

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М.В.ЛОМОНОСОВА

ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

Кройчук Мария Кирилловна

**Генерация третьей оптической гармоники
и усиление фотолюминесценции квантовых точек
в полупроводниковых кластерах наночастиц
с резонансами типа Ми**

1.3.19 — лазерная физика

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук,
профессор А.А. Федянин

Москва — 2023

Оглавление

Введение	6
Глава I	
Обзор литературы	14
1. Оптический магнетизм и отрицательный показатель преломления	14
2. Резонансы Ми-типа в наночастицах из материалов с высоким показателем преломления	16
3. Эффекты ближнепольной оптической связи в метаструктурах	20
4. Нелинейно-оптические эффекты в резонансных наноструктурах из материалов с высоким показателем преломления	24
5. Коллективные оптические моды в диэлектрических олигомерах.	28
6. Структурированный свет	31
7. Эффекты взаимодействия пучков структурированного света с нанотонными объектами	34
8. Однофотонные источники и их взаимодействие с оптическими системами	37
Глава II	
Коллективные моды полупроводниковых олигомеров при возбуждении линейно поляризованным излучением и анизотропия третьей оптической гармоники	42
1. Идея задачи: картинка и смысл	42
2. Экспериментальные образцы.	42
2.1. Методы изготовления.	43
2.2. SEM характеристика	43
3. Линейная спектроскопия олигомеров	44
3.1. Линейная установка спектроскопии рассеяния в геометрии на пропускание	44
3.2. Спектры пропускания и анализ их характерных особенностей	46
4. Численный расчет спектров пропускания образцов.	49
4.1. Сравнение экспериментальных и численных результатов для определения типа возбуждаемого резонанса.	49
4.2. Спектры для разных расстояний между нанодисками олигомеров и их ближнепольное взаимодействие	51

4.3. Изотропия линейного отклика при повороте поляризации на 360 градусов	53
5. Анизотропия третьей оптической гармоники	54
5.1. Установка нелинейной микро-спектроскопии	54
5.2. Методика измерений с картинкой микроскопии олигомера	55
5.3. Доказательство детектирования третьей оптической гармоники	57
5.4. Анизотропия третьей гармоники от квадрумера, тримера и мономера.	57
6. Численный анализ анизотропии сигнала.	63
6.1. Описание моделирования нелинейного отклика	63
6.2. Сравнение резонансных квадрумера, тримера и мономера.	64
6.3. Зависимость анизотропии третьей гармоники от расстояния между наночастицами и диаметра наночастиц для тримера и квадрумера.	65
6.4. Доказательство влияния локального взаимодействия наночастиц на анизотропию третьей гармоники	66
6.5. Вывод аналитической формулы для анизотропии третьей гармоники для тримера и квадрумера через нелинейные восприимчивости	67
7. Выводы	70

Глава III

Возбуждение коллективных мод полупроводниковых олигомеров векторными пучками и усиление третьей оптической гармоники	71
1. Идея задачи: картинка и смысл	71
2. Численный разбор возбуждения коллективных мод олигомера.	72
2.1. Спектры рассеяния при возбуждении квадрумера излучением с различной поляризацией. Обсуждение особенностей в спектрах.	72
2.2. Распределение электромагнитного поля в резонансных точках спектра и обсуждение возбуждения коллективных мод	74
2.3. Добротности коллективных мод квадрумера, возбуждаемых излучением с различными поляризациями	76
2.4. Распределение электромагнитного поля в сечении квадрумера для разных расстояний между нанодисками. Доказательство влияния коллективного взаимодействия на возбуждение коллективной магнитной моды.	77

3. Обсуждение типов поляризации и способа создания векторных пучков .	77
3.1. Про метод работы жидко-кристаллического поляризатора	77
4. Экспериментальные установки для исследования линейного и нелинейного отклика олигомеров	79
4.1. Установка спектроскопии линейного рассеяния для характеристики образцов	79
4.2. Установка нелинейной микроспектроскопии: изменения относительно предыдущей главы	81
4.3. Обсуждение изменения методики относительно предыдущей главы	82
5. Экспериментальные результаты	85
5.1. Линейные спектры квадрумеров	85
5.2. Усиление ТГ для разной поляризации для резонансного квадрумера. Обсуждение возникновения резонансов в спектре	86
5.3. Усиление ТГ для разной поляризации для нерезонансного квадрумера. Исчезновение эффекта из-за отсутствия мод Ми-типа	87
5.4. Усиление ТГ для разной поляризации для тримера	88
5.5. ТГ для разной поляризации для подложки. Доказательство влияния коллективных эффектов в наноструктурированном объекте	90
6. Численное моделирование усиления ТГ и разбор эффектов	91
6.1. Численный анализ экспериментального усиления ТГ	91
6.2. Расчет усиления ТГ для одиночного мономера	92
7. Выводы	93

Глава IV

Коллективные моды олигомеров для усиления фотолуминесценции квантовых точек **95**

1. Идея задачи: картинка и смысл	95
2. Экспериментальные образцы GaAs на подложке из GaAs	96
2.1. Методы изготовления экспериментальных образцов	96
2.2. Характеризация экспериментальных образцов с помощью СЭМ .	97
2.3. Изображения образцов, полученные на оптическом микроскопе .	98
2.4. Установка спектроскопии рассеяния в геометрии на отражение . .	98
2.5. Спектры рассеяния отдельных квадрумеров с КТ. Обсуждение возбуждаемых Ми-резонансов и зависимости их положения от диаметров нанодисков	100
2.6. Обсуждение типа возбуждаемого резонанса для линейной поляризации	101

3. Экспериментальное исследование квантовых точек в образцах	103
3.1. Установка микро-фотолюминесценции.	103
3.2. Микро-фотолюминесценция квантовых точек в сплошной среде и сравнение с излучением после создания квадрумеров	104
4. Основные экспериментальные результаты при возбуждении олигомеров линейно поляризованным излучением.	106
4.1. Усиление ФЛ для фиксированного квадрумера и линии излучения КТ	106
4.2. Увеличение интенсивности ФЛ КТ при приближении квадрумера к резонансному для КТ	108
5. Численный анализ экспериментальных результатов	109
5.1. Увеличение локализации поля в объеме наночастиц в магнитной дипольной моде и изменение спектрального положения максимума локализации при изменении размеров наночастиц	109
5.2. Метод моделирования ФЛ КТ через диполи в объеме нанодисков	111
5.3. Изменение направленности излучения диполя при пересечении с магнитной дипольной модой квадрумера	112
5.4. Обсуждение влияния азимутальной поляризации накачки на ин- тенсивность ФЛ КТ и преимущества такой системы	113
5.5. Численное сравнение возбуждения азимутальной и линейной по- ляризацией	113
6. Использование образцов с прослойкой из AlGaO.	114
6.1. Обсуждение необходимости перехода на образцы с большей доб- ротностью мод за счет диэлектрической прослойки.	114
6.2. Численное сравнение возбуждения азимутальной и линейной по- ляризацией	115
7. Выводы	117
Заключение	118
Список литературы	120

Введение

Диссертационная работа посвящена экспериментальному исследованию нелинейно-оптических эффектов в кластерах полупроводниковых наночастиц с резонансами типа Ми, а также их взаимодействия с излучением квантовых точек. Изучается генерация третьей оптической гармоники (ТГ) при возбуждении олигомеров из четырех (квадрумер) или трех (тример) наночастиц из аморфного кремния (α -Si) линейной (ЛП) или азимутальной (АП) поляризациями лазерного импульса. Особое внимание уделяется рассмотрению оптической связи наночастиц в ближнем поле, в результате которой возникают коллективные резонансы в спектре рассеяния наноструктур. Отдельно рассматривается влияние коллективных оптических мод полупроводниковых олигомеров на эффективность фотолюминесценции (ФЛ) квантовых точек (КТ) из арсенида индия (InAs), расположенных в объеме олигомеров из арсенида галлия (GaAs).

Актуальность выбранной темы обусловлена активным использованием наночастиц субволнового размера для управления оптическим излучением на нанометровых масштабах. При этом реализация новых активных устройств нанофотоники, способных контролируемо управлять светом, требует разработки структур с высокой эффективностью нелинейно-оптического отклика. В частности, для преобразования частоты света могут быть использованы эффекты генерации оптических гармоник. Для усиления нелинейных эффектов на субмикронных масштабах активно применяется усиление электрических полей в металлических структурах за счет их резонансного оптического отклика. Однако, наблюдаемая эффективность нелинейного частотного преобразования в плазмонных наноструктурах остается небольшой, порядка $\sim 10^{-11}$, главным образом за счет омических потерь.

На смену металлическим аналогам пришли материалы с высоким показателем преломления, которые будут исследоваться в рамках данной работы. Известно, что в полупроводниках и диэлектриках могут возбуждаться электрические и магнитные резонансы типа Ми. Спектральное положение резонансов зависит от материала, геометрических размеров объектов и их взаимного расположения. При сближении резонансных наночастиц между ними может возникать ближнепольное взаимодействие, проявляющееся в изменении или усилении нелинейно-оптического отклика наноструктур и возникновении резонансов типа Фано в спектрах рассеяния. Это происходит благодаря возбуждению в кластерах наночастиц коллективных оптических мод. Поскольку оптический отклик олигомеров наночастиц обладает узкими спектральными особенностями, данные системы имеют широкую область применения: от детектирования в медицине до сбора солнечной энергии. Однако, коллективные моды, приводящие к возникновению Фано-резонансов, сложно выделить и

исследовать в линейном отклике без прямых измерений локальных полей, что заметно усложняет изучение подобных систем. Возможность исследовать локальное взаимодействие наночастиц в дальнем поле по модуляции интенсивности сигнала ТГ будет впервые рассмотрено в настоящей диссертации. В наночастицах с высоким показателем преломления в спектральной области магнитного дипольного резонанса типа Ми происходит сильная локализация поля в объеме наноструктуры, что, соответственно, приводит к росту эффективности нелинейного отклика, в свою очередь чувствительного к распределению электромагнитного поля в объеме образцов.

Наиболее эффективно коллективные моды олигомеров возбуждаются в том случае, когда симметрия пучка совпадает с симметрией оптической моды. Например, теоретически показано, что при освещении системы нормально падающими АП пучком возможно возбуждение коллективной магнитной моды наносистемы. Данная мода характеризуется сильной локализацией электромагнитного поля в объеме образца, что перспективно для нелинейной оптики. Однако, экспериментальное возбуждение коллективной оптической моды одиночного полупроводникового кластера из четырех наночастиц нормально падающим лазерным импульсом и ее влияние на интенсивность ТГ до сих пор не исследовалось.

Важной областью применения полупроводниковых наночастиц с высоким показателем преломления является их объединение с квантовыми источниками фотонов, например КТ, для изменения оптических свойств последних. Ми-резонансные структуры действуют как наноантенны, изменяя исходно симметричную картину излучения КТ, увеличивая тем самым количество фотонов, достигающих детектора. С другой стороны, наличие коллективных мод диэлектрических структур влияет на количество фотонов, поглощаемых КТ, и, следовательно, на интенсивность их ФЛ. Таким образом, объединение КТ с олигомерами наночастиц с резонансами типа Ми позволяет контролировать интенсивность источников фотонов на наномасштабе. Важно отметить, что всестороннее исследование влияния коллективных мод полупроводниковых олигомеров на измеряемую интенсивность ФЛ КТ проводится в рамках настоящей работы, насколько известно, впервые.

Степень разработанности темы говорит о практической важности исследования и позволяет выработать всесторонний взгляд на проблему и подходящую методологию для получения решения. Однако, остаются аспекты, требующие дальнейшего научного изучения.

Цели и задачи

Цель диссертационной работы состоит в экспериментальном исследовании особенностей генерации третьей оптической гармоники от изолированных кластеров по-

лупроводниковых наночастиц с резонансами типа Ми при различных условиях их возбуждения, а также изучении фотолюминесценции квантовых точек при использовании олигомеров из материала с высоким показателем преломления и коллективных оптических мод в них.

Задачи, сформулированные в рамках поставленной цели, следующие.

1. Экспериментальное обнаружение, численное исследование и теоретическое обоснование анизотропии сигнала третьей оптической гармоники от полупроводниковых олигомеров с различной геометрической симметрией.
2. Исследование эффекта усиления генерации третьей оптической гармоники от изолированных полупроводниковых олигомеров при возбуждении в них коллективной магнитной моды нормально падающим азимутально поляризованным лазерным пучком.
3. Исследование влияния коллективных резонансов в полупроводниковых олигомерах на измеряемую фотолюминесценцию квантовых точек, помещенных в объем образцов.

Научная новизна работы состоит в следующем.

1. Экспериментально обнаружена азимутальная зависимость от вращения поляризации интенсивности третьей оптической гармоники в олигомерах их трех и четырех наночастиц из аморфного кремния, что ранее демонстрировалось только для плазмонных систем. Получено значение модуляции интенсивности и показана зависимость периода модуляции интенсивности нелинейного отклика от симметрии экспериментального образца. Систематически исследовано влияние взаимодействия наночастиц в ближнем поле на возникновение эффекта.
2. Обнаружено увеличение интенсивности третьей оптической гармоники от изолированных кремниевых квадрумеров при их возбуждении нормально падающим азимутально поляризованным лазерным пучком относительно неструктурированного материала и других поляризаций накачки. Показано, что на рост интенсивности нелинейного отклика влияет возникновение в олигомере коллективной магнитной моды, ранее исследованной только для массивов нанообъектов и линейной поляризации накачки. Коллективная магнитная мода характеризуется локализацией электромагнитного поля в объеме образца на длине волны накачки.
3. Показано усиление фотолюминесценции квантовых точек при их возбуждении на длинах волн коллективных резонансов полупроводниковых нанокластеров

из арсенида галлия. Предложено использовать олигомеры как наномантенны для излучения квантовых точек для улучшения сбора полезного сигнала.

Теоретическая и практическая значимость работы заключается в потенциальном использовании полученных результатов для разработки и создания оптических устройств на основе полупроводниковых наночастиц. Зависимость интенсивности ТГ от длины волны и поляризации возбуждающего излучения может быть использована для создания фотонных наноразмерных частотных преобразователей. Кроме того, полученные результаты можно применить для детектирования и анализа поведения микроскопических систем, а также ближнепольных эффектов в них с помощью нелинейно-оптических методов. Усиление ФЛ КТ в нанорезонаторах поможет повысить эффективность однонаправленных наномантенн, в том числе однофотонных источников с оптической накачкой.

Методология диссертационного исследования

В работе используются следующие методы исследования.

- Для исследования генерации третьей оптической гармоники использовалась экспериментальная установка нелинейно-оптической микро-спектроскопии в схеме на пропускание, позволяющая производить картирование сигнала ТГ, а также изменять тип и вращать поляризацию возбуждающего излучения.
- Для проведения экспериментов с квантовыми точками применялась установка микро-фотолюминесценции в схеме на отражения, в которой образцы помещались в гелиевый криостат проточного типа.
- Оптическая характеристика образцов проводилась на установках линейной спектроскопии в схеме на пропускание или спектроскопии рассеяния в темном поле в схеме на отражение.
- Геометрия образцов исследовалась при помощи оптической, атомно-силовой и сканирующей электронной микроскопии.
- Численные расчеты распределения электромагнитных полей и линейных оптических спектров были проведены методом конечных разностей во временной области.
- Численные расчеты нелинейного отклика образцов и спектров фотолюминесценции КТ были проведены методом конечных элементов.

Личный вклад

Личный вклад автора является определяющим и включает в себя проведение аналитических и численных расчетов, сборку и юстировку экспериментальных установок, автоматизацию измерений, получение и обработку экспериментальных данных. Все результаты работы получены либо лично автором, либо при его непосредственном участии.

Объект и предмет исследования

В роли объектов исследования в данной работе выступают изолированные кластеры из трех или четырех наночастиц из полупроводниковых материалов (α -Si, GaAs), квантовые точки интегрированные в объем наноструктурированных систем и коллективные резонансы на основе мод Ми-типа. Предметом исследования являются эффекты генерации третьей оптической гармоники в олигомерах из материалов с высоким показателем преломления и фотолюминесценции квантовых точек, объединенных с близко расположенными наночастицами.

Положения, выносимые на защиту:

1. ТГ от олигомеров близко расположенных наночастиц из α -Si в дальнем поле обладает анизотропией относительно вращения поляризации возбуждающего излучения на длине волны МД резонанса, повторяющей симметрию экспериментальных образцов. Модуляция интенсивности ТГ достигает 45%.
2. Возбуждение коллективных магнитных мод в квадрумерах азимутально поляризованным излучением вблизи МД резонанса наночастиц приводит к увеличению генерации ТГ. Для образцов из α -Si экспериментальное увеличение интенсивности ТГ составляет два порядка величины по сравнению с неструктурированной пленкой или линейной поляризацией возбуждающего пучка.
3. Возбуждение коллективных резонансов в квадрумерах из близко расположенных наночастиц из GaAs приводит к увеличению измеряемой интенсивности ФЛ КТ, помещенных в объем образца, при накачке КТ ниже порога насыщения. Для АП накачки численное усиление ФЛ КТ относительно неструктурированной пленки достигает четырехсот раз.

Достоверность результатов

Результаты, представленные в настоящей работе, были получены на современном экспериментальном оборудовании, воспроизводятся при повторении измерений, на-

ходятся в согласии с результатами расчетов и не противоречат существующим литературным данным. Результаты численного моделирования сохраняются при уменьшении шага сетки и замене программного пакета. Методология расчетов согласуется с известными научными подходами. Указанные факторы свидетельствуют о высокой степени достоверности представляемых результатов.

Апробация работы

Результаты настоящей диссертации докладывались на следующих международных научных конференциях.

- Дамир Ф. Ягудин, Мария К. Кройчук, Александр С. Шорохов. *"Усиление фотолюминесценции квантовых точек в олигомерах GaAs нанодисков с помощью коллективных магнитных мод"*, Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых учёных «Ломоносов-2020», Москва, Россия, 10-27 ноября 2020 (соавтор);
- Maria K. Kroychuk et al. *"Nonlinear Light Generation Driven by Collective Magnetic Modes in Oligomers of Silicon Nanoparticles Excited by Vector Beams"*, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), Сан-Хосе, США, 11-15 мая 2020 (устно онлайн);
- Maria K. Kroychuk et al. *"Collective Mode Excitation in Clusters of Semiconductor Nanopillars with Embedded Quantum Dots by Azimuthally Polarized Vector Beams"*, The Third International School on Quantum Technologies, Сочи, Россия, 26 февраля - 4 марта 2020 (постер);
- Maria K. Kroychuk et al. *"Nonlinear Optical Effects in Isolated Oligomers of Mie-Resonant Nanoparticles Excited by Gaussian and Vector Beams"*, Russian-German Week of the Young Researcher, Москва, Россия, 26 сентября 2020 (постер и устно);
- Maria K. Kroychuk et al. *"Quantum Dot Emission Driven by Collective Modes Excitation in Mie-Resonant Oligomers by Azimuthally Polarised Cylindrical Vector Beams"*, The Second International School on Quantum Technologies, Сочи, Россия, 2 - 7 марта 2019 (постер);
- Дамир Ф. Ягудин, Мария К. Кройчук, Александр С. Шорохов. *"Возбуждение коллективной магнитной моды в кластерах нанодисков из арсенида галлия азимутально поляризованными векторными пучками"*, Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых учёных «Ломоносов-2019», Москва, Россия, 11 апреля 2019 (соавтор);

- Maria K. Kroychuk et al. "*Third - Harmonic Microscopy of Mie-Resonant Dielectric Oligomers*", 10th International Conference on Materials for Advanced Technologies ICMAT 2019, Сингапур, 23-28 июня 2019 (постер);
- Damir F. Yagudin et al. "*Collective Magnetic Modes Excitation in GaAs Nanoclusters by Azimuthally Polarized Vector Beams*", IV International Conference on Metamaterials and Nanophotonics METANANO 2019, Санкт-Петербург, Россия, 15-19 июля 2019 (соавтор);
- Maria K. Kroychuk et al. "*Local Field Coupling Effects in Silicon Oligomers Revealed by Third-Harmonic Generation Microscopy*", SPIE Photonics Europe 2018, Страсбург, Франция, 22-26 апреля 2018 (устно);
- Дамир Ф. Ягудин, Мария К. Кройчук, Александр С. Шорохов. "*Нелинейная микроскопия олигомеров кремниевых нанодисков*", Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых учёных «Ломоносов-2018», МГУ имени М.В. Ломоносова, Россия, 10-11 апреля 2018 (соавтор);
- Maria K. Kroychuk et al. "*Nonlinear Anisotropy in Silicon Nanoparticle Oligomers*", International Conference on Metamaterials and Nanophotonics METANANO - 2017, Владивосток, Россия, 18-22 сентября 2017 (постер).

Основные результаты опубликованы в 3-х статьях в рецензируемых научных журналах, индексируемых Web of Science и Scopus.

- M.K. Kroychuk, D.F. Yagudin, A.S. Shorokhov, D.A. Smirnova, I.i. Volkovskaya, M.R. Shcherbakov, G. Shvets, Y.S. Kivshar, A.A. Fedyanin Tailored Nonlinear Anisotropy in Mie-Resonant Dielectric Oligomers // *Advanced Optical Materials*.— 2019. — v. 7. — p. 1900447, Impact Factor 9.926.
- M.K. Kroychuk, A.S. Shorokhov, D.F. Yagudin, D.A. Shilkin, D.A. Smirnova, I. Volkovskaya, M.R. Shcherbakov, G. Shvets, A.A. Fedyanin Enhanced Nonlinear Light Generation in Oligomers of Silicon Nanoparticles under Vector Beam Illumination // *Nano Letters*.— 2020. — v. 20. — p. 3471 - 3477, Impact Factor 11.189.
- M.K. Kroychuk, A.S. Shorokhov, D.F. Yagudin, M.V. Rakhlin, G.V. Klimko, A.A. Toropov, T.V. Shubina, A.A. Fedyanin Quantum Dot Photoluminescence Enhancement in GaAs Nanopillar Oligomers Driven by Collective Magnetic Modes // *Nanomaterials*.— 2023. — v. 13(3). — p. 507, Impact Factor 4.921

Другие публикации по теме диссертации.

- *M.K. Kroychuk, A.S. Shorokhov, D.F. Yagudin, D.A. Smirnova, I. Volkovskaya, M.R. Shcherbakov, G.Shvets, A.A. Fedyanin* Nonlinear Light Generation Driven by Collective Magnetic Modes in Oligomers of Silicon Nanoparticles Excited by Vector Beams // *CLEO: QELS Fundamental Science*.— 2020— paper FTh4C.3.
- *D.F. Yagudin, M.K. Kroychuk, A.S. Shorokhov, A. A. Fedyanin* Collective Magnetic Modes Excitation in GaAs Nanoclusters by Azimuthally Polarized Vector Beams // *Journal of Physics*.— 2020. — v. 1461. — p. 012192.
- *А.Д. Гартман, М.К. Кройчук, А.С. Шорохов, А.А. Федянин* Эффективная Интеграция Однофотонных Излучателей в Тонких Пленках InSe с Резонансными Кремниевыми Волноводами // *Письма в "Журнал экспериментальной и теоретической физики"*.— 2020 — v. 112. — p. 730-735.
- *M.K. Kroychuk, A.S. Shorokhov, A.A. Fedyanin* Electro-Optical Modulation in Waveguides of Mie-Resonant Nanoparticle Chains Combined with Quantum Wells // *AIP Conference Proceedings*.— 2020 — v. 2300. —
- *M.K. Kroychuk, A.S. Shorokhov, D.F. Yagudin, A.A. Fedyanin* Local Field Coupling Effects in Silicon Oligomers Revealed by Third-Harmonic Generation Microscopy // *Metamaterials XI*.— 2018 — v. 10671. — p. 7-14.
- *M.K. Kroychuk, A.S. Shorokhov, D.F. Yagudin, A.A. Fedyanin* Nonlinear Anisotropy in Silicon Nanoparticle Oligomers // *AIP Conference Proceedings*.— 2017 — v. 1874. — p. 040023 .

Автором диссертации получен 1 патент.

- Патент 2773389, Интегральный оптический сенсор для определения содержания примесей в газо-воздушных средах, *М.К. Кройчук, А.Ф. Новоселов, А.С. Шорохов, А.А. Федянин*, 03.06.2022.

Глава I

Обзор литературы

1. Оптический магнетизм и отрицательный показатель преломления

Электрическая и магнитная компонента световой волны имеет различную эффективность взаимодействия с веществом: обыкновенный материал лучше «чувствует» электрическое поле. Влияние магнитного поля на атом пропорционально магнетрону Бора $\mu_b = \frac{e\hbar}{2m_e c} = \frac{\alpha e a_0}{2}$, где e – заряд электрона, \hbar – постоянная Планка, m_e – масса электрона, a_0 – боровский радиус электрона, $\alpha = \frac{1}{137}$ – постоянная тонкой структуры. Получается, что индуцированный магнитный диполь зависит от α . Электрическое взаимодействие пропорционально дипольному моменту атома, которое можно оценить как $e a_0$. Таким образом, эффекты в природных материалах, связанные с магнитной восприимчивостью, оказываются примерно в α^2 раз слабее эффектов, связанных с диэлектрической проницаемостью. По этой причине встречающиеся в природе магнитные резонансы возникают лишь на относительно низких частотах. Указанная проблема решается созданием искусственно структурированных материалов, которые благодаря своей геометрии делают возможным эффективное взаимодействие как электрического, так и магнитного поля с мета-атомом. Показатель преломления является одной из наиболее фундаментальных характеристик распространения излучения в среде. Поэтому создание объектов с отрицательным показателем преломления, не достижимым в природных структурах, дало начало истории развития метаматериалов.

Показатель преломления является комплексным числом $n = n' + in''$, где мнимая часть n'' характеризует поглощение в веществе, а действительная часть n' дает отношение фазовой скорости света в вакууме к фазовой скорости в среде [1]. В материалах с отрицательным показателем преломления направление фазовой скорости противоположно направлению распространения электромагнитной энергии, а на границе раздела между обычным материалом и метаматериалом свет преломляется в то же полупространство относительно нормали к границе раздела, где находится падающее излучение. Подобные материалы могут использоваться, например, для создания линз, способных превзойти критерий Релея [2]. Оптические свойства этих веществ определяются двумя материальными константами: магнитной восприимчивостью μ и диэлектрической проницаемостью ε , описывающими отклик структуры на магнитное и электрическое поле, соответственно. Если $\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon''$ и $\mu = \mu' + i\mu''$ удовлетворяют соотношению $\varepsilon' | \mu' | + \mu'' | \varepsilon'' | < 0$, то реальная часть показателя преломления такой изотропной структуры оказывается отрицательной [1]. Как было

сказано выше, взаимодействие материалов на оптических частотах с магнитной составляющей света является слабым, поэтому исследователи начали разрабатывать структуры, создающие синтетический магнитный отклик на высоких частотах.

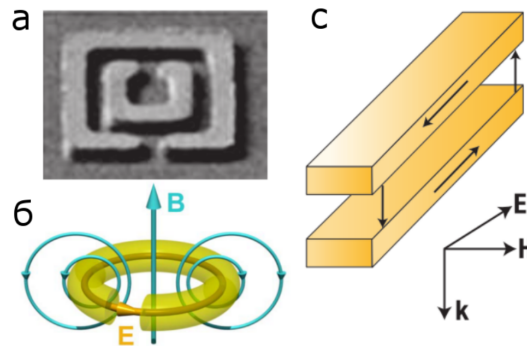


Рис. 1: (а) Структура, состоящая из двух проводящих кольцевых резонаторов с оптическим магнитным откликом [2]; (б) схематическое распределение электрического и магнитного поля в металлическом круговом резонаторе [3]; (в) схематическое изображение пары нанопластин, в которых возбуждаются антипараллельные электрические токи [1].

Для этих целей в гигагерцовом диапазоне было предложено использовать массивы из концентрических резонаторов, состоящих из двух проводящих разорванных колец, повернутых на 180° относительно друг друга (Рис. 1а [2]), в которых ожидался $\mu' < 0$. Характерный размер структур был порядка нескольких миллиметров. Магнитное поле, индуцирует в структуре токи, имитирующие эффективный магнитный момент структуры, которые по правилу Ленца создают противоположно направленное магнитное поле (Рис. 1б). Таким образом, был получен сильный диамагнитный отклик в немагнитном материале. Уменьшение размеров объектов приводило к сдвигу отклика в более высокочастотную область. В дальнейших экспериментах были продемонстрированы магнитный отклик от одиночного концентрического резонатора для частоты порядка десятков терагерц [4] и от массива из металлических U-образных структур для длины волны в несколько микрометров [5]. Однако в этих работах не было получено отрицательного показателя преломления.

В оптическом диапазоне сильный магнитный отклик и отрицательный показатель преломления может иметь пара золотых полос, разделенных слоем диэлектрика, например SiO_2 (Рис. 1с) [6]. На границе между металлом и диэлектриком возбуждаются поверхностные плазмон-поляритоны, имитирующие кольцевые токи в структуре и порождающие магнитное поле. Однако при использовании излучения в видимом диапазоне описанные выше концепции плохо применимы по причине высоких омических потерь у металлов в данной спектральной области. Кроме того,

генерируемые поля являются анизотропными [1].

Альтернативным подходом для получения сильного изотропного магнитного отклика структуры с малыми омическими потерями стало использование наночастиц из диэлектриков с высоким показателем преломления. В них взаимодействие с электромагнитным полем контролируется размером частицы и ее структурными особенностями [3].

2. Резонансы Ми-типа в наночастицах из материалов с высоким показателем преломления

Задача рассеяния сферической диэлектрической частицей описывается теорией Ми и имеет точное решение [7]. Рассеянное поле единичной диэлектрической сферы с радиусом r_0 и показателем преломления n может быть представлено в виде мультипольного разложения, где компонента с номером m электрического поля пропорциональна коэффициенту

$$a_m = \frac{n\psi_m(nx)\psi'_m(x) - \psi_m(x)\psi'_m(nx)}{n\psi_m(nx)\xi'_m(x) - \xi_m(x)\psi'_m(nx)}, \quad (1)$$

а компонента магнитного поля с номером m пропорциональна коэффициенту

$$b_m = \frac{\psi_m(nx)\psi'_m(x) - n\psi_m(x)\psi'_m(nx)}{\psi_m(nx)\xi'_m(x) - n\xi_m(x)\psi'_m(nx)}, \quad (2)$$

где $x = k_0 r_0$, k_0 – волновой вектор в свободном пространстве, $\psi_m(x) = \sqrt{\frac{\pi x}{2}} J_{n+\frac{1}{2}}(x)$ и $\xi_m(x) = \sqrt{\frac{\pi x}{2}} H_{n+\frac{1}{2}}(x)$ – функции Риккати-Бесселя.

Рассмотрим более подробно разложение по мультиполям, учитывающее только коэффициенты a_1 и b_1 , дающие наибольший вклад в эффективные электрическую восприимчивость и магнитную проницаемость в соответствии с теорией эффективной среды [8]. При низших резонансных частотах коэффициентов a_1 и b_1 сфера ведет себя как электрический и магнитный диполь, соответственно. Этот вывод был сделан на основании численно рассчитанного распределения интенсивности в кубической структуре с высоким показателем преломления при падении на нее плоской электромагнитной волны, распространяющейся вдоль оси X. Можно заметить (Рис. 2), что электрическое и магнитное поле оказывается локализованными внутри структуры [9]. На частоте первого резонанса Ми электрическое поле (Рис. 2а) создает кольцевой контур; магнитное поле направлено вдоль оси Z, максимально в центре сферы (Рис. 2б). В структуре на этой частоте наблюдается магнитный дипольный резонанс Ми-типа (МД), так как электрическое поле возбуждает кольцевые токи смещения, которые вызывают возбуждение эффективного магнитного дипольного

момента, который становится в описываемом случае «источником» рассеянного излучения. Второй по частоте резонанс Ми соответствует резонансу электрической компоненты мультипольного разложения. Электрическая составляющая магнитного поля вдоль оси Y усиливается, при этом в структуре появляется наведенный, резонансно усиленный электрический дипольный момент. Магнитное поле в этом случае является вихревым (Рис. 2г [9]).

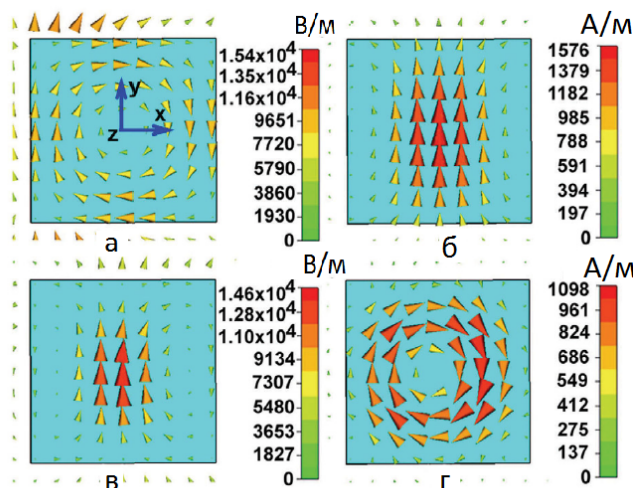


Рис. 2: Распределение электрического и магнитного поля в диэлектрическом кубе с магнитным полем, направленным вдоль оси Z , и электрическим полем, направленным вдоль оси X [9]: (а) электрическое поле в плоскости $z = 0$ в спектральной области первого по частоте Ми резонанса; (б) магнитное поле в плоскости $y = 0$ в спектральной области первого по частоте Ми резонанса; (в) электрическое поле в плоскости $z = 0$ в спектральной области второго по частоте Ми резонанса; (г) магнитное поле в плоскости $y = 0$ в спектральной области второго по частоте Ми резонанса.

Рассмотренные ЭД и МД-резонансные частицы могут быть использованы в качестве мета-атомов, из которых будут формироваться новые оптические материалы. Материалы, состоящие из множества подобных резонансных частиц, благодаря комбинациям откликов отдельных «атомов» могут иметь почти произвольное значение эффективной диэлектрической проницаемости и магнитной восприимчивости. Эта идея может быть проверена на основании модели, предложенной в 1947 году Л. Левиним [8], который рассчитывал рассеяние электромагнитных волн на материале, состоящем из массива периодически расположенных субволновых сфер (ϵ_2, μ_2), в которых отсутствуют потери. Они были помещены в структуру с другими значениями диэлектрической проницаемости и магнитной восприимчивости (ϵ_1, μ_1). При расчетах учитывались только первый и второй Ми резонансы. На основании теории Ми получились следующие формулы для эффективной диэлектрической восприимчи-

ности (ε_{eff}) и эффективной магнитной проницаемости (μ_{eff}):

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_1 \left\{ 1 + \frac{3\nu_f}{\frac{F(\theta)+2b_e}{F(\theta)-b_e} - \nu_f} \right\}, \quad (3)$$

$$\mu_{eff} = \mu_1 \left\{ 1 + \frac{3\nu_f}{\frac{F(\theta)+2b_m}{F(\theta)-b_m} - \nu_f} \right\}, \quad (4)$$

где $F(\theta) = \frac{2(\sin \theta - \theta \cos \theta)}{(\theta^2 - 1) \sin \theta + \theta \cos \theta}$, $b_e = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}$, $b_m = \frac{\mu_1}{\mu_2}$, $\nu_f = \frac{4}{3}\pi\left(\frac{r_0}{p}\right)^3$, $\theta = k_0 r_0 \sqrt{\varepsilon_2 \mu_2}$, p – постоянная решетки. Функция $F(\theta)$ является резонансной функцией и может становиться отрицательной для некоторой области параметра θ , в результате чего в этой области получаются отрицательные значения ε_{eff} и μ_{eff} с бесконечно большими амплитудами. На основе модели Левина была численно показана возможность [9] получения одновременно отрицательных ε_{eff} и μ_{eff} для диэлектрических сфер на частотах возбуждения МД и ЭД резонансов (Рис. 3).

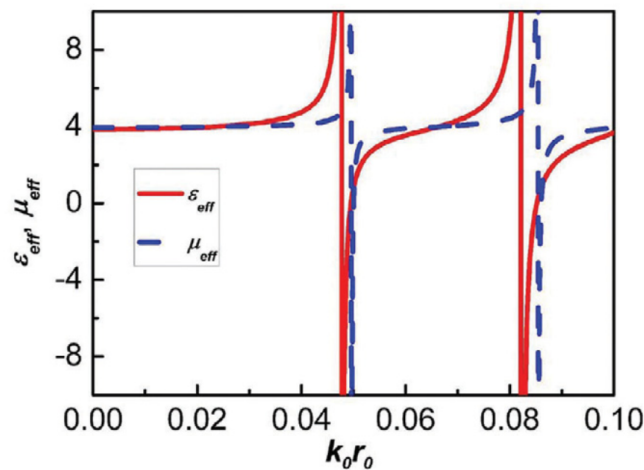


Рис. 3: Рассчитанные ε_{eff} и μ_{eff} для материала, состоящего из диэлектрических сфер; r_0 – радиус сферической частицы, k_0 – волновой вектор в свободном пространстве [9].

Таким образом, видно, что можно применять два подхода для получения экстремальных значений μ_{eff} : использовать диэлектрические вставки с высоким значением как ε , так и μ , или немагнитные диэлектрические структуры с высоким значением ε . В дальнейшем будем рассматривать второй подход, поскольку магнитные материалы с высокими значениями ε и μ физически недостижимы.

Выше было показано, что в материалах с высоким показателем преломления возникают резонансы типа Ми и для некоторого значения параметров, а именно $\frac{\lambda}{n} \approx D$ где λ – длина волны возбуждающего излучения, n – показатель преломления материала, D – диаметр сферической частицы, возбуждается МД резонанс, приводящий к усилению оптического магнитного отклика среды [3]. При выполнении

данного условия направление электрического поля на противоположных границах частицы оказывается антипараллельным, что приводит к возникновению круговых токов смещения, при этом амплитуда магнитного поля максимальна в центре сферы (Рис. 4). Написанное выше равенство задает условие для конструктивной интерференции волн, распределенных вдоль границы сферы.

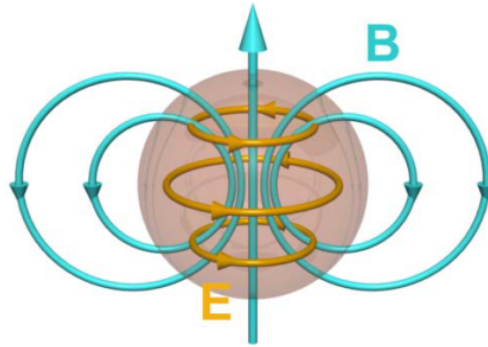


Рис. 4: Схематическое изображение распределения электрического и магнитного поля в сферической частице из материала с высоким показателем преломления на длине волны, соответствующей магнитному дипольному резонансу Ми [3].

Первые экспериментальные демонстрации магнитного отклика диэлектрических частиц и диэлектрических метаматериалов с отрицательным показателем преломления были сделаны в гигагерцовой частотной области, где материалы обладают высоким показателем преломления [10].

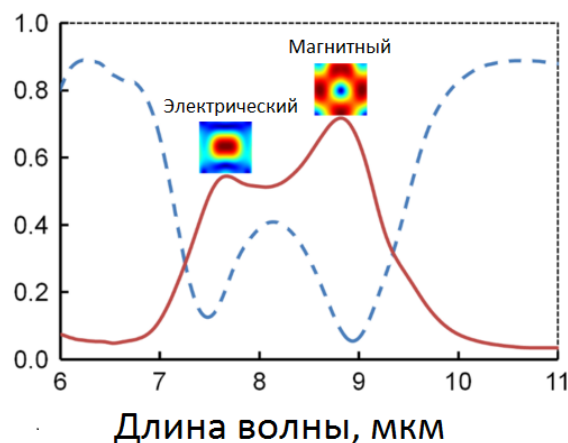


Рис. 5: Измеренный спектр отражения (сплошная линия) и спектр пропускания (штрихованная линия) для массива кубических резонаторов; отмечены типы резонансов. Вставки демонстрируют распределение электрического поля в частицах в спектральной области ЭД и МД резонансов [11].

Исследования материалов, обладающих ЭД и МД резонансами в инфракрасной

спектральной области, начинались с массивов германиевых кубических резонаторов, помещенных на тонкую полимерную подложку с низким показателем преломления [12]. Кубические резонаторы заменили сферические, поскольку являлись более простыми с точки зрения технологии изготовления. В дальнейшем теллур заменил германий, так как теллур обладает высоким показателем преломления и низким показателем поглощения в инфракрасной области. На используемой в эксперименте длине волны 10 мкм показатель преломления равен $n = 5.3$, а коэффициент поглощения равен 10^{-4} [11]. В работе экспериментально получен спектр пропускания и отражения для массива теллурических кубических резонаторов с высотой 1.7 мкм и основанием 1.5×1.5 мкм, находящихся на подложке из BaF_2 . Графики обладают характерными особенностями, наблюдаемыми также при численных расчетах, соответствующими возбуждению электрической и магнитной резонансной моды (Рис. 5).

Экспериментальное наблюдение МД и ЭД резонансов в ближней инфракрасной и видимой области спектра долгое время оставалось нерешенной задачей. Впервые сильный магнитный отклик в данной спектральной области удалось продемонстрировать на кремниевых сферах с радиусом 100–200 нм [3,13]. В работе А. И. Кузнецова [3] изучались сферические кремниевые частицы с диаметром от 100 нм до 200 нм. Было получено изображение всех частиц с помощью метода микроскопии темного поля (Рис. 6а), которое показало, что частицы различных радиусов резонансно рассеивают свет различных длин волн, от фиолетовой до красной. Различные цвета объясняются возбуждением моды электромагнитного поля, при которой токи смещения имеют циркулярное распределение, в то время как магнитное поле колеблется внутри частицы, аналогично «магнитному диполю». При изменении размеров объектов резонанс данной моды смещается, тем самым изменяется свечение сферы: при увеличении размеров частиц свечение смещается в инфракрасную область спектра (Рис. 6б, 6в). В работе А. Евлюхина [13] помимо возбуждения МД и ЭД резонансов в сферических кремниевых частицах с радиусами 100–130 нм, было численно продемонстрировано, что сферическая наночастица со сквозным отверстием в центре осуществляет сильную локализацию и усиление магнитного поля и может использоваться в качестве наноантенны для магнитного поля.

