

Моды шепчущей галереи в сферическом микрорезонаторе с фотолюминесцентной оболочкой

© С.А. Грудинкин^{†*}, А.А. Донцов⁺, Н.А. Феоктистов^{†*}, М.А. Баранов^{*},
К.В. Богданов^{*}, Н.С. Аверкиев⁺, В.Г. Голубев⁺

⁺ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

^{*} Университет ИТМО,
197101 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 1 апреля 2015 г. Принята к печати 9 апреля 2015 г.)

Исследованы спектры мод шепчущей галереи в оптических микрорезонаторах, представляющих собой кремнеземные сферические частицы, покрытые тонкой фотолюминесцентной оболочкой из аморфного гидрогенизированного карбида кремния. Проведен расчет спектральных положений мод шепчущей галереи в сферических микрорезонаторах с оболочкой. Изучена зависимость спектрального расстояния между ТЕ- и ТМ-модами от толщины оболочки.

1. Введение

Оптические микрорезонаторы (МР) с модами шепчущей галереи (МШГ, WGM), в которых локализация фотонных мод происходит за счет полного внутреннего отражения от границы МР, имеют большие перспективы применения в новых поколениях оптоэлектронных приборов и системах биологического детектирования [1–4]. Микрорезонаторы с модами шепчущей галереи характеризуются высокой добротностью в широком диапазоне длин волн и малым эффективным объемом локализации фотонных мод.

Высокая чувствительность МШГ к изменению граничных условий на поверхности МР обусловлена локализацией электромагнитного поля МШГ вблизи поверхности и проникновением части поля за пределы МР в окружающее пространство [2,5]. Следствием этого является возможность использования МР с МШГ в качестве поверхностных оптических сенсоров [2,4]. Действие сенсоров на основе МШГ заключается в измерении сдвига спектрального положения резонансных линий МШГ при адсорбции вещества на поверхность МР [2,5,6]. Сдвиг резонансной линии возникает из-за взаимодействия осажденного на поверхность МР объекта с затухающим полем МШГ [2,5]. Для сферических МР сдвиг положения резонансных линий МШГ можно рассматривать как следствие изменения радиуса и показателя преломления при адсорбции объекта на поверхность [5,7].

Как следует из теории возмущений, чувствительность сенсора на основе МШГ к адгезии внешних объектов тем выше, чем сильнее поле проникает за пределы МР [7]. Для сферических МР с МШГ величина сдвига резонансной линии при адсорбции вещества на его поверхности обратно пропорциональна радиусу МР [8]. В работах [8,9] показана высокая чувствительность МШГ к адсорбции биологических объектов для сферических МР диаметром несколько микрометров. Так, в [8] удалось достичь предела чувствительности ~ 3 фемтограмм

для сферического МР диаметром ~ 2 мкм. Увеличения чувствительности к адсорбированным объектам можно добиться путем создания на поверхности МР оболочки с большим показателем преломления [10,11]. Влияние параметров оболочки МР на добротность и чувствительность к изменению внешних условий обсуждаются в работах [10–12].

Настоящая работа посвящена исследованию спектра МШГ в МР, представляющем собой сферическую частицу, покрытую тонкой фотолюминесцентной оболочкой с показателем преломления больше, чем у частицы. Спектральное положение резонансных линий в экспериментальных спектрах фотолюминесценции (ФЛ) описано в рамках модели МШГ для однородного шара, покрытого тонкой оболочкой. Измерения поляризационных спектров ФЛ позволили идентифицировать принадлежность резонансных линий ТЕ- и ТМ-модам МР.

