

## Самодифракция на сформированном в коллоидном растворе квантовых точек динамическом фотонном кристалле

А. М. Смирнов<sup>1)</sup>, А. Д. Голинская<sup>+</sup>, К. В. Ежова\*, В. Н. Манцевич<sup>+</sup>, В. С. Днепровский<sup>+</sup>

<sup>+</sup>МГУ им. М.В. Ломоносова, Физический факультет, 119991 Москва, Россия

\* С.-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, факультет лазерной и световой инженерии, 197101 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 14 сентября 2016 г.

Обнаружена самодифракция на сформированном в коллоидном растворе квантовых точек (КТ) CdSe/ZnS динамическом одномерном фотонном кристалле, возникающая одновременно с самодифракцией на наведенных каналах прозрачности, при резонансном возбуждении основного электронно-дырочного (экситонного) перехода КТ двумя лазерными лучами, с гауссовым распределением интенсивности по сечению. Показано, что нелинейное изменение поглощения коллоидных КТ приводит к образованию канала прозрачности и наведенной амплитудной дифракционной решетки, а значит, нелинейное изменение показателя преломления ( $\Delta n \approx 10^{-3}$ ) в поглощающей среде ответственно за формирование динамического фотонного кристалла. Обнаружены самодифрагированные лазерные лучи, распространяющиеся не только в направлениях, соответствующих самодифракции на наведенной дифракционной решетке, но и в направлениях, удовлетворяющих условию Лауэ.

DOI: 10.7868/S0370274X16220045

**Введение.** Большое значение для нелинейной лазерной спектроскопии имеют работы по дифракции и самодифракции лазерного излучения на оптически сформированных периодических структурах – наведенных дифракционных решетках [1–6]. Явление самодифракции реализуется во многих нелинейно-оптических средах при достаточной мощности излучения, в том числе и в полупроводниковых структурах пониженной размерности [7–12], последним в настоящее время уделяется особое внимание. Метод наведенных дифракционных решеток широко применяется для изучения свойств полупроводниковых материалов [13–16].

Значительный интерес, проявляемый к наведенным динамическим фотонным кристаллам, связан не только с возможностью их использования для изучения нестационарных процессов в различных средах, но и с созданием на их основе оптоэлектронных устройств при использовании их нелинейно-оптических свойств [7–12].

К фотонными кристаллам относят структуры, в которых осуществлена модуляция диэлектрической проницаемости с периодом, сравнимым с длиной волны света [17, 18]. Фотонные кристаллы представляют значительный интерес для создания на их основе современных устройств оптоэлектроники [19–21], в том

числе для хранения данных [22]. Активно развивается формирование фотонных кристаллов на основе частиц субмикронных размеров [23–26]. Однако, использование плотноупакованных сфер субмикронного размера ограничивает количество возможных создаваемых типов кристаллических решеток, в то время как формирование динамических фотонных кристаллов в коллоидных растворах квантовых точек (КТ) позволяет изменять параметры динамического фотонного кристалла (пространственную симметрию, форму и размер элементарной ячейки, а также размерность кристалла), что делает их наиболее привлекательными для изучения и открывает новые возможности применения в области создания быстро переключаемых фильтров и интерференционных зеркал.

Работа посвящена исследованию особого типа самодифракции двух гауссовых лазерных лучей на формируемом ими одномерном динамическом фотонном кристалле, и выявлению нелинейно-оптических эффектов, ответственных за обнаруженные эффекты самовоздействия, возникающих в случае возбуждения основного электронно-дырочного (экситонного) перехода в КТ CdSe/ZnS импульсами второй гармоники Nd<sup>3+</sup>:YAG-лазера.

