

УДК 535.33:621.375

НЕЛИНЕЙНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ ТОНКОЙ ПЛЁНКИ ПЛОТНОЙ РЕЗОНАНСНОЙ СРЕДЫ

Е.В. Тимошенко, Ю.В. Юревич

Могилёвский государственный университет им. А.А. Кулешова, Могилев, Беларусь

NONLINEAR SUSCEPTIBILITY OF THE THIN FILM OF DENSE RESONANT MEDIUM

E.V. Timoschenko, Yu.V. Yurevich

A.A. Kuleshov Mogilev State University, Mogilev, Belarus

Проведена расчетная оценка дисперсионной зависимости диэлектрической восприимчивости тонкого слоя плотной резонансной среды с учетом насыщения поглощения. Указано на возможность бистабильности комплексной функции Лорентца и гистерезисных скачков в резонансном отражении слоя.

Ключевые слова: тонкие оптические плёнки, резонансное отражение, диполь-дипольное взаимодействие.

The computing estimation of a dielectric susceptibility dispersive dependence of a thin layer of the dense resonant medium taking into account absorption saturation is carried out. The possibility of bistability in Lorentz complex function and hysteresis jumps in film resonant reflection are specified.

Keywords: thin optical films, resonant reflection, dipole-dipolar interaction.

Введение

Интерес к изучению плотных резонансных сред обусловлен тем, что в этих оптических материалах значительна плотность активных центров и нелинейность отклика на внешнее световое воздействие способна проявляться даже в особо тонких слоях на основе подобных сред [1], [2]. Типичным для плотных резонансных сред является спектральный сдвиг линии поглощения, обусловленный ближним диполь-дипольным взаимодействием атомов [3], [4]. Влияние локального поля дипольных атомов на контур линии резонансного поглощения подтверждено, например, данными спектроскопических измерений в работе [5], где зарегистрировано смещение резонанса в сторону низких частот. В настоящий момент интенсивно изучаются полупроводниковые структуры на основе квантоворазмерных элементов. Благодаря формированию в них экситонных энергетических зон, подобные структуры могут рассматриваться в качестве плотных резонансных сред [6], [7]. Соответствующий нелинейный фазовый эффект в полупроводниковых квантоворазмерных структурах оказывается непосредственно связанным с изменением концентрации свободных носителей или экситонов.

Особенности проявления резонансной нелинейности в граничных слоях резонансных сред (или тонких активных плёнках) и, в частности, предсказываемая при этом оптическая бистабильность, получившая название внутренней, изучены, в принципе, достаточно [2], [8], [9]. Отмечено, что в пропускании и отражении когерентных потоков

излучения тонкими слоями существенно сказывается влияние поверхностной резонансной электрической поляризации. Безусловно, значительным оказывается вклад диполь-дипольного взаимодействия в нелинейную диэлектрическую проницаемость. Поэтому задача изучения закономерностей резонансного отражения граничного слоя оптической среды с высокой плотностью активных центров вполне правомерна. В литературе, например, отсутствует оценка изменения дисперсионной развёртки восприимчивости тонкого слоя плотной резонансной среды по мере насыщения поглощения. В настоящей статье формулируется соотношение для частотной зависимости диэлектрической восприимчивости тонкого слоя плотной резонансной среды с учётом насыщения. На его основе рассчитана нелинейная характеристика эффективного коэффициента резонансного отражения поверхностной плёнки подобной среды.

1 Основные уравнения

При формулировке основных уравнений, описывающих нелинейное взаимодействие плосковолнового светового поля с плёнкой, далее будем придерживаться довольно распространённого в литературе приближения сверхтонкого слоя резонансных атомов. Имеется в виду планарный граничный слой с толщиной l , значительно меньшей длины волны света λ , которым разделены две оптические среды с линейной диэлектрической проницаемостью. Тогда вместо уравнений Максвелла можно применить электродинамические

условия для напряженности полей и поверхностной электрической поляризации в граничном слое. Из этих граничных условий следуют соотношения между напряженностями внешнего, прошедшего и отражённого электрического поля (E_i , E и E_r) и плотности вероятности резонансной электрической поляризации ρ :

$$\begin{aligned} E &= \frac{2}{\eta+1} E_i + \frac{\mu N l}{\varepsilon_0(\eta+1) c} \frac{d\rho}{dt}, \\ E_r &= -r_0 E_i + \frac{\mu N l}{\varepsilon_0(\eta+1) c} \frac{d\rho}{dt}. \end{aligned} \quad (1.1)$$

