

**Р.Ф. Маликов** (Уфа, Россия)

**И.В. Рыжов** (Санкт-Петербург, Россия)

**А.В. Малышев** (Санкт-Петербург, Россия; Madrid, Spain)

**В.А. Малышев** (Groningen, The Netherlands)

## **НЕЛИНЕЙНАЯ ДИНАМИКА СУПЕРКРИСТАЛЛА ТРЕХУРОВНЕВЫХ $\Lambda$ -ИЗЛУЧАТЕЛЕЙ: ТЕОРИЯ И ПЕРСПЕКТИВЫ ПРАКТИЧЕСКОГО ПРИМЕНЕНИЯ**

*Теоретически исследован нелинейный оптический отклик монослоя регулярно расположенных квантовых излучателей с дублетом в основном состоянии на действие внешнего квазирезонансного поля. Рассчитана бифуркационная диаграмма отклика, на основе которой проведена классификация бифуркаций, происходящих в*

системе. Показано, что монослой демонстрирует богатую оптическую динамику, включая мультистабильность, автоколебания и динамический хаос. В определенной полосе частот монослой функционирует как бистабильное зеркало.

**Ключевые слова:** нелинейная динамика, суперкристаллы, мультистабильность, бифуркации, автоколебания, хаос.

*The nonlinear optical response of a monolayer of regularly spaced quantum emitters with a doublet in the ground state subjected to an external quasiresonant field is studied theoretically. On the basis of the bifurcation diagram calculated, a classification of bifurcations occurring in the system is carried out. It is shown that the monolayer demonstrates rich optical dynamics, including multistability, self-oscillations and dynamic chaos. In a certain frequency region, the monolayer acts as a bistable mirror.*

**Keywords:** nonlinear dynamics, supercrystals, multistability, bifurcations, self-oscillations, chaos.

**Введение.** Методы современной микро- и нанотехнологии позволяют синтезировать объекты с необычными электромагнитными свойствами, так называемые метаматериалы [1; 2]. С точки зрения оптических применений двумерные суперкристаллы (СК) полупроводниковых квантовых точек [3] и органических полимеров [4] представляют особый интерес. Оптические свойства суперкристалла зависят от размера квантовых точек, их формы, химического состава и геометрии решетки и могут быть целенаправленно контролируемы (см. публикацию [4] и ссылки в ней), что создает платформу для применения подобных объектов в нанофотонике.

В настоящем сообщении теоретически исследуется нелинейный оптический отклик монослоя регулярно расположенных трехуровневых квантовых излучателей (КИ) с дублетом в основном состоянии ( $\Lambda$ -схема операционных переходов). В качестве КИ могут выступать легированные полупроводниковые квантовые точки или ароматические нанокристаллы. Благодаря высокой плотности КИ и их большой силе осциллятора, диполь-дипольное (КИ-КИ) взаимодействие играет важную роль в оптическом отклике СК, как линейном, так и нелинейном. Это взаимодействие обеспечивает положительную обратную связь, которая, вместе с нелинейностью КИ, приводит к богатой оптической динамике монослоя, включая мультистабильность, автоколебания и динамический хаос.

**Модель.** Мы моделируем изолированный КИ трехуровневой квантовой системой  $\Lambda$ -типа, включающей состояния  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$  дублета в нижнем состоянии и возбужденное состояние  $|3\rangle$  с энергиями  $\epsilon_1 = 0$ ,  $\epsilon_2 = \hbar\omega_2$  и  $\epsilon_3 = \hbar\omega_3$ , соответственно (рис. 1). Оптически разрешенными считаются переходы  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  и  $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ , характеризующиеся дипольными моментами переходов  $d_{31}$  и  $d_{32}$  и константами радиационного затухания  $\gamma_{31}$  и  $\gamma_{32}$  (в дальней-

шем будем считать их одинаковыми). Частота дублетного расщепления  $\Delta_{21}$  предполагается много меньшей частот оптических переходов. Релаксация в подсистеме состояний  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$  дублета учитывается феноменологически константой  $\gamma_{21}$ .

