

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М. В. ЛОМОНОСОВА

на правах рукописи

Шилкин Даниил Александрович

**Силы светового давления, рассеяние света
и флуоресценция в резонансных
диэлектрических структурах**

01.04.21 — лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва – 2019

Работа выполнена на кафедре квантовой электроники физического факультета Московского государственного университета имени М. В. Ломоносова.

Научный руководитель: **Федянин Андрей Анатольевич**
доктор физико-математических наук, профессор

Официальные оппоненты: **Наумов Андрей Витальевич**
доктор физико-математических наук,
профессор РАН, доцент
Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт спектроскопии РАН, заведующий отделом спектроскопии конденсированных сред

Макаров Сергей Владимирович
доктор физико-математических наук
Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Университет ИТМО», главный научный сотрудник, заведующий лабораторией

Котова Светлана Павловна
кандидат физико-математических наук,
старший научный сотрудник
Самарский филиал Федерального государственного бюджетного учреждения науки Физического института им. П. Н. Лебедева РАН, ведущий научный сотрудник, заведующая лабораторией

Защита диссертации состоится 5 декабря 2019 г. в 15:00 на заседании диссертационного совета МГУ.01.13 Московского государственного университета имени М. В. Ломоносова по адресу: 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 62, корпус нелинейной оптики, аудитория им. С. А. Ахманова.

E-mail: diss.sov.31@physics.msu.ru

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский пр-т, д. 27) и на сайте ИАС «ИСТИНА» <https://istina.msu.ru/dissertations/235640823/>.

Автореферат разослан « » _____ 2019 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета МГУ.01.13,
кандидат физико-математических наук

А. А. Коновко

Общая характеристика работы

Диссертационная работа посвящена исследованию сил светового давления, действующих на диэлектрические частицы в поле поверхностных электромагнитных волн в одномерных фотонных кристаллах, сил, действующих на кремниевые наночастицы в оптическом излучении при возбуждении в них резонансов Ми, а также исследованию рассеяния света и флуоресценции в ми-резонансных субмикронных алмазных частицах с центрами окраски.

Актуальность выбранной темы обусловлена растущим интересом к методам оптического управления частицами и субволновой локализации поля оптического излучения. С начала 1970-х годов, когда были опубликованы первые работы, посвященные давлению света на коллоидные частицы [1, 2], методы оптического управления объектами микро- и наномасштабов не прекращают развиваться. В первых экспериментах по обнаружению сил светового давления, далее также именуемых оптическими силами, управление наночастицами при комнатной температуре требовало сложной юстировки, использования дорогостоящих оптических элементов и, зачастую, разрушающе больших мощностей лазерного излучения [3]. Методы же, развитые на сегодняшний день, позволяют полностью интегрировать системы оптического захвата в компактные микрофлюидные чипы [4] и работать с такими объектами, как одиночные вирусы и белки, используя оптические мощности порядка нескольких милливатт [5, 6]. Это стало возможным благодаря достижениям смежных направлений физики, таких как наноплазмоника и оптика фотонных кристаллов, открывающих новые возможности в локализации и усилении оптического поля.

В диссертационной работе в роли объектов исследований, смежных с оптическим управлением, выступают блоховские поверхностные волны в одномерных фотонных кристаллах и резонансы Ми в частицах с высоким показателем преломления. Среди предложенных ранее методов оптического управления одними из наиболее изученных являются основанные на использовании поверхностных плазмон-поляритонов [5, 7]. Блоховские поверхностные волны ранее не рассматривались в контексте оптического управления, несмотря на то что их использование может иметь ряд преимуществ: такие волны возбуждаются в многослойных диэлектрических структурах, простых в изготовлении и обладающих низким поглощением [8, 9]. Возбуждение в частицах резонансов Ми оказывает существенное влияние на действующие со стороны света силы, что было показано как теоретически, так и экспериментально [10, 11]. Тем не менее, использованию таких резонансов в методах оптической сортировки посвящено единичное число работ [12, 13], и субмикронные кремниевые частицы ранее не выступали в качестве предмета сортировки. Наконец, возбуждение резонансов Ми низших порядков неоднократно упоминалось в литературе как одна из вероятных причин

наблюдаемого разброса времени жизни возбужденного состояния центров окраски в субмикронных алмазных частицах [14, 15]. Тем не менее, для алмазных частиц такие резонансы ранее не были изучены экспериментально. Можно заключить, что **степень разработанности** выбранной темы является достаточной, чтобы обеспечить развитую методологию и востребованность исследований, но оставляет открытыми ряд актуальных вопросов.

Цель диссертационной работы состоит в экспериментальном и теоретическом исследовании сил светового давления, действующих на диэлектрические частицы в поле поверхностных электромагнитных волн на фотонном кристалле, теоретическом анализе оптических методов сортировки суспензий кремниевых наночастиц и экспериментальном исследовании резонансов Ми в субмикронных алмазных частицах.

В рамках поставленной цели были сформулированы следующие **задачи**:

1. Обнаружение, измерение и теоретическое описание сил светового давления, действующих на диэлектрические микро- и наночастицы со стороны поля поверхностных электромагнитных волн на фотонном кристалле.
2. Расчет сил светового давления, действующих на субмикронные кремниевые частицы при возбуждении в них резонансов Ми, и анализ реализации методов сортировки кремниевых частиц в различных геометриях.
3. Экспериментальное обнаружение резонансов Ми в субмикронных алмазных частицах и влияния таких резонансов на насыщение флуоресценции центров окраски в частицах разного размера.

Научная новизна

В работе впервые обнаружены и измерены силы, действующие на диэлектрические частицы со стороны поля поверхностной электромагнитной волны на фотонном кристалле. Показано, что такие волны могут использоваться для оптического управления микрочастицами. Предложено использовать метод оптического пинцета для сканирования глубины проникновения эванесцентного оптического поля, и показана правомерность такого подхода. Впервые экспериментально продемонстрировано самовоздействие поверхностных электромагнитных волн, распространяющихся на границе одномерного фотонного кристалла и концентрированной суспензии диэлектрических наночастиц.

В работе предложены и теоретически охарактеризованы на примере кремниевых частиц методы сортировки по размеру субмикронных частиц с резонансами рассеяния Ми в видимом диапазоне с использованием двух оптических пучков с различающимися длинами волн. Предложена оригинальная схема полностью оптической сортировки по нескольким направлениям с использованием скрещенных оптических пучков.

Наконец, впервые экспериментально охарактеризованы резонансы Ми низших порядков в субмикронных алмазных частицах. Показано, что в спектрах рассеяния имеются выраженные пики, в соответствии с результатами расчетов свидетельствующие о возбуждении магнитодипольной и магнитоквадрупольной мод, и их положение смещается в длинноволновую область спектра с увеличением размера частицы. Для анизотропной частицы получена зависимость эффективности рассеяния от поляризации падающего излучения.

Теоретическая и практическая значимость

В ходе выполнения работы были развиты существующие подходы к фотонно-силовой микроскопии, что может использоваться в дальнейшем при сканировании эванесцентного оптического поля или измерении силовых взаимодействий с использованием оптических ловушек вблизи поверхности. Силовое воздействие поля блоховских поверхностных волн на диэлектрические частицы, экспериментально обнаруженное и охарактеризованное в ходе выполнения работы, может найти применение в оптическом управлении микро- и нанообъектами. Результаты по наблюдению самовоздействия поверхностных волн, распространяющихся на границе одномерного фотонного кристалла и концентрированной суспензии диэлектрических наночастиц, показали, что такие системы могут использоваться в модельных экспериментах по исследованию нелинейных оптических эффектов с использованием непрерывного лазерного излучения умеренной мощности. Предложенные в работе и рассмотренные на примере кремниевых наночастиц методы оптической сортировки могут использоваться для разделения полидисперсных суспензий субволновых частиц из различных материалов с высоким показателем преломления в видимом диапазоне. Результаты по обнаружению резонансов Ми в субмикронных алмазных частицах могут использоваться при разработке однофотонных источников и сенсоров на основе алмазных частиц с центрами окраски.

