).

При исследовании динамики дифференциального коэффициента отражения GaAs метаповерхности основное внимание было сфокусировано на анализе МД резонанса. В то же время в диапазон измерений с помощью данной схемы накачка-зонд также попадает ЭД мода с центральной длиной волны порядка $\lambda = 890 \text{ нм}$ (рис. 3.3, 3.19 и 3.23). При этом изменение для коэффициента отражения несколько отличаются от изменений МД резонанса, а именно не наблюдается такого большого смещения, а в эксперименте и теории максимальные отрицательные изменения приходятся не на центр ЭД резонанса. Предположительно это возникает вследствие наличия поглощения GaAs в районе ЭД резонанса, так как запрещенная зона GaAs порядка 870 нм , поэтому ЭД резонанс не сильно смещается в синюю область под действием генерации свободных носителей и кроме того, становится при этом значительно менее добротным из-за большего поглощения.

Глава 4. Фемтосекундное преобразование частоты в метаповерхностях на основе аморфного германия

Данная глава посвящена исследованию эффектов преобразования частоты в метаповерхностях на основе аморфного германия с внутриимпульсным изменением $\varepsilon(t)$, в которых возможно наблюдение высокодобротных резонансов, так как для наблюдения эффектов важна достаточно большая добротность резонанса, чтобы время жизни в резонаторе было больше, чем длительность лазерных импульсов [18–20; 141].

4.1 Образцы метаповерхностей на основе аморфного германия

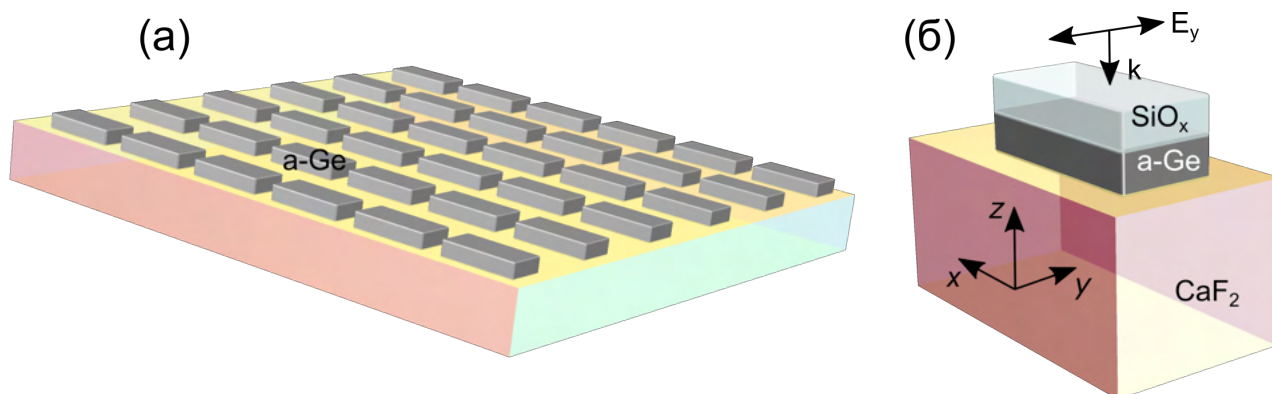


Рисунок 4.1 — Образец германиевой метаповерхности: серые прямоугольники соответствуют аморфному германию (a-Ge). (а) Схематическое изображение германиевой метаповерхности. (б) Схематическое изображение структуры германиевой nanoантенны: a-Ge на подложке фторида кальция CaF_2 , сверху структуры оксидный слой SiO_x .

Структура представляет собой массив nanoантенн, сделанных из материалов с высоким показателем преломления, из аморфного германия (a-Ge) на подложке фторида кальция CaF_2 . В качестве формы nanoантенн была выбрана геометрия кубоида с небольшим зазором между короткими сторонами кубоидов, что позволяет возбуждать в такой системе высокодобротные коллективные

моды в инфракрасном диапазоне, при этом CaF_2 является прозрачным в данном диапазоне. Характерный вид структуры представлен на рис. 4.1(а).

4.1.1 Проектирование метаповерхностей

Методом конечных разностей во временной области (FDTD) с помощью коммерческого пакета программного обеспечения Lumerical FDTD Solutions была смоделирована структура, в которой возможно возбуждение высокодобротных резонансов. Были рассчитаны спектры пропускания и отражения, а также распределение электрического поля для метаповерхности. Структура представляет собой набор прямоугольников из аморфного германия (Ge), близко расположенных друг к другу короткими сторонами. Структура при этом имеет диэлектрическую подложку фторида кальция CaF_2 с низким по сравнению с Ge показателем преломления для эффективного возбуждения добротной моды. В расчетах показатель преломления для CaF_2 брался постоянным $n = 1.426$, так как в измеряемом в эксперименте диапазоне дисперсия показателя преломления незначительная. Сверху Ge расположен слой оксида кремния SiO_x , наличие которого обусловлено особенностями методики изготовления. Показатель преломления SiO_x при этом тоже брался постоянным $n = 1.44$ ввиду незначительной дисперсии n в заданном спектральном диапазоне. Для материала Ge использовались экспериментальные данные Palik [118]. Характерный вид элементарной ячейки в периодическом массиве структуры изображен на рис. 4.1(б). Для моделирования периодической структуры метаповерхности использовались периодические граничные условия, а в направлении z — поглощающие граничные условия. Плоская волна была направлена сверху под нормальным углом падения с поляризацией, перпендикулярной длинным сторонам прямоугольников (на рис. 4.1(б) стрелками указано направление вектора E). Высокая добротность может быть достигнута только при такой поляризации падающего излучения.

Для расчетов были выбраны следующие параметры структуры: короткая сторона — $x = 950$ нм, длинная сторона — $y = 475$ нм, период по оси Ox — $P_x = 1200$ нм, по оси Oy — $P_y = 1270$ нм. Толщина полупроводникового материала Ge при этом бралась равной 100 нм, SiO_x — 150 нм. При нормальном

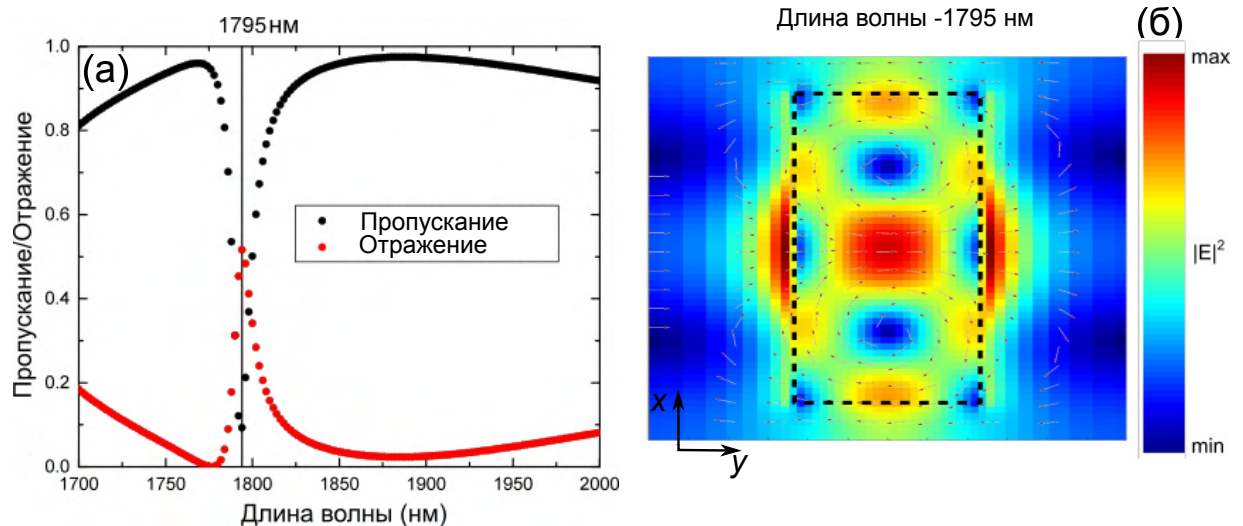


Рисунок 4.2 — Расчеты для германиевой метаповерхности с высокодобротными резонансами в ближней ИК области при поляризации падающего излучения вдоль оси Oy . (а) Коэффициенты пропускания и отражения. Вертикальной прямой обозначена длина волны резонанса, соответствующая минимуму коэффициента пропускания и максимуму коэффициента отражения образца $\lambda_R = 1795$ нм. (б) Электрическое поле E (обозначено черными стрелками) и интенсивность электрического поля $|E|^2$ (представлено цветом) для длины волны падающего излучения $\lambda = 1795$ нм. Стрелки соответствуют направлению электрического поля E . Прямоугольник, отмеченный черными штриховыми линиями, соответствует области полупроводника Ge (вид сверху на элементарную ячейку на рис. 4.1(б)). Сечение распределения электрического поля было взято по центру Ge.

падении излучения и поляризации излучения вдоль короткой стороны прямоугольника (вдоль оси Oy , далее обозначена как р-поляризация) в спектрах коэффициентов пропускания и отражения наблюдается узкий резонанс (рис.4.2) с центральной длиной волны $\lambda_R = 1795$ нм. При этом добротность резонанса составляет $Q \sim 160$. Высокая добротность резонанса связана с тем, что при такой поляризации падающего излучения возбуждается квазиволноводная мода вдоль длинной стороны прямоугольников Ge из-за сильной связи между прямоугольниками, благодаря небольшому зазору между ними. Соответствующее распределение электрического поля в центре прямоугольника Ge в плоскости xu показано на рис. 4.2(б). Черными штриховыми прямыми показана область прямоугольника Ge, цветом показана интенсивность электрического поля $|E|^2$ (красным показан максимум интенсивности, синим — минимум), стрелками по-

казано электрическое поле E . Распределение электрического поля и его интенсивности соответствует характерному виду поля при возбуждении такой квазिवолноводной моды.

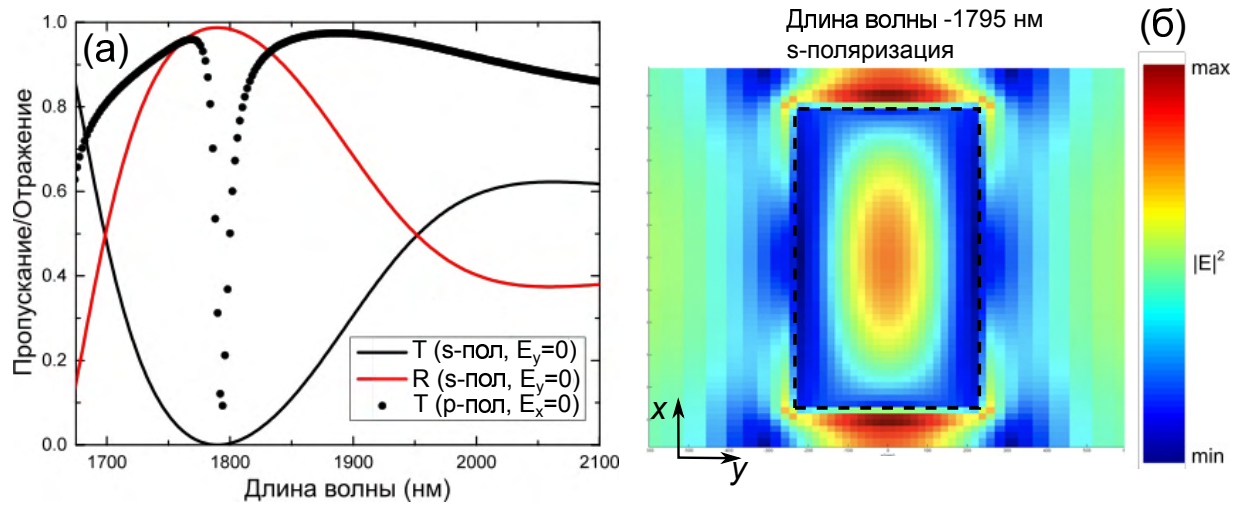


Рисунок 4.3 — Расчеты для германиевой метаповерхности с высокодобротными резонансами в ближней ИК области. (а) Коэффициенты пропускания (T) и отражения (R) для двух ортогональных поляризаций (вдоль длинной стороны прямоугольника по оси Ox (s-поляризация) и вдоль короткой стороны по оси Oy (p-поляризация)). (б) Соответствующее распределение интенсивности электрического поля $|E|^2$ для элементарной ячейки при s-поляризации падающего излучения с длиной волны $\lambda = 1795$ нм. Прямоугольник, отмеченный черными штриховыми линиями, соответствует области полупроводника Ge (вид сверху на элементарную ячейку на рис. 4.1(б)). Сечение распределения электрического поля было взято по центру Ge.

Также были проведены расчеты для ортогональной поляризации вдоль оси Ox (s-поляризация). На рис. 4.3(а) представлены рассчитанные спектры коэффициентов пропускания T и отражения R для p- ($E_x = 0$) и s-поляризации ($E_y = 0$). В случае s-поляризации наблюдается широкий резонанс (красная кривая на рис. 4.3(а)), так как расстояние между прямоугольниками по оси Oy больше, чем по оси Ox , и возникает слабая связь между прямоугольниками Ge, поэтому высокодобротная квазिवолноводная мода не возбуждается. Соответствующее распределение электрического поля в центре прямоугольника Ge в плоскости xy показано на рис. 4.3(б). Цветом показана интенсивность электрического поля (красным показан максимум интенсивности, синим — ми-

нимум). Распределение интенсивности электрического поля соответствует возбуждению квазиволноводной моды, распространяющейся вдоль оси Ox , то есть в присутствии большого зазора. Изменяя геометрические параметры элементарной ячейки структуры, можно изменять положение и добротность резонанса, таким образом получать резонанс с необходимыми характеристиками в нужном спектральном диапазоне.

4.1.2 Изготовление метаповерхностей

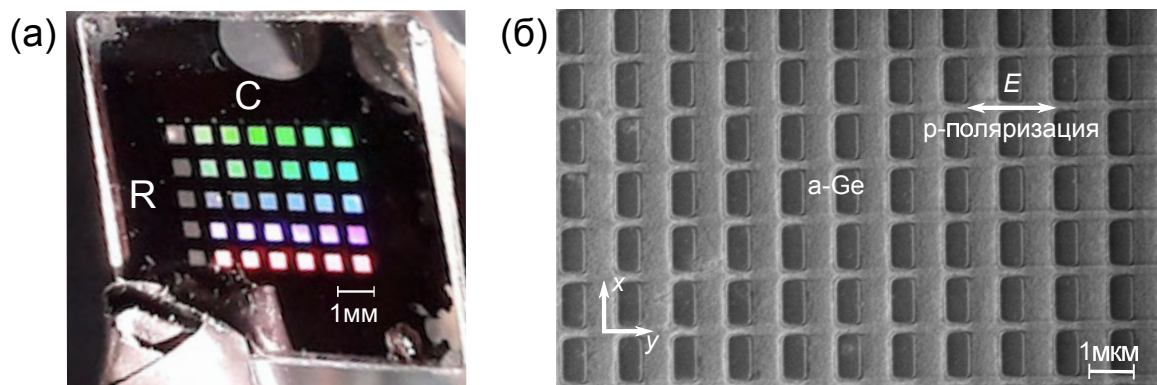


Рисунок 4.4 — Характерный вид образца германиевой метаповерхности. (а) Фотография образца при освещении светодиодной лампой. (б) Изображение в растровом электронном микроскопе: темно-серые прямоугольники соответствуют аморфному германию (a-Ge).

С учетом результатов моделирования метаповерхности на основе германия был изготовлен массив образцов метаповерхностей состоящий из 35 структур (5 рядов и 7 колонок, фотография массива образцов представлена на рис. 4.4(а)) с различными геометрическими параметрами элементарной ячейки, изображенной на рис. 4.1(б). Данные метаповерхности были изготовлены М. Р. Щербаковым в Корнельском университете. Образцы в ряду изготавливались с различным зазором между короткими сторонами прямоугольника. Для изготовления квазиволноводных структур из Ge использовалось термическое осаждение пленок аморфного Ge толщиной порядка 200 нм на подложке фторида кальция CaF_2 . Создание маски проводилось с помощью электронно-лучевой литографии: после осаждения пленок на них наносился электронный резист

толщиной 100 нм, который затем экспонировался в электронном литографе с дозой $700 \mu\text{C}/\text{cm}$. После чего проводился процесс проявления в водном растворе ТМАН 2.5%, а форма маски переносилась на Ge методом плазмохимического травления в непрерывном Бош-процессе. Характерный вид изготовленной структуры в растровом электронном микроскопе представлен на рис. 4.1. Изображения в растровом микроскопе были получены с дополнительным нанесением проводящего полимера Espacer 300Z, который затем был смыт дистиллированной водой. Размеры одной метаповерхности при этом составили 500×500 мкм. Из-за особенностей изготовления возникает верхний оксидный слой SiO_x порядка 100 нм (рис. 4.1(б)). Также в массиве образцов были изготовлены области неструктурированного a-Ge, которые прошли все стадии метода изготовления, кроме создания маски для структурирования полупроводника, и использовались для нормировки на пленку Ge в ходе экспериментов.

4.2 Линейная спектроскопия коэффициентов пропускания и отражения метаповерхностей на основе аморфного германия

4.2.1 Экспериментальная установка для измерения спектров

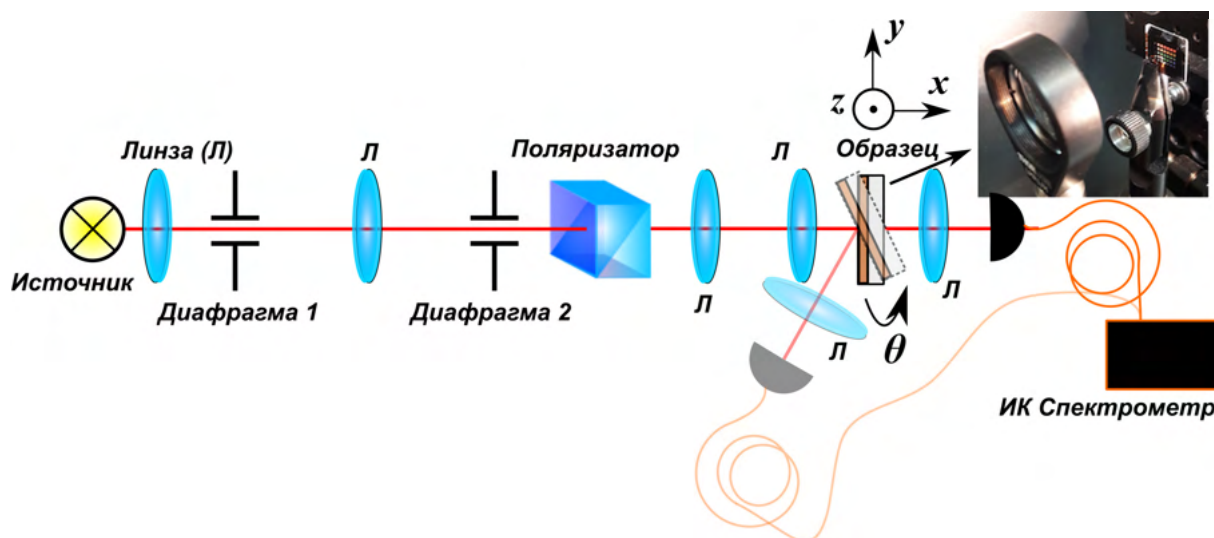


Рисунок 4.5 — Схема линейной спектроскопии для измерения коэффициентов пропускания и отражения в ближнем инфракрасном диапазоне.

Для невозмущающей оптической характеристики резонансов германиевых метаповерхностей была собрана схема линейной спектроскопии коэффициентов пропускания и отражения в ближнем ИК диапазоне (рис. 4.5). В качестве источника электромагнитного излучения был взят тепловой источник света с широким спектральным диапазоном и естественной поляризацией. Набор линз и диафрагм использовался для получения изображения источника с наибольшей и равномерной освещенностью в плоскости образца. При этом для фокусировки света на образец применялась дополнительная собирающая линза для уменьшения диаметра перетяжки, так как размер одной структуры в массиве составляет порядка 500×500 мкм. Для фокусировки света на образец использовалась линза без жесткой фокусировки, так как при жесткой фокусировке лучи распространяются под большим телесным углом и добротность резонанса падает из-за большой угловой зависимости.

Данная схема позволяет измерять спектры пропускания и отражения в относительных и абсолютных единицах в широком спектральном диапазоне. Спектральный диапазон определяется выбором спектрометра. Наименьший возможный угол падения света на образец при измерении спектров отражения составляет 14 градусов и определяется геометрическими особенностями установки. С помощью поляризатора в виде призмы Глана–Тейлора (рис 4.5), установленного во вращающуюся оправу, в такой схеме можно измерять спектры для различных линейных поляризаций. Использовались два ортогональных положения призмы 0 град. и 90 град. для выделения s-поляризации (перпендикулярно плоскости падения света) и p-поляризации (в плоскости падения света). Поляризатор предварительно необходимо отъюстировать при помощи эталонного источника с известной линейной поляризацией. Образец установлен во вращающуюся оправу для возможности изменения угла падения и на xuz -транслятор, позволяющий перемещаться по фокусу вдоль оси Ox ; движение вдоль осей Oy и Oz позволяет перемещаться по всему массиву между различными структурами в ряду и в колонке. Для определения положения перетяжки в массиве рядом с образцом была установлена камера с собирающей линзой для увеличения изображения. Была составлена карта массива и метаповерхностям присвоены порядковые номера (R_iC_j , где i и j — номер ряда и колонки соответственно, см. рис.4.4(а)). Образец устанавливался таким образом, чтобы ожидаемая высокодобротная мода наблюдалась для p-поляризованного излучения (на рис. 4.1(б))

колебания вектора E вдоль оси Oy показаны стрелкой и происходят в плоскости падения света).

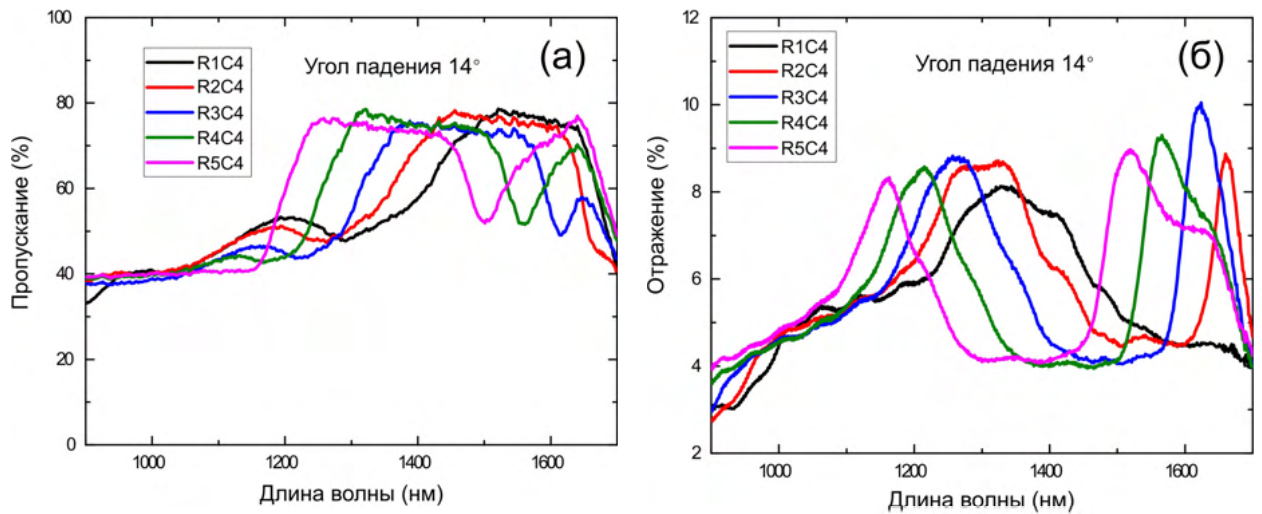


Рисунок 4.6 — Экспериментальные спектры для образцов колонки C_4 при угле падения электромагнитного излучения, равном 14 градусов. (а) Спектры пропускания. (б) Спектры отражения.

С помощью данной схемы линейной спектроскопии были измерены спектры пропускания и отражения серии образцов для р- и s-поляризованного излучения в диапазоне 900 нм — 1700 нм. На рис. 4.6 представлены спектры пропускания и отражения для структур из колонки C_4 в измеряемом спектрометром диапазоне для р-поляризации падающего излучения при минимально возможном угле падения света на образец, равном 14 градусам. В районе 1500 — 1700 нм наблюдаются ярко выраженные резонансные особенности с шириной порядка 20 нм, данный резонанс смещается с 1500 нм до 1680 нм при уменьшении порядкового номера i ряда R_iC_4 . Смещение связано с тем, что образцы в ряду изготовлены с различным зазором между короткими сторонами прямоугольника и чем меньше порядковый номер ряда, тем больше зазор. Резонанс вызван возбуждением квазиволноводной моды, которая распространяется по прямоугольникам из германия вдоль длинной стороны, слабо чувствуя зазоры при величине зазора \ll длинной стороны прямоугольника. Поэтому при увеличении зазора ожидается уменьшение добротности резонанса. При этом отражение составляет не более 10%.

На рис.4.7 представлены спектры пропускания этой же серии образцов при нормальном угле падения излучения. Положение резонансов не изменилось по сравнению с наклонным падением и характер поведения остался прежним.

