ЖЭТФ, 1997, том 111, вып. 6, стр. 2147–2157

ФОТОИНДУЦИРОВАННЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В СИСТЕМЕ С ПЕРЕСТРАИВАЕМЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ СПЕКТРОМ

*А. Л. Семенов**

Ульяновский филиал Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова 432700, Ульяновск, Россия

Поступила в редакцию 17 ноября 1996 г.

Построена теория фотоиндуцированного фазового перехода и безрезонаторной оптической бистабильности электронного типа в световом поле с конечной шириной оптического спектра. На основе уравнения Лиувилля для матрицы плотности в дипольном приближении получены критерии существования и рассчитаны основные характеристики данных явлений. Показано, что уширение оптического спектра ухудшает возможность наблюдения критических особенностей (критерий существования становится более жестким, а размеры петли гистерезиса уменьшаются). Проведено сравнение с экспериментом для CdS и аморфного GeS_2.

1. ВВЕДЕНИЕ

Фотоиндуцированный фазовый переход в системе с перестраиваемым электронным спектром представляет собой скачкообразные изменения ширины запрещенной зоны электронного спектра и концентрации электронов в зоне проводимости полупроводника, когда интенсивность падающего излучения достигает критического значения. При этом скачкообразно меняются оптические свойства вещества. В окрестности фазового перехода в системе наблюдается безрезонаторная оптическая бистабильность при нарастающем поглощении [1].

Резкое изменение свойств электрон-фононной системы твердого тела, как известно, может быть вызвано варьированием таких параметров как давление [2], температура [2, 3], концентрация легирующей примеси [4–6], концентрация адсорбированных на поверхности молекул и т. д. [7]. Все эти фазовые переходы происходят между термодинамически равновесными состояниями, в то время как принципиальной особенностью фотоиндуцированного фазового перехода является его существенная неравновесность.

Механизмы, вызывающие перестройку электронного спектра в световом поле, могут быть самыми различными: экситон-экситонное взаимодействие и экранировка электрон-дырочной плазмой в CdS [8–10], взаимодействие электронов со статической фононной модой на краю зоны Бриллюэна в VO_2 [2, 11, 12], взаимодействие электронов с дефектами в аморфном GeS_2 [13] и др. [1].

Однако несмотря на такое разнообразие механизмов фотоиндуцированный фазовый переход в данных материалах имеет общие черты. В частности, экспериментально установлено, что частота падающего излучения, вызывающего фазовый переход, ограничена сверху [8, 12, 13]. Например, в CdS и GeS_2 она должна быть меньше частоты

*semenov@quant.univ.simbirsk.su

нижнего края оптического перехода по крайней мере на фиксированную (свою для каждого материала) величину [8, 13]. Снизу же частота света ограничена из-за эффекта насыщения оптических межзонных переходов. Таким образом, фотоиндуцированный фазовый переход и безрезонаторная оптическая бистабильность электронного типа имеют селективный характер [12].

В настоящей работе предлагается модель фотоиндуцированного фазового перехода и безрезонаторной оптической бистабильности, основанная на том факте, что электронный спектр системы зависит от концентрации электронов в зоне проводимости. При облучении квазимонохроматическим световым полем, несущая частота которого несколько меньше частоты нижнего края оптического перехода, в такой системе возникает положительная обратная связь. Первоначально нерезонансное световое поле вызывает за счет размытия нижнего края оптического перехода небольшое количество оптических переходов электронов в зону проводимости и, как следствие, незначительное уменьшение ширины запрещенной зоны. В результате электрон-фотонное взаимодействие становится более резонансным и, следовательно, более интенсивным, что в свою очередь ведет к дальнейшему уменьшению ширины запрещенной зоны. Положительная обратная связь снижает устойчивость системы. В случае же, когда она становится достаточно сильной, устойчивость теряется и происходит скачкообразный переход в новое состояние равновесия (фазовый переход).

Явления фотоиндуцированного фазового перехода и безрезонаторной оптической бистабильности, основанные на быстром возрастании эффективности взаимодействия подзонного светового поля с двухуровневой системой при уменьшении частоты межуровневого перехода, были рассмотрены в [14]. Предполагалось, что электронный спектр имеет резкую границу нижнего края оптического перехода, а перекрытие спектров электронной подсистемы и светового поля обусловлено конечной шириной последнего. В настоящей работе определяющим является размытие границы нижнего края оптического перехода электронной подсистемы, а ширина оптического спектра падающего излучения может быть бесконечно малой. Конечность же этой величины, как будет показано ниже, приводит к более жестким (по сравнению со случаем, когда ширина спектра падающего излучения $\Delta\omega = 0$) условиям существования фотоиндуцированного фазового перехода и безрезонаторной оптической бистабильности, накладывающим ограничения на параметры электронной системы и несущую частоту светового поля.