2. Методика эксперимента

В работе для создания МР использовались монодисперсные сферические частицы кремнезема ($a\text{-SiO}_2$) диаметром $D = (3.5 \pm 0.15)$ мкм. Способ изготовления сферических частиц изложен в [13]. Сферические частицы $a\text{-SiO}_2$ наносились на поверхность подложки методом аэрозольного распыления водной суспензии [14]. Оболочкой МР являлась пленка аморфного гидрогенизированного карбида кремния ($a\text{-SiC:H}$). Сферические частицы покрывались оболочкой $a\text{-SiC:H}$ методом плазмохимического газофазного осаждения [15]. Пленки $a\text{-SiC:H}$ прозрачны в видимой области спектра и обладают стабильной ФЛ при комнатной температуре [16]. Вещественная часть показателя преломления $a\text{-SiC:H}$ (n_s) в диапазоне длин волн от 550 до 800 нм находится в пределах от 3.1 до 2.1 [15]. Вещественная часть показателя преломления $a\text{-SiO}_2$ (n_b) равна ~ 1.46 . В данной работе исследовались МР с толщинами оболочки $a\text{-SiC:H}$, равными 15 и 30 нм.

[†] E-mail: grudink@gvg.ioffe.ru

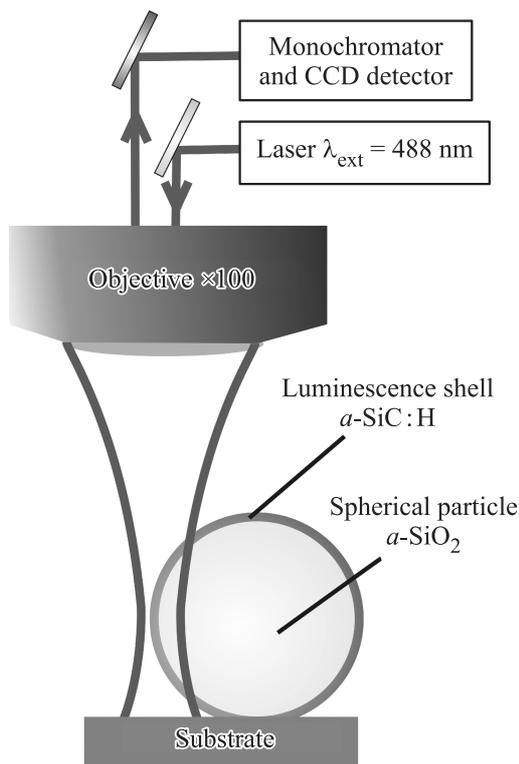


Рис. 1. Схема измерения спектров мод шепчущей галереи в сферическом микрорезонаторе.

В качестве плоской подложки применялись пластины монокристаллического кремния КДБ-10. Для проведения поляризационных измерений в качестве подложки для МР использовались пластины монокристаллического кремния (КЭФ-15) ориентации (100) со сформированными на их поверхности методом анизотропного травления параллельно расположенными канавками, имеющими V-образный профиль [17]. Угол между боковыми стенками канавок $\sim 70.5^\circ$, наибольшее расстояние между стенками канавок ~ 1.6 мкм, расстояние между канавками ~ 3.4 мкм.

Возбуждение и регистрация спектров ФЛ проводились при комнатной температуре в геометрии обратного рассеяния с использованием спектрометра микро-КР „inVia Renishaw“ с микрообъективом Leica $\times 100$ и охлаждаемым до -70°C многоканальным детектором, позволяющим осуществлять регистрацию спектров со спектральным разрешением $\sim 3\text{ см}^{-1}$. Для возбуждения использовалось линейно поляризованное излучение с длиной волны 488 нм аргонового ионного лазера, фокусируемое на частицу в пятно диаметром ~ 1 мкм. В работе [18] показано, что максимальная регистрируемая интенсивность МШГ в режиме конфокального микроскопа достигается при детектировании сигнала с края сферической частицы. Поэтому микроскоп, с помощью которого вводилось в МР возбуждающее лазерное излучение и детектировалась ФЛ, фокусировался в край

одиночного сферического МР, как это показано на рис. 1. Путем тонкой подстройки по высоте достигалась максимальная интенсивность сигнала МШГ. Мощность сфокусированного возбуждающего излучения была минимизирована до ~ 5 мкВт во избежание необратимого изменения материала оболочки МР из-за теплового воздействия излучения. Для получения изображений МР использовался сканирующий электронный микроскоп (СЭМ) Merlin (Carl Zeiss, Германия).

