УДК 535

ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ В ПЛАНАРНЫХ КИРАЛЬНЫХ НАНОСТРУКТУРАХ

© 2013 г. Е. А. Мамонов, И. А. Колмычек, А. И. Майдыковский, Т. В. Мурзина

Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова E-mail: murzina@mail.ru

В работе исследуется влияние киральности плоских спиралевидных наноструктур на генерацию в них второй оптической гармоники (ВГ). Показано, что в структурах с различным направлением "закрученности" спиралей интенсивность генерации левой и правой циркулярно поляризованных волн ВГ различны, а поворот главной оси эллипса поляризации излучения ВГ противоположен для различных типов энантиомеров.Аннотация

DOI: 10.7868/S0367676513010171

Плоские киральные наноструктуры, т.е. структуры, не имеющие осей симметрии в своей плоскости [1], являются перспективными объектами с точки зрения управления параметрами взаимодействующего с ними электромагнитного излучения. В области линейной оптики таких наноструктур были обнаружены эффекты, ранее наблюдавшиеся только для трехмерных сред, а именно: круговой дихроизм [2], изменение эллиптичности излучения [1], а также ряд принципиально новых явлений, таких, например, как "асимметричное" пропускание электромагнитных волн [3]. Свойства отклика плоских наноструктур на электромагнитное излучение определяются их геометрическими и материальными параметрами [4], причем важны не только форма и размер отдельной структуры, но и их взаимное расположение [5]. Эти параметры также определяют частоты возбуждения локальных поверхностных плазмонов в структуре, что в некоторых случаях приводит к усилению указанных выше эффектов [2]. Большую роль в свойствах отклика плоских наноструктур на электромагнитное поле играет их симметрия [6], которая определяет также пространственное распределение поля в структуре, что важно при анализе симметрии нелинейно-оптического отклика таких объектов.

В области нелинейной оптики планарных киральных наноструктур также был обнаружен ряд эффектов, отражающих нетипичное взаимодействие с линейно поляризованным электромагнитным излучением [7], обусловленное киральностью их формы, а также эффект кругового дихроизма на удвоенной частоте зондирующего излучения, характерный для нелинейной оптики киральных молекул [8].

В данной работе приведены результаты исследований квадратичного отклика киральных мета-

материалов – ансамблей плоских упорядоченных спиралевидных наноструктур, имеющих форму буквы "G" (G-shaped nanostructures).

Образцы представляли собой массив золотых "G"-образных наночастиц, толщина которых составляла 25 нм, поперечный размер каждого "G"-элемента 1 мкм, ширина полосы золота 200 нм, расстояние между сторонами соседних наноструктур 200 нм (рис. 1). Структуры были сформированы методом электронно-лучевой литографии с высоким разрешением с помощью системы VB6 фирмы "Leica Microsystems Lithography"из пленки золота, напыленного на поверхность кремниевой пластины со слоем окисла толщиной 200 нм [9], на площади 2.4 × 2.4 мм², и состояли из 2000 × 2000 "G"-элементов. Были изготовлены образцы с элементарной ячейкой, состоявшей из одного (далее однопериодные структуры) или четырех (далее двухпериодные структуры) "G"-элементов (рис. 1а и б соответственно), а также структуры, являющиеся их зеркальными



Рис. 1. Схематичное изображение структуры образцов с элементами в форме буквы "G": a – однопериодные структуры, δ – двухпериодные.



отражениями. В случае двухпериодных структур близлежащие "G"-элементы были повернуты на 90° относительно друг друга, как показано на рис. 16, и образовывали симметричную структуру с осью симметрии четвертого порядка и различным направлением "закрученности" "G"-элементов. Изображение одного из однопериодных образцов, полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа, показано на рис. 2.