Методология диссертационного исследования

Для измерения сил, действующих на микрочастицы в поле поверхностных волн в одномерных фотонных кристаллах, использовался метод фотонно-силовой микроскопии, основанный на изучении статистики движения частицы, захваченной в оптической ловушке. Для визуализации экспериментов использовались стандартные методы микроскопии в геометрии на просвет. Возбуждение поверхностных электромагнитных волн проводилось в призмной схеме Кречманна и детектировалось методом угловой спектроскопии отражения лазерного излучения. Для измерения спектров рассеяния использовался метод темнопольной спектроскопии рассеяния на одиночных частицах, реализованный в геометрии на просвет. Для наблюдения насыщения флуоресценции использовался метод лазерной спектроскопии, также

реализованной в геометрии на просвет. Для проведения численных расчетов распределения электромагнитного поля в исследуемых системах использовался метод конечных разностей во временной области. Аналитические расчеты проводились с использованием метода матриц распространения в многослойных структурах, теории Ми для рассеяния на сферических частицах и моделей, описанных в тексте диссертации.

Личный вклад

Личный вклад автора является определяющим и включает в себя проведение аналитических и численных расчетов, проектирование, сбор и юстировку экспериментальных установок, автоматизацию измерений, получение и обработку экспериментальных результатов.

Положения, выносимые на защиту

- На диэлектрическую частицу с показателем преломления, превышающим показатель преломления окружающей среды, со стороны поля поверхностной электромагнитной волны в одномерном фотонном кристалле действуют силы светового давления, направленные к поверхности фотонного кристалла и в направлении распространения поверхностной волны.
- Метод оптического пинцета может использоваться для определения глубины проникновения эванесцентного оптического поля в среду.
- Положение резонанса возбуждения поверхностной электромагнитной волны на границе фотонного кристалла и суспензии диэлектрических наночастиц зависит от мощности излучения, возбуждающего поверхностную волну.
- Резонансы рассеяния Ми на субволновых сферических кремниевых частицах в воде могут использоваться для сортировки таких частиц по размеру под действием сил светового давления.
- В субмикронных алмазных частицах возбуждаются резонансы рассеяния Ми, положение которых смещается в длинноволновую область спектра с увеличением размера частицы; эти резонансы влияют на флуоресценцию центров окраски в алмазных частицах.

Достоверность результатов

Результаты экспериментальных исследований были получены на современном оборудовании, воспроизводятся при повторении измерений и находятся в согласии с результатами расчетов. Результаты численного моделирования сохраняются при уменьшении шага сетки и согласуются с полученными аналитически. Указанные факторы свидетельствуют о высокой степени достоверности результатов.

Апробация работы

Результаты диссертационной работы опубликованы в 7 работах, включая 4 статьи в рецензируемых научных журналах, индексируемых Web of Science и Scopus, и представлены в докладах на следующих международных научных конференциях: Days on Diffraction (Санкт-Петербург, Россия, 2015), SPIE Optics+Photonics (San Diego, USA, 2015), SPIE Photonics Europe (Brussels, Belgium, 2016), 9th International Conference on Materials for Advanced Technologies ICMAT (Singapore, 2017), SPIE Photonics Europe (Brussels, Belgium, 2018), Optics and Photonics International Congress, SPIE Structured Light (Yokohama, Japan, 2018), International Conference on Metamaterials and Nanophotonics METANANO (Сочи, Россия, 2018).

Содержание работы

Глава I. Обзор литературы: методы оптического управления микро- и наночастицами

Первая глава содержит обзор литературы, касающейся методов управления микро- и наночастицами с помощью света. Изложены основы теоретического описания сил светового давления; описаны экспериментальные методы управления частицами с помощью лазерного излучения. Особое внимание уделено методу оптического пинцета и его применениям в изучении силовых взаимодействий на микромасштабах, методам управления микро- и наночастицами в ближнем поле волноводных и резонансных структур, использованию сил светового давления для сортировки частиц. Описаны принципы возбуждения резонансов Ми в неметаллических частицах, и приведены примеры их использования в нанофотонике и оптическом управлении.

Глава II. Силы светового давления в поле блоховских поверхностных волн на фотонных кристаллах

Вторая глава посвящена экспериментальному исследованию сил, действующих на диэлектрические частицы в поле поверхностных электромагнитных волн в одномерных фотонных кристаллах, представляющих собой многослойные диэлектрические зеркала. В первой части главы речь идет об экспериментальном измерении сил, действующих *на одиночную микрочастицу* вблизи поверхности фотонного кристалла, где возбуждается блоховская поверхностная волна [A1, B1]. Проведенный теоретический анализ показал, что развитая экспериментальная методика может также использоваться для сканирования глубины проникновения эванесцентного оптического поля в среду, где локализована частица [A2]. Вторая часть главы посвящена наблюдению самовоздействия поверхностных волн, распространяющихся на границе фотонного кристалла *с концентрированной суспензией наночастиц*, где при возбуждении поверхностных волн происходит перераспределение концентрации частиц под действием оптических сил [B2].

Для измерения сил, действующих со стороны поля поверхностной волны, используется метод фотонно-силовой микроскопии, основанный на изучении статистики теплового движения частицы, захваченной в оптическом пинцете. Схема эксперимента показана на Рисунке 1. Образец для измерений представляет собой кювету, состоящую из двух покровных стекол, на одно из которых нанесено фотонно-кристаллическое покрытие, и герметизирующей прокладки. Кювета заполнена суспензией 1-мкм полистироловых частиц в концентрации, позволяющей работать с одиночными частицами. Для формирования ловушки оптического пинцета используется пучок непрерывного лазерного излучения с длиной волны 975 нм, сфокусированный в области образца водно-иммерсионным объективом с числовой апертурой 1.2. Поверхностная волна возбуждается в призменной схеме Кречманна непрерывным лазерным излучением с длиной волны 532 нм, под регулируемым углом падающим на поверхность фотонного кристалла со стороны стекла. Излучение, формирующее ловушку, претерпевает рассеяние на частице, проходит через фотонный кристалл и с использованием вспомогательного объектива направляется на квадрантный фотодиод для регистрации положения частицы внутри ловушки. Статистика движения захваченной частицы набирается в присутствии и в отсутствие зеленого пучка, откуда вычисляется сила F , действующая со стороны поля поверхностной волны, как функция расстояния между частицей и поверхностью фотонного кристалла h .

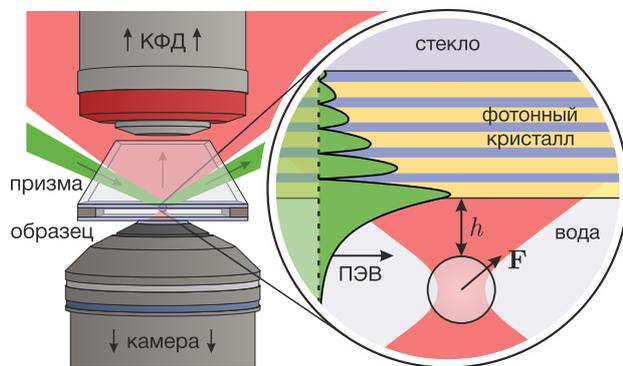


Рис. 1: Схема эксперимента по измерению оптических сил, действующих на одиночную микрочастицу в поле блоховской поверхностной волны на фотонном кристалле. КФД, квадрантный фотодиод; ПЭВ, поверхностная электромагнитная волна.

При резонансном возбуждении поверхностных волн в угловой зависимости коэффициента отражения наблюдается провал, возникающий за счет поглощения и рассеяния на дефектах при локализации поля. Угловая зависимость коэффициента отражения, полученная на экспериментальной установке для измерения сил, показана на Рисунке 2а линией. Ширина провала составляет около 0.4° , что примерно равно угловой расходимости возбуждающего пучка. По результатам дополнительно проведенных измерений с использованием несфокусированного пучка ширина резонанса составила не более 0.1° , что согласуется с теоретическими результатами, полученными методом матриц распространения для плоских волн.