3. Результаты и их обсуждение

В работе [10] получены характеристические уравнения для МШГ в шаре, покрытом оболочкой (показатель преломления материала оболочки больше, чем шара). Эти уравнения позволяют рассчитать спектральное положение мод как типа ТМ, так и типа ТЕ. Моды ТЕ не имеют радиальной составляющей электрического поля, моды ТМ не имеют касательной к поверхности шара составляющей электрического поля. Физические различия между ТЕ- и ТМ-модами в МР проявляются из-за различия граничных условий для ТЕ- и ТМ-мод, обусловленных разными направлениями электрического поля на границе МР. Поляризационное расщепление собственных частот оптических ТЕ- и ТМ-мод также наблюдалось в планарных МР Фабри–Перо [19,20].

Для демонстрации влияния оболочки на спектральное положение МШГ в сферическом МР с использованием характеристических уравнений из [10] проведены расчеты спектральных положений мод в зависимости от толщины оболочки. Результаты показаны на рис. 2: по оси абсцисс отложена толщина оболочки на поверхности шара, по оси ординат отложено спектральное положение соответствующей моды. При расчете зависимостей $l-5$ и 7 вещественные части показателей преломления оболочки и шара принимались равными соответственно $n_s = 2.25$ и $n_b = 1.46$. Расчет выполнен для мод с полярными индексами 22, 23, 24. В приближении волновой оптики полярный индекс соответствует числу длин волн, укладывающихся на окружности шара. Из рис. 2 видно, что спектральное расстояние между ТЕ- и ТМ-модами с одинаковыми полярными индексами заметно возрастает по мере увеличения толщины оболочки МР. Отметим, что когда оболочка отсутствует, простое увеличение радиуса шара не приводит к такому заметному росту спектрального расстояния. Для демонстрации этого факта на рис. 2 (кривые b и 8) также приведены спектральные положения мод ТЕ23 и ТМ23 в случае, когда показатель преломления оболочки был принят равным показателю преломления шара.

В геометрическом приближении МШГ представляют собой волну, распространяющуюся в узком слое внутри МР вдоль его внутренней поверхности и испытывающую многократное полное внутреннее отражение. МШГ проникают за пределы поверхности МР в окружающее пространство в виде затухающей волны.

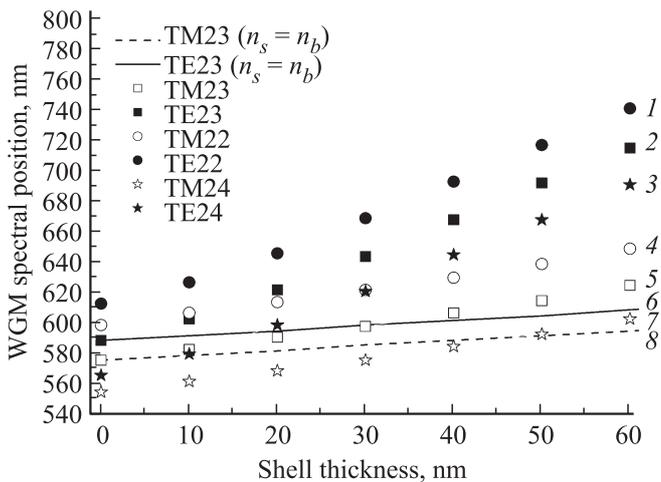


Рис. 2. Рассчитанная зависимость спектрального положения МШГ от толщины оболочки сферического МР для ТЕ- и ТМ-мод с полярными индексами 22, 23, 24. Показатель преломления шара 1.46, оболочки 2.25 (1–5, 7) и 1.46 (6, 8).

