КОНФЕРЕНЦИИ И СИМПОЗИУМЫ

Нанооптические элементы для поверхностных плазмонных волн

(к 50-летию Института спектроскопии РАН)

П.Н. Мелентьев, В.И. Балыкин

Представлены основные результаты, полученные в течение нескольких последних лет сотрудниками лаборатории лазерной спектроскопии Института спектроскопии РАН в области создания и исследования различных двумерных оптических элементов для поверхностных плазмонных волн: оптической среды для плазмонных волн, плазмонного интерферометра, параболического плазмонного зеркала для фокусировки плазмонных волн, диэлектрически нагруженного плазмон-поляритонного волновода, плазмонного нанолазера на основе плазмонного кристалла и плазмонного сенсора флуоресцентных биомаркеров. Показано, что использование современных подходов к созданию элементов плазмонной оптики, основанных на применении монокристаллических металлических поверхностей сверхвысокого качества, позволяет приблизиться к теоретически предсказанным характеристикам этих элементов.

Ключевые слова: поверхностные плазмон-поляритоны, плазмонная оптика, элементы плазмонной оптики

PACS numbers: 68.65.-k, 73.20.Mf, 78.67.-n

DOI: https://doi.org/10.3367/UFNr.2018.06.038415

Содержание

- 1. Введение (282).
- 2. Оптическая среда для плазмонных волн (283).
- 3. Плазмонный интерферометр (284).
- Фокусировка поверхностных плазмонных волн в дифракционноограниченное пятно (285).
- 5. Плазмонные волноводы (286).
- 6. Плазмонный нанолазер на основе плазмонного кристалла (287).
- Плазмонный сенсор флуоресцентных биомаркеров на основе плазмонного нанолазера (289).
- 8. Заключение (290).

Список литературы (290).

1. Введение

Одним из интенсивно развивающихся направлений фотоники является оптика поверхностных плазмонных волн (SPP), возбуждаемых на границе раздела металл/ диэлектрик [1-3]. Развитие оптики поверхностных плазмонных волн связано с созданием основных элементов, позволяющих управлять свойствами плазмонных волн, по аналогии с другими типами оптик: линзами, зеркалами, детекторами, интерферометрами, волноводами,

П.Н. Мелентьев, В.И. Балыкин. Институт спектроскопии РАН, ул. Физическая 5, 108840 Троицк, Москва, Российская Федерация; Национальный исследовательский университет "Высшая школа экономики",

ул. Мясницкая 20, 101000 Москва, Российская Федерация E-mail: melentiev@isan.troitsk.ru, balykin@isan.troitsk.ru

Статья поступила 13 августа 2018 г.

лазерами [4-8]. Одним из преимуществ плазмонной оптики является её двумерность: плазмонные волны распространяются на плоской поверхности, при этом поперечная локализация плазмонной волны имеет, как правило, субволновой размер. Эта особенность уже нашла важные применения для создания сверхтонких фотонных элементов, основанных на использовании SPP, таких как спектральные фильтры, линзы [7-9]. Другое важное применение оптики плазмонных волн — создание высокоинтегрированных фотонных схем [10-12]. Задача создания высокоинтегрированных фотонных схем с использованием поверхностных плазмонных волн заключается в разработке различных инструментов для их генерации, контроля и обработки. Использование плазмонных волн является ключевым в этой задаче, так как позволяет реализовать нанометровую пространственную локализацию полей одновременно с широкополосной передачей сигнала [13].

Отметим, что создание элементов плазмонной оптики связано с использованием сложного и высокотехнологичного оборудования: источников для молекулярнолучевой эпитаксии, установок ионного травления поверхности, остросфокусированных ионных пучков, установок электронной литографии, атомно-силовых микроскопов, электронных микроскопов высокого разрешения и многих других. Все работы с образцами должны проводиться в чистых (беспылевых) помещениях высокого класса, поскольку наличие даже единичных пылинок на поверхности распространения SPP может являться источником больших потерь.

Другим важным фактором в создании элементов плазмонной оптики является необходимость контроля их геометрии с нанометровой точностью на расстояниях порядка длины распространения SPP (около 100 мкм в видимом спектральном диапазоне). Такие требования связаны с большими потерями SPP, вносимыми неоднородностями на металлической поверхности, имеющими размеры начиная с единиц нанометров [14, 15]. Указанное ограничение требует использования для построения элементов плазмонной оптики атомарно-гладких поверхностей монокристаллических плёнок [16, 17].

В данной статье представлены основные научные результаты, полученные в течение нескольких последних лет сотрудниками лаборатории лазерной спектроскопии Института спектроскопии РАН (ИСАН) в области создания и исследования различных двумерных оптических элементов для поверхностных плазмонных волн, и их характеризация с использованием методов ближнего и дальнего поля. Как показали проведённые исследования, современные подходы к созданию элементов плазмонной оптики, основанные на использовании монокристаллических металлических поверхностей сверхвысокого качества, позволяют приблизиться к теоретически предсказываемым характеристикам этих элементов. Это, в свою очередь, стимулирует дальнейшее развитие плазмонной оптики.

2. Оптическая среда для плазмонных волн

Планарная плазмонная оптика основана на использовании плазмонных волн, распространяющихся на поверхности металлических плёнок. Поверхность металлической плёнки служит оптической средой для поверхностных плазмонных волн, и её качество является решающим для создания высокоинтегрированных фотонных схем с использованием SPP. При этом весьма важным является выбор материала при создании металлической поверхности высокого качества. В настоящее время серебро и золото служат основными материалами экспериментальной наноплазмоники в силу их минимальных омических потерь среди всех известных природных материалов [15].

