

Нелинейное отражение квазидвумерного суперкристалла при двухфотонном резонансе

Е. В. Тимощенко¹), В. А. Юревич²), Ю. В. Юревич²)

¹)Могилевский государственный университет им. А. А. Кулешова, Могилев, Беларусь, e-mail: timoshchenko@msu.by

²)Белорусский государственный университет пищевых и химических технологий, Могилев, Беларусь, e-mail: va_yurevich@mail.ru

Предложена и проанализирована теоретическая модель реакции на световое поле квазидвумерного суперкристалла с двухфотонным поглощением в режиме когерентного взаимодействия. Получены выражения для нелинейной связи энергий внешнего и отраженного импульсов и моделировано отражение сверхкороткого оптического импульса.

Ключевые слова: суперкристаллы квантовых точек; двухфотонный резонанс; диполь-дипольное взаимодействие; оптический эффект Штарка, нелинейный дрейф частоты.

Quasi-two-dimensional supercrystal nonlinear reflection under two-photon resonance

E. V. Timoshchenko¹), V. A. Yurevich²), Yu. V. Yurevich²)

¹)Mogilev State A. Kuleshov University, Mogilev, Belarus, e-mail: timoshchenko@msu.by

² Belarusian State University of Food and Chemical Technologies, Mogilev, Belarus, e-mail: va_yurevich@mail.ru

A theoretical model of the response to a light field of a quasi-two-dimensional supercrystal with two-photon absorption in the coherent interaction mode is proposed. Expressions for the nonlinear relationship between the powers of external and reflected pulses are obtained and the reflection of an ultrashort optical pulse is modeled.

Keywords: quantum dot supercrystals; two-photon resonance; dipole-dipole interaction; optical Stark effect; nonlinear frequency drift.

Введение

В направлении разработки компактных интегрально-оптических устройств признано перспективным исследование резонансной реакции на зондирующее извне когерентное световое поле низкоразмерных объектов, известных как двумерные суперкристаллы (СК) [1] (в частности, с квантово-размерными эффектами в структуре). Нелинейный отклик элементарных квантовых излучателей (КИ), которые расположены в их структуре со сравнительно высокой плотностью, на когерентное импульсное излучение особо выражен в спектральной области, соответствующей экситонным переходам. Наблюдалось, например, что предельно тонкий слой ди-халькогенида MoSe₂ в области экситонного резонанса является идеальным зеркалом с гистерезисными свойствами, имеющим практически атомную толщину [2].

В работе, положенной в основу представленного сообщения, ставилась задача разработки модели резонансного поглощения в низкоразмерном СК в случае относительно высокой концентрации дипольных излучателей (атомов, ионов, экситонов) при условии двухквантового резонанса и когерентного взаимодействия. Предполагается, что внешним полем частоты ω в нелинейном отклике среды СК порождаются составляющие поляризованности на удвоенной частоте, так что $2\omega = \omega_{21}$, где ω_{21} – частота основного перехода в энергетической структуре. Импульсное поле представлено всплесками мощности и имеет характерную длительность, меньшую времени фазовой релаксации отклика ансамбля КИ, формирующих слой СК. Ранее в литературе, в основном, анализировалось решение подобной нелинейной задачи для однофотонного резонанса, когда частоты поля и перехода в СК близки по значению ($\omega \approx \omega_{21}$).

1. Постановка задачи и исходная расчётная модель

Для нелинейного поглощения особо тонкого слоя с резонансной поляризацией характерно наличие компонентов поляризованности, получивших название сверхизлучательных. Естественно, интересным представляется рассмотреть ситуацию, когда в условиях двухквантового резонанса в световом пучке действующего на КИ в среде планарного слоя СК поля возникают сверхизлучательные составляющие удвоенной частоты. Вывод аналогов уравнений Блоха для материального отклика, описываемого вероятностными переменными поляризованности $\rho(t)$ и резонансной вариации населённости $n(t)$, для случая двухфотонного поглощения достаточно обоснован в литературе. Используем далее одно из представлений динамики отклика, приведенное в [3]:

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{\alpha_{12}}{2\hbar} (n+1) E^2 + i \left(\Delta\omega + \frac{\alpha_2 - \alpha_1}{4\hbar} \varepsilon_0 |E|^2 \right) \rho, \quad \frac{d\rho}{dt} = -\frac{\alpha_{12}}{2\hbar} (\rho E^{*2} + \rho^* E^2), \quad (1)$$

где $E(t)$ – квазистационарная амплитуда напряжённости светового поля, действующего на КИ, $\alpha_{1,2} = \frac{2}{\varepsilon_0 \hbar} \sum_{k \geq 2} \frac{|\mu_{1,2k}|^2 \omega_{k1,2}}{\omega_{k1,2}^2 - \omega^2}$ и $\alpha_{12} = \frac{1}{\hbar} \sum_{k \geq 2} \frac{\mu_{1k} \mu_{2k}}{\omega_{k2} + \omega}$ – поляризуемости КИ

на уровнях основного перехода и сечение перехода, μ_{ik} и ω_{ik} – дипольный матричный элемент и частота перехода между уровнями i, k КИ, $\Delta\omega = 2\omega - \omega_{12}$ – дефект резонанса.

В уравнениях (1) учитывается квадратичный Штарк-эффект, определяющий смещение перехода в условиях различия поляризуемостей КИ (дефекта поляризуемости $\Delta\alpha = \alpha_2 - \alpha_1$) на уровнях перехода. Изменение вероятностной величины поляризационного отклика массива КИ на действие поля E в случае двухквантового резонанса описывается динамикой активной и реактивной составляющих поляризованности $E \cdot \text{Re}\rho$ и $E \cdot \text{Im}\rho$. Далее запишем обычно используемые в приближении сверхтонкого слоя толщины l выражения для связи полей в квазидвумерном СК, которые следуют из граничных условий Максвелла для полей на границе раздела (на поверхности низкоразмерного планарного слоя):

$$E(t) = E_0(t) - N_0 \frac{\omega l}{c} (\rho - 2i\beta n)(1 - i\gamma)E(t), \quad E_r(t) = N_0 \frac{\omega l}{c} (\rho - 2i\beta n)E(t). \quad (2)$$

В соотношениях (2) учтено поляризующее влияние ближних полей и, тем самым, типичное для сред с высокой плотностью КИ диполь-дипольное взаимодействие. Важно также, что в представлении (2) рассматривается поглощение в квазирезонансных переходах, обуславливающих существование дефекта поляризуемости $\Delta\alpha$ и связанный с ним дрейф частоты действующего поля. Нелинейная отстройка частоты в (2) учтена наличием мнимого компонента поляризованности, пропорционального вариации населённости. Используются также следующие обозначения: E_0 – напряжённость нормально падающего на СК внешнего поля, E_r – напряжённость отражённого поля, N_0 – поверхностная концентрация КИ, $\beta = \Delta\alpha\epsilon_0/4\alpha_{12}$ – нормированный коэффициент Штарк-эффекта, γ – нормирующий коэффициент в локальной поправке Лоренца.

2. Формулировка приближённой схемы

Решение неавтономной задачи расчёта баланса полей при импульсном взаимодействии светового поля с квантовым ансамблем диполей, образующих низкоразмерный СК, может иметь полуаналитическое представление при любом виде поля $E(t)$. Для этого следует допустить значимость точного резонанса ($\Delta\omega = 0$), то есть, отсутствие вызванной дефектом частоты фазовой модуляции. В системе (1), (2) удобно масштабировать переменную импульсного поля таким образом: $e(t) = \alpha_{12}E(t)/2\hbar$ и использовать представление $\rho(t) = R + iS$.