Пусть на монослой действует внешнее гармоническое поле с амплитудой Раби  $\Omega_0$  и частотой  $\omega_0$ , падающее нормально к поверхности монослоя и квазирезонансное переходам в КИ. Оптическую динамику изолированного КИ будем описывать уравнениями для матрицы плотности  $\rho_{\alpha\beta}$  ( $\alpha, \beta = 1, 2, 3$ ), а для описания отклика монослоя как целого используем приближение среднего поля ( $\rho_{\alpha\beta}$  не зависит от положения КИ в монослое). Во вращающейся с частотой внешнего поля  $\omega_0$  системе координат уравнения для  $\rho_{\alpha\beta}$  имеет вид

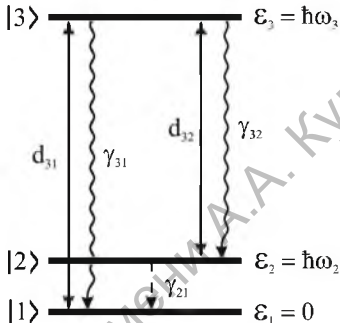


Рис. 1. Схема энергетических уровней в изолированном КИ

$$\dot{\rho}_{33} = -(\gamma_{32} + \gamma_{31})\rho_{33} - \mu(\rho_{32}\Omega^* + \rho_{32}^*\Omega) - \rho_{31}\Omega^* - \rho_{31}^*\Omega, \quad (1a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = \gamma_{32}\rho_{33} - \gamma_{21}\rho_{22} + \mu(\rho_{32}^*\Omega + \rho_{32}\Omega^*), \quad (1б)$$

$$\dot{\rho}_{11} = \gamma_{31}\rho_{33} + \gamma_{21}\rho_{22} + \rho_{31}^*\Omega + \rho_{31}\Omega^*, \quad (1в)$$

$$\dot{\rho}_{32} = -[i\Delta_{32} + (\gamma_{32} + \gamma_{31} + \gamma_{21})/2]\rho_{32} + \mu\Omega Z_{32} - \rho_{21}^*\Omega, \quad (1г)$$

$$\dot{\rho}_{31} = -[i\Delta_{31} + (\gamma_{31} + \gamma_{32})/2]\rho_{31} + \Omega Z_{31} - \mu\Omega\rho_{21}, \quad (1д)$$

$$\dot{\rho}_{21} = -(i\Delta_{21} + \gamma_{21}/2)\rho_{21} + \Omega\rho_{32}^* + \mu\Omega^*\rho_{31}, \quad (1e)$$

где точка над  $\rho_{\alpha\beta}$  означает производную по времени;  $\Delta_{31} = \omega_3 - \omega_0$  и  $\Delta_{32} = \omega_3 - \omega_2 - \omega_0$  – отстройки частоты внешнего поля  $\omega_0$  от частот резонансных переходов  $3 \leftrightarrow 1$  и  $3 \leftrightarrow 2$ , соответственно;  $\mu = (\gamma_{32}/\gamma_{31})^{1/2}$ ;  $\Omega$  – амплитуда Раби действующего на КИ поля

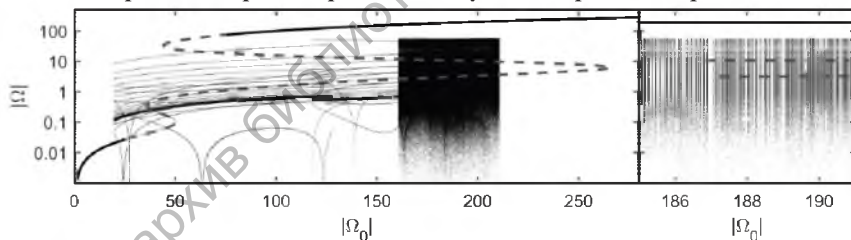
$$\Omega = \Omega_0 + (\gamma_R - i\Delta_L)(\rho_{31} + \mu\rho_{32}), \quad (2)$$

которое представляет собой сумму внешнего поля  $\Omega_0$  и поля всех остальных КИ в месте расположения данного (второе слагаемое). Последнее учитывает полное (запаздывающее) диполь-дипольное (КИ-КИ) взаимодействие [6; 7]. Его часть, пропорциональная  $\gamma_R$ , представляет собой поле в дальней зоне, в то время как другая (пропорциональная  $\Delta_L$ ) – поле в ближней зоне. Первая описывает динамическое коллективное радиационное затухание

КИ, вторая – динамический сдвиг частот оптических переходов  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  и  $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ , оба зависят от разности населенностей уровней КИ [6; 7]. Для простой квадратной решетки с постоянной  $a$  константы  $\gamma_R$  и  $\Delta_L$  даются выражениями [7]:  $\gamma_R = 4.51\gamma_{31}(\lambda/a)^2$  и  $\Delta_L = 3.39\gamma_{31}(\lambda/a)^3$ , где  $\lambda = \lambda/2\pi$  – редуцированная длина волны. Именно данные параметры управляют положительной обратной связью, приводящей к необычной нелинейной динамике оптического отклика монослоя.

