

УДК535.37

**Ф. А. Бенимецкий<sup>1,2</sup>, А. И. Плеханов<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> *Институт автоматики и электрометрии СО РАН  
пр. Акад. Коптюга, 1, Новосибирск, 630090, Россия*

<sup>2</sup> *Новосибирский государственный университет  
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия*

*benimetsky@gmail.com, fractal@iae.nsk.su*

## **ОПРЕДЕЛЕНИЕ ОПТИЧЕСКОГО КОЭФФИЦИЕНТА УСИЛЕНИЯ КОЛЛОИДНОГО РАСТВОРА СПАЗЕРОВ\***

Коэффициент усиления коллоидного раствора спазеров измерен методом переменной длины полосы накачки, в котором измеряется интенсивность усиленного спонтанного излучения, испущенного краем полосы как функция возбуждаемого объема. Спазеры были сформированы из наночастиц с золотым ядром и пористой кремнеземной оболочкой, пропитанной флуоресцеином. В этих условиях наблюдался экспоненциальный рост, сужение линии и направленности стимулированного излучения. Получен коэффициент оптического усиления коллоидов спазеров в спиртовом растворе флуоресцеина  $g = 16,2 \text{ см}^{-1}$ . Отдельно спиртовой раствор флуоресцеина имел  $g = 3,7 \text{ см}^{-1}$ .

*Ключевые слова:* спазер, оптический коэффициент усиления.

### **Введение**

В настоящее время наблюдается значительный интерес к наноплазмонным системам и метаматериалам, особенно после предсказания спазера (акроним от surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation) [1]. Спазеры представляют собой наноразмерные источники когерентных оптических полей и обладают большим потенциалом для широкого спектра приложений, в том числе наноразмерной литографии, зондировании в биомедицине и микроскопии, потому что они концентрируют энергию электромагнитного поля в наноскопические объемы, т. е. преодолевают дифракционный предел. Как и обычный макроскопический лазер, спазер содержит три

принципиальных компонента – усиливающую среду, резонатор и накачку. Однако в отличие от лазера резонатор спазера обеспечивает обратную связь для поверхностных плазмонных, а не оптических мод. Геометрия резонатора спазера может включать полупроводниковую нанопроволоку или структуру (в качестве активной среды) на металлической поверхности [2], металлическую наночастицу, окруженную оболочкой с активной средой (лазерный краситель или квантовые точки) [3]. Спазерная генерация аналогична лазерной: наличие определенного порога по мощности накачки, а также характерные для лазерного излучения сужение спектра генерации и направленности, временной когерентности с ростом мощности накачки. В то время как проверка этих кри-

---

\* Работа частично поддержана грантом РФФИ № 15-03-03833, программой Президиума РАН № 19 и ОФН № III.8.1.

*Бенимецкий Ф. А., Плеханов А. И.* Определение оптического коэффициента усиления коллоидного раствора спазеров // Вестн. Новосиб. гос. ун-та. Серия: Физика. 2015. Т. 10, вып. 2. С. 5–9.

