

ФОТОИНДУЦИРОВАННЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В СИСТЕМЕ ПАЙЕРЛСА

А. Л. Семенов*

Ульяновский государственный университет
432700, Ульяновск, Россия

Поступила в редакцию 13 января 1998 г.

Построена теория фотоиндуцированного фазового перехода в системе Пайерлса при ее облучении световым полем с конечной шириной оптического спектра и центральной частотой, близкой к верхней особой точке Ван Хофа первого рода в комбинированной плотности электронных состояний. Электронный спектр и матричные элементы оператора дипольного момента рассчитаны методом канонических преобразований Боголюбова. Взаимодействие с излучением описывается с помощью уравнения Лиувилля для матрицы плотности электронной подсистемы в дипольном приближении. Световое поле рассматривается как квазимонохроматический стационарный случайный процесс с лоренцевским спектром. Анализ полученных уравнений проведен в двух предельных случаях, когда ширина оптического спектра 1) стремится к нулю (монохроматическое световое поле), 2) близка к верхнему предельному значению (точке бифуркации), при котором еще возможно наблюдение фотоиндуцированного фазового перехода. Получен критерий существования такого перехода и рассчитаны его основные параметры (критические точки и размеры петли гистерезиса). Показано, что уширение оптического спектра падающего излучения сужает область допустимых для наблюдения фотоиндуцированного фазового перехода значений центральной частоты светового поля и уменьшает размеры петли гистерезиса. Вблизи точки фазового перехода в системе наблюдается безрезонансная оптическая бистабильность при нарастающем поглощении.

1. ВВЕДЕНИЕ

Система Пайерлса, рассматриваемая в настоящей статье, представляет собой одномерную цепочку атомов, на каждом из которых находится по одному внешнему электрону. В высокотемпературной металлической фазе атомы в цепочке расположены эквидистантно, а электронная зона проводимости заполнена наполовину. При охлаждении, когда температура достигает некоторого критического значения T_0 , металлическая фаза становится неустойчивой, и происходит фазовый переход металл–полупроводник. Атомы в цепочке при этом попарно сближаются [1].

Теоретические результаты, полученные на основе модели Пайерлса, используются для описания экспериментально наблюдаемых свойств целого ряда квазиодномерных материалов: комплексных соединений платины [1], соединения TaS_3 [2], органических проводников [3], оксидных ванадиевых бронз [4], вещества $NbSe_3$ и др. [5–7]. В частности, в рамках этой модели удастся объяснить влияние на фазовый переход металл–полупроводник в диоксиде ванадия таких факторов как одноосное давление [8], леги-

*E-mail: semenov@quant.univ.simbirsk.su

рование [9, 10], фонон-фононное взаимодействие [8, 11], сцепление пленки VO_2 с подложкой [12], адсорбция и т. д. [13].

Известно, что в постоянном электрическом поле при некотором пороговом значении его напряженности E_t в низкотемпературной фазе системы Пайерлса наблюдается термодинамически неравновесный фазовый переход в состояние с движущейся волной зарядовой плотности [5]. Данный переход в зависимости от конкретных условий может быть как второго, так и первого рода. Например в NbSe_3 в вольт-амперной характеристике при температуре $T = 26.5$ К имеется характерная для переходов первого рода гистерезисная зависимость, в то время как при $T = 34$ К гистерезис отсутствует [5].

Поведение низкотемпературной фазы системы Пайерлса при оптическом возбуждении в ней неравновесных электрон-дырочных пар изучалось теоретически [14] и экспериментально (в диоксиде ванадия) [15, 16]. Было показано, что за счет сильного электрон-фононного взаимодействия при увеличении концентрации электрон-дырочных пар происходит уменьшение ширины запрещенной зоны, а при большом уровне возбуждения реализуется фазовый переход полупроводник-металл [6].

Следует отметить, что уменьшение ширины запрещенной зоны электронного спектра и частоты одной или нескольких фононных мод вплоть до нуля при увеличении концентрации неравновесных фотовозбужденных электронов является достаточно общим свойством широкого класса материальных сред различной размерности [17–23]. При этом вблизи точки фотоиндуцированного фазового перехода полупроводник-металл и происходящего одновременно с ним изменения структуры кристаллической решетки могут наблюдаться пространственные [17–19] и временные [20–22] периодические модуляции параметров системы.

В настоящей работе исследуется поведение низкотемпературной фазы системы Пайерлса в квазимонохроматическом световом поле, частота которого несколько меньше частоты, соответствующей верхней особой точке Ван Хова первого рода [24], в которой комбинированная плотность электронных состояний для прямых оптических межзонных переходов обращается в бесконечность (см. ниже рис. 1).

Благодаря сильному электрон-фононному взаимодействию частота, соответствующая особой точке Ван Хова, уменьшается при увеличении концентрации электрон-дырочных пар [9]. В таких условиях в системе при увеличении интенсивности облучения возможно скачкообразное уменьшение ширины запрещенной зоны (фотоиндуцированный фазовый переход полупроводник-полупроводник). Это связано с появлением положительной обратной связи. Световое поле вызывает рост концентрации электрон-дырочных пар и, как следствие, уменьшение частоты, соответствующей особой точке Ван Хова первого рода, которая приближается к частоте облучения. В результате резко возрастает темп генерации электрон-дырочных пар и происходит дальнейшее уменьшение частоты особой точки Ван Хова. Данная положительная обратная связь снижает устойчивость системы. В случае же, когда обратная связь становится достаточно сильной, устойчивость теряется, и имеет место скачкообразный переход в новое состояние равновесия (фазовый переход).

