ФАЗОВАЯ НЕУСТОЙЧИВОСТЬ ИЗЛУЧЕНИЯ И ДИНАМИКА РЕЗОНАНСНОГО ОТРАЖЕНИЯ КВАЗИДВУМЕРНОГО СУПЕРКРИСТАЛЛА КВАНТОВЫХ ТОЧЕК

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

 ¹⁾ Могилевский государственный университет имени А.А. Кулешова, ул. Космонавтов, 1, 212022 Могилёв, Беларусь, timoshchenko@msu.by
 ²⁾ Белорусский государственный университет пищевых и химических технологий, пр. Шмидта, 3 Могилёв, Беларусь, va yurevich@mail.ru

В рамках предложенной модификации полуклассической теоретической схемы взаимодействия когерентного светового поля со сверхтонким резонансно поляризуемым слоем проведено моделирование динамики отражения квазидвумерных суперкристаллов, формируемых полупроводниковыми квантовыми точками и перспективных к применению в нанофотонике. При формулировке схемы учтена возможность дипольдипольного взаимодействия, использованы представления обобщённой двухуровневой схемы, позволяющие в материальных уравнениях для резонансного отклика суперкристаллов учитывать автомодуляционное спектральное уширение светового поля, обусловленное поглощением излучения в квазирезонансных переходах, и оптический эффект Штарка. Результаты моделирования показывают, что неустойчивость фазового соотношения светового поля и поляризованности, стимулированная действием взаимосвязанных нелинейных эффектов, способна приводить к осцилляциям во временной структуре интенсивности отражаемого непрерывного поля.

Ключевые слова: квазидвумерные суперкристаллы; квантовые точки; резонансная нелинейность; самомодуляция отраженного излучения; перенормировка фазового соотношения.

QUANTUM RADIATION PHASE INSTABILITY AND RESONANT REFLECTION DYNAMICS OF QUASI-TWO-DIMENSIONAL DOTS SUPERCRYSTAL

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

¹⁾ Mogilev State A. Kuleshov University, Kosmonavtov str., 1, 212022 Mogilev, Belarus ²⁾ Belarussian State University of Food & Chemical Technologies, av. Schmidta, 3, 212027 Mogilev Corresponding author: E. V. Timoshchenko (timoshchenko@msu.by)

Basing on the proposed modification of the semiclassical theoretical scheme of interaction of a coherent light field with an ultrathin resonantly polarized layer, modeling of the reflection dynamics of quasi-two-dimensional supercrystals formed by semiconductor quantum dots and promising for use in nanophotonics was carried out. On scheme formulating, the possibility of dipole-dipole interaction was considered; representations of a generalized two-level scheme were used, allowing the self-modulation spectral broadening of the light field due to the absorption of radiation in quasi-resonant transitions and the optical Stark effect to be taken into account in the material equations for the resonant response of supercrystals. The calculation results show that the instability of the phase relationship of the light field and polarization, stimulated by the action of interconnected nonlinear effects, can lead to oscillations in the time structure of the intensity of the reflected continuous field.

Key words: quasi-two-dimensional supercrystals; quantum dots; resonant nonlinearity; self-modulation of reflected radiation; phase relation renormalization.

введение

Материальные структуры из регулярно расположенных активных центров (например, квантовых точек, в частности, представляемых элементарными диполями) при условии их плотной упаковки в матрице именуют суперкристаллами (СК) [1]. Слой СК приобретает выраженную способность нелинейного резонансного рассеяния внешнего излучения, его резонансный отклик на излучение способен привести к результативному проявлению при умеренных уровнях интенсивности нелинейных оптических эффектов в условиях крайне низкоразмерного формата образца СК [2]. Подобные планарные оптические объекты на основе СК, эффективно меняющие фазу отраженного излучения, получили название метаповерхностей [3]. Преимущество квазидвумерных СК особо выражено тем, что в подавляющем большинстве их вещество – полупроводники, энергетическая структура которых может управляться внешним воздействием, что делает метаповерхности в высшей степени перспективными в применении в качестве нелинейных модуляторов в устройствах нанофотоники.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ И ОСНОВНЫЕ УРАВНЕНИЯ

В силу существования дополнительных степеней свободы в схеме резонансного взаимодействия с полем когерентного излучения (например, возбуждения соседних с основным переходов в энергетической структуре активных центров, взаимодействия ближних полей квантовых точек, а также оптического эффекта Штарка) в СК возникает смещение резонансных спектральных линий поглощения. Соответствующая частотная неустойчивость излучения приводит к тому, что оптические характеристики вещества особым образом зависят от его энергетического состояния в процессах энергообмена со световым полем. Этим определяется изменение эволюции резонансного поглощения или отражения слоя СК, поэтому в работе, положенной в основу сообщения, ставилась задача оценки кинетических следствий фазовой нелинейности отклика СК. Оригинальность работы состоит именно в последовательном учете перечисленного ряда взаимосвязанных резонансных механизмов нелинейности, обусловливающих частотную неустойчивость излучения в динамических процессах взаимодействия когерентного светового поля с СК.