2. ОСНОВНЫЕ УРАВНЕНИЯ

Взаимодействие электронной подсистемы со световым полем будем описывать с помощью уравнения Лиувилля [15]

$$i\hbar\frac{\partial\rho}{\partial t} = [H + V, \rho], \tag{1}$$

где ρ — матрица плотности электронов в среде, H — гамильтониан электронной системы в отсутствие облучения, V — оператор возмущения, который в дипольном приближении имеет вид

$$V = -\mathbf{d}\mathbf{E}(t) = -\mathbf{d}\int \mathbf{E}_\omega e^{-i\omega t}d\omega. \tag{2}$$

Здесь $\mathbf{d}$ — оператор дипольного момента; $\mathbf{E}_\omega$ и ω — соответственно амплитуда и частота спектральной компоненты светового поля.

Рассмотрим случай, когда падающее излучение $\mathbf{E}(t)$ является линейно поляризованным, квазимонохроматическим, стационарным случайным полем [16]. Тогда все спектральные компоненты $\mathbf{E}_\omega$ статистически независимы [16, 17]:

$$\langle \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_{\omega_1} \rangle = G(\omega)\delta(\omega + \omega_1). \tag{3}$$

Здесь $G(\omega)$ — спектральная плотность светового поля, которая для квазимонохроматического сигнала может быть представлена в следующем виде [16]:

$$G(\omega) = Ig\left(|\omega| - \omega_0\right), \tag{4}$$

где ω_0 — несущая частота, $g(x)$ — четная неотрицательная функция колоколообразной формы с максимумом в точке $x = 0$, удовлетворяющая условию нормировки $\int g(x)dx = 1$. Полуширина $\Delta\omega$ спектра $G(\omega)$ удовлетворяет неравенству $\Delta\omega \ll \omega_0$. Величина $I = \int G(\omega)d\omega/2$ характеризует интенсивность светового поля (в гауссовой системе с точностью до множителя $c\sqrt{\varepsilon}/2\pi$, где c — скорость света, $\sqrt{\varepsilon}$ — показатель преломления среды).

Используя (1), с учетом (2), (3) находим уравнение для диагональных элементов ρ_{kk} матрицы плотности ρ электронной подсистемы во втором порядке теории возмущений:

$$\frac{\partial \rho_{kk}}{\partial t} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_s |\mathbf{d}_{ks}|^2 G\left(\frac{\varepsilon_s - \varepsilon_k}{\hbar}\right)(\rho_{ss} - \rho_{kk}). \tag{5}$$

Здесь $\mathbf{d}_{ks}$ — матричный элемент оператора дипольного момента, ε_s — спектр оператора H, $s = (\mathbf{s}, j)$ — параметр, характеризующий одноэлектронное квантовое состояние с квазиволновым вектором $\mathbf{s}$ и номером зоны j. В частном случае монохроматического светового поля

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t + \varphi)$$

с равномерно распределенной случайной фазой φ спектральная плотность

$$G(\omega) = \frac{E_0^2}{4}\left[\delta(\omega - \omega_0) + \delta(\omega + \omega_0)\right].$$

Тогда уравнение (5) переходит в хорошо известное золотое правило Ферми для вероятности вынужденных переходов [17].

Рассмотрим случай, когда разрешены только прямые переходы между валентной зоной ($j = 1$) и зоной проводимости ($j = 2$). Матричный элемент дипольного момента $\mathbf{d}_{ks}$, где $k = (\mathbf{k}, 1)$, $s = (\mathbf{s}, 2)$, тогда принимает вид

$$|\mathbf{d}_{ks}| = d_{\mathbf{k}}\delta_{\mathbf{k},\mathbf{s}}, \tag{6}$$

где $\delta_{\mathbf{k},\mathbf{s}}$ — символ Кронекера. Из уравнения (5) с учетом (6) получаем формулу, описывающую изменение населенности $\mathbf{k}$-го уровня зоны проводимости $n_{\mathbf{k}} = \rho_{(\mathbf{k},2);(\mathbf{k},2)}$, обусловленное вынужденными оптическими переходами:

$$\frac{\partial n_{\mathbf{k}}}{\partial t} = \frac{2\pi}{\hbar^2} d_{\mathbf{k}}^2 G(\omega_{\mathbf{k}}), \tag{7}$$

где $\omega_{\mathbf{k}} = (\varepsilon_{\mathbf{k},2} - \varepsilon_{\mathbf{k},1})/\hbar$ — спектр электронных возбуждений для прямых оптических межзонных переходов. При записи (7) предполагалось также, что оптические переходы на частоте $\omega_{\mathbf{k}}$ далеки от насыщения:

$$\rho_{(\mathbf{k},1);(\mathbf{k},1)} - \rho_{(\mathbf{k},2);(\mathbf{k},2)} = 1. \tag{8}$$

Подставляя (4) в (7), находим кинетическое уравнение для концентрации электронов $n = \sum_{\mathbf{k}} n_{\mathbf{k}}$ в зоне проводимости:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{2\pi I}{\hbar^2} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 g\left(|\omega_{\mathbf{k}}| - \omega_0\right) - \frac{n}{\tau}. \tag{9}$$

Второе слагаемое в правой части (9), введенное феноменологически, описывает межзонную релаксацию к равновесному значению $n = 0$ с временем релаксации τ.

