

## ФИЗИКА

УДК 535.222 + 621.375

*В. А. Юревич, А. С. Скапцов, Ю. В. Юревич*

### РЕЗОНАНСНАЯ ТРАНСФОРМАЦИЯ КОРОТКИХ ОПТИЧЕСКИХ ИМПУЛЬСОВ ПРИ ПРОХОЖДЕНИИ ЧЕРЕЗ СРЕДУ ИЗ МОНОДИСПЕРСНЫХ НАНОЧАСТИЦ

UDC 535.222 + 621.375

*V. A. Yurevich, A. S. Scaptsov, Y. V. Yurevich*

### RESONANT TRANSFORMATION OF SHORT OPTICAL PULSES DURING THEIR PROPAGATION THROUGH THE MEDIUM FORMED BY MONODISPERSIVE NANOPARTICLES

#### **Аннотация**

На основе компьютерного моделирования анализируются закономерности коллективной реакции ансамбля активных наноразмерных частиц на когерентное излучение. Иллюстрируется зависимость автоколебательной структуры световых импульсов, взаимодействующих с ансамблем, от уровня резонансного поглощения.

#### **Ключевые слова:**

наноразмерные частицы, когерентное взаимодействие, квазирезонансная поляризованность, автоколебательная структура интенсивности.

#### **Abstract**

Based on computer modelling, some features of a collective reaction of the active nanometrical particles ensemble on coherent radiation are analyzed. The dependence of the self-oscillatory structure of light pulses interacting with nanoparticles on the level of resonant absorption is illustrated.

#### **Key words:**

nanometrical particles, coherent interaction, quasi-resonant polarisability, light intensity self-oscillatory structure.

#### **Введение**

Для развития теории оптических эффектов в средах, образованных мелкодисперсными частицами, одной из проблем, нуждающихся в решении, является выяснение закономерностей отклика совокупности наноразмерных частиц на когерентное излучение. Изучение особенностей поглощения света и люминесценции в мелкодисперсных

средах оказывается важным для оценки размера наночастиц, их концентрации, степени упорядоченности или периода расположения [1, 2]. Не менее важна задача определения характера физических механизмов, действующих в процессе формирования наночастиц. Известно, что взаимодействие наночастиц между собой способно обусловить кооперативные эффекты, приводящие к возникновению области проводимости в

запрещенной зоне, к потерям мощности излучения вследствие процессов передачи энергии (тушению люминесценции), к люминесценции с эффектами усиления [2–4]. 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 резонансного отклика импульса 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 поглощения и переизлучения средой коротких световых импульсов, когда частицы взаимодействуют только через переизлучаемое ими световое поле, корреляции образующих среду частиц зависят от их концентрации и дипольного момента (значение последнего связано с их размерами). Поэтому естественно ожидать, что в особенностях коллективной реакции совокупности монодисперсных частиц на излучение в этих условиях и должны проявиться их свойства.

#### ***Исходная гипотеза и основные уравнения***

Работа посвящена изучению трансформации особо коротких оптических импульсов при прохождении через среду, включающую совокупность наночастиц в матрице, находящейся в конденсированном состоянии. Предполагается, что означенная совокупность мелкодисперсных элементов образует ансамбль активных частиц, способных коллективно реагировать на приложенное резонансное световое поле. Коллективную реакцию также именуют когерентной, имея в виду когерентность

действующего поля и поляризованности среды в условиях относительно слабого проявления релаксационных механизмов уширения спектральных линий поглощения. Когерентное взаимодействие короткого светового импульса с ансамблем монодисперсных частиц может быть подвержено заметному влиянию квазирезонансного эффекта нелинейности поляризационного отклика. Специфика этого эффекта связана с различием поляризуемостей частиц в основном и возбужденном состоянии и выражается, в зависимости рефракции света в среде от её энергетического состояния. Проявление рефракционной нелинейности такого типа довольно типично для материалов, в которых активные центры имеют размеры, примерно на порядок и более превышающие размер атома [2, 3]. Сами по себе наночастицы характеризуются именно таким размером [5], и их дипольный момент может достигать довольно высоких значений. В этом случае при условии относительно узкой линии спектрального резонанса вероятность резонансного поглощения столь же значительна. В отклике сред, содержащих такие частицы, на лазерные импульсы с несущими частотами в области оптического резонанса должны наблюдаться кооперативные эффекты. В частности, сверхкороткие интенсивные импульсы при прохождении через вещество могут приобретать нутационную субструктуру.