**Результаты.** В расчетах оптического отклика монослоя константы, определяющие  $\gamma_R$  и  $\Delta_L$ , выбирались типичными для СК [3]:  $\lambda \sim 100 \div 200$  nm,  $a \sim 10 \div 20$  nm,  $\gamma_{31} \sim 3 \cdot 10^9$  s $^{-1}$ . Тогда  $\gamma_R \sim 100 \gamma_{31}$  и  $\Delta_L \sim 1000 \gamma_{31}$ . Варьируемыми параметрами являлись: расщепление дублета  $\Delta_{21}$ , отстройка от резонанса  $\Delta_{31}$  и константа релаксации в подсистеме дублета  $\gamma_{21}$ . Ниже мы приводим результаты, полученные для  $\Delta_{21} = 15 \gamma_{31}$ ,  $\Delta_{31} = 0$  и  $\gamma_{21} = 0.01 \gamma_{31}$ . В дальнейшем все величины даны в единицах  $\gamma_{31}$ .

Характерным свойством подавляющего числа нелинейных динамических систем является внезапная смена динамического режима при незначительном изменении управляющего параметра, например, амплитуды  $\Omega_0$  внешнего поля. Тогда говорят, что в этой точке система испытывает бифуркацию [8]. Карта бифуркаций (бифуркационная диаграмма) является мощным методом исследования сценариев поведения динамических систем [8]. Бифуркационная диаграмма для рассматриваемого случая изображена на рис. 2.



**Рис. 2.** Слева: бифуркационная диаграмма стационарного отклика монослоя. Двойная S-образная кривая – стационарное решение уравнений (1)–(2). Справа: увеличенное изображение темной области на левой панели, демонстрирующее ее структуру

Для построения бифуркационной диаграммы использовалась следующая процедура. Поскольку стационарное решение уравнений (1)–(2) многозначно (рис. 3), то вместо сканирования  $\Omega_0$  мы сканировали  $\Omega$  в диапазоне, содержащем все нестабильные решения. При этом, на каждом шаге единственное стационарное значение  $\Omega_0$  определялось из уравнения (2). Далее это значение использовалось в динамических уравнениях (1)–(2) для получения временной эволюции системы. Расчет производился до

тех пор, пока система не достигала, после некоторой переходной стадии, устойчивого решения – аттрактора. Далее анализировалась динамика на аттракторе. Более детально мы искали все экстремальные значения  $|\Omega(t)|$  за достаточно длительный интервал времени. Найденные значения  $|\Omega_{\text{extr}}|$  отображались на плоскость  $(|\Omega|, |\Omega_0|)$  в виде точек для текущего значения  $|\Omega_0|$ , формируя в конечном итоге бифуркационную диаграмму, представленную на рис. 2. Распределение экстремумов при фиксированном  $|\Omega_0|$  содержит в себе качественную информацию о динамике системы. Например, в случае периодических траекторий все экстремумы коллапсируют в небольшой конечный набор точек, разделенных зазорами, образуя на плоскости  $(|\Omega|, |\Omega_0|)$  семейство кривых (рис. 2, левая панель,  $|\Omega_0| < 160$ ). В случае хаотического поведения системы экстремумы образуют плотное множество точек, формируя темную часть фазовой диаграммы. И наконец, в случае, если аттрактор представляет собой фиксированную точку, бифуркационная диаграмма совпадает со стационарным решением  $|\Omega|(|\Omega_0|)$ .

Отметить одну существенную деталь расчетов. Для каждого значения  $|\Omega|$  анализировалось решение на предыдущем шаге и, если оно оказывалось нетривиальным аттрактором (отличным от фиксированной точки), мы брали его в качестве начального условия для текущего шага. Так система удерживалась в бассейне притяжения аттракторов определенного типа.

Согласно рис. 2, одна из бифуркаций, которые испытывает система, является бифуркацией типа «пределный цикл – хаос». Она происходит в точке возникновения темной области. Внутри последней также происходят множественные бифуркации типа «хаос – фиксированная точка» и обратно, которые хорошо видны на увеличенном изображении темной области (рис. 2, правая панель).

