ЖЭТФ, 2011, том 139, вып. 4, стр. 738–745

САМОИНДУЦИРОВАННАЯ ПЛАЗМОН-ЭКСИТОННАЯ ПРОЗРАЧНОСТЬ

А. А. Заболотский[*]

Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук 630090, Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 24 июня 2010 г.

Изучается возможность формирования устойчивых связанных плазмон-экситонных состояний в протяженном металлическом цилиндре, окруженном двухуровневой средой. Для описания динамики плазмонов используется гидродинамическое приближение. Показано, что при выполнении ряда приближений уравнения движения сгустков зарядовой плотности и уравнения Блоха для двухуровневой среды приводятся к интегрируемым уравнениям как для поперечных, так и для продольных плазмонов. В первом случае после применения приближения медленных огибающих исходная система уравнений приводится к уравнениям, эквивалентным уравнениям Максвелла – Блоха. Во втором случае уравнения описывают волновую динамику вне рамок приближения медленных огибающих. Применение приближения однонаправленности распространения волн позволило свести исходную систему к уравнениям, родственным редуцированным уравнениям Максвелла – Блоха. Солитонные и бризероподобные решения полученных уравнений описывают явление плазмон-экситонной самоиндуцированной прозрачности.

1. ВВЕДЕНИЕ

Усиление локального электромагнитного поля вблизи металлических наночастиц приводит к многим новым и интересным явлениям в оптике [1] и плазмонике, которые связаны с изменением характеристик резонансного излучения, поглощения или дисперсии света из-за пространственной локализации резонансных плазмонов [1–3]. К ним относятся поверхностное гигантское комбинационное рассеяние [2] и усиление флуоресценции [3] вблизи наночастиц, эффективная генерация фототока [4] и пр.

Сильное взаимодействие локализованных плазмонов и экситонов в молекулярных слоях, адсорбированных тонким слоем красителя, которое выявлено и изучено, например, в работе [5], может приводить к нелинейностям, способствующим образованию солитонов и более сложных нелинейных импульсов за счет передачи энергии от возбужденных молекул к поверхностным плазменным колебаниям. Явления, включающие трансформацию энергии поверхностных плазмонов в вынужденное излучение света, проявляют, в соответствии с рядом теоретических предположений, свойства, аналогичные лазерным [6]. Физические механизмы, приводящие к изменению флуоресценции в окрестности металлических наночастиц и поддерживающие колебания поверхностных плазмонов, при определенных условиях могут, как считают ряд авторов, приводить к когерентной генерации света, см. работы [6–8] и ссылки в них. Такие среды с оптической усиливающей средой, находящейся в непосредственной близости от металлических наноструктур, получили названия «спазеров» (spaser) [6].

Поверхностные плазмоны-поляритоны — распространяющиеся на поверхности металла связанные колебания электронов и света — имеют большой потенциал в качестве носителей информации следующего поколения с высокой степенью интеграции нанофотонных устройств [9, 10]. Сверхбыстрые фемтосекундные переключения и небольшие значения энергии переключения [11] открывают новые возможности, которые, в конечном счете, могут быть реализованы в нелинейной плазмонике [12] в виде формирования импульсов и их самомодуляции в нелинейном режиме распространения. Сверхбыстрая нелинейность может стать отправной точкой для применения в качестве носителей информации плазмонов — поляритонных аналогов оптических солитонов.

[*]E-mail: zabolotskii@iae.nsk.su

В протяженных однородных металлических средах, таких как тонкие стержни и пластинки, важны эффекты распространения локализованных сгустков плазменных осцилляций. Условие компенсации потерь в металле посредством накачки резонансного перехода диэлектрической среды, расположенной вблизи, дает возможность наблюдения когерентных эффектов, формирования солитоноподобных связанных состояний фотонов и плазмонных осцилляций и их распространения. В последнее время ведется интенсивное теоретическое исследование плазмон-поляритонных солитоноподобных структур и условий их формирования (см., например, работы [13, 14]), в том числе импульсов длительностью, много меньшей световой [15].

Для нанотехнологических приложений требуются среды с меньшей размерностью и большей нелинейной связью между светом и средой. Нелинейная связь, как правило, сильнее для импульсов с меньшей групповой скоростью. Известно, что групповые скорости волн зарядовой плотности и акустических плазмонов на несколько порядков меньше скорости света в среде. Поэтому изучение нелинейных процессов, связанных с формированием импульсов медленными волнами зарядовой плотности [16], акустическими плазмонами [17], распространяющимися с групповой скоростью, близкой к скорости Ферми [18, 19], представляют практический интерес.

Цель настоящей работы состоит в построении самосогласованных моделей динамики локализованных пакетов плазмон-экситонных волн в системе, состоящей из длинных тонких металлических стержней, окруженных двухуровневой средой (ДУС). В качестве образца рассматриваем среду, состоящую из длинного цилиндрического металлического стержня с длиной L, радиусом r, окруженного концентрическим цилиндром с внутренним r и внешним $l + r$ радиусами, так что $r \sim l \sim 10$ нм. Внешний цилиндр однородно заполнен усиливающей ДУС.

