

ОСОБЛИВОСТІ ФОРМУВАННЯ ОПТИЧНОЇ БІСТАБІЛЬНОСТІ В МОЛЕКУЛЯРНИХ КРИСТАЛАХ

Чернівецький національний університет ім. Ю.Федьковича, Чернівці

Вивчаються особливості реалізації оптичної бістабільності в молекулярних кристалах, як наслідок нелінійного поглинання в екситонній області частот. Розраховано функцію форми екситонного поглинання при врахуванні зміни зовнішніх факторів: інтенсивності освітлення, поляризації збуджуючої хвилі та слабого магнітного поля. Показано, що відповідна зміна цих величин дозволяє формувати петлю гістерезису, а отже, й оптичну бістабільність, з наперед заданими параметрами.

The peculiarities of optical bistability realization in molecular crystals caused by nonlinear absorption in the exciton frequency region is studied. The form function of exciton absorption is calculated taking into account the changes of the outer factors: the light intensity, the exciting waves polarization and the weak magnetic field. It is shown that proper changes of these values enables the formation of a hysteresis loop and the arising of optical bistability preset parameters.

В основі будь-якої системи запису та збереження оптичної інформації лежить явище оптичної бістабільності, при якому для одного значення вхідної інтенсивності світла I_0 існують два стабільні значення вихідного сигналу I . Механізми утворення оптичної бістабільності (ОБ) як і середовище їх реалізації можуть бути найрізноманітнішими [1]. Проте кінцевою метою довільної схеми ОБ є можливість впливу на її характеристики, можливість управляти процесом розвитку нелінійних ефектів та отримання в залежності $I(I_0)$ петлі гістерезису із заданими характеристиками.

В роботі вивчається ОБ у молекулярних кристалах в області екситонних частот поглинання [2]. Характерною особливістю таких кристалів є реалізація нейтрального електронного збудження – екситона Френкеля, при цьому, кількість екситонних зон залежить від кількості молекул в елементарній комірці. Кожна із цих зон характеризується певним напрямком дипольного моменту екситонного переходу і реалізується лише при конкретній поляризації зовнішньої світлової збуджуючої хвилі. У випадку строго поляризованого випромінювання в спектрах поглинання буде реалізовуватись лише одна конкретна ізольована зона екситонних збуджень. Деполяризація зовнішньої хвилі збудження спричинює перемішування всіх наявних екситонних зон і реаліза-

цію структурованої смуги поглинання зі складною динамікою функції форми смуги. Саме останнє і відкриває шлях до реалізації в таких кристалах як явища оптичної бістабільності, так і мультистабільності.

Мета даної роботи – дослідження впливу двох важливих зовнішніх факторів – поляризації вхідного випромінювання та зовнішнього магнітного поля на формування поглинаючої здатності молекулярних кристалів в області екситонних частот.

Функція форми екситонної смуги поглинання

Розглядаємо молекулярний кристал, у якого є дві молекули в елементарній комірці з різними дипольними моментами переходу в збуджений стан. В цьому випадку одному невиродженому збудженому стану вільної молекули вже в кристалі відповідає дві смуги екситонних збуджень $E_1(\vec{k})$ та $E_2(\vec{k})$, відстань між якими відповідає енергії резонансного розщеплення екситонних смуг – Δ . Ці смуги відрізняються різними значеннями дипольних моментів переходів у кристалі – \vec{d}_1 і \vec{d}_2 . Тому екситонні збудження в кристалі з двома молекулами в елементарній комірці, хоча і належать до одного енергетичного рівня вільної молекули, мають не лише різну енергію, а й різну поляризацію, причому в ортогональних напрямках, оскільки вектори $\vec{d}_1 \perp \vec{d}_2$.