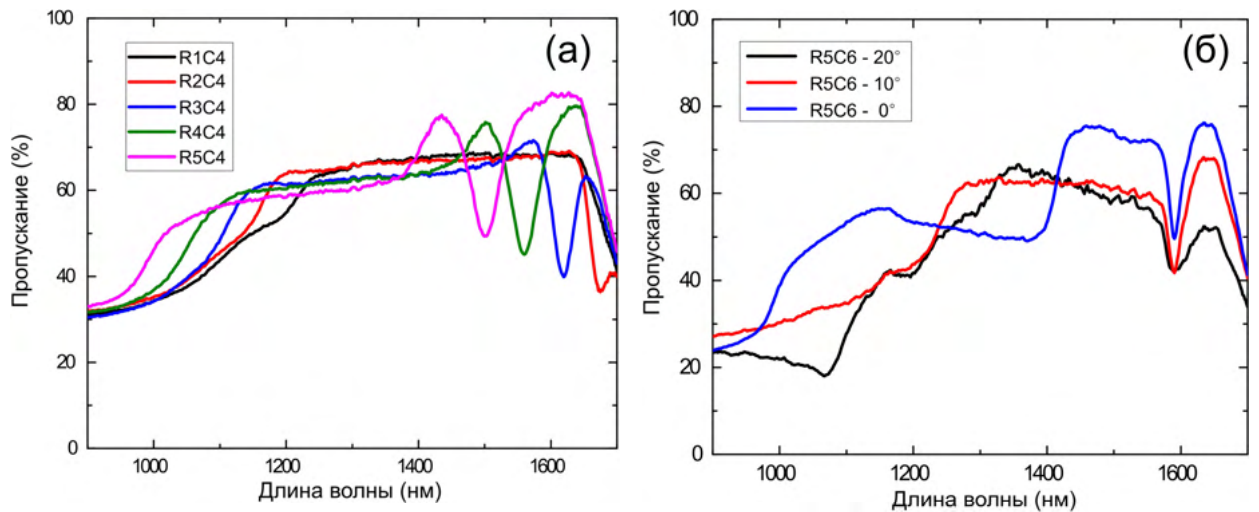


Рисунок 4.7 — Экспериментальные спектры пропускания. (а) Для образцов колонки C_4 при нормальном угле падения излучения. (б) Для образца R_5C_6 при трех углах падения электромагнитного излучения, равных 0, 10 и 20 градусов.

Для того, чтобы отследить изменение поведения резонанса при увеличении угла падения света на образец, были дополнительно измерены спектры пропускания одного из образцов (R_5C_6) для нескольких углов падения излучения. Как и ожидалось, при увеличении угла падения излучения на германиевую метаповерхность добротность резонансов уменьшается, эта зависимость хорошо прослеживается на рис.4.7(б). При увеличении угла падения положение центральной длины волны резонанса не изменяется, в то время как добротность значительно падает и уже при 20 град. уменьшается более чем в 2 раза. Из-за столь значительной зависимости добротности от угла падения в экспериментах с Ge метаповерхностью необходимо использовать линзы без жесткой фокусировки на образец, так как лучи, идущие под большим телесным углом, будут снижать добротность резонанса. Изменение амплитуды для 0 град. по сравнению с 10 и 20 град. связано с неточностью нормировки коэффициента пропускания, так как при ненормальном падении из-за прохождения светом подложки в виде плоскопараллельной пластины прошедшее излучение немного смещается относительно первоначального хода луча и в оптическое волокно попадает не все прошедшее образец излучение, что приводит к проседанию интенсивности.

Также были проведены измерения для ортогональной поляризации — направление поляризации параллельно длинной стороне прямоугольника (рис. 4.4(б)), чтобы показать, что наблюдаемый высокодобротный резонанс воз-

никает только в случае поляризации, параллельной короткой стороне прямоугольника, то есть при распространении квазиволноводной моды вдоль оси Ox . В случае s-поляризации мода распространяется вдоль оси Oy , то есть перпендикулярно большим зазорам, поэтому резонанс значительно уширяется и добротность уменьшается в несколько раз (красная кривая на рис. 4.8(a)). Эти экспериментальные данные хорошо согласуются с расчетами для ортогональных поляризаций (рис. 4.3(a)).

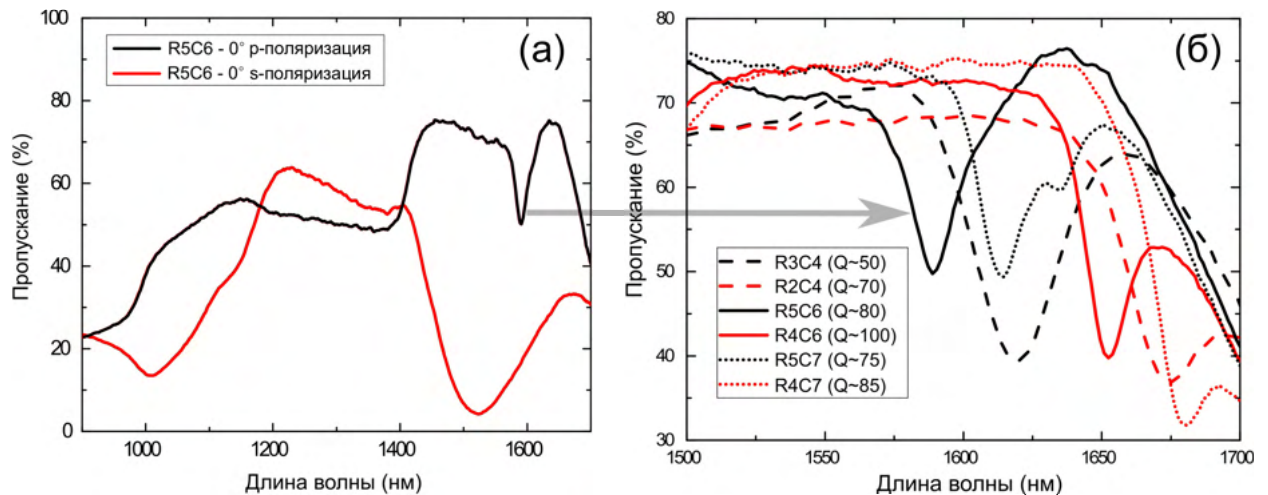


Рисунок 4.8 — Экспериментальные спектры пропускания. (а) Для одного из образцов (R_5C_6) при двух ортогональных поляризациях падающего электромагнитного излучения (р и s-поляризация). (б) Для некоторых образцов колонки (C_4 , C_6 и C_7) для р-поляризации падающего излучения с указанием рассчитанной добротности Q измеренных резонансов.

Структуры с разным порядковым номером j в колонке $R_{i=1:5}C_j$ изготавливались с различным коэффициентом масштабирования элементарной ячейки, то есть при одновременном увеличении/уменьшении всех геометрических параметров элементарной ячейки, изображенной на рис. 4.1(б): сторон прямоугольника, зазора, периодов. С увеличением порядкового номера j колонки C_j увеличивается коэффициент масштабирования, то есть увеличиваются линейные размеры элементарной ячейки. Использование различных геометрических параметров структуры позволяет получить разнообразные параметры оптической моды (центральная частота резонанса, его добротность и время жизни). На рис. 4.8(б) представлены спектры для некоторых образцов с различными порядковыми номерами i, j . Высокодобротная мода ($Q > 50$) при этом варьируется в диапазоне от 1580 нм для R_5C_6 и до 1680 нм для R_4C_7 . Таким образом, изменяя те или иные геометрические параметры структуры, можно управлять

свойствами резонанса и получать резонанс с необходимыми характеристиками в нужном спектральном диапазоне на заданной центральной длине волны.

4.3 Экспериментальная установка для исследования временных характеристик

4.3.1 Схема установки “накачка-зондирование” с использованием излучения параметрического усилителя в качестве зонда

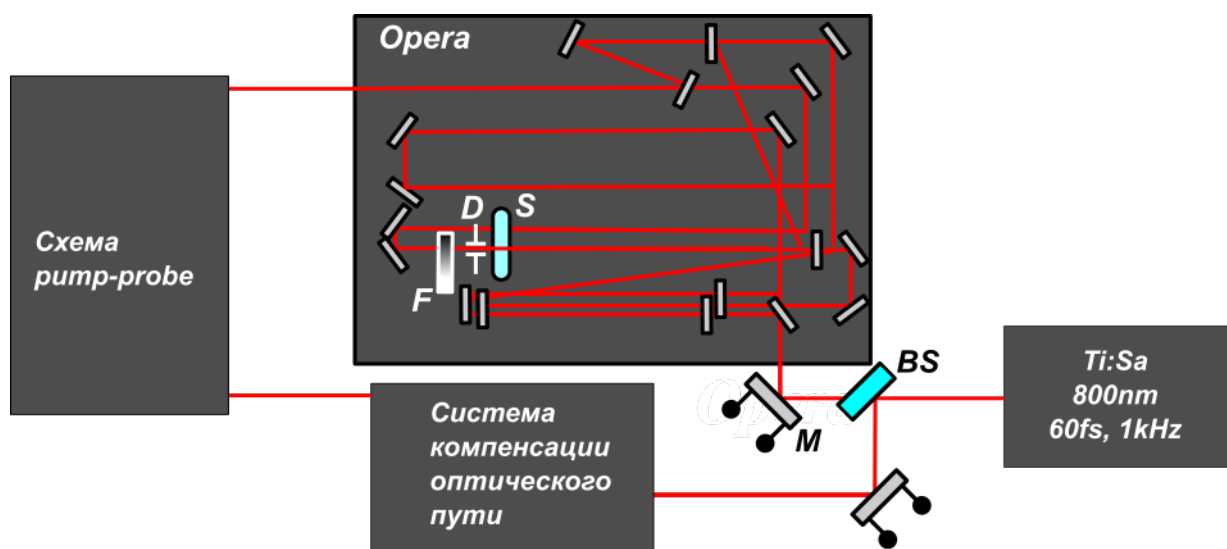


Рисунок 4.9 — Схема расположения комплекса элементов и лазерной системы, используемых для установки “накачка-зондирование”.

Для создания установки “накачка-зондирование” с разными оптическими частотами, с помощью которой будет осуществляться сверхбыстрая фотогенерация свободных носителей и исследоваться их динамика, использовалось следующее лазерное оборудование: 1) регенеративный усилитель (Ti:Sa) в качестве оптической накачки метаповерхностей и индуцирования временных изменений показателя преломления полупроводника Ge; 2) оптический параметрический усилитель света (Опера), который представляет собой оптический параметрический усилитель когерентного электромагнитного излучения со сверхшироким спектром. Фемтосекундная многоцветная схема “накачки-зондирования”, с оптическим параметрическим усилителем в качестве зонда налагает дополнитель-

ные технические трудности, так как в схеме “накачка-зондирование” необходимо совместить накачку и зонд во времени и в пространстве, а в параметрическом усилителе свет проходит большой оптический путь (примерный ход луча обозначен красными линиями на рис. 4.9 и по расчетам составляет около 6 м), который необходимо учесть и компенсировать. Общая схема расположения лазерного оборудования и ключевых элементов схемы представлена на рис. 4.9. Стабильность параметрического генератора требует обязательной дополнительной настройки накачки (зеркало М на рис. 4.9), фильтра F для уменьшения/увеличения интенсивности накачки и создания стабильной генерации суперконтинуума в пластине сапфира S. Светоделитель BS после Ti:Sa отражает 80% и пропускает 20%, эти 20% попадают в параметрический усилитель и используются для генерации суперконтинуума в сапфире S, а также в качестве накачки кристалла предусилителя и накачки кристалла в блоке усиления в Орега. После прохождения Орега луч попадает в схему “накачка-зондирование” в качестве зонда, а луч из Ti:Sa после прохождения системы компенсации пути, состоящей из набора оптических элементов, попадает в схему “накачка-зондирование” в качестве накачки.

На рис. 4.10 схематично изображена установка “накачка-зондирование” с разными оптическими частотами и отмечены основные элементы схемы. Сразу после Орега установлен светоделитель, с помощью которого можно перебрасывать излучение зонда в дополнительный канал характеристики света: для измерения мощности, чтобы следить за энергией в импульсе, или для измерения спектра импульса. Если светоделитель откинут, то излучение идет не в дополнительный канал, а в основной канал зонда, где свет проходит линию задержки, варьруемую автоматизированным микрометрическим транслятором с помощью контроллера для его управления. Далее системой зеркал зонд направляется на интерференционный светофильтр, позволяющий убрать паразитное остаточное излучение накачки 800 нм, и попадает на линзу, фокусирующую излучение на образце. Образец при этом установлен на вращательную оправу, для задания угла падения, и на *xuz*-транслятор, позволяющий перемещаться по фокусу вдоль оси *Oz* для точного попадания в фокус линзы. Движение вдоль осей *Ox* и *Oy* позволяет перемещаться по всему массиву образца. Для определения положения перетяжки на образце была собрана дополнительная система визуализации изображения образца с помощью лампы, системы собирающих линз

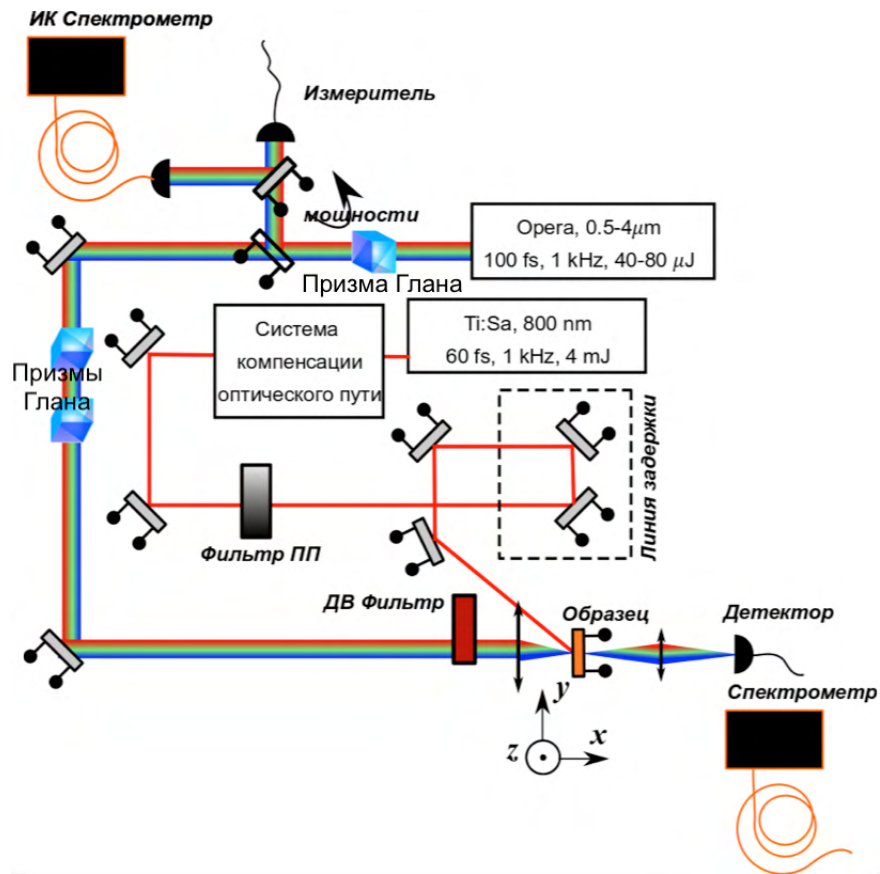


Рисунок 4.10 — Схема установки для методики “накачка-зондирование” с разными оптическими частотами.

для увеличения изображения, зеркал и камеры. Накачка 800 нм после системы поворотных зеркал также фокусируется на образец. Диаметр перетяжки накачки должен превышать диаметр перетяжки зонда в несколько раз. Положение образца в фокусе определялось с помощью излучения третьей гармоники (ТГ) от пленки германия при максимальной мощности зонда, так как в фокусе при достаточно большой плотности мощности ТГ оказывалась видна невооруженным глазом. Количество элементов в оптическом параметрическом усилителе достаточно велико, а оптический путь, который проходит свет, составляет сотни сантиметров, поэтому для грубой юстировки схемы для начала можно получить сигнал от каждого из плеч на многоканальном осциллографе, так как он позволяет визуализировать сигналы с задержкой больше 1 нс (что соответствует достаточно большому расстоянию порядка 30 см).

Накачка представляет собой излучение 800 нм с длительностью импульса порядка 60 фс (что было измерено с помощью автокоррелятора, см. рис. 4.11(б)), частотой следования 1 кГц и с энергией в импульсе до 3 мДж. Так как энергия в импульсе накачки достаточно велика, требуется набор дополни-

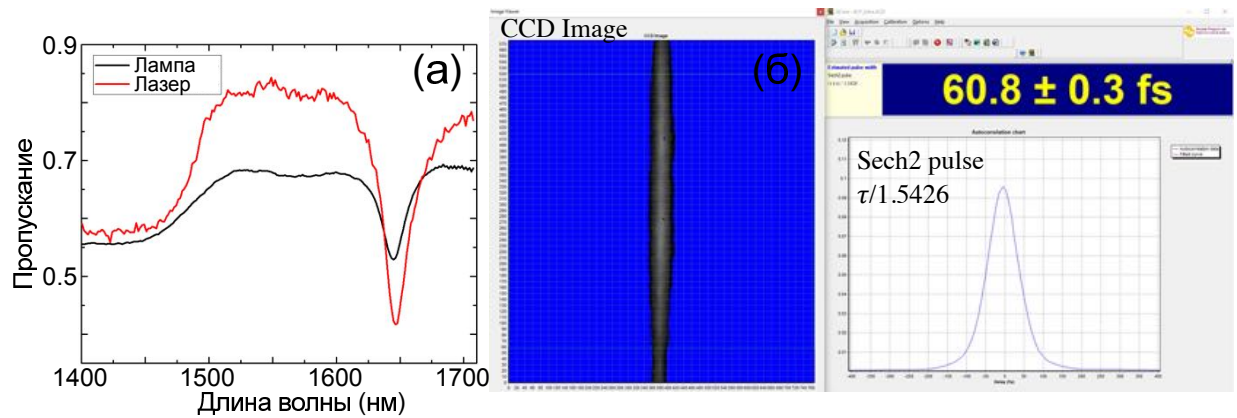


Рисунок 4.11 — Спектры пропускания метаповерхности на основе аморфного германия в случае освещения образца лампой накаливания (черная кривая) и фемтосекундным лазерным источником при р-поляризации излучения.

тельных нейтральных светофильтров для уменьшения интенсивности накачки. Плотность энергии изменялась от 0.5 до 6 мВт (0.25 до 3 мДж/см²) с помощью фильтра с переменной оптической плотностью, а размер пятна составил около 500 мкм. Длительность лазерного импульса накачки была измерена с помощью одноимпульсного автокоррелятора Avesta ASF-20, предназначенного для измерения импульсов в диапазоне 20-200 фс. Измерения проводились сразу после выхода излучения из лазера. Скриншот программы при измерении автокоррелятором представлен на рис. 4.11(б), левая часть которого это изображение импульса на ПЗС-камере, правая — полученная АКФ и вычисленное значение длительности импульса $\tau_{\text{и}} = 60$ фс для случая квадрата гиперболического секанса (sech^2).

На рис. 4.13(а) представлены полученные автокоррелятором данные АКФ (рис. 4.11(б)) и её аппроксимация функцией Гаусса $y = y_0 + A \exp[-0.5((x - x_c)/w)^2]$ (красная кривая) и sech^2 функцией $y = y_0 + A \text{sech}^2((x - x_c)/w)$ (синяя кривая), а также соответствующие параметры аппроксимации. Из аппроксимации следует, что импульс имеет временной профиль sech^2 .

Для эксперимента с Ge метаповерхностью с высокочастотными резонансами в ИК области использовалось излучение зонда с частотой повторения 1 кГц на заданной длине волны, варьируемое в диапазоне от 1582 нм до 2600 нм в основном рабочем режиме холостого луча с мощностью импульса около 40 мВт. Для получения достаточной плотности мощности зонда, падающей на образец, была взята линза с фокусным расстоянием 5.5 см. Размер перетяжки зондиру-

ющего излучения на образце составил 50 мкм. Оба луча были р-поляризованы в плоскости метаповерхности. Зондирующий импульс фокусировался при нормальном угле падения, а накачка — под небольшим углом от нормали.

Длительность зондирующего импульса составила порядка 100 фс и измерялась с помощью модифицирования схемы “накачка-зондирование” в кросс-корреляционную схему с использованием накачки в качестве одного из импульсов и нелинейного кристалла ВВО (beta-barium borate BaB_2O_4), который создает излучения суммарной частоты накачки и зондирующего импульса. Кристалл ВВО помещался вместо образца метаповерхности (методику измерения подробно описана в подразделе 4.3.2).

Для визуализации сигналов от обоих плеч в схеме “накачки-зондирования” и определения примерной временной задержки между ними необходимо в каждое из плеч поместить фотодетектор, чувствительный к диапазону излучения измеряемого в плече сигнала. После чего при достаточно большой разнице оптических путей можно внести необходимые изменения в длину того или иного плеча схемы, наблюдая за сигналом детектора на экране осциллографа (характерное изображение которого показано желтой кривой на рис. 3.12(б) главы 3, подраздел 3.3.3).

4.3.2 Юстировка схемы “накачка-зондирование” с разными оптическими частотами и определение длительности импульса параметрического усилителя света

При достижении минимально возможной временной задержки с помощью осциллографа можно приступать к тонкой юстировке и поиску нулевой задержки в фемтосекундной многоцветной схеме “накачки-зондирования”. Для этого вместо образца устанавливается либо нелинейный кристалл, либо материал с известными динамическими характеристиками, например кремний Si (как было сделано в главе 3 на рис. 3.13). В данном случае для поиска нулевой задержки между импульсами накачки и зонда был использован нелинейный кристалл, так как при этом также возможно определение длительности зондирующего излучения. При этом в схеме на рис. 4.10 вместо метаповерхности помещается

нелинейный кристалл ВВО, в котором при одновременном пространственном и временном перекрытии зондирующего импульса ω_1 и импульса накачки ω_2 генерируется излучение их суммарной частоты $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. При $\omega_1 = \omega_2$ генерация суммарной частоты происходит по биссектрисе между волновыми векторами падающих на кристалл импульсов. При $\omega_1 \neq \omega_2$ излучение ω_3 происходит по направлению волнового вектора \vec{k}_3 , изображенному на рис. 4.12 светло-зеленой стрелкой.

Для типа I (ооо) генерации суммарной частоты в нелинейном кристалле ВВО выполняется закон сохранения импульса и закон сохранения энергии:

$$\begin{cases} \vec{k}_1^o + \vec{k}_2^o = \vec{k}_3^e, \\ \omega_1 + \omega_2 = \omega_3, \end{cases} \quad (4.1)$$

где значения волновых векторов $k_1^o = \frac{\omega_1 n_o^1}{c}$, $k_2^o = \frac{\omega_2 n_o^2}{c}$ и $k_3^e = \frac{\omega_3 n_e^3}{c}$, ω — частота излучения, а n_o , n_e — показатели преломления для обыкновенной и необыкновенной волны соответственно. Пусть волны ω_1 и ω_2 падают на кристалл ВВО по разную сторону от нормали под углами γ_1 и γ_2 , как показано на рис. 4.12 снизу слева. Решая систему уравнений 4.1 закона сохранения импульса и закона сохранения энергии, получаем выражение для показателя преломления на сгенерированной частоте. Для генерации суммарной частоты $\omega_1 + \omega_2$, в силу неколлинеарной геометрии, фазовый синхронизм можно переписать в виде: $k_3^e = k_1^o \cos \alpha + k_2^o \cos \theta$, где $\angle \alpha = (\widehat{\vec{k}_1 \vec{k}_3})$ и $\angle \theta = (\widehat{\vec{k}_2 \vec{k}_3})$ (на рис. 4.12 \vec{k}_1 показан розовой стрелкой, \vec{k}_2 показан красной стрелкой). Тогда полученное выражение для показателя преломления с учетом закона Снеллиуса имеет вид $n_e^{\omega_3} = \lambda_3 \left(\frac{n_o^{\omega_2}}{\lambda_2} \cos \theta + \frac{n_o^{\omega_1}}{\lambda_1} \cos \alpha \right)$. Используя выражение $\alpha + \theta = \arcsin(\sin(\gamma_1/n_o^{\omega_1})) + \arcsin(\sin(\gamma_2/n_o^{\omega_2}))$, из теоремы косинусов $\cos \alpha = \frac{(k_1)^2 + (k_3)^2 - (k_2)^2}{2k_1 k_3} = \frac{(n_o^{\omega_1}/\lambda_1)^2 + (n_e^{\omega_3}/\lambda_3)^2 - (n_o^{\omega_2}/\lambda_2)^2}{2(n_o^{\omega_1}/\lambda_1)(n_e^{\omega_3}/\lambda_3)}$, а $\cos \theta = \frac{(k_3)^2 + (k_2)^2 - (k_1)^2}{2k_2 k_3} = \frac{(n_e^{\omega_3}/\lambda_3)^2 + (n_o^{\omega_2}/\lambda_2)^2 - (n_o^{\omega_1}/\lambda_1)^2}{2(n_o^{\omega_2}/\lambda_2)(n_e^{\omega_3}/\lambda_3)}$ находим значения углов α , θ и определяем соответствующее $n_e^{\omega_3}$.

