

ФОРМИРОВАНИЕ ПЛАЗМОННЫХ ИМПУЛЬСОВ ПРИ КООПЕРАТИВНОМ РАСПАДЕ ЭКСИТОНОВ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК ВБЛИЗИ МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ ПОВЕРХНОСТИ

А. В. Шестериков^а, М. Ю. Губин^а, М. Г. Гладуш^б, А. В. Прохоров^{а}*

^а *Владимирский государственный университет
600000, Владимир, Россия*

^б *Институт спектроскопии Российской академии наук
108840, Троицк, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 31 мая 2016 г.

Рассмотрена задача формирования импульсов поверхностных электромагнитных волн на границе металл–диэлектрик в процессе кооперативного распада экситонов квантовых точек, распределенных вблизи металлической поверхности в слое диэлектрика. Показана принципиальная возможность повышения эффективности передачи энергии экситонов возбуждаемым плазмонам путем подбора материала диэлектрика с заданными значениями комплексной диэлектрической проницаемости. Установлено, что в приближении среднего поля полуклассическая модель формирования плазмонных импульсов в рассматриваемой системе сводится к уравнению маятника с дополнительным слагаемым нелинейных потерь.

DOI: 10.7868/S0044451017010035

1. ВВЕДЕНИЕ

Коллективные процессы высвечивания энергии системой квантовых излучателей, ярким примером которых является оптическое сверхизлучение (СИ), долгое время остаются предметом пристального изучения как с теоретической, так и с экспериментальной точек зрения [1–4]. Новые возможности известных эффектов могут быть связаны с коллективным поведением плазмонных осцилляторов, накачиваемых ближним полем возбужденных хромофоров (chromophores), в качестве которых могут выступать полупроводниковые квантовые точки (КТ), молекулы красителя и др. [5]. В случае локализованных систем «квантовая точка + металлическая наночастица (НЧ)» [6], либо отдельных комбинированных нанокристаллов ядро–оболочка нанокристаллов [7] их кинематика хорошо описывается в рамках теории спазера [5]. Но формируемые там плазмоны отличаются сильной локализацией, а их коллективная динамика ограничивается областью действия ближнего поля плазмонных НЧ [8].

При расширении системы на случай одномерного массива (цепочки) локализованных спазеров возникающие в такой системе коллективные нелинейные режимы могут служить основой значительного сужения линии излучения и, одновременно, компенсации оптических потерь [9]. В случае использования двумерных массивов локализованных спазеров на примере ансамбля КТ вблизи металлической поверхности с дефектами возникает область коллективного поведения системы, обусловленная самосинхронизацией отдельных хромофоров за счет ближнеполевого взаимодействия между ними [10]. Как вариант, возможна синхронизация хромофоров внешним пучком оптической накачки, что повышает эффективность индуцированных процессов в рассматриваемой системе и приводит к формированию узкого когерентного оптического пучка [11] перпендикулярно металлической поверхности. В качестве внешней накачки может служить ближнее поле иглы сканирующего туннельного микроскопа [12].

Существенный интерес вызывает альтернативная возможность, связанная с когерентным усилением поля распространяющихся поверхностных плазмонов за счет коллективных эффектов с хромофорами в условиях частичного/полного подавления процессов их радиационной релаксации. Задача распространения плазмонного поля, в частности,

* E-mail: avprokhorov33@mail.ru

возникает в одномерных системах на примере металлической канавки [13], либо пирамидки [14, 15] с расположенными вблизи них КТ и решается на основе анализа уравнений Максвелла – Блоха. Однако в условиях значительной величины скорости затухания γ_p плазмонов в металле возможности развития коллективных когерентных процессов с поверхностными плазмонами в таких системах сильно уступают процессам эмиссии в оптическую, в частности, сверхизлучательную моду.

Вместе с тем, удобными интерфейсами для наблюдения когерентных процессов с поверхностными плазмонами могут служить уже реализованные на практике планарные металл/диэлектрик волноводы, поперечная фокусировка плазмонных мод в которых осуществляется аналогами брэгговских зеркал [16]. Решение проблемы затухания плазмонов в таких системах может быть связано с использованием фотонных кристаллов в качестве диэлектрического слоя [17], когда в системе формируются плазмоны с длинным пробегом (long-range surface plasmons), максимум энергии поля которых оказывается существенно смещенным в область диэлектрика.

Другим вариантом компенсации затухания плазмонов в металле может служить модель волноводного спазера с ближнеполевой накачкой от размещенных вблизи металлической поверхности хромофоров [18]. Детальное теоретическое описание процессов взаимодействия хромофоров с эффективным полем плазмон-поляритонной волны для такой схемы приводится в работах [19, 20] на примере решения задач о самоиндуцированной прозрачности и формировании диссипативных солитонов для плазмон-поляритонных импульсов. В работе [21] подобную схему распределенного спазера предлагалось осуществить с использованием пленки диэлектрического метаматериала с внедренными в ее толщину КТ. Однако необходимо учитывать, что эффективность передачи энергии экситона в плазмонную моду сильно зависит от отношения r/λ_p , где r — расстояние от хромофора до поверхности металла, λ_p — длина волны формируемого плазмона [22]. Вместе с тем, при $r/\lambda_p \ll 1$ скорость Γ_a спонтанного радиационного распада хромофоров стремится к предельному значению $\Gamma_a = (2/3)\Gamma_0$, где Γ_0 — скорость радиационного распада в вакууме. Тогда, в условиях $\Gamma_a \ll \gamma_p$, скоростью радиационного распада в КТ для такой задачи можно было бы пренебречь. Однако при наличии плотного (около 10^{15} см^{-3}) ансамбля близкорасположенных возбужденных хромофоров возможно значительное увеличение Γ_a [23, 24] на

начальном этапе эволюции системы, происходящее за счет учета диполь-дипольных взаимодействий. Это может приводить к нежелательным процессам передачи части энергии хромофоров в оптические моды, а также служить затравкой к развитию кооперативных оптических эффектов, в том числе — оптического СИ [8, 25]. Таким образом, дополнительным необходимым условием наблюдения коллективных процессов с поверхностными плазмонами становится частичное либо полное подавление релаксационных процессов, определяемых скоростью радиационного Γ_a распада экситонов в КТ.

В настоящей работе предлагается подход к выбору конкретных хромофоров и подходящей диэлектрической среды-носителя для увеличения эффективности передачи энергии коллективных возбуждений хромофоров в плазмонные моды в планарном волноводе металл/диэлектрик. Условием наблюдения процесса служит значительное уменьшение эффективного значения величины Γ_a , которое может быть достигнуто за счет эффектов локального поля [26] при размещении плотного ансамбля хромофоров в специально подобранной диэлектрической среде-носителе. В рамках предлагаемой модели диэлектрическая проницаемость среды-носителя полагается комплексной, что позволяет полностью компенсировать скорость спонтанной релаксации хромофоров [27, 28], а также выявить качественно новый характер их коллективной динамики вблизи границы металл-диэлектрик.

2. ФОРМИРОВАНИЕ КОЛЛЕКТИВНЫХ РЕЖИМОВ ГЕНЕРАЦИИ ПЛАЗМОНОВ ВОЛНОВОДНОГО СПАЗЕРА. ОСНОВНЫЕ СООТНОШЕНИЯ

Рассмотрим модель представленного на рис. 1а интерфейса в виде волновода металл/диэлектрик [29] с размещенными внутри тонкого диэлектрического слоя двухуровневыми хромофорами, частота $\omega_a = 2\pi c/\lambda_a$ межуровневого перехода для которых резонансна плазмонной частоте $\omega_{SP} = 2\pi c/\lambda_{SP}$ металла. При выборе диэлектрической среды с подходящими дисперсионными характеристиками и при наличии начального возбуждения (инверсии) плотного ансамбля хромофоров в представленной модели может быть реализован процесс коллективного распада экситонов. Отличие рассматриваемой ситуации от модели излучающего спазера [11] заключается в том, что ориентация дипольных моментов хромофоров осуществляется в направлении, перпендикулярном плоскости волновода, что приводит к

когерентной передаче их энергии преимущественно в распространяющиеся вдоль оси x плазменные моды. При этом локализация процесса в направлении y может быть осуществлена при помощи системы дополнительных волноводов, работающих по принципу брэгговского отражения плазмонов (antiresonant-reflecting optical waveguide, ARROW [16]).

Рассматривая задачу в трехмерном приближении, считаем, что характерный размер области взаимодействия эффективного поля плазмонов и хромофоров $h = L_x = L_y = L_z$ удовлетворяет неравенству $h \ll \lambda_p$, а также справедливо выражение $L_z \ll l_d$, где l_d — длина затухания плазмона в направлении оси z . При этом изменяющееся во времени возмущение электронной плотности, возникающее в области V' в металле, своим полем вызывает индуцированные процессы с хромофорами, находящимися в симметричной области $V = h^3$ в диэлектрике. Тогда, полагая плазменные моды в пределах рассматриваемого объема квазистатическими [30], соответствующие частоты Раби можно представить в виде $\Omega = -A\nabla\varphi\mu_{12}a_0/\hbar$, где $A = \sqrt{\hbar S/\varepsilon_0\varepsilon_d(\partial S/\partial\bar{\omega})}$, a_0 — амплитуда плазмона, μ_{12} — величина дипольного момента перехода в хромофоре, а φ определяет скалярный потенциал плазмонного поля, линейно убывающий с удалением от поверхности. При рассмотрении случая возбуждения моды поля плазмона на частоте $\bar{\omega}$ и использовании нормировки $\int |\nabla\varphi|^2 dV = 1$ [30] выражение для частоты Раби может быть аппроксимировано функцией

$$\Omega = \mu_{12} \sqrt{\frac{S_n}{\hbar\varepsilon_d\varepsilon_0 V \frac{\partial S_n}{\partial\bar{\omega}}}} \varepsilon = g\varepsilon,$$

где $\varepsilon = \sqrt{N_p}$, а N_p — количество плазмонов в области взаимодействия.

Для плоской поверхности справедливо $\bar{\omega} = \omega_p/\sqrt{2}$, где $\omega_p = \sqrt{4\pi n_m e^2/m_0}$ — плазменная частота в металле с массой электронов m_0 при их концентрации n_m . Коэффициент $S(\bar{\omega}) = \text{Re}(\varepsilon_d/(\varepsilon_d - \varepsilon_m(\bar{\omega})))$ характеризует границу раздела металл/диэлектрик [5], тогда как параметры ε_d и $\varepsilon_m(\bar{\omega}) = 1 - \omega_p^2/(\bar{\omega}^2 + i\gamma_s\bar{\omega})$ являются диэлектрическими проницаемостями соответственно диэлектрика (совместно с КТ) и металла, здесь γ_s — столкновительная частота в металле.

