На правах рукописи

ПАРФЕНЬЕВ ВЛАДИМИР МИХАЙЛОВИЧ

Нелинейные явления в плазмонике и гидродинамике: теория спазера и генерация завихренности поверхностными волнами

01.04.02 – теоретическая физика

ΑΒΤΟΡΕΦΕΡΑΤ

диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Черноголовка – 2016

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау Российской академии наук.

Научный руководитель:	Лебедев Владимир Валентинович
	доктор физико-математических наук,
	член-корреспондент РАН
Официальные оппоненты:	Кондратенко Петр Сергеевич
	доктор физико-математических наук,
	профессор, ИПБРАЭ РАН, заведующий
	лабораторией теоретической физики
	Подивилов Евгений Вадимович
	доктор физико-математических наук,
	ИАиЭ СО РАН, старший научный со-
	трудник
Ведущая организация:	Федеральное государственное бюджет-
	ное учреждение науки Институт спек-
	троскопии Российской академии наук

Защита состоится «_____» _____ 2016 г. в _____ часов _____ минут на заседании диссертационного совета Д.002.207.01 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау Российской академии наук, расположенном по адресу: 142432, Московская обл., г. Черноголовка, просп. Академика Семенова, д. 1-А.

С диссертацией можно ознакомиться на сайте http://www.itp.ac.ru/ или в библиотеке Института теоретической физики им. Л.Д. Ландау РАН.

Автореферат разослан «____» ____ 2016 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета,

доктор физико-математических наук

Гриневич П.Г.

Общая характеристика работы

Многие явления в окружающем нас мире носят нелинейный характер и описываются нелинейными уравнениями. Ряд методов теоретической физики позволяет решать такие уравнения и проникать в суть этих явлений. Часто одни и те же методы позволяют добиться успеха в задачах, которые возникают в совершенно разных областях науки. Данная диссертация посвящена анализу некоторых нелинейных явлений, которые возникают в задачах электродинамики металл-диэлектрических систем и гидродинамики поверхностных волн.

Актуальность темы исследования. В последнее время много внимания уделяется изучению поверхностных плазмонов в композитных наносистемах — поверхностных мод, которые возбуждаются на границе раздела металлдиэлектрик [1]. Такие моды позволяют локализовать оптическую энергию на наномасштабе, что позволяет использовать их в практических целях: поверхностно-усиленная рамановская спектроскопия [2], создание сверхчувствительных сенсоров и детекторов [3], диагностика и терапия раковых заболеваний [4], разработка плазмонных интерконнектов [5] и оптических компьютеров [6] и многое другое. Ключевой составляющей многих из этих технологий является активное устройство, своеобразный аналог лазера, в котором роль фотонов в резонансной полости выполняют поверхностные плазмоны [7]. За таким устройством закрепилось название спазер (от англ. 'spaser' — surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation) или нанолазер, первые экспериментальные образцы которого были созданы в 2009 году [8, 9].

Роль резонатора в таких устройствах выполняет металлическая наночастица. Вследствие омических потерь добротность такого резонатора невелика, $Q \sim 15$, для устройств, которые обеспечивают локализацию моды в трех измерениях [8]. Ожидается, что столь низкое значение добротности может привести к существенным отличиям в работе спазера по сравнению с обычным лазером, в котором добротность резонатора составляет $Q \sim 10^5$. Представляет интерес построить теорию функционирования нанолазера, существенно нелинейной системы, выявить особенности его поведения и провести сравнение с обычным лазером. В ходе исследования следует принять во внимание тепловые явления в системе. Высокие омические потери могут приводить к повышению температуры металлической наночастицы, что, в свою очередь, еще больше увеличивает омические потери и, таким образом, формирует положительную обратную связь. Это нелинейное явление может влиять на работу устройства и требует отдельного рассмотрения.

Вторая часть диссертации посвящена нелинейному явлению генерации вихревого движения в горизонтальной плоскости поверхностными волнами. Данное явление было обнаружено и исследовано экспериментально [10, 11], однако сам механизм генерации вихрей долгое время оставался загадкой. Подобный механизм может иметь отношение к движению поверхности океана, к распространению планктона и загрязняющих веществ вблизи его поверхности, а также к проблеме эффективного перемешивания [12, 13]. Представляет интерес разобраться с вышеупомянутым нелинейным механизмом генерации вихрей и определить степень его фундаментальности (какую роль он играет в динамике похожих систем).

Цели диссертационной работы. Данная работа ставит перед собой две главных цели: изучить особенности функционирования плазмонного нанолазера (по сравнению с обычным лазером) и описать нелинейный механизм генерации вертикальной завихренности поверхностными волнами. Для достижения поставленных целей были предприняты следующие шаги:

- Построена полуклассическая теория спазера. В рамках модели исследован сдвиг частоты генерации лазера за счет деформации структуры лазирующей моды.
- 2. Исследованы тепловые явления в системах с плазмонным резонансом.

Найдены ограничения, накладываемые на систему в связи с тепловыми явлениями и за счет действия пондеромоторных сил.

- Построена квантовая теория спазера в приближении низкодобротного резонатора. Исследован механизм сужения спектральной линии выше порога генерации, а также статистические свойства излучения.
- 4. Построена количественная теория генерации горизонтальных вихрей поверхностными волнами и проведено сравнение с экспериментом.
- Предсказано явление генерации вертикальной завихренности в свободно подвешенных смектических пленках и построено его количественное описание.