При формулировке расчётной модели полагаем, что на слой среды, содержащей активные монодисперсные частицы, нормально падает плоская световая волна с несущей частотой  $\omega$ . Амплитуда волны  $E_i$  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 [6] модифицированной системой уравнений Максвелла-Блоха для квазистационарной комплексной амплитуды поля  $E(x, t)$  проходящей в направлении оси  $Ox$  волны и вероятностных переменных – поляризованности  $p$  и разности заселённости уровней основного перехода  $n$ , отнесённых к одному атому:

$$\begin{aligned} & \left( \frac{\partial}{\partial x} + \frac{\eta}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) E = \\ & = \frac{\omega N}{3c} \left[ \frac{\mu}{\varepsilon_0} p - i 2\pi \Delta \alpha (n - n_0) E \right]; \\ & \dot{p} + \left\{ \frac{1}{T_2} + i \left( \omega - \omega_0 + \frac{\Delta \alpha}{\hbar} \pi \varepsilon_0 |E|^2 \right) \right\} p = \\ & = -\frac{\mu}{\hbar} n E; \\ & \dot{n} + \frac{n - n_0}{T_1} = -\frac{\mu}{2\hbar} (p^* E + p E^*). \quad (1) \end{aligned}$$

Здесь  $\mu$  – средний дипольный момент наночастиц;  $N$  – их концентрация;  $\Delta \alpha$  – дефект поляризуемости (разность поляризуемостей в основном и возбуждённом состоянии частицы);  $\omega_0$  – резонансная частота перехода;  $n_0$  – начальное значение разности заселённости;  $T_1$  и  $T_2$  – времена продольной и поперечной релаксации. Величина, обратная значению  $T_2$ , характеризует однородное уширение спектральной линии резонансного поглощения. Значения среднего дипольного момента  $\mu$  в применяемой схеме могут быть оценены произведением заряда электрона  $e$  на плечо элементарного диполя  $d$ , величина которого примерно равна среднему размеру наночастицы. Напряжённостью  $E$  определяется действующее в местах нахождения наночастиц световое поле, его динамика в слое непосредственно определена двумя материальными компонентами: резонансной поляризованностью  $p$  и квазирезо-

нансной составляющей поляризации, пропорциональной  $2\pi \varepsilon_0 \Delta \alpha N (n - n_0) E$  в уравнении переноса напряженности  $E$  системы (1). С влиянием переходов, соседних с резонансным, связана возможность квадратичного штарковского эффекта: штарковское смещение резонансных уровней в представлении обобщенной двухуровневой схемы [7] описывается фазовым сдвигом резонансной поляризации, пропорциональным  $\Delta \alpha |E|^2 / \hbar$ .

Для решения задач моделирования на основе (1) удобно использовать нормированные переменные и коэффициенты:  $e(x, t) = \mu \hbar^{-1} \sqrt{T_1 T_2} E(x, t)$ ,  $\Delta = (\omega - \omega_0) T_2$  и  $\beta = 2\pi \mu^{-2} \hbar \varepsilon_0 \Delta \alpha \sqrt{T_2 T_1^{-1}}$ , а также определить параметр  $\kappa = \frac{\mu^2 \omega_0 N}{3 \varepsilon_0 c \hbar} T_2$ , как известно, выражающий коэффициент ненасыщенного поглощения на частоте резонанса. В этом представлении напряженности полей  $E_i$  и  $E$  нормируются по величине напряженности поля, соответствующего мощности насыщения, а отстройка частоты от центра линии  $\omega - \omega_0$  – по полуширине резонанса поглощения. Уравнения для квазистационарных переменных поля и отклика среды тогда запишутся так:

$$\begin{aligned} & \left( \frac{\partial}{\partial x} + \frac{\eta}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) e = \\ & = \kappa \sqrt{\frac{T_1}{T_2}} [p - i \beta (n - n_0) e]; \\ & \dot{p} + \left[ 1 + i \left( \Delta + \frac{\beta}{2} |e|^2 \right) \right] \frac{p}{T_2} = \\ & = -\frac{ne}{\sqrt{T_1 T_2}}; \\ & \dot{n} = \frac{1}{T_1} \left[ n_0 - n - \frac{1}{2} \sqrt{\frac{T_1}{T_2}} (p^* e + p e^*) \right]. \quad (2) \end{aligned}$$

Далее в рамках численного интегрирования системы (2) моделировался процесс трансформации лазерного импульса, проходящего плоскопараллельный слой длины  $L$  с поглощением.