Полагаем, что накачка рассматриваемой области V металла осуществляется симметричной областью V' диэлектрика, содержащей квантовые точки с характерным радиусом a и концентрацией $N \gg \gg 10^{21} \text{ м}^{-3}$. Условие $\lambda_a \gg a$ позволяет оставаться в пределах дипольного приближения, но наличие

значительной величины дипольных моментов переходов у КТ [31] требует учета локального поля, действующего на излучатели [27, 28]. Вместе с тем, эффектами обменного диполь-дипольного взаимодействия [32] между отдельными КТ, важными в задаче оптического сверхизлучения (СИ) локализованного спазера [12], в задаче пренебрегается.

Считая, что показатель преломления $n = n_R + in_I$ диэлектрического окружения КТ является комплексной величиной, где $n = \sqrt{\varepsilon_d}$ и ε_d — комплексная диэлектрическая проницаемость, можно модифицировать выражения для скорости излучательной релаксации Γ_a , частоты Раби Ω и эффективной частотной расстройки Δ_a [33]:

$$\Gamma_\varepsilon = \Gamma_a \left(n_R l_R - n_I l_I + 2 \frac{\delta_a}{\Gamma_a} l_I \right), \quad (1a)$$

$$\Omega_0 = \Omega \sqrt{l_R^2 + l_I^2}, \quad (1b)$$

$$\Delta_\varepsilon = \delta_a \left(l_R - \frac{\Gamma_a}{2\delta_a} (n_I l_R + n_R l_I) \right) + \Delta_a, \quad (1c)$$

где $l(n)$ — комплексная функция $l(n) = l_R + il_I$, для которой $l_R = (n_R^2 - n_I^2)/3$, $l_I = 2n_R n_I/3$; δ_a представляет собой малую поправку за счет лэмбовского сдвига. Здесь полагается, что функция $l(n) = E_l/E_M$ связи локального E_l и максвелловского E_M полей будет сохранять свою структуру и для случая ближнего поля, посредством которого осуществляется возбуждение плазмонов в схеме рис. 1.

Параметр $\Gamma_a^* = 1/\tau_R + 1/\tau_F$ представляет собой суммарную скорость радиационных (со временем $\tau_R = 1/\Gamma_a$) и нерадиационных (со временем τ_F) потерь для КТ в вакууме. В общем случае, параметр $1/\tau_F$ является определяющим, поскольку процессы безызлучательной рекомбинации экситонов (в том числе с образованием фононов) происходят на более коротких временах, составляющих порядка $\tau_F \approx \approx 0.7 \text{ нс}$ для CdS. Однако путем использования технологии отжига [34] данный параметр можно увеличить до значений, сравнимых со временем радиационных потерь, которое для одиночных квантовых точек CdS можно положить равным $\tau_R \approx 23 \text{ нс}$ [35]. Вместе с тем, при расположении плотного (более 10^{17} см^{-3}) ансамбля хромофоров вблизи границы металла скорость спонтанной эмиссии может существенно изменяться, в том числе расти [22, 24]. Следует отметить, что для рассматриваемой на рис. 1а конфигурации открытым остается вопрос временной стабильности отдельных КТ в процессе коллективной передачи энергии поверхностным плазмонам, — аналогично проблеме «блинкинга» излучающих КТ [36].

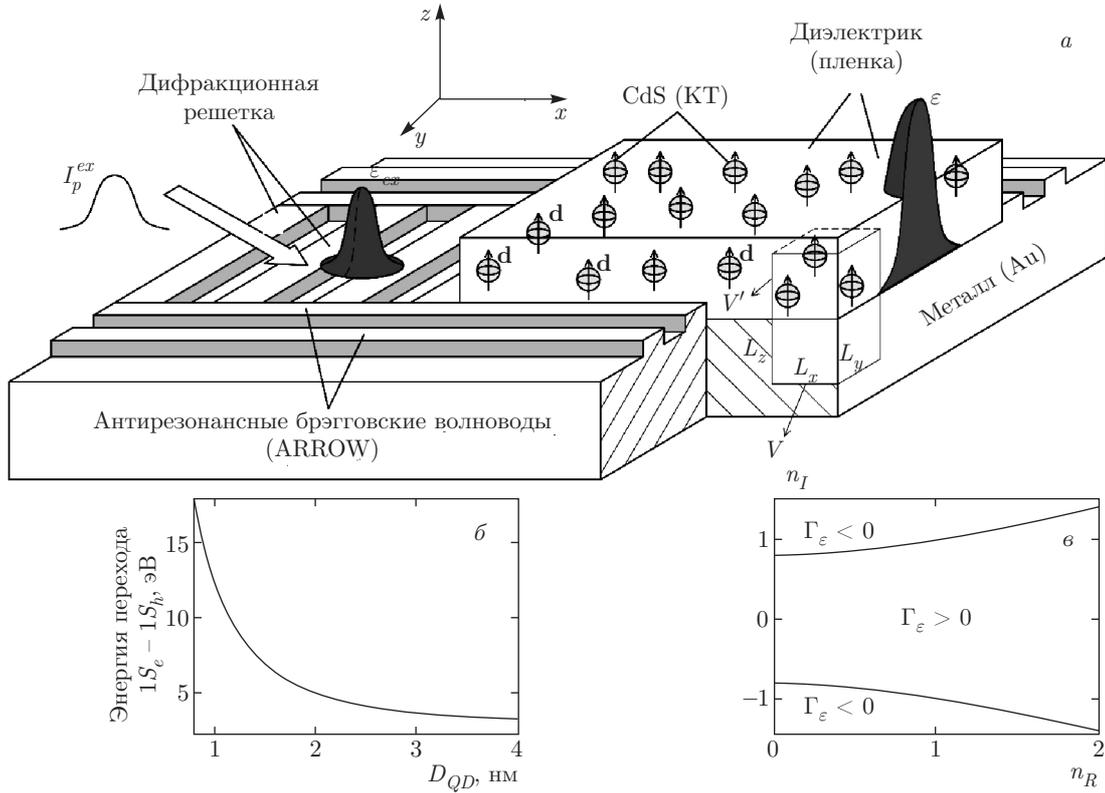


Рис. 1. а) Схема формирования плазмонных импульсов в слоистом (планарном) волноводе металл/диэлектрик с накачкой CdS КТ; б) зависимость энергии перехода от размера CdS КТ ($E_g = 2.42$ эВ при 0 К для сплошной среды); в) параметрическая плоскость комплексного показателя преломления $n = n_R + in_I$ диэлектрической среды с сепаратрисами $\Gamma_\epsilon = 0$ для действующего значения скорости радиационных потерь КТ в такой среде

В полуклассическом приближении описание системы может быть построено аналогично модели спазера «металлическая наночастица в окружении диэлектрика с хромофорами» [5] с помощью уравнений для элементов матрицы плотности ρ двухуровневого хромофора:

$$\dot{\rho}_{12} = - \left(i\Delta_\epsilon + \frac{\Gamma_\epsilon}{2} \right) \rho_{12} + (i\Omega_0^* + i\xi_0 u_R \rho_{12} + \xi_0 u_I \rho_{12}) n_{21}, \quad (2a)$$

$$\dot{n}_{21} = 2i (\Omega_0 \rho_{12} - \Omega_0^* \rho_{21}) - 4\xi_0 u_I |\rho_{12}|^2 - \Gamma_\epsilon (1 + n_{21}), \quad (2b)$$

где $\Delta_a = 2\pi c(1/\lambda_a - 1/\lambda_{SP})$, $n_{21} = \rho_{22} - \rho_{11}$, а частота Раби может быть представлена как $\Omega_0 = g\varepsilon\sqrt{l_R^2 + l_I^2}$ через константу связи $g = \mu_{12}\sqrt{S_n/\hbar\varepsilon_d\varepsilon_0 V(\partial S_n/\partial \bar{\omega})}$ и нормированное поле $\varepsilon = A_p\sqrt{\varepsilon_d\varepsilon_0 V(\partial S_n/\partial \bar{\omega})/\hbar S_n}$ с амплитудой A_p напряженности результирующего поля, создаваемого возмущенной электронной плотностью в металле и компонентой электромагнитного поля в диэлектрике. В общем случае, соотношение между этими компонентами может быть установлено только в ходе совместного решения уравнения

эволюции электронной плотности в проводнике заданной геометрии и уравнения Максвелла [20].

Параметр $\xi_0 = N\mu_{12}^2/3\hbar\varepsilon_0$ в (2) определяет добавку к частоте Раби, появляющаяся вследствие перехода от максвелловского E_M к локальному полю E_l [33], действующему на хромофоры.

Дисперсионная $u_R = (l_R\varepsilon_R + l_I\varepsilon_I)/(\varepsilon_R^2 + \varepsilon_I^2)$ и диссипативная $u_I = (l_I\varepsilon_R - l_R\varepsilon_I)/(\varepsilon_R^2 + \varepsilon_I^2)$ поправки выражаются через действительную и мнимую части диэлектрической проницаемости среды-носителя [33], в которой находятся КТ, и имеют физический смысл дополнительных частотной модуляции и эффектов соответственно поглощения ($u_I < 0$) либо усиления ($u_I > 0$) за счет учета локального поля, см. рис. 2.

