

Модель нелинейного пропускания света диэлектрическими нанокompозитами

© В.П. Дзюба[¶], А.Е. Краснок, Ю.Н. Кульчин, И.В. Дзюба

Институт автоматки и процессов управления Дальневосточного отделения Российской академии наук, 690041 Владивосток, Россия

(Получена 25 мая 2010 г. Принята к печати 25 августа 2010 г.)

Предложена теоретическая модель коэффициента пропускания лазерного излучения диэлектрическими нанокompозитами с малой концентрацией наночастиц. Показано, что основными механизмами низкороговых эффектов нелинейного поглощения и рассеяния лазерного излучения являются, во-первых, индуцирование дипольного электрического момента наночастицы во внешнем поле, а во-вторых, ориентация наночастиц вдоль направления поляризации этого поля. Рассмотрено поведение коэффициента пропускания вблизи центральной частоты отдельной полосы поглощения, а также зависимость глубины этой полосы от интенсивности внешнего поля.

1. Введение

Постепенно гетерогенные нанофазные композиты на основе наночастиц полупроводниковых и диэлектрических материалов завоевывают внимание исследователей благодаря тому, что они обнаруживают особые оптические свойства как при воздействии наносекундных импульсов, так и в непрерывном излучении видимого или ближнего инфракрасного диапазонов. В частности, экспериментально обнаружены эффекты низкорогового ($I_{\text{thr}} \approx 0.5 \text{ нДж/см}^2$) нелинейно-оптического отклика, проявляющегося в саморефракции [1–5], а также в резком увеличении поглощения [1,6,7] маломощного лазерного излучения, проходящего через нанокompозиты, содержащие малые концентрации наночастиц из широкозонных полупроводников и диэлектриков, внедренных в диэлектрическую матрицу. Можно надеяться на то, что эти эффекты в скором времени найдут свое применение в различных оптических и оптоэлектронных устройствах, в частности в устройствах сбора и обработки оптической информации, в низкороговых системах управления потоком оптического излучения, например, в ограничителях, переключателях и модуляторах с низким порогом срабатывания, а также во всех других оптических системах и устройствах, где требуется, и принципы работы которых основаны на маломощном манипулировании характеристиками светонесущей среды.

Однако теоретическое описание физических и, в частности, оптических свойств гетерогенных нанокompозитов с диэлектрическими наночастицами сопряжено с большими трудностями, поскольку корректный расчет физических свойств отдельной наночастицы как системы, состоящей из огромного количества составляющих ее частиц, подчиняющихся законам квантовой механики, не представляется возможным. Попытки применения известных методов физики твердого тела к описанию свойств наночастицы сталкиваются со значительными затруднениями ввиду невозможности пренебречь эффектами, которые обусловлены наличием развитой поверхности и ее дефектами, а также дефектами кристаллической решетки. Известно, что оптические свойства

квантово-механической системы связаны с особенностями спектра энергетических состояний носителей заряда: электронов и дырок. В настоящее время нет сомнений в том, что отличия оптических и электрофизических свойств наночастиц от свойств объемных образцов в значительной степени связаны с изменениями их энергетического спектра [8–11]. Как минимум эти изменения обусловлены, во-первых, образованием в запрещенной зоне областей разрешенных энергий носителей заряда, структура которых связана с большой плотностью поверхностных дефектов кристаллической структуры и со сложной формой наночастиц [12]. Во-вторых, обусловлены эффектом размерного квантования, приводящего к изменению энергетического спектра экситонов и возникновению дискретного спектра энергии в зоне проводимости свободных носителей заряда, обусловленных пространственным ограничением локализации их волновых функций [10–15]. В-третьих, электрические дипольные моменты переходов в таких квазиуль-мерных объектах могут принимать большие значения, превосходящие величины, типичные для объемных образцов [16].

Образование указанных выше состояний носит пороговый характер в зависимости от размера наночастицы. В частности, для сферической частицы с диэлектрической проницаемостью ε_2 , находящейся в среде с диэлектрической проницаемостью ε_1 , такие состояния возможны, если ее радиус a меньше некоторого критического значения a_c ,

$$a \leq a_c = 6|\beta|^{-1}a_{e,h},$$

где

$$\beta = \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2},$$

$a_{e,h}$ — боровский радиус носителей заряда в среде наночастицы [17–20].

