

УДК 535.14 : 530.182

## ОПТИЧЕСКАЯ БИСТАБИЛЬНОСТЬ, ЭФФЕКТ ПУЛЬСАЦИЙ И ДОМЕНЫ (ВОЛНЫ) ПОГЛОЩЕНИЯ В GaSe

В. А. Стадник

В слоистых полупроводниках GaSe и  $\text{GaSe}_{0,8}\text{S}_{0,2}$  зарегистрированы и исследованы оптическая бистабильность и эффект пульсаций прошедшего через образец лазерного излучения, обусловленные образованием локализованных и движущихся доменов (волн) поглощения. Скорость движения доменов вдоль оптической оси кристаллов составляла 2—8 см/с, а период пульсаций выходного сигнала 0.5—25 мс. Обнаружены особенности поведения выходного сигнала, связанные с влиянием на движение доменов регулярной переменной составляющей падающего излучения. Проводится сравнение с результатами экспериментов для ZnSe. Для объяснения поведения движущихся доменов использована одномерная модель теплопроводностного режима движения домена (волны) поглощения.

В работах [1-3] сообщалось о изучении в полупроводнике ZnSe локализованных и движущихся доменов (волн) сильного поглощения, которые обуславливают как явление оптической бистабильности, так и эффект пульсаций прошедшего через образец излучения. Эти эффекты оказались аналогичными кругу явлений, наблюдавшихся в газовых средах и известных под названием «оптический разряд» [4, 5]. Отметим, однако, что ни в случае газовых сред, ни в случае ZnSe, который имеет кубическую структуру, невозможна анизотропия физических свойств исследуемой среды. В связи с этим представляет интерес изучение поведения доменов (волн) поглощения, возникающих при действии лазерного излучения, в анизотропных средах. В настоящей работе для этой цели использовались монокристаллы слоистого полупроводника GaSe, для которого характерна сильная анизотропия химических связей и коэффициентов теплопроводности и поглощения [6], имеющих важное значение в расчетах модели теплопроводностного режима движения домена поглощения.

Известно, что в газовых средах [4] могут наблюдаться волны двух типов: сильного и слабого поглощения, которые отличаются между собой соотношением продольных размеров области эффективного поглощения света и фронтов, переводящих среду из одного состояния поглощения в другое. В полупроводнике ZnSe [3] реализуется случай, аналогичный волне сильного поглощения в газах. Ниже будет показано, что в GaSe имеет место ситуация, близкая к другому предельному случаю — волне слабого поглощения. Изучение поведения домена (волны) слабого поглощения также представляет интерес, так как в полупроводниках волны этого типа до сих пор не наблюдались.

### 1. М е т о д и к а э к с п е р и м е н т о в

Методика экспериментов была аналогична описанной в работе [3], поэтому здесь мы отметим лишь наиболее важные и существенные отличия. Для возбуждения образцов использовалось излучение криптонового лазера ИЛК-120 на длине волны 647.1 нм ( $h\nu=1.916$  эВ), так как при ком-

натной температуре край собственного поглощения GaSe находится при  $E_g = 2.02$  эВ. Мощность падающего излучения не превышала 450 мВт. Фокусное расстояние использованной в экспериментах линзы составляло 12 мм, а минимальный диаметр луча в образце был около 15 мкм. Толщины образцов менялись в диапазоне от 1 до 2 мм. Для управления процессом образования как локализованных, так и движущихся доменов поглощения использовалось облучение одной из граней образцов ионами кислорода [1]. Использованные в экспериментах образцы GaSe не имели полированных боковых граней, поэтому для определения длины пробега и скорости домена измерялись перемещение образца относительно фокусирующей линзы и соответствующее изменение длительности фазы движения домена в образце.

