

МОДЕЛИРОВАНИЕ СВЕРХИЗЛУЧАТЕЛЬНОЙ ТРАНСФОРМАЦИИ ИМПУЛЬСОВ, ОТРАЖЕННЫХ АНСАМБЛЕМ АКТИВНЫХ НАНОЧАСТИЦ

На основе компьютерного моделирования анализируются закономерности коллективного нелинейного отклика ансамбля активных нанометрических частиц на когерентное импульсное излучение.

Ключевые слова: нанометрические частицы, когерентное взаимодействие, автомодуляционная структура интенсивности.

Basing on computer modelling some features of collective reaction of active nanometrical particles ensemble on coherent pulse radiation are analyzed.

Keywords: nanometrical particles, coherent interaction, light intensity self-oscillatory structure.

Изучение особенностей поглощения света и люминесценции в средах, образованных мелкодисперсными частицами, оказывается важным для возможно более точной оценки размера наночастиц, их концентрации, степени упорядоченности или периода расположения [1; 2]. Не менее важна задача определения характера физических механизмов, действующих в ходе процессов формирования ансамблей наночастиц. Известно, что взаимодействие наночастиц между собой способно обусловить кооперативные эффекты, приводящие к возникновению зон проводимости в запрещенной зоне, к потерям мощности поглощенного излучения вследствие процессов передачи энергии (к тушению люминесценции), к интерференции люминесценции с возникновением эффектов усиления [2; 3]. Все эти процессы существенно зависят от концентрации и размера структурных элементов мелкодисперсных сред. Разрешению проблемы оценки по результатам эксперимента ряда физических свойств этих элементов может послужить и анализ закономерностей резонансной реакции таких сред на лазерное излучение. В частности, модуляция огибающей интенсивности прошедшего света или индуцированный в условиях нелинейности резонансного взаимодействия сдвиг несущей частоты должны проявлять зависимость от размера наночастиц, их концентрации и дипольного момента. Именно в коллективных процессах излучения средой коротких световых импульсов, когда частицы взаимодействуют только через переизлучаемое ими свето-

вое поле, корреляции образующих среду частиц зависят от их концентрации и дипольного момента (значение последнего связано с их размерами). Поэтому естественно ожидать, что закономерности коллективной, то есть сфазированной, реакции нанометрических частиц на излучение определяются их свойствами.

В настоящем сообщении приведены результаты моделирования процесса модуляции, которая развивается на фронтах особо коротких оптических импульсов при их когерентном отражении средой, включающей совокупность нанометрических частиц в матрице, находящейся в конденсированном состоянии. Модуляция такого рода представляет собой коллективный эффект, проявляющийся в условиях сравнительно слабой фазовой релаксации двухуровневых диполей (то есть, в ситуации, сходной со сверхизлучением – сфазированным высвечиванием определяющих нелинейный отклик среды активных центров). Эта релаксация, называемая также поперечной и определяющая ширину спектральной линии, стимулирована их нерезонансным взаимодействием, но ввиду предполагаемой слабости не способна «смазать» следствия происходящей в ходе переизлучения нутации диполей относительно направления действующего поля. Нутационные осцилляции наблюдаются в интенсивности переизлучаемого средой поля и возникают в условиях наложения колебаний разности населенностей, порождаемых нутацией диполей, на высокочастотные колебания вынужденного излучения с несущей частотой внешнего поля. Считается, что в моделируемой ситуации наночастицы образуют ансамбль активных центров, способных коллективно реагировать на приложенное резонансное световое поле.

При формулировке расчетной модели предполагалось, что на слой среды, содержащей активные монодисперсные частицы, нормально падает плоская световая волна с несущей частотой ω . Амплитуда ее напряженности E имеет импульсную форму, при этом квазистационарна, т. е., относительно медленно меняется на расстояниях порядка длины волны $\lambda = 2\pi c/\omega$ и на промежутках времени, сравнимых с периодом светового колебания. При предположении возможности резонансного отклика среды с учетом квазирезонансного эффекта нелинейности взаимодействие поля лазерного излучения с веществом в рамках двухуровневой схемы может быть описано аналогично [4] полуклассической системой уравнений Максвелла – Блоха для встречных компонентов резонансной поляризованности ρ_{\pm} и разности заселенности. В отличие от [4], однако, система записана с учетом продольной модуляции разности населенности интерференционным полем встречных волн:

$$\begin{aligned}
\left(\frac{\partial}{\partial x} + \frac{\eta}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) \mathbf{e}_+ &= \kappa \sqrt{\frac{\tau_1}{\tau_2}} \left[\rho_+ - i\beta (n - n_0) \mathbf{e}_+ + i\beta \Delta n^* \mathbf{e}_- \right], \\
\left(\frac{\partial}{\partial x} - \frac{\eta}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) \mathbf{e}_- &= -\kappa \sqrt{\frac{\tau_1}{\tau_2}} \left[\rho_- - i\beta (n - n_0) \mathbf{e}_- + i\beta \Delta n \mathbf{e}_+ \right], \\
\dot{\rho}_+ + \left[1 - i \left(\frac{\beta}{2} (\mathbf{e}_+ \mathbf{e}_+^* + \mathbf{e}_- \mathbf{e}_-^*) \right) \right] \frac{\rho_+}{\tau_2} &= \frac{i\beta}{\tau_2} \rho_- (\mathbf{e}_+ \mathbf{e}_-^* + \mathbf{e}_- \mathbf{e}_+^*) + \frac{1}{\sqrt{\tau_1 \tau_2}} (n \mathbf{e}_+ - \Delta n^* \mathbf{e}_-), \\
\dot{\rho}_- + \left[1 - i \left(\frac{\beta}{2} (\mathbf{e}_+ \mathbf{e}_+^* + \mathbf{e}_- \mathbf{e}_-^*) \right) \right] \frac{\rho_-}{\tau_2} &= \frac{i\beta}{\tau_2} \rho_+ (\mathbf{e}_+ \mathbf{e}_-^* + \mathbf{e}_- \mathbf{e}_+^*) + \frac{1}{\sqrt{\tau_1 \tau_2}} (n \mathbf{e}_- - \Delta n \mathbf{e}_+), \\
\dot{n} &= \frac{1}{\tau_1} \left[n_0 - n - \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\tau_1}{\tau_2}} (\rho_+^* \mathbf{e}_+ + \rho_+^* \mathbf{e}_+ + \rho_-^* \mathbf{e}_- + \rho_-^* \mathbf{e}_-) \right], \\
\dot{\Delta n} &= \frac{1}{\tau_1} \left[n + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\tau_1}{\tau_2}} (\rho_+^* \mathbf{e}_- + \rho_-^* \mathbf{e}_+ + \rho_+^* \mathbf{e}_+ + \rho_-^* \mathbf{e}_-) \right].
\end{aligned} \tag{1}$$

Здесь:

$\mathbf{e}_\pm(x, t) = \mu \hbar^{-1} \sqrt{\tau_1 \tau_2} E_\pm(x, t)$ – нормированные квазистационарные амплитуды напряженности встречных волн, n и Δ – разность населенностей и амплитуда ее продольной модуляции;

$\kappa = \mu^2 \omega_0 N \tau_2 / \varepsilon_0 \hbar c$ – коэффициент ненасыщенного поглощения на частоте резонанса и имеющий размерность m^{-1} (μ – средний дипольный момент наночастиц, N – их концентрация);

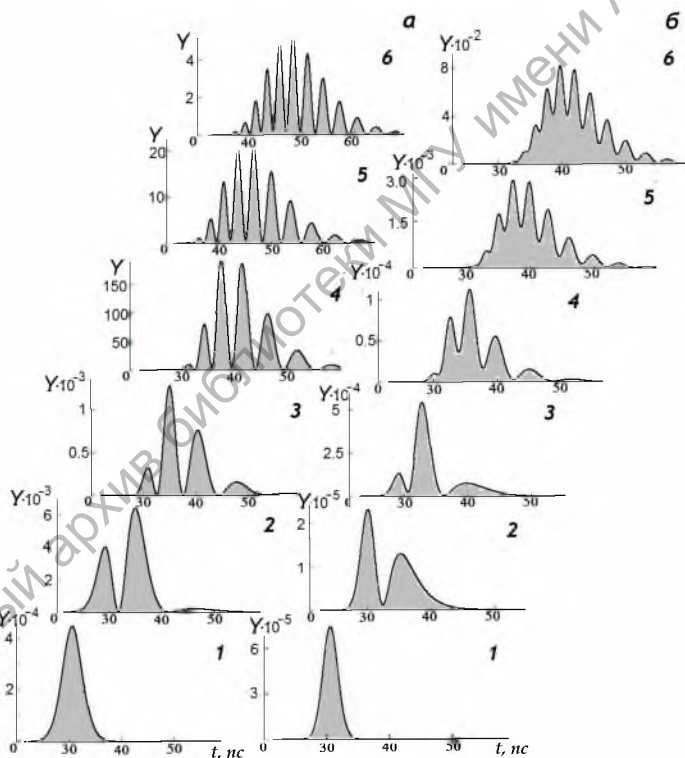
τ_1 и τ_2 – времена продольной и поперечной релаксации, ω_0 – резонансная частота перехода, n_0 – начальное значение разности заселенности;

$\beta = 2\pi\mu^{-2} \hbar \varepsilon_0 \Delta \alpha \sqrt{\tau_2 / \tau_1}$ – параметр штарковского смещения, рассчитываемый для условий существования дефекта поляризуемости ($\Delta \alpha$ – разность поляризуемостей на уровнях основного перехода).

Значения среднего дипольного момента μ в данной схеме могут быть оценены произведением заряда электрона e на плечо элементарного диполя d , величина которого примерно равна среднему размеру наночастицы.

В среде слоя образующие его наночастицы предполагались центрами, активно реагирующими на резонансное поле излучения. Естественно было считать, что их совокупность в начальный момент времени, т. е. в отсутствие зондирующего извне поля, находится в основном состоянии, т. е. $n(x, t=0) = n_0 = 1.0$, а резонансная поляризованность отсутствует – $\rho_\pm(x, t=0) = 0$.