### **Методика моделирования в конкретной физической ситуации**

В среде слоя образующие её 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 –  $p(x, t=0) = 0$ . Рассматривалась известная задача Дирихле, т. е. расчет зависимости «выходного» поля  $e(x=L, t)$  на основе (2) проводился при заданном распределении напряжённости поля  $e(x=0, t) = \mu \hbar^{-1} \sqrt{T_1 T_2} E_i(t)$  на «входной» грани слоя.

В задаче моделирования поведения отклика ансамбля наночастиц в сильно нестационарных условиях внешнего воздействия напряжённость поля  $E_i(t)$  зондирующего светового импульса пикосекундной длительности задавалась в виде гиперболического секанса. Амплитуды напряжённости всплесков приложенного светового поля соответствовали случаю рассматриваемых в теории когерентного взаимодействия так называемых  $\pi$ -импульсов. Значение так называемого полярного угла вектора Блоха, рассчитываемого для импульса как  $\theta_0 = \frac{\mu}{\hbar} \int_0^\infty E_i(t) dt$  и выражающего «площадь импульса амплитуды поля», для входных импульсов было сравнимым с  $\pi$ . Отметим, что в представлении полярного угла  $\theta_0$  используется нормировка, означающая, что подинтегральная переменная, которая линейно связана с напряжённостью поля, имеет размерность частоты. В прошедшем среду резонанс-

ном излучении возможно самопроизвольное возникновение модуляции с частотой, зависящей от напряжённости поля. Этот нелинейный динамический эффект предсказан в теории когерентного взаимодействия и известен как проявление частоты Раби [8].

Численное интегрирование проводилось в рамках решения системы разностных уравнений, использовался традиционный метод конечных разностей – уравнения модели (2) сводились к соответствующим рекуррентным алгебраическим соотношениям.

Примеры численного расчёта динамики безразмерной интенсивности  $Y(t) = |e(x=L, t)|^2$  на основе разностного аналога системы (2), которые выражают наиболее характерные особенности трансформации импульсов, приведены на рис. 1. Характер изменений в импульсах отслеживается для нарастающего ряда значений коэффициента ненасыщенного поглощения  $\kappa$  (в случае  $\kappa = 0$  зависимость интенсивности излучения от времени представляет форму входного импульса). Значения величины  $\kappa$  для фиксированных величин остальных параметров определялись концентрацией активных нанометрических частиц  $N$ . В выборе параметров наночастиц (их природы, размеров и концентрации), а также спектрального диапазона зондирующего поля, которые использовались при определении коэффициентов системы (2) в расчётах, исходили, в основном, из оценок, данных в [2–4].

### **Автомодуляционные изменения прошедших импульсов**

В условиях значительного поглощения пиковая мощность выходного импульса естественно снижается, происходит увеличение его общей длительности. Следствием резонансного взаимодействия коротких импульсов со средой в рассматриваемой модели прежде всего является возникновение особого

рода субструктуры интенсивности у прошедшего среду импульса.

Реально поле излучения должно представлять собой сферическую волну

и эффект возникновения нутационных автоколебаний особо чувствителен к среднему расстоянию между частицами.

