Кинетика формирования сильнопоглощающего состояния в бистабильной экситонной безрезонаторной системе

© Ю.В. Гудыма

Черновицкий государственный университет им. Юрия Федьковича, 58012 Черновцы, Украина

(Получена 23 июля 1999 г. Принята к печати 18 июня 2000 г.)

Предложен подход, позволяющий единым образом описать все стадии формирования сильнопоглощающего состояния в бистабильной экситонной безрезонаторной системе как неравновесный фазовый переход первого рода. В приближении быстрой волны переключения определены скорость распространения фронта волны переключения и оценена толщина поверхности разрыва фаз. Получены функции распределения докритических и закритических зародышей в пространстве размеров, а также асимптотическое выражение для радиуса зародыша.

1. Введение

Наличие обратной связи (внешней или внутренней) и нелинейная зависимость коэффициента поглощения света в области экситонного резонанса от интенсивности излучения приводят к эффекту самовоздействия светового потока, заключающегося в том, что прошедшее через среду лазерное излучение оказывается многозначной функцией падающего пучка света [1]. Нелинейный механизм оптической бистабильности на экситонном переходе может быть связан с перенормировкой ширины запрещенной зоны или экранировкой экситонных состояний электронно-дырочной плазмой высокой плотности (безрезонаторная бистабильность), а также с двухфотонной генерацией биэкситонов (для этого нужны системы типа резонаторов Фабри-Перо). Очень важно, что при резонансном образовании экситонов оптические нелинейные эффекты наступают при значительно более низких интенсивностях падающего света, чем для изолированных атомов. Поэтому экспериментальное обнаружение безрезонаторной оптической бистабильности в области экситонного резонанса при относительно малых концентрациях экситонов ($n_{\rm ex} \approx 10^{15}\,{\rm cm}^{-3}$) и интенсивности 1 кВт/см² при комнатных температурах [2,3] открыло новые возможности для создания практических оптических устройств [4,5]. Несмотря на интенсивное исследование этого эффекта в последние десятилетия, проблема безрезонаторной оптической бистабильности при резонансном возбуждении экситонов остается актуальной [6,7]. Среди фундаментальных задач этого направления важность детального изучения кинетики оптической бистабильности как неравновесного фазового перехода, некоторые аспекты которого рассмотрены в данной работе, не вызывает сомнений.

2. Основные уравнения

Будем считать, что поверхность (z = 0) полупроводниковой пластины толщиной l освещается широким поперечно-неоднородным пучком света интенсивности $I_0(x, y)$. Уравнения переноса для лазерного излучения с интенсивностью I(z) и плотностью квазичастиц n(x, y, z, t) имеют вид [8,9]

$$\frac{\partial I}{\partial z} = -\alpha(\omega, n) I(z), \qquad (1)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D_{\perp} \left(\frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial y^2} \right) - D_z \frac{\partial^2 n}{\partial z^2} + \alpha(\omega, n) I(z) - \frac{n}{\tau}, \quad (2)$$

где $\alpha(\omega, n), D_{\perp}, D_z$ — коэффициенты поглощения света и диффузии квазичастиц (в плоскости и по толщине пластины) соответственно, τ — время жизни квазичастиц.

Частотная зависимость коэффициента поглощения света $\alpha(\omega, n)$ в случае резонансного поглощения света задается следующей функцией:

$$\alpha(\omega, n) = \alpha_0 \left[1 + \left(\frac{\omega'_r - \omega}{\Delta \omega} \right)^2 \right]^{-1}.$$
 (3)

При высоких уровнях возбуждения коллективные явления взаимодействия в системе экситонов приводят к тому, что резонансная частота ω'_r становится функцией концентрации возбуждений и уменьшается с ростом *n*: $\omega'_r = \omega_r - an$. Другими словами, имеет место сближение экситонного уровня со сплошным спектром электроннодырочной пары и уменьшение энергии связи экситона. Причиной является понижение энергии основного состояния, приходящейся на одну электронно-дырочную пару в электронно-дырочной плазме, и эффективное уменьшение ширины запрещенной зоны полупроводника при концентрациях $n_{\rm ex}a_{\rm ex} < 1$. В рассматриваемом случае $\Delta \omega$ и *an* — ширина и сдвиг (в линейном по концентрации частиц приближении) экситонного уровня ω_r .