Итак, в модели Пайерлса благодаря сильному взаимодействию электронной подсистемы со статической фононной модой [8] реализуется один из механизмов, вызывающих фотоиндуцированный фазовый переход и безрезонаторную оптическую бистабильность при нарастающем поглощении [25]. Данный тип бистабильности в общем случае обусловлен нелинейной зависимостью коэффициента поглощения от интенсивности падающего излучения и может быть вызван различными причинами [25]: атом-

ными корреляциями в малом объеме; температурной зависимостью ширины запрещенной зоны; перенормировкой ширины запрещенной зоны за счет экситон-экситонного взаимодействия [25, 26]; изменением частоты перехода в ансамбле двухуровневых атомов, обусловленным эффектами локального поля или электрон-фононным взаимодействием [27]. Однако предлагаемый в настоящей работе механизм фотоиндуцированного фазового перехода и безрезонантной оптической бистабильности при облучении системы Пайерлса световым полем с энергией кванта чуть меньше ширины полной пайерлсовской зоны, насколько известно автору, еще не рассматривался.

2. ЭЛЕКТРОННЫЙ СПЕКТР И ДИПОЛЬНЫЙ МОМЕНТ СИСТЕМЫ

Рассмотрим цепочку атомов, каждый из которых имеет по одному внешнему электрону. Гамильтониан электронной подсистемы в приближении сильной связи запишем в виде [1]

$$H = \sum_n B_{n,n+1} (a_n^+ a_{n+1} + a_{n+1}^+ a_n), \quad (1)$$

где n — номер атома в цепочке, $B_{n,n+1}$ — интеграл перекрытия волновых функций соседних атомов, a_n^+ и a_n — операторы рождения и уничтожения электрона на n -м атоме.

Для узкозонных систем (в частности, для модели Пайерлса) расстояния $r_{n,n+1}$ между соседними атомами в несколько раз превышают эффективный радиус R атомной волновой функции электрона. В этом случае $B_{n,n+1} \propto \exp(-r_{n,n+1}/R)$ [28]. Расстояние $r_{n,n+1}$ запишем в форме

$$r_{n,n+1} = r_0 + (-1)^{n+1} R\xi, \quad (2)$$

где r_0 — межатомное расстояние в металлической фазе, ξ — параметр удвоения периода одномерного кристалла. С учетом (2) интеграл перекрытия $B_{n,n+1}$ принимает вид

$$B_{n,n+1} = b \exp[(-1)^n \xi], \quad (3)$$

где b — интеграл перекрытия в металлической фазе ($\xi = 0$). Фазы атомных волновых функций при записи (1) выбираются таким образом, что b в (3) является действительной величиной.

Используя метод канонических преобразований Боголюбова [29], приведем гамильтониан (1) к диагональному виду:

$$H = \sum_k \varepsilon_k \alpha_k^+ \alpha_k, \quad (4)$$

где

$$\varepsilon_k = 2b \operatorname{sign}(\cos k) \sqrt{\cos^2 k + \operatorname{sh}^2 \xi}, \quad (5)$$

α_k, α_k^+ — новые коллективные фермиевские операторы вторичного квантования, $k = 0, \pm 2\pi/N, \dots, \pm\pi, \alpha_{k+2\pi} = \alpha_k$, N — число атомов в цепочке.

Из соотношения (5) видно, что спектр ϵ_k при $\xi \neq 0$ имеет две зоны, нижняя из которых в основном состоянии полностью заполнена, а верхняя пустая (полупроводниковая фаза). При $\xi = 0$ спектр (5) представляет собой одну наполовину заполненную зону (металлическая фаза).

Оператор дипольного момента системы Пайерлса в приближении сильной связи определяется соотношением

$$\mathbf{d} = \sum_n (\mathbf{d}_{n,n+1} a_n^+ a_{n+1} + \mathbf{d}_{n,n+1}^* a_{n+1}^+ a_n), \quad (6)$$

где зависимость $\mathbf{d}_{n,n+1}$ от ξ аналогична соотношению (3):

$$\mathbf{d}_{n,n+1} = (\mathbf{d}_1 + i\mathbf{d}_2) \exp[(-1)^n \xi] = -e \int_v \psi_n^*(\mathbf{r}) \mathbf{r} \psi_{n+1}(\mathbf{r}) dv. \quad (7)$$

Здесь $\psi_n(\mathbf{r})$ — атомная волновая функция электрона, находящегося на n -м узле, e — заряд электрона. Выбор фаз волновых функций $\psi_n(\mathbf{r})$, обеспечивающий реальность интеграла перекрытия (3), однозначно определяет \mathbf{d}_1 и \mathbf{d}_2 в (7).

Переходя в (6) к фермиевским операторам α_k, α_k^+ , получаем

$$\mathbf{d} = \sum_k \left\{ \left[\frac{\mathbf{d}_1 \epsilon_k}{b} - \frac{2\mathbf{d}_2}{1 + \varphi_k^2} [(1 - \varphi_k^2) \text{ch } \xi \sin k + 2\varphi_k \text{sh } \xi \cos k] \right] \alpha_k^+ \alpha_k + \right. \\ \left. + i \frac{2\mathbf{d}_2}{1 + \varphi_k^2} [(1 - \varphi_k^2) \text{sh } \xi \cos k - 2\varphi_k \text{ch } \xi \sin k] \alpha_k^+ \alpha_{k-\pi} \right\} \quad (8)$$

где

$$\varphi_k = \frac{\text{ch } \xi \cos k - \text{sign}(\cos k) \sqrt{\cos^2 k + \text{sh}^2 \xi}}{\text{sh } \xi \sin k}. \quad (9)$$

Следует отметить формальное сходство операторов (1) и (6) при $\mathbf{d}_2 = 0$. Аналогичное сходство поэтому имеют операторы (4) и (8).