Создание металлических наноплёнок сверхвысокого качества сопряжено со значительными сложностями. Методы получения плёнок требуют: 1) сверхвысокого вакуума, 2) специальных подложек (монокристаллических, с периодом кристаллической решётки, близким к периоду кристаллической решётки материала создаваемой наноплёнки), 3) предварительной подготовки поверхности подложек (химическая очистка, температурная обработка в условиях высокого вакуума), 4) определённой скорости роста наноплёнки, 5) создания условий релаксации наноплёнки в высоком вакууме. При невыполнении этих условий оптические свойства наноплёнок сильно отличаются от расчётных значений для монокристаллических металлических поверхностей сверхвысокого качества [18].

Развитие специальной технологии роста наноплёнок серебра [18–21] позволило создавать наноплёнки с характеристиками, близкими к предсказываемым теоретическим значениям. Методика состоит в эпитаксиальном росте плёнок серебра [19] на поверхности монокристаллического кремния с ориентацией [111], что позволяет создавать монокристаллические серебряные наноплёнки высокого качества.

Качество создаваемых плёнок можно охарактеризовать по измерению длины распространения плазмонной волны на таких объектах. Измерение длины затухания плазмонной волны — достаточно сложная задача, состоящая из двух частей: эффективного возбуждения плазмонной волны в наноплёнке и измерения длины распространения плазмонной волны. Одним из наиболее доступных и обладающих убедительной наглядностью и информативностью является метод измерения длины затухания плазмонной волны на основе её регистрации при возбуждении лазерным излучением с помощью матрицы нанощелей, изготовленных в плёнке металла, и последующей регистрации плазмонной волны с помощью наноканавок или наноямок, расположенных на определённом расстоянии от матрицы щелей [22]. В этом методе взаимодействие лазерного излучения с матрицей нанощелей приводит к возбуждению плазмонной волны. Рассеяние плазмонной волны на специально созданных наноканавках (детекторы SPP) и регистрация этого рассеяния в дальнем поле позволяют измерить длину затухания SPP. Этот метод, по сути, является оптической микроскопией плазмонных волн и позволяет также визуализировать распространение плазмонной волны.

На рисунке 1 представлены результаты измерения длины распространения плазмонной волны на поверхности плёнки серебра. Для возбуждения SPP использовалось излучение непрерывного полупроводникового лазера с длиной волны 780 нм. Излучение фокусировалось на матрицу нанощелей. Период матрицы был выбран таким образом, чтобы на поверхности серебряной плёнки возбуждалась плазмонная волна при ортогональном падении лазерного излучения. На пути распространения плазмонной волны была создана серия параллельных наноканавок. Плазмонная волна взаимодействует с наноканавками и рассеивается на них. Рассеянное на наноканавке излучение пропорционально интенсивности плаз-



Рис. 1. (а) Изображение серебряной плёнки с наноструктурами, (б) изображение серебряной плёнки при возбуждении плазмонной волны лазерным излучением, (в) срез изображения рис. 16 вдоль распространения плазмонной волны, штриховая кривая — аппроксимация экспонентой с характерной длиной затухания 93 мкм [18].

монной волны в месте расположения наноканавки, что позволяет измерить изменение интенсивности плазмонной волны при её распространении.

На рисунке 1а изображена серебряная плёнка с созданными на ней наноструктурами: матрицей с нанощелями для возбуждения плазмонной волны (видна как прямоугольник) и наноканавками, расположенными параллельно нанощелям. Рассеяние плазмонной волны на наноканавках позволяет визуализировать волну, а также измерить длину её затухания. На рисунке 16 показана поверхность серебряной плёнки при возбуждении плазмонной волны лазерным излучением. Изменение сигнала рассеяния хорошо аппроксимируется экспоненциальной кривой с характерным параметром 93 мкм (расстояние, на котором происходит уменьшение сигнала в е раз, рис. 1в). Длина затухания волны определяется тремя факторами: затуханием плазмонной волны из-за потерь в плёнке серебра, потерями на наноканавках и дифракционной расходимостью SPP. Из проведённых экспериментов можно вычислить длину затухания плазмонной волны, определяемую только потерями в плёнке серебра, которая оказалась равной 194 ± 23 мкм. Найденная длина затухания соответствует расчётным данным [23]. Проведённые измерения убедительно показывают чрезвычайно высокое качество создаваемых данным методом [18-21] плёнок серебра. Это открывает новые возможности в развитии наноплазмоники, основанной на применении плёнок серебра, обладающих малыми потерями.

3. Плазмонный интерферометр

Интерферометрические измерения являются неотъемлемой составляющей всех направлений оптики (фотонной, атомной и др.), так как позволяют определять основные параметры волн: длину волны, фазовую скорость, когерентность. Результаты этих измерений можно использовать для характеризации свойств среды, в которой происходит распространение волн. Благодаря развитию технологии создания монокристаллических поверхностей металлов в плазмонике стало возможным проводить интерферометрические измерения на масштабах, существенно превышающих длины волн плазмонных колебаний [24, 25]. В настоящем разделе расмотрены интерферометрические измерения плазмонных волн лазерных импульсов ультракороткой длительности, менее 10 фс.

Длительность импульса SPP равна длительности возбуждающего лазерного импульса при условии быстрого отклика участвующей в возбуждении SPP электронной подсистемы. Как известно, характерные времена релаксации свободных электронов в металле могут находиться в субфемтосекундном диапазоне [26], что позволяет возбуждать плазмонные импульсы фемтосекундной длительности. Для этого необходимо, чтобы возбуждение SPP производилось с помощью элемента наноплазмоники, характеризуемого минимальным временным откликом. Такими элементами являются нанощели и наноканавки, сформированные в плёнке металла. Как показали измерения, в этих элементах отсутствуют локализованные плазмонные резонансы, поэтому временной отклик определяется временем релаксации свободных электронов в металле [3, 8].

Как известно, минимальная достижимая длительность лазерного импульса примерно равна двум перио**Рис. 2.** Схема плазмонного интерферометра: (а) вид сверху, (б) схема возбуждения [25].