Определенные свойства структуры спектра квантовых состояний наночастицы можно выяснить методом изучения спектров пропускания нанокompозитом электромагнитного излучения. Сравнивая спектры пропускания нанокompозитов, составленных из наночастиц, имеющих разный характеристический размер, можно

[¶] E-mail: vdzyuba@iacp.dvo.ru

выявить общие черты зависимости квантово-размерных, экситонных и других состояний от размера наночастицы. Как правило, экспериментально исследуются спектры пропускания массивов наночастиц, внедренных в объем твердой матрицы или осажденных на поверхность прозрачного материала [1,10,21–23]. При этом на электронную структуру наночастицы сильное влияние оказывает вещество матрицы, а в случае наночастиц, находящихся на поверхности, также и их взаимодействие между собой. Все это не позволяет рассматривать полученные спектры пропускания и поглощения как спектры массива не взаимодействующих между собой наночастиц. Наиболее удовлетворяющие этим требованиям нанокompозиты содержат малые концентрации наночастиц, введенные в жидкую, по возможности, наименее вязкую матрицу. Однако, исследуя оптические свойства таких композитов, нельзя не учитывать эффекты, связанные с влиянием оптического поля на распределение частиц по их степеням свободы. При этом в случае достаточно слабых интенсивностей излучения влиянием поля на координаты центра тяжести наночастицы можно пренебречь, что нельзя сказать о распределении по вращательным степеням свободы. В настоящее время неизвестна теоретическая модель коэффициента пропускания света диэлектрическим вязким нанокompозитом, которая бы учитывала не только характерные размеры наночастиц, но и ориентацию наночастиц во внешнем поле лазерного излучения, а также зависимости сечений рассеяния и поглощения от интенсивности проходящего излучения. Все это требует построения теоретической модели сечений рассеяния и поглощения света диэлектрическими нанокompозитами с учетом перечисленных выше особенностей.

В данной работе предложена полуфеноменологическая модель коэффициента пропускания света массивом не взаимодействующих между собой диэлектрических наночастиц малых размеров ($a < a_c$), помещенных в диэлектрическую матрицу. Показано, что основными механизмами низкочастотного эффекта нелинейного рассеяния и поглощения лазерного излучения являются, во-первых, индуцирование дипольного электрического момента наночастицы во внешнем поле, а во-вторых, ориентация наночастиц вдоль направления поляризации этого поля. Рассмотрено поведение коэффициента пропускания вблизи центральной частоты отдельной полосы поглощения, а также зависимость глубины этой полосы от интенсивности внешнего поля.

2. Модель

Рассмотрим нанокompозит, состоящий из диэлектрических наночастиц, внедренных в изотропную жидкую прозрачную диэлектрическую матрицу с линейными оптическими свойствами и малым коэффициентом вязкости. С ростом вязкости этот нанокompозит будет приближаться к твердым, а с ее уменьшением — к газу наночастиц. Пусть число наночастиц N в единице объема

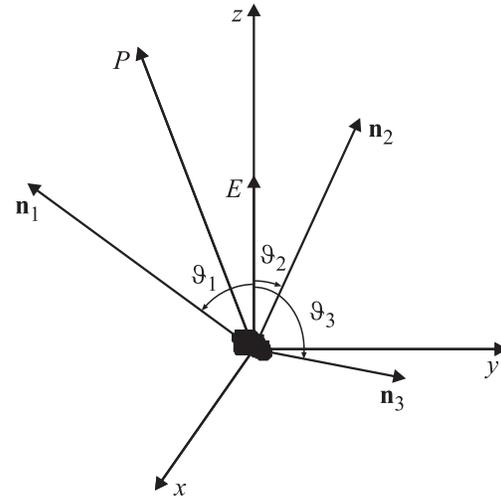


Рис. 1. Система координат.

мало, чтобы можно было пренебречь многократным рассеянием излучения на частицах и их взаимодействием между собой. Введем две системы координат (рис. 1) с общим началом: систему координат главных осей тензора поляризации произвольной наночастицы $\{\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3\}$ с ортами $(\mathbf{n}_1, \mathbf{n}_2, \mathbf{n}_3)$ и лабораторную декартовую систему координат $\{x, y, z\}$ с ортами $(\mathbf{n}_x, \mathbf{n}_y, \mathbf{n}_z)$. На этот композит падает плоско поляризованная вдоль направления оси z электромагнитная волна $\mathbf{E} = \{0, 0, E\}$. Волновой вектор такой волны будет лежать в плоскости (x, y) . Выберем ось x коллинеарно направлению волнового вектора. Коэффициент пропускания света диэлектрическим нанокompозитом зависит от коэффициента экстинкции, от пути, пройденного излучением в веществе, а также коэффициента отражения света от границы нанокompозита. В случае нормального падения светового луча на границу плоского слоя нанокompозита, расположенного перпендикулярно оси x , выражение для коэффициента пропускания можно записать в виде [24]

$$T(\omega, N) = \frac{(1 - R^2)^2 \exp(-\beta L)}{1 - R^2 \exp(-2\beta L)}, \quad (1)$$

