На правах рукописи

life

Щербак Сергей Александрович

Электродинамическое моделирование резонансных оптических структур

специальность: 01.04.07 – физика конденсированного состояния

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2019

Работа выполнена в федеральном государственном бюджетном учреждении высшего образования и науки «Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет Российской академии наук»

Научный руководитель:	Липовский Андрей Александрович профессор, доктор физико-математических наук
Официальные оппоненты:	Аверкиев Никита Сергеевич профессор, доктор физико-математических наук, ФГБУН Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Россий- ской академии наук, заведующий сектором теории оптических и электрических явле- ний в полупроводниках
	Чербунин Роман Викторович доцент, кандидат физико-математических наук, Санкт-Петербургский государственный университет, доцент кафедры физики твёрдого тела Физического факультета

 Ведущая орга Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

 низация:
 Институт проблем машиноведения Российской академии наук

Защита состоится <u>"24" октября 2019 г</u>. в <u>14-00</u> час. на заседании диссертационного совета <u>Д 002.269.01</u> при федеральном государственном бюджетном учреждении высшего образования и науки «Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет Российской академии наук» по адресу: 194021, Санкт-Петербург, ул. Хлопина, д.8, корпус 3, лит. А.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Академического Университета и на сайте <u>http://www.spbau.ru</u> в разделе «Диссертационный совет».

Автореферат разослан "____ 2019 г.

Ученый секретарь диссертационного совета Д 002.269.01

,Mg

Максимов М.В.

доктор физико-математических наук

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. В последние десятилетия благодаря развитию нанотехнологий существенно возросло использование нано- и микроструктур, поддерживающих оптические резонансы различного рода. Избирательность по длине волны света и резонансное локальное возрастание электрических полей световой волны обусловливают эффективность применения таких наноструктур в сенсорике [1; 2], нелинейной оптике [3] и лазерных технологиях [4; 5]. В соответствии с материалом, из которого сформированы структуры, различают плазмонные (металлические) и пространственные (диэлектрические) резонансы.

Плазмонные резонансы характерны для металлических наночастиц и наноструктур и связаны с колебаниями электронной плотности металла под действием электромагнитного поля световой волны. При возбуждении плазмонных резонансов индуцируются высокие значения локальных полей [6]. Благодаря этому такие наноструктуры могут использоваться для повышения эффективности фотокатализа [7], в нелинейной оптике [3; 8], в сенсорах [2; 9; 10] и рамановской спектроскопии [11; 12]. Длина волны плазмонного резонанса существенно зависит от материала наночастиц, их размера, формы и окружения. В исследованиях [13; 14] рассматриваются плазмонные свойства наночастиц различного размера и формы, однако многообразие вариаций плазмонных наноструктур оставляет широкое поле для дальнейших исследований. Так, например, до настоящего времени исследователями уделяется мало внимания анализу влияния диэлектрического покрытия на плазмонные свойства металлических наноостровковых плёнок, одного из широко распространенных типов наноструктур, которые формируются за счет самоорганизации.

В диэлектрических и полупроводниковых структурах резонансный эффект возникает за счёт интерференции отражённых от поверхности световых лучей определённой длины волны (собственной частоты) и формирования стоячей световой волны. Отсутствие омических потерь в диэлектриках и возможность относительно простой интеграции диэлектрических и полупроводниковых микрорезонаторов с полупроводниковыми микросхемами делает их перспективными объектами для формирования узлов внутричиповых оптических каналов связи. Последние десятилетия большое количество работ посвящено экспериментальному и теоретическому исследованию дисковых и кольцевых микролазеров [4; 15–17], резонаторы которых поддерживают оптические моды шепчущей галереи (МШГ). Отличительная особенность этих мод – исключительно высокая добротность, результатом чего является формирование спектрально-узких лазерных линий и, соответственно, возможность повышения ёмкости информационных каналов, использующих излучение микродисковых и микрокольцевых лазеров в качестве оптической несу-

щей. Однако другие перспективные структуры, такие как кольцевые резонаторы с прямыми секциями (так называемые racetrack-резонаторы), напоминающие по форме беговую дорожку на стадионе, до настоящего времени оставались практически без внимания; а priori предполагалось, что их модовая структура наследует свойства модовой структуры кольцевых резонаторов. Внимание к подобным резонаторам обусловлено, в первую очередь, возможностью их эффективной связи с оптическими передающими линиями.

ров. Блимание к подоолым резонаторам обусловлено, в первую о переды, воз можностью их эффективной связи с оптическими передающими линиями. Интересными для современной фотоники, но малоизученными являются наноструктуры, сочетающие в себе несколько различных оптических резонансов – бирезонансные структуры. Так, например, недавно было предложено использовать взаимодействие МШГ с плазмонными модами расположенной у края резонатора наноантенны для вывода излучения из микродискового лазера [18]. Однако ассоциируемое с плазмонным резонансом увеличение поглощения такой наноантенной приведёт к дополнительным потерям излучения в бирезонансной структуре. В этой связи представляет интерес применение резонансных диэлектрических наноантенн, не вносящих в структуру дополнительных потерь. Такие наноантенны обладают пространственными резонансами – резонансами Ми в случае сферической формы – и также могут использоваться для эффективного вывода лазерного излучения из резонаторов на модах шепчущей галереи.

