

ПОЛЯРИЗАЦІЙНА ОПТИЧНА БІСТАБІЛЬНІСТЬ ЕКСИТОНІВ ФРЕНКЕЛЯ

Досліджено енергетичний стан екситону Френкеля і його спектральні характеристики при високих рівнях накачки. Проведено розрахунок масового оператора екситон-фононої системи і коефіцієнта поглинання світла для різних кутів поляризації світлової хвилі. Проаналізовано генезис екситонних смуг поглинання та особливості їхньої функції форми при зміні поляризації лазерного випромінювання і встановлено закономірності отримання бістабільних станів в органічних кристалах типу бензолу.

The energy state of Franklin's exciton and its spectrum characteristics at high levels of pumping have been studied. The mass operator of the exciton-phonon system and the absorption coefficient for different light wave polarization angles have been calculated. The exciton absorption bands genesis and the peculiarities of their form function at the change of the laser radiation polarization have been analyzed and the regularity of arising bistable states in organic benzol-type crystals has been established.

Один із перспективних шляхів побудови оптичного інформаційного елемента пам'яті – реалізація явища оптичної бістабільності [1]. Принципова можливість отримання петлі гістерезису в залежності вихідної інтенсивності світла від вхідної для області екситонних частот напівпровідника на сьогодні сумніву не викликає [2]. Механізми утворення двох і більше стабільних станів кристала можуть бути різноманітними, проте важливим залишається пошук механізмів впливу як на широту, так і на висоту гістерезисної петлі, тобто впливу на нелінійний процес формування оптичної бістабільності. Серед них можуть бути як внутрішні, так і зовнішні чинники, зокрема температура, магнітне поле, напівпровідники з різним частотним діапазоном екситонів, поляризація лазерної хвилі та інші.

Ми розглянемо проходження світлової хвилі через органічні напівпровідники типу молекулярних кристалів. Характерною особливістю таких кристалів є реалізація нейтрального електронного збудження – екситону Френкеля. У напівпровідниках, що мають в елементарній кристалічній коміріці σ молекул, електронне збудження однієї ізольованої молекули вироджується у σ екситонних зон (давідівське розщеплення) [3]. Кожна з цих зон (що надзвичайно важливо) характеризується певним напрямком дипольного моменту екситонного переходу і реалізується лише при конкретній поляризації зовнішньої світлової збу-

джуючої хвилі. Очевидно, що у випадку строго поляризованого випромінювання даного напрямку в спектрах поглинання буде реалізовуватись лише одна конкретна ізольована зона екситонних збуджень. Деполяризація зовнішньої хвилі збудження спричинює перемішування всіх наявних екситонних зон і реалізацію структурованої смуги поглинання зі складною динамікою функції форми.

Мета нашого дослідження – розрахунок поляризаційного генезису екситонного поглинання, вплив його на розвиток і конкретні параметри гістерезисної петлі в залежності густини екситонних станів від висоти рівня накачки і на формування самого явища оптичної бістабільності.

Екситон-фононна взаємодія у молекулярних кристалах

Екситон Френкеля найкраще досліджувати у молекулярних кристалах, в яких сили взаємодії між утворюючими молекулами значно менші за внутрімолекулярні взаємодії. До таких кристалів належить ціла низка твердих тіл: антрацен, пентацен, нафталін, бензол і інші, утворених великими молекулами органічних речовин.

Розглядаємо молекулярний кристал, у якого є дві молекули в елементарній коміріці з різними дипольними моментами переходу у збуджений стан. В цьому випадку енергія екситонного збудження кристала буде складатись із двох енергетичних зон:

$$H_{ex} = \sum \sum E_{\alpha}(k) B_{\alpha k}^+ B_{\alpha k} \quad (\alpha=1,2), \quad (1)$$

де B_k^-, B_k – оператори народження і знищення екситону з квазіімпульсом \vec{k} . Отже, одному не-виродженому збудженому стану вільної молекули вже у кристалі відповідають дві смуги екситонних збуджень. Енергія цих екситонів у випадку двох однакових молекул в елементарній комірці кристала буде [3]:

$$E_1(k) = \Delta\varepsilon + D + L_{11}(k) + L_{12}(k), \quad (2)$$

$$E_2(k) = \Delta\varepsilon + D + L_{11}(k) - L_{12}(k). \quad (3)$$

Тут $\Delta\varepsilon$ – енергія молекулярного збудження, D – зміна міжмолекулярної взаємодії при збудженні молекули, $L_{\alpha\beta}$ – матриця резонансної взаємодії, а $\Delta E = 2L_{12}(0)$ – енергія резонансного розщеплення екситонних смуг. Ці енергетичні смуги екситонного збудження кристала можна зіставити з відповідними питомими дипольними моментами переходів у кристалі \vec{d}_1 і \vec{d}_2 . Отже, екситонні збудження у кристалі з двома молекулами в елементарній комірці, хоча й належать до одного енергетичного рівня у вільній молекулі, мають не лише різну енергію, але й відмінну поляризацію, причому в ортогональних напрямках, оскільки $\vec{d}_1 \perp \vec{d}_2$. Величини давидівського розщеплення ΔE мають різну величину для різних кристалів і коливаються від 575 см^{-1} у кристалі нафтагену до 40 см^{-1} у кристалах бензолу.