Научная новизна и методы исследования. Все результаты, которые выносятся на защиту, являются оригинальными. Достоверность гарантируется получением результатов из первых принципов с использованием методов, хорошо зарекомендовавших себя при решении аналогичных задач, а также сравнением с экспериментальными данными (если имеется такая возможность) и теоретическими работами других исследовательских групп. Полуклассическая теория спазера была построена на основе уравнений Максвелла-Блоха, эффекты деформации лазирующей моды учитывались в рамках теории возмущений по параметру обратной добротности 1/Q. Тепловые явления были проанализированы на основе уравнения теплопроводности, пондеромоторные силы принимались во внимание в рамках фундаментальных уравнений электродинамики. Квантовая теория спазера была построена аналогично квантовой теории обычного лазера с использованием формализма матрицы плотности. Для описания нелинейного механизма генерации вихрей поверхностными волнами решалось уравнение Навье-Стокса. Решение было получено в рамках теории возмущений с двумя малыми параметрами: небольшая амплитуда поверхностных волн и слабость их затухания (вследствие

небольшой вязкости жидкости). Теория для свободно подвешенных смектических пленок (в вакууме и воздухе) была построена в рамках аналогичных предположений, но с привлечением дополнительного уравнения для описания динамики смектика.

Теоретическая и практическая значимость. Результаты, изложенные в диссертации, позволяют глубже понять механизмы работы спазера, что необходимо для успешного применения данного устройства в практических приложениях. Анализ тепловых явлений в плазмонных наносистемах представляет не только фундаментальный интерес, но также полезен при проектировании экспериментов в данной области. Нелинейное явление генерации завихренности поверхностными волнами — одновременно новое и фундаментальное. Результаты этой части диссертации могут использоваться для анализа движения поверхности океана и для проектирования соленоидальных течений заданной формы на поверхности жидкости, что может найти свое применение, например, в задачах эффективного перемешивания. Также теория нелинейной генерации завихренности позволяет глубже понять явление турбулентности, возбуждаемой поверхностными волнами [10, 11], и разработать количественную основу для его описания.

Положения, выносимые на защиту. К защите представляются следующие оригинальные результаты:

- 1. Открыто явление сдвига частоты генерации плазмонного нанолазера в зависимости от интенсивности его излучения. Этот сдвиг связан с деформацией структуры лазирующей моды, которая обусловлена пространственным 'выгоранием' активной среды (spatial hole burning). Представлена аналитическая схема, которая позволяет количественно анализировать данное явление.
- 2. Исследована зависимость температуры металлической наногранулы от числа квантов возбужденных в ней плазмонных колебаний. Показано,

что в стационарном режиме существует критическое число квантов, при котором температура системы неограниченно возрастает (если пренебречь тепловым излучением гранулы). На практике это означает, что металлическая частица расплавится при приближении числа квантов к критическому значению. Эффект обусловлен положительной обратной связью: нагрев происходит вследствие омических потерь, которые возрастают при увеличении температуры системы. Получено аналитическое выражение для критического числа плазмонов. В импульсном режиме возбуждения системы данное ограничение на число квантов удается преодолеть. В этом случае получена оценка для числа квантов, при котором начинается деформация наногранулы пондеромоторными силами.

- 3. Построена квантовая теория спазера в предположении о низкодобротном резонаторе. Найдено аналитическое выражение для среднего числа квантов в резонаторе выше и ниже порога генерации. Проанализирована статистика излучения, найдены аналитические выражения для первой и второй корреляционных функций (g⁽¹⁾(т) и g⁽²⁾(т)). Показано, что в случае спазера механизм сужения спектральной линии может существенно отличаться от случая высокодобротного лазера. В данном случае среднее число квантов в резонаторе вблизи порога генерации (где происходит сужение спектральной линии) может быть меньше единицы (практически нет вынужденного излучения), а информация о когерентности системы сохраняется в состоянии активных атомов, которые релаксируют гораздо медленнее, чем происходит затухание плазмонных колебаний.
- 4. Исследовано нелинейное явление генерации вертикальной компоненты завихренности поверхностными волнами. Получено аналитическое выражение для вертикальной завихренности в терминах отклонения по-

верхности жидкости от положения равновесия. Обнаружено, что значение завихренности на поверхности жидкости не зависит от вязкости жидкости, хотя само явление обусловлено ненулевой вязкостью — новый пример вязкой аномалии в гидродинамике.

5. Исследовано вихревое движение в свободно подвешенных тонких смектических пленках, которые совершают колебания в поперечном направлении (изгибная мода). Получено аналитическое выражение для скорости вихревого движения в плоскости пленки в терминах отклонения поверхности пленки от равновесия. Были проанализированы пленки, находящиеся в вакууме и в воздухе. Показано, что окружающий воздух существенно влияет на изучаемое явление, в частности, он изменяет закон дисперсии поперечных колебаний, для которого было получено аналитическое выражение.

Апробация результатов. Основные результаты диссертации докладывались автором на следующих конференциях:

- Международная конференция "Landau Days 2015", Черноголовка, 2015 (устный доклад).
- Международная конференция "Days on Diffraction 2014", Санкт-Петербург, 2014 (устный доклад).
- "VI Всероссийский семинар по волоконным лазерам", Новосибирск, 2014 (устный доклад).
- Международная конференция "Days on Diffraction 2012", Санкт-Петербург, 2012 (устный доклад).

Материалы диссертации также представлялись на семинарах в ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН, ИАиЭ СО РАН (г. Новосибирск) и Лос-Аламосской национальной исследовательской лаборатории (США). Публикации. Материалы диссертации опубликованы в 8 печатных работах, из них 5 статей в рецензируемых журналах из списка ВАК и 3 статьи в сборниках трудов конференций.

Личный вклад автора. Все изложенные в диссертации результаты получены автором лично, либо при его непосредственном участии. Автором осуществлялась разработка теоретических методов исследования, выполнение численного моделирования, обсуждение результатов и подготовка публикаций.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, пяти глав, каждая из которых соответствует оригинальному результату выносимому на защиту, заключения, списка публикаций автора по теме диссертации, списка литературы и четырех приложений. Общий объем диссертации 110 страниц, она включает в себя 16 рисунков. Библиография насчитывает 82 наименования.

Краткое содержание работы

Введение

Во введении обоснована актуальность диссертационной работы, аргументирована научная новизна, обозначены цели исследования, сформулированы основные результаты и показана их практическая значимость.