также могут использоваться для эффективного вывода лазерного излучения из резонаторов на модах шепчущей галереи. Особый интерес бирезонансные наноструктуры представляют для нелинейной оптики. Ряд выполненных работ был направлен на исследование генерации второй оптической гармоники (ГВГ) частицами с диэлектрическим ядром и металлической оболочкой [19–21]. Однако возможность повышения эффективности нелинейного преобразования за счет использования сочетания плазмонного резонанса оболочки с пространственным резонансом в ядре практически не обсуждалась, так как поглощающая металлическая оболочка подавляет резонирующее в ядре электромагнитное поле. Соответственно, итоговое увеличение сигнала второй гармоники (ВГ) в первую очередь определяется плазмонным резонансом оболочки. Перспективными являются «обратные» структуры – металлическое ядро в диэлектрической оболочке, которые ранее не рассматривались, несмотря на возможность увеличения нелинейного сигнала за счёт сочетания плазмонного и диэлектрического резонансов.

В настоящей диссертационной работе теоретически анализируются резонансные свойства описанных выше оптических структур, что и определяет <u>актуальность</u> выполненного диссертационного исследования.

Целью настоящей работы является теоретический анализ резонансных оптических структур: плазмонных металлических частиц с диэлектрическим покрытием и резонаторов с модами шепчущей галереи, а также бирезонансных структур, в частности, микродисковых лазеров с резонансными диэлектрическими наноантеннами и частиц типа металлическое ядро – диэлектрическая оболочка.

В ходе исследования решались следующие задачи:

- Построение полуаналитической модели, описывающей плазмонные свойства покрытых диэлектриком металлических наночастиц формы усечённой сферы.
- 2. Анализ особенностей генерации второй гармоники наноостровковой плёнкой золота под диэлектрическим покрытием.
- 3. Численный анализ МШГ в дисковых, кольцевых и racetrack диэлектрических микрорезонаторах.
- Исследование структур, представляющих собой микродисковый лазер с расположенной на его поверхности диэлектрической резонансной наноантенной.
- 5. Построение аналитической модели ГВГ сферическими наночастицами с металлическим ядром и диэлектрической оболочкой, сочетающих плазмонный и пространственный резонансы.

Методы исследования

В настоящей работе для теоретического исследования резонансных характеристик оптических структур использовались аналитические, полуаналитические и численные методы:

- Для исследования плазмонных свойств наночастиц усечённой сферической формы использовался полуаналитический метод множественных мультиполей.
- Исследование МШГ в дисковых, кольцевых и racetrack микрорезонаторах и их связи с диэлектрическими резонансными наноантеннами проводилось численно методом конечных элементов, реализованном в вычислительном пакете COMSOL Multiphysics.
- Для аналитического рассмотрения ГВГ сферическими наночастицами с металлическим ядром и диэлектрической оболочкой использовалась нелинейная теория Ми.

Научная новизна

- Впервые построена модель, описывающая плазмонные свойства имеющих форму усечённой сферы и покрытых диэлектрическим слоем конечной толщины металлических наноостровков на подложке.
- Продемонстрирован и теоретически описан новый эффект возрастание сигнала второй гармоники от наноостровковой плёнки золота при увеличении толщины покрывающего диэлектрического слоя вне зависимости

от положения плазмонного резонанса частицы относительно длины волны второй гармоники падающего излучения.

- Впервые проанализированы особенности распределений электромагнитных полей собственных мод гасеtrack оптических микрорезонаторов. Теоретически исследована связь МШГ в микродисковых резонаторах с диэлектрическими резонансными наноантеннами. Впервые показана возможность модовой селекции по поляризации при использовании таких наноантенн: ТЕ моды взаимодействуют исключительно с электрическими резонансами наноантенны, ТМ – с магнитными.
- Разработана новая аналитическая модель, описывающая генерацию второй оптической гармоники сферической наночастицей с металлическим ядром и диэлектрической оболочкой. Впервые показано, что за счёт сочетания плазмонного резонанса ядра с пространственным резонансом оболочки эффективность ГВГ может увеличиваться на несколько порядков по сравнению с непокрытыми металлическими частицами.

Теоретическая и практическая значимость

Построенная теоретическая модель плазмонных свойств металлических наночастиц усечённой сферической формы, покрытых диэлектриком, предлагает подход к оптимизации металлических наноостровковых плёнок с покрытием для увеличения чувствительности биосенсинга и повышения сигнала в рамановской спектроскопии. Продемонстрированное и объясненное в диссертационной работе увеличение эффективности ГВГ в десятки раз за счет нанесения диэлектрической оболочки на металлические наночастицы вне зависимости от соотношения длины волны возбуждения и длины волны плазмонного резонанса частиц существенно для нелинейной наноплазмоники. В частности, это относится к нелинейной спектроскопии, поскольку, например, позволяет отказаться от использования перестраиваемых лазеров. Первое описание структуры оптических мод racetrack резонаторов, а также анализ особенностей селективного вывода излучения из микродисковых лазеров через резонансную диэлектрическую наноантенну обеспечивает возможность разработки микрооптических систем, содержащих такие структуры, для внутричиповой оптической коммуникации. Разработанная аналитическая модель ГВГ сферическими наночастицами с диэлектрическим ядром и металлической оболочкой, показывающая, что сочетание плазмонного резонанса ядра с пространственным резонансом в оболочке усиливает сигнал второй гармоники на несколько порядков, позволяет предложить такие бирезонансные структуры для многократного увеличения эффективности сенсоров на основе нелинейного рассеяния.

