

ЭКСИТОННАЯ ОПТИЧЕСКАЯ НЕЛИНЕЙНОСТЬ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ НАНОКОМПОЗИТОВ В СЛАБЫХ ОПТИЧЕСКИХ ПОЛЯХ

Д.В. Стороженко¹, В.П. Дзюба¹, Ю.Н. Кульчин^{1,2}, А.В. Амосов¹

¹ Институт автоматизации и процессов управления ДВО РАН, Владивосток, Россия,

² Дальневосточный федеральный университет, Владивосток, Россия

Аннотация

В статье представлена модель оптической нелинейности в диэлектрических нанокomпозитах в диапазоне длин волн от 200 до 800 нм и интенсивности до 1000 Вт/см². Представлены результаты численного моделирования оптического отклика в нанокomпозите, состоящем из диэлектрических наночастиц Al₂O₃ малой объемной концентрации (порядка 0,3 %), внедренных в прозрачную диэлектрическую жидкую матрицу. Установлено, что при равной объемной концентрации величина нелинейного отклика единицы объема возрастает с уменьшением размера наночастиц. Показано влияние на спектр нелинейной добавки к показателю преломления различных параметров, таких как размер и анизотропия наночастиц. Отмечается, что для наночастиц Al₂O₃ размером 45 нм при объемной концентрации 0,3 % величина нелинейного оптического отклика достигает значений 1,5·10⁻⁴ см²/Вт вблизи резонансной полосы поглощения.

Ключевые слова: экситон, оптическая нелинейность; диэлектрические композиты; оптические спектры; наночастицы; показатель преломления; резонансная восприимчивость.

Цитирование: Стороженко, Д.В. Экситонная оптическая нелинейность диэлектрических нанокomпозитов в слабых оптических полях / Д.В. Стороженко, В.П. Дзюба, Ю.Н. Кульчин, А.В. Амосов // Компьютерная оптика. – 2016. – Т. 40, № 6. – С. 855-862. – DOI: 10.18287/2412-6179-2016-40-6-855-862.

Введение

Необычные оптические свойства диэлектрических нанокomпозитных материалов активно исследуются в последнее десятилетие. Отдельное внимание уделяется особенностям, которые слабо выражены или отсутствуют в объемных диэлектриках. Например, выявлено дополнительное влияние свойств окружающей среды, внешнего поля, размера и характера формы частиц на спектры пропускания и люминесценции диэлектриков [1–3]. Схожее воздействие окружения наблюдается и для полупроводниковых наночастиц [4–6]. Также обнаружено в работах [7–10] появление нелинейного оптического отклика некоторых диэлектрических нанокomпозитных материалов в диапазоне интенсивности порядка менее 1 кВт/см², т.е. недостаточной для запуска многофотонных процессов, фотоионизации или других нелинейных процессов. В работах [11, 12] авторы, рассуждая о природе нелинейности такого типа, приходят к выводу, что причина в ключевом влиянии экситонных уровней в диэлектрических частицах на общий спектр пропускания. В работе [13] сформулированы условия, благоприятствующие возникновению устойчивых экситонных состояний в веществах, состоящих из диэлектрических наночастиц, внедренных в прозрачную жидкую диэлектрическую матрицу с линейными оптическими свойствами в оптическом диапазоне. Опубликованные в работах [14–19] результаты экспериментальных исследований таких веществ показали, что при интенсивности излучения около 150–250 Вт/см² нелинейная добавка к показателю преломления вблизи резонансной частоты полосы поглощения составила $n_n = 10^4 \div 10^5$. Это хорошо согласуется с предложенной в работе [20] теоретической моделью такой нелинейности. Вместе с тем для хорошего прогнозирования опти-

ческих свойств нанокomпозитных диэлектрических материалов необходимо исследовать влияние размеров, формы и концентрации наночастиц. В теоретических исследованиях оптической нелинейности используется численное решение уравнений Шредингера, например, в работах [21, 22]. Использование данного подхода для наносистем, состоящих из тысяч взаимодействующих элементов, крайне затруднительно даже для численного решения, поскольку увеличение количества взаимодействующих элементов значительно усложняет вид уравнения. Возможным путем решения проблемы может быть введение в уравнение функций, описывающих поведение каких-либо параметров системы согласно эмпирическим данным. Для такого подхода необходима согласованная с экспериментальными данными математическая модель физического процесса. В предыдущих работах [9, 13, 14, 17–20] сделана аппроксимация экситонного оптического отклика при различных параметрах, определенных эмпирически для каждого случая. Цель настоящей работы – развить описание модели с учетом новых условий определения параметров, взятых из ранее проведенных экспериментов.

Модель резонансного поглощения

Под диэлектрическими нанокomпозитами мы понимаем диэлектрические наночастицы, внедренные в жидкую прозрачную диэлектрическую матрицу с линейными оптическими свойствами в видимой области. В работах [14, 17–20] показано наличие в спектрах поглощений и люминесценции таких нанокomпозитов широких полос экситонного поглощения, лежащих внутри запрещенной зоны. Как правило, ярко выраженные пики экситонного поглощения для полупроводников наблюдаются при низких температурах (десятков К) [23, 24]. В диэлектрических нанокomпозитах экситон-

ные полосы поглощения можно наблюдать и при температуре порядка 300 К. Это наблюдается тогда, когда длина волны Луи Де Бройля экситона сравнима с размерами наночастицы. При этом влияние раздела сред наночастица/матрица проявляется в виде увеличения глубины потенциальной ямы, в которой находится экситон (дырка и электрон), и приводит к увеличению энергии связи дырки и электрона. В классическом понимании это означает, что с внутренней стороны границы раздела сред возникает отрицательно заряженный слой, препятствующий разрушению экситона. Происходит это, если диэлектрическая проницаемость материала наночастицы больше, чем диэлектрическая проницаемость окружающей матрицы. Это приводит к тому, что экситонные линии поглощения сдвигаются вглубь запрещенной зоны и проявляются в полосах поглощения в видимом диапазоне, несмотря на большую (> 6 эВ) энергию запрещенной зоны [19]. Выбор материалов наночастицы и окружающей матрицы необходимо делать не только с оценкой диэлектрической проницаемости на оптической частоте, но и с соблюдением прозрачности для уменьшения влияния теплового эффекта. Это также приводит к требованию низкой объемной концентрации. Высокая концентрация наночастиц, при которой будет происходить взаимодействие частиц друг с другом, нежелательна, так как это уменьшит величину нелинейного оптического отклика. Поэтому нами исследован случай с малой объемной концентрацией (порядка 0,3%), что позволяет пренебречь взаимным влиянием между наночастицами и соблюсти условие прозрачности нанокомпозита. В слабых оптических полях вероятность двухфотонных процессов невелика, поэтому можем положить, что в квантовом представлении наночастицы представляют собой набор независимых двухуровневых систем, распределенных с объемной плотностью и независимо друг от друга взаимодействующих с окружением [25]. Для такой модели нелинейной оптической отклик среды пропорционален комплексной восприимчивости в единице объема, считая, что в диапазоне интенсивности до 1000 Вт/см² полная восприимчивость вещества $\tilde{\chi}$ представляется суммой линейной и экситонной нелинейной восприимчивости.