где β — коэффициент экстинкции, R — коэффициент отражения света от границы слоя, который, как правило, в эксперименте значительно меньше единицы, L — расстояние, проходимое светом в нанокompозите.

Коэффициент экстинкции в приближении одиночного рассеяния можно выразить через сечения рассеяния $\sigma^s(\omega, a)$ и поглощения $\sigma^a(\omega, a)$ единицы объема нанокompозита в виде

$$\beta(\omega, a) = [\sigma^a(\omega, a) + \sigma^s(\omega, a)] + \alpha^m(\omega),$$

где $\alpha^m(\omega)$ — коэффициент ослабления излучения веществом матрицы, a — характерный размер наночастицы. При такой ориентации нанокompозита сечения рассеяния $\sigma^s(\omega, a)$ и поглощения $\sigma^a(\omega, a)$ в лабораторной

системе координат можно выразить через компоненту поляризуемости единицы объема композита $\chi_{zz}(\omega, a)$ с помощью выражений [24,25]

$$\sigma^a(\omega, a) = \frac{4\pi\omega}{c} \text{Im} \chi_{zz}(\omega, a),$$

$$d\sigma^s(\omega, a) = \frac{\omega^4}{c^4} |\chi_{zz}(\omega, a)|^2 \sin^2 \theta d\Omega, \quad (2)$$

где θ — угол между векторами направления рассеяния и напряженности электрической электромагнитной волны, а c — скорость света в вакууме.

Введем эффективный тензор поляризации наночастицы в матрице $\alpha = \{\alpha_{ij}\}$ такой, что компоненты электрического дипольного момента P наночастицы, индуцированного внешним линейно поляризованным монохроматическим электромагнитным полем частотой ω и вектором напряженности электрического поля \mathbf{E} , определялись непосредственно через внешнее, а не локальное поле $P_i = \alpha_{ij}E_j$. В системе координат $\{\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3\}$ вектор поляризации данной наночастицы равен

$$\mathbf{P} = \sum_j^3 \alpha_{jj}(\mathbf{n}_j \mathbf{E}) \mathbf{n}_j.$$

Если вектор \mathbf{E} направлен вдоль оси z , то проекция вектора поляризации на эту ось равна

$$P_z = \sum_j^3 \alpha_{jj} E (\mathbf{n}_j \mathbf{n}_z)^2 \sum_j^3 \alpha_{jj} E \cos^2 \theta_j, \quad (3)$$

где $\theta_1, \theta_2, \theta_3$ — углы между \mathbf{E} и осями $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$, определяющие ориентацию наночастицы во внешнем электромагнитном поле в лабораторной системе координат. В силу хаотической ориентации наночастиц тензор поляризуемости $\chi = \{\chi_{ij}\}$ такой среды будем считать диагональным и вектор поляризации ее единицы объема в лабораторной системе координат равным $P_z = \chi_{zz}E$. Сравнивая это выражение с (3), находим

$$\chi_{zz} = N(\alpha_{11} \cos^2 \theta_1 + \alpha_{22} \cos^2 \theta_2 + \alpha_{33} \cos^2 \theta_3).$$

После несложных преобразований и учета равенства $\cos^2 \theta_1 + \cos^2 \theta_2 + \cos^2 \theta_3 = 1$ можно выписать выражение, связывающее компоненту тензора поляризуемости единицы объема нанокompозита в лабораторной системе координат χ_{zz} с диагональными компонентами тензора поляризуемости наночастицы в системе главных осей, следующим образом:

$$\chi_{zz} = N(\alpha_0 + \Delta\alpha_1 Q_1 + \Delta\alpha_2 Q_2), \quad (4)$$

в котором введены обозначения

$$\alpha_0 = \frac{\alpha_{11} + \alpha_{22} + \alpha_{33}}{3},$$

$$\Delta\alpha_1 = \alpha_{11} - \alpha_{33},$$

$$\Delta\alpha_2 = \alpha_{22} - \alpha_{33}.$$

Усредненные по всевозможным ориентациям величины

$$Q_1 = \left\langle \cos^2 \theta_1 - \frac{1}{3} \right\rangle$$

и

$$Q_2 = \left\langle \cos^2 \theta_2 - \frac{1}{3} \right\rangle$$

по сути являются параметрами ориентационного порядка ансамбля наночастиц во внешнем поле. Функция распределения наночастиц по углам, а следовательно, и параметры порядка Q_1 и Q_2 зависят от интенсивности поля лазерного излучения I , а через компоненты α_{ij} также и от частоты излучения. Зависимость величин Q_1 и Q_2 от интенсивности при $I > I_p$ независимо от материала матрицы имеет насыщение.

Эффект низкого порога нелинейно-оптического отклика имеет место, если в спектре пропускания наночастиц присутствуют широкие полосы поглощения света, отсутствующие в объемном образце [1–4]. В этой области частот компоненты тензора поляризуемости наночастицы α_{ij} должны достигать максимальных значений, соответствующих дипольным переходам носителей зарядов наночастицы из состояния $|n\rangle$ в состояние $|g\rangle$. Как известно, в этой области частот диагональные компоненты тензора α_{ij} в системе координат главных осей можно представить в виде [26]

$$\alpha_{jj}(\omega) = \sum_{n,g} \frac{| \langle n | e r_j | g \rangle |^2}{\hbar(\omega - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng})} \Delta\rho_{ng}, \quad (5)$$

где суммирование производится по всем разрешенным оптическим переходам носителей заряда наночастицы с частотой перехода ω_{ng} из состояний $|n\rangle$ в состояния $|g\rangle$ с компонентой дипольного электрического момента перехода $p_{ng}^j = \langle n | e r_j | g \rangle$ и шириной линии перехода Γ_{ng} . Используя выражения (4) и (5), а также вводя обозначение $\Delta\omega_{ng} = \omega - \omega_{ng}$, выпишем выражение для единственной отличной от нуля компоненты тензора поляризуемости нанокompозита в лабораторной системе координат отдельной наночастицы в виде

$$\chi(\omega, Q_1, Q_2) = N \sum_{n,g} \left[\frac{A_{ng} \Delta\omega_{ng}}{\hbar(\Delta\omega_{ng}^2 + \Gamma_{ng}^2)} - i \frac{A_{ng} \Gamma_{ng}}{\hbar(\Delta\omega_{ng}^2 + \Gamma_{ng}^2)} \right] \Delta\rho_{ng}. \quad (6)$$

В этом выражении введено обозначение

$$A_{ng}(Q_1, Q_2) = \frac{1}{3} |p_{ng}|^2 + Q_1 (|p_1^{ng}|^2 - |p_2^{ng}|^2) + Q_2 (|p_3^{ng}|^2 - |p_2^{ng}|^2). \quad (7)$$

Данная величина при заданных значениях интенсивности и частоты оптического излучения, а также параметров матрицы композита пропорциональна квадрату модуля величины дипольного момента перехода из состояния $|n\rangle$

в состояние $|g\rangle$. Индуцированная излучением разность населенностей $\Delta\rho_{ng}$ между состояниями $|n\rangle$ и $|g\rangle$ является функцией интенсивности падающего излучения и в приближении двухуровневой системы [26] равна

$$\Delta\rho_{ng}(I) = \left(1 - \frac{I/I_s}{\Delta\omega_{ng}^2 + \Gamma_{ng}^2(1 + I/I_s)}\right) \Gamma_{ng}^0 \Delta\rho_{ng}^0, \quad (8)$$

где $\Delta\rho_{ng}^0$ — равновесная тепловая разность населенности, а I_s — интенсивность насыщения, при которой из состояний $|n\rangle$ в состояние $|g\rangle$ накачивается $\Delta\rho_0/2$ носителей заряда. Выделяя действительную и мнимую части компоненты тензора поляризуемости (6), с учетом выражения (8), а также вводя обозначения

$$P = \int \sin^2 \theta d\Omega$$

и

$$B_{ng}(\omega, I) = \frac{I/I_s}{\Delta\omega_{ng}^2 + \Gamma_{ng}^2(1 + I/I_s)} \Gamma_{ng}^2,$$