2. ГИДРОДИНАМИЧЕСКОЕ ПРИБЛИЖЕНИЕ

Описываем коллективное движение электронов в металлическом цилиндре в рамках гидродинамической модели, см., например, [20]. В этой модели коллективное движение электронов в произвольной неоднородной системе выражается в терминах электронной плотности $n(\mathbf{r},t)$ и гидродинамической скорости $\mathbf{v}(\mathbf{r},t)$, которые в предположении безвихревого движения выражается в виде градиента потенциала скорости $\psi(\mathbf{r},t)$, так что $\mathbf{v}(\mathbf{r},t) = -\boldsymbol{\nabla}\psi(\mathbf{r},t)$. Основные гидродинамические уравнения (уравнение неразрывности и уравнение Бернулли) в присутствии внешней силы имеют вид

$$\frac{d}{dt}n_e(\mathbf{r},t) = \boldsymbol{\nabla}\cdot[\boldsymbol{\nabla}\psi(\mathbf{r},t)\; n_e(\mathbf{r},t)] \qquad (1)$$

и

$$\frac{d}{dt}\psi(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2}\,\boldsymbol{\nabla}\psi(\mathbf{r},t)\cdot\boldsymbol{\nabla}\psi(\mathbf{r},t) + {} + \frac{\delta T_F(n_e)}{\delta n_e} + U(\mathbf{r},t), \qquad (2)$$

где $T_F(n_e)$ — внутренняя кинетическая энергия, которая часто аппроксимируется функционалом Томаса–Ферми как

$$T_F(n_e) = \frac{3\hbar^2}{10m}\,(3\pi^2)^{2/3}\,[n_e(\mathbf{r},t)]^{5/3}, \qquad (3)$$

$$U(\mathbf{r},t) = \frac{e}{m}\left[\boldsymbol{\nabla}^{-1}\cdot\mathbf{E} - \phi_i(\mathbf{r},t)\right]. \qquad (4)$$

Уравнения Пуассона имеют вид

$$\Delta\phi_e(\mathbf{r},t) = 4\pi\, e\, n_e(\mathbf{r},t), \qquad (5)$$

где $\mathbf{E}$ — амплитуда электромагнитного поля, действующего на наноплазму, m и e — соответственно масса и заряд электрона, ϕ_e — электронный потенциал. Как правило, смещением ионов можно пренебречь [20]. Считаем, что начальная плотность электронного облака $n_e(\mathbf{r},0) = \mathrm{const}$.

Гидродинамические уравнения (1)–(5) — нелинейные уравнения, которые существенно упрощаются при использовании теории возмущений по отношению к малым возмущениям $n_1(\mathbf{r},t)$ и $\psi_1(\mathbf{r},t)$:

$$n_e(\mathbf{r},t) = n_0(\mathbf{r}) + n_1(\mathbf{r},t) + \ldots \qquad (6)$$

и

$$\psi(\mathbf{r},t) = 0 + \psi_1(\mathbf{r},t) + \ldots \qquad (7)$$

3. ПОПЕРЕЧНЫЕ ПЛАЗМОННЫЕ КОЛЕБАНИЯ

Считаем, что металлические стержни расположены в плоскости $z = 0$, их оси направлены по оси x и они достаточно, для пренебрежения взаимодействием между ними, удалены друг от друга. Рассматриваем поперечные колебания электронной жидкости. Обозначим $\boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r},t)$ смещение сгустка зарядов вдоль оси z, распространяющегося вдоль оси цилиндра, направленной вдоль оси x, так что $\partial_t \boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r}, t) = v(\mathbf{r}, t)$.

Из системы (1)–(7) находим, что

$$n_1(\mathbf{r}, t) = -\boldsymbol{\nabla}\left[n_0(\mathbf{r})\zeta(\mathbf{r}, t)\right] \tag{8}$$

и

$$\frac{d^2}{dt^2}\boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r}, t) = \frac{v_F^2(\mathbf{r}, t)}{n_0(\mathbf{r})}\Delta\left[n_0(\mathbf{r})\boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r}, t)\right] + \mathbf{F}(\mathbf{r}, t) + \\ + \frac{\boldsymbol{\nabla}^{-1}}{n_0}\widehat{W}_1(\mathbf{r})\,\left[n_0(\mathbf{r})\boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r}, t)\right], \tag{9}$$

где $\mathbf{F} = -e\mathbf{E}_p/m$ и

$$v_F^2(\mathbf{r}) = \frac{\hbar^2}{2m}(3\pi^2)^{2/3} n_0(\mathbf{r})^{5/3}, \tag{10}$$

$$\widehat{W}_1(\mathbf{r}) = \frac{v_F^2}{n_0}\boldsymbol{\nabla} n_0 \cdot \boldsymbol{\nabla} + \left[\boldsymbol{\nabla} n_0(\mathbf{r}) \cdot \boldsymbol{\nabla} + n_0(\mathbf{r})\Delta\right] \times \\ \times \left[\frac{v_F^2(\mathbf{r})}{n_0(\mathbf{r})}\right] + 2\boldsymbol{\nabla}\left[\frac{v_F^2(\mathbf{r})}{n_0(\mathbf{r})}\right] \cdot \boldsymbol{\nabla}. \tag{11}$$

Считая плотность $n_0(\mathbf{r})$ практически однородной, пренебрегаем вкладом оператора $\widehat{W}_1$. В общем случае, однако, неоднородность $n_0(\mathbf{r})$ может изменить динамику плазмон-экситонных импульсов критическим образом.