Здесь μ – средний дипольный момент частицы, N – концентрация активных центров, η – относительный показатель преломления линейных сред, $r_0 = (\eta - 1)/(\eta + 1)$ – нерезонансная (френелевская) отражательная способность граничного слоя. Условия связи полей (1.1) необходимо дополнить материальными уравнениями квантовомеханической матрицы плотности для вероятностных переменных резонансной поляризации ρ и разности населённостей n уровней резонансного перехода. Эти соотношения учитывают, что поле волны внутри слоя зависит от резонансных свойств активных центров и определяет их динамику в условиях одноквантового резонанса. В рассматриваемой далее ситуации с воздействием поля на активные центры в плёнке учитывается конечность времен T_1 и T_2 продольной и поперечной релаксации отклика среды. Принципиален учет диполь-дипольного взаимодействия. Напряжённость светового поля E_i , действующего на образующие тонкий слой элементарные излучатели, в приближении среднего поля включает лорентцеву поправку, в которой считается особо существенной динамическая резонансная составляющая: $E_i = E + \mu N \rho / 3\varepsilon_0$. Материальные уравнения тогда записываются в таком виде:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\rho}{dt^2} + \frac{2}{T_2} \frac{d\rho}{dt} + \left(\omega_0^2 + \frac{2\mu^2 N}{3\hbar\varepsilon_0} \omega_0 n \right) \rho &= -\frac{2\mu}{\hbar} \omega_0 n E, \\ \frac{dn}{dt} + \frac{1}{T_1} (n-1) &= -\frac{2\mu}{\hbar\omega_0} \frac{d\rho}{dt} \left(E + \frac{\mu N}{3\hbar\varepsilon_0} \rho \right), \end{aligned} \quad (1.2)$$

где ω_0 – среднее значение собственной частоты элементарного осциллятора. Используем далее квазистационарное представление поля и поляризации с несущей частотой ω . При условии близости несущей частоты ω к резонансу, т. е. при $\omega \approx \omega_0$, несложно получить приближённое решение (1.2), связывающее установившуюся величину комплексной амплитуды $\rho(\omega)$ со стационарной амплитудой поля E' и равновесным значением разности населённостей n_s :

$$\rho'(\omega) = \frac{\mu}{\hbar} \frac{n_s E'}{\omega_0 - \omega + (\gamma n_s + i)/T_2},$$

где $\gamma = \mu^2 N T_2 / 3 \varepsilon_0 \hbar$ – нормированный коэффициент при лорентцевой поправке. Связь макроскопической электрической поляризации P' с напряжённостью светового поля можно выразить через восприимчивость $\chi(\omega)$, записывая формально линейное соотношение: $P' = \varepsilon_0 \chi(\omega) E'$. В выражении для восприимчивости

$$\chi(\omega) = \pi \mu^2 N n_s g(\omega, \omega_0) / \varepsilon_0 \hbar$$

выделяется характеристика формы линии поглощения, известная как комплексная функция Лорентца $g(\omega, \omega_0)$:

$$\begin{aligned} g(\omega, \omega_0) &= \frac{1}{\pi} \frac{\omega_0 - \omega + \gamma n_s}{(\omega_0 - \omega + \gamma n_s)^2 + 1/T_2^2} - \\ &- \frac{i}{\pi} \frac{1/T_2}{(\omega_0 - \omega + \gamma n_s)^2 + 1/T_2^2}. \end{aligned} \quad (1.3)$$

Действительная и мнимая части функции характеризуют соответственно дисперсию показателя преломления и контур поглощения в среде. Смещение частоты зависит от разности населённостей (добавка γn_s к отстройке частоты $\omega_0 - \omega$), поэтому модифицированная функция Лорентца (1.3) нелинейна – в условиях воздействия лазерного излучения разность населённостей n_s зависит от интенсивности. Ещё более выраженной нелинейностью должна обладать восприимчивость $\chi(\omega)$. Стационарная задача определения реакции граничного слоя на возбуждение внешним излучением, одинаковым по амплитуде поля в узкой спектральной полосе $|\omega_0 - \omega| \sim 1/T_2$, соответствует предположению $E_i'(t) = E_0'$ в условиях (1.1). С учётом этого, уравнение системы (1.2) для $n(t)$ в сингулярном пределе приводит к выражению:

$$\frac{1 - n_s}{n_s} = \frac{e_0^2}{(\Delta - \gamma n_s)^2 + (1 + \kappa n_s)^2}. \quad (1.4)$$