Точками на Рисунке 2а показана зависимость модуля силы от угла падения возбуждающего излучения в стекле при среднем расстоянии между

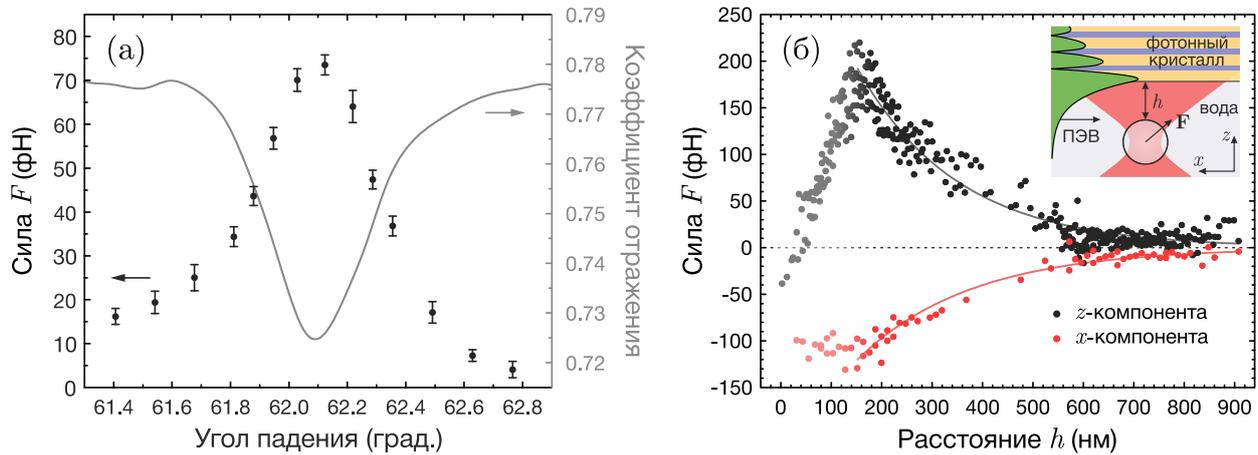


Рис. 2: Экспериментальные результаты по измерению оптических сил, действующих в поле поверхностной волны, методом фотонно-силовой микроскопии. (а) Зависимость модуля силы и коэффициента отражения от угла падения излучения на фотонный кристалл. (б) Зависимость нормальной и тангенциальной компонент силы от расстояния между частицей и поверхностью h при резонансном возбуждении поверхностной волны. Сплошными линиями показан результат аппроксимации в диапазоне $h > 150$ нм экспоненциальным законом.

частицей и поверхностью $h \sim 400$ нм. Ширина пика в полученной зависимости близка к ширине провала в угловом спектре отражения, несимметричная форма объясняется близостью границы запрещенной зоны и большими значениями напряженности в эванесцентном поле для меньших углов падения на фотонный кристалл. Максимум силы с точностью до шага измерений совпадает с минимумом отражения и резонансом возбуждения поверхностной волны. С увеличением угла падения относительно резонансного менее чем на 1° регистрируемые силы падают более чем на порядок.

На Рисунке 2б представлены зависимости нормальной и тангенциальной компонент силы от расстояния между частицей и поверхностью h . Линиями показан результат аппроксимации в диапазоне $h > 150$, где полученные зависимости близки к экспоненциальным. На меньших расстояниях наблюдается отклонение от экспоненциального закона, что может объясняться неприменимостью алгоритма обработки в этом диапазоне. Для количественного определения сил по статистике данных с квадрантного фотодиода было положено постоянство расстояния между частицей и поверхностью h для каждого фиксированного положения перетяжки оптического пинцета, тогда как в эксперименте этот параметр непрерывно флуктуирует в ходе теплового движения частицы, и для ближайших к поверхности положений перетяжки может меняться на порядок величины. В результате не учитывается дополнительный рост вязкого трения на тех участках траектории, где частица находится ближе всего к поверхности, и значения силы оказываются занижены.

Для теоретического описания силового взаимодействия с полем поверхностной волны проводились аналитические и численные расчеты. В первом случае поле полагалось постоянным, что справедливо в случае слабо поляризуемой частицы, и вычислялась действующая в таком поле градиентная сила. В этом приближении зависимость силы от расстояния между частицей и поверхностью представляет собой экспоненциальную функцию с показателем, равным удвоенной постоянной затухания поля поверхностной волны.

В численных расчетах было дополнительно учтено возмущение частицей поля поверхностной волны, и определялась полная оптическая сила — как градиентная ее компонента, направленная к поверхности фотонного кристалла, так и сила рассеяния, действующая вдоль направления распространения поверхностной волны. На Рисунке 3а изображено распределение амплитуды электрического поля, рассчитанное для 1-мкм сферической частицы, локализованной на расстоянии $h = 100$ нм от поверхности фотонного кристалла; контуры частицы и поверхности обозначены белой штриховой линией. Поверхностная волна распространяется слева направо, рассеивается на частице, а также частично отражается назад, о чем говорит наличие пространственной периодичности слева от частицы. Рассчитанные зависимости оптической силы в нормальном и тангенциальном направлениях от расстояния h показаны на Рисунке 3б черными и красными точками соответственно. В отличие от экспериментальных результатов, расчеты демонстрируют монотонное уменьшение сил с удалением от поверхности, подчиняющееся экспоненциальному закону на всем рассмотренном диапазоне — результат аппроксимации изображен сплошными линиями.

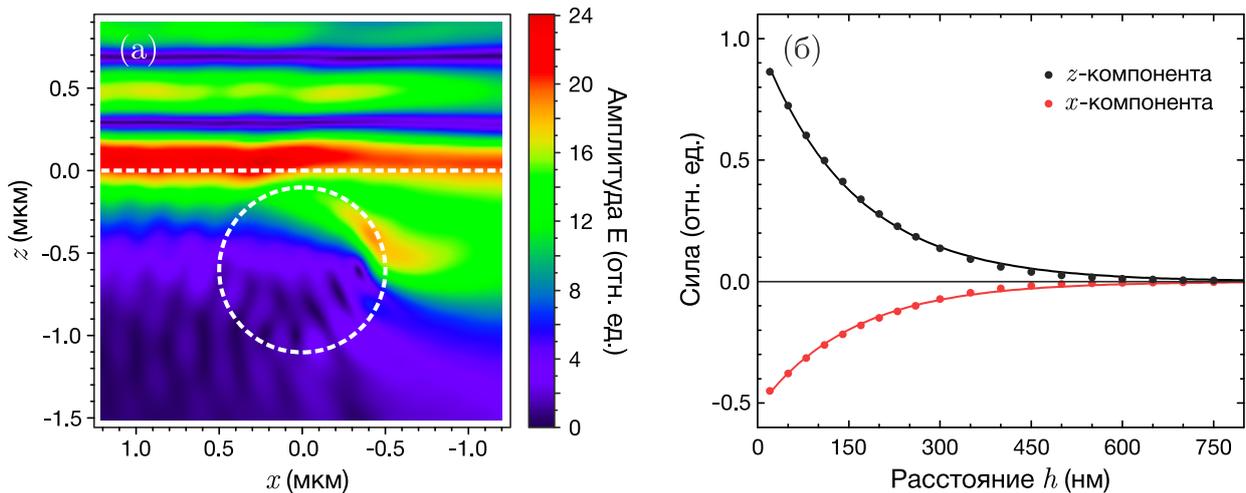


Рис. 3: Численное моделирование взаимодействия 1-мкм полистироловой частицы с полем поверхностной волны. (а) Распределение амплитуды электрического поля при локализации частицы на $h = 100$ нм от поверхности фотонного кристалла. (б) Зависимость нормальной и тангенциальной компонент оптической силы от расстояния между частицей и поверхностью h и аппроксимация полученных точек экспоненциальным законом.

Аналитически и численно была рассчитана зависимость градиентной силы от диаметра частицы при фиксированном расстоянии между частицей и поверхностью $h = 100$ нм. С точностью до 5% полученные значения совпадают в диапазоне диаметров до 2 мкм, и потенциальная энергия частицы пропорциональна интегралу квадрата амплитуды электрического поля по объему частицы. Для используемых 1-мкм полистироловых частиц в поле поверхностных волн это позволяет определить глубину проникновения эванесцентного поля в среду путем аппроксимации измеренного профиля потенциальной энергии экспоненциальным законом.

Полученное в эксперименте распределение потенциальной энергии частицы в поле поверхностной волны показано на Рисунке 4 синими точками. Распределение квадрата амплитуды электрического поля в резонансе поверхностной волны, рассчитанное методом матриц распространения, показано черной кривой. Как и в случае силы, в диапазоне расстояний $h < 150$ нм наблюдается отклонение экспериментальной зависимости от экспоненциального закона. В диапазоне $h > 150$ нм зависимость хорошо описывается экспоненциальным законом, результат аппроксимации показан на Рисунке 4 синей кривой. Определенный в результате аппроксимации коэффициент затухания составил (196 ± 1) нм, что находится в полном согласии с расчетным значением глубины проникновения поля в среду.