При этом длина волны генерированного излучения $\lambda_3 = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_1 + \lambda_2} = 563$ нм при $\lambda_1 = 1900$ нм и $\lambda_2 = 800$ нм, то есть излучение светло-зеленого цвета, а углы $\alpha = 6.4^\circ$ и $\theta = 2.7^\circ$ при $\gamma_1 = 15^\circ$ и $\gamma_2 = 0^\circ$ (правая часть рис. 4.12). В случае $\lambda_1 = 1680$ нм и $\lambda_2 = 800$ нм — $\lambda_3 = 542$ нм, а углы $\alpha = 6.2^\circ$ и $\theta = 2.9^\circ$ при тех же значениях γ_1 и γ_2 . Значения углов α и θ позволяют определить положение

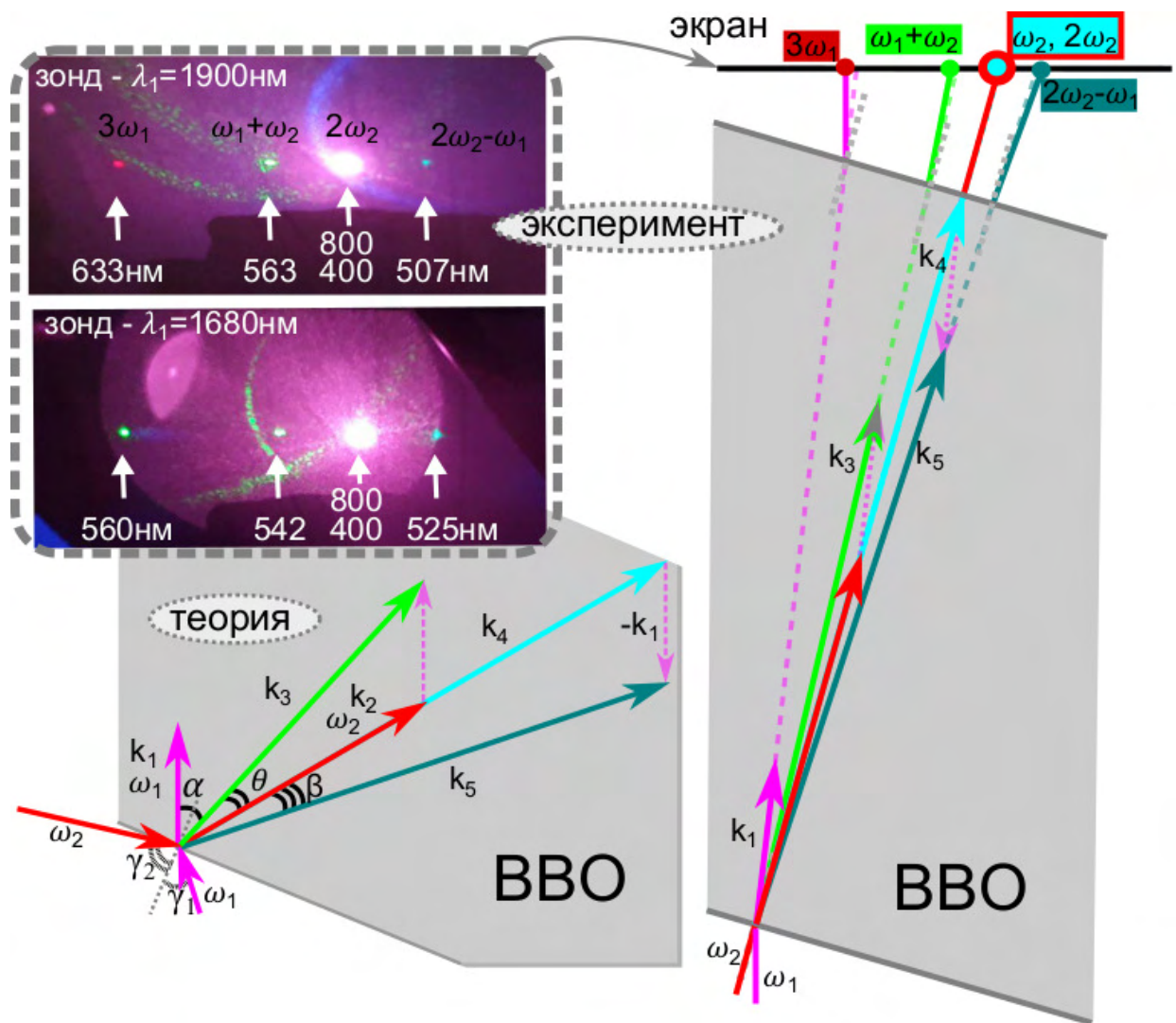


Рисунок 4.12 — Генерация гармоник при прохождении нелинейного кристалла ВВО. Фотографии экрана с визуализацией накачки, зонда и гармоник в случае двух длин волн зонда $\lambda_1 = 1900$ нм (верхнее изображение) и $\lambda_1 = 1680$ нм (нижнее изображение) представлены в штриховом прямоугольнике. Схема векторов зонда k_1 (розовая стрелка) и накачки k_2 (красная стрелка), генерации их суммарной частоты $\omega_1 + \omega_2$ в направлении вектора k_3 (светло-зеленая стрелка) и разностной частоты $2\omega_2 - \omega_1$ в направлении вектора k_5 (темно-бирюзовая стрелка), а также генерации ВГ накачки $2\omega_2$ (вектор k_4 показан голубой стрелкой). Схема векторов в правой части рисунка близка к экспериментальной ситуации ($\lambda_1 = 1900$ нм и $\lambda_2 = 800$ нм, $\gamma_1 = 15^\circ$ и $\gamma_2 = 0^\circ$, $\alpha = 6.4^\circ$, $\theta = 2.7^\circ$ и $\beta = 2.4^\circ$), черной прямой показано положение экрана за кристаллом ВВО. Схема векторов в левой нижней части рисунка — для наглядности представления $\gamma_1 = 40^\circ$ и $\gamma_2 = 80^\circ$, генерация $\omega_{3,5}$ в ВВО при этом наблюдаться не может.

Таблица 1 — Показатель преломления для кристалла ВВО [142].

$\lambda_1 = 1900 \text{ нм}$	$\lambda_2 = 800 \text{ нм}$
$n_o^{1900 \text{ нм}} = 1.6404$	$n_o^{1680 \text{ нм}} = 1.6442$
$\{\omega_3 = \omega_2 + \omega_1\}$	
$n_o^{563 \text{ нм}} = 1.6716$	$n_o^{542 \text{ нм}} = 1.6732$
$n_e^{563 \text{ нм}} = 1.5529$	$n_e^{542 \text{ нм}} = 1.5541$
$\{\omega_5 = 2\omega_2 - \omega_1\}$	
$n_o^{507 \text{ нм}} = 1.6765$	$n_o^{525 \text{ нм}} = 1.6748$
$n_e^{507 \text{ нм}} = 1.5564$	$n_e^{525 \text{ нм}} = 1.5552$
$n_o^{800 \text{ нм}} = 1.6604$	

суммарной частоты ω_3 на экране за нелинейным кристаллом. Используемые при этом значения для ВВО (отрицательный кристалл с $n_o > n_e$) взяты из Тамоšauskas [142] и представлены в Таблице 1.

Кроме того, на экране за нелинейным кристаллом наблюдается генерация третьей гармоники (ГТГ) зондирующего излучения $3\omega_1$, которая, как и ожидалось, не исчезает при движении транслятора и увеличении задержки накачки зонд. А при совпадении оптических путей накачки и зонда помимо суммарной частоты $\omega_1 + \omega_2$ наблюдается более коротковолновое излучение (голубая точка в правой части фотографии экрана на рис. 4.12, причем это излучение, воспринимаемое глазом в эксперименте, наблюдалось как зеленая точка; излучение сине-зеленого/циан цвета имеет диапазон порядка 500-520 нм). Данное излучение оказывается соответствующим генерации разностной частоты $\omega_5 = 2\omega_2 - \omega_1$ в случае удвоенной накачки $\omega_4 = 2\omega_2$ и отраженного от грани кристалла ВВО зонда ω_1 (поэтому волновой вектор $-k_1$, изображенный штриховой розовой стрелкой на рис. 4.12, взят с противоположным вектору k_1 направлением). В этом случае генерация в кристалле ВВО соответствует типу II (оee), фазовый синхронизм аналогичной системы уравнений 4.1 для данного процесса имеет вид: $k_5^e = 2k_2^e \cos \beta - k_1^o \cos(\alpha + \theta + \beta)$, где $\angle \beta = (\vec{k}_2 \vec{k}_5) = (\vec{k}_4 \vec{k}_5)$, а показатель преломления $n_e^{\omega_5} = \lambda_5 \left(\frac{2n_e^{2\omega_2}}{\lambda_2} \cos \beta - \frac{n_1^{\omega_1}}{\lambda_1} \cos(\alpha + \theta + \beta) \right)$. Тогда из теоремы косинусов для угла β находим его значение и определяем соответствующее $n_e^{\omega_5}$. При этом $n_{2,e}^{400 \text{ нм}} = n_{2,o}^{800 \text{ нм}}$ (так как $2\omega_2$ генерируется в коллинеарной геометрии), $\lambda_5 = 507 \text{ нм}$ при $\lambda_1 = 1900 \text{ нм}$ и $\lambda_2 = 800 \text{ нм}$, а $\beta = 2.4^\circ$ при $\gamma_1 = 15^\circ$ и $\gamma_2 = 0^\circ$ (при $\lambda_1 = 1680 \text{ нм}$ и $\lambda_2 = 800 \text{ нм}$ — $\lambda_5 = 525 \text{ нм}$, а $\beta = 2.8^\circ$).

Стоит отметить, что в общем случае, изображенном слева снизу на рис. 4.12, показанном для $\lambda_1 = 1900$ нм и $\lambda_2 = 800$ нм ($\lambda_5 = 507$ нм), углы $\gamma_1 = 40^\circ$ и $\gamma_2 = 80^\circ$ взяты достаточно большими для наглядного представления хода лучей в кристалле. При этом $\alpha = 43^\circ$, $\theta = 16^\circ$, $\beta = 11^\circ$, $n_e^{\omega_3} = 1.47$, $n_e^{\omega_5} = 1.92$. Таким образом, так как $n_e^{\omega_3} \notin [n_e^{563\text{нм}}; n_o^{563\text{нм}}]$ и $n_e^{\omega_5} \notin [n_e^{507\text{нм}}; n_o^{507\text{нм}}]$ (см. таблицу 1), то для таких $\gamma_{1,2}$ генерация $\omega_{3,5}$ невозможна, а максимально возможный угол между ω_1 и ω_2 для генерации $2\omega_2 - \omega_1$ составляет порядка 18° при $\gamma_2 = 0^\circ$ (для генерации ω_3 угол $(\widehat{\omega_1\omega_2})$ в случае $\gamma_2 = 0^\circ$ может быть любым). Ситуация, близкая к экспериментальной, изображена для $\lambda_1 = 1900$ нм на рис. 4.12 справа.

Соответствующая схема векторов зондирующего излучения k_1 (розовая стрелка), накачки k_2 (красная стрелка) при прохождении нелинейного кристалла ВВО, генерации их суммарной частоты $\omega_1 + \omega_2$ в направлении вектора k_3 (светло-зеленая стрелка) и разностной частоты $2\omega_2 - \omega_1$ в направлении вектора k_5 (темно-бирюзовая стрелка), а также генерации ВГ накачки $2\omega_2$ (вектор k_4 показан голубой стрелкой) построена на рис. 4.12. Черной прямой показано положение экрана за кристаллом ВВО. Фотографии экрана с визуализацией накачки, зонда и гармоник в случае двух длин волн зонда $\lambda_1 = 1900$ нм (верхнее изображение) и $\lambda_1 = 1680$ нм (нижнее изображение) представлены на левой части рисунка в штриховом прямоугольнике.

Такая схема с нелинейный кристаллом, ВВО вместо образца метаповерхности (модифицированная схема “накачка-зондирование” (рис. 4.10) для поиска нулевой задержки с последующей регистрацией суммарной частоты накачки и зондирующего импульса ИК-детектором) идентична кросс-корреляционной схеме. Зная длительность импульса накачки, можно рассчитать значение длительности импульса зонда, если измерить кросс-корреляционную функцию (ККФ) импульса накачки и зондирующего излучения. Полученная таким образом ККФ показана на рис. 4.13(б) как функция задержки между импульсом зондирующего излучения с длиной волны $\lambda_1 = 1680$ нм и накачкой с $\lambda_2 = 800$ нм (рис. 4.12 нижнее изображение). Также на рисунке 4.13(б) приведены соответствующие аппроксимации гауссовой и sech^2 функциями и их параметры (задержка между импульсами соответствует шагу транслятора в линии задержки на рис. 4.10, поэтому оптический путь в 2 раза больше, а временная задержка между импульсами таким образом составляет $\tau[\text{фс}] = \text{шаг}[\text{мкм}] \times 2 \times 3.3$).

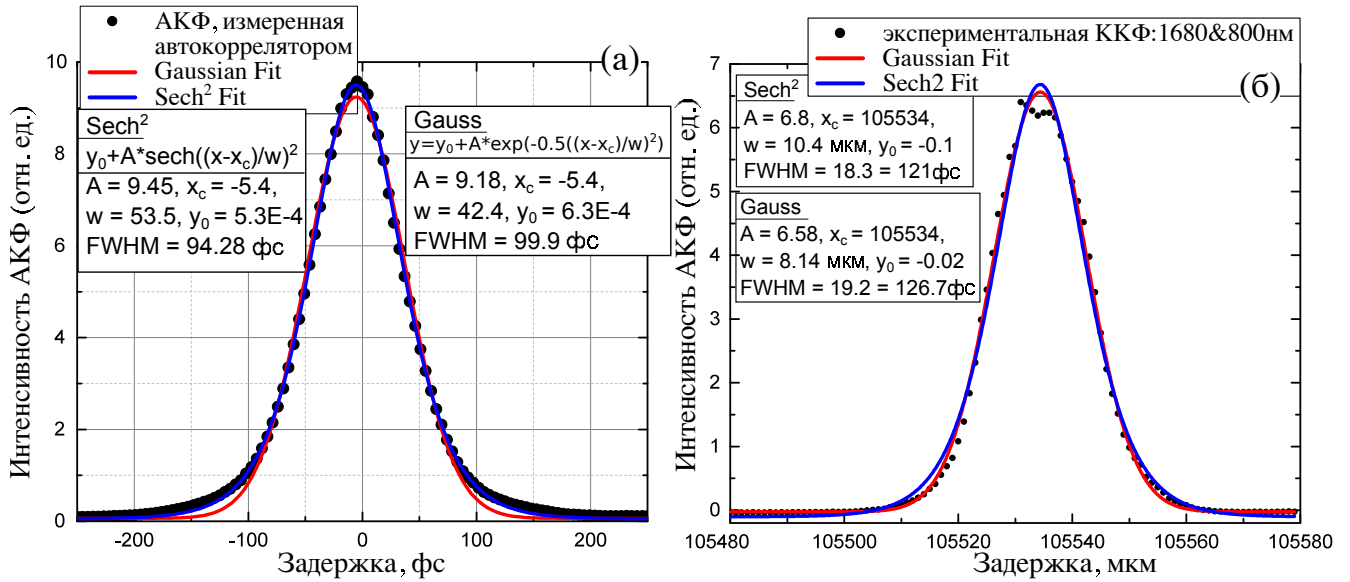


Рисунок 4.13 — (а) Данные для АКФ, измеренной автокоррелятором, и соответствующая аппроксимация гауссовой: $y = y_0 + A \exp[-0.5((x - x_c)/w)^2]$ и sech^2 : $y = y_0 + A \text{sech}^2((x - x_c)/w)$ функциями. (б) Кросс-корреляционная функция (ККФ), измеренная с помощью экспериментальной установки (рис. 4.10) с заменой образца на нелинейный кристалл ВВО; соответствующая аппроксимация гауссовой и sech^2 функциями.

Длительность импульса для случая гауссовского профиля легко рассчитывается аналитически аналогично уравнению 3.1, но в случае свертки импульсов разной длительности $I_{\text{gauss}}^1(t) = e^{-4 \ln 2 (t/w_1)^2}$ и $I_{\text{gauss}}^2(t) = e^{-4 \ln 2 (t/w_2)^2}$. В этом случае $w_1^2 = \text{FWHM}_{\text{ККФ}}^2 - \underbrace{(\text{FWHM}_{\text{АКФ}}/\sqrt{2})^2}_{w_2} \Rightarrow w_1^{\text{gauss}} = 105$ фс. Длительность импульса для случая sech^2 , в силу того, что ККФ не является функцией sech и в отличие от АКФ и уравнения 3.2 не может быть вычислена аналитически, то была численно рассчитана, и получено значение $\tau_{\text{и}}^{\text{sech}^2} = 94$ фс. В качестве длительности импульса было взято последнее значение для профиля импульса в виде sech^2 .

После совмещения зонда и накачки во времени и пространстве с помощью такой установки можно измерять спектры зондирующего излучения в широком спектральном диапазоне в зависимости от времени задержки между зондом и накачкой.

4.3.3 Дифференциальный коэффициент пропускания и спектроскопия третьей гармоники

Спектры пропускания зондирующего импульса (или сигнал третьей гармоники, генерируемой зондирующим импульсом в случае нелинейных измерений) измерялись как функция времени задержки между импульсами “накачки-зонда”, и функция длины волны зондирующего импульса (или длины волны ТГ зондирующего импульса) с помощью спектрометра ближнего ИК-диапазона (или спектрометра видимого диапазона в случае нелинейных измерений). Спектры прошедших зондирующих импульсов измерялись попеременно при наличии излучения накачки и без накачки с частотой от 0.1 до 50 Гц в зависимости от времени усреднения спектрометра.

Собранная установка “накачка-зондирование” позволяет измерять дифференциальное пропускание, определяемое как: $\Delta T = (T_{\text{pump}}(\tau) - T)$, где T — спектр пропускания образца, а $T_{\text{pump}}(\tau)$ — спектр пропускания образца при наличии излучения накачки для определенной временной задержки τ между накачкой и зондом. При этом нормированное дифференциальное пропускание $\Delta T/T = (T_{\text{pump}}(\tau) - T)/T = \Delta I/I = (I_{\text{pump}}(\tau) - I)/I$, где I — спектр излучения зонда прошедшего через систему, $I_{\text{pump}}(\tau)$ — спектр излучения зонда, прошедшего через систему при наличии излучения накачки для определенного τ (рис. 4.14).

При измерении интегрального сигнала в ИК диапазоне использовался InGaAs-фотодетектор (рис. 4.14(а)). Для спектроскопии дифференциального пропускания использовался ИК спектрометр, измеряющий диапазон 900 — 1700 нм, а при регистрации сгенерированных гармоник — спектрометр для видимого диапазона 200 — 900 нм. В зависимости от измеряемого спектрального диапазона использовался тот или иной набор светофильтров.

На рис. 4.14(а) показано измеренное с помощью фотодетектора дифференциальное пропускание ΔT излучения зонда на длине волны 1650 нм, прошедшее через неструктурированную тонкую пленку аморфного германия, в зависимости от времени задержки между зондом и накачкой. При возрастании задержки (задержка $\tau = 0$ соответствует времени, когда зонд и накачка приходят одновременно) пропускание начинает падать из-за того, что накачка

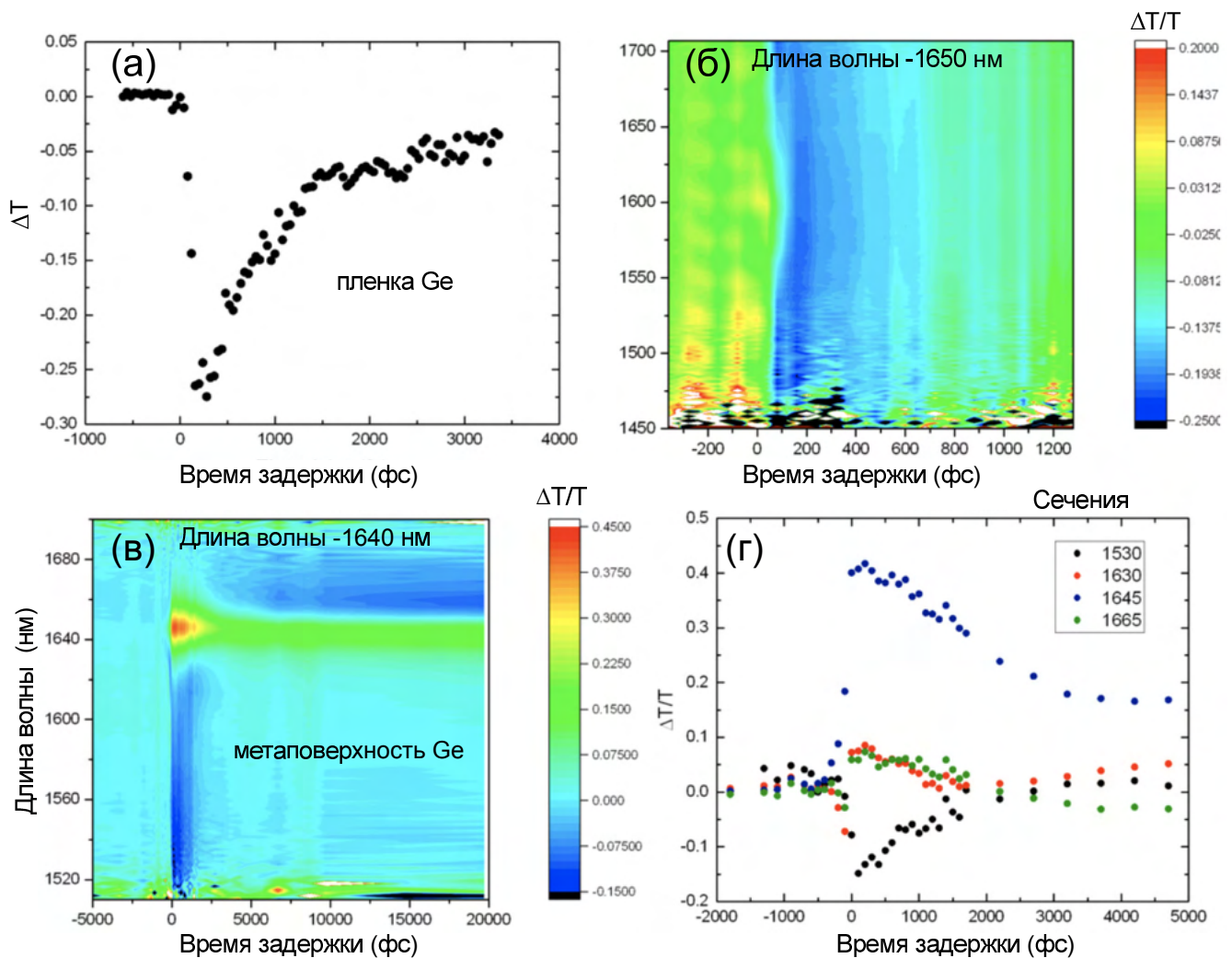


Рисунок 4.14 — Дифференциальное пропускание, полученное методом “накачка–зондирование”. (а) Дифференциальное пропускание для тонкой пленки германия. (б) Спектроскопия дифференциального пропускания фундаментальной частоты для тонкой пленки германия. (в) Спектроскопия дифференциального пропускания для метаповерхности на основе аморфного германия с резонансом на длине волны 1645 нм при мощности накачки 2 мВт. (г) Сечения спектроскопии дифференциального пропускания для метаповерхности при различных длинах волн.

генерирует свободные носители и пленка становится более “металлической”. На рис. 4.14(б) представлена соответствующая спектроскопия дифференциального пропускания фундаментальной частоты для тонкой пленки германия, которая демонстрирует равномерное уменьшение во всем диапазоне спектра излучения. Для метаповерхности дифференциальное пропускание, полученное с помощью фотодетектора, является неинформативным, так как имеет сложную спектральную структуру и может приводить к дифференциальному пропусканию около

нуля во всем диапазоне задержек между зондом и накачкой. На рис. 4.14(в) показана спектроскопия дифференциального пропускания фундаментальной частоты для метаповерхности на основе аморфного германия с резонансом на длине волны 1640 нм для мощности накачки около 2 мВт и пятном диаметром 1 мм на образце. Наблюдаются как отрицательные, так и положительные изменения спектра, при этом модуляция достигает 45% в случае положительного изменения и 18% при отрицательном изменении. На рис. 4.14(г) представлены сечения спектроскопии дифференциального пропускания фундаментальной частоты для метаповерхности при длинах волн 1530, 1630, 1645, 1665 нм, демонстрирующие положительную и отрицательную модуляцию. При этом время релаксации на длине волны 1530 нм значительно короче, чем релаксация в длинноволновой части спектра. Также в районе нуля при задержке $\tau < 0$ на длинах волн слева и справа от максимума модуляции (например на длинах волн 1630 и 1665 нм) наблюдается сначала спад, потом возрастание пропускания, это хорошо видно в области в районе τ около 0 фс. При этом наблюдаются осцилляции, связанные с преобразованием частоты исходного импульса, которые и будут рассмотрены подробнее, так как представляют наибольший интерес.