Для перехода к самосогласованной задаче система (2) должна быть дополнена уравнением движения для частоты Раби плазмонного поля, которое в условиях точного плазмонного резонанса имеет вид

$$\dot{\Omega}_0 = -\frac{i}{t_R^2} \rho_{12} - \gamma_p \Omega_0, \quad (3)$$

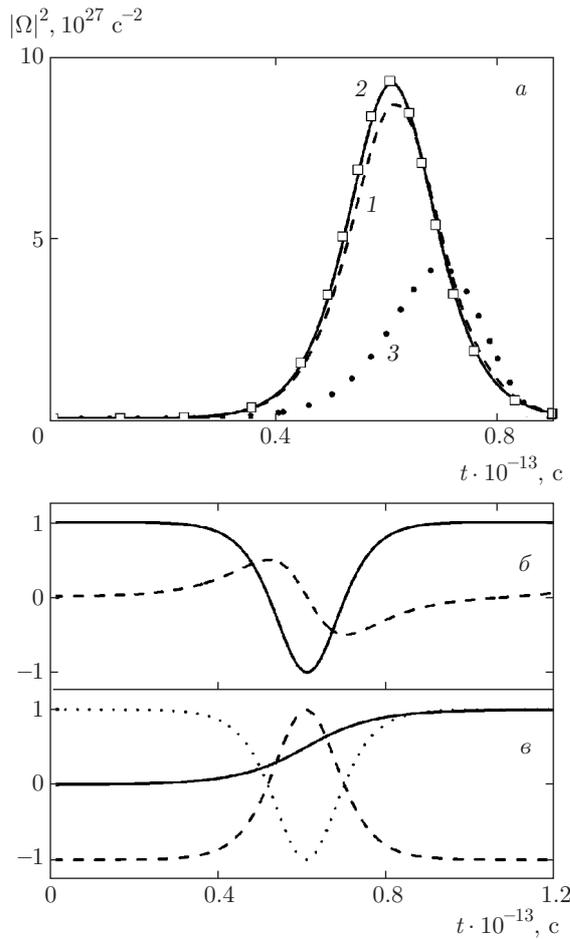


Рис. 2. а) Профили квадрата амплитуды плазменных импульсов, полученные при численном моделировании системы (2), (3) в следующих режимах: 1 — без учета ($\Delta_\varepsilon = 0$, $u_I = 0$, $\gamma_p = 0$, $\Gamma_\varepsilon = \Gamma_a = 6.3 \cdot 10^{11} \text{ c}^{-1}$) локального поля; 2 — с учетом ($\Delta_\varepsilon = 0$, $u_I = -0.1582$, $\gamma_p = 0$, $\Gamma_\varepsilon = 0$) локального поля; 3 — для случая $\Delta_\varepsilon = 0$, $u_I = 0$, $\gamma_p = 4.1 \cdot 10^{13} \text{ c}^{-1}$, $\Gamma_\varepsilon = \Gamma_a = 6.3 \cdot 10^{11} \text{ c}^{-1}$. Результат решения (11) для режима 2 представлен квадратами. б) Динамика параметров n_{21} (сплошная линия) и $\rho_{12}^{(I)}$ (штриховая линия). в) Динамика угла $\theta/(2\pi)$ (сплошная кривая) и коэффициентов $\cos \theta$ (пунктир) и $-\cos \theta$ (штрихи) для режима 2. Параметры взаимодействия: $g = 1.15 \cdot 10^{12} \text{ c}^{-1}$, $\xi_0 = 8.97 \cdot 10^{11} \text{ c}^{-1}$. Начальная поляризация среды $\rho_{12}(0) = i\theta_0 = i/\sqrt{N_a} = i \cdot 1.2 \cdot 10^{-2}$, нормировочный параметр $\Lambda = 9.63 \cdot 10^{13} \text{ c}^{-1}$ при $N_a = 7 \cdot 10^3$

где

$$t_R = \frac{1}{g\sqrt{N}} = \sqrt{\frac{2\hbar\varepsilon_d\varepsilon_0(\partial S_n/\partial \bar{\omega})}{S_n\mu_{12}^2 N}}$$

определяет характерное время установления квантовых корреляций в выбранном объеме V , когерентно накачиваемом из V' на рис. 1а (ср. с оптической

задачей [37], когда области расположения излучателей и формирования поля совпадают).

Необходимо отметить, что скорость затухания плазменной моды $\gamma_p = 1/\tau_J + 1/\tau_R$ существенно велика и определяется характерными временами как радиационных τ_R , так и «джоулевых» τ_J потерь. В условиях $1/\tau_J \approx 30/\tau_R$ [10] радиационные потери можно не учитывать, а «джоулевы» задаются столкновительной частотой в металле, т.е. $\gamma_p \approx \gamma_S$ и в задаче (3) в отсутствие накачки возникают слабо-распространяющиеся плазмоны (short-range surface plasmon). При наличии максимума энергии поля поверхностной волны в металле самосогласованная задача (2), (3) будет справедлива только в условиях, когда характерное время установления корреляций t_R между плазмонами оказывается существенно короче τ_J . Поскольку величина t_R обратно пропорциональна дипольному моменту хромофора, соотношение $t_R < \tau_J$ вполне выполнимо при накачке распределенного волноводного спазера квантовыми точками с их гигантскими значениями дипольных моментов перехода.

В простом случае $\xi_0 = 0$ и в отсутствие внешнего возбуждения $\varepsilon_{ex}(t) = 0$ затравкой коллективного поведения системы, в частности, возбуждения сверхизлучения, как и в оптической схеме, служит малая начальная поляризация $\rho_{12}^{(I)}(0) = \text{Im}(\rho_{12}(0)) \neq 0$ системы, инициирующая рост действительной части частоты Раби согласно $\dot{\Omega}_0^{(R)} = \rho_{12}^{(I)}/\tau_R^2$ (см. (3)). Таким образом, будет происходить формирование переднего крыла импульса поверхностных электромагнитных волн (плазмонного импульса). Далее, согласно $\dot{\rho}_{12}^{(I)} = \Omega_0^{(R)} n_{21}$ из (2а) и при условии $n_{21} > 0$ наблюдается рост величины $\rho_{12}^{(I)}$ (рис. 2б), который и приводит к распаду возбужденного уровня в соответствии с

$$\dot{n}_{21} = -4 \left(\Omega_0^{(R)} \rho_{12}^{(I)} + \Omega_0^{(I)} \rho_{12}^{(R)} \right) \approx -4\Omega_0^{(R)} \rho_{12}^{(I)}$$

из (2б). Процесс будет продолжаться и при наступлении насыщения в системе, однако из-за смены знака у разности населенностей n_{21} параметр $\rho_{12}^{(I)}$ постепенно убывает до нуля. Условие $\rho_{12}^{(I)}(t_D) = 0$ выполняется на характерных временах $t_D = t_R \ln(4/\theta_0)$ (где $\theta_0 = 1/\sqrt{N_a}$ и N_a — количество хромофоров в области взаимодействия [38]), когда происходит формирование пика плазмонного импульса. Далее процесс повторяется, но уже в области отрицательных значений параметра $\rho_{12}^{(I)}$, что приводит к формированию заднего фронта импульса, см. рис. 2. Аналогичная картина наблюдается и в случае ма-

лой начальной стохастической когерентности системы $\rho_{21}^{(R)}(0) = \text{Re}(\rho_{21}(0))$ [39].

Использование в задаче в качестве накачки КТ с их гигантскими значениями дипольных моментов на рабочем переходе способно приводить к значительному сокращению времени установления квантовых корреляций и пропорциональному уменьшению времени задержки t_D и длительности t_W формируемых плазмонных импульсов в рассматриваемой системе. В качестве модельной среды выбираем CdS КТ [40], расположенные в диэлектрической пленке вблизи поверхности золота. С учетом плазменной частоты золота $\omega_p = 1.37 \cdot 10^{16} \text{ с}^{-1}$ и условия $\bar{\omega} = \omega_p/\sqrt{2}$ для плоской поверхности металла, длина волны формируемых плазмонов составит $\lambda_{SP} = 192 \text{ нм}$. Для определения размеров КТ в условиях точного резонанса $\Delta_\varepsilon = 0$ воспользуемся известной зависимостью [41] энергии перехода $1S(e) \rightarrow 1S(h)$ от их диаметра $D_{QD} = 2a$ (см. рис. 1б):

$$E_{1S(e)-1S(h)} = E_g + 2 \frac{\hbar^2 \pi^2}{D_{QD}^2} \left(\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \right) - \frac{3.56e^2}{\varepsilon_{qd} D_{QD}}, \quad (4)$$

где e — заряд электрона, \hbar — постоянная Планка, m_e и m_h — эффективные массы электрона и дырки в объеме материала КТ с диэлектрической проницаемостью ε_{qd} [42, 43]. Для CdS соответствующие параметры составят $m_e = 0.19m_0$, $m_h = 0.8m_0$, $\varepsilon_{qd} = 9$ [32] в соответствии с чем $D_{QD} = 1.56 \text{ нм}$. Для более точной настройки размеров КТ на плазмонный резонанс полезно использовать экспериментальные кривые $E_{1S(e)-1S(h)}$ для конкретно синтезированных КТ [44]. Величину дипольного момента, соответствующего межзонного перехода КТ, полагаем равной $\mu = \mu_{12} = 5 \cdot 10^{-29} \text{ Кл}\cdot\text{м}$ [5].

С выбранными параметрами моделирования и при учете концентрации КТ $N = 10^{24} \text{ м}^{-3}$ характерные времена сверхизлучения составят $t_R = 10 \text{ фс}$ и задержки $t_D = 60 \text{ фс}$ при количестве $N_a = 7 \cdot 10^3$ хромофоров в области взаимодействия. Длительность сформированного плазмонного моноимпульса СИ составит всего порядка 14 фс — для режима 1 на рис. 2 с учетом некомпенсированной скорости радиационных потерь $\Gamma_\varepsilon = \Gamma_a = 6.3 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$ для КТ вблизи металлической поверхности [22]. Дополнительный учет скорости затухания плазмонов в золоте даже при условии $\gamma_p = 4.1 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$ не столь сильно влияет на развитие быстрой динамики формирования плазмонного импульса (режим 3 на рис. 2а).

Однако с учетом выражения (1а) выбор подходящей диэлектрической среды-носителя способен частично либо полностью компенсировать рост величины Γ_a (рис. 1б), но очевидно также, что свойства природных сред сильно ограничены. Так, в кварце для исследуемой длины волны $\lambda_{SP} = 192 \text{ нм}$ имеем $n_R = 1.6$, $n_I = 5 \cdot 10^{-7}$ [45] и $\Gamma_\varepsilon = 2.43\Gamma_a$. Для полной компенсации $\Gamma_\varepsilon \equiv 0$ релаксационных процессов в (2а) необходимое сочетание дисперсионно-диссипативных параметров должно удовлетворять условию $n_R l_R - n_I l_I = 0$ (в пренебрежении малым лэмбовским сдвигом), которое выполняется, к примеру, при выборе $n_R = 1.6$, $n_I = 1.23$. Такие условия могут быть выполнены для искусственного микроструктурированного диэлектрического материала с заданными дисперсионно-диссипативными характеристиками (диаграммами Коул–Коула). Они приводят к значимому увеличению интенсивности плазмонных импульсов при том, что передача энергии хромофоров в излучение оказывается подавленной, см. режим 2 на рис. 2а. При этом происходит усиление влияния локального поля, возрастают абсолютные значения характеризующих его параметров (поправки $u_R = 0.37$ и $u_I = -0.158$ в (2)) и динамика формирования плазмонных импульсов меняется.