Енергія екситонного збудження кристала (1) відповідає ситуації, коли молекули кристала займають у кристалічній ґратці не порушені місця. Щоб отримати енергію взаємодії екситонів із коливаннями ґратки кристала потрібно розкласти оператор енергії екситонного збудження в ряд по малих зміщення молекул із положення рівноваги. Тоді для повної енергії збудження кристала, у якому одночасно присутні взаємодіючі екситони і фонони отримаємо:

$$H = H_{ex} + H_{ph} + H_{int}, \quad (4)$$

$$H_{int} = (N)^{-1/2} \times$$

$$\times \sum \sum \sum F_s(k, q) B_{k+q, s}^+ B_{ks} (b_{qs} + b_{-qs}^+). \quad (5)$$

Тут b_{qs}^+, b_{qs} – оператори народження і знищення фонуна s -ї гілки з енергією $\Omega_s(q)$ і квазіімпульсом \vec{q} . F_s – функція, що описує взаємодію фонуна s -ї гілки з екситонним збудженням кристала. За відсутності взаємодії H_{int} оператор (4) описує елементарні збудження кристала, що характеризуються певною кількістю незалежних екситонів і фонуна. Оператор взаємодії (5) не змінює загальної кількості екситонів у системі, а тільки

викликає переходи екситонів між підрівнями зони, поглинаючи або випромінюючи при цьому фонуни. Отже, дана взаємодія зводиться до процесів розсіювання екситонів на фонунах із виконанням законів збереження енергії і квазіімпульсу. Обчислення функції екситон-фонуна зв'язку в загальному випадку тривимірних кристалів пов'язано з великими математичними труднощами. У простих кубічних ізотропних кристалах, при врахуванні взаємодії лише між сусідніми молекулами, користуються наближеними виразами, зокрема для взаємодії з оптичним бездисперсійним фонуном [3]:

$$F_{opt}(k, q) = f_0 \cos(ka + qa/2) \cos(qa/2). \quad (6)$$

Функція форми екситонної смуги поглинання

Традиційно теорія оптичних спектрів екситону базується на такій простій модельній схемі: при поглинанні кванта світла народжується екситон (прямий фотоперехід), а потім розглядають екситон-фонуна взаємодію (лінійну по фонунах операторів), яка й зумовлює кінцевий час життя екситону з даною енергією і квазіімпульсом. У цій моделі коефіцієнт поглинання світла визначається імовірністю переходу кристала з основного стану в екситонний і зв'язаний з кореляційною функцією екситону [4]:

$$K(N, \omega, \varphi) = \sum D_\alpha^2 \int \exp(i\omega t) \langle B_Q(t) B_Q^+ \rangle dt \equiv \quad (7)$$

$$\equiv 2\pi \sum D_\alpha^2 S_\alpha(N, \omega, \varphi).$$

Тут часова залежність операторів записана у зображенні Гайзенберга, а усереднення ведеться по повному гамільтоніану кристала (4). Величина $S(\omega)$ називається функцією форми ізольованої екситонної смуги поглинання. D_α – матричний елемент взаємодії світла з кристалом, величина якого залежить від кута φ між поляризацією світлової хвилі і \vec{e}_Q – напрямку дипольного моменту

переходу кристала у даний \vec{d}_α екситонний стан

$$D_\alpha = D_0 (e_Q d_\alpha) = D_{0\alpha} \cos \varphi_\alpha. \quad (8)$$

Звідси випливає, що взаємодія світла з кристалом максимальна, коли вектор поляризації фотона паралельний до даного дипольного моменту квантового переходу ($\varphi_\alpha = 0$). Застосування методу функції Гріна дозволяє детально провести розрахунок коефіцієнта екситонного поглинання світла на підставі обчислення масового оператора екситон-фонуна системи:

$$S_\alpha(\omega, Q) = \Gamma_\alpha(\omega, Q) \left\{ \omega - E_\alpha(Q) - \Delta_\alpha(\omega, Q) \right\}^2 + I_\alpha^2(\omega, Q), \quad (9)$$

де $M_{\alpha}(\omega, Q) = \Delta_{\alpha}(\omega, Q) - i\Gamma_{\alpha}(\omega, Q)$ – масовий оператор, який у загальному випадку є комплексною функцією частоти.