3. Эффекты ближнепольной оптической связи в метаструктурах

Как известно, положение плазмонного резонанса в металлических наночастицах зависит от их размеров, формы и свойств как материала частицы, так и среды, в которой она расположена [14]. Когда частицы располагаются достаточно близко к друг другу, важным становится эффект взаимодействия между ними. Взаимодей-

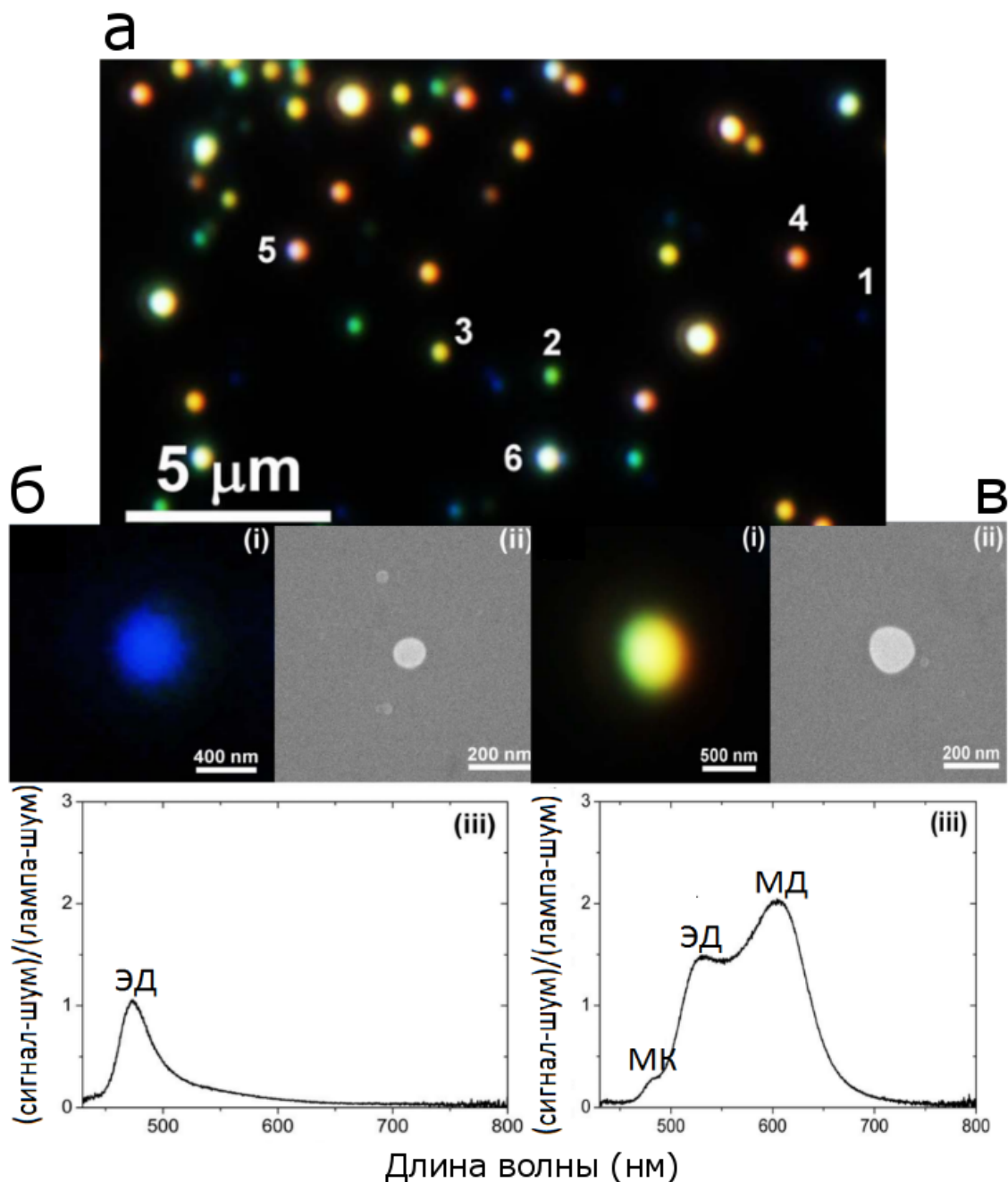


Рис. 6: (а) Микроскопия темного поля кремниевых наночастиц, полученных методом лазерной абляции; (б) Сфера с меньшим радиусом (i) – изображение, полученное с помощью микроскопии темного поля; (ii) – изображение, полученное с помощью растровой электронной микроскопии (РЭМ); (iii) – экспериментальный спектр рассеяния; (с) Сфера с большим радиусом; (i) – изображение, полученное с помощью микроскопии темного поля; (ii) – изображение, полученное с помощью растровой электронной микроскопии (РЭМ); (iii) – экспериментальный спектр рассеяния [3].

ствие между металлическими структурами экспериментально исследовалось на примере двух эллиптических частиц [14]. Было показано, что положение плазмонного резонанса сдвигается в длинноволновую область при уменьшении расстояния меж-

ду элементами (Рис. 7). Сдвиг хорошо описывается экспоненциальной функцией расстояния между частицами и становится пренебрежимо малым, когда структуры разделены расстоянием в 2.5 раза большим, чем длина малой оси эллипса частицы.

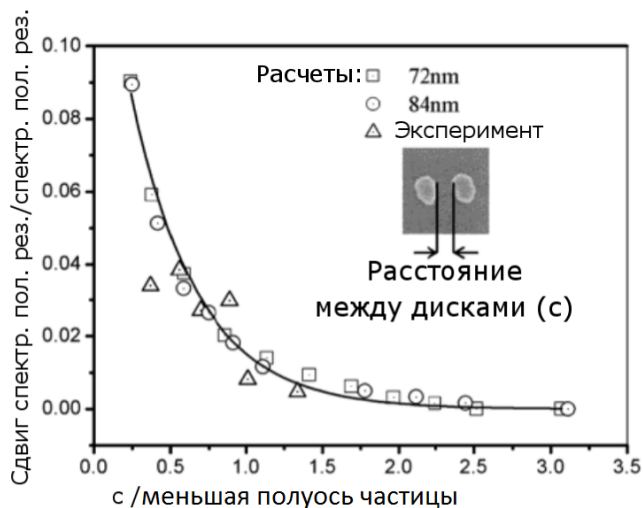


Рис. 7: Сравнение расчетных и экспериментальных данных для сдвига положения резонанса в спектре рассеяния димера металлических наночастиц в зависимости от расстояния между элементами в структуре [14].

Эффекты взаимодействия между частицами в дальнейшем исследовались и для диэлектрических структур. Например, было продемонстрировано изменение формы резонансов типа Ми для кремниевых нанодисков, упакованных в кластеры в форме равносторонних треугольников, при изменении расстояния между дисками [15] (Рис. 8а, 8б). Данный эффект приводил к изменению формы и спектрального положения максимума генерации третьей оптической гармоники (ТГ) (Рис. 8с), что будет более подробно обсуждаться в дальнейшем. В следующем параграфе будет также рассмотрено ближнепольное взаимодействие нанодисков, упакованных в кластер в форме квадрата [16], приводящее к возникновению магнитного Фано-резонанса, и гибридной металл-диэлектрической структуры [17].

На взаимодействие между наночастицами в кластере влияет поляризация падающего излучения. В металлических димерах возникает коллективный резонанс, приводящий к локализации электрического поля между частицами при поляризации возбуждающего излучения вдоль оси, соединяющей центры дисков – ось X в эксперименте [18]. Для перпендикулярного направления поляризации – ось Y в эксперименте, сильное взаимодействие между дисками отсутствует (Рис. 9 слева). В случае диэлектрических димеров взаимодействие наночастиц возникает для двух ортогональных случаев поляризации. Для поляризации вдоль оси X происходит локализация электрического поля, для перпендикулярной поляризации в результате взаимо-

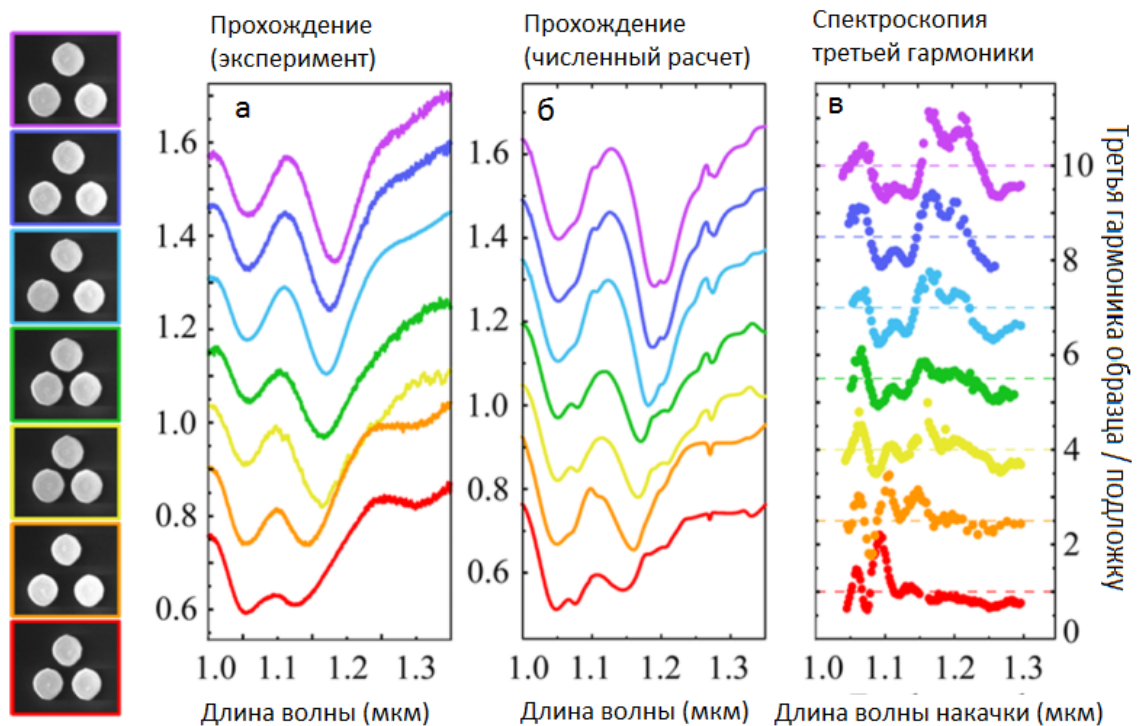


Рис. 8: (а) Экспериментальный спектр в геометрии «на пропускание» для массива олигомеров кремниевых нанодисков – тримеров с различными расстояниями между частицами; (б) соответствующий численный расчет спектра пропускания; (в) нормированный спектр генерации третьей оптической гармоники (ТГ) для образцов с различным расстоянием между дисками в тримере [15].

действия нанобъектов локализуется магнитное поле (Рис. 9 справа). Локализация зависит от расстояния d между дисками. В работе Р. Баккера [18] исследовались три случая: $d = 30$ нм, $d = 60$ нм, $d = 120$ нм. Максимальное значение усиления поля (в 3.5 раза) в зазоре между частицами наблюдалось для Х-поляризованного излучения и $d = 30$ нм, а наиболее слабое усиление (в 2.0 раза) – для Х-поляризованного излучения и $d = 120$ нм. В последней ситуации отклик системы напоминал случай двух изолированных частиц.

Взаимодействие между частицами в кластере влияет на их нелинейно-оптический отклик. Было продемонстрировано для симметричных металлических олигомеров изменение интенсивности сигнала второй оптической гармоники при вращении поляризации возбуждающего излучения [19] (Рис. 10). При этом влияние направления поляризации накачки в линейном отклике замечено не было. При аналогичном эксперименте для образца, состоящего из изолированного нанодиска, изменение сигнала второй гармоники обнаружено не было, что говорило о том, что за эффект отвечало взаимодействие между металлическими нанодисками в кластере, контролируемое направлением поляризации электромагнитной волны. Обнаруженный

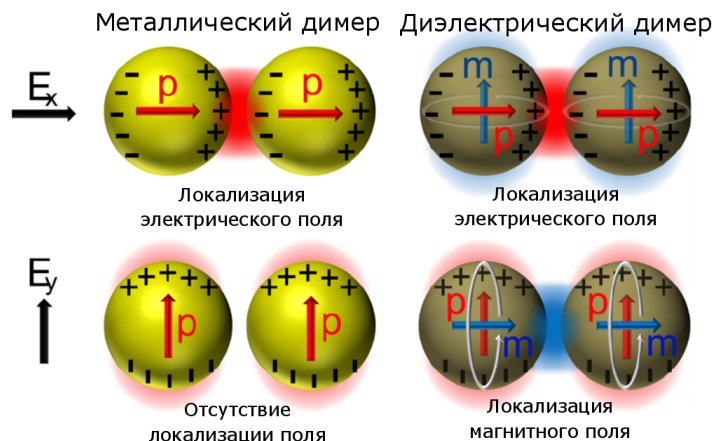


Рис. 9: Сравнение металлических (плазмонных) и диэлектрических нанодимеров. Плазмонные димеры (слева) взаимодействуют только через электрические диполи, в то время как у диэлектрических олигомеров (справа) возможно взаимодействие через электрические и магнитные диполи при ортогональных поляризациях [18].

эффект наблюдался наиболее ярко при возбуждении наноструктуры резонансной для нее длиной волны. В этом случае симметрия нелинейного отклика повторяет симметрию структуры (Рис. 10). Более подробно нелинейно-оптические эффекты в метаматериалах будут рассматриваться в следующем параграфе. Влияние поляризации излучения накачки на локальное взаимодействие нанообъектов и проявление этого взаимодействия в нелинейном отклике будет рассматриваться в данной работе для диэлектрических структур с высоким показателем преломления.

4. Нелинейно-оптические эффекты в резонансных наноструктурах из материалов с высоким показателем преломления

Резонансные возбуждения различных мод в диэлектрической частице сопровождаются перераспределением электромагнитной энергии по этим модам. Структура может рассматриваться как «хранилище» электромагнитной энергии в объеме, размеры которого много меньше длины волны падающего света. Показано (Рис. 11), что емкость наночастицы по отношению к локализации энергии возрастает при повышении коэффициента преломления структуры и уменьшении радиуса частицы. Следствием способности наночастиц локализовывать в своем объеме электромагнитное поле является их применение в нелинейной оптике. Известно, что нелинейный оптический отклик материалов является крайне слабым, поэтому для эффективных нелинейных процессов необходимо большое количество нелинейного вещества для осуществления преобразования и/или высокая интенсивность падающего из-

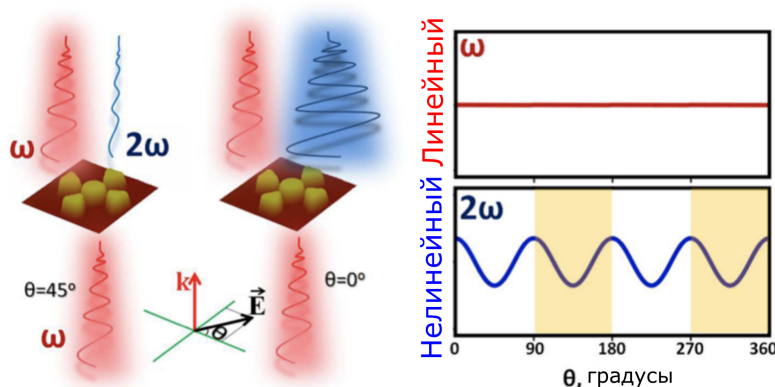


Рис. 10: Схема эксперимента (слева) и основные результаты (справа) задачи про исследование ближнепольного взаимодействия плазмонных олигомеров, проявляющегося в зависимости сигнала второй оптической гармоники от угла поворота направления поляризации в плоскости образца (справа снизу) при изотропном линейном отклике (справа сверху) [19].

лучения. При работе с объемными средами было необходимо выполнение условия фазового синхронизма между волной накачки и созданным полем излучения. Данное условие приводит к усилению сгенерированного излучения в результате конструктивной интерференции. Этот подход требует протяженных сред для взаимодействия волн, что неприемлемо для активного переключения компактных интегральных устройств, в которых нелинейные эффекты могли бы использоваться [20].

Альтернативным подходом является использование резонансно усиленного электромагнитного поля [20]. Этот метод не требует выполнения условия фазового синхронизма для наноструктурированных объектов. Амплитуда n -ой гармоники возбужденной волны пропорциональна интегралу по всему объему структуры от наведенных диполей, колеблющихся на частоте n -ой гармоники, амплитуды которых зависят от напряженности локального поля материала: $p^{(n)} \propto \int_V \chi^{(n)}(r) [E_{\text{лок}}(r, \omega)]^n dV$, где $\chi^{(n)}(r)$ – нелинейная восприимчивость материала, $E_{\text{лок}}(r, \omega)$ – локальное поле внутри структуры. Долгое время данная идея осуществлялась при использовании электрического локального плазмонного резонанса. Важно отметить, что генерация нелинейных частот в плазмонных структурах в любом случае страдает как от сильных потерь в металле на оптических частотах, так и из-за низкой температуры плавления вещества. Проблема решается использованием диэлектрических структур с низкими омическими потерями. Будем в дальнейшем рассматривать различные структуры на основе кремния в спектральной области прозрачности этого материала (ИК-диапазона), обладающего достаточно высоким показателем прелом-

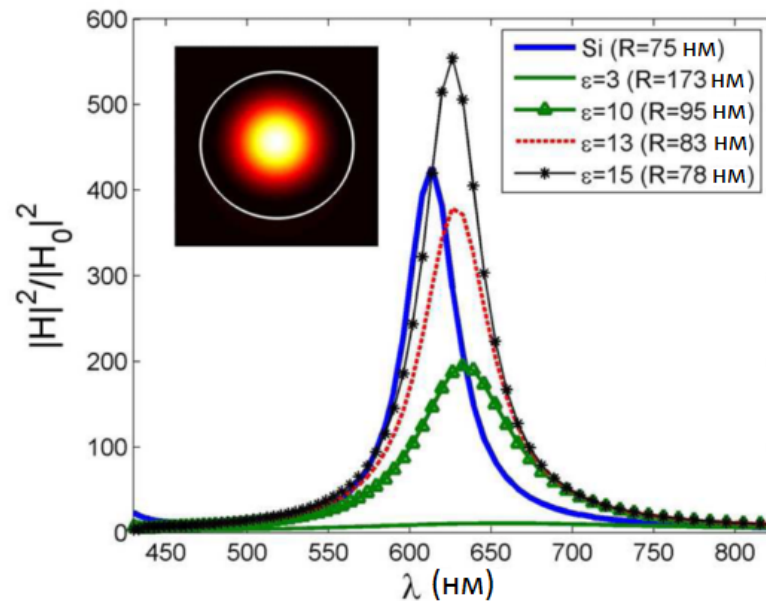


Рис. 11: Рассчитанный спектр квадрата модуля напряженности магнитного поля, отнесенный к квадрату модуля напряженности магнитного поля в падающей волне; на вставке распределение интенсивности магнитного поля в центре сферы [13].

ления ($n \approx 3.5$).

Рассмотрим нелинейный отклик одиночного кремниевого нанодиска в окрестности МД резонанса [21], расстояние между дисками составляет $\rho = 2.85$ мкм. В качестве геометрии исследуемой структуры выбран именно диск, поскольку экспериментально представлена возможность независимого варьирования положения электрического и магнитного резонанса с помощью двух степеней свободы для частицы: высоты и радиуса диска [22]. Кроме того, изготовление дисков оказывается проще, чем сфер. Образцы исследовались методами микроскопии третьей оптической гармоники и лазерной сканирующей микроскопии, используя в качестве накачки параметрический генератор света, возбуждаемый фемтосекундным титан-сапфировым лазером. Было получено изображение ТГ от массивов изолированных дисков высотой 260 нм, нормированное на изображение неструктурированной подложки высотой 0.5 мкм, в котором демонстрируется усиление сигнала ТГ в 10 раз (Рис. 12). Методами нелинейной спектроскопии на установке на основе титан-сапфирового фемтосекундного лазера и параметрического генератора света, позволяющего в данном случае менять длину волны от 1.0 мкм до 1.5 мкм, было проведено сравнение генерации ТГ в области ЭД и МД резонанса для одиночного кремниевого диска [23]. Показано, что усиление в ~ 1.5 раза генерации ТГ от дисков относительно объемного кремния, получено в области МД резонанса, в то время как в области ЭД усиление практически отсутствует. Численными расчетами методом конечных разностей во временной области было показано, что данный эффект объясняется сильной локализацией поля

внутри структуры при МД резонансе, приводящей к заметному увеличению нелинейного сигнала, пропорционального в данном случае шестой степени локального поля.

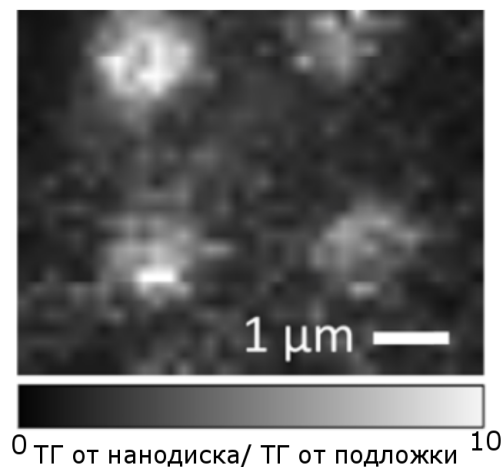


Рис. 12: Микроскопическое изображение изолированных нанодисков с $d = 360$ нм, $h = 260$ нм, сделанное сканирующим оптическим микроскопом, детектирующим сигнал третьей оптической гармоники от образцов. Сигнал нормируется на сигнал, снятый с подложки при тех же условиях [21].

Плотность расположения нанодисков на подложке влияет на интенсивность генерации ТГ [21]. Методом спектроскопии ТГ были исследованы массивы кремниевых дисков с периодом $\rho = 0.8$ мкм и высотой 220 нм. Было получено усиление в 100 раз ТГ от массива в сравнении с ТГ от объемного кремния в спектральной области магнитного дипольного резонанса (Рис. 13).

Усиление и модификация сигнала ТГ могут достигаться при формировании олигомеров из одиночных нанодисков, например, тримеров – расположение дисков образует равносторонний треугольник [15], или квадрумеров – расположение дисков образует квадрат [16]. Как было описано выше, спектры пропускания тримеров модифицируются при изменении их взаимного расположения. При достаточном разделении нанодисков в тримере в линейных спектрах видны отдельные МД и ЭД резонансы, в области которых происходит независимое усиление сигнала ТГ (Рис. 8 верхний ряд) на длинах волн $\lambda = 1.181$ мкм и $\lambda = 1.058$ мкм, соответственно. При сближении нанодисков сближаются МД и ЭД резонансы, что приводит к возникновению дополнительного пика в нелинейном сигнале на частоте $\lambda = 1.095$ мкм, усиление в котором больше, чем в разделенных резонансах (Рис. 8 нижний ряд).

Усиление нелинейно-оптического отклика может достигаться также в гибридных структурах, например, в кремниевом диске, помещенном в центр золотого кольца [17]. В работе [17] показывается, что плазмонный резонанс золотого нанокольца поддерживает анапольную моду в кремниевом нанодиске, приводящую к значи-

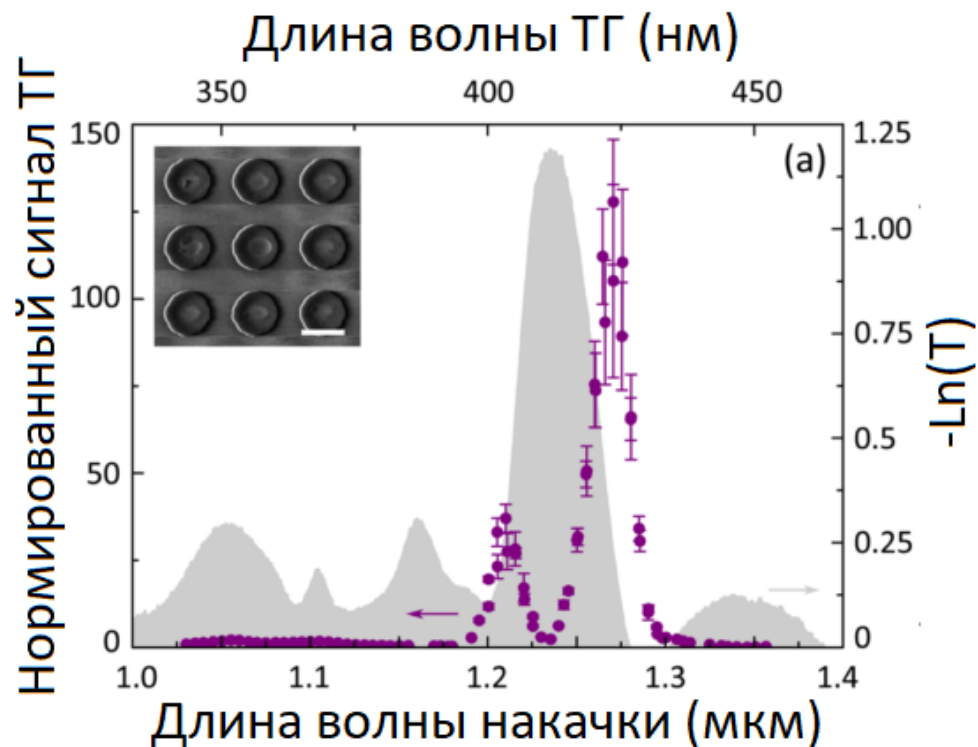


Рис. 13: Спектроскопия ТГ для массива дисков; серая область – отрицательный логарифм спектра пропускания с магнитным резонансом вблизи $\lambda = 1.24 \mu\text{м}$; точки – нормированный на подложку спектр генерации третьей гармоники с заметным усилением интенсивности; в левом верхнем углу – изображение образца, полученное растровым электронным микроскопом [21].

тельному усилению поля внутри диэлектрика с высокой нелинейностью третьего порядка. В результате взаимодействия между компонентами гибридной структуры повышается эффективность генерации ТГ от гибридной частицы в сравнении с отдельно расположенными нанодиском или золотым нанокольцом (Рис. 14). Эффективность нелинейного преобразования при этом составляет 0.007%. При этом длина волны, на которой осуществляется эффективное преобразование частот, может варьироваться при изменении параметров составляющих ее элементов.

5. Коллективные оптические моды в диэлектрических олигомерах

Близкое расположение нанодисков в олигомерах может приводить к их взаимодействию и возникновению коллективных мод, которые могут влиять как на линейный [24–26], так и на нелинейный [?, 15, 16] оптический сигнал, полученный от подобной системы.

Рассмотрим оптический отклик симметричного квадрумера – кластера из четы-

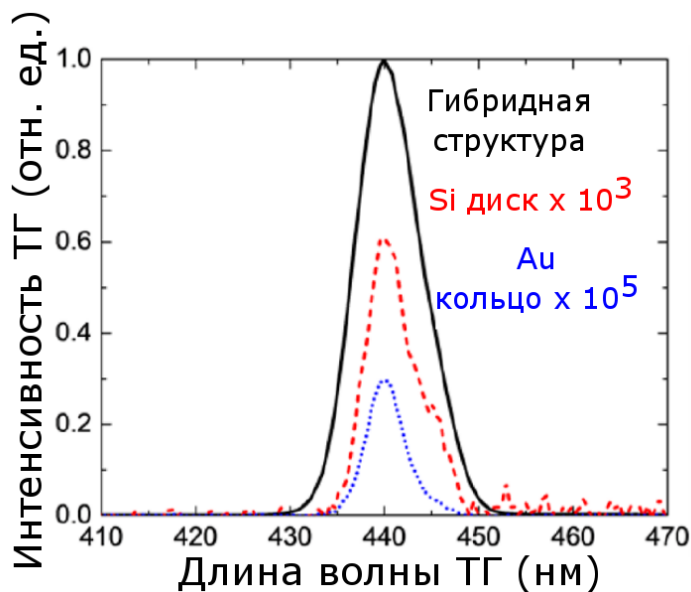


Рис. 14: Спектр ТГ для гибридной структуры, состоящей из кремниевого цилиндра, помещенного в центр золотого кольца, одиночного кремниевого цилиндра и одиночного золотого кольца [17].

рех симметрично расположенных частиц, возбуждаемого плоской электромагнитной волной, направление распространения и плоскость поляризации которой лежат в плоскости квадрумера. Во всех четырех частицах при этом возбуждается циркулярное распределение токов смещения, соответствующее МД резонансному отклику структуры. Если они изготовлены из материала с высоким показателем преломления, между частицами может возникать локальное взаимодействие, приводящее к возникновению циркулярных токов смещения между наночастицами [27]. При этом между двумя модами может возникать взаимодействие, выражающееся в интерференционных эффектах в дальнем поле коллективных мод структуры и собственных

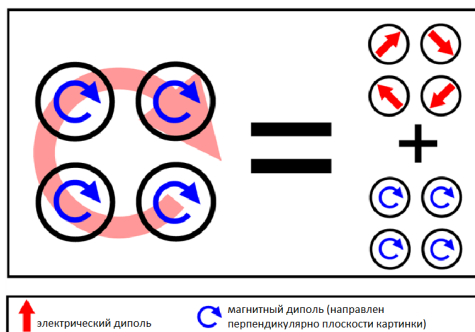


Рис. 15: Комбинированный магнитный отклик: коллективный оптически-индуцированный магнитный резонанс всей структуры, сопровождаемый магнитным резонансом отдельных частиц [27].

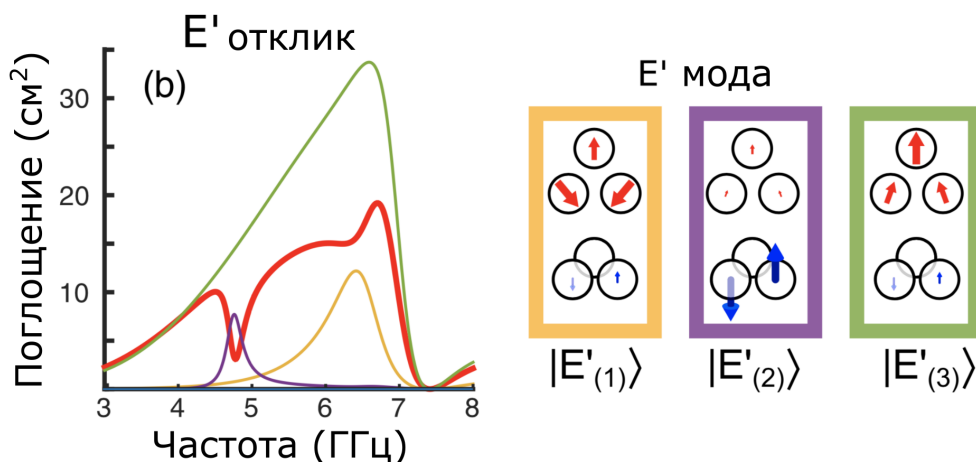


Рис. 16: Линейный отклик тримера, возбужденного электрической компонентой электромагнитного поля, при нормальном падении на поверхность образца (слева). Цветными линиями обозначены спектры экстинкции каждой собственной электрической моды. Справа представлены направления электрического (красные стрелки) и магнитного (синие стрелки) дипольных моментов на частоте 4.8 ГГц. Кругами схематически изображены наносферы тримера [28].

мод отдельных наночастиц. Коллективные моды могут возникать и в тримерах нанодисков [28]. Моды являются собственными модами олигомера, возникающими благодаря гибридизации между отдельными наночастицами. В линейном спектре нанобъектов невозможно экспериментально детектировать отдельные моды. В данной работе будет предложен метод регистрации возбуждения собственных мод тримера в дальнем поле.

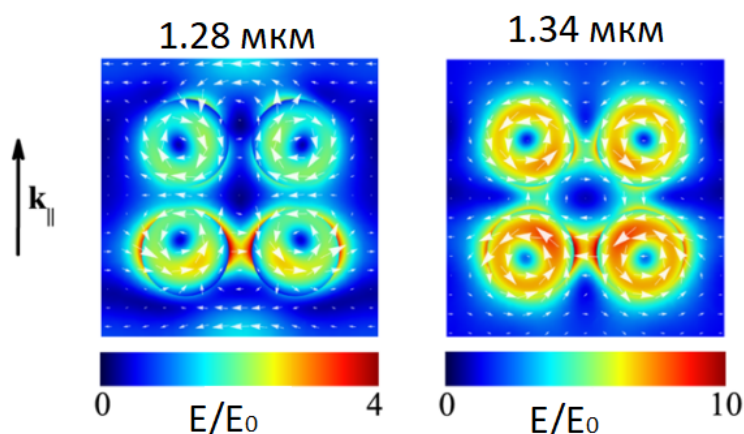


Рис. 17: Численное моделирование распределения амплитуды электрического поля в области собственного магнитного дипольного резонанса ($\lambda = 1.28$ мкм) и коллективного резонанса ($\lambda = 1.34$ мкм) [16].

Идея интерференции между коллективной модой олигомера и собственной модой

наночастицы была экспериментально продемонстрирована в оптическом диапазоне на массивах квадрумеров из кремниевых нанодисков [16]. Исследовалось рассеяние кластеров, состоящих из четырех нанодисков в области близкой к магнитному резонансу отдельного нанодиска. Был получен спектр пропускания образца, в котором наблюдались два разделенных пика на длинах волн: $\lambda \approx 1.28$ мкм (широкий резонанс) и $\lambda \approx 1.38$ мкм (более узкий пик типа Фано) (Рис. 18). Численные расчеты объясняли данные особенностями возбуждением МД резонанса в каждом нанодиске (Рис. 17а) и коллективной модой, соответственно (Рис. 17б). При взаимодействии двух мод происходит сильная локализация поля и, как следствие, усиление сигнала ТГ в этой спектральной области. Усиление нелинейного оптического отклика относительно неструктурированной пленки кремния происходит и в области МД резонанса – в 25 раз, однако в области магнитного Фано-резонанса усиление больше – в 50 раз (Рис. 18). Таким образом, получено, что возникновение коллективной моды наноструктуры усиливает нелинейный отклик объекта и изменяет его спектральную форму, что может применяться, например, в детектировании.

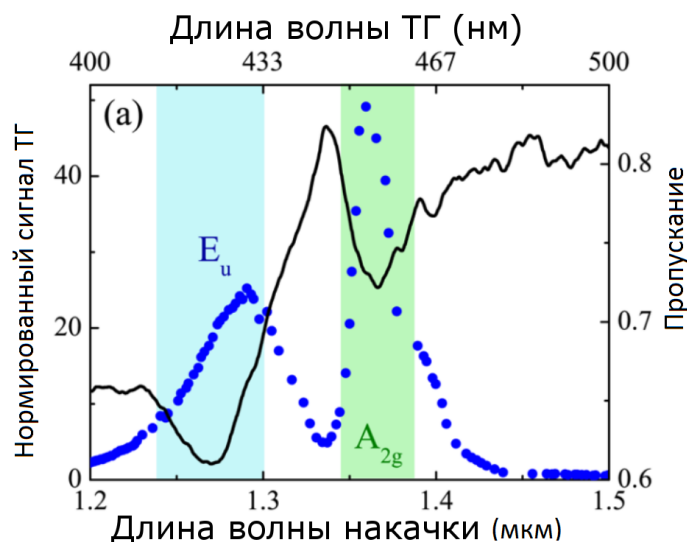


Рис. 18: Экспериментальные данные для квадрумеров: пропускание (черная линия), сигнал третьей гармоники для угла падения излучения накачки, равного 45° (синяя линия) [16].

6. Структурированный свет

Линейную, круговую и эллиптическую поляризацию света давно исследуют и могут достаточно легко создавать. Более интересен и менее изучен случай поляризации с аксиальной симметрией: ось симметрии – это ось распространения излучения. Рассмотрим геометрические и оптические свойства линейно поляризованного света

с аксиальной симметрией [29]. Ориентация поляризации $\phi(\theta)$ такого поля зависит от азимутального угла θ и может быть записана как

$$\phi(\theta) = P\theta + \phi_0, \quad (5)$$

где P – натуральное число, определяющее порядок поляризованного излучения. P задает количество поворотов поляризации излучения за полный круг ($0 \dots 2\pi$), ϕ_0 – начальное направление поляризации при $\theta = 0$. Световое поле может быть так же описано вектором Джонса \mathbf{J}_p [30]):

$$\mathbf{J}_p(\theta) = \begin{pmatrix} \cos(P\theta + \phi_0) \\ \sin(P\theta + \phi_0) \end{pmatrix}. \quad (6)$$

В данной работе будет использоваться излучение с $P = 1$. При анализе данного типа излучения линейным поляризатором с ориентацией оси α после поляризатора выделяется определенная структура распределения интенсивности, характерная именно для аксиально симметричных пучков. Ноль пропускания возникает для азимутальных углов θ_D , заданных выражением:

$$\theta_D = \frac{\alpha - \phi_0}{P} + \frac{\pi}{P} \left(k + \frac{1}{2}\right), \quad (7)$$

где k – индекс, относящийся к различным темным сегментам. Из выражения (7) можно сделать три следствия: появляются $2P$ темных сегмента, которые вращаются со скоростью $\dot{\theta} = \frac{\dot{\alpha}}{P}$, при $P < 0$ вращение происходит в противоположную сторону относительно вращения линейного поляризатора. Таким образом, можно идентифицировать линейно-поляризованный свет с аксиальной симметрией, что будет проводиться в работе.

Рассмотрим волновое уравнение для векторного электрического поля и его векторное решение, обладающее цилиндрической симметрией [31]:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} - k^2 \mathbf{E} = 0 \quad (8)$$

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \mathbf{z}) = U(r, z) \exp\langle i(kz - wt) \rangle \mathbf{e}_\varphi, \quad (9)$$

где $k = \frac{2\pi}{\lambda}$. Функция $U(r, z)$ удовлетворяет следующему уравнению при учете цилиндрической симметрии и метода медленно меняющихся амплитуд:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial U}{\partial r} \right) - \frac{U}{r^2} + 2ik \frac{\partial U}{\partial z} = 0. \quad (10)$$

В выражении для $U(r, z)$ фигурирует функция Бесселя первого рода первого порядка, зависящая от радиус-вектора, и фундаментальное решение волнового уравнения без учета азимутальной симметрии в виде функции Гаусса. Во многих случаях,

особенно для пучков с большим сечением, используется более простое выражение для электрического поля:

$$\mathbf{E}(r, z) = Ar \exp\left(-\frac{r^2}{w^2}\right)\mathbf{e}_i, \quad (11)$$

где $i = \{r, \varphi\}$. Мгновенные распределения электрического поля для азимутально и радиально поляризованного электрического поля представлены на рисунке 19.

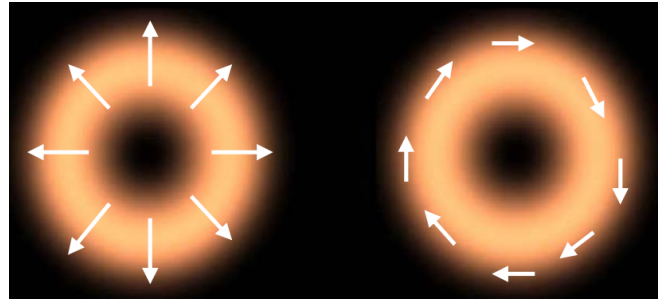


Рис. 19: Пространственное распределение электрического поля для радиальной (слева) и азимутальной (справа) поляризации. Стрелочками показано направление поляризации электрического поля [31].

Несмотря на то, что распределение интенсивности для азимутальной и радиальной поляризации выглядит одинаково, при сильной фокусировке они ведут себя по-разному: у радиально поляризованного пучка появляется большая компонента электрического поля, поляризация которого направлена вдоль распространения, в то время как поле для азимутально поляризованного излучения остается поперечным с нулевым значением интенсивности в центре пучка [32].

Известны различные способы генерации излучения с линейной поляризацией электрического поля, обладающего аксиальной симметрией: лазеры, интерферометрические установки, включающие в себя спиральные волновые пластины или дифракционные оптические системы. Рассмотрим возможность создания такой поляризации с помощью жидкокристаллического преобразователя. Для любого значения параметра P используются два эффекта: скрученный нематический эффект и эффект на $\frac{\lambda}{2}$ пластинках (для получения $P > 1$). Основная часть устройства – ячейка – состоит из двух слоев, пространство между которыми заполнено нематическим жидким кристаллом; первый слой задает выделенное направление расположение молекул (Рис. 20 наверху) – ось ячейки, второй – циркулярное распределение молекул (Рис. 20 внизу). Линейно-поляризованный свет, попадающий на данное устройство, испытывает пространственную модификацию поляризации пучка. Модуль угла поворота непрерывно варьируется от 0 до $\frac{\pi}{2}$ радиан [33]. На границе между верхней и нижней частями пучка возникает дефектная линия, параллельная оси ячейки [29]. Толщина дефектной линии порядка 20 мкм. Если χ – локальный

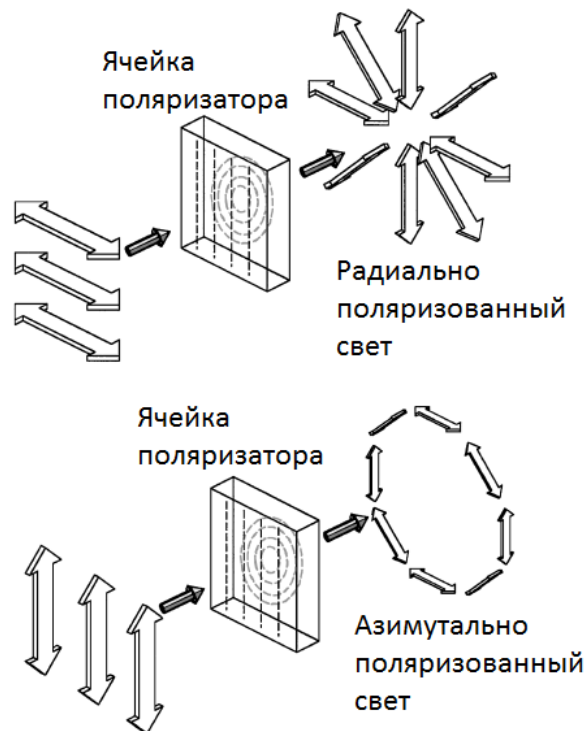


Рис. 20: Получение радиальной (сверху) и азимутальной (снизу) поляризации [29].

угол поворота между входной и выходной поляризацией в случае, когда она направлена параллельно или перпендикулярно оси ячейки, то устройство будет корректно работать пока $\frac{\pi d \Delta n}{\lambda} \gg 1$, где Δn характеризует двойное лучепреломление в жидком кристалле, d – толщина ячейки, λ – длина волны падающего света. Методика избавления от дефектной линии будет рассматриваться в экспериментальной части данной работы.

7. Эффекты взаимодействия пучков структурированного света с нанотонными объектами

Было показано, на примере металлических структур, возможность исследования их оптических свойств и отклика отдельной субволновой частицы с помощью селективного возбуждения структурированными пучками [35, 36]. В диэлектрических структурах в одной экспериментальной схеме могут возбуждаться мультиполи различных порядков, однако трудно экспериментально определить, какой именно тип резонанса возбуждается на данной длине волны. Кроме того, резонансы в подобных структурах являются достаточно широкими и могут спектрально перекрываться. В работе Возняка [34, 37] показано, что выбирая сильно фокусированные пучки, имеющие линейную поляризацию с аксиальной симметрией, резонансы изолированной наночастицы могут селективно возбуждаться и отдельно анализироваться даже

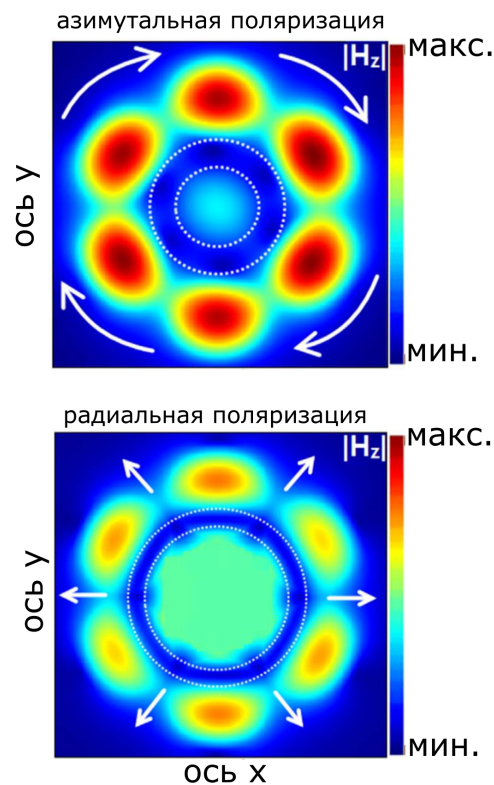


Рис. 21: Ближнепольные карты амплитуды магнитного поля в диэлектрическом олигомере при возбуждении азимутальной (сверху) и радиальной (снизу) поляризациями. Белыми штрихами обозначены регионы без локализации поля. Стрелками показаны направления колебания плотности зарядов для двух типов поляризации [34].