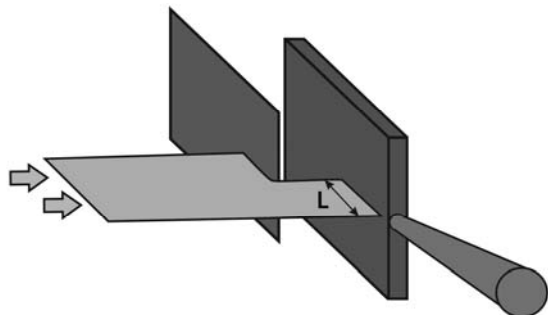


Рис. 1. Схематическое изображение метода переменной длины полосы

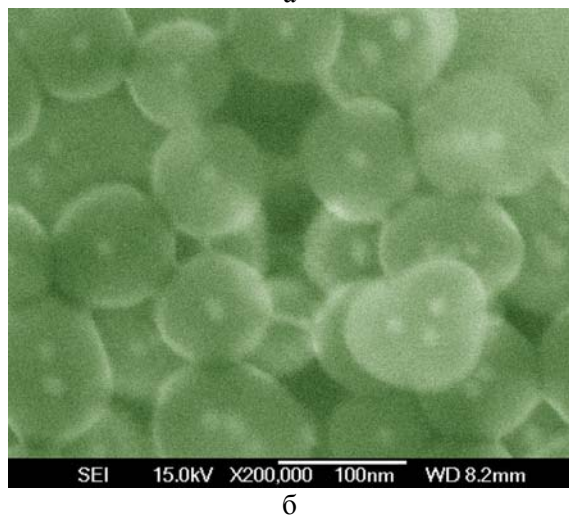
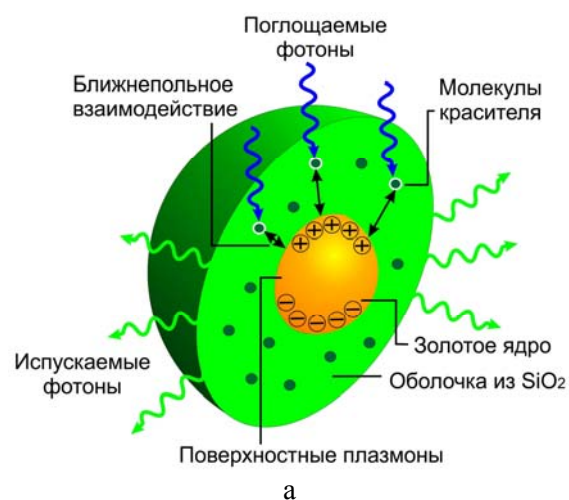


Рис. 2. Схематическое изображение спазера (а). SEM изображение спазеров с кремнеземными оболочками (б).

териев для макроскопических лазеров является непосредственной, для плазмонных структур спонтанное излучение активной среды может изменяться [4], и даже без значительного вклада вынужденного излучения

наблюдается спектральное сужение линии, что может быть неверно истолковано как признак генерации [5]. Плазмонные резонаторы обладают большими диссипативными потерями и относительно низкой добротностью  $Q \sim 10-15$ . Это накладывает высокие требования на усиливающую среду и накачку [1]. Спазеры, обеспечивающие субдифракционную локализацию поля (модовый объем  $V \ll (\lambda/2n)^3$ , где  $\lambda$  и  $n$  – длина волны и показатель преломления среды), требуют коэффициенты усиления активной среды в оболочке порядка  $10^2-10^4 \text{ см}^{-1}$ . Сравнение накопленных потерь с имеющимся коэффициентом усиления активной среды позволяет указать, является ли достижимым порог спазерной генерации.

В данной работе измерен коэффициент оптического усиления коллоидного раствора спазеров при различных концентрациях спазеров и красителя активной среды с использованием метода переменной длины полосы накачки [6].

### Объект исследования и описание установки

Для обнаружения вынужденного излучения и оценки оптического усиления в условиях инверсной населенности используют два подхода: метод пробного поля (pump and probe method) или метод варьруемой длины полосы возбуждения. В последнем случае усиливается собственное спонтанное излучение вещества. Возбуждающее излучение фокусируется в виде узкой полосы на поверхности кюветы с раствором красителя или коллоидного раствора спазеров. Длина полосы  $L$  возбуждения изменяется путем перемещения экрана, а излучение собирается с торца образца (рис. 1).

В рамках модели одномерного усилителя [7] интенсивность усиленного спонтанного излучения зависит приблизительно экспоненциально от длины засвечиваемой области ( $L$ ) [8]:

$$I(\lambda, L) = \frac{I_0}{g(\lambda)} (\exp[g(\lambda)L] - 1), \quad (1)$$

где  $I_0$  – интенсивность доли спонтанного излучения, ограниченной геометрией полосы накачки,  $g = g' - \alpha$  – измеряемый коэффициент усиления, представляющий собой разность внутреннего коэффициента усиления среды  $g'$ , обусловленного процессами

вынужденного излучения, и коэффициентом потерь  $\alpha$ .

Спазерная система хорошо описывается аналитически на основе четырехуровневой системы [9]. Учитывая это, можно записать выражение для коэффициента усиления  $g$  системы как [10]

$$g = \sigma n(I/I_s) / (1 + I/I_s) - \alpha, \quad (2)$$

где  $\sigma$  – сечение радиационного перехода,  $n$  – плотность активных центров,  $I_s$  – интенсивность насыщения.

Для накачки использовался параметрический генератор света Solar LP601 с длительностью импульса 7 нс, частотой следования 10 Гц и длиной волны 488 нм. Так как длительность импульса накачки была больше, чем типичные времена динамики населенности в спазере [11], этот метод возбуждения можно рассматривать как квазинепрерывный. Полоса возбуждения на исследуемом образце – кювете с исследуемым веществом, имела ширину 100 мкм, а длина варьировалась от 0 до 5 000 мкм с шагом 50 мкм. Усиленное излучение  $I$  регистрировалось фотоприемником ФД-24К через светофильтр ЗС-8 либо спектрографом Avantes 2048 под прямым углом к полосе возбуждения при различных ее длинах.