Традиційно теорія оптичних спектрів екситона базується на простій модельній схемі: при поглинанні кванта світла народжується екситон (прямий фотоперехід), а потім включається екситон-фононна взаємодія, яка й зумовлює кінцевий час життя екситона з даною енергією та квазіімпульсом. В цій моделі коефіцієнт поглинання світла на частоті ω визначається імовірністю переходу кристала з основного стану в екситонний і зв'язаний із кореляційною функцією екситона [3]:

$$K(\omega, \varphi) = 2\pi \sum_{\alpha=1}^2 D_{\alpha}^2 S_{\alpha}(\omega, \varphi). \quad (1)$$

Величина $S(\omega)$ називається функцією форми екситонної смуги поглинання, а D_{α} – матричний елемент взаємодії світла з кристалом, величина якого залежить від кута (φ) між поляризацією світлової хвилі \vec{e} і напрямку дипольного моменту переходу кристала в даний \vec{d}_{α} екситонний стан

$$D_{\alpha} = D_0(\vec{e}_0 \cdot \vec{d}_{\alpha}) = D_0 \cos \varphi_{\alpha}. \quad (2)$$

Отже, взаємодія світла з кристалом максимальна, якщо 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

$$M_{\alpha}(\omega) = \Delta_{\alpha}(\omega) - i\Gamma_{\alpha}(\omega)$$

екситон-фононної системи:

$$S_{\alpha}(\omega) = \Gamma_{\alpha}(\omega) \left\{ [\omega - E_{\alpha 0} - \Delta_{\alpha}(\omega)]^2 + \Gamma_{\alpha}^2(\omega) \right\}^{-1}. \quad (3)$$

Тоді контур кривої екситонного поглинання задається функцією з шириною, що визначається уявною частиною масового оператора. Розрахунок масового оператора, при врахуванні екситон-фононної взаємодії і в наближенні слабого зв'язку екситонів із фононами, детально проведено в [3]:

$$M(N, \omega) = \sum_{\alpha=lq,s}^2 |F_s(0, q)|^2 \left\{ (n_{qs} - N_{q\alpha}) \times \right. \\ \left. \times [\omega - E_{\alpha}(q) + \Omega_{qs} + i\tau]^{-1} + \right. \\ \left. + (1 + n_{qs} + N_{q\alpha}) [\omega - E_{\alpha}(q) - \Omega_{qs} + i\tau]^{-1} \right\}, \quad (4)$$

де $F_s(0, q)$ – функція, яка описує взаємодію екситона з фононом, $N_{q\alpha}$ та n_{qs} – кількість екситонів

α -ї зони та фононів s -ї вітки з квазіімпульсом q при заданій температурі кристалу T , а N – повна густина екситонів у кристалі.

Для конкретних обчислень функції екситонного поглинання, зупинимось на експериментальних даних по екситонному поглинанню в кристалах бензолу, в спектрах якого присутні дві смуги поглинання (a - і c -компоненти) з ортогональною поляризацією і давидовським розщепленням $\Delta=40 \text{ см}^{-1}$ [4]. Надалі розглядаємо дві зони екситонних збуджень, які в наближенні ефективної маси, характеризуються енергіями:

$$E_1 = E_0 + Ly^2, \quad E_2 = E_0 + \Delta + \eta Ly^2. \quad (5)$$

Тут введено такі позначення: E_0 – дно нижньої екситонної зони, від якої ведемо відлік енергії збудження кристала, L – ширина зони екситонних збуджень, Δ – величина резонансного розщеплення екситонів, ηL – ширина другої зони екситонних збуджень, а $0 < y < 1$ – безрозмірний квазіімпульс екситонів. Цим екситонним зонам відповідають два різних дипольних моменти переходу, а отже, і, відповідно, взаємодія світла з екситонним збудженням кожної із зон буде різною:

$$D_1 = D_0 \cos \varphi, \quad D_2 = \xi D_0 \sin \varphi, \quad (6)$$

де D_0 – відповідає за величину сили осцилятора переходу кристалу в нижній екситонний стан, ξD_0 – в другий екситонний стан, а поляризаційний кут $0 < \varphi < \pi/2$.