**Описание эксперимента.** В работе использованы сферические КТ CdSe с оболочкой из монослоя более широкозонного полупроводника ZnS и гид-

<sup>1)</sup>e-mail: hieroglifics@mail.ru

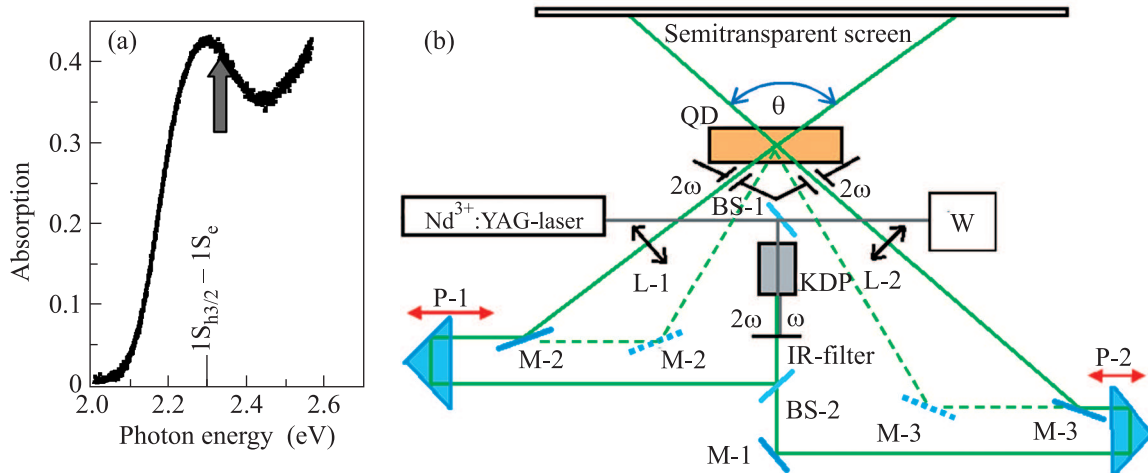


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Спектр поглощения коллоидного раствора КТ CdSe/ZnS. Вертикальной чертой обозначена энергия основного экситонного перехода, стрелкой указана энергия однофотонного возбуждения второй гармоникой лазера. (b) – Схема экспериментальной установки. M1, M2, M3 – диэлектрические зеркала,  $R_{\lambda=532} = 99.9\%$ ; L-1, L-2 – линзы,  $f = 80$  мм; BS-1 – диэлектрическое зеркало  $R_{\lambda=1064} = 90\%$ ; BS-2 – диэлектрическое зеркало  $R_{\lambda=532} = 50\%$ ; KDP – кристалл удвоения частоты; P-1, P-2 – прямоугольные призмы; QD – 1 мм кювета с коллоидным раствором КТ CdSe/ZnS; W – измеритель энергии OPHIR

рофобным слоем на поверхности, препятствующим слипанию КТ в растворе гексана, выращенные методом металлоорганического синтеза в Республике Беларусь компанией NFM LTD. Нелинейно-оптические процессы в коллоидных растворах КТ CdSe/ZnS изучены при однофотонном возбуждении основного экситонного перехода  $1S_{3/2}(h) - 1S(e)$  (рис. 1а) мощными пикосекундными импульсами второй гармоники Nd<sup>3+</sup>:YAG-лазера (2.33 эВ), работающего в режиме пассивной синхронизации мод. Излучение лазера представляет из себя пуг из 20–25 35-пикосекундных импульсов с аксиальным периодом 7 нс, превосходящим время релаксации электронно-дырочных пар (экситонов) в КТ при комнатной температуре [16, 27, 28]. Для осуществления резонансного возбуждения основного экситонного перехода, по предварительно измеренным спектрам пропускания подобраны КТ соответствующего размера. Радиус и дисперсия размеров ( $2.6 \pm 0.3$  нм) использованных КТ были определены при сравнении положения максимума поглощения и значения полуширины спектра с результатами теоретических расчетов зависимости энергетического спектра экситонного поглощения КТ CdSe от их размера [29]. Все измерения проведены при комнатной температуре. Концентрация КТ в коллоидном растворе составляла около  $10^{17}$  см<sup>-3</sup> (линейное пропускание  $\alpha = 35$  см<sup>-1</sup>).