Основные положения, выносимые на защиту

- Длина волны плазмонного резонанса имеющих форму усечённой сферы и покрытых слоем диэлектрика металлических наноостровков на диэлектрической подложке смещается в красную область с увеличением толщины покрытия. Величина смещения достигает 100 нм для золотых и серебряных наночастиц, покрытых диоксидом титана, при толщине покрытия, равном двум-трём радиусам частицы.
- Эффективность генерации второй оптической гармоники золотыми наночастицами с диэлектрическим покрытием монотонно возрастает в несколько десятков раз при увеличении толщины покрытия независимо от положения плазмонного резонанса частицы относительно длины волны второй гармоники падающего излучения.
- Моды первого радиального порядка в кольцевых оптических резонаторах с прямой секцией имеют зигзагообразную траекторию, для мод второго радиального порядка характерно перераспределение интенсивности между радиальными максимумами вдоль периметра резонатора.
- Диэлектрические покрытия микродисковых лазеров, как однородные, так и конечной толщины, подавляют лазерную генерацию на модах старших радиальных порядков, тем самым уменьшая количество излучаемых лазером мод.
- 5. Выбором радиального положения резонансной диэлектрической наноантенны на поверхности микродиского оптического резонатора можно добиться преимущественного вывода излучения мод определённого радиального номера.

Личный вклад автора заключается в разработке теоретических моделей, описывающих резонансные характеристики плазмонных наноструктур и диэлектрических микрорезонаторов дисковой, кольцевой и гасеtrack форм, а также характеристики бирезонансных структур. Все математические выкладки и численные расчёты, представленные в диссертации, были проведены непосредственно автором. Анализ экспериментальных данных, использованных для верификации теоретических результатов, преимущественно выполнен автором диссертации.

<u>Достоверность</u> изложенных в диссертации теоретических моделей подтверждается их хорошим согласованием с экспериментальными данными, а предельные случаи построенных моделей совпадают с известными литературными данными.

<u>Апробация</u>

Результаты диссертации были доложены на 13 конференциях международного и всероссийского уровня, включая 1st-5th International School and Conference "Saint-Petersburg OPEN"; International Youth Conference "PhysicA.SPb/2015"; XII Международная конференция "Прикладная оптика – 2016"; III Всероссийский научный форум "Наука будущего – наука молодых 2017"; 13th International Young Scientist Conference Developments in Optics and Communications (Рига, Латвия); 25th International Symposium "Nanostructures: Physics and Technology 2017"; Conference on Lasers and Electro-Optics "CLEO: Applications and Technology 2018" (San Jose, United States); Progress in Electromagnetics Research Symposium "PIERS2018" (Toyama, Japan).

<u>Публикации</u>

По материалам диссертации опубликовано <u>14</u> работ в англоязычных изданиях, индексируемых в базах данных Scopus и Web of Science и входящих в перечень ВАК:

- Kryzhanovskaya N.V. 3.5-µm Radius Race-Track Microlasers Operating At Room Temperature With 1.3-µm Quantum Dot Active Region / N. V. Kryzhanovskaya, Yu. S. Polubavkina, <u>S. A. Scherbak</u>, E. I. Moiseev, V. V. Zhurikhina, F. I. Zubov, A. A. Lipovskii, M. M. Kulagina, S. I. Troshkov, Yu. M. Zadiranov, M. V. Maximov, A. E. Zhukov // Journal of Applied Physics. – 2017. – Vol. 121. – № 4. – P. 1-7.
- Scherbak S.A. Tuning Plasmonic Properties of Truncated Gold Nanospheres by Coating / <u>S. Scherbak</u>, N. Kapralov, I. Reduto, O. Svirko, A. Lipovskii // Plasmonics. – 2017. – Vol. 12. – № 6. – P. 1903-1910.
- Scherbak S.A. Electric Properties of Hemispherical Metal Nanoparticles: Influence of the Dielectric Cover and Substrate / <u>S. A. Scherbak</u>, O. V. Shustova, V. V. Zhurikhina, A. A. Lipovskii // Plasmonics. 2015. Vol. 10. № 3. P. 519-527.
- Scherbak S.A. Plasmonic properties of metal nanoislands: Practical guide / <u>S.</u> <u>A. Scherbak</u>, A.A. Lipovskii // Journal of Applied Physics. – 2016. –Vol. 119. – № 16. – P. 163106.
- Chervinskii S. Nonresonant Local Fields Enhance Second-Harmonic Generation from Metal Nanoislands with Dielectric Cover / S. Chervinskii, K. Koskinen, <u>S. Scherbak</u>, M. Kauranen, A. Lipovskii // Physical Review Letters. 2018. Vol. 120. № 11. P. 113902.
- Heisler F. Resonant Optical Properties of Single Out-Diffused Silver Nanoislands / F. Heisler, E. Babich, <u>S. Scherbak</u>, S. Chervinskii, M. Hasan, A. Samusev, A. Lipovskii // The Journal of Physical Chemistry C. – 2015. – Vol. 119. – № 47. – P. 26692-26697.