Напряжённость приложенного поля в (1.4) нормирована по уровню мощности насыщения:

$$\begin{aligned} e_0 &= 2\mu E_0' \sqrt{T_1 T_2} / \hbar(\eta+1); \\ \kappa &= \mu^2 \omega N l / (\eta+1) c \varepsilon_0 \hbar \end{aligned}$$

– резонансный (ненасыщенный) показатель поглощения граничного слоя; $\Delta = (\omega - \omega_0) T_2$ – нормированная по ширине линии отстройка частоты от центра линии. Очевидно, что ход кривых нелинейной восприимчивости в зависимости от частоты действующего поля (нормированной отстройки частоты Δ) можно описать на основе расчёта соотношения (1.3) и уравнения (1.4).

2 Результаты расчёта дисперсионных соотношений

Исследуем нелинейную трансформацию кривых, характеризующих диэлектрическую восприимчивость тонкой плёнки. Для этого вычислим спектральную форму мнимой и действительной части функции $G(\Delta) = \pi g(\Delta) n_s(\Delta) / T_2$ для

разной степени насыщения поглощения. При расчёте $G(\Delta)$ по выражениям (1.3), (1.4) коэффициенты, в основном, соответствовали значениям микроскопических параметров квантоворазмерных структур, которые использованы в расчётных оценках [6], [7]: величина μ взята в диапазоне $(8...10) \cdot 10^{-29}$ Кл·м, поверхностная плотность Nl – в диапазоне $(1...7) \cdot 10^{18}$ м⁻². Расчёты удобно проводить параметрическим способом, полагая n_s величиной, линейно нарастающей в пределах (0,1), и вычисляя, например, значения ϵ_0^2 и $G(\Delta)$. Качественная трансформация зависимостей $\text{Im} G(\Delta)$ и $\text{Re} G(\Delta)$ по мере насыщения разности населённостей для определенной критической области нарастания значений нормированной мощности ϵ_0^2 представлена на рисунке 2.1.

Первоначально, при отсутствии насыщения, обе кривые симметричны, резонансная частота из-за влияния ближних полей диполей смещена в сторону низких частот (рисунок 2.1, a, a'). Насыщение поглощения и соответствующее снижение разности населённостей должно привести к сглаживанию и уширению линий, а также сближению их центров с положением «естественного» резонанса. Сочетание параметров расчёта избрано, однако, таким, что асимметричная деформация кривых выражает неоднозначную зависимость G от отстройки частоты. Диапазон значений, при которых наблюдается наклон резонансов $\text{Im} G(\Delta)$ (рисунок 2.1, $b-z$) и изгиб линий $\text{Re} G(\Delta)$ (рисунок 2.1, $b'-z'$), определяют область (зону) бистабильности на шкале частоты.

Возможность бистабильного поведения зависимостей в предложенной схеме исследуется

именно для стационарной задачи, когда считается, что интенсивность излучения, зондирующего слой плотной резонансной среды, изменяется крайне медленно по сравнению с временами релаксации двухуровневой системы и поэтому её можно считать непрерывной во времени. Это означает, что в среде слоя при данном приложенном поле устанавливается равновесие, характеризующееся определенными значениями материальных переменных. При циклическом изменении интенсивности излучения в рассматриваемом случае стационарный отклик тонкого слоя нелинейной среды проявляет гистерезисные свойства с образованием петли гистерезиса. Гистерезис демонстрируют также дисперсионные кривые, изображённые на рисунках 2.1, $b-z, b'-z'$. Перестройка частоты излучения в пределах зоны бистабильности в окрестности резонанса при постоянном уровне интенсивности может привести к резкому скачку восприимчивости. Существование области бистабильности является следствием конкуренции нелинейных фазовых эффектов, вызванных насыщением поглощения и смещением резонанса из-за диполь-дипольного взаимодействия. Действие обоих механизмов деформации зависимостей носит встречный характер. Взаимная компенсация их вкладов, возможная при определенном сочетании макроскопических параметров – показателя поглощения и интенсивности приложенного поля, может приводить к гистерезисным скачкам отклика среды при непрерывном изменении входных характеристик излучения.