Схема двулучевого возбуждения кюветы с коллоидным раствором КТ CdSe/ZnS представлена на рис. 1b. Толщина кюветы составляет 1 мм, угол пе-

ресечения лучей в коллоидном растворе  $\theta$  изменялся положением зеркал M-2 и M-3. Временная задержка между лучами настраивалась с помощью призм P-1 и P-2 с точностью 3 пс. Оба пересекающихся в кювете луча второй гармоники имели одинаковую интенсивность. При фотографировании и измерении распределения интенсивности по поперечному сечению лазерных лучей на выходе из коллоидного раствора КТ использовалась сопряженная с компьютером фотокамера Nikon D70 с линейной зависимостью выходного сигнала от интенсивности света на входе. Энергия в каждом пуге импульсов контролировалась измерителем энергии OPHIR.

**Экспериментальные результаты и их обсуждение.** На рисунках 2а, 3а представлены изображения дифракционных картин, образованных в результате самодифракции двух пересекающихся в сильно поглощающем коллоидном растворе КТ (пропускание менее 3%) лазерных лучей второй гармоники Nd<sup>3+</sup>:YAG лазера ( $\lambda = 532$  нм) с одинаковой интенсивностью ( $I_0 \approx 0.2$  ГВт/см<sup>2</sup> – интенсивность импульса с максимальной энергией в пуге) и распределения интенсивности по поперечному сечению (рис. 2b, 3b) при двух различных значениях угла  $\theta$ : 20° (рис. 2) и 110° (рис. 3).

При резонансном возбуждении основного экситонного перехода в КТ CdSe/ZnS на выходе из кюветы с коллоидными КТ кроме двух лучей, распространяющихся в направлении входных лучей, обнаружены лучи, распространяющиеся вдоль

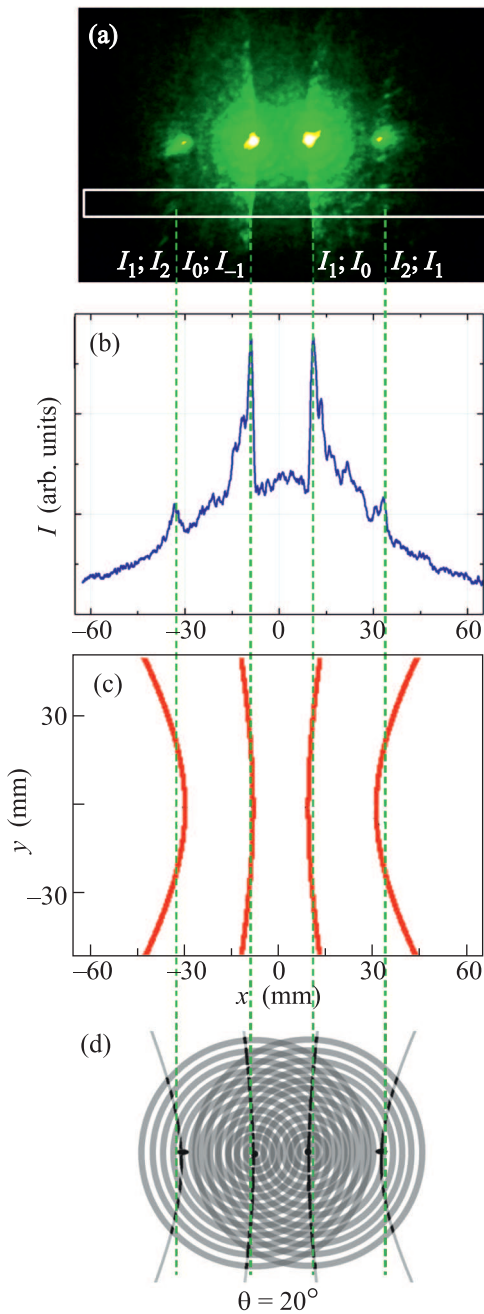


Рис. 2. (Цветной онлайн) Измеренное (а) и рассчитанное (с) распределение интенсивности самодифрагированных лучей на одномерном динамическом фотонном кристалле, сформированном при интерференции двух гауссовых лазерных лучей в коллоидном растворе КТ CdSe/ZnS (угол взаимодействия лазерных лучей  $\theta = 20^\circ$ ). Распределение интенсивности по поперечному сечению (b), выделенному белым прямоугольником на рис. а. Результаты моделирования при сосуществовании самодифракции на наведенной диафрагме и самодифракции на динамическом одномерном фотонном кристалле (d)

