

На правах рукописи

Оладышкин Иван Владимирович

**МЕХАНИЗМЫ
ОПТИКО-ТЕРАГЕРЦОВОЙ КОНВЕРСИИ
НА ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛОВ**

01.04.03 – радиофизика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Нижний Новгород, 2018

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном научном учреждении «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики Российской академии наук» (ИПФ РАН) (г. Нижний Новгород).

Научный руководитель: Миронов Вячеслав Александрович, кандидат физико-математических наук, главный научный сотрудник ФГБНУ «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики Российской академии наук»

Официальные оппоненты: Урюпин Сергей Александрович, доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник ФГБУН «Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук», г. Москва

Маслов Алексей Владимирович, кандидат физико-математических наук, доцент ФГАОУ ВО «Национальный исследовательский Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского» (ННГУ), г. Нижний Новгород

Ведущая организация: ФГБУН «Объединенный институт высоких температур Российской академии наук», г. Москва

Защита состоится «10» декабря 2018 года в 15-00 часов на заседании диссертационного совета Д002.069.02 при ФГБНУ «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики Российской академии наук» по адресу: 603950, г. Нижний Новгород, ул. Ульянова, 46.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института прикладной физики РАН, а также на сайте www.ipfran.ru.

Автореферат разослан «7» ноября 2018 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
доктор физико-математических наук



Э. Б. Абубакиров

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДИССЕРТАЦИИ

Актуальность темы

Оптические свойства твёрдых тел значительно различаются в случаях воздействия непрерывного и импульсного излучения. Это связано не только с высокими интенсивностями полей в коротких импульсах, не достижимыми с помощью непрерывных генераторов, но и с проявлениями качественно новых физических процессов при уменьшении продолжительности воздействия. Отличие становится принципиальным, когда среда облучается лазерным импульсом фемтосекундной длительности, выводящим её из состояния термодинамического равновесия [1, 2]. Для твёрдого тела характерное время установления равенства температур электронов и кристаллической решётки обычно составляет несколько пикосекунд [1, 3, 4], то есть может на 1–2 порядка превосходить длительность оптического импульса. Это означает, что в течение всего времени взаимодействия с излучением среда находится в специфическом двухтемпературном состоянии, электродинамические свойства которого существенно отличаются от свойств термодинамически равновесного твёрдого тела [1, 3, 4]. Вместе с тем даже при неразрушающем воздействии на материал пиковая интенсивность лазерного излучения может достигать сотен ГВт/см², вследствие чего становятся важными нелинейные эффекты, почти не проявляющиеся в непрерывном режиме

Детальное исследование взаимодействия ультракороткого оптического излучения с веществом становится всё более актуальным из-за бурного развития научных и технологических применений фемтосекундной лазерной техники. В самых разных сферах оказываются важными такие весьма общие явления, как нелинейное поглощение и отражение, возбуждение и релаксация плотности и температуры электронов на субпикосекундных временах, специфические проявления поверхности среды, нелинейная электро- и теплопроводность, возбуждение собственных электромагнитных мод среды. Это касается задач абляции и лазерной модификации вещества, генерации гармоник поля, ускорения электронов вблизи структурированных поверхностей и т.д.

Одно из известных явлений, сопровождающих воздействие фемтосекундного лазерного излучения на различные среды, – генерация широкополосных терагерцовых импульсов [5–7]. В настоящее время использование нелинейной конверсии оптического излучения в более низкочастотное является наиболее перспективным направлением в получении коротких (1–2 пс) и интенсивных терагерцовых полей. Данный эффект наблюдался и исследовался в течение последних 15–20 лет во многих средах, как в режиме отражения от границы, так и при распространении лазерного импульса в среде. В частно-

сти, была экспериментально исследована генерация ТГц излучения при отражении лазерных импульсов от полупроводников и полупроводниковых структур, металлов и полуметаллов, генерация при оптическом пробое газов и при прохождении лазерных импульсов через нелинейные органические кристаллы. Максимальная эффективность генерации ТГц сигнала на уровне 0,1–1% по энергии лазерного импульса была достигнута в экспериментах с кристаллами GaP, ниобатом лития и органическими кристаллами, а также при взаимодействии релятивистски сильных оптических импульсов с твердотельными образцами.

В целом можно констатировать, что в данном направлении эксперимент заметно опережает теорию: в значительном числе работ механизм генерации остаётся дискуссионным, причём особенную сложность представляет интерпретация спектра наблюдаемого терагерцового сигнала. Это означает, что при развитии теоретических представлений о терагерцовом отклике различных сред можно ожидать появления новых схем оптико-терагерцовой конверсии, оптимизированных с точки зрения эффективности, управляемости, спектра излучения или других параметров.

С другой стороны, оптико-терагерцовая конверсия может стать средством исследования динамики носителей заряда в твёрдом теле на пикосекундных и субпикосекундных временных масштабах. В последние годы всё более активно ведутся экспериментальные исследования воздействия мощных лазерных и терагерцовых импульсов на твердотельные образцы, в частности – на графен и полуметаллы, при этом как оптическое излучение, так и терагерцовое используются в качестве пробного сигнала и в качестве накачки в различных комбинациях. На сегодняшний день такие эксперименты являются основным источником данных о физических процессах, протекающих в металлах, полуметаллах, графене и других средах на временных масштабах от десятков фемтосекунд до нескольких пикосекунд. В то же время обсуждаемое явление конверсии фемтосекундных лазерных импульсов в терагерцовый сигнал ранее не рассматривалось с точки зрения исследования электродинамических свойств различных материалов (в том числе по уже указанной причине – из-за отсутствия достоверных теоретических моделей).