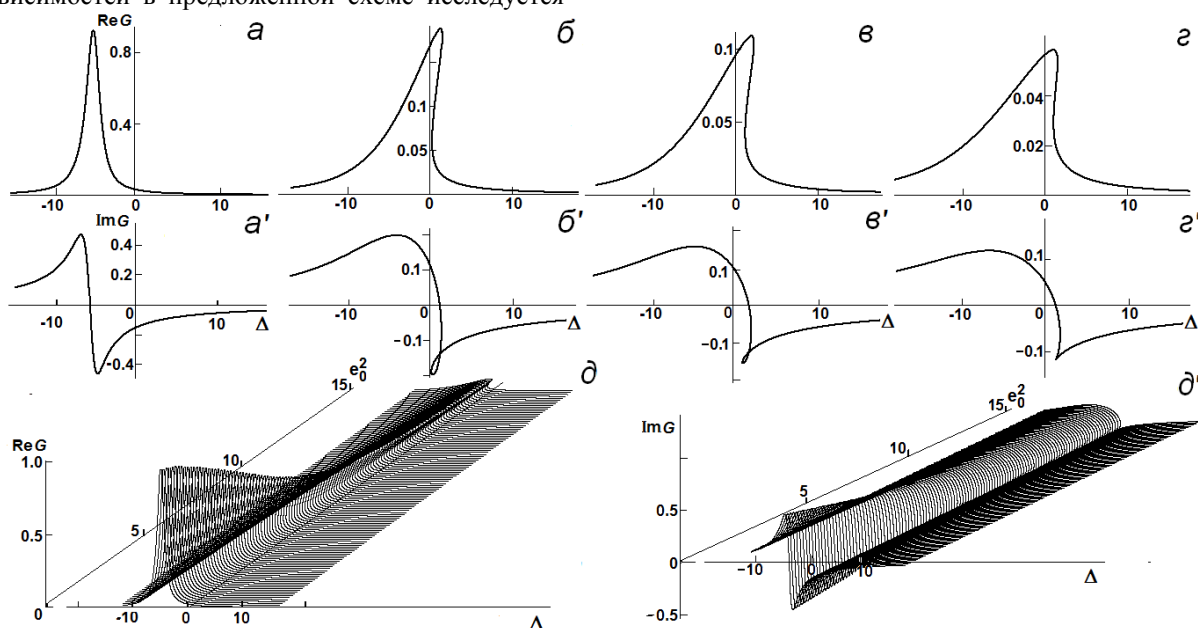


Рисунок 2.1 – Изменение формы кривых мнимой ($a-d$) и действительной части восприимчивости ($a'-d'$) по мере насыщения разности населённостей:

$$\epsilon_0^2 = 0.05 (a, a'), 5.0 (b, b'), 10 (b, b'), 20 (z, z'), \kappa = 0.65, \gamma = 2.34 (a-z'); \kappa = 0.85, \gamma = 4.40 (d, d'),$$

$$T_1 = 1 \cdot 10^{-9} \text{с}, T_2 = 1 \cdot 10^{-12} \text{с}, \lambda = 1.3 \cdot 10^{-6} \text{м}$$

В едином масштабе динамику деформации дисперсионных зависимостей при увеличении нормированной интенсивности (при нарастании степени насыщения) демонстрирует рисунок 2.1, *д, з*. Очевидно, что возникновение бистабильности на шкале частот может наблюдаться в определённом диапазоне нормированной интенсивности приложенного поля. Уширение и сглаживание дисперсионных кривых в случае сильного насыщения приводит к исчезновению бистабильной особенности.

Сформулировать условия проявления бистабильности и гистерезиса в зависимости от сочетания значений κ , γ и e_0^2 можно на основе решения уравнения (1.3) относительно n_s , что может представить собой отдельную задачу. Далее только подчеркнём, что расчёты, ранее проведенные при участии авторов в работе [10], где было учтено электрическое поляризующее влияние поглощения в квазирезонансных переходах, указывают на возможность иной бистабильной трансформации дисперсионной зависимости резонансного отклика. Для определённого диапазона микроскопических параметров модели (1.1), (1.2) характерно асимметричное расщепление резонансных кривых. При этом значения резонансного поглощения κ и насыщающей интенсивности e_0^2 значительно превышают величины значений тех же параметров, рассматриваемых в данной статье.