Пусть в отсутствие внешнего электрического поля суммарный дипольный момент системы равен нулю. Тогда из (8), (5) следует, что $\mathbf{d}_1 = 0$. Таким образом, выбор фаз волновых функций $\psi_n(\mathbf{r})$, при котором интеграл $B_{n,n+1}$ в (1) является действительной величиной, в рассматриваемом случае обеспечивает мнимость межузельного матричного элемента оператора дипольного момента $\mathbf{d}_{n,n+1}$ в (6). Случай $\mathbf{d}_1 \neq 0$, по-видимому, может быть реализован в системах, обладающих сегнетоэлектрическими свойствами. Такие системы в данной работе не рассматриваются. При $\xi \rightarrow 0$, как видно из (9), $\varphi_k \rightarrow 0$ для всех $k \neq \pm\pi/2$. Поэтому в (8) $\mathbf{d}_{k,k-\pi} \rightarrow 0$, и все дипольные переходы запрещены. Если $\xi \neq 0$, то в (8) $\mathbf{d}_{k,k-\pi} \neq 0$ и соответствующие дипольные переходы разрешены. Поскольку в этом случае первой зоной Бриллюэна является область $k \in (-\pi/2, \pi/2]$, данные переходы оказываются вертикальными межзонными в спектре (5).

3. УРАВНЕНИЕ РАВНОВЕСИЯ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИ НЕРАВНОВЕСНОЙ СИСТЕМЫ ПАЙЕРЛСА

При описании поведения системы Пайерлса в световом поле будем предполагать, что время внутрizonной релаксации электронов много меньше времени межzонной релаксации τ [30]. В этом случае, следуя принятому в [14, 24] приближению, можно считать, что в каждой зоне статистика электронов описывается распределением Ферми со своим квазиуровнем Ферми. Тогда с учетом симметрии (5) получаем соотношение для концентрации n электрон-дырочных пар в световом поле:

$$n = \frac{N}{2} - \sum_{|k| \leq \pi/2} \text{th} \frac{\varepsilon_k - \mu}{2k_B T}. \quad (10)$$

Здесь μ — квазиуровень Ферми зоны проводимости (квазиуровень Ферми валентной зоны в силу симметрии закона дисперсии (5) имеет противоположное значение), k_B — постоянная Больцмана.

Рассматривая параметр ξ в качестве обобщенной координаты, запишем уравнение равновесия термодинамически неравновесной системы Пайерлса (внутри каждой из зон электронный газ находится в термодинамическом равновесии, однако термодинамическое равновесие между зонами нарушено):

$$\left(\frac{\partial F_1}{\partial \xi} \right)_{T, N_1} + \left(\frac{\partial F_2}{\partial \xi} \right)_{T, N_2} + \left(\frac{\partial F_{ph}}{\partial \xi} \right)_T = 0, \quad (11)$$

где

$$F_j = \mu_j N_j - k_B T \sum_k \ln \left[1 + \exp \left(\frac{\mu_j - \varepsilon_k}{k_B T} \right) \right], \quad F_{ph} = \frac{A}{2} \xi^2, \quad (12)$$

F_j , μ_j и N_j — соответственно свободная энергия электронов, квазиуровень Ферми и число электронов j -й зоны ($j = 1, 2$); A — коэффициент разложения свободной энергии F_{ph} фононной подсистемы по параметру ξ [1]. Суммирование по k в (12) идет в пределах j -й зоны спектра (5).

Подставляя (12) в (11) и преобразуя, окончательно получаем

$$-2 \sum_{|k| \leq \pi/2} \frac{\partial \varepsilon_k}{\partial \xi} \text{th} \left(\frac{\varepsilon_k - \mu}{2k_B T} \right) + A \xi = 0. \quad (13)$$

Коэффициент разложения A выражается через критическую температуру T_0 термодинамически равновесного (в отсутствие светового поля) фазового перехода металл-полупроводник и другие характеристики системы [8, 11]:

$$A = \frac{4bN}{\pi} \left[\ln \left(\frac{\pi b}{2k_B T_0} \right) + 1 \right]. \quad (14)$$

Таким образом, мы получили уравнение (10), выражающее зависимость концентрации электрон-дырочных пар n от квазиуровня Ферми μ и параметра ξ , и уравнение равновесия (13), описывающее связь между параметром ξ системы Пайерлса и μ . В свою очередь, квазиуровень Ферми μ определяется степенью светового воздействия на систему. Уравнение, описывающее это воздействие, должно зависеть от конкретного механизма взаимодействия излучения с электронной подсистемой.

4. ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ С ИЗЛУЧЕНИЕМ

Взаимодействие системы со световым полем будем описывать оператором V , который в дипольном приближении имеет вид

$$V = -\mathbf{dE}(t) = -\mathbf{d} \int \mathbf{E}_\omega \exp(-i\omega t) d\omega, \quad (15)$$

где \mathbf{E}_ω и ω — соответственно амплитуда и частота спектральной компоненты светового поля, которое предполагается линейно поляризованным вдоль оси кристалла квазимонохроматическим стационарным случайным процессом [31, 32].