выпишем интегральные сечения рассеяния и поглощения единицы объема нанокompозита в приближении одиночного рассеяния в виде

$$\sigma_a(\omega, a, I) = \frac{4\pi\omega N}{c\hbar} \sum_{n,g} \frac{A_{ng}\Gamma_{ng}\Delta\rho_{ng}^0}{(\Delta\omega_{ng}^2 + \Gamma_{ng}^2)} (1 - B_{ng}), \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \sigma_s(\omega, a, I) &= \frac{\omega^4 P N^2}{c^4 \hbar^2} \\ &\times \sum_{n,g} \sum_{k,l} A_{ng} A_{kl} \frac{(\Delta\omega_{ng}\Delta\omega_{kl} + \Gamma_{ng}\Gamma_{kl})\Delta\rho_{ng}^0 \Delta\rho_{kl}^0}{(\Delta\omega_{ng}^2 + \Gamma_{ng}^2)(\Delta\omega_{kl}^2 + \Gamma_{kl}^2)} \\ &\times (1 - B_{ng})(1 - B_{kl}). \end{aligned} \quad (10)$$

Зависимость сечений от размеров наночастиц можно найти, зная связь величин A_{ng} с размером наночастицы. В случае, когда $a < a_c$, величина дипольного момента наночастицы пропорциональна ее размеру, поэтому согласно выражению (7), в величине A_{ng} можно выделить ее зависимость от размера $A_{ng} = S_{ng}(I)a^2$, где величина $S_{ng}(I)$ является функцией интенсивности излучения и зависит от формы наночастицы. Оценим отношение сечений рассеяния и поглощения. Считаем, что переходы происходят только с одного уровня с индексом n . Предположим, что ширина возбужденного g -го уровня Γ_g слабо зависит от g , учитывая, что по порядку величины частоты ω и ω_g близки и тепловая разность населенности $\Delta\rho_{ng}^0 \approx 1$, из выражений (9) и (10) получим оценку

$$\frac{\sigma_s(\omega, a)}{\sigma_a(\omega, a)} \approx \frac{NP\omega^3 a^2}{4\pi c^3 \hbar \Gamma} \sum_{n,g} S_{ng}(I) [1 - B_{ng}(I)].$$

Для наночастиц размерами $a = 10 - 100$ нм в области частот $\omega = 10^{13} - 10^{16}$ Гц при $\Gamma = 10^9$ Гц в любом диапазоне интенсивностей величина отношения сечений не превышает $N \cdot 10^{-9}$. Положим, что $N \cdot 10^{-9} < 1$, тогда в выражении для коэффициента ослабления излучения сечение рассеяния можно опустить.

При малых значениях интенсивности излучения ($I/I_s \ll 1$) можно положить $S_{ng}(I) \approx c_{ng}I$, и из (9) получаем

$$\sigma_a(\omega, a, I) \approx \frac{4\pi\omega N}{c\hbar} a^2 I \sum_{n,g} c_{ng} \frac{\Gamma_{ng}}{(\Delta\omega_{ng}^2 + \Gamma_{ng}^2)^2} \Delta\rho_{ng}^0.$$

При дальнейшем увеличении интенсивности, как следует из (9), сечение поглощения достигает максимального значения при некоторой интенсивности $I \approx I_p$, что соответствует полной ориентации наночастиц вдоль вектора электрической напряженности оптического поля и максимальному значению $A_{ng}(I)$. Это приводит к резкому увеличению поглощения оптического излучения единицей объема нанокompозита. Дальнейший рост интенсивности приводит к заметному увеличению $B_{ng}(\omega, I)$ при постоянном значении $A_{ng}(I)$ и, как следствие, к уменьшению сечения поглощения. При интенсивностях, определяемых условием $I \gg I_s$, величина $B_{ng}(\omega, I)$ приблизительно равна 1, что приводит к просветлению нанокompозита. Сечение поглощения в этом случае запишется в виде

$$\sigma_a(\omega, a, I) \approx \frac{4\pi\omega N}{c\hbar} a^2 \sum_{n,g} S_{ng} \frac{I_s}{\Gamma_{ng} I} \Delta\rho_{ng}^0,$$

т. е. обратно пропорционально интенсивности излучения.