В данной работе исследовались слоистые кристаллы GaSe  $\epsilon$ -политипа, оптическая ось которых перпендикулярна плоскостям скола или атомарным плоскостям. Падающее излучение направлялось под небольшим углом к оптической оси кристаллов, чтобы уменьшить влияние интерференционных эффектов. В такой геометрии эксперимента прямые зона-зонные переходы слабо разрешены [6], соответствующий коэффициент поглощения на порядок меньше, чем в ZnSe. Движение

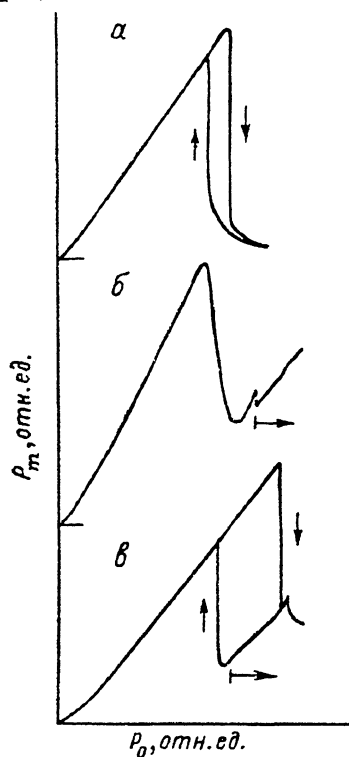


Рис. 1. Зависимости мощности прошедшего через образец излучения от мощности падающего излучения  $P_T(P_0)$  при образовании доменов поглощения вблизи передней (а) и задней (б—в) граней образцов.

Вертикальные стрелки показывают переключения из одного состояния в другое, а горизонтальные — области пульсаций выходного сигнала.

домена вдоль светового канала зависит от коэффициента теплопроводности поперек слоев, который почти на порядок меньше, чем коэффициент теплопроводности вдоль слоев или коэффициент теплопроводности в ZnSe. В такой геометрии эксперимента устанавливается более однородное, чем в изотропных средах, распределение температуры в поперечном к световому каналу направлении, что является важным для проверки одномерного приближения модели теплопроводностного режима движения домена поглощения.

## 2. Результаты эксперимента

Изучение зависимостей мощности прошедшего через образец излучения от мощности падающего излучения  $P_T(P_0)$  в режиме непрерывного возбуждения показало, что оптический гистерезис с направлением обхода по часовой стрелке, характерный для оптической бистабильности при нелинейном росте коэффициента поглощения [7], может наблюдаться при фокусировке лазерного излучения и на переднюю, и на заднюю грани образцов (рис. 1). Оптический гистерезис, обусловленный образованием домена поглощения, локализованного на передней грани, для всех исследованных образцов имел примерно одинаковую форму (рис. 1, а). Уменьшение выходного сигнала при увеличении входного связано с уменьшением пропускания образца. Сигнал прошедшего через образец излучения при локализации домена поглощения на передней грани во времени не менялся.

При фокусировке лазерного излучения на заднюю грань образца зависимости  $P_T(P_0)$  имеют более сложный вид (рис. 1, б, в). Это различие обусловлено тем, что статический локализованный домен поглощения, возникший на задней грани, при увеличении мощности падающего излучения теряет устойчивость; при этом сигнал прошедшего через образец излучения начинает периодически пульсировать [2, 3]. Для зависимостей  $P_T(P_0)$  на участках нижней ветви, соответствующих пульсациям выходного сигнала, регистрируемый сигнал усреднялся по времени двухкоординатным самописцем. На рис. 1, б показана зависимость  $P_T(P_0)$  для образца, задняя грань которого была облучена ионами кислорода. При данной дозе облучения ( $10^{16}$  ион/см<sup>2</sup>) наблюдается однозначная зависимость  $P_T(P_0)$ . Оптический гистерезис наблюдается в необлученных ионами