- Babich E.S. Raman enhancement by individual silver hemispheroids / E. Babich, A. Redkov, I. Reduto, <u>S. Scherbak</u>, A. Kamenskii, A. Lipovskii // Applied Surface Science. – 2017. – Vol. 397. – P. 119-124.
- Scherbak S.A. Electric properties of hemispherical metal nanoparticles: Influence of the dielectric substrate / <u>S. A. Scherbak</u>, O. V. Shustova, V. V. Zhurikhina, A. A. Lipovskii // Journal of Physics: Conference Series. 2014. Vol. 541. № 1. P. 012077.
- Babich E. S. Resonant properties of coupled silver hemispheroids / E. S. Babich, <u>S. A. Scherbak</u>, A. V. Redkov, A. N. Kamenskii, I. V. Reduto, A. A. Lipovskii // Journal of Nanophotonics. 2017. Vol. 11 № 1. P. 032503.
- Raskhodchikov A. V. Numerical simulation of eigenmodes of ring and racetrack optical microresonators / A. V. Raskhodchikov, D. V. Raskhodchikov, <u>S.</u> <u>A. Scherbak</u>, A. A. Lipovskii // Journal of Physics: Conference Series. – 2017. – Vol. 917. – № 6. – P. 062040.
- Polubavkina Yu. S. Investigation of whispering gallery modes in microlasers by scanning near-field optical microscopy / Yu. S. Polubavkina, N. V. Kryzhanovskaya, A. M. Nadtochiy, A. M. Mintairov, A. A. Lipovsky, <u>S. A.</u> <u>Scherbak</u>, M. M. Kulagina, M. V. Maximov, A. E. Zhukov // Journal of Physics: Conference Series. – 2017. – Vol. 917. – № 5. – P. 052036.
- Raskhodchikov A. V. Dielectric surrounding decimates eigenmodes of microdisk optical resonators / A. V. Raskhodchikov, <u>S. A. Scherbak</u>, N. V. Kryzhanovskaya, A. E. Zhukov, A. A. Lipovskii // Journal of Physics: Conference Series. – 2018. – Vol. 1124. – № 5. – P. 051031.
- Kryzhanovskaya N. Enhanced light outcoupling in microdisk lasers via Si spherical nanoantennas / N. Kryzhanovskaya, Yu. Polubavkina, E. Moiseev, M. Maximov, V. Zhurikhina, <u>S. Scherbak</u>, A. Lipovskii, M. Kulagina, Y. Zadiranov, I. Mukhin, F. Komissarenko, A. Bogdanov, A. Krasnok, A. Zhukov // Journal of Applied Physics. – 2018. – Vol. 124. – № 16. – P. 163102.
- Scherbak S.A. Understanding the Second-Harmonic Generation Enhancement and Behavior in Metal Core–Dielectric Shell Nanoparticles / <u>S.A. Scherbak</u>, A.A. Lipovskii // The Journal of Physical Chemistry C. – 2018. – Vol. 122. – № 27. – P. 15635-15645.

Структура и объём диссертации

Диссертация состоит из введения, четырёх глав, приложения, заключения и списка литературы, включающего 121 наименование. Работа изложена на 147 страницах формата А4 и включает 49 рисунков и 2 таблицы.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы, описаны объект и предмет исследования, сформулированы задачи и цели работы, ее научная новизна и практическая значимость полученных результатов, приведены положения, выносимые на защиту и краткая информация о содержании работы.

Первая глава «Металлические и диэлектрические резонансные структуры: свойства, задачи и методы анализа» посвящена обзору результатов исследований плазмонных и резонансных диэлектрических структур и используемых в таких исследованиях методов. В частности, рассматриваются исследования Kelly [13] и Noguez [14], посвященные зависимости плазмонных свойств наночастиц от их материала, формы, размера и окружения. Отмечается теория Винда [22; 23], которая описывает поляризуемость металлической усечённой сферы на подложке. Рассматриваются подробный обзор Крыжановской [24], посвященный микродисковым лазерам для оптической связи, и пионерская теоретическая работа Li [17], описывающая модовую структуру таких резонаторов. Большое внимание уделяется детальным работам Дадапа [25; 26], в которых подробно рассматривается теория генерации второй гармоники сферическими частицами, а также более поздним работам Butet [19; 20], которые посвящены ГВГ металлическими нанооболочками

Во второй главе «Плазмонные свойства металлических наноостровков» теория Винда [22; 23], описывающая поляризуемость металлической усечённой сферы на подложке, расширена для учёта диэлектрического покрытия металлической наночастицы. В этой главе анализируется положение поверхностного плазмонного резонанса (ППР) в зависимости от степени усечения сферы и от толщины диэлектрического покрытия. На Рисунке 1 приведены серии рассчитанных зависимостей положения резонанса серебряных (а) и золотых (b) частиц радиусом 10 нм в зависимости от толщины покрытия диоксида титана (ε_{coat} =5.5) для углов усечения частиц 0° (сфера), 60° и 90° (полусфера), лежащих на стеклянной подложке (ε_{sub} =2.25).