Пренебрегая изменением дипольного момента $d_{\mathbf{k}}$ вблизи $\omega_{\mathbf{k}} = \omega_0$ ($d_{\mathbf{k}} \simeq d$), из (9) для стационарного режима ($\partial n/\partial t = 0$) получаем

$$I = \frac{\hbar n}{2\pi\tau d^2 S(\omega_0, n)}, \tag{10}$$

где

$$S = S(\omega_0, n) = \int g\left(|\omega| - \omega_0\right) \nu(\omega, n) d\omega, \tag{11}$$

$\nu(\omega, n)$ — комбинированная плотность состояний, соответствующая спектру прямых электронных возбуждений $\omega_{\mathbf{k}}$ [18].

Уравнение (10) представляет собой обратную зависимость концентрации n электронов от интенсивности светового поля I в стационарном состоянии равновесия. Как показывает анализ соотношения (9), это состояние будет устойчивым, если в (10) $\partial I/\partial n > 0$. Уравнение для критических точек, где происходит потеря устойчивости, имеет вид $\partial I/\partial n = 0$. Отсюда с учетом (10) находим

$$S(\omega_0, n) - n\frac{\partial S(\omega_0, n)}{\partial n} = 0. \tag{12}$$

Таким образом, условием фотоиндуцированного фазового перехода в электронной системе является существование точек (ω_0, n), удовлетворяющих уравнению (12).

В точке бифуркации (ω_b, n_b), где прямой и обратный фазовые переходы являются переходами второго рода и происходят при одном и том же значении I, кроме (12) должно выполняться условие $\partial^2 I/\partial n^2 = 0$. Отсюда с учетом (10) получаем

$$\frac{\partial^2 S(\omega_0, n)}{\partial n^2} = 0. \tag{13}$$

Уравнения (10)–(13) являются основными соотношениями, описывающими поведение электронной системы с перестраиваемым спектром в световом поле.

3. СВЯЗЬ МЕЖДУ ИНТЕНСИВНОСТЬЮ ОБЛУЧЕНИЯ И КОНЦЕНТРАЦИЕЙ ЭЛЕКТРОНОВ В ЗОНЕ ПРОВОДИМОСТИ

Рассмотрим теперь модельную комбинированную плотность электронных состояний следующего вида

$$\nu(\omega, n) = \frac{\nu_0}{1 + e^x}, \tag{14}$$

где

$$x = x(\omega, n) = \alpha(\omega_1 - \beta n - \omega), \tag{15}$$

x — безразмерная переменная, характеризующая отстройку частоты $\omega_1 - \beta n$ нижнего края оптического перехода от частоты ω спектральной компоненты светового поля; ω_1 — частота нижнего края оптического перехода в отсутствие электронных возбуждений (при $n = 0$); ν_0 — плотность состояний в глубине зоны; $\alpha > 0$ — обратная полуширина размытия зоны вблизи нижнего края перехода; $\beta > 0$ — коэффициент красного сдвига нижнего края перехода при увеличении концентрации n электронов в зоне проводимости. Выражения (14), (15) для ν выбраны с учетом известных из эксперимента фактов: 1) зависимость коэффициента оптического поглощения от частоты для большинства аморфных и некоторых кристаллических (в частности, для CdS) материалов вблизи нижнего края перехода описывается правилом Урбаха и имеет экспоненциальный вид [19]; 2) в целом ряде полупроводников, как аморфных [20], так и кристаллических [11], в частности в CdS [9, 10], при увеличении концентрации n электронов в зоне проводимости имеет место красный сдвиг частоты нижнего края перехода, причем закон изменения этого сдвига в широком интервале изменения n близок к линейному (для CdS [9] $n \simeq 10^{17}$–10^{19} см$^{-3}$).