Глава 1. Сдвиг частоты генерации в спазере

В первой главе строится полуклассическая теория функционирования спазера. В основе устройства лежит сферическая металлическая наночастица радиуса *a*, которая выполняет роль резонатора для поверхностных плазмонов. Добротность такого резонатора невелика, *Q* ~ 15, и главным образом определяется омическими потерями внутри металла. Основная сложность в создании плазмонных нанолазеров заключается в компенсации потерь, для чего металлическую частицу окружают диэлектрической оболочкой толщины *h* со встроенными активными молекулами. Частота спонтанного излучения активных молекул должна быть близка к частоте плазмонного резонанса. В дальнейшем, основываясь на экспериментальной работе [8], мы считаем, что это условие выполнено для дипольной моды.

Взаимодействие электрического поля с активными молекулами описывается в рамках системы уравнений Блоха в приближении вращающейся волны [14]. Решение этих уравнений позволяет вычислить поляризацию активной среды

$$\boldsymbol{P}_{a} = \frac{nN_{s}(\Delta - i\Gamma)}{2} \left\langle \frac{\Omega \boldsymbol{d}^{*}}{|\Gamma_{\Delta}|^{2} + \tau\Gamma|\Omega|^{2}} \right\rangle_{\boldsymbol{d}} e^{-i\omega t} + c.c., \tag{1}$$

которая определяет поправку к диэлектрической проницаемости оболочки. Здесь n — концентрация активных молекул, d — их дипольный момент, N_s инверсная населенность в отсутствии поля плазмонных колебаний (характеризует внешнюю накачку системы), Γ — скорость дефазировки активных молекул, Δ — отстройка частоты спонтанного излучения от частоты генерации спазера, $\Omega = dE/\hbar$ — частота осцилляций Раби. Чтобы найти электромагнитное поле в системе, необходимо решить уравнение Максвелла, записанное в квазистатическом приближении:

$$\operatorname{div}(\hat{\varepsilon}(\boldsymbol{r})\operatorname{grad}\Phi) = 0, \quad \boldsymbol{E} = \operatorname{grad}\Phi.$$
⁽²⁾

Основная сложность заключается в нелинейной зависимости поляризации активной среды (1) от величины электрического поля \boldsymbol{E} (частоты Раби Ω).

Для определения порога генерации (слабые поля) нелинейным слагаемым в знаменателе выражения (1) можно пренебречь. В этом случае комплексное уравнение (2) позволяет определить частоту генерации и пороговую интенсивность внешней накачки — необходимую инверсную населенность N_s. Обратим внимание, что мнимая часть выражения (1) отрицательна, если N_s > 0, что как раз и соответствует тому, что активные молекулы передают запасенную энергию моде плазмонных колебаний.

При увеличении внешней накачки активная среда будет передавать плазмонной моде больше энергии, чем диссипирует в металле. Это приведет к росту электрического поля E и к необходимости учитывать нелинейное слагаемое в знаменателе выражения (1). Этот нелинейный механизм определяет установившуюся амплитуду электрического поля: рост интенсивности излучения спазера приводит к уменьшению поляризации активных молекул. Когда поток энергии от активных молекул сравняется с потерями внутри металла, рост электрического поля остановится. Для анализа этого явления достаточно решить уравнение (2) в главном порядке по параметру 1/Q с помощью теории возмущений. Из мнимой части этого уравнения будет следовать условие на энергетический баланс в системе, а действительная часть определит частоту генерации. С заданной точностью частота генерации спазера не будет зависеть от интенсивности его излучения.

Однако более детальный анализ уравнения (2) показывает, что частота генерации спазера зависит от интенсивности его излучения, см. Рис. 1. Эффект появляется во втором порядке теории возмущений по параметру 1/Q. Качественно происходит следующее. Поскольку в резонансе с активными молекулами находится дипольная мода, то в разных точках внешней оболочки спазера разное значение электрического поля. Это приводит к тому, что поправка к диэлектрической проницаемости оболочки, связанная с нелинейным механизмом в поляризации активных молекул (1), зависит от пространственных координат. Такой неоднородный вклад в диэлектрическую проницаемость вызывает деформацию структуры лазирующей моды (по сравнению со структурой моды в пороге генерации, когда нелинейностью можно пренебречь), что в конечном итоге изменяет резонансное условие, а вместе с ним и частоту генерации устройства. Подобное явление имеет место и в



Рис. 1. Основной график — зависимость сдвига частоты генерации от обратной интенсивности накачки, нормированной на пороговое значение. Вставка — ассимптотическое значение сдвига частоты (предел сильного превышения порога) в зависимости от обратной равновесной населенности в пороге генерации.

физике обычных лазеров [15, 16]. Однако по сравнению с обычными лазерами в случае спазеров добротность устройства значительно меньше, поэтому амплитуда сдвига частоты генерации значительно больше. Согласно нашим расчетам сдвиг частоты может составлять порядка 1% от частоты генерации.

Глава 2. Тепловые и прочностные явления в плазмонике

Вторая глава посвящена анализу тепловых и прочностных явлений в плазмонных наносистемах. Рассматривается металлическая гранула размера *a*, окруженная диэлектрической средой. Предполагается, что вследствие внешней накачки плазмонная мода с частотой ω населена *n* квантами. Рассматриваются стационарный и импульсный режимы возбуждения.

В стационарном режиме число квантов *п* постоянно. Из-за омических

потерь наночастица будет нагреваться, и наша задача — оценить ее установившуюся температуру T_{NP} . Если считать процесс теплопроводности диффузионным, то это позволит написать нижнюю оценку для T_{NP} [17, 18]. В этом случае профиль температуры в среде определяется коэффициентом теплопроводности окружающей среды χ и проводимостью Капицы h границы раздела между наночастицей и внешней средой.