Отже, контур кривої екситонного поглинання при слабкому зв'язку екситонів із фононами описується функцією квазілоренцевого типу з шириною, яка визначається уявною частиною масового оператора. Розрахунок масового оператора детально проведено в [4]:

$$M(\omega, Q) = \sum \left| F(Q, q) \right|^2 \left\{ (n_{qs} - N_{Q+q}) \times \right. \\ \left. \times [\omega - E_{\alpha}(Q+q) + \Omega_{qs} + i\tau]^{-1} + (1 + n_{qs} + N_{Q+q}) [\omega - E_{\alpha}(Q+q) - \Omega_{qs} + i\tau]^{-1} \right\}. \quad (10)$$

Тут $N_{\alpha Q}$ і n_{qs} – кількість екситонів α -ї зони і фононів s -ї гілки при заданій температурі кристала T .

$$N_{\alpha Q} = \left\{ \exp \left(\frac{E_{\alpha}(Q) - \mu}{k_B T} \right) - 1 \right\}^{-1}, \quad (11)$$

$$n_{qs} = \left\{ \exp \left(\frac{\Omega_{qs}}{k_B T} \right) - 1 \right\}^{-1}, \quad (12)$$

де k_B – постійна Больцмана, T – температура кристала в одиницях Кельвіна, μ – хімічний потенціал екситонів, величина яких визначається концентрацією екситонів N_{ex} у кристалі при даній температурі:

$$N_{ex} = \frac{1}{V} \sum N_{\alpha Q}. \quad (13)$$

Поглинання світла у кристалах бензолу

Експериментальним підтвердженням існування екситонних станів у молекулярних кристалах служить наявність двох і більше екситонних смуг поглинання, отриманих для різних поляризацій падаючої світлової хвилі. Отже, при дослідженні екситонів Френкеля на перше місце висуваються поляризаційні спектральні виміри. Розщеплення невироджених молекулярних термів у спектрах поглинання поляризованого світла зареєстровано у низці експериментальних робіт і на різних молекулярних кристалах. В основному – це кристали, утворені ароматичними молекулами бензолу C_6H_6 , антрацену $C_{14}H_{10}$, нафтацену $C_{18}H_{12}$, пентацену $C_{22}H_{14}$, нафталіну і інші. Вигляд і характер екситонних смуг поглинання у молекулярних кристалах різноманітний. У спектрах антрацену і нафтацену – це широкі інтенсивні смуги, а в спектрах бензола вони значно вужчі та слабші за інтенсивністю. Надалі зупинимося на експериментальних результатах, присвячених екситонному поглинанню у кристалах бензолу [5].

Для молекул бензолу характерна наявність чотирьох електронних рівнів збудження. Перший $\Delta E_1 = 4,722$ еВ – чисто електронний перехід. Другий $\Delta E_2 = 4,837$ еВ, третій $\Delta E_3 = 4,952$ еВ і четвертий $\Delta E_4 = 5,507$ еВ є однократною, двократною і трикратною комбінацією повно симетричного внутрімолекулярного коливання (0,115 еВ) з електронним переходом. У спектрах поглинання кристала отримано відповідно чотири смуги в одній поляризації і чотири смуги у перпендикулярній поляризації з такими спектральними характеристиками: перша – енергією $E_1 = 4,687$ еВ і величиною резонансного поляризаційного розщеплення смуги $\Delta E_1 = 40$ cm^{-1} , друга – $E_2 = 4,801$ еВ і $\Delta E_2 = 44$ cm^{-1} , третя – $E_3 = 4,918$ еВ, $\Delta E_3 = 23$ cm^{-1} , четверта – $E_4 = 5,033$ і $\Delta E_4 = 15$ cm^{-1} . Для теоретичної обробки результатів експериментального дослідження виберемо одну із смуг, а саме першу, для якої поляризаційне розщеплення 40 cm^{-1} , а у спектрі присутні дві смуги поглинання (a - і c -компоненти) з ортогональною поляризацією. Отже, електронне збудження кристала буде мати дві зони екситонних збуджень, що згідно з (2) і (3) характеризуються енергіями:

$$E_1 = E_{01} + L_1(1 - \cos y) = E_0 + L_1 y^2, \quad (14)$$

$$E_2 = E_{02} + L_2(1 - \cos y) = E_0 + \delta + \eta L y^2.$$

Тут нами введено такі позначення: E_0 – дно екситонної зони, від якої ведемо відлік енергії збудження кристала, L – ширина першої зони екситонних збуджень, δ – величина резонансного розщеплення екситонів, ηL – ширина другої зони екситонних збуджень, $y \equiv ka/\pi$ ($0 < y < 1$). Враховуючи, що для видимого і ультрафіолетового світла (а саме на цю область спектра припадає енергія збудження екситонів) добуток $Qa \ll 1$, надалі будемо нехтувати хвильовим вектором фотона і вважатимемо його таким, що дорівнює нулю $Q=0$.

Двом зонам екситонних збуджень відповідають два різних дипольних моменти переходу, а отже, й взаємодія світла з екситонним збудженням кожної із зон, згідно з (8), буде різною:

$$D_1 = D_{01} \cos \varphi = D_0 \cos \varphi, \quad (15)$$

$$D_2 = D_{02} \cos(\varphi - \frac{\pi}{2}) = \xi D_0 \sin \varphi,$$

де D_0 – відповідає за величину сили осцилятора переходу кристала у перший екситонний стан, а ξD_0 – за силу осцилятора переходу кристала у другий екситонний стан, а поляризаційний кут $0 < \varphi < \pi/2$.