дам осцилляции световой волны. В видимом спектральном диапазоне двухпериодное лазерное импульсное излучение имеет широкий спектр, который простирается от 650 нм до 1 мкм, и длительность около 6 фс. Излучение с такими параметрами использовалось для возбуждения плазмонных волн и их интерферометрии на поверхности монокристаллической плёнки золота [111]. Отметим технические сложности при использовании лазерного излучения ультракороткой длительности в наноплазмонике, такие как необходимость компенсации дисперсии групповых скоростей спектральных компонент лазерного импульса, использование рефрактивной оптики и др. [27, 28].

На рисунке 2 приведено схематическое изображение плазмонного интерферометра, образованного в плёнке металла сквозной щелью и расположенной под некоторым углом к этой щели канавкой. Принцип работы такого интерферометра следующий [24, 25]. Интерферометр освещается лазерным излучением с волновым вектором, перпендикулярным плоскости плёнки. Рассеяние лазерного света на канавке приводит к возбуждению поверхностной плазмонной волны с волновым вектором k_{sp} , перпендикулярным канавке. Плазмонная волна, распространяющаяся от канавки по направлению к щели, испытывает частичное рассеяние на щели, создавая в области нанощели ближнее поле с амплитудой E_2 .

Из-за наличия угла α между щелью и канавкой расстояние, пройденное плазмонной волной от канавки к щели вдоль оси x, зависит линейно от координаты x: $d(x) = d_0 + x \sin \alpha$, где d_0 — минимальное расстояние между щелью и канавкой. Это приводит также к зависимости амплитуды поля и его фазы от координаты x вида: $E_2(x) \sim \exp(-k_{sp}''d(x)), \Phi(x) = k_{sp}'d(x) + \phi_0$. Наличие угла между щелью и канавкой приводит к интерференции ближних полей от лазерного излучения в щели и плазмонной волны, распространяющейся от канавки. Зависимость интенсивности интерференционной картины от координаты имеет следующий вид:

$$I(x) = E_1^2(x) + E_2^2(x) + 2E_1(x) E_2(x) \cos(\Phi(x)), \quad (1)$$

здесь $E_1(x)$ — амплитуда ближнего поля лазерного излучения в щели. Интерференционный член в выражении (1) имеет пространственный период, определяемый выражением

$$T_x = \frac{2\pi}{k_{\rm sp}' \sin \alpha} \,. \tag{2}$$





Рис. 3. (а) Изображение наклонного плазмонного интерферометра в электронном микроскопе, (б) интерференционная картина при освещении интерферометра лазерным лучом [25].

На рисунке За дано изображение плазмонного интерферометра [25] в электронном микроскопе, а на рис. Зб представлена интерференционная картина при освещении интерферометра лазерным излучением непрерывной длительности. Как видно из рис. 36, в оптическом изображении присутствует довольно большое число интерференционных максимумов и минимумов. При использовании непрерывного лазерного излучения это число определяется длиной распространения плазмонной волны на поверхности плёнки золота и волновым вектором SPP [25]. При длительности возбуждающего лазерного импульса менее 50 фс число интерференционных минимумов и максимумов становится пропорциональным длительности импульса. Это позволяет использовать плазмонный интерферометр для определения длительности лазерных ультракоротких импульсов. Была также продемонстрирована возможность измерения длительности предельно коротких лазерных импульсов, состоящих всего из двух периодов световой волны (длительность импульса 6 фс) [25].

Измерение длительности лазерного импульса с помощью плазмонной интерферометрии является также способом контроля параметров лазерного излучения в экспериментах по наноплазмонике. В таких экспериментах важно измерять длительность импульса непосредственно в плоскости исследуемого образца (как правило, в фокальной плоскости микроскопа), что выгодно отличает такой метод от других известных способов измерения длительности импульса лазерного излучения [29–31].

4. Фокусировка поверхностных плазмонных волн в дифракционно-ограниченное пятно

Фокусировка волн является одной из наиболее важных задач любого типа оптики (фотонной, атомной, оптики заряженных частиц), поскольку она позволяет связать плоскую распространяющуюся волну с пространственно локализованной волной. В плазмонной оптике реализо-



Рис. 4. Схема фокусировки SPP с помощью плазмонного зеркала. (а) Изображение экспериментального образца в электронном микроскопе, (б) изображение экспериментального образца в оптическом микроскопе при возбуждении лазерным излучением с длиной волны 800 нм [32].

вана фокусировка волн на основе использования структурирования поверхности металлической плёнки посредством изогнутого гребня, изогнутой щели, изогнутой цепочки наночастиц, путём создания диэлектрической линзы на поверхности металла — в прямой аналогии с фотонной оптикой или с использованием нескольких фокусирующих элементов [32-36]. Важным оптическим элементом для фокусировки волны является параболическое зеркало. Параболические зеркала широко применяются в фотонной оптике и отличаются от других фокусирующих элементов возможностью фокусировки волны в дифракционно-ограниченное пятно, а также отсутствием хроматической и сферической аберрации. В наноплазмонике параболические зеркала до настоящего времени не были реализованы. Нами продемонстрирован эффективный контроль поверхностей плазмонной волны с использованием параболического зеркала. Такое зеркало позволяет: отражать SPP с эффективностью до 30 %, фокусировать SPP в дифракционно-ограниченное пятно с размером порядка длины волны λ_{SPP} и сканировать в пространстве область фокусировки SPP [32].

Схема фокусировки плазмонной волны с помощью параболического плазмонного зеркала представлена на рис. 4a, где показано изображение экспериментального образца в электронном микроскопе. Образец состоит из серебряной плёнки (толщиной 200 нм), на поверхности которой созданы следующие элементы: матрица наноотверстий для возбуждения плазмонной волны; наноканавка-зеркало (шириной 100 нм и глубиной 120 нм), имеющая форму параболы (с фокусным расстоянием 20 мкм); пять наноканавок-детекторов, расположенных в области предполагаемой фокусировки плазмонной волны (со следующими параметрами: ширина 60 нм, глубина 25 нм); нанокаверны (диаметром 60 нм и глубиной 25 нм) для идентификации распространения плазмонной волны на поверхности наноплёнки.