Для остаточного розрахунку смуги поглинання обмежимося релаксацією екситонів лише на оптичній гілці фононів (f_0 – константа екситон-фононної взаємодії) та виберемо такі значення параметрів, характерні для кристалу бензолу: $L=10^3 \text{ см}^{-1}$, $\Omega_0=120 \text{ см}^{-1}$, $\eta=0,7$, $\xi=0,83$, $f_0=0,02$. Результати по обчисленню безрозмірного кое-

фіцієнта поглинання $K_{\text{безр}} = \frac{2\pi D_0^2}{f_0 L^2}$ у випадку

слабких екситонних густин ($N \ll 1$) для $\varphi=\pi/4$ та температури $T=77 \text{ К}$ показують, що в оптичних спектрах екситонів є істотна різниця в залежності від спрямованості вектора поляризації світлової хвилі. Якщо вектор поляризації хвилі збігається з напрямком дипольного моменту \vec{d}_1 ($\varphi=0$), то чітко реалізується екситонна смуга поглинання на частоті, що дорівнює енергії нижньої екситонної зони E_1 . При цьому форма смуги має традиційну короткохвильову асиметрію. Для

кута поляризації $\varphi=\pi/2$, при якому вектор поляризації хвилі зорієнтований вздовж дипольного моменту \vec{d}_2 , в поглинанні присутня лише смуга на частоті E_2 . Для цієї смуги характерна менша інтенсивність піка поглинання і змінився знак асиметрії (збільшене довгохвильове крило кривої поглинання). Для випадку проміжної поляризації світла екситонна смуга стає структурованою і в спектрах поглинання існують вже одночасно обидві компоненти давидовського дублета екситонів.

Оптична бістабільність екситонів Френкеля

При слабкій інтенсивності збуджуючої світлової хвилі густиною екситонів можна знехтувати і коефіцієнт поглинання є лише функцією температури, частоти та поляризації зовнішньої хвилі. Збільшення інтенсивності збуджуючої хвилі веде до зростання густини екситонів. В цьому випадку відгук системи на зовнішнє опромінення вже залежить від чисел заповнення екситонних станів, величина яких, в свою чергу, визначається інтенсивністю зовнішнього випромінювання [5]. Тоді для певної фіксованої області частот коефіцієнт поглинання, як функція числа екситонів $K(N)$, буде мати дзвоноподібний характер. Це означає, що при поглинанні світла конкретної частоти, зміною лише його інтенсивності, можна створювати в кристалі стани з різною величиною поглинання.

Зафіксувавши температуру, частоту та поляризацію зовнішньої хвилі, визначаємо залежність поглинання від густини екситонів. Виявляється, що існує область частот ω_s , для яких функція $K(N)$ має дзвоноподібний характер і в цьому випадку рівняння (6) може мати три розв'язки. Причому така залежність густини екситонних станів від інтенсивності збуджуючої хвилі існує на частотах як першої ($\omega_{1s}=-0,01275$), так і другої ($\omega_{2s}=0,02725$) екситонної зони. Деполяризації зовнішньої лазерної хвилі на частоті нижньої екситонної (збільшення кута φ від 0 до $\pi/2$), яка спричинюється до зменшення висоти піка поглинання, веде до зміщення гістерезисної петлі в область більших інтенсивностей та розширення гістерезисної петлі, а отже, і збільшення області існування бістабільності на шкалі інтенсивностей. Висновок про можливість отримання бістабільних станів при зменшенні поглинаючої здатності

кристала, що потребує збільшення інтенсивності вхідної лазерної хвилі, підтверджує і зміщення гістерезисної петлі при переході до ортогонального поляризованого поглинання на частоті верхньої екситонної зони (висота піка поглинання якого значно менша). Отримавши залежність $N(I_0)$, можна провести перерахунок коефіцієнта поглинання і визначити залежність поглинання від інтенсивності вхідної хвилі $K(I)$. Скориставшись формулою Бугера, отримаємо залежність вихідної інтенсивності світла від вхідної:

$$I_{\text{вих}} = I \exp[-K(I)d]. \tag{7}$$

Результати обчислень за цією формулою для заданих параметрів (товщина кристалу $d=0,5 \cdot 10^{-4}$ см, а константа взаємодії $2\pi D_0^2 / L = 2 \text{ см}^{-1}$) наведено на рис.1. Бачимо, що реалізація явища оптичної бістабільності можлива в обидвох ортогональних поляризаціях збуджуючої лазерної хвилі. Підтверджується і той факт, що внаслідок меншої поглинаючої здатності кристала на частоті верхньої екситонної зони реалізація оптичної бістабільності можлива лише при збільшенні інтенсивності лазерної хвилі.