Предполагая, что диффузионная длина превышает толщину пластины, и вводя усредненное по толщине значение интенсивности света, получим нелинейное уравнение концентрационного баланса

$$\frac{dn}{dt} = D_{\perp} \left(\frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial y^2} \right) + I_0 l^{-1} \left\{ 1 - \exp\left[-\alpha(\omega, n) l \right] \right\} - \frac{n}{\tau}.$$
(4)



Рис. 1. Вид функции $f(\eta)$ при фиксированных параметрах $\beta = 99, \lambda = 0.055, \Omega = 100.$

Фиксируя частоту падающего света, от уравнения (4) можно перейти к безразмерным переменным

$$\frac{d\eta}{d\theta} = \frac{\partial^2 \eta}{\partial \bar{x}^2} + \frac{\partial^2 \eta}{\partial \bar{y}^2} + \beta \left\{ 1 - \exp\left[-\frac{\lambda}{1 + \Omega(1 - \eta)^2} \right] \right\} - \eta$$

$$\equiv \frac{\partial^2 \eta}{\partial r_{\perp}^2} + f(\eta),$$
(5)

где $\theta = t/\tau, \lambda = \alpha_0 l,$

$$\Omega = \left(\frac{\omega_r - \omega}{\Delta \omega}\right)^2, \qquad \eta = an/(\omega_r - \omega),$$
$$\beta = \alpha \tau I_0(\omega_r - \omega)^{-1} l^{-1},$$
$$\frac{\partial^2}{\partial r_\perp^2} = \frac{\partial^2}{\partial \bar{x}^2} + \frac{\partial^2}{\partial \bar{y}^2}, \quad \bar{x} = x/(D_\perp \tau)^{1/2}, \quad \bar{y} = y/(D_\perp \tau)^{1/2}$$

Рассмотрим стационарные осесимметрические решения уравнения (5), которых в зависимости от величины управляющего параметра может быть от одного до трех (рис. 1). В последнем случае система имеет два устойчивых стационарных однородных состояния (низкопоглощающее и высокопоглощающее), характеризующиеся концентрациями экситонов η_1 и η_3 , и одно неустойчивое состояние с концентрацией η_2 , находящееся между ними. Это приводит к гистерезису в распределении квазичастиц, определяемому интенсивностью лазерного излучения. Данную схему бистабильности можно отнести к чисто оптической, абсорбционной, с внутренней обратной связью. С физической точки зрения каждому из устойчивых состояний можно сопоставить фазу, а неустойчивому — точку перехода, что позволяет привлечь идеи, возникшие в теории фазовых переходов. Ниже точки перехода низкопоглощающее состояние η_1 является стабильным, а высокопоглощающее состояние η_3 метастабильным; выше этой точки — наоборот.

Механический подход к решению проблемы

Для качественного исследования уравнения (5) достаточно одного вида величины:

$$U(\eta) = \int_{0}^{\eta} f(u) du.$$
 (6)

Силовой функции (6) (рис. 2) ставят в соответствие фазовую плоскость, изображающую совокупность всех возможных состояний системы (рис. 3). Как видно из рис. 3, в изучаемой области существенны два основных типа фазовых траекторий уравнения (5). Траектории типа 1 соответствуют решениям с периодической зависимостью концентрации от координаты. Для рассматриваемой системы такие решения являются неустойчивыми. Тректории типа 3 соответствуют свободному движению частиц. Жирной кривой 2 изображены сепаратрисные



Рис. 2. Зависимость силовой функции (6) от фазовой переменной η ($\beta = 99$, $\lambda = 0.055$, $\Omega = 100$).



Рис. 3. Фазовые траектории решений уравнения (5). Объяснение обозначений кривых *1–3* см. в тексте.

петли, замкнутый участок которых отвечает предельной траектории типа *1* (предельному циклу).