3. КОЛЛЕКТИВНАЯ ДИНАМИКА ВОЛНОВОДНОГО СПАЗЕРА В ПРИБЛИЖЕНИИ СРЕДНЕГО ПОЛЯ

Для анализа вклада диссипативных эффектов, связанных с учетом мнимой u_I части поправки локального поля, соответствующими фазовыми эффектами с u_R в (2) и затуханием в (2), (3) можно пренебречь, и в приближении среднего поля перейти к упрощенной системе самосогласованных уравнений для среды:

$$\dot{\rho}_{12} = (i\Omega_0^* + \xi_0 u_I \rho_{12}) n_{21}, \quad (5a)$$

$$\dot{n}_{21} = 2i(\Omega_0 \rho_{12} - \Omega_0^* \rho_{21}) - 4\xi_0 u_I |\rho_{12}|^2 \quad (5b)$$

и формируемого в ней (действующего) поля

$$\dot{\Omega}_0 = -ig^2 N_a \rho_{12}. \quad (6)$$

Переходя к представлению для частоты Раби и поляризации в виде

$$\Omega_0 = \frac{1}{2}(Ue^{-i\varphi} + U^*e^{i\varphi}), \quad \rho_{12} = \frac{1}{2}Re^{-iK_0},$$

где $K_0 = \omega_{SP}t - k_{SP}z$, и полагая $Z = n_{21}$, можно получить систему уравнений типа Максвелла–Бло

ха на случай спазера с учетом (диссипативного) локального отклика макрокружения КТ:

$$\dot{Z} = -\frac{i}{2}(UR^* - U^*R) - \xi_0 u_I |R|^2, \quad (7a)$$

$$\dot{R} = i(U - i\xi_0 u_I R)Z, \quad (7b)$$

$$\dot{U} = -ig^2 N_a R. \quad (7c)$$

При выводе системы (7) использовалось приближение вращающейся волны в пренебрежении высокочастотными слагаемыми с фазовыми множителями $e^{\pm 2i\varphi}$. Переходя к новым безразмерным переменным вида $\delta_0 = -iU/\Lambda$ и $\tau = t\Lambda$, где $\Lambda = g\sqrt{N_a}$, и полагая $R^* = R$ и $\delta^* = \delta$ представим систему (7) следующим образом:

$$\frac{\partial Z}{\partial \tau} = \delta_0 R - \frac{\xi_0 u_I}{\Lambda} |R|^2, \quad (8a)$$

$$\frac{\partial R}{\partial \tau} = -\delta_0 Z + \frac{\xi_0 u_I}{\Lambda} RZ, \quad (8b)$$

$$\frac{\partial \delta_0}{\partial \tau} = -R. \quad (8c)$$

Решение системы (8) может быть записано в виде $Z = B \cos(\theta)$ и $R = B \sin(\theta)$, где B и θ определяют амплитуду и угол, так называемого вектора Блоха с координатами Z и R , а их подстановка в (8) приводит к уравнению для угла

$$\dot{\theta} = -\delta_0 + \frac{\xi_0 u_I}{\Lambda} B \sin \theta. \quad (9)$$

После подстановки выражения для δ_0 из уравнения (9) в (8c) может быть получена новая разновидность уравнения маятника с нелинейным слагаемым гармонических потерь/затухания:

$$\ddot{\theta} - \frac{\xi_0 u_I}{\Lambda} \dot{\theta} B \cos \theta = B \sin \theta. \quad (10)$$

Второе слагаемое в левой части (10) отвечает за синхронизированные с изменением угла θ диссипативные процессы, инициированные влиянием локального отклика среды. При использовании сепаратрисного условия $B = 1$, соответствующего переходу от вращательного движения маятника к колебательному, уравнение (10) может быть приведено к особому виду:

$$\ddot{\theta} - \dot{\theta} K \cos \theta = \sin \theta, \quad (11)$$

где амплитуда коэффициента затухания определена как $K = \xi_0 u_I/\Lambda$. В отсутствие модуляции потерь, когда $\dot{\theta} K \cos \theta = \dot{\theta} K$, и при условии $K < 0$ уравнение (11) сводится к обычному уравнению нелинейного маятника с потерями [38]. С учетом модуляции,

при тех же условиях $K < 0$ ($\varepsilon_I > 0$ и $u_I < 0$), в промежутках

$$\theta \in \left[0 + 2\pi m; \frac{\pi}{2} + 2\pi m\right], \quad \theta \in \left[\frac{3\pi}{2} + 2\pi m; 2\pi + 2\pi m\right],$$

ответственных за формирование переднего и заднего фронтов плазмонного импульса (см. рис. 2б), маятник испытывает дополнительное затухание, тогда как в промежутке

$$\theta \in \left[\frac{\pi}{2} + 2\pi m; \frac{3\pi}{2} + 2\pi m\right],$$

когда происходит формирование центральной части плазмонного импульса, наблюдается усиление колебаний маятника; $m = 0, 1, 2, \dots$

Иными словами, поглощающая диэлектрическая среда-носитель когерентно сохраняет часть энергии КТ во время формирования переднего фронта импульса и, далее, также когерентно возвращает эту энергию в плазмонный импульс на стадии формирования его пика. В результате с учетом компенсации скорости спонтанной релаксации КТ ($\Gamma_\varepsilon = 0$) и учета нелинейных слагаемых с u_I в (5) наблюдается рост пиковой интенсивности импульса по отношению к случаю, когда локальным откликом среды-носителя пренебрегается, см. рис. 2а.

По всей видимости, при наличии сильных резонаторных эффектов в диэлектрической среде-носителе вблизи рабочей длины волны КТ возможен режим дополнительного увеличения пиковой интенсивности генерируемых импульсов за счет слагаемых с u_R и u_I в выражении (2). Но поскольку эти поправки получены исходя из того, что рабочая длина волны λ_{SP} лежит на крыле линии поглощения диэлектрической пленки [33], представленная теория на данный случай не распространяется. Тем не менее одной из возможностей такого усиления может служить использование полностью диэлектрических метаматериалов [46] со специально подобранной геометрией и дополнительно внедренными в их структуру КТ [47–49]. При таком подходе появляется возможность возбуждения плазмон-поляритонов с длинным пробегом (long-range surface plasmon polaritons) [17] на границе металл/(метаматериал с КТ) при одновременном их усилении за счет накачки КТ. Однако задача (2), (3) в таком случае существенно усложняется необходимостью описания компоненты поля в диэлектрике, учетом геометрии отдельных рассеивающих центров [50] и влиянием неоднородного структурированного микроокружения на скорость спонтанного распада КТ [51].

Для случая $u_I > 0$ ($K > 0$) [33], когда имеется среда-носитель с фоновым усилением, напротив, перекачка энергии от среды к внедренным в нее излучателям должна осуществляться на начальном этапе формирования плазмонного импульса. Это вызовет опережение генерации импульса средой, а также частичную потерю его мощности по отношению к случаю $u_I = 0$.

В известном случае $\xi_0 = 0$ сепаратрисное решение уравнения (11) имеет вид $\theta = 4 \arctg e^{\tau - \tau_D}$, где безразмерное время задержки определяется как $\tau_D = \ln(4/\theta_0)$ с начальным углом $\theta_0 = 1/\sqrt{N_a}$, что соответствует формированию моноимпульса, квадрат модуля частоты Раби которого может быть записан как

$$|\Omega|^2 = \frac{\Lambda^2}{|\operatorname{ch}(\Lambda(t - t_D))|^2} \quad (12)$$

в масштабе реального времени (режим 1 на рис. 2а).

Для моделирования уравнений (5)–(11) мы перешли к рассмотрению конкретного режима, полагая значение фазы для плазмонов $\varphi(t) = -\pi/2$. В этом случае, как и было рассмотрено в разд. 2, начальная поляризация системы является исключительно мнимой величиной $\rho_{12}(0) = iR/2$, а частота Раби может быть выражена как $\Omega_0 = -U^{(I)}$, где применено разложение $U = U^{(R)} + iU^{(I)}$. При таких условиях происходит формирование исключительно действительной части частоты Раби формируемого импульса, а система (8) преобразуется к виду

$$\frac{\partial Z}{\partial \tau} = 2i\delta_0 R - \frac{\xi_0 u_I}{\Lambda} |R|^2, \quad (13a)$$

$$\frac{\partial R}{\partial \tau} = -2i\delta_0 Z + \frac{\xi_0 u_I}{\Lambda} RZ, \quad (13b)$$

$$\frac{\partial \delta_0}{\partial \tau} = \frac{i}{2} R, \quad (13c)$$

однако форма уравнения (11), к которому сводится (13), при условии новой нормировки $\delta_0 = -iU^{(I)}/\Lambda$ не меняется. Начальные условия при моделировании (11) выбраны равными $\theta_0 = 1/\sqrt{N_a}$ для начального угла колебаний и

$$v_\theta = \left. \frac{\partial \theta}{\partial t} \right|_{t=0} = \frac{2}{\operatorname{ch}(\ln(\theta_0/4))}$$

для начальной скорости маятника.

Уравнение (11) является частным случаем уравнения Льенарда, а его приближенное аналитическое решение может быть выражено через эллиптические интегралы первого рода. Численное решение для частоты Раби поля плазмонного импульса, полученное на основе анализа (11), полностью совпадает

с результатами прямого численного моделирования системы (5), (6) в условиях подавления спонтанной релаксации КТ при выборе $n_R = 1.6$, $n_I = 1.23$ ($K = -0.0147$), см. режим 2 на рис. 2а.

