На правах рукописи

# КОЗЛОВ АЛЕКСАНДР БОРИСОВИЧ

# НЕЛОКАЛЬНОСТЬ ОПТИЧЕСКОГО ОТКЛИКА АТОМАРНЫХ ГАЗОВ, ОДНОМЕРНЫХ ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛОВ И ТОНКИХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК

Специальность 01.04.21 – лазерная физика

Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Москва - 2004

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

Научный руководитель:	доктор физико-математических наук,
	профессор Андреев Анатолий Васильевич
Официальные оппоненты:	доктор физико-математических наук, профессор Акципетров Олег Андреевич
	доктор физико-математических наук, профессор Маймистов Андрей Иванович
Ведущая организация:	Институт спектроскопии Российской Академии наук

Защита состоится <u>« 20 » мая</u> 2004 года в <u>15.00</u> часов на заседании диссертационного совета Д 501.001.31 в Московском государственном университете им. М.В. Ломоносова по адресу: 119992, ГСП-2, Москва, ул. Академика Хохлова, д. 1, Корпус нелинейной оптики, аудитория им. С.А. Ахманова.

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

Автореферат разослан <u>« 13 » апреля</u> 2004 года.

Ученый секретарь диссертационного совета Д 501.001.31, доцент

Т.М. Ильинова

### ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

#### Актуальность проблемы.

В последние годы большой интерес вызывают исследования нелинейнооптических эффектов в изотропных средах, запрещенных свойствами симметрии среды. К таким эффектам относится, например, генерация "запрещенной" второй гармоники в атомарных газах.

Известно, что в изотропных средах генерация второй гармоники запрещена в электродипольном приближении. Генерация второй гармоники также запрещена во всех порядках мультипольного разложения, если со средой центросимметричных атомов взаимодействует плоская электромагнитная волна. Тем не менее, генерация второй гармоники в таких средах все еще возможна за счет пространственнонелокальных взаимодействий атомов среды с пространственно-неоднородным лазерным полем. Простейшим примером пространственно-неоднородного поля является суперпозиция двух плоских волн распространяющихся под углом друг к другу. Другим, совершенно естественным и часто встречающимся примером является жестко сфокусированный лазерный импульс.

О генерации второй гармоники в атомарных газах сообщалось в целом ряде работ. Для объяснения экспериментальных результатов было предложено несколько теоретических моделей. Среди недостатков этих моделей, следует отметить их стационарность во времени, а также справедливость лишь в полях умеренной интенсивности. Поэтому развитие теоретических моделей описывающих динамику пространственно-нелокальных взаимодействий атомов с сильным лазерным полем является актуальной задачей.

Пространственно-неоднородные поля естественным образом возникают в одномерных фотонных кристаллах. Исследования оптических свойств фотонных кристаллов весьма актуальны сейчас с точки зрения различных технологических приложений. Отдельный интерес представляют собой исследования нелинейнооптических процессов второго порядка в фотонных кристаллах, слои которых изготовлены из изотропных материалов. В таких материалах нелинейно-оптические процессы второго порядка запрещены в электродипольном приближении. В связи с

этим, генерация второй гармоники или суммарной частоты в фотонных кристаллах с изотропными слоями оказывается возможной или вблизи границы раздела слоев, где свойства симметрии граничащих сред нарушаются, или в объеме слоев фотонного кристалла за счет пространственно-нелокальных взаимодействий атомов среды с полем.

Для описания нелокально-оптического отклика атомарных сред, необходимо учесть изменение электромагнитного поля в пределах электронных оболочек атомов. Часто бывает достаточным учесть это изменение с точностью до первой производной по пространству от потенциалов электромагнитного поля. В сущности, такое приближение учитывает лишь первый член в разложении отклика среды по малому параметру пространственной дисперсии. Однако, существуют ситуации, когда необходимо учитывать следующие, более высокие члены разложения для отклика среды. Более того, существуют ситуации, когда отклик среды не может быть представлен в виде указанного разложения, по причине отсутствия малого параметра. Такие ситуации возникают при рассмотрении оптического отклика наноразмерных электронных систем, например, сверхтонких металлических пленок толщиной всего в несколько атомных слоев.

Оптический отклик сверхтонких металлических пленок является существенно нелокальным и во многом определяется коллективными свойствами электронной подсистемы. Его корректное описание возможно лишь в рамках подхода, который самосогласованным образом учитывает взаимодействие электронов с электромагнитным полем индуцируемым электронной подсистемой. Развитие таких подходов является очень важным для понимания многих удивительных свойств сверхтонких металлических пленок.