Тогда для поля $e(t)$ решения материальных уравнений (1) запишутся в виде функций угла поворота $\psi(t)$ переменных R , S и n за время действия импульса. Из уравнений системы (1) нетрудно определить связь вариации населённости с реактивной составляющей поляризации: $S = \beta n$. С учётом очевидных начальных условий $\rho(t=0) = 0$, $n(t=0) = 0$ далее формулируется соотношение: $R^2 + (1+\beta^2)n^2 + 2n = 0$. Решения для материальных переменных тогда можно записать как функции угла $\psi(t)$:

$$R = \frac{\sin \psi}{\sqrt{1+\beta^2}}, \quad S = \beta \frac{\cos \psi - 1}{1+\beta^2}, \quad n = \frac{\cos \psi - 1}{1+\beta^2}, \quad \psi = \sqrt{1+\beta^2} \int_{-\infty}^t |e^2(t)| dt. \quad (3)$$

Для согласования переменных в (3) при определении энергии импульса, поглощаемой в слое СК, необходимо воспользоваться представленными в схеме (1), (2) соотношениями для связи между амплитудами поля и поляризованности. Из выражения для действующего поля $e(t)$ в (2) следует:

$$\left\{ \left[1 + \kappa(R + \beta\gamma n) \right]^2 + \kappa(\gamma R - \beta n)^2 \right\} |e(t)|^2 = |e_0(t)|^2, \quad (4)$$

где $\kappa = N_0 \omega l / c$. Соотношение (4) интегрируется с учётом решений (3):

$$\psi_0 = \left(1 - \frac{2\beta\kappa\gamma - A}{1 + \beta^2}\right)\psi - \frac{2\kappa}{\sqrt{1 + \beta^2}}\cos\psi + B\sin\psi - C\sin 2\psi, \quad (5)$$

$$\text{где } A = \kappa^2 \left(1 + \frac{1}{2} \frac{\beta^2}{1 + \beta^2}\right) \frac{1 + \gamma^2}{1 + \beta^2}, \quad B = \frac{\beta\kappa}{1 + \beta^2} \left(\gamma - 2\beta\kappa \frac{1 + \gamma^2}{1 + \beta^2}\right), \quad C = \frac{\beta^2\kappa^2}{4} \frac{1 + \gamma^2}{1 + \beta^2}.$$

Интеграл системы (1), (2) в записи (5) выражает аналог теоремы площадей в случае двухквантового резонанса, связывая величины энергии входного и прошедшего СК сверхкоротких оптических импульсов. Схема расчёта (5) даёт возможность упрощённой оценки трансформации энергетических и фазовых характеристик света в используемых в нанофотонике модулирующих элементах на основе СК в зависимости от параметра ненасыщенного нелинейного поглощения κ , определяемого плотностью активных центров.

3. Особенности динамики отражения импульсов

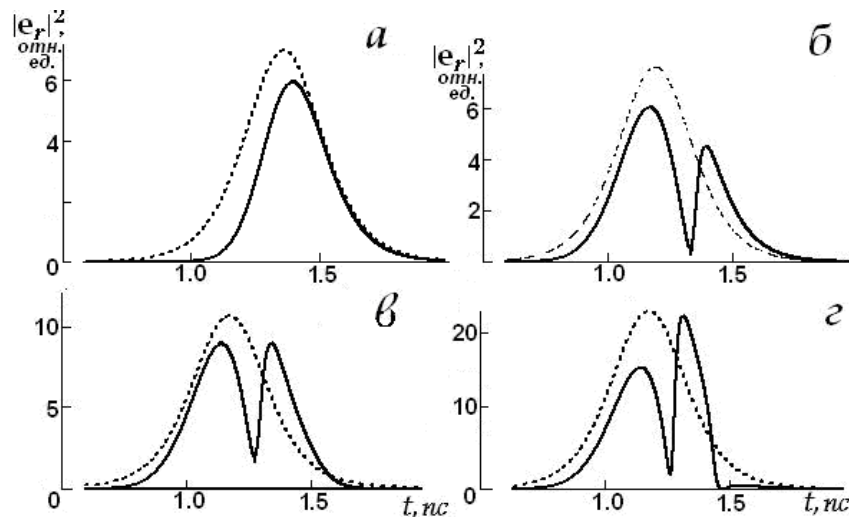
Рассматривается физическая ситуация при нормальном падении на планарный квазикристалл ультракороткого импульса длительностью порядка периода осцилляций Раби, то есть значительно меньших времени фазовой релаксации. При моделировании трансформации внешних сигналов, основанной на численном решении системы уравнений (1), предполагалось, что нормированная огибающая падающего импульса описывается функцией:

$$e_i(\tau) = e_0 \operatorname{sech}\left(\frac{\tau - \tau_0}{\Delta\tau}\right), \quad (6)$$

где e_0 и $\Delta\tau$ – амплитуда и нормированная длительность импульса, τ_0 – нормированный сдвиг импульса на временной шкале.

Численное интегрирование уравнений (1) для величины $|e_r(\tau)|^2 = \kappa^2 [R^2 + (S - 2\beta n)^2] |e(\tau)|^2$ проводилось методом Рунге-Кутты для условий возбуждения квазикристалла приведенным внешним полем $e_i(\tau)$ для начальных условий $\rho(\tau = 0) = 0$, $n(\tau = 0) = 0$. Условия означают предположение об отсутствии поляризованности на удвоенной частоте при том положении, что некоррелированный дипольный ансамбль, которым образован массив СК, первоначально находится в основном состоянии.

На фрагментах рисунка типичная форма отражённого сигнала (сплошная кривая) иллюстрирована на фоне входного импульса, приведенного в собственном масштабе. Численное решение показало, что в случае отсутствия фазовых эффектов форма отражённого импульса накачки повторяет форму «входного» ультракороткого импульса (фрагмент *a*). Динамическое нарушение резонанса, вызванное автомодуляционным дрейфом частоты, оптическим эффектом Штарка и действительностью поля Лоренца, способно привести к нелинейным вариациям двухфотонного поглощения и связанного с ним отражения. Их следствием может быть обусловлено эффективное расщепление отражённого импульса. Соотношение пиковых мощностей в обоих компонентах сдвоенного сигнала для данного уровня ненасыщенного поглощения κ зависит от амплитуды импульса



Форма отраженного импульса в зависимости от пиковой амплитуды импульса возбуждения: $e_0 = 32$ (а, б), 40 (в), 50 (г), $\kappa = 1.25$, $\beta = 0$ (а), 0,05 (б–г), $\gamma = 0$ (а), 1,05 (б–г)

«входного» поля e_0 . (фрагменты б–г). «Контраст» расщепления определяется величиной κ .

Заключение

В сообщении рассмотрены эффекты, которые могут проявиться в динамическом процессе отражения ультракороткого оптического импульса низкоразмерным суперкристаллом квантовых точек в условиях двухфотонного резонанса. Принципиальным моментом проведенного анализа был учёт безынерционных по отношению к световому полю эффектов смещения резонанса. Их следствия способны привести к проявлению вынужденной обратимой динамической релаксации поляризации пленки резонансных атомов на временах, много меньших времен необратимой релаксации среды. В результате этого в среде квазикристалла формируется нелинейный отклик, характеризующийся внутренней неустойчивостью и способный обусловить эффективную модуляцию сигналов внешнего излучения.

Библиографические ссылки

1. Low-Dimensional Semiconductor Superlattices Formed by Geometric Control over Nanocrystal Attachment / W. H. Evers [et al.] // Nano Letters. 2013. V. 13. P. 2317–2325.
2. Realization of an Electrically Tunable Narrow-Bandwidth Atomically Thin Mirror Using Monolayer MoSe₂ / P. Back [et al.] // Phys. Rev. Lett. 2018. V. 120. P. 037401–11.
3. Гуревич Г. Л., Хронопуло Ю. Г. Некоторые вопросы теории двухфотонных процессов // ИВУЗ Радиофизика. 1965. Т. 8, № 3. С. 493–503.