при спектральном перекрытии магнитного и электрического дипольных резонансов. Раздельное управление наведенными электрическими и магнитными дипольными модами может привести, например, к направленному рассеянию [38–40] и формированию темных мод [41–43].

Используя поляризацию с аксиальной симметрией, можно возбуждать собственные моды, не наблюдаемые в линейном режиме. На примере гептамеров [34] показана возможность возбуждения минимума магнитного резонанса Фано-типа при азимутальной поляризации возбуждающего излучения. В шести внешних частицах происходит усиление магнитного поля, в то время как локализация поля в центральной практически отсутствует (Рис. 21). Для радиальной поляризации описанный минимум исчезает. При возбуждении различными типами поляризации с аксиальной симметрией происходит спектральный сдвиг максимума локализации магнитного поля в структуре, в частности, в данном случае – сдвиг в голубую область для радиально поляризованного излучения. Благодаря использованию излучения с аксиальной симметрией можно управлять как интенсивностью, так и нелинейным откликом структуры [44–48]. Таким методом были получены сигналы третьей оптической

гармоники от одиночного кремниевого нанодиска с азимутальной или радиальной поляризацией в зависимости от поляризации накачки [45]. В работе использовались два типа нанодисков: в одном на длине волны накачки с линейной поляризацией эффективно возбуждался электрический квадрупольный Ми резонанс (электрический квадрупольный Ми резонатор), в другом – магнитный (магнитный квадрупольный Ми резонатор). Было продемонстрировано, что электрический квадрупольный резонатор эффективно излучает ТГ при накачке радиально поляризованным светом (Рис. 22а), в то время как при взаимодействии нанодиска с азимутально поляризованным электромагнитным полем генерация ТГ подавлена (Рис. 22б). Для магнитного резонатора ситуация обратна (Рис. 22в и Рис. 22г).

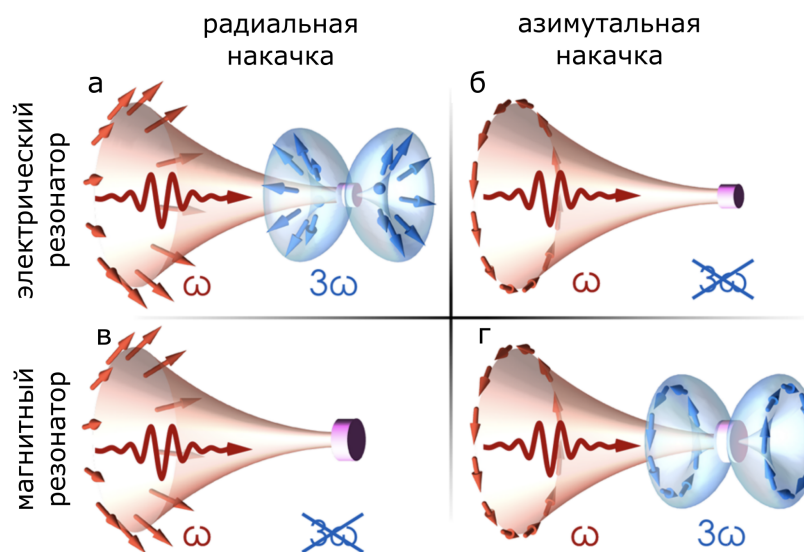


Рис. 22: Генерация ТГ в кремниевом нанодиске при возбуждении структурированным светом. (а) Усиление сигнала ТГ при возбуждении электрического квадрупольного Ми-резонатора радиальной поляризацией; (б) подавление сигнала ТГ при возбуждении электрического квадрупольного Ми-резонатора азимутальной поляризацией; (в) подавление сигнала ТГ при возбуждении магнитного квадрупольного Ми-резонатора радиальной поляризацией; (г) усиление сигнала ТГ при возбуждении магнитного квадрупольного Ми-резонатора азимутальной поляризацией [45].

В схожей с [45] работе [49] на примере кремниевых наносфер показано, что радиально-поляризованный пучок может избирательно возбуждать электрические мультиполи, тогда как азимутально-поляризованный луч может избирательно возбуждать магнитные мультиполи, даже если резонансы спектрально перекрываются между собой. Более того, фокусировка векторных пучков с высокой числовой апертурой может привести к преобладанию продольной компоненты электрического или магнитного поля. Показано, что усиление продольной составляющей с увеличением числовой апертуры у радиально- и азимутально- поляризованных пучков позволя-

ет избирательно усиливать электрический и магнитный мультипольные резонансы соответственно. Данные эффекты экспериментально наблюдались в спектрах рассеяния кремниевых наносфер (Рис.23).

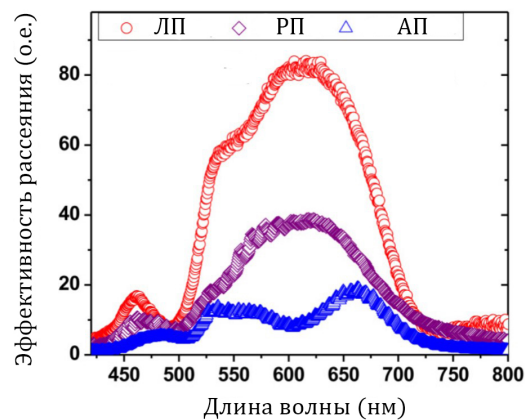


Рис. 23: Селективное возбуждение мультипольных резонансов при возбуждении векторным пучком. Экспериментальные спектры одиночной кремниевой наносферы диаметром 170 нм при возбуждении разными типами излучения. Результаты показывают, что при радиальной поляризации пучка возбуждаются только электрические моды (например, дипольная и квадрупольная), а при азимутальной возбуждаются только магнитные моды.

8. Однофотонные источники и их взаимодействие с оптическими системами

Бурное развитие квантовой информатики, включающее в себя кодирование, передачу и обработку информации, а также связанные с ней технологии, такие как квантовая криптография, распределение ключей и квантовая связь, способствовало созданию наноразмерных источников одиночных фотонов [50–52]. Было предпринято много попыток реализовать однофотонные источники на одиночном атоме [53], ионах [54] и молекулах [55], а также на различных центрах окраски [56]. Однако с коммерческой точки зрения все большую популярность приобретают полупроводниковые квантовые точки (КТ) [57, 58]. КТ — это частицы полупроводника размером десятков или несколько десятков нанометров на основе (In, Ga, Al)As, внедренные в другой полупроводник. Важно отметить, что запрещенная зона КТ должно быть уже, чем зона полупроводников, в объеме которых КТ находятся. КТ обладают малой шириной линии излучения, быстрым временем затухания излучения, высокой и стабильной квантовой эффективностью по сравнению с другими источниками одиночных фотонов [59]. Кроме того, искусственные атомы, так называют КТ, позволяют создавать излучатели для ближнего ИК-спектрального диапазона [60, 61]. Важным преимуществом полупроводниковых КТ является простая, дешевая, хо-

рошо изученная технология роста с возможностью масштабирования [62], а также возможность интегрирования с существующими устройствами [63].

Для увеличения скорости излучения КТ их интегрируют либо в диэлектрические, либо в металлические резонаторы. Диэлектрические системы могут поддерживать моды резонатора со значительной добротностью, что приводит к заметному увеличению излучения [?, ?, 64] за счет эффекта Парселла в режиме слабой связи [?]. В работе Х. Динга [64] с помощью импульсного резонансного возбуждения КТ, помещенных внутри микростолбиков, благодаря усилению ФЛ за счет эффекта Парселла были сгенерированы одиночные фотоны с эффективностью извлечения 66 %, чистотой одиночных фотонов 99,1% и фотонной неразличимостью 98,5%. Самые популярные резонаторы для КТ основаны на брэгговских структурах (часто столбчатых) и планарных фотонных кристаллах. Последние достижения в этой области позволили создать яркие излучатели одиночных фотонов с высокой степенью неразличимости и чистоты [65, 66]. Были продемонстрированы КТ в открытом перестраиваемом микрорезонаторе [66] с управлением зарядом и электрической настройкой частоты излучения. Возможность настройки микрорезонатора компенсирует отсутствие контроля положения квантовой точки и точной частоты излучения. Однако использование брэгговских структур и планарных фотонных кристаллов требует соблюдения баланса между мощностью излучения и добротностью [67], а также решения проблемы вывода излучения [68]. Кроме того, присутствует определенная сложность в изготовлении и масштабировании таких систем. Эпитаксиальные методы плохо подходят для роста многослойных брэгговских структур. Паттернирование фотонных кристаллов редко осуществляется с помощью электронно-лучевой литографии, привычной для изготовления полностью диэлектрических и металлических наноструктур и метаповерхностей.

Альтернативой является взаимодействие КТ с поверхностными плазмонами в металлических структурах [?, ?, 69, 70]. Так в работе Т. Хоанга [69] реализован режим сверхбыстрого спонтанного излучения одиночной КТ, связанной с плазмонным нанорезонатором, при комнатной температуре. Было обеспечено 540-кратное уменьшение времени жизни излучения и одновременное 1900-кратное увеличение общей интенсивности излучения. Рост детектируемой интенсивности излучения достигается за счет перенаправления излучения КТ перпендикулярно поверхности образца из-за взаимодействия с нанорезонатором как высокоэффективной оптической антенной. Минусом металлических систем являются высокие омические потери [?], что приводит как к ограничению интенсивности излучения КТ, так и к повреждению потенциальных устройств за счет их нагрева.

Взаимодействие КТ с различными полупроводниковыми [71, 72, 74] и плазмонными волноводами [?, 73] также позволяет управлять их ФЛ за счет связи либо

с распространяющимися волноводными модами, либо с поверхностными плазмон-поляритонными модами. Например, в работе [74] рассматривается интегральная система, состоящая из КТ из InGaAs в одномодовом волноводе из GaAs, материала с высоким показателем преломления. Показана резонансная флуоресценция КТ с улучшением когерентности КТ более чем в 4 раза по сравнению с нерезонансным возбуждением. Волновод позволяет концентрировать большую часть излучения внутри себя, что уменьшает потери и как следствие увеличивает измеряемую интенсивность. Однако использование волноводов страдают теми же ограничениями, что и описанные выше.

Недавно исследователями были рассмотрены активные оптические наноантенны, используемые для усиления и управления излучением квантовых источников посредством резонансной связи с локализованными модами [75, 76]. Взаимодействие квантовых излучателей с полностью диэлектрическими системами активно изучалось теоретически в последние годы, и была показана перспективность полностью диэлектрических систем для управления диаграммой направленности излучения и увеличения интенсивности спонтанного излучения [76]. Размещение излучателей за пределами нанорезонатора открывает возможность для их применения для химического зондирования и визуализации, но в то же время ограничивает эффективность связи с резонансными модами Ми, поскольку их поля в основном локализованы внутри нанорезонаторов. Таким образом, интеграция излучающих материалов, таких как квантовые точки (КТ), квантовые ямы, имплантированные дефектные атомы внутри полностью диэлектрической матрицы, была бы предпочтительна для увеличения пространственного перекрытия полей электромагнитных мод с квантовым излучателем, что даст повышенную эффективность связи. Более того, интеграция квантовых излучателей в кремниевые нанорезонаторы откроет путь новым приложениям в активной кремниевой фотонике.

В одной из экспериментальных работ [77] было продемонстрировано взаимодействие излучения КТ Ge(Si) с мультипольными модами резонаторов на основе кремниевых нанодисков, приводящее к модификации спектра излучения. В статье показано, что механизм взаимодействия КТ с модами Ми нанорезонатора сильно зависит от их расположения внутри резонансной структуры, а наблюдаемым усилением свечения излучателей таким образом можно управлять (Рис.24). Основываясь на данной идее, также продемонстрировано, что излучением КТ можно управлять, формируя структуры олигомеров нанодисков, таких как линейные тримеры, в которых объединены три резонатора Ми. В данном случае наблюдалось 10-кратное усиление излучения, достигаемое за счет возбуждения антисимметричных электрических и магнитных дипольных мод внутри линейного тримера. Подавление дипольного излучения увеличивает добротность резонансных мод и приводит к проявлению более

сильного эффекта Парселла для излучателей внутри кремниевых резонаторов Ми.

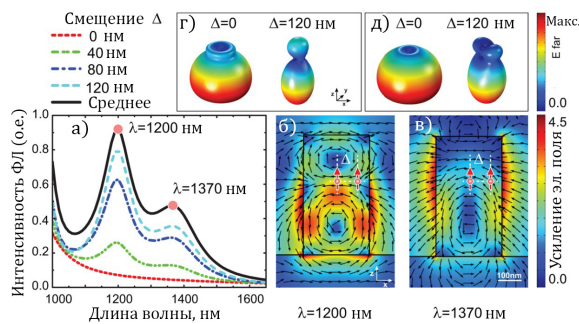


Рис. 24: а) Смоделированный сигнал ФЛ от точечного вертикального диполя, помещенного внутри диска диаметром 280 нм, при различных смещениях от оси диска (пунктирные линии). Сплошная линия соответствует интегральному сигналу ФЛ по слою КТ из Ge(Si), имеющему максимумы в резонансах: ЭД (1200 нм) и МД (1370 нм). б) Нормированное электрическое поле ЭД моды и в) МД моды и направление электрического поля (стрелки), схематическое положение и ориентация точечного диполя показаны вертикальными красными стрелками. г) Диаграммы направленности излучения точечного диполя, связанного с ЭД и д) МД резонансами при разных смещениях Δ . При $\Delta=0$ излучение диполя не связано с модами диска, что приводит к распределению поля в дальней зоне, которое соответствует диполю в свободном пространстве. Для $\Delta=120$ нм дипольное излучение эффективно связано с модами Ми, что приводит к деформированной картине в дальнем поле [?].

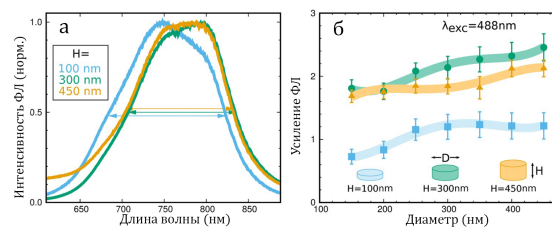


Рис. 25: (а) Экспериментальные спектры ФЛ метаматериала при разной высоте нанодисков: 100 нм (голубой), 300 нм (зеленый) и 450 нм (желтый), с диаметром 215 нм, возбуждаемых длиной волны 488 нм. (б) Усиление ФЛ в зависимости от диаметра наночастицы метаматериала для различной высоты нанодисков [?].

Также были проведены исследования взаимодействия квантовых излучателей с метаповерхностями. В работе Антонио Капретти [78] люминесцентные кремниевые нанокристаллы (Si-НК) встраивались в двумерный массив нанодисков из оксида кремния и экспериментально показана следующая идея: полученный метаматериал сохраняет излучательные свойства Si-НК и наследует спектрально-селективные абсорбционные свойства нанодисков. Этот иерархический подход обеспечивает увеличение интенсивности фотолюминесценции (ФЛ), полученное без использования

каких-либо плазмонных компонентов, обладающих большими омическими потерями (Рис.25). На основе строгих расчетов исследователи предсказали, что рассматриваемый метаматериал позволяет модулировать пики поглощения до 50% в видимом спектре в зависимости от условий возбуждения Ми резонансов нанодиска и постоянной решетки массива. Экспериментально обнаружены спектральные пики экстинкции в метаматериале, вызывающие повышенное поглощение у Si-НК. Согласно работе, особенности метаматериала увеличили интенсивность ФЛ, не изменив при этом время жизни состояний, угловую картину и эффективность квантового выхода ФЛ. Наилучший результат в статье демонстрирует повышение интенсивности ФЛ на 30% , достигаемое при меньшем количестве нанокристаллов, по сравнению с эквивалентной неструктурированной пленкой, что в целом приводит к 3-кратному увеличению излучения ФЛ Si-НК. Продемонстрированный в статье принцип является общим, и нанокристаллы можно заменить другими полупроводниковыми излучателями, например, квантовыми точками, ионами редкоземельных элементов или органическими молекулами.

Глава II

Коллективные моды полупроводниковых олигомеров при возбуждении линейно поляризованным излучением и анизотропия третьей оптической гармоники

1. Идея задачи: картинка и смысл

Первая оригинальная глава посвящена обнаружению и изучению анизотропии сигнала ТГ от нанокластеров из аморфного кремния с различной геометрической симметрией. Основная идея экспериментального исследования проиллюстрирована на рисунке 26 на примере тримера - трех близко расположенных наночастиц. Изолированная полупроводниковая система: мономер, тример или квадрумер, освещается нормально падающим инфракрасным фемтосекундным лазерным лучом. Кремний обладает отличной от нуля нелинейной восприимчивостью третьего порядка, поэтому в материале олигомеров начинается генерация ТГ. Интенсивность ТГ измеряется для разных углов ориентации образца θ . Нелинейная анизотропия проявляется в виде периодических особенностей интенсивности ТГ, что может быть связано с наличием некоторых ненулевых компонент в тензоре эффективной нелинейной поляризуемости $\chi^{(3),eff}$. Нелинейная поляризуемость связывает поляризацию на длине волны третьей гармоники $P^{(3)}(3\omega)$ и поле накачки $E(\omega)$: $P^{(3)}(3\omega) = \chi^{(3),eff}(3\omega = \omega + \omega + \omega):E(\omega)(\omega)(\omega)$.

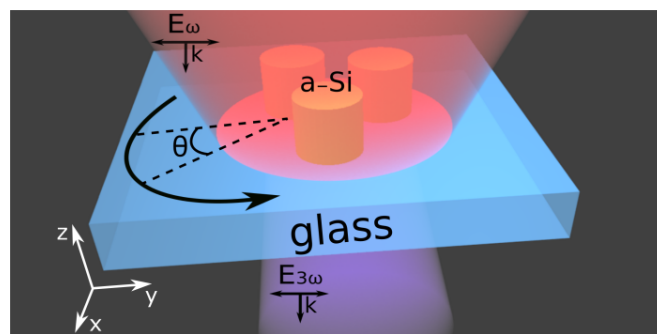


Рис. 26: Графическое изображение идеи главы: измерение зависимости интенсивности ТГ при вращении поляризации излучения накачки для олигомеров с разным количеством наночастиц

2. Экспериментальные образцы

2.1. Методы изготовления

Образцы, исследуемые в первой и второй оригинальных главах диссертации, изготовлены в Австралийском национальном университете и состоят из тонкой пленки гидрогенизированного аморфного кремния, осажденной на покровное микроскопическое стекло из плавленного кварца толщиной 170 мкм. Толщина пленки определена как 260 ± 5 нм с помощью спектроскопического эллипсометра. При изготовлении образцов применялись методы плазменно-химического осаждения из газовой фазы, электронно-лучевой литографии и реактивного ионного травления. Негативный резист силсесквиоксана водорода (HSQ) толщиной 100 нм наносился на пленку аморфного кремния и нагревался при 170°C в течение 2 мин. Далее методом электронно-лучевой литографии экспонировалась маска, включающая в себя тримеры, квадрумеры и мономеры разного диаметра и расстояния между частицами. Маска была проявлена в AZ 300 MIF за 90 секунд, промыта деионизированной водой в течение 60 секунд и высушена азотом. Рисунок был перенесен на слой кремния методом глубокого реактивно-ионного травления в плазме на основе фтора (Unaxis SLR 770) с использованием смеси SF₆ и C₄F₈ для получения гладких вертикальных боковых стенок со скоростью травления 100 нм/мин. Остаток маски HSQ не удалялся после этапа травления.

2.2. SEM характеристика

На рисунке 27 показаны изображения экспериментальных образцов, полученные методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ). В работе будут рассматриваться 3 типа образцов тример (Рис. 27(а)), квадрумер (Рис. 27(б)) и отдельный нанодиск - мономер (Рис. 27(с)). Образцы упакованы в массивы (Рис. 27(д)) из десятков олигомеров с расстоянием 10 мкм между соседними. Каждый массив характеризуется определенным типом образцов, диаметром (d) и расстоянием между частицами в нанокластере (s). При этом высота (h) и период (T) остаются постоянными. Олигомеры с $T = 10$ мкм считаются изолированными для излучения накачки, имеющего диаметр перетяжки в фокусе ≈ 3 мкм. Расстояние между дисками в отдельном тримере варьировалось от 100 нм до 400 нм с шагом 100 нм. Средний диаметр нанодисков составляет $d \approx 280$ нм, а высота $h = 260 \pm 5$.

Для экспериментальных исследований были выбраны образцы со следующими геометрическими параметрами: для тримера $s = 50 \pm 5$ нм, $d = 280 \pm 5$ нм, $h = 260 \pm 5$; для квадрумера $s = 70 \pm 5$ нм, $d = 270 \pm 5$ нм, $h = 260 \pm 5$. Изучались именно эти образцы, поскольку, как будет показано далее, их спектральные особенности являлись наиболее подходящими для длины волны используемого источника (Рис. 3.1, ??).

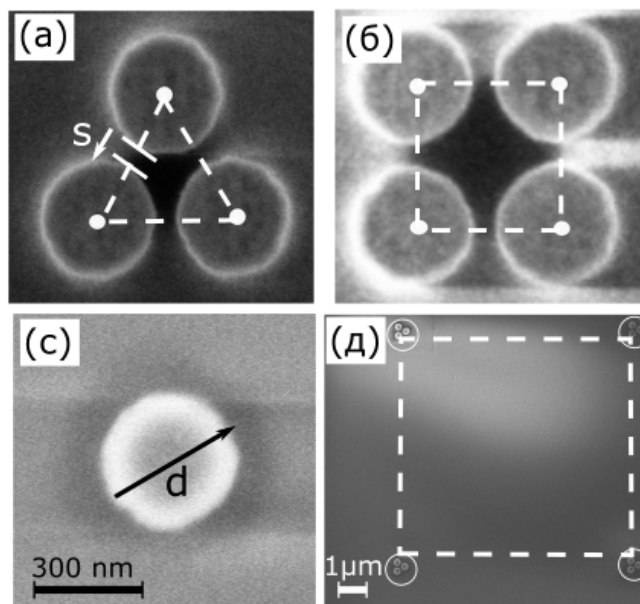


Рис. 27: Полученные методом сканирующей электронной микроскопии изображения экспериментальных образцов, где где s – расстояние между границами дисков в структуре, d – диаметр отдельного диска; T – характерное расстояние между олигомерами. Показаны тример - три близко расположенных нанодиска в форме равностороннего треугольника (а), квадрумер - четыре нанодиска в вершинах квадрата (б), мономер - одиночная частица (с) и изображение нескольких образцов в массиве (д)

3. Линейная спектроскопия олигомеров

3.1. Линейная установка спектроскопии рассеяния в геометрии на пропускание

После изготовления образцов и описания их с помощью СЭМ была начата оптическая характеристика олигомеров. Была выбрана линейная спектроскопия в схеме на пропускание, как наиболее простая, но при этом отражающая Ми-резонансные особенности полупроводниковых наносистем. Для получения спектров пропускания одиночных образцов использовалась установка, схематически представленная на рисунке 28. В качестве источника излучения использовался иттербиевый твердотельный фемтосекундный лазер (ТеМа) с центральной длиной волны $\lambda = 1050$ нм и длительностью импульса $t = 150$ фс, излучение которого фокусировалось в одномодовое нелинейное оптическое фотонно-кристаллическое волокно (ОМВ) с большими значениями нелинейных коэффициентов и практически нулевой дисперсией для спектрального диапазона накачки, закрепленное на трехкоординатной механической платформе. В волокне формировалось излучение суперконтинуума со спектральным диапазоном от 900 нм до 1250 нм (Рис. 29). Мощность и поляризация

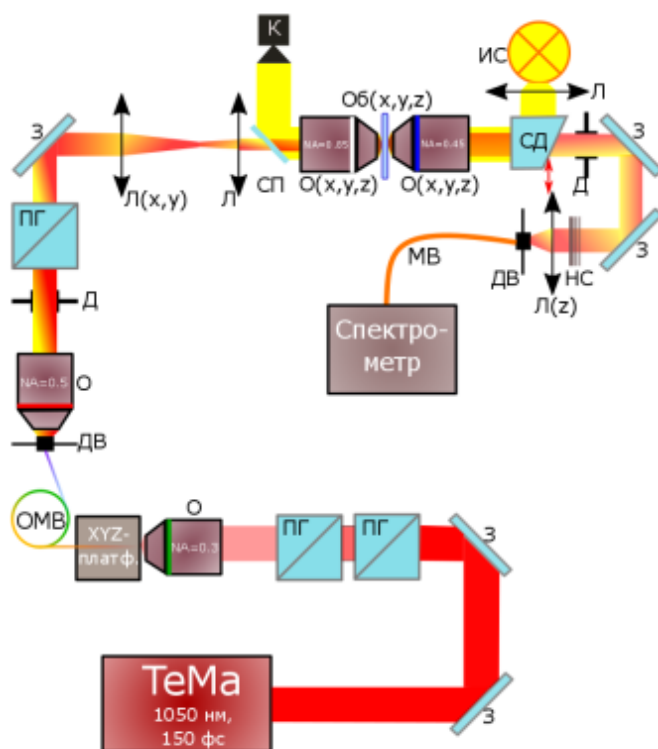


Рис. 28: (Принципиальная схема экспериментальной установки для линейной спектроскопии: ТеМа – иттербиевый твердотельный фемтосекундный лазер; З – металлическое зеркало; ПГ – призма Глана; О – объективы с различными числовыми апертурами; Об(x,y,z) – образец на трехкоординатной платформе, оснащенной автоматически управляемыми пьезо-подвижками, которые обеспечивают точность передвижения образца ≈ 5 нм; ОМВ – одномодовое микроструктурированное оптическое волокно; Д – диафрагма, Л – линзы с различными фокусными расстояниями; СП – стеклянная пластинка; К – камера; ИС – источник света, диодная лампа; СД – светоделитель 50:50, убирается при измерениях; НС – набор нейтральных фильтров; ДВ – держатель для оптического волокна; МВ – многомодовое оптическое волокно.

излучения, попадающего на волокно, а, значит, и форма полученного суперконтинуума, контролировались двумя призмами Глана (ПГ), расположенными перед объективом с числовой апертурой $NA = 0.3$. Излучение суперконтинуума собиралось объективом с числовой апертурой $NA = 0.5$. Параллельный пучок после объектива попадал на призму Глана (ПГ), контролирующую поляризацию электромагнитной волны, и на систему из двух линз (Л(x,y) и Л) с различными фокусными расстояниями ($F_1 \approx 15$ см, $F_2 \approx 6$ см), изменяющую диаметр пучка до размеров, необходимых для корректной засветки фокусирующего на образец объектива (О(x,y)). Свет фокусировался объективом с числовой апертурой $NA = 0.85$ на отдельный тример в образце (Об(x,y,z)) (процесс фокусировки света на отдельный образец будет описан ниже), диаметр перетяжки в фокусе при этом был равен примерно 3 мкм.

Прошедшее излучение под малыми углами относительно направления распространения собиралось объективом с числовой апертурой $NA = 0.45$. Прошедшее через образец излучение после объектива фокусировалось с помощью плоско-выпуклой линзы в многомодовое оптическое волокно (МВ) с диаметром 700 мкм, соединенное со спектрометром "NIRQuest512-фирмы Ocean Optics. Спектрометр оснащен ПЗС-линейкой из арсенида галлия-индия (InGaAs) и позволяет детектировать излучение с разрешением 3.0 нм в диапазоне 900 – 1700 нм. Перед волокном расположен набор нейтральных фильтров (НС), подбираемых в зависимости от мощности падающего на образец излучения. Каждый полученный спектр пропускания тримера нормировался на спектр пропускания покровного стекла, на котором отсутствовали элементы из аморфного кремния. Процедура повторялась 10 раз для каждого образца, после чего полученные данные усреднялись.

Рассмотрим процесс визуализации и наведения на конкретный отдельный образец. Вся структура освещалась диодным источником света (ИС), совмещенным с линзой, обеспечивающей параллельный пучок. Излучение лампы фокусировалось объективом с числовой апертурой $NA = 0.45$ на некоторую область образца, собиралось объективом с числовой апертурой $NA = 0.85$ и направлялось на камеру, оснащенную светочувствительной матрицей на основе комплементарной структуры металл-оксид-полупроводника (КМОП-камеру), на которой можно было наблюдать отдельные нанообъекты в образце. Также на камере фиксировалось положение лазерного пучка. С помощью автоматизированной трехкоординатной платформы с шагом 50 нм весь образец перемещался между двумя объективами, пока положение исследуемого тримера не совмещалось с положением лазерного пучка. Далее настраивалось положение образца относительно фокуса двух софокусных объективов. От фокусировки зависела глубина провала в спектре пропускания, но не зависело его спектральное положение, поэтому настройка по фокусу проводилась с меньшей точностью, чем в нелинейном эксперименте, для которого точность фокусировки была крайне важной.

3.2. Спектры пропускания и анализ их характерных особенностей

Алгоритм линейной спектроскопии был следующим: измерялся спектр излучения, прошедшего через стеклянную подложку, вблизи наноструктуры, далее образец перемещался таким образом, чтобы образец одиночного олигомера совместился с центром лазерного пучка, после чего измерялся спектр излучения прошедшего через олигомер, и осуществлялась нормировка сигнала от образца на сигнал от подложки. Данная процедура повторялась 10 раз для каждого кластера. В результате были получены спектры различных образцов из различных массивов. Разные образцы измерялись, чтобы продемонстрировать зависимость положения резонансов от раз-

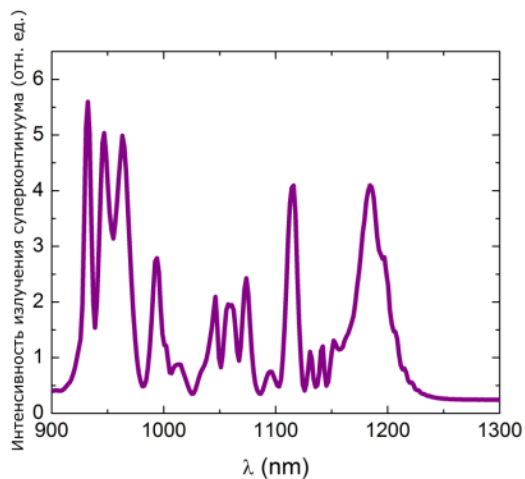


Рис. 29: Спектр излучения суперконтинуума, полученный в одномодовом микроструктурированном волокне на установке, представленной на рисунке 28.

мера структуры, а также усреднить спектр в рамках одного массива, чтобы убрать влияния неточностей изготовления.

На рисунке 30 представлены спектры пропускания тримера с расстоянием между наночастицами $s = 50$ нм и диаметром $d = 285$ нм (синие точки) и квадрумера с расстоянием $s = 70$ нм и диаметром $d = 270$ нм (красные точки), выбранных для дальнейших исследований. Синей кривой показана характерная погрешность в спектрах. Серый пик - спектр лазерного импульса, который будет использоваться для возбуждения третьей оптической гармоники образцов. В спектральной области излучения фемтосекундного лазера наблюдается провал в спектрах пропускания олигомеров, причем его положение практически совпадает для двух типов структур. Более подробно тип и особенности резонанса будут обсуждаться в следующей части при численном анализе систем. Будет показано, что в олигомерах возбуждается МД резонанс Ми-типа, характеризующийся высокой локализацией электромагнитного поля в объеме наночастиц. Эта особенность образцов повлияла на выбор их для дальнейшего изучения анизотропии ТГ.

На спектр рассеяния влияет размер олигомера. При уменьшении диаметра нанодисков происходит спектральное смещение положения минимума в более коротковолновую область, что демонстрируется на рисунке 31 на примере тримера. Черная линия - это спектр пропускания олигомера. Красной штрихованной линией на графиках обозначено спектральное положение излучения накачки, аналог серого импульса на предыдущем рисунке. Спектральное положение резонанса смещается при изменении размеров наночастиц и их взаимного расположения. На рисунках 31(а), 31(б) представлены спектры тримеров с близко расположенными нанодисками $s = 50$ нм. Для более маленького диаметра, случай (б), резонанс сдвинут на 50

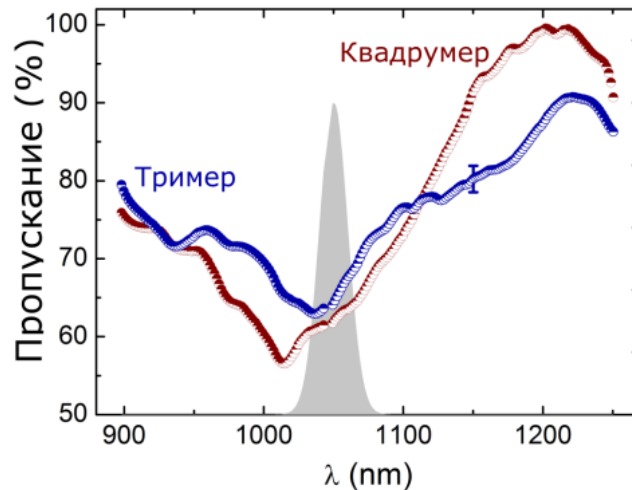


Рис. 30: Экспериментальные зависимости коэффициентов пропускания от длины волны возбуждающего излучения для тримера с расстояниями между нанодисками равными $s = 50$ нм и диаметром $d = 285$ нм и квадрумера с расстоянием $s = 70$ нм и диаметром $d = 270$ нм. Серая область показывает спектр лазерного импульса, которым возбуждается суперконтинуум.

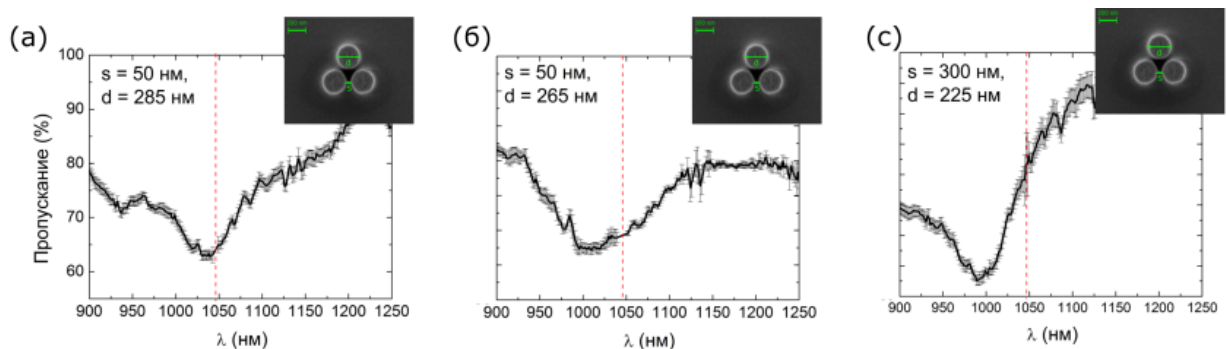


Рис. 31: Экспериментальные зависимости коэффициентов пропускания от длины волны возбуждающего излучения для тримеров различного диаметра и расстояние между наночастицами. (а) расстояние между нанодисками $s = 50$ нм и диаметр $d = 285$ нм; (б) расстояние между нанодисками $s = 50$ нм и диаметр $d = 265$ нм; (с) расстояние между нанодисками $s = 30$ нм и диаметр $d = 225$ нм. Красная линия обозначает центральную длину волны лазерного импульса. Вставки - СЭМ изображения соответствующих образцов.

нм в голубую область. Спектр пропускания обладает асимметрией из-за взаимодействия нанодисков образца, что ранее исследовалось и обсуждалось мной в обзоре литературы. Расстояние между наночастицами влияет на взаимодействие наночастиц и также смещает положение резонанса. На рисунке 31(в) показан спектр тримера с большим расстоянием $s = 300$ нм между нанодисками и самым маленьким из трех

образцов диаметром наночастиц. Резонанс данного образца становится более симметричным и имеет минимум дополнительно сдвинутый от 1050 нм. Таким образом показано, что, меняя размер нанодисков образца и расстояние между ними, можно изменять как спектральное положение, так и форму спектра пропускания системы. Также экспериментально продемонстрировано наличие взаимодействия наночастиц в ближнем поле, которое как раз и проявляется в изменении формы спектра пропускания.

4. Численный расчет спектров пропускания образцов

4.1. Сравнение экспериментальных и численных результатов для определения типа возбуждаемого резонанса

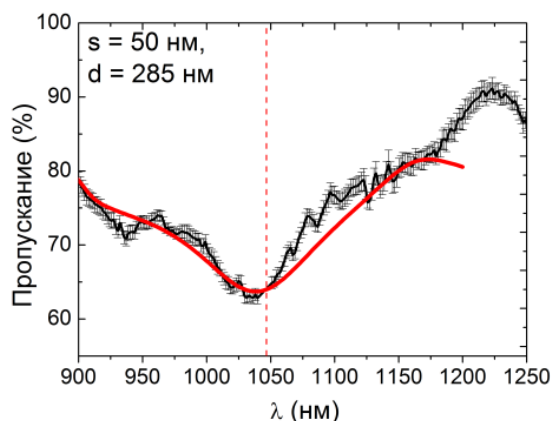


Рис. 32: Зависимость коэффициента пропускания одиночного тримера от длины волны. Экспериментальная кривая для резонансного тримера – черная линия, расчетная кривая (параметры представлены на графике) – красная линия.

Для понимания природы возбуждаемых резонансов в олигомеров проводились численные расчеты спектров пропускания и распределения электромагнитного поля в сечениях нанодисков. Расчеты линейных спектров олигомеров проводились с помощью метода конечных разностей во временной области в программном пакете Lumerical FDTD. На рисунке 32 черной линией представлен экспериментальный спектр тримера, красной – результат численного расчета при освещении одиночной структуры сфокусированным гауссовым пучком. Размеры для расчета брались из анализа СЭМ изображения олигомера и варьировались с шагом 5 нм, что связано с разрешением СЭМ картинки, разницы в спектральных особенностях реального аморфного кремния и использованного в расчетах, а также неточности изготовления образцов (неровности, скос стенок). После подбора геометрических параметров тримера для расчета анализировалось распределение электромагнитного поля в сече-

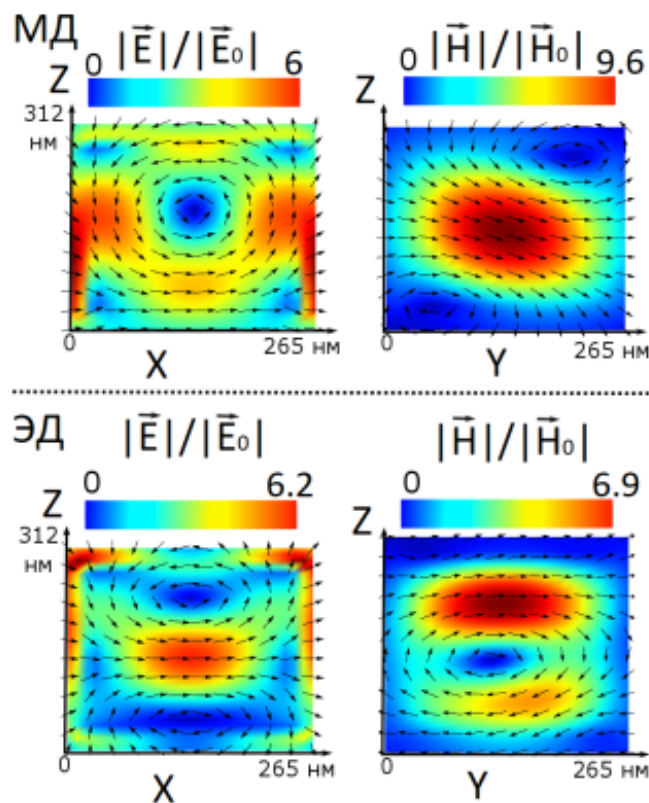


Рис. 33: Распределение электрического и магнитного поля в одном из нанодисков отдельного тримера. (А) распределение электрического (слева) и магнитного (справа) поля на длине волны $\lambda = 1.04$ нм, соответствующее МД резонансу Ми-типа; (Б) распределение электрического (слева) и магнитного (справа) поля на длине волны $\lambda = 0.85$ нм, соответствующее ЭД резонансу Ми-типа.

ниях системы, чтобы определить тип возбуждаемого резонанса. После исследования распределения электромагнитных полей в одном из нанодисков образца, для которого был произведен расчет, было получено, что минимум на длине волны $\lambda = 1050$ нм соответствует возбуждению МД резонанса Ми-типа (Рис. 33А). Электрическое поле закручивается в нанодиске, возбуждая магнитный диполь в перпендикулярном сечении, что видно на верхней части рисунка. В тримерах в оптическом диапазоне длин волн возбуждается также ЭД резонанс Ми-типа (Рис. 33Б), расположенный в более коротковолновой спектральной области, не представленной на рисунке 32. Для него наоборот электрическое поле ведет себя как диполь, колеблющийся коллинеарно возбуждающей волне. Магнитное поле закручивается вокруг диполя в перпендикулярной плоскости.

Размеры экспериментальных образцов выбирались на основе численных расчетов, таким образом чтобы МД резонанс олигомера спектрально пересекался со лазерным импульсом с центральной длиной волны 1050 нм. Поскольку изготовление имеет погрешность создавались массивы образцов с шагом по диаметру в 20 нм.

4.2. Спектры для разных расстояний между нанодисками олигомеров и их ближне-непольное взаимодействие

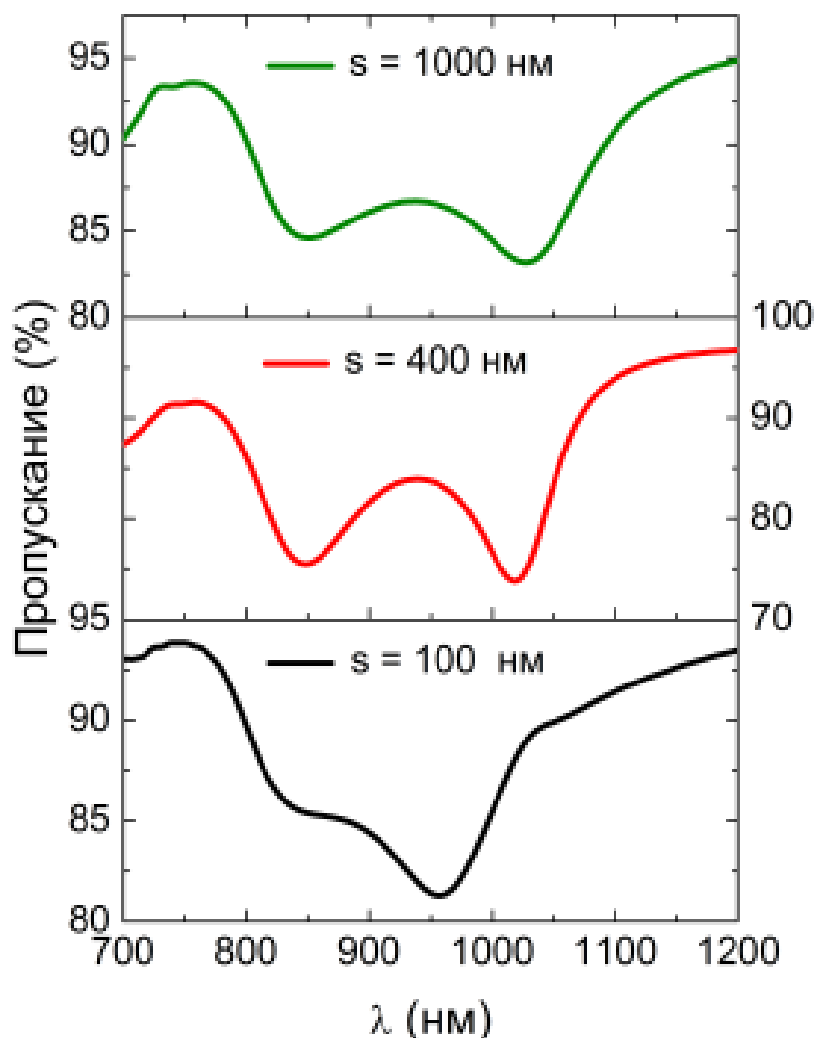


Рис. 34: Спектры пропускания образцов: мономера и тримеров, с различными расстояниями между границами дисков при фиксированном диаметре, равном $d = 235$ нм.