Основным типом структуры, характерным для простых бистабильных сред, является волна переключения (показана на рис. 3 штриховой линией); при ее распространении элементы среды переходят из одного устойчивого состояния в другое. Поскольку нелинейная функция $f(\eta)$ достигает больших положительных значений в узком интервале η и является отрицательной, но малой по абсолютному значению в широком интервале, скорость распространения фронта волны переключения можно определить в приближении быстрых волн переключения [8,9]

$$V = \frac{(2A)^{1/2}}{\eta_3 - \eta_1},\tag{7}$$

где η_1, η_3 — аргументы экстремумов функции $U(\eta)$ (см. рис. 2),

$$A = \int_{\eta_1}^{\eta_3} f(\eta) d\eta$$

— величина, имеющая смысл степени пересыщения метастабильной фазы бистабильной системы в двухфазной области (формальное сходство с известным выражением теории Лифшица–Слезова [10] для распада пересыщенного твердого раствора будет показано далее). Действительно, при A > 0 происходит переключение из низкопоглощающего состояни η_1 в высокопоглощающее состояние η_3 . Если же A < 0, то в среде происходят обратные процессы.

Пространством состояний (фазовым пространством) данной системы является прямая; движению системы соответствует перемещение изображающей точки $\eta(\theta)$ по этой прямой. В области кинетического фазового перехода (окрестности точки η_2) слабопоглощающая η_1 и сильнопоглощающая η_3 фазы экситонов существуют на освещенной поверхности одновременно. С помощью (7) толщина поверхности разрыва фаз поддается оценке

$$(2A)^{1/2} (\eta_3 - \eta_1)^{-1} \left(\frac{\partial f}{\partial \eta} \Big|_{\eta = \eta_3} \right)^{-1} \leq \Delta \rho \leq (2A)^{1/2}$$
$$\times (\eta_3 - \eta_1)^{-1} \left(\frac{\partial f}{\partial \eta} \Big|_{\eta = \eta_1} \right)^{-1}, \qquad (8)$$

где величины

$$\left(\frac{\partial f}{\partial \eta}\Big|_{\eta=\eta_1}\right)^{-1}, \quad \left(\frac{\partial f}{\partial \eta}\Big|_{\eta=\eta_3}\right)^{-1}$$

имеют смысл характерных времен процессов, происходящих в каждой из конкурирующих фаз.

4. Процесс зародышеобразования

Переход метасбильной фазы η_2 в устойчивую η_3 совершается путем флуктуационного возникновения в гомогенной среде небольших скоплений новой фазы — зародышей. Вероятность возникновения состояния системы, включающего один зародыш, определяется минимальной работой, которую необходимо затратить для создания зародыша заданного размера на плоскости [11]

$$A_{\min} = n_3 l(\mu_3 - \mu_2)S + \alpha P,$$
 (9)

где $S = 4\pi R^2$, $P = 2\pi R$ — площадь и периметр зародыша, α — энергия на единицу длины межзонной границы, μ_3, μ_2 — химические потенциалы в зародыше и вне его. Для зародыша, находящегося в равновесии с окружающей его средой, имеем

$$\left. \frac{dA_{\min}}{dR} \right|_{R_c} \equiv 0, \tag{10}$$

отсюда следует

$$\mu_2 - \mu_3 = \frac{\alpha}{4n_3 l R_c}.\tag{11}$$

С учетом (11) получаем

$$A_{\min} = -\frac{\pi\alpha}{R_c} R^2 + 2\pi\alpha R. \tag{12}$$

Если не рассматривать перемещение зародыша как целого и считать его устойчивым по отношению к изменениям формы, то локальная равновесная функция распределения зародышей по размерам будет определяться максимумом функции $A_{\min}(R)$:

$$f_0(R) = f_0(R_c) \exp\left[\frac{\pi \alpha}{TR_c}(R - R_c)^2\right],$$
 (13)

$$f_0(R_c) = C \exp\left(-\frac{\pi\alpha}{T}R_c\right).$$
(13a)

Предэкспоненциальный множитель в $f_0(R_c)$, как известно, не может быть выражен только через одни макроскопические характеристики фаз [12]. Флуктуационное развитие зародыша в критической области размеров с шириной $\delta R \approx (TR_c/\pi\alpha)^{1/2}$ вокруг граничной точки $R = R_c$ может перебросить их обратно в докритическую область, зародыши же, прошедшие через критическую область, будут неудержимо развиваться в новую фазу. Термодинамический подход, однако, не может дать ответ на вопросы о ходе процессов, связанных с переходом в новое фазовое состояние. Здесь требуется кинетические рассмотрение эволюции зародышей.