4. ВЛИЯНИЕ КОНЦЕНТРАЦИОННЫХ И ДИССИПАТИВНЫХ ЭФФЕКТОВ НА РАЗВИТИЕ КОЛЛЕКТИВНЫХ РЕЖИМОВ ВОЛНОВОДНОГО СПАЗЕРА

Решения уравнения (11) получены в условиях подавления спонтанного излучения для возбужденных КТ вблизи границы металл/диэлектрик, тогда как нарушение полученных соотношений между параметрами n_R и n_I должно приводить к росту скорости релаксационных процессов и ослаблению формируемых плазмонных импульсов. При этом эффективность перекачки энергии КТ в сверхизлучательную моду имеет нелинейную зависимость от параметра $\delta_{nI} = n_I/n_I^{sup}$, характеризующего относительное отклонение коэффициента потерь среды-носителя от заданного уровня n_I^{sup} , для которого в точности выполняется условие $\Gamma_\varepsilon = 0$ при фиксированном n_R , см. рис. 3а. В частности, уменьшение величины n_I приводит к росту действующего значения скорости релаксации Γ_ε и связанному с ней уменьшению площади

$$S [\text{рад}] = \frac{\mu}{\hbar} \int_0^{2t_D} A_p dt = \int_0^{2t_D} |\Omega_0| dt$$

формируемых плазмонных импульсов, см. рис. 3б, выполненный на основе прямого численного моделирования системы (2), (3).

С другой стороны, изменение концентрации КТ при одновременном удовлетворении условию $\Gamma_\varepsilon = 0$ в системе дает возможность дополнительного управления временем задержки t_D и длительностью t_W импульсов на выходе среды. Так, увеличение концентрации КТ на примере CdS приводит к быстрому нелинейному сокращению времени задержки t_D в рассматриваемой модели, см. рис. 3в, с высвечиванием все более интенсивных импульсов, см. рис. 3г.

Для анализа нелинейных фазовых эффектов в процессе генерации плазмонных импульсов необходим дополнительный учет пространственной динамики коллективных процессов, который может быть выполнен введением в уравнение (3) продольной координаты x . Соответствующее решение на выходе среды длиной L с изотропным распределением хромофоров в ней будет иметь вид [37]

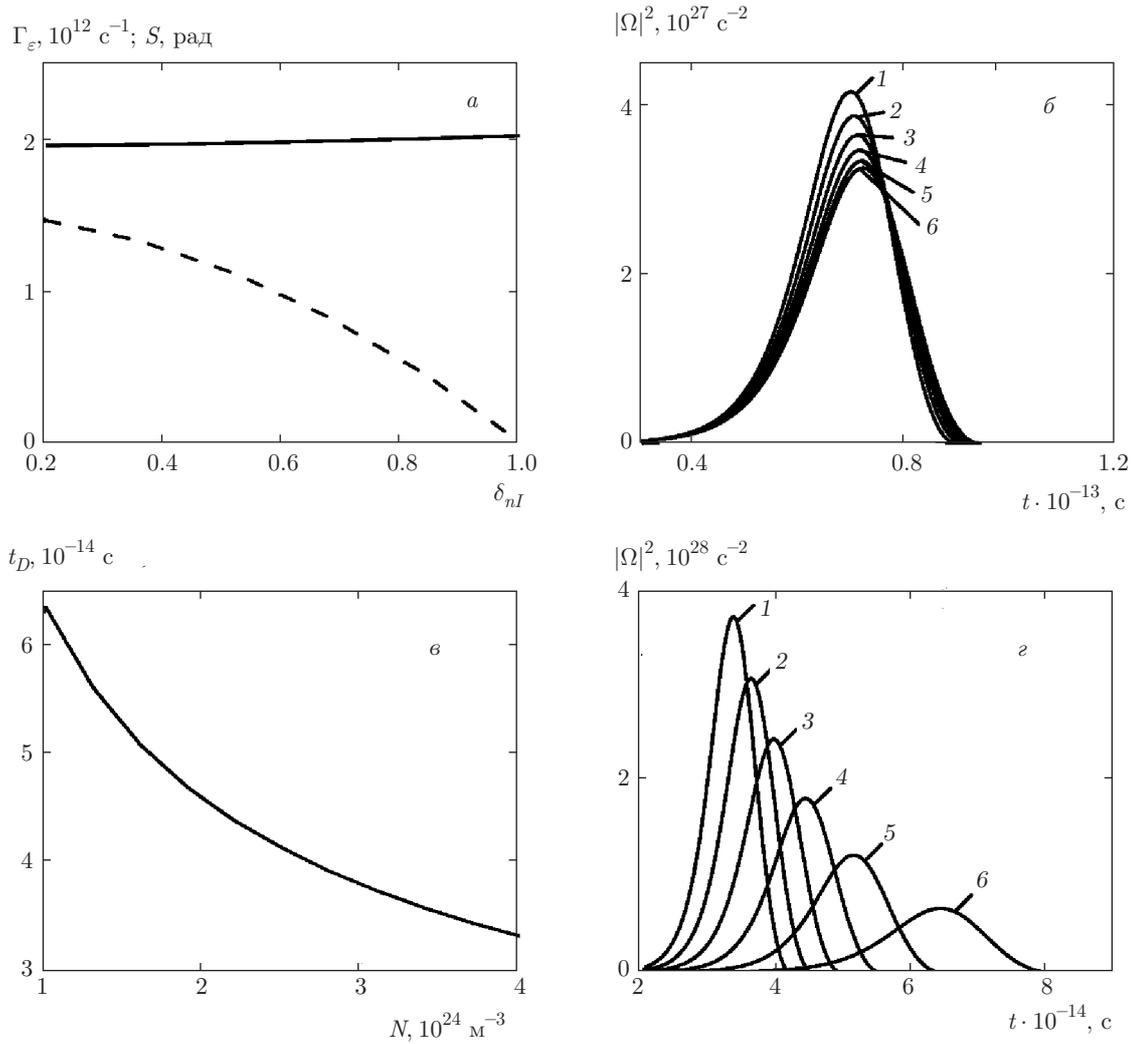


Рис. 3. а) Зависимости площади S (сплошная линия) плазмонного импульса, формируемого в волноводном спазере от величины относительного отклонения δ_{nI} коэффициента потерь диэлектрической среды-носителя от значения $n_I^{sup} = 1.23$, для которого может наблюдаться подавление спонтанной релаксации при фиксированном $n_R = 1.6$; б) серия профилей плазмонных импульсов при различных значениях δ_{nI} : 1 — $\delta_{nI} = 1.00$, 2 — 0.84, 3 — 0.68, 4 — 0.52, 5 — 0.36, 6 — 0.20. в) Зависимость времени задержки t_D импульса от концентрации квантовых точек CdS в диэлектрической среде-носителе с учетом поправок ($u_I = -0.1582$, $u_R = 0.3754$) локального отклика; г) профили импульсов при различных значениях концентрации квантовых точек: 1 — $N = 4.0 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$, 2 — $3.4 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$, 3 — $2.8 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$, 4 — $2.2 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$, 5 — $1.6 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$, 6 — $1.0 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$. Параметры взаимодействия соответствуют рис. 2; $\Gamma_a = 6.3 \cdot 10^{11} \text{ c}^{-1}$

$$\epsilon'(L, t) = \epsilon_{ex}(t) \exp(ikL) + i \frac{1}{\tau_R g \epsilon_0 L} \times \int_0^L \rho_{21} \exp(ik|L - x'|) dx', \quad (14)$$

где $\tau_R = t_R^2 c/L$ определяется новым характерным временем установления квантовых корреляций, $\epsilon_{ex}(t)$ соответствует амплитуде дополнительного импульса поля плазмонов на входе волновода, а множитель $\exp(ik|L - x'|)$ задает фазовые набеги,

которые, в отличие от рассмотренного в разд. 3 случая, зависят от координаты x .

Изучение влияния нелинейно-дисперсионных эффектов на спектральные особенности формируемых плазмонных импульсов удобно начать с численного решения совместной системы уравнений (2) и (14) в условиях $\epsilon_{ex}(t) = 0$, когда триггерный импульс на входе среды отсутствует, а также в пренебрежении диссипативными слагаемыми локального поля $u_I = 0$.

Действительная форма спектров импульсов, генерируемых в таком приближении, определяется обратным фурье-преобразованием от соответствующей частоты Раби импульса на выходе среды:

$$F(L, \omega) = |\Omega_0(L, \omega)|^2 = \left| \frac{g\sqrt{l_R^2 + l_I^2}}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon'(L, t) e^{-i\omega t} dt \right|^2. \quad (15)$$

В простом случае, при отсутствии как частотной модуляции, так и в пренебрежении эффектами запаздывания, ширина $\Delta\nu_{1/2}$ спектра по высоте спектрально-ограниченного импульса определяется только его длительностью $\tau_{1/2}$. Для импульса в форме обратного гиперболического косинуса (12) справедливо соотношение $\Delta\nu_{1/2}\tau_{1/2} = K_0$, где $K_0 = 0.315$ [52].

На рис. 4а,б видно, что происходит подавление величины скорости спонтанной релаксации $\Gamma_\varepsilon \equiv 0$ ($n_R = 1.6$, $n_I = 1.23$), но при этом в системе формируется эффективная частотная расстройка Δ_ε (см. (1с)), соответствующая появлению линейной дисперсии. Она приводит, согласно выражению (14), к формированию дисперсионных задержек и возникновению характерных осцилляций параметра $\rho_{21}^{(I)}$ (а также $\text{Im}(\Omega_0)$) на частоте Δ_ε . Соотношение между шириной спектра $\Delta\nu_{1/2}^{SR}$ и длительностью $\tau_{1/2}^{SR}$ такого модулированного импульса меняется, приобретая вид $\Delta\nu_{1/2}^{SR}\tau_{1/2}^{SR} = K_{SR}$, где $K_{SR} = 0.8$, см. рис. 4а,б. Однако при построении рис. 4а,б нелинейные фазовые эффекты, соответствующие вкладу слагаемых с u_R в (2а), не учитывались.

С другой стороны, учет только нелинейных слагаемых вида $\xi_0 u_R \rho_{21}(\rho_{22} - \rho_{11})$ в (2а) в отсутствие линейной дисперсии ($\Delta_\varepsilon = 0$) приводит к сильной нелинейной частотной модуляции для параметра $\rho_{21}^{(I)}$, которая, в соответствии с (14) накладывается на профиль формируемого плазменного импульса. Особенность такой модуляции проявляется в изменении ее знака при смещении от крыла формируемого импульса, где $n_{21} = 1$, к его пику, для которого справедливо $n_{21} = -1$, и формировании характерного профиля мнимой компоненты частоты Раби, см. вставку к рис. 4в для произвольно выбранного $u_R = 0.02$.

В модельных условиях, при выборе $n_R = 1.6$, $n_I = 1.23$, расчетное значение u_R составит 0.375, а эффекты линейной и нелинейной дисперсии будут действовать совместно. Тогда в системе возникает смешанный режим с нелинейно изменяющейся от фронта к хвосту скоростью фазовой модуляции, см.