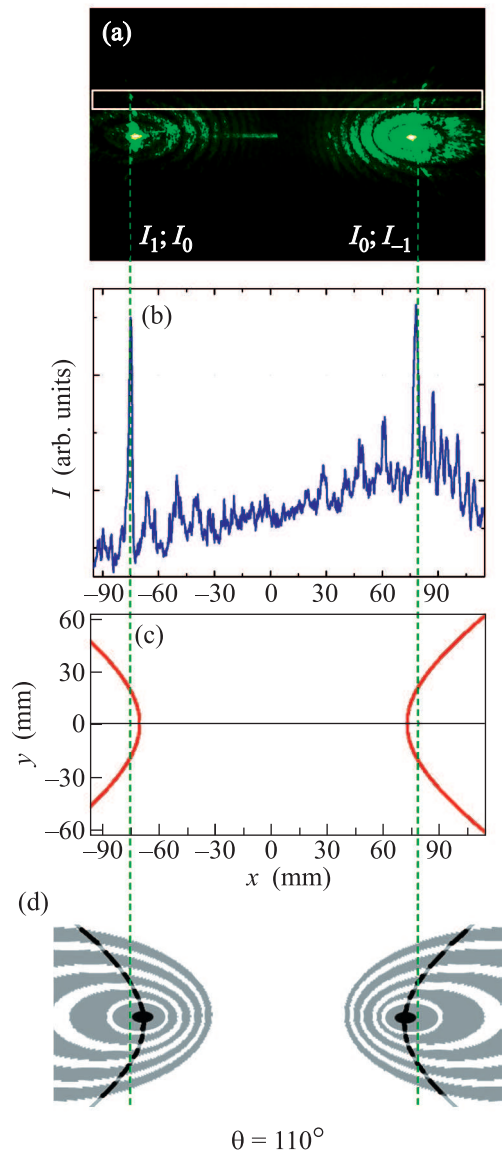


Рис. 3. (Цветной онлайн) Измеренное (а) и рассчитанное (с) распределение интенсивности самодифрагированных лучей на одномерном динамическом фотонном кристалле, сформированном при интерференции двух гауссовых лазерных лучей в коллоидном растворе КТ CdSe/ZnS (угол взаимодействия лазерных лучей  $\theta = 110^\circ$ ). Распределение интенсивности по поперечному сечению (b), выделенному белым прямоугольником на рис. а. Результаты моделирования при сосуществовании самодифракции на наведенной диафрагме и самодифракции на динамическом одномерном фотонном кристалле (d)

образующих конусов, вершины которых расположены в области сформированного фотонного кристалла (при сечении плоскостью экрана – гиперболы, рис. 2а, 3а). Кроме того, для случая, когда взаимодействие лазерных лучей происходит под

углом  $\theta = 20^\circ$ , формируются 1-й и -2-й порядки самодифракции ( $I_1$ ,  $I_{-2}$ , рис. 2а) на наведенном динамическом фотонном кристалле с периодом:  $\Lambda = \frac{\lambda}{2 \sin(\theta/2)}$ .

Измеренные углы  $\varphi_1 = \varphi_{-2} = 31^\circ$  лучей 1-го и -2-го порядков самодифракции  $m$  на динамическом фотонном кристалле совпадают с рассчитанными ( $\varphi_m = \arcsin\{[2m + 1] \sin \frac{\theta}{2}\}$ ).

Для случая взаимодействия лазерных лучей под углом  $\theta = 110^\circ$  возможна самодифракция лучей на наведенном динамическом фотонном кристалле, однако -1-й порядок самодифракции  $I_{-1}$  одного из лучей будет совпадать по направлению с 0-м порядком самодифракции  $I_0$  для второго луча, участвующего в формировании наведенного фотонного кристалла (рис. 3а).