Таким образом, развитие теоретических представлений о нелинейной электродинамике твёрдого тела в оптическом и терагерцовом диапазоне может способствовать как решению практических задач по генерации широкополосных ТГц импульсов, так и появлению новых экспериментальных методов для исследования процессов рассеяния, теплопереноса, возбуждения и релаксации носителей заряда на субпикосекундных временах. Представленная диссертация посвящена развитию одного из направлений в обозначенной области исследований – теории нелинейного отклика металлов на субпикосекундных временных масштабах.

Цель работы

Цель диссертационной работы – теоретическое исследование физических механизмов, которые могут приводить к формированию терагерцового отклика металлов и металлических структур на воздействие фемтосекундными лазерными импульсами, а также интерпретация имеющихся экспериментальных данных. Основные задачи:

1) исследование роли пондеромоторного воздействия лазерного импульса и других мгновенных квадратичных нелинейных эффектов в процессе генерации низкочастотных токов вблизи поверхности металла;

2) обобщение модели мгновенного квадратичного отклика на случай среды с анизотропной эффективной массой носителей заряда (в приложении к полуметаллам);

3) исследование генерации терагерцовых полей под действием градиента электронной температуры, возникающего при нагреве электронного газа в лазерном поле;

4) обобщение теплового механизма генерации терагерцового излучения на случай нелинейного режима нагрева электронов;

5) исследование роли поверхностных плазмонов в формировании терагерцового отклика гофрированных металлических поверхностей на импульсное лазерное воздействие;

6) оценка вклада неоднородного нагрева и процессов перераспределения температуры в терагерцовый отклик металлических наночастиц.

Методы исследования

Теоретические исследования, представленные в работе, основаны на гидродинамическом описании электронного газа в металлах и полуметаллах. Электромагнитные поля в данных средах описывались системой уравнений Максвелла самосогласованным образом. Этот подход успешно применялся ранее и продолжает использоваться при развитии теории генерации второй, третьей и более высоких гармоник, построении моделей лазерного нагрева и абляции и в других задачах нелинейной оптики металлов. При аналитическом решении поставленных задач применялась теория возмущений, что оказалось возможным благодаря относительно слабой нелинейной восприимчивости рассматриваемых сред. Также при теоретическом исследовании широко использовался спектральный подход; в частности, при решении задач о генерации электромагнитных полей заданной системой токов и при рассмотрении трансформации падающей электромагнитной волны в поверхностный плазмон. Развитие аналитической теории в большинстве разделов сопровождается сопоставлением с экспериментальными данными и результатами численного моделирования из различных работ.

Научная новизна

В диссертационной работе впервые в рамках гидродинамического описания проведено рассмотрение полной системы низкочастотных нелинейных источников тока, возникающих в металле под действием лазерного импульса, падающего на его поверхность под произвольным углом. Показано, что помимо исследованной ранее пондеромоторной силы при наклонном падении необходимо учитывать два других нелинейных источника, равных ей по порядку величины. Также в работе предпринято обобщение развитой модели мгновенного квадратично отклика на случай полуметалла – среды с анизотропной эффективной массой носителей заряда.

В работе впервые предложен и теоретически проанализирован тепловой механизм генерации терагерцового излучения при отражении фемтосекундных лазерных импульсов от поверхности металла. Показано, что неоднородный нагрев электронного газа лазерным импульсом приводит к формированию градиента температуры, под действием которого возбуждаются низкочастотные токи в среде и происходит генерация электромагнитных полей терагерцового диапазона.

Выполнено обобщение теплового механизма ТГц отклика на случай нелинейного режима нагрева металла, при котором частота столкновений электронов зависит от их температуры. На основе данного обобщения предпринята первая попытка объяснения (в рамках микроскопической модели) неквадратичных зависимостей энергии ТГц сигнала от энергии лазерного импульса, наблюдаемых в различных экспериментах. Как следствие, предложен косвенный метод определения частоты столкновений свободных электронов и восстановления динамики температуры электронной подсистемы вблизи поверхности металла по измерениям полной энергии и временной формы терагерцового сигнала.

В рамках обобщения теплового механизма генерации ТГц отклика предложена модель конверсии поверхностных плазмонов на оптической частоте в низкочастотное излучение. Показано, что учёт поверхностных плазмонов в виде дополнительного канала поглощения лазерного излучения позволяет интерпретировать как сам факт резонансного поведения ТГц сигнала, так и некоторые экспериментальные особенности процесса конверсии. Кроме того, в работе впервые указано на возможность возникновения низкочастотных токов в металлических наночастицах из-за их неоднородного нагрева и последующего перераспределения тепла в электронной подсистеме.

Теоретическая и практическая значимость

В представленной работе было впервые теоретически проанализировано электромагнитное излучение терагерцового диапазона, возникающие из-за теплового воздействия фемтосекундного лазерного излучения на металлы. Полученные аналитические выражения для генерируемых полей являются

достаточно общими и с высокой точностью подтверждаются результатами численного моделирования. Поэтому можно утверждать, что основная теоретическая значимость диссертации заключается в обобщении известного эффекта тепловой нелинейности на случай взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с поверхностью металла и металлическими структурами.