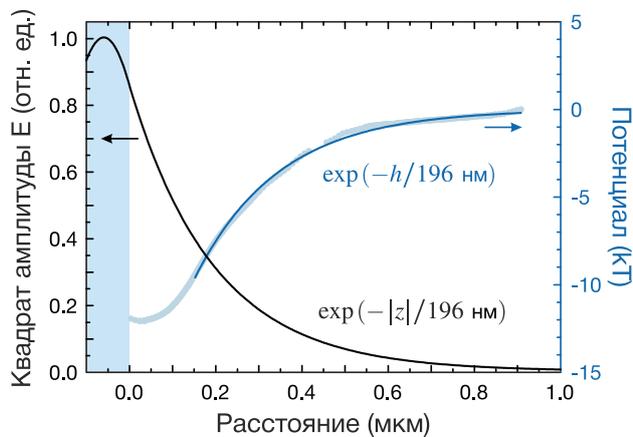


Рис. 4: Определение глубины проникновения эванесцентного поля методом фотонно-силовой микроскопии. Черной кривой показано теоретическое распределение квадрата амплитуды E , синими точками — экспериментальное распределение потенциальной энергии частицы; синяя линия представляет результат аппроксимации точек $h > 150$ нм экспоненциальным законом.

Величины сил, действующих на микрочастицы в реализованной установке, являются достаточными для локализации их вблизи поверхности фотонного кристалла и движения вдоль направления распространения поверхностной волны. На Рисунке 5 приведены микрофотографии движения 1-мкм полистироловой частицы, наблюдаемого при отключении ловушки оптического пинцета. Область возбуждения поверхностной волны хорошо различима благодаря дефектам и шероховатостям, присутствующим на поверхности фотонного кристалла. Средняя скорость движения в поставленном эксперименте составила 7.2 ± 0.2 мкм/с. Соответствующее значение силы в направлении распространения поверхностной волны, найденное в предположении $h \sim 100$ нм, равно 150 фН.

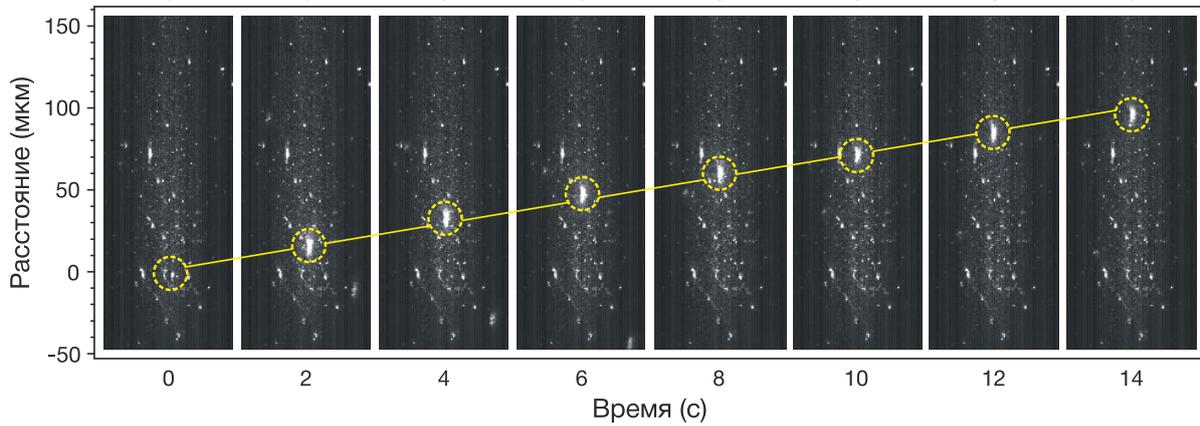


Рис. 5: Микрофотографии движения микрочастицы в поле блоховской поверхностной волны. Благодаря рассеянию на дефектах и шероховатостях область возбуждения поверхностной волны видна как протяженная светлая область. Яркие пятна в желтых кругах отвечают месторасположению частицы.

Вторая часть главы посвящена нелинейным эффектам, возникающим при возбуждении поверхностных волн на границе фотонного кристалла и концентрированной суспензии наночастиц, где под действием оптических сил концентрация частиц вблизи поверхности меняется в зависимости от мощности падающего излучения и усиления поля на поверхности, которое, в свою очередь, зависит от концентрации частиц. В эксперименте используется водная суспензия полистироловых частиц диаметром 48 нм в концентрации 50 мг/мл и непрерывное лазерное излучение с длиной волны 638 нм. Для такой системы была построена модель распространения плоских волн в предположении, что эффективный коэффициент преломления суспензии экспоненциально зависит от расстояния до поверхности, а расстояние между частицами много больше их диаметра.

На Рисунке 6а серой кривой показан рассчитанный угловой спектр отражения в пределе $I \rightarrow 0$, а цветными точками — при $I_0 = 15$ и 30 кВт/см². Представленный диапазон углов включает критический угол полного внутреннего отражения, где с изменением мощности коэффициент отражения не претерпевает существенных изменений. Резонанс поверхностной волны при этом существенно искажается. При увеличении I_0 до 30 кВт/см² положение минимума коэффициента отражения смещается на 0.07° , а в диапазоне углов от 62.30° до 62.33° наблюдается бистабильность.

В эксперименте поверхностные волны возбуждались в призмной схеме Кречманна. Зависимости измеренного коэффициента отражения от угла падения возбуждающего пучка в стекле для мощностей в падающем пучке 0.6, 14 и 28 мВт показаны на Рисунке 6б, где также приведен масштаб угловой расходимости пучка. При мощности в падающем пучке 0.6 мВт провал, соответствующий возбуждению поверхностной волны, имеет симметричный вид, ширина его близка к угловой расходимости возбуждающего пучка, а

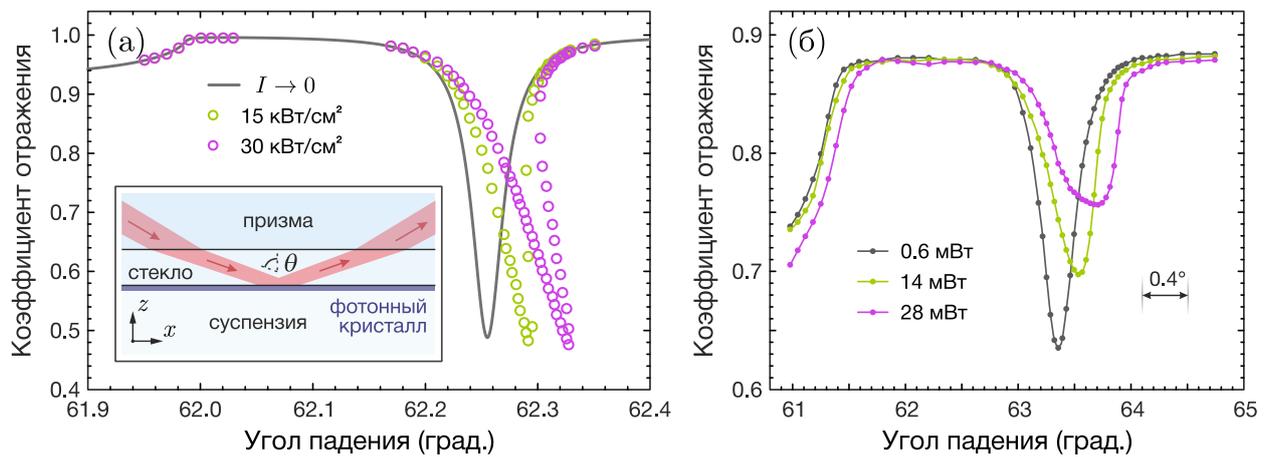


Рис. 6: Искажение резонанса поверхностной волны, возбуждающейся на границе с концентрированной суспензией наночастиц, при увеличении мощности возбуждающего излучения. (а) Расчетная зависимость коэффициента отражения от угла падения возбуждающего излучения в пределе $I \rightarrow 0$, а также для $I_0 = 15$ и 30 кВт/см^2 . (б) Экспериментальная зависимость коэффициента отражения от угла падения излучения θ для мощностей падающего пучка 0.6, 14 и 28 мВт. Справа показан масштаб угловой расходимости возбуждающего пучка.

минимум отражения приходится на $\theta = 63.35^\circ$. С ростом мощности форма провала искажается, и положение минимума смещается в область больших углов падения, что качественно согласуется с результатами теоретической модели. Также в эксперименте наблюдается уменьшение глубины провала, не возникшее при моделировании распространения плоских волн.