Из расчета следует (рис. 2с, d, 3с, d), что при взаимодействии двух гауссовых лазерных лучей в коллоидном растворе КТ, обнаруженное распространяющееся вдоль конической поверхности самодифрагированное излучение (рис. 2а, b, 3а, b), удовлетворяет условию Лауэ дифракции лучей на цепочке атомов (рис. 4):

$$(\mathbf{k}_{\text{diff}} - \mathbf{k}_0)\Lambda = m, \quad (1)$$

где  $\mathbf{k}_0$  – волновой вектор падающего на цепочку атомов луча,  $\mathbf{k}_{\text{diff}}$  – волновой вектор дифрагированного луча. При сечении плоскостью экрана параллельной оси конуса образуются гиперболы:  $x^2 \operatorname{tg}^2(\frac{\pi}{2} - \varphi_m) = y^2 + h^2$ , где  $h = 50$  мм – расстояние от фотонного кристалла до экрана,  $x$ ,  $y$  – декартовы координаты.

Из-за эффекта самовоздействия (распространение ограниченного в поперечном сечении светового луча в среде, локальные параметры которой зависят от интенсивности света) два лазерных луча с гауссовым распределением интенсивности в поперечном сечении, при котором интенсивность резко падает от центра к периферии по закону:  $I \sim \exp\left\{-\frac{4r^2 \ln 4}{w^2}\right\}$  ( $r$  – радиальная координата,  $w$  – ширина лазерного луча на полувысоте), инициируют периодическое изменение диэлектрической проницаемости среды и формируют линейную динамическую фотонную структуру, подобную цепочке атомов (рис. 4а). Гауссово распределение интенсивности лазерных лучей приводит к формированию периодической динамической структуры с убывающей к периферии сечения луча модуляцией диэлектрической проницаемости. Лучи, формирующие данную динамическую структуру в коллоидных КТ CdSe/ZnS, “чувствуют” ее границы (размер сформированного динамического фотонного кристалла, на котором происходит самодифракция, меньше площади поперечного сечения

луча) и дифрагируют в направлениях, определяемых условием (1). В работе А.А. Борща и соавторов [14] были обнаружены *растянутые по вертикали* нулевые порядки самодифракции излучения лазера на динамических дифракционных решетках в кристаллах сульфида кадмия. Применение теории дифракции Лауэ на одномерном кристалле (цепочке атомов) позволяет объяснить образование на экране отрезков гипербол, вырождающихся в прямые линии для лучей, пересекающихся под малым углом.

Формирование на дифракционной картине колец, типичных для дифракции Френеля на круглом отверстии, связано с распространением гауссовых лазерных лучей в сильно поглощающем коллоидном растворе КТ, приводящим к формированию канала прозрачности в результате насыщения основного экситонного перехода КТ [11, 30–33] и к самодифракции луча на наведенной диафрагме. Изображение на экране сечений конусов дифрагированного излучения в виде прерывистых гипербол (рис. 2а, 3а – эксперимент, рис. 2d, 3d – моделирование) связано с одновременным существованием двух процессов самовоздействия – самодифракции на наведенной диафрагме и самодифракции на динамическом одномерном фотонном кристалле. В областях пространства, соответствующих ярким кольцам на дифракционной картине, излучение, сформированное в результате самодифракции на одномерном динамическом фотонном кристалле интерферирует с излучением, образованным при дифракции Френеля на круглом отверстии, вследствие чего на экране образуется изображение в виде неоднородных по интенсивности гипербол. При нарушении условий когерентности для двух лучей лазера самодифракция на одномерном фотонном кристалле пропадала, в то время как самодифракция на наведенных каналах прозрачности каждого из лучей сохранялась.