Результаты диссертационного исследования позволяют интерпретировать многие экспериментальные особенности конверсии фемтосекундных лазерных импульсов в терагерцовое излучение, включая запаздывающий характер ТГц сигнала и сложную зависимость его энергии от энергии лазерного импульса. Практическая значимость работы связана, прежде всего, с предложением нового экспериментального метода исследования кинетики электронов в металлах, опирающегося на эффект оптико-терагерцовой конверсии.

Положения, выносимые на защиту

1) В рамках гидродинамического описания, учитывающего пондеромоторные нелинейные эффекты, воздействие фемтосекундного лазерного импульса на поверхность металла приводит к возникновению нескольких источников низкочастотных токов. Электромагнитное излучение всех этих источников имеет идентичную волновую форму и одинаковую фазу, а также длительность порядка длительности лазерного импульса.

2) Неоднородный нагрев электронов в скин-слое металла фемтосекундным лазерным излучением сопровождается возникновением объёмного разделения зарядов и генерацией электромагнитного импульса терагерцового диапазона. Развита теория даёт адекватную оценку полной энергии терагерцового сигнала, а также позволяет объяснить его запаздывающий характер, диаграмму направленности, зависимость от угла падения лазерного импульса и другие экспериментальные особенности.

3) Включение зависимости частоты столкновений электронов от их температуры в тепловую модель генерации приводит к неквадратичной зависимости энергии ТГц сигнала от интенсивности лазерного импульса, что позволяет интерпретировать экспериментальные данные по ТГц отклику металлов при плотностях энергии оптического излучения порядка единиц мДж/см² и более.

4) В случае гофрированной поверхности возбуждение и поглощение поверхностных плазмонов создаёт дополнительный канал нагрева электронной подсистемы металла. Учёт этого эффекта в тепловой модели генерации ТГц полей позволяет интерпретировать резонансный характер ТГц отклика гофрированных металлов при выполнении условий возбуждения поверхностных плазмонов, а также получить оценку энергии ТГц сигнала, адекватную имеющимся экспериментальным данным.

Достоверность результатов

Представленное исследование опирается на известные физические модели, широко используемые при изучении взаимодействия мощного электромагнитного излучения с металлами, а также на ряд общетеоретических методов, имеющих строгое математическое обоснование: теорию возмущений, спектральные разложения и другие. Основные аналитические результаты сопоставлялись с данными численного моделирования, полученными в рамках аналогичных физических моделей, с экспериментальными данными и теоретическими результатами других научных групп.

Публикации и апробация результатов

Основные результаты диссертационной работы обсуждались на научных семинарах в Институте прикладной физики РАН, Институте физики микроструктур РАН, Всероссийском научно-исследовательском институте автоматизации им. Н.Л. Духова, НИИ физики РГПУ им. А.И. Герцена, а также докладывались на следующих конференциях, совещаниях и научных школах:

- International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2016), Копенгаген, Дания, 2016;
- 16-я, 17-я и 18-я международные конференции “Laser Optics”, Санкт-Петербург, 2014, 2016 и 2018 годы;
- International Conference on Metamaterials and Nanophotonics METANANO – 2017, Владивосток, 2017;
- The 4th Russia-Japan-USA Symposium on Fundamental and Applied Problems of Terahertz Devices and Technologies, IMT, ISSP, Черноголовка, Россия, 2015;
- XVII научная школа «Нелинейные волны – 2016», Нижний Новгород, 2016;
- XVI всероссийская школа-семинар «Физика и применение микроволн» имени А.П. Сухорукова («Волны-2017»), Можайск, 2017;
- 20-я Сессия молодых учёных, Нижний Новгород, 2015;
- XXII–XXVI научные сессии Совета РАН по нелинейной динамике, 2013–2017 годы.

Материалы диссертации были опубликованы в ведущих российских и зарубежных научных журналах: Optics Letters, Journal of Optics, Письма в ЖЭТФ, ЖЭТФ и других. Всего по теме исследования опубликовано 8 статей в рецензируемых журналах [A1-A8] (из них 7 – в журналах, рекомендованных ВАК для публикации основных материалов), 6 статей в сборниках тезисов докладов и сборниках трудов всероссийских и международных конференций [A9-A14], 1 электронный препринт [A15]. Представленные результаты были включены в число основных результатов научной работы Института прикладной физики РАН в 2015 и 2016 годах, а также отмечены премиями Кон-

курсов работ молодых учёных ИПФ РАН в 2015, 2016 и 2017 г. и Открытого конкурса научных работ молодых учёных в области физики наноструктур и наноэлектроники (ИФМ РАН) в 2016 году.

Личный вклад автора

Все оригинальные теоретические результаты, изложенные в настоящей диссертации, получены лично автором либо при его непосредственном участии. Постановка основных задач и формулировка физических моделей, рассмотренных во второй и третьей главах работы, выполнена по инициативе автора. Основные результаты диссертационной работы и положения, выносимые на защиту, отражают персональный вклад автора в содержание публикаций по теме исследований, выполненных в соавторстве.

Структура и объём диссертации

Диссертационная работа состоит из введения, трёх глав, заключения и списка литературы. Общий объём диссертации составляет 99 страниц, включая 16 рисунков. Список публикаций автора по теме диссертации содержит 15 наименований, список литературы содержит 74 наименования.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во **введении** обоснована актуальность выбранной темы исследования, дан краткий обзор полученных ранее экспериментальных и теоретических результатов, сформулированы основные цели и задачи работы, описаны методы исследования, а также научная новизна и практическая значимость полученных результатов, приведены положения, выносимые на защиту, изложена основная информация об апробации результатов работы.