Теоретическая модель основывается на модификации уравнений Максвелла – Блоха, применяемой для анализа резонансного взаимодействия поля E(t) когерентного излучения с приповерхностным сверхтонким слоем материала с резонансной поляризованностью. Предлагаемая в настоящем сообщении система уравнений записывается для переменных напряженности действующего на дипольные центры светового поля E(t), вероятностей поляризованности ρ и разности населённостей уровней перехода n. Комплексное выражение для напряженности действующего поля E(t)включает локальную поправку Лоренца (учитывается диполь-дипольное взаимодействие), а комплексное представление поляризованности аналогично [4] рассматривается в рамках обобщенной двухуровневой схемы (учтено влияние квазирезонансных переходов, которым стимулирована резонансная нелинейная рефракция, пропорциональная вариации разности населенностей, и соответствующий дрейф частоты действующего поля). В итоге схема расчёта кинетики резонансного отражения и поглощения формулируется в таком виде (в уравнениях для отклика СК использовано представление $\rho(t) = R(t) + iS(t)$, напряжённости световых полей нормированы, например, $\mathbf{e}(t) = \mu \sqrt{T_1 T_2} E(t)/\hbar$):

$$\mathbf{e} = [\mathbf{t}_0 \mathbf{e}_i - \kappa \rho (1 - i\gamma)] (1 - \gamma B - iB)^{-1}, \quad \mathbf{e}_r = -\mathbf{r}_0 \mathbf{e}_i - \kappa \rho + iB\mathbf{e},$$

$$T_2 \frac{dR}{dt} = \frac{n}{D} (1 - \gamma B) \mathbf{e}_i - (\frac{\kappa n}{D} + 1)R + \Delta S, \quad T_2 \frac{dS}{dt} = \frac{nB}{D} \mathbf{e}_i - \Delta R - (\frac{\kappa n}{D} + 1)S,$$

$$T_1 \frac{dn}{dt} = 1 - n - \frac{1}{D} \{ [(1 - \gamma B)R + BS] \mathbf{e}_i - \kappa (R^2 + S^2) \},$$
(1)

 $B = \beta \kappa (1-n), \quad D = (1-\gamma B)^{2} + B^{2}, \quad \Delta = \Delta_{0} + \kappa \frac{n}{D}G - \frac{\beta}{2T_{1}}T_{2}|\mathbf{e}|^{2}, \quad G = \gamma - (1+\gamma^{2})B,$

где е_i и е_r – нормированные напряженности внешнего и отраженного полей, t₀ и r₀ – нерезонансные (френелевы) коэффициенты пропускания и отражения слоя СК, μ – дипольный момент активного центра, T_1 и T_2 – времена продольной (межзонной) и поперечной (внутризонной) релаксации, $\gamma = \frac{\mu^2 N}{3\varepsilon_0\hbar}T_2$ – нормирующий коэффициент

в локальной поправке Лоренца, $\kappa = \frac{\mu^2 \omega_0 N l}{\varepsilon_0 \hbar c} T_2$ – показатель поглощения слоя толщи-

ны *l* на частоте резонанса ω_0 (*N* – объемная плотность активных центров), $\beta = \frac{2\pi\varepsilon_0\hbar}{\mu^2 T_2} \Delta \alpha$ – коэффициент нелинейной рефракции (пропорционален характери-

стике фактора Хенри, $\Delta \alpha = \alpha_2 - \alpha_1 - разность поляризуемостей <math>\alpha_1$, α_2 активных центров на уровнях основного перехода, $\Delta_0 = (\omega - \omega_0)T_2 -$ нормированная по ширине резонанса линейная отстройка частоты внешнего поля ω от центра спектральной линии резонансного поглощения.