Рисунок 1 – Зависимости положения плазмонного резонанса от толщины диэлектрического покрытия для серебряных (а) и золотых (b) наноостровков на подложке. Точки – экспериментальные результаты; сплошные линии – расчётные кривые для углов усечения 0° (сфера), 60° и 90° (полусфера).

Помимо расчетов были проведены измерения спектрального положения плазмонного резонанса серебряных наноостровков, образованных методом обратной диффузии, и золотых наночастиц, образованных термическим испарением, под покрытием диоксида титана различной толщины. Экспериментальные точки также приведены на Рисунке 1. На основе сравнения расчётных и экспериментальных результатов были сделаны выводы о форме серебряных и золотых наноостровков, сформированных на поверхности стеклянной подложки.

Также на основе построенной модели в этой главе приводится объяснение нового для нелинейной наноплазмоники эффекта: возрастание сигнала второй гармоники, генерируемого золотой наноостровкой плёнкой, при увеличении толщины диэлектрического покрытия, реализующегося несмотря на увеличивающееся рассогласование плазмонного резонанса и длины волны второй гармоники (532 нм) при возбуждении наночастиц лазером на длине волны 1064 нм. Длина волны ППР золотых наноостровков без покрытия составила ~525 нм, а при увеличении толщины покрытия резонанс монотонно смещался до ~620 нм. Таким образом, уже при покрытии толщиной в не-



Рисунок 2 – Экспериментальная зависимость мощности сигнала ВГ от толщины покрытия. Рядом с каждой точкой указано отличие длины волны плазмонного резонанса от 532 нм.

сколько нанометров резонанс частиц проходил через длину волны второй гармоники 532 нм, на которой интенсивность сигнала ВΓ должна была продемонстрировать резонансное увеличение. Дальнейшее увеличение толщины TiO₂покрытия сдвигало длину волны ППР в красную область по отношению к длине волны ВГ, что, как ожидалось, должно было привести к падению интенсивности ВГ. Однако экспериментальные результаты показали обратное – интенсивность сигнала ВГ монотонно росла с увеличением толщины покрытия вплоть до ~50 раз по отношению к

непокрытым частицам, несмотря на увеличивающееся рассогласование длин волн ВГ и ППР – Рисунок 2 (мощность нормирована на сигнал ВГ от непокрытых частиц).



Рисунок 3 — Влияние покрытия TiO_2 на спектры локального поля у поверхности золотых наноостровков на стеклянной подложке. Отношение толщины покрытия к радиусу частицы, h/R, обозначено на графике рядом с соответствующей кривой.

Это явление основано на том, что ГВГ зависит и от электрического поля на удвоенной (околорезонансной) частоте $E_{2\omega}$, так и от нерезонансного фундаментального поля E_{ω} в соответствии с выражением [27]:

$$W_{2\omega} \sim \left| E_{2\omega} \right|^2 \left| E_{\omega} \right|^4, \tag{1}$$

Выполненный расчёт показывает, что с увеличением толщины покрытия помимо сдвига ППР в красную область растёт амплитуда резонанса, что видно из Рисунка 3, где приведены спектры локального поля у поверхности



Рисунок 4 — Расчётная зависимость мощности сигнала ВГ от толщины покрытия. Вставка — амплитуды электрических полей E_{ω} и $E_{2\omega}$ в зависимости от толщины покрытия.

золотых наноостровков при различных толщинах покрытия. Существенно, что это относиться не только к амплитуде резонанса, но также и к "хвостам" резонансной кривой – на вставке на Рисунке 3 видно, что локальное электрическое поле на основной длине волны 1064 нм монотонно увеличивается с толщиной покрытия. В рамках построенной модели были рассчитаны зависимости E_{ω} и $E_{2\omega}$ от толщины покрытия (вставки на Рисунке 4), а также в соответствии с выражением (1) построена результирующая зависимость, приведённая на Рисунке 4. Показано, что на результирующей зависимости отсутствует пик, соответствующий плазмонному резонансу. Таким образом нерезонансный монотонный рост E_{ω} , возводимого в четвёртую степень, доминирует над резонансным поведением $E_{2\omega}$, которое возводится только во вторую. Это приводит к монотонному росту сигнала ВГ при увеличении толщины покрытия.

<u>Третья глава</u> «Оптические моды шепчущей галереи в диэлектрических резонаторах дисковой, кольцевой и racetrack формы» посвящена



Рисунок 5 – Примеры распределения модуля электрического поля мод первого (а) и второго (b) радиальных порядков в racetrack-резонаторах.

численному анализу оптических мод шепчущей галереи диэлектрических микрорезосоответствующей наторов Установлено, формы. что моды в racetrack-резонаторах не являются симметричными модами шепчущей галереи, как в дисковых и кольцевых резонаторах. Моды первого радиального порядка в гасеtrack-резонаторах, как показано на Рисунке 5а, имеют «зигзагообразное», т.е. ос-

циллирующее между стенками резонатора, распределение. Для мод второго радиального порядка (Рисунок 5b) имеет место периодическое перераспределение интенсивности между радиальными максимумами. Конкретный харак-



Рисунок 6 – Эволюция модовых спектров микродискового резонатора при увеличении показателя преломления окружения.