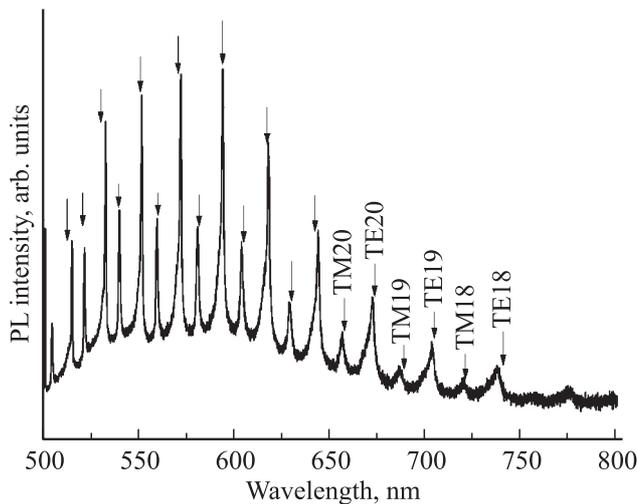


Рис. 3. Спектр фотолюминесценции МР, представляющего собой сферическую частицу α -SiO₂. Стрелками показаны рассчитанные положения МШГ и указаны полярные индексы ТЕ- и ТМ-мод.

Благодаря проникновению МШГ за границу, разделяющую МР и окружающую среду, происходит смещение отраженной от поверхности МР волны относительно падающей (эффект Гуса–Хенхена), величина которого зависит от типа поляризации моды (ТМ или ТЕ) [21]. Такое смещение можно рассматривать как эффективное увеличение радиуса сферического МР. Таким образом, для ТЕ- и ТМ-мод величина эффективного радиуса МР будет различной и, как следствие, будет различным их спектральное положение.

Моды шепчущей галереи локализованы у внутренней поверхности МР, поэтому нанесение даже тонкой оболочки на поверхность МР приводит к значительным изменениям условий резонанса. С ростом толщины

оболочки МР спектральное расстояние между модами ТЕ и ТМ возрастает заметно сильнее по сравнению со спектральным расстоянием между модами ТЕ и ТМ в МР без оболочки, в котором радиус МР увеличен на значение, равное толщине оболочки (рис. 2).

На рис. 3 приведен спектр ФЛ МР, представляющего собой сферическую частицу α -SiO₂ без оболочки на плоской подложке. Источником ФЛ в этом случае могут являться, например, ОН-группы в составе сферических частиц α -SiO₂ [22]. Спектральное положение острых линий в спектре ФЛ соответствуют МШГ для однородного шара. На рис. 3 стрелками показано положение МШГ, полученных подгонкой рассчитанных положений резонансных линий к наблюдаемым экспериментально. Отметим, что спектральное положение МШГ очень сильно зависит от параметров МР — размера и показателя преломления. Независимые измерения параметров конкретного МР провести затруднительно. Однако известно, что среднеквадратичное отклонение диаметров для различных сферических частиц составляет не более 5% [13]. Тем не менее даже при таком разбросе размеров МР спектральное положение МШГ различается для различных МР. Поэтому при подгонке рассчитанных положений резонансных линий к полученным экспериментально необходимо варьировать следующие параметры: диаметр сферической частицы α -SiO₂, ее показатель преломления и показатель преломления α -SiC:H в МР с оболочкой. Для этого следует провести подбор параметров внутри допустимых значений исходя из известной погрешности. Подбор параметров был осуществлен методом минимизации среднеквадратичного отклонения спектрального положения резонансных ТЕ- и ТМ-мод в расчетном спектре от их положения в экспериментальном спектре. Указанные выше параметры изменялись, пока не достигался минимум среднеквадратичного отклонения, либо пока не достигалась граница погрешности для одного из параметров. Для поиска минимума среднеквадратичного отклонения существует большое количество принципиально различных методов. Для наших целей плохо подходит класс градиентных методов, и поэтому в данной работе использовался метод Нелдера–Мида, который не требует вычисления градиентов [23]. Параметры МР без оболочки, полученные в результате подгонки, были следующими: $D = 3.60$ мкм и $n_b = 1.44$. Наблюдаемая в эксперименте меньшая интенсивность ФЛ резонансных линий ТМ-мод по сравнению с ТЕ-модами связана с тем, что поле ТМ-мод больше проникает за пределы МР и, следовательно, оказывается более чувствительным к рассеянию на неоднородностях поверхности МР.