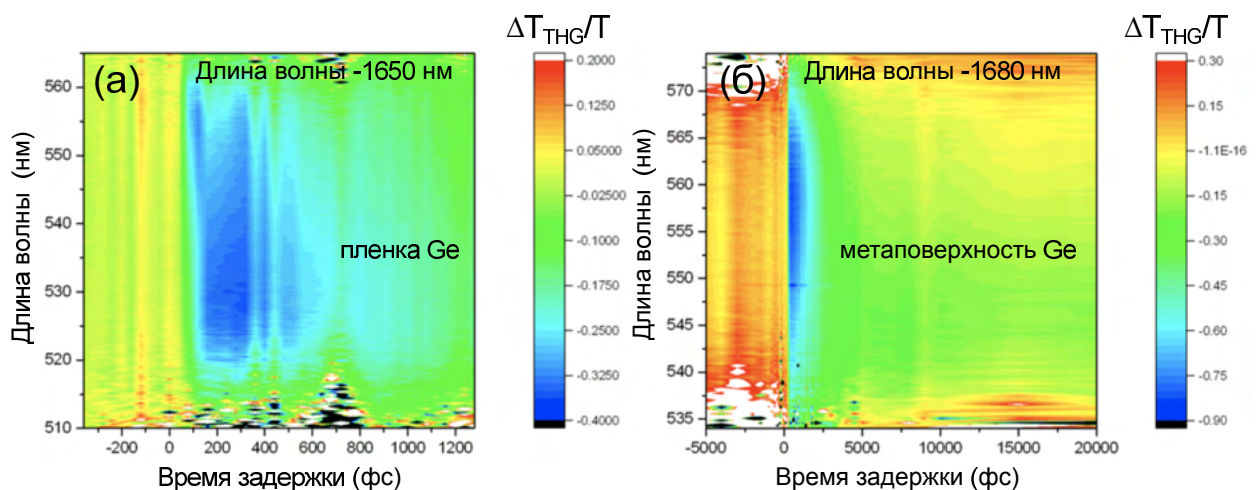


Рисунок 4.15 — Спектроскопия третьей гармоники, полученная методом “накачка-зондирование” (а) для тонкой пленки германия при длине волны излучения 1650 нм и (б) метаповерхности на основе аморфного германия с резонансом на длине волны 1645 нм при мощности накачки 2 мВт и длине волны излучения зонда 1680 нм.

Также с помощью методики “накачка-зондирование” была измерена спектроскопия дифференциального сигнала третьей гармоники для тонкой пленки германия при длине волны излучения зонда 1650 нм и метаповерхности на ос-

нове аморфного германия с резонансом на длине волны 1645 нм для мощности накачки 2 мВт и длине волны излучения зонда 1680 нм (рис. 4.15). Разная длина волны зонда при измерениях ТГ не несет качественных изменений для пленки Ge, так как она не имеет резонансных особенностей. Мощность накачки в случае пленки была больше, чем в случае метаповерхности. Как для пленки, так и для метаповерхности наблюдается равномерное уменьшение сигнала третьей гармоники. В случае пленки модуляция достигает 40%, а в случае метаповерхности сигнал третьей гармоники практически полностью пропадает при наличии накачки и модуляция достигает 90%.

4.4 Преобразование частоты в метаповерхностях из аморфного германия с внутриимпульсным изменением диэлектрической проницаемости

Сверхбыстрая динамика инфракрасного пропускания и сигнала генерации третьей гармоники изучалась методом “накачки-зондирования” с высоким разрешением по времени, с оптимизированной плотностью энергии накачки для демонстрации ярко выраженного эффекта перестройки частоты. Схема установки представлена на рис. 4.10.

Экспериментальный и модельный спектры пропускания в ближнем ИК-диапазоне в невозмущенном режиме показаны на рис. 4.16(б) сплошной и штриховой черными кривыми соответственно. Серая область показывает спектр падающего зондирующего импульса, который возбуждает резонансную моду с центральной длиной волны $\lambda_R = 1640$ нм в метаповерхности. Поляризация падающего света перпендикулярна длинным сторонам прямоугольников (р-поляризация), направление колебаний вектора E показаны горизонтальными стрелками на рис. 4.1(б), 4.4(б), 4.16(а). На вставке рис.4.16(а) показано характерное модельное распределение электрического поля внутри прямоугольника Ge на резонансной длине волны. Спектры пропускания на рис.4.16(б) при освещении различными плотностями энергии накачки (цветные кривые) демонстрируют сдвиг резонанса и уменьшение его добротности после взаимодействия с накачкой из-за изменения преломляющих свойств Ge. Эти изменения увеличиваются

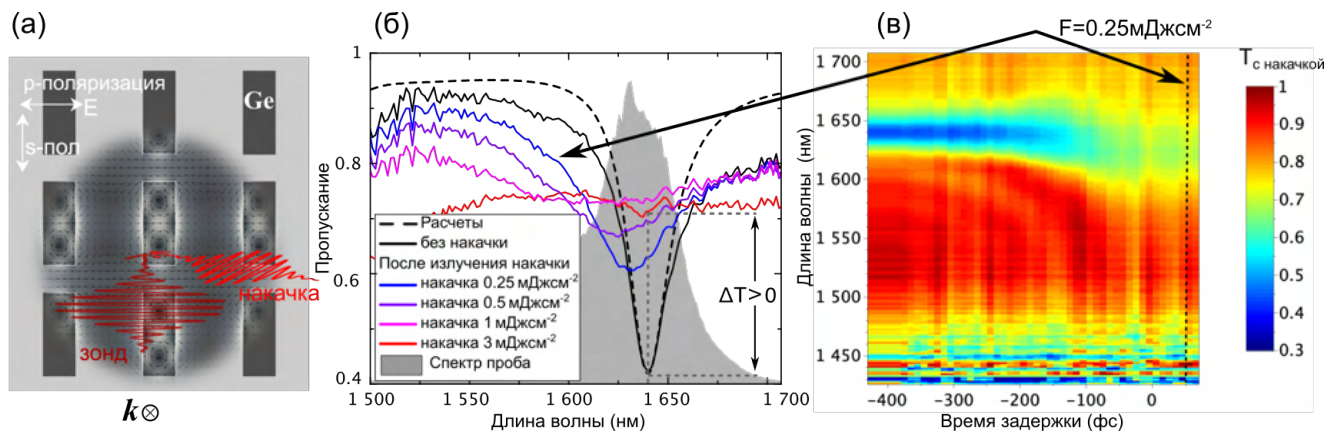


Рисунок 4.16 — (а) Схема эксперимента оптической накачки метаповерхности Ge. Поглощение импульса накачки приводит к быстрой модификации показателя преломления полупроводника. В результате происходят изменения как в спектре зондирующего импульса, так и в генерируемом нелинейном сигнале. (б) — Экспериментальный и моделируемый спектры пропускания метаповерхности Ge в отсутствие оптической накачки (сплошная и штриховая черные кривые соответственно) и экспериментальные спектры пропускания после взаимодействия с излучением накачки различной плотности энергии (цветные кривые). Серая область показывает спектр зондирующего импульса. (в) Коэффициент пропускания метаповерхности как функция задержки между зондом и накачкой при плотности энергии 0.25 мДж/см^2 . Штриховой прямой показана линия задержки, при которой взято поперечное сечение спектра пропускания на панели (б).

с увеличением плотности энергии накачки, поскольку генерируется больше свободных носителей, и для значений 1 мДж/см^2 (розовая кривая) резонанс все еще виден, а его сдвиг составляет примерно 30 нм . Исходя из этого, оценка резонансного сдвига при плотности энергии 3 мДж/см^2 порядка 100 нм .

Модельные спектры были рассчитаны, как описано в разделе 4.1.1, для метаповерхности Ge со следующими параметрами: размеры длинной стороны — $x = 753 \text{ нм}$, короткой стороны прямоугольника — $y = 360 \text{ нм}$, по оси Ox — $P_x = 1060 \text{ нм}$, период по оси Oy — $P_y = 1035 \text{ нм}$, высота слоя Ge составляла порядка 140 нм . Характерные геометрические параметры были получены из РЭМ-изображения образца. Увеличение локальных полей при этом достигает значения $|E/E_0| \approx 7$ по отношению к падающей амплитуде электрического поля E_0 .

Нормированная трехмерное изображение интенсивности ТГ получается путем нормировки каждого спектра на его максимум. Нормированная интенсивность ТГ была использована для более четкого наблюдения синего сдвига в сигнале ТГ, так как с увеличением времени задержки накачки-зонда происходило уменьшения сигнала ТГ.

4.4.1 Преобразование частоты в линейном случае

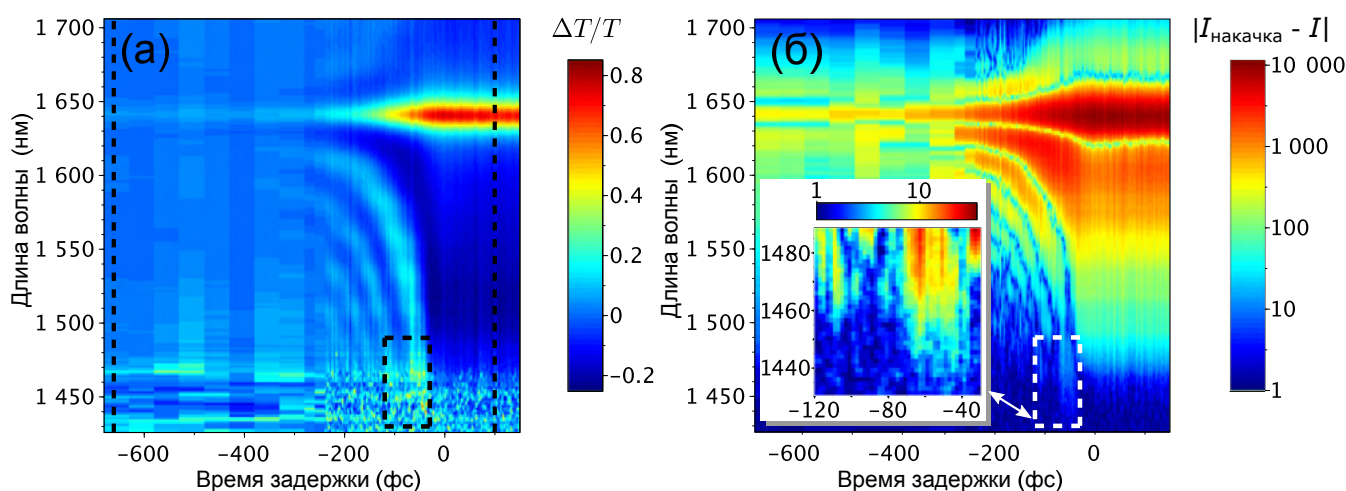


Рисунок 4.17 — Экспериментальное преобразование частоты во времяпеременной метаповерхности Ge. (а) 3Д-изображение дифференциального коэффициента пропускания для метаповерхности с резонансом на $\lambda_R = 1640$ нм. Штриховой черный прямоугольник обозначает область увеличения для вставки на панели (б). (б) 3Д-изображение модуля разницы между спектром зондирующего импульса при наличии излучения накачки и без накачки (в логарифмическом масштабе). На вставке: увеличение прямоугольной области, выделенной штриховой линией, показывающее новые частотные компоненты, генерируемые на длинах волн 1440–1450 нм.

На рис. 4.17(а) показан нормированный дифференциальный коэффициент пропускания $\Delta T/T$ для метаповерхности a-Ge с резонансом на центральной длине волны $\lambda_R = 1640$ нм. Наблюдается значительное изменение пропускания, как положительное (до + 80%), так и отрицательное (до -25%). При отрицательных временных задержках могут наблюдаться полосы [76; 143], возникающие из-за интерференции между резонансной частью зондирующего импульса, кото-

рая динамически преобразуется по частоте в метаповерхности, и нерезонансной частью зондирующего импульса. Спектральный диапазон, в котором генерируются новые частоты во времяпеременной метаповерхности при этом оказывается на длинах волн, далеких как от невозмущенного резонанса (1640 нм), так и от несущей длины волны зондирующего импульса. Дифференциальная интенсивность на рис. 4.17(б) показывает, что при небольших отрицательных задержках накачки и зондирующего импульса ($-70 \div -40$ фс) сигнал при наличии излучения накачки возникает на длинах волн короче 1450 нм, что примерно на 200 нм дальше, чем изначальное положение резонанса.

4.4.2 Преобразование частоты в нелинейном случае

Благодаря высоким значениям собственной нелинейной восприимчивости Ge третьего порядка $\chi^{(3)}$, можно наблюдать третью гармонику, генерируемую зондирующим импульсом в материале Ge. Из-за усиления электрического поля в метаповерхности (вставка рис. 4.16) сигнал ТГ наблюдается при более низкой мощности по сравнению с объемным материалом Ge. В результате изменения концентрации свободных носителей под действием оптической накачки происходит модификация показателя преломления, а зависящий от времени показатель преломления метаповерхности приводит к фемтосекундной динамике отклика ТГ, вызывая преобразование частоты ТГ. Экспериментальная сверхбыстрая полностью оптическая нелинейная модуляция метаповерхностей Ge показана на рис. 4.18. Нормированный сигнал третьей гармоники, генерируемый зондирующим импульсом при излучении накачки, демонстрирует синий сдвиг центральной длины волны спектра ТГ на фемтосекундном масштабе при отрицательных временах задержки накачки-зонда. На рис. 4.18 положение центральной длины волны показано черной штриховой линией, которая при отсутствии накачки на рис. 4.18(б) является прямой. Этот синий сдвиг нелинейного сигнала происходит из-за отрицательной добавки к показателю преломления, которая пропорциональна количеству свободных носителей, генерируемых мощным излучением накачки $\Delta n \propto -N_{FC}(t)$. Заштрихованный белый прямоугольник обозначает область с достаточно зашумленным сигналом, и для корректной

нормировки, не препятствующей демонстрации эффекта, значения в этой области были искусственно занижены.

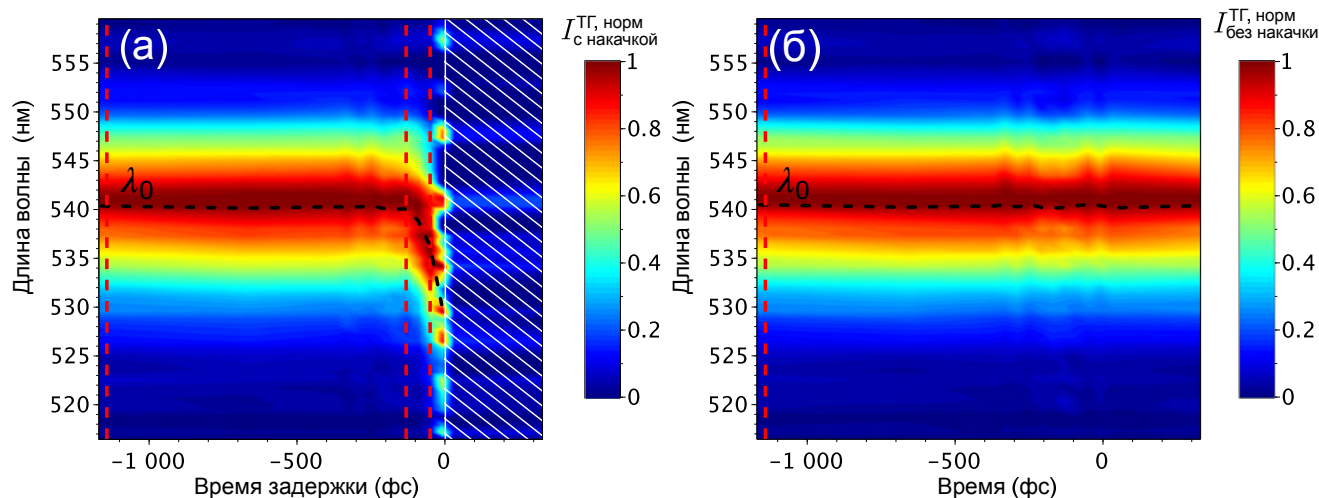


Рисунок 4.18 — Преобразование частоты в нелинейном отклике времяпеременной метаповерхности Ge. Нормированные спектры сигнала третьей гармоники, генерируемого зондирующим импульсом при излучении накачки (а) и без накачки (б), в зависимости от времени задержки накачка-зонд. Красные штриховые линии в (а) обозначают времена задержки для сечений спектров интенсивности ТГ на рис. 4.19(а). Заштрихованным белым прямоугольником отмечена область с зашумленным сигналом и искусственно заниженными значениями.

Невозмущенная метаповерхность Ge генерирует сигнал третьей гармоники с постоянным поведением во времени (рис. 4.18). Красные штриховые линии на рис. 4.18(а) обозначают времена задержек между зондом и накачкой для сечений спектров интенсивности ТГ изображенных на рис. 4.19(а). Для увеличения отношения сигнал/шум измеренных спектров третьей гармоники использовался зондирующий импульс большей интенсивности по сравнению с линейными измерениями. Высокая интенсивность зондирующего импульса приводит к заметному изменению добротности резонанса из-за увеличения безызлучательных потерь на свободных носителях, генерируемых в Ge. При этом используемая интенсивность привела к уменьшению добротности почти в 2 раза от начальной, и добротность резонанса стала равной 35. На рис. 4.19(а) показаны ненормированные спектры ТГ при времени задержки $\tau = -1170$ и -50 фс при наличии излучения накачки (сплошные кривые) и без накачки (пунктирные кривые); центральная длина волны зондирующего импульса составляла $\lambda = 1610$ нм, для того чтобы увеличить отношение сигнал/шум “красной” части

спектров ТГ. Сигнал ТГ демонстрирует синее смещение и уширение, значения которых увеличиваются с увеличением времени задержки. Эта динамика отчетливо прослеживается, если аппроксимировать спектры ТГ функцией sech^2 со следующим уравнением:

$$y = y_0 + A \text{sech}^2 \left(\frac{\lambda - \lambda_0}{\sigma} \right), \quad (4.2)$$

где y_0 — смещение, A — амплитуда, λ_0 — центральная длина волны и σ — ширина спектра, в случае функции sech^2 — $\sigma = \text{FWHM}$ (полная ширина на полувысоте). Полученные значения ширины спектра σ и центральной длины волны λ_0 в зависимости от времени задержки между импульсами накачка–зонд при излучении накачки (красные точки) и без накачки (черные точки) показаны на рис. 4.19(б,в) соответственно. Наибольшие значения измеренного синего сдвига и уширения спектра ТГ составляют 10 нм и 40%, соответственно, при времени задержки $\tau = -10$ фс. Синий сдвиг на 10 нм соответствует преобразованию частоты 3.05ω по сравнению с невозмущенным нелинейным сигналом, который ожидается на частоте 3ω . Природа эффекта синего сдвига ТГ связана с синим сдвигом резонанса метаповерхности на фундаментальной частоте при излучении накачки и последующим перераспределением частотных составляющих спектра третьей гармоники. Как показано выше на рис. 4.16(б), чем выше плотность энергии накачки, тем больше синее смещение резонанса метаповерхности. Нелинейная модуляция метаповерхности Ge измерялась при плотности энергии накачки 3 мДж/см^2 , когда резонансный сдвиг на фундаментальной частоте оценивается в 100 нм. Существенная динамика, связанная со смещением резонанса на основной частоте, возникает на временном масштабе порядка 100 фс, при этом сдвиг наблюдается на отрицательных временах задержки. Эта область характеризуется наиболее выраженными и спектрально широкими осцилляциями (рис. 4.17(а), при временах задержки в диапазоне $-200 \div 0$ фс). Подобную временную динамику можно наблюдать и для нелинейного отклика. Помимо синего смещения наблюдается уменьшение амплитуды сигнала ТГ, поэтому при достаточно большом смещении резонанса, вблизи $\tau = 0$, измерение нелинейного отклика сильно затрудняется образовавшейся плазмой; сигнал для $\tau > 0$ больше не может быть обнаружен в тех же экспериментальных условиях (заштрихованная область белого прямоугольника на рис. 4.18(а)).

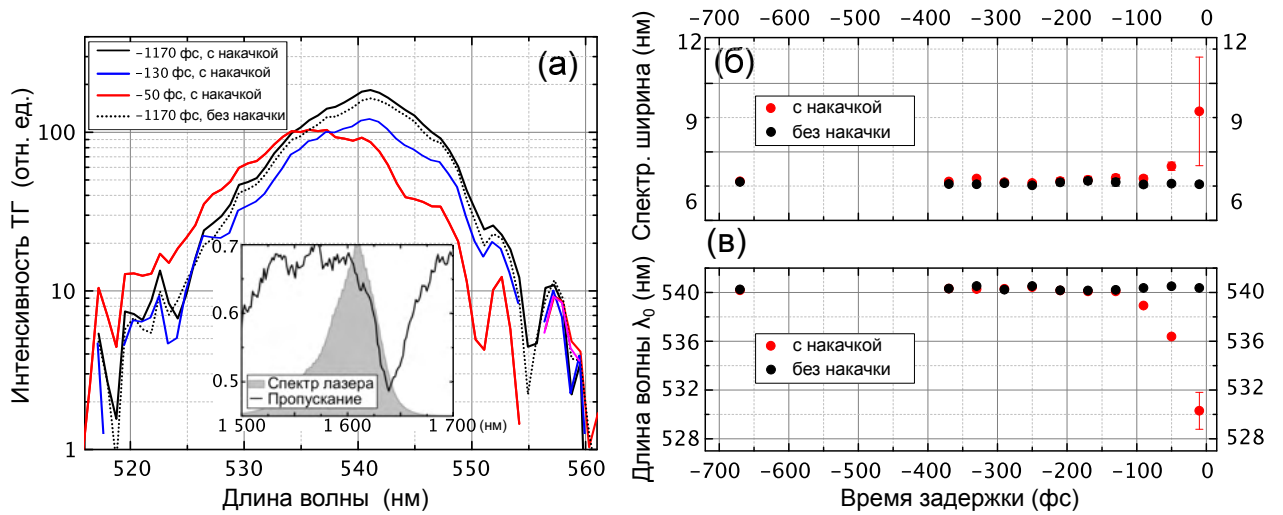


Рисунок 4.19 — (а) Спектры ТГ при значениях времени задержки $\tau = -1170, -130$ и -50 фс при излучении накачки (сплошные кривые) и без накачки (пунктирная кривая). Полученные из аппроксимации ширина σ (б) и центральная длина волны λ_0 (в) спектра ТГ в зависимости от времени задержки при излучении накачки (красные точки) и без накачки (черные точки).

4.4.3 Численное моделирование динамики по теории связанных мод

Для подтверждения описания эксперимента и лучшего понимания динамики системы была построена зависящая от времени теория связанных мод [144]. Эта теория позволяет моделировать сверхбыструю полностью оптическую модуляцию одиночной резонансной моды в зависимости как от времени задержки между импульсами накачки-зонда, так и от длины волны зондирующего импульса.

Зонд представляет собой короткий импульс, заданный функцией sech^2 (рис. 4.20(а), 4.21(а) серая область), а влияние накачки имитируется временной зависимостью свойств моды $a(t)$ (рис. 4.20(б)). Коэффициент пропускания невозмущенной моды показан на рис. 4.21(а) и качественно схож с коэффициентом пропускания экспериментальной метаповерхности Ge (черная кривая на рис. 4.16(б)). Спектр зондирующего импульса также взят близким к экспериментальному.

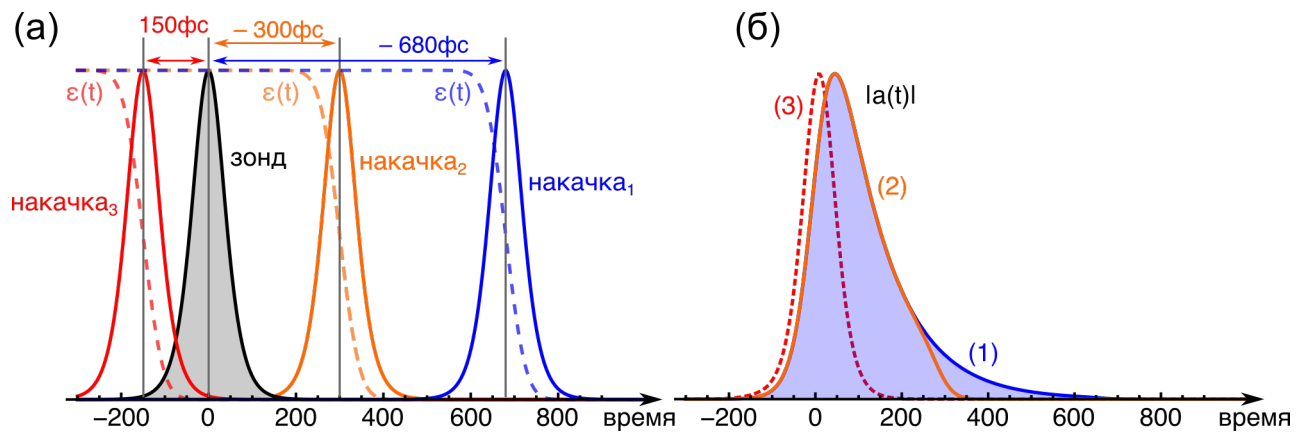


Рисунок 4.20 — Результаты расчётов по теории связанных мод. (а) Временная динамика взаимодействия накачки и зонда для трех основных случаев: накачка₁ с временной задержкой накачки и зонда $\tau \ll \sigma_{\text{зонд}}$ (синие кривые на панелях (а) и (б)), поэтому рис. 4.21(б) наблюдается невозмущенный резонанс (синяя кривая); накачка₂ с отрицательным $\tau \approx 0$, в резонаторе возбуждена резонансная мода, при этом в это же время свойства материала изменяются присутствующей оптической накачкой (оранжевые кривые на панелях (а) и (б)); таким образом, мода преобразуется изменяющимся во времени параметром диэлектрической проницаемости материала $\varepsilon(t)$, и осцилляции, указывающие на преобразование частоты, появляются в спектре пропускания (оранжевая кривая на рис. 4.21(б)); накачка₃ с $\tau > 0$, зонд прибывает вскоре после того, как накачка изменила свойства материала (красные кривые на панелях (а) и (б)), и в коэффициенте пропускания наблюдаются как синее смещение, так и уменьшение добротности резонанса (красная кривая на рис. 4.21(б)). Штриховыми кривыми соответствующего цвета показаны изменения диэлектрической проницаемости материала $\varepsilon(t)$ под действием накачки в этих трех случаях. (б) Соответствующая временная динамика резонансной моды для этих трех случаев.