Исследования генерации второй оптической гармоники (ВГ) были проведены при использовании в качестве накачки излучения лазера на титанате сапфира с длительностью импульса 100 фс, средней мощностью 100 мВт и частотой следования импульсов 80 МГц. Излучение накачки проходило через полуволновую пластину, с помощью которой устанавливалась s- или p-поляризация, и фокусировалось линзой на поверхность образца под углом падения 45° в пятно с диаметром около 50 мкм для получения оптимальной для детектирования интенсивности сигнала ВГ. Отраженное излучение ВГ спектрально выделялось с помощью соответствующих фильтров, проходило через компенсатор Бабине-Солейля и призму Глана, определявших линейную или круговую поляризацию излучения, и регистрировалось с помощью ФЭУ.

Образец был закреплен на столике, который с помощью шагового двигателя мог вращаться вокруг своей оси, что использовалось при измерении азимутальной анизотропии ВГ. Азимутальный угол 0° соответствует ориентации плоскости поляризации накачки, параллельной одной из сторон наноструктуры; для однопериодных образцов положение структуры, соответствующее азимутальному углу 0°, показано отдельно.

На рис. 3 приведены экспериментальные зависимости интенсивности правой и левой циркулярно поляризованной волны ВГ, отраженной от одного из энантиомеров однопериодных планарных наноструктур при s-поляризованной волне излучения накачки. Видно, что интенсивность циркулярно поляризованного излучения ВГ существенно анизотропна и при некоторых азимутальных положениях образца эффективности генерации циркулярных волн ВГ правой или левой поляризаций (зависит от энантиомера) существенно различаются. Наиболее заметное различие достигается в том случае, если плоскость поляризации волны накачки параллельна одной из сторон образца (соответствующие азимутальные положения 0° и 180°). В то же время усредненные по всем азимутальным положениям образца интенсивности обеих циркулярно поляризованных волн второй гармоники практически равны. Таким образом, в однопериодных "G"-структурах влияние киральности на нелинейно-оптический отклик намного слабее, чем влияние анизотропии распределения локального поля в структуре.

ИЗВЕСТИЯ РАН. СЕРИЯ ФИЗИЧЕСКАЯ том 77 № 1 2013



Рис. 2. Изображение одного из однопериодных образцов, полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа.



Рис. 3. Зависимости интенсивности генерации циркулярно поляризованной волны ВГ от азимутального положения одного из однопериодных образцов при *s*-поляризованной волне накачки. Заполненные символы на графике соответствуют левой циркулярной поляризации, незаполненные – правой.

Для пары образцов с элементарной ячейкой, состоящей из четырех наноструктур в форме буквы "G", наблюдается иная картина. Была исследована анизотропия интенсивности циркулярно поляризованной ВГ для двух образцов, являющихся зеркальным отражением друг друга (т.е. характеризующихся различным направлением "закрученности" "G"-элементов). В этом случае для любого азимутального положения образцов более



Рис. 4. Зависимости интенсивности генерации циркулярно поляризованной волны ВГ от азимутального положения одного из двухпериодных образцов при *p*-поляризованной волне накачки. Заполненные символы на графике соответствуют левой циркулярной поляризации, незаполненные – правой.

эффективно генерируется волна ВГ одной из круговых поляризаций (левая для одного и правая для второго) при линейно поляризованной накачке. Другими словами, знак параметра Стокса $S_3 = I_{RCP} - I_{LCP}$ (где I_{RCP} и I_{LCP} – интенсивности право- и левополяризованной ВГ соответственно) определяется тем, какой из двух энантиомеров исследуется. Азимутальные зависимости интенсивности левой и правой циркулярно поляризованной ВГ при *р*-поляризованной волне излучения накачки для одного из энантиомеров двухпериодных метаматериалов приведены на рис. 4. В этом случае можно говорить о том, что интенсивности циркулярно поляризованной ВГ, усредненные по всем азимутальным положениям образцов, различаются для энантиомеров, причем соотношение между этими интенсивностями определяется именно киральностью образцов.

