ДИНАМИКА НЕСТАЦИОНАРНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ МНОГОСЛОЙНЫХ НАНОСТРУКТУР Аg-Na₃AIF₆

О.В. Буганов, А.Д. Замковец, А.Н. Понявина, А.Д. Широканов, С.А. Тихомиров Институт физики имени Б.И. Степанова НАН Беларуси, пр. Независимости 68, 220072 Минск, Беларусь, a.zamkovets@dragon.bas-net.by

Исследована с фемтосекундным временным разрешением спектрально-временная динамика нестационарного поглощения компонентов наноструктурированных материалов – полученных термическим испарением в вакууме слоистых наноструктур Ag-Na₃AlF₆, содержащих монослои плазмонных наночастиц Ag, контактирующие с диэлектрическими пленками Na₃AlF₆ различной толщины – 10, 80 и 150 нм. Изучены особенности проявления быстропротекающих процессов релаксации энергии электронов в оптических спектрах данных наноструктур при их возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами в полосе плазмонного поверхностного резонансного поглощения. Показано, что амплитуда наведенных изменений в дифференциальных спектрах многослойных систем возрастает при увеличении поглощения системы в этой спектральной области. Характеристические времена релаксации наводимых изменений при варьировании толщины разделительных диэлектрических прослоек Na₃AlF₆ практически не изменяются и составляют ~ 2 пс.

Введение

Знание механизмов быстропротекающих процессов в наноструктурах необходимо для решения практических задач, связанных с созданием быстродействующих полностью оптических модулирующих устройств и переключателей.

До недавнего времени динамика релаксации электронных возбуждений в плазмонных наноструктурах изучалась в основном для разреженных коллоидов и нанокомпозитов с небольшой объемной концентрацией плазмонных частиц. В этом случае она определяется, главным образом, свойствами отдельных наночастиц и может зависеть как от материала частиц, так и от их размера и формы [1, 2].

Дополнительные возможности управления оптическими характеристиками плазмонных наноструктур могут возникнуть при плотной упаковке и частичном пространственном упорядочении металлических наночастиц [3], когда значимыми становятся эффекты коллективной природы.

В настоящей работе исследуется спектрально-временная динамика нестационарного поглощения многослойных наноструктур Ag-Na₃AIF₆, содержащих нанослои плазмонных наночастиц Ag, контактирующие с диэлектрическими пленками Na₃AIF₆ различной толщины – 10, 80 и 150 нм.

Методика эксперимента

Наноструктуры изготавливались термическим испарением в вакууме на установке ВУ-1А. Эксперименты по исследованию динамики электронных возбуждений в наноструктурах Ag - Na₃AIF₆ проводились с использованием фемтосекундного спектрометра по методике «возбуждениязондирования». Возбуждение проводилось на длине волны 395 нм в области коротковолнового крыла полосы поверхностного плазмонного резонансного поглощения (ППРП) исследуемых наноструктур при различных значениях времени задержки. Длительность импульса составляла ~ 140 фс, энергия импульса – 5 мкДж.

Обсуждение полученных результатов

Стационарные спектры пропускания исследованных наноструктур приведены на рис. 1. Многослойные образцы (Ag - Na₃AIF₆)⁴Ag состоят соответственно из 5 монослоев Ag и разделительных прослоек Na₃AlF₆ с толщинами ~ 10 нм (1) и ~ 80 нм (2). Система (Ag1 - Na₃AlF₆)³Ag1 представляет собой 4 монослоя Ag1, разделенные прослойками Na₃AlF₆ толщиной ~ 150 нм (3). Плотноупакованные монослои наночастиц Ag и Ag1 несколько отличаются значениями поверхностной плотности металла (ППМ). В многослойной системе все плазмонные монослои имеют одинаковые конструктивные параметры. Для всех представленных на рис. 1 слоистых наноструктур характерно наличие в видимом диапазоне полосы ППРП, полуширина которой зависит от толщины I разделительных прослоек Na₃AlF₆. Максимальная полуширина достигается в образцах с I₃ =150 нм, минимальная – с I₂ = 80 нм.



Рис. 1. Спектры пропускания слоистых наноструктур (Ag-Na₃AIF₆)⁴Ag (1, 2) и (Ag1-Na₃AIF₆)³Ag1 (3). Na₃AIF₆: I ~10 (1), ~ 80 (2) и ~150 нм (3). Ag: ППМ ~1.9 ·10 ⁻⁶ г/см², η ~ 0.4 . Ag1: ППМ ~2 ·10 ⁻⁶ г/см², η ~ 0.45