В простейшем случае, когда коэффициент теплопроводности χ не зависит от температуры, из закона Фурье следует соотношение:

$$T_{NP} - T_0 = \frac{n\hbar\omega\gamma_{heat}}{4\pi a^2 h_{np}},\tag{3}$$

где $n\hbar\omega\gamma_{heat}$ — мощность омических потерь, T_0 — температура вдали от частицы и $1/h_{np} = a/\chi + 1/h$. Известно, что скорость распада плазмонов зависит от температуры $\gamma_{heat}(T_{NP})$, что делает задачу нелинейной. Эта зависимость обусловлена электрон-фононным рассеянием и может быть аппроксимирована линейной функцией [19],

$$\hbar\gamma_{heat}(T_{NP}) = \alpha + \beta T_{NP}.$$
(4)

Совместный анализ выражений (3) и (4) приводит к заключению, что температура наногранулы T_{NP} становится бесконечной при некотором *критическом числе плазмонов*

$$n_{crit} = \frac{4\pi a^2 h_{np}}{\omega\beta}.$$
(5)

Это число дает оценку сверху для количества плазмонов, которые могут населять наночастицу в стационарном режиме.

В работе также рассматриваются ситуации, когда коэффициент теплопроводности χ зависит от температуры T. Анализ производится на примерах популярных для плазмоники диэлектриков: кварцевого стекла и кристаллического кварца. Никаких существенных отличий от модельной задачи, рассмотренной выше, не наблюдается, см. Рис. 2. Для типичных численных парамет-



Рис. 2. Температура наночастицы в зависимости от числа плазмонов в стационарном режиме. Используемые параметры: a = 10 nm, $\hbar\omega = 1.9$ eV и $T_0 = 300^\circ$ K. Температура плавления золота взята равной $T_{melt} \approx 1270^\circ$ K.

ров, используемых в экспериментах, плавление металла происходит уже при возбуждении всего нескольких квантов плазмонных колебаний.

В случае высокодобротных лазеров сужение спектральной линии при переходе через порог генерации обусловлено механизмом вынужденного излучения: большое количество когерентных фотонов провоцируют активную молекулу излучить новый фотон в ту же моду когерентным образом. Проведенный анализ тепловых явлений для плазмонных наносистем показывает, что в случае спазера подобный механизм сужения спектра не может реализоваться в стационраном режиме — система попросту расплавится. Тем не менее, экспериментальные данные для таких объектов, например, [8, 9], свидетельствуют, что сужение спектра излучения все же происходит. Чтобы разобраться с этим явлением, необходимо построить полностью квантовую теорию функционирования спазера. Этой проблеме посвящена следующая глава диссертации.

Рассмотрение импульсного режима возбуждения приводит к заключению, что плазмонную наносистему удается населить большим количеством плазмонов на масштабе сотен фемтосекунд. В этом случае органичение на допустимое число квантов связано с деформацией устройства пондеромоторными силами. Наши оценки, выполненные из первых принципов, показывают, что ограничения, связанные с этим механизмом, довольно мягкие — допустимое число плазмонов составляет сотни или даже тысячи квантов.

Глава 3. Квантовая теория спазера

В третьей главе строится квантовая теория спазера в предположении низкодобротного резонатора. Рассматриваются $N \gg 1$ одинаковых двухуровневых молекул с частотой перехода между уровнями ω , которые взаимодействуют с полем одномодового низкодобротного плазмонного резонатора. Частота моды совпадает с частотой перехода в молекулах, а время жизни плазмонов обозначим $(2\kappa)^{-1}$. Взаимодействие между молекулами и полем описывается гамильтонианом $H_{AF} = i\hbar g(a^+J_- - aJ_+)$, где g — одинаковая для всех молекул константа взаимодействия, a^+ и a — операторы рождения и уничтожения плазмонов, $J_{\alpha} = \sum_{j=1}^{N} \sigma_{j\alpha}$ — коллективные операторы молекул. Здесь $\sigma_{j\alpha}$, $\alpha = \{x, y, z\}$ — матрицы Паули и $\sigma_{j\pm} = (\sigma_{jx} \pm i\sigma_{jy})/2$. В пределе низкодобротного резонатора плазмонную моду можно адиабатически исключить из рассмотрения [20], и тогда уравнение на динамику матрицы плотности молекул принимает вид:

$$\dot{\rho} = -i\frac{1}{2}\omega[J_z,\rho] + \frac{\gamma_{\uparrow}}{2} \left(\sum_{j=1}^N 2\sigma_{j+}\rho\sigma_{j-} + \frac{1}{2}J_z\rho + \frac{1}{2}\rho J_z - N\rho \right) + \frac{\gamma_{\downarrow}}{2} \left(\sum_{j=1}^N 2\sigma_{j-}\rho\sigma_{j+} - \frac{1}{2}J_z\rho - \frac{1}{2}\rho J_z - N\rho \right) + \frac{\gamma_p}{2} \left(\sum_{j=1}^N \sigma_{jz}\rho\sigma_{jz} - N\rho \right) + \frac{g^2}{\kappa} \left(2J_-\rho J_+ - J_+J_-\rho - \rho J_+J_- \right).$$
(6)

Здесь активные молекулы возбуждаются внешней накачкой со скоростью γ_{\uparrow} , спонтанное излучение происходит со скоростью γ_{\downarrow} . Процессы дефазировки, обусловленные взаимодействием с фононами, имеют характерную скорость $\gamma_p \gg \gamma_{\uparrow} + \gamma_{\downarrow}$. Последнее слагаемое описывает взаимодействие активных молекул друг с другом через плазмонную моду. Поле в резонаторе можно адиабатически исключить, только если $\kappa \gg Ng^2/\kappa, \gamma_p, \gamma_{\uparrow}, \gamma_{\downarrow}$. Отметим, что нормально упорядоченные средние от операторов электрического поля могут быть восстановлены с помощью формальной замены $a^+(t) \to (g/\kappa)J_+(t)$ и $a(t) \to (g/\kappa)J_-(t), [21, (13.60)].$