Численно показано, что при сближении нанодисков в тримере при их фиксированном размере ($d = 235$ нм) происходит изменение формы спектра пропускания образцов. На рисунке 34 показаны спектры для характерных расстояний между наночастицами 100 нм, 400 нм и 1 мкм. Выше обсуждалось, что провалы в спектре соответствуют ЭД и МД резонансам, соответственно. При пространственном удалении друг от друга наночастиц МД и ЭД резонансы спектрально раздвигаются. При удалении на 400 нм асимметрия из-за интерференции диполей пропадает, ЭД и МД резонансы спектрально разделяются. Спектр пропускания при расстоянии больше

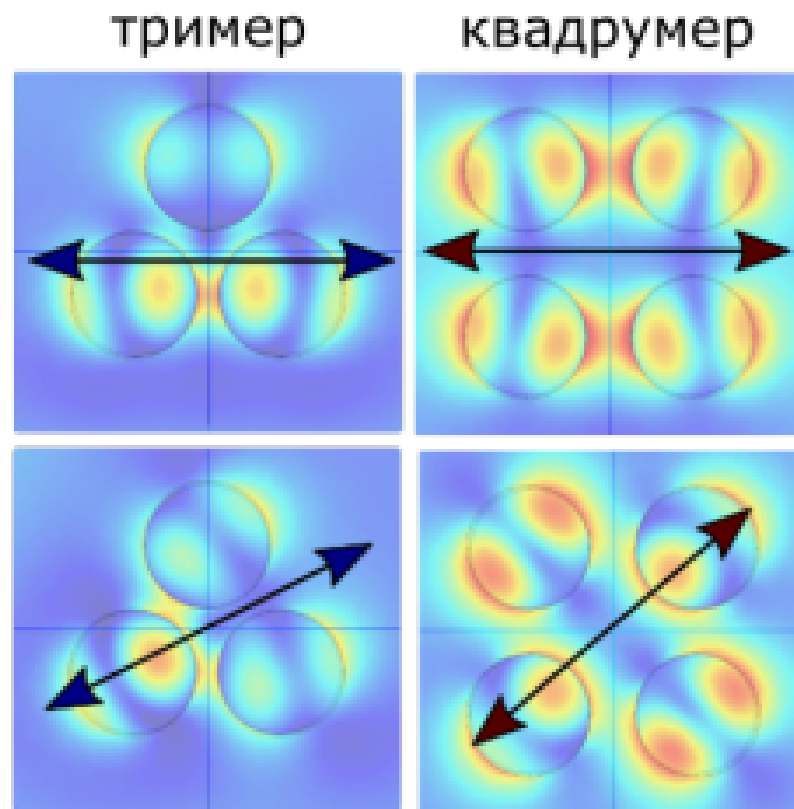


Рис. 35: Распределение электромагнитного поля в сечении олигомера параллельном стеклянной подложке для разных углов поворота поляризации накачки для тримера и квадрумера.

400 нм напоминает спектр одиночного нанодиска, в данном случае 4-х нанодисков.

Изменение спектра пропускания образцов свидетельствует о наличии ближне-польного взаимодействия между наночастицами. Нашими коллегами в программном пакете Comsol Multiphysics методом конечных элементов было рассчитано распределение электромагнитного поля в сечении тримера и квадрумера параллельном подложке для расстояния 50 нм между наночастицами (Рис. 35). Видно, что между наночастицами локализуется поле. Поскольку планируется исследовать анизотропию нелинейного отклика при изменении взаимного расположения образца и поляризации накачки, расчеты также осуществлялись для разных углов поворота вектора электрического поля. При вращении поляризации накачки (черная стрелка на рисунке) характер взаимодействия нанодисков меняется. Для тримера при повороте на 60° возникает взаимодействие между двумя парами наночастиц. Если накачка параллельна стороне равностороннего треугольника взаимодействуют только два нанодиска, линия соединяющая центры которых коллинеарно с вектором накачки. Для квадрумера необходим поворот на 45° , чтобы включить взаимодействие между максимальным числом наночастиц. Разница во взаимодействии между нанодисками в тримере и квадрумере, которую видно в сечении на длине волны накачки, является

основной предпосылкой к возникновению анизотропии ТГ.

4.3. Изотропия линейного отклика при повороте поляризации на 360 градусов

Несмотря на то, что наночастицы по-разному ведут себя в тримере и квадрумере в ближнем поле, в дальнем поле сигнал остается изотропным, что было проверено как численно методом конечных разностей во временной области (Рис. 36), так и экспериментально в следующей части.

Линейный отклик анизотропной системы на электромагнитное поле имеет вид $P_i(\mathbf{r}, t) \sim \chi_{ik}^{(1)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - t_i; \mathbf{r}, t) E_k(\mathbf{r}, t)$, где $\chi^{(1)}$ для анизотропных сред является трехмерной матрицей, которую выбором соответствующей системы координатных осей можно привести к диагональному виду. Зададим диагональную матрицу с

различными элементами на диагонали в общем случае $\chi^{(1)} = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix}$ и рас-

смотрим ее поведение при вращении образца, задаваемое матрицей поворота $R = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta & 0 \\ -\sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$. Будем искать случаи, когда матрица переходит сама в себя, то

есть наблюдается симметрия при повороте на некоторый угол θ .

$$\begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta & 0 \\ -\sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix} \quad (12)$$

$$\begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta & 0 \\ -\sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix} = 0 \quad (13)$$

$$\begin{pmatrix} \cos \theta - 1 & \sin \theta & 0 \\ -\sin \theta & \cos \theta - 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix} = 0 \quad (14)$$

Из уравнения 14 видно, что для ненулевой матрицы линейного отклика системы, равенство будет достигаться для углов $\theta = 0^\circ$ и $\theta = 360^\circ$. Поэтому ожидался изотропный линейный отклик системы при вращении образца, относительно фиксированного направления поляризации возбуждающего излучения. В расчетах вращалось направление поляризации относительно фиксированного положения наноструктурированного образца. Бралось значение пропускания системы на длине волны 1050 нм, что соответствует МД резонансу олигомера для каждого угла вращения поляризации. Результат расчетов представлен на рисунке 36, из которого видно, что линейный отклик системы, действительно, является изотропным.

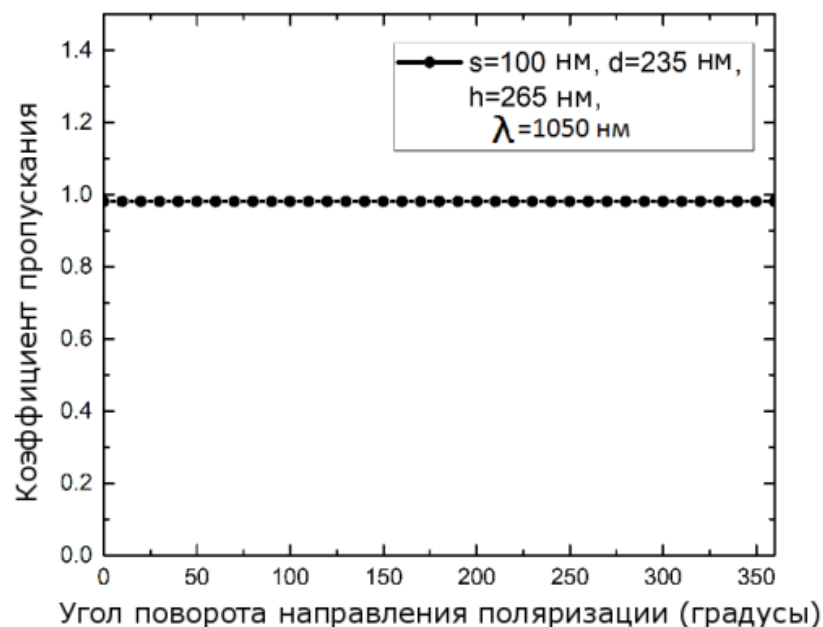


Рис. 36: Зависимость коэффициента пропускания изолированного тримера для фиксированной длины волны, соответствующей МД резонансу, от угла поворота направления поляризации падающего излучения, рассчитанная методом конечных разностей во временной области.

5. Анизотропия третьей оптической гармоники

5.1. Установка нелинейной микро-спектроскопии

Для экспериментов по генерации ТГ от изолированных олигомеров использовалось излучение иттербиевого твердотельного фемтосекундного лазер (ТеМа) с центральной длиной волны $\lambda = 1050$ нм и длительностью импульса $t = 150$ фс, модулированное оптическим прерывателем на частоте 292 Гц (Рис. 37). Три призмы Глана (ПГ), расположенные между источником излучения и оптическим прерывателем (Ч), играли ту же роль, что три призмы Глана в линейной установке. Установка для нелинейной микроскопии образцов имела два плеча: основной канал с исследуемой структурой и канал сравнения с неструктурированной пленкой аморфного кремния, имеющей толщину, равную толщине образцов. Рассмотрим основной канал. Он (аналогично случаю установки для линейной спектроскопии) состоял из фокусирующего объектива с $NA = 0.85$, образца на автоматической XYZ-платформе, и собирающего объектива с $NA = 0.45$, со-фокусного с первым. В отличие от линейной установки в данной конфигурации возможно вращение образца на 360° . Методика визуализации образца аналогична методике, описанной в параграфе 3.1. Для переключения на канал сравнения использовалось металлическое зеркало, механически вводимое в установку. Канал сравнения состоит из асферической линзы, фокусирую-

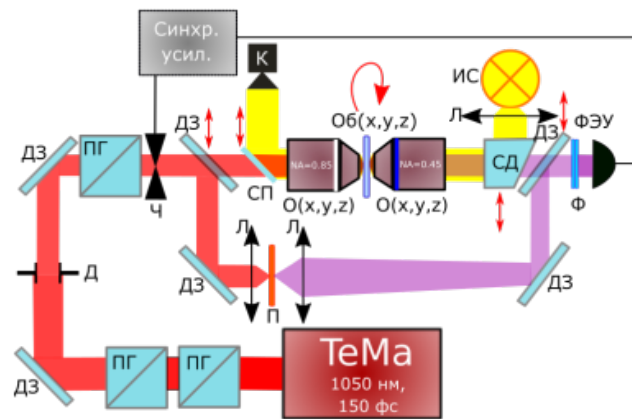


Рис. 37: Принципиальная схема экспериментальной установки для нелинейной микроскопии: ТеМа – иттербиевый твердотельный фемтосекундный лазер; ПГ – призма Глана; З – металлическое зеркало; Ч – оптический прерыватель, О – объективы с различными числовыми; Об(x,y,z) – образец на держалке с возможностью механического вращения на 360° , помещенный на трехкоординатную платформу с автоматическим управлением (Sigma Koki); Д – диафрагма, Л – линзы с различными фокусными расстояниями; СП – стеклянная пластинка (убиралась при измерениях); К – КМОП камера; ИС – источник света, лампа накаливания; СД – светоделитель 1:1 (убиралась при измерениях); Ф – набор фильтров для детектирования излучения на частоте третьей оптической гармоники; П – неструктурированная пленка кремния.

щей лазерный пучок на неструктурированную пленку аморфного кремния, диаметр перетяжки при этом ≈ 5 мкм, собирающей линзы с фокусным расстоянием 5 см и металлического зеркала, механически вводимого в установку и расположенного после делителя света (СД). Одновременное получение сигнала с канала сравнения и с основного канала в данной конфигурации установки невозможно. Нелинейный сигнал с обоих каналов детектировался фотоэлектронным умножителем (ФЭУ), показания которого обрабатывались синхронным усилителем, связанным с оптическим прерывателем. Таким образом, понижался уровень шума в обрабатываемом сигнале. Перед фотоэлектронным умножителем располагался набор фильтров *BG39*, пропускающих сигнал только на частоте ТГ.

5.2. Методика измерений с картинкой микроскопии олигомера

Первая часть нелинейной микроскопии состояла из правильного наведения на центр образца. С помощью трехкоординатной автоматизированной платформы совмещалось изображение исследуемой структуры и изображение пучка накачки на камере. Шаг платформы, как указано выше, равнялся 100 ± 30 нм. При этом образец перемещался в зазоре между двумя объективами, в то время как последние остава-

лись неподвижными. Перемещение осуществлялось программой, написанной в программном пакете LabView. При этом образцы освещались лампой накаливания и находились в фокусе объективов. Положение фокуса при освещении образцов лампой и лазерным пучком не совпадало. Далее из установки убирались стеклянная пластинка и светоделитель, поскольку эти оптические элементы приводили к искажению сигнала. После чего проводилась более тонкая настройка положения образца относительно лазерного пучка и относительно фокальной плоскости объективов для инфракрасного света. При этом перемещение осуществлялось в направлении увеличения сигнала ТГ.

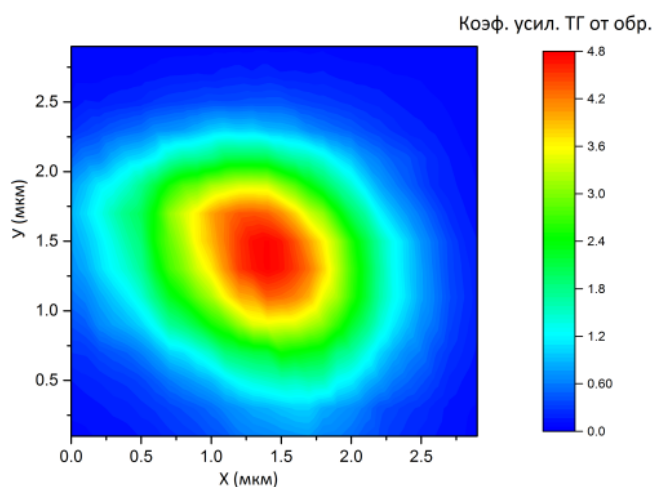


Рис. 38: Результат нелинейной микроскопии одного из изолированных образцов, в данном случае тримера. Цветом обозначен коэффициент усиления сигнала ТГ с образца относительно сигнала ТГ от неструктурированной пленки кремния, помещенной в основной канал установки.

После достижения максимума сигнала ТГ начинался автоматизированный в программном пакете LabView процесс сканирования образца с шагом 100 нм. Количество шагов выбиралось в зависимости от размера исследуемой структуры и конкретной экспериментальной задачи. Проводилось усреднение сигнала ТГ по 5-ти точкам. При сканировании образец перемещался между двумя объективами в плоскости, перпендикулярной направлению распространения лазерного импульса. Таким образом, более точно находился наибольший сигнал ТГ и получались микроскопические нелинейные карты образцов (Рис. 38), благодаря которым можно визуализировать отклик отдельных олигомеров на различное состояние поляризации волны накачки. Отклик наноструктур на различное состояние поляризации волны накачки непосредственно связан ближнепольным взаимодействием составляющих его нанодисков, приводящим к возбуждению определенных оптических мод в олигомерах, и изменению локализации поля в них. После завершения сканирования снимался сиг-

нал ТГ с канала сравнения, с помощью которого контролировалась стабильность работы лазера. Данные, полученные из основного канала, нормировались на сигнал ТГ с канала сравнения.

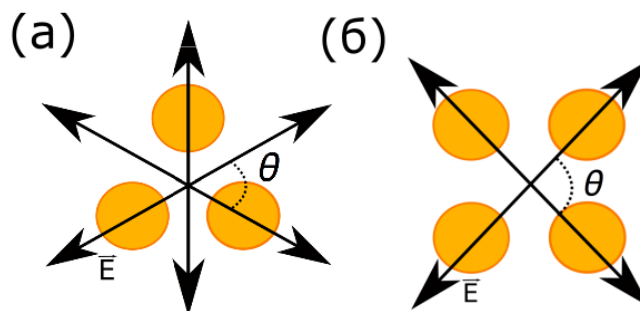


Рис. 39: Выделенные направления поляризации и плоскость вращения олигомеров.

Далее для экспериментов, требующих поворот образца относительно фиксированного направления поляризации излучения лазерной накачки, снова строилось изображение образца на камере, и осуществлялся механический поворот образца на 10° . Положение исследуемого олигомера контролировалось по изображению образца на камере. После завершения поворота описываемый выше процесс повторялся. На рисунке 39 показана плоскость вращения тримера и квадрумера с выделенными взаимными направлениями поляризации, накачки и образца, которые будут более подробно обсуждаться в части 5.4.

5.3. Доказательство детектирования третьей оптической гармоники

Перед началом проведения основных экспериментов было проверено, что детектируемый сигнал, действительно, является сигналом ТГ: получена кубическая зависимость детектируемого ФЭУ сигнала от мощности излучения накачки (Рис. 40). График зависимости мощности ТГ от мощности накачки строился в двойном логарифмическом масштабе и аппроксимировался линейной функцией вида $y = kx + b$. Методом наименьших квадратов (МНК) были получены следующие коэффициенты: $k = 2,74 \pm 0,02$ и $b = 0,26 \pm 0,02$. Коэффициент k приблизительно равен трем, а b стремится к нулю. Таким образом, логарифм нелинейного отклика пропорционален тройному логарифму мощности пучка накачки. Это означает, что нелинейный сигнал пропорционален третьей степени падающего света, что указывает на то, что измеряется именно третья гармоника.

5.4. Анизотропия третьей гармоники от квадрумера, тримера и мономера

Этот параграф посвящен нелинейной микроскопии образцов: тримеров, квадрумеров и мономеров, для разных взаимных расположений поляризации накачки и

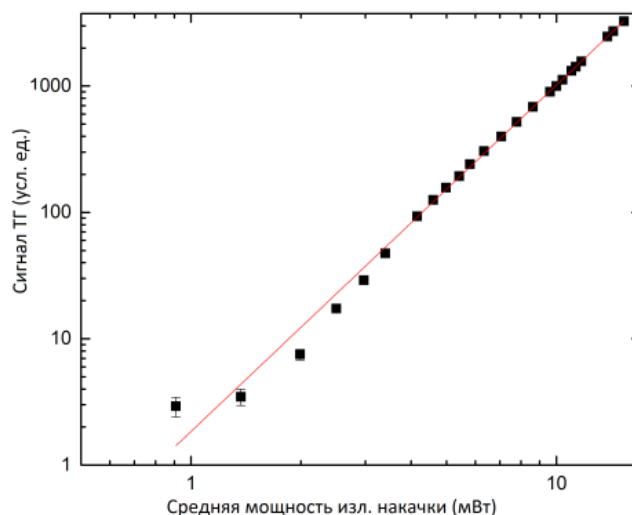


Рис. 40: График зависимости сигнала ТГ от средней мощности излучения накачки в двойном логарифмическом масштабе. Аппроксимация линейной функцией вида $y = kx + b$ с полученными методом МНК коэффициентами $k = 2,74 \pm 0,02$ и $b = 0,26 \pm 0,02$.

олигомера. Используя метод описанный выше 5.2, достигалось наилучшее пересечение центра пучка с центром олигомера и фокусировка для каждого значения угла поворота образца θ . Далее измерялось значение интенсивности ТГ для образцов в зависимости от θ . Результаты для каждой точки по углу делились на сигнал ТГ из канала сравнения от неструктурированной пленки аморфного кремния. Затем мы нормировали полученные результаты на максимум зависимости для каждого образца, чтобы сфокусироваться на форме зависимости и глубине модуляции. Процедура нормировки позволяет исключить сравнение абсолютных значений отклика ТГ. Случай $\theta = 0$ соответствует электрическому полю накачки параллельному стороне либо тримера, либо квадрумера. Средняя мощность излучения накачки перед фокусирующим объективом в эксперименте была равна $P \approx 12$ мВт. Экспериментальные зависимости представлены на Рис. 41 красными точками (а) для тримера и (б) для квадрумера. Поскольку каждая точка является усреднением по нескольким соседним экспериментальным образцам красными штрихами показана статистическая ошибка измерений без учета операционных погрешностей. Черные кривые на рисунке - это Фурье аппроксимация эксперимента, в которой оставлены только основные гармоники. Правильность такого приближения будет обсуждаться далее. Как обсуждалось ранее образцы являются резонансными для длины волны накачки $\lambda = 1050$ нм, те МД резонанс как тримера, так и квадрумера находится на этой длине волны, и сигнал ТГ максимален в данной спектральной области.

На рисунке 41(а) видно, что при повороте на 180° зависимость ТГ резонансного

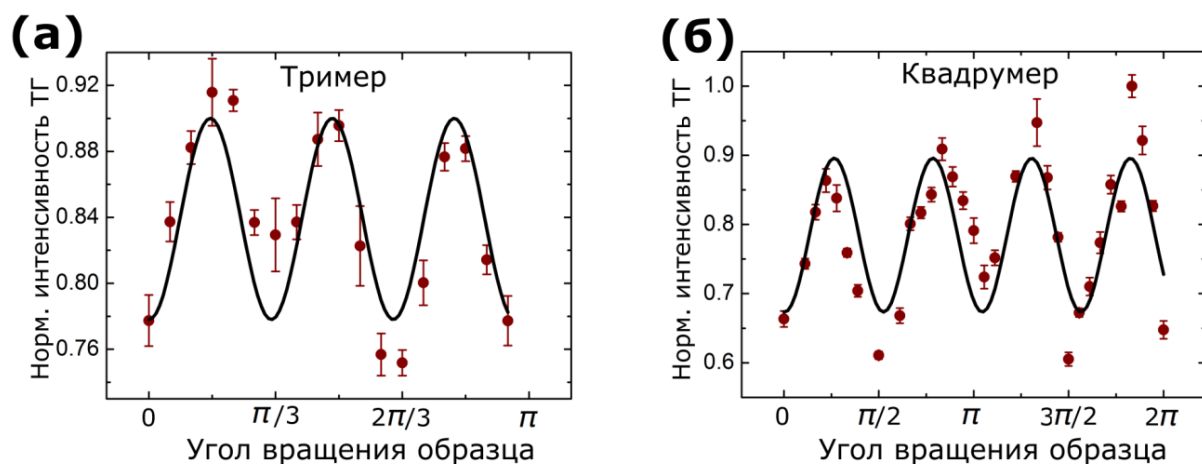


Рис. 41: Микроскопия ТГ тримера (а) и квадрумера (б) — интенсивность ТГ образцов в зависимости от азимутального угла. Сплошные черные кривые показывают Фурье аппроксимацию экспериментальных результатов.

тримера от угла поворота образца имеет три пика, что совпадает с теоретическими предсказаниями из параграфа 6.5. Наблюдается модуляция нелинейного сигнала порядка 20%. Зависимость для резонансного квадрумера 41(б) имеет симметрию C_4 . Зависимость сигнала ТГ от угла поворота образца обладает 4-мя равновеликими максимумами при повороте всего образца на 360° , что повторяет собственную симметрию структуры. Модуляция сигнала $\approx 45\%$, что больше чем для тримера, что связано с количеством взаимодействующих наночастиц. Экспериментальная и теоретическая зависимости, которая будет рассмотрена в следующем параграфе, совпадают по форме: угловому положению максимумов и минимумов сигнала ТГ. Сравнивая графики на рисунках 41(б) и 41(а), можно сказать, что симметрия нелинейного сигнала в резонансном случае зависит от геометрии взаимного расположения нанодисков в олигомере и позволяет показывать взаимодействие наночастиц в ближнем поле в дальнем без использования ближнеполюсных техник. Кроме того, вращая поляризацию, можно управлять интенсивностью нелинейного преобразования.

В нерезонансном тримере (МД резонанс сдвинут относительно $\lambda = 1050$ нм) интенсивность ТГ в 2 раза меньше. Зависимость имеет слабо выраженную симметрию 2-го порядка 42. Таким образом, в зависимости от взаимного спектрального положения МД резонанса и лазерного излучения ТГ от образца имеет различную симметрию, что мы связываем, с локальным взаимодействием наночастиц в олигомере, которое практически пропадает для нерезонансного случая.

Аналогичный эффект наблюдается при исследовании образца с большим рас-

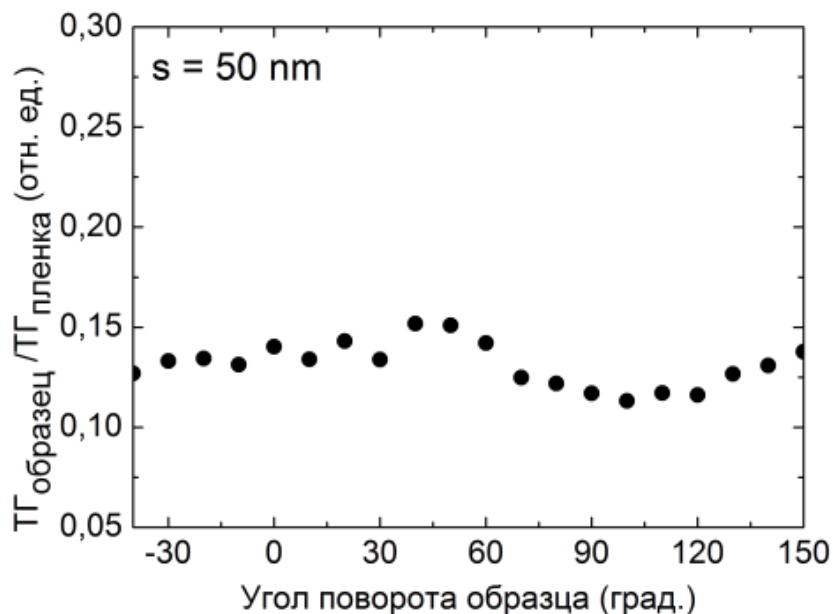


Рис. 42: Интенсивность ТГ тримера в зависимости от азимутального угла поворота образца относительно неподвижной поляризации накачки для нерезонансного тримера.

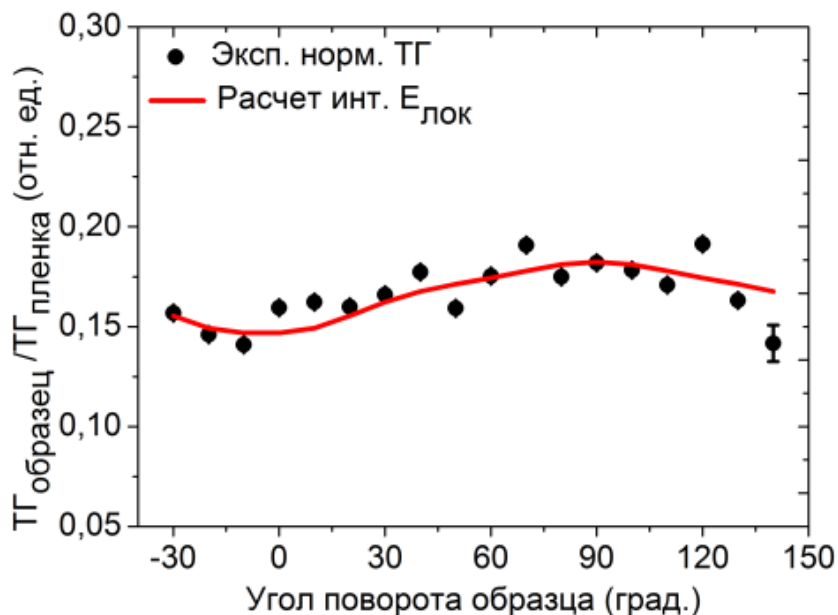


Рис. 43: Интенсивность ТГ в зависимости от азимутального угла поворота образца относительно неподвижной поляризации накачки для тримера с расстоянием 300 нм между нанодисками. Сплошная красная кривая показывают Фурье аппроксимацию экспериментальных результатов.

стоянием между наночастицами, $s = 300$ в данном случае 43. При отсутствии взаимодействия нанодиски ведут себя как отдельные наночастицы, и не происходит возбуждение коллективных мод. При отсутствии коллективных мод пропадает особенная анизотропия интенсивности ТГ с ними связанная. Более подробно влияние сдвига МД резонанса от излучения накачки на наличие анизотропии интенсивности ТГ будет показано в следующей части диссертации, посвященной численным расчетам.

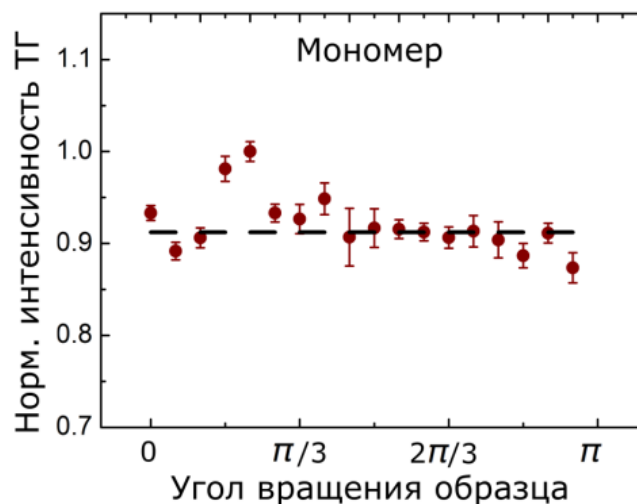


Рис. 44: Интенсивность ТГ в зависимости от азимутального угла поворота образца относительно неподвижной поляризации накачки для одиночного нанодиска. Черная штрихованная линия - аппроксимация изотропной зависимости.

Важно также отметить, что исследуемые образцы изготовлены из аморфного кремния. Данный материал не обладает кристаллической структурой. Нелинейная восприимчивость аморфного кремния является изотропной, поэтому на показанные выше экспериментальные зависимости особенности материала влияния не оказывает.

Завершающим шагом для доказательства влияния взаимодействия наночастиц в структуре на анизотропию ТГ стало исследование одиночной изолированной частицы из аморфного кремния. С резонансным образцом были проведены эксперименты по аналогии с тримером и квадрумером. Как и ожидалось, зависимость интенсивности ТГ от вращения мономера является изотропной (Рис. 44). Этим экспериментом дополнительно было исключено влияние материала, особенностей экспериментальной установки и методики на получаемый результат. Всплески в зависимости связаны со сложностью экспериментально работы с одиночным объектом и большим влиянием неточностей фокусировки и колебаний лазера.

Важно отметить, что взаимное положение поляризации накачки и олигомер влияет на интенсивность ТГ, но электрическое на утроенной частоте остается линейно

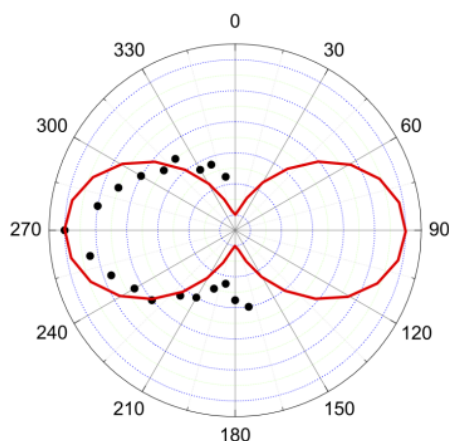


Рис. 45: Нормированная интенсивность ТГ от резонансного квадрумера в зависимости от угла поворота анализатора при фиксированной линейной поляризации луча накачки. Сплошная красная кривая указывает на теоретические результаты, полученные из закона Малюса.

поляризованным. Кроме того, ориентация поляризации совпадает с накачкой. Для того чтобы сделать это утверждение, была проверена поляризация электрического поля на длине волны ТГ при фиксированной линейной поляризации луча накачки. Интенсивность ТГ от резонансного квадрумера измерялась для различных углов анализатора, расположенного перед блоком ФЭУ, и нормировалась на максимальное значение ТГ (Рис. 45). Поле ТГ является поляризованным, причем поляризация ТГ совпадает с поляризацией излучения накачки и подчиняется закону Малюса. Это еще раз доказывает, что измеренные выше эффекты не связаны с особенностями поляризации излучения ТГ. Также факт поляризованности поля ТГ повышает возможности его использования без специальных преобразований.

Эксперименты по влиянию геометрии образца на симметрию сигнала были сосредоточены на нелинейном отклике структур. Как было показано теоретически линейный отклик ожидается изотропным и не может использоваться для определения симметрии образца в дальнем поле. В рамках данного параграфа была экспериментально показана изотропность линейного отклика, то есть невозможность обнаружить локальное взаимодействие наночастиц и симметрию структуры, используя только линейную оптику. Для этого вместо ФЭУ был поставлен диод и убраны фильтры, отсекающие накачку. Поскольку линейный сигнал больше, его легче детектировать и эксперимент не требует такой точности как нелинейный, было решено вращать не образец, а поляризацию. Накачка производилась лазером. Перед объективом помещалась пластинка $\lambda/2$, которая вращалась и меняла поворот поляризации. После собирающего объектива стоял анализатор, который вращался вместе с пластинкой. Результаты, полученные в линейном эксперименте, показаны на рисунке 46. Зави-

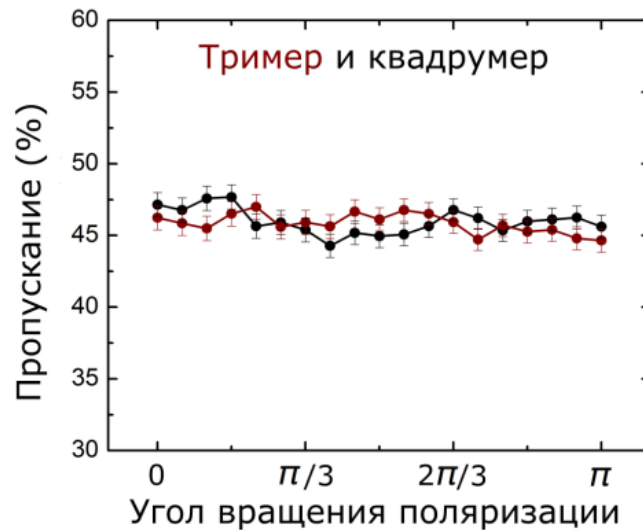


Рис. 46: Пропускание резонансных тримера ($s = 50$ нм, $d = 285$ нм, красные точки) и квадрумера ($s = 70$ нм, $d = 270$ нм, черные точки) в зависимости от азимутального угла поляризации для фиксированной длины волны $\lambda = 1050$ нм

симось пропускания от угла вращения поляризации изотропная как для тримера, так и для квадрумера, что согласуется с нашими теоретическими представлениями.

6. Численный анализ анизотропии сигнала.

6.1. Описание моделирования нелинейного отклика

Нелинейный отклик кремниевых нанодисков моделируется нашими коллегами численно с использованием метода конечных элементов в программном пакете COMSOL Multiphysics в частотном пространстве по методу, описанному в [?, 16]. Моделирование состоит из двух шагов. Сначала рассчитывается линейное рассеяние на длине волны накачки при нормальном возбуждении плоской волной. Данные о дисперсии материала для аморфного кремния взяты из эллипсометрических измерений, проведенных сразу после напыления пленок. При этом было проверено, что наличие стеклянной подложки не приводит к качественным изменениям мультиполярного разложения возбуждаемых полей. Поэтому можно упростить систему и моделировать нанодиски, помещенные в однородную среду с эффективным показателем преломления $n = 1,22$, являющимся средним значением показателей преломления воздуха и стекла. Далее рассчитывается поле внутри нанодисков на частоте ТГ. Поверхностной нелинейностью кремния пренебрегаем, так как она имеет второстепенное значение для процесса генерации нелинейных гармоник в centrosymmetric материалах, таких как кремний. Для аморфного кремния тензор объемной нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}$ считается постоянной скалярной величиной, поэтому компо-

ненты наведенной нелинейной поляризации на длине волны ТГ можно упростить как $P_i(3\omega) = \hat{\chi}^{(3)} E_i(\mathbf{E}\mathbf{E})$, где E_i — декартова компонента, $i = x, y, z$, электрического поля \mathbf{E} , возбуждаемого в нанодисках на основной частоте, которое берется из шага 1 расчета. $P_i(3\omega)$ затем используется в качестве источника для генерации ТГ полей в дальнем поле, которые могут отражать симметрию олигомера.

На основной длине волны олигомеры являются субволновыми для 1050 нм, а линейное рассеяние в основном определяется полным индуцированным дипольным моментом кластера. Для тримера и квадрумера исследуемых размеров оптический отклик в основном определяется магнитными диполями, резонансно возбуждаемыми в каждом кремниевом диске, что подробно рассматривалось в части про численные расчеты линейного отклика структур. Говорим про магнитные диполи, тк в структурах возбуждается МД резонанс Ми-типа. Также субволновой размер нанодисков влияет на отсутствие фазового синхронизма при расчете интегральной интенсивности ТГ. Для $\lambda/3$ размер нанодисков становится сравнимым с длиной волны накачки, и уже существенным является существование отдельных нанодисков в кластере и их взаимодействие. Данные качественные суждения также влияют на понимание отсутствия анизотропии линейного отклика при наличии особенностей в нелинейном. На частоте ТГ частицы излучают как нелинейные антенны, при этом общая излучаемая мощность приблизительно равна сумме от каждой частицы, что с учетом формулы выше для нелинейной поляризации пропорционально $\approx \sum_{i=1} |m_i|^6$, где m_i магнитный дипольный момент на длине волны накачки.

6.2. Сравнение резонансных квадрумера, тримера и мономера

Методом, описанным в параграфе 6.1, был рассчитан нелинейный отклик резонансного тримера и квадрумера. Были выбраны размеры образцов при которых МД резонанс пересекается с лазерным импульсом с центральной длиной волны 1050 нм. Соответствующие диаметры нанодисков олигомера - это 285 нм для тримера и 270 нм для квадрумера, что совпадает с экспериментальными данными. Далее вращалась поляризация излучения накачки и для каждой точки рассчитывалась интенсивность ТГ. Таким образом была получена угловая зависимость ТГ от взаимного расположения поляризации накачки и олигомера, представленная на рисунке 47. Видно, что зависимость ТГ для тримера (синяя кривая) и квадрумера (красная кривая) различаются. Согласно экспериментальным данным для тримера наблюдаются шесть максимумов, в то время как у квадрумера их четыре. Разница между максимумом и минимум для квадрумера практически в три раза больше, что также наблюдалось и в эксперименте. Таким образом, симметрия ТГ воспроизводит симметрию образцов без использования ближнепольного микроскопа и других сложных техник. Полученные расчеты совпадают с экспериментом и качественно и количественно, что

подтверждают экспериментальные результаты.

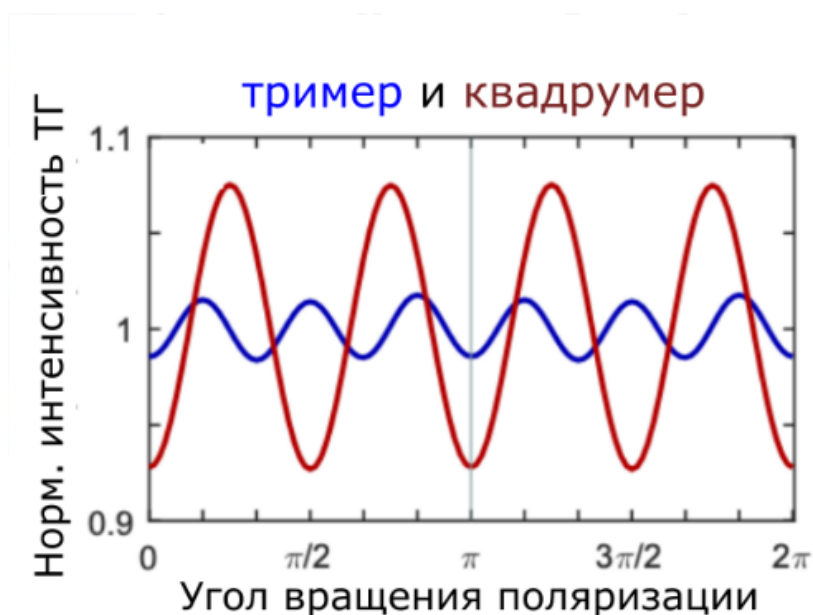


Рис. 47: Интенсивность ТГ в зависимости от угла поворота поляризации накачки в плоскости образца при фиксированной основной длине волны 1050 нм. Мощность рассчитывается по полному телесному углу и независимо нормируется на средний уровень мощности для каждого олигомера.

Распределение электрического поля на длине волны ТГ также зависит от расположения поляризации накачки. Кроме того, оно повторяет распределения на основной частоте. Как показано на рисунке 47 распределение локального поля на длине волны ТГ различается для тримера и квадрумера для разных направлений поляризации. При вращении поляризации "включаются" разные наночастицы, что определяется их геометрией. Разное распределения локального поля соответствует различным магнитным модам возбуждаемым в нанокластере. Модовый состав ТГ и накачки совпадает, тк накачка порождает нелинейный отклик.

6.3. Зависимость анизотропии третьей гармоники от расстояния между наночастицами и диаметра наночастиц для тримера и квадрумера.

Как было показано выше, при совпадении спектрального положения МД резонанса и центральной длины волны лазерного импульса наблюдается анизотропия интенсивности третьей оптической гармоники, причем симметрия отклика повторяет симметрию олигомера. На примере квадрумера (Рис. 49) было численно рассмотрена модификация эффекта при изменении диаметра нанодиска, и как следствие сдвига МД моды относительно фиксированной длины волны лазерного излучения.

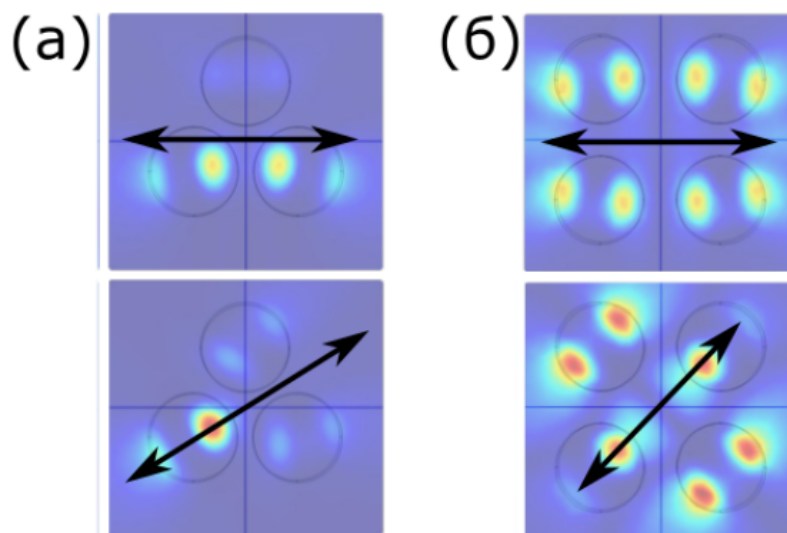


Рис. 48: Распределения ближнего поля на частоте ТГ, соответствующие углам минимума и максимума ТГ: (а) $[0, \pi/6]$ для тримера и (б) $[0, \pi/4]$ для квадрумера. Цветовая шкала представляет абсолютное значение напряженности электрического поля. Стрелки указывают ориентацию электрического поля в падающей волне.