Для более наглядной демонстрации влияния киральности метаматериалов на основе "G"-элементов на параметры отклика ВГ были проведены измерения поворота плоскости поляризации (главной оси эллипса поляризации волны ВГ) ф в зависимости от азимутального положения образцов различных энантиомеров; угол поворота главной оси эллипса поляризации волны ВГ отсчитывался от плоскости поляризации линейнополяризованной волны зондирующего излучения. Значения угла ф, рассчитанные из измеренных азимутальных зависимостей параметров Стокса для разных энантиомеров двухпериодных "G"структур, представлены на рис. 5. Из приведенных зависимостей видно, что при нулевом азимутальном угле (плоскость поляризации накачки параллельна одной из сторон образца) линейно поляри-



Рис. 5. Зависимость поворота плоскости поляризации второй гармоники для двухпериодных образцов от их азимутального положения при *s*-поляризованной накачке.

зованная часть излучения второй гармоники *p*-поляризована. В случае, если плоскость поляризации накачки ориентирована почти по диагонали к "G"-элементам структуры, линейно поляризованная часть излучения ВГ *s*-поляризована, т.е. имеет место поворот плоскости поляризации (или главной оси эллипса поляризации) на угол $\pi/2$. Видно, что зависимости угла поворота ϕ от азимутального угла имеют симметрию четвертого порядка, что соответствует симметрии данного типа образцов, и повторяют друг друга с точностью до знака производной. Таким образом, можно сделать вывод, что направление поворота плоскости поляризации излучения второй гармоники определяется киральностью образца.

Возможный механизм данного эффекта связан, по-видимому, с различным пространственным распределением поля электромагнитной волны в энантиомерах. Как следует из расчета распределения поля на частотах накачки и ВГ [10], а также из измерений конфокальной микроскопии ВГ [11], источники ВГ в рассматриваемых образцах сильно локализованы, причем вид их распределения зеркален в энантиомерных структурах. Соответственно можно ожидать, что сдвиг фаз между различными компонентами ВГ будет различен для разных энантиомеров, что и приведет к преимущественной генерации одной из циркулярно поляризованных волн на удвоенной частоте для каждого из энантиомеров.

Таким образом, выявлены особенности в генерации второй оптической гармоники, связанные с киральностью структуры планарных метаматериалов, образованных элементами в форме буквы "G": обнаружено различие в эффективности генерации правой и левой циркулярно поляризованных волн ВГ в энантиомерах различных типов метаматериалов; показано, что направление поворота плоскости поляризации второй гармони-

ИЗВЕСТИЯ РАН. СЕРИЯ ФИЗИЧЕСКАЯ том 77 № 1 2013

ки в двухпериодных метаматериалах различно для зеркально-симметричных структур.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *Papakostas A., Potts A., Bagnal D.M. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2003. V. 90. № 10. 107404.
- Decker M., Klein M., Wegener M., Linden S. // Opt. Lett. 2007. V. 32. № 7. P. 856.
- 3. Fedotov V.A., Mladyonov P.L., Prosvirnin S.L. et al. // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 97. № 16. 167401.
- 4. Shalaev V.M. // Nature Photon. 2007. V. 1. № 1. P. 41.

- 5. *Husu H., Makitalo J., Siikanen R. et al.* // Opt. Lett. 2011. T. 36. № 12. C. 2375.
- 6. *MenzelC., Helgert C., Rockstuhl C. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 104. № 25. 253902.
- Valev V.K., Silhanek A.V., Verellen N. et al. // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 104. № 12. 127401.
- 8. Valev V.K., Smisdom N., Silhanek A.V. et al. // Nano Lett. 2009. V. 9. № 11. P. 3945.
- 9. Valev V.K., Zheng X., Biris C.G. et al. // Opt. Mater. Exp. 2011. V. 1. № 1. P. 36.
- 10. *Mamonov E.A., Murzina T.V., Kolmychek I.A. et al.* // Opt. Lett. 2011. V. 36. № 18. P. 3681.
- 11. Valev V., Silhanek A., Smisdom N. et al. // Opt. Exp. 2010. V. 18. № 8. P. 8286.