#### Цели и задачи диссертационной работы.

- Исследовать влияние пространственной неоднородности поля на нелинейнооптический отклик атома. Разработать самосогласованную модель описывающую динамику пространственно-нелокальных взаимодействий атома с полем.
- 2. Рассчитать угловые спектры излучения второй и третьей гармоник генерируемых в процессе взаимодействия изотропной среды с двумя

ультракороткими лазерными импульсами распространяющимися под углом друг к другу.

- Исследовать генерацию суммарной частоты в одномерном фотонном кристалле с изотропными слоями при неколлинеарной геометрии взаимодействия волн. Сравнить поверхностный и объемный механизмы генерации суммарной частоты.
- 4. Исследовать линейно-оптические свойства сверхтонких металлических пленок в рамках самосогласованной микроскопической теории, учитывающей существенно нелокальный и коллективный характер электронного отклика. Определить спектр частот коллективных электронных возбуждений В сверхтонких металлических пленках.

#### Научная новизна работы.

- 1. взаимодействия Предложена модель атома с излучением, которая В двухуровневом приближении описывает пространственнодинамику взаимодействий, обусловленную изменением нелокальных населенности атомных уровней.
- Выполнен сравнительный анализ поверхностного и объемного механизмов генерации волны суммарной частоты в одномерном фотонном кристалле с изотропными слоями.
- 3. Впервые исследован процесс возбуждения неоднородной электромагнитной волны в одномерных фотонных кристаллах в процессе четырехволнового смешения.
- 4. В рамках самосогласованной теории функционала плотности, рассмотрено взаимодействие сверхтонкой металлической пленки с электромагнитным полем имеющим одновременно как продольную, так и поперечную составляющие.
- 5. Вычислен спектр частот коллективных возбуждений в сверхтонких металлических пленках, и показано, как этот спектр трансформируется с изменением толщины пленки, включая предельный переход к однородному электронному газу.

#### Научная и практическая значимость работы.

- Показано, что учет динамики населенностей атомных уровней в процессе взаимодействия изотропной среды с суперпозиционным полем двух плоских волн распространяющимися под углом друг к другу приводит к качественным изменениям угловых спектров излучения второй и третьей гармоник.
- 2. Показано, как с помощью неколлинеарной геометрии взаимодействия волн могут быть достигнуты оптимальные условия для генерации волны суммарной частоты в одномерном фотонном кристалле.
- Показана возможность управления распределением поля в слоях одномерного фотонного кристалла с помощью возбуждения различных волноводных мод в процессах трех- или четырехволнового смешения.
- 4. Учет на микроскопическом уровне как продольной, так и поперечной составляющих электромагнитного поля взаимодействующего со сверхтонкой металлической пленкой позволил представить результаты в терминах строго вычисленных коэффициентов отражения, прохождения и поглощения.
- Установлен ряд универсальных свойств линейно-оптического отклика сверхтонких металлических пленок при возбуждении нечетных продольных коллективных мод.

#### Защищаемые положения.

- 1. Учет динамики населенностей атомных уровней в процессе взаимодействия изотропной среды с суперпозиционным полем двух плоских волн распространяющимися под углом друг к другу приводит к появлению новых спектральных компонент в угловом спектре излучения второй и третьей гармоник.
- 2. Оптимальным условием для получения наиболее эффективной генерации волны суммарной частоты в одномерном фотонном кристалле является совпадение резонансов пропускания на краях запрещенных зон фотонного кристалла для всех трех взаимодействующих волн.
- 3. В одномерном фотонном кристалле может быть реализовано возбуждение волноводных мод в процессе нелинейно-оптического взаимодействия волн. Для этого необходимы две или более волны накачки, падающие на структуру под

различными углами, а также необходимо, чтобы частота возбуждаемых мод определялась разностью хотя бы двух частот волн накачки.

- 4. Учет взаимодействия электронов с собственным полем электронной подсистемы приводит не только к изменению положения резонансов в спектре поглощения электромагнитного излучения сверхтонкой металлической пленкой, но и к увеличению количества резонансов в три раза.
- 5. При возбуждении нечетных продольных коллективных мод, сверхтонкая металлическая пленка не может поглощать более половины потока энергии падающей на нее электромагнитной волны. В условиях, когда коэффициент поглощения металлической пленки достигает максимума и равняется 0.5, коэффициенты отражения и прохождения оказываются равными 0.25.
- 6. В предельном переходе от двух- к трехмерному электронному газу, объемный плазмон появляется в результате возникновения эффективной связи между одночастичными электронными возбуждениями с фиксированным изменением импульса электронов равным импульсу фотонов.