Рассматриваем волновые пакеты с характерной длиной, много большей радиуса цилиндра. Это позволяет применить приближение недеформируемого в направлении z столба электронной жидкости, т. е. площадь его сечения (перпендикулярного оси x) неизменна. В данном приближении эволюция пакета плазмонных осцилляций описывается функцией $\boldsymbol{\zeta}(x, t)$. Динамика электронов в среде определяется начальной внешней силой и электрическими полями, генерируемыми плазмон-экситонными импульсами, эволюционирующими на фоне основного состояния $n_1 = 0$.

Для усиливающей среды, заполняющей концентрическую оболочку стержня, применяем приближение ДУС, которая описывается матрицей плотности $\widehat{r}$. Матричный элемент r_{12} описывает переход между основным $|2\rangle$ и возбужденным $|1\rangle$ состояниями, r_{22} и r_{11} — заселенности этих уровней и $\rho_0 = r_{11} - r_{22}$. В средах с постоянным дипольным моментом, таких как J-агрегаты красителей, направление дипольного момента определяется внутренним электрическим полем. Пусть для простоты это поле направлено по оси z. Для среды без постоянного дипольного момента считаем, что начальная поляризация затравочного электрического поля, вызывающего изменение распределения зарядовой плотности вдоль стержня, направлена вдоль оси z. В этом случае поляризация каждой молекулы имеет вид

$$\langle 1|\,\mathbf{p}\,|2\rangle = -\left[\mathbf{d}_{21}\rho_{12}(x, t) + \mathbf{d}_{21}^*\rho_{12}^*(x, t)\right], \tag{12}$$

где вектор дипольного момента $\mathbf{d}_{21} = e\,\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle = (0, 0, d_{12})$.

Применяя приближения вращающейся волны и одномерной среды, представим функции в следующем виде:

$$r_{21}(x, t) = \rho_{21}(x, t)\exp(i\omega t - ikx) + \text{c.c.}, \tag{13}$$

$$\boldsymbol{\zeta}(x, t) = \left[0, 0, \frac{v_F \mathcal{Z}(x, t)}{\omega}\exp(i\omega t - ikx)\right] + \text{c.c.}, \tag{14}$$

$$\mathbf{F}(x, t) = \left[0, 0, v_F \omega f(x, t)\exp(i\omega t - ikx)\right] + \text{c.c.} \tag{15}$$

Здесь ω и k — соответственно несущие частота и волновой вектор, $\rho_{21}(x, t)$, $\mathcal{Z}(x, t)$ и $f(x, t)$ — медленные огибающие. Считаем, что характерный размер пакета сгустка плазменных осцилляций l_p больше $v_F/\omega \sim 10^{-8}$–10^{-7} м и много меньше длины среды L, которая может быть порядка 1 мкм. Для групповой скорости пакета v_F время пробега стержня порядка 1 пс. Для таких масштабов пренебрегаем релаксационными эффектами в ДУС.

Вводим безразмерные переменные $\tau = \omega(t - x/v_F)$, $\chi = x\omega v_F^{-1}$. Сила, действующая на плазму,

$$f(\chi, \tau) = -eE_p(\chi, \tau)(m\omega v_F)^{-1}$$

определяется суммой электрических полей:

$$E_p = E_{d\to p} + E_{p\to p} + NE_{p\to p}, \tag{16}$$

где $E_{d\to p}$ и $E_{p\to p}$, $NE_{p\to p}$ — соответственно z-компоненты поля индуцированных диполей молекул ДУС, линейной и нелинейной (по $\mathcal{Z}$) частей электрического поля, являющихся следствием самодействия облака электронов, вызванного смещением по отношению к ионному остову.

Стандартные вычисления дают

$$E_{p\to p} = \frac{m\omega_p^2}{e\omega^2}\mathcal{Z}(\chi, \tau), \tag{17}$$

где $\omega_p^2 = 4\pi\, e^2 n_0/m$ — плазменная частота.

Для оценки поля $E_{d\to p}$ считаем, что диполи резонансных переходов ДУС коллинеарны, направлены по нормали к оси. В общем случае взаимодействие нелокально. Однако для простоты полагаем, что масштаб изменения $\langle 1|\,\mathbf{p}(\chi,\tau)\,|2\rangle$, т. е. характерный размер плазмон-экситонных импульсов много больше l и r, а также много меньше L. Интегрирование дает следующее приближенное выражение для поля диполей ДУС на оси цилиндра:

$$E_{d\to p}(x,t) \approx f_d 4\pi n_d d_{21}\rho_{12}(\chi,\tau), \tag{18}$$

где константа $f_d = L/(r+L)+\ln(1+r/L)$ и d_{21} — плотность молекул. Это выражение не учитывает неоднородное уширение, температурные эффекты и пр., уменьшающие связь между плазмоном и экситоном. Поэтому далее, для оценки, полагаем $f_d \sim 10^{-1}$.