На рисунке 46 представлены результаты измерений фокусировки плазмонной волны с помощью параболического зеркала. Изображение в оптическом микроскопе получено при освещении образца лазерным излучением с длиной волны 800 нм и поляризацией, направленной вдоль строк матрицы с наноотверстиями. Диаметр лазерного пятна соответствует размеру матрицы с наноотверстиями и равен 20 мкм. На рисунке видно яркое пятно, соответствующее пропусканию света через матрицу наноотверстий. Левее этого пятна видны расположенные в матричном порядке точки одинакового размера. Эти точки соответствуют распространяющейся на поверхности плёнки серебра плазмонной волне, рассеянной на наноямках, и показывают распространение плазмонной волны на поверхности плёнки. На рисунке также виден сигнал рассеяния плазмонной волны на наноканавке-зеркале. В месте расположения наноканавок-детекторов видны яркие пятна, соответствующие рассеянию сфокусированной плазмонной волны. Яркие пятна позволяют определить размер и положение перетяжки плазмонной волны в фокусе.

Фокусировка SPP была нами продемонстрирована с несколькими параболическими зеркалами, имеющими разные значения фокусных расстояний: 20, 10 и 5 мкм. При использовании плазмонного зеркала с фокусным расстоянием 20 мкм удаётся сфокусировать плазмонную волну в пятно размером 1,2 мкм. Уменьшение фокусного расстояния плазмонного зеркала до 10 мкм приводит к уменьшению диаметра пятна в фокусе до значения, равного 400 нм. Это значение в два раза меньше длины плазмонной волны, т.е. при использовании плазмонного зеркала с фокусным расстоянием 10 мкм удаётся сфокусировать плазмонную волну в пятно минимального размера, определяемого дифракционным ограничением. Дальнейшее уменьшение фокусного расстояния параболического зеркала приводит к ухудшению параметров фокусировки, что связано с проявлением граничных эффектов, а именно с близостью края плазмонного зеркала к области фокусировки плазмонной волны.

Важным свойством фокусировки плазмонной волны с помощью параболического зеркала является возможность управлять положением области фокусировки в пространстве. Как было показано в работе [32], небольшие отклонения возбуждающего плазмонную волну лазерного излучения от нормали на угол θ приводят к соответствующему изменению направления распространения плазмонной волны на угол $\alpha \approx (\Lambda/\lambda) \theta$, где Λ период расположения наноотверстий в матрице, используемой для возбуждения SPP лазерным излучением, и положение пятна фокусировки плазмонной волны смещается. В эксперименте оказалось возможным смещать точку фокусировки плазмонной волны на расстояние до 5 мкм. Продемонстрированный подход к управлению плазмонной волной открывает новые возможности создания сложных оптических схем, использующих SPP в полностью оптических приборах и элементах.

5. Плазмонные волноводы

Активно развивающейся областью интегральной оптики является оптика поверхностных плазмонных волн [4–8]. Ключевым элементом интегральной плазмоники служит плазмонный волновод. Характерные особенности плазмонных волноводов — субволновая локализация поля в поперечном сечении волновода и значительные омические потери в металлических частях волновода, приводящие к ограничению длины распространения волны. Как правило, для плазмонных волноводов следствием увеличения степени локализации поля в поперечном сечении является уменьшение длины распространения волны в волноводе [37]. С увеличением поперечной локализации моды поле проникает глубже в металлические части волновода, что приводит к увеличению омических потерь волны.



Рис. 5. (а) Поперечный разрез DLSPPW. Гребень диэлектрика с шириной w и высотой h расположен на плёнке серебра толщиной не менее 200 нм; (б) распределение амплитуды диэлектрического поля DLSPPW основной моды в поперечном сечении волновода с h = 120 нм и w = 110 нм при $\lambda = 780$ нм. Стрелки показывают направление электрического поля, проецируемого на плоскость xy [38]. РММА — полиметилметакрилат.

Диэлектрически нагруженный плазмон-поляритонный волновод (DLSPPW) является перспективным типом плазмонного волновода, который позволяет реализовать значительную длину распространения плазмонной волны при её субволновой поперечной локализации [37]. DLSPPW представляет собой диэлектрический гребень, расположенный на плоской металлической поверхности (рис. 5а). На рисунке 56 показано распределение электрического поля основной моды DLSPPW в поперечном сечении волновода [38].

Основные параметры DLSPPW-волновода (поперечная локализация поля и длина распространения плазмонной волны) зависят от значений геометрических размеров DLSPPW (ширины w и высоты h) [38]. Теоретические оценки показали, что численные значения ширины w = 110 нм и высоты h = 120 нм являются хорошим выбором для экспериментальной реализации оптимального DLSPPW, поскольку они позволяют одновременно обеспечить хорошую пространственную локализацию моды и большую длину распространения волны. При этих значениях *w* и *h* основные параметры плазмонной моды становятся следующими: длина распространения L_{mode} = 81,9 мкм, размер моды w_{mode} = 670 нм. DLSPPW с такими геометрическими параметрами является пространственно одномодовым плазмонным волноводом. Распределение поля моды такого волновода представлено на рис. 5б.

Экспериментальные образцы DLSPPW были приготовлены в несколько этапов (рис. 6). Вначале осаждалась серебряная плёнка толщиной d = 200 нм. Использовались два типа серебряных плёнок: монокристаллическая, нанесённая на подложку слюды, и поликристаллическая, образованная на атомарно-гладкой сапфировой подложке. Измерения с использованием плазмонного интерферометра [25] показали, что поликрис-



Рис. 6. Изображение в электронном микроскопе экспериментального образца с DLSPPW: массив нанощелей, наноканавки, диэлектрический конус и DLSPPW [38].

таллическая серебряная плёнка на атомарно-гладкой сапфировой подложке имеет лучшие оптические свойства, поэтому именно эта плёнка использовалась для изготовления плазмонных волноводов.