$$\tilde{\chi} = \tilde{\chi}_0 + \tilde{\chi}_R. \tag{1}$$

Процесс создания экситона носит резонансный характер на определенных частотах. Поэтому мы должны воспользоваться моделью резонансной комплексной восприимчивости с разностью населенности уровней [26]:

$$\tilde{\chi}_R = \frac{Np^2 \Delta\rho_{ng}(\omega, I)}{\hbar} \cdot \frac{(\omega - \omega_0) + i\Gamma}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2}, \tag{2}$$

$$\Delta\rho_{ng}(\omega, I) = \Delta\rho^0 \left[1 - \frac{I/I_s}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2 (1 + I/I_s)} \right], \tag{3}$$

где $\tilde{\chi}_0$ – линейная часть восприимчивости вещества, $\tilde{\chi}_R$ – резонансная нелинейная добавка к восприимчивости вещества, ω_0 – частота резонанса, Γ – полуширина

линии поглощения, \hbar – постоянная планка с чертой, N – число носителей заряда в объеме оптического пути, $\Delta\rho_{ng}$ – разность населенности уровней энергии состояний $|n\rangle$ и $|g\rangle$, $p = \langle n|e \cdot r_i|g\rangle$ – проекция суммарного электрического дипольного момента перехода электронов наночастицы из состояния $\langle n|$ в состояние $|g\rangle$ на направление поляризации внешнего оптического излучения, $\Delta\rho^0$ – равновесная тепловая разность населенности при отсутствии внешнего поля, I_s – уровень насыщения двухуровневой системы, при котором в возбужденное состояние перешла половина носителей зарядов. Отметим, что априори дипольный момент частицы неизвестен. Но в классическом смысле мы можем интерпретировать возбуждение экситона как перераспределение зарядов в наночастице и образование среднего дипольного момента d_{exc} таким образом, что дипольный момент становится пропорциональным $p_0 \sim a \cdot e$. При этом очевидно, что величина этого дипольного момента будет зависеть от размеров и формы наночастицы. Индуцированный дипольный момент d_{exc} в наночастице в случае изотропного материала наночастиц может совпадать с вектором напряженности электрического поля E , в случае же анизотропного материала суммарный дипольный момент наночастицы может не совпадать с E , при этом возникает момент сил, который будет стремиться повернуть наночастицу вдоль вектора E , что приведет к увеличению поляризации единицы объема. Отметим, что анизотропия наночастицы в процессе поляризации может присутствовать не только из-за свойств материала, но благодаря форме частицы. Момент сил ориентирования наночастицы будет пропорционален интенсивности внешнего поля. Параметр ориентации наночастицы вдоль поля будет являться сложной функцией от интенсивности I , который входит в них через дипольный момент и силы взаимодействия с внешним полем. Выражения для этой зависимости не представляется возможным аналитически записать. Однако справедливо ввести фактор ориентации $A(I)$, который моделирует поведение квадрата дипольного момента при изменении интенсивности излучения:

$$p^2 = p_0^2 A(I). \tag{4}$$

Зависимость фактора ориентации от интенсивности I задается в нашей работе в следующем виде:

$$A(I) = 1 - e^{-I/\alpha}. \tag{5}$$

Форма наночастиц учитывается в модели через фактор ориентации вектора поляризации частицы вдоль вектора напряженности электрического поля, который зависит от интенсивности поляризованного излучения. Коэффициент α задает чувствительность к интенсивности излучения и определяется формой наночастиц, а точнее различием характерных размеров вдоль базисных векторов. Другими словами, величина этого коэффициента пропорциональна анизометрии наночастиц, что экспериментально наблюдалось в предыдущих исследованиях. Точный расчёт или аналитическое представление этого коэффициента через распределение размеров и форм наночастиц в объеме

метаматериала с жидкой матрицей – открытый вопрос. Поэтому в описываемой модели этот коэффициент считается заданным параметром, и $\alpha \rightarrow 0$ при сферической форме наночастицы с изотропным тензором диэлектрической проницаемости.

Описание параметров моделирования

После преобразований выражений (3–5) перепишем выражение резонансной нелинейной добавки экситонной восприимчивости в следующем виде:

$$\tilde{\chi}_R = \frac{NA(I)p_0^2\Delta\rho^0}{\hbar} \cdot \frac{(\omega - \omega_0) + i\Gamma}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2(1 + I/I_s)} \quad (6)$$

Правая дробь выражения (6) представляет собой Лоренцеву модель в спектроскопии насыщения, в которой при $I_s = const$ реальная часть есть нечетная функция, а мнимая – четная. Зная, что восприимчивость $\tilde{\chi}$ связана с диэлектрической проницаемостью, а вместе с этим с показателем преломления, отметим, что реальная часть выражения (6) задает нелинейную добавку к показателю преломления, а мнимая часть – добавку к коэффициенту поглощения вещества. Запишем выражение для связи восприимчивости $\tilde{\chi}_R$

с комплексным показателем преломления диэлектрических наночастиц в растворе:

$$\tilde{n}(\omega, I) = \tilde{n}_0 + \tilde{n}_n(\omega, I) = n_0 + (2\pi\tilde{\chi}_R(\omega, I))/n_0 \quad (7)$$

Для численного моделирования необходимо переписать все вводимые параметры и обозначить их диапазон значений.

