

Особенности магнитооптического поглощения молекулярного кристалла в экситонной области частот

© А.В. Деревянчук, К.Ю. Зенкова, В.М. Крамар, Б.М. Ницович

Черновицкий национальный университет,
58012 Черновцы, Украина

E-mail: zenkova@itf.cv.ukrtel.net

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 27 августа 2004 г.)

Рассматриваются особенности нелинейного поглощения молекулярного кристалла во внешнем магнитном поле. На примере бензола исследованы функции формы экситонного поглощения при наличии поляризации лазерного излучения и слабого магнитного поля, а также механизмы формирования гистерезисной петли на зависимости выходной интенсивности света от значения величины магнитного поля на входе. Установлено, что магнитооптический отклик рассматриваемого молекулярного кристалла порождает инверсный характер формирования бистабильных петель, что позволяет осуществлять контроль и управление поведением бистабильных элементов оптических логических систем с помощью внешнего магнитного поля при фиксированной частоте освещения.

Явление оптической бистабильности (ОБ) весьма перспективно с точки зрения его практического использования для создания систем записи и хранения оптической информации [1]. Суть явления состоит в том, что при определенных условиях прохождения света через среду фиксированному значению входного параметра (интенсивности, магнитного поля) соответствуют два стабильных состояния, отвечающие различным значениям выходного сигнала I . Механизм возникновения ОБ и среда для ее реализации могут быть различными [2], однако общей задачей при создании произвольной схемы ОБ является поиск возможности управления процессами развития нелинейных эффектов и получения петли гистерезиса на выходе системы с заданными характеристиками.

Характерной особенностью молекулярных кристаллов является возможность создания в них коллективных возбужденных состояний — экситонов Френкеля [3]. Энергия такого возбуждения, соответствующая одному невырожденному состоянию изолированной молекулы, распадается на полосы возбужденных состояний (экситонные зоны), количество которых совпадает с числом молекул, содержащихся в элементарной ячейке кристалла. Каждая из зон характеризуется определенным направлением дипольного момента экситонного перехода, реализующегося под воздействием внешней световой волны конкретной поляризации. Поэтому за формирование спектра поглощения поляризованного света ответственны переходы с участием состояний только одной изолированной экситонной зоны [4,5]. Освещение же кристалла естественным (неполяризованным) пучком света может привести к возбуждению состояний нескольких зон, что будет сопровождаться наблюдением структурированной полосы поглощения. Изменение параметров возбуждающего излучения или других внешних воздействий должно сопровождаться трансформацией формы полосы поглощения, что благоприятствует реализации оптической мультистабильности.

Целью данной работы является исследование влияния на формирование полосы экситонного поглощения молекулярного кристалла двух внешних факторов: поляризации возбуждающего излучения и магнитного поля \mathbf{H} . Для этого рассматривается молекулярный кристалл, элементарная ячейка которого содержит две молекулы. Одному невырожденному внутримолекулярному возбуждению в таком кристалле соответствуют две экситонные зоны энергий $E_1(\mathbf{k})$ и $E_2(\mathbf{k})$. Примером такого кристалла является бензол, расстояние между экситонными зонами которого определяется величиной резонансного (давидовского) расщепления $\Delta = 40 \text{ cm}^{-1}$ [6]. В приближении квадратичного закона дисперсии энергии экситонных состояний каждой из зон можно представить следующим образом:

$$E_1 = E_0 + Ly^2, \quad E_2 = E_0 + \Delta + \eta Ly^2, \quad (1)$$

где E_0 — дно нижней экситонной зоны, L — ее ширина, ηL — ширина второй зоны, а $0 < y = ka/\pi < 1$ — безразмерный квазиимпульс экситона (a — период решетки).

Коэффициент поглощения K определяется [7] вероятностью перехода электронной системы кристалла в экситонное состояние

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

где $S_{\alpha}(\omega)$ — функция формы полосы поглощения, связанного с переходом кристалла в α - e -экситонное состояние, а

$$D_{\alpha} = D_0(\mathbf{e}_0, \mathbf{d}_{\alpha}) = D_{0\alpha} \cos \varphi_{\alpha} \quad (3)$$

матричный элемент экситон-фотонного взаимодействия; его величина зависит от угла φ_{α} между вектором поляризации световой волны \mathbf{e}_0 и направлением соответствующего дипольного момента \mathbf{d}_{α} . Рассматриваемым

экситонным зонам соответствует пара различных взаимно перпендикулярных дипольных моментов перехода, поэтому

$$D_1 = D_0 \cos \varphi, \quad D_2 = \xi D_0 \sin \varphi, \quad (4)$$

где ξ — параметр, учитывающий различие величин дипольных моментов d_1 и d_2 .