На втором этапе изготовления образцов создавался массив нанощелей и набор наноканавок в направлении, перпендикулярном оси волновода. Затем (третий шаг) серебряная плёнка покрывалась слоем полиметилметакрилата (PMMA) толщиной h = 120 нм, в котором диэлектрические части структуры (рупор и DLSPPW) были созданы методом электронно-лучевой литографии.

На рисунке 6 приведено электронно-микроскопическое изображение одной из изготовленных структур с плазмонным волноводом. На рисунке видны: массив нанощелей, наноканавки, диэлектрический рупор и DLSPPW. Расстояние между нанощелями составило 10 мкм. Наноканавки были сделаны для визуализации распространения плазмонной волны DLSPPW и измерения длины её распространения (микроскопия плазмонных волн с помощью наноструктур). Плазмонная волна DLSPPW рассеивается наноканавками, и рассеянное излучение регистрируется в дальнем поле. Таким образом, наноканавки служат локальным зондом поля плазмонной волны. Длина распространения плазмонной волны DLSPPW определялась по зависимости интенсивности рассеянного нанощелями плазмонного поля от z-координаты. Нанорешётка в рупоре служила для возбуждения плазмонной волны лазерным лучом. Количество нанощелей в решётке $N_{\text{slits}} = 20$. Ширина основания рупора равнялась 11,3 мкм, длина рупора $l_{tap} = 60$ мкм. Для решётки с периодом 550 нм и шириной щели а = 150 нм эффективность возбуждения плазмонных волн имеет максимум при длине волны $\lambda = 780$ нм. Плазмонная волна, возбуждаемая лазерным излучением, фокусируется в волновод DLSPPW.

На рисунке 7 представлены результаты измерений возбуждения и распространения плазмонной волны в волноводе DLSPPW. Изображения на рис. 7а, б получены с помощью оптического микроскопа при различных временах экспозиции ПЗС-камеры, использованной для визуализации волновода. Для визуализации геометрии структуры использовался источник белого света. На рисунке 7а, б видно рассеяние плазмонной волны на нанощелях. Рисунок 7в иллюстрирует распространение и затухание плазмонной волны в DLSPPW: показана зависимость интенсивности рассеяния плазмонной волны на наноканавках от *z*-координаты. На рисунке 7в видны яркие "пики", которые образованы рассеянием плазмонной волны DLSPPW на нанощелях. Учёт существующих потерь плазмонной волны от её рассеяния на нанощелях (около 5 % мощности на каждой) позволяет определить длину её распространения в волноводе, которая составила величину $L_{SPP} \approx 30$ мкм.

По сравнению с ранее продемонстрированными конфигурациями волноводного распространения плазмонной волны представленная конфигурация имеет два существенных преимущества. Во-первых, это возможность использования оптически толстой металлической плёнки, что исключает потери, связанные с утечкой плазмонной волны в подложку. Во-вторых, в этой схеме реализовано возбуждение волновода лазерным излучением со стороны подложки, что значительно уменьшило паразитное освещение волновода рассеянным излучением [22].

6. Плазмонный нанолазер на основе плазмонного кристалла

В последние два десятилетия огромное количество исследовательских работ было направлено на развитие новых лазеров сверхмалого размера. Наибольший прогресс достигнут в области полупроводниковых лазеров [39–42]. Принципиально новым подходом в миниатюризации лазеров является подход, основанный на использовании плазмонных полей вместо фотонных.

Плазмонный нанолазер является наноразмерным (по крайней мере в одном измерении) квантовым генератором нанолокализованных когерентных плазмонных полей. Наноскопический во всех трёх измерениях плазмонный нанолазер имеет также другое название — спазер (SPASER — Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation) [43]. Идея плазмонного нанолазера была впервые выдвинута Сударкиным и Демковичем



Рис. 7. Результаты измерений возбуждения и распространения плазмонной волны в DLSPPW: (a) оптическое изображение, показывающее распространение плазмонной волны в рупоре и (б) в DLSPPW, (в) зависимость интенсивности рассеяния плазмонной волны на наноканавках, которая показывает распространение и затухание волны в волноводе; (г) зависимость длины распространения плазмонной моды DLSPPW от ширины диэлектрического гребня [38].

[44]. Теоретическое обоснование возможности создания спазера было дано Штокманом и Бергманом в работе [43]. Первая экспериментальная демонстрация спазера осуществлена Ногиновым с соавторами [45]. К настоящему времени работа плазмонного нанолазера продемонстрирована в многочисленных экспериментах. Имеется ряд обзоров, посвящённых плазмонному нанолазеру [42, 46 – 53].

3D нанолазер может быть чрезвычайно малым и состоять всего из нескольких сотен атомов. При этом генерируемая энергия, как её ближнеполевая часть, так и содержащаяся в излучении, чрезвычайно мала. Можно предположить, что использование регулярной структуры, состоящей из отдельных наночастиц (спазеров), позволит одновременно как увеличить генерируемую мощность, так и контролировать направленность излучения ансамбля спазеров. Рассмотрение плазмонных частиц-резонаторов в виде двумерного массива как устройства для достижения направленной генерации было впервые предложено в работе [54]. В таком массиве наночастиц направленная генерация возникает в результате сфазированных колебаний отдельных наночастиц.

Регулярная структура, состоящая из отдельных наночастиц, — плазмонный кристалл — может быть двух типов: решётка из отдельных металлических наночастиц или комплементарная структура Бабине, созданная в металлической плёнке, — решётка наноотверстий. Известно, что тепловое разрушение металлической наноструктуры происходит при более низких интенсивностях излучения по сравнению с бабине-комплементарной структурой, созданной в металлической плёнке [14, 55]. Так, при освещении лазерным светом наноструктуры в виде наностержня её температура оказывается на несколько порядков выше, чем в комплементарной наноструктуре в виде нанощели [55]. Поэтому плазмонный кристалл на основе структурированной наноплёнки является более предпочтительным для построения нанолазера на его основе по сравнению с решёткой из наночастиц.