$d = 270$ нм соответствует резонансному случаю: интенсивность сигнала максимальная и присутствуют характерные 4 пика, отвечающие симметрии квадрумера. При изменении диаметра на 20 нм интенсивность ТГ снижается, однако модуляция сохраняется. При дальнейшем уменьшении диаметра интенсивность падает. Профиль сигнала сохраняется, но из-за низкой интенсивности сигнала его измерение невозможно. Модуляция интенсивности (разница между максимумом и минимумом) падает. Таким образом, наиболее сильный эффект наблюдается именно на резонансных структурах, что также подтверждает экспериментальные выводы.

6.4. Доказательство влияния локального взаимодействия наночастиц на анизотропию третьей гармоники

Анизотропия сигнала ТГ возникает из-за ближнепольного взаимодействия наночастиц в олигомере. При отдалении друг от друга оптическая связь наночастиц ослабевает и пропадает при расстоянии порядка 300 нм, что подтверждено численно на рисунке 50 на примере тримера. Модуляция сигнала ослабевает и при расстоянии 285 нм, нанодиски ведут себя как отдельные наночастицы. Важно отметить, что при удалении наночастиц также падает интенсивность ТГ, так как взаимодействие наночастиц приводит к возбуждению коллективных мод и большей локализации поля в объеме активного материала.

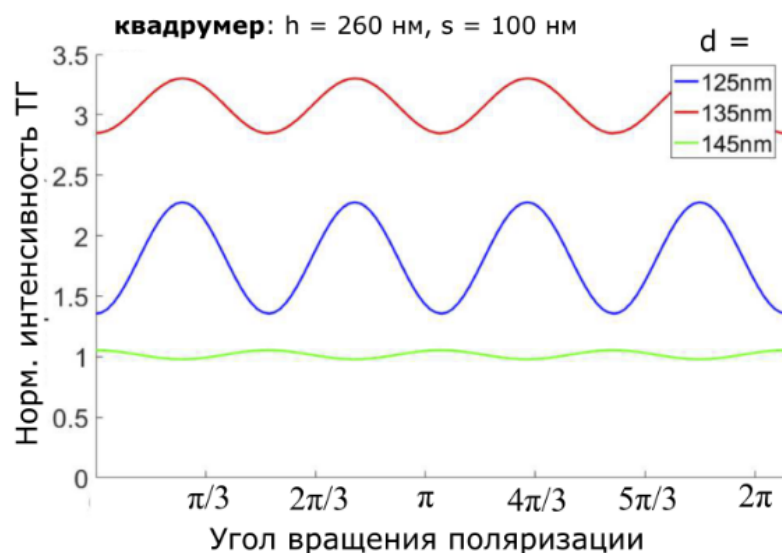


Рис. 49: Интенсивность ТГ для квадрумеров с различными диаметрами наночастиц ($d_1 = 250$ нм, $d_2 = 270$ нм, $d_3 = 290$ нм, где $d_2 = 270$ нм — резонансный) и фиксированными высотой и расстоянием между частицами.

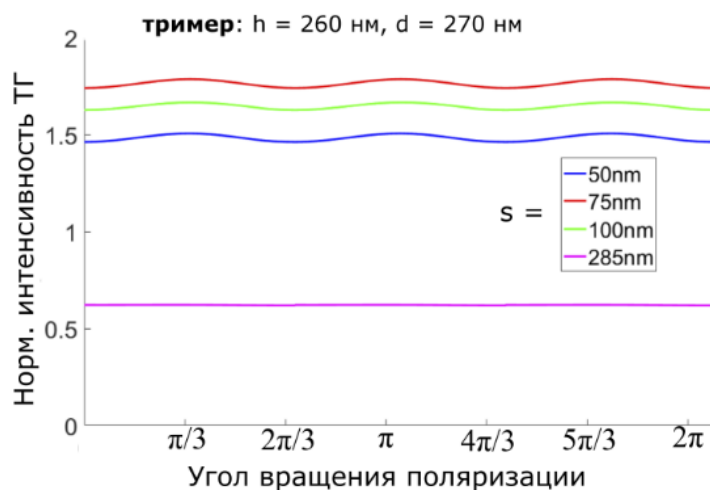


Рис. 50: Интенсивность ТГ для тримеров с различными расстояниями между частицами ($s_1 = 50$ нм, $s_2 = 75$ нм, $s_3 = 100$ нм и $s_4 = 285$ нм) и фиксированными высотой и диаметром наночастиц.

6.5. Вывод аналитической формулы для анизотропии третьей гармоники для тримера и квадрумера через нелинейные восприимчивости

Экспериментальные результаты аппроксимировались кривыми с определенным периодом. Период был выбран на основе аналитических формул, вывод которых представлен ниже. Для аналитического расчета анизотропии ТГ электрическое поле было выбрано параллельно оси Y в лабораторной системе координат (lab), в плоскости

параллельной подложке

$$E = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$$

. Ради простоты компоненты тензора восприимчивости третьего порядка, отвечающие за свертку с любой z-компонентой падающего поля, задаются нулевыми значениями. Это можно сделать, поскольку падает плоская волна и поверхность образцов считаем плоской, кроме границ. Симметрией материала образца пренебрегаем, так как аморфный кремний не обладает симметрией решетки. Таким образом, для тримера с точечной симметрией C_3 существует 9 независимых компонентов нелинейной восприимчивости. Данные взяты из значений для объемных структур с данной геометрической симметрией [79]:

$$\begin{aligned} \chi_{xxxx}^{(3),eff} &= \chi_{yyyy}^{(3),eff} = \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xyyx}^{(3),eff} + \chi_{xyxy}^{(3),eff}, \\ \chi_{xxxy}^{(3),eff} &= \chi_{yyxx}^{(3),eff}, \quad \chi_{xyyx}^{(3),eff} = \chi_{yxyx}^{(3),eff}, \quad \chi_{xyxy}^{(3),eff} = \chi_{yxxy}^{(3),eff}, \\ \chi_{xxxy}^{(3),eff} &= -\chi_{yyyx}^{(3),eff} = \chi_{yyxy}^{(3),eff} + \chi_{yxyy}^{(3),eff} + \chi_{xyyy}^{(3),eff}, \\ \chi_{yyxy}^{(3),eff} &= -\chi_{xxyx}^{(3),eff}, \quad \chi_{yxyx}^{(3),eff} = -\chi_{xyxx}^{(3),eff}, \quad \chi_{xyyy}^{(3),eff} = -\chi_{yxxx}^{(3),eff}, \\ \chi_{zxxx}^{(3),eff} &= -\chi_{zxyx}^{(3),eff} = -\chi_{zyxy}^{(3),eff} = -\chi_{zyyx}^{(3),eff}. \end{aligned}$$

Для квадрумера с симметрией C_4 остается 8 независимых компонентов тензора [79]:

$$\begin{aligned} \chi_{xxxx}^{(3),eff} &= \chi_{yyyy}^{(3),eff}, \\ \chi_{xxxy}^{(3),eff} &= \chi_{yyxx}^{(3),eff}, \\ \chi_{xyxy}^{(3),eff} &= \chi_{yxyx}^{(3),eff}, \\ \chi_{xyyx}^{(3),eff} &= \chi_{yxxy}^{(3),eff}, \\ \chi_{xxxy}^{(3),eff} &= -\chi_{yyyx}^{(3),eff}, \\ \chi_{xxxy}^{(3),eff} &= -\chi_{yyxy}^{(3),eff}, \\ \chi_{xyxx}^{(3),eff} &= -\chi_{yxyy}^{(3),eff}, \\ \chi_{yxxx}^{(3),eff} &= -\chi_{xyyy}^{(3),eff}. \end{aligned}$$

Для перехода к вращающейся системе координат (обозначенной surf), связанной с олигомерами, используется матрица вращения

$$R = \begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta & 0 \\ \sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

. Мы рассчитали нелинейную поляризуемость третьего порядка $P_{(surf)l}^{(3)} \sim \sum_{i,j,k} \chi_{l,i,j,k}^{(3),eff} E_i E_j E_k$ где $i, j, k, l = x, y, z$, затем преобразовали поляризацию в лабораторную систему отсчета: $P_{(lab)}^{(3)} = R^{-1} P_{(surf)}^{(3)}$, где

$$R^{-1} = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta & 0 \\ -\sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

и получили интенсивность ТГ, которую измеряем в эксперименте $I_{ТН} \propto |P_{(lab),x}^{(3)}|^2 + |P_{(lab),y}^{(3)}|^2 + |P_{(lab),z}^{(3)}|^2$.

После преобразований было получено, что для тримера интенсивность ТГ пропорциональна $\sin 6\theta$:

$$I_{ТН} \propto A - B \sin(6\theta + \varphi_0). \quad (15)$$

A - это константа вида $A(\chi_{xxxx}^{(3),eff}, \chi_{xxyy}^{(3),eff}, \chi_{yyxx}^{(3),eff}, \dots)$; B - это тоже константа, причем отвечающая за возникновение компоненты ТГ перпендикулярной поверхности подложки $2B = \chi_{zxxx}^{(3),eff} = -\chi_{zxyy}^{(3),eff} = -\chi_{zyxy}^{(3),eff} = -\chi_{zyyx}^{(3),eff}$.

Для квадрумера зависимость получилась более сложной:

$$\begin{aligned} I_{ТН} \propto & \frac{1}{16} \langle \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xyxx}^{(3),eff} - \chi_{yxxx}^{(3),eff} - \{ \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xyxx}^{(3),eff} - \chi_{yxxx}^{(3),eff} \} \times \cos 4\theta \\ & + \{ -\chi_{xxxx}^{(3),eff} + \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xyxy}^{(3),eff} + \chi_{xyyx}^{(3),eff} \} \times \sin 4\theta^2 \\ & + \{ 3\chi_{xxxx}^{(3),eff} + \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xyxy}^{(3),eff} + \chi_{xyyx}^{(3),eff} \\ & + \{ \chi_{xxxx}^{(3),eff} - \chi_{xxyy}^{(3),eff} - \chi_{xyxy}^{(3),eff} - \chi_{xyyx}^{(3),eff} \} \times \cos 4\theta \\ & - \{ \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xyxx}^{(3),eff} - \chi_{yxxx}^{(3),eff} \} \times \sin 4\theta \}^2 \rangle \quad (16) \end{aligned}$$

Можно упростить формулу:

$$I_{ТН} \propto A - (b - 2ef) \times \cos 4\theta + f^2 \times \cos 4\theta^2 + 2eg \times \sin 4\theta + (d + g^2) \times \sin 4\theta^2 + fg \times \sin 8\theta, \quad (17)$$

где A константа, отвечающая за изотропный нелинейный вклад,

$$b = g = \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xyxx}^{(3),eff} - \chi_{yxxx}^{(3),eff}, \quad (18)$$

$$f = -d = \chi_{xxxx}^{(3),eff} - \chi_{xxyy}^{(3),eff} - \chi_{xyxy}^{(3),eff} - \chi_{xyyx}^{(3),eff}, \quad (19)$$

$$e = 3\chi_{xxxx}^{(3),eff} + \chi_{xxyy}^{(3),eff} + \chi_{xyxy}^{(3),eff} + \chi_{xyyx}^{(3),eff}. \quad (20)$$

Учитывая обозначения введенные выше, получаем, что

$$I_{\text{TH}} \propto A - (b - 2ef) \times \cos 4\theta + f^2 \times \cos 4\theta^2 + 2eb \times \sin 4\theta + (-f + b^2) \times \sin 4\theta^2 + fb \times \sin 8\theta. \quad (21)$$

Диагональная компонента эффективного тензора нелинейной восприимчивости $\chi_{xxxx}^{(3),eff}$ превалирует над недиагональными [79], таким образом $|e| > |f|$, $|b|$ и зависимость интенсивности ТГ может быть сведена к

$$I_{\text{TH}} \propto A + \cos 4\theta + \frac{b}{f} \times \sin 4\theta = A - B \sin(4\theta + \varphi). \quad (22)$$

Фаза не вносит принципиального вклада в свойства симметрии системы, поэтому получаем, что для квадрумера угловая зависимость интенсивности ТГ имеет вид

$$I_{\text{TH}} \propto A - B \sin 4\theta. \quad (23)$$

.

7. Выводы

Ниже сформулированы основные выводы данной главы:

- Впервые экспериментально обнаружена анизотропия генерации ТГ в олигомерах кремниевых наночастиц при возбуждении на длине волны МД резонанса. Для резонансного олигомера (тримера / квадрумера) с близко расположенными нанодисками симметрия зависимости сигнала ТГ от угла поворота образца при фиксированной поляризации накачки повторяет симметрию олигомера. Для нерезонансной структуры модуляция интенсивности нелинейного отклика отсутствует. Продемонстрировано, что нелинейный отклик одиночного нанодиска является изотропным, что указывает на влияние взаимодействия наночастиц в ближнем поле на анизотропию ТГ. Результаты полученные в рамках настоящей работы дают возможность детектирования особенностей ближнепольного взаимодействия наночастиц в дальнем поле при регистрации сигнала ТГ объекта.
- Методом конечных разностей во временной области и методом конечных элементов показана изотропность линейного отклика тримеров и квадрумеров. Всесторонне исследован нелинейный отклик систем и показана зависимость анизотропии от симметрии образца, диаметра нанодисков олигомера и расстояния между нанодисками
- Получена аналитическая формула анизотропии ТГ в предположении, что симметрия олигомера задает симметрию тензора нелинейной восприимчивости. Экспериментальные результаты согласуются с выведенной формулой.

Глава III

Возбуждение коллективных мод полупроводниковых олигомеров векторными пучками и усиление третьей оптической гармоники

1. Идея задачи: картинка и смысл

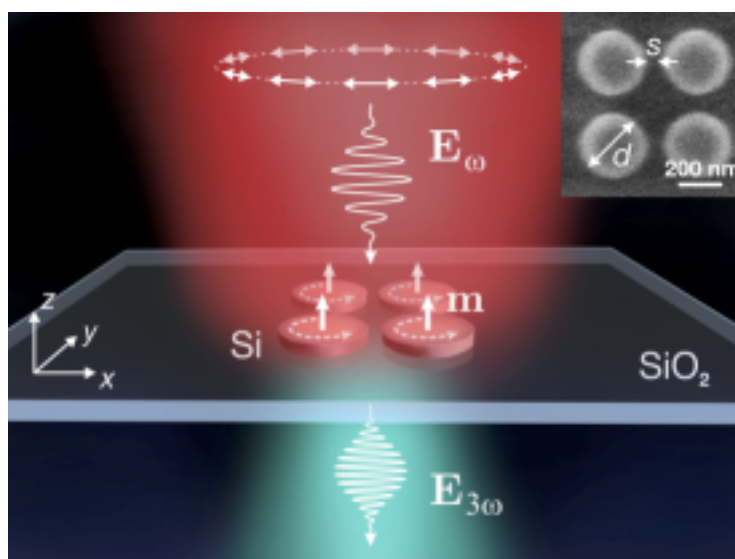


Рис. 51: Графическое изображение идеи главы: усиление ТГ при возбуждении образцов АП излучением.

Целью второй оригинальной главы является исследование эффекта усиления ТГ от изолированных нанообъектов при возбуждении в них коллективной оптической моды нормально падающим АП излучением. Идея задачи схематически представлена на Рис. 51. Показано возбуждение образца АП пучком для усиления ТГ. На образец перпендикулярно подложке падает сильно сфокусированный инфракрасный фемтосекундный лазерный импульс с длительностью 140 фс, шириной спектра 10 нм и центральной длиной волны, перестраиваемой от 930 нм до 1050 нм. По аналогии с предыдущей главой контролируется поляризация излучения, возбуждающего олигомер. Однако, основное внимание уделяется цилиндрическим векторным пучкам с АП вместо вращения ЛП. В главе также используется освещение системы пучками с РП и Гауссовыми пучками с ЛП для сравнения и более глубокого понимания возникающих эффектов.

Как показано на Рис. 51, ТГ образца регистрируется в схеме на пропускание для различных поляризаций пучка накачки, те детектор стоит после стеклянной

подложки практически прозрачной для ТГ. Варьируя поляризацию пучка накачки, можно регулировать тип возбуждаемых собственных мод олигомеров и, тем самым, изменять локальное распределение поля внутри кластера, характеризуемое коэффициентом локализации $L(\omega)$. Максимальная мощность ТГ соответствует наибольшему $L(\omega)$, поскольку источник ТГ поляризации $P(3\omega)$ пропорционален кубу коэффициента локализации [80]: $P(3\omega) \sim \chi^{(3)}(3\omega)E(\omega)^3L(\omega)^3L(3\omega)$, где $E(\omega)$ — поле накачки, $\chi^{(3)}$ — тензор нелинейной поляризуемости, а $L(3\omega)$ — фактор локализации на частоте ТГ, которая в нашем случае находится вне резонансов олигомера. На самом деле определение нелинейного отклика более сложное. Для резонансных наноструктур это выражение должно учитывать неоднородное распределение электрического поля внутри объема частиц и другие факторы, такие как поглощение ТГ, взаимодействие и запаздывание точечных источников при расчете итоговой интенсивности излучения в дальней зоне. Это все будет учитываться при численном моделировании, но не существенно для понимания картины в целом. При накачке азимутальной поляризацией в структуре возбуждаются коллективные магнитные диполи (m), колеблющиеся перпендикулярно плоскости нанодисков. При этом по "правилу буравчика" электрическое поле возбуждается вокруг магнитного диполя в объеме наночастиц и сильно локализуется в структурах. Это приводит к увеличению результирующего поля ТГ согласно формуле выше.

На Рис. 51 на вставке показан основной экспериментальный образец. Используются те же структуры, что подробно описывались в параграфе 2. Напомню особенности структуры для которой были получены основные результаты, представленные в настоящей диссертации. Использовались массивы изолированных квадрумеров, расстояние между нанокластерами в которых ($T = 10$ мкм) преобладает над диаметром пучка накачки, который составляет примерно 2,5 мкм. Образцы изготовлены из пленки гидрогенизированного аморфного кремния толщиной $h = 260 \pm 5$ нм, нанесенной на подложку из плавленого кварца. Согласно изображениям, полученным на сканирующем электронном микроскопе, расстояние между нанодисками квадрумера равно $s = 80 \pm 5$ нм, а диаметр равен $d = 280 \pm 5$ нм. Так же в работе были рассмотрены другие квадрумеры и тримеры, но менее подробно. Образцы отличались диаметром и расстоянием между наночастицами, при этом высота образца и расстояние между соседними структурами не менялось.

2. Численный разбор возбуждения коллективных мод олигомера

2.1. Спектры рассеяния при возбуждении квадрумера излучением с различной поляризацией. Обсуждение особенностей в спектрах

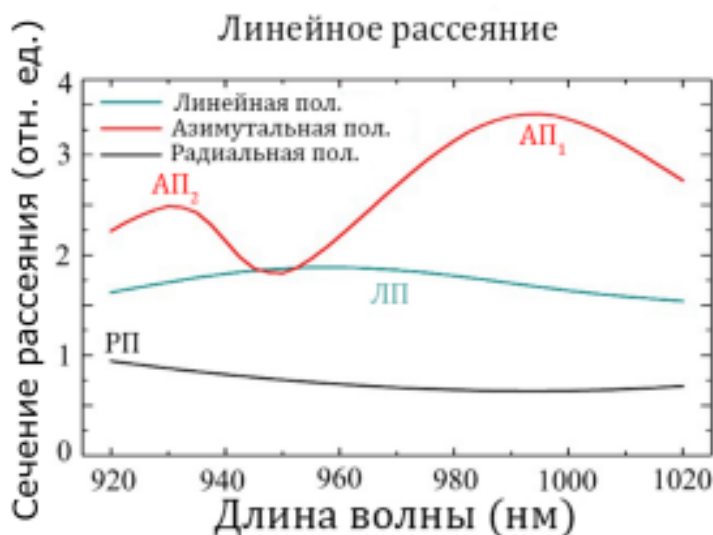


Рис. 52: Спектры сечения рассеяния для квадрумера нанодисков из α -Si для ЛП (зеленая кривая), АП (красная кривая) и РП (черная кривая) освещения при нормальном падении.

С помощью метода конечных элементов в программном пакете COMSOL Multiphysics нашими коллегами были рассчитаны спектры рассеяния экспериментального квадрумера при различных условиях возбуждения для дальнейшего сопоставления их с экспериментально полученными спектрами и представления природы наблюдаемых эффектов (Рис. 52). Параметры образца обсуждаются в параграфе 1. Не углубляясь в сложности расчетов обсудим основные выводы, которые можно сделать из полученных результатов. Спектры рассеяния олигомера меняются при изменении поляризации нормально падающего пучка. При освещении ЛП спектр имеет один широкий пик на длине волны порядка 950 нм. Он похож на спектр одиночного нанодиска. Для случая накачки РП зависимость имеет гладкий спектр без особенностей, что связано с тем, что возбуждение коллективных мод находится вне возможностей экспериментальной установки. Коллективные моды для РП возникают на длине волны 800 нм и 1110 нм. Для АП спектр состоит из двух пиков разной ширины и интенсивности рассеяния, которые обозначены на рисунке как 1 и 2 . Важно отметить, что остальные параметры накачки в расчетах оставались неизменными, поэтому причина эффекта кроется именно в особенностях возникающих из-за смены поляризации накачки. Природа пиков для всех ситуаций будет обсуждаться в следующем параграфе при рассмотрении сечений рассеяния олигомеров.

2.2. Распределение электромагнитного поля в резонансных точках спектра и обсуждение возбуждения коллективных мод

Для характерных точек в спектре на Рис. 52 (АП1, АП2, РП и ЛП) были рассчитаны распределения электрического поля квадрумера. Рассматривалась плоскость параллельная стеклянной подложке и проходящая через середину его высоты. Поле в сечении нормировалось на интенсивность падающего поля. Кругами на рисунке обозначены нанодиски. Случай 52(а) соответствует точке $_1$ в спектре рассеяния на Рис. 52. Поле сосредоточено вдоль границы наночастиц, которая ближе к соседней. Данная мода преимущественно состоит из магнитной квадрупольной моды, что видно как графически, так и показано коллегами численно. Более подробно про модовый состав излучения можно прочитать в работе [81]. Наиболее интересен случай 52(б), относящийся к точке $_2$ в спектре рассеяния. Поле распределено между нанодисками, повторяя распределение поля в пучке накачки, и локализовано преимущественно внутри нанодисков. В данной конфигурации нанодиски ведут себя как магнитные диполи, в которых колебание магнитного происходит перпендикулярно подложке. Возбуждается коллективная магнитная мода (КММ), которая обсуждалась в обзоре литературы. Модовый состав $_2$ был также проверен теоретически при разложении по сферическим гармоникам нашими коллегами. В расчёте специально идентифицированы моды, которые по условиям симметрии могут избирательно возбуждаться АП, РП и ЛП излучением, имеющим различные комбинации компонентов поля: $(E_\phi; H_r, H_z)$, $(H_\phi; E_r, E_z)$, (E_x, H_y) , соответственно. Эти моды характеризовались на основе их мультипольного разложения по сферическим гармоникам, различающимся азимутальным m и орбитальным l индексами. Более подробный теоретический анализ находится вне рамок данной работы.

В рамках настоящей диссертации важно отметить, что КМК состоит из магнитные мультиполей с $m=0$. Для достижения эффективной связи с модой мультипольный состав излучения накачки должен соответствовать мультипольной структуре этой моды. Именно поэтому АП излучение, состоящее из мультиполей с $m=0$ [82, 83] может использоваться для наиболее эффективной связи с $_2$, поскольку достигается максимальное модальное перекрытие. Магнитная квадрупольная $_1$ мода также имеет $m=0$, что обеспечивает эффективное возбуждение АП пучком, но структура поля в ней различается от АП пучка.

В свою очередь, плоская волна содержит мультиполи исключительно с $m=\pm 1$ и взаимодействует только с ЛП модой, имеющей в своем составе магнитную дипольную компоненту. Подробности возбуждения магнитной дипольной моды обсуждались в предыдущей главе. Из рисунка 52(с) видно, что сечение заметно отличается от азимутального случая, хотя нанодиски продолжают взаимодействовать с друг другом. Также наблюдается локализация поля внутри и между наночастицами.

Для РП как было сказано выше особенностей в спектре нет, что видно и в распределении электрического поля Рис. 52(д).

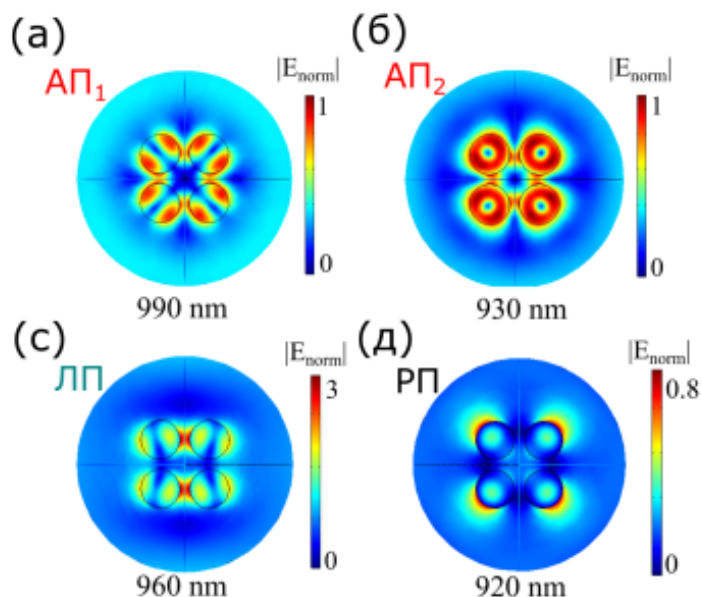


Рис. 53: Распределения электрического поля, нормированного на падающее излучения. (а) ₁ соответствует длине волны магнитного квадрупольного резонанса олигомера при возбуждении АП; (б) ₂ соответствует КММ при возбуждении АП; (в) обозначает МДР олигомера при возбуждении линейной поляризацией, а (д) обозначает распределение электрического поля при накачке радиальной поляризацией.

Теоретически предсказывалось, что при облучении отдельного тримера пучком с АП электромагнитного поля в тримере, обладающем определенными геометрическими параметрами как и в квадрумере, может возбуждаться КММ, что подтверждено численно (Рис. 54). При этом поле аналогично распределено между нанодисками по кругу по часовой стрелке. Описанная коллективная мода является результатом ближнепольного взаимодействия между нанодисками, индуцированного азимутальным распределением поля накачки, повторяющим распределение поля коллективной моды. Благодаря локальному взаимодействию между наночастицами при появлении КММ, происходит увеличение локализации поля в структуре, что, как описывалось ранее, приводит к увеличению нелинейного отклика нанообъекта. При освещении образцов радиально поляризованным излучением резонансных особенностей тримера в исследуемой спектральной области не наблюдалось.

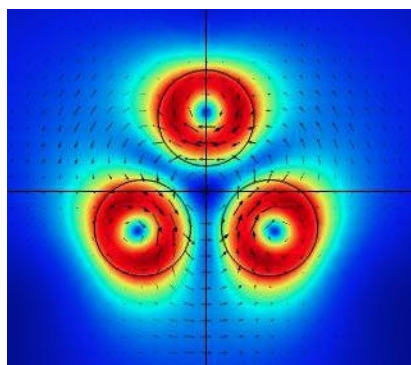


Рис. 54: Распределение электрического поля отдельного тримера с расстоянием между нанодисками $s = 100$ нм при его возбуждении азимутально поляризованным излучением. Цветом передана амплитуда электрического поля в области объекта.

2.3. Добротности коллективных мод квадрумера, возбуждаемых излучением с различными поляризациями

Из Рис. 52 видно, что максимальная локализация поля характерна для КММ. Поскольку материал, геометрия олигомеров и резонансная частота практически одинаковая ожидается, что наибольшей добротностью будет обладать именно эта мода, что было подтверждено нашими коллегами численно. Добротность режима 2 ($Q_2=35$) превышает добротность остальных мод 1 и ЛП ($Q_1 \approx 10$ и $Q \approx 6$).

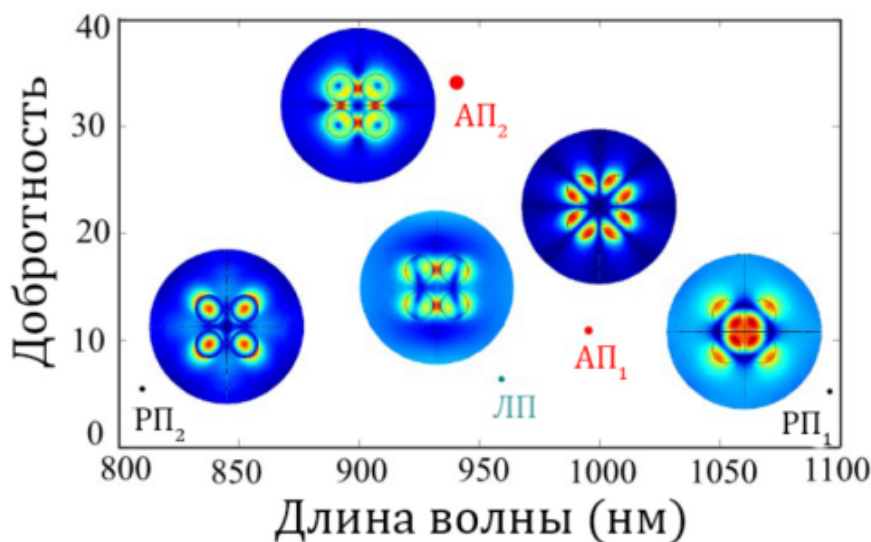


Рис. 55: Спектр добротностей мод в квадрумере нанодисков. На вставках: распределения ближнего поля (показано распределение электрического поля на середине высоты дисков в ху-сечении, параллельном плоскости образца, аналогично Рис.. 52).

2.4. Распределение электромагнитного поля в сечении квадрмера для разных расстояний между нанодисками. Доказательство влияния коллективного взаимодействия на возбуждение коллективной магнитной моды.

Важно заметить, что, меняя соотношение сторон наночастиц и расстояние между ними, можно осуществлять подстройку спектрального положения 2 моды. Для подтверждения этого факта нами было рассчитано сечение рассеяния изолированного квадрмера и распределение электрического локального поля в его поперечном сечении, параллельном границе раздела, для фиксированной высоты ($h = 260$ нм) и диаметра ($d = 260$ нм) наночастиц, но при изменении расстояния между частицами от $s = 100$ нм до $s = 700$ нм (Рис.56а, б). Расчеты проводились в программном пакете Lumerical FDTD, который использует метод конечных разностей во временной области для решения уравнений Максвелла. Благодаря тому, что расстояние между частицами невелико ($s = 100$ нм, черная линия на рисунке 56а), наблюдается сильное взаимодействие в ближнем поле между нанодисками, что приводит к возбуждению 2 моды в спектральной окрестности более широкого 1 резонанса. Электромагнитное поле сильно локализовано в объеме нанодисков для 2 , как и в предыдущих расчетах наших коллег. С увеличением расстояния между наночастицами взаимодействие между ними уменьшается, и коллективная 2 мода спектрально перекрывается с модой 1 (Рис.56а, б, $s=300$ нм). Их становится трудно различить, особенно по линейному отклику олигомеров. Когда параметр s достигает значения 500 нм, нанодиски начинают вести себя как независимые нанообъекты. Независимый МД резонанс проявляется в виде пика в спектре рассеяния, форма и спектральное положение которого не меняются при дальнейшем увеличении расстояния между дисками. В системах наночастиц подобных изучаемой в данной работе нередко можно наблюдать асимметричные особенности в спектрах рассеяния олигомеров из-за интерференции Фано [?, ?]. В нашем случае моды возбуждаются избирательно, запрещая межмодовую интерференцию и приводя к симметричным лоренцевым спектральным линиям.

3. Обсуждение типов поляризации и способа создания векторных пучков

3.1. Про метод работы жидко-кристаллического поляризатора

В расчетах использовалось понятие возбуждение АП пучком, рассмотрим более подробно данный тип поляризации. Для проведения нелинейной микроскопии при возбуждении образцов векторными пучками была видоизменена установка нелинейной микроскопии с гауссовыми пучками (Рис. 37). Более подробно установка будет обсуждаться в параграфе 4 данной главы. Здесь важно отметить, что призма Глана, с помощью которой контролировалась ЛП, перемещалась в область перед зеркалом,

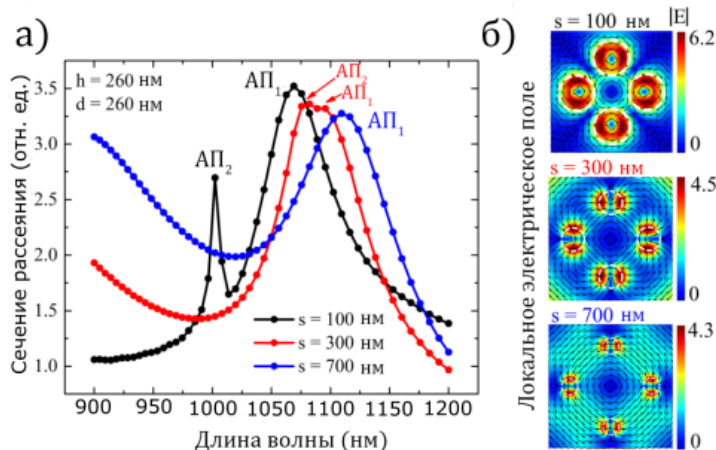


Рис. 56: Численные спектры изолированного кремниевого квадрумера с различным расстоянием между нанодисками для возбуждения КММ при нормальном падении. (б) Распределения электрического поля в центре поперечного сечения xy квадрумера, рассмотренного в (а), на длине волны КММ при возбуждения АП при нормальном падении. Цвет указывает нормированную величину электрического поля, а белые пунктирные кружки показывают положение нанодисков.

а на ее место устанавливался жидкокристаллический преобразователь поляризации фирмы ARCoptix, который из пучка с линейной поляризацией определенного направления делал пучок с азимутальным или радиальным направлением поляризации. Принцип его работы был описан в параграфе 6 обзора литературы.

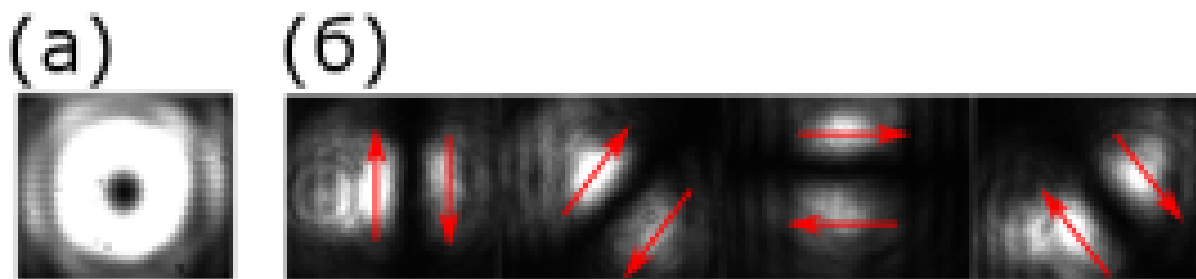


Рис. 57: Изображение векторного пучка на КМОП-камере. (а) Изображение пучка с азимутальной поляризацией; (б) изображение пучка на камере после прохождения через анализатор.

Поляризатор, используемый в данной работе состоит из трех частей: ячейки, осуществляющей поворот линейной поляризации на 90° при приложении напряжения, благодаря чему осуществляется переход от азимутальной к радиальной поляризации и наоборот; жидкокристаллической ячейки, описываемой в параграфе 6 и фазового компенсатора, убирающего разность фаз $\frac{\lambda}{2}$ между полями в верхней и нижней частях относительно оси симметрии пучка. Жидкокристаллический фазовый ком-

пенсатор снабжен электродами; напряжение между ними может изменять изначальную ориентацию молекул в компенсаторе, и, как следствие, изменять показатель преломления для необыкновенной волны в ячейке. Таким образом, прикладывая напряжение к электродам, выбор которого зависит от длины волны используемого излучения, можно контролировать фазовую задержку в верхней части поляризатора относительно нижней. При этом дефектная линия, возникающая в ячейке, непосредственно отвечающей за процесс создания пучков с азимутальной симметрией, и дефектная линия между электродами, находящимися под напряжением, исчезают. В результате на КМОП-камере, расположенной непосредственно за преобразователем поляризации, было получено изображение векторного пучка с азимутальной поляризацией (Рис. 57а). Пучок имеет характерную форму распределения интенсивности в виде тора; дефектная линия отсутствует (было подобрано необходимое напряжение).

Для дальнейшего описания качества пучка после поляризатора была поставлена призма Глана, которая вращалась с шагом 10^0 . Согласно теоретическому описанию в параграфе 6 обзора литературы были получены симметрично расположенные относительно центра тора секции (Рис. 57б), что говорило о том, что полученное распределение поляризации действительно является азимутальным (радиальным). Стрелками (Рис. 57б) показано направление линейной поляризации электрического поля в изображенной области. Для РП на КМОП-камере получались похожие изображения, только белые области расходились лучами от центра. Симметрия сохранялась.

4. Экспериментальные установки для исследования линейного и нелинейного отклика олигомеров

4.1. Установка спектроскопии линейного рассеяния для характеристики образцов

Структуры, рассматриваемые в работе характеризовались с помощью спектроскопии линейного рассеяния в темном поле при возбуждении ЛП излучением. Экспериментальная установка для измерения спектров рассеяния показана на Рис.58. Свет от галогенной лампы мощностью 50 Вт собирался плоско-выпуклой линзой L1 ($f=30$ мм) и подавался на многомодовое оптическое волокно F1 (диаметр сердцевины $d=0,6$ мм, $NA=0,48$) посредством асферической линзы-конденсора L2 ($f=20$ мм, с антибликовым покрытием для видимого света). На выходе из волокна свет коллимируется асферической конденсорной линзой L3 ($f=10,5$ мм). Полевая диафрагма FD помещается в фокальную плоскость ахроматического дублета L4 ($f=250$ мм, просветляющее

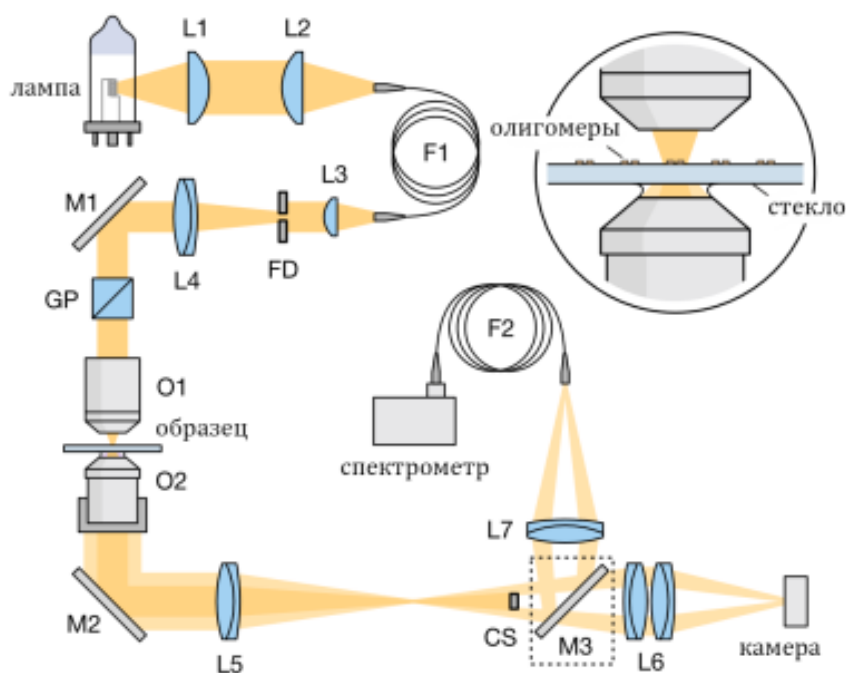


Рис. 58: Экспериментальная установка для спектроскопии рассеяния. L1:7 – линзы; F1,2 – многомодовые оптические волокна; FD – полевая диафрагма; M1:3 – серебряные зеркала; GP – призма Глана-Тейлора; O1,2 – линзы объективов; CS – непрозрачный блокер. Зеркало M3 съемное

покрытие для света в диапазоне 400–1000 нм) и отображается на образце с помощью ахроматического объектива O1 ($f=25$ мм, $NA=0,1-0,25$). Призма Глана-Тейлора GP регулирует поляризацию падающего света. Числовая апертура была установлена на значении 0,15. Образец помещается на двухосевой транслятор. Плоскостной апохроматический иммерсионный объектив O2 (Olympus UPlanSAp60XW) с числовой апертурой 1,2 установлен на транслируемой вдоль оси z подставке. Изображение его задней фокальной плоскости формируется на заглушке-маске CS (диаметр 1 мм) в конфигурации $2f-2f$ ахроматическим дублетом L5 ($f=100$ мм, просветляющее покрытие для света 400–1000 нм). Маска (CS) блокирует нерассеянное освещение. В зависимости от положения зеркала M3 на откидном держателе темнопольное изображение образца формируется либо на камере, либо на грани оптического волокна F2, подключенного к спектрометру. В первом случае изображение образца строится парой ахроматических дублетов L6 ($f=200$ мм и $f=60$ мм, просветляющее покрытие для видимого света). Во втором случае изображение формируется ахроматическим дублетом L7 ($f=85$ мм, просветляющее покрытие для света 400–1000 нм). Волокно F2 установлено на трехосевой подвижке и имеет диаметр сердечника 105 мкм, что соответствует площади образца диаметром примерно 3 мкм. Используемый спектрометр – Ocean Optics QE Pro с разрешением 2 нм. Спектры рассеяния были получены по

следующей формуле: (сигнал-фон)/(сигнал источника - шум). Фон измеряли в месте образца, свободном от наночастиц. Данная процедура повторялась 10 раз для каждого кластера, а затем результат усреднялся.

4.2. Установка нелинейной микроскопии: изменения относительно предыдущей главы

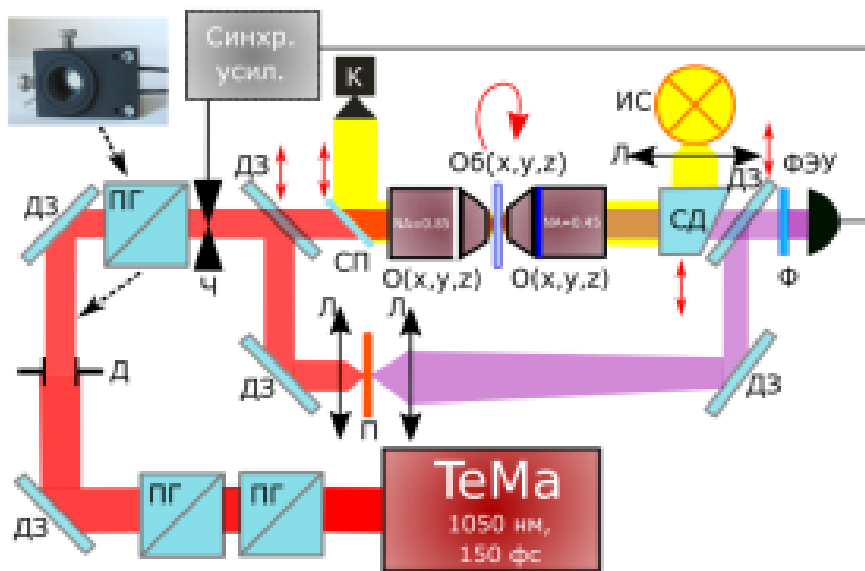


Рис. 59: Установка нелинейной микроскопии для возбуждения векторными пучками: ТеМа – иттербиевый твердотельный фемтосекундный лазер; ПГ – призма Глана; З – металлическое зеркало; Ч – оптический прерыватель, О – объективы с различными числовыми; Об(x,y,z) – образец на держалке с возможностью механического вращения на 360°, помещенный на трехкоординатную платформу, оснащенную автоматически управляемыми пьезо-подвижками, которые обеспечивают точность передвижения образца ≈ 5 нм; Д – диафрагма, Л – линзы с различными фокусными расстояниями; СП – стеклянная пластинка (убиралась при измерениях); К – КМОП камера; ИС – источник света, диодная лампа; СД – светоделитель 1:1 (убиралась при измерениях); Ф – набор фильтров для детектирования излучения на частоте третьей оптической гармоники; П – неструктурированная пленка кремния.