Полученные данные аппроксимировались по формуле (1) при малых интенсивностях накачки или по формуле (2) при учете насыщения коэффициента усиления. Модальные коэффициенты усиления измерялись в спектральном диапазоне 520–545 нм.

В работе исследовались свойства спазеров, представляющих собой сферические наночастицы Au диаметром  $10 \pm 2$  нм с мезопористой оболочкой из  $\text{SiO}_2$  толщиной 15–30 нм с концентрацией  $C_{\text{SPASER}} = (0,5-1) \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ , пропитанной в течение двух суток флуоресцеином с концентрацией  $C_{\text{Fl}} = (0,25-1) \cdot 10^{-3} \text{ моль/л}$  (рис. 2). Наночастицы золота с мезопористой кремнеземной оболочкой получены по методике, описанной в [12].

## Результаты и обсуждение

На рис. 3 линией 1 показан спектр экстинкции золотых наночастиц в кремнеземной оболочке с максимумом, отвечающим поверхностному плазмонному резонансу на длине волны 519 нм. Узкий пик, изображенный линией 2, с центром на 526 нм отвечает

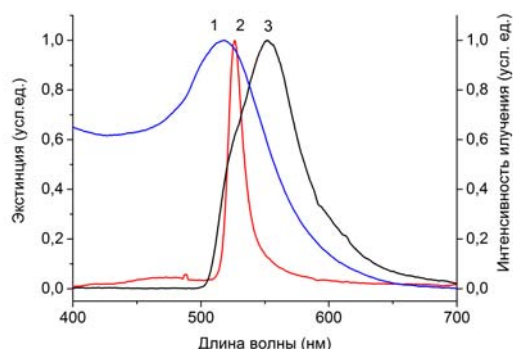


Рис. 3. Нормированная экстинкция  $\text{Au@SiO}_2$  при  $C_{\text{SPASER}} \approx 10^{13} \text{ см}^{-3}$  (1), усиленное спонтанное излучение  $\text{Au@SiO}_2$  + флуоресцеин при концентрации  $C_{\text{SPASER}} = 10^{13} \text{ см}^{-3}$ ,  $C_{\text{Fl}} \approx 0,5 \cdot 10^{-3} \text{ моль/л}$  (2), спонтанное излучение раствора флуоресцеина  $C_{\text{Fl}} \approx 0,5 \cdot 10^{-3} \text{ моль/л}$  (3)

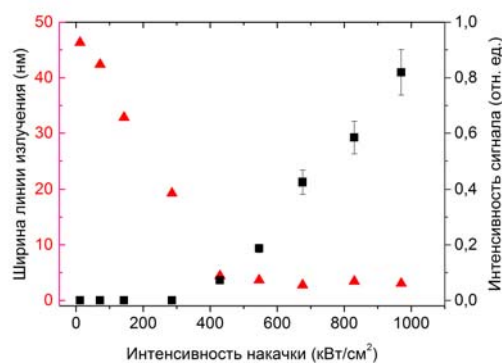


Рис. 4. Ширина на полувысоте (треугольники) и интенсивность излучения (квадраты) коллоида спазеров ( $C_{\text{SPASER}} \approx 10^{13} \text{ см}^{-3}$ ) в этиловом растворе красителя флуоресцеина ( $C_{\text{Fl}} \approx 10^{-3} \text{ моль/л}$ ) на длине волны  $\lambda = 526 \text{ нм}$  в зависимости от плотности мощности накачки. Длина полосы накачки  $L = 15 \text{ мм}$

усиленному спонтанному излучению суспензии коллоидных частиц  $\text{Au@SiO}_2$  с флуоресцеином, что заметно отличается от люминесценции флуоресцеина в спиртовом растворе (кривая 3).

Сильное сужение полосы излучения и нелинейный рост интенсивности сигнала при изменении плотности мощности накачки позволяет сделать вывод, что наблюдаемое излучение имеет вынужденный характер. Порог появления усиленной спонтанной эмиссии коллоида спазеров составил  $250 \text{ кВт/см}^2$  (рис. 4).