Спектральная развёртка действительной части функции Лорентца выражает дисперсионную зависимость показателя преломления вблизи резонансной частоты. Ход изменения показателя преломления в этой области, как показывают приведенные на рисунке 2.1 варианты расчёта $\text{Re } G(\Delta)$, определяется уровнем насыщающей интенсивности e_0^2 . Отражение в этом случае не является постоянным на шкале e_0^2 , поэтому интересно рассмотреть нелинейную зависимость резонансного отражения слоя плотной среды. Выражение для эффективной амплитудной отражательной способности слоя несложно получить из соотношений (1.1) и (1.3):

$$r = r_0 + \frac{2\kappa n_s}{(\eta + 1)} \times \frac{1 + (1 + n_s)(\Delta - \gamma n_s) + \kappa n_s}{[1 + (\Delta - \gamma n_s)^2 + \kappa n_s]^2 + \kappa^2 n_s^2 (\Delta - \gamma n_s)^2}. \quad (2.1)$$

Зависимость амплитудного коэффициента r от интенсивности приложенного поля, полученная параметрическим расчётом (1.4), (2.1), в разных вариантах иллюстрирована на рисунке 2.2.

Судя по результатам расчёта, при определённом сочетании параметров резонансного поглощения и отстройки частоты коэффициент отражения на шкале значений интенсивности характеризуется максимумом. Величина соответствующего оптимума в отражении возрастает с увеличением поглощения. Нарастание степени насыщения с ростом e_0^2 приводит к тому, что отражение приближается к френелевскому уровню (определяемому нерезонансным значением показателя преломления). Отметим важную особенность хода нелинейных кривых – присутствие бистабильности. Нарастание мощности внешнего поля на данной частоте способно обусловить гистерезисный скачок отражения. Положение зоны бистабильности на шкале e_0^2 и её размер, определяющий ширину гистерезисной петли, зависит от резонансного поглощения и отстройки резонанса. Нарастание этих обеих величин в рассматриваемом диапазоне их изменения приводит к сглаживанию нелинейных кривых и исчезновению бистабильности. Так, например, ход кривой 4 на рисунке 2.2, *б*, хотя и характеризуется максимумом, однако не проявляет гистерезисных свойств. Возникновение оптимума в отражении, существование бистабильности выражает возможность особого, нелинейного резонанса в поведении отклика плотной оптической среды. Наличие этой особенности, как и для нелинейных дисперсионных зависимостей G , можно объяснить влиянием на пропускание слоя двух тенденций, динамика которых определяется насыщением разности населённостей, таких как просветления слоя и увеличения его поглощения,

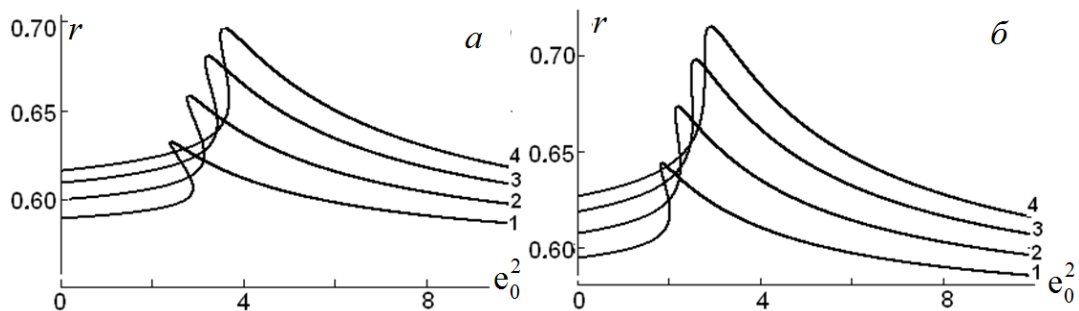


Рисунок 2.2 – Нелинейная зависимость отражательной способности слоя плотной резонансной среды: $\kappa = 0.5$ (кривые 1), 0.8 (2), 1.0 (3), 1.2 (4), $\Delta = 1.0$ (а), 2.5 (б), $\gamma = 2.34$, $T_1 = 1 \cdot 10^{-9}$ с, $T_2 = 1 \cdot 10^{-12}$ с, $\lambda = 1.3 \cdot 10^{-6}$ м

а также нелинейной отстройки от резонанса вследствие автомодуляционного смещения частоты в условиях влияния ближних полей элементарных диполей на электрическую поляризацию.