Для проведения нелинейной микроскопии при возбуждении образцов векторными пучками была видоизменена установка нелинейной микроскопии с гауссовыми пучками (Рис. ??). На рисунках 59 (вся экспериментальная установка) и 61 (основная часть) показано, что призма Глана перемещалась в область перед зеркалом, а на ее место устанавливался жидкокристаллический преобразователь поляризации фирмы ARСortix, который из пучка с линейной поляризацией определенного направления делал пучок с азимутальным или радиальным направлением поляризации.

Принцип его работы был описан в параграфе 3.1 настоящей главы. Основная рабочая часть установки выделена на рисунке 61(а). Выбранный пучок фокусировался на образец в пятно шириной 2,5 мкм объективом с большой числовой апертурой 0,85. Прошедший через образец свет собирался объективом с числовой апертурой 0,65 и отфильтровывался цветным стеклянным фильтром BG39 для исключения детектирования сигнала накачки. Излучение ТГ регистрировалось фотоумножителем, подключенным к синхронному усилителю. Проверка, что детектируемый сигнал является ТГ было осуществлено в прошлой главе и тут не повторялось.

4.3. Обсуждение изменения методики относительно предыдущей главы

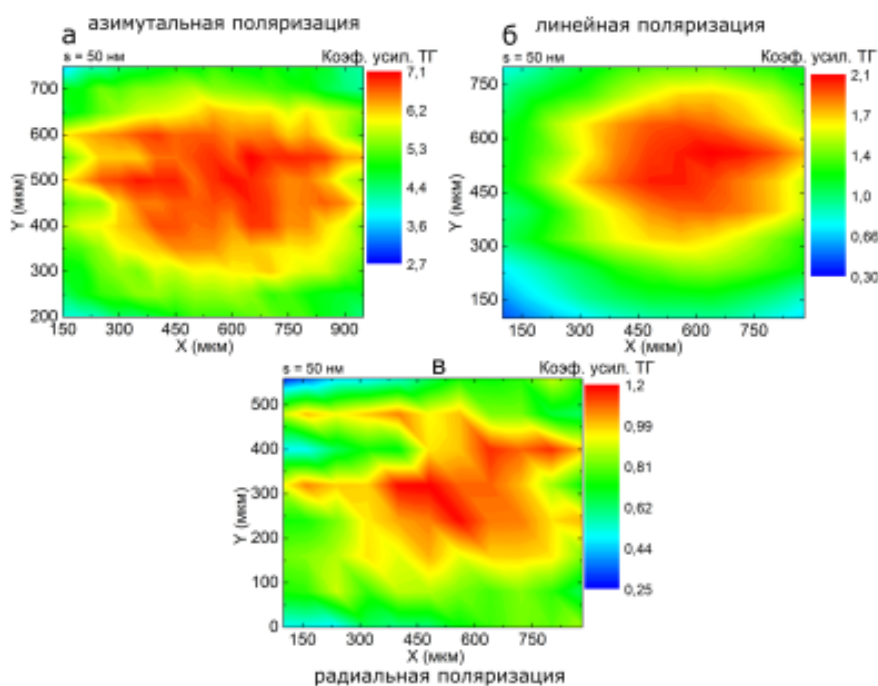


Рис. 60: Результаты нелинейной микроскопии отдельного тримера с расстоянием $s = 50$ нм между нанодисками в олигомере и МД резонансом, спектрально сдвину- тым относительно длины волны возбуждающего лазера на 20 нм при возбуждении объекта излучением с различной поляризацией электрического поля: (а) азимутальной поляризацией, (б) линейной поляризацией, (в) радиальной поляризацией.

Для получения корректных нелинейных сигналов от структур использовались методы, описанные в параграфе 5.2, но с видоизмененной экспериментальной установкой, представленной на рисунке 59. Поскольку измерения для образца проводились в течение нескольких минут, сигнал с канала сравнения не учитывался. Было проверено, что интенсивность лазера не испытывает значительных флуктуаций за данный период времени. После получения сигналов ТГ с олигомера для фиксированной поляризации в основной канал помещалась неструктурированная пленка

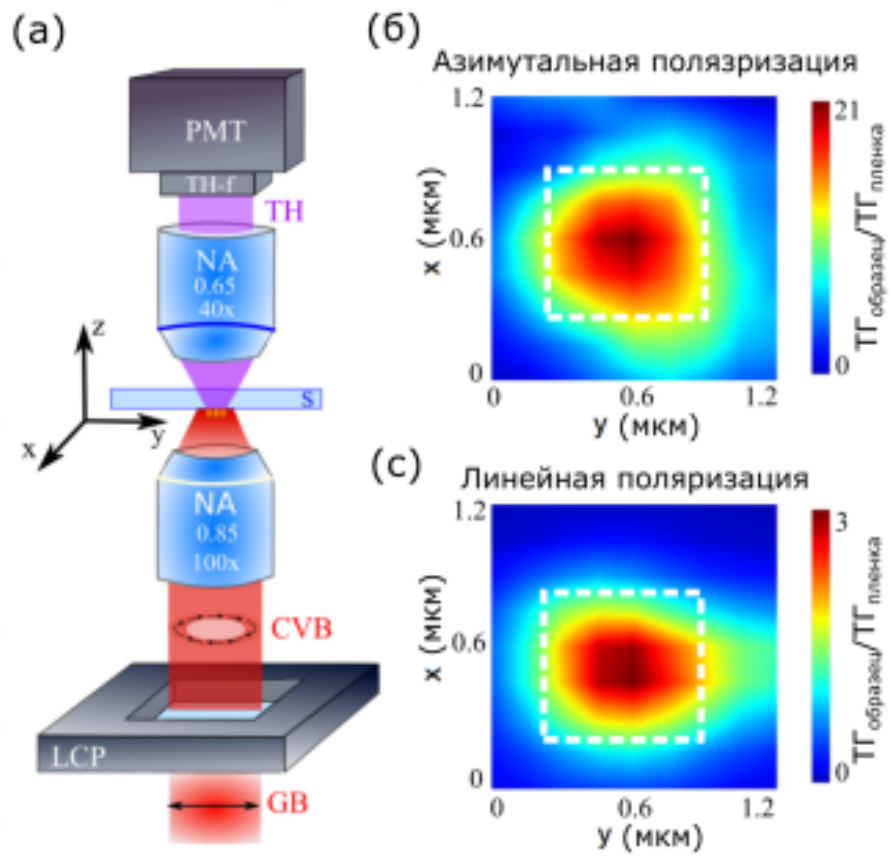


Рис. 61: (а) Схема основной части установки ТГ микроскопии с возможностью перестройки поляризации накачки: CVB - цилиндрический векторный пучок (с АП и РП) и GB - гауссовский пучок (с ЛП). LCP - жидкокристаллический поляризатор, S - образец на трехкоординатном микрометрическом столике с пьезоуправлением, TH-f - набор цветных светофильтров БГЗ9 для выделения ТГ излучения от луча накачки, PMT - блок фотоэлектронного умножителя, подключенный к синхронному усилителю. (б), (в) Результаты микроскопии интенсивности ТГ для изолированного олигомера: (б) – для АП накачки, (в) – для ЛП накачки. Цветная шкала указывает на усиление интенсивности ТГ от олигомера по сравнению с интенсивностью ТГ от неструктурированной кремниевой пленки той же высоты, помещенной в основной канал установки. Белыми квадратами обозначены положения квадрумера для каждого случая поляризации накачки.

аморфного кремния, и проводились измерения интенсивности ТГ. После чего сигнал ТГ с образцов делился на сигнал ТГ с пленки той же толщины, возбужденной при аналогичных условиях, поляризации и интенсивности накачки. Анализировался коэффициент усиления нелинейного отклика образца относительно неструктурированной пленки при возбуждении различными поляризациями. Если было необходимо снять зависимости с разных образцов, сначала проводились измерения на всех образцах и лишь потом в канал помещалась неструктурированная пленка. Измере-

ния проводились как на тримерах, так и на квадрумерах, но основные результаты получены на квадрумере, спектр которого будет показан ниже. Первые результаты сканирования тримера методом разработанным в данной работе с разной поляризацией представлен на Рис. 60. Видно, что при движении образца между объективами "мимо" фиксированного положения пучка накачки для всех поляризаций интенсивность меняется. Есть положение, в котором значение интенсивности ТГ максимально. Именно эту точку будем использовать дальше в экспериментальном исследовании влияния коллективных мод олигомера на генерацию ТГ. Наибольшее значение усиления ТГ достигается при АП накачке, далее идет ЛП случай. Наименьшей интенсивностью для тримера обладает ТГ при возбуждении РП. Однако, можно заметить, что форма образца на карте ТГ достаточно смазанная, что связано с проблемами автоматизации движения трехкоординатного транслятора и неточной обработкой результатов. Кроме того, в первых экспериментах была плохо отработана методика фокусировки на образец.

Методика была отработана, и характерные результаты сканирования образцов, на основе которых строились основные экспериментальные результаты по усилению ТГ для различных поляризаций представлены на Рис. 61)(б,с). Исследовался основной экспериментальный образец - квадрумер. Кроме улучшения качества эксперимента, можно заключить, что для квадрумера КММ возбуждается лучше и ярче видна разница между образцом и подложкой.

5. Экспериментальные результаты

5.1. Линейные спектры квадрумеров

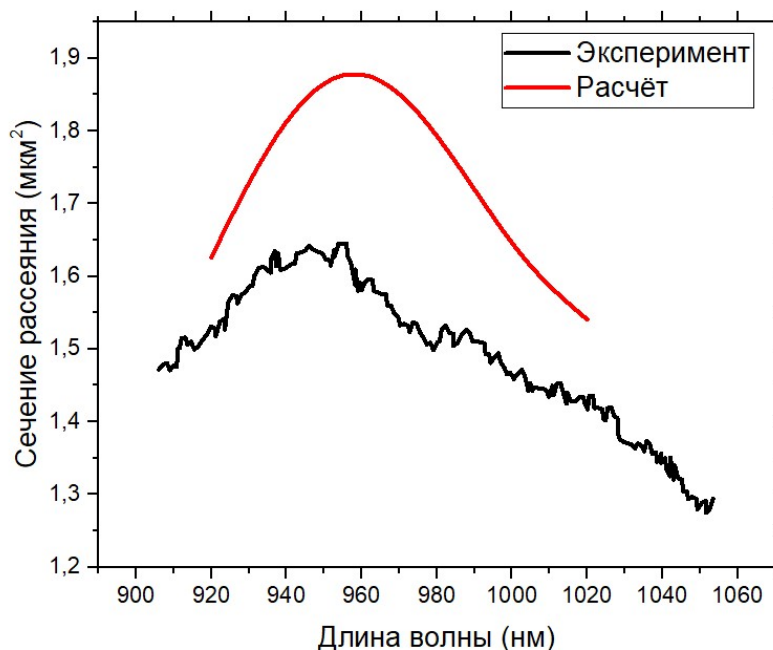


Рис. 62: Спектр рассеяния одиночного квадрумера. Экспериментальная кривая для резонансного кластера – черная линия, расчетная кривая – красная линия.

В результате линейной спектроскопии рассеяния на установке Рис. 58 были получены спектры различных образцов из различных массивов. На их основе для дальнейшего рассмотрения был выбран образец со следующими параметрами: диаметр $d = 280 \pm 5$ нм, расстояние между частицами в кластере $s = 80 \pm 5$ нм, спектр которого представлен на рисунке 62. Данный образец обеспечивает оптимальное попадание изучаемых мод в доступный экспериментальный диапазон, задаваемый возможностями экспериментальной установки микроспектроскопии Рис. 59. МД резонанс образца наблюдается в спектральной области 960 нм, соответственно, согласно численным расчетам параграфа 2.1, там же ожидается наблюдать КММ. На рисунке 62 представлено сравнение экспериментального результата спектроскопии рассеяния квадрумера с численным моделированием, полученным для соответствующих размеров образца методом конечных элементов в программном пакете Comsol Multiphysics. Данные находятся в хорошем согласии друг с другом, причем на изображении хорошо выделяется резонанс, соответствующий возбуждению МД моды. Подробности определения типа резонанса для возбуждения олигомера ЛП подробно обсуждались в первой оригинальной главе настоящей диссертации. Разница в амплитуде резонансов у экспериментальных данных по сравнению с моделью объясняется тем, что при спектроскопии собирался сигнал с неполного телесного угла.

5.2. Усиление ТГ для разной поляризации для резонансного квадрумера. Обсуждение возникновения резонансов в спектре

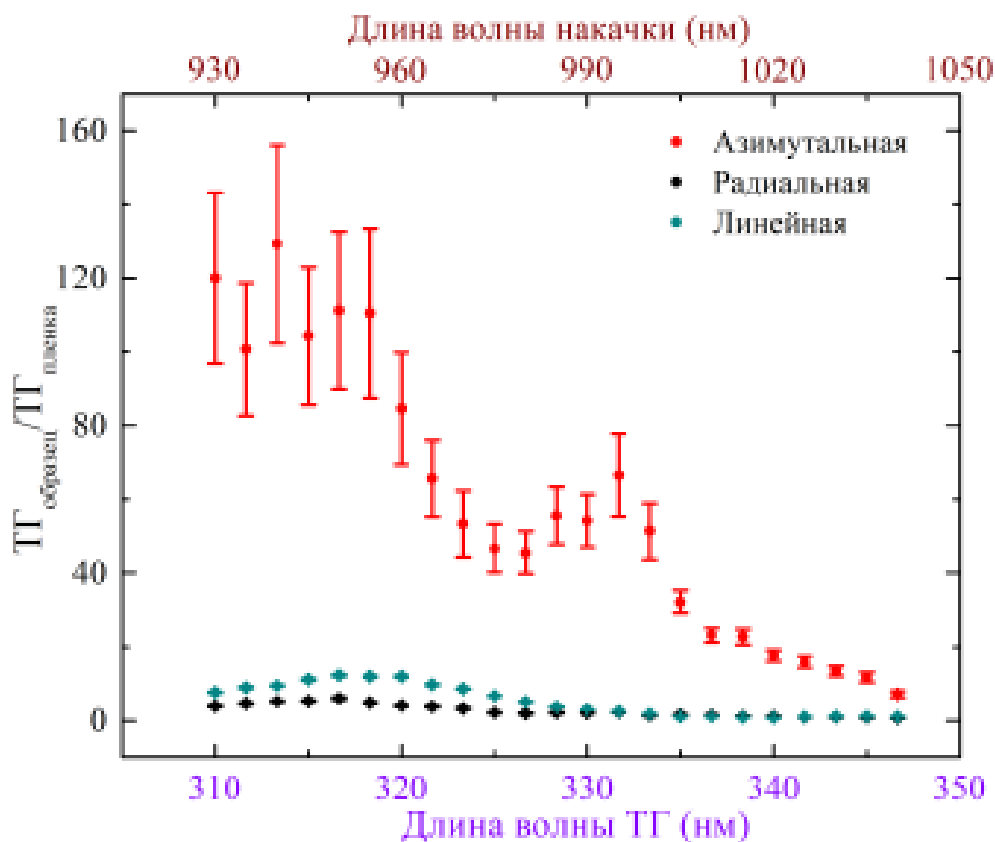


Рис. 63: Экспериментальные спектры интенсивности ТГ для квадрумера нанодисков из аморфного кремния нормированные на интенсивность ТГ от неструктурированной пленки для линейной поляризации (зеленые точки), азимутальной поляризации (красные точки) и радиальной поляризации (черные точки) света при нормальном падении.

Основной результат данной главы показан на рисунке 63. На рисунке 63 представлены измеренные на установке из рисунка 59 спектры интенсивности ТГ квадрумера (вставка рисунок 51) при возбуждении АП, РП и ЛП излучением. Как и было предсказано при анализе локальных полей, значительного увеличения мощности ТГ для РП накачки не наблюдается (Рис. 63, черные точки) даже в спектральной окрестности МД резонанса ($\lambda=960$ нм).

Рассмотрим случай ЛП. Направление поляризации ЛП накачки сохранялось вдоль стороны квадрумера. При таких экспериментальных условиях достигается 12-кратное усиление ТГ по сравнению с неструктурированной пленкой аморфного кремния (Рис.63, синие точки) для накачки на длине волны 950 нм, что с хорошей

точностью соответствует возбуждению МД резонанса. Важно отметить, что форма спектра ТГ повторяет спектр рассеяния образца. Принимая во внимание модуляцию интенсивности ТГ, описанную в предыдущей главе, максимальное усиление нелинейного сигнала, получаемое при поляризации, параллельной диагонали олигомера, может быть дополнительно увеличено примерно на 15%. Когда длина волны накачки далека от спектральной области МД моды, интенсивности ТГ для ЛП и РП пучков почти одинаковы и стремятся к нулю.

Красные точки на рисунке 63 показывают спектр усиления интенсивности ТГ для того же квадрумера, возбуждаемого АП лучом. Вертикальные красные полосы на спектре указывают на систематические и статистические ошибки. В спектре идентифицируются два пика с резонансами около $\lambda_1=990$ нм и $\lambda_2=940$ нм. Согласно численному анализу распределения электрического поля на длине волны ТГ λ_2 связано с возбуждением моды μ_2 и проявляется в 120-кратном повышении эффективности преобразования ТГ по сравнению с пленкой неструктурированного кремния. λ_1 соответствует μ_1 -резонансу квадрумера при накачке АП лучом и сопровождается 65-кратным усилением сигнала по сравнению с неструктурированной пленкой α -Si. Видно, что во всем спектральном диапазоне интенсивность ТГ для АП выше ЛП и РП случаев. Общий максимум сигнала ТГ экспериментально наблюдается для КММ, где нормированная интенсивность ТГ в два раза превышает нелинейный сигнал в коллективной квадрупольной моде при возбуждении АП пучком и превышает мощность ТГ в МД резонансе при возбуждении ЛП лучом на 2 порядка. Некоторые расхождения между экспериментальными и численными результатами можно объяснить возможным различием условий фокусировки пучка в эксперименте и моделировании.

5.3. Усиление ТГ для разной поляризации для нерезонансного квадрумера. Исчезновение эффекта из-за отсутствия мод Ми-типа

Как было показано на рисунке 56 при изменении расстояния между наночастицами или изменении размеров самих наночастиц происходит сдвиг спектрального положения КММ или МДМ. При расстоянии между нанодисками порядка 500 нм связь между ними пропадает и коллективные эффекты наблюдаться перестают. Такая же тенденция наблюдается в нелинейном отклике. Были взяты квадрумеры с различными расстояниями между нанодисками и отличающимися размерами наночастиц. Их СЭМ изображения представлены на вставке слева рисунка 64. Цвет изображения соответствует цвету на графиках. Размеры квадрумеров оценены из обработки СЭМ. Красный образец (q1) имеет параметры $d = 290 \pm 5$ нм, $s = 80 \pm 5$ нм; зеленый (q2) - $d = 255 \pm 5$ нм, $s = 110 \pm 5$ нм; синий (q3) - $d = 240 \pm 5$ нм, $s = 115 \pm 5$ нм. В этой части работы использовалась фиксированная длина волны $\lambda = 1050$ нм, заданная

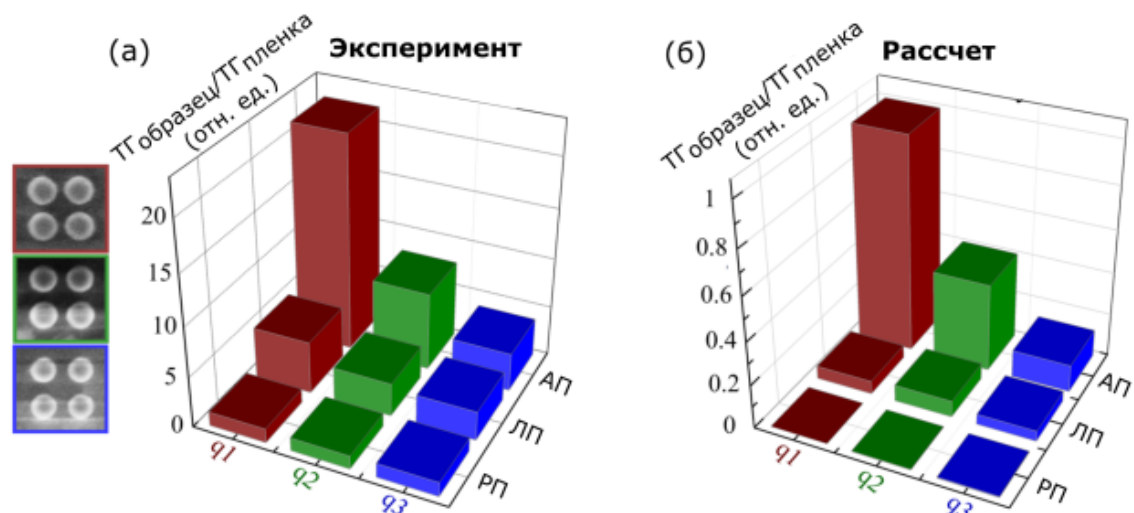


Рис. 64: (а) Цветные столбцы указывают на экспериментальное усиление генерации ТГ от изолированных нанокластеров по сравнению с сигналом ТГ от неструктурированной кремниевой пленки той же высоты. На панелях слева показаны СЭМ-изображения исследуемых олигомеров с цветовыми контурами, соответствующими цветам их ТГ. (б) Численно смоделированное усиление ТГ для квадрумеров, освещенных АП, РП и ЛП.

возможностями используемого лазера. Все образцы не являются резонансными для КММ. С новым лазером картинки не перестраивались поскольку эффект подтверждался и с имеющимися данными. Видно, что при уменьшении размера нанодисков резонанс для АП и ЛП сдвигается в голубую область спектра и точка 1050 нм отделяется от МДМ и КММ образцов, поэтому сигнал ТГ падает, что согласуется с результатами на рисунке 63. Для РП усиление для всех образцов практически отсутствует, поскольку резонансы для РП находятся в другой спектральной области.

5.4. Усиление ТГ для разной поляризации для тримера

Как было показано численно, в тримере тоже возможно возбуждение КММ АП пучком. Для тримера были проведены измерения аналогичные квадрумеру, результаты для которого показаны на Рис. 63. Система возбуждалась различной поляризацией, снимались карты ТГ отклика нанокластера для изменяющейся длины волны накачки. Также была проведена спектроскопия рассеяния. Рассматривался тример с фиксированными геометрическими параметрами: $h = 260 \pm 5$ нм, $d = 270 \pm 5$ нм, $s = 855$ нм. Результаты для него представлены на рисунке 65. В сечении рассеяния, измеренном для ЛП в условиях аналогичных квадрумеру, наблюдается МДР на длине волны $\lambda = 940$. Направление поляризации возбуждающего света было па-

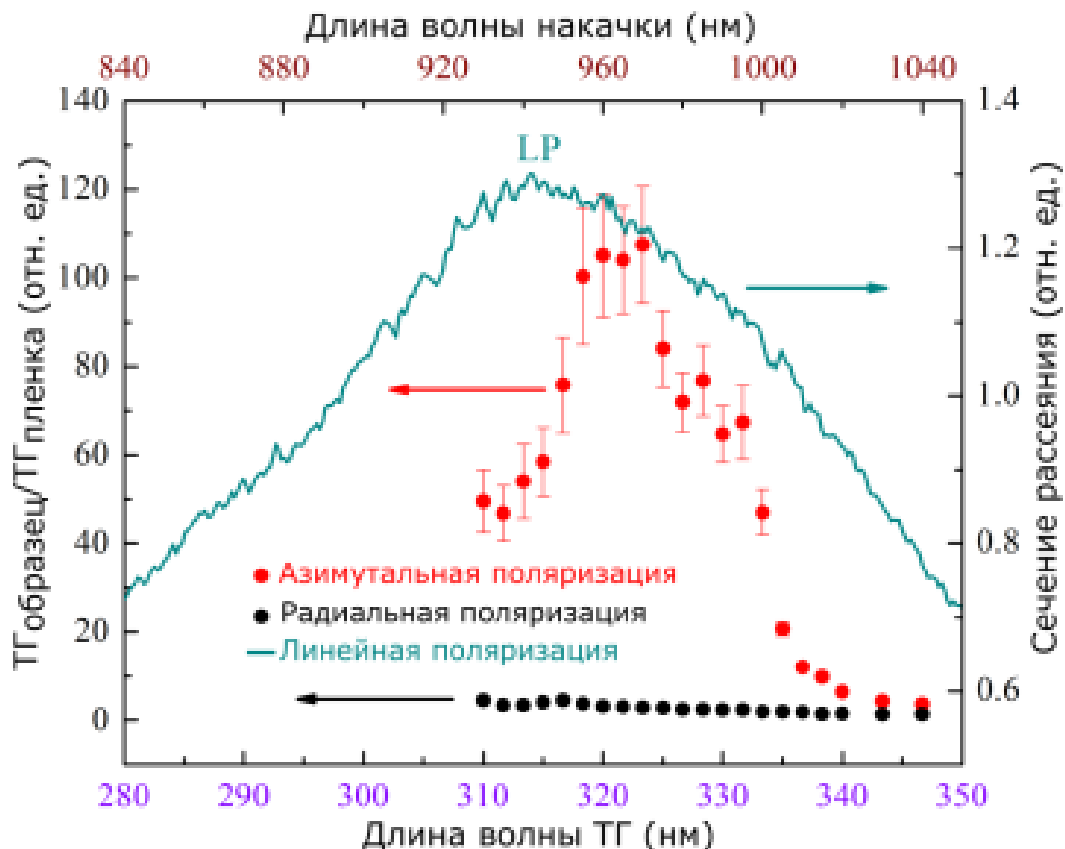


Рис. 65: Зеленой линией показан спектр сечения рассеяния тримера кремниевых нанодисков с фиксированными геометрическими параметрами ($h = 260 \pm 5$ нм, $d = 270 \pm 5$ нм, $s = 87 \pm 5$ нм). Точки - усиление ТГ тримера при освещении кластера для АП (красные точки) и РП (черные точки) освещения при нормальном падении.

раллельно основанию олигомера. В нелинейных экспериментах усиление ТГ достигается в спектральной окрестности МДР при накачке АП. Интенсивность ТГ примерно на порядок больше по сравнению с неструктурированной пленкой аморфного кремния. Для случая возбуждения изолированного тримера РП, как и ожидалось, интенсивность ТГ стремится к нулю и резонансов в спектральной области МД не наблюдается.

Таким образом, экспериментально показано усиление интенсивности ТГ для тримера при возбуждении АП. Отношение ТГ от образца к ТГ от неструктурированной пленки для тримера практически достигает результатов квадрумера. Резонанс в трех близко расположенных наночастицах также связываем с возбуждением КММ в спектральной области МДМ при освещении АП при нормальном падении пучка.

5.5. ТГ для разной поляризации для подложки. Доказательство влияния коллективных эффектов в наноструктурированном объекте

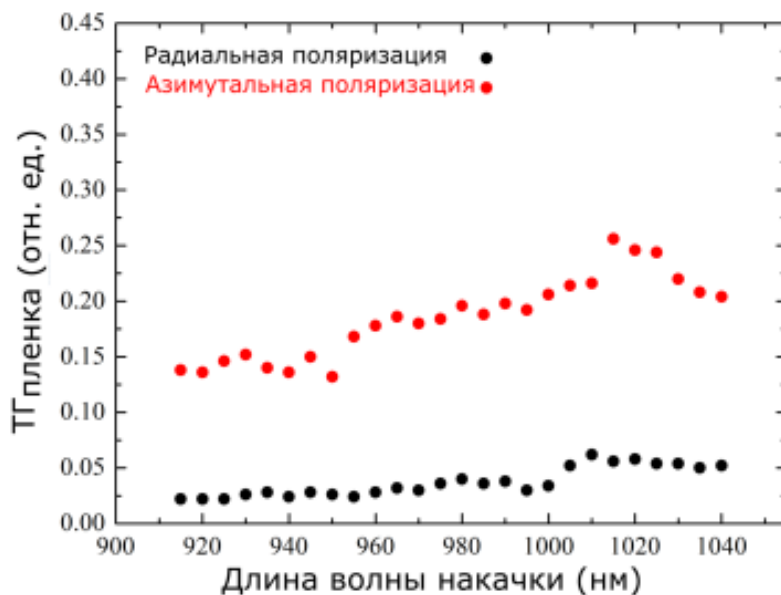


Рис. 66: Экспериментальные спектры интенсивности ТГ для неструктурированной пленки α -Si для АП (красные точки) и РП (черные точки) освещения при нормальном падении и фиксированной мощности накачки.

В рамках работы экспериментально проверили, что наблюдаемый эффект увеличения интенсивности ТГ возникает именно за счет коллективного взаимодействия наночастиц в олигомере и не будет проявлять при освещении разной поляризацией кремниевой пленки без частиц. Были измерены спектры ТГ от неструктурированной пленки аморфного кремния той же толщины, что и образцы ($h = 260 \pm 5$ нм). Условия эксперимента не менялись и полностью повторяли работу с образцами. Мощность лазерного излучения оставалась постоянной, для чего для каждой спектральной точки мощность проверялась на измерителе мощности и подстраивалась. Из рисунка 66 видно, что в необходимом спектральном диапазоне усиления интенсивности ТГ от пленки нет как для РП, так и для АП.

Для мономера отсутствие резонанса для АП было проверено численно, поскольку нелинейные эксперименты с одиночными частицами размером меньше 300 нм слишком трудоемкие.

6. Численное моделирование усиления ТГ и разбор эффектов

6.1. Численный анализ экспериментального усиления ТГ

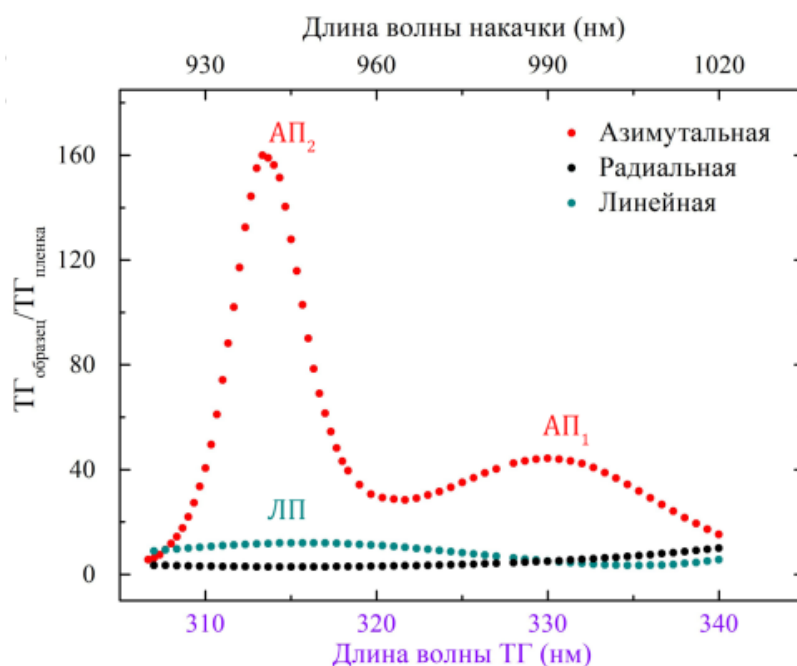


Рис. 67: Нормированные численные спектры интенсивности ТГ для квадрумера нанодисков для линейной (зеленые точки), азимутальной (красные точки) и радиальной (черные точки) поляризации излучения накачки при нормальном падении.

Для проверки качества выводов, сделанных из экспериментальных результатов, нашими коллегами были проведены расчеты нелинейного отклика олигомера. В программном пакете COMSOL Multiphysics с использованием метода конечных элементов был смоделирован нелинейный отклик структур в различных режимах возбуждения: АП, РП и ЛП пучками. Для упрощения предполагалось, что кластер находится в однородной среде с показателем преломления $n = 1.22$ (среднее для показателей преломления воздуха и стеклянной подложки). Для лучшего понимания полученных выводов качественно опишу алгоритм расчетов, не вдаваясь в сложные технические детали. Вычисление проводилось в два этапа: сначала получали линейный отклик олигомера, а затем на основе рассеянного поля генерировалась нелинейная поляризация внутри нанодисков, что обеспечивало появление волны ТГ. Для гидрогенизированного аморфного кремния тензор нелинейной восприимчивости третьего порядка является изотропным, поэтому выражение для поляризации принимает вид: $P_i(3\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_i(\mathbf{E}\mathbf{E})$, $i = x, y, z$. При вычислении проводилось интегрирование мощности исходящего сигнала ТГ по полному телесному углу для различных значений длины волны накачки, эта величина в дальнейшем используется для описания усиления нелинейного отклика. Результаты показаны на рисунке ???. Их можно ин-

терпретировать следующим образом. Нелинейный источник внутри каждой частицы приводится в действие магнитным резонансом [84] и примерно пропорционален кубу магнитного дипольного момента $|m_i^3(\omega)|$. Для ЛП накачки оптический отклик олигомера в основном определяется магнитными диполями, лежащий в плоскости ОХУ, резонансно возбуждаемыми в каждом кремниевом диске на длине волны МД резонанса, а общий дипольный момент системы отличен от нуля, что приводит к одному пику в спектре ТГ (Рис.??, зеленые точки) с небольшим сдвигом в коротковолновую область от длины волны МД моды в спектре линейного рассеяния. Когда квадрумер возбуждается АП излучением, в олигомере возбуждаются две моды, которые соответственно приводят к двум максимумам в спектре ТГ: $_1$ и $_2$ (Рис.??, красные точки). Коллективная мода, обозначенная как $_1$, состоит из радиально направленных магнитных диполей, лежащий в плоскости ОХУ, возбуждаемых радиальной компонентой падающего магнитного поля. Второй резонанс, обозначенный как $_2$, регулируется магнитными диполями, расположенными вне плоскости ОХУ, и возбуждается z-компонентой магнитного поля накачки, и приводит к большему показателю добротности моды и, следовательно, более эффективной генерации ТГ. Небольшой сдвиг длин волн центральных резонансов ТГ, наблюдаемый относительно пиков в сечении рассеяния, можно объяснить как дисперсией α -Si на длине волны ТГ, так и тем фактом, что локальные поля не обязательно имеют максимум, совпадающий с пиком рассеяния [23]. Однако коллективные моды, возбуждаемые в олигомерах, проявляются как в нелинейном, так и в линейном отклике. На длине волны $_2$ моды интенсивность ТГ на 2 порядка больше максимальной при освещении ЛП пучком и в 4 раза больше, чем в режиме $_1$. Когда квадрумер освещается РП излучением, возбуждаются азимутальные нерезонансные магнитные диполи, лежащие в плоскости ОХУ, но отсутствие соответствующих мод в выбранном спектральном диапазоне приводит к значительно более слабому отклику ТГ (Рисунок ??, РП). Таким образом, численные результаты качественно и количественно совпадают с экспериментальными, что подтверждает качество и научную значимость последних.

6.2. Расчет усиления ТГ для одиночного мономера

Также были проведены расчеты для одиночного нанодиска того же размера, что и в исследуемом кластере. Интенсивность ТГ для квадрумера более чем в 20 раз превышала интенсивность нелинейного сигнала от одиночного нанодиска. В расчетах учитывалось различия в количестве нелинейного материала, что в квадрумере его в четыре раза больше. Полученные нашими коллегами результаты еще раз доказывают, что именно селективное возбуждение коллективной моды приводит к значительному увеличению нелинейно-оптического отклика системы (Рисунок 68), а не сопутствующие эффекты связанные, например, со свойствами кремния и его

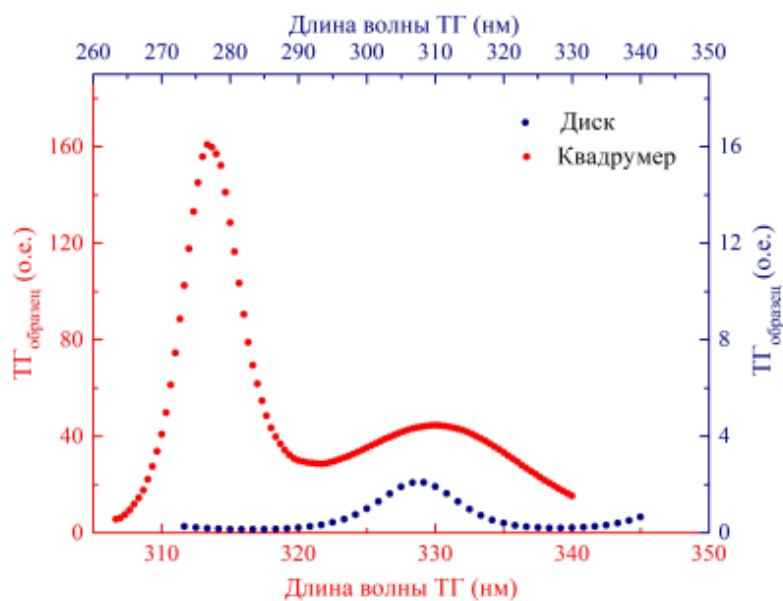


Рис. 68: Численные спектры интенсивности ТГ для квадрумера нанодисков (красные точки) и изолированного диска (синие точки) при возбуждении АП.

взаимодействия с АП.

7. Выводы

В рамках данной главы можно сделать следующие выводы:

1. Экспериментально наблюдается возбуждение коллективной магнитной дипольной моды в полностью диэлектрическом олигомере из четырех наночастиц нормально падающими АП цилиндрическими векторными пучками. Происходит возбуждение магнитных диполей, которые колеблются перпендикулярно подложке. Данная мода характеризуется большой локализацией поля в объеме нанодисков. Коллективная мода проявляется в усилении интенсивности ТГ более чем на два порядка (в 120 раз) по сравнению с неструктурированной пленкой, что демонстрируется в диссертации методом нелинейной микроспектроскопии.
2. Показана спектральная зависимость эффективности нелинейного преобразования за счет влияния соотношения длины волны возбуждающего света и геометрических параметров объекта на тип возникающей оптической моды изолированного олигомера.
3. Продемонстрировано увеличение эффективности преобразования ТГ на два порядка при замене ЛП гауссова пучка на АП цилиндрический векторный пучок. При облучении образца РП светом усиление генерации ТГ отсутствует.

Для образцов с большим расстоянием между наночастицами и, как следствие, меньшим ближнепольным взаимодействием между нанодисками, коэффициент усиления ТГ при возбуждении АП и ЛП практически совпадает.

Найденный эффект открывает новый путь для управления и модуляции нелинейного отклика изолированных наноструктур с резонансами Ми-типа путем адаптации условий их возбуждения.

Глава IV

Коллективные моды олигомеров для усиления фотолюминесценции квантовых точек

1. Идея задачи: картинка и смысл

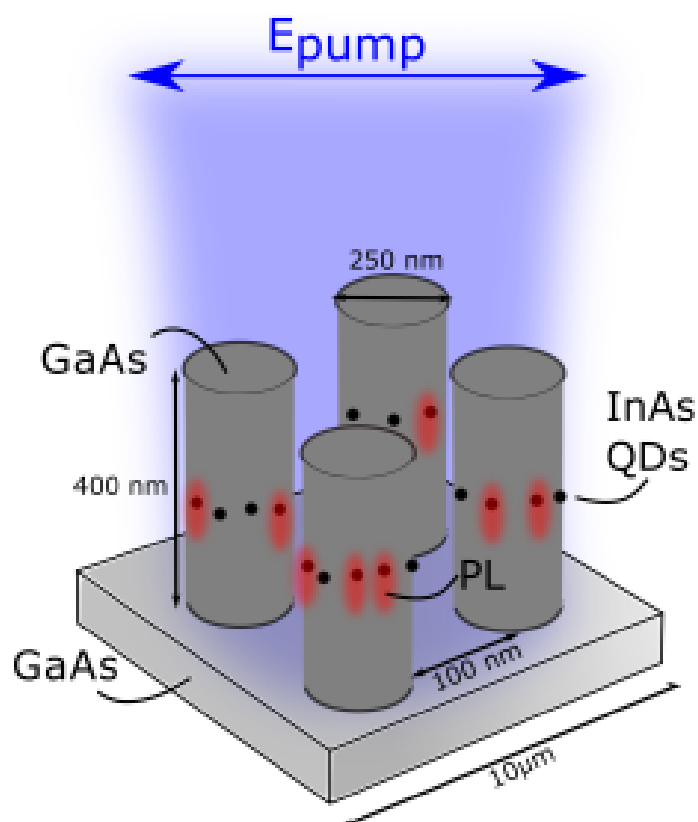


Рис. 69: Схематическое изображение усиления ФЛ в КТ InAs, встроенных в квад-румер GaAs.

Целью третьей оригинальной главы настоящей диссертации является исследование влияния коллективных резонансов в квадруплах из Ми-резонансных материалов на измеряемую ФЛ КТ в объеме образцов. Интенсивность излучения КТ зависит от взаимодействия двух эффектов. Первый - это их взаимодействие с нанорезонаторами на длине волны их ФЛ, что приводит к увеличению направленности излучения КТ и, таким образом, к увеличению количества фотонов, захваченных линзой объектива. Определим эту величину как коэффициент K_{α} . Коэффициент K_{α} возникает из-за сильного влияния геометрических параметров резонатора и спектрального положения накачки на направленность излучения КТ. Второй эффект касается количества фотонов, поглощаемых КТ, которое чувствительно к фактору локализации электрического поля в объеме наночастиц $L(\lambda)$, который, в свою оче-

редь, зависит от типа возбужденной моды в олигомере на длине волны поглощения КТ.

В данной главе рассматривалась система, состоящая из КТ из InAs внутри изолированных олигомеров – квадрумеров наноцилиндров из GaAs, выращенных на подложке из GaAs. Идея экспериментальных исследований и структура образца схематически показана на Рис. 69. Было осуществлено возбуждение МДР квадрумера с высоким $L(\lambda)$ излучением с ЛП, как обсуждалось в предыдущих главах. Это привело к усилению поглощения фотонов накачки КТ и повышению эффективности излучения КТ. Также удалось подобрать геометрические параметры олигомера таким образом, чтобы МДР пересекался со спектром излучения КТ. Это привело к дополнительному увеличению измеренной интенсивности ФЛ за счет повышения ее направленности. Экспериментальные результаты были проанализированы с помощью численного моделирования.

2. Экспериментальные образцы GaAs на подложке из GaAs

2.1. Методы изготовления экспериментальных образцов

Экспериментальные образцы были изготовлены нашими коллегами из ФТИ имени А. Ф. Иоффе в Санкт-Петербурге по рассчитанным мной геометрическим параметрам структур: диаметру и высоте наночастиц, расстоянию между соседними наночастицами. Материал образцов и КТ был предложен коллегами на основе их технических возможностей и ограничений. Квадрумер был выбран, как геометрия, показавшая наилучшие результаты в предыдущих главах.