#### Апробация результатов работы.

Основные результаты диссертационной работы отражены в публикациях в специализированных ведущих научных журналах "Квантовая электроника", "Journal of Optical Society of America B", "Physical Review B" и докладывались на международных конференциях: "Фундаментальные Проблемы Оптики" (Санкт-Петербург, 2000), "XVII International Conference on Coherent and Nonlinear Optics" (Минск, Беларусь, 2001), "International Quantum Electronics Conference" (Москва, 2002), "European Quantum Electronics Conference" (Мюнхен, Германия, 2003), "IX International laser physics workshop" (Бордо, Франция, 2000), "Научной сессии МИФИ" (Москва, 2000), семинарах кафедры общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова. По материалам диссертации опубликовано 10 печатных работ (5 статей и 5 тезисов докладов).

#### Личный вклад автора.

Все результаты диссертационной работы получены автором лично.

#### Структура и объем работы.

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения, приложения и списка цитируемой литературы. Объем работы составляет 131 страницу, включая 28 рисунков. Список цитируемой литературы содержит 82 наименования, включая 5 авторских публикаций.

#### СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во <u>введении</u> обоснована актуальность выбранной темы диссертационной работы, сформулированы цели работы, отмечены научная новизна и практическая значимость, приведены защищаемые положения и кратко изложено содержание работы по главам.

<u>Первая глава</u> представляет собой краткий литературный обзор посвященный эффектам нелокальности оптического отклика в атомарных газах, одномерных фотонных кристаллах и сверхтонких металлических пленках. В этой главе рассмотрены механизмы генерации "запрещенной" второй гармоники в однородных атомарных газах и механизмы возникновения нелинейно-оптического отклика второго порядка в одномерных фотонных кристаллах, слои которых изготовлены из изотропных материалов. Кроме того, подробно обсуждается существенно нелокальный характер оптического отклика сверхтонких металлических пленок, толщиной порядка одного нанометра.

Вторая глава посвящена исследованию генерации "запрещенной" второй гармоники в изотропной среде центросимметричных атомов. Существует несколько механизмов генерации второй гармоники в таких средах. Один из наиболее предполагает возникновение вероятных механизмов генерации за счет взаимодействий пространственно-нелокальных атомов среды с внешним пространственно-неоднородным лазерным полем. В отличие от других механизмов, данный механизм не предполагает наличия частичной ионизации атомов среды.

Для описания нелокального атомного отклика, необходимо учесть изменение электромагнитного поля в пределах электронных оболочек атома. Мы учитываем это изменение в линейном приближении, т.е. мы учитываем не только электродипольные,

но и магнитодипольные, квадрупольные, а также обусловленные градиентом пондеромоторного потенциала поля, взаимодействия атомов среды с полем.

В разделе 2.1 получена самосогласованная система неукороченных уравнений, которая описывает нелокальный оптический отклик среды центросимметричных атомов. В основе вывода данной системы уравнений лежит двухуровневое приближение. Мы рассматриваем пару атомных уровней, между которыми разрешен электродипольный переход. Для того, чтобы учесть электронные переходы обусловленные градиентом пондеромоторного потенциала поля, нет необходимости выходить за рамки двухуровневого приближения, поскольку правила отбора для таких переходов совпадают с правилами отбора для электродипольных переходов. Напротив, для того, чтобы учесть магнитодипольные и квадрупольные переходы, необходимо выйти за рамки чисто двухуровневого приближения, так как если электронный переход В сферически симметричном потенциале является электродипольно разрешенным, то он является квадрупольно и магнитодипольно запрещенным. В нашем подходе, мы учитываем изменение поляризации атома за счет различных магнитодипольных и квадрупольных переходов, но пренебрегаем изменением населенности дополнительных атомных уровней за счет этих переходов.

В разделе 2.2 рассмотрено решение полученной системы уравнений в рамках теории возмущений, справедливой в полях умеренной интенсивности, а в разделе 2.3 численно исследованы особенности оптического отклика в полях высокой интенсивности. Для анализа был выбран простейший случай пространственнонеоднородного поля – суперпозиция двух плоских волн распространяющихся под углом друг к другу. Выполненный анализ показал, что если со средой взаимодействуют две *s*- или две *p*-поляризованных волны, то квадратичный отклик на частоте второй гармоники равняется нулю. Если же среда взаимодействует с суперпозиционным полем *s*- и *p*-поляризованных волн, то отклик на частоте второй гармоники равняется нулю. Если же среда взаимодействует с суперпозиционным полем *s*- и *p*-поляризованных волн, то отклик на частоте второй гармоники равняется нулю. Если же среда взаимодействует с поляризованных волны, то отклик на частоте второй гармоники равняется нулю. Если же среда взаимодействует с суперпозиционным полем *s*- и *p*-поляризованных волн, то отклик на частоте второй гармоники равняется нулю. Если в разделе заимодействует с суперпозиционным полем *s*- и *p*-поляризованных волн, то отклик на частоте второй гармоники роисходит в направлении биссектрисы угла между волновыми векторами волн накачки. У *s*-поляризованной волны вектор напряженности электрического поля перпендикулярен плоскости, которую образуют волновые вектора волн накачки, а у *p*- поляризованной – лежит в этой плоскости.



