

КОЛЛЕКТИВНЫЙ МАГНИТОЭКСИТОННЫЙ ПЕРЕХОД ПОД ДЕЙСТВИЕМ СВЕТА В ПОЛОСЕ ПРОЗРАЧНОСТИ КРИСТАЛЛА

Э.Л.Начаев, Э.Б.Соколова

При освещении светом с частотой в полосе пропускания происходит потеря устойчивости основного состояния полупроводников, содержащих ионы с частично заполненными d - или f -оболочками относительно рождения на этих ионах экситонов Френкеля.

Энергетический спектр ряда полупроводников, содержащих в своем составе ионы переходных или редкоземельных элементов, включает в себя низкочастотные экситоны Френкеля на этих ионах. Они обусловлены влиянием кристаллического поля на состояния частично заполненных d - или f -оболочек. Рождение таких экситонов может сопровождаться изменением намагниченности кристалла. Например, в некоторых материалах ионы с четным числом d - или f -электронов в основном состоянии диамагнитны, но нужна небольшая энергия для перевода их в состояние с отличным от нуля моментом (обычно это соответствует рождению триплетного экситона). Иная ситуация в так называемых синглетных магнетиках: там момент ионов J в основном состоянии отличен от нуля, но равны нулю его средние проекции. Отличной от нуля намагниченность иона становится, когда к основному состоянию примешивается возбужденное.

Основной результат настоящей работы состоит в том, что низкочастотные экситоны Френкеля могут быть коллективно возбуждены светом, частота которого лежит в полосе пропускания кристалла. Такой беспоглощательный экситонный переход происходит из-за того, что свет смешивает состояния электронов в зоне проводимости и в валентной зоне и, тем самым, усиливает взаимодействие экситонов с электронами валентной зоны. В результате этого основное состояние ионов при достаточно большой интенсивности света может стать неустойчивым относительно рождения экситонов, и у кристалла появится самопроизвольная намагниченность.

Фотоусиление электрон-экситонного взаимодействия происходит в тех случаях, когда валентная зона построена из состояний анионов с полностью заполненными электронными оболочками, а зона проводимости — из внешних орбит катионов с частично заполненными d - или f -оболочками. Так как это взаимодействие — в основном, обменное, то оно короткодействующее, и потому виртуальные переходы электронов с анионов на катионы под действием света усиливают его.

Проводимый ниже расчет соответствует стандартной модели синглетного магнетика: синглетен не только основной терм катиона $|0\rangle$, но и первый возбужденный $|1\rangle$, так что $\langle 0|J|0\rangle = \langle 1|J|1\rangle = 0$.

Однако отлична от нуля недиагональная компонента $\langle 0|J^z|1\rangle = C$, и потому магнитный момент у катиона появляется в результате смешения основного и экситонного состояний. Оно может происходить и в отсутствие света из-за обмена катиона с соседями, если интенсивность последнего K превышает некоторое критическое значение, и тогда свет лишь усиливает его.

Гамильтониан рассматриваемой системы имеет вид

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{ep} + \mathcal{H}_{ex} + \mathcal{H}_i. \quad (1)$$

Здесь \mathcal{H}_{ep} — гамильтониан электронов проводимости и валентной зоны, взаимодействующих с фотонами:

$$\mathcal{H}_{ep} = \sum \epsilon_{ki} a_{ki\sigma}^* a_{ki\sigma} + \sum \nu_q c_{qj}^* c_{qj} + \sum \{ g_{kc, k-q\nu, qj} (c_{qj} + c_{-qj}^*) \times \\ \times a_{ki\sigma}^* a_{k-q\nu\sigma} + \text{сопр.} \},$$

$$\epsilon_{kc} = \frac{k^2}{2m^*}, \quad \epsilon_{kv} = -E_g - \frac{k^2}{2m^*}, \quad (\hbar = 1)$$

$$g_{kc, k-q\nu, qj} = \sqrt{\frac{2\pi}{V\nu_q}} \frac{e}{m} \langle kc | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} (l_{qj} \hat{\mathbf{p}}) | k - q\nu \rangle,$$

где $a_{ki\sigma}^*$, $a_{ki\sigma}$ и c_{qj}^* , c_{qj} — соответственно электронные и фотонные операторы, $i = v$ или c — индексы валентной зоны или зоны проводимости, l_{qj} — вектор поляризации фотона. Предполагается, что экстремумы обеих зон расположены при $k = 0$, и что эффективные массы m^* в обеих зонах равны друг другу (m — истинная масса).