Отметим далее, что частотное соотношение Δ включает составляющую $\beta T_2 |e|^2/2 T_1$, которой учитывается оптический эффект Штарка, характеризующий смещение спектральных линий в поле излучения. Коэффициент нелинейности в штарковской составляющей также пропорционален дефекту поляризуемости, поэтому рассмотрение его динамического вклада в частотную отстройку Δ согласуется с учетом вклада квазирезонансной поляризованности (нелинейной рефракции или фактора Хенри в полупроводниках). Компонентом $\kappa n G/D$, кроме вклада нелинейной рефракции или фактора Хенри в полупроводниках). Компонентом $\kappa n G/D$, кроме вклада нелинейной рефракции, учтено влияние диполь-дипольного взаимодействия активных центров (квантовых точек), вызывающее смещение центра спектральной линии при изменении разности населённостей. Кроме того, наличие линейной отстройки частоты Δ_0 означает также учет известного динамического явления затягивания частоты излучения к центру спектральной линии. Динамика рассматриваемых фазовых эффектов такова, что их следствия могут компенсироваться или взаимно усиливаться, этими факторами могут быть обусловлена неустойчивость фазового соотношения поля и поляризованности.

МОДЕЛИРОВАНИЕ ВРЕМЕННО́Й СТРУКТУРЫ ОТРАЖЕННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Численное интегрирование системы уравнений (1) проводилось методом Рунге-Кутты для начальных условий, приблизительно соответствующих выполнению соотношения, характеризующего равновесное состояние отклика $\rho_{\rm S}$, $n_{\rm S}$, при постоянном во времени уровне возбуждения внешним полем ($e_i(t) = e_0$). Соотношение для начальных условий: $|\rho_{\rm S}|^2 + n_{\rm S}^2 = n_{\rm S}$ следует из сингулярных пределов уравнений для отклика в системе (1). Предполагалось, что $R(t=0) = |\rho_{\rm S}|$, S(t=0) = 0 при том, однако, условии, что начальное значение вероятности разницы населенности $n(t=0) = n_{\rm S}$ незначительно меньше 1.

Непосредственно рассчитывалась не имеющая размерности величина плотности мощности отражённого излучения $X(t) = |e_r(t)|^2$, нормированная по уровню мощности насыщения резонансного поглощения, а также вариация нелинейного компонента частотного смещения $\Delta \omega_{\text{нел.}} = \kappa n G/(DT_2) - \beta |e|^2/2T_1$. В расчетах использованы значения коэффициентов и параметров (1), соответствующих характеристикам реальных материалов – полупроводниковых суперкристаллов квантовых точек, известных например, по данным работы [1]. В оценке масштаба явлений исходили из того, что длина волны внешнего поля примерно $1,25...1,30\cdot10^{-6}$ м, интенсивность $5...8\cdot10^5$ Вт/см², поверхностная плотность квантовых точек $2...5\cdot10^{13}$ см⁻², дефект поляризуемости $\Delta \alpha$ порядка 10^{-21} см³.

При избранном соотношении параметров расчет разверток нормированной мощности проводился в пределах нано- или субнаносекундной шкалы времени. На рисунке 1 иллюстрирован один из наиболее интересных в практическом отношении вариантов эволюции отраженного излучения.



Рис. 1. Зависимости нормированной мощности излучения (*a*, *a'*, *в*, *г*) и нелинейной вариации частоты (*б*) от времени: $\beta = 0,1$ (*a*, *a'*, *б*, *г*); 0 (*в*); $\beta T_2/T_1 = 0$ (*в*); $e_0^2 = 8$; $\Delta 0 = 0,5$; $\kappa = 1$; $\gamma = 2$; $T_1 = 1,0 \cdot 10^{-9}$ с; $T_2 = 2,5 \cdot 10^{-12}$ с; $r_0 = 0,56$

При определённом уровне возбуждения непрерывным полем в его отражении поверхностью СК квантовых точек может формироваться регулярная серия релаксационных импульсов (рис. 1, *a*). Релаксационными их называют потому, что частота следования, контраст и скважность имеют, в том числе, зависимость от соотношения релаксационных параметров системы (1). Более высокочастотная составляющая, огибающую которых формирует релаксационная структура, обусловлена оптической нутацией дипольных частиц (на рисунке 1, a' приведен отдельный модулированный импульс в бо́льшем разрешении). Наличие образующих основную структуру релаксационных осцилляций с субнаносекундным периодом стимулировано частотной неустойчивостью излучения (рис. 1, δ) – оказывается результативным механизм нелинейной амплитудно-фазовой связи, вызванный действием ряда нелинейных эффектов, сопровождающих резонансное взаимодействие.

Многократные расчёты, пример которых приведен на рисунке 1, позволили сделать вывод, что «ведущим» фактором самопроизвольного развития модуляции является эффект Штарка. На фрагментах рисунка 1 также приведены развёртки излучения, рассчитанные без рассмотрения следствий нелинейной рефракции (рис. 1, e) и – отдельно – без учёта эффекта Штарка (рис. 1, e). Фактор неустойчивости в обоих случаях не срабатывает – возникшие на начальном этапе всплески мощности затухают, с разным темпом приближаясь к равновесному состоянию – отражённое излучение тогда воспроизводит характер возбуждающего поля, становится непрерывным.