Для изготовления экспериментальных образцов последовательно применялись следующие методы: молекулярно-лучевая эпитаксия, электронно-лучевая литография и реактивное ионное травление. Методом молекулярно-лучевой эпитаксии была выращена гетероструктура GaAs с внедренными квантовыми точками InAs на подложке из GaAs. Толщина полученного слоя составляла 400 нм; массивы КТ располагались в центре слоя (на глубине 200 нм). КТ InAs выращивались в режиме роста Странского-Крастанова. Предполагаемая средняя толщина осаждения InAs составляет 2 монослоя. Структура выращена на подложке GaAs(100), покрытой буфером GaAs толщиной 0,2 мкм, за которым следуют квантовые точки (КТ) InAs, сформированные между нижним и верхним слоями GaAs толщиной 200 нм при температуре роста 590 С и скорости роста 0,015 монослоя/с. Таким образом до травления образец представлял себе структуру из GaAs подложки, 200 нм GaAs пленки, 2 монослоя КТ и завершающие 200 нм пленки GaAs. После выращивания слоев на структуру центрифугированием наносили негативный резист HSQ, а затем экспонировали его с помощью электронно-лучевой литографии для дальнейшего формирования мас-

ки. Последним этапом было протравливание полученной маски на глубину выращенного слоя GaAs реактивным ионным травлением. Параметры маски и глубина травления были выбраны на основе численных расчетов оптимизации сечений рассеяния структур, выполненных методом конечных элементов в COMSOL Multiphysics и направленных на достижение наилучшего возможного спектрального перекрытия между спектрами МД резонанса и излучения КТ, которые согласно измерению микро-фотолюминесценции излучают в диапазоне от 890 нм до 990 нм (Рис.77).

2.2. Характеризация экспериментальных образцов с помощью СЭМ

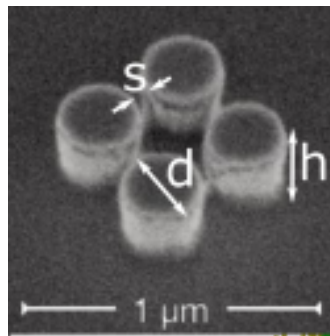


Рис. 70: Характерное изображение квадримера GaAs наночастиц на подложке из GaAs, полученное с помощью СЭМ.

В главе были рассмотрены два типа олигомеров. В первом случае достигалась ситуация, что спектральная позиция МДР была вне спектральных линий ФЛ КТ, которые согласно измерениям μ -ФЛ располагались в диапазоне от 890 до 990 нм. Такая геометрия квадримера необходима для демонстрации увеличения ФЛ за счет улучшения поглощения накачки КТ. Второй набор образцов был использован для достижения наилучшего спектрального перекрытия между МДР и излучением КТ для экспериментальной демонстрации увеличения детектируемого излучения ФЛ за счет повышения направленности сигнала.

В итоге были получены изолированные олигомеры четырех нанодисков GaAs, характерное СЭМ изображение которого представлено на Рис. 70). У нанодисков была фиксированная высота ($h = 400 \pm 5$ нм) и расстояние между ними ($s = 100 \pm 5$ нм), но различались диаметры, которые варьировались от 210 нм до 290 нм. Расстояние между олигомерами в 10 мкм было выбрано, чтобы исключить взаимодействие между соседними нанокластерами и дать возможность возбуждать каждую структуру в отдельности, аналогично предыдущим главам.

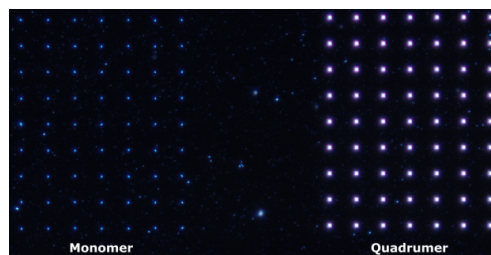


Рис. 71: Темнопольные изображения исследуемых образцов. Левая часть – мономеры, правая часть – квадрумеры.

2.3. Изображения образцов, полученные на оптическом микроскопе

После описания образцов на СЭМ была проведено оптическое исследование образцов на микроскопе. С помощью микроскопа Olympus, работающего в геометрии на отражение, мы получили изображения нескольких квадрумеров и мономеров (изолированных нанодисков) в темном поле. Это было предварительным шагом для последующей спектроскопии рассеяния структур. На рисунке 71 слева отдельные нанодиски, которые менее яркие и светятся синим. Справа квадрумеры, геометрическую структуру которых видно на картинке. Разница в цвете структур указывает на различие возбужденных мод Ми-типа. Также проверили, что размеры образцов различаются при движении между массивами с одинаковой геометрией образцов, что важно для дальнейших экспериментов. Внутри массивов образцы практически одинакового размера, поэтому цвет не различается.

2.4. Установка спектроскопии рассеяния в геометрии на отражение

Для дальнейшего описания экспериментальных образцов была проведена их спектроскопия рассеяния в схеме на отражение. Сечения рассеяния изолированных квадрумеров с КТ были измерены на установке для спектроскопии темного поля в конфигурации отражения, схематически представленной на рис. 72, при освещении нормально падающим линейно поляризованным светом. В качестве источника использовалась галогенная лампа (Thorlabs - SLS201L/M) со встроенным коллиматором (L1). Широкополосное излучение лампы фокусировалось во многомодовое оптическое волокно, Thorlabs FT600EMT, (F1). Вышедший из оптического волокна свет попадал в коллиматор (C) - дублет Thorlabs AC254-60-B-ML. После него параллельный пучок отражался от двухдюймовой стекляшки (Thorlabs EBS2), проходил через дублет Thorlabs AC254-150-B-M и линзу объектива (O) Lomo 20x с числовой апертурой=0,7, конфокальную с Л2. Полученный параллельный пучок освещал несколько олигомеров в экспериментальном образце, установленном на

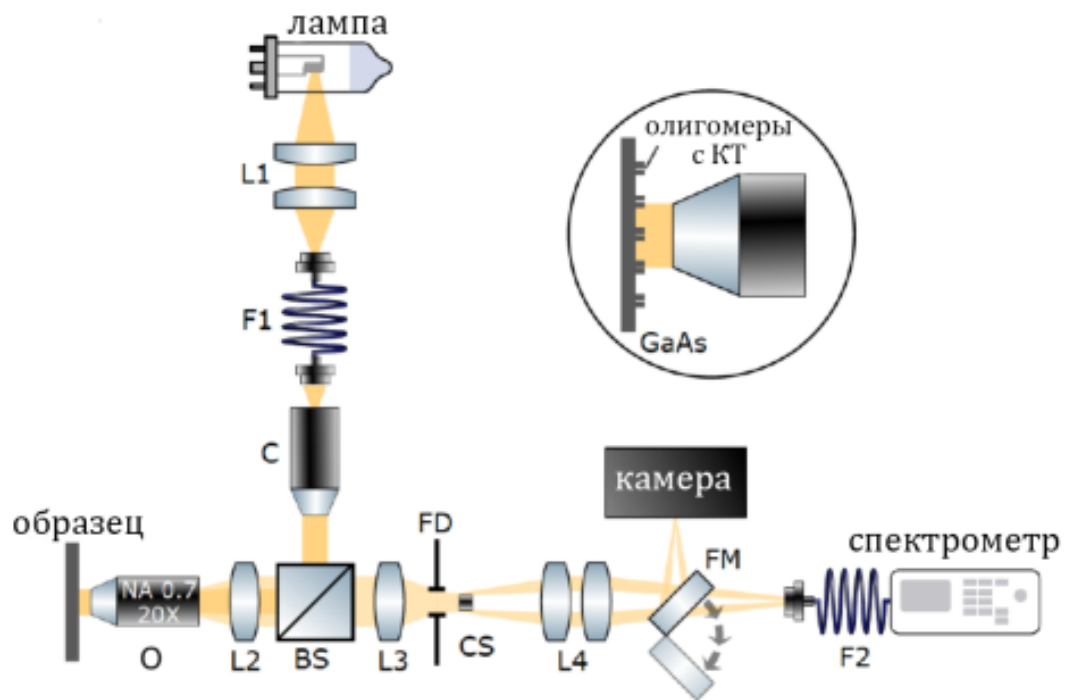


Рис. 72: Экспериментальная установка для измерения спектроскопии в темной поле изолированных квадрумеров с интегрированными КТ. L1:4 - линзы, O - линза объектива, F1:2 - оптоволокно, C - коллиматор, BS - светоделитель, FM - откидное зеркало, FD - полевая диафрагма.

трехкоординатном трансляторе, расположенном в фокальной плоскости O. Отраженное от подложки и рассеянное от квадрумеров излучение проходило через O и конфокальные одинаковые линзы L2 и L3 с фокусным расстоянием 150 мм. Целью задачи является измерения сечения рассеяния определенного отдельного квадрумера. Для выделения образца применялась пространственная фильтрация сигнала ирисовой диафрагмой SM1D12 (FD), расположенной перед L3. Прямое изображение образца строилось на КМОП-камере (Thorlabs, DCC1545M) линзой L5. По камере определялся необходимый образец. Далее меняя радиус FD, выделялся образец и максимально отрезался сигнал от неровностей подложки или других образцов. Поскольку вклад света, отраженного от подложки, преобладал над рассеянным светом от олигомеров, нужно было выделить полезный сигнал от квадрумеров. Для разделения отраженного и рассеянного излучения необходима угловая фильтрация Фурье-изображения образцов, построенного в задней фокальной плоскости O. Однако задняя фокальная плоскость O находилась внутри его корпуса и для ее визуализации использовались L2 и L3, а также L4 для получения Фурье-изображения олигомеров на камере. Самодельная маска в виде пятна краски с $d \approx$ мм на куске стекла (CS) перемещалась между L3 и L4 и фиксировалось таким образом, чтобы на камере получилось изображение в задней фокальной плоскости O. При этом

FD была полностью открыта. Мы фиксировали CS в найденном положении, тем самым блокируя нулевой порядок дифракции - отраженный свет. В зависимости от положения зеркала (FM) Фурье-изображение образца проецировалось либо на КМОП-камеру (Thorlabs, DCC1545M), либо на вход мультимодового оптического волокна, Thorlabs FT600EMT, подключенного к спектрометру Ocean Optics QE Pro со спектральным разрешением 2 нм. Как я писала выше, варьируя диаметр полевой апертуры, мы выбирали сигнал отдельного олигомера и измеряли его сечение рассеяния как (Сигнал-Фон)/(Лампа-Шум). Шум создавался эффектами в спектрометре. Фон измерялся на участке образца без частиц, чтобы избежать паразитного рассеяния от неровностей подложки и оптических элементов. Для получения эталонного спектра лампы мы поставили зеркало вместо образца и убрали из установки CS. Полученные сечения рассеяния представляют собой среднее арифметическое не менее пяти спектров для каждого олигомера.

2.5. Спектры рассеяния отдельных квадрумеров с КТ. Обсуждение возбуждаемых Ми-резонансов и зависимости их положения от диаметров нанодисков

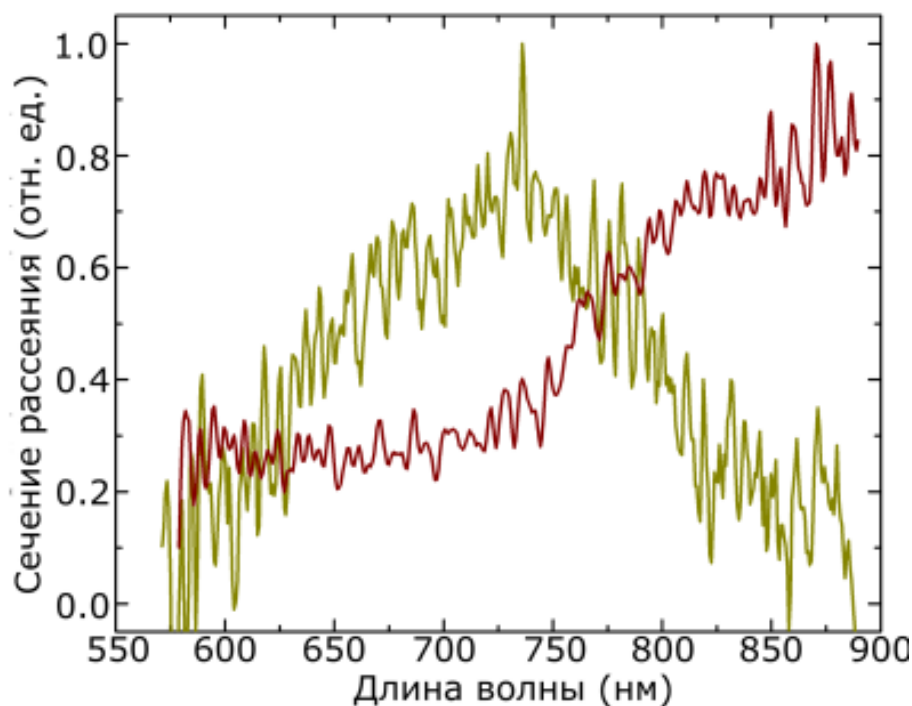


Рис. 73: Экспериментальные спектры сечения рассеяния изолированных олигомеров нанодисков с $d = 220 \pm 5$ нм (желтый) и $d = 260 \pm 5$ нм (красный).

Спектры сечения рассеяния двух квадрумеров, использованных в дальнейших измерениях для демонстрации усиления ФЛ за счет роста поглощения КТ, представлены на Рис. 73. Измерения проводились методикой, описанной в предыдущем

параграфе 2.4, на установке, представленной на Рис 72. Спектры показали резонансное поведение в спектральном диапазоне между 650 нм и 950 нм. Длины волн более 900 нм не показаны из-за ограничений установки, а именно возбуждающего света. Выбор образцов обусловлен тем, что у одного из них с диаметром $d = 220 \pm 5$ нм (желтый) полный резонанс находится в области возможной накачки КТ: вне резонансного и квазирезонансного режимов возбуждения. Для другого $d = 260 \pm 5$ нм резонанс сдвинут в сторону ФЛ КТ, но при этом не достигает ее, тем самым не смешивая два эффекта.

Резонанс смещался в красную сторону с увеличением диаметра наноцилиндров, что демонстрируется на Рис. 74, где представлены спектры квадрумеров из разных массивов образцов. Смещение пика при росте размера объекта характерно для МД резонанса, подробно обсуждаемого в предыдущих главах.

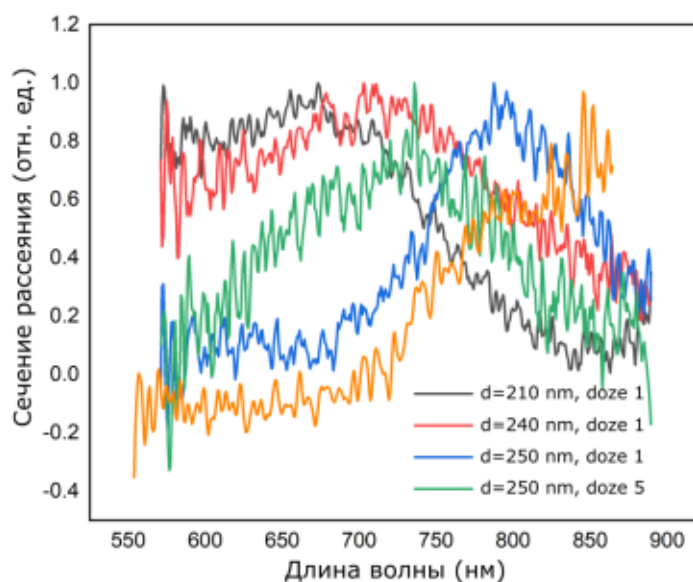


Рис. 74: Результаты спектроскопии в темном поле для изолированных квадрумеров различного диаметра. Его реальное значение может быть сдвинуто от написанного на 15 нм из-за неточности технологии изготовления. С увеличением дозы диаметр наночастиц уменьшается примерно на 10 нм за шаг дозы.

2.6. Обсуждение типа возбуждаемого резонанса для линейной поляризации

Тип резонанса наблюдаемого в экспериментах был исследован численно методом конечных разностей во временной области в программе Lumerical FDTD. Методика анализа аналогично предыдущим главам и состоит из двух этапов. Первый - это расчет спектра рассеяния образца и сравнение его с экспериментальными данными, для подтверждения корректности выбранных размеров. Второй - рассмотрение распределения электрического и магнитного поля в различных сечениях квадрумера.

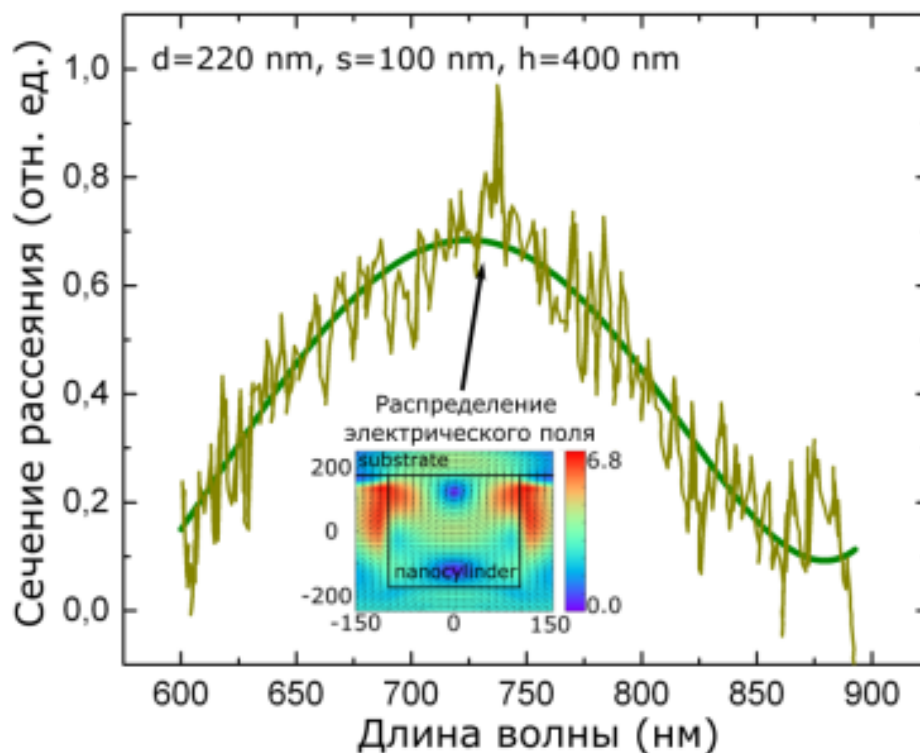


Рис. 75: Численный спектр сечения рассеяния резонансного квадрумера (полученный в программе COMSOL), наложенный на экспериментальный спектр рассеяния.

Геометрия в расчетах повторяет экспериментальную ситуацию: наностолбик GaAs на подложке GaAs. Распределение электромагнитного поля в поперечном сечении наностолбика, представленное на вставке к Рис. 75, указывает на возбуждение МДР. Аналогичное распределение поля в МДР наблюдалось и для нанодиска из аморфного кремния на подложке из плавленого кварца. В данной геометрии больше поля уходит в подложку из-за отсутствия разницы в показателе преломления сред.

Мы также рассчитали спектры излучения различных квадрумеров методом конечных элементов в программном комплексе COMSOL Multiphysics. В качестве нагрузки использовалась плоская волна и рассчитывалось сечение рассеяния одиночной структуры на подложке. Результаты представлены на Рис. 75 для резонансного образца с $h = 400$ нм, расстоянием между наночастицами $s = 100$ нм и $d = 220$ нм. При разложении излучения на оптические моды типа M_i было подтверждено, что в эксперименте наблюдается именно МДР. Важно также отметить, что спектры накладываются друг на друга, что говорит также о корректности определения геометрических параметров образца.

3. Экспериментальное исследование квантовых точек в образцах

3.1. Установка микро-фотолюминесценции

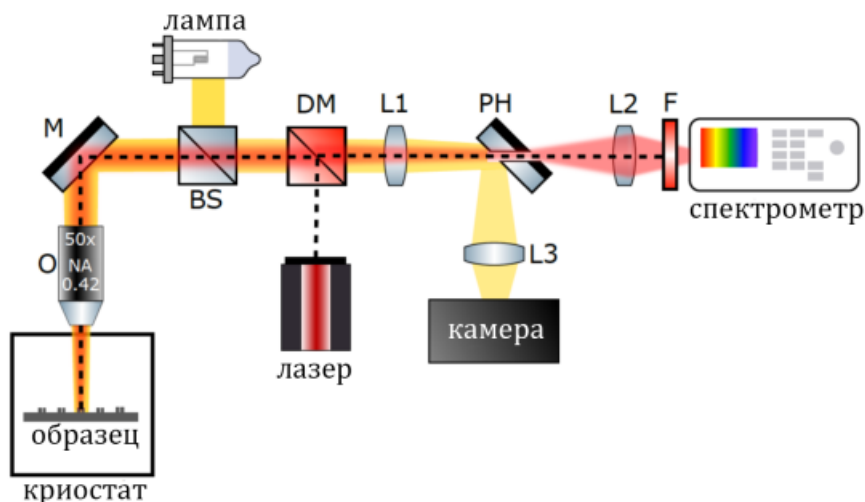


Рис. 76: Экспериментальная установка для измерения микро-фотолюминесценции КТ при криогенных температурах около 8 К. L1:3 - линзы, О - объектив, М - зеркало, BS - светоделитель, DM - дихроичное зеркало, PH - пинхол, объединенный с зеркалом, F - набор фильтров

На установке μ -ФЛ экспериментально исследовалось усиление ФЛ КТ, возбуждаемых ЛП излучением при криогенных температурах (средняя температура 8 К; Рис.76). Образцы помещались в криостат He-flow ST-500-Attocube с XYZ пьезоподвижкой внутри, что позволяло оптимизировать и точно поддерживать положение выбранного квадрмера относительно лазерного пятна в течение продолжительного времени (несколько часов). Для измерений микро-ФЛ использовалось оптическое возбуждение от перестраиваемой по спектру (в нашем случае от 690 до 819 нм) лазерной системы Miga 900, работающей в непрерывном режиме работы. Спектральный диапазон возбуждения выбирался в соответствии с особенностями излучения квантовых точек InAs и положения МД резонансов образцов. Падающее излучение фокусировалось в пятно диаметром 3-4 мкм на образец апохроматической линзой объектива (О) с числовой апертурой 0,42. Отраженное от структуры излучение ФЛ фокусировалось триплетной ахроматической линзой (L1) в плоскости зеркала с калибровочной апертурой (PH) различного диаметра (минимальный доступный размер апертуры 50 мкм), определяющей область сбора сигнала ФЛ. Прошедшее через апертуру излучение ФЛ собиралось и фокусировалось на входной щели спектрометра SP-2500 (Princeton Instruments) с дифракционной решеткой с периодом 1200 мкм набором из двух триплетных линз (L2). Для отсечки паразитного отражения

излучения накачки от образца и оптических элементов непосредственно перед спектрометром размещался набор фильтров фирмы Semrock (F).

3.2. Микро-фотолюминесценция квантовых точек в сплошной среде и сравнение с излучением после создания квадрумеров



Рис. 77: Красная область - спектр μ -ФЛ квантовых точек InAs, внедренных в пленку GaAs, полученный с использованием пучка накачки диаметром 2,5 мкм и длиной волны 404 нм. Черная кривая - типичный спектр квантовых точек InAs, расположенных в объеме нанодисков GaAs изолированного квадрумера.

Для описания КТ были сняты их спектры μ -ФЛ на установке, описанной на Рис. 76. КТ возбуждались лазерным излучением с центральной длиной волны 404 нм; сигнал собирался с площади 2-3 мкм. Красная область на Рис. 77 определяет спектр КТ до травления образца в виде олигомеров. Зависимость демонстрирует два отдельных пика, которые можно отнести к излучению КТ (от 890 до 1000 нм) и смачивающему слою (от 880 до 870 нм), который всегда образуется при используемой технологии роста.

После травления слоистой структуры методом электронно-лучевой литографии в виде изолированных квадрумеров спектр излучения КТ InAs изменился. Появились отдельные линии излучения изолированных КТ в области между 920 и 970 нм. Сделать одинаковые КТ невозможно, поэтому интенсивность и расположения эмиссионных линий изменялось от образца к образцу, сохраняя общую структуру

и спектральную область, ограниченную красным (900 - 1000 нм) на Рис. 77. Чем больше размер КТ, тем меньше длина волны, на которой идет излучение. Квантовая точка является искусственным атомом, поэтому ее энергия квантована по трем направлениям. Если КТ несимметричная, то возможно излучение несколько близко расположенных линий, что наблюдается в эксперименте. Количество линий излучаемых КТ растет с увеличением мощности накачки. При минимальной мощности возбуждения светит один экситон - квазичастица, являющаяся связанным состоянием между электроном и дыркой. При увеличении мощности появляются линии, соответствующие излучению положительно или отрицательно заряженного триона - связанное состояние из двух дырок и одного электрона или наоборот, и биэкситона - два электрона и две дырки. Определить тип линии можно по характеру зависимости интенсивности КТ от мощности накачки. Так для экситона зависимость интенсивности является линейной, а для биэкситона квадратичной. Однако, это исследование находится за рамками данной диссертации.

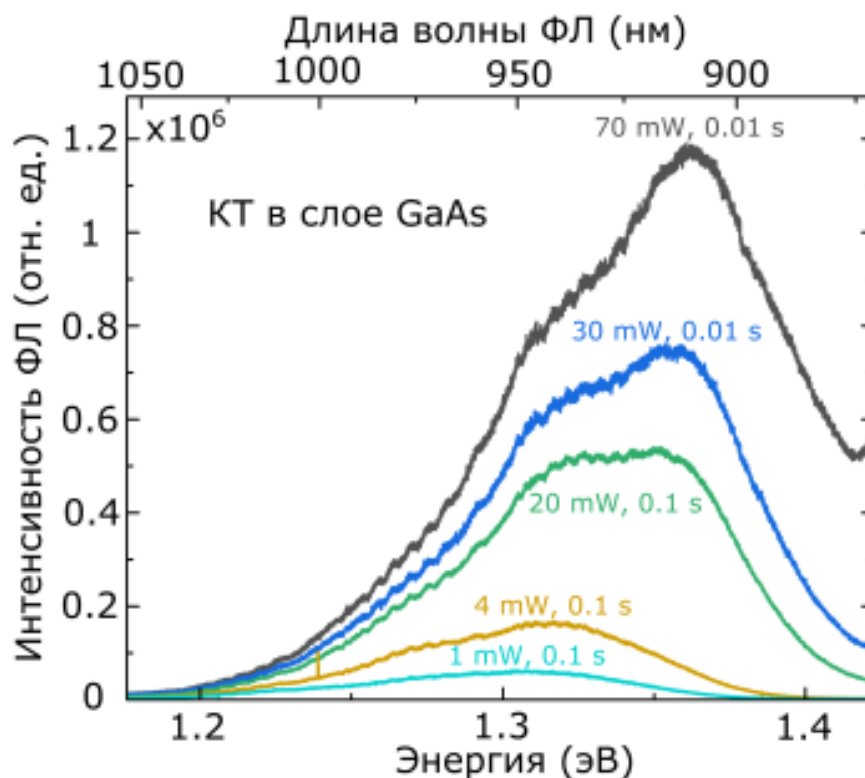


Рис. 78: Спектры ФЛ КТ внутри неструктурированной среды, полученные из пятна образца размером 200 мкм, при различных интенсивностях накачки и временах интегрирования.

Для более глубокого понимания физики КТ мы измерили их спектры ФЛ для различных мощностей накачки и фиксированной длины волны возбуждения, 660 нм, Рис. 78. При малых мощностях в спектрах виден один пик, связанный с излучением с первого возбужденного уровня двухуровневой системы. При увеличении

мощности накачки появляется еще один пик, указывающий на излучение следующего возбужденного уровня.

4. Основные экспериментальные результаты при возбуждении олигомеров линейно поляризованным излучением

4.1. Усиление ФЛ для фиксированного квадрумера и линии излучения КТ

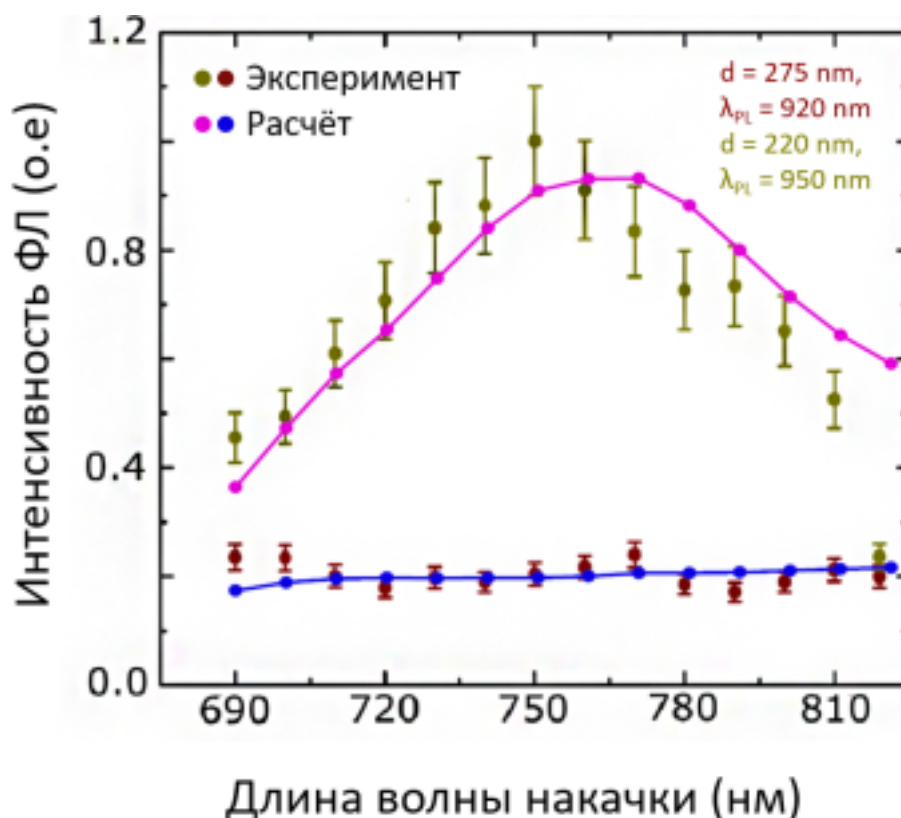


Рис. 79: Экспериментальная мощность фотолюминесценции, нормированная на максимальное значение для резонансных: $d \approx 220$ нм (желтый) и нерезонансных: $d \approx 260$ нм (бордовый) образцов, измеренных для разных длин волн накачки и фиксированной длины волны излучения ФЛ (λ_{PL}) для каждого образца ($\lambda_{PL} = 950$ нм и $\lambda_{PL} = 920$ нм). Сплошными линиями отображен численный результат расчета ФЛ для квадрумеров с соответствующими размерами.

Для демонстрации усиления ФЛ за счет роста поглощения в КТ были проведены эксперименты на установке описанной в параграфе 3.1 данной главы. В ходе эксперимента варьировалась длина волны накачки от 690 нм до 819 нм. Верхняя граница выбиралась таким образом, чтобы избежать резонансного и квазирезонансного режимов возбуждения КТ, чтобы минимизировать количество рассматриваемых эффектов. Были рассмотрены два типа образцов. Резонансный образец, у которого

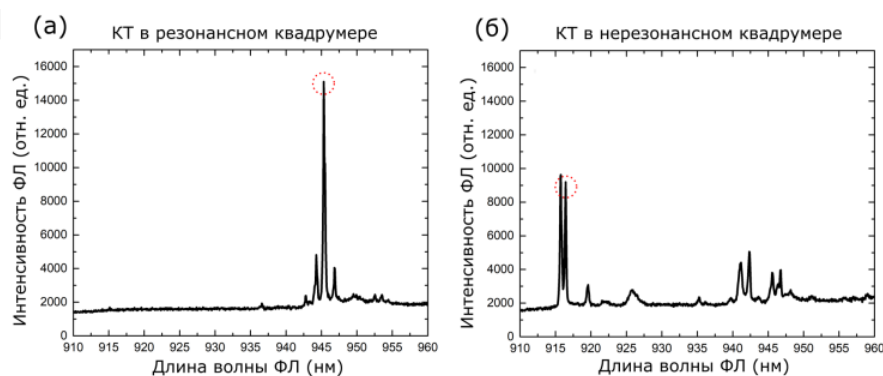


Рис. 80: Характерные спектры КТ InAs, расположенных в объеме наностолбиков GaAs для резонансного (а) и нерезонансного (б) квадруперов, накачиваемых лазером с длиной волны $\lambda = 690$ нм. Красными кружками показаны эмиссионные линии, интенсивность которых анализировалась при изменении длины волны накачки.

МД резонанс находился в спектральной окрестности длины волны возбуждения ФЛ КТ, а сами линии излучения не совпадали с какими-либо конкретными резонансами олигомера. Это делалось, чтобы исключить влияние увеличения коэффициента направленности K_α на результат измерения интенсивности ФЛ КТ. Для нерезонансного квадрупера МДР был смещен от длины волны возбуждения, но при этом все еще оставался нерезонансным для излучения КТ (Рис. 73). Рассматривая такой набор олигомеров, можно экспериментально продемонстрировать усиление ФЛ за счет более сильной локализации электрического поля в резонаторах, что ранее не было продемонстрировано.

В ходе эксперимента выбиралась стабильная линия излучения для каждого образца. Спектр μ -ФЛ КТ в двух образцах, измеренный при 8 К и длине волны накачки 690 нм, с обозначенными кругами линиями излучения КТ, за которыми следили в дальнейшем эксперименте показан на Рис 80. Для нерезонансного образца интенсивность ФЛ интегрально ниже, чем для резонансного, но сохраняются характерные одиночные линии. Для каждой экспериментальной точки изменялась длина волны накачки и измерялась интенсивность соответствующей линии. После получения полного спектра интенсивности линии при изменяющейся длине волны накачки процедура трижды повторялась. Финальные спектры представляют собой среднее арифметическое таких измерений, нормированное на максимальное значение. Ошибки показанные на графики являются статистическими погрешностями измерения, возникшими за счет усреднения.

Измеренные спектры ФЛ квантовых точек, интегрированных в квадруперы разного диаметра, показаны на Рис.79. Увеличение интенсивности ФЛ для КТ, введенных в резонансные квадруперы, достигало пятикратного значения, в то время как для нерезонансного случая сигнал был изотропным и не проявлял значитель-

ной чувствительности к изменению длины волны возбуждения. Сплошными линиями показана численная мощность излучения квантовых точек в изолированных квадрумерах нанодисков из GaAs для ЛП возбуждения с разными длинами волн, изменяющимися в том же спектральном диапазоне, что и в эксперименте (Рис.79, синяя и фиолетовая кривые). Расчеты проведены в программном пакете COMSOL Multiphysics. Их методика будет обсуждаться в следующем параграфе. Результаты тут представлены для сравнения с экспериментом и подтверждения его научной обоснованности. В численных расчетах достигнуто 5-кратное усиление ФЛ, что соответствует результатам, полученным в эксперименте.

4.2. Увеличение интенсивности ФЛ КТ при приближении квадрумера к резонансному для КТ

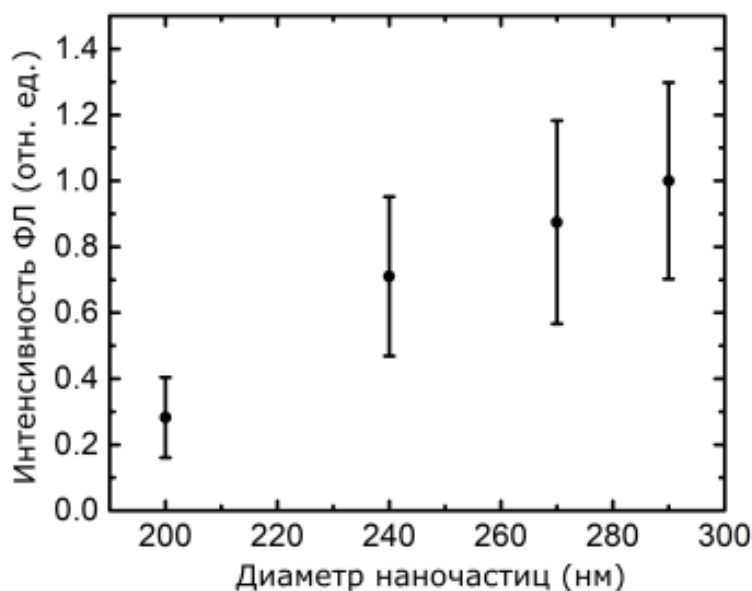


Рис. 81: Зависимость интенсивности ФЛ КТ изолированного квадрумера от диаметра наночастиц, нормированная на его максимальное значение.

Как обсуждалось теоретически, Ми-резонансные квадрумеры могут действовать как наноприемники для сигнала ФЛ КТ. Излучение КТ теряет аксиальную симметрию, характерную для источника, расположенного в неструктурированном объеме, при пересечении с МДР олигомера. Излучение КТ модифицируется диаграммой направленности МДР квадрумера, увеличивая интенсивность излучения КТ, направленное в апертуру экспериментального объектива. Как было описано выше, при изменении диаметра наностолбика изменяется спектральное положение МДР и достигается случай, когда длина волны излучения КТ пересекается с МДР. При приближении

спектрального положения МДР к длине волны ФЛ КТ увеличивается интегральная измеренная интенсивность ФЛ (Рис. 81) при возбуждении системы в надбарьерном режиме ($\lambda = 404$ нм). Эксперимент был реализован на установке μ -ФЛ, описанной в параграфе 3.1. Однако, в данном случае освещалось несколько олигомеров из одного массива и снималось интегральное значение интенсивности. Процедура повторялась для пяти пространственных точек в массиве для каждого диаметра наностолбика, чтобы избежать эффектов связанных с особенностями конкретного образца. Далее интенсивность ФЛ усреднялась по полученным экспериментальным точкам для фиксированного диаметра. После чего процедура повторялась для массива с другим диаметром наностолбиков олигомера. Строилась зависимость интегральной интенсивности ФЛ КТ от диаметра наностолбика. Полученные значения делились на значение в точке с максимальной интенсивностью. Таким образом, демонстрировался рост интенсивности ФЛ между образцами при переходе от менее резонансного к более резонансному в смысле пересечения ФЛ КТ с МДР. Ошибка, показанная на графике, - это статистическая погрешность от усреднения по пяти образцам. Описанным способом было получено усиление ФЛ КТ в 3 раза при приближении МДР к линиям излучения КТ, что продемонстрировано на Рис. 81. Более подробно физические причины наблюдаемого эффекта будут рассмотрены в численном моделировании.

5. Численный анализ экспериментальных результатов

5.1. Увеличение локализации поля в объеме наночастиц в магнитной дипольной моде и изменение спектрального положения максимума локализации при изменении размеров наночастиц

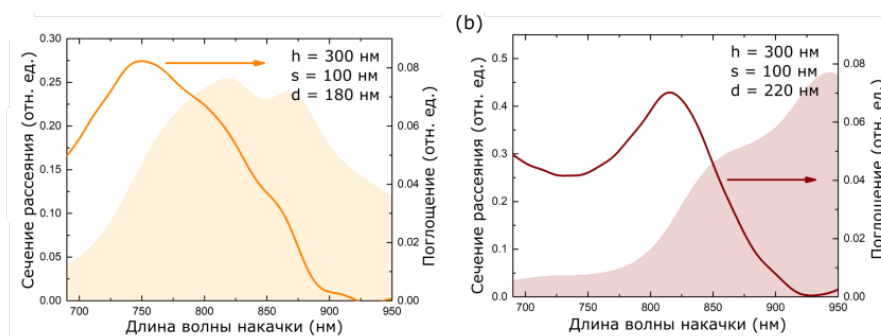


Рис. 82: Численные спектры поглощения (кривые) и рассеяния (закрашенная область) квадримера GaAs с высотой $h = 300$ нм, расстоянием между частицами $s = 100$ нм и диаметрами $d_1 = 180$ нм (а) и $d_2 = 230$ нм (б), расположенные в воздухе без подложки GaAs.

Как было показано экспериментально, на интенсивность излучения КТ влияет количество фотонов, поглощенных КТ. Поглощение света чувствительно к коэффициенту локализации электрического поля в объеме наностолбиков $L(\omega)$. Образец освещается лазерным излучением с энергией $J = N_0 \hbar \omega$, где N_0 – число фотонов. Часть этих фотонов, $L(\omega)N_0$, будет поглощена полупроводниковой структурой. Поскольку используемые в эксперименте длины волн накачки соответствуют надбарьерному возбуждению, то прямым поглощением света КТ можно пренебречь по сравнению с поглощением света в материале барьерных слоев (GaAs). В результате в материале барьера будет генерироваться $L(\omega)N_0$ электронно-дырочных пар, часть которых захватывается КТ, что приводит к их возбуждению. При условии, что время измерения в эксперименте много больше характерного времени затухания ФЛ, используется слабая мощность накачки и низкая температура, квантовый выход излучения КТ составляет 100%. Таким образом, интенсивность излучения КТ, внедренных в олигомер с большими коэффициентами поглощения на длинах волн накачки, будет преобладать над остальными.

Для подтверждения изложенных утверждений были рассчитаны коэффициенты поглощения для двух квадрумеров, различающихся диаметром и, как следствие, спектральным положением МДР. Хотели показать, что в области МДР растет поглощение в материале наночастиц, что и влияет на возбуждение КТ, что видно в эксперименте. Использовался программный пакет Lumerical FDTD. Были выбраны два образа, различающиеся геометрическими параметрами и, как следствие, спектральным положением МДР. МДР квадрумера с нанодисками диаметром $d = 180$ нм находится в спектральной области излучения накачки КТ в эксперименте. Для другого, $d = 230$ нм, МДР имеет заметное красное смещение. Для упрощения расчетов олигомеры находились в сплошной среде с постоянным показателем поглощения, чтобы не учитывать дополнительные эффекты из-за подложки. Расстояние между нанодисками в расчете было $s = 100$ нм, высота $h = 300$ нм. Диаметры и высота наностолбиков отличаются от экспериментальных, поскольку моделирование проводилось для квадрумера без подложки для упрощения расчетов и учитывая, что нас интересуют относительные значения поглощения. Результаты расчетов представлены на Рис. 82. Было получено, что меньший олигомер имеет пик коэффициента поглощения при длине волны 750 нм (Рис. 82(а)), в то время как значение поглощения для второй структуры в этой области почти вдвое меньше (Рис. 82(б)). Для обоих случаев пик поглощения имеет синее смещение от МДР, что уже исследовалось в других работах по полностью диэлектрической нанофотонике. Разница в показателях поглощения наноструктур по порядку величины совпадает с наблюдаемой в эксперименте дельтой усиления интенсивности ФЛ для качественно такой же разницы центральных длин волн МДР квадрумеров.