Деполяризація оптичних смуг поглинання і перехід від нижньої екситонної зони (рис.1а) до верхньої (рис.1б) зсуває гістерезис в область більших інтенсивностей (I_{\uparrow}) та розширює його петлю, що веде до збільшення області можливої реалізації оптичної бістабільності за рахунок зростання інтенсивності збуджуючої хвилі.

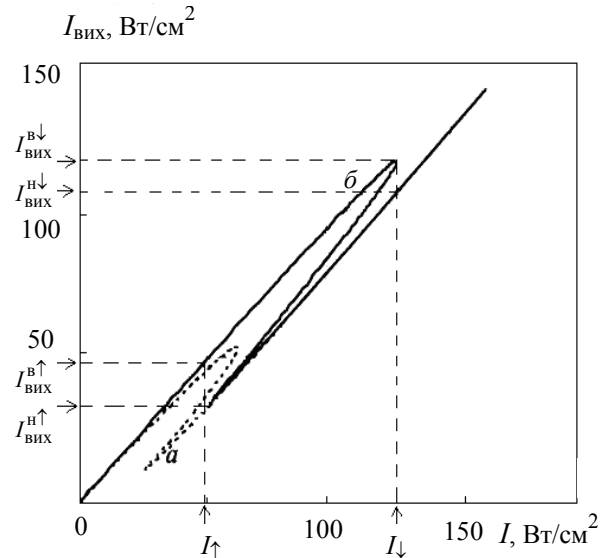


Рис. 1. Залежність вихідної інтенсивності світла від інтенсивності збуджуючої хвилі для різних кутів поляризації: $\varphi=0$ (а) та $\varphi=\pi/2$ (б)

Магнітооптичне поглинання

Дослідження поведінки екситонів Френкеля в магнітному полі ускладнюється поляризаційною залежністю їхніх спектрів поглинання, а тому в динаміці нелінійних ефектів можна очікувати певних аномалій, зокрема реалізації мультистабільних станів. Надалі обмежимося розглядом лише первинних ефектів прояву магнітного поля, а саме: зміни енергії екситонного збудження та чисел заповнення екситонів під дією зовнішнього поля. Екситонний спектр молекулярного кристалу в слабкому магнітному полі запишеться [6]:

$$E_{\alpha}(\vec{H}, y) = E_{\alpha}(y) + \delta_{\alpha} \vec{H}^2, \quad (8)$$

де δ_{α} та $E_{\alpha}(y)$ – параметр діаманітного зсуву та енергія екситона α -зони, у випадку двох молекул кристала в елементарній комірниці енергія екситона дається (5). Тоді оптичні характеристики молекулярного кристала типу бензолу, який знаходиться в зовнішньому магнітному полі \vec{H} і на який падає зовнішнє електромагнітне випромінювання частоти ω , поляризації φ та інтенсивності I . В цьому випадку функція форми екситонної смуги поглинання, згідно з (3), запишеться:

$$S_{\alpha}(\omega, H) \equiv \frac{\Gamma_{\alpha}(\omega_h)}{[\omega_h - E_{\alpha 0} - \Delta_{\alpha}(\omega_h)]^2 + \Gamma_{\alpha}^2(\omega_h)}, \quad (9)$$

де введено такі позначення: $\omega_h = \omega - h$ і $h = (\delta \vec{H}^2)/L$. Схема розрахунку залежності коефіцієнта екситонного поглинання від величини магнітного поля аналогічна використаній на початку статті. Проаналізований вплив магнітного поля на формування смуги поглинання полягає в паралельному її зміщенні у цілому в бік більших енергій зі зростанням напруженості магнітного поля. Тобто дія зовнішнього магнітного поля на кристал зводиться до частотної селекції оптичних властивостей кристалу або ж, змінюючи h , досягається ефект, еквівалентний зміні частоти падаючого на кристал світла. Оскільки зсув екситонного рівня зі зміною поля відбувається в бік більших енергій, то, опромінюючи кристал на короткохвильовому хвості смуги екситонного поглинання, можна за допомогою зовнішнього магнітного поля повністю реставрувати частотний розподіл коефіцієнта екситонного поглинання для даного напівпровідника.