Цель представленной диссертации – теоретическое исследование механизмов, которые могут приводить к формированию терагерцового отклика металлов и металлических структур на воздействие фемтосекундных лазерных импульсов. Основные задачи связаны с исследованием роли мгновенной квадратичной нелинейности и тепловой нелинейности в процессе генерации низкочастотного излучения вблизи поверхности металла и с различными обобщениями этих моделей. Во введении отмечается недостаточная разработанность теоретических представлений по изучаемому вопросу и наличие большого массива экспериментальных данных, не имеющих ясной физической интерпретации.

Следует заранее отметить, что практически во всей работе (за исключением раздела 3.4) рассматривается наклонное падение на среду фемтосекундного лазерного импульса с достаточно большим поперечным размером, вследствие чего в каждый момент времени оптическое излучение действует

на небольшое «пятно» на поверхности, перемещающееся вдоль границы со сверхсветовой фазовой скоростью. **Первая глава** посвящена исследованию низкочастотных токов, возникающих в металле под действием наклонно падающего лазерного импульса из-за мгновенных квадратичных нелинейных эффектов – пондеромоторной силы и сходных с ней усреднённых «медленных» сил. В **разделе 1.1** показано, что уже в простейшем одночастичном описании электронного газа (без учёта градиента давления и гидродинамических особенностей движения) наличие непроницаемой границы приводит к формированию нелинейного поверхностного тока \mathbf{j}_{surf} :

$$\mathbf{j}_{surf} = \text{Re} \frac{E_{\perp}^* ie\mathbf{E}_{\tau}}{8\pi m\omega_0}, \quad (1)$$

где E_{\perp} и \mathbf{E}_{τ} – нормальная и тангенциальная компоненты вектора электрического поля на оптической частоте над границей металла, e – элементарный заряд, m – масса электрона, ω_0 – частота оптической волны. Формула (1) получена в предположении о мгновенном возникновении поверхностного заряда под действием поперечной компоненты электрического поля. Наличие тангенциальной компоненты поля \mathbf{E}_{τ} приводит к возникновению поверхностного тока (1); его усреднение по оптическому периоду даёт ненулевой результат, поскольку в общем случае E_{\perp} и \mathbf{E}_{τ} колеблются не в квадратуре. В **разделе 1.2** решена задача об излучении поверхностного тока (1), в **разделе 1.3** проанализировано низкочастотное поле в дальней зоне, получена диаграмма направленности и найдена полная энергия ТГц сигнала.

Раздел 1.4 посвящён развитию более полной – гидродинамической – модели электронного газа, в рамках которой получены несколько усреднённых низкочастотных сил. Помимо источника поверхностного тока (1) гидродинамическое описание даёт два новых типа нелинейных источников, которые можно интерпретировать как пондеромоторную силу и «давление света» на полуграниченный электронный газ (одна из компонент максвелловского тензора напряжений). В **разделе 1.5** рассмотрено излучение этих источников и показано, что все они генерируют электромагнитный импульс с одинаковой временной формой и фазой. Так, например, действие пондеромоторной силы приводит к возникновению следующего тангенциального низкочастотного электрического поля над поверхностью металла:

$$E_z = -\frac{\cos \alpha}{4ce} \frac{\partial m |\tilde{v}_z|^2}{\partial \xi}, \quad (2)$$

где α – угол падения лазерного импульса (отсчитывается от поверхности металла), $|\tilde{v}_z|^2$ – квадрат средней осцилляторной скорости электрона в металле, $\frac{\partial}{\partial \xi}$ – производная по времени в сопутствующей системе отсчёта (определяется длительностью огибающей лазерного импульса), c – скорость света в вакууме. При сравнении нелинейных источников установлено, что доминирующий вклад в ТГц сигнал в рамках модели мгновенного квадратичного отклика

вносит поверхностный ток (1), который можно получить в простейшем одно-частичном описании среды. Результаты, изложенные в разделах 1.1–1.5, были опубликованы в статьях [A1] и [A2], где также приведено подробное сравнение аналитической теории с данными численного моделирования, выполненного в ИПФ РАН Д.А. Фадеевым.

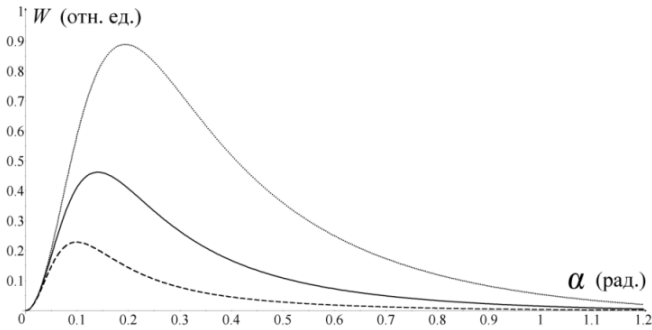


Рис. 1. Теоретическая зависимость энергии ТГц излучения от угла падения оптического импульса для металлов с разной концентрацией свободных электронов. Сдвиг максимума вправо соответствует уменьшению плазменной частоты, графики соответствуют плазменной частоте, в 5, 7 и 10 раз большей частоты лазерного излучения

Раздел 1.6 содержит обобщение развитой модели на случай полуметалла – среды с анизотропной эффективной массой носителей заряда; количественное рассмотрение опирается на хорошо известные характеристики висмута. В разделе 1.6 показано, что мгновенный квадратичный отклик висмута в оптимальной ориентации образца должен существенно превосходить отклик хорошо проводящих металлов из-за низкой эффективной массы электрона и более слабой экранировки электромагнитных полей. Эти теоретические оценки были опубликованы в работе [A5] и послужили стимулом к проведению экспериментов по оптико-терагерцовой конверсии на поверхности поли- и монокристаллического висмута [A6], [A11]. В работе [A6] была подтверждена сильная зависимость ТГц отклика висмута от ориентации кристаллографических осей образца, а также обнаружены особенности процесса конверсии, не наблюдавшиеся ранее в экспериментах с другими проводящими средами.

