

OPTIMALIZÁLT NANOPLAZMONIKA

Balázs Bánhelyi¹, Fekete Olivér², Sipos Áron³,
Szenes András², Tóth Emese², Vass Dávid², Csete Mária²

¹Szegedi Tudományegyetem, Számítógépes Optimalizálás Tanszék, Árpád tér 2, 6720 Szeged;

²Szegedi Tudományegyetem, Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék, Dóm tér 9, 6720 Szeged;

³Szegedi Biológiai Kutatóközpont, Biofizika Intézet, Temesvári krt. 62, 6720 Szeged; Magyarország.

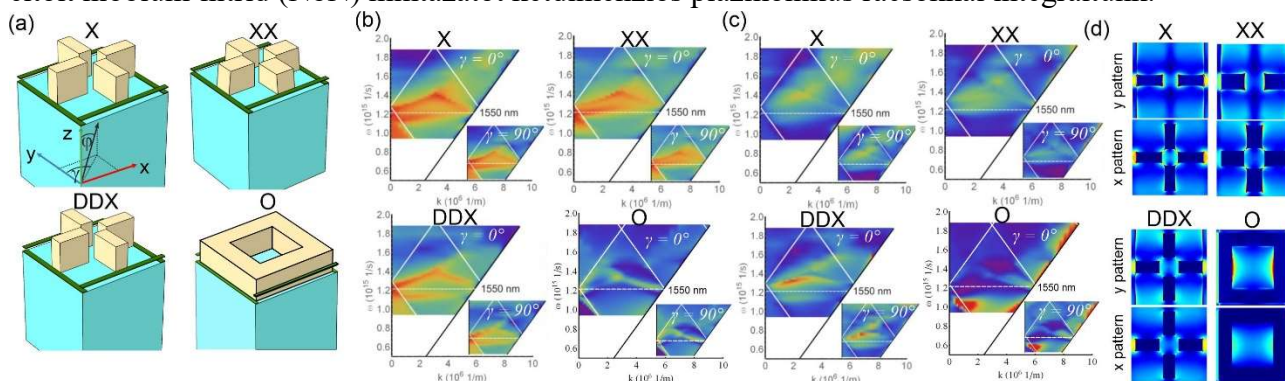
DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.3>

1. Bevezetés

A fény-anyag kölcsönhatás jelenségei optimalizálhatók a plazmonikus spektrumszerkesztés elveinek megfelelően tervezett nanorezonátorok alkalmazásával. Az individuális nanorezonátorok kivilágítási konfigurációjának valamint a periodikus és komplex struktúrák diszperziós karakterisztikájának tervezéséhez új numerikus eljárást dolgoztunk ki. Az optimális paraméterek biztosításához megfogalmazott célfüggvények és kritériumok alkalmazása lehetővé tette egyfoton detektorok abszorpciójának maximalizálását a polarizáció szelektivitás maximalizálásával és minimalizálásával; egyfoton források spontán emissziójának erősítését és szupersugárzás elérését; individuális, periodikus és komplex struktúrák tervezését, amelyekkel a fluoreszcens festékek fénykibocsátása a gerjesztés és az emisszió együttes erősítésével maximalizálható. A módszer lehetővé teszi hatékony egyfoton források és detektorok létrehozását a kvantuminformaticai alkalmazások céljaira, valamint plazmonikus bio-platformokon a szenzorizációs specifikusság és érzékenység javítását.

2. Plazmonikus struktúrával integrált egyfoton detektorok

A szupravezető nanohuzalokon alapuló egyfotondetektorok (superconducting nanowire single photon detectors: SNSPD) optimalizálását először az abszorpció (A-SNSPD) valamint a polarizációkontraszt maximalizálására valósítottuk meg, utóbbit a párhuzamosan teljesítendő abszorpcióra vonatkozó kritériummal (C-SNSPD) és anélkül (P-SNSPD). Az A-SNSPD-vel elérhető legnagyobb abszorpció 95%, a C-SNSPD esetében korrelációkat mutattunk ki a konfigurációs paraméterek között, a P-SNSPD-vel elérhető legnagyobb polarizáció kontraszt 10^{13} nagyságrendű volt [1-2]. Az SNSPD hatásfokot polarizáció-függetlenül törésmutató kontrasztot kompenzáló anyagokkal, spirális huzalokkal, és keresztezett nanohuzal mintázatokkal növelték meg korábban. A plazmonikus erősítés polarizáció specifikusságának figyelembe vételével két egymásra merőleges és vertikálisan eltolódott nióbbium-nitrid (NbN) mintázatot kétdimenziós plazmonikus rácsokkal integráltunk.