Для вычисления интеграла (11) с комбинированной плотностью состояний ν (14), (15) будем считать, что спектр падающего излучения $G(\omega) = Ig(|\omega| - \omega_0)$ имеет прямоугольную форму [16]:

$$g(y) = \begin{cases} 1/2\Delta\omega, & |y| \le \Delta\omega, \\ 0, & |y| > \Delta\omega, \end{cases} \tag{16}$$

где $\Delta\omega$ — полуширина спектра. Подставляя (14)–(16) в (11), получаем

$$S(\omega_0, n) = \nu_0 - \frac{\nu_0}{2\alpha\Delta\omega} \ln \frac{1 + \exp\left[x(\omega_0, n) + \alpha\Delta\omega\right]}{1 + \exp\left[x(\omega_0, n) - \alpha\Delta\omega\right]}. \tag{17}$$

Из уравнений (12), (13), (17) следует, что в точке бифуркации $(\omega_0, n) = (\omega_b, n_b)$ параметры системы и светового поля удовлетворяют соотношениям

$$x = x(\omega_b, n_b) = 0, \quad \alpha(\omega_1 - \omega_b) = \alpha\Delta\omega \operatorname{cth}(\alpha\Delta\omega/2) \equiv x_{0b}. \tag{18}$$

В последнем выражении введено безразмерное обозначение $x_{0b} = \alpha(\omega_1 - \omega_b)$, соответствующее отстройке начальной (при $n = 0$) частоты ω_1 нижнего края перехода от несущей частоты светового поля $\omega_0 = \omega_b$ в точке бифуркации.

Вблизи точки бифуркации при $|x| \le 1$ выражение (10) с учетом (17) разложим в ряд Тейлора по x, ограничившись кубичными членами:

$$I = \frac{\hbar x_0 z(x)}{\pi d^2 \tau \alpha \beta \nu_0}, \tag{19}$$

$$z(x) = 1 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3, \quad x = \alpha(\omega_1 - \beta n - \omega_0), \tag{20}$$

$x_0 = \alpha(\omega_1 - \omega_0)$ — безразмерный параметр, характеризующий начальную отстройку частоты ω_1 нижнего края перехода от несущей частоты светового поля ω_0; a_1, a_2, a_3 — коэффициенты разложения:

$$\begin{gathered} a_1 = \frac{1}{x_{0b}} - \frac{1}{x_0}, \quad a_2 = \frac{1}{x_{0b}}\left(\frac{1}{x_{0b}} - \frac{1}{x_0}\right), \\ a_3 = \frac{1}{x_{0b}}\left[\frac{1}{x_{0b}}\left(\frac{1}{x_{0b}} - \frac{1}{x_0}\right) - \frac{1}{12\,\mathrm{ch}^2(\alpha\Delta\omega/2)}\right]. \end{gathered} \tag{21}$$

Уравнения (19), (20) представляют собой обратную зависимость концентрации электронов n в зоне проводимости от интенсивности светового поля I.

4. КРИТЕРИИ СУЩЕСТВОВАНИЯ ФОТОИНДУЦИРОВАННОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА

Точки x_1 и x_2, соответствующие потере устойчивости системы, определяются из уравнения $\partial z/\partial x = 0$. Отсюда с учетом (20) получаем

$$x_{1,2} = -\frac{a_2 \pm \sqrt{a_2^2 - 3a_1 a_3}}{3a_3}. \tag{22}$$

Как видно из (22), критическое поведение системы наблюдается, если $a_2^2 - 3a_1 a_3 > 0$. Отсюда, используя (21), находим необходимое условие фазового перехода, накладывающее ограничение на начальную отстройку несущей частоты светового поля от частоты нижнего края перехода: $x_{0b} \le x_0$, или в исходных обозначениях

$$\Delta\omega\, \mathrm{cth}\, \frac{\alpha\Delta\omega}{2} \le \omega_1 - \omega_0. \tag{23}$$

Из (23) видно, что с увеличением полуширины $\Delta\omega$ спектра падающего излучения нижняя граница допустимых начальных отстроек $\omega_1 - \omega_0$ увеличивается.

Условие (23) существования фазового перехода накладывает ограничение на частоту светового поля ω_0 сверху. Получим теперь соотношение, ограничивающее эту частоту снизу. С физической точки зрения такое ограничение обусловлено насыщением оптического перехода, если частота светового поля достаточно мала.

Условие отсутствия насыщения перехода на всех частотах падающего излучения (при температуре $T = 0$) имеет вид

$$\hbar \int\limits_{-\infty}^{\omega_0 - \Delta\omega} \nu(\omega, n)\, d\omega > n. \tag{24}$$

Подставляя в (24) соотношения (14), (15), находим

$$\omega_1 - \omega_0 < \beta n - \Delta\omega - \ln\left[\exp(\alpha n/\hbar\nu_0) - 1\right]. \tag{25}$$

Неравенство (25) должно выполняться для любого n вплоть до точки фазового перехода. Отсюда, анализируя (25), с учетом (23) окончательно получаем

$$\alpha\Delta\omega \operatorname{cth}\frac{\alpha\Delta\omega}{2} \leq \alpha(\omega_1-\omega_0) < \beta\hbar\nu_0\ln(\beta\hbar\nu_0)-(\beta\hbar\nu_0-1)\ln(\beta\hbar\nu_0-1)-\alpha\Delta\omega, \qquad (26)$$