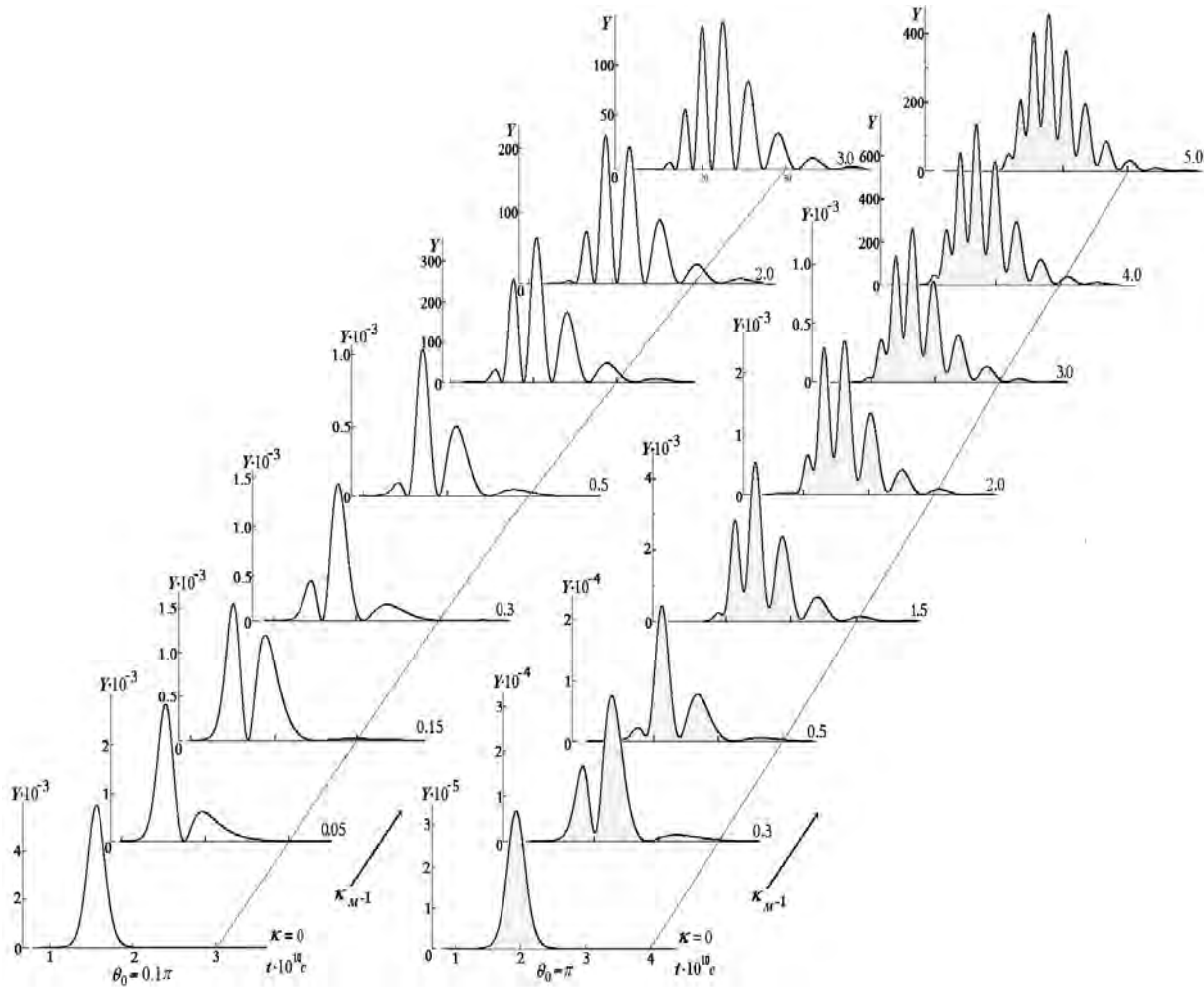


Рис. 1. Временная структура интенсивности импульсного излучения, прошедшего через слой нанометрических частиц, в зависимости от коэффициента резонансного поглощения:  $\mu = 6,4 \cdot 10^{27}$  Кл·м;  $T_1 = 1,0 \cdot 10^{-4}$  с;  $T_2 = 1,0 \cdot 10^{-10}$  с;  $L = 0,3$  м;  $\lambda = 5,03 \cdot 10^{-7}$  м;  $\beta = 1,0$ ;  $\eta = 3,6$

Чем выше их концентрация, тем меньше это расстояние. Поэтому и в рассматриваемом случае приложенного плосковолнового светового поля частота нутационных колебаний возрастает с увеличением резонансного поглощения, и, кроме того, существуют пороговые для заданного уровня входных величин полярного угла вектора Блоха значения плотности возбуждённых частиц [8]. Последней осо-

бенностью и объясняются различные значения поглощения, с которых «стартует» возникновение автомодуляционной структуры в случае двух разных значений пиковой мощности входного импульса на рис. 1. Можно показать, что в используемой модели при условии  $\beta = 0$  для точного резонанса ( $\Delta = 0$ ) и  $T_1, T_2 \rightarrow \infty$  частота нутационных осцилляций должна определяться собственной частотой коле-

баний полярного угла вектора Блоха

$$\theta(\tau) = \frac{\mu}{\hbar} \int_0^\tau E(\tau') d\tau', \text{ где } \tau = t - \eta x/c,$$

т. е. величиной  $\Omega = (c\kappa/\eta)^{1/2} (T_1/T_2)^{1/4}$ .