Используя уравнение Лиувилля [33]

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H + V, \rho], \quad (16)$$

с учетом (5), (15) во втором порядке теории возмущений находим кинетическое уравнение для концентрации электрон-дырочных пар:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{4\pi}{\hbar^2} \sum_{|k| \leq \pi/2} d_k^2 \operatorname{th} \left(\frac{\varepsilon_k - \mu}{2k_B T} \right) G \left(\frac{2\varepsilon_k}{\hbar} \right) - \frac{n - n_0}{\tau}, \quad (17)$$

где $n_0 = n(\mu = 0)$ — концентрация электрон-дырочных пар в отсутствие светового поля,

$$d_k = \frac{2d_2}{1 + \varphi_k^2} |(1 - \varphi_k^2) \operatorname{sh} \xi \cos k - 2\varphi_k \operatorname{ch} \xi \sin k|, \quad (18)$$

$G(\omega)$ — спектральная плотность светового поля, которая для квазимонохроматического сигнала может быть представлена в следующем виде [31]:

$$G(\omega) = I g(|\omega| - \omega_0), \quad (19)$$

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

Последнее слагаемое в (17), введенное феноменологически, учитывает межзонную релаксацию с временем релаксации τ . Уравнение (17) показывает, что изменение концентрации n электрон-дырочных пар обусловлено взаимодействием электронной подсистемы со спектральными компонентами светового поля, имеющими частоты $\omega_k = 2\varepsilon_k/\hbar$.

Учитывая (19), из уравнения (17) для стационарного режима ($\partial n/\partial t = 0$) окончательно получаем

$$I = \frac{(n - n_0)\hbar^2}{4\pi\tau} \left[\sum_{|k| \leq \pi/2} d_k^2 \operatorname{th} \left(\frac{\varepsilon_k - \mu}{2k_B T} \right) g \left(\frac{2\varepsilon_k}{\hbar} - \omega_0 \right) \right]^{-1}. \quad (20)$$

Уравнения (10), (13), (20) образуют замкнутую систему относительно внутренних параметров μ , n , ξ системы Пайерлса при заданных внешних параметрах T , I , ω_0 и т. д.

5. ЗАВИСИМОСТЬ КОНЦЕНТРАЦИИ ЭЛЕКТРОН-ДЫРОЧНЫХ ПАР ОТ ШИРИНЫ ЗАПРЕЩЕННОЙ ЗОНЫ

Проведем анализ уравнений (10), (13) для случая, когда система Пайерлса является невырожденным полупроводником:

$$\frac{\varepsilon/2 - \mu}{k_B T} > 2. \quad (21)$$

Здесь ε — ширина запрещенной зоны. С физической точки зрения, неравенство (21) означает, что 1) $4k_B T < \varepsilon$; 2) концентрация возбужденных электронов настолько мала, что квазиуровень Ферми зоны проводимости лежит в глубине запрещенной зоны. Тогда, рассматривая величину $\exp[-(\varepsilon/2 - \mu)/k_B T]$ в качестве малого параметра, уравнение (10) для концентрации n электрон-дырочных пар приближенно преобразуем к виду

$$n = \frac{N}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon k_B T}{\pi b^2}} \exp\left(-\frac{\varepsilon/2 - \mu}{k_B T}\right). \quad (22)$$

Уравнение равновесия (13) перепишем в следующей форме:

$$\exp\left(-\frac{\varepsilon/2 - \mu}{k_B T}\right) = \sqrt{\frac{\varepsilon}{4\pi k_B T}} \left[\arcsin\left(\frac{\pi}{4}\right) + \ln\left(\frac{2\pi b}{\varepsilon}\right) - \frac{\pi A}{4bN} \right]. \quad (23)$$

При выводе (23) кроме (21) мы предполагали также, что параметр $\xi \leq 0.5$. Данное предположение оправдано, поскольку именно такая ситуация реализуется в большинстве известных материалов, описываемых в рамках модели Пайерлса [1, 6, 8].

Подставляя (23) в (22), с учетом (14) находим связь между концентрацией n электрон-дырочных пар и шириной запрещенной зоны ε :

$$n = \frac{N\varepsilon}{4\pi b} \ln \frac{\varepsilon_0}{\varepsilon}, \quad (24)$$

где ε_0 — ширина запрещенной зоны в отсутствие светового воздействия ($\mu = 0$) при температуре $k_B T \ll \varepsilon$:

$$\varepsilon_0 = 4k_B T_0 \exp[\arcsin(\pi/4) - 1]. \quad (25)$$

Полученное соотношение (24) справедливо в случае малых значений $\Delta\varepsilon \equiv \varepsilon_0 - \varepsilon$. Это связано с используемым приближением (21), которое с учетом (23), (25) может быть записано в более удобной форме:

$$\Delta\varepsilon \equiv \varepsilon_0 - \varepsilon < \sqrt{\varepsilon_0 k_B T} / 2, \quad (26)$$

где, так же как и в (25), предполагается, что $T < T_0/2$.

Анализ уравнений равновесия (11)–(13) показывает, что решение $n(\varepsilon)$ (24) устойчиво на участке, где $\partial n / \partial \varepsilon < 0$, т.е. при $\varepsilon \in (\varepsilon_0/e, \varepsilon_0)$.