В **заключении по главе 1** отмечается, что рассмотренный класс моделей ТГц отклика даёт интерпретацию части экспериментальных результатов [5–7]: например, поляризации ТГц сигнала и зависимости его энергии от угла падения лазерного излучения (см. Рисунок 1). При этом мгновенный характер нелинейного отклика среды не позволяет объяснить наблюдаемую длительность сигнала, составляющую в большинстве экспериментов порядка 1 пикосекунды, что более чем на порядок превышает длительность оптического им-

пульса. Кроме того, значение энергии ТГц импульса в моделях с мгновенным квадратичным откликом оказывается существенно меньше наблюдаемого в эксперименте.

Во **второй главе** рассматривается тепловой механизм генерации ТГц отклика полугограниченного металла на воздействие фемтосекундных лазерных импульсов. В рамках этой модели генерации основным источником низкочастотной поляризации среды является продольный градиент температуры электронного газа, который возникает в процессе отражения лазерного импульса от металла из-за теплопереноса в оптическом скин-слое либо из-за охлаждения электронов при взаимодействии с кристаллической решёткой. В типичных экспериментальных условиях тепловая энергия электронов существенно превосходит осцилляторную, вследствие чего необходимо учитывать в первую очередь именно тепловые нелинейные эффекты, однако тепловой механизм генерации был предложен значительно позже моделей, основанных на пондеромоторном воздействии лазерного импульса. Кроме того, учёт нагрева электронов приводит к появлению инерционности низкочастотного отклика. Основная проблема использования тепловой модели связана с тем, что длина свободного пробега электронов сопоставима с глубиной оптического скин-слоя в большинстве металлов, вследствие чего использование уравнения диффузии для описания процессов теплопроводности в течение первых 50-100 фемтосекунд может оказаться некорректным.

Раздел 2.1 содержит решение задачи о генерации низкочастотных электромагнитных полей заданным движущимся распределением тепловой энергии электронов $\varepsilon_e(x, z - vt)$:

$$\mathbf{E} = -\frac{2}{3e} \nabla \varepsilon_e \quad (3)$$

где \mathbf{E} – электрическое поле внутри металла, оператор ∇ – градиент по пространственным координатам. Выражение (3), полученное в рамках гидродинамического описания электронов, содержит в том числе и квазистатическое электрическое поле; поле излучения над поверхностью металла задаётся тангенциальной проекцией данного выражения. Заметим, что решения (2) и (3) имеют сходный физический смысл, поскольку описывают квазистатическое электрическое поле, возникающее под действием потенциальной внешней силы – градиента осцилляторной (2) либо тепловой (3) энергии электрона.

В **разделе 2.2** рассмотрена наиболее широко используемая диффузионная модель теплопереноса в электронном газе и получена оценка на длительность терагерцового сигнала и его полную энергию. В большинстве металлов градиент температуры вблизи поверхности будет существовать в течение десятых долей пикосекунды (в зависимости от длины свободного пробега электрона), что соответствует наблюдаемой длительности терагерцовых импульсов. Характерную полную энергию терагерцового излучения можно оценить следующим образом:

$$W_{\text{THz}} \cong \frac{4\pi^2}{9} \frac{c D a^2 \varepsilon_e^2}{\text{tg}^2 \alpha e^2 l_{\text{skin}}^2} \quad (4)$$

где D – коэффициент температуропроводности электронного газа, a – радиус лазерного пучка, l_{skin} – глубина оптического скин-слоя, ε_e – характерная тепловая энергия, которую получает один электрон в процессе нагрева. В разделе 2.2 показано, что при типичных экспериментальных условиях выражение (4) даёт значение энергии ТГц сигнала, совпадающее с наблюдаемым с точностью до множителя порядка 2 (энергия ТГц сигнала до 0,2 нДж при энергии лазерного импульса 2 мДж и плотности потока энергии порядка 80 мДж/см²).

Также важно отметить, что тепловой механизм генерации позволяет объяснить сильную нелокальность ТГц отклика, которая проявляется в подавлении генерации при облучении тонкой фольги (см. [6] – эксперименты с золотой фольгой толщиной порядка 100 нм). Если электронный газ успевает прогреваться по всей толщине образца за время действия лазерного импульса, распределение температуры будет однородным по поперечной координате, и процесс диффузии тепла сильно замедлится, вследствие чего не будет формироваться продольный градиент тепловой энергии и генерация низкочастотных полей будет ослаблена.