5.2. Метод моделирования ФЛ КТ через диполи в объеме нанодисков

Расчёты ФЛ КТ проводились с помощью численного моделирования в программном обеспечении COMSOL Multiphysics. КТ внутри каждой наночастицы представлены точечными электрическими диполями, расположенными по высоте посередине нанодисков. Для КТ направление поляризации зависит от внутреннего давления и сил натяжения в ее материале, а это невозможно контролировать при изготовлении. В расчетах представленных ниже дипольный момент был направлен перпендикулярно плоскости образца для упрощения аналитики. Интенсивность ФЛ зависела от поляризации диполя, поэтому для повторения абсолютных значений, полученных в эксперимента, нужно усреднять интенсивность и другие эффекты по трем направлениям диполя. Однако, в расчетах нас интересует качественное объяснение эффектов, поэтому используем более простые модели. Дипольный момент точечного источника, встроенного в нанорезонатор, пропорционален электрическому полю накачки, локализованному внутри частицы на определенной длине волны $d(\lambda_{pump}) \sim E_{loc}(\lambda_{pump})$, модулированному функцией Лоренца с максимумом на 950 нм согласно результатам анализа ФЛ квантовых точек InAs. Диполи имитировали излучение КТ на определенной длине волны: в расчете рассматривался диполь, излучающий на фиксированной длине волны между 900 нм и 1000 нм с амплитудой рассчитанной по алгоритму выше. Для симуляции интенсивности ФЛ КТ, выходящей из образца, мощность излучения диполей интегрировалась по замкнутой поверхности вокруг резонатора. Была получена величина $P_{dip}(\lambda_{pump}, \lambda_{PL})$, которая качественно характеризует интенсивность излучения КТ. Для анализа влияния нанорезонатора на интенсивность ФЛ $P_{dip}(\lambda_{pump}, \lambda_{PL})$ нормировалась на мощность излучения диполей, помещенных внутри неструктурированной пленки. Важно отметить, что величина усиления ФЛ оказалась чрезвычайно чувствительной к пространственному распределению КТ в случае, когда всего несколько квантовых точек (1-2) были внедрены внутрь наноцилиндров, что потребовало дополнительного пространственного усреднения. Поскольку невозможно оценить точное количество КТ в образце, их пространственное распределение, размер, неточности изготовления наноцилиндров мы решили пренебречь некоторыми экспериментальными подробностями, например, что излучение собиралось в конечный телесный угол порядка 25° . Для упрощения расчетной модели мы использовали более простую геометрию с усреднением по верхней полусфере и фиксированным положением диполей. Проводили сравнение с подложкой и различными образцами.

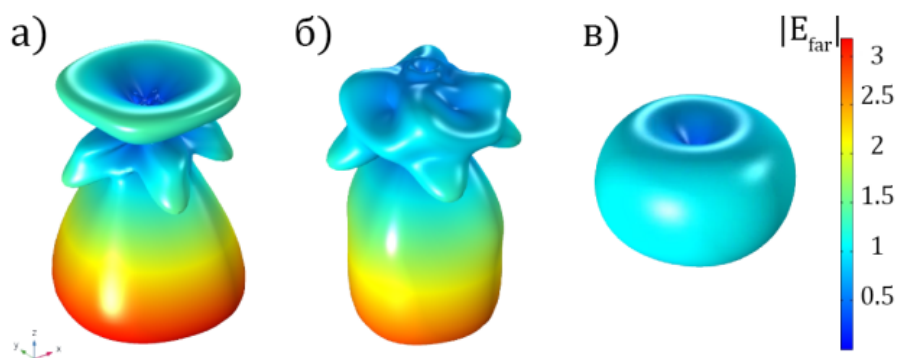


Рис. 83: Диаграммы направленности излучения КТ в квадрупле для трёх случаев. а) Резонансное возбуждение наночастиц, $\lambda_{PL}=900$ нм б) Нерезонансное возбуждение квадрупера, $\lambda_{PL}=800$ нм в) Возбуждение КТ, интегрированных в неструктурированную плёнку, $\lambda_{PL}=900$ нм.

5.3. Изменение направленности излучения диполя при пересечении с магнитной дипольной модой квадрупера

В работе численно подтверждается, что квадруперы играют роль наноантенн для излучения КТ. Для расчетов использовалась модель, описанная в параграфе 5.2 данной главы. В качестве накачки для олигомеров использовались диполи, помещенные в их объем. При этом были рассмотрены дипольные источники с постоянной амплитудой, и не учитывалось распределение поля внутри наночастиц, чтобы избежать смешивания эффектов. Были рассмотрены 3 типа возбуждения системы: резонансное возбуждение наночастиц квантовыми точками, $\lambda_{PL}=900$ нм (МДР находится в спектральной окрестности линий излучения КТ), нерезонансное возбуждение квадрупера, $\lambda_{PL}=800$ нм, (МДР испытывает красное смещение от спектра излучения КТ) и КТ в сплошной пленке GaAs на высоте 200 нм от границы с воздухом, $\lambda_{PL}=900$ нм.

Видно, что диаграмма направленности излучения диполя изменяется в всех трех случаях. Для КТ в подложке излучение симметричное, как и ожидается от точечного диполя. При помещении КТ в олигомер диаграмма меняется. В резонансном режиме возбуждения нанодиски начинают перераспределять излучение ФЛ в обратную сторону. Диаграмма направленности теряет симметричность и приобретает более сложную структуру. Однако, стоит отметить, что в резонансном и нерезонансном случаях при расположении КТ в олигомере на подложке из того же материала, большая часть мощности излучения КТ распространяется в сторону подложки, как более оптически плотной среды. Этого можно избежать, оптимизируя геометрию квадруперов, например, используя слой AlGaO в качестве прокладки между подложкой GaAs и наностолбиками. Данная геометрия будет рассмотрена в работе далее. Изолированные наностолбики также увеличивают направленность излучения

дипольного источника, но максимальная интенсивность в 1,5 раза меньше. Кроме того, локализация поля внутри наночастиц квадрумера больше за счет возбуждения коллективной моды из-за взаимодействия в ближнем поле наночастиц.

5.4. Обсуждение влияния азимутальной поляризации накачки на интенсивность ФЛ КТ и преимущества такой системы

В работе была показана эффективность использования МДР для усиления ФЛ КТ. Однако, как обсуждалось в предыдущей главе работы, МДР обладает достаточно низкой добротностью, что влияет на рассматриваемые эффекты. Также резонанс расширяется из-за того, что нет разницы показателя преломления между нанодисками и подложкой. Было показано, что в квадрумерах можно возбудить коллективный резонанс с более высокой добротностью, при изменении поляризации накачки на азимутальную. Подробно обсуждать КММ в данной главе я не буду, поскольку она была подробно рассмотрена для кремниевых нанодисков. Для GaAs качественно эффект сохраняется. КММ характеризуется сильной локализацией поля в нанодисках, что необходимо для дальнейшего увеличения интенсивности излучения КТ. В работе численно показано, что можно сочетать усиление поглощения КТ за счет локализации поля на длине волны накачки при возбуждении АП пучками и направленности ФЛ, которую обсуждали выше. Численно были подобраны такие геометрические параметры олигомера, чтобы МДР пересекался со спектром излучения КТ, а их возбуждение независимо регулировалось светом с АП. Методика расчетов использована из параграфа 5.2 настоящей главы.

5.5. Численное сравнение возбуждения азимутальной и линейной поляризациями

Для сравнения усиления ФЛ КТ для ЛП и АП возбуждения были построены карты ФЛ (Рис. 85). λ_{pump} характеризует изменяющуюся длину волны накачки, таким образом, чтобы поймать момент, когда возбуждение приблизится к МДР или КММ квадрумера. Твердотельные эффекты за счет квази-резонансного и резонансного возбуждения КТ не учитываются. λ_{PL} характеризует длину волны ФЛ КТ. Для каждой расчетной точки менялась длина волны диполей, имитирующих КТ. Цветом показана нормированная карта мощности ФЛ КТ $P_{norm}(\lambda_{pump}, \lambda_{PL})$. Для каждой точки излучение КТ в нанодисках делилось на излучение КТ в неструктурированной пленке GaAs на той же высоте от поверхности. Красные линии на рисунке - это спектральное положение МДР и КММ, соответственно. Черная область - это часть зависимости, не являющаяся физически осмысленной.

Для ЛП интенсивность ФЛ КТ в расчетах достигала 40-кратного усиления относительно подложки в спектральной окрестности МДР (Рис. 85(a)). Наибольшее

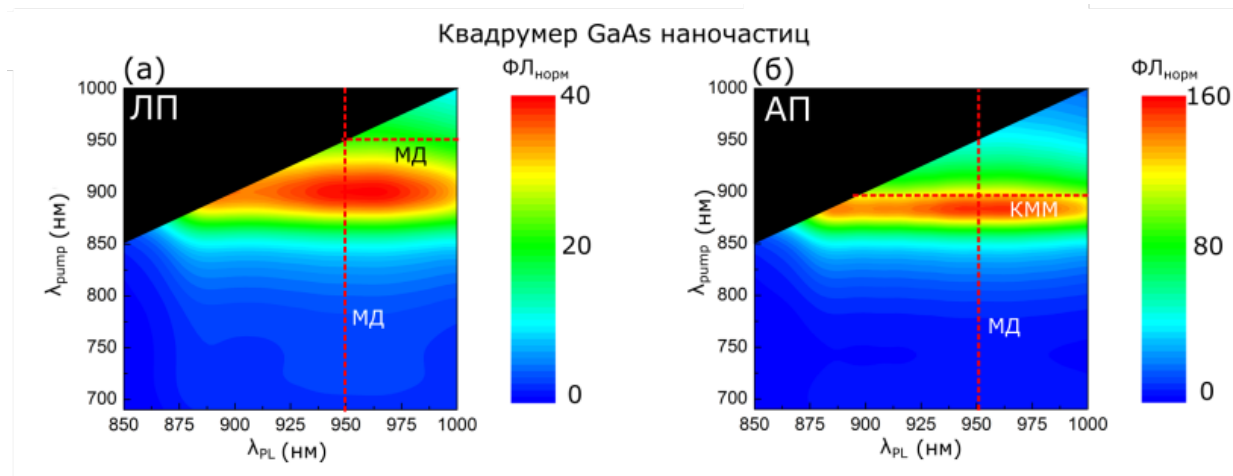


Рис. 84: Численные результаты μ -ФЛ КТ для различных поляризаций накачки. Численно полученное усиление ФЛ для линейной (а) и азимутальной (б) поляризаций излучения накачки для наночилиндров GaAs с КТ InAs на подложке GaAs.

значение интенсивности ФЛ наблюдалось, когда длина волны накачки становилась равной $\lambda_{PL} = 900$ нм, что спектрально смещено от МДР, так как локальные поля, ответственные за усиление сигнала, сдвинуты от максимума рассеяния (Рис. 82).

Из-за большей локализации поля при возбуждении коллективных магнитных мод АП пучками можно добиться дополнительного увеличения мощности ФЛ КТ (Рис. 85(б)). Кроме того, с использованием АП можно экспериментально использовать сразу два эффекта усиления ФЛ КТ: рост поглощения накачки и улучшение сбора сигнала за счет направленности излучения КТ. КММ сдвинута от МДР в коротковолновую область спектра. Это позволяет достать резонанс излучением накачки и потом усилить направленность излучения за счет МДР, возбужденного уже квантовыми точками в квадрумере. Мы численно подобрали такие геометрические параметры олигомера, чтобы МДР перекрывал со спектром излучения КТ, а их возбуждение независимо регулировалось светом АП. Когда длина волны накачки АП возбуждала КММ квадрумера ($\lambda_{групп} = 895$ нм), интенсивность ФЛ КТ достигала максимального значения на длине волны МДР, что было в 4 раза больше ЛП случая. Максимальное усиление мощности ФЛ КТ по сравнению с неструктурированной пленкой для АП достигло 160 раз.

6. Использование образцов с прослойкой из AlGaO

6.1. Обсуждение необходимости перехода на образцы с большей добротностью мод за счет диэлектрической прослойки.

Улучшить добротность моды и локализацию поля внутри резонаторов можно путем увеличения контраста диэлектрической проницаемости между материалом подлож-

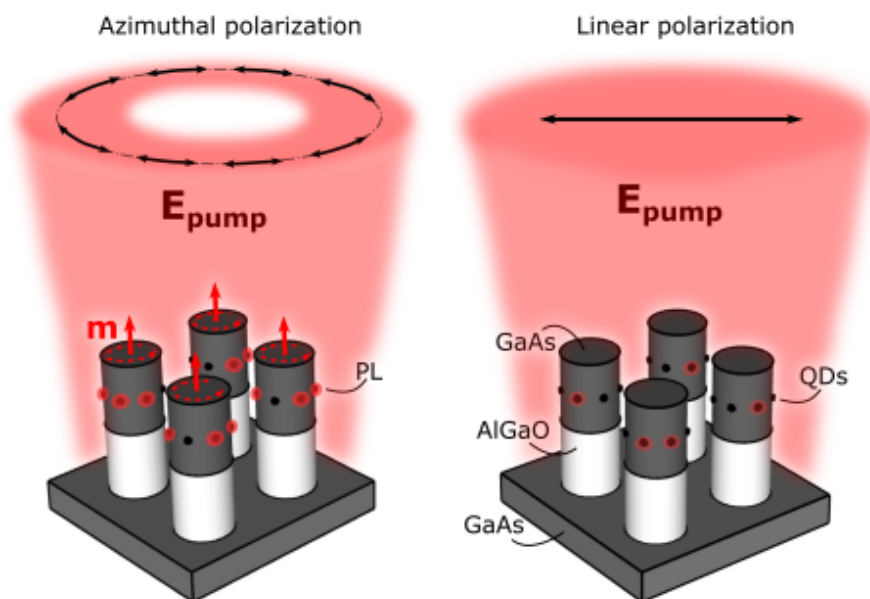


Рис. 85: Схематическое изображение эксперимента по усилению ФЛ InAs квантовых точек за счет возбуждения коллективной магнитной моды в GaAs олигомерах с помощью АП накачки и использования прослойки из AlGaO для увеличения оптического контраста.

ки и резонатора. В настоящей диссертации предлагается заменить экспериментальные образцы GaAs на подложке из GaAs такими же структурами с промежуточным слоем из AlGaO. Графическое изображение образцов и идея их использования с азимутальной поляризацией показана на Рис. 85. В данной геометрии планируется использовать как преимущество АП возбуждения, так и повышать добротность мод за счет контраста показателя преломления. Также наличие прослойки поможет уменьшить поглощение большей части излучения ФЛ КТ в GaAs подложке, что наблюдалось численно по диаграммам направленности излучения КТ, представленным электрическими диполями.

Нашими коллегами из института Иоффе в Санкт-Петербурге были изготовлены соответствующие образцы, которые мы планируем использовать в дальнейших экспериментах (Рис. 86). Технология изготовления повторяет описанную в данной главе. Добавляется этап окисления образцов для получения прослойки из AlGaO.

6.2. Численное сравнение возбуждения азимутальной и линейной поляризацией

Усиление ФЛ КТ, встроенных в гибридную наносистему AlGaO / GaAs, представлено на рисунках 87 для АП (а) и ЛП (б) излучения, соответственно. При ЛП накачке максимальная интенсивность ФЛ увеличивается вдвое по сравнению с образцом без прослойки и имеет сдвиг в коротковолновую область от МД резонанса, что объясняется более сложным спектральным распределением электромагнитного поля в

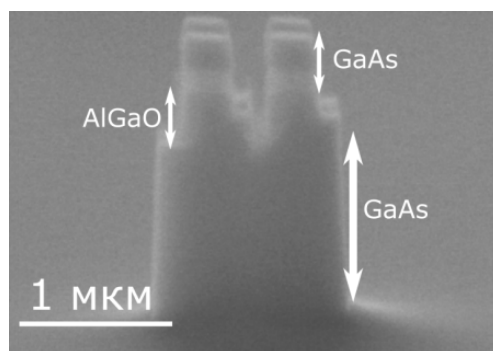


Рис. 86: Изображение экспериментального образца нанодисков из GaAs с буферным слоем из AlGaO на подложке из GaAs, полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа

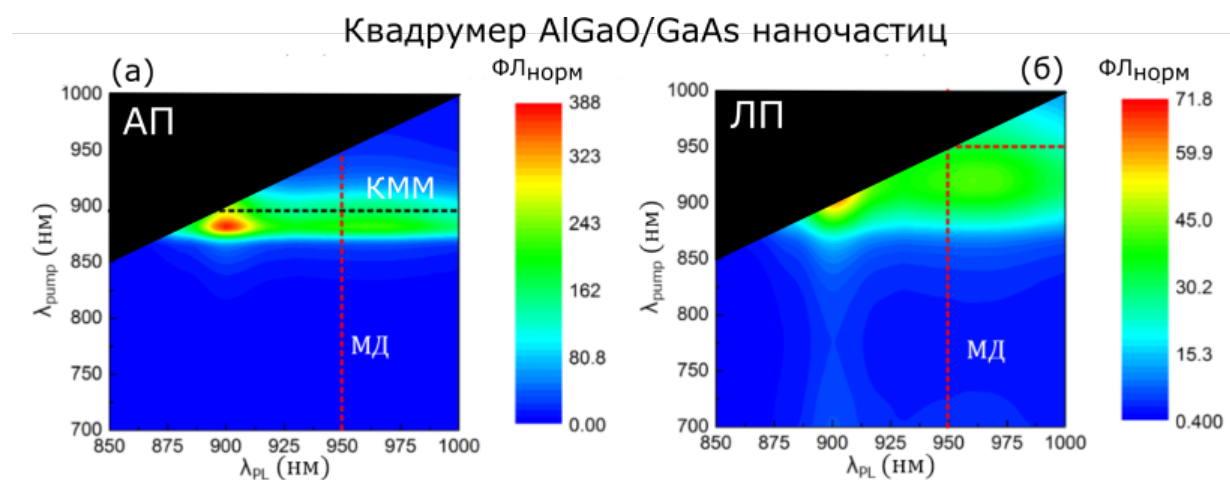


Рис. 87: Численно полученное усиление ФЛ для линейной (а) и азимутальной (б) поляризации излучения накачки для наноцилиндров GaAs с КТ InAs на подложке GaAs с прослойкой из AlGaO.

квадрумерах AlGaO / GaAs. Когда квантовые точки внутри гибридного нанокластера возбуждаются АП светом, аналогично случаю, достигается резонанс в интенсивности ФЛ для накачки на длине волны коллективной моды, смещенный от МД моды в область наибольшей локализации поля. Максимумы усиления поля имеют одинаковые спектральные положения для обеих поляризаций накачки, поскольку они зависят от геометрии структуры и характеристик излучения КТ, но не от поляризации излучения накачки. Согласно полученным численным результатам достигается усиление интенсивности ФЛ в 388 раз при помещении КТ, интегрированных в квадрумеры AlGaO / GaAs нанодисков и возбуждении АП светом по сравнению с неструктурированной пленкой и 5-кратное возрастание выходного сигнала ФЛ при изменении поляризации накачки с ЛП на АП.

7. Выводы

Итогами третьей оригинальной главы диссертации можно считать:

1. Экспериментально продемонстрировано пятикратное усиление ФЛ КТ из InAs при температуре 8 К в объеме квадрумера из GaAs на подложке из GaAs при возбуждении ЛП пучком на длине волны магнитного дипольного резонанса квадрумеров, по сравнению с нерезонансным образцом. Усиления сигнала ФЛ при нерезонансных условиях возбуждения не наблюдалось;
2. Экспериментально получено усиление в 5 раз детектируемой интенсивности ФЛ КТ за счет увеличения направленности излучения при взаимодействии с оптическими модами квадрумеров;
3. Численно показано усиление излучения КТ на два порядка по сравнению с неструктурированной подложкой при возбуждении кластера АП излучением из-за возбуждения в системе коллективной магнитной моды с высокой локализацией поля в объеме наночастиц;
4. Численно выявлено усиление ФЛ КТ из InAs в объеме гибридной структуры наночастиц из AlGaO / GaAs в режимах возбуждения ЛП и АП излучением.

Заклучение

Основные результаты диссертационной работы представлены ниже.

1. Экспериментально обнаружен и систематически исследован эффект модуляции интенсивности ТГ при азимутальном вращении линейно поляризованного возбуждающего излучения в плоскости олигомеров нанодисков из аморфного кремния. Показано, что для резонансного тримера интенсивность ТГ обладает вращательной симметрией шестого порядка и модуляция сигнала составляет 30%. Для квадрумера в спектральной области МД моды изменение интенсивности ТГ достигает 45% и имеют четыре равновеликих максимума при вращении поляризации на 360° . Для нерезонансных олигомеров и одиночных нанодисков модуляция интенсивности нелинейного отклика отсутствует.
2. Впервые экспериментально продемонстрировано усиление интенсивности ТГ от квадрумера наночастиц из аморфного кремния в 120 раз по сравнению с неструктурированной пленкой из того же материала при возбуждении векторными пучками. Показано, что эффект возникает из-за возбуждения коллективной магнитной дипольной моды нормально падающими азимутально поляризованными лазерными импульсами. Демонстрирована двукратная модуляция интенсивности ТГ при изменении длины волны накачки из-за переключения типа коллективных мод в олигомере. Кроме того, исследовано влияние типа поляризации на эффективность нелинейного преобразования. Таким образом, наблюдается рост интенсивности ТГ на два порядка при замене линейно поляризованной накачки на азимутально поляризованную.
3. Обнаружено усиление ФЛ КТ из InAs, помещенных в объем квадрумера из наночастиц арсенида галлия, в 5 раз при возбуждении системы линейно поляризованным излучением на длине волны МД резонанса типа Ми по сравнению с накачкой КТ вдали от оптических резонансов олигомера. Показано, что за счет увеличения направленности излучения КТ при взаимодействии с оптическими модами квадрумера детектируемая интенсивность излучения КТ растет в 5 раз. При замене поляризации возбуждающего излучения на азимутальную возникает дополнительное усиление ФЛ КТ на два порядка величины из-за возникновения в системе коллективной магнитной моды.

В заключение автор благодарит своего научного руководителя, Федянина А.А., за поиск и постановку важных научных проблем и поддержку на всех этапах выполнения работы. Автор также благодарит Шорохова А.С. за наставничество, помощь в проведении экспериментов и расчетов, вошедших в диссертацию, а также написании научных статей и выступлении на международных конференциях; Щербакова

М.Р. за помощь на первых этапах работы в лаборатории; Ягудина Д.Ф. за активное участие в проводимых экспериментах и расчетах; Рахлина М.В. за помощь в экспериментах с квантовыми точками в криостате и погружении в новую область; а также всему коллективу лаборатории нанооптики и метаматериалов за отзывчивость, плодотворные дискуссии и дружескую поддержку.

Список литературы

- [1] *Shalaev Vladimir M.* Optical negative-index metamaterials // *Nature photonics*. — 2007. — Vol. 1, no. 1. — Pp. 41–48.
- [2] *Pendry John B, Holden A J_, Robbins DJ, Stewart WJ.* Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena // *IEEE transactions on microwave theory and techniques*. — 1999. — Vol. 47, no. 11. — Pp. 2075–2084.
- [3] *Kuznetsov Arseniy I, Miroshnichenko Andrey E, Fu Yuan Hsing et al.* Magnetic light // *Scientific reports*. — 2012. — Vol. 2. — P. srep00492.
- [4] *Linden Stefan, Enkrich Christian, Wegener Martin et al.* Magnetic response of metamaterials at 100 terahertz // *Science*. — 2004. — Vol. 306, no. 5700. — Pp. 1351–1353.
- [5] *Enkrich C, Wegener M, Linden S et al.* Magnetic metamaterials at telecommunication and visible frequencies // *Physical review letters*. — 2005. — Vol. 95, no. 20. — P. 203901.
- [6] *Shalaev Vladimir M, Cai Wenshan, Chettiar Uday K et al.* Negative index of refraction in optical metamaterials // *Optics letters*. — 2005. — Vol. 30, no. 24. — Pp. 3356–3358.
- [7] *Hulst Hendrik Christoffel, van de Hulst Hendrik C.* Light scattering by small particles. — Courier Corporation, 1957.
- [8] *Lewin L.* The electrical constants of a material loaded with spherical particles // *Journal of the Institution of Electrical Engineers-Part III: Radio and Communication Engineering*. — 1947. — Vol. 94, no. 27. — Pp. 65–68.
- [9] *Zhao Qian, Zhou Ji, Zhang Fuli, Lippens Didier.* Mie resonance-based dielectric metamaterials // *Materials Today*. — 2009. — Vol. 12, no. 12. — Pp. 60–69.
- [10] *Zhao Qian, Kang Lei, Du B et al.* Experimental demonstration of isotropic negative permeability in a three-dimensional dielectric composite // *Physical review letters*. — 2008. — Vol. 101, no. 2. — P. 027402.
- [11] *Ginn James C, Brener Igal, Peters David W et al.* Realizing optical magnetism from dielectric metamaterials // *Physical review letters*. — 2012. — Vol. 108, no. 9. — P. 097402.

- [12] *Ginn James C, Ten Eyck Gregory A, Brener Igal et al.* Infrared cubic dielectric resonator metamaterial / James C Ginn, Gregory A Ten Eyck, Igal Brener et al. // *Photonic Metamaterials and Plasmonics* / Optical Society of America. — 2010. — P. MWD2.
- [13] *Evlyukhin Andrey B, Novikov Sergey M, Zywiets Urs et al.* Demonstration of magnetic dipole resonances of dielectric nanospheres in the visible region // *Nano letters*. — 2012. — Vol. 12, no. 7. — Pp. 3749–3755.
- [14] *Su K-H, Wei Q-H, Zhang X et al.* Interparticle coupling effects on plasmon resonances of nanogold particles // *Nano letters*. — 2003. — Vol. 3, no. 8. — Pp. 1087–1090.
- [15] *Shcherbakov Maxim R, Shorokhov Alexander S, Neshev Dragomir N et al.* Nonlinear interference and tailorable third-harmonic generation from dielectric oligomers // *ACS Photonics*. — 2015. — Vol. 2, no. 5. — Pp. 578–582.
- [16] *Shorokhov Alexander S, Melik-Gaykazyan Elizaveta V, Smirnova Daria A et al.* Multifold enhancement of third-harmonic generation in dielectric nanoparticles driven by magnetic Fano resonances // *Nano letters*. — 2016. — Vol. 16, no. 8. — Pp. 4857–4861.
- [17] *Shibanuma Toshihiko, Grinblat Gustavo, Albella Pablo, Maier Stefan A.* Efficient Third Harmonic Generation from Metal–Dielectric Hybrid Nanoantennas // *Nano Letters*. — 2017. — Vol. 17, no. 4. — Pp. 2647–2651.
- [18] *Bakker Reuben M, Permyakov Dmitry, Yu Ye Feng et al.* Magnetic and electric hotspots with silicon nanodimers // *Nano Letters*. — 2015. — Vol. 15, no. 3. — Pp. 2137–2142.
- [19] *Rahmani Mohsen, Shorokhov Alexander S, Hopkins Ben et al.* Nonlinear Symmetry Breaking in Symmetric Oligomers // *ACS Photonics*. — 2017. — Vol. 4, no. 3. — Pp. 454–461.
- [20] *Yang Yuanmu, Wang Wenyi, Boulesbaa Abdelaziz et al.* Nonlinear Fano-resonant dielectric metasurfaces // *Nano letters*. — 2015. — Vol. 15, no. 11. — Pp. 7388–7393.
- [21] *Shcherbakov Maxim R, Neshev Dragomir N, Hopkins Ben et al.* Enhanced third-harmonic generation in silicon nanoparticles driven by magnetic response // *Nano letters*. — 2014. — Vol. 14, no. 11. — Pp. 6488–6492.

- [22] *Staude Isabelle, Miroshnichenko Andrey E, Decker Manuel et al.* Tailoring directional scattering through magnetic and electric resonances in subwavelength silicon nanodisks // *ACS nano*. — 2013. — Vol. 7, no. 9. — Pp. 7824–7832.
- [23] *Melik-Gaykazyan Elizaveta V, Shcherbakov Maxim R, Shorokhov Alexander S et al.* Third-harmonic generation from Mie-type resonances of isolated all-dielectric nanoparticles // *Phil. Trans. R. Soc. A*. — 2017. — Vol. 375, no. 2090. — P. 20160281.
- [24] *Limonov Mikhail F, Rybin Mikhail V, Poddubny Alexander N, Kivshar Yuri S.* Fano resonances in photonics // *Nature Photonics*. — 2017. — Vol. 11, no. 9. — Pp. 543–554.
- [25] *Fan Pengyu, Yu Zongfu, Fan Shanhui, Brongersma Mark L.* Optical Fano resonance of an individual semiconductor nanostructure // *Nature materials*. — 2014. — Vol. 13, no. 5. — Pp. 471–475.
- [26] *Chong Katie E, Hopkins Ben, Staude Isabelle et al.* Observation of Fano resonances in all-dielectric nanoparticle oligomers // *Small*. — 2014. — Vol. 10, no. 10. — Pp. 1985–1990.
- [27] *Hopkins Ben, Filonov Dmitry S, Miroshnichenko Andrey E et al.* Interplay of magnetic responses in all-dielectric oligomers to realize magnetic Fano resonances // *ACS Photonics*. — 2015. — Vol. 2, no. 6. — Pp. 724–729.
- [28] *Hopkins Ben, Filonov Dmitry S, Glybovski Stanislav B, Miroshnichenko Andrey E.* Hybridization and the origin of Fano resonances in symmetric nanoparticle trimers // *Physical Review B*. — 2015. — Vol. 92, no. 4. — P. 045433.
- [29] *Stalder M, Schadt M.* Linearly polarized light with axial symmetry generated by liquid-crystal polarization converters // *Optics letters*. — 1996. — Vol. 21, no. 23. — Pp. 1948–1950.
- [30] *Collett Edward.* Polarized light. Fundamentals and applications // *Optical Engineering, New York: Dekker*. — 1992.
- [31] *Zhan Qiwen.* Cylindrical vector beams: from mathematical concepts to applications // *Advances in Optics and Photonics*. — 2009. — Vol. 1, no. 1. — Pp. 1–57.
- [32] *Dorn Ralf, Quabis S, Leuchs G.* Sharper focus for a radially polarized light beam // *Physical review letters*. — 2003. — Vol. 91, no. 23. — P. 233901.
- [33] *Yamaguchi Rumiko, Nose Toshiaki, Sato Susumu.* Liquid crystal polarizers with axially symmetrical properties // *Japanese journal of applied physics*. — 1989. — Vol. 28, no. 9R. — P. 1730.

- [34] *Ahmadivand Arash, Sinha Raju, Pala Nezh.* Magnetic fano resonances in all-dielectric nanocomplexes under cylindrical vector beams excitation // *Optics & Laser Technology*. — 2017. — Vol. 90. — Pp. 65–70.
- [35] *Banzer Peter, Peschel Ulf, Quabis Susanne, Leuchs Gerd.* On the experimental investigation of the electric and magnetic response of a single nano-structure // *Optics express*. — 2010. — Vol. 18, no. 10. — Pp. 10905–10923.
- [36] *Yanai Avner, Grajower Meir, Lerman Gilad M et al.* Near-and far-field properties of plasmonic oligomers under radially and azimuthally polarized light excitation // *Acs Nano*. — 2014. — Vol. 8, no. 5. — Pp. 4969–4974.
- [37] *Woźniak Paweł, Banzer Peter, Leuchs Gerd.* Selective switching of individual multipole resonances in single dielectric nanoparticles // *Laser & Photonics Reviews*. — 2015. — Vol. 9, no. 2. — Pp. 231–240.
- [38] *Xi Zheng, Wei Lei, Adam AJL, Urbach HP.* Broadband active tuning of unidirectional scattering from nanoantenna using combined radially and azimuthally polarized beams // *Optics letters*. — 2016. — Vol. 41, no. 1. — Pp. 33–36.
- [39] *Wei Lei, Bhattacharya Nandini, Urbach H Paul.* Adding a spin to Kerker’s condition: angular tuning of directional scattering with designed excitation // *Optics letters*. — 2017. — Vol. 42, no. 9. — Pp. 1776–1779.
- [40] *Neugebauer Martin, Woźniak Paweł, Bag Ankan et al.* Polarization-controlled directional scattering for nanoscopic position sensing // *Nature communications*. — 2016. — Vol. 7, no. 1. — P. 11286.
- [41] *Sancho-Parramon Jordi, Bosch Salvador.* Dark modes and Fano resonances in plasmonic clusters excited by cylindrical vector beams // *ACS nano*. — 2012. — Vol. 6, no. 9. — Pp. 8415–8423.
- [42] *Das Tanya, Schuller Jon A.* Dark modes and field enhancements in dielectric dimers illuminated by cylindrical vector beams // *Physical Review B*. — 2017. — Vol. 95, no. 20. — P. 201111.
- [43] *Bao Yanjun, Zhu Xing, Fang Zheyu.* Plasmonic toroidal dipolar response under radially polarized excitation // *Scientific Reports*. — 2015. — Vol. 5, no. 1. — P. 11793.
- [44] *Turquet Léo, Kakko Joonas-Pekko, Zang Xiaorun et al.* Tailorable second-harmonic generation from an individual nanowire using spatially phase-shaped beams // *Laser & Photonics Reviews*. — 2017. — Vol. 11, no. 1. — P. 1600175.

- [45] *Melik-Gaykazyan Elizaveta V, Kruk Sergey S, Camacho-Morales Rocio et al.* Selective third-harmonic generation by structured light in Mie-resonant nanoparticles // *ACS Photonics*. — 2017.
- [46] *Koshelev Kirill, Kruk Sergey, Melik-Gaykazyan Elizaveta et al.* Subwavelength dielectric resonators for nonlinear nanophotonics // *Science*. — 2020. — Vol. 367, no. 6475. — Pp. 288–292.
- [47] *Bautista Godofredo, Dreser Christoph, Zang Xiaorun et al.* Collective effects in second-harmonic generation from plasmonic oligomers // *Nano Letters*. — 2018. — Vol. 18, no. 4. — Pp. 2571–2580.
- [48] *Shang Wuyun, Xiao Fajun, Han Lei et al.* Enhanced second harmonic generation from a plasmonic Fano structure subjected to an azimuthally polarized light beam // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 2018. — Vol. 30, no. 6. — P. 064004.
- [49] *Manna Uttam, Sugimoto Hiroshi, Eggena Daniel et al.* Selective excitation and enhancement of multipolar resonances in dielectric nanospheres using cylindrical vector beams // *Journal of Applied Physics*. — 2020. — Vol. 127, no. 3. — P. 033101.
- [50] *O'Brien Jeremy L.* Optical quantum computing // *Science*. — 2007. — Vol. 318, no. 5856. — Pp. 1567–1570.
- [51] *Eisaman Matthew D, Fan Jingyun, Migdall Alan, Polyakov Sergey V.* Invited review article: Single-photon sources and detectors // *Review of scientific instruments*. — 2011. — Vol. 82, no. 7. — P. 071101.
- [52] *Wang Hui, He Yu, Li Yu-Huai et al.* High-efficiency multiphoton boson sampling // *Nature Photonics*. — 2017. — Vol. 11, no. 6. — Pp. 361–365.
- [53] *Hijlkema Markus, Weber Bernhard, Specht Holger P et al.* A single-photon server with just one atom // *Nature Physics*. — 2007. — Vol. 3, no. 4. — Pp. 253–255.
- [54] *Keller Matthias, Lange Birgit, Hayasaka Kazuhiro et al.* Continuous generation of single photons with controlled waveform in an ion-trap cavity system // *Nature*. — 2004. — Vol. 431, no. 7012. — Pp. 1075–1078.
- [55] *Lounis Brahim, Moerner William E.* Single photons on demand from a single molecule at room temperature // *Nature*. — 2000. — Vol. 407, no. 6803. — Pp. 491–493.
- [56] *Kurtsiefer Christian, Mayer Sonja, Zarda Patrick, Weinfurter Harald.* Stable solid-state source of single photons // *Physical review letters*. — 2000. — Vol. 85, no. 2. — P. 290.

- [57] *Michler Peter*. Quantum dots for quantum information technologies. — Springer, 2017. — Vol. 237.
- [58] *Shields Andrew J*. Semiconductor quantum light sources // *Nanoscience And Technology: A Collection of Reviews from Nature Journals*. — World Scientific, 2010. — Pp. 221–229.
- [59] *Santori Charles, Fattal David, Yamamoto Yoshihisa*. Single-photon devices and applications. — John Wiley & Sons, 2010.
- [60] *Rakhlin MV, Belyaev KG, Klimko GV et al*. InAs/AlGaAs quantum dots for single-photon emission in a red spectral range // *Scientific Reports*. — 2018. — Vol. 8, no. 1. — P. 5299.
- [61] *Rakhlin MV, Belyaev KG, Klimko Grigorii Viktorovich et al*. Highly Efficient Semiconductor Emitter of Single Photons in the Red Spectral Range // *JETP Letters*. — 2019. — Vol. 109. — Pp. 145–149.
- [62] *Hepp Stefan, Jetter Michael, Portalupi Simone Luca, Michler Peter*. Semiconductor quantum dots for integrated quantum photonics // *Advanced Quantum Technologies*. — 2019. — Vol. 2, no. 9. — P. 1900020.
- [63] *Yang Yixing, Zheng Ying, Cao Weiran et al*. High-efficiency light-emitting devices based on quantum dots with tailored nanostructures // *Nature Photonics*. — 2015. — Vol. 9, no. 4. — Pp. 259–266.
- [64] *Ding Xing, He Yu, Duan Z-C et al*. On-demand single photons with high extraction efficiency and near-unity indistinguishability from a resonantly driven quantum dot in a micropillar // *Physical review letters*. — 2016. — Vol. 116, no. 2. — P. 020401.
- [65] *Liu Shunfa, Wei Yuming, Su Rongling et al*. A deterministic quantum dot micropillar single photon source with > 65% extraction efficiency based on fluorescence imaging method // *Scientific Reports*. — 2017. — Vol. 7, no. 1. — P. 13986.
- [66] *Ghulinyan Mher, Navarro-Urrios Daniel, Pitanti Alessandro et al*. Whispering-gallery modes and light emission from a Si-nanocrystal-based single microdisk resonator // *Optics express*. — 2008. — Vol. 16, no. 17. — Pp. 13218–13224.
- [67] *Purcell EM*. Confined Electrons and Photons. — 1995.
- [68] *Ollivier H, Priya P, Harouri A et al*. Three-dimensional electrical control of the excitonic fine structure for a quantum dot in a cavity // *Physical Review Letters*. — 2022. — Vol. 129, no. 5. — P. 057401.

- [69] *Tomm Natasha, Javadi Alisa, Antoniadis Nadia Olympia et al.* A bright and fast source of coherent single photons // *Nature Nanotechnology*. — 2021. — Vol. 16, no. 4. — Pp. 399–403.
- [70] *Bozhevolnyi Sergey I, Khurgin Jacob B.* Fundamental limitations in spontaneous emission rate of single-photon sources // *Optica*. — 2016. — Vol. 3, no. 12. — Pp. 1418–1421.
- [71] *Bogdanov Simeon I, Boltasseva Alexandra, Shalaev Vladimir M.* Overcoming quantum decoherence with plasmonics // *Science*. — 2019. — Vol. 364, no. 6440. — Pp. 532–533.
- [72] *Hoang Thang B, Akselrod Gleb M, Mikkelsen Maiken H.* Ultrafast room-temperature single photon emission from quantum dots coupled to plasmonic nanocavities // *Nano letters*. — 2016. — Vol. 16, no. 1. — Pp. 270–275.
- [73] *Wein Stephen, Lauk Nikolai, Ghobadi Roohollah, Simon Christoph.* Feasibility of efficient room-temperature solid-state sources of indistinguishable single photons using ultrasmall mode volume cavities // *Physical Review B*. — 2018. — Vol. 97, no. 20. — P. 205418.
- [74] *Tsakmakidis Kosmas L, Boyd Robert W, Yablonovitch Eli, Zhang Xiang.* Large spontaneous-emission enhancements in metallic nanostructures: towards LEDs faster than lasers // *Optics express*. — 2016. — Vol. 24, no. 16. — Pp. 17916–17927.
- [75] *Russell Kasey J, Liu Tsung-Li, Cui Shanying, Hu Evelyn L.* Large spontaneous emission enhancement in plasmonic nanocavities // *Nature Photonics*. — 2012. — Vol. 6, no. 7. — Pp. 459–462.
- [76] *Wang Feng, Shen Y Ron.* General properties of local plasmons in metal nanostructures // *Physical review letters*. — 2006. — Vol. 97, no. 20. — P. 206806.
- [77] *Hepp Stefan, Bauer Stephanie, Hornung Florian et al.* Bragg grating cavities embedded into nano-photonic waveguides for Purcell enhanced quantum dot emission // *Optics express*. — 2018. — Vol. 26, no. 23. — Pp. 30614–30622.
- [78] *Liu Feng, Brash Alistair J, O'Hara John et al.* High Purcell factor generation of indistinguishable on-chip single photons // *Nature nanotechnology*. — 2018. — Vol. 13, no. 9. — Pp. 835–840.
- [79] *Makhonin Maxim N, Dixon James E, Coles Rikki J et al.* Waveguide coupled resonance fluorescence from on-chip quantum emitter // *Nano Letters*. — 2014. — Vol. 14, no. 12. — Pp. 6997–7002.

- [80] *Bermúdez-Ureña Esteban, Gonzalez-Ballester Carlos, Geiselmann Michael et al.* Coupling of individual quantum emitters to channel plasmons // *Nature communications*. — 2015. — Vol. 6, no. 1. — P. 7883.
- [81] *Tame Mark S, McEnery KR, Özdemir ŞK et al.* Quantum plasmonics // *Nature Physics*. — 2013. — Vol. 9, no. 6. — Pp. 329–340.
- [82] *Novotny Lukas, Van Hulst Niek.* Antennas for light // *Nature photonics*. — 2011. — Vol. 5, no. 2. — Pp. 83–90.
- [83] *Bouchet Dorian, Mivelle Mathieu, Proust Julien et al.* Enhancement and inhibition of spontaneous photon emission by resonant silicon nanoantennas // *Physical Review Applied*. — 2016. — Vol. 6, no. 6. — P. 064016.
- [84] *Rutckaia Viktoriia, Heyroth Frank, Novikov Alexey et al.* Quantum dot emission driven by Mie resonances in silicon nanostructures // *Nano letters*. — 2017. — Vol. 17, no. 11. — Pp. 6886–6892.
- [85] *Capretti Antonio, Lesage Arnon, Gregorkiewicz Tom.* Integrating quantum dots and dielectric Mie resonators: a hierarchical metamaterial inheriting the best of both // *ACS photonics*. — 2017. — Vol. 4, no. 9. — Pp. 2187–2196.
- [86] *Boyd Robert W.* Nonlinear Optics. — Elsevier, 2003.
- [87] *Shen Yuen-Ron.* The Principles of Nonlinear Optics. — New York, Wiley, 1984.
- [88] *Kroychuk Maria K, Shorokhov Alexander S, Yagudin Damir F et al.* Enhanced nonlinear light generation in oligomers of silicon nanoparticles under vector beam illumination // *Nano letters*. — 2020. — Vol. 20, no. 5. — Pp. 3471–3477.
- [89] *Youngworth Kathleen S, Brown Thomas G.* Focusing of high numerical aperture cylindrical-vector beams // *Optics Express*. — 2000. — Vol. 7, no. 2. — Pp. 77–87.
- [90] *Grahn Patrick, Shevchenko Andriy, Kaivola Matti.* Electromagnetic multipole theory for optical nanomaterials // *New Journal of Physics*. — 2012. — Vol. 14, no. 9. — P. 093033.
- [91] *Smirnova Daria, Kivshar Yuri S.* Multipolar nonlinear nanophotonics // *Optica*. — 2016. — Vol. 3, no. 11. — Pp. 1241–1255.