Для введених нами позначень, коефіцієнт поглинання світла кристалом на частоті ω :

$$K(N, \omega, \varphi) = 2\pi \sum D_{\alpha}^2 S_{\alpha}(N, \omega) = \\ = 2\pi D_0^2 [\cos \varphi S_1(N, \omega) + \xi \sin \varphi S_2(N, \varphi)] = \\ = 2\pi D_0^2 [\alpha_1(N, \omega, \varphi) + \alpha_2(N, \omega, \varphi)]. \quad (16)$$

Як випливає з (16), екситонна смуга складатиметься із двох компонент α_1 і α_2 , остаточною функція форми кривої поглинання яких буде залежати від кута поляризації падаючої на кристал хвилі. Поки що можна тільки стверджувати, що при значенні кута $\varphi=0$ у спектрі буде присутньою лише перша смуга (з меншою енергією екситона), а при $\varphi=\pi/2$ у спектрі буде проявлятиметься лише друга смуга екситонного поглинання.

Щоб дослідити конкретний вигляд спектра поглинання кристала антрацену, розглянемо випадок слабких екситонних густин ($N \ll 1$) і проведемо обчислення коефіцієнта поглинання (16) для певних значень параметрів. Відомо, що найбільш ефективний шлях релаксації енергії екситону здійснюється через їх взаємодію з оптичними фононами. Тому надалі обмежимося лише процесами розсіювання екситонів на оптичних фононах ейнштейнівської моделі $\Omega_s(q) = \Omega_0$. Переходимо в (10) від суми за квазіімпульсом фонона \vec{q} до інтегрування за безрозмірним параметром $y = qa/\pi$, а також записуємо всі енергетичні величини в одиницях ширини першої екситонної зони (наприклад, $\Omega = \Omega_0/L$, $f_0 = f_{opt}^2/L$, $w = (\omega - E_0)/L$, $\delta = \delta/L$ і так далі). Використавши тотожність

$$\lim_{\tau \rightarrow 0} (x + i\tau)^{-1} = \frac{P}{x} - i\pi\delta(x),$$

а також формули (6), (10) і (14), отримаємо для уявної частини масового оператора такі вирази:

$$I'_1(O, w) = \pi f_0 \left(\frac{J(q_{1+})n_0}{2q_{1+}} + \frac{J(q_{1-})(1+n_0)}{2q_{1-}} \right) \quad (17)$$

$$I'_2(O, w) = \pi \frac{f_0}{\eta} \left(\frac{J(q_{2+})n_0}{2q_{2+}} + \frac{J(q_{2-})(1+n_0)}{2q_{2-}} \right) \quad (18)$$

У цих виразах ввели $q_{1\pm} = (w \pm \Omega)^{-1/2}$, $q_{2\pm} = [(w - \delta \pm \Omega)/\eta]^{-1/2}$. Провівши аналогічні перетворення і для реальної частини масового оператора, отримаємо такі вирази:

$$\Delta_1(O, w) = \\ = f_0 \{ n_0 I(w + \Omega) + (1 + n_0) I(w - \Omega) \}, \quad (19)$$

$$\Delta_2(O, w) = \\ = \frac{f_0}{\eta} \left\{ n_0 I\left(\frac{w - \delta + \Omega}{\eta}\right) + (1 + n_0) I\left(\frac{w - \delta - \Omega}{\eta}\right) \right\}, \quad (20)$$

$$n_0 = [\exp(\Omega/\theta) - 1]^{-1}, \quad (21)$$

де нами введено наступні скорочені позначення: для температури кристала $\theta = k_B T/L$ і для інтегралів

$$I(X) = P \int J(y) (X - y^2)^{-1} dy, \quad (22)$$

$$J(y) = (1 + \cos y)^2 y^2. \quad (23)$$

У виразі (22) значок P вказує на те, що інтеграл береться в сенсі головного значення, тобто числову величину інтеграла визначає не площа під підінтегральною функцією, а її значення у точках границь інтегрування ($y=0$, $y=1$). Звідси випливає, що незважаючи на існування полюсів у підінтегральних функціях, всі інтеграли мають кінцеве числове значення.

Для остаточної розрахунку смуги поглинання використовуємо наступні параметри, характерні для кристала бензолу: $L=10^3$ см⁻¹, $\Omega_0=120$ см⁻¹, $\delta=40$ см⁻¹, $\eta=0,7$, $\xi=0,83$, $f_0=0,02$. Температуру кристала вибираємо такою, що дорівнює 77° К ($\theta=0,054$) і 180° К ($\theta=0,12$), а для кутів поляризації – три значення φ (0, $\pi/4$, $\pi/2$). На рис.1.2 подано результати обчислень безрозмірного коефіцієнта поглинання $K_{\text{без}} = 2\pi D_0^2 / (f_0 L^2)$ для різних кутів і температур.