I. ábra

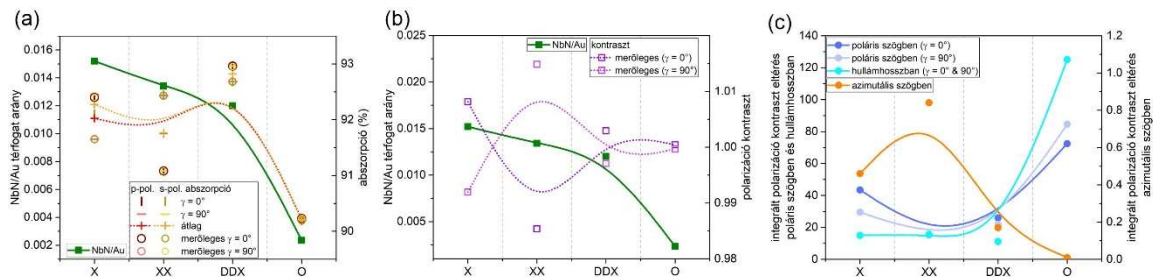
Polarizációtól függetlenül nagy abszorpció biztosítására tervezett (a) NCTAI-X & XX, NCDDAI-X & NCTDAI-O típusú detektorok, az optimalizált rendszerek diszperziós karakterisztikája (b) p-polarizált abszorpcióban és (c) polarizáció kontrasztban, (d) a közel tér eloszlása az abszorpció maximumoknál.

A (nanocavity-trench-array-integrated) NCTAI-X/XX-SNSPD-ben a periodikus mintázatok a szubsztrát síkja felett helyezkednek el, míg a nanoüreg vertikális falai merőlegesek/szöglet zárnak be a határfelülethez képest. A (nanocavity-double-deflector-array-integrated) NCDDAI-X / (nanocavity-trench-deflector-array-integrated) NCTDAI-O-SNSPD-ben a vertikális szegmensek a szubsztrátba mélyülnek mindkét / az egyik aranyrácsban, továbbá a geometria paramétereiket az x és az y tengely mentén csak vertikális / minden irányban egymástól függetlenül variáltuk (1(a) ábra).

A diszperziós karakterisztika feltételes optimalizálása lehetővé tette azon integrált detektor paraméterek meghatározását, amelyekkel nagy abszorpció ($A > 0.9$) és egységhez közeli polarizáció kontraszt (PC ~ 1) érhető el közel merőleges beesésben egy plazmonikus áteresztő sávon belől, a p-polarizáció esetében az MIM módusokkal csatolással erősítve (1(b) és 1(c) ábrák).

A vertikális falú NCTAI-X köztes abszorptanciát mutat a legnagyobb sáv szélesség mellett (2(a) ábra). A döntött falú NCTAI-XX mutatja a legkisebb poláris szögben integrált PC-t azonban ezt köztes abszorpció, köztes hullámhosszban és legnagyobb azimutális szögben integrált PC kíséri (2(b) és 2(c) ábrák). Az NCDDAI-X teszi lehetővé a legnagyobb abszorpció elérését zérus elhangolással és közel egységnyi PC értéket merőleges beesésnél a legszélesebb spektrális tartományban, továbbá köztes azimutális szögben, de legkisebb hullámhosszban integrált PC értéket. Hátrányai a döntésre való érzékenység, és a kis sáv szélesség az abszorpcióban.

Újabb vizsgálataink szerint az NCTDAI-O abban az esetben tud kompetitív lenni, amikor az MIM üregek hosszát kompenzáljuk, amely lehetővé teszi az egységhez közeli abszorpció elérését. Az NCTDAI-O mutatja a legkisebb átlagos NbN abszorpciót és sáv szélességet, a legnagyobb poláris szögben és hullámhosszban integrált PC értéket, azonban a legalacsonyabb azimutális szögben integrált PC devianciájának és szegmens specifikus érzékenységének köszönhetően specifikus alkalmazások céljaira megfelelő választásnak bizonyulhat.



2. ábra

A vizsgált SNSPD rendszerekben az NbN/Au korrelációja az (a) NbN abszorpció és (b) polarizáció kontraszt értékekkel; (c) az integrált polarizációkontraszt értékek.