В разделе 2.3 проведено обобщение тепловой модели генерации ТГц излучения на случай частоты столкновений электронов, зависящей от температуры. В этом случае процесс нагрева электронной подсистемы перестаёт быть квадратичным по лазерному полю, поскольку с ростом температуры поглощение оптического излучения также начинает возрастать. Поэтому экспериментальная зависимость энергии терагерцового сигнала W_{THz} от энергии лазерного импульса W_{opt} [5, 7] может быть интерпретирована как следствие температурной зависимости частоты столкновений электронов. Так, например, если частота столкновений ν задаётся степенной функцией температуры электронов T

$$\nu = \nu_0 + \beta T^n \quad (n < 2), \quad (5)$$

(где β – коэффициент, характеризующий данный металл), то при больших интенсивностях энергия ТГц излучения должна зависеть от энергии фемтосекундного оптического импульса следующим образом:

$$W_{\text{THz}} \propto W_{\text{opt}}^{\frac{4}{2-n}}. \quad (6)$$

На основе этого результата в разделе 2.3 был предложен новый метод измерения характеристик рассеяния электронов в металлах, опирающийся на измерение характеристик терагерцового отклика. Как видно из формул (5) и (6), неизвестную зависимость эффективной частоты столкновений от температуры $\nu(T^n)$ можно восстановить посредством экспериментального определения зависимости $W_{\text{THz}}(W_{\text{opt}})$.

В **заключении по второй главе** приведены основные результаты тепловой модели оптико-терагерцовой конверсии и подчёркнуто, что предложенный механизм позволяет интерпретировать наиболее сложные экспериментальные особенности ТГц отклика [5-7]: его пространственную нелокальность, пикосекундную длительность и неквадратичный характер конверсии. Основные теоретические результаты, изложенные во второй главе, опубликованы в статьях [A3] и [A4], а также в сборниках трудов и тезисов конференций [A9–A10, A12–A14].

Третья глава посвящена обобщению теплового механизма генерации ТГц излучения на случай структурированных металлов, при этом основное внимание уделено роли поверхностных плазмонов в процессе формирования ТГц отклика гофрированных поверхностей. В конце главы приведено замечание о возможности генерации ТГц излучения массивами металлических наночастиц из-за их неоднородного нагрева. В **разделе 3.1** решается задача о возбуждении поверхностного плазмона на оптической частоте лазерным импульсом, падающим под произвольным углом на гофрированную поверхность металла. Рассматривается случай малой амплитуды и малого угла наклона гофрировки: $k_0 h_0 \ll 1$, $k_g h_0 \ll 1$, где h_0 – амплитуда гофрировки, k_g и k_0 – волновые числа гофрировки и падающей оптической волны соответственно. При таком ограничении для корректного решения задачи в первом порядке малости по параметру $k_0 h_0$ необходимо учитывать семь электромагнитных волн (см. рис. 2). Полученный в разделе 3.1 ответ для амплитуды одной из дифракционных волн содержит резонансный знаменатель, обращающийся в ноль при выполнении следующего условия синхронизма:

$$k_z + k_g = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon}{\varepsilon + 1}} \equiv k_p, \quad (7)$$

где k_z – тангенциальная компонента волнового вектора падающей волны, ε – диэлектрическая проницаемость металла, k_p – волновой вектор поверхностного плазмона, который может существовать на границе металла и вакуума. Это условие соответствует синхронизму между поверхностным плазмоном и одной из дифракционных волн.

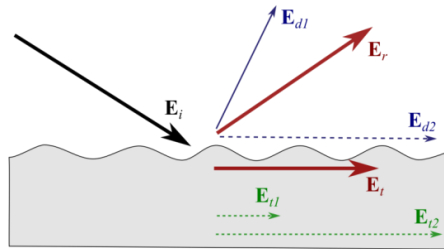


Рис. 2. Полный набор электромагнитных волн в задаче о возбуждении поверхностного плазмона падающим оптическим излучением. Жирными векторами показаны волновые вектора полей нулевого порядка малости, тонкими – первого

Далее в разделе 3.1 показано, что в условиях эксперимента амплитуда возбуждаемого поверхностного плазмона должна быть ограничена в основном из-за конечной длительности лазерного импульса (поглощение плазмона в среде оказывается менее важным фактором). В разделе 3.2 найдена временная форма волнового пакета поверхностных плазмонов при воздействии квазимонохроматического гауссова лазерного импульса, а также приведена оценка дифракционных потерь плазмона при распространении вдоль гофрированной поверхности металла. Показано, что в ряде экспериментальных условий [8, 9] (амплитуда гофрировки более 2–3% от длины волны падающего оптического излучения) перерасеяние плазмона в отражённую волну должно происходить быстрее, чем его поглощение в металле. Это может служить объяснением тому факту, что при увеличении амплитуды гофрировки металла рост энергии ТГц сигнала с некоторого момента не наблюдается [9].

В разделе 3.3 поверхностные плазмоны рассмотрены в рамках тепловой модели ТГц отклика как дополнительный канал нагрева электронной подсистемы. Выполненные оценки показали, что при типичных условиях эксперимента [8, 9] рассматриваемое дополнительное поглощение может достигать 5–10 процентов и, таким образом, превосходить собственное поглощение металла с плоской поверхностью. Доступные данные абсолютных измерений позволяют сделать вывод, что количественная оценка энергии ТГц импульса, полученная в рамках развитой модели, адекватна эксперименту как минимум по порядку величины.