Аналіз проведених розрахунків показує, що в оптичних спектрах екситонів є істотна різниця в залежності від спрямованості вектора поляризації світлової хвилі. Якщо кут поляризації $\varphi=0$ (рис.1а), тобто вектор поляризації хвилі збігається з напрямком дипольного моменту \vec{d}_1 , то чітко реалізується екситонна смуга поглинання на частоті, рівній енергії нижньої екситонної зони E_1 . При цьому форма смуги має традиційну короткохвильову асиметрію. Для кута поляризації $\varphi=\pi/2$ (рис.1в), при якому вектор поляризації світлової хвилі зорієнтовано вздовж дипольного моменту \vec{d}_2 , у спектрі поглинання присутня лише смуга на частоті E_2 . У цієї смуги менша інтенсивність піка поглинання і змінився знак асиметрії (збільшене довгохвильове крило кривої поглинання). Для випадку проміжної поляризації екситонна смуга стає слабоструктурованою (рис.1б) і без чіткого окреслення контурів індивідуальних екситонних ліній. Як демонструють результати обчислень, зображених на рис.2, значне пониження температури дозволяє позбутись цього недоліку і тоді у спектрах поглинання при довільних проміжкових кутах поляризації існують вже одночасно обидві компоненти давидівського дублета екситонів. Зазначимо, що величина давидівського розщеплення теж залежить від температури. Вона зростає [$\delta(180^\circ\text{K})=0,036$, $\delta(77^\circ\text{K})=0,038$] зі зменшенням температури і, очевидно, при температурі абсолютного нуля сягає свого максимуму ($\delta=0,04$).

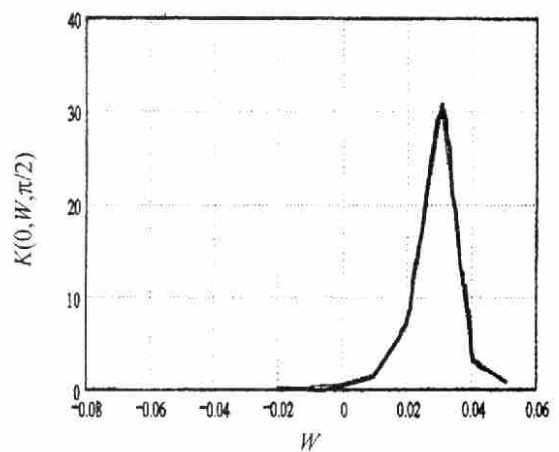
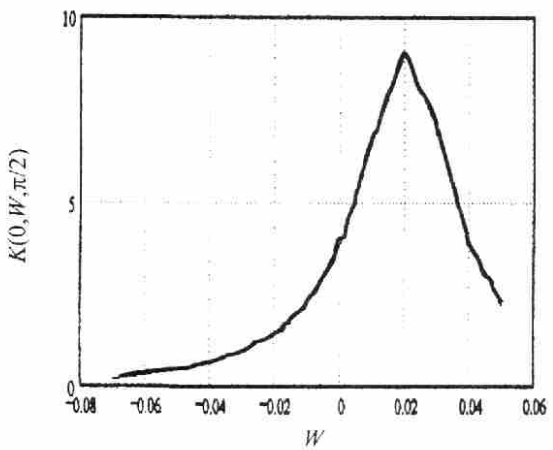
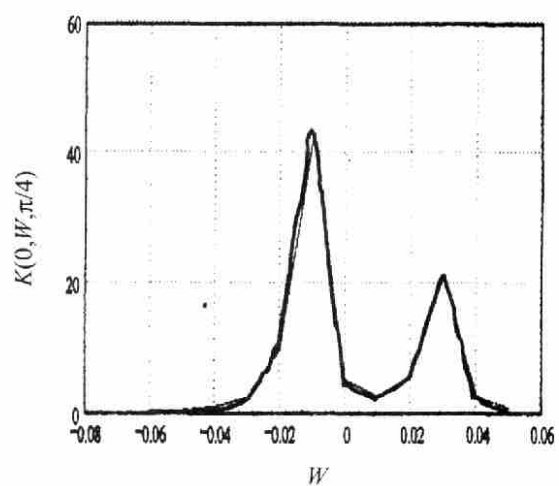
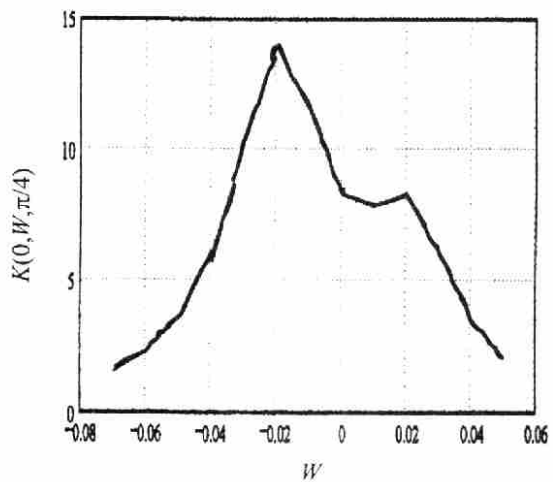
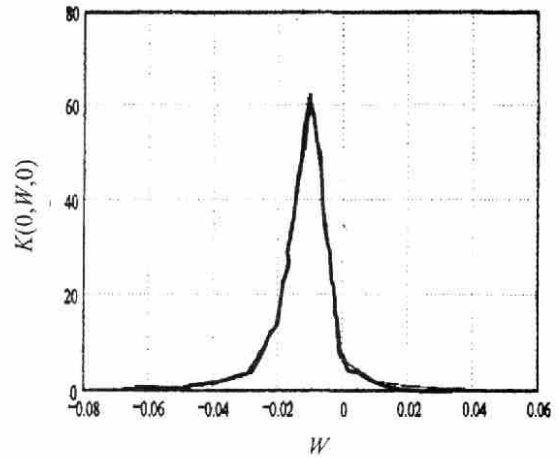
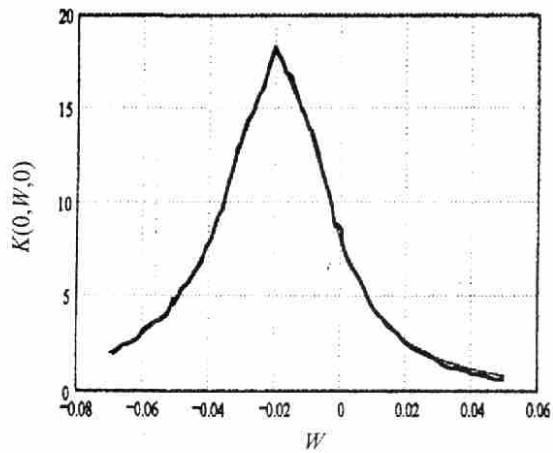