Генерация плазмонных волн на основе использования распределённой обратной связи (в массиве металлических наноотверстий — плазмонный кристалл) продемонстрирована экспериментально в работах [56–59]. Схема такого плазмонного нанолазера показана на



Рис. 8. Схема плазмонного нанолазера на основе плазмонного кристалла, образованного решёткой наноотверстий в плёнке металла [56].

рис. 8 [56]. Экспериментальный образец нанолазера создавался в несколько этапов. На пластину из фосфида индия (InP) наносился слой арсенида индия-галлия (InGaAs), который затем покрываелся тонким слоем InP. После этого наносился защитный слой из нитрида кремния (SiN). Поверх защитного слоя наносилась золотая плёнка, в которой формировалась решётка наноотверстий. Слой индий-галлиевого арсенида являлся активной средой нанолазера с оптической накачкой на длине волны 1,06 мкм. Достижение режима генерации в нанолазере исследовалось по зависимости мощности генерации излучения от мощности накачки.

Молекулы красителя — наилучшие квантовые эмиттеры для создания активной среды нанолазеров, так как они могут иметь квантовую эффективность около 100 % и позволяют создавать оптически однородную среду с высокой плотностью молекул. Существенным недостатком молекул красителя в качестве активной среды является их фотоиндуцированное выцветание, при котором молекула красителя перестаёт поглощать излучение (после $10^5 - 10^6$ актов поглощения – переиспускания фотонов) [60].

Нами [58] продемонстрирован планарный плазмонный нанолазер на основе плазмонного кристалла из решётки наноотверстий с активной средой в виде *раствора* молекул красителя. Использование активной среды в виде раствора имеет ряд принципиальных преимуществ по сравнению с твердотельными активными средами. Во-первых, активная среда в виде *раствора* молекул красителя позволяет ослабить на много порядков эффект выцветания молекул красителя и создать стабильную во времени активную среду по сравнению с твердотельной матрицей, содержащей молекулы красителя. Вовторых, открывается возможность вводить аналит в раствор и, соответственно, реализовать концепцию внутрирезонаторной плазмонной спектроскопии [58].

На рисунке 9а показана схема плазмонного нанолазера на основе плазмонного кристалла и активной среды в виде раствора молекул красителя. Плазмонный кристалл образован матрицей наноотверстий (диаметром 150 нм), изготовленных в плёнке серебра, находящейся на диэлектрической подложке. Период матрицы наноотверстий равен $\Lambda = 565$ нм. В качестве активной среды использовался раствор молекул красителя R101 в растворителе ДМСО (диметил сульфоксид), позволяющий реализовать усиление до значений около 75 см⁻¹ при накачке импульсным лазерным излучением (длина волны 530 нм, частота повторений 40 Гц, длительность импульса 10 нс). Объём области возбуждения молекул красителя на четыре порядка меньше общего объёма активной среды. При таком отношении объёмов реализуется долговременный стабильный режим генерации нанолазера до нескольких недель его работы благодаря диффузии молекул красителя.

На рисунке 10б представлены спектры излучения нанолазера при двух интенсивностях накачки: 60 кВт см⁻² (красная кривая (1); сигнал люминесценции увеличен в 100 раз) и 2,5 МВт см⁻² (синяя кривая (2)). Видно, что при малой интенсивности накачки (менее 150 кВт см⁻²) спектральный контур линии люминесценции совпадает со спектральным контуром линии люминесценции красителя R101. При больших интенсивностях накачки контур линии люминесценции сильно меняется: появляется спектрально узкая линия на длине волны 628 нм. Кроме



Рис. 9. (а) Схема плазмонного нанолазера, образованного матрицей наноотверстий в плёнке серебра, (б) пространственное распределение поля *H* для ТМ-моды в системе "плёнка серебра/активная среда/кварцевая подложка" [58].



Рис. 10. Динамика излучения плазмонного нанолазера: (a) спектр люминесценции молекул красителя в гибридной моде экспериментального образца плазмонного нанолазера без наноотверстий, (б) спектр люминесценции плазмонного нанолазера. Вставки на рисунках показывают изображения металлической поверхности исследуемых образцов в электронном микроскопе [58].

того, нанолазер характеризуется пороговой зависимостью спектральных свойств излучения от интенсивности накачки, а также высокой направленностью излучения (около $1,3^{\circ}$) при накачке выше порога, что свидетельствует о достижении режима генерации [58].

Приведённое рассмотрение показывает, что при использовании плазмонного кристалла с высокой добротностью оптимизированная схема возбуждения и активная среда в виде раствора красителя R101 позволяют реализовать плазмонный нанолазер со сверхнизкими потерями моды (около 40 см⁻¹) в одной из наиболее "неудобных" спектральных областей наноплазмоники (~ 630 нм), характеризующейся большими потерями металлов.

7. Плазмонный сенсор флуоресцентных биомаркеров на основе плазмонного нанолазера

Динамика плазмонного лазера во многом схожа по характеристикам с традиционным лазером [43, 45, 61– 64]. По аналогии с традиционными лазерами была предложена и теоретически исследована сенсорика с использованием плазмонных лазеров [65–67]. Было показано, что использование плазмонных нанолазеров для внутрирезонаторной лазерной спектроскопии позволяет повысить эффективность плазмонных сенсоров на два порядка.

Впервые применение плазмонного нанолазера для внутрирезонаторной сенсорики было продемонстрировано в работе [58]. В этой работе с использованием плазмонного нанолазера реализован сенсор в виде чипа, в котором добавление исследуемого аналита производится в полость с активной средой в виде жидкости. Резонатором нанолазера служила матрица наноотверстий в плёнке серебра (см. рис. 9). В таком сенсоре реализована прокачка раствора активной среды с аналитом, что обеспечивает как максимальную чувствительность, так и многократное использование такого сенсора. Субволновой масштаб плазмонной моды нанолазера и технология микрофлюидики представляются привлекательными и многообещающими для применений такого сенсора в качестве одного из ключевых элементов сенсорики -"лаборатории на чипе" [68, 69].