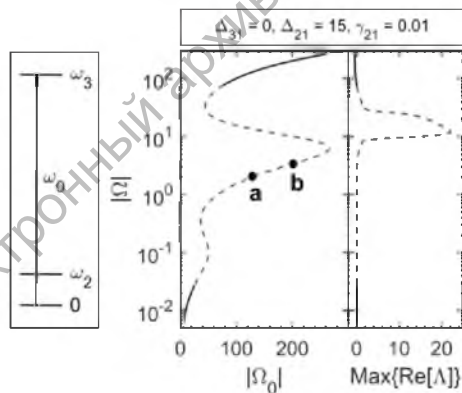


Рис. 3. Слева: схема возбуждения КИ. В центре: стационарный отклик СК. Справа: реальная часть старшего показателя Ляпунова

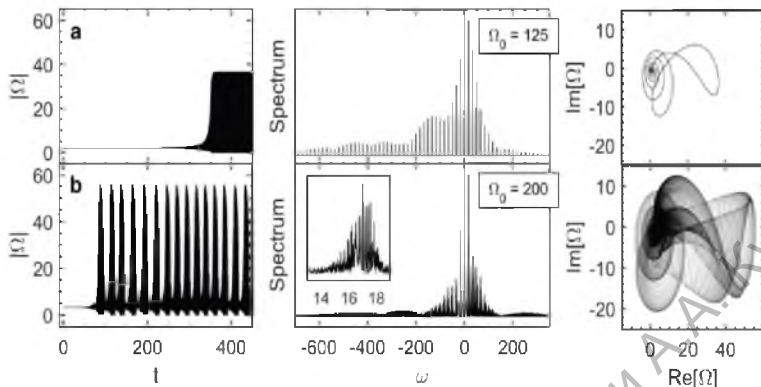
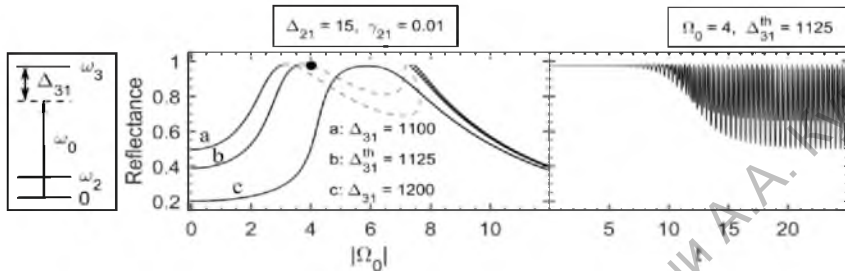


Рис. 4. Динамика (слева), спектры Фурье (в центре) и фазовые траектории (справа) отклика монослоя, рассчитанные для точек **a** и **b** на рис. 3

На рис. 3 (центральная панель) изображен стационарный отклик монослоя  $|\Omega|(|\Omega_0|)$ , рассчитанный аналитически с помощью метода, развитого в [7]. Как видно, зависимость  $|\Omega|$  от  $|\Omega_0|$  является многозначной, т. е. при фиксированном значении  $|\Omega_0|$  могут существовать несколько решений для  $|\Omega|$  (в данном конкретном случае от трех до пяти), при этом, не все они стабильны. Для анализа их стабильности был использован метод показателей Ляпунова  $\Lambda$  [7], число которых в данной задаче равно восьми. Для каждой стационарной точки выбирался (старший) показатель  $\Lambda$  с максимальной реальной частью,  $\text{Max}[\text{Re}\{\Lambda\}]$ , которая определяет устойчива данная точка ( $\text{Max}[\text{Re}\{\Lambda\}] < 0$ ) или неустойчива ( $\text{Max}[\text{Re}\{\Lambda\}] > 0$ ). Зависимости  $\text{Max}[\text{Re}\{\Lambda\}]$  от  $|\Omega|$  приведены на правой панели рис. 3. Соответственно, сплошные (пунктирные) участки стационарного решения показывают, где система является устойчивой (неустойчивой).