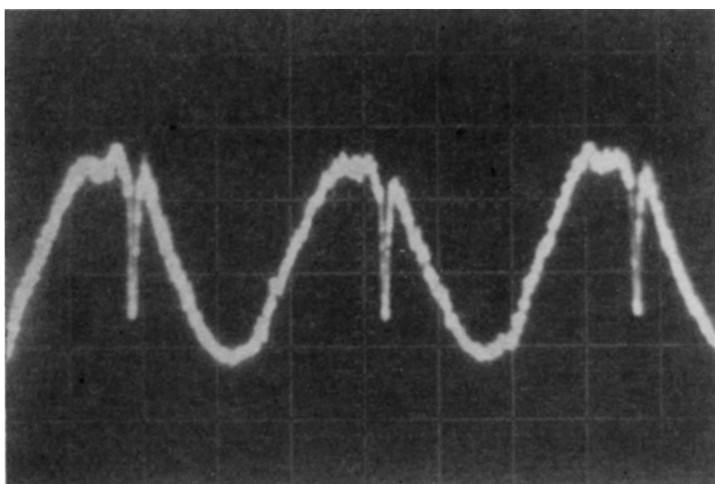


Рис. 2. Выходной сигнал в режиме сильных пульсаций для образца, задняя грань которого была облучена ионами ( $\Phi=10^{16}$  см<sup>-2</sup>). Период пульсаций  $T=8.4$  мс.

образцах (рис. 1, в). В обоих случаях на нижней ветви появляется участок, для которого увеличение мощности падающего излучения приводит к возрастанию выходного сигнала.

Эффект пульсаций прошедшего через образец лазерного излучения в GaSe имеет много общего со случаем ZnSe. Режим слабых пульсаций выходного сигнала [2, 3] связан с относительно небольшими периодическими изменениями размеров локализованного на задней грани домена поглощения. Отметим, однако, что возникновение и исчезновение пульсаций в ионно-имплантированном GaSe при изменении входного сигнала происходит скачкообразно. На необлученных ионами участках образцов наблюдалось только плавное возникновение пульсаций выходного сигнала. Наименьшее значение периода слабых пульсаций в GaSe составило примерно 500 мкс, что на полтора порядка больше, чем такое же значение в ZnSe.

Режим сильных пульсаций выходного сигнала обусловлен отрывом всего домена от задней грани, его движением и исчезновением в объеме образца. Свойства и фазы этого режима подробно описаны в работе [3]. Здесь мы отметим лишь ту особенность, что как в GaSe, так и в ZnSe фаза периода пульсаций высокого пропускания, в которой домена нет, возникает только в необлученных ионами образцах. На рис. 2 показано временное поведение сигнала, прошедшего через образец излучения в режиме сильных пульсаций для образца GaSe, задняя грань которого была облучена ионами. Отметим, что эта форма выходного сигнала похожа на вид выходного сигнала в режиме слабых пульсаций [2, 3]. Особенностью режима сильных пульсаций в неимплантированном GaSe является то,

что фаза высокого пропускания (рис. 3, а) наблюдается независимо от расположения фокуса линзы по отношению к задней грани образца.

Значение длины пробега домена ( $\sim 200$  мкм) в GaSe в этом режиме пульсаций примерно такое же, как и в ZnSe, однако длительности всех фаз режима сильных пульсаций в GaSe больше, чем в ZnSe. Образование домена поглощения на задней грани происходит за 100—200 мкс, а исчезновение в объеме образца за 200—400 мкс. Фаза, соответствующая дви-