Раздел 3.4 посвящён замечанию о возможности генерации ТГц излучения металлическими наночастицами из-за неоднородного нагрева электронной подсистемы и последующего перераспределения тепла. В случае несимметричной частицы треугольной формы с характерной длиной L , сообщение электронам в скин-слое тепловой энергии $\delta\varepsilon$ (на 1 частицу) должно приводить к формированию градиента температуры и, в соответствии с развитой в Главе 2 теорией, к генерации низкочастотного электрического поля:

$$E_z = \frac{2}{3e} \nabla \delta\varepsilon \approx \frac{2\delta\varepsilon}{3eL}. \quad (8)$$

В процессе распространения тепла электрическое поле и распределение заряда будут изменяться, а значит, будет изменяться поляризация всей частицы. Как любой переменный диполь, такая частица станет источником излучения, длительность которого будет определяться временем перераспределения тепла (порядка 0,1–1 пс). Данные качественные представления могут послужить основой для детального объяснения недавних экспериментов с металлическими наночастицами [10, 11], которые к настоящему моменту не получили достоверной интерпретации. Также рассмотренный эффект необходимо принимать во внимание независимо от поверхностного плазмонного резонанса в случае шероховатых поверхностей металлов из-за возникновения локального усиления поля и градиентов температуры вблизи резких неоднородностей.

Теоретические результаты, полученные в третьей главе, были опубликованы в статьях [A7, A8], сборнике тезисов [A11] и в электронном препринте [A15].

В **заключении** сформулированы основные результаты, изложенные в диссертационной работе.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ДИССЕРТАЦИИ

1. Рассмотрен мгновенный квадратичный механизм генерации терагерцового излучения при взаимодействии лазерного импульса с гладкой поверхностью металла, получены аналитические выражения для возникающих низкочастотных полей. Показано, что в рамках гидродинамического описания холодного электронного газа (с учётом только стрикционных нелинейных эффектов) удаётся качественно интерпретировать ряд экспериментально наблюдаемых особенностей оптико-терагерцовой конверсии: поляризацию и диаграмму направленности ТГц излучения, а также зависимость эффективности генерации от угла падения оптического импульса и его поляризации. Выполнено обобщение модели на случай полуметалла висмута – среды с анизотропной эффективной массой носителей заряда; показано, что при уменьшении эффективной массы электрона квадратичный нелинейный отклик резко возрастает.

2. Развита тепловая модель терагерцового отклика металла на воздействие фемтосекундных лазерных импульсов, получены аналитические выражения для электромагнитных полей, возбуждаемых градиентом температуры электронов. Продемонстрировано, что учёт неоднородного нагрева электронного газа позволяет дать объяснение запаздывающему характеру ТГц отклика и его пространственной нелокальности.

3. Показано, что найденная экспериментально зависимость энергии терагерцового сигнала от энергии лазерного импульса может быть интерпретирована как следствие температурной зависимости частоты столкновений электронов. На основе данного результата предложен новый метод определения частоты столкновений электронов в металлах, опирающийся на измерение характеристик терагерцового отклика.

4. Выполнено обобщение теплового механизма генерации ТГц излучения на случай металла с гофрированной поверхностью. Продемонстрировано, что включение поверхностных плазмонов в тепловую модель ТГц отклика в качестве дополнительного канала поглощения лазерного излучения позволяет объяснить резонансное поведение амплитуды сигнала при выполнении условий плазмонного резонанса для оптической волны и получить оценку абсолютной величины эффекта. Учёт дифракционных потерь плазмона позволяет дать интерпретацию экспериментально наблюдаемого факта – наличия определённой амплитуды гофрировки, при превышении которой энергия ТГц импульса уже не растёт при углублении гофрировки.

5. Проведён качественный анализ ТГц отклика массива металлических наночастиц на основе представлений о тепловом механизме генерации. Выполнена аналитическая оценка, показывающая, что в типичных экспериментальных условиях перераспределение тепла в металлической наночастице должно сопровождаться возникновением достаточно интенсивных полей терагерцового диапазона.

Литература

[1] Взаимодействие лазерного излучения с веществом / В. П. Вейко, М. Н. Либенсон, Г. Г. Червяков, Е. Б. Яковлев. — М. : Физматлит, 2008. — 312 с.

[2] Строганов, В. И. Нелинейная металлооптика / В. И. Строганов. — Новосибирск : Наука, 1977. — 94 с.

[3] Анисимов, С. И. Избранные задачи теории лазерной абляции / С. И. Анисимов, Б. С. Лукьянчук // Успехи физических наук. — 2002. — №172. — с. 301.

[4] Ablation of solids by femtosecond lasers: Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics / E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. Luther-Davies, V. T. Tikhonchuk // Physics of Plasmas. — 2002. — №9. — с. 949.

[5] Kadlec, F. Optical rectification at metal surfaces / F. Kadlec, P. Kuzel, J.-L. Coutaz // Optics Letters. — 2004. — Vol. 29, № 22. — P. 2674—2676

[6] Kadlec, F. Study of terahertz radiation generated by optical rectification on thin gold films / F. Kadlec, P. Kuzel, J.-L. Coutaz // Optics Letters. — 2005. — Vol. 30, № 11. — P. 1402—1404.

[7] Terahertz emission from a metallic surface induced by a femtosecond optic pulse / E. V. Suvorov, R. A. Akhmedzhanov, D. A. Fadeev, I. E. Ilyakov, V. A. Mironov, B. V. Shishkin // Optics Letters. — 2012. — Vol. 37, № 13. — P. 2520.

[8] Emission of terahertz pulses from nanostructured metal surfaces / G. K. P. Ramanandan, G. Ramakrishnan, N. Kumar, A. J. L. Adam, P. C. M. Planken // Journal of Physics D: Applied Physics. — 2014. — Vol. 47, №37. — P. 374003.

[9] Experimental characterization of bi-directional terahertz emission from gold-coated nanogratings / A. Schmidt, F. Garwe, U. Hubner, T. May, W. Paa, M. Zeisberger, G. Zieger, H. Stafast // Applied Physics B. — 2012. — Vol. 109, №4. — P. 631—642.