Рассматривалась известная задача Дирихле, т. е. расчет зависимости отраженного поля на входной грани $e_-(x=0, t)$ после двойного обхода световой волны по длине среды L на основе (1) проводился при заданном распределении напряженности поля $e_+(x=0, t) = \mu \hbar^{-1} \sqrt{\tau_1 \tau_2} E_i(t)$. Считалось, что на отражающей грани слоя световая волна полностью отражалась, соответственно условием этого было $-e_-(x=L, t) = e_+(x=L, t)$. В задаче моделирования поведения отклика ансамбля наночастиц для сильно нестационарных условий внешнего воздействия определялась величина $Y(t) = e_-^2(t)$. Напряженность «входного» поля $E_i(t)$ импульса пикосекундной длительности задавалась в виде гиперболического секанса с пиковой нормированной амплитудой $e_0 = \mu \hbar^{-1} \sqrt{\tau_1 \tau_2} E_0$.



Временная структура нормированной интенсивности излучения, отраженного слоем нанометрических частиц, в зависимости от параметра резонансного поглощения; $\kappa = 0$ (кривые 1, форма входного импульса), 0.2 (2, а), 0.3 (2, б), 0.4 (3), 0.8 (4), 1.5 (5), 2.5 (6), $e_0 = 200$ (а), 2500 (б), $\tau_1 = 5.0 \cdot 10^{-9} \text{ с}$, $\tau_2 = 1.0 \cdot 10^{-11} \text{ с}$, $L = 0.2 \text{ м}$, $\lambda = 1.23 \cdot 10^{-6} \text{ м}$, $\eta = 3.6$

Судя по результатам моделирования, проиллюстрированным на рисунке, резонансное взаимодействие коротких импульсов со средой в рассматриваемой схеме должно привести к возникновению особого рода структуры нормированной интенсивности $Y(t)$ отраженного средой импульса. Эта субструктура представляет собой следствие оптической нутации – колебаний разности населенностей с частотой Раби, определяемой мощностью светового поля входного импульса.

Проделанную выше оценку проявлений самомодуляции необходимо также дополнить приблизительной оценкой мощности действующего на слой светового поля. Величина квадрата напряженности поля в световых монохроматических сигналах, приводящей к насыщению поглощения на резонансной частоте, примерно оценивается значением $\hbar^2 / \mu^2 \tau_1 \tau_2$. Соответственно приблизительные значения насыщающей интенсивности для материалов квантоворазмерных структур, как правило, имеют порядок не менее 10^3 Вт/см² [1]. В средах, в которых в качестве активных центров предполагаются ионы редкоземельных элементов, находящиеся в кристаллическом окружении, эта величина может быть примерно на два порядка большей [3]. Средняя пиковая интенсивность импульсов в релаксационных сериях, развиваемая в лазерном излучении на частотах в экситонном диапазоне, может приблизительно соответствовать уровню $\sim 10^4 \dots 10^5$ Вт/см², что примерно на 1 – 2 порядка выше мощности насыщения поглощения в материалах на основе полупроводников. В пиковой мощности рассматриваемых выше одиночных когерентных (лазерных) импульсов это превышение способно достигать 5-6 порядков.

Полученные результаты могут быть основой для разработки приемов диагностики свойств физических объектов, образуемых нанометрическими частицами. Самосогласованная коллективная реакция ансамбля этих частиц на импульсное поле зондирующего когерентного излучения обладает рядом характерных особенностей, которые обычно регистрируются в экспериментальных измерениях. Главной среди этих особенностей является возникновение выраженной субструктуры в интенсивности оптических импульсов, отраженных слоем среды, образуемой наночастицами. Частота следования и число нутационных выбросов, образующих квазиавтоколебательную субструктуру, являются хорошо различимыми в измерении характеристиками и критичны по отношению к размеру и концентрации монодисперсных наночастиц.

Литература:

1. Смынтына, В.А. Люминесцентные свойства нанокристаллов CdS, легированных атомами лития и алюминия / В.А. Смынтына, В.М. Скобева,

- Н.В. Малущин // Sensor Electronics and Microsystem Technologies. – 2011. – Т. 2 (8), № 1. – С. 55–58.
- Ekimov, A.I. Quantum size effect in semiconductor microcrystals / A.I. Ekimov, A.L. Efros, A.A. Onushenko // Solid State Communication. – 1995. – V. 56, No. 11. – С. 921–924.
 - Учет рассеяния и перепоглощения при анализе спектров люминесценции наночастиц / В.И. Кочубей [и др.] // Квант. электрон. – 2011. – Т. 41, № 4. – С. 335–339.
 - Юревич, В.А. Резонансная трансформация коротких оптических импульсов при прохождении через среду из монодисперсных наночастиц / В.А. Юревич, А.С. Скапцов, Ю.В. Юревич // Вестник Белорусско-Российского университета. – 2012. – Вып. 4 (37). – С. 125–131.