3. Plazmonikus nanorezonátorokkal erősített egyfoton források

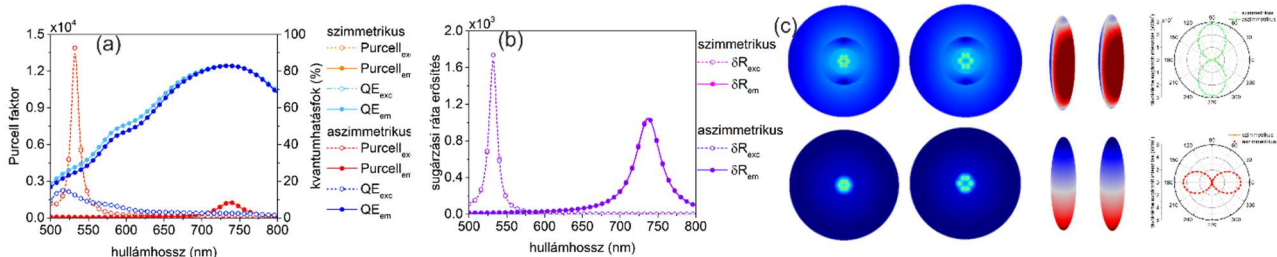
A gyémántba implementálható nitrogén (NV) és szilícium (SiV) színcentrumok emissziójának erősítésére különböző individuális és dimer plazmonikus nanorezonátorokat terveztünk. A gerjesztés és emisszió hullámhosszán megadott teljes sugárzási ráta erősítések (P_x faktor) és az emisszió megadott korrigált kvantumhatásfok (cQE) szorzatának maximalizálása vezetett a leghatékonyabb konfigurációkra. Gyémánttal bevont ezüst és arany individuális és dimer nanorudakat, valamint ezüst és arany héjba zárt gyémánt magot tartalmazó nanorezonátor konfigurációkat optimalizáltunk a színcentrumok emissziójának erősítésére. Az ezüst nanorezonátorokkal a gerjesztés is erősíthető, ugyanakkor mindkét fém alkalmas az emisszió erősítésére. Az emisszió erősítése mellett az SiV színcentrum intrinsic kvantumhatásfokánál jobb hatékonyságot mutató csatolt emitter-nanorezonátor rendszerek is tervezhetők specifikus kvantuminformaticai célokra [3, 4].

Szuperradiancia akkor következik be, amikor N emitter kooperativitásának eredményeként a sugárzási ráta N -szeresére növekedik, így az emisszió N^2 -el lesz arányos. Plazmonikus Dicke effektus szilárd fém nanorészecskék körül elrendezett, és mag-héj nanorezonátorokba helyezett emitterek esetében is előidézhető. A konvex mag-héj nanorezonátorokban a több mediáló plazmonikus módus létezése miatt az irodalom szerint elérhető ráta $N/3$ -al arányos. A konkáv nanorezonátoroknál a sugárzás távöltérbe jutását is biztosítani szükséges.

Az SiV színcentrumok ideális jelöltek kooperatív fluoreszcencia (szupersugárzás) demonstrálására is a gerjesztésen és emisszió egymásra merőleges dipólusmomentumuknak köszönhetően. Gyémánt-ezüst (csupasz) és gyémánt-ezüst-gyémánt (bevont) nanorezonátorokat optimalizáltunk, amelyekben 4 vagy 6 SiV színcentrumot helyeztünk el szimmetrikus és aszimmetrikus rektanguláris és hexagonális mintázatban (csupasz/bevont_SiV darabszám formátumban hivatkozva).

A szférikus és ellipszoidális geometria összehasonlítása során az állításokat az ellipszoidális geometriára fogalmaztuk meg. A csupasz/bevont ellipszoidális nanorezonátorok kisebb/nagyobb kvantumhatásfokot és nagyobb Purcell faktor tesznek lehetővé a két/egy nagyságrenddel nagyobb felhalmozott töltéssűrűségnek megfelelően, így nagyobb gerjesztési ráta növekedést eredményeznek (kivéve az aszimmetrikus mintázat a bevont_6 nanorezonátorokban). A nagyobb kvantumhatásfok, kétszer/egy nagyságrenddel kisebb töltéssel korreláló kisebb Purcell faktor kisebb emisszió erősítést és távöltérbe kisugárzást tesz lehetővé (3. ábra).