Схема сенсора представлена на вставке рис. 11. В качестве активной среды использовался раствор молекул красителя R101 в ДМСО с концентрацией 800 ррт. Накачка плазмонного нанолазера осуществлялась импульсным лазером на длине волны 532 нм (см. рис. 9). При интенсивности накачки выше порогового значения начинается генерация на длине волны 628 нм. В качестве аналита использовался краситель Су-5, который имеет широкую полосу поглощения вблизи спектральной области генерации нанолазера. Введение аналита приводит к дополнительным потерям в резонаторе плазмонного нанолазера и изменяет режим генерации. Объём ана-



Рис. 11. Зависимость интенсивности генерации плазмонного нанолазера от интенсивности накачки при различных концентрациях красителя Су-5, введённого в резонатор нанолазера. На вставке приведена схема введения аналита в резонатор плазмонного нанолазера [58].

лита, вводимого в сенсор, составлял величину менее 1 мкл.

На рисунке 11 представлены результаты измерений динамики излучения плазмонного нанолазера при трёх концентрациях аналита: 7 и 0,7 ppm, а также 70 ppb. Видно, что добавление аналита приводит к уменьшению интенсивности плазмонного нанолазера. Минимальная концентрация, регистрируемая таким сенсором, равна 70 ppb, что соответствует сверхвысокой чувствительности обнаружения аналита.

Молекулы красителя Су-5, используемые в таком плазмонном сенсоре, известны как флуоресцентные биомаркеры [70]. Такие молекулы могут быть присоединены через соответствующие антитела к различным биомолекулам, которые затем служат маркерами различных процессов в организме человека [71]. Таким образом, продемонстрированный плазмонный сенсор может стать аппаратной платформой для медицинских применений с использованием небольшого объёма плазмы крови и позволяет проводить анализы на самом высоком уровне чувствительности.

8. Заключение

В данной статье представлены результаты исследований последних лет, проводимых в лаборатории лазерной спектроскопии Института спектроскопии РАН, по созданию и исследованию оптических элементов для поверхностных плазмонных волн: оптической среды для плазмонных волн, плазмонного интерферометра, параболического плазмонного зеркала для фокусировки плазмонных волн, диэлектрически нагруженного плазмон-поляритонного волновода, плазмонного нанолазера на основе плазмонного кристалла и плазмонного сенсора флуоресцентных биомаркеров. Соответствующие работы и сейчас продолжаются в нашей лаборатории. Возлагаются большие надежды на получение значимых научных и прикладных результатов в области квантовой наноплазмоники [72] и плазмонной биосенсорики с чувствительностью на уровне единичных молекул [73, 74]. Высокое быстродействие при большой пространственной локализации элементов наноплазмоники на сегодняшний день недостижимо при других подходах, поэтому плазмонная нанооптика должна активно развиваться, несмотря на сопутствующие большие технологические трудности.

Благодарности

Авторы выражают глубокую признательность сотрудникам лаборатории лазерной спектроскопии: А.Е. Афанасьеву, А.С. Калмыкову, А.С. Гритченко, Л.В. Сон и Д.В. Кудрявцеву, работающим над представленными в данной статье проектами.

Список литературы

- Agranovich V M, Mills D L Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surface and Interfaces (Amsterdam: North-Holland, 1982)
- 2. Ditlbacher H et al. Appl. Phys. Lett. 81 1762 (2002)
- 3. Klimov V Nanoplasmonics (New York: Pan Stanford, 2014)
- 4. Krenn J R et al. J. Microscopy **209** 167 (2003)
- 5. Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W Nature 424 824 (2003)
- Zayats A V, Smolyaninov I I, Maradudin A A Phys. Rep. 408 131 (2005)
- 7. Lal S, Link S, Halas N J Nature Photon. 1 641 (2007)
- 8. Maier S A *Plasmonics*. Fundamentals and Applications (Berlin: Springer, 2007)
- 9. Stockman M I Phys. Today 64 (2) 39 (2011)
- 10. Zia R et al. *Mater*. *Today* **9** (7–8) 20 (2006)
- 11. Atwater H A Sci. Am. 296 (4) 56 (2007)
- 12. Brongersma M L, Shalaev V M Science 328 440 (2010)
- 13. Gramotnev D K, Bozhevolnyi S I Nature Photon. 4 83 (2010)
- 14. Melentiev P N et al. Opt. Express 21 13896 (2013)
- Балыкин В И, Мелентьев П Н *УФН* 188 143 (2018); Balykin V I, Melentiev P N *Phys. Usp.* 61 133 (2018)
- 16. Vesseur E J R et al. Appl. Phys. Lett. 92 083110 (2008)
- 17. Huang J-S et al. Nature Commun. 1 150 (2010)
- 18. Baburin A S et al. Opt. Mater. Express 8 3254 (2018)
- 19. Rodionov I A et al. Int. Soc. Opt. Photon. 10343 1034337 (2017)
- Baburin A S et al., in Progress In Electromagnetics Research Symp.– Spring, PIERS, 2017 (Piscataway, NJ: IEEE, 2017) p. 1497
- 21. Rodionov I A et al., arXiv:1806.07611
- Мелентьев П Н, Кузин А А, Балыкин В И Квантовая электроника 47 266 (2017); Melentiev P N, Kuzin A A, Balykin V I Quantum Electron. 47 266 (2017)
- 23. Babar S, Weaver J H Appl. Opt. 54 477 (2015)
- 24. Temnov V V et al. Opt. Express 17 8423 (2009)
- 25. Melentiev P N et al. Opt. Commun. 382 509 (2017)
- 26. Stockman M I et al. Nature Photon. 1 539 (2007)
- 27. Melentiev P N et al. Nano Lett. 16 1138 (2016)
- 28. Melentiev P N et al. Laser Phys. Lett. 11 105301 (2014)
- 29. Bowlan P, Gabolde P, Trebino R Opt. Express 15 10219 (2007)
- 30. Extermann J et al. Opt. Express 16 10405 (2008)
- 31. Li H et al. Appl. Phys. Lett. 96 021103 (2010)
- 32. Melentiev P N, Kuzin A A, Negrov D V, Balykin V I *Plasmonics* 13 2361 (2018)
- 33. Radko I P et al. Opt. Express 17 7228 (2009)
- 34. Evlyukhin A B et al. Opt. Express 15 16667 (2007)
- 35. Kim H, Hahn J, Lee B Opt. Express 16 3049 (2008)
- 36. Lewandowski W et al. Nature Commun. 6 6590 (2015)
- 37. Holmgaard T, Bozhevolnyi S I Phys. Rev. B 75 245405 (2007)
- 38. Melentiev P N et al. Laser Phys. Lett. 14 126201 (2017)
- 39. Strauf S, Jahnke F Laser Photon. Rev. 5 607 (2011)
- 40. Khajavikhan M et al. Nature 482 204 (2012)
- 41. Schneider C et al. *Nature* **497** 348 (2013)
- Балыкин В И УФН 188 935 (2018); Balykin V I Phys. Usp. 61 846 (2018)
- 43. Bergman D J, Stockman M I Phys. Rev. Lett. 90 027402 (2003)
- Сударкин А Н, Демкович П А ЖТФ 59 (7)86 (1989); Sudarkin A N, Demkovich P A Sov. Phys. Tech. Phys. 34 764 (1989)
- 45. Noginov M A et al. *Nature* **460** 1110 (2009)
- 46. Oulton R F Mater. Today 15 (1-2) 26 (2012)