5. Процессы независимого роста выделений новой фазы

Найдем закон расширения кругового фронта, радиус R которого велик¹ по сравнению с шириной переходного слоя $\Delta \rho$. В полярной системе координат с учетом

¹ Здесь и дальше под *R* подразумевается величина, нормированная на диффузионную длину $L \approx (D_{\perp} \tau)^{1/2}$.

аксиальной симметрии уравнение (5) имеет вид

бистабильной системы. Таким образом

$$\frac{\partial \eta}{\partial \theta} = f(\eta) + \frac{1}{\rho} \frac{\partial \eta}{\partial \rho} + \frac{\partial^2 \eta}{\partial \rho^2}.$$
 (14)

Фактически производная $\partial \eta / \partial \rho$ отлична от нуля лишь в пределах узкого переходного слоя вблизи значения $\rho = R$. Поэтому во втором слагаемом справа в уравнении (14) можно приближенно положить $\rho = R$. Заметим, что на плоскости любой домен выпуклой формы стремится стать идеально циркулярным [13,14].

Пусть V(R) есть мгновенная скорость распространения кругового фронта с радиусом *R*. С учетом сделанных выше приближений такой фронт отвечает автомодельному решению

$$\eta = \eta(\xi), \qquad \xi = \rho - V(R)\theta$$
 (15)

дифференциального уравнения

$$-V(R)\eta' = f(\eta) + R^{-1}\eta' + \eta''$$
(16)

с граничными условиями

 $\eta
ightarrow \eta_1$ при $\xi
ightarrow +\infty$ и $\eta
ightarrow \eta_3$ при $\xi
ightarrow -\infty$. (17)

Обратим внимание, что уравнение (16) совпадает с уравнением для плоской волны переключения, движущейся со скоростью V, связанной со скоростью V(R) распространения фронта с радиусом кривизны R соотношением

$$V(R) = V - R^{-1}.$$
 (18)

С другой стороны, если умножить обе части уравнения (16) на производную $d\eta/d\xi$ и проинтегрировать по ξ в пределах от $-\infty$ до $+\infty$, то с учетом граничных условий получаем

$$V = V(R) + R^{-1} \equiv A \left[\int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{d\eta}{d\xi} \right)^2 d\xi \right]^{-1}.$$
 (19)

Если мы по-прежнему рассматриваем неподвижный зародыш, то $V(R) = dR/d\theta$. Отсюда и из (18) следует, что

$$\frac{dR}{d\theta} = V - R^{-1}.$$
 (20)

Уравнение (20) фактически означает, что мы предположили процессы на межфазной границе достаточно быстрыми, так что в каждой точке границы устанавливается локальное равновесие. Из условия стационарности границы контура фронта R следует

$$R_c = V^{-1} \equiv A^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{d\eta}{d\xi}\right)^2 d\xi, \qquad (21)$$

откуда видно, что величина А имеет также и формальный смысл степени пересыщения [10] метастабильной фазы

Физика и техника полупроводников, 2000, том 34, вып. 12

$$\frac{dR}{d\theta} = \frac{1}{R_c} - \frac{1}{R}.$$
(22)

При $R < R_c$, $dR/d\theta < 0$ и плоские капли радиуса R растворяются в метастабильной среде; при $R > R_c$, $dR/d\theta > 0$ и плоские капли растут. Новообразования критического радиуса R_c , находящиеся в равновесии со средой, не растут и не растворяются.

На стадии независимого роста закритических зародышей их средний размер намного превосходит величину R_c . Кроме того, в начале стадии роста можно пренебречь падением пересыщения при определении скорости роста зародышей. Тогда для зависимости от времени радиуса зародышей, заметно превосходящего критический, из (22) получим

$$R(\theta) = R(0) + R_c^{-1}\theta.$$
⁽²³⁾

Существенное отличие результата (23) от полученного в [15] объясняется тем, что в нашем случае кинетика роста зародышей определяется процессами присоединения и отрыва частиц на двумерной межфазной границе, а не диффузией в растворе.