Дальнейший анализ уравнения (6) производится с помощью методов, хорошо известных из теории высокодобротных лазеров [21]. Большое число активных молекул $N \gg 1$ позволяет надеяться на справедливость линейного анализа флуктуаций (соответствующий критерий приведен ниже). Как и в случае обычных лазеров, в системе наблюдается порог генерации, соответствующий параметру накачки $\rho = \rho_0(\gamma_{\uparrow} - \gamma_{\downarrow})/(\gamma_{\uparrow} + \gamma_{\downarrow}) = 1$, где $\rho_0 = Ng^2/(\kappa\Gamma)$ — максимальный параметр накачки, достижимый при заданном количестве N активных молекул, $\Gamma = \gamma_p + 2(\gamma_{\uparrow} + \gamma_{\downarrow})$ — однородное уширение активной среды. Ниже порога генерации поведение системы полностью аналогично обычным лазерам. Корреляционные функции поля первого и второго порядков даются хорошо известными в теории лазеров выражениями с точностью до ожидаемой замены $\kappa \to \Gamma$, поскольку теперь вместо поляризации среды из рассмотрения адиабатически исключалась плазмонная мода.

Выше порога генерации имеются существенные различия. Во-первых, вблизи порога генерации, где наблюдается значительное сужение спектральной линии, среднее число плазмонов в лазирующей моде может быть меньше единицы. В этом случае когерентность сохраняется в состоянии активных молекул. Первоначально возникающий плазмон взаимодействует с активными молекулами и делает их когерентными друг другу. Затем, через короткое время ~ 1/ κ , плазмон затухает, но информация о когерентности все еще со-

16



Рис. 3. (а) Корреляционная функция второго порядка выше порога генерации. (б) Векторное поле, полученное из анализа уравнений Блоха. Движение по спирали к стационарному решению (красная точка) приводит к затухающим осцилляциям в форме кривой $g_{>}^{(2)}(\tau)$.

держится в состоянии молекул, которые релаксируют значительно медленнее, $1/\Gamma \gg 1/\kappa$. Следующий плазмон, порожденный активной средой, будет когерентен уже затухшему плазмону. Таким образом, мы полагаем, что сужение спектральной линии в случае плазмонного нанолазера обусловлено не вынужденным излучением, а качественно другим механизмом. Ширина спектральной линии определяется преобразованием Фурье от корреляционной функции поля первого порядка и равна:

$$D = \gamma_p \frac{\Gamma T_1}{N} \frac{\wp_0(\wp_0 + 1)}{(\wp - 1)} = \frac{\gamma_p \Gamma}{4} \hbar \omega \frac{(\wp_0 + 1)}{P_{>}} \ll 1/T_1.$$
(7)

Здесь $T_1 = 1/(\gamma_{\uparrow} + \gamma_{\downarrow})$ и в последнем равенстве мы переписали ширину спектра через генерируемую спазером мощность $P_{>} = \kappa \hbar \omega \langle a^+ a \rangle_{ss,>}$. Условие $DT_1 \ll 1$ равносильно справедливости применения линейного анализа флуктуаций. Отметим, что возможность реализации описанного выше механизма сужения спектральной линии была недавно продемонстрирована в экспериментальной работе [22].

Во-вторых, корреляционная функция поля второго порядка имеет другой вид по сравнению со случаем высокодобротных лазеров, она изображена на Рис. 3. Эта зависимость справедлива для $\tau \gg 1/\kappa$, поскольку получена в предположении о низкодобротном резонаторе. Затухающие осцилляции свидетельствуют о периодических изменениях в поляризации и инверсии активной среды относительно своих средних значений, определяемых из уравнений Блоха. Качественно похожая картина наблюдалась в работе [23], где подобная система исследовалась численно в режиме малого числа активных атомов $N \leq 10$ и, соответственно, в режиме больших флуктуаций. Аналитическая формула для корреляционной функции второго порядка имеет вид:

$$g_{>}^{(2)}(\tau) = 1 + 4DT_1 e^{-\tau/2T_1} \cos\left(\sqrt{2\Gamma T_1(\wp - 1)\tau}/T_1\right).$$
(8)

Экспериментальное изучение этого объекта позволит установить истинный механизм сужения спектральной линии плазмонного нанолазера.

Глава 4. Генерация завихренности поверхностными волнами

Четвертая глава посвящена исследованию механизма генерации вертикальной завихренности поверхностными волнами в слабо нелинейном режиме. Известно, что эту задачу нельзя решить, описывая поверхностные волны в рамках потенциального приближения, необходимо принимать во внимание эффекты, обусловленные ненулевой вязкостью жидкости.

Рассматривается ситуация, когда на поверхности глубокой жидкости возбуждено некоторое волновое движение. Амплитуда волн считается малой, $|\nabla h| \ll 1$, а также мало их затухание, обусловленное вязкостью, $\gamma = \sqrt{\nu k^2/\omega} \ll 1$, где ν — коэффициент кинематической вязкости, ω — частота волны, k — соответствующий волновой вектор. В линейном приближении мы имеем дело с гравитационно-капиллярными волнами, которые характеризуются дисперсионным соотношением $\omega^2 = gk + (\sigma/\rho)k^3$.