На рис. 2 представлены дифференциальные спектры поглощения наноструктур (Aa-Na₃AlF₆)⁴Ag (a, б) и (Ag1-Na₃AlF₆)³Ag1 (в), полученные при различных значениях времени задержки. Как видно из рис. 2, дифференциальные спектры многослойных наноструктур Ag-Na₃AIF₆, как и представленные в [4] спектры плотноупакованных монослоев Ag, расположенных в тонкопленочной матрице Na₃AIF₆, характеризуются наличием наведенного просветления (отрицательная величина ΔD) в спектральной области вблизи максимума полосы ППРП и появлением наведенного поглощения на ее длинноволновом крыле. Это свидетельствует об уширении полосы ППРП и уменьшении интенсивности в ее максимуме в результате воздействия фемтосекунд-

12-я Международная конференция «Взаимодействие излучений с твердым телом», 19-22 сентября 2017 г., Минск, Беларусь 12th International Conference "Interaction of Radiation with Solids", September 19-22, 2017, Minsk, Belarus



Рис. 2. Дифференциальные спектры нестационарного поглощения систем (Ag-Na₃AlF₆)⁴Ag (a, б) и (Ag1-Na₃AlF₆)³Ag1 (в). Na₃AlF₆: 10 (a), 80 и ~150 нм (в). Ag: ППМ ~1.9·10⁻⁶ г/см², $\eta \sim 0.4$. Ag1: ППМ ~2·10⁻⁶ г/см², $\eta \sim 0.45$. Е_{возб.} = 5 мкДж

пульсов на образец в полосе ППРП, приводящего к разогреву электронов в металлических наночастицах. При этом максимальные наведенные изменения достигаются в системе с разделительными прослойками Na₃AIF₆ толщиной I₂ ~ 80 нм. Оптические толщины Na₃AIF₆ в этом случае являются четвертьволновыми относительно длины волны максимума полосы ППРП соответствующего монослоя Ag ($\lambda_{max} \sim 440$ нм) и в стационарном спектре такой системы достигается наибольшее поглощение в области проявления наведенного просветления при лазерном воздействии (см. рис. 3, где приведены стационарные спектры поглощения исследованных систем). Поглощение А вычислялось по формуле A = 1 – T – R, где T и R пропускание и отражение образца. Спектры отражения записывались при угле падения излучения 20°.

В образце (Ag1-Na₃AIF₆)³Ag1 разделительные диэлектрические прослойки Na₃AIF₆ по оптической толщине близки к полуволновым слоям относительно длины волны максимума полосы ППРП соответствующего монослоя Ag1 (имеется отстройка порядка 5 % в коротковолновую область от максимума полосы ППРП, о чем свидетельствует небольшой изгиб на коротковолновом крыле спектра пропускания [5,6]). Максимум полосы наведенного просветления для данной системы приходится на область длин волн λ ~ 435 -450 нм.

Нами исследована кинетика зависимости оп-

тической плотности ΔD от времени задержки Δt,



Рис. 3. Стационарные спектры поглощения систем (Ag-Na₃AlF₆)⁴Ag (1-2). Na₃AlF₆: I ~10 (1) и ~80 (2) нм. Ag: ППМ ~1.9·10⁻⁶ г/см², $\eta \sim 0.4$; наноструктуры (Ag1-Na₃AlF₆)³Ag1 (3). Na₃AlF₆: I ~150 нм. Ag1: ППМ ~2·10⁻⁶ г/см², $\eta \sim 0.45$

измеренная, соответственно, на длине волны максимума полосы наведенного просветления исследованных систем и в области, соответствующей наведенному поглощению данных образцов (см., например, рис. 4).



Рис. 4. Кинетика зависимости ΔD на длине волны λ = 428 нм (1, 3) и λ = 440 нм (2) от времени задержки Δt для систем (Ag-Na₃AlF₆)⁴Ag (1, 3) и (Ag1-Na₃AlF₆)³Ag1 (2). Na₃AlF₆: I ~10 (1), ~80 (3) и ~150 (2) нм

Характеристические времена релаксации для всех произведенных измерений составляют ~ 2 пс и практически не зависят от толщины диэлектрических прослоек. Данные значения близки к полученным в [4] временным параметрам кинетического отклика монослоя Ag с такой же величиной ППМ на импульсное лазерное воздействие. При изготовлении многослойных систем Ад-Na₃AIF₆ использовались такие же технологические режимы, как и в [4]. Полученные результаты свидетельствуют о том, что в интервале энергий возбуждения 5-10 мкДж основное влияние на регистрируемые в пикосекундном диапазоне времена релаксации энергии электронных возбуждений в многослойных системах Ag-Na₃AlF₆ при облучении ультракороткими лазерными импульсами оказывают конструктивные параметры монослоев металлических наночастиц.

На рисунке 5 представлена зависимость амплитуды наведенного просветления при возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами от величины стационарного поглощения соответствующей многослойной системы в этом диапазоне. Точка 1 на этом рисунке характеризует па-

12-я Международная конференция «Взаимодействие излучений с твердым телом», 19-22 сентября 2017 г., Минск, Беларусь 12th International Conference "Interaction of Radiation with Solids", September 19-22, 2017, Minsk, Belarus

раметры наноструктуры (Ag1-Na₃AlF₆)³Ag1 на длине волны λ = 440 нм, а точки 2 и 3 – параметры наноструктур (Ag-Na₃AlF₆)⁴Ag с толщинами разделительных слоев Na₃AlF₆, равными соответственно 10 и 80 нм, на длине волны λ = 428 нм. Точка 1 соответствует параметрам наноструктуры (Ag1-Na₃AlF₆)³Ag1 на длине волны λ = 428 нм.