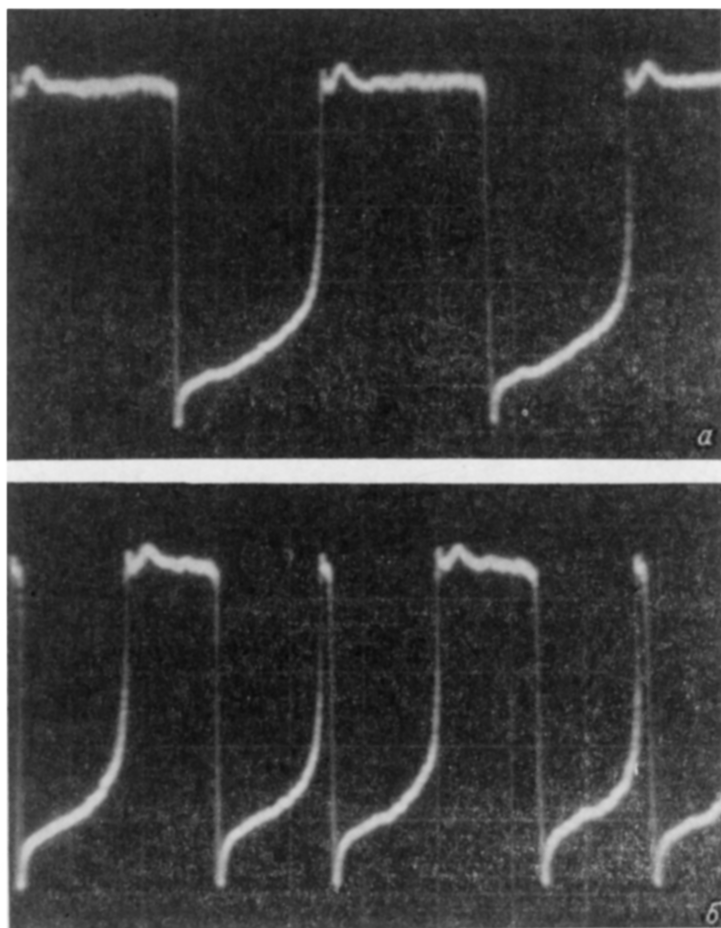


Рис. 3. Временное поведение сигнала излучения, прошедшего через необлученный ионами образец.

Фокус линзы находится за задней гранью образца. Период пульсаций в случае а равен удвоенному периоду пульсаций для случая б  $T=20$  мс.

жению домена в объеме образца, менялась от 1.5 до 11 мс. Длительность фазы высокого пропускания, в которой домена нет, достигала 15 мс. Наибольшее значение периода сильных пульсаций составило около 25 мс. Измерения скорости бегущего домена в GaSe дали значения в диапазоне от 2 до 8 см/с.

Интересной особенностью режима сильных пульсаций в GaSe является синхронизация периода пульсаций регулярной переменной составляющей падающего излучения, хотя амплитуда этой составляющей не превышала 3—4 %. Обратим внимание на то, что на нижней ветви оптического гистерезиса (рис. 1, в) выходной сигнал при увеличении входного сначала растет, а затем падает. На возрастающем участке период сильных пульсаций растет, при этом увеличиваются длительности двух медленных фаз. На падающем участке полный период пульсаций не меняется. Уве-

личение мощности падающего излучения приводит к возрастанию длины пробега домена и, следовательно, длительности фазы низкого пропускания. Длительность фазы высокого пропускания при этом уменьшается, в результате уменьшается и регистрируемый самописцем сигнал излучения, прошедшего через образец.

Влияние нестабильности падающего излучения на процесс образования нового домена на задней грани образца и модуляция длительности фазы высокого пропускания приводят еще к одному интересному эффекту — удвоению периода пульсаций выходного сигнала. На рис. 3, б показано удвоение периода в режиме сильных пульсаций. Соотношение значений удвоенного периода пульсаций выходного сигнала и периода регулярной составляющей в эксперименте было около 9—10. Удвоение периода наблюдалось также при слабых пульсациях локализованного на задней грани домена поглощения в ZnSe.

Оптическая бистабильность при нелинейном росте поглощения в объемных образцах и эффект пульсаций прошедшего через образец излучения наблюдались также в смешанном соединении  $\text{GaSe}_{0.8}\text{S}_{0.2}$ . Край поглощения этого слоистого полупроводника сдвинут в более коротковолновую сторону по сравнению с GaSe, поэтому для наблюдения эффектов, связанных с образованием доменов поглощения, использовалась ионная имплантация. Характерные времена образования и исчезновения домена и периода пульсаций локализованного на задней грани домена оказались примерно такими же, что и в GaSe.

Отметим также, что ранее [8, 9] оптическая бистабильность, обусловленная нелинейным ростом коэффициента поглощения, изучалась в тонкопленочных образцах GaSe и  $\text{GaSe}_{0.8}\text{S}_{0.2}$ . Вид гистерезисных петель усложнялся вследствие влияния обратной связи по показателю преломления, однако неустойчивость прошедшего или отраженного сигнала в этих экспериментах не наблюдалась.

### 3. Интерпретация результатов эксперимента

Наиболее простое качественное объяснение поведения петли оптического гистерезиса можно дать в случае образования домена поглощения на передней грани образца. Возрастание мощности падающего излучения приводит к монотонному увеличению размеров локализованного домена как продольных [7], так и поперечных [10]; поэтому пропускание образца падает (рис. 1, а). Поскольку движение домена поглощения возможно только навстречу лазерному излучению, домен, локализованный на передней грани, остается неподвижным при любом значении мощности входного сигнала. Следовательно, выходной сигнал при стационарном возбуждении во времени меняться не будет.