Линеаризованное уравнение Навье-Стокса позволяет выразить поле ско-

рости через отклонение поверхности жидкости от равновесия h(t, x, y). В наших обозначениях ось Oz направлена против ускорения свободного падения g. В итоге, мы получаем соотношения:

$$v_{\alpha} = \nu [(\hat{\kappa}^2 + \hat{k}^2)/\hat{k}] \exp(\hat{k}z) \partial_{\alpha} h - 2\nu \hat{\kappa} \exp(\hat{\kappa}z) \partial_{\alpha} h, \qquad (9)$$

$$v_z = \nu(\hat{\kappa}^2 + \hat{k}^2) \exp(\hat{k}z)h - 2\nu\hat{k}^2 \exp(\hat{\kappa}z)h.$$
 (10)

Здесь и ниже греческие индексы принимают значения x, y, кроме того, мы ввели нелокальные операторы $\hat{k} = (-\partial_x^2 - \partial_y^2)^{1/2}$ и $\hat{\kappa} = (\partial_t / \nu + \hat{k}^2)^{1/2}$. Первые члены в правых частях выражений (9) и (10) соответствуют потенциальному вкладу в поле скорости, в то время как вторые — описывают поправки, обусловленные вязкостью. Мы видим, что роль вязкости заключается в незначительной коррекции потенциального вклада и в образовании дополнительных соленоидальных поправок. Отметим, что для поверхностных волн $\kappa \sim k/\gamma \gg k$, поэтому дополнительные поправки сконцентрированы вблизи поверхности жидкости и проникают на глубину $\gamma/k \ll 1/k$, где 1/k глубина проникновения потенциальной части скорости.

По известному полю скорости можно легко вычислить завихренность, $\boldsymbol{\varpi} = \operatorname{curl} \boldsymbol{v}$. С помощью соотношений (9) и (10) находим, что вертикальная компонента завихренности в линейном приближении равна нулю, $\boldsymbol{\varpi}_z = 0$, а компонента, направленная вдоль поверхности, в главном приближении по параметру $\gamma \ll 1$ равна

$$\varpi_{\alpha} = 2\epsilon_{\alpha\beta} \exp(\hat{\kappa}z) \partial_{\beta} \partial_t h + O(\gamma^2), \tag{11}$$

где $\epsilon_{\alpha\beta}$ — единичный антисимметричный тензор. Как и последние слагаемые в выражениях (9) и (10), горизонтальная завихренность ϖ_{α} в линейном приближении сконцентрирована в узком вязком слое вблизи свободной поверхности жидкости. Глубина этого слоя равна $1/\kappa \sim \gamma/k \ll 1/k$.

Для нахождения вертикальной завихренности необходимо учесть главный нелинейный вклад в уравнении Навье-Стокса. Этот вклад будет второго порядка по амплитуде поверхностных волн. Используя нелокальные операторы, введенные ранее, мы получаем, что вертикальная завихренность должна удовлетворять уравнению:

$$(\partial_z^2 - \hat{\kappa}^2) \varpi_z = -f, \quad f = \nu^{-1} \varpi_\alpha \partial_\alpha v_z.$$
 (12)

На языке дифференциальных уравнений член в правой части является источником по отношению к вертикальной завихренности ϖ_z . Он соответствует повороту двумерного вектора ϖ_{α} полем скорости поверхностных волн. Кроме того, уравнение (12) необходимо дополнить граничным условием на свободной поверхности жидкости, записанным с той же точностью. Это условие следует из отсутствия касательных напряжений на поверхности жидкости. С нужной точностью мы получаем, что при z = 0:

$$\partial_z \overline{\omega}_z(0) = \partial_\alpha h \partial_z \overline{\omega}_\alpha - \epsilon_{\alpha\gamma} (\partial_\alpha v_\beta + \partial_\beta v_\alpha) \partial_\beta \partial_\gamma h.$$
(13)

Решение системы уравнений уравнений (12) и (13) приводит нас к окончательному ответу:

$$\varpi_{z}(z) = 2\epsilon_{\alpha\beta}(e^{kz}\partial_{\alpha}h)(e^{\hat{\kappa}z}\partial_{\beta}\partial_{t}h) +$$

$$2\epsilon_{\alpha\beta}\hat{\kappa}^{-1}e^{\hat{\kappa}z}(\partial_{\alpha}h\partial_{\beta}\partial_{t}\hat{k}h + \partial_{\alpha}\partial_{\gamma}h\partial_{\beta}\partial_{\gamma}\partial_{t}\hat{k}^{-1}h).$$
(14)

Здесь первое слагаемое соответствует повороту горизонтальной завихренности (11), вызванному наклоном поверхности жидкости $\partial_{\alpha}h$, который отличен от нуля вследствие волнового движения. Второе слагаемое описывает результат распространения повернутой завихренности вглубь жидкости, а третье — обусловлено ненулевой кривизной поверхности, поскольку содержит вторую производную от отклонения h. Значение завихренности на поверхности жидкости получается подстановкой z = 0 в выражение (14).

Так как мы имеем дело с нелинейностью второго порядка, характерная частота изменения завихренности ω_v может изменяться от нуля до порядка 2ω — нескольких частот поверхностных волн. Если $\omega_v \gg \nu k^2$, то первое слагаемое в выражении (14) определяющее, в противном случае — все слагаемые одного порядка. В диссертационной работе нас главным образом интересует случай монохроматической накачки, когда частота поверхностных волн зафиксирована. В этом случае вклад в завихренность на частоте 2 ω равен нулю, т.е. завихренность стационарна. Более подробно эта ситуация проанализирована в основном тексте работы.

В заключение этого раздела скажем несколько слов о применимости разработанной теоретической схемы. Для нахождения вертикальной завихренности мы учитываем ведущий нелинейный вклад в уравнении Навье-Стокса в рамках теории возмущений. Поэтому наше описание справедливо, когда нелинейные члены более высоких порядков малы по сравнению с удержанными. Для случая монохроматической накачки это утверждение можно переписать на математическом языке в виде неравенства $kh \ll \gamma$, которое сильнее условия малости амплитуды поверхностных волн $kh \ll 1$. Если условие применимости нашей теории будет нарушено, то необходимо принимать во внимание нелинейные члены более высоких порядков, которые, по всей видимости, приводят к формированию в системе обратного каскада [11, 24].