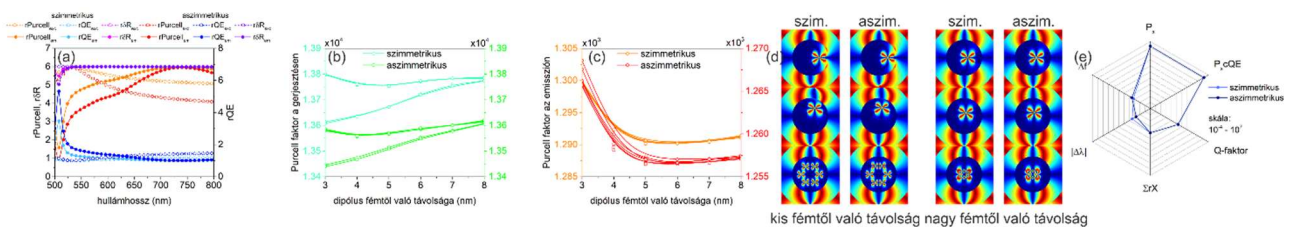
A spektrális válaszok félértékszélessége nagyobb, ennek megfelelően a Q faktor több mint kétszer kisebb, ami jobban definiált bad-cavity karakterisztikát bizonyít. Az ellipszoidális nanorezonátorok nagyobb frekvenciahúzást mutatnak a kisebb Q faktornak köszönhetően, ami korrelál a jobb szuperradiancia jósággal. A szuperradiancia minden nanorezonátorral széles tartományban elérhető (4(a) ábra). A lasing jelenség szempontjából fontos vonalszélesség csökkenés is megfigyelhető minden szimmetrikus mintázat esetében (kivéve a bevont_4 ellipszoidális nanorezonátort). Aszimmetrikus mintázatokra vonalszélesség csökkenés a csupasz (szférikus) ellipszoidális nanorezonátorokban (sugárzási ráta növekményben) Purcell faktorban figyelhető meg, míg a bevont nanorezonátorok közül csak az ellipszoidálisok esetében, de ott mindkét mennyiségben bekövetkezik.



3. ábra

A legjobb szuperradiancia karakterisztikát mutató 6 SiV színcentrumot szimmetrikus és nem-szimmetrikus elrendezésben tartalmazó csupasz nanorezonátorok (a) kvantumhatásfoka és Purcell faktora, (b) sugárzási ráta erősítése, (c) a létrejövő töltés, köztér és távöltér eloszlás.

Kimutattuk, hogy a szimmetrikus és nem-szimmetrikus mintázatban elhelyezett 4 SiV színcentrum megkülönböztethetetlen. Ezzel ellentétben a 6 SiV színcentrum a gerjesztésen két megkülönböztethető, 2- és 4-szeres degenerációt mutató ágra hasad, amelyek a csupasz / bevont esetekben eltérő / hasonló Purcell faktor tendenciát mutatnak a szférikus és ellipszoidális nanorezonátorokban (4(b) és 4(c) ábrák). Ennek oka a mező távolságfüggő át-polarizálása (4(d) ábra). A szuperradiancia jellemzésére választott 6 mennyiség (P_x , P_{xcQE} , Q , $\Sigma\delta X$, $\Delta\lambda$, Δf) mindegyike jobb az ellipszoidális nanorezonátorokban, kivéve az elhangolás néhány optimalizált esetben. Mindezek alapján az ellipszoidális nanorezonátorok javasolhatók szupersugárzás elérésére (4(e) ábra).