Помимо искажения резонанса возбуждения поверхностной волны, в эксперименте наблюдалось изменение области и эффективности возбуждения поверхностной волны с увеличением мощности возбуждающего пучка. Благодаря медленному нелинейному отклику, временную динамику удалось пронаблюдать с использованием обычной видеокамеры. На Рисунке 7 представлена динамика распределения интенсивности у поверхности фотонного кристалла для мощности падающего пучка около 50 мВт и угла падения $\theta = 63.9^\circ$. В начальный момент времени, пока частицы суспензии распределены по образцу равномерно, фотонный кристалл начинает освещаться сфокусированным лазерным пучком; перетяжка видна в левой части изображения. Справа от нее имеется вытянутая область, где также наблюдается рассеяние света. Такая картина соответствует нерезонансному возбуждению поверхностной волны. С течением времени частицы перераспределяются под действием сил светового давления, и резонанс поверхностной волны смещается в область больших углов падения, то есть приближается к установленному значению. Усиление поля приводит к большему притяжению частиц в область возбуждения, и собирающиеся у поверхности частицы образуют собой эффективную линзу для поверхностной волны. В результате интенсивность рассеяния в области поверхностной волны существенно рас-

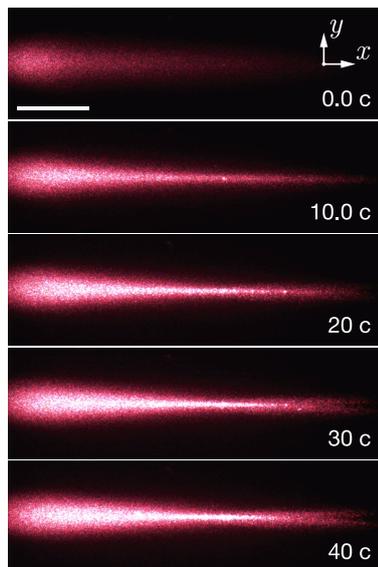


Рис. 7: Динамика распределения интенсивности рассеянного излучения у поверхности фотонного кристалла при возбуждении поверхностной волны на границе с концентрированной суспензией наночастиц для мощности падающего пучка около 50 мВт и угла падения $\theta = 63.9^\circ$. В начальный момент времени частицы суспензии распределены равномерно. Перетяжка возбуждающего пучка видна в левой части изображения; угол падения отстроен от резонанса. С течением времени частицы перераспределяются под действием оптических сил, что приводит к смещению резонанса поверхностной волны и самофокусировке. Длина масштабной линейки составляет 100 мкм; все параметры регистрирующей камеры зафиксированы.

тет, а ее сечение уменьшается с удалением от места падения возбуждающего пучка — поверхностная волна испытывает самофокусировку.

Глава III. Оптическая сортировка кремниевых наночастиц с резонансами Ми в видимом диапазоне

Третья глава посвящена параметрическому анализу сил, действующих на сферические кремниевые частицы в излучении видимого диапазона, и моделированию оптической сортировки кремниевых частиц по размеру. Полученные результаты опубликованы в работе [А3].

Расчет сил, действующих в поле плоских волн, проводился аналитически с помощью теории Ми. На Рисунке 8а показано, как сила, действующая на сферическую кремниевую частицу со стороны поля плоской волны, зависит от диаметра частицы для длин волн излучения 532 и 638 нм. Силы, действующие в излучении выбранных длин волн, отличаются в разы, причем в зависимости от размера более эффективным оказывается излучение разных частот. Это позволяет реализовать сортировку частиц с использованием двух пучков с разными длинами волн.

Разделение частиц может проводиться в противоположно направленных пучках, в присутствии потока жидкости, перпендикулярного излучению, а также в поле перпендикулярно направленных пучков. Одна из возможных схем показана на Рисунке 8б. Результаты расчета, проведенного для двух перпендикулярно направленных плоских волн одинаковой интенсивности с длинами волн 532 и 638 нм, демонстрируют сильную зависимость направления дрейфовой скорости от диаметра частиц. В диапазоне от 120 до 160 нм частицы могут быть разделены по непрерывному спектру размеров. Достижимое разрешение сортировки при этом определяется случайными броуновскими силами. На Рисунке 8в показан результат моделирования сортировки кремниевых частиц диаметром 130, 150 и 160 нм в плоских

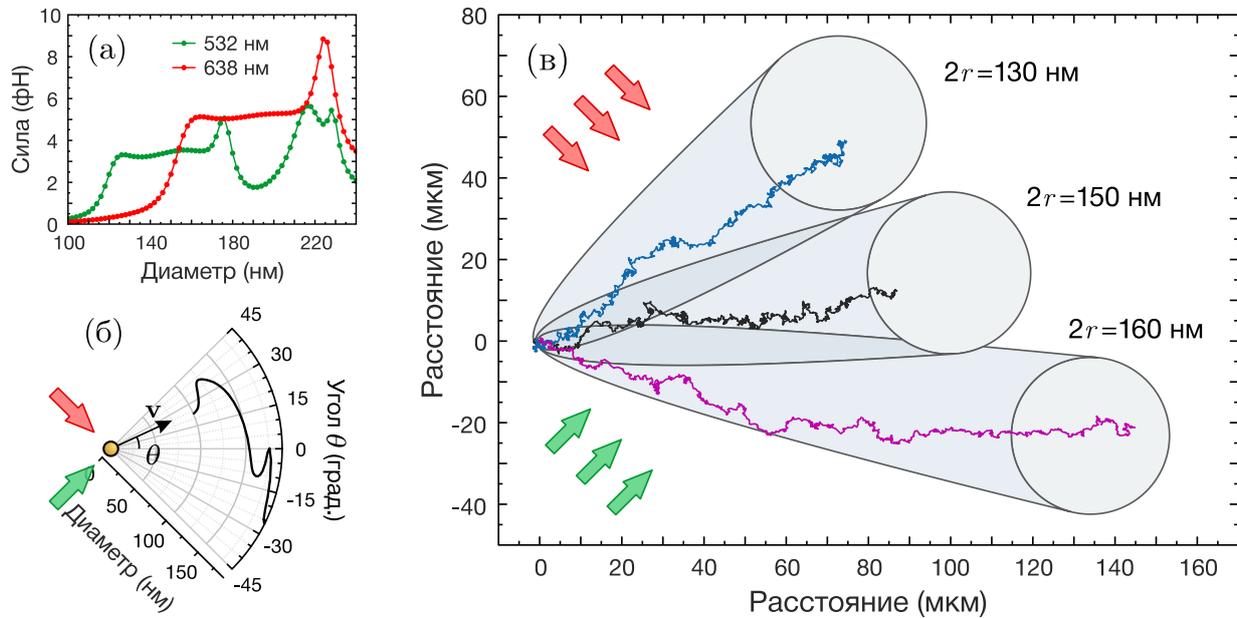


Рис. 8: Сортировка ми-резонансных кремниевых частиц по размеру. (а) Аналитически рассчитанная зависимость сил, действующих на сферические частицы со стороны плоских волн с интенсивностью 1 кВт/см^2 и длинами волн 532 и 638 нм, от диаметра. (б,в) Моделирование сортировки частиц в поле перпендикулярно направленных плоских волн с интенсивностью 1 кВт/см^2 и длинами волн 532 и 638 нм. (б) Зависимость направления дрейфовой скорости от диаметра частицы. (в) Характерные траектории частиц диаметром 130, 150 и 160 нм в присутствии броуновских сил. Серыми кругами показано среднее квадратичное отклонение от среднего положения частиц по истечении 30 с; параболы демонстрируют эволюцию среднее квадратичного отклонения в процессе сортировки.

волнах интенсивностью 1 кВт/см^2 с учетом броуновских сил при комнатной температуре. Цветными кривыми показаны характерные траектории, полученные в результате численных расчетов. Серыми кругами показано среднее квадратичное отклонение от среднего положения по истечении 30 с, если изначально частицы находились в точке с координатами $(0,0)$. В приведенном примере с использованием интенсивности 1 кВт/см^2 сортировка реализуется на масштабах порядка 100 мкм. Необходимую для этого мощность можно оценить как произведение интенсивности и квадрата масштаба сортировки; в нашем случае имеем 0.1 Вт.

В контексте практической реализации, где зачастую предпочтительно использование эванесцентных волн, важно рассмотреть оптические силы, действующие на частицы разного размера вблизи поверхности, где реализуется полное внутреннее отражение. Для этого были проведены численные расчеты; геометрия расчетов схематично изображена на Рисунке 9 на вставках. Свет интенсивностью 1 кВт/см^2 падает со стороны диэлектрика с показателем преломления 1.5 на границу с водой под углом 65° . Зазор между частицей и поверхностью равен 50 нм, в то время как диаметр частицы варьируется.