Из измеренных зависимостей интенсивности излучения от длины полосы накачки

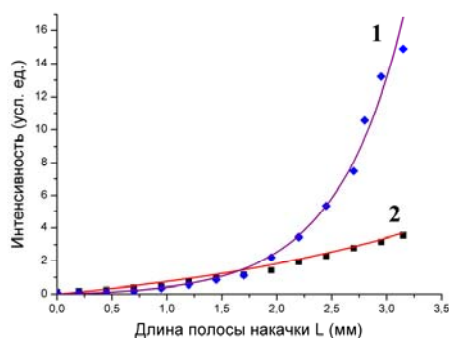


Рис. 5. Зависимость интенсивности излучения от длины полосы накачки: 1 – для коллоидов спазеров  $C_{\text{SPASER}} \approx 10^{13} \text{ см}^{-3}$  в этиловом растворе флуоресцеина  $C_{\text{Fl}} \approx 10^{-3}$  моль/л; 2 – для этилового раствора флуоресцеина той же концентрации. Интенсивность накачки  $400 \text{ кВт/см}^2$

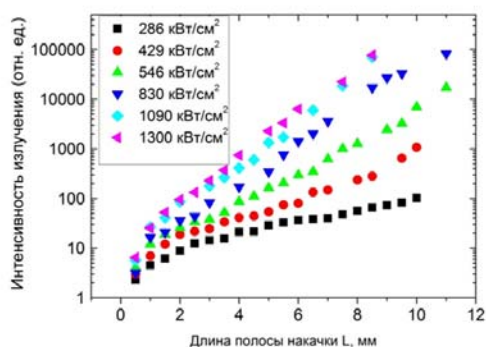


Рис. 6. Интенсивность излучения коллоида спазеров на длине волны  $\lambda = 526 \text{ нм}$  в зависимости от длины полосы накачки  $L$  при разных интенсивностях накачки для случая  $C_{\text{SPASER}} \approx 10^{13} \text{ см}^{-3}$  и  $C_{\text{Fl}} \approx 10^{-3}$  моль/л

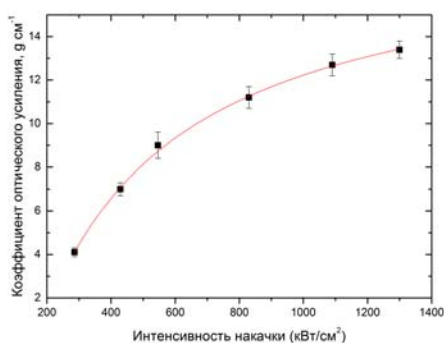


Рис. 7. Оптический коэффициент усиления коллоидов спазеров в растворе красителя флуоресцеин на длине волны  $\lambda = 526 \text{ нм}$  в зависимости от интенсивности накачки. Сплошная линия аппроксимация по формуле (2)

(рис. 5) путем аппроксимации по формуле (1) коэффициент усиления коллоидного раствора спазеров с концентрацией  $C_{\text{SPASER}} \approx 10^{13} \text{ см}^{-3}$  в спиртовом растворе флуоресцеина ( $C_{\text{Fl}} \approx 10^{-3}$  моль/л) составил  $g = 16,2 \pm 0,5 \text{ см}^{-1}$ . В то время как спиртовый раствор флуоресцеина при той же концентрации и геометрии возбуждения имел коэффициент усиления в 4,4 раза меньший  $g = 3,7 \pm 0,5 \text{ см}^{-1}$ .

На рис. 6 представлены экспериментальные данные, отражающие зависимость интенсивности усиленного спонтанного излучения от длины полосы накачки при разных интенсивностях накачки для коллоида спазеров в растворе флуоресцеина.

Из формулы (2) видно, что коэффициент усиления  $g$  монотонно растет с интенсивностью и постепенно насыщается. Значения оптического коэффициента усиления  $g$  при разных интенсивностях накачки приведены на рис. 7. Аппроксимация формулой (2) приведенной зависимости на рис. 7 дает значения  $I_s = 224 \pm 50 \text{ кВт/см}^2$  и коэффициент потерь  $\alpha = 13,8 \pm 3 \text{ см}^{-1}$ .

## Выводы

Таким образом, при оптической накачке сфокусированным излучением в виде узкой полосы на поверхности кюветы с коллоидом спазеров в растворе флуоресцеина при изменении плотности мощности накачки выше порогового значения  $250 \text{ кВт/см}^2$  наблюдалось сильное сужение полосы излучения в области  $526 \text{ нм}$  и нелинейный рост интенсивности сигнала, что позволяет сделать вывод, что наблюдаемое излучение имеет характер усиленной спонтанной эмиссии. Отличие спектрального положения максимума узкой полосы излучения от максимума флуоресценции раствора красителя указывает на принадлежность ее к вынужденному излучению спазеров (ср. кривые 2 и 3 на рис. 3).