4. ábra

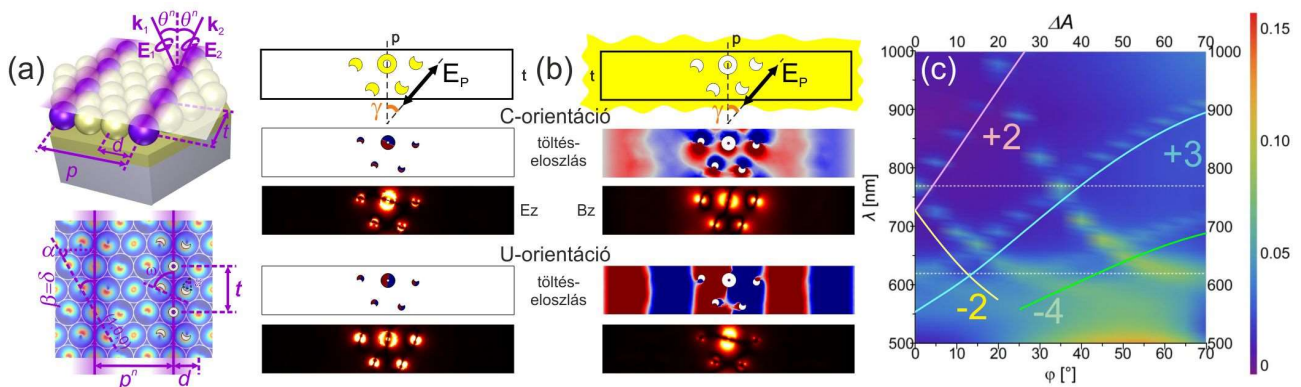
A legjobb szuperradiancia karakterisztikát mutató 6 SIV színcentrumot szimmetrikus és nem-szimmetrikus elrendezésben tartalmazó csupasz nanorezonátorok (a) relatív optikai jel erősítés, (b) Purcell faktor távolságfüggése a gerjesztésen és (c) emisszió, (d) átpolarizálás jelenségének távolságfüggése, (e) a szuperradiancia jósága.

Az analóg szimmetrikus mintázatokat tartalmazó szférikus nanorezonátorokhoz képest megfogalmazva az állításokat az aszimmetrikus mintázatokat tartalmazó nanorezonátorokra: a gyémánt-fém mag-héj nanorezonátorokban kisebb P_x és $P_x \cdot cQE$, míg a jobban definiált bad-cavity karakterisztikával hatékonyabb szuperradiancia érhető el, de nagyobb elhangolással. Ezzel ellentétben a gyémánttal bevont mag-héj nanorezonátorokban minden reláció megfordult, kivéve a szuperradiancia hatékonyságát, ami nem mutat mintázat szimmetriától függést.

A nem-szimmetrikus mintázatok a csupasz ellipszoidális rezonátorokban kisebb (ugyanakkora) P_x és $P_x \cdot cQE$ értéket, jobban definiált bad-cavity karakterisztikát, jobb szuperradiancia hatékonyságot, és kisebb elhangolást eredményeznek négy (hat) színcentrum esetében. A négy (hat) emitter nem-szimmetrikus mintázatát tartalmazó gyémánttal bevont ellipszoidális nanorezonátorokban ugyanakkora (nagyobb) P_x és $P_x \cdot cQE$ érték kisebb elhangolással és hatékonyabb szuperradiancia megvalósítással érhető el a kisebb (nagyobb) Q faktossal összhangban (ellentmondásban) (4. ábra).

4. Komplex plazmonikus struktúrák emitterek erősítésére

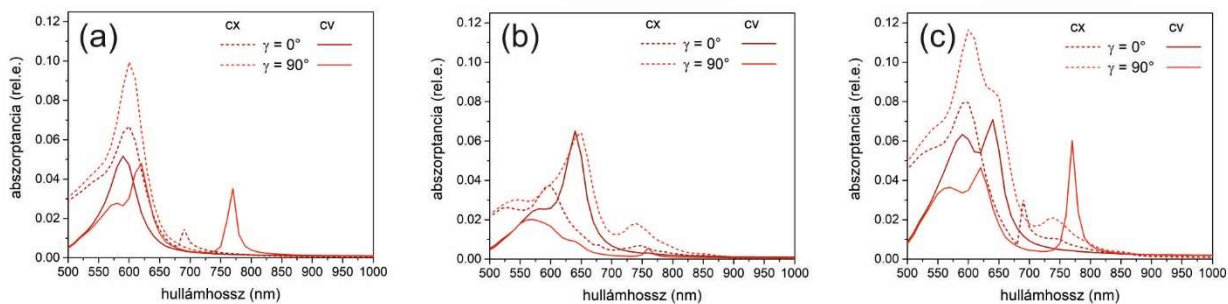
A kolloidgömb monorétegek interferáló nyalábokkal történő kivilágításával megvalósítható integrált litográfiával létrehozható komplementer konkáv és konvex nano-objektumokból felépülő struktúrák spektrális és köztérbeli hatásait vizsgáltuk. Olyan komplex struktúrákat tanulmányoztunk, amelyek a 100 nm átmérőjű arany kolloidgömbök 60° azimutális orientációban elhelyezett monorétegének 400 nm-es cirkulárisan polarizált fényel történő kivilágításával hozhatók létre, két 12.83° szögben beeső interferáló nyalábbal (5. ábra) [5, 6].