Таким образом, по изменениям в характере автомодуляционной субструктуры импульсов, возникающей как следствие нутационных автоколебаний полярного угла вектора Блоха, можно судить о вариациях концентрации или размера наночастиц. Резонансная трансформация входных импульсов является нелинейным автомодуляционным эффектом в поглощении или излучении светового поля. Пиковая мощность входного импульса должна быть высокой – такой, чтобы напряжённость поля в импульсе была сравнимой с внутримолекулярным электрическим полем частиц, т. е. естественно должны использоваться лазерные импульсы. Изменение частоты нутации в прошедших импульсах с ростом поглощения на рис. 1 не имеет прямого согласования с изменением  $\Omega$  в зависимости от  $\kappa$ . Во-первых, это связано с тем, что в расчётах использовалась более реальная модель, где времена  $T_1$  и  $T_2$  хотя и значительно превышают длительность входного импульса, но считаются конечными. Во-вторых, принятая модель учитывает квазирезонансную поляризованность. Следствием её существования является фазовая модуляция прошедшего сигнала, которая приводит к тому, что нутационные колебания оказываются менее

контрастными и следуют с большей частотой, общая продолжительность выходного импульса несколько снижается. Это также заметно из сравнения динамики изменений в импульсах с двумя разными значениями входной пиковой мощности, иллюстрируемой на рис. 1. Отметим, что хотя разница в контрасте модуляции значительна, число различных нутационных выбросов при одинаковом уровне резонансного поглощения практически не меняется.

### Заключение

Полученные результаты могут быть основой для разработки приёмов диагностики свойств физических объектов, образуемых наноразмерными 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 прошедших через слой наноразмерными частиц оптических импульсов. Частота следования и число нутационных выбросов, образующих автоколебательную субструктуру, являются хорошо различимыми в измерении характеристиками и критичны по отношению к размеру и концентрации монодисперсных наночастиц.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Size-dependent enhancement of nonlinear optical properties in Nanocolloids of ZnO / L. Irimpan [et al.] // Journ. of Appl. Phys. – 2008. – Vol. 103, № 3. – P. 033105–033108.
2. **Смынгына, В. А.** Люминесцентные свойства нанокристаллов CdS, легированных атомами лития и алюминия / В. А. Смынгына, В. М. Скобеева, Н. В. Малущин // Sensor Electronics and Microsystem Technologies. – 2011 – Т. 2, № 1. – С. 55–58.
3. **Ekimov, A. I.** Quantum size effect in semiconductor microcrystals / A. I. Ekimov, A. L. Efros, A. A. Onushenko // Solid State Communication. – 1995. – Vol. 56, № 4511. – С. 921–924.
4. Учет рассеяния и перепоглощения при анализе спектров люминесценции наночастиц / В. И. Кочубей [и др.] // Квант. электроника. – 2011. – Т. 41, № 4. – С. 335–339.
5. **Chang, T. Y.** Fast self-induced refractive index changes in optical media: a survey / T. Y. Chang // Opt. Engineering. – 1981. – Vol. 20, № 2. – P. 220–232.

6. **Юревич, В. А.** Особенности когерентного усиления коротких оптических импульсов в средах с нерезонансной поляризуемостью / В. А. Юревич // Квант. электроника. – 1990. – Т. 17, № 7. – С. 951–953.
7. Local-field effects in a dense ensemble of resonant atoms : Model of a generalized two-level system / A. A. Afanas'ev [et al.] // Phys. Rev. A. – 1999. – Vol. 60, № 2. – P. 1523–1529.
8. **Аллен, Л.** Оптический резонанс и двухуровневые атомы / Л. Аллен, Дж. Эберли. – М. : Мир, 1978. – 216 с.

Статья сдана в редакцию 18 июля 2012 года

**Владимир Антонович Юревич**, д-р физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник, Могилёвский государственный университет продовольствия. Тел.: +375-447-52-56-14.

**Андрей Сергеевич Скапцов**, канд. физ.-мат. наук, доц., Могилёвский государственный университет продовольствия. Тел.: 8-0222-48-59-02.

**Юрий Владимирович Юревич**, ассистент, Могилёвский государственный университет продовольствия. Тел.: 8-0222-48-59-02.

**Vladimir Antonovich Yurevich**, DSc (Physics and Mathematics), senior research fellow, Mogilev State University of Food Technologies. Tel.: +375-447-52-56-14.

**Andrei Sergeevich Scaptsov**, PhD (Physics and Mathematics), Associate Prof., Mogilev State University of Food Technologies. Tel.: 8-0222-48-59-02.

**Yury Vladimirovich Yurevich**, assistant lecturer, Mogilev State University of Food Technologies. Tel.: 8-0222-48-59-02.