Рис. 1: Угловые спектры *s*- и *p*-компонент поля отклика на частотах второй (а, в, д) и третьей (б, г, е) гармоник в случае взаимодействия среды центросимметричных атомов с двумя *s*-поляризованными импульсами накачки (а, б), а также с *s*- и *p*-поляризованными импульсами накачки (а, б), а также с *s*- и *p*-поляризованными импульсами накачки (в - е). Угол между волновыми векторами импульсов накачки равняется  $60^{\circ}$ .  $\eta$  – проекция волнового вектора излучения второй (а, в, д) и третьей (б, г, е) гармоник на ось перпендикулярную биссектрисе угла между волновыми векторами импульсов накачки,  $\eta_1$  – модуль проекции волновых векторов импульсов накачки на эту же ось.

В разделе 2.4 подробно исследованы угловые спектры поля отклика на частотах второй и третьей гармоник в случае взаимодействия однородной среды центросимметричных атомов с полем двух плосковолновых импульсов распространяющихся под углом друг к другу. На Рис. 1 спектральные компоненты при  $\eta/\eta_1 = 0$  соответствуют генерации излучения в направлении биссектрисы угла между волновыми векторами импульсов накачки, а спектральные компоненты излучения при  $\eta/\eta_1 = \pm 2$  для второй и при  $\eta/\eta_1 = \pm 3$  для третьей гармоник соответствуют генерации излучения в направлении первого (знак плюс) и второго (знак минус) импульсов накачки. Угловые спектры поля отклика на

частоте третьей гармоники (Рис. 1 б, г, е) содержат *широкие* и *узкие* спектральные компоненты. *Широкие* спектральные компоненты описывают нелинейный отклик возникающий за счет неколлинеарного взаимодействия импульсов накачки, тогда как *узкие* спектральные компоненты описывают независимую генерацию третьей гармоники каждым из импульсов накачки в отдельности. Угловые спектры поля отклика на частоте второй гармоники (Рис. 1 а, в, д) содержат только *широкие* спектральные компоненты.

<u>Третья глава</u> посвящена исследованию генерации суммарной частоты и возбуждению волноводных мод в одномерных фотонных кристаллах с изотропными слоями. В таких фотонных кристаллах отклик на суммарной частоте может возникнуть или вблизи границы раздела слоев, где свойства симметрии граничащих сред нарушаются, или в объеме слоев фотонного кристалла за счет пространственнонелокальных взаимодействий атомов среды с полем. В работе выполнен сравнительный анализ обоих механизмов генерации суммарной частоты. Для сравнения с экспериментом, рассмотрен фотонный кристалл состоящий из восьми слоев ZnS и семи слоев SrF<sub>2</sub> с показателями преломления  $n_1 = 2.29$  и  $n_2 = 1.46$  соответственно. Толщины слоев равнялись  $3\lambda_0 / 4n_{12}$ , где  $\lambda_0 = 780$  нм.

Специфика выполненного исследования состоит в том, что была рассмотрена неколлинеарная геометрия взаимодействия волн, а именно ситуация когда углы падения волн накачки на поверхность фотонного кристалла различаются. Неколлинеарная геометрия взаимодействия волн обладает рядом преимуществ над коллинеарной геометрией. Угол между волновыми векторами волн накачки является дополнительной степенью свободы, которая может быть использована, например, для достижения оптимальных условий генерации волны суммарной частоты. Выполненный анализ показал, что для обоих механизмов генерации оптимальные условия достигаются при почти полном совпадении резонансов пропускания на краях запрещенных зон фотонного кристалла для всех трех волн участвующих во взаимодействии.



Рис. 2: Коэффициенты пропускания многослойной структуры для *s*-поляризованной первой волны накачки  $T(\lambda_1 = 736 \text{ нм})$  (а), *p*-поляризованной второй волны накачки  $T(\lambda_2 = 813 \text{ нм})$  (б), *s*-поляризованной волны на суммарной частоте  $T(\lambda_3 = 386 \text{ нм})$  (в), а также интенсивность прошедшей *s*-поляризованной волны на суммарной частоте  $I_T(\lambda_3 = 386 \text{ нм})$  (г) как функции угла падения первой волны накачки  $\theta_1$ . Разность углов падения волн накачки на поверхность фотонного кристалла  $\theta_2 - \theta_1 = 36.2^0$ .