рис. 4в. В результате, связь между длительностью такого промодулированного импульса $\tau_{1/2}^{FM}$ и его шириной $\Delta\nu_{1/2}^{FM}$ становится вида $\Delta\nu_{1/2}^{FM}\tau_{1/2}^{FM} = K_{FM}$, где $K_{FM} = 440$, а его спектр существенно уширяется и приобретает практически прямоугольную форму, см. рис. 4г. Полученный результат для распределенного волноводного спазера в импульсном режиме существенно отличен от случая локализованного спазера с характерным для него эффектом сужения спектра [53]. В техническом плане, представленный режим уширения спектра плазменного импульса для интерфейса, представленного на рис. 1, может найти новое применение в задачах создания широкополосных источников электромагнитного поля [54] аналогично генерации «лазерных гребенок» в оптике [55].

5. ОСОБЕННОСТИ ТРИГГЕРНОГО РЕЖИМА ВОЛНОВОДНОГО СПАЗЕРА

Особенность триггерного режима в схеме рис. 1а по аналогии с триггерным оптическим сверхизлучением (ТОСИ) связана с возможностью управления развитием кооперативных процессов в системе, когда механизм установления квантовых корреляций между отдельными хромофорами инициируется внешним импульсом накачки. При этом динамика развития, диаграмма направленности и форма высвечиваемого импульса СИ целиком определяются параметрами такого затравочного (триггерного) импульса. В оптике подобный режим впервые наблюдался в газовой среде авторами работы [56], однако лишь после реализации эффекта в твердотельных средах [57] возникли предпосылки для рассмотрения ТОСИ в качестве основы для создания оптической памяти, оптических вычислительных устройств [58]. Трансляция такой задачи в плазменную физику имеет ряд преимуществ, позволяя, с одной стороны, сохранить оптические скорости обработки информации, с другой, — существенно упростить процессы интеграции отдельных плазменных устройств в схемы и решить вопрос их сопряжения с имеющимися электронными вычислительными устройствами.

В рассматриваемой задаче (2)–(14) триггерный режим генерации плазменных импульсов может быть реализован при наличии дополнительного плазменного импульса

$$\varepsilon_{ex}(t) = \varepsilon_0 e^{-(t-nT_0)^2/(2T_0^2)} \quad (16)$$

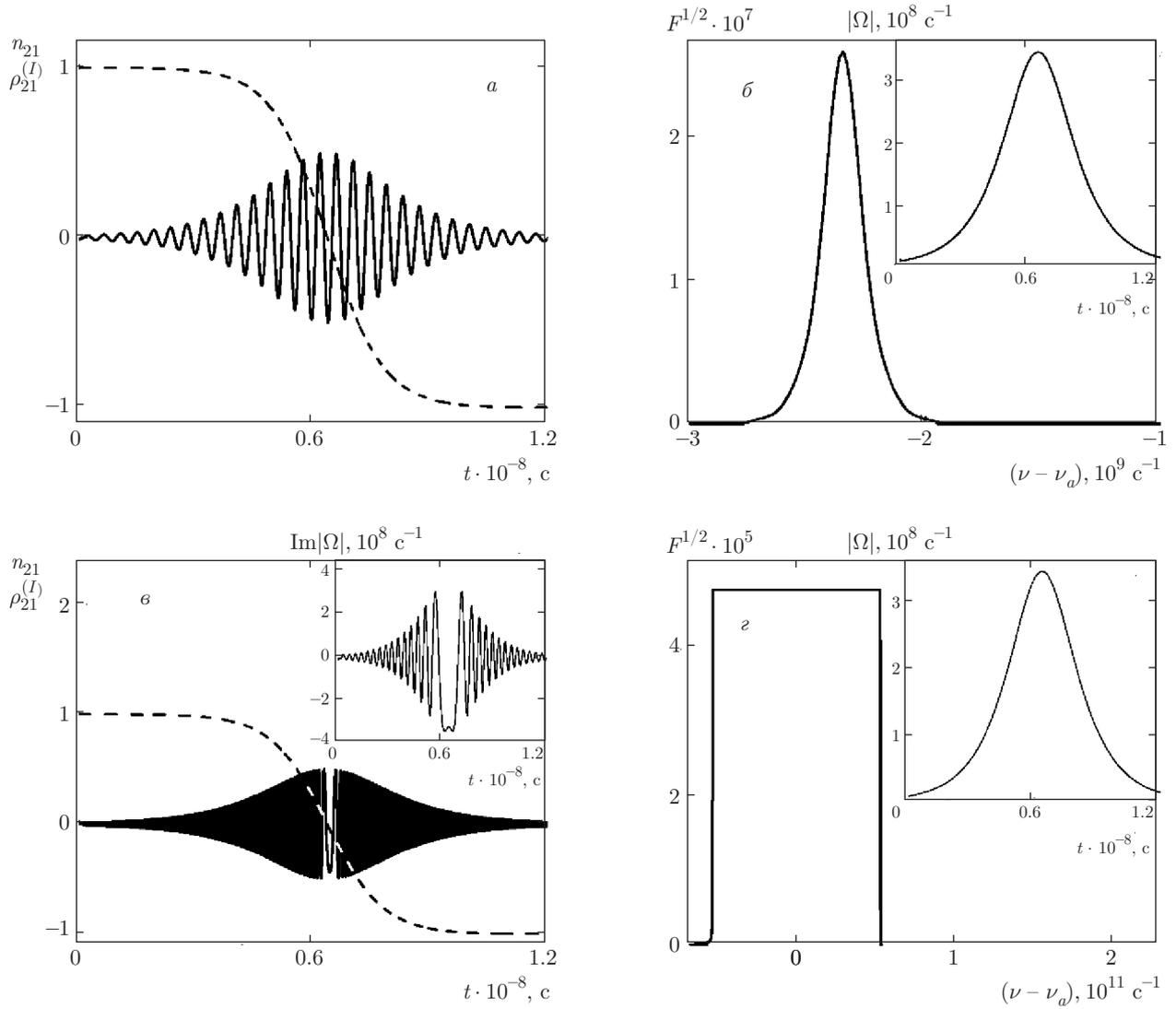


Рис. 4. Временные зависимости для разности населенности n_{21} (штриховые кривые) и мнимой части поляризации $\rho_{21}^{(I)}$ (сплошные кривые) в коллективном режиме формирования плазмонов на золотой поверхности, инициированного распадом экситонов в плотном ансамбле квантовых точек CdS в диэлектрической матрице вблизи границы металл–диэлектрик, при условии $\Delta_\epsilon = -1.48 \cdot 10^{10}$ c⁻¹ ($\Delta_a = 1.04 \cdot 10^{12}$ c⁻¹) без учета $u_R = 0$ (а) и с учетом (в) нелинейных фазовых эффектов локального поля при $u_R = 0.375$, а также рассчитанные с помощью (15) соответствующие им частотные спектры (б, г). На вставках к рисункам б, г — профили плазмонных импульсов и в — форма частотной модуляции $\Omega^{(I)}$ импульса в режиме с $\Delta_\epsilon = 0$, $u_R = 0.02$. Параметры взаимодействия соответствуют рис. 2

с длительностью T_0 и временной задержкой nT_0 ($n \in R^+$), взятой относительно начала свободной эволюции системы за счет релаксационных процессов, см. разд. 2. Технически триггерный импульс может быть получен преобразованием внешнего оптического импульса на металлической решетке аналогично работе [59], см. рис. 1а. Как и в оптическом случае, характерной особенностью режима является возможность управления временем задержки появ-

ления основного плазмонного импульса [60], которое в классической постановке задачи и без учета эффектов локального поля определяется выражением

$$\tau_D = \tau_R \ln \left(\frac{1 + \cos \theta}{1 - \cos \theta} \right) \quad (17)$$

и зависит от площади

$$\theta = \frac{2\mu}{\hbar} \int A_p^{ex} dt$$

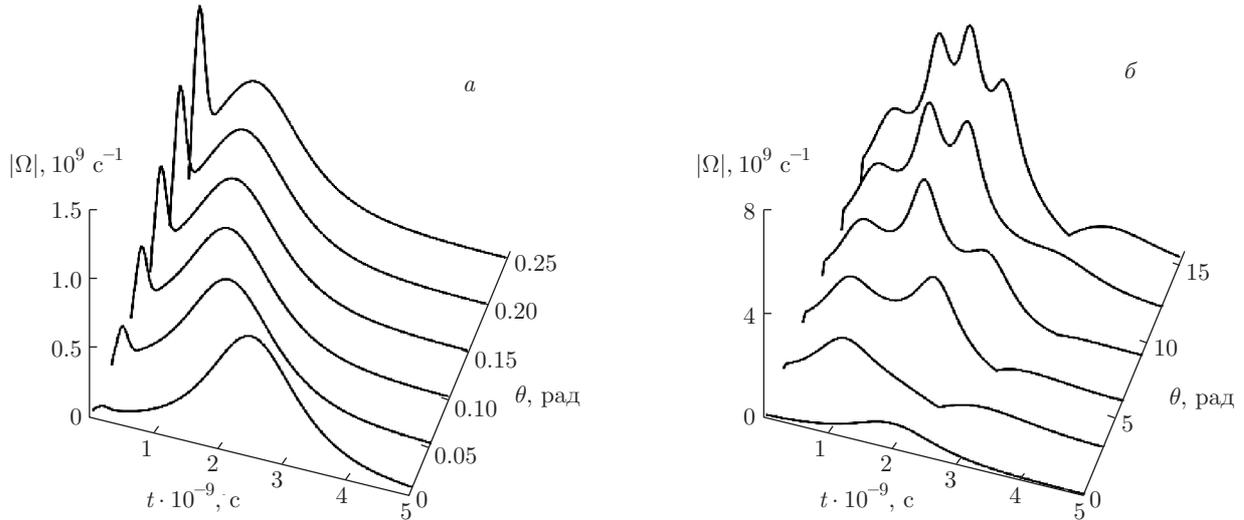


Рис. 5. Профили триггерного плазмонного импульса и формируемого следом основного импульса от времени при различных значениях площади θ триггерного импульса с коэффициентом задержки $n = 2$ в среде-носителе длиной $L = \lambda_a$ с квантовыми точками CdS с концентрацией $N = 10^{24} \text{ м}^{-3}$. Параметры моделирования соответствуют рис. 2; а также: *a* — длительность оптического триггерного импульса $T_0 = 80 \text{ пс}$, диапазон изменения его пиковых интенсивностей $I_0^{ex} \in (1; 1.5 \cdot 10^3) \text{ Вт/м}^2$; *б* — $T_0 = 800 \text{ пс}$, $I_0^{ex} \in (10; 5.5 \cdot 10^4) \text{ Вт/м}^2$

триггерного импульса. При этом амплитуда A_p^{ex} оптического триггерного импульса может быть пересчитана к параметрам (16) в соответствии с соотношением

$$\varepsilon_{ex} = A_p^{ex} \sqrt{\frac{\varepsilon_d \varepsilon_0 V (\partial S_n / \partial \bar{\omega})}{\hbar S_n}}$$

для идеального случая, когда 100% энергии оптического импульса переходит в поверхностную волну.