Образование наведенной амплитудной дифракционной решетки и канала прозрачности в сильно поглощающем коллоидном растворе КТ при однофотонном возбуждении экситонов в КТ CdSe/ZnS двумя взаимодействующими лазерными лучами вызвано сосуществованием и конкуренцией между процессами насыщения основного экситонного перехода и длинноволнового штарковского сдвига спектра экситонного поглощения [9–11]. Образование одномерного динамического фотонного кристалла происходит за счет периодического изменения диэлектрической проницаемости в интерференционном поле пересекающихся в растворе коллоидных КТ CdSe/ZnS двух гауссовых лазерных импульсов. Ввиду небольшой отстройки частоты возбуждающего лазерного

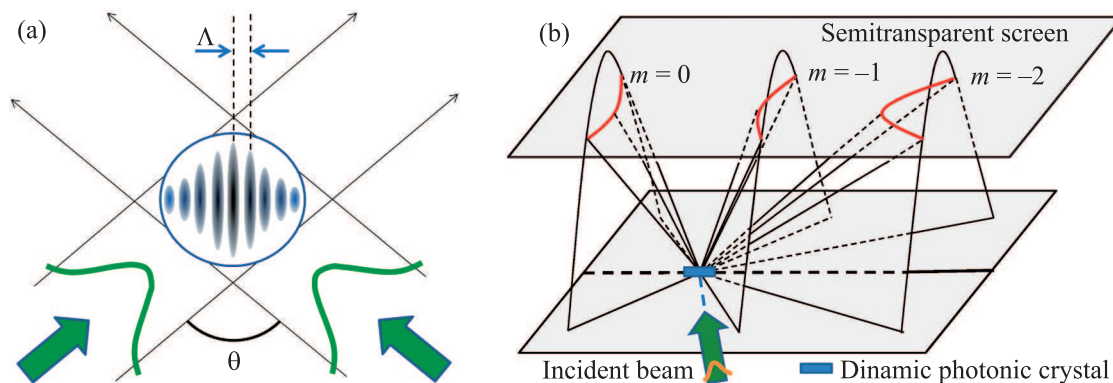


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Схема формирования динамического одномерного фотонного кристалла двумя гауссовыми лазерными лучами. (б) – Схема дифракции на одномерном фотонном кристалле

излучения от частоты неоднородно уширенного основного экситонного перехода КТ CdSe/ZnS (рис. 1а) нелинейное изменение поглощения сопровождается сильным нелинейным изменением показателя преломления [34], что обуславливает формирование наведенной фазовой дифракционной решетки – динамического фотонного кристалла. При этом модуляция показателя преломления в коллоидных КТ может достигать значений  $\Delta n \approx 10^{-3}$  [11], что приводит к существованию динамической фотонной стоп-зоны в одномерном фотонном кристалле, для формирования которой требуется модуляция диэлектрической проницаемости.

**Выводы.** Обнаружено одновременное существование двух процессов самовоздействия – самодифракция на наведенной диафрагме и самодифракция на динамическом одномерном фотонном кристалле. Процесс самодифракции двух гауссовых лазерных лучей на динамическом фотонном кристалле, объяснен нелинейным изменением показателя преломления коллоидного раствора КТ CdSe/ZnS из-за отстройки частоты возбуждающего лазерного излучения от частоты основного экситонного перехода КТ. Формирование самодифрагированного излучения, распространяющегося вдоль образующих конусов, вершины которых расположены внутри сформированного фотонного кристалла, объяснено с применением теории дифракции Лауэ на цепочке атомов. Обнаруженные кольца объяснены формированием канала прозрачности из-за процессов насыщения основного экситонного перехода и длинноволнового штатковского сдвига спектра экситонного поглощения, приводящих к дифракции Френеля на наведенной диафрагме.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ # 14-02-00305а, Гранта Прези-

дента Российской Федерации для молодых ученых МД-4550.2016.2.