Гамильтонианы экситонов \mathcal{H}_{ex} и электрон-экситонного взаимодействия \mathcal{H}_{i-} даются выражениями

$$\mathcal{H}_{ex} = \omega \sum b_f^* b_f - \frac{K}{2} \sum \langle 0 | \mathbf{J}_f | 1 \rangle \langle 1 | \mathbf{I}_f + \Delta | 0 \rangle (b_f^* + b_f) / (b_f^* + \vec{\Delta} + b_f + \vec{\Delta}),$$

$$\mathcal{H}_i = - \frac{A}{N} \sum \langle 0 | \mathbf{J}_f | 1 \rangle (s)_{\sigma\sigma'} (b_f^* + b_f) e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_f} a_{k\sigma}^* a_{k+q\sigma},$$

где R_f — координата катиона f , N — число катионов $(s)_{\sigma\sigma'}$ — матрицы Паули, J_f — момент иона f .

В рассматриваемом случае возбуждение экситонов должно сопровождаться изменением намагниченности кристалла M . При $T = 0$ в приближении самосогласованного поля из (1) получается следующая система уравнений для ее определения, справедливая при $AC \ll W = 6/m * a^2$:

$$M^2 \left(\frac{\omega^2}{4} + h^2 \right) = h^2 C^2, \quad M = C \langle b_f^* + b_f \rangle,$$

$$h = \frac{AC}{2} (\theta_{\uparrow} - \theta_{\downarrow}) + KCM, \quad (2)$$

$$\theta_{\sigma} \approx 8n g^2 / 15W^{3/2} (E_g - \nu_q + AM_{\sigma})^{1/2}, \quad g \equiv g_0, -q, q_j,$$

где $\langle \rangle$ — символ усреднения по основному состоянию кристалла, при плотности фотонов с линейной поляризацией j и импульсом q , равной n , a — постоянная решетки. Влияние света на намагниченность обусловлено тем, что из-за зеемановского расщепления зоны проводимости в молекулярном поле кристалла среднее число виртуальных электронов в зоне проводимости θ_{σ} зависит от спина.

Из (2) вытекает условие существования намагниченности

$$KC^2 + 2A^2C^2n g^2 / 15W^{3/2} (E_g - \nu_q)^{3/2} \geq \frac{\omega}{2}, \quad (3)$$

При $AC = 0,5$ эВ, $W = 3$ эВ, $g n^{1/2} = 0,01$ эВ (с учетом того, что $g \sim (mE_g)^{1/2}$, это соответствует напряженности поля в луче лазера $\sim 10^6$ В/см), $E_g - \nu_q = 0,01$ эВ, намагниченность у кристалла с $K = 0$ появится, если частота экситона ω меньше 6К, что как раз соответствует характерным экситонным частотам в синглетных магнетиках. После появления намагниченности при $n = n_0$ она далее растет с интенсивностью света как $(n - n_0)^{1/2}$, т. е. как при фазовом переходе второго рода.

Если же $2KC^2 > \omega$, и кристалл согласно (3) обладал намагниченностью до освещения, при $\theta_{\uparrow} \gg \theta_{\downarrow}$ она увеличивается под действием света на

$$\delta M = \frac{A\theta_{\uparrow}}{2K} \left(\frac{C^2}{M^2} - 1 \right). \quad (4)$$

При использованных выше значениях параметров (с той только разницей, что $E_g - \frac{AM}{2} - \nu_q = 0,01$ эВ) и $KC^2 = 10К$ $\delta M/M$ должно составлять 15%, если $M = C/2$, и 50%, если $M = C/3$, т. е. эффект весьма значителен.

Освещение вызывает изменение ширины запрещенной зоны. Если бы намагниченность не изменялась, то щель всегда бы увеличивалась, так как поле волны, связывая друг с другом состояния валентной зоны

и зоны проводимости, приводит к отталкиванию соответствующих термов. Однако с ростом M нижняя зеемановская подзона зоны проводимости стремится опуститься вниз, так что суммарное изменение щели равно

$$\delta E_g = 2g^2n \left(E_g - \frac{AM}{2} - \nu_q \right)^{-1} - \frac{A}{2} \delta M .$$

Знак и величина δE_g существенно зависят от намагниченности. При указанных выше значениях параметров согласно (2, 4, 5) $\delta E_g = 0,01$ эВ при $M = C/2$ и $-0,05$ эВ при $M = C/3$. Если частота света при малых интенсивностях лежит в полосе пропускания достаточно близко к краю поглощения, то с ростом интенсивности она может попасть в полосу поглощения, что может вызвать появление фотопроводимости.

Переход диамагнетиков в намагниченное состояние происходит подобно фазовому переходу первого рода. К сожалению, пока известны лишь материалы с $\omega > 0,01$ эВ, в то время как для перехода надо $\omega < 0,001$ эВ.

Поступила в редакцию
16 мая 1978 г.