На Рис. 2 показаны результаты расчета коэффициентов пропускания и интенсивности волны на суммарной частоте. В этих расчетах длины волн и разность углов падения волн накачки были подобраны так, чтобы имело место (при угле  $\theta_1 = -56.5^\circ$ ) почти полное совпадение резонансов пропускания первого порядка на краях запрещенных зон фотонного кристалла для всех трех взаимодействующих волн. При таком совпадении интенсивность волны суммарной частоты возрастает приблизительно на три порядка величины по сравнению со случаем, когда края запрещенных зон не совпадают. Столь сильное возрастание интенсивности связано с огромной дисперсией многослойных структур вблизи краев запрещенных зон.

Поверхностный и объемный вклады в генерацию суммарной частоты не могут быть разделены на основе зависимости поляризации волны суммарной частоты от поляризаций волн накачки. Для обоих механизмов генерации эти зависимости совпадают. Кроме того, оба механизма имеют одинаковые условия для получения наиболее эффективной генерации. Чтобы определить, какой из механизмов генерации – поверхностный или объемный – является преобладающим, необходимо исследовать зависимости интенсивности волны суммарной частоты от углов падения волн накачки. В работе показано, что данные зависимости могут существенно различаться при реализации поверхностного или объемного механизма генерации.

В одномерном фотонном кристалле может быть реализовано возбуждение волноводных мод в процессе нелинейно-оптического преобразования излучения. Для возбуждения волноводных мод необходимы две или более волны накачки, падающие на структуру под разными углами и кроме того, необходимо, чтобы частота возбуждаемых мод определялась разностью хотя бы двух частот волн накачки. Так, например, возбуждение волноводных мод может быть достигнуто в процессе генерации разностной частоты, но не может – в процессе генерации суммарной частоты.

Пусть в слоях фотонного кристалла генерируется волна разностной частоты  $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ . Проекция волнового вектора волны разностной частоты на поверхность фотонного кристалла равняется  $\omega_1/c \sin \theta_1 - \omega_2/c \sin \theta_2$ . При некоторых значениях углов падения волн накачки  $\theta_{1,2}$ , модуль этой проекции может превысить модуль волнового вектора волны разностной частоты в вакууме  $\omega_1/c - \omega_2/c$ . В этом случае волна разностной частоты окажется запертой внутри фотонного кристалла и будет распространяться вдоль его слоев в волноводном режиме.

Возбуждение волноводных мод может быть достигнуто не только в процессе генерации разностной частоты, но и в процессе четырехволнового смешения. На Рис. 3 показано распределение потока энергии поля вдоль слоев фотонного кристалла при возбуждении волны четырехволнового смешения  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_1 - \omega_2$ . В случаях показанных на Рис. 3 (а) и (д) реализуются квазирезонансые условия для возбуждения волноводных мод. Точные резонансные условия достигаются при углах падения  $\theta_1 = -49.35^\circ$  и  $\theta_1 = -53.29^\circ$ . В квазирезонансных условиях распределение поля волны четырехволнового смешения совпадает с распределением поля соответствующей моды, а амплитуда поля существенно возрастает с уменьшением отстройки от резонанса.



Рис. 3: Зависимость усредненной по времени тангенциальной компоненты вектора Умова-Пойнтинга  $P_y(\omega_3, z)$  *s*-поляризованного поля на частоте  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_1 - \omega_2$  ( $\lambda_3 = 597$  нм) от поперечной координаты *z* для разных углов падения первой волны накачки  $\theta_1$ , но при фиксированном угле между волновыми векторами *p*- ( $\lambda_1 = 690$  нм) и *s*- ( $\lambda_2 = 817$  нм) поляризованных волн накачки  $\theta_2 - \theta_1 = 40^0$ .

При возбуждении волноводных мод, поток энергии поля вдоль слоев фотонного кристалла переносится главным образом в слоях с меньшим показателем преломления. На Рис. 3 (а) можно выделить семь наиболее интенсивных максимумов. Эти максимумы находятся как раз в слоях с меньшим показателем преломления.