Временная динамика взаимодействия накачки и зонда для трех основных случаев при различном времени задержки между накачкой и зондом:

1. Накачка₁ с временной задержкой накачки и зонда $\tau \ll \sigma_{\text{зонд}}$ (показано синими кривыми на рис. 4.20(а),(б) и 4.21(б)). При этом в спектре пропускания на рис. 4.21(б) наблюдается невозмущенный резонанс как и в случае отсутствия оптической накачки (синие кривые на рис. 4.21).

2. Накачка₂ с отрицательным $\tau \approx 0$, в резонаторе возбуждена резонансная мода, при этом свойства материала $\varepsilon(t)$ в это же время изменяются присут-

ствующей оптической накачкой (оранжевые кривые рис. 4.20(а),(б) и 4.21(б)); таким образом, мода преобразуется изменяющимся во времени параметром диэлектрической проницаемости материала $\varepsilon(t)$, и осцилляции, указывающие на преобразование частоты, появляются в спектре пропускания (оранжевая кривая на рис. 4.21(б) и осцилляции в этой временной области на рис. 4.22).

3. Накачка с $\tau > 0$, зонд прибывает вскоре после того, как накачка изменила свойства материала (красные кривые рис. 4.20(а),(б) и 4.21(б)), и в коэффициенте пропускания наблюдаются как синее смещение, так и уменьшение добротности резонанса (красная кривая на рис. 4.21(б)). Штриховыми кривыми соответствующего цвета показаны изменения диэлектрической проницаемости материала $\varepsilon(t)$ под действием накачки в этих трех случаях.

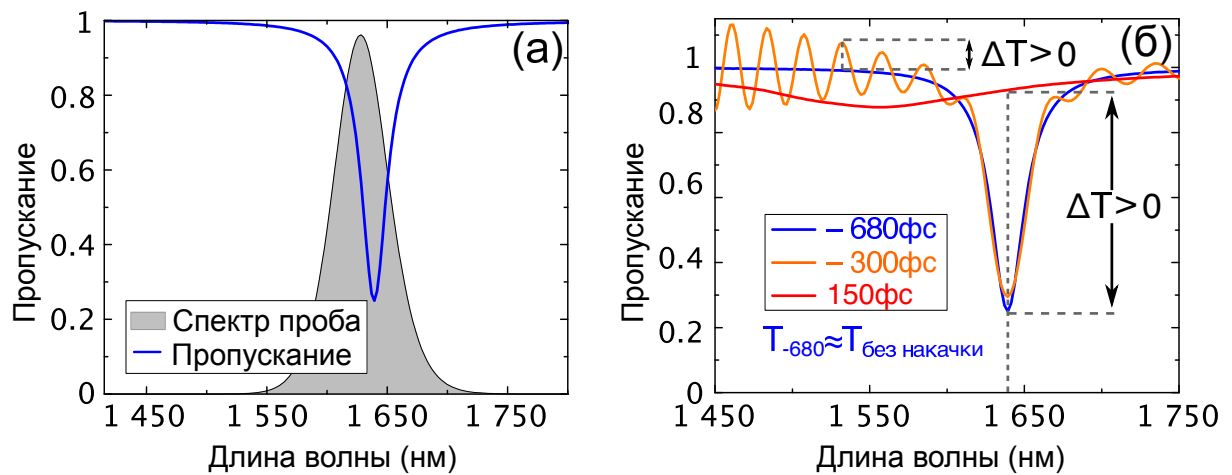


Рисунок 4.21 — Результаты расчётов по теории связанных мод. (а) Спектр пропускания метаповерхности (центральная длина волны резонанса $\lambda_R = 1640$ нм) в отсутствие оптической накачки (синяя кривая) и спектр зондирующего импульса (серая область). (б) Спектры пропускания метаповерхности для трех основных случаев при наличии оптической накачки. Синяя кривая (время задержки накачки и зонда $\tau \ll \sigma_{\text{зонд}}$). Оранжевая кривая (с отрицательным временем задержки $\tau \approx 0$), мода преобразуется изменяющимся во времени параметром диэлектрической проницаемости материала $\varepsilon(t)$, и осцилляции, указывающие на преобразование частоты, появляются в спектре пропускания. Красная кривая ($\tau > 0$, зонд прибывает вскоре после того, как накачка изменила свойства материала).

Одинокная резонансная мода, возбуждаемая коротким импульсом, описывается теорией СМТ следующим уравнением (а ее модуль, рассчитанный для трех случаев представлен на рис. 4.20(б)):

$$\dot{a}(t) + [i\omega(t) + \gamma^{nr}(t) + \gamma^r]a(t) = \sqrt{\gamma^r}s(t). \quad (4.3)$$

Здесь $a(t)$ — комплексная амплитуда возбуждаемой моды, ω — резонансная частота моды, γ^r и γ^{nr} — излучательный и безызлучательный вклады в скорость затухания моды, а $s(t)$ — возбуждающий импульс. При этом к свойствам моды необходимо добавить временную зависимость ($\gamma^{nr}(t)$ и $\omega(t)$) для того, чтобы имитировать эффекты накачки, под действием которой генерируются свободные носители и изменяются свойства полупроводниковой среды в ходе эксперимента. В качестве возбуждающего импульса был использован импульс функции sech^2 : $s(t) = \text{sech}^2((t)/\sigma_{\text{probe}}) \exp[-i\omega_{\text{probe}}t]$, где с помощью σ_{probe} можно изменять ширину импульса, а с помощью ω_{probe} — центральную резонансную частоту. Ширина спектра зонда $\sigma = 50$ нм также принимается близкой к экспериментальному значению $\sigma = 55$ нм.

Зависимость резонансной моды от времени определяется с учетом следующего предположения. Поскольку для возбуждения свободных носителей в германиевой метаповерхности используется короткий импульс накачки с профилем гауссовой формы, то изменение диэлектрической проницаемости германия $\varepsilon(t)$ можно аппроксимировать функцией ошибок:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_{-\infty} + \Delta\varepsilon/2[\text{erf}[(t + \tau)/\sigma_{\text{pump}}] + 1], \quad (4.4)$$

где $\varepsilon_{-\infty}$ — диэлектрическая проницаемость без излучения накачки, $\Delta\varepsilon$ — полное изменение, индуцированное в материале, τ — время прихода накачки и σ_{pump} — длительность импульса накачки. При этом стоит отметить, что в модели не учитываются процессы релаксации свободных носителей, так как характерное время релаксации больше исследуемого. Предполагая, что резонансная частота моды зависит линейно от диэлектрической проницаемости, для ω можно написать такое же уравнение, подставляя невозмущенную резонансную частоту $\omega_{-\infty}$ вместо $\varepsilon_{-\infty}$ и изменение резонансной частоты $\Delta\omega$ вместо $\Delta\varepsilon$:

$$\omega(t) = \omega_{-\infty} + \frac{\Delta\omega}{2} \left[\text{erf} \left(\frac{t + \tau}{\sigma_{\text{pump}}} \right) + 1 \right]. \quad (4.5)$$

Поскольку относительное изменение показателя преломления а-Ge мало, мы предположили, что профиль моды остается в значительной степени неиз-

менным, а γ_r не претерпел существенных изменений в процессе, поэтому мы принимаем его постоянным.

Кроме изменения резонансной частоты, свободные носители также добавляют еще и поглощение, которое приводит к изменению γ^{nr} . Но поскольку диэлектрическая проницаемость и поглощение, как правило, имеют одинаковую зависимость от концентрации свободных носителей, можно предположить, что $\gamma^{nr}(t)$ ведет себя так же, как $\omega(t)$: $\gamma^{nr}(t) - \gamma_{-\infty}^{nr} = \xi(\omega(t) - \omega_{-\infty})$, где $\gamma_{-\infty}^{nr}$ — невозмущенная безызлучательная скорость затухания, а ξ — числовой коэффициент, определяемый материалом резонатора. Поскольку точное значение ξ для a-Ge неизвестно, то были проведены дополнительные расчеты для различных значений от $\xi = 0,5$ до 2. И было обнаружено, что значение $\xi = 1$ дает результаты, наиболее близкие к экспериментальным измерениям. В силу того, что относительное изменение показателя преломления a-Ge мало, можно предположить, что профиль моды практически не модифицируется, γ^r существенно не меняется и может быть взято постоянным.

Уравнение 4.3 было численно решено с использованием явного метода Рунге-Кутты, реализованного в функции NDSolve коммерческого вычислительного пакета Wolfram Mathematica. Используемые в расчетах параметры были подобраны близкими к экспериментальным: $\omega_{-\infty} = 1150$ ТГц ($\lambda_{-\infty} = 1640$ нм), $\Delta\omega = 63$ ТГц ($\Delta\lambda = 100$ нм), $\sigma_{\text{probe}} = \sigma_{\text{pump}} = 50$ фс, $\omega_{\text{probe}} = 1158$ ТГц ($\lambda = 1628$ нм, для линейных расчетов) и 1171 ТГц ($\lambda = 1610$ нм, для нелинейных расчетов), $\gamma_{-\infty}^{nr} = 4.5$ ТГц, $\gamma^r = 4,5$ ТГц (соответствует $Q = 65$ для линейных расчетов) и 8 ТГц (соответствует $Q = 36,6$ для нелинейных расчетов). Были использованы две разные скорости затухания и центральные длины волн из-за разных интенсивностей зонда и длин волн, используемых в линейных и нелинейных экспериментах. Из-за сложности измерения спектров третьей гармоники в нелинейных экспериментах использовался зонд большей интенсивности при $\lambda = 1610$ нм, приводящий к генерации свободных носителей в германии и увеличивающий безызлучательные потери, таким образом изменяя добротность резонанса. В линейных экспериментах используется гораздо более слабый зонд на $\lambda = 1628$ нм, что не приводит к заметным изменениям добротности резонанса. Для имитации эксперимента “накачка-зондирование” время прихода накачки τ из уравнения (4.5) варьируется в пределах от $\tau = -1000$ фс до $\tau = 500$ фс.

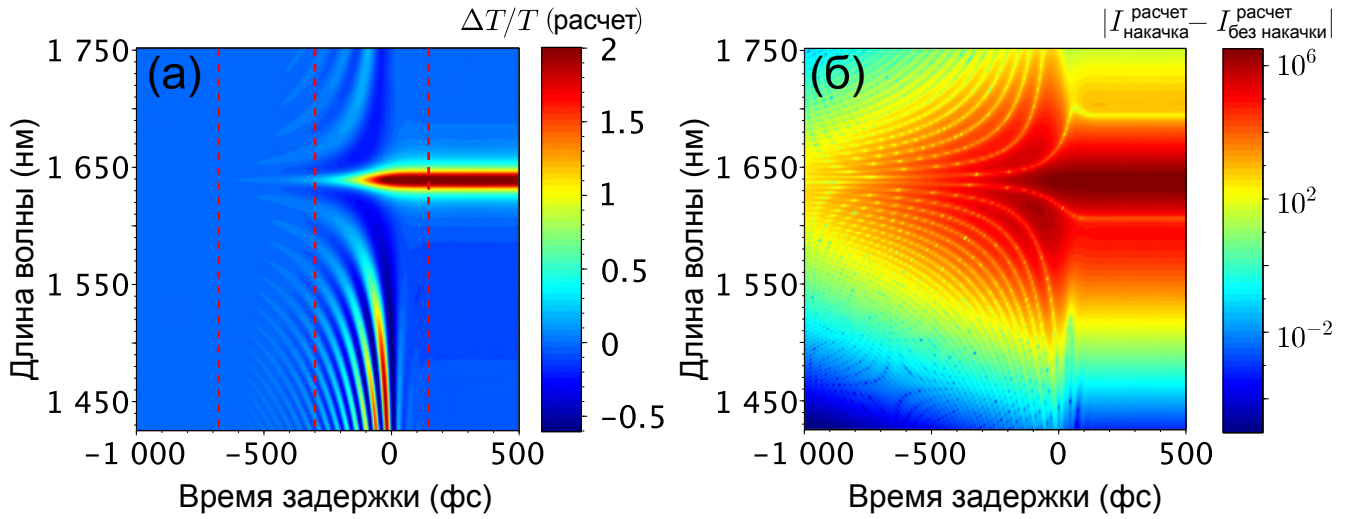


Рисунок 4.22 — Результаты расчётов по теории связанных мод. (а) 3Д-изображение дифференциального коэффициента пропускания для метаповерхности с центральной длиной волны резонансом $\lambda_R = 1640$ нм. (б) 3Д-изображение модуля разности между спектром зонда при излучении накачки и без нее.

При этом свет, излучаемый модой, можно получить, используя следующее уравнение: $s_r(t) = s(t) - \sqrt{\gamma^r} a(t)$. После чего можно получить моделируемый спектр пропускания $I^{\text{simul}}(\omega)$ выполнив преобразование Фурье: $I^{\text{simul}}(\omega) = \text{abs}[F[s_r(t)]]^2$, где F — преобразование Фурье. Результирующие дифференциальные спектры пропускания в зависимости от времени задержки между зондом и накачкой показаны на рис. 4.22(а). Выполняя такой же расчет без каких-либо временных изменений в резонансной моде, можно получить спектр для случая, когда накачка отсутствует (пропускание в этом случае показано синей кривой на рис. 4.21), таким образом можно построить теоретическое значение, представленное для экспериментальных результатов $|I_{\text{pump}}^{\text{simul}} - I_{\text{no pump}}^{\text{simul}}|$ (рис. 4.22б).

Для того, чтобы смоделировать нелинейный отклик времяпеременной метаповерхности, можно действительную часть комплексной амплитуды резонансной моды $a(t)$ возвести в третью степень: $I^{\text{THG}}(\omega) = \text{abs}[F(\text{Re}[a(t)]^3)]^2$, и таким образом получить рассчитанный сигнал генерированной третьей гармонике. Несмотря на то, что данный подход не учитывает некоторые важные эффекты, влияющие на нелинейный отклик в системе, он дает хорошую оценку преобразования частоты в спектре генерации третьей гармонике.

Нормированные расчетные нелинейные спектры показаны на рис. 4.23. Спектры для нескольких задержек накачка-зонда представлены на рис. 4.24(а)

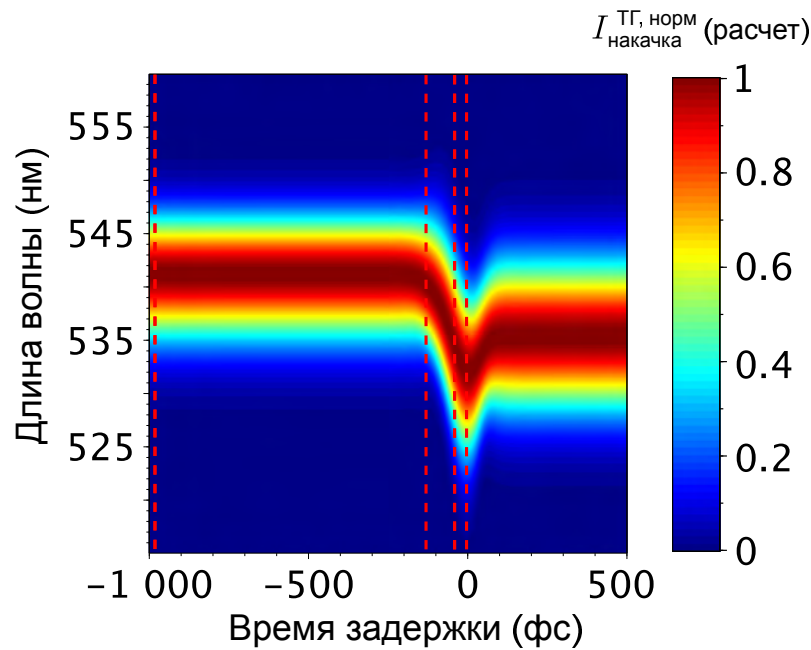


Рисунок 4.23 — Смоделированный нормированный сигнал третьей гармоники, генерируемый зондирующим импульсом при излучении накачки. Красные штриховые линии обозначают времена задержек для сечений спектров ТГ на рис. 4.24(а).

в логарифмическом масштабе, где хорошо заметно синее смещение спектра по мере приближения задержки к нулю. Аппроксимируя рассчитанные спектры ТГ функцией sech^2 , можно оценить ширину и центральную длину волны спектров, эти результаты показаны на рис. 4.24(б,в).

Рисунок 4.22, демонстрирующий рассчитанный дифференциальный коэффициент пропускания для такой резонансной моды, очень хорошо согласуется с экспериментальным результатом (рис. 4.17).

Область с высокими значениями модуляции (темно-красная область на коротких длинах волн) возникает из-за деления на небольшие значения невозмущенного спектра, который может плохо описывать экспериментальный спектр зондирующего импульса на спектральных “хвостах”. Эта область хорошо видна без нормировки на 3Д-изображении модуля разности спектра зонда при излучении накачки со спектром зонда без накачки, построенном в логарифмическом масштабе (рис. 4.22(б)). Соответствующий нормированный сигнал третьей гармоники показан на рис. 4.23. Сигнал ТГ демонстрирует синий сдвиг на фемтосекундном масштабе, как это было получено в эксперименте. Красные штриховые линии обозначают времена задержек для сечений спектров ТГ на рис. 4.24(а) $\tau = -1000, -130, -40$ и $-2,5$ фс. Эти поперечные сечения спектров ТГ при

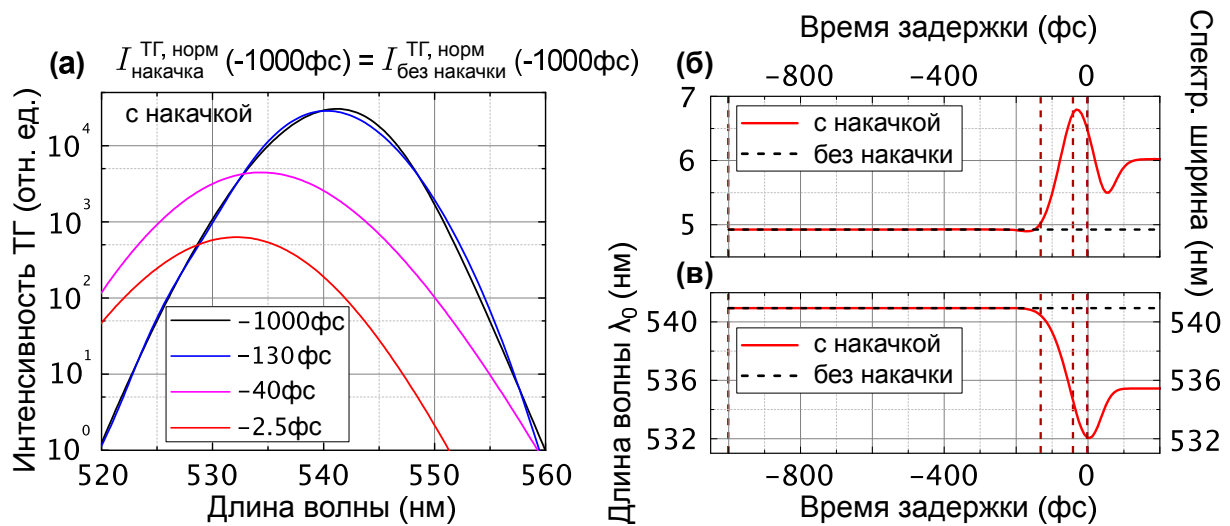


Рисунок 4.24 — Результаты расчётов по теории связанных мод. (а) Спектры

ТГ при излучении накачки при некоторых задержках τ . При этом

$$I_{\text{накачка}}^{\text{ТГ}}(-1000\text{фс}) = I_{\text{без накачки}}^{\text{ТГ}}(-1000\text{фс}).$$

(б) Результат аппроксимации спектров ТГ функцией sech^2 с уравнением 4.2 для ширины спектра σ и (в) центральной длины волны λ_0 при излучении накачки (красные кривые) и без накачки (штриховые черные горизонтальные прямые) как функция времени задержки между импульсами накачка-зонд. Красные вертикальные штриховые прямые обозначают времена задержек для сечений на панели (а).

излучении накачки также показывают и уширение спектров, увеличивающееся при увеличении времени задержки при $\tau < 0$. Спектр ТГ с излучением накачки при задержке $\tau = -1000$ фс (черная кривая) совпадает со спектром ТГ без накачки в построенной области. Временная динамика для ширины спектра σ и центральной длины волны λ_0 была получена путем аппроксимации функцией sech^2 с уравнением 4.2. На рис. 4.24(б,в) продемонстрированы полученные значения для ширины спектра σ и центральной длины волны λ_0 при излучении накачки (красные кривые) и без накачки (штриховые черные горизонтальные прямые) как функция времени задержки между импульсами накачка и зонд. Красные вертикальные штриховые прямые обозначают времена задержек $\tau = -1000, -130, -40$ и $-2,5$ фс для сечений на панели (а) рис. 4.24. Синий сдвиг достигает максимального значения порядка 10 нм, а уширение составляет около 40%, что хорошо согласуется с экспериментальными значениями.

Также были проведены расчеты для резонансных мод с различными добротностями. Было обнаружено, что фемтосекундная динамика ТГ при отрицательном времени задержки τ между импульсами накачка-зонд может быть до-

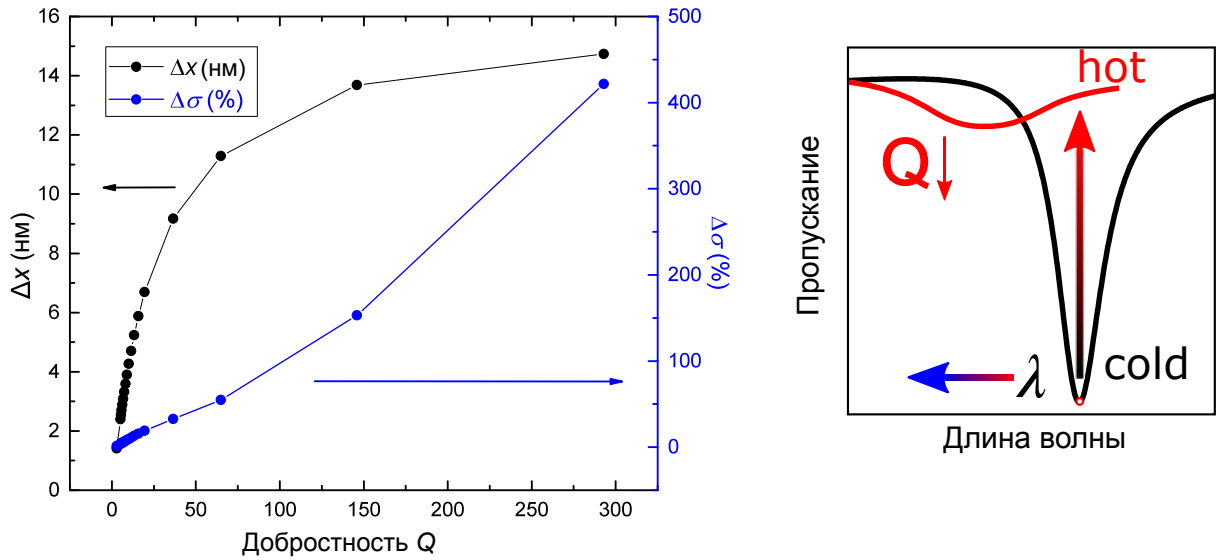


Рисунок 4.25 — Результаты аппроксимации спектральной ширины σ и центральной длины волны λ_0 спектров ТГ гауссовым импульсом для мод с разной добротностью Q . Здесь

$$\Delta x = \lambda_0(-1000\text{фс}) - \lambda_0(-2.5\text{фс}) \text{ и } \Delta\sigma = \sigma(-1000\text{фс}) - \sigma(-2.5\text{фс}).$$

стигнута даже для системы с низкой добротностью около $Q = 3$ (рис. 4.25), но величина изменений (например смещений центральной длины волны спектра λ_0 и изменение ширины спектра третьей гармоники σ), происходящих в сигнале третьей гармоники, будет довольно небольшая и таким образом труднее регистрируемая в эксперименте. Наиболее выраженный синий сдвиг Δx и уширение спектра $\Delta\sigma$ ТГ наблюдается для мод с высокой добротностью. При этом сдвиг Δx соответствует наибольшему сдвигу и определяется как разница между положением центральной длины волны спектра ТГ, на больших временах задержки τ до прихода накачки, когда спектр ТГ соответствует невозмущенному состоянию, и положением центральной длины волны спектра ТГ на отрицательных временах задержки вблизи нуля: $\Delta x = \lambda_0(\tau = -1000\text{фс}) - \lambda_0(\tau = -2.5\text{фс})$ и $\Delta\sigma = \sigma(\tau = -1000\text{фс}) - \sigma(\tau = -2.5\text{фс})$. А уширение $\Delta\sigma$ определяется соответственно как разница между шириной спектра ТГ, на больших временах задержки $\tau = -1000$ фс, и шириной спектра ТГ на временах задержки вблизи нуля: $\Delta\sigma = \sigma(\tau = -1000\text{фс}) - \sigma(\tau = -2.5\text{фс})$.