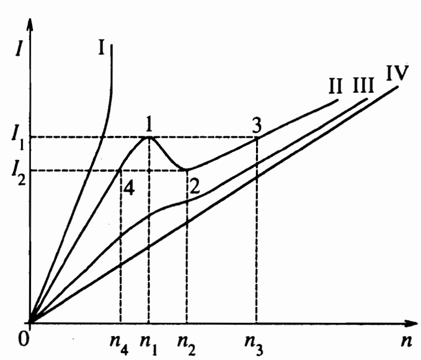
$$\alpha\Delta\omega\left(1+\operatorname{cth}\frac{\alpha\Delta\omega}{2}\right) < \beta\hbar\nu_0\ln(\beta\hbar\nu_0)-(\beta\hbar\nu_0-1)\ln(\beta\hbar\nu_0-1). \qquad (27)$$

Можно показать, что при выполнении (26), (27) насыщение отсутствует при любом n.

Критерий существования фазового перехода (27), накладывающий ограничение на параметры системы, является следствием критерия (26) для частоты светового поля. Чем с большим запасом выполняется (27), тем больший полуинтервал частот излучения может быть использован для наблюдения фотоиндуцированного фазового перехода и безрезонаторной оптической бистабильности.

5. ОСНОВНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ФОТОИНДУЦИРОВАННОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА И БЕЗРЕЗОНАТОРНОЙ ОПТИЧЕСКОЙ БИСТАБИЛЬНОСТИ

При выполнении критерия (27), как показывает анализ соотношений (10), (17), (19), (20), схематические графики зависимости $I(n)$ имеют вид, изображенный на рисунке. Кривая I иллюстрирует насыщение межзонных оптических переходов, когда несущая частота светового поля $\omega_0=\omega_{\rm I}$ меньше нижней границы области допустимых для наблюдения безрезонаторной оптической бистабильности значений, определяемых условием (26). При частотах $\omega_0=\omega_{\rm III},\omega_{\rm IV}$, превышающих верхнюю границу разрешенных критерием (26) значений, оптическая бистабильность также отсутствует (кривые III, IV). Кривая IV соответствует оптическим переходам в глубину зоны: $\omega_{\rm IV}-\Delta\omega-\omega_1 \gg 1/\alpha$. При частотах $\omega_0=\omega_{\rm II}$, удовлетворяющих неравенству (26), зависимость $I(n)$ может иметь отрицательный наклон (кривая II). При увеличении интенсивности точка на графике движется по кривой $0\to4\to1\to3$, при уменьшении — по кривой $3\to2\to4\to0$. Скачкообразное изменение n на участках $1\to3$ и $2\to4$ соответствует прямому и обратному фазовым переходам. Участок $I_2<I<I_1$ является областью бистабильности.



Обратная зависимость концентрации n неравновесных электронов в зоне проводимости от интенсивности I светового поля с несущей частотой $\omega_0 = \omega_j$ (j = I – IV, $\omega_{\rm I}<\omega_{\rm II}<\omega_{\rm III}<\omega_{\rm IV}$). Частота $\omega_0=\omega_{\rm II}$ удовлетворяет критерию (26)

Анализируя уравнение (20), находим точки x_3 и x_4, отвечающие новым положениям равновесия соответственно для прямого и обратного фазовых переходов:

$$x_{3,4} = -\frac{a_2 \mp 2\sqrt{a_2^2 - 3a_1a_3}}{3a_3}, \tag{28}$$

а также безразмерную величину Δx скачка концентрации электронов в зоне проводимости $\Delta n = \Delta x/\alpha\beta$:

$$\Delta x = -\frac{\sqrt{a_2^2 - 3a_1a_3}}{a_3}. \tag{29}$$

При этом оказывается, что скачок Δx при прямом и обратном фазовых переходах одинаков.

Используя (20), так же получаем выражение для ширины петли гистерезиса (размер области безрезонаторной оптической бистабильности по безразмерной интенсивности светового поля):

$$\Delta z = z(x_1) - z(x_2) = \frac{8(a_2^2 - 3a_1a_3)^{3/2}}{27a_3^2}. \tag{30}$$

Следует отметить, что полученные выражения (22), (28)–(30) в соответствии с приближенностью исходных соотношений (19), (20) справедливы при $|x| \le 1$. Это условие накладывает дополнительные ограничения на величину x_0 сверху. В частности, для того чтобы $|x_1| \le 1$, необходимо, как видно из (22), (21), выполнение следующего неравенства:

$$x_0 \le \frac{x_{0b}}{1 - 3x_{0b}^2/12(x_{0b}^2 + 2x_{0b} + 3)\,\mathrm{ch}^2(\alpha\Delta\omega/2)}. \tag{31}$$

Нетрудно видеть, что (26), (31) допускают совместное решение вблизи точки бифуркации: $x_0 \ge x_{0b}$. Аналогичная ситуация сохраняется и для других точек x_2, x_3, x_4 (22), (28), а также выражений (29), (30). Таким образом, используемое приближение позволяет описать фотоиндуцированный фазовый переход и безрезонаторную оптическую бистабильность вблизи точки бифуркации $x_0 = x_{0b}$, $x = 0$.