тер таких распределений зависит от геометрических параметров резонатора. Важно отметить, что ничего подобного в дисковых и кольцевых микрорезонаторах не наблюдается.

В диссертационной работе также рассматривается эволюция спектров МШГ при увеличении показателя преломления окружения микродискового резонатора (см. Рисунок 6). Продемонстрировано, что микрорезонатор с диэлектрическим покрытием перестаёт поддерживать МШГ старших радиальных порядков. Причина этого – нарушение для этих мод условия полного внутреннего отражения на интерфейсе микродиск-окружение. Аналогичный результат также был получен для микродисковых резонаторов с диэлектрическими покрытиями конечной толщины.

Помимо этого, рассматривается вывод излучения из микродисковых резонаторов с помощью сферической диэлектрической наноантенны. Продемонстрировано, что эффективность вывода излучения МШГ микродиска такой наноантенной в зависимости от её положения качественно повторяет радиальное распределение электромагнитного поля мод (Рисунок 7). Следовательно, выбором положения наносферы на поверхности микродиска можно добиться преимущественного переизлучения МШГ определённого радиального порядка. Кроме этого, впервые показано, что МШГ ТЕ-поляризации взаимодействуют исключительно с электрическими резонансами Ми наноантены, а ТМ – с магнитными.



Рисунок 7 – Интенсивность переизлучения МШГ микродиска сферической диэлектрической наноантенной в зависимости от её положения относительно края микродиска.

В четвёртой главе «Генерация второй оптической гармоники сферическими наночастицами с металлическим ядром и диэлектрической оболочкой» представлена соответствующая аналитическая теория, построенная на основе нелинейной теории Ми [19]. Получены общие выражения, описывающие мощность сигнала второй гармоники для произвольных размеров ядра и оболочки и произвольного количества мультипольных слагаемых. Также для малых частиц и с учётом только дипольного и квадрупольного вкладов получено советующее предельное выражение:

$$W_{2\omega} = \frac{cK_{out}^4}{15\varepsilon_{out}(2\omega)^{3/2}} \left| \frac{\varepsilon_{core}(2\omega)}{\varepsilon_{shell}(2\omega)} \right|^2 \left(5|p_0|^2 + \frac{1}{6}K_{out}|iq_0|^2 \right), \tag{2}$$

где ε_{core} , ε_{shell} , ε_{out} – диэлектрические проницаемости ядра, оболочки и окружения, p_0 и q_0 – эффективные дипольный и квадрупольный моменты ВГ, определяемые выражениями:

$$p_0 = \frac{8\pi i}{15} k_{out} a^3 E_0^2 \chi_{\perp \perp \perp}^s L_{E1}(\omega) L_{E2}(\omega) L_{E1}(2\omega) , \qquad (3)$$

$$q_0 = \frac{16\pi}{5} a^3 E_0^2 \chi_{\perp\perp\perp}^s L_{E1}(\omega) L_{E1}(\omega) L_{E2}(2\omega) , \qquad (4)$$

kout и Kout – волновые векторы основной волны и волны ВГ в окружающем пространстве, *a* – радиус частицы, $\chi_{\perp\perp\perp}^{s}$ – единственная принимаемая ненулевой компонента тензора поверхностной квадратичной восприимчивости, L_{F1} и L_{E2} – коэффициенты усиления локального поля дипольной (E1) и квадрупольной (E2) модами на основной (ω) или удвоенной (2 ω) частотах. Примечательно, что предельные выражения (2-4) совпадают с выражениями, полученными в классических работах Дадапа [25, 26], посвящённых ГВГ металлической сферой, отличаясь лишь коэффициентами усиления локального поля: в данном случае они берутся для частицы типа «ядро-оболочка», а не просто для металлической наносферы. Это говорит о том, что частицы с металлическим ядром и диэлектрической оболочкой наследуют общие нелинейные свойства простых металлических наносфер. В частности, важно отметить, что даже для малых частиц принципиален учёт квадрупольного вклада, так как сферическая симметрия запрещает чисто дипольный механизм ГВГ, когда две дипольных моды основной частоты рождают дипольную же моду удвоенной частоты.



Рисунок 8 – Спектр общей мощности сигнала ВГ, а также по отдельности дипольного (d) и квадрупольного (q) вкладов. Вставки – советующие резонансам диаграммы направленности излучения ВГ.

Ha первом шаге для анализа резонансных свойств, проявляющихся при ГВГ сферической плазмонной наночаисследуются стицей. спектральные зависимости сигнала ВГ частицы из Друде-металла (у=10¹⁴ сек⁻¹, λ_{p} =300 нм) без покрытия (Рисунок 8). В частности, рассматриваются 4 резонанса в спектре мощности ВГ: 1 и 2 – дипольный и квадрупольный резонансы волны ВГ; пики 3 и 4 соответствуют дипольному и квадрупольному резонансам основной волны. При этом резонанс ВГ считается дипольным или квадру-

польным в зависимости от типа участвующей в нелинейном процессе моды ВГ, и в этом смысле резонансы 1 и 2 являются чисто дипольным и кварупольным, соответственно. Резонансы же 3 и 4 – комбинированные. В общем случае они имеют оба вклада, обозначенных, соответственно, 3d, 3q, 4d и 4q (d – диполь, q – квадруполь). Вставки на Рисунке 8 иллюстрируют диаграммы направленности излучения.