- $\Delta\rho_0 \in [0, 1]$ – равновесная тепловая разность населенности, в настоящей модели рассматривается случай стационарной температуры 300 К, поэтому можем полагать, что $\Delta\rho_0 = const$;
- $a \in [5, 100]$ нм – задаваемый размер диэлектрической наночастицы, нами исследован этот диапазон размеров наночастиц;
- $N \in [10^{12}, 10^{15}] \text{ см}^{-3}$ – число носителей заряда в единице объема. В модели принимается равным числу наночастиц и рассчитывается через объемную концентрацию вещества и объем наночастицы при заданном размере a . Нами исследовался случай с объемной концентрацией порядка $f = 0,3\%$;
- $p_0 = a \cdot e$ – максимальный дипольный момент наночастицы, где a – размер наночастицы, а заряд электрона e задан в системе СГС;

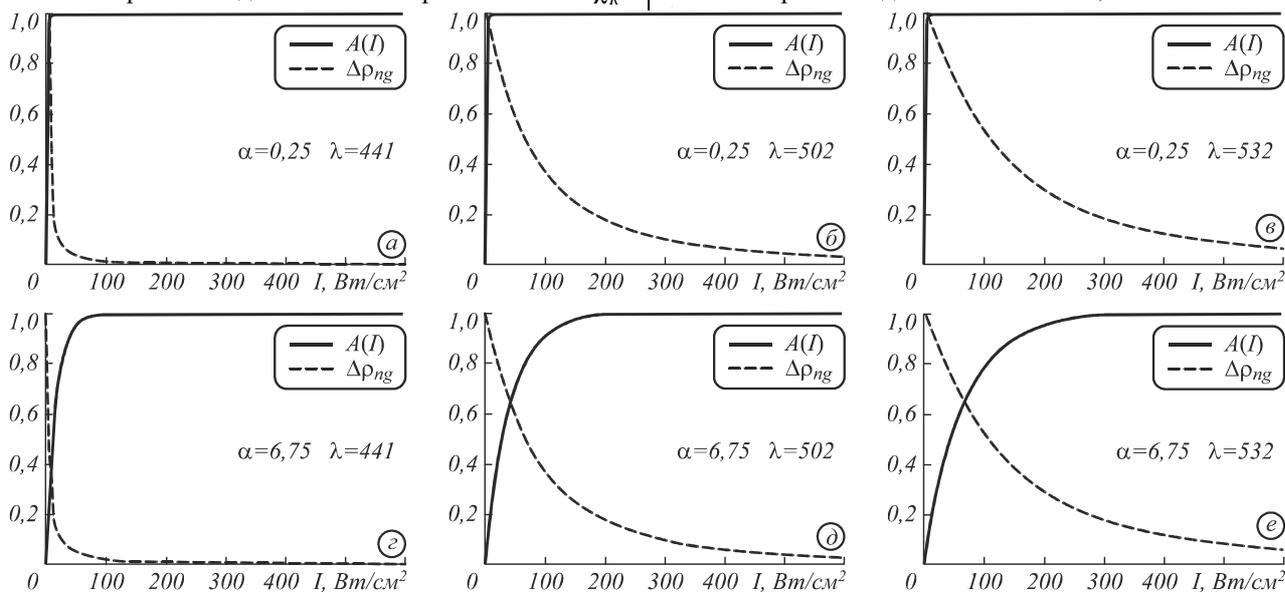


Рис. 1. Диаграммы двух конкурирующих процессов: разность населенности $\Delta\rho_{ng}$ и фактор ориентации $A(I)$.

Зависимость от интенсивности при фиксированной различных α и λ .

Поведение соответствует сферической (а, б, в) и несферической (г, д, е) форме наночастиц

- ω_0, Γ – резонансная частота и полуширина полосы поглощения, могут быть заданы из данных эксперимента. Для удобства в нашей модели отображается в размерности соответствующих им длинам волн λ_0 и Γ_λ в нм;
- n_0 – показатель преломления объемного вещества диэлектрических наночастиц на оптической частоте задается справочно;
- $\alpha \in [1, 100]$ – коэффициент анизотропии наночастицы, при изотропном тензоре диэлектрической проницаемости и сферической форме наночастицы $\alpha \rightarrow 0$. Увеличение значений коэффициента означает, что один из ее базисных векторов превосходит другие;

- $I_s \in [20, 200] \text{ Вт/см}^2$ – порог насыщения, при котором фотоиндуцированно возбуждается половина свободных носителей заряда. Задается из данных эксперимента.

Поведение нелинейной восприимчивости удобно рассматривать как произведение двух конкурирующих процессов: фактора ориентации $A(I)$ и разности населенности уровней $\Delta\rho_{ng}$, графики которых изображены на рис. 1. Учет этих процессов необходим для выбора наиболее подходящего рабочего участка в применении экситонной нелинейности диэлектрических нанокомпозитов на практике, например, в оптических переключателях [27–29]. При анализе выражения (7) мож-

но заметить, что значение величины восприимчивости $\tilde{\chi}_R$ пропорционально N и p_0^2 , которые, в свою очередь, задаются объёмной концентрацией f и размером наночастиц a .

А при $f = \text{const}$ с увеличением размера частиц N уменьшается пропорционально a^3 , а p_0^2 увеличивается пропорционально a^2 . Это позволяет заключить, что при одинаковой объёмной концентрации уменьшение размера частиц ведёт к увеличению оптического нелинейного отклика. Как видно из выражений (3–5), нелинейная часть восприимчивости $\tilde{\chi}_R$ меняется от частоты и интенсивности.

Результаты моделирования

Через нелинейную восприимчивость и известные модели расчёта показателя преломления двухкомпонентной среды, например, модель Максвелла–Гарнетта,