Проанализируем теперь движение домена поглощения в объеме образца и режим сильных пульсаций выходного сигнала. В рамках одномерной модели [4, 5] при тепловом механизме нелинейности коэффициента поглощения для описания стационарного движения домена в GaSe необходимо воспользоваться уравнением теплопроводности и законом изменения интенсивности света в поглощающей среде в следующем виде:

$$c\rho v \frac{du}{dx} = \chi_{\perp} \frac{d^2u}{dx^2} - \frac{A\chi_{\parallel}}{R^2} u + \alpha(u) I_0(x), \quad (1)$$

$$dI_0/dx = -\alpha(u) I_0(x). \quad (2)$$

Здесь  $c$  — теплоемкость;  $\rho$  — плотность;  $\chi_{\perp}$ ,  $\chi_{\parallel}$  — коэффициенты теплопроводности поперек и вдоль слоев;  $\alpha$  — коэффициент поглощения GaSe в геометрии слабо разрешенных переходов  $E \perp C$ ;  $R$  — радиус светового канала;  $A$  — некоторая постоянная в пределах 2—3 [4]. Кроме того, для упрощенного анализа системы уравнений (1)—(2) делается еще одно приближение — реальная зависимость коэффициента поглощения от температуры  $\alpha(u)$  заменяется ступенчатой функцией  $\alpha(u)=0$  при  $u < u_0$ ,

$\alpha(u) = \alpha$  при  $u \geq u_0$ , где  $\alpha$  — значение коэффициента поглощения прямых зона-зонных переходов. Величина параметра  $u_0$  для GaSe составляет  $160^\circ\text{C}$ , так как при комнатной температуре разность  $E_g - h\nu = 100$  мэВ, а коэффициент температурного смещения прямого края поглощения GaSe примерно  $-6.1$  мэВ/град [11].

Поведение бегущего домена поглощения определяется базразмерным параметром [3, 4], который для анизотропной среды имеет вид  $\beta = \alpha R \sqrt{\kappa_{\perp}} / (A \kappa_{\parallel})$  и при  $\kappa_{\perp} = \kappa_{\parallel}$  переходит в параметр  $\beta$  для изотропной среды. В экспериментах с GaSe характерные значения  $\alpha = 900$  см $^{-1}$ ,  $R = 10$  мкм,  $A = 2.25$  [4],  $\kappa_{\perp} = 0.02$ ,  $\kappa_{\parallel} = 0.16$  Вт/см·град [12] и  $\beta = 0.21$ , в то время как в ZnSe  $\beta = 4.7$ . Это означает, что в GaSe мы имеем дело с другим предельным случаем, известным из теории оптического разряда под названием волны слабого поглощения [4]. Для такой волны (домена) характерно температурное распределение с крутыми доменными стенками, когда толщина домена больше, чем размеры доменных стенок. Отметим некоторые наиболее важные особенности поведения доменов поглощения при  $\beta < 1$ .

Участок линейной зависимости скорости домена от интенсивности света  $v(I_0)$  с положительной производной при  $\beta < 1$  отсутствует, устойчивая ветвь при  $I_0 > I_0^{\text{кр}}$  описывается формулой Зельдовича [4]

$$v(I_0) = (1/c\beta) \sqrt{\alpha \kappa_{\perp} I_0 / u_0}. \quad (3)$$

Выражения для критических значений интенсивности падающего излучения и скорости домена, вблизи которых происходит смена устойчивости движения домена, в предельном случае  $\beta \ll 1$  имеют вид

$$I_0^{\text{кр}} = 2A \kappa_{\parallel} u_0 / (\alpha R^2), \quad v_{\text{кр}} = \kappa_{\perp} \alpha \ln(1 + \beta^{-1}) / (c\beta). \quad (4), (5)$$

Критическое значение толщины домена при  $\beta \ll 1$  не зависит от коэффициента поглощения  $l_{\text{кр}} = R \sqrt{\kappa_{\perp} / A \kappa_{\parallel}}$ .