- 47. Виноградов А П и др. *УФН* **182** 1122 (2012); Vinogradov A P et al. *Phys. Usp.* **55** 1046 (2012)
- Προценко И Ε *VΦH* 182 1116 (2012); Protsenko I E *Phys. Usp.* 55 1040 (2012)
- 49. Ma R-M et al. *Laser Photon. Rev.* **7** 1 (2013)
- 50. Berini P, De Leon I Nature Photon. 6 16 (2012)
- 51. Tame M S et al. *Nature Phys.* **9** 329 (2013)
- 52. Gwo S, Shih C-K Rep. Prog. Phys. 79 086501 (2016)
- 53. Premaratne M, Stockman M I Adv. Opt. Photon. 9 79 (2017)
- 54. Zheludev N I et al. *Nature Photon*. **2** 351 (2008)
- 55. Melentiev P N et al. Laser Phys. Lett. 10 075901 (2013)
- 56. van Beijnum F et al. Phys. Rev. Lett. 110 206802 (2013)
- 57. Meng X et al. Laser Photon. Rev. 8 896 (2014)
- 58. Melentiev P et al. Appl. Phys. Lett. 111 213104 (2017)
- 59. Baburin A S et al. *Proc. SPIE* **10672** 106724D (2018)
- 60. Zondervan R et al. J. Phys. Chem. A 108 1657 (2004)

- 61. Stockman M I Nature Photon. 2 327 (2008)
- 62. Stockman M I Phys. Rev. Lett. 106 156802 (2011)
- 63. Lisyansky A A et al. Phys. Rev. B 84 153409 (2011)
- 64. Andrianov E S et al. Phys. Rev. B 85 035405 (2012)
- 65. Lozovik Y E, Nechepurenko I A, Dorofeenko A V Photon. Nanostruct. Fundam. Appl. 21 60 (2016)
- 66. Lozovik Yu E et al. Laser Phys. Lett. 11 125701 (2014)
- 67. Lozovik Yu E et al. Phys. Lett. A 378 723 (2014)
- 68. Srinivasan V, Pamula V K, Fair R B Lab Chip 4 310 (2004)
- 69. Fair R B Microfluid. Nanofluid. 3 245 (2007)
- 70. Liu Y et al. Nanotechnology 15 1368 (2004)
- 71. Sandoval Y et al. Clin. Chem. 63 369 (2017)
- 72. Bozhevolnyi S I, Khurgin J B Nature Photon. 11 398 (2017)
- 73. Walt D R Anal. Chem. 85 1258 (2013)
- 74. Taylor A B, Zijlstra P ACS Sens. 2 1103 (2017)

Nano optical elements for surface plasmon waves

P.N. Melentiev, V.I. Balykin

Institute of Spectroscopy, Russian Academy of Sciences, ul. Fizicheskaya 5, 108840 Troitsk, Moscow, Russian Federation; National Research University "Higher School of Economics", ul. Myasnitskaya 20, 101000 Moscow, Russian Federation E-mail: melentiev@isan.troitsk.ru, balykin@isan.troitsk.ru

Main results obtained recently at the Laboratory of Laser Spectroscopy, Institute of Spectroscopy, Russian Academy of Sciences in research and development of various 2D optical elements for surface plasmon waves and their characterization using near- and far-field methods are presented. They include an optical medium for plasmon waves, a plasmon interferometer, parabolic mirror for focusing plasmon waves, dielectrically loaded plasmon-polariton waveguide, plasmon nanolaser on the basis of a plasmonic crystal, and plasmon sensor of fluorescent biomarkers. We show that state-of-the-art techniques for the development of plasmon optics elements, which are based on utilizing single-crystal ultra-high quality metal surfaces, enable one to come closer to the theoretically predicted characteristics of those elements.

Keywords: surface plasmon-polaritons, plasmon optics, elements of plasmon optics

PACS numbers: 68.65.-k, 73.20.Mf, 78.67.-n

Bibliography — 74 references

Uspekhi Fizicheskikh Nauk 189 (3) 282-291 (2019)

DOI: https://doi.org/10.3367/UFNr.2018.06.038415

Received 13 August 2018

Physics-Uspekhi 62 (3) (2019)

DOI: https://doi.org/10.3367/UFNe.2018.06.038415