Максимально возможный размер R_m , которого могут достичь капли на стадии их независимого роста, определим из уравнения для удельной скорости роста [16]

$$\left. \frac{d}{dR} \left(\frac{\dot{R}}{R} \right) \right|_{R=R_m} = 0, \tag{24}$$

откуда получаем $R_m = 2R_c$. Заметим, что из теории Лифшица–Слезова [10] при росте выделений новой фазы за счет объемной диффузии получается $R_m = (3/2)R_c$.

Заключительная стадия формирования сильнопоглощающего состояния

На поздних стадиях фазового перехода первого рода рост более крупных капель новой фазы осуществляется за счет растворения более мелких [10,17]. Созревание по Оствальду, а именно так принято называть заключительный этап фазового перехода первого рода, начинается тогда, когда пересыщение А стремится к нулю. Последнее условие напоминает известное правило Максвелла, относящееся к возможности сосуществования в пространстве жидкой и газообразной фаз [18] и означающее в данном случае существование неподвижного фронта волны переключения между состояниями. Другими словами, в неравновесной системе возникает весьма развитая межфазная поверхность, с которой связывают стадию оствальдовского созревания [14]. Заметим, что на этой стадии флуктуационное возникновение новых зародышей практически исключено, поскольку критические размеры велики.

Уравнение (22) полностью аналогично выражению, описывающему поздние стадии формирования островковой пленки из пересыщенного твердого раствора адсорбированных подложкой атомов [19]. Процесс роста контролируется скоростью присоединения квазичастиц к периметру растущей капли новой фазы и равной в нашем случае 1 (имеется в виду обезразмеренная величина).

Рассматривая $dR/d\theta$ как скорость перемещения зародыша в пространстве размеров, запишем уравнение непрерывности в этом пространстве:

$$\frac{\partial f}{\partial \theta} + \frac{\partial}{\partial R} \left(f \frac{\partial R}{\partial \theta} \right) = 0.$$
 (25)

Функция распределения зародышей по размерам нормирована так, что величина

$$N(\theta) = \int_{0}^{\infty} f(\theta, R) dR$$
 (26)

есть число зародышей в единице объема. Наконец, сохранение полного количества квазичастиц выражается уравнением

$$A(\theta) + \pi \int_{0}^{\infty} R^2 f(\theta, R) dR = A_0, \qquad (27)$$

где А₀ — полное начальное пересыщение.

Уравнения (22), (25), (27) составляют полную систему уравнений рассматриваемой задачи. Подставляя (22) в (25), получим функцию распределения в таком виде, в каком она была получена ранее для островковых пленок [19]:

$$f(u) = Cu(2-u)^{-4} \exp\left(-\frac{4}{2-u}\right),$$
 (28)

где $u = R/R_c$. Нормировочную константу *C* можно определить из уравнения (27).

Очевидно, что приведенная функция распределения зародышей по размерам не исчерпывает всех возможных механизмов укрупнения выделений новой фазы. Однако, чтобы учесть их (например, диффузию из окружающей среды), пришлось бы сделать предположения, не вытекающие прямо из физической модели, описанной в разд. 2. Заметим также, что используемый в этом разделе подход был разработан для описания заключительной стадии фазового перехода (газ экситонов большой плотности)– (электронно-дырочная жидкость) [20].

7. Заключение

Таким образом, кинетику формирования сильнопоглощающего состояния в бистабильной экситонной безрезонаторной системе можно сформулировать на языке кинетики фазовых переходов первого рода. Последнее объясняется тем, что совместное действие интенсивности лазерного излучения и флуктуаций концентрации экситонов могут перебрасывать систему через сепаратрису от области притяжения одного аттрактора к области притяжения другого (рис. 3). Такой отклик наблюдаемой величины напоминает фазовый переход первого рода из равновесной термодинамики. Внешний шум (флуктуации интенсивности световой волны) приводит к расширению области бистабильности рассматриваемой системы [21], однако, что важно, не изменяя кардинальным образом картину кинетики формирования сильнопоглощающего состояния.