4.4.4 Анализ результатов эффекта преобразования частоты в металповерхностях с внутриимпульсным изменением диэлектрической проницаемости

Рис. 4.18 для экспериментальных данных, а также рис. 4.23 для результатов теории СМТ с нормированным 3D-изображением интенсивности третьей гармоники были получены путем нормировки спектра для каждого времени задержки накачки-зонда на его максимум. Область с небольшим и зашумленным сигналом вблизи нулевой задержки на рис. 4.18(а), препятствующая наглядной нормализации, имеет искусственно заниженные значения и показана заштрихованным белым прямоугольником. Нормированная интенсивность ТГ использовалась для более четкого представления синего сдвига сигнала, поскольку из-за уменьшения значения сигнала с увеличением временной задержки накачки-зонда и из-за нестабильности зондирующего лазера построение графика без нормализации затрудняет визуализацию полученного результата. Но для более ясного понимания роли временной динамики наблюдаемого синего сдвига ТГ, более четкого представления и анализа экспериментальных результатов, в том числе доказательства того, что паразитный сигнал не вносит качественных изменений в спектры ТГ вблизи нулевой задержки, были построены ненормированные спектры. Трехмерные изображения интенсивности третьей гармоники в зависимости от задержки накачки-зонда без нормировки показаны на рис. 4.26. Экспериментальные спектры сигнала ТГ, генерируемого импульсом зонда без накачки, демонстрируют некоторую нестабильность интенсивности от задержки к задержке вместо ожидаемой постоянной зависимости для любой задержки накачки-зонд. Это непостоянство связано с изменением основного луча зонда, малые флуктуации которого приводят к заметным изменениям нелинейного сигнала. Дрожание изображения интенсивности от задержки к задержке при далеких от нуля отрицательных значениях задержки, наблюдаемое в случаях без накачки и накачки, достаточно похоже друг на друга и позволяет сделать вывод, что такой эффект не связан с времяпеременной природой системы. Сигнал ТГ под действием излучения накачки демонстрирует заметный синий сдвиг и значительное снижение интенсивности при отрицательных задержках вблизи нуля, по сравнению со случаем без накачки. Модель СМТ (рис. 4.26(в)), ко-

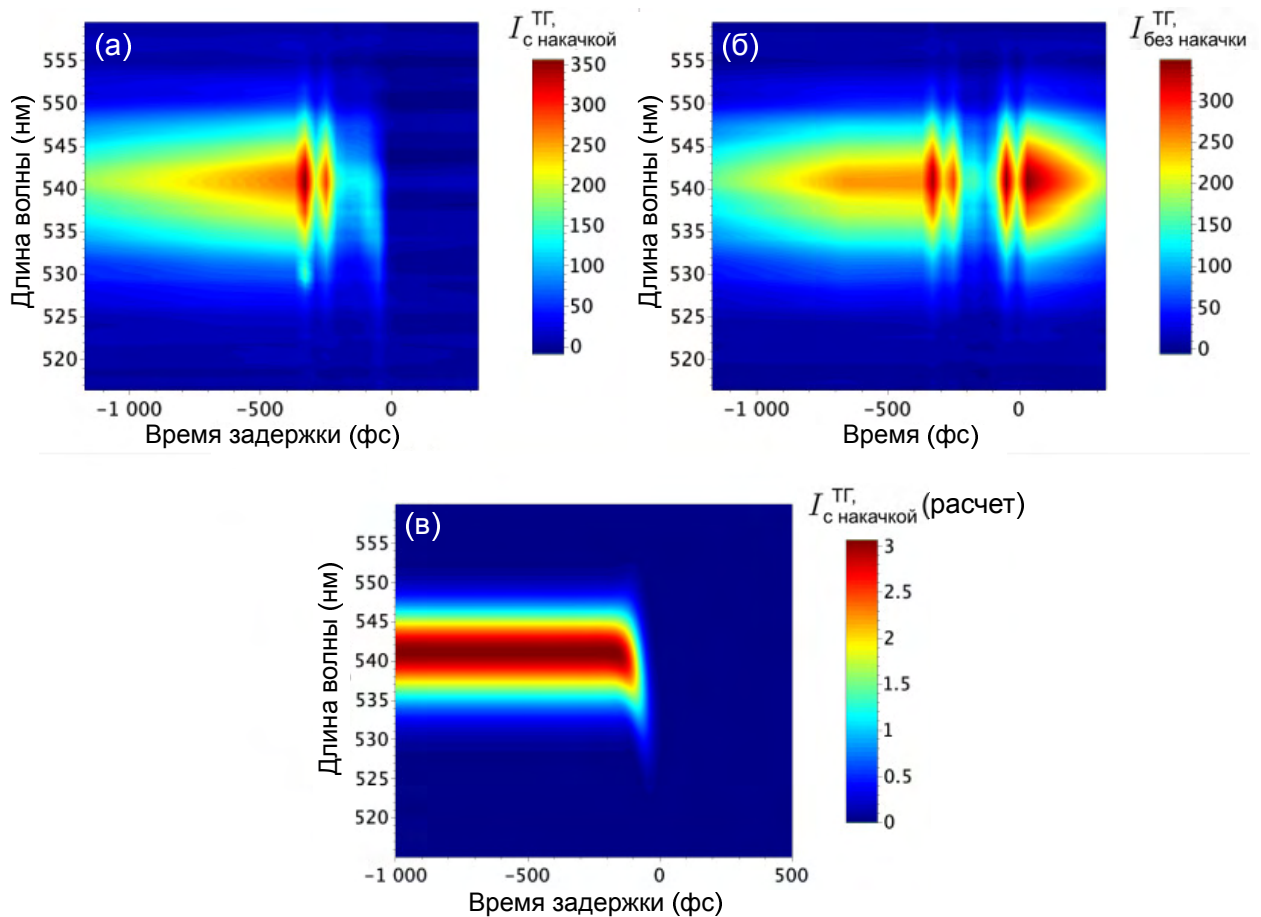


Рисунок 4.26 — (а) Экспериментальные результаты сигнала третьей гармоники, генерируемой зондирующим импульсом в времяпеременной метаповерхности Ge при излучении накачки (а) как функция времени задержки между импульсами накачка-зонда и без накачки (б) как функция времени. (в) Смоделированный сигнал третьей гармоники, генерируемой зондирующим импульсом в метаповерхности с центральной длиной волны резонанса $\lambda_R = 1640$ нм при излучении накачки как функция времени задержки между импульсами накачка и зонд.

торая не включает в себя определенные неидеальные экспериментальные условия, демонстрирует ярко выраженный синий сдвиг и постепенное уменьшение интенсивности при приближении к нулю, подобно тому, что наблюдается в эксперименте. Процесс нормировки не влияет на результаты синего сдвига, но делает представление более наглядным за счет отсутствия паразитного эффекта нестабильности интенсивности, усложняющего представление данных, но не относящегося к эффекту синего сдвига. Кроме того, на рис. 4.19 показаны экспериментальные спектры ТГ без нормировки: $\tau = -130$ фс и $\tau = -50$ фс при наличии излучения накачки. Спектр ТГ при $\tau = -130$ фс качественно схож со

всеми спектрами для более отрицательных задержек и со спектрами без излучения накачки. Сигнал ТГ при $\tau = -50$ фс демонстрирует синий сдвиг, заметный даже без аппроксимации положения пика.

Основные признаки времяпеременности в системе, такие как центральная длина волны и ширина спектра третьей гармоники, не связаны с нестабильностью интенсивности зондирующего луча. Кроме того, характерные синие сдвиги и уширения спектра ТГ для эксперимента, вызванные изменяющейся во времени метаповерхностью, больше, чем сдвиги и уширения спектров третьей гармоники, связанные с флуктуациями зондирующего луча. Дребезжание спектров ТГ без излучения накачки (рис. 4.26(б)) показывают характерные изменения спектра, вызванные нестабильностью зонда. Основные и наиболее характерные параметры эксперимента хорошо согласуются с построенной теорией, таким образом позволяя утверждать, что расхождение между интенсивностями не влияет на полученные результаты и выводы данной главы.

Оптимизация условий для максимизации эффектов преобразования частоты в полупроводниковых метаповерхностях

Были проведены измерения преобразования частоты в линейном случае для метаповерхностей из Ge с близкими центральными длинами волн резонансов, но с добротностями, отличающимися примерно в 2 раза. Спектры пропускания представлены на рис. 4.27(а), при этом черной кривой соответствует добротность $Q = 65$, а красной кривой — $Q = 25$. Для обеих метаповерхностей были получены 3Д-изображения дифференциального коэффициента пропускания в зависимости от времени задержки между импульсами “накачка-зондирование” и длины волны зондирующего импульса (рис. 4.27(б,в)). Для более добротной метаповерхности наблюдаются более четкие и амплитудные осцилляции при отрицательных временах задержки и значительно большие значения модуляции пропускания.

Для добротной метаповерхности с резонансом $\lambda_R = 1640$ нм были также проведены нелинейные измерения при различных фундаментальных длинах волн зондирующего импульса со значениями, лежащими в окрестности цен-

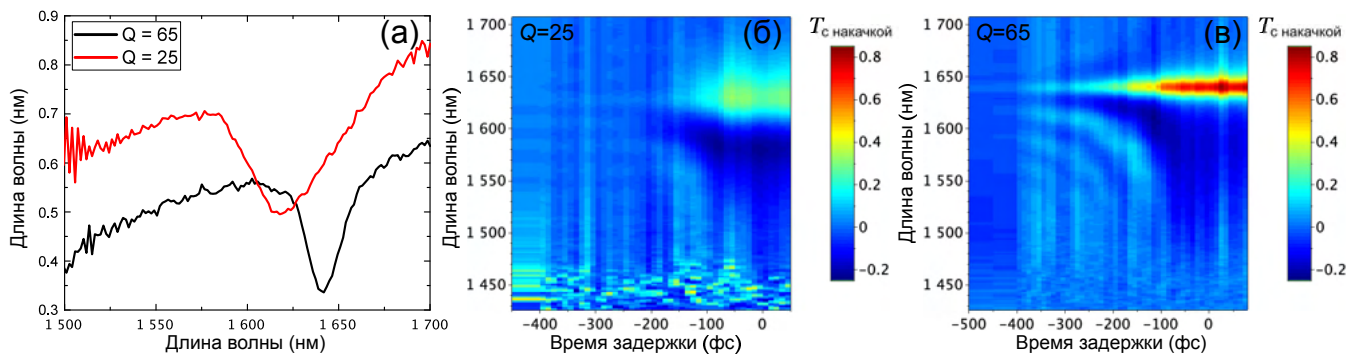


Рисунок 4.27 — (а) Спектры пропускания для метаповерхностей с добротностями $Q = 25$ (черная кривая) и $Q = 65$ (красная кривая).

3D-изображение дифференциального коэффициента пропускания в зависимости от времени задержки между импульсами накачка-зонд и длины волны зондирующего импульса для добротности $Q = 25$ (а) и $Q = 65$ (б).

тральной длины волны резонанса. При этом при измерениях добротность составила $Q = 35$, так как была использована достаточно высокая интенсивность зондирующего импульса для увеличения сигнала ТГ, из-за чего увеличились безызлучательные потери на свободных носителях, генерируемых в Ge, приводящие к значительному уменьшению добротности с 65 до 35. Результаты измерений представлены на рис. 4.28 для длин волн 1610 и 1670 нм при наличии излучения накачки и без накачки при времени задержки между импульсами накачка-зонд $\tau = -50$ фс. Для длины волны 1610 нм, то есть немного краснее центральной длины волны резонанса, наблюдается увеличение сигнала ТГ на левом краю спектра при наличии накачки (сплошная красная кривая) по сравнению со спектром ТГ без накачки (пунктирная красная кривая).

Данные результаты согласуются с теоретическими расчетами методом связанных мод для различных длин волн (рис. 4.29).

Значение интенсивности ТГ для красной кривой (время задержки между импульсами накачка-зонд $\tau = -40$ фс) на рис. 4.29(а) при длине волны 520 нм в 2 раза больше значения при этой же длине волны на рис. 4.29(б). Такая разница в сигнале может быть существенна при экспериментальных измерениях, где небольшие значения сигнала ТГ лежат на уровне шумов. Были также проведены расчеты для различных длин волн для большей добротности $Q = 65$ (рис. 4.29(в,г)). При этом значения интенсивности ТГ (при наличии излучения накачки) на левом краю спектра для задержек $\tau = -40$ и -2.5 фс незначительно изменились по сравнению с добротностью $Q = 36$, а разница

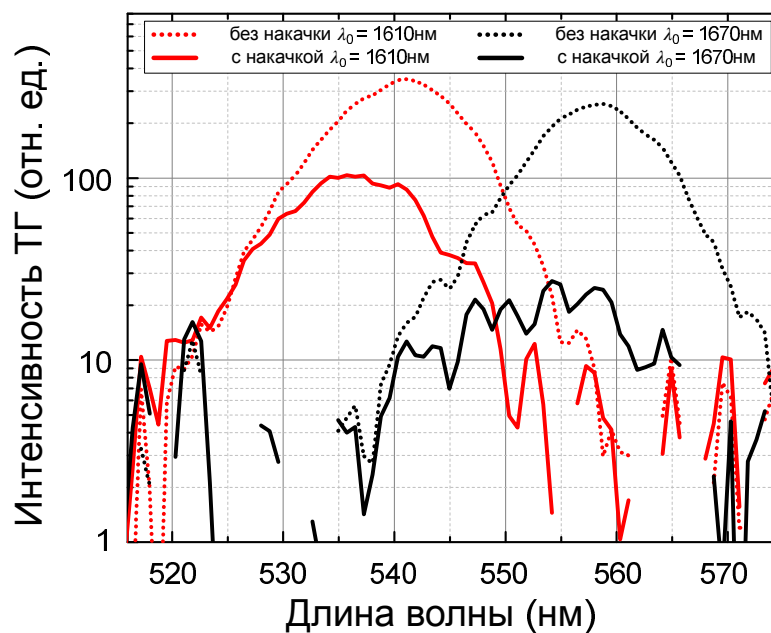


Рисунок 4.28 — Экспериментальные спектры ТГ при наличии излучения накачки (сплошные кривые) и без накачки (пунктирные кривые) при времени задержки между импульсами накачка-зонд $\tau = -50$ фс для падающего зондирующего излучения с центральной длиной волны (а) $\lambda_0 = 1610$ нм и (б) $\lambda_0 = 1670$ нм.

значений сигнала ТГ при накачке и без накачки (на рис. 4.29 синяя и зеленая кривые совпадают) увеличилась. Для $Q = 65$ также выросли значения синего сдвига для ТГ и ширины спектра (что хорошо видно при аппроксимации этих спектров, рис. 4.25). Таким образом, при хорошем разрешении, высокой чувствительности и высоком динамическом диапазоне регистрирующей системы, когда шумы находятся на достаточно низком уровне, использование длины волны зондирующего импульса, близкой к центральной длине волны резонанса, дает более контрастный результат спектров ТГ при наличии накачки и без нее, но с меньшими значениями на коротковолновом краю спектров.

Для дальнейшей оптимизации условий, при которых наблюдается значительные эффекты преобразования частоты, были проведены расчеты по теории связанных мод для различных форм импульсов в линейном и нелинейном случае: с лоренцевой формой, с формой функции sech^2 , гауссовой формой линии при длительности 50 фс и с гауссовой формой линии с длительностью 70 фс (рис. 4.30). Для импульса с гауссовой формой линии и длительностью 70 фс разницы в сигнале (отношение сигнала с накачкой и без накачки) на коротковолновом краю (см. 1430 нм и 515 нм соответственно) для линейного так и для

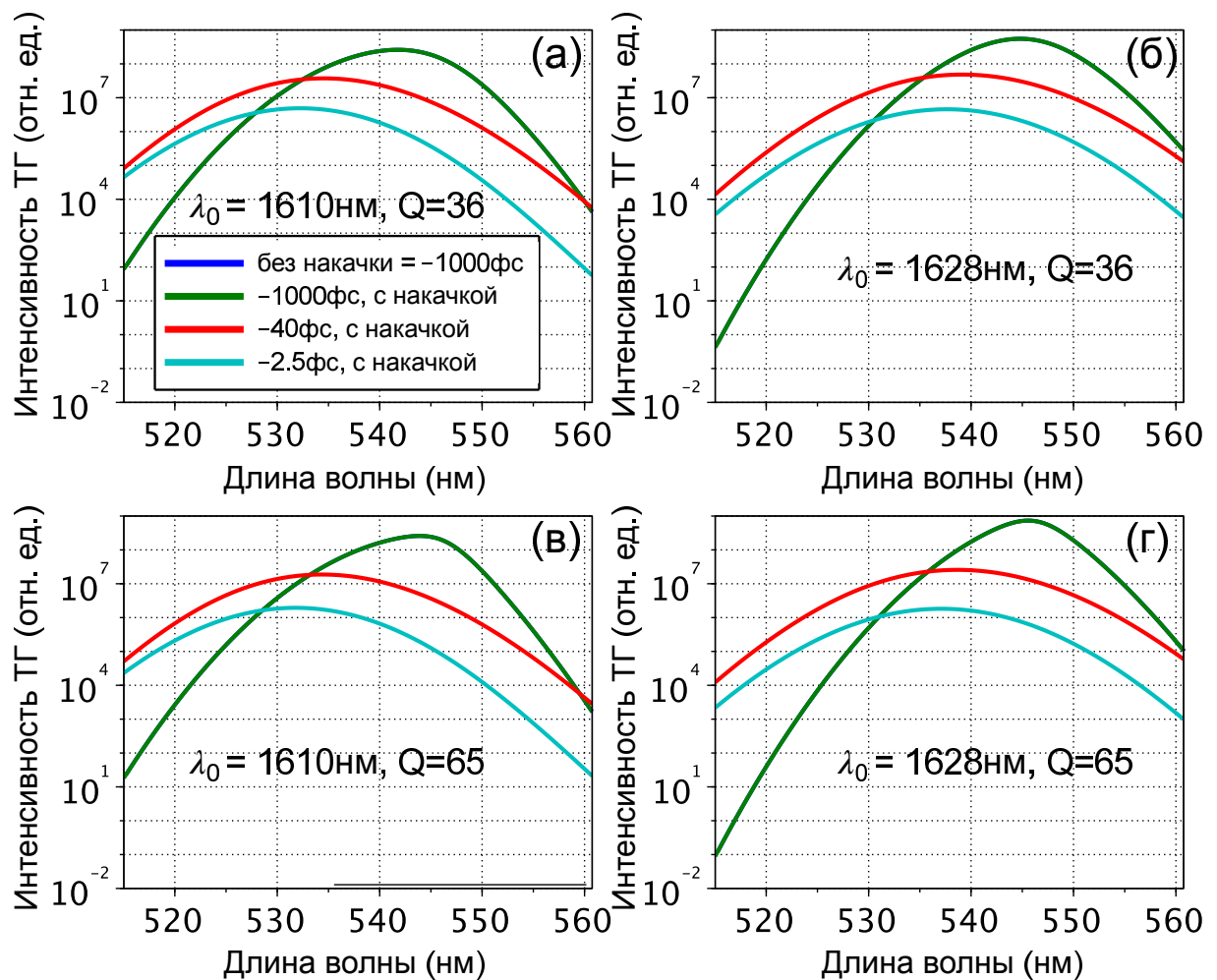


Рисунок 4.29 — Модельные спектры ТГ при наличии излучения накачки и без накачки (синяя кривая совпадает с зеленой кривой) при временах задержки между импульсами накачка-зонд $\tau = -1000, -40, -2.5$ фс для падающего зондирующего излучения с центральной длиной волны $\lambda_0 = 1610$ нм (а,в) и $\lambda_0 = 1628$ нм (б,г) для добротности $Q = 36$ (а,б) и добротности $Q = 65$ (в,г).

нелинейного случаев является наибольшей. Для наиболее затянутого по времени импульса с лоренцевой формой наблюдаемая разница интенсивности, прошедшей метаповерхность, и спектров ТГ при наличии накачки и без нее является минимальной по сравнению с другими формами импульсов (рис. 4.30(а,д), на всех графиках синяя кривая, соответствующая случаю без накачки совпадает с зеленой кривой — с накачкой при большом отрицательном времени задержки). Разница интенсивности, прошедшей метаповерхность, и спектров ТГ при наличии накачки и без нее увеличивается по мере уменьшения “хвостов” спектра импульса и достигает наибольшего значения для импульса с меньшим сигналом на “хвостах”, а именно для гауссовой формой линии и длительностью 70 фс. Таким образом, для максимизации эффектов преобразования частоты могут

быть использованы спектральные фильтры для обрезания “хвостов” импульса на красном краю спектра. Если взять импульсы разной формы с одинаковой $FWHM$ по времени (на рис. 3.8(а) показан случай для гауссовой формы линии и $sech^2$ с одинаковой $FWHM = 100$ фс, $sech^2$ имеет более длинные “хвосты”, то есть более затянута по времени), то в спектральном пространстве лоренцевский профиль будет иметь более узкий спектр, а гауссовский — самый широкий, но при этом на краях гауссовского спектра будут наиболее быстро спадающие “хвосты”.

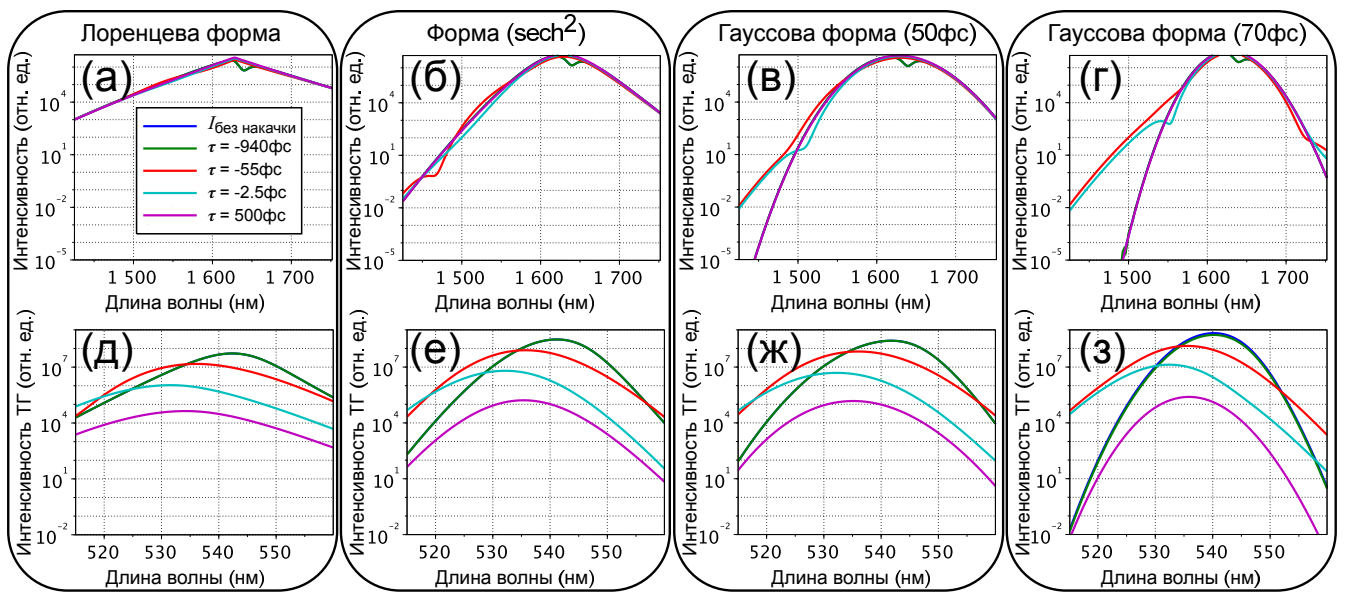


Рисунок 4.30 — Модельные спектры пропускания (а-г) и спектры ТГ (д-з) при наличии излучения накачки и без накачки (синяя кривая, на всех графиках кроме панели (з) полностью совпадает с зеленой кривой — с накачкой на больших временах задержки) при временах задержки между импульсами накачка-зонд $\tau = -940, -55, -2.5$ и 500 фс для добротности $Q = 65$ для импульсов с различным профилем спектральной линии: лоренцевская форма (а,д), форма функции $sech^2$ (б,е), гауссова форма линии с длительностью $\sigma = 50$ фс (в,ж) и с гауссовой формой линии с длительностью $\sigma = 70$ фс (г,з).