На рис. 4 представлены результаты расчетов оптической динамики монослоя для точек **a** и **b**, отмеченных на стационарной кривой (рис. 3). В обоих случаях после некоторой задержки динамика системы достигает некой нестационарной, но устойчивой фазы – аттрактора, характер которого существенно зависит от стартовой точки. Для точки **a** динамика системы (левая панель) представляет собой предельный цикл (автоколебания), что отражается в эквидистантности спектра Фурье аттрактора (центральная панель), а также в замкнутости фазовой траектории системы (правая панель). Эти свойства находятся в полном согласии с бифуркационной диаграммой: точка **a** отвечает предельному циклу на рис. 2 (левая панель). Напротив, для точки **b** аттрактор демонстрирует в высшей степени иррегулярное по-

ведение. Его спектр Фурье напоминает квазиконтинуум, а траектория (незамкнутая) плотно покрывает часть фазового пространства, сигнализируя о (квази)хаотическом характере движения. Это также согласуется с бифуркационной диаграммой: точка **b** лежит в темной ее части.



**Рис. 5.** Слева: схема возбуждения КИ. В центре: стационарный коэффициент отражения монослоя,  $R = |\Omega_{\text{refl}}/\Omega_0|^2$ , для различных значений отстройки от резонанса  $\Delta_{31}$ . Сплошные (пунктирные) кривые указывают области устойчивости (неустойчивости) коэффициента отражения. Справа: динамика коэффициента отражения для точки, указанной на центральной панели

Важным свойством оптического отклика монослоя является его практически стопроцентная отражательная способность в окрестности перенормированного КИ-КИ взаимодействием резонанса,  $\Delta_{31} = \Delta_L$ . То есть, в данной спектральной области монослой является идеальным зеркалом. Рис. 5 (центральная панель), на котором представлен стационарный коэффициент отражения монослоя  $R = |\Omega_{\text{refl}}/\Omega_0|^2$ ,  $\Omega_{\text{refl}} = \gamma_R(\rho_{31} + i\rho_{32})$  – отраженное поле, демонстрирует это. Сверх того, как также следует из рис. 5, в определенной области изменения  $\Delta_{31}$  коэффициент отражения  $R$  является трехзначной функцией  $|\Omega_0|$ , то есть обнаруживает бистабильность, и может быть переключен незначительным изменением амплитуды внешнего поля  $\Omega_0$ . В дополнение к этому, в некотором интервале значений  $\Omega_0$  отражение монослоя нестабильно и демонстрирует автоколебательный режим (правая панель на рис. 5).

**Заключение.** Монослой  $\Lambda$ -излучателей является перспективным объектом для применений в нанофотонике. Двумерные суперкристаллы легированных квантовых точек и ароматических нанокристаллов могут рассматриваться в качестве кандидатов на реализацию такой системы. Полученные результаты позволяют рассматривать суперкристалл как: полностью оптический переключатель, генератор цуга сверхкоротких импульсов (в автоколебательном режиме), шумовой генератор (в хаотическом режиме), а также бистабильное зеркало, что представляет платформу для полностью оптических нанотехнологий.

## Литература:

1. Zheludev, N.I. The road ahead for metamaterials / N.I. Zheludev // Science. – 2010. – Vol. 328. – P. 582–583.
2. Soukoulis, C.M. Optical metamaterials: more bulky and less lossy / C.M. Soukoulis, M. Wegener // Science. – 2010. – Vol. 330. – P. 1633–1634.
3. Evers, W.H. Low-Dimensional Semiconductor Superlattices Formed by Geometric Control over Nanocrystal Attachment / W.H. Evers, B. Goris, S. Bals [et al.] // Nano Lett. – 2013. – Vol. 13(6). – P. 2317–2323.
4. Liu, W. A two-dimensional conjugated aromatic polymer via C-C coupling reaction / Liu W., Luo Y. [et al.] // Nat. Chem. – 2017. – Vol. 9. – P. 563.
5. Baimuratov, A.S. Quantum-dot supercrystals for future nanophotonics / A.S. Baimuratov, [et al.] // Sci. Rep. – 2013. – Vol. 3. – P. 1727.
6. Маликов, Р.Ф. Оптическая бистабильность и гистерезис тонкого слоя резонансных излучателей: взаимное влияние неоднородного уширения линии поглощения и локального поля Лоренца / Р.Ф. Маликов, В.А. Малышев // Опт. и спектр. – 2017. – Т. 122. – № 6. – С. 98–106.
7. Zapatero, P.A. Nonlinear optical response of a two-dimensional quantum dot supercrystal: Emerging multistability, periodic/apperiodic self-oscillations, and hyperchaos / P.A. Zapatero [et al.] // Preprint ArXiv:1806.00387v1.
8. Теория бифуркаций / В.И. Арнольд [и др.]. – М. : ВИНТИ АН СССР, 1985. – Т. 5. – 218 с.