Представим медленную огибающую z-компоненты электрического поля, действующую на ДУС, в виде

$$E_d(\chi,\tau) = \frac{\omega_p^2 m}{e} \times \\ \times \left[\frac{f_p v_F \mathcal{Z}(\chi,\tau)}{\omega} + \frac{n_d}{n_0}\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle\,\rho_{12}\right], \tag{19}$$

где положительная константа $f_p \sim 1$–10^{-1}. Вкладом нелинейного самодействия плазмы в это поле можно пренебречь. Как правило, $n_d \ll n_0$, поэтому вторым членом в правой части (19) также пренебрегаем.

Рассматриваем временной интервал, на котором релаксацией ДУС можно пренебречь. Подставив эти выражения для полей в уравнение (9) и в уравнения Блоха для ДУС [21], в рамках приближения медленных огибающих получаем систему уравнений

$$\frac{\partial}{\partial\tau}\rho_{21} = i\mu\rho_{21} - iZ\rho_0, \tag{20}$$

$$\frac{\partial}{\partial\tau}\rho_0 = i\left(Z\rho_{21}^* - Z^*\rho_{21}\right) - 4p_0, \tag{21}$$

$$\frac{d}{d\chi}Z(\chi,\tau) + i\left(\frac{k}{q} - 1 + \nu\right)Z(\chi,\tau) = \\ = -i\alpha_1\alpha_2\rho_{21}(\chi,\tau), \tag{22}$$

где p_0 — феноменологическая константа, описывающая накачку верхнего уровня ДУС, $Z = \alpha_1\mathcal{Z}$,

$$\alpha_1 = f_p\nu\frac{m v_F\,\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle}{2\hbar}, \quad \alpha_2 = f_d\nu\frac{\xi\omega\,\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle}{\sqrt{1-\nu}\,v_F}, \\ \nu = \frac{\omega_p^2}{\omega^2}, \quad \mu = \frac{\omega_d}{\omega} - 1. \tag{23}$$

В (23) ω_d — частота перехода, $\xi = n_d/n_0$ и учтено, что модуль волнового вектора k определяется (без учета потерь) дисперсионным соотношением $|k| = \omega\sqrt{1-\nu}\,v_F^{-1}$.

Полученная в итоге система уравнений (20)–(22) без учета накачки ($p_0 = 0$) и фазового сдвига в уравнении (22) эквивалентна уравнениям Максвелла – Блоха, описывающим явление самоиндуцированной прозрачности света в ДУС. Солитонные решения этой системы описывают связанное состояние электромагнитного поля и среды, распространяющееся в виде локализованного волнового пакета, устойчивого к малым возмущениям [21]. Для солитонов характерно большее время жизни в поглощающей среде, чем для плоской волны. Возможно, этим объясняется увеличение длины пробега плазмона в присутствии поглощающей ДУС, обнаруженное экспериментально в работе [8].

Для $p_0 = 0$ простейшее солитонное решение имеет вид [21]

$$|Z(\chi,\tau)| = \frac{2\eta_1}{\operatorname{ch}\left[\eta_1\left(\tau - \chi v^{-1}\right)\right]}, \tag{24}$$

где η_1 — действительное число, $v = (\eta_1^2 + \mu^2)^{-1}$ — групповая скорость солитона. Характерный масштаб, на котором проявляются нелинейные эффекты, определяется коэффициентом $\alpha_0(\nu) = \sqrt{\alpha_1(\nu)\alpha_2(\nu)}$. Для $\omega_p = 10^{15}$ с$^{-1}$, $|\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle| \sim 10^{-10}$ м оценка дает временной масштаб перехода от линейного режима к нелинейному:

$$t_n = (\omega\alpha_0)^{-1} \sim \frac{(1-\nu)^{1/4}}{10^2\omega\sqrt{\xi}\nu^{-1}}.$$

При $\nu \to 1$ величина t_n уменьшается, т. е. в этой области солитоны формируются быстрее.

Из оценки групповой скорости солитона v_g с длительностью $\eta_1^{-1} = t_s\omega$

$$\frac{v_F}{v_g} \approx 1 + \frac{10^4\nu^2\xi t_s^2\omega^2}{\sqrt{1-\nu}\,(1+\mu^2 t_s^2\omega^2)} \tag{25}$$

следует, в частности, что при $\nu \to 1$ скорость солитона уменьшается.

Учет накачки ($p_0 \neq 0$) для точного резонанса ($\mu = 0$) приводит к зависимости солитонного параметра η_1 от χ в виде [22]

$$\eta_1(\chi) = \sqrt{2p_0\chi + \eta_1(0)^2}. \tag{26}$$

Из этого следует рост амплитуды солитона и соответствующее уменьшение его длительности.