Для электронной структуры диэлектрических наночастиц характерны широкие полосы поглощения света, отсутствующие в объемном образце, наличие подзоны разрешенных энергий электронов (экситонные, примесные и т.д.) шириной $\Delta\omega_1$, лежащей в запрещенной зоне и прилегающей ко дну зоны проводимости, и уширенных квантово-размерных уровней (мини-зон) в зоне проводимости шириной $\Delta\omega_2$ [5]. Учет особенностей зонной структуры наночастицы можно произвести, заменив суммирование по состояниям $|g\rangle$ интегрированием вокруг центральной частоты полосы поглощения ω_n в пределах от $(\omega_n - \Delta\omega_1)$ до $(\omega_n + \Delta\omega_2)$, с плотностью состояний, равной G_1 и G_2 соответственно. Для примера выберем какую-либо одну полосу поглощения. Переходя в (9) от суммирования к интегрированию по частоте, а также вводя обозначения

$$\Delta\omega_n = \omega - \omega_n, \quad F(I) = \sqrt{\frac{I_s}{I + I_s}},$$

получим выражение для сечения в районе полосы поглощения

$$\begin{aligned} \sigma_a &= \frac{4\pi\omega N a^2}{c\hbar} F(I) \\ &\times \left[G_1 S_1 \arctg\left(\frac{\Delta\omega_1 \Gamma_n F(I)}{\Gamma_n^2 + F^2(I) \Delta\omega_n (\Delta\omega_n + \Delta\omega_1)}\right) \right. \\ &\left. + G_2 S_2 \arctg\left(\frac{\Delta\omega_2 \Gamma_n F(I)}{\Gamma_n^2 + F^2(I) \Delta\omega_n (\Delta\omega_n - \Delta\omega_2)}\right) \right]. \end{aligned} \quad (11)$$

В этом выражении величины S_1 и S_2 определяются как средние значения форм-факторов наночастицы $S_{ng}(I)$

для переходов соответственно в верхнюю и нижнюю зону.

Из выражения (1) с учетом (11) получим выражение для коэффициента пропускания оптического излучения диэлектрическим нанокомпозитом в районе некоторой полосы поглощения с центральной частотой ω_n

$$T(\omega, N, I) \approx \exp\left(-L \frac{4\pi\omega N}{c\hbar} DF(I)\right), \quad (12)$$

где введено обозначение

$$D = a^2(G_1S_1) \operatorname{arctg}\left(\frac{\Delta\omega_1\Gamma_n F(I)}{\Gamma_n^2 + F^2(I)\Delta\omega_n(\Delta\omega_n + \Delta\omega_1)}\right) + a^2(G_2S_2) \operatorname{arctg}\left(\frac{\Delta\omega_2\Gamma_n F(I)}{\Gamma_n^2 + F^2(I)\Delta\omega_n(\Delta\omega_n - \Delta\omega_2)}\right). \quad (13)$$

3. Анализ и обсуждение результатов

Из выражения (12) следует, что величина коэффициента пропускания света диэлектрическим нанокомпозитом существенно зависит от интенсивности поля лазерного излучения I (рис. 2, *a*). В частности, у этой зависимости есть точка минимума (I_p), в которой коэффициент пропускания при прочих заданных параметрах композита и излучения наименьший. При смещении в большую и меньшую сторону от значения I_p по шкале интенсивностей появляется эффект ограничения мало-мощного излучения. На рис. 2, *b* приведено несколько модельных, выявляющих основные особенности, зависимостей коэффициента пропускания от частоты излучения, при этом $I_1 < I_2 < I_3$. Профиль спектра пропускания в общем случае является несимметричным относительно центральной частоты из-за различия в значениях $\Delta\omega_1$ и $\Delta\omega_2$.

Наибольший дипольный момент, возбуждаемый в районе полосы поглощения, индуцируется на центральной частоте ω_n . Выражение для D , справедливое для центральной частоты полосы поглощения ($\omega = \omega_n, \Delta\omega_n = 0$), имеет вид

$$D = a^2(GS) \left[\operatorname{arctg}\left(\frac{\Delta\omega_1 F(I)}{\Gamma_n}\right) + \operatorname{arctg}\left(\frac{\Delta\omega_2 F(I)}{\Gamma_n}\right) \right]. \quad (14)$$

Коэффициент пропускания нанокомпозита в районе центральной частоты с учетом выражения (14) запишем в виде

$$T(I) = \exp\left(-L \frac{4\pi\omega_n N}{c\hbar} a^2(GS) \left[\operatorname{arctg}\left(\frac{\Delta\omega_1 F(I)}{\Gamma_n}\right) + \operatorname{arctg}\left(\frac{\Delta\omega_2 F(I)}{\Gamma_n}\right) \right] F(I)\right). \quad (15)$$