Рис.1. Спектри екситонного поглинання при температурі $T=180^{\circ}\text{K}$ для трьох кутів поляризації $\varphi=0$ (а), $\pi/4$ (б), $\pi/2$ (в).

Рис.2. Спектри екситонного поглинання при температурі $T=77^{\circ}\text{K}$ для трьох кутів поляризації $\varphi=0$ (а), $\pi/4$ (б), $\pi/2$ (в).

Бістабільні стани екситонів Френкеля

При слабкій інтенсивності збуджуючої світлової хвилі густиною екситонів можна знехтувати і коефіцієнт поглинання, як ми переконались вище, буде лише функцією температури, частоти і поляризації зовнішньої хвилі. Поглинальна здатність середовища формується при цьому лише процесами фононної релаксації екситонного збудження. Збільшення інтенсивності збуджуючої хвилі веде до зростання густини екситонних станів. У цьому

ризації зовнішньої хвилі. Поглинальна здатність середовища формується при цьому лише процесами фононної релаксації екситонного збудження. Збільшення інтенсивності збуджуючої хвилі веде до зростання густини екситонних станів. У цьому

випадку відгук системи на зовнішнє опромінення буде також залежати і від чисел заповнення екситонних станів (7), величина яких, в свою чергу, визначається інтенсивністю зовнішнього випромінювання.

При взаємодії інтенсивної світлової хвилі з кристалом уявна частина масового оператора буде визначатись виразом:

$$\Gamma_1(N, w) = \pi f_0 \left\{ \frac{J(q_{1+})(n_0 - N_{q_{1+}})}{2q_{1+}} + \frac{J(q_{1-})(1+n_0+N_{q_{1-}})}{2q_{1-}} \right\}, \quad (24)$$

$$\Gamma_2(N, w) = \pi \frac{f_0}{\eta} \left\{ \frac{J(q_{2+})(n_0 - N_{q_{2+}})}{2q_{2+}} + \frac{J(q_{2-})(1+n_0+N_{q_{2-}})}{2q_{2-}} \right\}, \quad (25)$$

а для реальної частини масового оператора, на відміну від (19) і (20), ми отримаємо вирази:

$$\Delta_1(N, w) = \Delta_1(O, w) + f_0[-I_N(w + \Omega) + I_N(w - \Omega)], \quad (26)$$

$$\Delta_2(N, w) = \Delta_2(O, w) + \frac{f_0}{\eta}[-I_N((w - \delta + \Omega)/\eta) + I_N((w - \delta - \Omega)/\eta)], \quad (27)$$