На рис. 5а представлены результаты моделирования системы (2)+(14) в виде набора временных зависимостей для частот Раби поля основных импульсов, формируемых под действием входных триггерных импульсов различных площадей по мере увеличения их пиковой интенсивности $I_0^{ex} = (A_{p0}^{ex})^2 C_0$, где $C_0 = c\varepsilon_0/2n_R$. Соответствующие зависимости для времен задержки формирования плазмонных импульсов также аппроксимируются выражением (17) при учете того, что пересчетные выражения между нормированным τ и реальным t временем аналогичны переходу от системы (7) к (8). При выбранном сочетании концентрации КТ, длительностей и мощностей триггерных импульсов профиль основного формируемого импульса на рис. 5а остается, практически, неизменным.

Качественные изменения режима будут наблюдаться, когда длительность триггерного импульса (16) становится близкой к характерной длительности t_W основного плазмонного импульса (переход-

ный режим), а его задержка nT_0 подобрана таким образом, чтобы частично или полностью перекрывать своей огибающей огибающую формируемого импульса. При таких условиях может возникать многопиковая структура интенсивности результирующего поля (см. рис. 5б и рис. 6) на выходе среды.

Схожий режим СИ хорошо известен в оптике и обусловлен неустойчивостями либо немонокотным характером распада возбужденного состояния протяженных сред [61]. Однако в рассматриваемом случае при выполнении условий $\Gamma_\varepsilon = 0$, $\Delta_\varepsilon = 0$ эффект обусловлен интерференцией когерентного сигнала от распада экситонов КТ и длительного триггерного импульса, благодаря чему в системе формируются осцилляции Раби (см. верхнюю вставку к рис. 6), выполненной без учета дисперсионных эффектов с u_R .

При учете в системе (2) ненулевых частотных отстроек Δ_ε происходит рассинхронизация во времени колебаний компоненты поляризации $\rho_{21}^{(I)}$ и разности населенности n_{21} , так что амплитуда возникающих в системе осцилляций модулируется убывающей функцией времени, пропорциональной обратной частоте отстройки Δ_ε (см. нижнюю вставку к рис. 6) в приближении $u_R = 0$.

Учет влияния диэлектрической среды-носителя, характеризующейся своим дисперсионным коэффициентом u_R , вновь приводит к сильной нелиней-

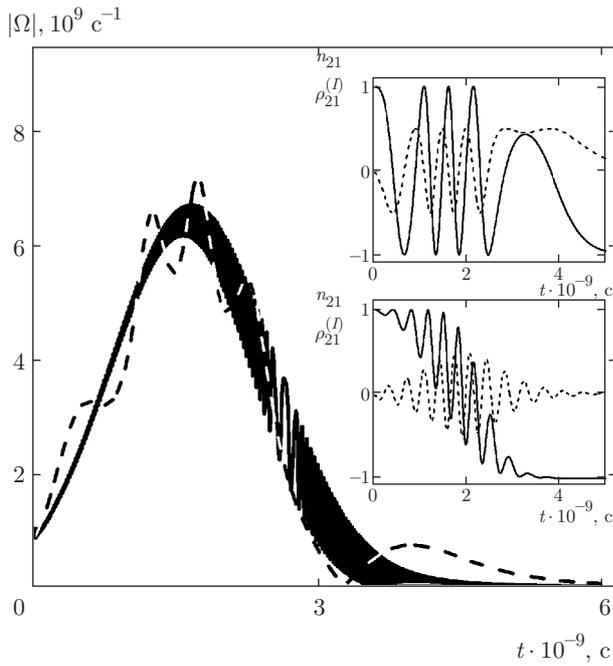


Рис. 6. Временной профиль плазмонного импульса для триггерного режима в волноводном спазере металл/диэлектрик с КТ CdS без учета (штриховые линии) и при учете $u_R = 0.3754$ (сплошные линии) дисперсионных поправок локального поля (при $u_I = 0$). Параметры соответствуют рис. 5 при условии воздействия триггерного импульса (16) с $I_0^{ex} = 5.5 \cdot 10^4$ Вт/м² (площадью $\theta = 15.2$ рад), $T_0 = 800$ пс и коэффициентом задержки $n = 2$ при условии $\Gamma_\epsilon = 0$ и $\Delta_\epsilon = 0$. На вставках: временные зависимости компоненты поляризации $\rho_{21}^{(I)}$ (пунктирная линия) и разности населенностей n_{21} (сплошная линия) в отсутствие частотного сдвига $\Delta_a = 0$ (вверху) и в его присутствии (внизу) при $\Delta_\epsilon = -1.48 \cdot 10^{10}$ с⁻¹ ($\Delta_a = 1.04 \cdot 10^{12}$ с⁻¹)

ной частотной модуляции формируемого импульса (аналогично рис. 4в,г). Однако в условиях его интерференции с триггерным импульсом (16) подходящей длительности (как для рис. 5б) огибающая результирующего сигнала приобретает сильную высокочастотную амплитудную модуляцию, отсутствующую при условии $u_R = 0$ на рис. 6. Технически, регистрация спектров и формы огибающих плазмонных импульсов может быть осуществлена обратным преобразованием поверхностных волн в оптический сигнал на металлической решетке [29]. Необходимо отметить, что заметное изменение диэлектрической проницаемости металла, происходящее за счет фотовозбуждения электронов, наблюдается при плотностях энергии порядка 0.5 мДж/см² [62]. Это позволяет реализовывать «чистые» плазмонные нелинейности [29] и осуществлять прямые

эксперименты типа сигнал-накачка с поверхностными плазмон-поляритонами. Однако при пересчете к размерным параметрам, плотности энергии высвечиваемых импульсов на рис. 5 не превышают значения $0.2 \cdot 10^{-4}$ мДж/см², поэтому условия для обозначенных нелинейных режимов в настоящей работе не достигаются.

Следует также отметить, что величина вклада диссипативных эффектов локального поля в задачу (2) может быть оценена коэффициентом

$$\delta_{loc}^{(I)} = \frac{\xi_0 u_I \rho_{21}^{(R)}}{\Omega_0^I} = \frac{2}{3} \frac{c u_I}{\omega_a I^{(R)}},$$

где

$$I^{(R)} = \int_0^L \exp(ik_a |L - x'|) dx'$$

и при условии $L \approx \lambda_a$ имеем $\delta_{loc}^{(I)} \approx 2u_I/3$. Аналогично может быть получена оценка для дисперсионного коэффициента

$$\delta_{loc}^{(R)} = \frac{\xi_0 u_R \rho_{21}^{(R)}}{\Omega_0^R} \approx \frac{2}{3} u_R,$$

определяющего относительный вклад эффектов локального поля в частотную модуляцию формируемого сигнала. Таким образом, вклад эффектов локального поля в кинематику представленной системы имеет зависимость только лишь от введенных коэффициентов u_I и u_R , определяемых исключительно материальными параметрами среды-носителя, но не ее геометрией.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе предложены новые способы эффективного формирования и внешнего управления короткими плазмонными импульсами на границе металла и содержащей КТ диэлектрической среды — распределенного (волноводного) спазера. Определены условия выбора параметров КТ и диэлектрической среды-носителя, при которых наблюдается максимальное проявление эффекта коллективного переноса энергии ансамбля КТ в плазмонные моды, превалирующего над излучательной релаксацией индивидуальных хромофоров. На примере модельной среды с нанокристаллами CdS изучены размерные и концентрационные зависимости эффекта, выявлены амплитудные и спектральные особенности формируемых плазмонных импульсов в системе. Представленная модель и изученные режимы могут быть

пригодны, в частности, для решения практической задачи увеличения характерных длин когерентности поля плазмонов.

Реализация предлагаемого подхода в эксперименте возможна с использованием диэлектрических пленок, допированных полупроводниковыми КТ, выбор диаметра которых определяется условием равенства энергий экситонного перехода и возбуждаемых на границе металл/диэлектрик плазмонов. Однако необходимо учитывать, что эффективность передачи энергии экситонов в плазмонную моду может быть, как и в случае люминесцирующих КТ [36], подвержена влиянию мерцания (блинкинга). Кроме того, физические характеристики КТ существенно не идеальны и сильно зависят от метода их синтеза, а также характеристик среды-носителя [63]. При этом, альтернативой для накачки интерфейса (рис. 1) может служить использование органических молекул [64].

С практической точки зрения, представленные модели могут быть полезны при разработке плазмонных интегральных схем квантовой обработки информации, однако, открытыми остаются важные вопросы прямого сопряжения подобных систем с чисто оптическими системами передачи информации. В частности, одной из таких проблем является повышение эффективности взаимно-обратной конвертации поля световой волны и формируемых в слоистых структурах плазмон-поляритонов [65]. Окончательные ответы на данные вопросы могут быть получены в ходе проведения соответствующих экспериментов, в том числе, с использованием техники эпи-люминесцентной спектроскопии одиночных квантовых излучателей [66–68].

Другой важный технический вопрос связан с реализацией настолько значительных концентраций КТ в матрице, которые для максимального значения используемой в настоящей работе концентрации ($N = 4 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$ на рис. 3б) составят 1.5% от концентрации $N_a^D = D_{QD}^{-3}$ наиплотнейшей упаковки КТ с диаметром $D_{QD} = 1.56 \text{ нм}$. Одним из решений может служить использование эффектов самоорганизации КТ различных размеров при их выпаривании из коллоидных растворов [69] на подложке. Однако перспективы применения таких структур в условиях рассмотренной задачи требуют отдельного изучения в связи со значительной дисперсией КТ по размеру.