В спектрах ФЛ для МР с оболочкой толщиной 15 и 30 нм (рис. 4, *a, b*) на фоне широкой полосы ФЛ также наблюдаются узкие интенсивные линии. Полученные подгонкой спектральные положения ТМ- и ТЕ-мод отмечены на рис. 4, *a, b* стрелками. В расчете варьируемыми параметрами при подгонке являлись показатель преломления оболочки α -SiC:H (n_s), показатель преломления

сферической частицы $a\text{-SiO}_2$ (n_b) и ее диаметр (D). Полученные в результате подгонки параметры МР для оболочки толщиной 15 нм были следующими: $n_s = 2.25$, $n_b = 1.46$ и $D = 3.5$ мкм; для оболочки толщиной 30 нм: $n_s = 2.20$, $n_b = 1.46$ и $D = 3.46$ мкм. Небольшие различия между рассчитанными (полученными подгонкой) значениями положения МШГ и экспериментальными, по-видимому, связаны с искажением модовой структуры МР из-за возможного небольшого отклонения формы МР от сферической, а также из-за взаимодействия МШГ с подложкой [24]. Чем больше толщина оболочки $a\text{-SiC:H}$, тем значительнее будет отклонение формы МР от сферической, что обусловлено неоднородностью осаждения $a\text{-SiC:H}$. Утечка МШГ в подложку также приводит к уменьшению добротности МР.

Из приведенных на рис. 2 результатов расчета зависимостей спектральных положений МШГ от толщины оболочки видно, что возможны совпадения спектральных положений ТЕ- и ТМ-мод с разными полярными индекса-

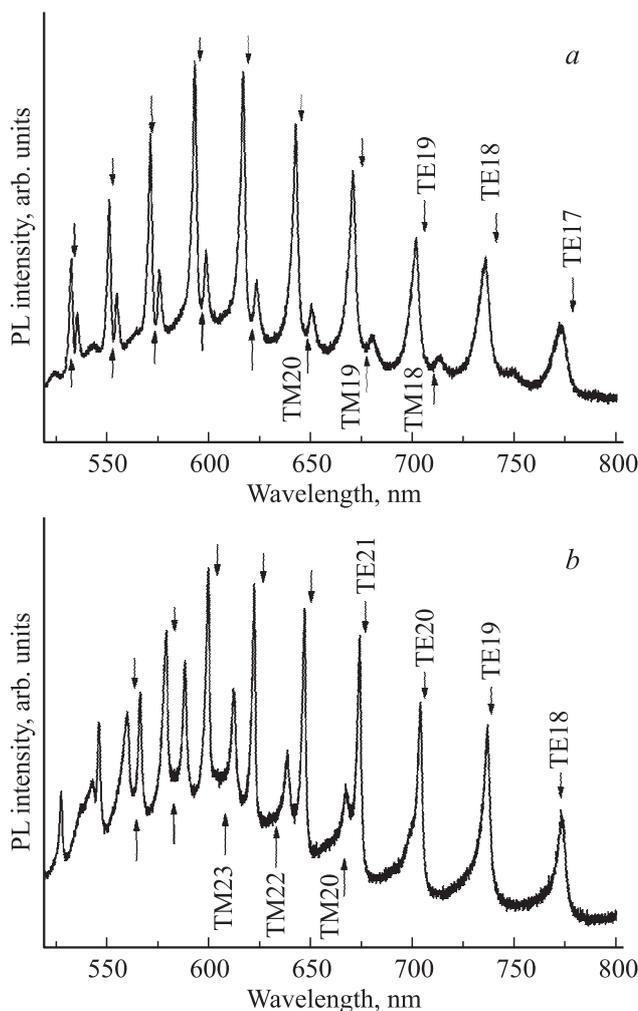


Рис. 4. Спектры фотолюминесценции МР с оболочкой $a\text{-SiC:H}$ толщиной 15 нм (а) и 30 нм (б) на плоской подложке. Стрелками показаны рассчитанные положения МШГ и указаны полярные индексы ТЕ- и ТМ-мод.