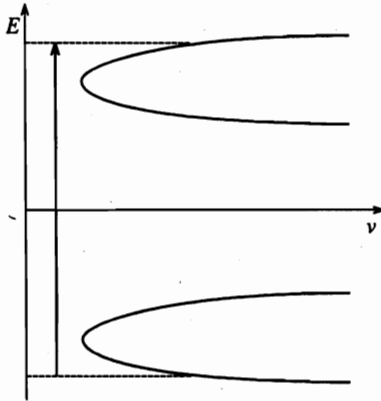


Рис. 1

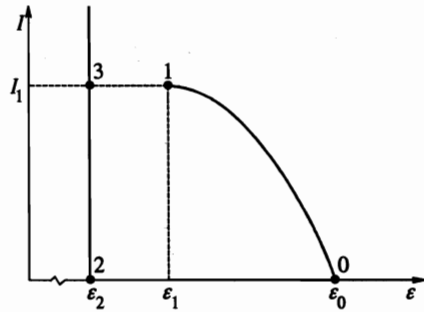


Рис. 2

Рис. 1. Схематический график зависимости плотности ν электронных состояний системы Пайерлса от энергии E (27). Вертикальной стрелкой изображены рассматриваемые в настоящей работе оптические межзонные переходы с частотой, несколько меньшей частоты, соответствующей верхней особой точке Ван Хофа первого рода, где комбинированная плотность электронных состояний для прямых оптических переходов обращается в бесконечность

Рис. 2. Обратная зависимость ширины запрещенной зоны ϵ от интенсивности I монохроматического светового поля; $\epsilon_1 = (\epsilon_0 + 2\epsilon_2)/3$

6. ФОТОИНДУЦИРОВАННЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В МОНОХРОМАТИЧЕСКОМ СВЕТОВОМ ПОЛЕ

Анализ уравнения (20) с учетом (24) вначале проведем для монохроматического светового поля, когда фактор формы $g(x) = \delta(x)$. Перейдем в (20) от суммы к интегралу по dE , имея в виду, что плотность электронных состояний $\nu(E)$, соответствующая спектру (5), имеет вид (рис. 1)

$$\nu(E) = \frac{2NE}{\pi \sqrt{(4b^2 \text{ch}^2 \xi - E^2)(E^2 - 4b^2 \text{sh}^2 \xi)}}, \tag{27}$$

а матричный элемент оператора дипольного момента d_k при $\epsilon_k = E$ в соответствии с (18), (5), (9) определяется соотношением

$$d(E) \equiv d_k(\epsilon_k = E) = \frac{4bd_2 \text{ch} \xi \text{sh} \xi}{E}. \tag{28}$$

Тогда в приближении $\text{th}[(\hbar\omega_0/2 - \mu)/2k_B T] = 1$, $n_0 = 0$ получаем зависимость $I(\epsilon)$:

$$I = \frac{\hbar^2 \omega_0 b \ln(\epsilon_0/\epsilon) \sqrt{[16b^2 + \epsilon^2 - (\hbar\omega_0)^2] [(\hbar\omega_0)^2 - \epsilon^2]}}{8\tau d_2^2 \epsilon (16b^2 + \epsilon^2)}. \tag{29}$$

Будем считать, что начальная (при $n = 0$) отстройка ΔE энергии $\sqrt{16b^2 + \epsilon_0^2}$ особой

точки Ван Хова первого рода от энергии $\hbar\omega_0$ падающего фотона мала:

$$0 < \Delta E \equiv \sqrt{16b^2 + \varepsilon_0^2} - \hbar\omega_0 \ll \hbar\omega_0. \quad (30)$$

В этом случае соотношение (29) приближенно записывается в следующей форме:

$$I = \frac{b^2 \ln(\varepsilon_0/\varepsilon) \sqrt{\varepsilon - \varepsilon_2}}{\sqrt{2\varepsilon_0} \tau \omega_0 d_2^2}, \quad (31)$$

где

$$\varepsilon_2 = \sqrt{(\hbar\omega_0)^2 - 16b^2}. \quad (32)$$

Анализ кинетического уравнения (17) показывает, что решение (31) устойчиво, если $\partial I / \partial \varepsilon < 0$.

Схематический график физически реализуемой зависимости $I(\varepsilon)$ показан на рис. 2. При увеличении интенсивности точка на графике движется по кривой $0 \rightarrow 1 \rightarrow 3$, при уменьшении — по кривой $3 \rightarrow 2 \rightarrow 0$. Скачкообразное изменение ε на участках $1 \rightarrow 3$ и $2 \rightarrow 0$ соответствует прямому и обратному фотоиндуцированным фазовым переходам. Участок $I < I_1$ является областью бистабильности.

Кривая $0 \rightarrow 1$ описывается уравнением (31). В точке

$$\varepsilon_1 = (\varepsilon_0 + 2\varepsilon_2)/3 \quad (33)$$

устойчивость решения (31) теряется (так как $\partial I / \partial \varepsilon = 0$) и происходит переход в состояние $\varepsilon \approx \varepsilon_2$, где частота ω_0 больше частоты, соответствующей особой точке Ван Хова первого рода, на малую величину, сравнимую с шириной спектральной линии светового поля (предполагается, что для монохроматического поля ширина спектральной линии имеет очень малое по сравнению с другими характерными параметрами задачи, но конечное значение).

Это состояние устойчиво при любых $I > 0$, поскольку в особой точке Ван Хова первого рода $\nu(E) = \infty$. Действительно, при флуктуационном увеличении ε частота, соответствующая особой точке Ван Хова первого рода, также возрастает, приближаясь к частоте ω_0 светового поля. В результате концентрация электрон-дырочных пар растет, что приводит к снижению ε . Таким образом, в данных условиях реализуется отрицательная обратная связь, которая и обеспечивает устойчивость системы.