Глава 5. Завихренность на поверхности смектических пленок

Последняя глава диссертации посвящена обобщению механизма генерации завихренности на случай свободно подвешенной тонкой смектической пленки, которая совершает колебания в поперечном направлении. Движение пленки вызывает движение окружающего воздуха, которое может быть описано в рамках уравнения Навье-Стокса. Основное отличие от задачи, рассмотренной в предыдущем разделе, состоит в том, что граничное условие на поверхности смектической пленки отличается от граничного условия на свободной поверхности жидкости. В линейном приближении смектическую пленку можно считать несжимаемой, и для поля скорости в окружающем

21

пространстве мы получаем выражения:

$$v_{\alpha} = \mp \nu_a \frac{\hat{\kappa}(\hat{\kappa} + \hat{k})}{\hat{k}} \left(e^{\mp \hat{k}z} - e^{\mp \hat{\kappa}z} \right) \partial_{\alpha} h, \tag{15}$$

$$v_z = \nu_a(\hat{\kappa} + \hat{k}) \left(\hat{\kappa} e^{\mp \hat{k}z} - \hat{k} e^{\mp \hat{\kappa}z} \right) h.$$
(16)

Обозначения совпадают с обозначениями предыдущего раздела: h(t, x, y) — отклонение пленки от равновесия, ν_a — кинематическая вязкость воздуха, $\hat{\kappa} = (\partial_t / \nu_a + \hat{k}^2)^{1/2}$ — нелокальный оператор. Верхние и нижние знаки соответствуют областям воздуха выше и ниже пленки. Обратим внимание, что теперь непотенциальный вклад в поле скорости сравним по величине с потенциальным. Как мы увидим, это обстоятельство приводит к параметрическому росту в $1/\gamma$ раз горизонтальной и вертикальной завихренностей, где $\gamma = \sqrt{\nu_a k^2 / \omega} \ll 1$.

Другое отличие рассматриваемой задачи от волн на поверхности воды связано с другим законом дисперсии. Анализ уравнений в линейном приближении приводит к соотношению:

$$\omega^2 = \frac{\sigma_0 |k|^2}{\rho_0 + 2\rho_a / |k|}.$$
(17)

Здесь ρ_0 — двумерная плотность пленки, σ_0 — ее поверхностное натяжение, ρ_a — плотность воздуха. Слагаемое $2\rho_a/|k|$ соответствует присоединенной массе воздуха, вовлекаемой в движение при поперечных колебаниях пленки. Фактор 1/|k| в $2\rho_a/|k|$ отвечает глубине проникновения потенциальной части скорости воздуха.

Из уравнений (15) и (16) мы находим горизонтальную завихренность

$$\varpi_{\alpha} = \epsilon_{\alpha\beta} \frac{\hat{\kappa} + \hat{k}}{\hat{k}} e^{\mp \hat{\kappa} z} \partial_{\beta} \partial_{t} h, \qquad (18)$$

которая теперь входит в правую часть уравнения (12). Для достаточно тонких пленок и стационарной завихренности граничное условие к этому уравнению (13) остается неизменным. В работе мы показываем, что это утверждение



Рис. 4. Пространственное распределение стационарной завихренности ϖ_z для случая суперпозиции двух стоячих волн. Во всех случаях размер рамки $L_y = \pi$. Значения остальных параметров указаны на рисунках.

справедливо, если $\rho_a \nu_a / \eta \gg |k|$, где η — вязкость смектической пленки. Решая уравнение с указанным граничным условием, мы приходим к ответу для вертикальной завихренности:

$$\varpi_{z} = \epsilon_{\alpha\beta} \left\langle \left(e^{\mp \hat{\kappa} z} \frac{\hat{\kappa}}{\hat{k}} \partial_{\beta} \partial_{t} h \right) \left(e^{\mp \hat{k} z} \partial_{\alpha} h \right) \right\rangle +$$

$$\frac{\epsilon_{\alpha\beta}}{2} \hat{k}^{-1} e^{\mp \hat{k} z} \left\langle (\partial_{\beta} \partial_{t} \hat{k}^{-1} h) (\hat{\kappa} \hat{k} \partial_{\alpha} h) - \frac{\hat{\kappa}}{\hat{k}} \partial_{\beta} h \partial_{\alpha} \partial_{t} \hat{k} h \right\rangle.$$
(19)

Здесь угловые скобки обозначают усреднение по времени, поскольку мы интересуемся только стационарным вкладом в завихренность. Основное отличие от случая волн на воде заключается в том, что ответ для завихренности параметрически больше при тех же амплитудах поперечных колебаний. По этой же причине условие применимости нашей теории становится еще более строгим, теперь его можно записать в виде $kh \ll \gamma^{3/2}$.

Полученное выражение позволяет предсказать пространственную струк-

туру вертикальной завихренности для различных мод поперечных колебаний. Например, если отклонение пленки от положения равновесия описывается выражением $h = H_1 \sin(k_x x) \sin(k_y y) \cos(\omega t) + H_2 \sin(q_x x) \sin(q_y y) \cos(\omega t + \phi)$, где $k_x^2 + k_y^2 = q_x^2 + q_y^2 = k^2$ опеределяется законом дисперсии (17), то для вертикальной завихренности на поверхности пленки мы получаем:

$$\varpi_z(0) = \frac{\omega H_1 H_2}{\gamma \sqrt{2}} \left(1 + |k| \hat{k}^{-1} \right) \left[k_y q_x \sin(k_x x) \sin(q_y y) \cos(q_x x) \cos(k_y y) - k_x q_y \cos(k_x x) \cos(q_y y) \sin(q_x x) \sin(k_y y) \right] \sin \phi.$$

$$(20)$$

Некоторые возможные пространственные распределения завихренности изображены на Рис. 4.

Аналогичным образом могут быть проанализированы колебания смектической пленки, находящейся в вакууме. В диссертационной работе показано, что в этом случае величина вертикальной завихренности связана с аномально малым затуханием поперечных колебаний [25]. Таким образом, мы предполагаем, что экспериментальное изучение вертикальной завихренности поможет пролить свет на причины и характер затухания изгибных колебаний пленки.

Заключение

В заключении сформулированы основные результаты работы.