Как видно из выражения (15), глубина полосы поглощения будет сильно зависеть от величины интенсивности

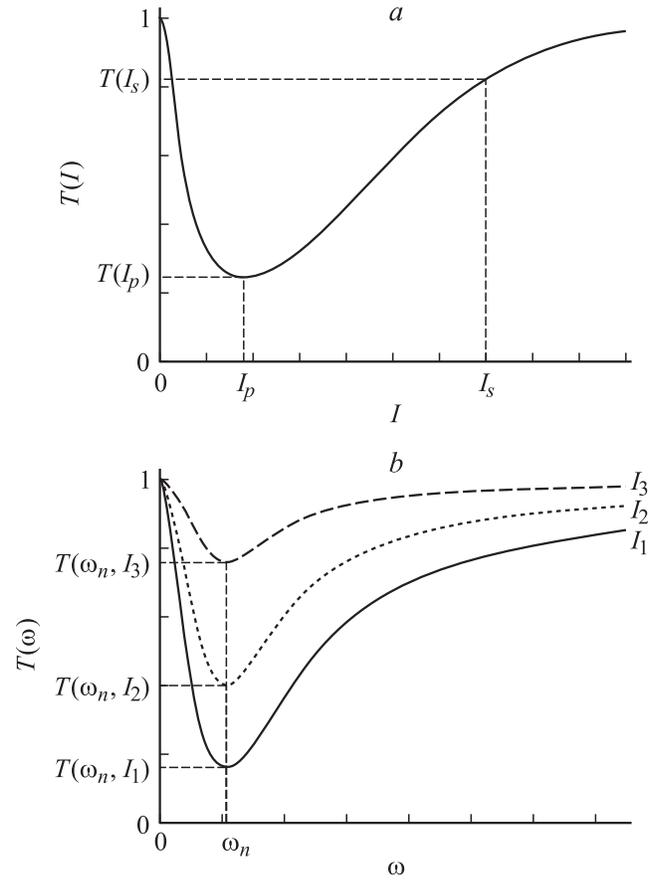


Рис. 2. Модельная зависимость коэффициента пропускания от интенсивности (*a*) и частоты (*b*) для разных значений интенсивности, при этом $I_1 < I_2 < I_3$.

излучения и размера наночастицы. Для твердых диэлектрических нанокомпозитов ориентация наночастиц вдоль поля требует высоких интенсивностей излучения. В жидкой матрице этому случаю соответствует интервал $I > I_p$. При таких значениях интенсивности можно считать, что все частицы сориентировались вдоль направления напряженности внешнего поля, так что параметры порядка постоянны, а величины S_n не зависят от интенсивности, т. е. характер поведения коэффициента пропускания для твердой и жидкой матрицы при больших интенсивностях одинаков. В этом случае значение коэффициента пропускания в центральной частоте равно

$$T(I) = \exp\left(-L \frac{4\pi\omega_n N}{c\hbar\Gamma_n} a^2(GS_n)_{g=n}(\Delta\omega_1 + \Delta\omega_2)F^2(I)\right),$$

с ростом интенсивности это выражение экспоненциально стремится к 1, тем быстрее, чем больше размер наночастицы, сумма $\Delta\omega_1 + \Delta\omega_2$, а также величина GS .

4. Заключение

Из приведенных выше результатов следует, что механизмами низкопороговых эффектов нелинейного погло-

шения и рассеяния лазерного излучения могут являться: во-первых, возбуждение дипольного электрического момента наночастицы во внешнем поле, а во-вторых, ориентация наночастиц вдоль направления поляризации этого поля. Существенная зависимость коэффициента пропускания от интенсивности наблюдается как в области слабых полей, в которой она обусловлена в основном ориентацией наночастиц вдоль направления поляризации оптического поля, так и в области более сильных полей, в которой основную роль играют эффекты насыщения дипольных моментов переходов.

Из выражения (13), в частности, следует, что в системе, в которой диполь-дипольным взаимодействием наночастиц пренебречь уже нельзя, величина этого взаимодействия будет сильно зависеть от интенсивности, принимая некоторое максимальное значение в районе достаточно слабых полей ($I \approx I_p$). Эти особенности необходимо учитывать при исследовании оптических свойств подобных композитов, а также при проектировании реальных устройств, работа которых основана на этих свойствах.