<u>Четвертая глава</u> посвящена исследованию линейно-оптических свойств сверхтонких металлических пленок толщиной порядка одного нанометра, т.е. всего в Такие несколько атомных слоев. пленки представляют собой двухмерные электронные системы. Движение электронов в двухмерных системах является свободным в двух пространственных направлениях и квантуется по третьему направлению. При анализе оптических свойств сверхтонких металлических пленок, необходимо учитывать два основных момента. Во-первых, оптический отклик сверхтонких металлических пленок является существенно нелокальным и не может

быть описан с помощью мультипольного разложения электронного отклика. Вовторых, оптический отклик металлических пленок во многом определяется коллективными свойствами электронной подсистемы и его корректное описание возможно лишь с использованием самосогласованного подхода. Для описания оптических свойств сверхтонких металлических пленок мы использовали модель желе и теорию функционала плотности вместе с приближением локальной плотности для потенциала обменно-корреляционного взаимодействия электронов.

В разделе 4.1 рассмотрены основные свойства сверхтонких металлических пленок в отсутствии внешнего поля, численно найдено решение самосогласованной системы уравнений Кона-Шема, указан характерный вид самосогласованного потенциала и распределения электронной плотности, а также представлены зависимости энергий уровней размерного квантования и энергии Ферми от толщины металлической пленки.

В разделе 4.2 рассмотрены основные уравнения описывающие линейнооптический отклик сверхтонких металлических пленок, взаимодействующих с произвольным продольно-поперечным электромагнитным полем. В данном разделе получены выражения для индуцированной плотности заряда и плотности тока, которые учитывают существенно нелокальный характер оптического отклика. Плотности заряда и тока в некоторой точке пространства зависят от распределения поля во всем поперечном сечении металлической пленки. Полученные выражения для уравнениями Максвелла плотностей заряда И тока вместе С образуют самосогласованную систему интегро-дифференциальных уравнений. Решение этой системы уравнений с соответствующими граничными условиями на бесконечности полностью определяет линейно-оптический отклик металлических пленок.

В разделе 4.3 дана классификация различных типов электронных возбуждений и выполнен расчет спектров частот коллективных возбуждений в металлических (Рис. 4). Традиционно, электронные возбуждения пленках разделяют на одночастичные и коллективные. Одночастичные возбуждения возникают в результате переходов отдельных электронов в состояния лежащие выше уровня Ферми. Энергия одночастичных возбуждений определяется разностью энергий конечного И начального состояний электронов. Коллективные возбуждения образуются в результате возникновения определенной связи между процессами одночастичных

возбуждений. Эта связь осуществляется за счет электромагнитного поля, которое индуцируется электронами системы. В общем случае процессы одночастичных возбуждений могут быть связаны посредством трех различных компонент поля. Если металлическая пленка взаимодействует с электрическим полем направленным перпендикулярно (параллельно) поверхности пленки, то мы можем говорить о возбуждениях продольных (поперечных) коллективных мод, так как в этом случае электрическое поле является всюду продольным (поперечным).



Рис. 4: Зависимости частот нечетных продольных коллективных мод от толщины металлической пленки *L*. Объемное значение радиуса Вигнера-Зейтца  $r_s(\bar{n}) = 4$ . Вертикальные пунктирные линии обозначают толщины металлической пленки, при которых появляются новые заполненные энергетические подзоны. Две горизонтальные пунктирные линии обозначают плазменную частоту  $\omega_p$  и частоту 0.85  $\omega_p$  соответствующую мультипольному поверхностному плазмону. На вставке показана область двух близко расположенных частот коллективных возбуждений в увеличенном масштабе.

Частоты коллективных возбуждений отличаются от частот одночастичных возбуждений. Связь между процессами одночастичных возбуждений, обусловленная

поперечным электромагнитным полем, крайне мала. Вследствие этого, частоты поперечных коллективных возбуждений практически совпадают с частотами одночастичных возбуждений. Напротив, частоты продольных коллективных возбуждений могут значительно отличаться от частот одночастичных возбуждений.

В разделе 4.3 также показано, как трансформируется спектр частот продольных коллективных возбуждений в предельном переходе от двухмерной к трехмерной электронной системе.



Рис. 5: Спектр поглощения электромагнитного излучения тонкой металлической пленкой в случае нормального падения (а) и в случае *p*-поляризованной волны падающей под углом  $\theta = 30^{\circ}$  (б). Вертикальные стрелки обозначают частоты поперечных (а) и продольных (б) коллективных возбуждений. Время поперечной релаксации  $\tau = 1$  пс, толщина металлической пленки L = 1 нм, радиус Вигнера-Зейтца  $r_s(\bar{n}) = 4$ . Коэффициент поглощения определяется как A = 1 - R - T, где R и T -коэффициенты отражения и прохождения по интенсивности поля.