Возбуждение солитоноподобных пакетов вблизи концов стержня может быть выполнено с помощью ближнепольного микроскопа. Экспериментально нелинейные эффекты в такой усиливающей среде могут наблюдаться и при возбуждении плазмонных осцилляций вдоль всего стержня внешним слабым электрическим полем.

В усиливающей среде возможно развитие модуляционной неустойчивости, которая приводит к образованию квазистационарной периодической решетки плазмон-поляритонных импульсов. Известно, что эта неустойчивость приводит к удвоению периода. Поэтому следует ожидать возникновения периодических решеток в распределении плазмонов при их возбуждении вдоль всего стержня внешним затравочным слабым полем. Этот процесс на начальной стадии и для слабых возмущений может быть моделирован периодическим однофазным решением со слабо изменяющимися параметрами [23], которое описывает периодическое пространственно-модулированное смещение электронного облака — деформирующуюся со временем стоячую волну. При этом локализованные плазмоны образуют одномерную решетку и генерируют когерентное излучение как пакеты осциллирующих диполей. Поэтому существование плазмонных решеток можно экспериментально подтвердить селективной угловой направленностью излучения плазмонов. Начальное положение максимумов $\boldsymbol{\zeta}(x,0)$ может быть задано положением максимумов амплитуды затравочного слабого электромагнитного поля, падающего под углом к оси x. Пусть на длине L стержня возникло N_p периодически расположенных максимумов. Условие когерентности определяет угол между направлением с максимальной интенсивностью излучения диполей и осью стержня:

$$\theta = \arccos\frac{\pi N_p}{L k_p}, \qquad (27)$$

где k_p — длина волнового вектора излучаемой диполями световой волны. Для длины стержня, меньшей π/k_p, излучение плазмонных диполей будет практически однородно по углу θ. Экспериментально существование плазмонных решеток в наностержнях обнаружено в работе [24].

4. ПРОДОЛЬНЫЕ АКУСТИЧЕСКИЕ ПЛАЗМОНЫ

Рассмотрим продольное смещение сгустка зарядовой плотности n_1, однородное по сечению цилиндра. Из уравнений (1)–(7) получаем для однородной невозмущенной плотности электронов $n_0(\mathbf{r}) = \mathrm{const}$ линеаризованное уравнение

$$\frac{d^2}{dt^2}n_1 = v_F^2\Delta n_1 - \frac{e^2}{m}n_0\boldsymbol{\nabla}^2\phi_e + \boldsymbol{\nabla}\cdot(n_0\mathbf{F}), \qquad (28)$$

где $\mathbf{F} = e\mathbf{E}_e/m$, $\mathbf{E}_e$ — внешнее электрическое поле [20].

Для оценки величины слагаемых в правой части уравнения (28) рассмотрим дисперсионное соотношение для одномерных продольных плазмонов, распространяющихся в наностержне. Без учета внешней силы дисперсионное соотношение имеет вид [25]

$$\omega^2 = \frac{2\pi n_0 e^2}{m\varepsilon_s}\ln\left(\frac{2}{kr_0}\right)(kr_0)^2 + v_F^2k^2, \qquad (29)$$

где ω — частота, k — x-компонента волнового вектора. Здесь и далее игнорируем зависимости от z и y. Отметим, что дисперсионное соотношение (29) было подтверждено экспериментально [26]. Таким образом, для наносистем размером $r \sim 10$ нм первым членом в правой части уравнения (29) можно пренебречь почти для всех k ($k \neq 0$) по сравнению с членом, содержащим множитель v_F^2. Этот факт позволяет доказать, что вклад второго члена в правой части уравнения (28) также пренебрежимо мал.

Среднее электрическое поле $\mathbf{E}_m$, действующее на ДУС — сумма поля молекулярных диполей $\mathbf{E}_d$ и поля зарядов $\mathbf{E}_p$ с локальной плотностью $n_1(t,x)$. Для оценки последнего считаем, что эффективная длина возмущения плотности $n_1(t,x)$ электронов гораздо больше, чем r_0 и l_0 ($r_0 \approx l_0$). В этом случае вклад второго поля можно оценить по формуле Гаусса, пренебрегая в нулевом приближении динамическими эффектами, имеющими порядок v_g/c_m, где v_g — групповая скорость волн зарядовой плотности, c_m — скорость света в среде. Мы не учитываем также излучение движущихся зарядов, считая, что $v_g/c_m \ll 1$, см. ниже. Направленное по оси z поле возмущения зарядовой плотности, имеющей вид длинного цилиндра с радиусом r на расстоянии $l/2$ от границы этого цилиндра, имеет вид

$$E_p = \frac{4\pi n_1(t,x)e_z r^2}{l+2r} \sim 4\pi n_1(t,x)r_1,$$

где r_1 — некоторое эффективное расстояние, $\mathbf{E}_p = (0,0,E_p)$.