Как известно, многие материалы биологического происхождения (белки, бактерии) можно рассматривать как наночастицы, при этом частицы диэлектрические. В силу сказанного возникает вопрос о существовании нелинейного низкопорогового оптического отклика биологических сред.

Работа выполнена при поддержке программы президиума РАН № 27, проект 09-И-П27-06, а также программы фундаментальных исследований ОФН РАН, проект 09-И-ОФН-07.

Список литературы

- [1] О.П. Михеев, А.И. Сидоров. ЖТФ, **74**, 77 (2004).
- [2] С.П. Виноградова, Г.С. Марухина, А.И. Сидоров. Письма ЖТФ, **31** (12), 79 (2005).
- [3] Ю.Н. Кульчин, А.В. Щербаков, В.П. Дзюба, С.С. Вознесенский, Г.Т. Микаэлян. Квант. электрон., **38**, 154 (2008).
- [4] Ю.Н. Кульчин, А.В. Щербаков, В.П. Дзюба, С.С. Вознесенский. Письма ЖТФ, **35** (14), 1 (2009).
- [5] Ю.Н. Кульчин, В.П. Дзюба, А.В. Щербаков. ФТП, **43**, 349 (2009).
- [6] Bindu Krishnan, Litty Irimpan, P. Nampoore, P. Radhakrishnan. Optical Mater., **31**, 361 (2008).
- [7] L. Irimpan, B. Krishnan, V.P.N. Nampoore, P. Radhakrishnan. Appl. Optics, **47**, 4345 (2008).
- [8] А.И. Белогорохов, И.А. Белогорохов, Р.П. Миранда, М.И. Василевский. ЖЭТФ, **13** (1), 123 (2007).
- [9] С.И. Покутний. ФТП, **40**, 233 (2006).
- [10] В.С. Днепровский, Е.А. Жуков, Е.А. Муляров, С.П. Тиходеев. ЖЭТФ, **74**, 77 (2004).
- [11] Ж.И. Алфёров. ФТП, **32**, 3 (1998).
- [12] Ю.В. Вандышев, В.С. Днепровский, В.И. Климов. Письма ЖЭТФ, **53**, 301 (1991).
- [13] А.И. Екимов, А.А. Онущенко, А.Л. Эфрос. Письма ЖЭТФ, **43**, 292 (1986).
- [14] P. Dawson, E.O. Gwbel, K. Pierz. J. Appl. Phys., **98**, 01 354 (2005).

- [15] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. ФТТ, **27**, 48 (1985).
- [16] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. ФТТ, **32**, 2921 (1990).
- [17] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. ФТТ, **33**, 2845 (1991).
- [18] S.I. Pokitnyi. Phys. Status Solidi (B), **165**, 109 (1991).
- [19] S.I. Pokitnyi. Phys. Status Solidi (B), **172**, 573 (1992).
- [20] С.И. Покутний. ФТТ, **35**, 257 (1993).
- [21] В.П. Евтихийев, И.В. Кудрявцев, Е.Ю. Котельников и др. ФТП, **32**, 1482 (1998).
- [22] С.В. Зайцев, Н.Ю. Гордеев, В.М. Устинов и др. ФТП, **31**, 539 (1997).
- [23] А.Е. Жуков, А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш и др. ФТП, **31**, 104 (1997).
- [24] К. Борен, Д. Хавман. *Поглощение и рассеяние света малыми частицами* (М., Мир, 1986).
- [25] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Электродинамика сплошных сред* (М., Гостехиздат, 1957).
- [26] И.Р. Шен. *Принципы нелинейной оптики* (М., Наука, 1989).

Редактор Т.А. Полянская

Model of the nonlinear light transmission by dielectric nanocomposites

V.P. Dzyuba, A.E. Krasnok, J.N. Kulchin, I.V. Dzyuba

Institute of Automation and Control Processes,
Far East Division of Russian Academy of Sciences,
690041 Vladivostok, Russia

Abstract The theoretical model of the transmission coefficient of laser emission with a dielectric nanocomposites is presented in this article. It is shown that the induction of electric dipole moment of nanoparticles in external field, firstly, and the orientation of nanoparticles in the direction of polarization of this field, secondly, are the main mechanisms of the lowthreshold effects of nonlinear absorption and scattering of laser emission. The behavior of transmittance near a central frequency of individual absorption band as well as the dependence of depth of this band from intensity of external field is considered in this article.