[10] Terahertz emission from surface-immobilized gold nanospheres / K. Kajikawa, Y. Nagai, Y. Uchiho, G. Ramakrishnan, N. Kumar, G. K. P. Ramanandan, P. C. M. Planken // Optics Letters. — 2012. — Vol. 37, № 19. — P. 4053—4055.

[11] THz Generation from Plasmonic Nanoparticle Arrays / D. K. Polyushkin, E. Hendry, E. K. Stone, W. L. Barnes // Nano Letters. — 2011. — Vol. 11, № 11. — P. 4718—4724.

Список публикаций автора по теме диссертации

[A1] Генерация терагерцевого излучения при отражении фемтосекундных лазерных импульсов от поверхности металла / В.А. Миронов, И.В. Оладышкин, Е.В. Суворов, Д.А. Фадеев // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2014. — Т. 146, вып. 2. — С. 211.

[A2], Генерация терагерцевого излучения при взаимодействии интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов с поверхностью металла / Ахмеджанов Р. А., Иляков И. Е., Миронов В. А., Оладышкин И. В., Суворов Е. В., Фадеев Д. А., Шишкин Б. В. // Известия вузов. Радиофизика. — 2014. — Т. 57, №11 — С. 902-916.

[A3] Oladyshkin I. V. Thermal mechanism of laser induced THz generation from a metal surface / I. V. Oladyshkin, D. A. Fadeev, V. A. Mironov // Journal of Optics. — 2015. — Vol.17, №7. — P. 075502.

[A4] Оладышкин И. В. Диагностика рассеяния электронов в металлах по терагерцевому отклику на фемтосекундные лазерные импульсы / И.В. Оладышкин // Письма в ЖЭТФ. — 2016. — Т.103, №7. — С.495—500

[A5] Миронов В. А. Конверсия оптического излучения в терагерцевое на поверхности полуметалла / В. А. Миронов, И. В. Оладышкин, Д. А. Фадеев // Квантовая электроника. — 2016. — Т. 46, №8. — С. 753—758.

[A6] Terahertz radiation from bismuth surface induced by femtosecond laser pulses / I. E. Ilyakov, B. V. Shishkin, D. A. Fadeev, I. V. Oladyshkin, V. V. Chernov, A. I. Okhapkin, P. A. Yunin, V. A. Mironov, R. A. Akhmedzhanov // Optics Letters. — 2016. — Vol.41, №18. — P. 4289—4292.

[A7] Fadeev D. A. Terahertz emission from metal nanoparticle array / D. A. Fadeev, I. V. Oladyshkin, V. A. Mironov // Optics Letters. — 2018. — Vol. 43. — P. 1939-1942.

[A8] Fadeev D. A. Single-cycle THz generation from nonlinear interaction of femtosecond laser pulses and directed metallic micro-particle arrays / D. A. Fadeev, I. V. Oladyshkin, V. A. Mironov // Журнал прикладной спектроскопии. — 2016. — Т. 83. — С. 209-210.

[A9] Oladyshkin I. V., Fadeev D. A., Mironov V. A. Optical-to-THz conversion and scattering in metals // Proceedings of The 17th International Conference «Laser Optics 2016».

[A10] Oladyshkin I. V., Fadeev D. A., Mironov V. A. Laser-induced THz generation and thermal effects in metals // Proceedings of the 41st International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz), 2016

[A11] Ivan Oladyshkin, Daniil Fadeev, Vyacheslav Mironov, Igor Ilyakov, Boris Shishkin, Valery Chernov, Andrey Okhapkin, Pavel Yunin, and Rinat Akhmedzhanov Mechanisms of Optical-to-THz Conversion on Metal and Semi-metal Surfaces // AIP Conference Proceedings 1874, p. 030028, 2017.

[A12] Oladyshkin I. V., Fadeev D. A., Mironov V. A. Thermal nonlinearity in metals and THz generation during the femtosecond laser pulse reflection // Pro-

ceedings of The 4th Russia-Japan-USA Symposium on Fundamental and Applied Problems of Terahertz Devices and Technologies, IMT, ISSP, Chernogolovka, Russia, 2015

[A13] Оладышкин И.В., Исследование рассеяния электронов в металлах по оптико-терагерцовой конверсии на поверхности // Сборник тезисов докладов XVII научной школы «Нелинейные Волны – 2016», Нижний Новгород, 27 февраля - 4 марта 2016.

[A14] Оладышкин И.В., Фадеев Д.А., Тепловые нелинейные эффекты в металлах и генерация терагерцового излучения фемтосекундными лазерными импульсами // Сборник трудов 20-й Сессии молодых учёных, Нижний Новгород, 2015.

[A15] Daniil Fadeev, Ivan Oladyshkin, Vyacheslav Mironov, Terahertz emission from metal nanoparticles due to ultrafast heating // электронный препринт arXiv:1712.07907 [physics.optics] (2017)

Оладышкин Иван Владимирович

**МЕХАНИЗМЫ
ОПТИКО-ТЕРАГЕРЦОВОЙ КОНВЕРСИИ
НА ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛОВ**

Автореферат

Подписано к печати 9.10.2018. Формат $60 \times 90^{1/16}$.

Усл. печ. л. 1,25. Тираж 100 экз.

Заказ № 70(2018).

Отпечатано в типографии Института прикладной физики РАН
603950 Н. Новгород, ул. Ульянова, 46