6. СРАВНЕНИЕ С ЭКСПЕРИМЕНТОМ

Известно, что фотоиндуцированный фазовый переход в CdS и аморфном GeS_2 протекает за характерные времена τ_0 приближенно равные соответственно 10^{-10} с [8] и 1 с [13]. Таким образом, данное явление не может быть объяснено с точки зрения тепловой модели, в которой время переключения $\tau_0 \sim 10^{-5}$ с [8, 13, 21]. Дополнительным подтверждением этого вывода служит малое изменение температуры ΔT = 0–15 K, отмеченное в эксперименте по облучению CdS [8]. В GeS_2 изменение температуры ΔT в эксперименте [13] не регистрировалось. Известно лишь, что интенсивность облучения GeS_2, необходимая для наблюдения безрезонаторной оптической бистабильности, на четыре порядка меньше, чем в CdS [1, 8, 13].

Проведем интерпретацию наблюдаемых в CdS и аморфном GeS_2 явлений фазового перехода и безрезонаторной оптической бистабильности в монохроматическом световом поле на основе развитой в настоящей работе теории электронного типа. Рассмотрим вначале CdS. Для него положим $d^2 \approx 10^{-39}$ ед. СГС [9], $\tau \approx 10^{-9}$ с [9], $\beta \approx 10^{-5}$ см^3/с [9], $\alpha \approx 10^{-12}$ с [10], $\nu_0 \approx 0.5$ эВ$^{-1}$·атом$^{-1}$ $\sim 10^{23}$ эВ$^{-1}$·см$^{-3}$ [10]. Тогда получаем, что $\hbar\beta\nu_0 \approx 10^2$, и, следовательно, критерий (27) заведомо выполняется (для монохроматического светового поля неравенство (27) переходит в (36)). Используя (19), (20), оценим I в точке бифуркации (где в соответствии с (18) $x = 0$, $x_0 = 2$): $I \sim 10^4$ ед. СГС, что соответствует интенсивности светового поля $cI/2\pi \sim 10^{13}$ ед. СГС$\sim 10^6$ Вт/см^2. Данный результат согласуется с экспериментальным значением интенсивности $\sim 10^6$ Вт/см^2 [1].

Рассмотрим теперь аморфный GeS_2. Рассчитаем коэффициент оптического поглощения γ и скачок интенсивности выходного сигнала при фазовом переходе в случае, когда падающее световое поле является монохроматическим. Учтем, что плотность потока фотонов F в стационарном режиме при распространении вдоль направления y подчиняется следующему уравнению [17]:

$$\frac{dF}{dy} = -\left(\frac{\partial n}{\partial t}\right)_i = -\frac{\pi E_0^2 d^2}{2\hbar}\nu(\omega_0, n). \tag{32}$$

Здесь $(\partial n/\partial t)_i$ — изменение концентрации электронов в зоне проводимости, обусловленное вынужденными переходами в монохроматическом поле $E(t) = E_0\cos(\omega_0 t + \varphi)$. Последнее равенство в (32) записано в соответствии с формулой (9), где вынужденным переходам отвечает первое слагаемое в правой части уравнения. Поскольку интенсивность $\hbar\omega_0 F = c\sqrt{\varepsilon}\,E_0^2/8\pi$ [17], из (32) находим

$$\frac{dF}{dy} = -\gamma F, \quad \gamma = \frac{4\pi^2 d^2\omega_0}{c\sqrt{\varepsilon}}\nu(\omega_0, n), \tag{33}$$

где $\sqrt{\varepsilon}$ — показатель преломления на частоте ω_0. Используя (33), (14), (15), (29), (21), получаем формулу для отношения выходных интенсивностей $(I_1/I_3)_{out}$ до и после фазового перехода (см. рисунок):

$$\left(\frac{I_1}{I_3}\right)_{out} = \exp\left[\frac{3\pi^2 d^2\omega_0\nu_0 L\sqrt{(x_0-2)(4-x_0)}}{c\sqrt{\varepsilon}(3-x_0)}\right], \tag{34}$$

где L — толщина образца вдоль направления распространения излучения.