Работы автора по теме диссертации

[P1] Parfenyev V., Vergeles S. "Intensity-dependent frequency shift in surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation", Phys. Rev. A 86, 043824 (2012).

[P2] Fedorov I., Parfenyev V., Vergeles S. et al. "Allowable number of plasmons in nanoparticle", JETP Letters 100, 530–534 (2014). [P3] Parfenyev V., Vergeles S. "Quantum theory of a spaser-based nanolaser",
 Optics Express 22, 13671–13679 (2014).

[P4] Filatov S., Parfenyev V., Vergeles S. et al. "Nonlinear Generation of Vorticity by Surface Waves", Phys. Rev. Lett. **116**, 054501 (2016).

[P5] Parfenyev V., Vergeles S., Lebedev V. "Nonlinear generation of vorticity in thin smectic films", Pis'ma v ZhETF **103**, 220–224 (2016).

[P6] Parfenyev V., Vergeles S. "Spaser in above-threshold regime: The lasing frequency shift", Proc. Intern. Conf. Days on Diffraction 2012.

[P7] Sarychev A., Fyodorov I., Parfenyev V. et al. "Thermal instability in plasmonics", SPIE/COS Photonics Asia, 927806 (2014).

[P8] Sarychev A., Tartakovsky G., Vergeles S., Parfenyev V. "Thermal phenomena in quantum plasmonics", SPIE Nanoscience+Engineering, 95470A (2015).

Цитированная литература

- Stockman M. I. Nanoplasmonics: past, present, and glimpse into future // Optics Express. 2011. Vol. 19. P. 22029–22106.
- Surface-Enhances Raman Scattering // Ed. by K. Kneipp, M. Moskovits, H. Kneipp. Vol. 103 of Topics in Applied Physics. Springer, Berlin, 2006.
- Stockman M. I. Nanoplasmonic sensing and detection // Science. 2015. Vol. 348, no. 6232. P. 287–288.
- Zhang X. Gold nanoparticles: recent advances in the biomedical applications // Cell biochemistry and biophysics. 2015. Vol. 72, no. 3. P. 771–775.
- Gramotnev D. K., Bozhevolnyi S. I. Plasmonics beyond the diffraction limit // Nature Photonics. 2010. Vol. 4, no. 2. P. 83–91.
- 6. Fedyanin D. Y., Krasavin A. V., Arsenin A. V., Zayats A. V. Surface plasmon

polariton amplification upon electrical injection in highly integrated plasmonic circuits // Nano Letters. 2012. Vol. 12, no. 5. P. 2459–2463.

- Bergman D. J., Stockman M. I. Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation: quantum generation of coherent surface plasmons in nanosystems // Physical Review Letters. 2003. Vol. 90, no. 2. P. 027402.
- Noginov M., Zhu G., Belgrave A. et al. Demonstration of a spaser-based nanolaser // Nature. 2009. Vol. 460, no. 7259. P. 1110–1112.
- Oulton R. F., Sorger V. J., Zentgraf T. et al. Plasmon lasers at deep subwavelength scale // Nature. 2009. Vol. 461, no. 7264. P. 629–632.
- Von Kameke A., Huhn F., Fernández-García G. et al. Double cascade turbulence and Richardson dispersion in a horizontal fluid flow induced by Faraday waves // Physical Review Letters. 2011. Vol. 107, no. 7. P. 074502.
- Francois N., Xia H., Punzmann H. et al. Three-dimensional fluid motion in Faraday waves: Creation of vorticity and generation of two-dimensional turbulence // Physical Review X. 2014. Vol. 4, no. 2. P. 021021.
- Falkovich G. Could waves mix the ocean? // Journal of Fluid Mechanics.
 2009. Vol. 638. P. 1–4.
- Xia H., Francois N., Punzmann H., Shats M. Lagrangian scale of particle dispersion in turbulence // Nature Communications. 2013. Vol. 4.
- Allen L., Eberly J. H. Optical resonance and two-level atoms. Courier Corporation, 2012.
- Danilova A., Danilova T., Imenkov A. et al. Rapid tuning of the generation frequency of InAsSb/InAsSbP diode lasers (λ= 3.3 μm) due to nonlinear optical effects // Semiconductors. 1999. Vol. 33, no. 2. P. 210–215.
- Rabinovich W., Feldman B. Spatial hole burning effects in distributed feedback lasers // IEEE Journal of Quantum Electronics. 1989. Vol. 25, no. 1. P. 20–30.
- 17. Freedman J. P., Leach J. H., Preble E. A. et al. Universal phonon mean free path spectra in crystalline semiconductors at high temperature // Scientific

Reports. 2013. Vol. 3.

- Chen G. Ballistic-diffusive heat-conduction equations // Physical Review Letters. 2001. Vol. 86, no. 11. P. 2297.
- Yeshchenko O., Bondarchuk I., Gurin V. et al. Temperature dependence of the surface plasmon resonance in gold nanoparticles // Surface Science. 2013. Vol. 608. P. 275–281.
- Cirac J. I. Interaction of a two-level atom with a cavity mode in the bad-cavity limit // Physical Review A. 1992. Vol. 46, no. 7. P. 4354.
- Carmicael H. Statistical Methods in Quantum Optics 1. Springer, Berlin, 2010.
- 22. Bohnet J. G., Chen Z., Weiner J. M. et al. A steady-state superradiant laser with less than one intracavity photon // Nature. 2012. Vol. 484, no. 7392. P. 78–81.
- Temnov V. V., Woggon U. Photon statistics in the cooperative spontaneous emission // Optics Express. 2009. Vol. 17, no. 7. P. 5774–5782.
- 24. Francois N., Xia H., Punzmann H., Shats M. Inverse energy cascade and emergence of large coherent vortices in turbulence driven by Faraday waves // Physical Review Letters. 2013. Vol. 110, no. 19. P. 194501.
- 25. Kats E. I., Lebedev V. V. Fluctuational effects in the dynamics of liquid crystals. Springer Science & Business Media, 2012.