В разделе 4.4 представлены результаты численного расчета спектров отражения, прохождения и поглощения электромагнитного излучения тонкой

металлической пленкой. В случае взаимодействия металлической пленки с sполяризованной волной падающей под произвольным углом, спектр поглощения содержит резонансы соответствующие возбуждению поперечных только коллективных мод (Рис. 5 (а)). Напротив, в случае взаимодействия пленки с рполяризованной волной, спектр поглощения содержит резонансы соответствующие возбуждению как поперечных, так и продольных коллективных мод (Рис. 5 (б)). возбуждениями Наиболее интенсивными являются возбуждения нечетных продольных коллективных мод. У нечетных мод распределение индуцированной функцией плотности заряда является нечетной поперечной координаты. Коэффициенты отражения, прохождения и поглощения могут существенно изменяться вблизи частот нечетных продольных коллективных мод. Так, например, коэффициент отражения может достигать величины порядка единицы, и это при том, что толщина металлической пленки составляет всего лишь 1 нм.

В разделе 4.5 исследовано распределение поля внутри металлической пленки как в нерезонансном случае, так и при резонансном возбуждении различных коллективных мод. В нерезонансном случае распределение поля можно качественно объяснить с помощью хорошо известных граничных условий электродинамики сплошных сред. При резонансном возбуждении продольных коллективных мод одной из характерных особенностей распределения поля является значительное возрастание нормальной компоненты поля внутри металлической пленки. Так, например, амплитуда нормальной компоненты поля внутри металлической пленки может более чем на два порядка величины превышать амплитуду падающей на пленку волны при условии, что характерное время одночастичной релаксации составляет ~ 1 пс.

Линии в спектре поглощения могут быть охарактеризованы тремя величинами: положением центра линии, спектральной шириной линии и амплитудой (резонансным значением коэффициента поглощения). В разделе 4.6 исследованы зависимости этих трех характеристик резонансого оптического отклика сверхтонких металлических пленок от угла падения на пленку электромагнитной волны. Численный анализ показал, что данные зависимости имеют ряд универсальных свойств, которые воспроизводятся одинаковым образом для различных спектральных линий соответствующих возбуждениям нечетных продольных коллективных мод. Так, например, резонансное значение коэффициента поглощения ни при каких углах

падения не превышает величины 0.5. В разделе 4.6 также исследовано влияние времени одночастичной релаксации на резонансные характеристики оптического отклика сверхтонких металлических пленок.

В <u>заключении</u> сформулированы основные результаты полученные в диссертационной работе.

В <u>приложении</u> рассмотрено решение задачи на собственные значения для матрицы специального вида.

## ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

- 1. Развита теория взаимодействия центросимметричного атома с пространственнолазерным полем, которая в двухуровневом приближении неоднородным описывает пространственно-нелокальных взаимодействий, динамику изменением обусловленную населенности уровней. В атомных рамках предложенной теории произведен пространственно-нелокальных учет магнитодипольных, квадрупольных обусловленных И градиентом пондеромоторного потенциала поля – взаимодействий.
- 2. Выполнен расчет угловых спектров поля отклика на частотах второй и третьей гармоник при взаимодействии однородной среды центросимметричных атомов с полем двух плосковолновых импульсов распространяющихся под углом друг к другу. Детально исследованы зависимости поляризации излучения второй и третьей гармоник от поляризаций импульсов накачки. Установлено, что наиболее интенсивный сигнал второй гармоники *s*-поляризован и распространяется в направлении биссектрисы угла между волновыми векторами волн накачки.
- 3. Выполнен сравнительный анализ поверхностного и объемного механизмов генерации суммарной частоты в одномерном фотонном кристалле с изотропными слоями при неколлинеарной геометрии взаимодействия волн. Показано, что для обоих механизмов, оптимальным условием для эффективной генерации волны суммарной частоты является совпадение резонансов пропускания на краях запрещенных зон фотонного кристалла для всех трех взаимодействующих волн. При выполнении данного условия, интенсивность волны суммарной частоты возрастает на три порядка величины.