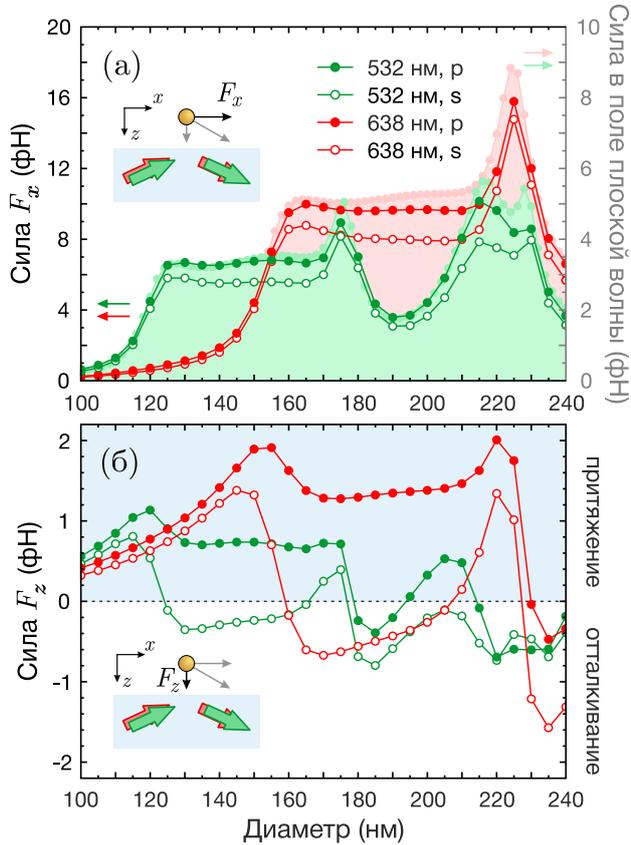


Рис. 9: Численный расчет сил, действующих на кремниевые частицы вблизи поверхности, где происходит полное внутреннее отражение, в зависимости от диаметра частиц. Интенсивность в падающем пучке 1 кВт/см^2 ; расстояние между частицей и поверхностью 50 нм . (а) Тангенциальная составляющая силы, рассчитанная для s - и p -поляризованного излучения с длинами волн 532 и 638 нм . На заднем плане показана зависимость силы, аналитически рассчитанной для случая плоских волн тех же частот с интенсивностью 1 кВт/см^2 . (б) Нормальная составляющая силы, рассчитанная для s - и p -поляризованного излучения с длинами волн 532 и 638 нм .

Тангенциальная составляющая силы, рассчитанная для двух поляризаций падающего излучения, показана на Рисунке 9а. Зависимости повторяют по форме кривые, полученные для плоских волн. Результаты расчетов нормальной компоненты оптической силы приведены на 9б. В зависимости от размера частицы, поляризации и длины волны может наблюдаться как притяжение, так и отталкивание частиц из области эванесцентного поля.

Глава IV. Резонансы Ми в субмикронных алмазных частицах

Четвертая глава посвящена исследованию резонансов Ми в субмикронных алмазных частицах. Экспериментальные результаты спектроскопии рассеяния на одиночных алмазах ставятся в сравнение с результатами аналитических и численных расчетов [А4]. С целью определения роли исследуемых мод в практических приложениях проводится расчет фактора Парселла для дипольного источника, локализованного в алмазной частице, при возбуждении в ней резонансов Ми [А4]. Экспериментально наблюдается насыщение флуоресценции центров окраски в алмазных частицах разного размера [Б3].

Алмазы, исследуемые в первой части главы, были выращены методом плазмохимического осаждения из газовой фазы на сапфировой подложке толщиной около 0.2 мм коллегами в Институте общей физики им. А. М. Прохорова РАН. Типичный размер выращенных частиц составляет от 200 до 500 нм . Для измерения спектров рассеяния использовалась установка, где темнопольное изображение одиночных алмазов перестраивается на торец

волокна, подсоединенного к спектрометру. Полученный для одной из исследуемых частиц спектр рассеяния представлен на Рисунке 10а черной кривой. На вставке приведено изображение частицы в электронном микроскопе, а фиолетовой кривой показан спектр рассеяния, рассчитанный для сферической частицы диаметром 320 нм методом конечных разностей во временной области с учетом влияния подложки и ограниченной апертуры сбора рассеянного излучения в эксперименте. В полученных спектрах наблюдаются два выраженных пика. Аналитические расчеты, проведенные для сферической алмазной частицы в отсутствие подложки, позволили связать первый пик с возбуждением магнитоквадрупольной, а второй — магнитодипольной моды. Соответствующий спектр рассеяния и вклад четырех мод низших порядков показаны на Рисунке 10б.

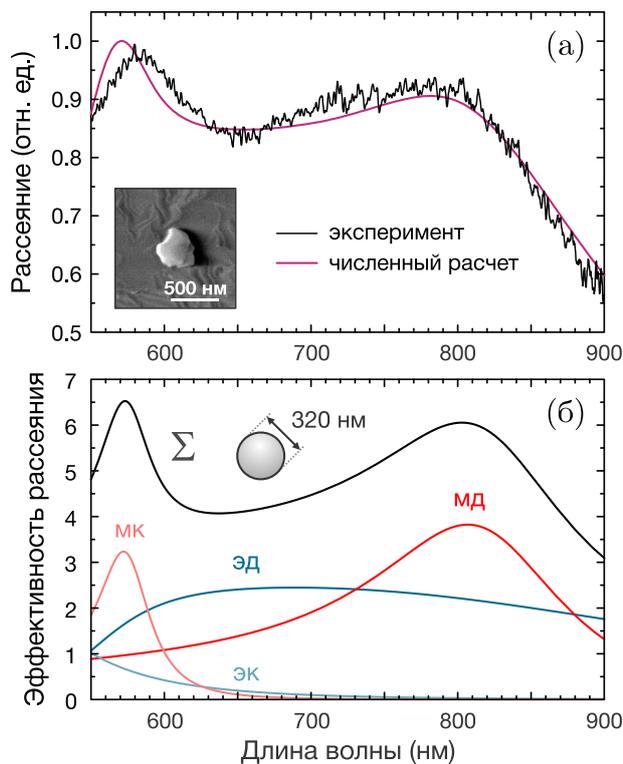


Рис. 10: Резонансы рассеяния Ми на субволновых алмазных частицах. (а) Экспериментальный спектр рассеяния на одной из исследуемых частиц в сравнении с результатом численного расчета для 320-нм сферического алмаза с учетом влияния сапфировой подложки и ограниченной апертуры сбора рассеянного излучения. На вставке показано изображение частицы в электронном микроскопе. (б) Аналитически рассчитанный спектр рассеяния на 320-нм сферической частице в отсутствие подложки и вклад электрической и магнитной дипольных (эд, мд) и квадрупольных (эк, мк) мод.

Измерения спектров рассеяния были проведены более чем для 20 алмазов. С целью характеристики их формы были обработаны изображения исследуемых частиц в электронном микроскопе. Для каждой из них были определены эффективный размер $d = 2\sqrt{A/\pi}$ и форм-фактор $\phi = 4\pi A/\Pi^2$, где A — площадь, а Π — периметр двумерной проекции частицы на имеющихся снимках. Для круга эффективный размер d равен диаметру, а форм-фактор ϕ достигает максимально возможного значения — единицы. Для исследуемых алмазов эффективный размер распределен в диапазоне от 280 до 415 нм, форм-фактор ϕ — от 0.81 до 0.95.

Зависимость спектрального положения пиков от эффективного диаметра частиц показана на Рисунке 11 точками. Штриховыми линиями показано положение пиков в спектрах рассеяния, рассчитанных методом конечных

разностей во временной области с учетом подложки и ограниченной апертуры сбора рассеянного излучения. Экспериментальные точки делятся на две группы, которые могут быть ассоциированы с возбуждением магнитодипольного и магнитоквадрупольного резонансов Ми. С увеличением эффективного размера положение резонансов смещается в длинноволновую область спектра. Залитым точкам соответствуют частицы с форм-фактором $\varphi > 0.9$, то есть форма которых наиболее близка к сферической. Эти точки лежат в среднем ближе к результатам расчетов, так что по крайней мере одной из причин различия между экспериментальными и теоретическими результатами является несферичная форма частиц.

