

ОСОБЕННОСТИ СПЕКТРА ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ, ИЗЛУЧАЕМОГО НИЗКОРАЗМЕРНЫМ ПЛАНАРНЫМ СЛОЕМ СУПЕРКРИСТАЛЛА

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

Белорусский государственный университет пищевых и химических технологий
г. Могилёв, Беларусь

Известно, что измерение физических свойств, определяемых количественными химическими параметрами вещества, для предельно тонких слоёв материалов представляет довольно сложную задачу. Задача оценки концентрации активно поглощающих структурных элементов, образующих планарные тонкие плёнки, может быть решена измерениями спектральных составляющих излучения люминесценции. Элементарные излучатели, образующие активные субструктуры в интенсивно исследуемых в настоящее время суперкристаллах (СК), имеют размеры до нескольких нанометров, обладая при этом дискретными свойствами энергетического спектра. Переходы с излучением или поглощением, совершаемые в квазирегулярных массивах из подобных квантовых излучателей (КИ), в экситонной области спектра характеризуются высокой вероятностью. При условии их плотной упаковки параметры двухуровневой дипольной системы, которой описываются массивы КИ, становятся функциями атомных переменных. Соответствующая перенормировка переменных в уравнениях Блоха для резонансной поляризации среды приводит к появлению в частотной отстройке $\Delta\omega$ составляющих, пропорциональных произведению вероятностей населенности и поляризованности, и делает уравнения существенно нелинейными. Тем самым указывается на возможность качественных изменений в динамике резонансных процессов взаимодействия КИ с излучением, приводящих к его фазовой модуляции. Экспериментально наблюдались два явления: внутренняя (безрезонаторная) оптическая бистабильность (ВОБ) и нелинейное смещение частоты резонанса поглощения. Из упомянутых эффектов наиболее интересна ВОБ, заключающаяся в гистерезисной зависимости населенности возбужденного уровня КИ от интенсивности возбуждающего излучения. Известно, что нелинейные системы с внутренней обратной связью, обусловленной ВОБ, в излучении СК могут демонстрировать динамические неустойчивости типа автоколебаний. В результате в спектрах резонансной флуоресценции появляются новые компоненты по сравнению со спектром изолированных КИ. Структура этих составляющих существенно зависит от плотности КИ. Результаты измерения интенсивности компонентов и их положения на шкале частот возможно использовать для оценки концентрации КИ.

В настоящем сообщении обсуждается схема расчёта спектра резонансной флуоресценции, которая развивается в СК, образованном КИ типа квантовых точек. Фурье-преобразование временной развертки флуоресценции даёт его картину спектрального распределения, которое зависит от плотности КИ. Световое поле флуоресценции в кинетической модели взаимодействия поля и приповерхностного слоя СК может описано граничными соотношениями для действующего на КИ (e) и прошедшего (e_t) полей с комплексной резонансной поляризованностью $\rho = R + iS$:

$$e = \frac{1}{D} [(1 - \beta\kappa n) e_i + \kappa(R - GS)] - i \frac{\kappa}{D} (\beta n e_i - GR - S), \quad (1)$$

$$e_t = e_i - \kappa(R - \beta n \operatorname{Im} e) + i\kappa(S - \beta n \operatorname{Im} e).$$

Здесь n – резонансная вариация вероятности населённости, κ – определяемый концентрацией КИ ненасыщенный показатель резонансного поглощения, β –

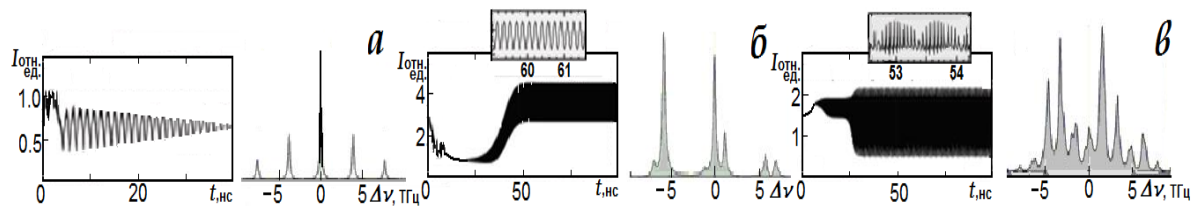
коэффициент резонансной нелинейности рефракции, пропорциональный разности поляризуемостей КИ в возбужденном и основном состояниях, γ – нормирующий коэффициент в локальной поправке Лоренца. В случае нормального падения извне нормированного поля e_i с выражениями (1) согласована применяемая для расчёта кинетики резонансной флуоресценции модификация оптических уравнений Блоха:

$$\frac{d\rho}{dt} = -(n-1)e - \left(\frac{1}{\tau_2} - i\Delta\omega \right) \rho, \quad \frac{dn}{dt} = -\frac{n}{\tau_1} + \frac{1}{2} (\rho^* e + \rho e^*), \quad (2)$$

$$D = (1 - \beta\kappa\gamma n)^2 + (\beta\kappa n)^2, \quad G = \gamma - \beta\kappa(1 + \gamma^2)n,$$

где τ_1 и τ_2 – времена продольной и поперечной релаксации. Нелинейные составляющие поляризованности в соотношениях (1) описывают вклад люминесценции в отражение СК. Учетом второго (зависимого от резонансной вариации населённости n с коэффициентом β) характеризуем динамический вклад взаимодействия светового поля резонансной флуоресценции с квазирезонансными переходами. Этим представлена оригинальность расчётов кинетики флуоресценции на основе (1), (2). Именно фактор квазирезонансной поляризации в условиях влияния ближних полей диполей определяет динамику фазовой памяти ансамбля дипольных КИ и способен стимулировать осцилляторные или периодические процессы в люминесценции.

Моделирование динамики люминесценции квазидвумерного СК при стационарном поле $e_i(t) = e_0$ производилось в рамках численного решения системы (1), (2). Рассчитывалась временная зависимость безразмерной интенсивности флуоресценции $I = e^2(t)$ и Фурье-спектры люминесценции. Фрагменты приведенного ниже рисунка на наносекундной шкале изображают характерные зависимости $I(t)$ и Фурье-спектры на шкале тераГерц $\Delta\nu$ относительно центра резонансной линии.



$\kappa = 1.8$ (*a, б*), 2.2 (*в*), $\beta = 0$ (*a*), 0.2 (*б, в*), $\gamma = 0$ (*a*), 2.34 (*б, в*), $\Delta\omega\tau_2 = 1.0$, $\tau_2/\tau_1 = 1.0 \cdot 10^{-3}$

Рисунок 1 – Зависимости нормированной интенсивности излучения от времени (на фрагментах *б-в* – в большем разрешении) и фурье-спектры флуоресценции

Многочисленные расчёты, примеры которых приведены на рисунке, свидетельствуют о следующем. В отсутствие фазовых эффектов, типичных для суперкристаллов квантовых точек (рис., *a*), временная картина вынужденной люминесценции представляет осцилляции, релаксирующие к стационарному уровню излучения. Соответствующий спектр представлен симметричным набором линий. В случае ВОБ, инициированной нелинейным смещением резонанса (рис., *б, в*), возможен переход излучения в регулярный режим с высокочастотными колебаниями светового поля. В спектрах флуоресценции возникает асимметрия с типичным набором дополнительных линий, положение которых зависит от числа активных центров, определяющих величину показателя ненасыщенного поглощения κ . Наличие и уровень присутствия фазовых эффектов в низкоразмерных слоях СК, таким образом, может определяться спектральными измерениями. Применение планарных СК в качестве метаповерхностей особо перспективно в современных устройствах нанопотоники.