- Исследовано возбуждение волноводных мод в одномерном фотонном кристалле в процессе четырехволнового смешения ω<sub>3</sub> = ω<sub>1</sub> + ω<sub>1</sub> - ω<sub>2</sub>. Указаны условия необходимые для возбуждения волноводных мод. Выполнен расчет спектра *s*- и *p*поляризованных мод. Установлено значительное возрастание амплитуды поля внутри фотонного кристалла при резонансном возбуждении волноводных мод.
- 5. В рамках самосогласованной теории функционала плотности, выполнен расчет спектров отражения, прохождения и поглощения сверхтонких металлических Показано, ЧТО в условиях возбуждения нечетных пленок. продольных коллективных мод, металлическая пленка нанометровой толщины может практически полностью отражать падающее излучение. При этом, амплитуда компоненты напряженности электрического нормальной поля внутри металлической пленки может на два порядка превышать амплитуду падающей волны.
- 6. Выполнен расчет частот коллективных электронных возбуждений в сверхтонких металлических пленках. Показано, что (а) с возрастанием толщины металлической пленки, формируется группа коллективных возбуждений, которые могут быть интерпретированы как возбуждения стоячих плазменных волн, (б) в тонкой пленке существует пара коллективных мод соответствующая мультипольному поверхностному плазмону, (в) в тонкой пленке существуют группы коллективных возбуждений образующихся в результате возникновения эффективной связи между процессами однотипных одночастичных возбуждений, с фиксированным изменением квантового числа.
- 7. Показано, как трансформируется спектр частот коллективных возбуждений при переходе от двухмерной к трехмерной электронной системе. Исходя из задачи на собственные значения, определяющей частоты продольных коллективных возбуждений в двухмерных системах, получено известное дисперсионное соотношение для продольных плазменных волн в неограниченном электронном газе.
- Установлен ряд универсальных свойств линейно-оптического отклика сверхтонких металлических пленок при возбуждении нечетных продольных коллективных мод. В частности, металлическая пленка не может поглощать более

половины потока энергии падающей на нее электромагнитной волны. Когда коэффициент поглощения металлической пленки достигает максимума и равняется 0.5, коэффициенты отражения и прохождения оказываются равными 0.25, а ширина линии поглощения в два раза превосходит ширину линии в пределе нормального падения.

# ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ОПУБЛИКОВАНЫ В РАБОТАХ:

- Андреев А.В., Козлов А.Б. Влияние пространственной неоднородности поля на нелинейно-оптический отклик атома // Квантовая Электроника - 2000. - т. 30. -№ 11. - с. 979-985.
- Козлов А.Б. Нелинейно-оптический отклик среды двухуровневых атомов в суперпозиционном поле // Сборник научных трудов, Научная сессия МИФИ -Москва, 2000. - т. 5. - с. 165-166.
- Андреев А.В., Козлов А.Б. Светоиндуцированная анизотропия атомного отклика в сверхсильных пространственно-неоднородных полях // Сборник трудов конференции Фундаментальные Проблемы Оптики - Санкт-Петербург, 17 - 19 Октября, 2000. - с. 5.
- 4. Андреев А.В., Козлов А.Б. Возбуждение волноводных мод в одномерном фотонном кристалле // Квантовая Электроника 2001. т. 31. № 5. с. 443-447.
- Andreev A.V., Balakin A.V., Boucher D., Kozlov A.B., Masselin P., Ozheredov I.A., Prudnikov I.R., Shkurinov A.P. Four-wave mixing in one-dimensional photonic crystals: inhomogeneous wave excitation // Technical Digest of XVII International Conference on Coherent and Nonlinear Optics - Minsk, Belarus, June 26 - July 1, 2001. - p. 17.
- Andreev A.V., Kozlov A.B. Excitation of waveguide modes in one-dimensional photonic crystal // Technical Digest of XVII International Conference on Coherent and Nonlinear Optics - Minsk, Belarus, June 26 - July 1, 2001. - p. 71.
- Andreev A.V., Balakin A.V., Kozlov A.B., Ozheredov I.A., Prudnikov I.R., Shkurinov A.P., Masselin P., Mouret G. Four-wave mixing in one-dimensional photonic crystals: inhomogeneous wave excitation // J. Opt. Soc. Am. B - 2002. v. 19. - № 8. - p. 1865-1872.

- Andreev A.V., Balakin A.V., Kozlov A.B., Ozheredov I.A., Prudnikov I.R., Shkurinov A.P., Masselin P., Mouret G. Nonlinear process in photonic crystals under the noncollinear interaction // J. Opt. Soc. Am. B - 2002. - v. 19. - № 9. - p. 2083-2093.
- Andreev A.V., Kozlov A.B. Self-consistent linear-optical response of thin metal films // Phys. Rev. B - 2003. - v. 68. - p. 195405.
- Andreev A.V., Balakin A.V., Kozlov A.B., Ozheredov I.A., Prudnikov I.R., Shkurinov A.P., Masselin P., Mouret G. Nonlinear processes in photonic crystals under the non-collinear interaction // Technical Digest of International Quantum Electronics Conference - Moscow, June 22 - 27, 2002. - p. 361.