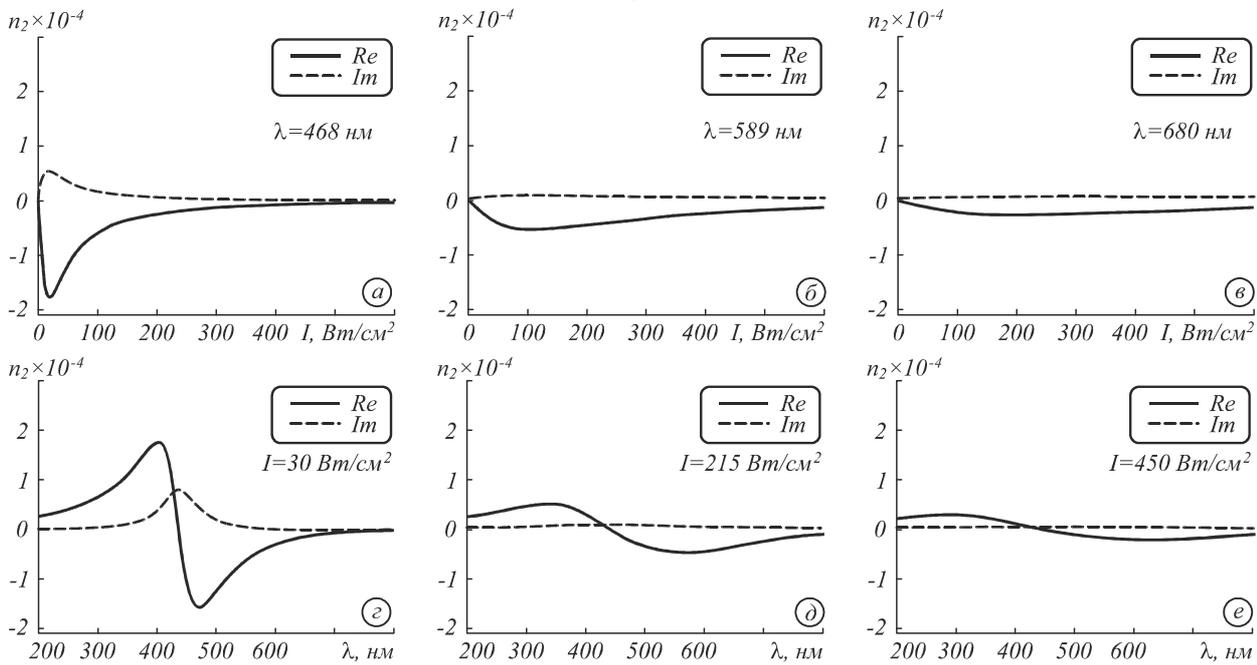


Рис. 2. Диаграммы нелинейной добавки при фиксированных λ (а, б, в) и фиксированных интенсивностях (г, д, е). Реальная и мнимая части показаны отдельно

Расчёты спектров длин волн показывают, что с изменением интенсивности мнимая часть нелинейной добавки уменьшается быстрее, чем реальная часть. При переходе через резонансную частоту λ_0 реальная часть нелинейной добавки $\tilde{n}_n(\omega, I)$ меняет знак. С изменением интенсивности (рис. 2г–е) наблюдается уширение полосы реальной и мнимой части $\tilde{n}_n(\omega, I)$ с уменьшением амплитуды значений. Также на рис. 2а–в можно увидеть, что при удалении от резонансной частоты смещается экстремум в графиках интенсивности реальной и мнимой частей. Также на рис. 2а, б видно, что с ростом интенсивности нелинейный отклик сначала возрастает, а затем убывает. Такое уменьшение величины нелинейной добавки с ростом интенсивности объясняется влиянием процесса насыщения двухуровневой модели,

можно построить спектры пропускания, поглощения и рассеяния вещества. Выражения для расчёта спектров сечения рассеяния и поглощения вещества можно найти в работе [26]. Однако ввиду превосходства вклада линейной составляющей над нелинейной на несколько порядков целесообразно изображать отдельные спектры, соответствующие только нелинейной добавке к комплексному показателю преломления.

Для воспроизведения данных эксперимента [18] с частицами Al_2O_3 , растворёнными в прозрачном масле, в модель были заложены следующие значения параметров: $\Delta\rho^0 = 0,9$, $a = 45$ нм, $n_0 = 1,65$, $\lambda_0 = 437$ нм, $\Gamma_\lambda = 27,4$ нм, $f = 0,3\%$, $I_s = 50$ Вт/см², $\alpha = 3,5$. На рис. 3 представлены графики комплексной нелинейной добавки $\tilde{n}_n(\omega, I)$, достигающей $1,5 \cdot 10^{-4}$ см²/Вт (рис. 2г). Рассмотрены случаи при фиксации длины волны (рис. 2а–в) или интенсивности (рис. 2г–е).

когда уменьшается разность населенности уровней. Реальную и мнимую часть нелинейной добавки $\tilde{n}_n(\omega, I)$ удобно оценивать в виде трёхмерных карт распределения от интенсивности и длины волны (рис. 3а, б).

Из анализа изображений хорошо видно распределение реальной части показателя преломления на различных длинах волн и интенсивностях. При относительно небольшой полуширине полосы поглощения площадь изменений нелинейной добавки реальной части охватывает большой оптический диапазон. Это означает, что наличие резонансной полосы поглощения в фиолетовой части спектра, имеющее экситонную природу, может быть использовано на значительном удалении до 200 нм от неё в красную область.

Заключение

Продемонстрировано поведение нелинейного экситонного оптического отклика от интенсивности внешнего монохроматического излучения. Отличительная особенность заключается в том, что при плавном увеличении интенсивности излучения отклик сначала возрастает, а затем убывает.

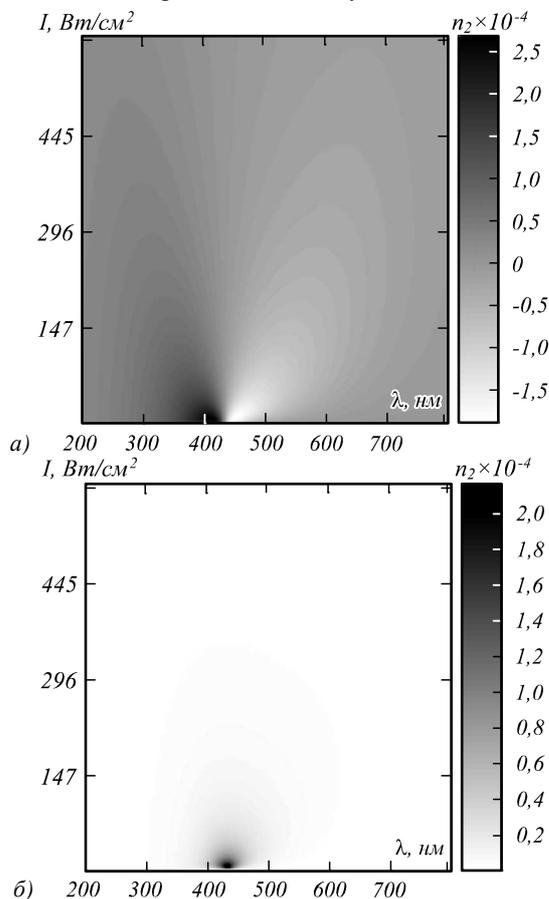


Рис. 3. Реальная (а) и мнимая (б) части нелинейной добавки n_2 . Двумерная карта распределения значений нелинейной добавки от интенсивности и длины волны поляризованного излучения