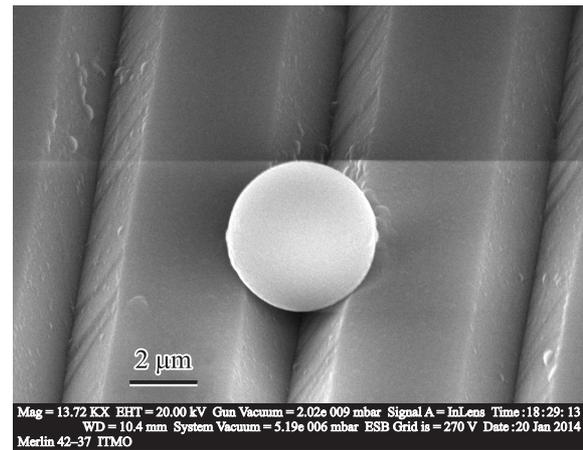


Рис. 5. СЭМ-изображение микрорезонатора на кремниевой подложке с канавками, имеющими V-образный профиль.

ми. В этом случае при анализе экспериментальных спектров ФЛ трудно определить принадлежность некоторых близко расположенных линий. Эта задача может быть решена путем проведения измерений поляризационных спектров ФЛ, которые позволяют экспериментально различить принадлежность резонансных линий в спектре ФЛ, относящихся к ТЕ- или ТМ-модам.

В нашем эксперименте размер области, с которой происходит регистрация сигнала ФЛ (~ 1 мкм), соизмерим с размером МР (~ 3.5 мкм). Это приводит к тому, что при расположении МР на плоской подложке регистрируемый сигнал ФЛ дают вклад МШГ с разными азимутальными индексами. В этом случае в поляризационных спектрах интенсивности линий, соответствующих ТЕ- и ТМ-модам, практически не отличаются друг от друга.

Чтобы экспериментально различить ТЕ- и ТМ-моды в спектрах фотолюминесценции, МР помещались на канавку с V-образным профилем (рис. 5). Для этого первоначально сферические частицы $a\text{-SiO}_2$ наносились методом аэрозольного распыления водной суспензии на поверхность кремниевой подложки с канавками, имеющими V-образный профиль. Затем сферические частицы покрывались оболочкой $a\text{-SiC:H}$ методом плазмохимического газофазного осаждения. В этом случае МР имел две точки касания с боковыми стенками канавки. В результате вклад в сигнал ФЛ, связанный с МШГ, распространяющимися в плоскости вдоль канавки, значительно больше вклада в сигнал ФЛ от МШГ, распространяющихся в плоскости, поперечной канавке [25]. Излучение фокусировалось на край МР в точку, равноудаленную от обоих краев щели. Измерения поляризационных спектров проведены для МР с оболочкой толщиной 30 нм. Регистрация спектров ФЛ проводилась как при отсутствии поляризатора, так и при двух взаимно перпендикулярных положениях поляризатора X или Y (см. вставку на рис. 6). Спектры на

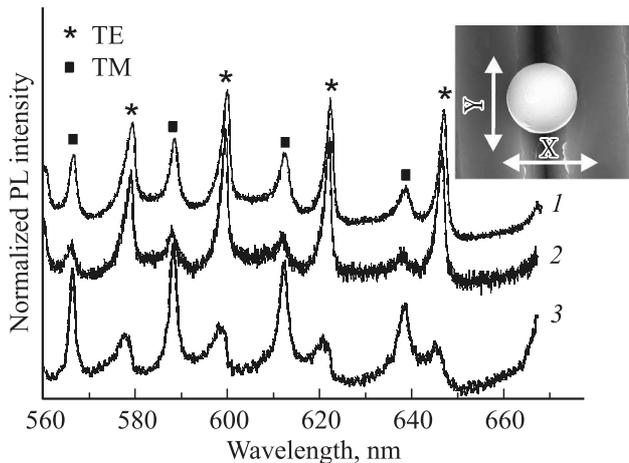


Рис. 6. Спектры фотолюминесценции (PL) МР с оболочкой *a*-SiC:H толщиной 30 нм без поляризатора (1) и с поляризатором в положениях X (2), Y (3). МР находится на канавке с V-образным профилем. На вставке — показаны положения поляризатора X и Y относительно канавки.