Рис. 5. Зависимость амплитуды максимального наведенного просветления от поглощения многослойной системы Ag-Na₃AIF₆ в этом диапазоне в стационарном спектре

Как видно из рисунка 5, наибольшая амплитуда оптического отклика в максимуме полосы наведенного просветления при возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами в полосе ППРП достигается в системе с четвертьволновыми (относительно длины волны максимума полосы ППРП соответствующего монослоя Ag) оптическими толщинами разделительных прослоек Na₃AlF₆. Такая система характеризуется наибольшим среди исследованных образцов стационарным поглощением излучения на длине волны максимума наведенного просветления.

В случае, когда оптические толщины разделительных прослоек в фотонно-плазмонной наноструктуре являются полуволновыми относительно длины волны λ_{max} полосы ППРП, в этой спектральной области одновременно достигаются максимум отражения наноструктуры и минимум пропускания [6]. Соответственно, поглощение такой системы на длинах волн плазмонного резонанса существенно меньше по сравнению с наноструктурой с четвертьволновыми разделительными диэлектрическими слоями, в максимуме полосы ППРП которой одновременно принимают минимальные значения как пропускание, так и отражение [6]. Однако, как показано выше, можно получить достаточно большую величину поглощения фотонно-плазмонной структуры с полуволновыми диэлектрическими прослойками, если использовать для этих целей высокую чувствительность спектрального положения ее полосы отражения к отстройке от λ_{max} . Такая отстройка даже при использовании меньшего количества плазмонных монослоев в наноструктуре позволяет получить оптический отклик, отнесенный к одному монослою плазмонных частиц, превышающий по амплитуде наблюдаемый в наноструктуре с тонкими (I₁ = 10 нм) разделительными слоями диэлектрика.

Заключение

Варьируя толщину разделительных диэлектрических прослоек Na₃AlF₆ в многослойной системе Ag-Na₃AlF₆, можно существенно изменять амплитуду оптического отклика такой системы на воздействие фемтосекундными лазерными импульсами при сохранении временных параметров этого отклика.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке БРФФИ (грант Ф16В2-003).

Список литературы

- 1. Bigot J.Y., at al. //Chem. Phys. 2000. V. 251. P. 181.
- Link S, at al. // Annu.Rev.Phys.Chem. 2003. V. 54. P. 331.
- Буганов О.В., Замковец А.Д., Понявина А.Н. и др. Сб. научн. трудов VIII Междунар. научн. конф. «Лазерная Физика и Оптические Технологии», Беларусь, Минск, 27 - 30 сентября 2010 г. Т. 2. С. 228.
- Буганов О.В., Замковец, А.Д., Понявина А.Н. и др. // ЖПС. 2011. Т. 78. № 5. С. 735.
- Kachan S.M., Ponyavina A.N. // Proc. SPIE. 2002. V. 470. P. 588.
- 6. Понявина А.Н., Замковец А.Д., Качан С.М., Сильванович Н.И. // ЖПС. 2003. Т. 70. С. 526.

DYNAMICS OF THE TRANSIENT ABSORPTION OF MULTILAYER Ag-Na₃AIF₆ NANOSTRUCTURES

 O.V. Buganov, A.D. Zamkovets, A.N. Ponyavina, A.D. Shirokanov, S.A. Tikhomirov B.I. Stepanov Institute of Physics NAS of Belarus, 68 Nezavisimosti ave., 220072 Minsk, Belarus, a.zamkovets@dragon.bas-net.by

Spectral-temporal dynamics of the transient absorption of nanostructured material components such as the layered Ag Na_3AIF_6 nanostructures made by a thermal evaporation in a vacuum have been studied. The nanostructures contained the Ag plasmonic nanoparticles monolayers contacting with dielectric Na_3AIF_6 films of the different thickness of 10, 80 and 150 nm. The features of the manifestation of the fast processes of electron energy relaxations at the spectra of these nanostructures under the femtosecond pulsed laser excitation at the band of the surface plasmon resonance of absorption have been studied. It is shown that an amplitude of the changes induced in the differential spectra of the multi-layered systems increases at the increase of absorption of the system in this spectral region. Characteristic times of the induced change relaxation at varying of a thickness of dividing dielectric Na_3AIF_6 layers don't practically change and are about 2 ps.

12-я Международная конференция «Взаимодействие излучений с твердым телом», 19-22 сентября 2017 г., Минск, Беларусь 12th International Conference "Interaction of Radiation with Solids", September 19-22, 2017, Minsk, Belarus