1. K. Shen and G. Vignale, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 096601 (2013).
2. J. Janusonis, T. Jansma, C.L. Chang, Q. Liu, A. Gatilova, A.M. Lomonosov, V. Shalagatskiy, T. Pezeri, V.V. Temnov, and R.I. Tobey, *Scient. Rep.* **6**, 29143 (2016).
3. R. Chiao, P. Kelley, E. Gamire, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1158 (1966).
4. M. Mack, *Phys. Rev. Lett.* **22**, 13 (1969).
5. K. Jarasiunas and J. Vaitkus, *Phys. Stat. Sol. a* **23**, 19 (1974).
6. Р. Балтрамеюнас, Ю. Вайткус, Д. Велецкас, В. Гривицкас, *Физика полупроводников* **10**, 1159 (1977).
7. F. Masia, N. Accanto, W. Langbein, and P. Borri, *PRL* **108**, 087401 (2012).
8. V. M. Huxter, J. Kim, Sh. S. Lo, A. Lee, P. S. Nair, and G. D. Scholes, *Chem. Phys. Lett.* **491**, 187 (2010).
9. A. M. Smirnov, I. V. Tikhonov, V. N. Mantsevich, and V. S. Dneprovskii, *JETP Lett.* **102**, 212 (2015).
10. A. M. Smirnov, M. V. Kozlova, and V. S. Dneprovskii, *Optics and Spectroscopy* **120**, 472 (2016).
11. V. S. Dneprovskii, M. V. Kozlova, and A. M. Smirnov, *Quantum Electronics* **43**, 927 (2013).
12. V. Dneprovskii, A. Smirnov, and M. Kozlova, *Proc. of SPIE* **8772**, 877209 (2013).
13. K. Jarasiunas and J. Vaitkus, *Phys. Stat. Sol. (a)* **44**, 793 (1977).
14. А. Борщ, М. Бродин, В. Овчар, С. Одулов, М. Соскин, *Письма в ЖЭТФ* **18**, 679 (1973).
15. D. R. Dean and R. J. Collins, *J. Appl. Phys.* **44**, 5455 (1973).
16. V. S. Dneprovskii, A. R. Kanev, M. V. Kozlova, and A. M. Smirnov, *Proc. of SPIE* **9136**, 9136Y (2014).
17. E. Yablonoich, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2059 (1987).
18. T. F. Krauss and R. M. de la Rue, *Prog. Quantum Electron.* **23**, 51 (1999).

19. S.-Y. Lin, E. Chow, V. Hietala, P. R. Villeneuve, and J. D. Joannopoulos, *Science* **282**, 274 (1998).
20. J. S. Foresi, *Nature* **390**, 143 (1997).
21. S. John and J. Wang, *Phys. Rev. B* **43**, 12772 (1991).
22. J. D. Joannopoulos, P. R. Villeneuve, and S. Fan, *Nature* **386**, 143 (1997).
23. A. M. Kapitonov, *Phys. Stat. Sol. A* **165**, 119 (1998).
24. B. T. Holland, C. F. Blanford, and A. Stein, *Science* **281**, 538 (1998).
25. J. E. G. J. Wijnhoven and W. L. Vos, *Science* **281**, 802 (1998).
26. A. Imhof and D. J. Pine, *Nature* **389**, 948 (1997).
27. V. I. Klimov and D. W. McBranch, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4028 (1998).
28. G. S. He, K. T. Yong, Q. Zheng, Y. Sahoo, A. Baev, A. I. Rysanyanskiy, and P. N. Prasad, *Optics Express* **15**, 12818 (2007).
29. A. I. Ekimov, F. Hache, M. C. Schanne-Klein, D. Ricard, C. Flytzanis, L. A. Kudryatsev, T. V. Yaseva, A. V. Rodina, and A. L. Efros, *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 100 (1993).
30. K. Tai, H. M. Gibbs, M. Rushford, N. Peighambarian, J. S. Satchell, M. G. Boshier, R. J. Ballagh, W. J. Sandle, M. LeBerre, E. Ressayre, A. Tallet, J. Teichmann, Y. Claude, E. P. Mattar, and P. D. Drummond, *Opt. Lett.* **9**, 243 (1984).
31. V. L. Derbov, L. A. Melnikov, A. D. Novikov, and S. K. Potapov, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 1079 (1990).
32. K. Ezhova and A. Smirnov, *Proc. of SPIE* **9503**, 950315 (2015).
33. V. Dneprovskii, E. Zhukov, M. Kozlova, A. Smirnov, and T. Wumaier, *Moscow Univ. Phys. Bull.* **67**, 201 (2012).
34. H. M. Gibbs, G. Khitrova, and N. Peighambarian, *Nonlinear Photonics*, Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg (1990), p. 7.