Подставляя выражение (33) в (31), с учетом (32) и соотношения (30) находим интенсивность I_1 светового поля, при которой имеет место фазовый переход (см. рис. 2):

$$I_1 = I(\varepsilon_1) = \sqrt{\frac{2}{27}} \frac{b^2 \hbar^{3/2} \omega_0^{1/2} (\Delta E)^{3/2}}{\tau d_2^2 \varepsilon_0^{5/2}}. \quad (34)$$

Таким образом, интенсивность $I_1 \propto (\Delta E)^{3/2}$, и поэтому в эксперименте может быть сделана достаточно малой с целью избежать перегрева исследуемого образца.

7. ФОТОИНДУЦИРОВАННЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В СВЕТОВОМ ПОЛЕ С КОНЕЧНОЙ ШИРИНОЙ ОПТИЧЕСКОГО СПЕКТРА

Возможность наблюдения фотоиндуцированного фазового перехода при малой интенсивности облучения позволяет использовать в эксперименте нелазерные источники,

для которых характерна немонохроматичность светового поля. Это приводит к необходимости учета конечности ширины оптического спектра падающего излучения. Кроме того, исследование влияния немонохроматичности света на характер протекания фазового перехода представляет самостоятельный интерес.

Для решения уравнения (20) необходимо знать функцию $g(\omega)$, характеризующую спектральную плотность светового поля. Будем предполагать, что она имеет лоренцевскую форму [32]:

$$g(\omega) = \frac{\tau_0}{\pi [1 + (\omega\tau_0)^2]}, \quad (35)$$

где τ_0 — обратная полуширина спектра.

Перейдем в (20) от суммы к интегралу по dE с учетом (24), (27), (28), (35) и приближенных соотношений $\text{th}[(\hbar\omega_0/2 - \mu)/2k_B T] = 1$, $n_0 = 0$. При этом, как и в предыдущем разделе, ограничимся случаем (30), когда несущая частота светового поля ω_0 близка к начальной частоте, соответствующей особой точке Ван Хова первого рода. Выполняя необходимые преобразования, получаем приближенную зависимость $I(\varepsilon)$:

$$I = \frac{\hbar^{5/2} b^{3/2} |x_0| z}{\pi \tau_0^{3/2} \tau a_2^2 \varepsilon_0^2}, \quad (36)$$

где

$$z(x) = \left(1 - \frac{x}{x_0}\right) \sqrt{(1+x^2)(x + \sqrt{1+x^2})}, \quad (37)$$

$$x = x(\varepsilon) = \tau_0 \left(\omega_0 - \frac{\sqrt{16b^2 + \varepsilon^2}}{\hbar} \right), \quad (38)$$

$x_0 = x(\varepsilon_0) < 0$ — начальная безразмерная отстройка частоты светового поля ω_0 от частоты, соответствующей особой точке Ван Хова первого рода.

Уравнения (36)–(38) описывают связь между интенсивностью I светового поля и шириной запрещенной зоны ε системы Пайерлса в стационарном состоянии равновесия. Для того чтобы это состояние было устойчивым, необходимо, как показывает анализ кинетического уравнения (17), выполнение условия $\partial I / \partial \varepsilon < 0$, или, в более удобной для анализа форме,

$$\frac{\partial z}{\partial x} < 0. \quad (39)$$

Исследуем зависимость $z(x)$ (37) в области $|x| \leq 1$. Для этого выполним разложение выражения (37) в ряд Тейлора, ограничившись кубичными членами по x :

$$z(x) = 1 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3, \quad (40)$$

где

$$a_1 = \frac{x_0 - 2}{2x_0}, \quad a_2 = \frac{5x_0 - 4}{8x_0}, \quad a_3 = \frac{3x_0 - 10}{16x_0}. \quad (41)$$

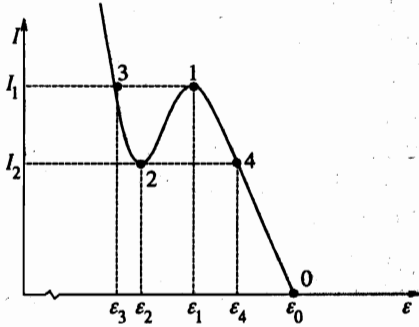


Рис. 3. Обратная зависимость ширины запрещенной зоны ϵ от интенсивности I светового поля с конечной шириной оптического спектра

Точки x_1, x_2 , соответствующие потере устойчивости системы, определяются из уравнения $\partial z / \partial x = 0$. Отсюда с учетом (40) получаем

$$x_{1,2} = \frac{-a_2 \mp \sqrt{a_2^2 - 3a_1a_3}}{3a_3} \quad (42)$$

Как видно из (42), критическое поведение системы наблюдается, если $a_2^2 - 3a_1a_3 > 0$. Отсюда, используя (41), с учетом неравенства $x_0 < 0$ находим необходимое условие фазового перехода, накладывающее ограничение на начальную отстройку несущей частоты светового поля от частоты, соответствующей особой точке Ван Хова первого рода: $x_0 < -9.55$, или, в исходных обозначениях,

$$\sqrt{16b^2 + \epsilon_0^2} - \hbar\omega_0 > 9.55\hbar/\tau_0 \quad (43)$$

При выполнении критерия (43), как показывает анализ выражений (36)–(38), схематический график зависимости $I(\epsilon)$ имеет вид, изображенный на рис. 3. При увеличении интенсивности точка на графике движется по кривой $0 \rightarrow 4 \rightarrow 1 \rightarrow 3$, при уменьшении — по кривой $3 \rightarrow 2 \rightarrow 4 \rightarrow 0$. Скачкообразное изменение ϵ на участках $1 \rightarrow 3$ и $2 \rightarrow 4$ соответствует прямому и обратному фотоиндуцированным фазовым переходам. Участок $I_2 < I < I_1$ является областью бистабильности.