Как и выше, пренебрегаем релаксационными процессами и самодействием диполей. Среднее поле диполей ДУС имеет вид $E_d = 4\pi P(x,t)$, где $P(x,t) = n_d p(x,t)$ — поляризуемость среды, n_d — объемная плотность молекул ДУС. Поляризуемость двухуровневой молекулы p дается выражением $p = \mathrm{tr}\,\hat\rho\hat d$, где $\hat d$ — матрица дипольного момента. Введем безразмерные переменные

$$\widetilde\tau = \omega_d t, \quad \mathcal{E} = \frac{DE_p}{\hbar\omega_d}$$

и

$$\mu = \frac{d_{11} - d_{22}}{D}, \quad d = \frac{2d_{12}}{D}, \tag{30}$$

где

$$E_p = 4\pi n_1(x,t) r_1, \quad D = \sqrt{(d_{11} - d_{22})^2 + 4d_{12}^2}.$$

В этом разделе изучаем эволюцию нелинейных волновых пакетов вне приближения медленных амплитуд. Для упрощения уравнения движения плотности (28) используем приближение однонаправленного распространения, применение которого возможно для волн с групповой скоростью, близкой к скорости Ферми. Это предположение хорошо согласуется с результатами ряда экспериментальных и теоретических работ, см., например, [17–19] и ссылки в них.

Применяя к уравнению (28) условие однонаправленности (см., например, в работах [27, 28]), используя выражение $\mathbf{F} = (0, 0, eE_d/m)$, интегрируя по x и вводя безразмерную переменную $\widetilde{\chi}$,

$$\partial_{\widetilde{\chi}} = -\frac{2v_F}{\alpha_0} \left(\partial_t + v_F \partial_x\right), \tag{31}$$

получаем уравнение

$$\partial_{\widetilde{\chi}} \mathcal{E} = dR_1 - \mu R_3 + c_0, \tag{32}$$

где

$$\alpha_0 = \frac{(4\pi)^2 e n_0 n_d r_1 D^2}{m\hbar\omega_d},$$

$c_0 = \mu R_\infty$ — константа интегрирования, выбранная из условия $R_\infty = R_3(\tau \to \pm\infty)$, $R_{1,2}(\tau \to \pm\infty) \to 0$.

Динамика двухуровневой системы описывается уравнениями Блоха

$$\partial_{\widetilde{\tau}} R_1 = -(1 + \mu\mathcal{E}) R_2, \tag{33}$$

$$\partial_{\widetilde{\tau}} R_2 = (1 + \mu\mathcal{E}) R_1 + d\mathcal{E}\, R_3, \tag{34}$$

$$\partial_{\widetilde{\tau}} R_3 = -d\mathcal{E}\, R_2, \tag{35}$$

где

$$R_1 = \rho_{12} + \rho_{21}, \quad R_2 = -i(\rho_{12} - \rho_{21}), \quad R_3 = \rho_{22} - \rho_{11}. \tag{36}$$

Плазмон-блоховские уравнения (ПБУ) (32)–(35) оказываются полностью интегрируемыми и обладают следующим представлением нулевой кривизны:

$$\frac{\partial}{\partial \tau} \Psi = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -2i\lambda_- & \mu + \mathcal{E} \\ -\mu - \mathcal{E} & 2i\lambda_- \end{pmatrix} \mathbf{\Psi}, \tag{37}$$

$$\frac{\partial}{\partial \widetilde{\chi}} \mathbf{\Psi} = \frac{-ic_0}{4\lambda_-} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \mathbf{\Psi} + \frac{1}{2\left(d^2 - 4\lambda_-^2\right)} \times$$
$$\times \begin{bmatrix} id(\mu R_1 + dR_3) & dR_2 + 2i\lambda_-(dR_1 - \mu R_3) \\ -dR_2 + 2i\lambda_-(dR_1 - \mu R_3) & -id(\mu R_1 + dR_3) \end{bmatrix} \mathbf{\Psi}, \tag{38}$$

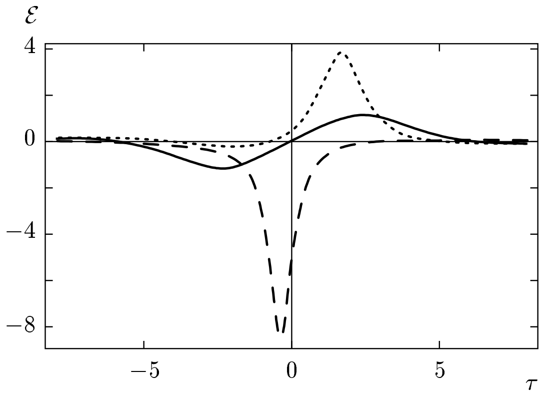
где $\lambda_\pm = \zeta \pm q/\zeta$, $q = \mu^2/16$, ζ — спектральный параметр.

Система ПБУ (32)–(35) математически близка интегрируемым редуцированным уравнениям Максвелла–Блоха (РУМБ) с постоянным дипольным моментом [27] (см. также в обзоре [28]), но не совпадает с известными нам. Точнее говоря, решения, отвечающие изолированным невырожденным собственным значениям ζ_k спектральной задачи (37), для этих уравнений имеют одинаковую структуру и различаются зависимостью от переменной $\widetilde{\chi}$. В то же время автомодельные решения этих уравнений, отвечающие действительному непрерывному спектру, различны.