у якому значення інтеграла визначається так:

$$I_N(X) = P \int J(y) N_y (X - y^2)^{-1} dy. \quad (28)$$

Числа заповнення екситонів розраховуються згідно з (11) і (13)

$$N_y = \left[A \exp(y^2 / \theta) - 1 \right]^{-1}, \quad (29)$$

$$N_{ex} = \left\{ \pi \theta \right\}^{3/2} v^{-1} \sum A^{-n} n^{-3/2}.$$

При обчисленні величини хімічного потенціалу екситонів треба мати на увазі, що рівень хімпотенціалів не може розташовуватись вище від дна екситонної зони ($A \geq 1$). Це означає, що максимально допустима кількість екситонів заданої температури буде $N_{ex}^{max} = N_{ex}(A=1)$. Тоді для визначення величини A можна записати таке рівняння

$$N_{ex} = N \cdot N_{ex}^{max}, \quad (30)$$

де величина N змінюється в межах від 0 до 1 і кожному його значенню відповідає конкретна величина хімпотенціалу, а отже й A .

Очевидно, що при зовнішній накачці екситонів їх реальна густина залежатиме від потужності лазерного випромінювання. Тепер розподіл ек-

ситонних станів буде відрізнятись від ситуації термодинамічної рівноваги, а їх густина буде функцією як температури так і для інтенсивності збуджуючої хвилі. Щоб врахувати цей фактор при розгляді поглинальної здатності кристала, ми повинні додатково записати ще й рівняння енергетичного балансу, яке визначає кількість поглинутої енергії для створення заданої густини екситонних станів:

$$I \cdot K(N, w, \varphi) = N. \quad (31)$$

У цьому виразі $I = I_0 / (R N_{ex}^{max})$ – величина, пов'язана з інтенсивністю лазерного випромінювання I_0 [Вт/м²] і коефіцієнтом рекомбінації екситонів R [Вт].

Коефіцієнт екситонного поглинання є функцією густини екситонів, температури кристалу, частоти і поляризації лазерної хвилі. Зафіксувавши три з них, наприклад, w , θ і φ , визначаємо залежність поглинання від густини екситонів. Виявляється, що існує область частот w_s , для яких функція $K(N)$ має дзвоноподібний характер і в цьому випадку рівняння (31) може мати три розв'язки [6]. Зауважимо, що для чисто фононних механізмів релаксації енергії екситонного збудження ця область частот w_s дуже вузька. На рис.3 зображено залежність густини екситонних станів від інтенсивності збуджуючої хвилі на частотах першої ($w_{1s} = -0,01275$) і другої ($w_{2s} = 0,02725$) екситонної зони. Бачимо, що в цій залежності існує петля гістерезису, яка зумовлює існування у кристалі двох стаціонарних станів із заданою густиною екситонів при одній і тій самій інтенсивності лазерного випромінювання. Деполяризації зовнішньої лазерної хвилі на частоті нижньої екситонної (збільшення кута φ від 0 до $\pi/2$) спричинює зменшення висоти піка поглинання, веде до зміщення гістерезисної петлі в область більших інтенсивностей і розширення гістерезисної петлі, а отже, і збільшення області існування бістабільності на шкалі інтенсивностей. Висновок, що можливість отримання бістабільних станів при зменшенні поглинальної здатності кристала потребує збільшення інтенсивності вхідної лазерної хвилі, підтверджує й зміщення гістерезисної петлі при переході до ортогонального поляризованого поглинання на частоті верхньої екситонної зони (рис.3б) (висота піка поглинання якого значно менша). Зазначимо, що пониження частоти збуджуючої хвилі приводить до зменшення області існування бістабільних станів на шкалі густини екситонних станів N .

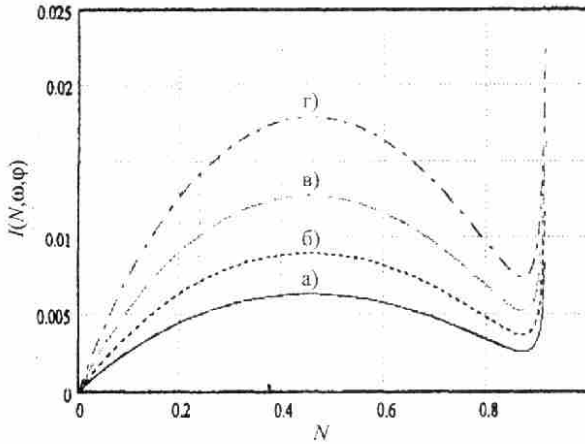


Рис.3. Залежність густини екситонних станів від інтенсивності збуджуючої хвилі для різних кутів поляризації: $\varphi=0$ (а) і $\varphi=\pi/4$ (б) на частоті $\omega=-0,01275$ та $\varphi=\pi/2$ (в) і $\varphi=\pi/4$ (г) на частоті $\omega=+0,02725$.

Таблиця 1. Характеристичні параметри петлі гістерезису в залежності $\tau(I)$.