В отличие от равновесной термодинамики, где фазовый переход связывает устойчивые равновесные состояния, при формировании сильнопоглощающего состояния экситонов в полупроводнике переход связывает два неравновесных состояния системы, существование которых поддерживается внешним мощным лазерным излучением. Как известно, современные успехи теории самоорганизующихся систем в первую очередь связаны с тем, что термодинамически неравновесные системы, находящиеся в стационарном состоянии с детальным равновесием, формально не отличимы от равновесных [19], для анализа которых существует хорошо разработанный математический аппарат [18]. Физическое состояние такой термодинамической системы, значительно удаленной от равновесия, определяется ее характеристической функцией — обобщенным термодинамическим потенциалом. Кинетика фазовых превращений указанных выше систем отображается уравнением Ландау-Халатникова, описывающим релаксацию фазовой переменной в новое, энергетически более выгодное состояние.

Однако для болышинства физически значимых ситуаций в неравновесной кинетике (например, для модели описываемой уравнением (4)) такая схема неприменима из-за сложности построения обобщенного термодинамического потенциала. Развитый выше подход описывает эволюцию сильнонеравновесной системы по формальной аналогии с распадом пересыщенного твердого раствора, без использования понятия обобщенного термодинамического потенциала. Предложенный способ описания позволяет исследовать кинетику широкого класса неравновесных систем единым образом на разных стадиях фазового перехода, не делая дополнительных предположений к основному кинетическому уравению модели.

Список литературы

- [1] Х. Гиббс. Оптическая бистабильность. Управление светом с помощью света (М., Мир, 1988).
- [2] А.М. Бакиев, В.С. Днепровский, З.Д. Ковалюк, В.П. Стадник. Письма ЖЭТФ, 38, 493 (1983).
- [3] В.С. Днепровский, В.И. Климов, Е.В. Незванова, А.И. Руртичев. Письма ЖЭТФ, 45, 580 (1987).
- [4] Оптические вычисления, под ред. Р. Арратуна (М., Мир, 1993).

- [5] Self-Organization in Optical Systems and Application in Information Technology, ed. by M.A. Vorontsov, N.B. Miller (Berlin, Springer, 1995).
- [6] П.И. Хаджи, С.Л. Гайван. Квант. электрон., 24, 546 (1997).
- [7] П.И. Хаджи, С.Л. Гайван. ФТТ, 40, 932 (1998).
- [8] Я.Б. Зельдович, Д.А. Франк-Каменецкий. ЖФХ, 12, 100 (1938).
- [9] Al.S. Mikhailov. Foundation of Synergrtics. I. Distributed Active Systems (Berlin, Springer, 1994).
- [10] И.М. Лифшиц, В.В. Слезов. ЖЭТФ, 35, 479 (1958).
- [11] Е.А. Бренер, В.И. Марченко, С.В. Мешков. ЖЭТФ, 85, 2107 (1983).
- [12] Е.М. Лифпиц, Л.П. Питаевский. *Физическая кинетика* (М., Наука, 1979).
- [13] Ю.Е. Кузовлев, Т.К. Соболева, А.Э. Филиппов. ЖЭТФ, 103, 1742 (1993).
- [14] B. Meerson, P.V. Sasorov. Phys. Rev. E, 53, 3491 (1996).
- [15] В.И. Марченко. Письма ЖЭТФ, 64, 61 (1996).
- [16] R.D. Vengrenovich. Acta Metal., 20, 1079 (1982).
- [17] C. Wagner. Z. Electrochem., 65, 581 (1961).
- [18] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика (М., Наука, 1995) ч. 1.
- [19] Р.Д. Венгренович. УФЖ, 22, 219 (1977).
- [20] J.H. Yao, H. Guo, M. Grant. Phys. Rev. B, 47, 1270 (1993).
- [21] Ю.В. Гудыма. Изв. вузов. Физика, № 12, 94 (1998).

Редактор Т.А. Полянская

Shaping kinetics of strongly absorptive state in a resonatorless exciton bistable system

Yu.V. Gudyma

Yu. Fed'kovich State University of Chernivtsi, 58012 Chernivtsi, the Ukraine

Abstract The paper presents a unified approach to description of all the stages of shaping the strongly absorptive state in a resonatorless exciton bistable system, as a nonequilibrium firstorder transition. The velocity of switchnig wave front and the thickness of phase interface in the approximation of a quick switching wave were found. Distribution functions of subcritical and supercritical nuclei in the size space and an asymptotic expression for nucleus radius were obtained.