Система ПБУ (32)–(35), так же как и РУМБ имеет решение в виде солитона на нулевом фоне при $q \neq 0$ [29]. Однако это решение вырождено. Возмущения снимают вырождение, что приводит к формированию более сложного четырехполюсного решения, как и в случае РУМБ [27, 30]. Такое решение ПБУ (32)–(35), изображенное на рисунке, имеет вид

$$\mathcal{E} = -4\frac{\partial}{\partial \tau} \times$$
$$\times \operatorname{arctg}\left\{ \frac{\eta\, Q_+}{\nu\, Q_-} \frac{|\zeta|^2 Q_- \cos\theta_2 + 2\sqrt{q}\,\operatorname{sh}\theta_1}{|\zeta|^2 Q_+ \operatorname{ch}\theta_1 - 2\sqrt{q}\sin\theta_2} \right\}, \tag{39}$$

где $\zeta = \nu + i\eta$,



Влияние постоянного дипольного момента на форму плазмон-экситонного импульса. Сплошная, штриховая и пунктирная линии отвечают соответственно $q = 0$, $q = 0.5$ и $q = 0.99$. $\eta = \nu = 0.4$, $p_0 = 0$

$$\begin{aligned} \theta_1 &= 2\,\mathrm{Im}\left[\lambda_+\left(\tilde{\tau} + \Omega\tilde{\chi}\right)\right], \\ \theta_2 &= 2\,\mathrm{Re}\left[\lambda_+\left(\tilde{\tau} + \Omega\tilde{\chi}\right)\right], \end{aligned} \tag{40}$$

$$Q_\pm = 1 \pm \frac{q}{|\zeta|^2}, \quad \Omega = \frac{R_\infty d^2}{2\lambda_-\left(d^2 - 4\lambda_-^2\right)}. \tag{41}$$

При $q \to 0$ площадь импульса

$$\int\limits_{-\infty}^{\infty} \mathcal{E}(\tau)\,d\tau \to 0$$

и решение (39) становится бризером. В этом случае волны зарядовой плотности образуют нелинейный диполь, причем площадь (число электронов) горбов равна площади провалов, возникающих на фоне $n_0 = \mathrm{const}$.

На рисунке изображено решение (39) для сред без постоянного дипольного момента, т. е. $\mu = 0$, $\mu \sim d$ и для $d \ll \mu$. Численный анализ, проведенный для физически интересного случая $|\zeta|^2 \lesssim q$, показал, что ДУС с $\mu \sim d$ является более эффективной для генерации плазмонных импульсов с большой амплитудой, чем ДУС без постоянного дипольного момента. Это особенно важно для генерации электромагнитных импульсов с длительностью, меньшей длины волны света в системах типа спазеров.

Оценим эффективную длину l_{nl} нелинейного взаимодействия, определяющего характерный размер бризероподобных плазмон-экситонных импульсов. Здесь рассматривалась идеализированная модель. В более реалистичном случае необходимо принимать во внимание неоднородное уширение, нелокальность взаимодействия, температурные и другие эффекты, приводящие к уменьшению взаимодействия между плазмонами и ДУС. Для грубой оценки мы полагаем, что вклад этих эффектов приводит к уменьшению коэффициента α_0/v_F^2 на два порядка. Тогда для $n_0 \sim 10^{21}$ см$^{-3}$, $n_d \sim 10^{14}$ см$^{-3}$, $v_F \sim 10^8$ см/с, $D \sim 10^{18}$ СГС находим $l_{nl} \sim 10$ нм. Отсюда можно сделать вывод, что рассмотренная наносистема выглядит перспективной для создания нелинейных пакетов плазмон-экситонов с длиной, много меньшей длины волны света.

5. ПРИМЕНЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Самосогласованные системы ПБУ позволяют исследовать влияние изменения пространственного распределения плотности электронов на ДУС. В частности, рассмотренная в предыдущем разделе система протяженных наностержней может быть использована для накачки окружающей ДУС с помощью внешнего электрического нерезонансного поля. Пусть произвольное поле E_0 в начальный момент направлено вдоль оси стержня. Это поле вызывает первоначальное неоднородное распределение электронов вдоль стержня, эволюция которого описывается уравнениями (32)–(35). Плазмон-поляритонные импульсы могут возникать при распаде начального возмущения электронного облака, вызванного кратковременным действием постоянного электрического поля. Форма импульса плазмон-экситона определяется решением «начальной» спектральной задачи (37). Нелинейная связь между плазмонами, возникшими в результате распада начального возмущения, и ДУС приводит к обмену энергией между ними и к переменной накачке верхнего уровня ДУС. Поэтому полученные в работе результаты могут быть использованы в качестве нулевого приближения для расчета излучения частично инвертированной ДУС и распространяющегося нелинейного квазидиполя. Отметим, что полученные интегрируемые уравнения не описывают взаимодействие встречных волн зарядовой плотности. В частности, в редуцированных уравнениях (32)–(35) для описания встречных импульсов вместо уравнения (32) следует применять уравнение (28), которое позволит исследовать распространение встречных плазмон-экситонных импульсов и их последующую аннигиляцию, сопровождающуюся излучением электромагнитной волны.