В рамках разработанной теории исследуются спектральные зависимости сигнала второй гармоники для металлических частиц с диэлектрическими оболочками различной толщины. Важно отметить, что представленные предельные выражения (2-4) удобны для применения, но для возможности анализа волновых эффектов в толстых оболочках в данной работе все расчёты проводились с использованием общих выражений. На Рисунке 9а представлены спектры ГВГ частицами с золотым ядром и оболочкой диоксида титана. На Рисунке 9b – зависимость мощности ГВГ от толщины оболочки при фиксированной длине волны.



Рисунок 9. Зависимость мощности сигнала ВГ: а) от длины волны возбуждения для различных толщин оболочки (подписаны рядом с кривыми), на вставке – соответствующие линейные спектры; b) от толщины покрытия при фиксированной длине волны 1064 нм.

Основное внимание уделяется, во-первых, тому, что каждый спектр ГВГ для частицы с более толстой оболочкой лежит полностью выше спектра частицы с более тонкой оболочкой. Это, как и то, что зависимость на Рисунке 8b не имеет выраженных плазмонных резонансов и монотонно растёт, подтверждает вывод, сделанный во второй главе настоящей диссертации о том, что для золотых частиц увеличение толщины оболочки обеспечивает повышение сигнала ВГ вне зависимости от положения резонанса относительно длины волны возбуждения. Во-вторых, вклад в ГВГ такими слоистыми частицами дают и плазмонные резонансы ядра, и пространственные резонансы оболочки. При этом в оболочке может резонировать как волна удвоенной частоты, так и основная волна. Увеличение эффективности ГВГ за счёт и плазмонных, и пространственных резонансов может достигать 6-7 порядков по отношению к непокрытым нерезонансым металлическим частицам.

<u>В приложении</u> приводятся подробности решения линейной задачи Ми для двух концентрических шаров, включая конечные выражения для коэф-

фициентов разложения электромагнитных полей по векторным сферическим гармоникам во всех областях пространства: в ядре, оболочке и внешнем окружении. Выводится выражение для полной мощности сигнала ВГ, полу-чаемое интегрированием вектора Умова-Пойнтинга волны ВГ по замкнутой поверхности, окружающей частицу. Также демонстрируются дисперсионные зависимости диэлектрических проницаемостей используемых материалов.

В заключении приводятся основные результаты работы:

- Разработана полуаналитическая теория поляризуемости металлических наноостровков усечённой сферической формы на подложке, покрытых слоем диэлектрика конечной толщины.
- Выявлено, что увеличение степени усечения наночастиц смещает плаз-монный резонанс в длинноволновую область, как и диэлектрическое покрытие. На основе сравнения результатов расчёта и экспериментов оценена форма металлических наноостровков: полусферическая для серебря-ных наноостровков, полученных методом обратной диффузии, и усечён-ная сферическая с углом усечения 60° для золотых, полученных термическим испарением.
- Впервые продемонстрировано, что эффективность генерации второй оп-тической гармоники золотой наноостровковой плёнкой с диэлектриче-ским покрытием монотонно растёт с увеличением толщины покрытия вне зависимости от положения плазмонного резонанса частицы относительно длины волны второй гармоники падающего излучения.
- По результатам численного моделирования впервые обнаружено, что мо-ды racetrack-резонаторов не являются классическими модами шепчущей галереи. Распределение их электромагнитного поля существенно несимметрично, и для их формирования принципиально наличие внутренней стенки.
- стенки. Установлено, что диэлектрическое покрытие микрорезонаторов приводит к прореживанию модового спектра микролазеров на их основе, подавляя МШГ старших радиальных порядков. Показано, что выбором положения резонансной сферической наноантен-ны на поверхности диска можно добиться её связи с МШГ определённого радиального порядка, при этом МШГ различной поляризации (ТМ и ТЕ) взаимодействуют исключительно с соответствующими резонансами Ми наносферы: ТМ с магнитными, ТЕ с электрическими. Разработана строгая аналитическая теория генерации второй оптической гармоники сферическими наночастицами с металлическим ялром и ли-
- гармоники сферическими наночастицами с металлическим ядром и диэлектрической оболочкой.
- Показано, что в таких структурах и плазмонный резонанс ядра, и про-странственный резонанс Ми оболочки многократно усиливают генерацию второй оптической гармоники. Суммарное увеличение эффективности

ГВГ может достигать 6-7 порядков по отношению к непокрытым нерезонансным металлическим частицам.

 На основе разработанной строгой теории подтверждён вывод о том, что для золотых частиц увеличение толщины оболочки обеспечивает повышение сигнала ВГ вне зависимости от положения резонанса относительно длины волны возбуждения.