Рассмотренная особенность резонансного отражения может быть использована для оптимизации действия полупроводниковых зеркал, обычно применяемых в качестве компактных пассивных модуляторов в резонаторах импульсных лазерных устройств [11]. Гистерезисный скачок отражения, «не следящий» за непрерывным изменением излучения, способен нарушить его динамическую устойчивость и обусловить развитие автоколебаний выходной интенсивности лазера.

Заключение

В работе показана возможность гистерезисного поведения нелинейной диэлектрической восприимчивости оптической структуры с планарной граничной плёнкой плотной резонансной среды. В качестве модельных параметров избраны характеристики квантоворазмерных полупроводниковых структур, широко применяемых в оптике и лазерной физике. Резонансное отражение, особенности которого выявлены проведенными расчётами, представляет нелинейный оптический эффект, перспективный для целей разработки и совершенствования устройств управления когерентными потоками излучения. Применение пассивных оптических элементов, допускающих практически безынерционное гистерезисное переключение отражения света способно качественно оптимизировать действие таких устройств.

ЛИТЕРАТУРА

1. Agarwal, G.S. Microscopic approach to coherent population trapping state and its relaxation in dense medium / G.S. Agarwal // Optics Express. – 1997. – Vol. 1, № 1. – P. 44–48.
2. Malyshev, V.A. Intrinsic optical bistability of an ultrathin film consisting of oriented linear aggregates / V.A. Malyshev, H. Glaeske, K.-H. Feller // J. Chem. Phys. – 2000. – Vol. 113, № 3. – P. 1170–1176.

3. Li, H. Excitation dependence of resonance line self-broadening at different atomic densities // H. Li, V.A. Sautenkov, Yu.V. Rostovtsev, M.O. Scully / J. Phys. B: Atom. Mol. Opt. Phys. – 2009. – Vol. 42. – P. 065203–207.

4. Javanainen, J. Shifts of a resonance line in a dense atomic sample / J. Javanainen, J. Ruostekoski, Yi Li, Sung-Mi Yoo // Phys. Rev. Lett. – 2014. – Vol. 112. – P. 113603–1–5.

5. Maki, J.J. Linear and Nonlinear Optical Measurements of the Lorentz Local Field / J.J. Maki, M.S. Malcuit, J.E. Sipe, R.W. Boyd // Phys. Rev. Lett. – 1991. – Vol. 67, № 8. – P. 972–975.

6. Kaplan, A.E. Nanoscale stratification of local optical fields in low-dimensional atomic lattices // A.E. Kaplan, S.N. Volkov / Phys. Rev. Lett. – 2008. – Vol. 101, № 13. – P. 133902–1–4.

7. Kaplan, A.E. Nanoscale stratification of optical excitation in self-interacting one-dimensional arrays / A.E. Kaplan, S.N. Volkov // Phys. Rev. – 2009. – Vol. A79. – P. 1053834–1–16.

8. Bowden, C.M. Gain and reflectivity characteristics of self-oscillations in self-feedback and delayed feedback devices / C.M. Bowden, G.P. Agrawal // Phys. Review. – 1995. – Vol. 51, № 5. – P. 4132–4139.

9. Coherent and incoherent solutions of self-induced transparency in dense resonant media / A.A. Afanas'ev [et al.] // J. Opt. Soc. Amer. B. – 2002. – Vol. 19, № 4. – P. 911–919.

10. Timoschenko, E.V. Resonance reflection of light by a thin layer of a dense nonlinear medium / E.V. Timoschenko, V.A. Yurevich, Yu.V. Yurevich // Technical Physics. – 2013. – Vol. 58, № 2. – P. 251–254.

11. High precision optical characterization of semiconductor saturable absorber mirrors / D.J.H. Masas [et al.] // Optics Express. – 2008. – Vol. 16. – P. 757–1–5.

Работа выполнена при поддержке Белорусского республиканского Фонда фундаментальных исследований (Проект Ф14М–146).

Поступила в редакцию 16.09.14.