рис. 6 нормированы и для наглядности сдвинуты друг относительно друга по оси ординат. При положении поляризатора, обозначенном X, детектируется излучение, поляризованное поперек стенки канавки (рис. 6); соответственно при положении поляризатора, обозначенном Y, детектируется излучение, поляризованное вдоль канавки. Из приведенных на рис. 6 спектров видно, что в зависимости от положения поляризатора (X или Y) изменяется относительная интенсивность линий ФЛ. При положении поляризатора X наиболее интенсивными являются ТЕ-моды, при положении Y — ТМ-моды.

4. Заключение

В работе исследованы особенности спектров МШГ в оптических МР, представляющих собой сферические частицы из *a*-SiO₂, покрытые тонкой оболочкой из фотолюминесцентного *a*-SiC:H с показателем преломления (~ 2.4) больше, чем у частиц (~ 1.46). Расчет спектрального положения МШГ в модели МР с оболочкой позволил идентифицировать полярные индексы резонансных мод в экспериментальных спектрах фотолюминесценции МР с толщиной оболочки 15 и 30 нм. Проведение измерений поляризационных спектров ФЛ из МР на подложке с канавками, имеющими V-образный профиль, позволило экспериментально различить принадлежность всех наблюдаемых резонансных линий в спектре ФЛ к ТЕ- или ТМ-модам.

Показано, что даже тонкая оболочка (много меньше длины волны излучения) оказывает существенное влияние на спектральное положение МШГ. Изменение толщины оболочки МР приводит к значительно большему изменению спектрального расстояния между ТЕ- и

ТМ-модами, чем увеличение радиуса сферического МР без оболочки на величину, равную толщине оболочки.

Авторы благодарны Д.А. Курдюкову и Е.Ю. Стовпяге за предоставление монодисперсных сферических частиц аморфного диоксида кремния, Г.В. Ли и Е.В. Астровой за предоставление образцов кремния с профилированной структурой.

А.А. Донцов и Н.С. Аверкиев благодарны за финансовую поддержку РФФИ (проект №14-02-00263). М.А. Баранов, К.В. Богданов благодарны за финансовую поддержку Министерству образования и науки РФ (проект 14.B25.31.0002).