Для анализа синего смещения ТГ при положительных временных задержках была использована модель СМТ без временной зависимости свойств моды: коэффициента затухания γ и центральной частоты ω_0 — которая описывает поведение структуры в условиях отсутствия накачки. Поскольку временная динамика свойств среды отсутствует, то этот случай описывает отклик “статической” структуры и по своей природе аналогичен ситуации после воздействия накачкой, исследованной в главе 3. Варьируя начальный коэффициент затуха-

ния γ и центральную частоту $\omega_0 = \omega_{-\infty}$ (ур. 4.5), можно смоделировать спектры ТГ, генерируемые различными пассивными метаповерхностями со смещенными друг относительно друга резонансами. При таком подходе моделирования были использованы три типа метаповерхностей с разными начальными резонансами: 1-й — метаповерхность с резонансом на 1640 нм (спектр пропускания показан синей кривой на рис. 4.21), 2-й — метаповерхность со смещенным на 100 нм резонансом в синюю область и с более низкой добротностью по сравнению с первой метаповерхностью (аналог конечного состояния модифицированной метаповерхности при положительных временных задержки $\tau > 0$: при таких задержках зонд прибывает вскоре после того, как под действием накачки происходят изменения в полупроводниковом материале; таким образом, зонд взаимодействует с материалом, диэлектрическая проницаемость которого уже изменена, и в спектре пропускания метаповерхности наблюдается как синее смещение, так и меньшая добротность резонанса, спектр пропускания показан красной кривой на рис. 4.21) и 3 — метаповерхность, которая является промежуточным случаем первой и второй метаповерхностей, резонанс со смещением в синюю область на 50 нм, меньшей добротностью по сравнению с первой метаповерхностью и более высокой добротностью по сравнению со второй. Спектры ТГ “статических” метаповерхностей (черная, синяя и фиолетовая кривые) и спектр ТГ для 1-го типа метаповерхности с резонансом на 1640 нм под действием излучения накачки для времени задержки накачка-зонд $\tau = 50$ фс (красная кривая) представлены на рис. 4.31. При этом излучение зонда, как и в случае времяпеременной метаповерхности, было взято с центральной длиной волны $\lambda_0^{\text{зонд}} = 1610$ нм.

Сдвиги спектров третьей гармоники относительно друг друга при одном и том же зондирующем излучении связаны с усилением локального поля в резонансе и, таким образом, смещением положения пика к центру резонанса (см., например, рис. 3а в работе [145]). Наибольшее смещение положения спектра третьей гармоники относительно утроенной основной частоты $3\omega_0$, при этом положение центра спектра ТГ $\lambda_{\text{ТГ}}^{\text{ц}} = \frac{\lambda_0=1610}{3} = 536$ нм, наблюдается для наиболее добротного резонанса из-за большего усиления локального поля (черная кривая на рис. 4.31). Красная кривая демонстрирует совершенно такое же смещение центральной длины волны спектра ТГ, как и “статическая” метаповерхность (фиолетовая кривая), но из-за динамического смещения основного резонанса из-за времяпеременных свойств структуры интенсивность ТГ на несколько по-

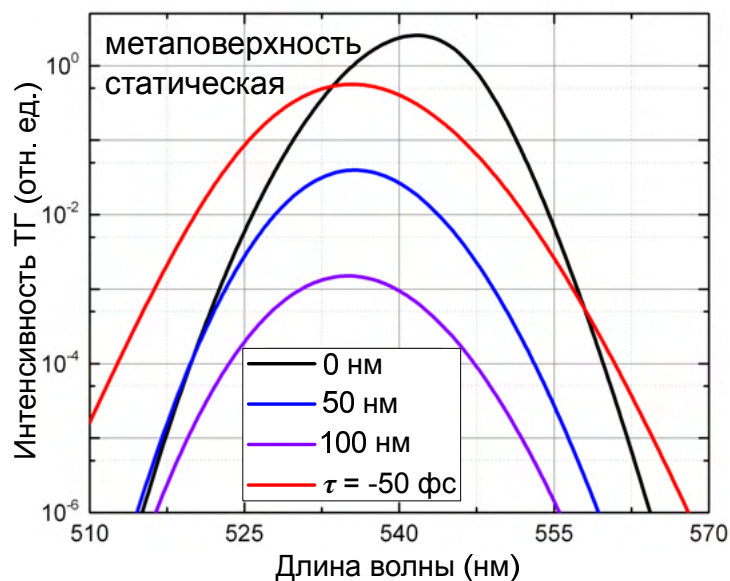


Рисунок 4.31 — Спектры ТГ без накачки метоповерхности с резонансом 1640 нм (черная кривая) и метоповерхности с модифицированными резонансами со смещенной резонансной центральной длиной волны на 50 нм (синяя кривая) и 100 нм (фиолетовая кривая). Спектры ТГ времяпеременной метоповерхности с резонансом на 1640 нм при освещении накачки при временах задержки накачка-зонд $\tau = -50$ фс (красная кривая).

рядков выше, кроме того, в спектре третьей гармоники появляются новые компоненты. Поскольку в данной модели СМТ не учитываются процессы релаксации свободных носителей заряда, а изменение диэлектрической проницаемости при наличии излучения накачки моделируется функцией ошибок (уравнение 4.4), то при положительных временах задержки τ положение максимума волны третьей гармоники не возвращается к исходному положению пика третьей гармоники. Исходные спектры третьей гармоники для изменяющейся во времени времяпеременной метоповерхности при излучении накачки для больших отрицательных задержек между накачкой и зондом $\tau \ll 0$ идентичны случаю “без накачки” и “статической” метоповерхности с резонансом на 1640 нм. Конечные спектры третьей гармоники для изменяющейся во времени метоповерхности при наличии накачки при положительных задержках накачки и зондирования идентичны случаю “без накачки” и “статической” метоповерхности со сдвинутым на 100 нм резонансом и меньшей добротностью. Таким образом, на положительных временах задержек, когда резонанс метоповерхности уже модифицирован и не имеет временной динамики, основная волна просто взаимодействует с модифицированной “статической” метоповерхностью, а спектр

третьей гармоники смещается к исходному из-за другой центральной длины волны резонанса и уменьшенной добротности резонанса метаповерхности. Влияние положения резонанса метаповерхности относительно основной частоты падающего излучения на нелинейный отклик было экспериментально показано в исследовании генерации второй гармоники в полупроводниковой метаповерхности Фано [145]. Показано, что отстройка несущей длины волны падающего излучения от резонансной длины волны метаповерхности приводит к смещению длины волны пика интенсивности излучения ВГ от ожидаемого положения удвоенной частоты. На рис. 4.30 из этого исследования показан сценарий модификации нормализованного спектра ВГ, когда центральная длина волны падающего импульса отстроена от резонансной длины волны метаповерхности. Здесь следует повторить, что этот эффект имеет другую природу и не зависит от временной динамики дисперсии метаповерхности, как и в случае “статических” метаповерхностей (рис. 4.31), и отличается от больших сдвигов, обнаруживаемых при отрицательных временах задержки, близких к нулю.

Зависимость величины сдвига от мощности излучения падающей накачки

Были проведены эксперименты по определению зависимости синего сдвига от мощности излучения падающей накачки. Однако результаты показали, что приемлемый уровень сигнала ТГ может быть достигнут только в узком диапазоне мощностей накачки и при ограниченном времени измерения. При длительном облучении образцы повреждаются, и хорошо воспроизводимые экспериментальные данные с достаточным уровнем сигнала ТГ получаются при плотности мощности накачки порядка 3 мДж/см^2 , при которой наблюдается наибольший сдвиг основного резонанса (рис. 4.32).

Чтобы расширить понимание поведения системы в зависимости от мощности накачки, была использована модель СМТ для расчета зависимости синего сдвига. При этом для моделирования генерации свободных носителей в метаповерхности использовался короткий импульс накачки с профилем гауссовой формы. Варьируя величину полного изменения безызлучательного вклада в

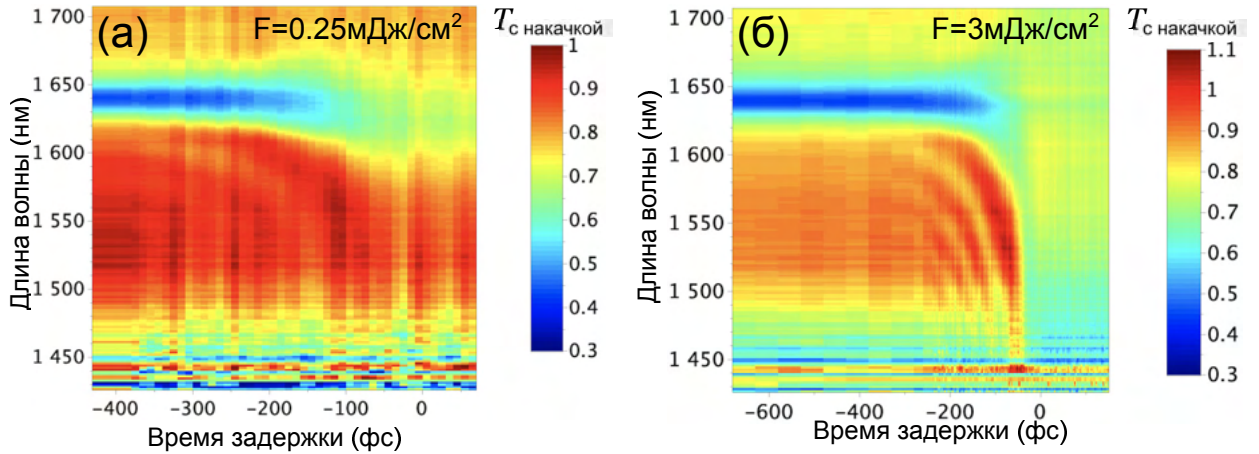


Рисунок 4.32 — (а) Экспериментальные спектры коэффициента пропускания времяпеременной метаповерхности Ge с центральной длиной волны резонансом $\lambda_R = 1640$ нм при излучении накачки как функция времени задержки между импульсами накачка и зонд при плотности мощности (а) $F = 0.25$ мДж/см² и (б) $F = 3$ мДж/см².

коэффициент скорости затухания $\Delta\gamma^{nr}$ и величину изменения резонансной частоты $\Delta\omega$ (ур. 4.3), можно смоделировать различную плотность энергии накачки. Рассчитанные спектры ТГ при различном излучении накачки при времени задержки $\tau = -40$ фс аппроксимировались функцией Гаусса со следующим уравнением:

$$y = y_0 + Ae^{-\frac{(\lambda-\lambda_0)^2}{2\sigma^2}}, \quad (4.6)$$

где y_0 — смещение, A — амплитуда, λ_0 — центральная длина волны, σ — ширина спектра. Результаты аппроксимации ширины спектра σ и центральной длины волны λ_0 спектров ТГ в зависимости от плотности накачки показаны на рис. 4.33.

Принимая во внимание, что на рис. 4.30 спектры ТГ на панелях (е) и (ж) для разных профилей падающего импульса зонда достаточно похожи, то можно утверждать, что в случае моделирования импульсом зонда с профилем гауссовой формы (ур. 4.6) не вносятся качественных и значительных изменений в зависимость спектров ТГ от мощности излучения падающей накачки по сравнению с импульсом зонда с профилем квадрата гиперболического секанса (ур. 4.2).

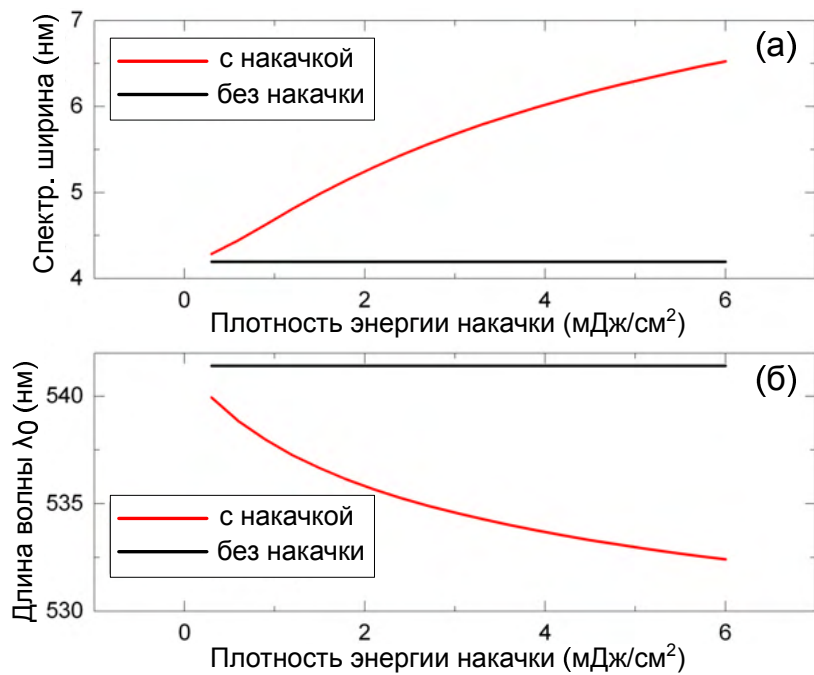


Рисунок 4.33 — Результат аппроксимации спектров интенсивности ТГ, полученных с помощью теории связанных мод, функцией Гаусса с уравнением 4.6 при наличии накачки (красные кривые) и без излучения накачки (черные кривые) в зависимости от плотности накачки для (а) спектральной ширины σ и (б) для центральной длины волны λ_0 .

Заключение

Основные результаты работы заключаются в следующем:

1. Обнаружено значительное увеличение коэффициента отражения для метаповерхностей на основе нанодисков из арсенида галлия при возбуждении магнитной дипольной моды Ми-типа вблизи края запрещенной зоны при увеличении интенсивности падающего излучения с зависимостью, характерной для функции с насыщением. С помощью построенной феноменологической модели получены основные параметры насыщения — плотность энергии насыщения $F_{\text{нас}}$, глубина модуляции коэффициента отражения ΔR и значение потерь $\Delta R_{\text{потери}}$. Характерные значения для метаповерхностей из нанодисков с резонансом вблизи края запрещенной зоны составили $F_{\text{нас}} = 100 \text{ мкДж/см}^2$, $\Delta R = 20\%$ и $\Delta R_{\text{потери}} = 30\%$, а для модели высокочастотной метаповерхности — $F_{\text{нас}} = 50 \text{ нДж/см}^2$, $\Delta R = 50\%$ и $\Delta R_{\text{потери}} = 40\%$. При помощи методики z-сканирования показано значительное уменьшение коэффициента отражения метаповерхностей при удалении от фокальной плоскости, то есть при уменьшении падающей интенсивности и фиксированной средней мощности. С помощью методики I-сканирования в режиме непрерывной генерации излучения показано независимое от мощности поведение коэффициента отражения, как в случае линейного поглощения, что подтверждает нетепловую природу эффекта самомодуляции коэффициента отражения.
2. В метаповерхностях из арсенида галлия обнаружен эффект сверхбыстрой (до 1 пс) оптической модуляции коэффициента отражения широкополосного лазерного излучения за счет фотогенерации свободных носителей в полупроводнике. С помощью методики “накачка-зондирование” продемонстрирована высокая эффективность модуляции коэффициента отражения до 90% на пикосекундном масштабе вблизи магнитного дипольного резонанса при плотности энергии накачки 380 мкДж/см^2 . Показано смещение положения магнитного дипольного резонанса на 30 нм в коротковолновую область спектра за 1 пс за счет изменения концентрации свободных носителей и отрицательной добавки в показатель преломления (член Друде и эффект заполнения зоны). Измерено характерное время восстановления

центральной длины волны резонанса, обусловленное поверхностной рекомбинацией зарядов, составившее 6 пс. В метаповерхности из арсенида галлия наблюдается усиленная модуляция коэффициента отражения, в 75 раз больше в сравнении с объемным материалом арсенида галлия.

3. Экспериментально и численно показано наличие высокодобротных резонансов ($Q \leq 65$) в спектрах пропускания метаповерхностей на основе аморфного германия. С помощью методики “накачка-зондирование” с излучением параметрического усилителя в качестве зонда продемонстрировано преобразование частоты в метаповерхностях аморфного германия с внутриимпульсным изменением диэлектрической проницаемости. Сдвиг резонанса метаповерхности, измеренный при плотности энергии накачки $0,5 \text{ мДж/см}^2$, составил 15 нм. Смещение резонанса наблюдается в течение 100 фс на отрицательных временах задержки накачка-зонд. Экспериментальные результаты хорошо согласуются с аналитическими расчетами, выполненными в рамках теории связанных мод.
4. Обнаружена активная модуляция интенсивности кубичного нелинейного отклика метаповерхности из аморфного германия с внутриимпульсным изменением диэлектрической проницаемости с помощью методики “накачка-зондирование” с излучением параметрического усилителя в качестве зонда. Показано изменение интенсивности третьей оптической гармоники более 90% под действием излучения накачки. Генерация свободных носителей и соответствующее внутриимпульсное изменение диэлектрической проницаемости вызывают фемтосекундную динамику нелинейного отклика, приводя к преобразованию частоты третьей гармоники. Нормированный сигнал третьей гармоники демонстрирует сдвиг центральной длины волны в коротковолновую область на 10 нм и уширение спектра 40% в течение 100 фс при отрицательных временах задержки накачка-зонд. Сдвиг на 10 нм соответствует изменению частоты $3,05\omega$ по сравнению с невозмущенным нелинейным сигналом 3ω . Экспериментальные результаты хорошо согласуются с аналитическими расчетами, выполненными в рамках теории связанных мод.

Благодарности

В заключение автор хочет выразит благодарность и признательность своему научному руководителю А.А. Федянину за постановку актуальных задач и возможность работать в столь современной лаборатории и на таком уникальном оборудовании, а также за поддержку. Педагогическому составу кафедры квантовой электроники и физического факультета МГУ за переданные знания. Особую благодарность хотелось бы выразить М.Р. Щербакову, без которого этой работы вообще бы не было, за ценные идеи, изготовленные метаповерхности, обсуждения, моральную поддержку, за опыт, знания, позитив и кажущуюся легкость при решении задач. Автор также выражает благодарность П.П. Вабищевич, с которой были проведены первые поиски нулевого времени задержки накачка-зонд в лаборатории фемтосекундной оптики МИРЭА, то есть началась работа автора как ученого, а также за помощь в проведении части экспериментов по теме диссертации. Т.В. Долговой за опыт, знания, научные дискуссии и помощь в юстировке всех экспериментальных установок на протяжении работы автора в лаборатории, за терпение и поддержку. П.А. Шафирина за помощь в проведении экспериментов с времяпеременными метаповерхностями, обсуждения и помощь в расчетах по теории связанных мод. А.Н. Федотовой за начальные эксперименты по насыщению поглощения. С.А. Дагесяну из лаборатории “Криоэлектроники” физического факультета за полученные изображения метаповерхностей в растровом электронном микроскопе. Д.Ф. Ягудину за помощь в проведении мультипольного разложения одиночного диска. М.И. Шариповой, Е.В. Любину, Б.И. Афиногенову, В.И. Стадничуку, А.А. Попковой, А.Ю. Фролову, И.А. Новикову, М.А. Кирьянову, А. М. Черняк, А.А. Назаренко, а также остальным членам лаборатории нанооптики и метаматериалов.

Отдельную признательность автор хочет выразить А.С. Шорохову и А.И. Мусорину за знания, терпение, неоценимую поддержку за все время обучения и работы в лаборатории, без них этой работы могло не быть.

Кроме того, автор выражает благодарность своей семье за поддержку и понимание.

Работа посвящается памяти Митроновой Софии

Список сокращений и условных обозначений

- АКФ** — автокорреляционная функция
ГВГ — генерация второй гармоники
ГТГ — генерация третьей гармоники
ЗЗ — запрещенная зона
ИК — инфракрасный
ККФ — кросс-корреляционная функция
КМОП — комплементарная структура металл-оксид-полупроводник
МД — магнито-дипольный
МК — магнито-квадрупольный
ПЗС — прибор с зарядовой связью
СВЧ — сверхвысокой частоты
СИК — средний инфракрасный диапазон
СК — суперконтинуум
СН — свободные носители
ТГ — третья гармоника
ТГц — терагерцы
УФ — ультрафиолетовый
ФК — фотонный кристалл
ЭД — электродипольный
ЭК — электроквадрупольный
ВВО — beta-barium borate BaB_2O_4
СМТ — coupled-mode theory (теория связанных мод)
СНТ — carbon nanotube (углеродные нанотрубки)
DAQ — data acquisition (система сбора данных)
FDTD — Finite-Difference Time-Domain (метод конечных разностей во временной области)
FWHM — full width at half maximum (полная ширина на уровне половины высоты)
GaAs — арсенид галлия
Ge — германий
HSQ — hydrogen silsesquioxane (силсесквиоксан водорода — полимерное

кремнийорганическое соединение ($HSiO_{3/2}$) $_{8n}$)

LOFERS — low-field-enhancement resonant-like SESAM device (устройство резонансного типа с усилением при низких полях)

RSAM — resonant saturable absorber mirror (резонансное зеркало с насыщающимся поглотителем)

SAM — saturable absorber mirror (зеркало с насыщающимся поглотителем)

SESAM — semiconductor saturable absorber mirror (полупроводниковое зеркало с насыщающимся поглотителем)

SWCNT — single-walled carbon nanotube (одностенные углеродные нанотрубки)

Список литературы

1. Designed ultrafast optical nonlinearity in a plasmonic nanorod metamaterial enhanced by nonlocality / G. A. Wurtz [и др.] // *Nature Nanotech.* — 2011. — т. 6, № 2. — с. 107—111.
2. Light propagation with phase discontinuities: generalized laws of reflection and refraction / N. Yu [и др.] // *Science.* — 2011. — т. 334, № 6054. — с. 333—337.
3. Broadband light bending with plasmonic nanoantennas / X. Ni [и др.] // *Science.* — 2012. — т. 335, № 6067. — с. 427—427.
4. *Chen H.-T., Taylor A. J., Yu N.* A review of metasurfaces: physics and applications // *Rep. Prog. Phys.* — 2016. — т. 79, № 7. — с. 076401.
5. Roadmap for Optical Metasurfaces / A. I. Kuznetsov [и др.] // *ACS Photonics.* — 2024.
6. Dielectric metasurfaces for complete control of phase and polarization with subwavelength spatial resolution and high transmission / A. Arbabi [и др.] // *Nat. Nanotechnol.* — 2015. — т. 10, № 11. — с. 937—943.
7. *Khorasaninejad M., Capasso F.* Metalenses: Versatile multifunctional photonic components // *Science.* — 2017. — т. 358, № 6367.
8. Recent advances in planar optics: from plasmonic to dielectric metasurfaces / P. Genevet [и др.] // *Optica.* — 2017. — т. 4, № 1. — с. 139—152.
9. High-efficiency dielectric Huygens' surfaces / M. Decker [и др.] // *Adv. Optical Mater.* — 2015. — т. 3, № 6. — с. 813—820.
10. Tuning of magnetic optical response in a dielectric nanoparticle by ultrafast photoexcitation of dense electron–hole plasma / S. Makarov [и др.] // *Nano Lett.* — 2015. — т. 15, № 9. — с. 6187—6192.
11. Third-harmonic generation from Mie-type resonances of isolated all-dielectric nanoparticles / E. V. Melik-Gaykazyan [и др.] // *Philos. Trans. R. Soc. A.* — 2017. — т. 375, № 2090. — с. 20160281.

12. Ultrafast all-optical switching with magnetic resonances in nonlinear dielectric nanostructures / M. R. Shcherbakov [и др.] // Nano Lett. — 2015. — т. 15, № 10. — с. 6985—6990.
13. III–V Semiconductor Nanoresonators — A New Strategy for Passive, Active, and Nonlinear All-Dielectric Metamaterials / S. Liu [и др.] // Adv. Opt. Mater. — 2016. — т. 4, № 10. — с. 1457—1462.
14. Nonlinear generation of vector beams from AlGaAs nanoantennas / R. Camacho-Morales [и др.] // Nano Lett. — 2016. — т. 16, № 11. — с. 7191—7197.
15. Ultrafast all-optical tuning of direct-gap semiconductor metasurfaces / M. R. Shcherbakov [и др.] // Nat. Commun. — 2017. — т. 8, № 17. — с. 1—6. WoS JIF = 14.7 / 0.37 п.л./ вклад соискателя 55%.
16. Способ полностью оптической модуляции с помощью ми-резонансных структур на основе прямозонных полупроводников : пат. 2653187 Рос. Федерация, МПК G 02 F 1/01, В 82 Y 99/00 / Зубюк В. В. [и др.] — № 2016151249; заявл. 26.12.2016; опубл. 07.05.2018 Бюл. № 13.
17. Low-power absorption saturation in semiconductor metasurfaces / V. V. Zubyuk [и др.] // ACS Photonics. — 2019. — т. 6, № 11. — с. 2797—2806. WoS JIF = 6.5 / 0.56 п.л./ вклад соискателя 80%.
18. Resonant dielectric metasurfaces in strong optical fields / V. Zubyuk [и др.] // APL Mater. — 2021. — т. 9, № 6. — с. 060701. WoS JIF = 5.3 / 0.94 п.л./ вклад соискателя 15%.
19. Externally driven nonlinear time-variant metasurfaces / V. V. Zubyuk [и др.] // ACS Photonics. — 2022. — т. 9, № 2. — с. 493—502. WoS JIF = 6.5 / 0.62 п.л./ вклад соискателя 65%.
20. Nonlinear response of Q-boosting metasurfaces beyond the time-bandwidth limit / P. A. Shafrin [и др.] // Nanophotonics. — 2022. — т. 11, № 17. — с. 4053—4061. WoS JIF = 6.5 / 0.56 п.л./ вклад соискателя 10%.
21. *Эйнштейн А., Инфельд Л.* Эволюция физики. — ОГИЗ, 1948. — с. 263.
22. *Lifante G.* Integrated photonics: fundamentals. — John Wiley & Sons, 2003.
23. *Walls D., Milburn G. J.* Quantum Optics. — Springer, 2008.