Такое поведение экситонной нелинейности в диэлектрических нанокomпозитах отличает ее от известной квадратичной или кубической нелинейности вещества. Величина нелинейной добавки показателя преломления составляет до $1,5 \cdot 10^{-4}$ при малой концентрации (до 0,3%) и относительно низкой интенсивности излучения (до 1000 Вт/см^2), представляет практический интерес для использования в оптических устройствах, например, в оптических транзисторах (трансфазорах) [30]. Представленная модель численных расчетов позволяет анализировать экситонную оптическую нелинейность на различных частотах и отслеживать поведение комплексной добавки $\tilde{n}_n(\omega, I)$ при различных размерах частиц и других параметрах. Например, в результате численного моделирования установлено, что величина нелинейного оптического отклика $\tilde{\chi}_R$ пропорциональна размеру наночастиц и их количеству в единице объема N . При равной объемной концентрации наноча-

стиц с уменьшением их размера возрастает величина $\tilde{\chi}_R$. Значит, для увеличения нелинейного оптического отклика рекомендуется использовать наночастицы меньшего размера. Установлено, что вклад в нелинейный оптический отклик фактора ориентации $A(I)$ возрастает с увеличением анизотропии наночастиц. В наибольшей степени это проявляется вблизи резонансной частоты, а с удалением от нее вклад нелинейного оптического отклика уменьшается. Также анизотропия наночастиц влияет на поведение нелинейного оптического отклика от интенсивности. При увеличении отношения размерных сторон частиц фактор ориентации имеет более медленный рост с увеличением интенсивности. Показано, что характер поведения нелинейного оптического отклика может служить индикатором сферичности частиц с изотропным тензором поляризуемости.

Благодарности

Работа выполнена при поддержке Программы фундаментальных исследований Дальневосточного отделения Российской академии наук, гранты (№ 0262-2015-0094, № 0262-2015-0059).

Литература

1. Ганеев, Р.А. Нелинейно-оптические характеристики различных сред / Р.А. Ганеев, Т. Усманов // Квантовая электроника. – 2007. – Т. 37, № 7. – С. 605-622.
2. Кульчин, Ю.Н. Спектр пропускания света диэлектрическими наночастицами в объемных гетерокomпозитах / Ю.Н. Кульчин, В.П. Дзюба, А.В. Щербаков // Физика и техника полупроводников. – 2009. – Т. 43, № 3. – С. 349-356.
3. Dzuba, V. Effect of the shape of a nano-object on quantum-size states / V. Dzuba, Y. Kulchin, V. Milichko // Journal of nanoparticle research. – 2012. – Vol. 14(11). – 1208. – DOI 10.1007/s11051-012-1208-7
4. Divya, S. Tailoring optical properties of TiO2 in silica glass for limiting applications / S. Divya, I. Sebastian, V.P.N. Nampoori, P. Radhakrishnan, A. Mujeeb // Chinese Physics B. – 2014. – Vol. 23(3). – 034210. – DOI: 10.1088/1674-1056/23/3/034210.
5. Yan, X.-Y. Ultrafast nonlinear optical properties and optical Kerr effect of In-doped ZnO nanowires / X.-Y. Yan, K.-X. Zhang, C.-B. Yao, Q.-H. Li // Materials Letters. – 2016. – Vol. 176. – P. 49-51. – DOI:10.1016/j.matlet.2016.04.058.
6. Sivasubramanian, D. Low power optical limiting and thermal lensing in Mn doped ZnO nanoparticles / D. Sivasubramanian, R. Ponnusamy, V. Gandhiraj // Material Chemistry and Physics. – 2015. – Vol. 159. – P. 93-100. – DOI:10.1016/j.matchemphys.2015.03.056.
7. Koushki, E. Modeling absorption spectrum and saturation intensity of ZnO nano-colloid / E. Koushki, A. Farzaneh, M.H. Majles Ara // Optik. – 2013. – Vol. 125(1). – P. 220-223. – DOI:10.1016/j.ijleo.2013.06.007.
8. Kim, H. Very high third-order nonlinear optical activities of intrazeolite PbS quantum dots very high third-order nonlinear optical activities of intrazeolite PbS / H.S. Kim, M.H. Lee, N.C. Jeong, S.M. Lee, B.K. Rhee, K.B. Yoon // Journal of the American Chemical Society. – 2006. – Vol. 128(47). – P. 4-6. – DOI: 10.1021/ja0661966.
9. Dzuba, V. Nonlinear refractive index of dielectric nanocomposites in weak optical fields / V.P. Dzuba, A.E. Krasnok, Y.N. Kulchin // Technical Physics Letters. – 2010. – 36(11). – P. 973-977. – DOI: 10.1134/S1063785010110015.