5. ábra

(a) Az integrált litográfia realizálása cirkulárisan polarizált fényel és a létrehozható mintázatok karakterisztikus geometriai paraméterei, (b) a komplex struktúrák egységcellája, töltés és köztér eloszlás a globális maximumoknál a C (felől) és U (alól) rezonanciát eredményező azimutális orientációban a (balról) konvex és (jobbról) konkáv $p=900$ nm periódusú mintázaton, (c) a $p=900$ nm periódusú konkáv mintázat diszperziós karakterisztikája.

A spektrumszerkesztésre alkalmas lehetőségek demonstrálása céljából az analóg minimintázatokból felépülő konvex és konkáv $p=900$ nm periódusú rektanguláris struktúrákat p-polarizált fényel világítottuk ki komplementer azimutális orientációkban. A 0° és 90° azimutális orientációkat vizsgáltuk az elfogatott nanoholdakon ún. „U” és „C” típusú lokalizált felületi plazmon rezonanciát (Localized Surface Plasmon Resonance: LSPR) hatékonyabban eredményező 16° és 106° helyett, mivel a rektanguláris mintázatokon ezekben az irányokban leghatékonyabb a rács-csatolás. A vizsgált spektrális tartományban a $p=900$ nm struktúra periódus okozhat csatolást, míg a $t=173$ nm vertikális periódus nem eredményez modulációt. A \mathbf{k}_p vektorral párhuzamosan kisugározott fotonikus módus a 0° azimutális orientációban a konvex mintázaton eredményezhet rács-csatolást (Surface Lattice Resonance), míg a konkáv mintázatokon a terjedő SPP módus a \mathbf{k}_p rács-vektorral 90° azimutális orientáció esetében csatolható (5. ábra).



6. ábra

Centrális nanogyűrűből, (b) nanoholdakból és (c) az ezekből képezett minimintázatokból felépülő $p=900$ nm periódusú rektanguláris struktúrák abszorptanciája a komplementer azimutális orientációkban.

A konvex és konkáv centrális nanogyűrűből képezett rektanguláris struktúrán a periódustól függetlenül egy maximum (600 nm és 590 nm) jelenik meg a 90° és 0° ($\sim C$) azimutális orientációban. A konvex mintázaton a 0° ($\sim U$) azimutális orientációban az LSPR-hez (600 nm) közeli spektrális tartományban SLR eredetű maximum jelenik (690 nm) meg. A konkáv gyűrű-mintázaton a 90° ($\sim U$) azimutális orientációban lokális-globális maximumpár jelenik meg (580 nm, 620 nm) a lokalizált rezonancia valamint a periodikus struktúrán terjedő SPP harmadrendben csatolása hatására. Mindemellett egy lokális maximum is megfigyelhető (770 nm), ami SPP másodrendű rács-csatolására vezethető vissza. Ezen fotonikus (plazmonikus) csatolások azért hatékonyak, mert 0° (90°)-ban oszcillál az \mathbf{E} -mező a p periódushoz tartozó \mathbf{k}_p rácsvektorra merőlegesen (párhuzamosan) (6a. ábra).

A 6 konvex (konkáv) nanoholdból képezett mintázatot tartalmazó rektanguláris struktúrán a periódustól függetlenül két maximum között egy váll (530nm-590nm-650nm) (egy váll és egy maximum (580nm-640nm)) jelenik meg a 90° (0°) ($\sim C$) azimutális orientációban. A lokális – globális maximum az irodalom szerinti C2 és C1 rezonanciához tartozik, a C2 rezonancia a konkáv mintázat abszorpcióján a film abszorpciójának kivonása miatt nem azonosítható. Az 0° (90°) ($\sim U$) azimutális orientációban a részecske plazmon rezonancia (530 nm) után egy széles maximum jelenik meg (600 nm (570 nm)), amely az irodalom szerinti U rezonanciához tartozik. Mindemellett kisebb moduláció (675 nm (640 nm)) is megfigyelhető a konvex (konkáv) mintázaton, azonban ennek szimmetria okból nem rács-csatolás az oka. A nanogyűrűtől eltérően a 0° (90°) ($\sim U$) azimutális orientációban a maximum modulációjához az vezet, hogy a vertikális (horizontális) irányban oszcilláló \mathbf{E} -mező lehetővé teszi a C1 rezonancia kereszt-csatolását. A további lokális maximum (750 nm (760nm)) közeledő csatolásra és a fotonikus (plazmonikus) módus gyenge másodrendben szórására vezethető vissza (6b. ábra).