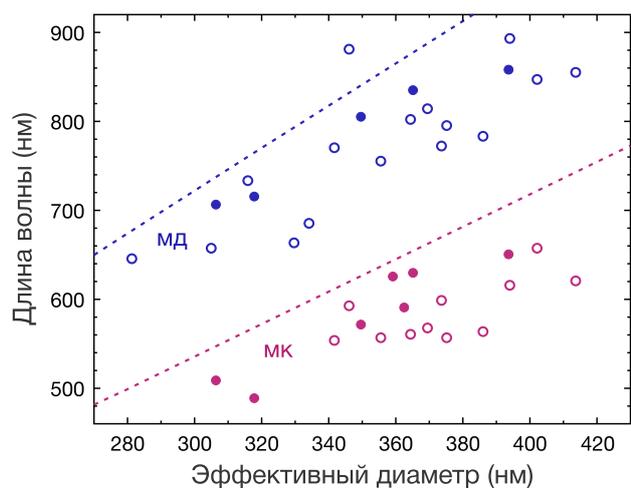


Рис. 11: Экспериментальная зависимость положения пиков рассеяния на одиночных алмазах от эффективного диаметра частиц. Залитым точкам соответствуют частицы с форм-фактором $\varphi > 0.9$. Точки разделены на две группы, ассоциированных с возбуждением магнитодипольной (мд) и магнитоквадрупольной (мк) мод. Штриховыми линиями показано положение пиков, определенных из результатов численных расчетов.

Представленные в автореферате спектры рассеяния были получены с использованием неполяризованного света. На одной из частиц с выраженной анизотропией формы спектры рассеяния были дополнительно измерены с линейно поляризованным падающим излучением в зависимости от направления поляризации. Эффективность рассеяния в полученных спектрах варьируется до 30% с изменением поляризации. Результаты численных расчетов для вытянутого сфероида с осями 400 и 330 нм, что грубо соответствует масштабам исследуемой частицы, находятся в качественном согласии с экспериментальными данными.

Вторая часть главы посвящена изучению флуоресценции центров окраски в ми-резонансных алмазах. Возбуждение резонансов Ми может оказывать влияние на флуоресценцию из-за усиления поля накачки внутри частиц и уменьшения времени жизни возбужденного состояния. Без учета влияния подложки были проведены расчеты фактора Парселла, определяемого как отношение вероятностей излучательных переходов в резонансном окружении и в однородной среде, в зависимости от частоты излучения и положения источника внутри алмаза. Максимальное значение, полученное для 320-нм сферической частицы в видимом диапазоне, составляет 2.4, что существенно превосходит значение 0.061 для нерезонансной частицы размером много меньше длины волны.

В эксперименте были изучены одиночные алмазы с большим числом NV центров, изготовленные коллегами из Института физики высоких давлений им. Л. Ф. Верещагина и Института общей физики им. А. М. Прохорова РАН. Алмазы были синтезированы методом высокого давления и высокой температуры и нанесены на поверхность покровного стекла. Изображения четырех частиц разного размера показаны на Рисунке 12а; их спектры рассеяния приведены на Рисунке 12б. Все спектры нормированы на максимальное

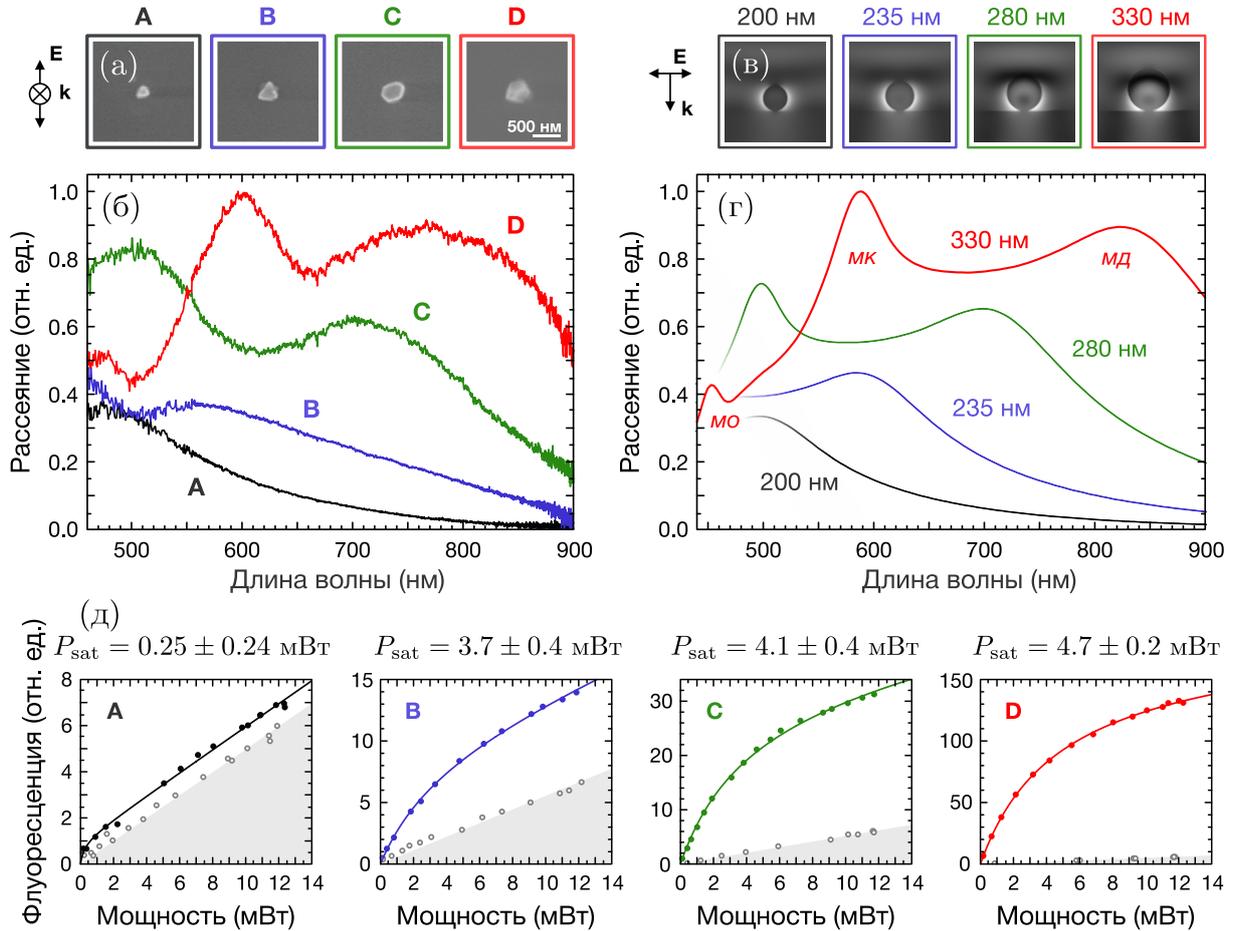


Рис. 12: Спектроскопия рассеяния и насыщение флуоресценции в субволновых алмазных частицах с NV центрами окраски. (а) Изображения исследуемых частиц в электронном микроскопе. Слева показана поляризация лазерного излучения, используемого для накачки флуоресценции. (б) Экспериментальные спектры рассеяния неполяризованного излучения. (в) Распределение электрического поля, численно рассчитанное для сферических частиц указанных диаметров при освещении плоской волной, поляризованной в плоскости рисунка, с длиной волны 660 нм. (г) Численно рассчитанные спектры рассеяния на сферических частицах указанных диаметров. Согласно аналитическим расчетам, пики соответствуют возбуждению магнитных дипольной (мд), квадрупольной (мк) и октупольной (мо) мод. (д) Экспериментальные кривые насыщения сигнала флуоресценции в спектральном диапазоне 610–710 нм. Серыми точками показан фоновый сигнал, измеренный при фокусировке пучка накачки на свободной от частиц области подложки.

значение, полученное для частицы D, обладающей наибольшим размером. На Рисунке 12в представлены результаты расчета распределения амплитуды электрического поля на длине волны 660 нм при освещении сферических частиц указанных диаметров плоской волной. Рассчитанные для этих же частиц с учетом стеклянной подложки и экспериментальной апертуры сбора спектры рассеяния представлены на Рисунке 12г. Аналитические расчеты показали, что имеющиеся в полученных спектрах пики соответствуют возбуждению магнитных дипольной, квадрупольной и октупольной мод.