Список используемых источников:

- Vollmer F. Whispering-gallery-mode biosensing : label- free detection down to single molecules / F. Vollmer, S. Arnold. – 2008. – Vol. 5. – № 7. – P. 591-596.
- Biosensing with plasmonic nanosensors / J.N. Anker [et al.] // Nature Materials. – 2008. – Vol. 7. – № 6. – P. 442-453.
- Kauranen M. Nonlinear plasmonics / M. Kauranen, A. V. Zayats // Nature photonics. – 2012. – Vol. 6. – P. 737-748.
- 4. Whispering-gallery mode microdisk lasers / S.L. McCall [et al.] // Applied Physics Letters. 1992. Vol. 60. № 3. P. 289-291.
- 5. Demonstration of a spaser-based nanolaser / M.A. Noginov [et al.] // Nature. 2009. Vol. 460. № 27. P. 1110-1112.
- 6. Electromagnetic fields around silver nanoparticles and dimers / E. Hao [et al.] // Journal of Chemical Physics. 2004. Vol. 120. P. 357-366.
- Linic S. Plasmonic-metal nanostructures for efficient conversion of solar to chemical energy / S. Linic, P. Christopher, D.B. Ingram // Nature Materials. – 2011. – Vol. 10. – № 12. – P. 911-921.
- 8. High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement / S. Kim [et al.] // Nature. 2008. Vol. 453. P. 757-760.
- Prabowo B. Surface Plasmon Resonance Optical Sensor: A Review on Light Source Technology / B. Prabowo, A. Purwidyantri, K.-C. Liu // Biosensors. – 2018. – Vol. 8. – № 3. – P. 80.
- 10. Hutter E. Exploitation of Localized Surface Plasmon Resonance / E. Hutter, J.H. Fendler // Advanced Materials. 2004. Vol. 16. № 19. P. 1685-1706.
- Moskovits M. Surface-enhanced spectroscopy / M. Moskovits // Reviews of modern physics. – 1985. – Vol. 57. – № 3. – P. 783-826.
- Willets K.A. Localized Surface Plasmon Resonance Spectroscopy and Sensing / K.A. Willets, R.P. Van Duyne // The Annual Review of Physical Chemistry. – 2007. – Vol. 58. – P. 267-297.
- The optical properties of metal nanoparticles: The influence of size, shape, and dielectric environment / K.L. Kelly [et al.] // Journal of Physical Chemistry B. – 2003. – Vol. 107. – № 3. – P. 668-677.
- 14. Noguez C. Surface Plasmons on Metal Nanoparticles: The Influence of Shape and Physical Environment / C. Noguez // The Journal of Physical Chemistry C.

– 2007. – Vol. 111. – № 10. – P. 3806-3819.

- 15. Threshold characteristics of semiconductor microdisk lasers / R.E. Slusher [et al.] // Applied Physics Letters. 1993. Vol. 63. № 10. P. 1310-1312.
- Frateschi N.C. Resonant modes and laser spectrum of microdisk lasers / N.C. Frateschi, A.F.J. Levi // Applied Physics Letters. – 1995. – Vol. 66. – № 22. – P. 2932-2934.
- 17. Li B. Numerical Analysis of the Whispering Gallery Modes by the Finite-Difference Time-Domain Method / B. Li, P. Liu // IEEE Journal of Quantum Electronics. – 1996. – Vol. 32. – № 9. – P. 1583-1587.
- Light Outcoupling from Quantum Dot-Based Microdisk Laser via Plasmonic Nanoantenna / E.I. Moiseev [et al.] // ACS Photonics. – 2017. – Vol. 4. – № 2. – P. 275-281.
- 19. Nonlinear Mie theory for the second harmonic generation in metallic nanoshells / J. Butet [et al.] // Journal of the Optical Society of America B. – 2012. – Vol. 29. – № 8. – P. 2213-2221.
- 20. Effect of the dielectric core and embedding medium on the second harmonic generation from plasmonic nanoshells: Tunability and sensing / J. Butet [et al.] // Journal of Physical Chemistry C. 2013. Vol. 117. № 2. P. 1172-1177.
- Wunderlich S. Plasmonic enhancement of second harmonic generation on metal coated nanoparticles / S. Wunderlich, U. Peschel // Optics Express. – 2013. – Vol. 21. – № 16. – P. 18611.
- 22. Wind M.M. The Polarizability of a Truncated Sphere on a Substrate I / M.M. Wind, J. Vlieger, D. Bedeaux // Physica. 1987. Vol. 141A. P. 33-57.
- 23. The Polarizability of a Truncated Sphere on a Substrate II / M.M. Wind [et al.]. - 1987. - Vol. 143A. - P. 164-182.
- 24. Крыжановская Н.В. Лазеры на основе квантовых точек и микрорезонаторов с модами шепчущей галереи / Н.В. Крыжановская, М.В. Максимов, А.Е. Жуков // Квантовая электроника. – 2014. – Vol. 44. – Р. 189-200.
- 25. Second-Harmonic Rayleigh Scattering from a Sphere of Centrosymmetric Material / J.I. Dadap [et al.] // Physical Review Letters. 1999. Vol. 83. № 20. P. 4045-4048.
- 26. Dadap J.I. Theory of optical second-harmonic generation from a sphere of centrosymmetric material: small-particle limit / J.I. Dadap, J. Shan, T.F. Heinz // Journal of the Optical Society of America B. 2004. Vol. 21. № 7. P. 1328-1347.
- Shahbazyan T. V. Plasmonics : Theory and Applications / T. V. Shahbazyan, M.I. Stockman. – Springer Netherlands, 2013. – 577 p.