Анализируя уравнение (40), находим точки x_3 и x_4 , отвечающие новым положениям равновесия соответственно для прямого и обратного фотоиндуцированных фазовых переходов:

$$x_{3,4} = \frac{-a_2 \pm 2\sqrt{a_2^2 - 3a_1a_3}}{3a_3} \quad (44)$$

а также безразмерную величину Δx скачка ширины запрещенной зоны при фотоиндуцированном фазовом переходе:

$$\Delta x = \frac{\sqrt{a_2^2 - 3a_1a_3}}{a_3} \quad (45)$$

При этом оказывается, что скачок Δx при прямом и обратном фотоиндуцированных фазовых переходах одинаков. Скачок ширины запрещенной зоны $\Delta\epsilon$, соответствующий скачку Δx (45), с учетом (38) и неравенства $\Delta\epsilon \ll \epsilon$ приближенно определяется

следующей формулой:

$$\Delta\varepsilon = -\frac{\hbar\Delta x\sqrt{16b^2 + \varepsilon^2}}{\varepsilon\tau_0} \quad (46)$$

Используя (40), так же получаем выражение для ширины петли гистерезиса при фотоиндуцированном фазовом переходе (размер области безрезонаторной оптической бистабильности по безразмерной интенсивности светового поля):

$$\Delta z = z(x_1) - z(x_2) = \frac{8(a_2^2 - 3a_1a_3)^{3/2}}{27a_3^2} \quad (47)$$

В точке бифуркации, где (43) переходит в равенство, $x_0 = -9.55$. В этом случае в соответствии с (41), (42), (44), (47) $x_1 = x_2 = x_3 = x_4 = x_b \cong -0.89$, $\Delta x = \Delta z = 0$. Таким образом, в рамках рассматриваемого приближения $|x| \leq 1$ удается описать поведение системы Пайерлса вблизи порогового значения $x_0 = -9.55$, ниже которого наблюдаются критические особенности.

Для наблюдения фотоиндуцированного фазового перехода и безрезонаторной оптической бистабильности, как показывает проведенный анализ, необходимо, чтобы интенсивность светового поля могла достигать значений $I > I_b$, где I_b — интенсивность светового поля в точке бифуркации ($x_0 = -9.55$, $x = -0.89$). Проведем численную оценку I_b . Положив в (36) характерные значения $d_2 \approx 10^{-18}$ СГС [27, 32], $\tau \approx 10^{-10}$ с [30], $1/\tau_0 \approx 10^2$ с $^{-1}$ [34], $\varepsilon_0 \approx 2b \approx 0.5$ эВ [6, 8], получаем $I_b \sim 10^{-12}$ СГС, что соответствует интенсивности $I_b c/2\pi \sim 10^{-3}$ СГС $\sim 10^{-10}$ Вт/см 2 . При облучении световым полем такой (или даже большей) интенсивности тонкопленочных или тонких нитевидных образцов с хорошим теплоотводом возможно избежать чрезмерного нагрева системы.

8. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, предлагаемая теория показывает, что при возбуждении квазимонохроматическим световым полем с несущей частотой несколько меньшей частоты, соответствующей верхней особой точке Ван Хофа первого рода, в системе Пайерлса возможны фотоиндуцированный фазовый переход и безрезонаторная оптическая бистабильность при нарастающем поглощении. Данные явления наблюдаются при выполнении условия (43), накладывающего ограничение на частоту ω_0 и полуширину $1/\tau_0$ оптического спектра светового поля сверху. Наличие критерия (43) обусловлено конкуренцией двух механизмов обратной связи. Положительной обратной связи соответствует первое слагаемое в правой части уравнения (17), а сама она подробно описана во Введении. Отрицательная обратная связь состоит в том, что при увеличении концентрации n неравновесных электронов в зоне проводимости усиливается темп рекомбинации, что ведет к снижению концентрации. Этому процессу соответствует второе слагаемое в правой части (17). В случае, если отрицательная обратная связь доминирует над положительной, равновесное состояние системы является устойчивым, и при медленном изменении внешних параметров внутренние меняются плавно. В противном случае, когда доминирует положительная обратная связь, в соответствии с (17) начинается быстрый рост флуктуаций, что ведет к скачкообразному изменению внутренних параметров системы.

Уширение оптического спектра падающего излучения (увеличение полуширины $1/\tau_0$) ухудшает возможность наблюдения критических особенностей системы: критерий (43) для частоты ω_0 становится более жестким, а размеры петли гистерезиса, Δx (45) и Δz (47), как следует из (41), уменьшаются.