A minimintázatok spektrális válasza a centrális nanogyűrű és szatellita nanoholdak válaszához összehasonlítva csak kismértékben különbözik, ami arra utal, hogy a nano-objektumok között csak gyenge csatolás van. A holdak C2-C1 rezonanciája, valamint a gyűrűn és minimintázaton U orientációban bekövetkező LSPR és SPP harmadrendű csatolás hatására megjelenő modulációk nagyon hasonlóak (6c. ábra).

Minden struktúrára teljesül, hogy a konvex abszorptancia $0^\circ/90^\circ$ azimutális orientációban megfeleltethető a konkáv abszorptanciának $90^\circ/0^\circ$ azimutális orientációban, továbbá a töltés és közeltér eloszlások is komplementerek. Az eredmények igazolják, hogy az integrált litográfiával létrehozható mintázatokkal plazmonikus spektrumszerkesztés valósítható meg. EOT jelenség érhető el kontrollálható polarizáció érzékenységgel specifikus spektrális tartományokban. További vizsgálatok vannak folyamatban a geometria paraméterek variálásával determinálható meta-anyag karakterisztika feltérképezése céljából.

5. Összefoglalás

A kétdimenziós plazmonikus rácsok egyfoton detektorokba integrálásával megvalósítható az abszorpció maximalizálása és a polarizáció kontraszt is kontrollálható szimultán. Az egyfoton források plazmonikus nanorezonátorokban erősítésekor a nem-kooperatív fluoreszcencia növekedés / szupersugárzás optimalizálásához előnyösebb a nagyobb számú emitter, bevont/csupasz szférikus és csupasz/bevont ellipszoidális kompozíció, és az ellipszoidális geometria. A komplex struktúrákon is teljesül, hogy a konvex abszorptancia (reflectancia/transmittancia) komplementer azimutális orientációban megfelel a konkáv abszorptancia (transmittancia/reflektancia) jelnek, ami bizonyítja, hogy a komplementer mintázatokat komplementer nyalábokkal kivilágítva az optikai válaszok felcserélődnek a Babinet elvnek megfelelően. Mindemellett a töltés és közeltér eloszlása is analóg a komplementer orientációban, ami lehetővé teszi fluoreszcens emitterek kontrollált erősítését.

Köszönetnyilvánítás

A projekt a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatal támogatásával, az NKFI Alapból, „Optimalizált nanoplazmonika” (K116362) és az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával „Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben” EFOP-3.6.2-16-2017-00005 valósul meg.

Irodalom

- [1] M. Csete, A. Szenes, D. Marácz, B. Bánhelyi, T. Csentes, and G. Szabó, *IEEE Photonics J.* **9**, 2, 1-11 (2017)
<https://doi.org/10.1109/JPHOT.2017.2690141>
- [2] B. Tóth, A. Szenes, D. Marácz, B. Bánhelyi, T. Csentes, and M. Csete, *IEEE J. Sel. Top. Quant.* **26**, 3, 3900309 (2020)
<https://doi.org/10.1109/JSTQE.2020.2987131>
- [3] A. Szenes, B. Bánhelyi, L. Zs. Szabó, G. Szabó, T. Csentes, and M. Csete, *NPG Sci. Rep.* **7**, 13845 (2017)
<https://doi.org/10.1038/s41598-017-14227-w>
- [4] D. Vass, A. Szenes, B. Bánhelyi, T. Csentes, G. Szabó, M. and Csete, *Opt. Express*, **27**, 22, 31176-31192 (2019)
<https://doi.org/10.1364/OE.27.031176>

[5] Á. Sipos, E. Tóth, O. Fekete, and M. Csete, Plasmonics, (2020) <https://rdcu.be/caSJJ>,
<https://doi.org/10.1007/s11468-020-01235-2>

[6] E. Tóth, Á. Sipos, O. Fekete, and M. Csete, Plasmonics, (2020) <https://rdcu.be/caL6q>,
<https://doi.org/10.1007/s11468-020-01298-1>