Для возбуждения флуоресценции используется непрерывное излучение длиной волны 532 нм, сфокусированное в пятно диаметром около 3 мкм. Полученные спектры флуоресценции свидетельствуют о содержании в частицах NV центров. Для частиц большего размера наблюдается большой сигнал флуоресценции, что как минимум частично обусловлено большим количеством содержащихся в них центров окраски. По причине конечного времени жизни возбужденного состояния с увеличением мощности накачки сигнал флуоресценции выходит на насыщение; мощность насыщения в соответствии с результатами расчетов немонотонно зависит от размера, и достигает максимальных значений в области резонансов на частоте флуоресценции. На Рисунке 12д яркими точками представлены экспериментальные зависимости сигнала флуоресценции в спектральном диапазоне 610–710 нм от мощности накачки. Чтобы учесть наличие фона, были проведены дополнительные измерения при фокусировке лазерного пучка на свободной от частиц области подложки, где зависимость регистрируемого сигнала от мощности накачки аппроксимировалась пропорциональной $C(P) = \beta P$. Полученные зависимости показаны на Рисунке 12д серыми точками. При фокусировке на исследуемых частицах зависимости сигнала от мощности накачки аппроксимировались законом $C = C_{\infty} P / (P + P_{\text{sat}}) + \beta P$, где коэффициент β был определен независимо как описано выше. Различие полученных значений мощности насыщения P_{sat} для разных частиц по крайней мере частично обусловлено различием в размере и, следовательно, эффективности возбуждения собственных мод на частотах накачки и флуоресценции.

Заключение

Основные результаты диссертационной работы могут быть сформулированы следующим образом.

1. Обнаружено силовое воздействие на 1-мкм полистироловую частицу со стороны поля поверхностной электромагнитной волны в одномерном фотонном кристалле. Показано, что под действием оптических сил частица притягивается к поверхности и движется в направлении распространения поверхностной волны, что может использоваться в методах оптического управления микрочастицами. Действующие силы измерены методом оптического пинцета в зависимости от расстояния между частицей и поверхностью, а также от угла падения излучения, возбуждающего поверхностную волну в схеме Кречманна. При интенсивности возбуждающего пучка 1.6 кВт/см^2 максимальные измеренные силы составляют 180 фН в направлении, перпендикулярном поверхности, и 100 фН в направлении распространения поверхностной волны. Впервые предложено использовать метод оптического пинцета для определения глубины проникновения эванесцентного оптического поля путем аппроксимации экспоненциальной функцией зависимости потенциальной энергии частицы в этом поле от расстояния до поверхности.
2. Обнаружено самовоздействие поверхностных электромагнитных волн, распространяющихся на границе одномерного фотонного кристалла и водной суспензии 50-нм полистироловых частиц, проявляющееся в зависимости положения резонанса возбуждения поверхностной волны от мощности возбуждающего излучения и в явлении самофокусировки поверхностной волны.
3. Предложены и теоретически охарактеризованы методы сортировки субмикронных кремниевых частиц по размеру в поле двух оптических пучков с различающимися длинами волн. Показано, что при использовании типичных для подобных экспериментов мощностей лазерного излучения 0.1 Вт и длин волн 532 нм и 638 нм в предложенных схемах достижимо разрешение до 10 нм в диаметре сортируемых частиц при среднем размере около 150 нм.
4. Впервые экспериментально охарактеризованы резонансы рассеяния Ми на алмазных частицах различного размера в диапазоне от 200 нм до 400 нм. Показано, что в спектрах рассеяния имеются выраженные пики, в соответствии с результатами расчетов свидетельствующие о возбуждении магнитодипольной и магнитоквадрупольной мод, и их положение смещается в длинноволновую область спектра с увеличением размера частицы. Для анизотропной частицы обнаружена зависимость эффективности рассеяния от поляризации падающего излучения. Показано, что возбуждение резонансов Ми оказывает влияние на насыщение флуоресценции центров окраски в субмикронных алмазных частицах.

Список цитируемой литературы

- [1] *Ashkin A.* Acceleration and trapping of particles by radiation pressure // *Phys. Rev. Lett.* — 1970. — v. 24. — pp. 156–159.
- [2] *Ashkin A.* The pressure of laser light // *Sci. Am.* — 1972. — v. 226. — pp. 62–71.
- [3] *Ashkin A., Dziedzic J. M., Bjorkholm J. E., Chu S.* Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles // *Opt. Lett.* — 1986. — v. 11. — pp. 288–290.
- [4] *Cran-McGreehin S., Krauss T. F., Dholakia K.* Integrated monolithic optical manipulation // *Lab Chip.* — 2006. — v. 6. — pp. 1122–1124.
- [5] *Erickson D., Serey X., Chen Y.-F., Mandal S.* Nanomanipulation using near field photonics // *Lab Chip.* — 2011. — v. 11. — pp. 995–1009.
- [6] *Lin S., Crozier K. B.* Trapping-assisted sensing of particles and proteins using on-chip optical microcavities // *ACS Nano.* — 2013. — v. 7. — pp. 1725–1730.
- [7] *Juan M. L., Righini M., Quidant R.* Plasmon nano-optical tweezers // *Nat. Photonics.* — 2011. — v. 5. — pp. 349–356.
- [8] *Yeh P., Yariv A., Cho A. Y.* Optical surface waves in periodic layered media // *Appl. Phys. Lett.* — 1978. — v. 32. — pp. 104–105.
- [9] *Robertson W. M., May M. S.* Surface electromagnetic wave excitation on one-dimensional photonic band-gap arrays // *Appl. Phys. Lett.* — 1999. — v. 74. — pp. 1800–1802.
- [10] *Ashkin A., Dziedzic J. M.* Observation of resonances in the radiation pressure on dielectric spheres // *Phys. Rev. Lett.* — 1977. — v. 38. — pp. 1351–1354.
- [11] *Liu H., Panmai M., Peng Y., Lan S.* Optical pulling and pushing forces exerted on silicon nanospheres with strong coherent interaction between electric and magnetic resonances // *Opt. Express.* — 2017. — v. 25. — pp. 12357–12371.
- [12] *Li Y., Svitelskiy O. V., Maslov A. V., Carnegie D., Rafailov E., Astratov V. N.* Giant resonant light forces in microspherical photonics // *Light Sci. Appl.* — 2013. — v. 2. — p. e64.
- [13] *Maslov A. V., Astratov V. N.* Microspherical photonics: Sorting resonant photonic atoms by using light // *Appl. Phys. Lett.* — 2014. — v. 105. — p. 121113.

- [14] *Castelletto S., Boretti A.* Radiative and nonradiative decay rates in chromium-related centers in nanodiamonds // *Opt. Lett.* — 2011. — v. 36. — pp. 4224–4226.
- [15] *Inam F. A., Steel M. J., Castelletto S.* Effects of the hosting nano-environment modifications on NV centres fluorescence emission // *Diam. Relat. Mater.* — 2014. — v. 45. — pp. 64–69.

Список опубликованных работ

Публикации по теме диссертации в рецензируемых научных журналах, индексируемых Web of Science и Scopus:

- [A1] *Shilkin D. A., Lyubin E. V., Soboleva I. V., Fedyanin A. A.* Direct measurements of forces induced by Bloch surface waves in a one-dimensional photonic crystal // *Opt. Lett.* — 2015. — v. 40. — p. 4883–4886, Impact Factor 3.866.
- [A2] *Shilkin D. A., Lyubin E. V., Soboleva I. V., Fedyanin A. A.* Near-field probing of Bloch surface waves in a dielectric multilayer using photonic force microscopy // *J. Opt. Soc. Am. B.* — 2016. — v. 33. — p. 1120–1127, Impact Factor 2.284.
- [A3] *Shilkin D. A., Lyubin E. V., Shcherbakov M. R., Lapine M., Fedyanin A. A.* Directional optical sorting of silicon nanoparticles // *ACS Photonics.* — 2017. — v. 4. — pp. 2312–2319, Impact Factor 7.143.
- [A4] *Shilkin D. A., Shcherbakov M. R., Lyubin E. V., Katamadze K. G., Kudryavtsev O. S., Sedov V. S., Vlasov I. I., Fedyanin A. A.* Optical magnetism and fundamental modes of nanodiamonds // *ACS Photonics.* — 2017. — v. 4. — pp. 1153–1158, Impact Factor 7.143.

Другие публикации по теме диссертации:

- [Б1] *Shilkin D. A., Lyubin E. V., Soboleva I. V., Fedyanin A. A.* Photonic force microscopy of surface electromagnetic waves in a one-dimensional photonic crystal // *Proc. SPIE.* — 2015. — v. 9548. — p. 954810.
- [Б2] *Shilkin D. A., Lyubin E. V., Fedyanin A. A.* Nonlinear self-action of Bloch surface waves governed by gradient optical forces // *Proc. SPIE.* — 2018. — v. 10712. — p. 1071212.
- [Б3] *Obydenov D. V., Shilkin D. A., Lyubin E. V., Shcherbakov M. R., Ekimov E. F., Kudryavtsev O. S., Vlasov I. I., Fedyanin A. A.* Saturation of fluorescence from NV centers in Mie-resonant diamond particles // *J. Phys. Conf. Ser.* — 2018. — v. 1092. — p. 012102.