Формула для относительной ширины петли гистерезиса $\Delta I/I_b$, где $\Delta I = I_1 - I_2$, $I_b \approx (I_1+I_2)/2$ — входная интенсивность в точке бифуркации (вблизи точки бифуркации $I_1 \approx I_2 \approx I_b$), в соответствии с (30), (20) имеет вид

$$\frac{\Delta I}{I_b} \simeq \Delta z = \frac{2\left[(x_0-2)(4-x_0)\right]^{3/2}}{3x_0(3-x_0)}. \tag{35}$$

Проведем численные оценки для аморфного GeS_2. Известно, что в аморфных материалах область размытия нижнего края оптического перехода составляет $\Delta E = 0.1$–0.3 эВ [19], причем в GeS_2 эта величина близка к верхней границе [20]. Поэтому положим $\Delta E = 2\hbar/\alpha \simeq 0.25$ эВ. Учитывая, что при монохроматическом облучении $x_{0b} = \alpha(\omega_1 - \omega_b) = 2$ (18), получаем отстройку частоты ω_1 нижнего края перехода от частоты светового поля в точке бифуркации ω_b: $\hbar(\omega_1 - \omega_b) = 0.25$ эВ. Таким образом, в соответствии с критерием (23) фотоиндуцированный фазовый переход должен наблюдаться при отстройках, больших 0.25 эВ. Это действительно имело место в эксперименте [13], где безрезонаторная оптическая бистабильность была зарегистрирована при отстройке 0.29 эВ, но отсутствовала при 0.16 эВ.

Для отстройки $\hbar(\omega_1 - \omega_0) = 0.29$ эВ, при которой проводился эксперимент [13], с учетом $\hbar(\omega_1 - \omega_0) = 0.25$ эВ, $\alpha(\omega_1 - \omega_b) = 2$ находим $x_0 = \alpha(\omega_1 - \omega_0) \simeq 2.3$. Отсюда, используя (35), получаем $\Delta I/I_b \approx 0.22$, что близко к экспериментальному значению $(\Delta I/I_b)_{exp} \approx 0.2$ [13]. Положив $d^2 \approx 10^{39}$ ед. СГС [9], $\omega_0 \approx 10^{15}$ с$^{-1}$ [13], $\nu_0 \approx 0.5$ эВ$^{-1}$·атом$^{-1}$ $\sim 10^{23}$ эВ$^{-1}$·см$^{-3}$ [19], $L \approx 0.5$ см [13], $\sqrt{\varepsilon} \approx 1$, из (33), (34) находим $\gamma_1 \approx 10$ см$^{-1}$, $\ln(I_1/I_3)_{out} \approx 2$. Полученные теоретические значения также соответствуют эксперименту [13], в котором зарегистрировано $\gamma_1 \approx 10$ см$^{-1}$, $\ln(I_1/I_3)_{out} \approx 2.1$.

Численное значение коэффициента β для аморфного GeS_2 автору не известно. Однако в [20] отмечается, что красный сдвиг частоты нижнего края оптического перехода является общим свойством целого ряда аморфных веществ, а в As_2S_3 путем облучения удается достичь сдвига нижнего края перехода на величину 0.2 эВ. В CdS аналогичное значение при максимальной интенсивности облучения ($I \approx 10^7$ Вт/см^2, $n \approx 10^{19}$ см$^{-3}$) составляет 0.05 эВ [9]. Следовательно, характерное значение коэффициента β для ряда аморфных материалов близко или даже больше, чем $\beta \approx 10^{-5}$ см^3/с для CdS. Отметим, что такое же значение $\hbar\beta \approx 5 \cdot 10^{-21}$ эВ·см^3 используется в [22] в качестве характерного коэффициента красного сдвига ширины запрещенной зоны для полупроводниковых материалов. В этом случае критерий (27) выполняется с большим запасом, как и для CdS.

Характерное значение I_1 в точке фазового перехода оценим, используя (19), (20). Учтем, что в условиях эксперимента $\Delta I/I_b \approx 0.2$ и, следовательно, $I_1 \approx I_b$. Тогда, положив $x_0 = 2$, $x = 0$, $d^2 \approx 10^{-39}$ ед. СГС [9], $\Delta E = 2\hbar/\alpha \approx 0.25$ эВ [19, 20], $\beta \approx 10^{-5}$ см^3/с [9, 22], $\nu_0 \approx 0.5$ эВ$^{-1}$·атом$^{-1}$ $\sim 10^{23}$ эВ$^{-1}$·см$^{-3}$ [19], $\tau \sim 10^{-3}$ с [20], из (19), (20) получаем $cI/2\pi \sim 10^2$ Вт/см^2, что соответствует экспериментальному значению интенсивности 60 Вт/см^2 [13].