В работе [8] показано, что функция формы полосы экситонного поглощения кристалла, находящегося в слабом внешнем магнитном поле, имеет вид

$$S_\alpha(\omega, h) \equiv \frac{\Gamma_\alpha(\omega_h)}{[\omega_h - E_{\alpha 0} - \Delta_\alpha(\omega_h)]^2 + \Gamma_\alpha^2(\omega_h)}, \quad (5)$$

где Δ_α и Γ_α — вещественная и мнимая части массового оператора системы, $\omega = (\hbar\omega - E_0)/L$ — безразмерная величина, характеризующая частоту ω возбуждения экситонного состояния, $\omega_h = \omega - h$, $h = (\delta H^2)/L$; δ определяет величину диамагнитного сдвига экситонного уровня под влиянием магнитного поля.

Нами проведен анализ изменения полосы экситонного поглощения при различных значениях азимута поляризации падающей световой волны в изменяющемся магнитном поле. Фиксирование величины последнего позволило определить поляризационные особенности кристалла. При совпадении направлений вектора поляризации света и дипольного момента d_1 ($\varphi = 0$) четко проявляется экситонная полоса поглощения на частоте нижней экситонной зоны E_1 . При этом ее форма имеет традиционно коротковолновую асимметрию. При перпендикулярной поляризации ($\varphi = \pi/2$) в поглощении присутствует полоса на частоте верхней экситонной зоны E_2 , отличающаяся как интенсивностью пика поглощения, так и формой длинноволнового крыла кривой поглощения (изменяется знак асимметрии). В случае промежуточной поляризации света экситонная полоса становится структурированной: в спектральной зависимости коэффициента поглощения присутствуют обе компоненты давидовского дублета.

Увеличение напряженности магнитного поля приводит к параллельному сдвигу полосы поглощения в область больших энергий. Происходит частотная селекция оптических свойств кристалла: в произвольно поляризованной пучке падающего света ($0 < \varphi < \pi/2$) изменение H вызывает появление структуры на зависимости $K(H)$ с парой четко выраженных максимумов при фиксированной частоте падающего излучения. Таким образом, изменением величины магнитного поля достигается эффект, эквивалентный изменению частоты падающего на кристалл света. Поскольку с возрастанием поля сдвиг экситонного уровня происходит в сторону больших энергий, при облучении кристалла на коротковолновом хвосте полосы поглощения можно полностью реставрировать частотное распределение коэффициента экситонного поглощения кристалла $K(\omega)$ путем изменения напряженности магнитного поля. Результаты расчетов, выполненных для кристаллического бензола

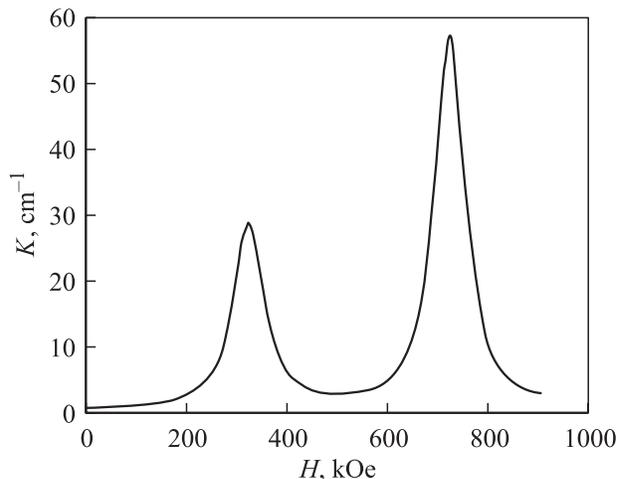


Рис. 1. Зависимость коэффициента поглощения от величины напряженности магнитного поля при незначительных плотностях экситонов для азимута поляризации $\varphi = 45^\circ$.