Выражение для критической мощности падающего излучения  $P_0^{\text{кр}} = 2\pi A \kappa_{\parallel} u_0 / \alpha$  оказывается не зависящим от радиуса светового канала. Поэтому при  $\beta \ll 1$  расходимость светового канала не может являться той неоднородностью, которая приводит к смене устойчивости движения домена поглощения при  $\beta > 1$  и объясняет эффект пульсаций выходного сигнала [3]. Отметим, однако, что при движении доменов по световому каналу возникает неоднородность температурного поля вблизи задней грани образца, а в выражения для критических значений мощности и интенсивности света входит параметр  $u_0$  — температура локального разогрева, необходимого для образования домена поглощения. При удалении от задней грани образца эти значения возрастают, и в некоторой точке светового канала становится возможным выполнение соотношений  $P_0 < P_0^{\text{кр}}$  и  $I_0 < I_0^{\text{кр}}$ , что приводит к исчезновению движущегося домена в объеме образца. Поэтому эффект пульсаций и периодическое движение доменов поглощения можно наблюдать и при  $\beta \ll 1$ . На важность учета отмеченного выше неоднородного разогрева образцов движущимися доменами указывает, например, тот факт, что в эксперименте могут наблюдаться комбинированные режимы пульсаций выходного сигнала [3].

Значения коэффициентов теплопроводности, определяющих поперечный теплоотвод из области светового канала, и температура локального разогрева  $u_0$  в GaSe и ZnSe примерно одинаковы. В связи с этим отметим, что отношение  $I_0^{\text{кр}}$  при  $\beta \gg 1$  к  $I_0^{\text{кр}}$  при  $\beta \ll 1$  оказывается равным  $\alpha R / \sqrt{A}$ , здесь  $\alpha$  — коэффициент поглощения для случая  $\beta \ll 1$ . Отсюда следует, что при прочих равных условиях для поддержания стационарного движения домена (волны) слабого поглощения требуются большие интенсивности или мощности падающего излучения, чем для домена (волны) сильного поглощения.

Формулы, определяющие критические значения  $I_0^{\text{кр}}$  (4) и  $v_{\text{кр}}$  (5) при  $\beta \ll 1$ , могут быть использованы для оценок в GaSe только в качестве

самого грубого приближения, поскольку вблизи критической точки светового канала, в которой домен исчезает,  $R \approx 15$  мкм и, следовательно,  $\beta = 0.32$ . Для данного значения параметра  $\beta$  были проведены численные расчеты системы уравнений, определяющей зависимость скорости и толщины домена от интенсивности света [5]. В результате этих расчетов были получены следующие критические значения:  $I_0^{kp} = 70$  кВт/см<sup>2</sup> и  $P_0^{kp} = 470$  мВт. Последнее значение находится в хорошем согласии с экспериментальными данными.

Расчитанное значение минимальной скорости движения домена оказалось равным  $v_{кр} = 8.1$  см/с. Если для оценки максимальной скорости домена воспользоваться формулой (3), то при интенсивности падающего излучения в образце  $I_0 = 200$  кВт/см<sup>2</sup> мы получим  $v(I_0) = 94$  см/с, что по крайней мере на порядок больше, чем значения скорости, полученные в эксперименте. Такое заметное расхождение связано, по-видимому, с тем, что при  $\beta \ll 1$  в смене устойчивости движения домена основную роль играет не расходимость светового канала, как это было в случае ZnSe [3], а отмечавшаяся выше неоднородность температурного поля вблизи задней грани образца. В этом случае движение домена происходит при небольшом превышении критической мощности  $P_0^{kp}$ , и, следовательно, скорость бегущего домена должна быть порядка  $v_{кр}$ .

Отметим также по свойство режима сильных пульсаций, что в GaSe фаза высокого пропускания ненулевой длительности наблюдается даже в том случае, если фокус линзы находится за задней гранью образца (рис. 3, а). Это указывает на более однородное, чем в ZnSe, распределение температуры в направлении поперек светового канала. Последнее обстоятельство, по-видимому, является причиной того, что в GaSe процессы деградации и разрушения происходят медленнее, чем в ZnSe, так как при более однородном поперечном распределении температуры соответствующие термические напряжения вдоль слоев будут меньше, чем в изотропном полупроводнике ZnSe, хотя величина разогрева примерно одинакова в обоих случаях.