У випадку лазерної накачки коефіцієнт екситонного поглинання стає ще й функцією густини екситонів N . Тепер пропускання кристала буде

виключно нелінійною функцією інтенсивності вхідного сигналу I , оскільки інтенсивність світла на виході з кристалу, окрім залежності від I згідно з (7), буде істотно визначатися ще й густиною екситонів, величина якої у свою чергу повністю зумовлена лазерною накачкою. Використовуючи залежність поглинання від величини магнітного поля та зафіксувавши вхідні параметри (інтенсивність падаючої хвилі $I=80$ Вт/см², поляризацію лазерної хвилі $\varphi=45^{\circ}$ і її частоту $\omega_s=0,06$), за допомогою формули Бугера-Бера отримаємо залежність вихідної інтенсивності від величини зовнішнього магнітного поля – $I_{\text{вих}}(h)$. Результати розрахунку зображені на рис.2. Бачимо, що, існує певний інтервал напруженості магнітного поля, для якого може бути реалізовано явище магнітооптичної бістабільності (МОБ). Тут слід особливо підкреслити, що запис і зчитування тільки оптичної інформації відбувається за допомогою зовнішнього магнітного поля, в чому й полягає основна відміна явища МОБ від традиційної оптичної бістабільності. Для вибраних нами параметрів, інтервал існування МОБ дуже вузький ($\Delta H_s=6$ Тл), що означає підвищену чутливість бістабільного елемента на зміну величини зовнішнього магнітного поля. Слід зазначити, що розмір області існування МОБ не залежить від реверсної частоти вхідного сигналу ω_s . Збільшивши частоту лазерного випромінювання на величину $\Delta \omega_s$ ми отримаємо ідентичну петлю

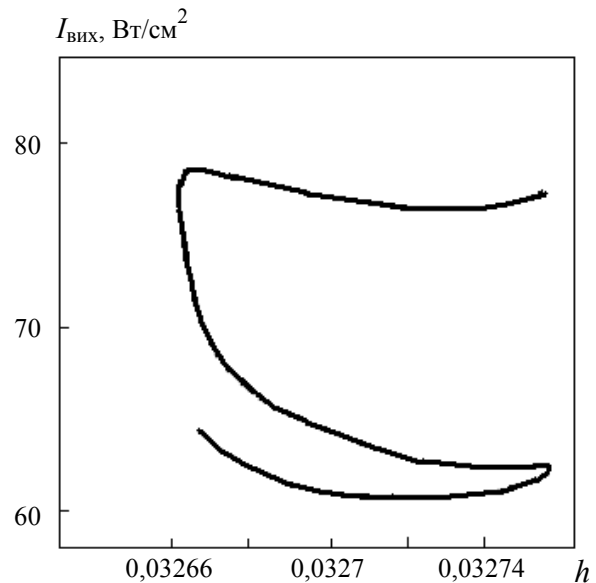


Рис. 2. Реалізація магнітооптичної бістабільності для різних значень величини магнітного поля

гістерезису МОБ, яка реалізується, проте, при інших значеннях величини магнітного поля. Окрім того, змінюється і напрямок руху по петлі гістерезису – він стає інверсійним по відношенню до частотної оптичної бістабільності. Реверсний механізм формування МОБ зумовлює той факт, що перемикання кристала сильне–слабке поглинання відбувається при зменшенні величини магнітного поля, тоді як при звичайній ОБ це перемикання виникає при поступовому збільшенні частоти вхідного сигналу.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Гиббс Х. Оптическая бистабильность. – М.: Мир, 1988.
2. Nitsovich V.M., Zenkova C.Ju. Theory of optical bistability in the region of exciton resonance's // Optical Engineering. – 1995. – **34**, No. 4. – P.1072.
3. Давыдов А.С. Теория твердого тела. – М.: Наука, 1973.
4. Броуде В.Л., Медведев В.С., Прихотько А.Ф. Спектральные особенности экситонного поглощения в монокристаллах бензола // ЖЭТФ. – 1957. – **2**. – С.317.
5. Бродин М.С., Блонский И.В., Ницович Б.М., Ницович В.В. Динамические эффекты в многокомпонентном газе квазичастиц. – Киев: Наук. думка, 1990.
6. Nitsovich V.M., Zinchenko A.A., Zenkova C.Yu. Crystal optical bistability in a magnetic field // Proceedings of SPIE. – 1999. – **3904**. – P.184.