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Итак, в настоящей работе построена теория фотоиндуцированного фазового перехода и безрезонаторной оптической бистабильности электронного типа, удовлетворительно описывающая ряд экспериментальных данных в CdS и аморфном GeS_2. Необходимым условием наблюдения оптической бистабильности является критерий (27), ограничивающий полуширину $\Delta\omega$ спектра падающего излучения сверху и значение параметра материала $\beta\nu_0$ снизу. В частности, при $\Delta\omega = 0$ неравенство (27) приближенно записывается в виде

$$\hbar\beta\nu_0 > 3.2. \tag{36}$$

При увеличении $\Delta\omega$, как видно из (27), нижняя граница допустимых значений $\beta\nu_0$ растет.

Вторым необходимым условием наблюдения оптической бистабильности является критерий (26), ограничивающий несущую частоту светового поля ω_0 сверху и снизу. При увеличении $\Delta\omega$ нижняя граница допустимых значений ω_0 растет, а верхняя уменьшается. Таким образом, уширение оптического спектра падающего излучения снижает возможность наблюдения фотоиндуцированного фазового перехода и безрезонаторной оптической бистабильности в системе.

Обратная зависимость концентрации электронов в зоне проводимости от интенсивности падающего светового поля описывается формулами (19)–(21), характерные точки фазового перехода x_j, где $j = 1$–4 (см. рисунок), — соотношениями (22), (28), (21), а параметры оптической бистабильности — уравнениями (29), (30), (21). Как показывает анализ, когда частота ω_0 приближается к точке бифуркации, соответствующей нижней границе допустимых значений соотношения (26), интенсивности I_1, I_2 и параметры Δx, Δz уменьшаются. В пределе $\omega_0 = \omega_b$ фотоиндуцированный фазовый переход становится переходом второго рода.

Литература

1. Х. Гиббс, *Оптическая бистабильность. Управление светом с помощью света*, Мир, Москва (1988), с. 108.
2. В. И. Емельянов, Н. Л. Левшин, А. Л. Семенов, Вестн. Моск. Ун-та, Сер. 3, физика, астрономия **30**, 52 (1989).
3. В. И. Емельянов, А. Л. Семенов, ФТТ **32**, 3083 (1990).
4. В. И. Емельянов, Н. Л. Левшин, А. Л. Семенов, ФТТ **31**, 261 (1989).
5. В. И. Емельянов, Н. Л. Левшин, А. Л. Семенов, Вестн. Моск. Ун-та, Сер. 3, физика, астрономия **31**, 99 (1990).
6. А. Л. Семенов, ФТТ **36**, 1974 (1994).
7. В. И. Емельянов, Н. Л. Левшин, С. Ю. Поройков, А. Л. Семенов, Вестн. Моск. Ун-та, Сер. 3, физика, астрономия **32**, 63 (1991).
8. П. И. Хаджи, Г. Д. Шибаршина, А. Х. Ротару, *Оптическая бистабильность в системе когерентных экситонов и биэкситонов в полупроводниках*, Штиинца, Кишинев (1988), с. 120.
9. В. Г. Лысенко, В. И. Ревенко, Т. Г. Тратас, В. Б. Тимофеев, ЖЭТФ **68**, 335 (1975).
10. В. В. Коршунов, М. В. Лебедев, В. Г. Лысенко, ФТТ **27**, 1518 (1985).
11. А. А. Бугаев, Б. П. Захарченя, Ф. А. Чудновский, *Фазовый переход металл–полупроводник и его применение*, Наука, Ленинград (1979), с. 28.
12. А. А. Бугаев, В. В. Гудялис, Б. П. Захарченя и др., Письма в ЖЭТФ **34**, 452 (1981).
13. В. М. Любин, В. К. Тихомиров, Письма в ЖЭТФ **55**, 25 (1992).
14. А. В. Андреев, В. И. Емельянов, Ю. А. Ильинский, *Кооперативные явления в оптике: Сверхизлучение. Бистабильность. Фазовые переходы*, Наука, Москва (1988), с. 256.
15. А. С. Давыдов, *Теория твердого тела*, Наука, Москва (1976), с. 296.
16. С. А. Ахманов, Ю. Е. Дьяков, А. С. Чиркин, *Введение в статистическую радиофизику и оптику*, Наука, Москва (1981), с. 42.
17. Д. Н. Клышко, *Физические основы квантовой электроники*, Наука, Москва (1986), с. 22.
18. В. Л. Бонч-Бруевич, С. Г. Калашников, *Физика полупроводников*, Наука, Москва (1990), с. 608.
19. Н. Мотт, Э. Дэвис, *Электронные процессы в некристаллических веществах*, Мир, Москва (1982), с. 314, (N. F. Mott, E. A. Davis, *Electron processes in non-crystalline materials*, Clarendon Press, Oxford (1979)).
20. А. Фельц, *Аморфные и стеклообразные неорганические твердые тела*, Мир, Москва (1986), с. 518.
21. В. А. Стадник, ФТТ **29**, 3594 (1987).
22. В. И. Емельянов, И. Ф. Уварова, ЖЭТФ **94**, 255 (1988).