Список литературы

- [1] J. Ward, O. Benson. *Laser Photon. Rev.*, **5** (4), 553 (2011).
- [2] F. Vollmer, L. Yang. *Nanophotonics*, **1** (3-4), 267 (2012).
- [3] Y.P. Rakovich, J.F. Donegan. *Laser Photon. Rev.*, **4** (2), 179 (2010).
- [4] S. Soria, S. Berneschi, L. Lunelli, G.N. Conti, L. Pasquardini, C. Pederzoli, G. Righini. *Adv. Sci. Technol.*, **82**, 55 (2013).
- [5] F. Vollmer, S. Arnold. *Nature Methods*, **5** (7), 591 (2008).
- [6] L. Pasquardini, S. Berneschi, A. Barucci, F. Cosi, R. Dallapiccola, M. Insinna, L. Lunelli, G.N. Conti, C. Pederzoli, S. Salvadori, S. Soria. *J. Biophotonics*, **6** (2), 178 (2013).
- [7] I. Teraoka, S. Arnold. *J. Opt. Soc. Am. B*, **23** (7), 1381 (2006).
- [8] A. Weller, F.C. Liu, R. Dahint, M. Himmelhaus. *Appl. Phys. B*, **90**, 561 (2008).
- [9] E. Nuhiji, P. Mulvaney. *Small*, **3** (8), 1408 (2007).
- [10] I. Teraoka, S. Arnold. *J. Opt. Soc. Am. B*, **23** (7), 1434 (2006).
- [11] O. Gaathon, J. Culic-Viskota, M. Mihnev, I. Teraoka, S. Arnold. *Appl. Phys. Lett.*, **89** (22), 223 901 (2006).
- [12] I. Teraoka, S. Arnold. *J. Opt. Soc. Am. B*, **24** (3), 653 (2007).
- [13] Е.Ю. Трофимова, А.Е. Алексенский, С.А. Грудинкин, И.В. Коркин, Д.А. Курдюков, В.Г. Голубев. *Коллоидный журн.*, **73** (4), 535 (2011).
- [14] Н.А. Феоктистов, В.И. Сахаров, И.Т. Серенков, В.А. Толмачёв, И.В. Коркин, А.Е. Алексенский, А.Я. Вуль, В.Г. Голубев. *ЖТФ*, **81** (5), 132 (2011).
- [15] С.А. Грудинкин, Н.А. Феоктистов, Е.Ю. Трофимова, Д.А. Курдюков, К.В. Богданов, А.В. Баранов, А.В. Федоров, В.Г. Голубев. *Письма ЖТФ*, **39** (7), 51 (2013).
- [16] J. Xu, L. Yang, Y. Rui, J. Mei, X. Zhang, W. Li, Z. Ma, L. Xu, X. Huang, K. Chen. *Sol. St. Commun.*, **133** (9), 565 (2005).
- [17] Е.В. Астрова, А.А. Нечитайлов. *ФТП*, **42** (6), 593 (2008).
- [18] L.L. Martín, P. Haro-González, I.R. Martín, D. Navarro-Urrios, D. Alonso, C. Pérez-Rodríguez, D. Jaque, N.E. Capuj. *Opt. Lett.*, **36** (5), 615 (2011).
- [19] А.А. Дукин, Н.А. Феоктистов, В.Г. Голубев, А.В. Медведев, А.В. Певцов, А.В. Сел'кин. *Phys. Rev. E*, **67** (4), 046 602 (2003).
- [20] В.Г. Голубев, А.А. Дукин, А.В. Медведев, А.В. Певцов, А.В. Селькин, Н.А. Феоктистов. *ФТП*, **37** (7), 860 (2003).
- [21] D.Q. Chowdhury, D.H. Leach, R.K. Chang. *J. Opt. Soc. Am. A*, **11** (3), 1110 (1994).
- [22] А.Н. Грузинцев, Г.А. Емельченко, В.М. Масалов, М. Романелли, К. Бартхоу, П. Беналул, А. Мэтр. *Неорг. матер.*, **44** (2), 203 (2008).
- [23] J.A. Nelder, R. Mead. *Comput. J.*, **7** (4), 308 (1965).

- [24] N. Le Thomas, U. Woggon, W. Langbein, M.V. Artemyev. J. Opt. Soc. Am. B, **23** (11), 2361 (2006).
[25] Y. Hara, T. Mukaiyama, K. Takeda, M. Kuwata-Gonokami. Phys. Rev. Lett., **94** (20), 203 905 (2005).

Редактор Л.В. Шаронова

Whispering gallery modes in the spherical microcavity with photoluminescent shell

S.A. Grudinkin^{+,*}, A.A. Dontsov⁺, N.A. Feoktistov^{+,*},
M.A. Baranov^{*}, K.V. Bogdanov^{*}, N.S. Averkiev⁺,
V.G. Golubev⁺

⁺ Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia
^{*} ITMO University,
197101 St. Petersburg, Russia

Abstract The whispering gallery modes spectra in optical microcavities based on silica spherical particles coated with a thin photoluminescent hydrogenated amorphous silicon carbide shell were investigated. Spectral positions of whispering gallery modes for the spherical microcavities with the shell were calculated. The dependence of spectral distance between TE and TM modes on shell thickness was studied.