10. **Ganeev, R.** Low- and high-order nonlinear optical properties of BaTiO₃ and SrTiO₃ nanoparticles / R.A. Ganeev, M. Suzuki, M. Baba, M. Ichihara, H. Kuroda // Journal of Optical Society of America B. – 2008. – Vol. 25(3). – P. 325-333. – DOI: 10.1364/JOSAB.25.000325.
11. **Днепроvский, В.С.** Самодифракция ультракоротких импульсов лазера при резонансном возбуждении экситонов в коллоидном растворе квантовых точек CdSe/ZnS / В.С. Днепроvский, М.В. Козлова, А.М. Смирнов // Квантовая электроника. – 2013. – Т. 43, № 10. – С. 927-930.
12. **Днепроvский, В.С.** Насыщение поглощения и процессы самовоздействия при резонансном возбуждении основного экситонного перехода в коллоидных квантовых точках CdSe/ZnS / В.С. Днепроvский, Е.А. Жуков, М.В. Козлова, Т. Wumaier, D.S. Hieu, М.В. Артемьев // Физика твердого тела. – 2010. – Т. 52, № 9. – P. 1809-1814.
13. **Dzuba, V.** Photonics of heterogeneous dielectric nanostructures / V. Dzuba, Y. Kulchin, V. Milichko. – Chapter 15. – In Book: Nanocomposites – New Trends and Developments / Ed. by F. Ebrahimi. – InTech, 2012. – ISBN: 978-953-51-0762-0. – DOI: 10.5772/50212.
14. **Milichko, V.** Photo-induced electric polarizability of Fe₃O₄ nanoparticles in weak optical fields / V.A. Milichko, A.I. Nechaev, V.A. Valtisfer, V.N. Strelnikov, Y.N. Kulchin, V.P. Dzyuba // Nanoscale Research Letters. – 2013. – Vol. 8(1). – P. 317. – DOI: 10.1186/1556-276X-8-317.
15. **Купчак, И.М.** Экситонные состояния и фотолюминесценция кремниевых и германиевых нанокристаллов в матрице Al₂O₃ / И.М. Купчак, Ю.В. Крюченко, Д.В. Корбутяк, А.В. Саченко, Э.Б. Каганович, Э.Г. Манойлов, Е.В. Бегун // Физика и техника полупроводников. – 2008. – Т. 42, № 10. – С. 1213-1218.
16. **He, J.** Excitonic nonlinear absorption in CdS nanocrystals studied using Z-scan technique / J. He, W. Ji, G.H. Ma, S.H. Tang, H.I. Elim, W.X. Sun, Z.H. Zhang, W.S. Chin // Journal of Applied Physics. – 2004. – Vol. 95(11). – P. 6381-6386. – DOI: 10.1063/1.1711183.
17. **Milichko, V.** Unusual nonlinear optical properties of SiO₂ nanocomposite in weak optical fields / V. Milichko, V. Dzuba, Y. Kulchin // Applied Physics A. – 2013. – Vol. 111(1). – P. 319-322. – DOI 10.1007/s00339-013-7609-3.
18. **Миличко, В.А.** Аномальная оптическая нелинейность диэлектрических нанодисперсий / В.А. Миличко, В.П. Дзюба, Ю.Н. Кульчин // Квантовая электроника. – 2013. – Т. 43, № 6. – С. 567-573. – DOI:10.1070/QE2013v043n06ABEH015171.
19. **Kulchin, Y.** Dielectric nano-systems with unique optical properties / Y.N. Kulchin, V.P. Dzyuba, V.A. Milichko // Advanced Materials Research. – 2013. – Vol. 677. – P. 36-41. – DOI:10.4028/www.scientific.net/AMR.677.36.
20. **Дзюба, В.П.** Модель нелинейного пропускания света диэлектрическими нанокомпозитами / В.П. Дзюба, А.Е. Краснок, Ю.Н. Кульчин, И.В. Дзюба // Физика и техника полупроводников. – 2011. – Т. 45, № 3. – С. 295-301.
21. **Дербов, В.** Исследование излучения атома водорода под действием импульса титан-сапфирового лазера / В.Л. Дербов, В.В. Серов, Н.И. Тепер // Компьютерная оптика. – 2010. – Т. 34, № 2. – С. 156-161.
22. **Алименков, И.** Автомоуляция одномерных волн на основе нелинейного уравнения Шрёдингера с нелинейностью типа кубик-квинтик / И. Алименков // Компьютерная оптика. – 2012. – Т. 36, № 1. – С. 34-35.
23. **Nguyen, D.** Excitonic nonlinearities in single-wall carbon nanotubes / D.T. Nguyen, C. Voisin, P. Roussignol, C. Roquelet, J.S. Lauret, G. Cassabois // Physica Status Solidi (B). – 2012. – Vol. 249(5). – P. 907-913. – DOI:10.1002/pssb.201100064.
24. **Агекян, В.** Экситонные спектры и электропроводность эпитаксиальных слоев GaN, легированных кремнием / В.Ф. Агекян, Л.Е. Воробьев, Г.А. Мелентьев, Н. Нук и др. // Физика твердого тела. – 2013. – Т. 55, № 2. – С. 260-264.
25. **Шен, И.** Принципы нелинейной оптики: пер. с англ. / И. Шен, под ред. С.А. Ахманова. – М.: Наука, 1989. – 560 с. – ISBN 5-02-014043-0.
26. **Dzyuba, V.** The theory of heterogeneous dielectric nanostructures with non-typical low-threshold nonlinearity / V.P. Dzyuba, Y.N. Kulchin, A.V. Amosov // Pacific Science Review A: Natural Science and Engineering. – 2015. – Vol. 17(2). – P. 41-47. – DOI: 10.1016/j.prsra.2015.12.005.
27. **Kuznetsova, Y.** All-optical excitonic transistor / Y.Y. Kuznetsova, M. Remeika, A.A. High, A.T. Hammack, L.V. Butov, M. Hanson, A.C. Gossard // Optics Letters. – 2010. – Vol. 35(10). – P. 1587-1589. – DOI: 10.1364/OL.35.001587.
28. **Hwang, J.** A single-molecule optical transistor / J. Hwang, M. Pototschnig, R. Lettow, G. Zumofen, A. Renn, S. Götzinger, V. Sandoghdar // 2009 IEEE LEOS Annual Meeting Conference Proceedings. – 2009. – 286. – DOI: 10.1109/LEOS.2009.5343277.
29. **Andreakou, P.** Optically controlled excitonic transistor / P. Andreakou, S.V. Poltavtsev, J.R. Leonard, E.V. Calman, M. Remeika, Y.Y. Kuznetsova, L.V. Butov, J. Wilkes, M. Hanson, A.C. Gossard // Applied Physics Letters. – 2014. – Vol. 104(9). – 091101. – DOI: 10.1063/1.4866855.
30. **Jain, K.** Optical transistor / K. Jain // Applied Physics Letters. – 1976. – Vol. 28(12). – P. 719. – DOI: 10.1063/1.88627.

Сведения об авторах

Стороженко Дмитрий Викторович, 1985 года рождения, окончил в 2007 году Владивостокский университет экономики и сервиса по специальности «Бытовая радиоэлектронная аппаратура», квалификация инженер. С 2013 года кандидат технических наук. В настоящее время младший научный сотрудник Института автоматизации и процессов управления ДВО РАН в лаборатории прецизионных оптических методов измерений. Область научных интересов: нелинейная оптика, математическая физика, моделирование оптических систем. E-mail: dbrados@dvo.ru.

Дзюба Владимир Пименович, 1947 года рождения, в 1974 году окончил Дальневосточный государственный университет по специальности «Физика». С 2003 года доктор физико-математических наук. В настоящее время главный научный сотрудник Института автоматизации и процессов управления ДВО РАН в лаборатории прецизионных оптических методов измерений. Область научных интересов: акустика, квантовая и нелинейная оптика, нанофотоника, математическая физика. E-mail: vdzyuba@dvo.ru.