Рассмотрим режим слабых пульсаций выходного сигнала, который обусловлен относительно небольшими периодическими изменениями размеров локализованного на задней грани домена и связан, по-видимому, с открытием домена от задней грани, когда интенсивность падающего излучения меньше критической, необходимой для поддержания стационарного движения домена в объеме образца [2, 3]. Период слабых пульсаций выходного сигнала или локализованного домена определяется характерным временем поперечного теплоотвода  $T = c\rho R^2/A_{\perp}$ . Если в это выражение подставить значения параметров GaSe и радиуса светового канала  $R = 20$  мкм, то получится значение периода (18 мкс), которое по крайней мере на порядок меньше, чем наблюдаемое в эксперименте. Примерно такое же расхождение наблюдалось и в экспериментах с ZnSe [3]. Причина этого расхождения заключается, по-видимому, в том, что вблизи локализованного домена характерный размер неоднородности температурного поля в поперечном направлении больше, чем радиус светового канала. В этом случае для оценки периода слабых пульсаций при стационарном способе возбуждения необходимо брать значение  $R$  в несколько раз больше, чем радиус светового канала.

Отметим также, что удвоение периода пульсаций выходного сигнала в GaSe и ZnSe указывает на возможность наблюдения перехода от регулярного поведения прошедшего через образец излучения к стохастическому по одному из сценариев, характерных для диссипативных систем [13], к числу которых относятся и рассматриваемые в данной работе домены (волны) поглощения в полупроводниках.

Таким образом, изучение поведения доменов (волн) поглощения в ZnSe [3] и GaSe показывает, что одномерная модель теплопроводностного режима распространения оптического разряда [4, 5] качественно и количественно описывает движение домена в объеме полупроводникового образца как в изотропном, так и в анизотропном случае. Поведение лока-

лизованного домена эта модель количественно не описывает, а дает лишь качественное согласие с экспериментом.

В заключение автор выражает благодарность З. Д. Ковалюку за предоставленные для измерений образцы, а также Г. Л. Беленькому и С. Э. Есипову за обсуждение результатов работы.

#### Л и т е р а т у р а

- [1] Стадник В. А., Хасанов И. Ш. Письма ЖТФ, 1987, т. 13, № 6, с. 337—340.
- [2] Стадник В. А. Письма ЖЭТФ, 1987, т. 45, № 3, с. 142—144.
- [3] Стадник В. А. ФТТ, 1987, т. 29, № 12, с. 3594—3602.
- [4] Райзер Ю. П. Лазерная искра и распространение разрядов. М.: Наука, 1974. 307 с.
- [5] Райзер Ю. П. УФН, 1980, т. 132, № 3, с. 549—581.
- [6] Беленький Г. Л., Стопачинский В. Б. УФН, 1983, т. 140, № 2, с. 233—270.
- [7] Heineberger F. Phys. St. Sol. (b), 1986, vol. 137, N 2, p. 371—432.
- [8] Голубев Г. П., Днепровский В. С., Ковалюк З. Д., Стадник В. А. ФТТ, 1985, т. 27, № 2, с. 432—438.
- [9] Голубев Г. П., Днепровский В. С., Киселев Е. А. и др. ДАН СССР, 1985, т. 280, № 3, с. 591—593.
- [10] Розанов Н. Н. ЖЭТФ, 1981, т. 80, № 1, с. 96—108.
- [11] Голубев Г. П., Днепровский В. С., Ковалюк З. Д., Стадник В. А. Письма ЖТФ, 1984, т. 10, № 6, с. 350—354.
- [12] Spitzer D. P. J. Phys. Chem. Sol., 1970, vol. 31, N 1, p. 19—40.
- [13] Синергетика. М.: Мир, 1984. 248 с.

Институт физики твердого тела АН СССР  
Черноголовка  
Московская область

Поступило в Редакцию  
11 апреля 1988 г.  
В окончательной редакции  
20 июня 1988 г.