Далее следует, однако, отметить, что для решений (1) достаточно типичны «переходные» развёртки – со структурой мощности X(t), релаксирующей к некоторому установившемуся уровню мощности. Рисунок 2 иллюстрирует возможность трансформации характеристик серий X(t) в зависимости от уровня нормированной мощности возбуждающего излучения e_0^2 . Сравнение фрагментов рисунка 2 показывает, что по мере нарастания мощности внешнего возбуждения квазипериодическая последовательность убывающих по амплитуде и снижающихся по контрасту пульсаций (рис. 2, a - b) сменяется серией регулярных импульсов (рис. 2, c).



Рис. 2. Временная развертка нормированной мощности (a - z), на фрагментах a' - z' — структура излучения в бо́льшем разрешении: $e_0^2 = 4 (a, a')$; 5 (δ, δ') ; 5,5 (e, e'); 6 (z, z'); $\Delta 0 = 1,0$; $\kappa = 1$; $\gamma = 2$; $T_1 = 1,0 \cdot 10^{-9}$ с; $T_2 = 2,5 \cdot 10^{-12}$ с; $r_0 = 0,56$

Это указывает на существовании порогового значения e_0^2 , с которого может «стартовать» радикальное преобразование непрерывного оптического сигнала, отражаемого квазидвумерным СК, в цуг контрастных периодических импульсов. Надо отметить, что пиковая мощность и период релаксационных импульсов с увеличением e_0^2 возрастают, но период нутационных осцилляций мощности не изменяется (рис. 2, *a'-e'*).

Модельные расчёты для вариаций параметров схемы (2) также показали, что пороговое значение мощности внешнего сигнала имеет выраженную дисперсионную зависимость, то есть в схеме расчета (1) определяется величиной линейной отстройки частоты Δ .

Также отметим, что схема для моделирования (1) представляет собой нелинейную кинетическую систему с тремя степенями свободы, то есть допускает возможность относительно простого качественного анализа устойчивости равновесных состояний и характеристики различия их свойств в зависимости от набора параметров. Оценка порогового уровня возбуждения регулярных осцилляторных структур на его количественной и дисперсионной шкале, проведенная в рамках этого анализа, может составлять предмет отдельной задачи.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показана, таким образом, возможность самопроизвольного развития осцилляторных структур в когерентном излучении, отражаемом квазидвумерным суперкристаллом. Внешнее световое поле при этом по интенсивности непрерывное и по частоте близко к центру частоты резонансного поглощения. Процесс формирования в отражении регулярных или квазирегулярных структур стимулирован несколькими физическими механизмами, вызывающими вариации фазового соотношения поля и резонансной поляризованности – диполь-дипольным взаимодействием, поглощением излучения в квазирезонансных переходах (действенностью фактора Хенри) и квадратичным эффектом Штарка. Механизмы нелинейности взаимосвязаны, но характеризуются различной инерционностью, этим обстоятельством объясняется дрейф частоты и неустойчивость фазового соотношения. Ведущая роль в развитии неустойчивости принадлежит эффекту Штарка, именно его существованием обусловлена особая составляющая фактора нелинейной амплитудно-фазовой связи. Осцилляторное поведение этой составляющей происходит в противофазе по отношению к вариациям остальных нелинейных компонентов частотного смещения. Картина модуляции резонансного отражения оказывается достаточно контрастной и может управляться изменением интенсивности или вариациями частоты внешнего поля в пределах ширины линии резонансного поглощения СК.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЕ ССЫЛКИ

- 1. Quantum-dot supercrystals for future nanophotonics / A.S. Baimuratov [et al.] // Scientific Reports 3. 2013. N 1727. P. 1–9.
- Large Excitonic Reflectivity of Monolayer MoSe₂ Encapsulated in Hexagonal Boron Nitride / G. Scuri [et al] // Physical Review Letters. – 2018. – V. 120. – P. 037402.
- Ремнев, М.А. Метаповерхности: новый взгляд на уравнения Максвелла и новые методы управления светом / М.А. Ремнев, В.В. Климов // УФН.– 2018.– Т.188, вып. 2. – 169–205.
- Тимощенко, Е.В. Расчёт эффективности бистабильного тонкоплёночного отражателя / Е.В. Тимощенко, Ю.В. Юревич // Проблемы физики, математики и техники.– 2019.– № 3 (40) – – С. 44–49.