24. *Tzarouchis D., Sihvola A.* Light scattering by a dielectric sphere: perspectives on the Mie resonances // *Appl. Sci.* — 2018. — т. 8, № 2. — с. 184.
25. Magnetic light / A. I. Kuznetsov [и др.] // *Sci. Rep.* — 2012. — т. 2, № 1. — с. 492.
26. Архив физических свойств полупроводников [электронный ресурс]. — URL: <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond> (дата обр. 18.11.2024).
27. Кремниевая интегральная фотоника / С. С. Косолюбов [и др.] // *Успехи физических наук.* — 2024. — т. 194, № 11. — с. 1223–1239.
28. Femtosecond laser printing of single Ge and SiGe nanoparticles with electric and magnetic optical resonances / D. M. Zhigunov [и др.] // *ACS Photonics.* — 2018. — т. 5, № 3. — с. 977–983.
29. *Shaltout A. M., Shalaev V. M., Brongersma M. L.* Spatiotemporal light control with active metasurfaces // *Science.* — 2019. — т. 364, № 6441. — eaat3100.
30. Optically resonant dielectric nanostructures / A. I. Kuznetsov [и др.] // *Science.* — 2016. — т. 354, № 6314. — aag2472.
31. *Yu N., Capasso F.* Flat optics with designer metasurfaces // *Nat. Mater.* — 2014. — т. 13, № 2. — с. 139–150.
32. Nonlinear wavefront control with all-dielectric metasurfaces / L. Wang [и др.] // *Nano Lett.* — 2018. — т. 18, № 6. — с. 3978–3984.
33. Efficient silicon metasurfaces for visible light / Z. Zhou [и др.] // *ACS Photonics.* — 2017. — т. 4, № 3. — с. 544–551.
34. Achromatic metalens over 60 nm bandwidth in the visible and metalens with reverse chromatic dispersion / M. Khorasaninejad [и др.] // *Nano letters.* — 2017. — т. 17, № 3. — с. 1819–1824.
35. *Ni X., Kildishev A. V., Shalaev V. M.* Metasurface holograms for visible light // *Nat. Commun.* — 2013. — т. 4. — с. 2807.
36. Metasurface holograms reaching 80% efficiency / G. Zheng [и др.] // *Nat. Nanotechnol.* — 2015. — т. 10, № 4. — с. 308–312.

37. Генерация третьей гармоники в плазмонных метаповерхностях, изготовленных методом прямой фемтосекундной лазерной печати / Д. В. Павлов [и др.] // Письма ЖЭТФ. — 2024. — т. 119, № 10. — с. 738—743.
38. Румянцев Б. В., Пушкин А. В., Потёмкин Ф. В. Генерация гармоник высокого порядка вблизи низкочастотного края плато при нелинейном распространении фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона с длиной волны 1.24 мкм в плотной струе аргона // Письма ЖЭТФ. — 2023. — т. 118, № 4. — с. 270—279.
39. Migal E., Pushkin A., Potemkin F. Even harmonic generation in semiconductors below and above the band gap assisted by an intense terahertz field // Phys. Rev. B. — 2024. — т. 110, № 24. — с. 245201.
40. Kruk S., Kivshar Y. Functional meta-optics and nanophotonics governed by Mie resonances // ACS Photonics. — 2017. — т. 4, № 11. — с. 2638—2649.
41. Tailoring directional scattering through magnetic and electric resonances in subwavelength silicon nanodisks / I. Staude [и др.] // ACS Nano. — 2013. — т. 7, № 9. — с. 7824—7832.
42. Enhanced third-harmonic generation in silicon nanoparticles driven by magnetic response / M. R. Shcherbakov [и др.] // Nano Lett. — 2014. — т. 14, № 11. — с. 6488—6492.
43. Linear and nonlinear optical response of Mie-resonant Si nanoparticles and its modification induced by femtosecond irradiation post-treatment / D. M. Zhigunov [и др.] // Opt. Mater. — 2024. — с. 115616.
44. Multipolar third-harmonic generation driven by optically induced magnetic resonances / D. A. Smirnova [и др.] // ACS Photonics. — 2016. — т. 3, № 8. — с. 1468—1476.
45. Multifold enhancement of third-harmonic generation in dielectric nanoparticles driven by magnetic Fano resonances / A. S. Shorokhov [и др.] // Nano Lett. — 2016. — т. 16, № 8. — с. 4857—4861.
46. Nonlinear mirror with all-dielectric metasurface / L. Wang [и др.] // CLEO/Europe-EQEC 2017. — Optica Publishing Group. 2017. — CD_4_3.

47. Giant nonlinear response from plasmonic metasurfaces coupled to intersubband transitions / J. Lee [и др.] // *Nature*. — 2014. — т. 511, № 7507. — с. 65—69.
48. An all-dielectric metasurface as a broadband optical frequency mixer / S. Liu [и др.] // *Nat. Commun.* — 2018. — т. 9, № 2507. — с. 2507.
49. Invited Article: Broadband highly efficient dielectric metadevices for polarization control / S. Kruk [и др.] // *APL Photonics*. — 2016. — т. 1, № 3.
50. Grayscale transparent metasurface holograms / L. Wang [и др.] // *Optica*. — 2016. — т. 3, № 12. — с. 1504—1505.
51. *Schonbrun E., Seo K., Crozier K. B.* Reconfigurable imaging systems using elliptical nanowires // *Nano Lett.* — 2011. — т. 11, № 10. — с. 4299—4303.
52. Optical metasurfaces for energy conversion / E. Cortés [и др.] // *Chem. Rev.* — 2022. — т. 122, № 19. — с. 15082—15176.
53. A metalens with a near-unity numerical aperture / R. Paniagua-Dominguez [и др.] // *Nano Lett.* — 2018. — т. 18, № 3. — с. 2124—2132.
54. Metasurface polarization optics: independent phase control of arbitrary orthogonal states of polarization / J. B. Mueller [и др.] // *Phys. Rev. Lett.* — 2017. — т. 118, № 11. — с. 113901.
55. Purcell effect for active tuning of light scattering from semiconductor optical antennas / A. L. Holsteen [и др.] // *Science*. — 2017. — т. 358, № 6369. — с. 1407—1410.
56. Dynamic reflection phase and polarization control in metasurfaces / J. Park [и др.] // *Nano Lett.* — 2017. — т. 17, № 1. — с. 407—413.
57. Electro-optically tunable multifunctional metasurfaces / G. K. Shirmanesh [и др.] // *ACS Nano*. — 2020. — т. 14, № 6. — с. 6912—6920.
58. Reversible thermal tuning of all-dielectric metasurfaces / M. Rahmani [и др.] // *Adv. Funct. Mater.* — 2017. — т. 27, № 31. — с. 1700580.
59. Nonlinear Fano-resonant dielectric metasurfaces / Y. Yang [и др.] // *Nano Lett.* — 2015. — т. 15, № 11. — с. 7388—7393.

60. Ultrafast all-optical tuning of direct-gap semiconductor metasurfaces / M. R. Shcherbakov [и др.] // Nat. Commun. — 2017. — т. 8, № 17. — с. 1—6. WoS JIF = 14.7 / 0.37 п.л. / вклад соискателя 55%.
61. Magnetic control of the chiroptical plasmonic surfaces / I. Zubritskaya [и др.] // Nano Lett. — 2018. — т. 18, № 1. — с. 302—307.
62. Enhanced magneto-optical effects in hybrid Ni-Si metasurfaces / M. Barsukova [и др.] // APL Photonics. — 2019. — т. 4, № 1. — с. 016102.
63. Tunable multimodal magnetoplasmonic metasurfaces / A. Musorin [и др.] // Appl. Phys. Lett. — 2019. — т. 115, № 15. — с. 151102.
64. An all-optical, non-volatile, bidirectional, phase-change meta-switch / B. Gholipour [и др.] // Adv. Mater. Lett. — 2013. — т. 25, № 22. — с. 3050—3054.
65. All-dielectric phase-change reconfigurable metasurface / A. Karvounis [и др.] // Appl. Phys. Lett. — 2016. — т. 109, № 5. — с. 051103.
66. Nanoscale Plasmon-Enhanced Spectroscopy in Memristive Switches / G. Di Martino [и др.] // Small. — 2016. — т. 12, № 10. — с. 1334—1341.
67. Active tuning of all-dielectric metasurfaces / J. Sautter [и др.] // ACS Nano. — 2015. — т. 9, № 4. — с. 4308—4315.
68. Electrically tunable all-dielectric optical metasurfaces based on liquid crystals / A. Komar [и др.] // Appl. Phys. Lett. — 2017. — т. 110, № 7. — с. 071109.
69. *Ee H.-S., Agarwal R.* Tunable metasurface and flat optical zoom lens on a stretchable substrate // Nano Lett. — 2016. — т. 16, № 4. — с. 2818—2823.
70. Optical tuning of dielectric nanoantennas for thermo-optically reconfigurable nonlinear metasurfaces / M. Celebrano [и др.] // Opt. Lett. — 2021. — т. 46, № 10. — с. 2453—2456.
71. *Eggleton B. J., Luther-Davies B., Richardson K.* Chalcogenide photonics // Nat. Photonics. — 2011. — т. 5, № 3. — с. 141—148.
72. Photo-physical mechanism of near-IR femtosecond laser-induced refractive-index change in PMMA / S. Kudryashov [и др.] // Opt. Lett. — 2024. — т. 50, № 1. — с. 129—132.

73. Two-Photon Absorption in $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$ and $\text{Ca}_2.7\text{Sr}_0.3(\text{VO}_4)_2$ Crystals / I. O. Kinyaevskiy [и др.]. — 2023.
74. Linear frequency conversion via sudden merging of meta-atoms in time-variant metasurfaces / K. Lee [и др.] // *Nat. Photonics*. — 2018. — т. 12, № 12. — с. 765—773.
75. Electrical control of terahertz frequency conversion from time-varying surfaces / K. Lee [и др.] // *Opt. Express*. — 2019. — т. 27, № 9. — с. 12762—12773.
76. Frequency Conversion in a Time-Variant Dielectric Metasurface / N. Karl [и др.] // *Nano Lett.* — 2020. — т. 20, № 10. — с. 7052—7058.
77. Photon acceleration and tunable broadband harmonics generation in nonlinear time-dependent metasurfaces / M. R. Shcherbakov [и др.] // *Nat. Commun.* — 2019. — т. 10, № 1345. — с. 1345.
78. Nonreciprocal metasurface with space–time phase modulation / X. Guo [и др.] // *Light: Sci. Appl.* — 2019. — т. 8, № 1. — с. 123.
79. Nonreciprocal wavefront engineering with time-modulated gradient metasurfaces / J. W. Zang [и др.] // *Phys. Rev. Appl.* — 2019. — т. 11, № 5. — с. 054054.
80. Surface-wave-assisted nonreciprocity in spatio-temporally modulated metasurfaces / A. E. Cardin [и др.] // *Nat. Commun.* — 2020. — т. 11, № 1469. — с. 1469.
81. *Kuo S.* Frequency up-conversion of microwave pulse in a rapidly growing plasma // *Phys. Rev. Lett.* — 1990. — т. 65, № 8. — с. 1000.
82. Experimental evidence of photon acceleration of ultrashort laser pulses in relativistic ionization fronts / J. Dias [и др.] // *Phys. Rev. Lett.* — 1997. — т. 78, № 25. — с. 4773.
83. All-optical control of the ultrafast dynamics of a hybrid plasmonic system / T. Utikal [и др.] // *Phys. Rev. Lett.* — 2010. — т. 104, № 11. — с. 113903.
84. Ultrafast control of third-order optical nonlinearities in fishnet metamaterials / A. S. Shorokhov [и др.] // *Sci. Rep.* — 2016. — т. 6. — с. 28440.

85. Ultrafast optical modulation of second-and third-harmonic generation from cut-disk-based metasurfaces / G. Sartorello [и др.] // ACS Photonics. — 2016. — т. 3, № 8. — с. 1517—1522.
86. Ultrafast Optical Modulation of Harmonic Generation in Two-Dimensional Materials / Y. Cheng [и др.] // Nano Lett. — 2020. — т. 20. — с. 8053—8058.
87. Perovskite solar cells: An integrated hybrid lifecycle assessment and review in comparison with other photovoltaic technologies / Т. Ibn-Mohammed [и др.] // Renew. Sustain. Energy Rev. — 2017. — т. 80. — с. 1321—1344.
88. *Keller U.* Recent developments in compact ultrafast lasers // Nature. — 2003. — т. 424, № 6950. — с. 831.
89. *Stankov K.* A mirror with an intensity-dependent reflection coefficient // Appl. Phys. B. — 1988. — т. 45. — с. 191—195.
90. Nonlinear amplifying loop mirror / M. E. Fermann [и др.] // Opt. Lett. — 1990. — т. 15, № 13. — с. 752—754.
91. Femtosecond pulse generation in a laser with a nonlinear external resonator / J. Mark [и др.] // Opt. Lett. — 1989. — т. 14, № 1. — с. 48—50.
92. Passive mode locking by using nonlinear polarization evolution in a polarization-maintaining erbium-doped fiber / M. Fermann [и др.] // Opt. Lett. — 1993. — т. 18, № 11. — с. 894—896.
93. *Mamyshev P.* All-optical data regeneration based on self-phase modulation effect // 24th European Conference on Optical Communication. ECOC'98 (IEEE Cat. No. 98TH8398). т. 1. — IEEE. 1998. — с. 475—476.
94. Efficient infrared thermal emitters based on low-albedo polaritonic metasurfaces / B. Neuner III [и др.] // Appl. Phys. Lett. — 2013. — т. 102, № 21. — с. 211111.
95. High Q-factor resonance in a symmetric array of all-dielectric bars / C. Sui [и др.] // Appl. Sci. — 2018. — т. 8, № 2. — с. 161.
96. High-efficiency all-dielectric metasurfaces for ultracompact beam manipulation in transmission mode / M. I. Shalaev [и др.] // Nano Lett. — 2015. — т. 15, № 9. — с. 6261—6266.

97. *Liu Y., Zhou W., Sun Y.* Optical refractive index sensing based on high-Q bound states in the continuum in free-space coupled photonic crystal slabs // *Sensors*. — 2017. — т. 17, № 8. — с. 1861.
98. Multiresonant High-Q Plasmonic Metasurfaces / О. Reshef [и др.] // *Nano Lett.* — 2019. — т. 19, № 9. — с. 6429—6434.
99. *Schuller J. A., Taubner T., Brongersma M. L.* Optical antenna thermal emitters // *Nat. Photonics*. — 2009. — т. 3, № 11. — с. 658—661.
100. Asymmetric metasurfaces with high-Q resonances governed by bound states in the continuum / К. Koshelev [и др.] // *Phys. Rev. Lett.* — 2018. — т. 121, № 19. — с. 193903.
101. *Yablonovitch E.* Self-phase modulation of light in a laser-breakdown plasma // *Phys. Rev. Lett.* — 1974. — т. 32, № 20. — с. 1101.
102. *Morgenthaler F. R.* Velocity modulation of electromagnetic waves // *IRE Trans. Microw. Theory Techn.* — 1958. — т. 6, № 2. — с. 167—172.
103. *Notomi M., Mitsugi S.* Wavelength conversion via dynamic refractive index tuning of a cavity // *Phys. Rev. A*. — 2006. — т. 73, № 5. — с. 051803.
104. *Preble S. F., Xu Q., Lipson M.* Changing the colour of light in a silicon resonator // *Nat. Photon.* — 2007. — т. 1, № 5. — с. 293—296.
105. Emission spectrum of electromagnetic energy stored in a dynamically perturbed optical microcavity / М. W. McCutcheon [и др.] // *Opt. Express*. — 2007. — т. 15, № 18. — с. 11472—11480.
106. Dynamic Release of Trapped Light from an Ultrahigh-Q Nanocavity via Adiabatic Frequency Tuning / Т. Tanabe [и др.] // *Phys. Rev. Lett.* — 2009. — янв. — т. 102, вып. 4. — с. 043907. — DOI: [10.1103/PhysRevLett.102.043907](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.043907). — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.102.043907>.
107. Broken symmetry dielectric resonators for high quality factor Fano metasurfaces / S. Campione [и др.] // *ACS Photonics*. — 2016. — т. 3, № 12. — с. 2362—2367.
108. *Hamm P.* Coherent effects in femtosecond infrared spectroscopy // *Chem. Phys.* — 1995. — т. 200, № 3. — с. 415—429.

109. *Yan S., Seidel M. T., Tan H.-S.* Perturbed free induction decay in ultrafast mid-IR pump–probe spectroscopy // *Chem. Phys. Lett.* — 2011. — т. 517, № 1–3. — с. 36–40.
110. Femtosecond studies of coherent transients in semiconductors / В. Fluegel [и др.] // *Phys. Rev. Lett.* — 1987. — т. 59, № 22. — с. 2588.
111. Coherent effects in pump–probe spectroscopy of excitons / М. Joffre [и др.] // *Opt. Lett.* — 1988. — т. 13, № 4. — с. 276–278.
112. Генерация стабильного фемтосекундного суперконтинуума в расходящемся лазерном пучке для время-разрешающей широкополосной спектроскопии нестационарных процессов в веществе / Е. Мареев [и др.] // *Письма ЖЭТФ.* — 2023. — т. 121, № 3. — с. -.
113. Femtosecond white-light continuum pulses / R. Fork [и др.] // *Opt. Lett.* — 1983. — т. 8, № 1. — с. 1–3.
114. *Misochko O. V.* Coherent phonons and their properties // *ЖЭТФ.* — 2001. — т. 92. — с. 246–259.
115. *Dekorsy T., Cho G., Kurz H.* Light scattering in solids VIII // *Topics in Applied Physics.* — 2000. — т. 76. — с. 169–209.
116. *Bennett B. R., Soref R. A., Del Alamo J. A.* Carrier-induced change in refractive index of InP, GaAs and InGaAsP // *IEEE J. Quantum Electron.* — 1990. — т. 26, № 1. — с. 113–122.
117. *Henry C., Logan R., Bertness K.* Spectral dependence of the change in refractive index due to carrier injection in GaAs lasers // *J. Appl. Phys.* — 1981. — т. 52, № 7. — с. 4457–4461.
118. *Palik E. D.* Handbook of Optical Constants of Solids. — Academic Press, 1985. — DOI: [10.1016/B978-0-08-054721-3.50020-4](https://doi.org/10.1016/B978-0-08-054721-3.50020-4).
119. Etch-free low loss silicon waveguides using hydrogen silsesquioxane oxidation masks / М. P. Nezhad [и др.] // *Opt. Express.* — 2011. — т. 19, № 20. — с. 18827–18832.
120. *Grahn P., Shevchenko A., Kaivola M.* Electromagnetic multipole theory for optical nanomaterials // *New J. Phys.* — 2012. — т. 14, № 9. — с. 093033.

121. High-quality trapped modes in all-dielectric metamaterials / V. R. Tuz [и др.] // *Opt. Express.* — 2018. — т. 26, № 3. — с. 2905—2916.
122. *Lim W. X., Singh R.* Universal behaviour of high-Q Fano resonances in metamaterials: terahertz to near-infrared regime // *Nano Converg.* — 2018. — т. 5, № 1. — с. 5.
123. Imaging-based molecular barcoding with pixelated dielectric metasurfaces / A. Tittl [и др.] // *Science.* — 2018. — т. 360, № 6393. — с. 1105—1109.
124. *BATOP optoelectronics.* Data SAM-800-32-1ps-x and SAM-800-1-5ps-x $\lambda=800\text{nm}$. — URL: <https://www.batop.de/products/saturable-absorber/saturable-absorber-mirror/saturable-absorber-mirror.html>.
125. *BATOP optoelectronics.* Data RSAM-980-x: $\lambda=980\text{nm}$. — URL: <https://www.batop.de/products/saturable-absorber/resonant-saturable-absorber-mirror/data-sheet/resonant-saturable-absorber-mirror-980nm/resonant-saturable-absorber-mirror-RSAM-980.pdf>.
126. Semiconductor saturable absorber mirror structures with low saturation fluence / G. J. Spühler [и др.] // *Appl. Phys. B.* — 2005. — т. 81, № 1. — с. 27—32. — URL: www.scopus.com.
127. *Rotermund F.* Recent Progress in Broadband Carbon Nanotube Saturable Absorbers for Ultrafast Bulk Solid-State Lasers // *J. Korean Phys. Soc.* — 2018. — т. 73, № 6. — с. 846—851.
128. Passive mode locking of Yb:KLuW using a single-walled carbon nanotube saturable absorber / A. Schmidt [и др.] // *Opt. Lett.* — 2008. — т. 33, № 7. — с. 729—731.
129. Single-walled carbon nanotube saturable absorber assisted high-power mode-locking of a Ti:sapphire laser / I. H. Baek [и др.] // *Opt. Express.* — 2011. — т. 19, № 8. — с. 7833—7838.
130. Efficient mode-locking of sub-70-fs Ti:sapphire laser by graphene saturable absorber / I. H. Baek [и др.] // *Appl. Phys. Express.* — 2012. — т. 5, № 3. — с. 032701.
131. Saturation of nonlinear optical absorption of metal-nanoparticle composites / O. Plaksin [и др.] // *J. of Appl. Phys.* — 2008. — т. 103, № 11. — с. 114302.

132. Ultrafast diode-pumped Ti: sapphire laser with broad tunability / J. C. Coyle [и др.] // *Opt. Express*. — 2018. — т. 26, № 6. — с. 6826—6832.
133. Ultrafast all-optical modulation of femtosecond laser pulses in GaAs nanodisks with Mie-type resonances / V. Zubyuk [и др.] // *Журнал прикладной спектроскопии*. — 2016. — т. 83, № 6—16. — с. 179—180. RSCI = 0.34 / 0.12 п.л. / вклад соискателя 80%.
134. Ultrafast modulation of femtosecond laser pulses in direct-gap semiconductor metasurfaces with magnetic resonances / V. V. Zubyuk [и др.] // *AIP Conf. Proc.* — 2017. — с. 030044. SJR = 0.15 / 0.19 п.л. / вклад соискателя 80%.
135. Tailoring directional scattering through magnetic and electric resonances in subwavelength silicon nanodisks / I. Staude [и др.] // *ACS Nano*. — 2013. — т. 7, № 9. — с. 7824—7832.
136. *Varshni Y. P.* Band-to-Band Radiative Recombination in Groups IV, VI, and III-V Semiconductors (I) // *Phys. Stat. Sol.* — 1967. — т. 19. — с. 459.
137. *Strauss U., Rühle W. W., Köhler K.* Auger recombination in intrinsic GaAs // *Appl. Phys. Lett.* — 1993. — т. 62, № 1. — с. 55—57. — DOI: [10.1063/1.108817](https://doi.org/10.1063/1.108817).
138. Ultrafast nonlinear response of AlGaAs two-dimensional photonic crystal waveguides / A. D. Bristow [и др.] // *Appl. Phys. Lett.* — 2003. — т. 83, № 5. — с. 851—853. — DOI: [10.1063/1.1598647](https://doi.org/10.1063/1.1598647).
139. Ultrafast all-optical modulation in GaAs photonic crystal cavities / C. Husko [и др.] // *Appl. Phys. Lett.* — 2009. — т. 94, № 2. — с. 021111. — DOI: [10.1063/1.3068755](https://doi.org/10.1063/1.3068755).
140. Dynamics of Photoexcited GaAs Band-Edge Absorption with Subpicosecond Resolution / C. V. Shank [и др.] // *Phys. Rev. Lett.* — 1979. — т. 42. — с. 112. — DOI: [10.1103/PhysRevLett.18.395](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.18.395).
141. Time-dependent metasurfaces for efficient all-optical switching at different frequencies / V. Zubyuk [и др.] // *AIP Conf. Proc.* т. 2300. — 2020. — с. 020141. SJR = 0.15 / 0.2 п.л. / вклад соискателя 80%.
142. *Refractiveindex.info* [электронный ресурс]. — URL: <https://refractiveindex.info> (дата обр. 18.11.2024).

143. Time-variant metasurfaces enable tunable spectral bands of negative extinction / M. R. Shcherbakov [и др.] // *Optica*. — 2019. — т. 6, № 11. — с. 1441—1442.
144. *Haus H. A. Waves And Fields In Optoelectronics*. — Prentice-Hall, 1984.
145. Enhanced second-harmonic generation using broken symmetry III–V semiconductor Fano metasurfaces / P. P. Vabishchevich [и др.] // *ACS Photonics*. — 2018. — т. 5, № 5. — с. 1685—1690.