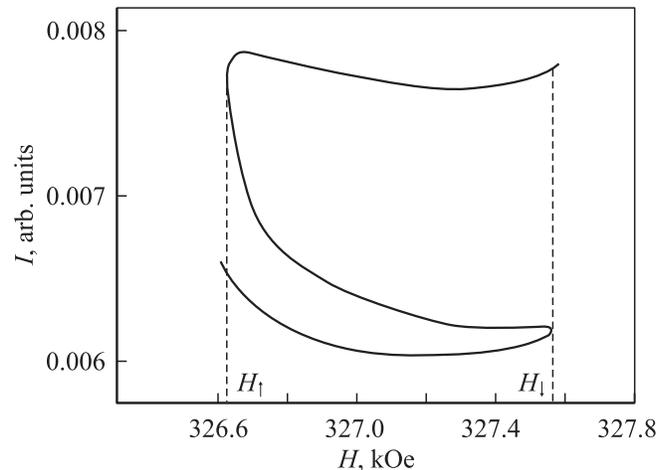


Рис. 2. Магнитооптическая бистабильность бензола в экситонной области частот $\omega = 0.06$.

с использованием характерных значений параметров ($L = 10^3 \text{ cm}^{-1}$, $\Omega_0 = 120 \text{ cm}^{-1}$, $\eta = 0.7$, $\xi = 0.83$), приведены на рис. 1.

Интенсивная лазерная накачка способствует образованию в кристалле подсистемы экситонного газа регулируемой плотности. При этом зависящий от величины внешнего магнитного поля коэффициент экситонного поглощения и определяемая интенсивностью входного сигнала I_0 плотность экситонов N связаны соотношением [7]

$$N = I_0 K(\omega, H, \varphi). \quad (6)$$

Фиксируя входные параметры (интенсивность падающей волны, ее частоту и поляризацию), на основании закона Бугера–Ламберта можно определить зависимость выходной интенсивности от величины внешнего магнитного поля $I(H)$. Результаты расчета, выполненного для случая поляризации $\varphi = 45^\circ$, представлены на рис. 2. Из этого

рисунка видно существование конечного интервала значений напряженности магнитного поля $\Delta H = H_{\downarrow} - H_{\uparrow}$, внутри которого возможна реализация явления магнитооптической бистабильности (МОБ). Заметим, что запись и считывание оптической информации элементом, основанным на явлении МОБ, могут производиться посредством изменения величины внешнего магнитного поля. В этом и состоит основное отличие явления МОБ от традиционной оптической бистабильности.

Следует отметить, что для выбранных нами параметров расчета интервал существования МОБ очень узкий, что означает повышенную чувствительность МОБ-элемента к величине внешнего магнитного поля. Кроме того, размер области существования МОБ не зависит от значения частоты входного сигнала ω . Увеличение ее на величину $\Delta\omega$ приводит к полностью идентичной петле гистерезиса МОБ, которая, однако, реализуется уже при других значениях величины магнитного поля $H' = H + \Delta\omega$. Кроме того, направление движения вдоль петли гистерезиса МОБ является обратным по отношению к частотной ОБ [2]. Таким образом, реализуется реверсионный механизм формирования МОБ, обеспечивающий переключение состояния кристалла („сильное–слабое поглощение“) при уменьшении величины магнитного поля, тогда как в случае классической ОБ этого можно достичь при увеличении частоты входного сигнала, что предполагает наличие лазера с перестраиваемой частотой. Схема использования МОБ лишена этого недостатка.

Список литературы

- [1] Х. Гиббс. Оптическая бистабильность. Мир, М. (1988).
- [2] Б.С. Рывкин. ФТП **19**, 1, 3 (1985).
- [3] А.С. Давыдов. Теория молекулярных экситонов. Наука, М. (1968).
- [4] В.Л. Броуде, В.С. Медведев, А.Ф. Прихотько. ЖЭТФ **2**, 317 (1957).
- [5] Н.И. Остапенко, В.И. Сугаков, М.П. Черноморец, М.Т. Шпак. Письма в ЖЭТФ **27**, 8, 452 (1978).
- [6] В.Л. Броуде, М.Н. Оноприенко. ЖОС **10**, 634 (1961).
- [7] А.С. Давыдов. Теория твердого тела. Наука, М. (1976).
- [8] К.Ю. Зенкова, А.А. Зенченко, Б.М. Ницович. ФТТ **43**, 1, 19 (2001).