В заключение необходимо отметить, что отдельного внимания также заслуживает задача получения более общего вида (с учетом нестационарных слагаемых типа нелинейной дисперсии и др.) нелинейного уравнения распространения

получаемых на практике сверхкоротких плазмон-поляритонных импульсов [20, 70]. Появление таких слагаемых может быть обусловлено как модификацией диэлектрической проницаемости металла мощными фемтосекундными импульсами внешней оптической накачки [29], так и учетом нелинейных эффектов для самих полупроводниковых КТ [71] и их содержащей диэлектрической среды-носителя [72]. Такое уравнение может служить отправной точкой для поиска и определения условий устойчивости [73] его солитонных решений и реализации новых схем активной наноплазмоники [74] с диссипативными плазмонными солитонами.

Один из соавторов (А. В. П.) благодарен А. Б. Евлюхину за полезные обсуждения. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 14-02-97511, 14-29-07270 офи_м), Министерства образования и науки РФ (задание ВлГУ № 2014/13).

ЛИТЕРАТУРА

1. N. Skribanowitz, I. P. Hermann, M. S. MacGillivray et al., *Phys. Rev. Lett.* **30**, 309 (1973).
2. А. В. Андреев, В. И. Емельянов, Ю. А. Ильинский, *УФН* **131**, 653 (1980).
3. R. Florian, L. O. Schwan, and D. Schmid, *Sol. St. Comm.* **42**, 55 (1982).
4. П. В. Зиновьев, С. В. Лопина, Ю. В. Набойкина и др., *ЖЭТФ* **85**, 1945 (1983).
5. M. I. Stockman, *J. Opt.* **12**, 024004 (2010).
6. А. П. Виноградов, Е. С. Андрианов, А. А. Пухов и др., *УФН* **182**, 1122 (2012).
7. S. Lambright, E. Butaeva, N. Razgoniaeva et al., *AscNano* **8**, 352 (2014).
8. И. Е. Проценко, А. В. Усков, *КЭ* **45**, 561 (2015).
9. S. V. Fedorov, N. N. Rosanov, A. V. Chipouline et al., *J. Opt. Soc. Amer. B* **32**, 824 (2015).
10. A. V. Dorofeenko, A. A. Zyablovsky, A. P. Vinogradov et al., *Opt. Expr.* **21**, 14539 (2012).
11. Frerik van Beijnum, Peter J. van Veldhoven, and Erik Jan Geluk, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 206802 (2013).
12. K. Braun, X. Wang, A. M. Kern et al., *Beilstein J. Nanotechnol.* **6**, 1100 (2015).

13. A. Lisiansky, I. Nechepurenko, A. Dorofeenko et al., *Phys. Rev. B* **84**, 153409 (2011).
14. D. Martín-Cano, L. Martín-Moreno, F. J. García-Vidal et al., *Nano Lett.* **10**, 3129 (2010).
15. S. J. Kress, F. V. Antolinez, P. Richner et al., *Nano Lett.* **15**(9), 6267 (2015).
16. C. Reinhardt, A. B. Evlyukhin, W. Cheng et al., *J. Opt. Soc. Amer. B* **30**, 2898 (2013).
17. V. N. Konopsky and E. V. Alieva, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 253904 (2006).
18. J. J. Choquette, Karl-Peter Marzlin, and B. C. Sanders, *Phys. Rev. A* **82**, 023827 (2010).
19. А. А. Заболотский, *ЖЭТФ* **139**, 738 (2011).
20. А. А. Заболотский, *ЖЭТФ* **141**, 803 (2012).
21. M. I. Stockman, *Phil. Trans. R. Soc. A* **369**, 3510 (2011).
22. I. A. Larkin, M. I. Stockman, M. Achermann et al., *Phys. Rev. B* **69**, 121403 (2004).
23. A. S. Kuraptsev and I. M. Sokolov, *Phys. Rev. A* **90**, 012511 (2014).
24. И. М. Соколов, Д. В. Куприянов, М. Д. Хэви, *ЖЭТФ* **139**, 288 (2011).
25. А. В. Голованова, М. Ю. Губин, М. Г. Гладуш, А. В. Прохоров, *Изв. РАН, Сер. физ.*, **80**, 885 (2016).
26. F. A. Hopf, C. M. Bowden, and W. H. Louisell, *Phys. Rev. A* **29**, 2591 (1984).
27. Д. В. Кузнецов, М. Г. Гладуш, Вл. К. Рерих, *ЖЭТФ* **140**, 742 (2011).
28. T. A. Anikushina, M. G. Gladush, A. A. Gorshlev et al., *Faraday Discussions* **184**, 263 (2015).
29. K. F. MacDonald, Z. L. Sarmson, M. I. Stockman et al., *Nature Photonics* **3**, 55 (2009).
30. M. I. Stockman, S. V. Faleev, and D. J. Bergman, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 167401 (2001).
31. A. Muller, Q. Q. Wang, P. Bianucci et al., *Appl. Phys. Lett.* **84**, 981 (2004).
32. С. И. Покутний, *ФТП* **40**, 223 (2006).
33. М. Ю. Губин, А. Ю. Лексин, М. Г. Гладуш и др., *Опт. и спектр.* **119**, 489 (2015).
34. Jae Ik Kim, Jongmin Kim, Junhee Lee et al., *Nano-scale Research Lett.* **7**, 482 (2012).
35. S. Sadhu and A. Patra, *Chem. Phys. Chem.* **9**, 2052 (2008).
36. A. L. Shchukina, I. Y. Eremchev, and A. V. Naumov, *Phys. Rev. E* **92**, 032102 (2015).
37. M. G. Benedict and E. D. Trifonov, *Phys. Rev. A* **38**, 2854 (1988).
38. M. G. Benedict, A. M. Ermolaev, V. A. Malyshev et al., *Superradiance. Multiatomic Coherent Emission*, IOP Publishing, Philadelphia, USA (1996).
39. А. И. Зайцев, В. А. Малышев, И. В. Рыжов и др., *ЖЭТФ* **115**, 505 (1999).
40. S. Baskoutas and A. F. Terzis, *J. Appl. Phys.* **99**, 013708 (2006).
41. N. Bel Haj Mohamed, M. Haouari, Z. Zaaboub et al., *J. Nanopart. Res.* **16**, 2242 (2014).
42. А. Г. Милехин, Л. Л. Свешникова, С. М. Репинский и др., *ФТП* **44**, 1884 (2002).
43. S. I. Carrillo Guerrero, Doctoral thesis in Micro et Nanotechnologies, Acoustique et Télécommunications, Lille, France (2013).
44. Н. С. Кожевникова, А. С. Ворох, А. А. Урицкая, *Усп. химии* **84**, 225 (2015).
45. R. Kitamura, L. Pilon, and M. Jonasz, *Appl. Opt.* **46**, 8118 (2007).
46. M. R. Shcherbakov, D. N. Neshev, B. Hopkins et al., *Nano Lett.* **14**, 6488 (2014).
47. H. N. S. Krishnamoorthy, Z. Jacob, E. Narimanov et al., *Science* **336**, 205 (2012).
48. K. R. McEnery, M. S. Tame, S. A. Maier et al., *Phys. Rev. A* **89**, 013822 (2014).
49. M. Yu. Gubin, A. V. Pishenko, S. M. Arakelian et al., *Phys. Proc.* **73**, 7 (2015).
50. А. А. Павлов, В. В. Климов, Ю. В. Владимирова и др., *КЭ* **43**, 496 (2013).
51. V. V. Klimov, D. V. Guzatov, and I. V. Treshin, *Phys. Rev. A* **91**, 023834 (2015).
52. С. А. Ахманов, В. А. Выслоух, А. С. Чиркин, *Оптика фемтосекундных лазерных импульсов*, Наука, Москва (1988).
53. Е. С. Андрианов, А. А. Пухов, А. В. Дорофеев и др., *ЖЭТФ* **114**, 243 (2013).
54. Xiao Tao Geng, Byung Jae Chun, Ji Hoon Seo et al., *Nature Commun.* **7**, 10685 (2016).

55. J. S. Levy, A. Gondarenko, M. A. Foster et al., *Nature Photonics* **4**, 37 (2010).
56. Q. H. F. Vreken and M. F. H. Schuurmans, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 224 (1979).
57. P. V. Zinoviev, V. A. Zuikov, A. A. Kalachev et al., *Laser Phys.* **11**, 1307 (2001).
58. S. N. Andrianov and V. V. Samartsev, *Laser Phys.* **8**, 1194 (1998).
59. A. Sobhani, M. W. Knight, Yu. Wang et al., *Nat. Commun.* **4**, 1643 (2013).
60. А. А. Калинин, А. А. Калачев, В. В. Самарцев, *Теоретическая физика* **3**, 87 (2002).
61. А. М. Башаров, Г. Г. Григорян, Н. В. Знаменский и др., *ЖЭТФ* **129**, 239 (2006).
62. M. Pohl, V. I. Belotelov, I. A. Akimov et al., *Phys. Rev. B* **85**, 081401 (2012).
63. K. A. Magaryan, M. A. Mikhailov, K. R. Karimullin et al., *J. Lumines. B* **169**, 799 (2016).
64. А. В. Наумов, *УФН* **183**, 633 (2013).
65. E. Bermudez-Urena, C. Gonzalez-Ballester, M. Geiselmann et al., *Nature Comm.* **6**, 7883 (2015).
66. A. V. Naumov, A. A. Gorshchev, Y. G. Vainer et al., *Angewandte Chemie* **48**, 9747 (2009).
67. A. V. Naumov, A. A. Gorshchev, Y. G. Vainer et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**, 1734 (2011).
68. A. V. Naumov, I. Y. Eremchev, and A. A. Gorshchev, *EPJD* **68**, 348 (2014).
69. В. Е. Адрианов, В. Г. Маслов, А. В. Баранов и др., *Опт. ж.* **78**, 11 (2011).
70. C. Lemke, C. Schneider, T. Leibner et al., *Nano Lett.* **13**, 1053 (2013).
71. Е. Ю. Перлин, А. В. Федоров, *Опт. и спектр.* **78**, 445 (1995).
72. Ying Xue, Fangwei Ye, Dumitru Mihalache et al., *Laser Photonics Rev.* **8**, 52 (2014).
73. А. В. Прохоров, М. Ю. Губин, А. Ю. Лексин и др., *ЖЭТФ* **142**, 5 (2012).
74. N. E. Khokhlov, D. O. Ignatyeva, and V. I. Belotelov, *Optics Express* **22**, 28019 (2014).