Все полученные в работе окончательные соотношения (22)–(47) справедливы в случае малых начальных отстроек частоты ω_0 от частоты, соответствующей особой точке Ван Хова первого рода:

$$\sqrt{16b^2 + \varepsilon_0^2} - \hbar\omega_0 < \sqrt{\varepsilon_0 k_B T} / 2. \quad (48)$$

Область больших отстроек, когда (48) не выполняется, в рамках развитой в настоящей работе теории рассмотрена быть не может, поскольку нарушается приближение слабого оптического возбуждения (26). Данное условие при температурах $T \approx 100$ К ($k_B T \approx \approx 8.6 \cdot 10^{-3}$ эВ) и ширине запрещенной зоны $\varepsilon_0 \approx 0.5$ эВ накладывает следующее ограничение на область изменения ε :

$$0 < \varepsilon_0 - \varepsilon < 0.033 \text{ эВ.}$$

В заключение хотелось бы отметить, что безрезонаторная оптическая бистабильность при нарастающем поглощении, аналогичная рассмотренной в настоящей работе (но вызванная другими механизмами), экспериментально наблюдалась в селениде цинка [35], аморфном полупроводнике GeS_2 [36], аморфных пленках GeSe_2 [25], пластинках CdS и других веществах [25, 26]. Однако на материалах, электронные свойства которых описываются в рамках модели Пайерлса, насколько известно автору, подобные эксперименты пока не проводились.

Литература

1. Л. Н. Булаевский, УФН 115, 263 (1975).
2. В. Е. Минакова, Ю. И. Латышев, В. А. Волков, Письма в ЖЭТФ 62, 442 (1995).
3. Л. П. Горьков, УФН 144, 381 (1984).
4. А. А. Фотиев, В. Л. Волков, В. К. Капусткин, *Оксидные ванадиевые бронзы*, Наука, Москва, (1978), с. 151.
5. G. Gruner, Rev. Mod. Phys. 60, 1129 (1988).
6. А. Д. Бугаев, Б. П. Захарченя, Ф. А. Чудновский, *Фазовый переход металл-полупроводник и его применение*, Наука, Ленинград (1979), с. 28.
7. Р. О. Зайцев, Е. В. Кузьмин, С. Г. Овчинников, УФН 148, 603 (1986).
8. В. И. Емельянов, Н. Л. Левшин, А. Л. Семенов, Вестн. Моск. Ун-та. Сер. 3, физика, астрономия 30, 52 (1989).
9. В. И. Емельянов, Н. Л. Левшин, А. Л. Семенов, ФТТ 31, 261 (1989).
10. А. Л. Семенов, ФТТ 36, 1974 (1994).
11. А. Л. Семенов, ФТТ 39, 925 (1997).
12. В. И. Емельянов, А. Л. Семенов, ФТТ 32, 3083 (1990).
13. В. И. Емельянов, Н. Л. Левшин, С. Ю. Поройков, А. Л. Семенов, Вестн. Моск. Ун-та. Сер. 3, физика, астрономия 32, 63 (1991).
14. K. F. Berggren and V. A. Huberman, Phys. Rev. B 18, 3369 (1978).
15. А. А. Бугаев, Б. П. Захарченя, Ф. А. Чудновский, Письма в ЖЭТФ 33, 643 (1981).

16. А. А. Бугаев, В. В. Гудялис, Б. П. Захарченя и др., Письма в ЖЭТФ 34, 452 (1981).
17. В. Ф. Елесин, В. В. Капаев, Ю. В. Копаев, ЖЭТФ 71, 714 (1976).
18. В. В. Капаев, Ю. В. Копаев, С. Н. Молотков, Микроэлектроника 12, 499 (1983).
19. В. И. Емельянов, И. Ф. Уварова, ЖЭТФ 94, 255 (1988).
20. И. М. Сулов, Письма в ЖЭТФ 39, 547 (1984).
21. Ю. В. Копаев, В. В. Меняйленко, С. Н. Молотков, ЖЭТФ 89, 1404 (1985).
22. В. Б. Стопачинский, И. М. Сулов, ЖЭТФ 91, 314 (1986).
23. V. I. Emel'yanov and D. V. Babak, Laser Phys. 7, 514 (1997).
24. В. Л. Бонч-Бруевич, С. Г. Калашников, Физика полупроводников, Наука, Москва (1977), с. 255.
25. Х. Гиббс, Оптическая бистабильность. Управление светом с помощью света, Мир, Москва (1988), с. 108.
26. П. И. Хаджи, Г. Д. Шибаршина, А. Х. Ротару, Оптическая бистабильность в системе когерентных экситонов и биэкситонов в полупроводниках, Штиинца, Кишинев (1988), с. 20.
27. А. В. Андреев, В. И. Емельянов, Ю. А. Ильинский, Кооперативные явления в оптике: Сверхизлучение. Бистабильность. Фазовые переходы, Наука, Москва (1988), с. 256.
28. О. Маделунг, Физика твердого тела: локализованные состояния, Наука, Москва (1985), с. 44.
29. Н. Н. Боголюбов, Н. Н. Боголюбов (мл.), Введение в квантовую статистическую механику, Наука, Москва (1984), с. 282.
30. Н. Р. Белашенков, В. Б. Карасев, А. А. Солунин и др., ФТТ 36, 2475 (1994).
31. С. А. Ахманов, Ю. Е. Дьяков, А. С. Чиркин, Введение в статистическую радиофизику и оптику, Наука, Москва (1981), с. 42.
32. Д. Н. Клышко, Физические основы квантовой электроники, Наука, Москва (1986), с. 22.
33. А. С. Давыдов, Теория твердого тела, Наука, Москва (1976), с. 296.
34. А. Н. Матвеев, Оптика, Высшая школа, Москва (1985), с. 317.
35. В. А. Стадник, ФТТ 29, 3594 (1987).
36. В. М. Любин, В. К. Тихомиров, Письма в ЖЭТФ 55, 25 (1992).