Методом переменной длины полосы накачки установлено, что оптический коэффициент усиления для коллоидного раствора спазеров приблизительно в 5 раз больше измеренного для растворов красителя флуоресцеина при интенсивности накачки  $400 \text{ кВт/см}^2$ . С ростом интенсивности накачки оптический коэффициент усиления спазеров насыщается. Очевидно, что обнаружение величины оптического коэффициента усиления коллоида спазеров в спиртовом рас-

творе флуоресцеина  $g = g' - \alpha = 16,2 \text{ см}^{-1}$  свидетельствует о доминировании вынужденного излучения над потерями с коэффициентом потерь  $\alpha = 13,8 \pm 3 \text{ см}^{-1}$ . С учетом этого коэффициент усиления среды  $g'$ , обусловленный процессами вынужденного излучения суспензии, может достигать  $30 \text{ см}^{-1}$ , что позволяет добиться спазерной генерации.

### Список литературы

1. Bergman D., Stockman M. Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation: Quantum Generation of Coherent Surface Plasmons in Nanosystems // *Phys. Rev. Lett.* 2003. Vol. 90. P. 027402.
2. Oulton R., Sorger V., Zentgraf T., Ma R., Gladden C., Dai L., Bartal G., Zhang X. Plasmon lasers at deep subwavelength scale // *Nature*. 2009. Vol. 461. P. 629–632.
3. Noginov M., Zhu G., Belgrave A., Bakker R., Shalaev V., Narimanov E., Stout S., Herz E., Suteewong T., Wiesner U. Demonstration of a spaser-based nanolaser // *Nature*. 2009. Vol. 460. P. 1110–1113.
4. Климов В. В. Наноплазмоника. М.: Физматлит, 2010. 481 с.

5. Gather M. G. A rocky road to plasmonic lasers // *Nature Photonics*. 2012. Vol. 6. P. 708.
6. Shaklee K. L., Nahaori R. E., Leheny L. F. Optical gain in semiconductors // *J. Lumin.* 1973. Vol. 7. P. 284–309.
7. Звелто О. Принципы лазеров. М.: Лань, 2008. 720 с.
8. Negro L. D., Bettotti P., Cazzanelli M., Pacifici D., Pavesi L. Applicability conditions and experimental analysis of the variable stripe length method for gain measurements // *Opt. Commun.* 2004. Vol. 229. P. 337–348.
9. Zhong X-L., Li Z-Y. All-analytical semiclassical theory of spaser performance in a plasmonic nanocavity // *Phys. Rev. B*. 2013. Vol. 88. P. 085101.
10. Siegman A. E. Lasers. Mill Valley: University Science Books, 1986. 1283 p.
11. Stockman M. I. The spaser as a nanoscale quantum generator and ultrafast amplifier // *J. Opt.* 2010. Vol. 12. P. 024004.
12. Liz-Marzan L. M., Giersig M., Mulvaney P. Synthesis of nanosized gold-silica core-shell particles // *Langmuir*. 1996. Vol. 12. P. 4329–4335.

Материал поступил в редколлегию 05.03.2015

F. A. Benimetskiy<sup>1,2</sup>, A. I. Plekhanov<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Institute of Automation and Electrometry  
1 Academician Koptug Ave., Novosibirsk, Russia, 630090

<sup>2</sup> Novosibirsk State University  
2 Pirogov Str., Novosibirsk, Russia, 630090

benimetskiy@gmail.com, fractal@iae.nsk.su

### OPTICAL GAIN COEFFICIENT MEASUREMENT OF COLLOIDAL SOLUTION OF SPASERS

Optical gain coefficient of colloidal solution of spasers was measured by the variable stripe length method, where the intensity of the amplified spontaneous emission from the sample edge is measured as a function of excited volume. Spasers consist of gold core-silica (porous) shell nanoparticles penetrated with fluorescein. Under these conditions, we observed the exponential growth and narrowing of line and directivity of stimulated emission. The obtained optical gain coefficient of spaser colloids in fluorescein solution in ethanol is  $g = 16,2 \text{ см}^{-1}$ . Separately, fluorescein solution in ethanol had  $g = 3,7 \text{ см}^{-1}$ .

*Keywords:* spaser, optical gain coefficient.