Кульчин Юрий Николаевич, действительный член Российской академии наук по Отделению нанотехнологий и информационных технологий РАН, доктор физико-математических наук, профессор, заместитель председателя ДВО РАН, директор Института автоматизации и процессов управления ДВО РАН. Известный специалист

в области фотоники нано-и микроструктур и нанотехнологии, автор и соавтор более 400 научных работ, из них 6 монографий и 24 авторских свидетельства и патента. E-mail: kulchin@dvo.ru.

Амосов Андрей Владимирович, 1988 года рождения, в 2010 году окончил Дальневосточный государственный технический университет по специальности «Квантовая и оптическая электроника», работает инженером-программистом в лаборатории прецизионных оптических методов измерения ИАПУ ДВО РАН. Область научных интересов: нанофотоника, физика твердого тела. E-mail: amosov.andrei@mail.ru.

ГРТИ 29.33.25

Поступила в редакцию 4 июля 2016 г. Окончательный вариант – 30 ноября 2016 г.

EXCITONIC OPTICAL NONLINEARITY OF DIELECTRIC NANOCOMPOSITES IN WEAK OPTICAL FIELDS

D.V. Storozhenko¹, V.P. Dzyuba¹, Y.N. Kulchin^{1,2}, A.V. Amosov¹

¹Institute of Automation and Control Processes, FEB Russian Academy of Sciences, Vladivostok, Russia,

²Far Eastern Federal University, Vladivostok, Russia

Abstract

The paper presents a model of optical nonlinearity in a dielectric nanocomposite for wavelengths ranging from 200 to 800 nm and intensities of up to 1000 W/cm². Results of the numerical modeling of the optical response in a nanocomposite consisting of dielectric nanoparticles Al₂O₃ with low volume concentration (of the order of 0.3%) embedded in a transparent dielectric liquid matrix are presented. It is found that with the volume concentration remaining unchanged, the value of nonlinear response in unit volume increases with decreasing nanoparticles size. The spectrum of the nonlinear extra term of the refractive index is shown to be affected by various parameters, such as the size and anisotropy of nanoparticles. It is notable that for 45-nm Al₂O₃ nanoparticles with 0.3% volume concentration the value of the nonlinear optical response reaches 1.5 · 10⁻⁴ cm²/W near the resonant absorption band.

Keywords: exciton; optical nonlinearity; dielectric composites; optical spectrums; nanoparticles; refraction index; resonant susceptibility.

Citation: Storozhenko DV, Dzyuba VP, Kulchin YN, Amosov AV. Excitonic optical nonlinearity of dielectric nanocomposites in weak optical fields. *Computer Optics* 2016; 40(6): 855-862. DOI: 10.18287/2412-6179-2016-40-6-855-862.

Acknowledgment: The work is partially funded by grants of the Fundamental Research Program of the Far Eastern Branch of the Russian Academy of Sciences (No. 0262-2015-0094, No. 0262-2015-0059).

References

- [1] Ganeev RA, Usmanov T. Nonlinear optical parameters of various media. *Quantum Electronics* 2007; 37(7): 605-622.
- [2] Kulchin YN, Dzyuba VP, Scherbakov AV. Light transmission spectrum of the dielectric nanoparticles inserted into a dielectric matrix. *Semiconductors* 2009; 43(3): 331-339. DOI: 10.1134/S1063782609030130.
- [3] Dzyuba V, Kulchin Y, Milichko V. Effect of the shape of a nano-object on quantum-size states. *Journal of nanoparticle research* 2012; 14(11): 1208. DOI 10.1007/s11051-012-1208-7.
- [4] Divya S, Sebastian I, Nampoori VPN, Radhakrishnan P, Mujeeb A. Tailoring optical properties of TiO₂ in silica glass for limiting applications. *Chinese Physics B* 2014; 23(3): 034210. DOI: 10.1088/1674-1056/23/3/034210.
- [5] Yan X-Y, Zhang K-X, Yao C-B, Li Q-H. Ultrafast nonlinear optical properties and optical Kerr effect of In-doped ZnO nanowires. *Materials Letters* 2016; 176: 49-51. DOI:10.1016/j.matlet.2016.04.058.
- [6] Sivasubramanian D, Ponnusamy R, Gandhiraj V. Low power optical limiting and thermal lensing in Mn doped ZnO nanoparticles. *Material Chemistry and Physics* 2015; 159: 93-100. DOI:10.1016/j.matchemphys.2015.03.056.
- [7] Koushki E, Farzaneh A, Majles Ara MH. Modeling absorption spectrum and saturation intensity of ZnO nano-colloid. *Optik* 2013; 125(1): 220-223. DOI:10.1016/j.ijleo.2013.06.007.
- [8] Kim HS, Lee MH, Jeong NC, Lee SM, Rhee BK, Yoon KB. Very high third-order nonlinear optical activities of intrazeolite PbS quantum dots very high third-order nonlinear optical activities of intrazeolite PbS. *J Am Chem Soc* 2006; 128(47): 4-6. DOI: 10.1021/ja0661966.
- [9] Dzyuba VP, Krasnok AE, Kulchin YN. Nonlinear refractive index of dielectric nanocomposites in weak optical fields. *Tech Phys Lett* 2010; 36(11): 973-977. DOI: 10.1134/S1063785010110015.
- [10] Ganeev RA, Suzuki M, Baba M, Ichihara M, Kuroda H. Low- and high-order nonlinear optical properties of BaTiO₃ and SrTiO₃ nanoparticles. *J Opt Soc Am B* 2008; 25(3): 325-333. DOI: 10.1364/JOSAB.25.000325.
- [11] Dneprovskii V, Smirnov A, Kozlova M. Self-diffraction of ultrashort laser pulses under resonant excitation of excitons in a colloidal solution of CdSe/ZnS quantum dots. *Quantum Electronics* 2013; 43(10): 927-930.
- [12] Dneprovskii VS, Zhukov EA, Kozlova MV, Wumaier T, Hieu DS, Artem'ev MV. Absorption saturation and self-action processes under resonant excitation of the basic exciton transition in CdSe/ZnS colloidal quantum dots. *Physics of the Solid State* 2010; 52(9): 1941-1946.
- [13] Dzyuba V, Kulchin Y, Milichko V. Photonics of heterogeneous dielectric nanostructures. Ch 15. In Book: Ebrahimi, F, ed. *Nanocomposites – New Trends and Developments*. InTech; 2012. ISBN: 978-953-51-0762-0, DOI: 10.5772/50212.
- [14] Milichko VA, Nechaev AI, Valtsifer VA, Strelnikov VN, Kulchin YN, Dzyuba VP. Photo-induced electric polarizability of Fe₃O₄ nanoparticles in weak optical fields. *Nanotechnology* 2016; 27(12): 125701. DOI: 10.1088/0957-4484/27/12/125701.