нижня екситонна зона $\omega=-0,01275$						
φ	τ_{\uparrow}^B	$\Delta\tau_{\uparrow}$	τ_{\downarrow}^B	$\Delta\tau_{\downarrow}$	I_{\uparrow}	ΔI_s
0	0,910	0,491	0,825	0,155	0,0026	0,0037
$\pi/6$	0,918	0,446	0,867	0,158	0,0031	0,0043
$\pi/4$	0,932	0,390	0,941	0,190	0,0038	0,0052
верхня екситонна зона $\omega=+0,02725$						
φ	τ_{\uparrow}^B	$\Delta\tau_{\uparrow}$	τ_{\downarrow}^B	$\Delta\tau_{\downarrow}$	I_{\uparrow}	ΔI_s
$\pi/2$	0,955	0,308	0,921	0,09	0,0053	0,0087
$\pi/4$	0,965	0,230	0,940	0,07	0,0075	0,0109
$\pi/6$	0,971	0,167	0,955	0,05	0,0108	0,0151

Отримавши залежність $N(I)$, можна провести перерахунок коефіцієнта поглинання і визначити залежність поглинання від інтенсивності вхідної хвилі $K(I)$. На цій основі нами проведено також обчислення коефіцієнта пропускання (або ж відношення вихідної інтенсивності світла до вхідної інтенсивності) для кристала з товщиною d :

$$\tau = \exp[-K(I)d]. \quad (32)$$

Результати обчислень за формулою (32) для заданих параметрів (товщина кристала $d=0,5 \cdot 10^{-4}$ см, а константа взаємодії $2\pi D_0^2/L=2 \text{ см}^{-1}$) наведено на рис.4. Бачимо, що реалізація явища оптичної бістабільності можлива у двох ортогональних поляризаціях збуджуючої лазерної хвилі. Підтверджується й той факт, що внаслідок меншої поглинальної здатності кристала на частоті верхньої екситонної зони реалізація оптичної бістабільності можлива лише при збільшенні інтенсивності лазерної хвилі. Закономірності трансформації гістерезисної петлі в залежності $\tau(I)$ зі зміною кута поляризації подано у таблиці 1. В основному

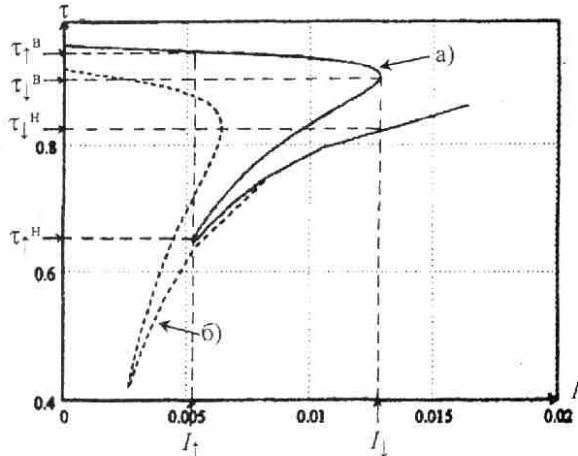


Рис.4. Залежність коефіцієнта пропускання світла від інтенсивності збуджуючої хвилі на частоті $\omega=-0,01275$ для кута поляризації $\varphi=0$ (а) та на частоті $\omega=0,02725$ для $\varphi=\pi/4$ (б).

вони зводяться до наступного. Деполяризація оптичних смуг поглинання, незалежно від їхньої частоти збудження, приводить до зменшення висоти гістерезисної петлі ($\Delta\tau_{\uparrow}$), а отже і величини інтервалу перемикання сильне-слабке поглинання, зсуває гістерезис в область більших інтенсивностей (I_{\uparrow}) і розширює його петлю (ΔI_s), що веде до збільшення області можливої реалізації оптичної бістабільності за рахунок зростання інтенсивності збуджуючої хвилі. Проте є й відмінності в динаміці розвитку нелінійного поглинання у різних поляризаціях. Зокрема, зміна інтервалу перемикання слабке-сильне поглинання ($\Delta\tau_{\downarrow}$) має різний знак: для нижньої екситонної смуги інтервал перемикання збільшується з наростанням деполяризації, а для верхньої екситонної смуги він зменшується. Це пов'язано, очевидно, з різними швидкостями зменшення висоти піка у різних поляризаціях.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Гиббс Х. Оптическая бистабильность. - М.: Мир, 1988.
2. Nitsowich B.M., Zenkova S.Ju. Theory of optical bistability in the region of exciton resonances // Optical Engineering. - 1995. - 34, №4. - С.1072.
3. Давыдов А.С. Теория молекулярных экситонов. - М.: Наука, 1968.
4. Давыдов А.С. Теория твердого тела. - М.: Наука, 1973.
5. Броуде В.Л., Медведев В.С., Приходько А.Ф. Спектральные особенности экситонного поглощения в монокристаллах бензола // ЖЭТФ. - 1957. - 2. - С.317.
6. Бродин М.С., Блонский И.В., Ніцович Б.М., Ніцович В.В. Динамические эффекты в многокомпонентном газе квазичастиц. - Киев: Наук. думка, 1990.