Поскольку в рамках приведенных выше моделей взаимодействие между плазмонами и ДУС когерентно, они могут применяться для анализа условий когерентного переноса возбуждения в молекулярной среде с наностержнями. Направленность генерируемого излучения определяется геометрией среды. Такая система может быть перспективной для изучения условий создания спазера, генерирующего когерентное направленное излучение.

Работа выполнена при поддержке междисциплинарного интеграционного проекта СО РАН № 17 и научной школы НШ-4339.2010.2.

ЛИТЕРАТУРА

1. F. Calvayrac, P.-G. Reinhard, E. Suraud, and C. A. Ullrich, Phys. Rep. **337**, 493 (2000).

2. N. Félidj, J. Aubard, G. Lévi, J. R. Krenn, M. Salerno, G. Schider, B. Lamprecht, A. Leitner, and F. R. Aussenegg, Phys. Rev. B **65**, 075419 (2002).

3. O. G. Tovmachenko, C. Graf, D. J. van den Heuvel, A. van Blaaderen, and H. C. Gerritsen, Adv. Mater. (Weinheim, Ger.) **18**, 91 (2006).

4. B. P. Rand, P. Peumans, and S. R. Forrest, J. Appl. Phys. **96**, 7519 (2004).

5. N. I. Cade, T. Ritman-Meer, and D. Richards, Phys. Rev. B **79**, 241404(R) (2009).

6. D. J. Bergman and M. I. Stockman, Phys. Rev. Lett. **90**, 027402 (2003).

7. M. A. Noginov, G. Zhu, M. May, B. A. Ritzo, N. Noginova, and V. A. Podolskiy, Phys. Rev. Lett. **101**, 226806 (2008).

8. G. Zhu, M. Mayy, M. Bahoura, B. A. Ritzo, H. V. Gavrilenko, V. I. Gavrilenko, and M. A. Noginov, Opt. Express **16**, 15576 (2008).

9. E. Ozbay, Science **311**, 189 (2006).

10. H. A. Atwater, Sci. Amer. **296**, 56 (2007).

11. K. F. MacDonald, Z. L. Sámson, M. I. Stockman, and N. I. Zheludev, Nature Photonics **9**, 55 (2009).

12. S. Palomba and L. Novotny, Phys. Rev. Lett. **101**, 056802 (2008).

13. E. Feigenbaum and M. Orenstein, Opt. Lett. **32**, 674 (2007).

14. E. V. Kazantseva and A. I. Maimistov, Phys. Rev. A **79**, 033812 (2009).

15. Y. Liu, G. Bartal, D. A. Genov, and X. Zhang, Phys. Rev. Lett. **99**, 153901 (2007).

16. H. Morikawa, I. Matsuda, and S. Hasegawa, Phys. Rev. B **70**, 085412 (2004).

17. B. Diaconescu, K. Pohl, L. Vattuone, L. Savio, P. Hofmann, V. M. Silkin, J. M. Pitarke, E. V. Chulkov, P. M. Echenique, D. Farias, and M. Rocca, Nature **448**, 57 (2007).

18. I. E. Aronov, G. P. Berman, D. K. Campbell, G. D. Doolen, and S. V. Dudiy, Physica B **253**, 169 (1998).

19. J. M. Pitarke, V. U. Nazarov, V. M. Silkin, E. V. Chulkov, E. Zaremba, and P. M. Echenique, Phys. Rev. B **70**, 205403 (2004).

20. S. Lundqvist, *Theory of the Inhomogeneous Electron Gas*, ed. by S. Lundqvist and N. H. March, Plenum, New York (1983), p. 149.

21. Дж. Л. Лэм, *Введение в теорию солитонов*, Мир, Москва (1990).

22. С. П. Бурцев, А. В. Михайлов, В. Е. Захаров, ТМФ **70**, 323 (1987).

23. A. A. Zabolotskii, Phys. Rev. E **56** 4813 (1997).

24. Z. Li, F. Hao, Y. Huang, Y. Fang, P. Nordlander, and H. Xu, Nano Lett. **9**, 4383 (2009).

25. S. Das Sarma and E. H. Hwang, Phys. Rev. B **54**, 1936 (1996).

26. A. R. Goñi, A. Pinczuk, J. S. Weiner, J. M. Calleja, B. S. Dennis, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Phys. Rev. Lett. **67**, 3298 (1991).

27. M. Agrotis, N. M. Ercolani, S. A. Glasgow, and J. V. Moloney, Physica D **138**, 134 (2000).

28. A. A. Zabolotskii, Eur. Phys. J. Special Topics **173**, 193 (2009).

29. А. И. Маймистов, Дж.-Ги Капуто, Опт. и спектр. **94**, 275 (2003).

30. J. G. Caputo and A. I. Maimistov, Phys. Lett. A **296**, 34 (2002).