- noscale Research Letters 2013; 8(1): 317. DOI: 10.1186/1556-276X-8-317.
- [15] Kupchak IM, Kruchenko YuV, Korbutyak DV. Exciton states and photoluminescence of Si and Ge nanocrystals in Al₂O₃ matrix. Semiconductors 2008; 42(10): 1194-1199. DOI: 10.1134/S1063782608100096.
- [16] He J, Ji W, Ma GH, Tang SH, Elim HI, Sun WX, Zhang ZH, Chin WS. Excitonic nonlinear absorption in CdS nanocrystals studied using Z-scan technique. J Appl Phys 2004; 95(11): 6381-6386. DOI: 10.1063/1.1711183.
- [17] Milichko V, Dzuba V, Kulchin Y. Unusual nonlinear optical properties of SiO₂ nanocomposite in weak optical fields. Applied Physics A 2013; 111(1): 319-322. DOI 10.1007/s00339-013-7609-3.
- [18] Milichko VA, Dzyuba VP, Kulchin YN. Anomalous optical nonlinearity of dielectric nanodispersions. Quantum Electronics 2013; 43(6): 567-573. DOI:10.1070/QE2013v043n06ABEH015171.
- [19] Kulchin YN, Dzyuba VP, Milichko VA. Dielectric nanosystems with unique optical properties. Advanced Materials Research 2013; 677: 36-41. DOI:10.4028/www.scientific.net/AMR.677.36.
- [20] Dzyuba VP, Krasnok AE, Kulchin YN, Dzyuba IV. A model of nonlinear optical transmittance for insulator nanocomposites. Semiconductors 2011; 45(3): 295-301. DOI: 10.1134/S1063782611030109.
- [21] Derbov VL, Serov VV, Teper NI. Investigation of hydrogen atom radiation under the action of Ti:Sapphire laser. Computer Optics 2010; 34(2): 156-161.
- [22] Alimenkov IV. Automodulation of one-dimensional waves based on nonlinear schredingger equation with nonlinearity cubic-quintic type. Computer Optics 2012; 36(1): 34-36.
- [23] Nguyen DT, Voisin C, Roussignol P, Roquelet C, Lauret JS, Cassabois G. Excitonic nonlinearities in single-wall carbon nanotubes. Physica Status Solidi (B) 2012; 249(5): 907-913. DOI:10.1002/pssb.201100064.
- [24] Agekyan VF, Serov AY, Filosofov NG, Vorob'ev LE, Melentyev GA, Shalygin VA, Nykänen H, Suihkonen S. Excitonic spectra and electrical conductivity of epitaxial silicon-doped GaN layers. Physics of the Solid State 2013; 55(2): 296-300.
- [25] Shen YR. The principles of nonlinear optics. New York: John Willey & Sons; 1984.
- [26] Dzyuba VP, Kulchin YN, Amosov AV. The theory of heterogeneous dielectric nanostructures with non-typical low-threshold nonlinearity. Pacific Science Review A: Natural Science and Engineering 2015; 17(2): 41-47. DOI: 10.1016/j.psra.2015.12.005.
- [27] Kuznetsova YY, Remeika M, High AA, Hammack AT, Butov LV, Hanson M, Gossard AC. All-optical excitonic transistor. Optics Letters 2010; 35(10): 1587-1589. DOI:10.1364/OL.35.001587.
- [28] Hwang J, Pototschnig M, Lettow R, Zumofen G, Renn A, Götzinger S, Sandoghdar V. A single-molecule optical transistor. 2009 IEEE LEOS Annual Meeting Conference Proceedings 2009; 286. DOI: 10.1109/LEOS.2009.5343277.
- [29] Andreakou P, Poltavtsev SV, Leonard JR, Calman EV, Remeika M, Kuznetsova YY, Butov LV, Wilkes J, Hanson M, Gossard AC. Optically controlled excitonic transistor. Applied Physics Letters 2014; 104(9): 091101. DOI: 10.1063/1.4866855.
- [30] Jain K. Optical transistor. Applied Physics Letters 1976, 28(12): 719. DOI: 10.1063/1.88627.

Authors' information

Dmitry Viktorovich Storozhenko (b. 1985), graduated in 2007 from Vladivostok University of Economics and Service majoring in "Radio-electronic equipment". Since 2013, PhD of technical sciences. Currently, Junior Researcher of the Institute of Automation and Control Processes FEB RAS in the Laboratory of Precision Optical Measurement Methods. Research interests: nonlinear optics, mathematical physics, modeling of optical systems. E-mail: dbrados@dvo.ru.

Vladimir Pimenovich Dzyuba (b. 1947), graduated in 1974, he graduated from Far Eastern State University majoring in "Physics". Since 2003, Doctor of Physical and Mathematical Sciences. Currently, the main researcher of the Institute of Automation and Control Processes FEB RAS in the Laboratory of Precision Optical Measurement Methods. Research interests acoustics, quantum and nonlinear optics, nanophotonics, mathematical physics. E-mail: vdzyuba@dvo.ru.

Yuri Nikolaevich Kulchin, member of the Russian Academy of Sciences in the Division of Nanotechnologies and Information Technologies, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor, Vice Chairman of the FEB RAS, Director of the Institute of Automation and Control Processes FEB RAS. Known in the field of photonics specialist nano and microstructures and nanotechnology, author and co-author of over 400 scientific works, including 6 monographs and 24 patents. E-mail: kulchin@dvo.ru.

Andrey Vladimirovich Amosov, (b. 1988) graduated from Far Eastern State Technical University in 2010 majoring in "Quantum and optical electronics". Currently he works as the engineer at the Laboratory of Precision Optical Measurement Methods in IACP FEB RAS. Research interests: nanophotonics, solid-state physics. E-mail: amosov.andrei@mail.ru.

Received July 4, 2016. The final version – November 30, 2016.