

ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ СПЕКТР ВОЗБУЖДЕНИЙ В КВАЗИОДНОМЕРНЫХ ПРОВОДНИКАХ С ВОЛНОЙ ЗАРЯДОВОЙ ПЛОТНОСТИ

Ф.Я.Надь, М.Е.Иткис

*Институт радиотехники и электроники РАН
103907 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 10 января 1996 г.

В энергетическом спектре квазиодномерного проводника ромбического TaS_3 при температурах, существенно меньших температуры пайерлсовского перехода T_P , наблюдается хорошо сформированная энергетическая щель Δ . С повышением температуры в области $T > T_P/2$ происходит рост плотности состояний внутри щели и относительное уменьшение плотности при энергиях, больших Δ . При этом внутри щели наблюдаются линии поглощения, предположительно соответствующие солитонным состояниям в волне зарядовой плотности.

PACS 71.45.Lr

В квазиодномерных проводниках вследствие пайерлсовской неустойчивости при температурах, ниже некоторого критического значения T_P , возникает периодическая сверхструктура с соответствующей модуляцией плотности заряда, то есть образуется волна зарядовой плотности (ВЗП) [1,2]. При этом в спектре электронных возбуждений должна возникать энергетическая щель Δ . Вследствие значительной анизотропии свойств квазиодномерных проводников (взаимодействие вдоль одномерных цепочек значительно больше взаимодействия между ними) возникающая сверхструктура является достаточно "мягкой" и подвержена влиянию флуктуаций и различного рода неупорядоченности в значительно большей степени, чем трехмерная решетка обычных изотропных твердых тел. Теоретически было показано, что в одномерной модели флуктуации приводят к размытию реальной щели и образованию псевдощели [3-5]. Однако учет конечности поперечного взаимодействия между цепочками указывает на возможность существования реальной щели [6], но меньшей, чем рассчитанная по теории среднего поля [1].

Исследования спектрального распределения оптического поглощения являются, как известно, одним из прямых методов изучения зависимости плотности состояний от энергии. Экспериментальные исследования поглощения в квазиодномерных нитевидных кристаллах с поперечными размерами ≈ 10 мкм достаточно сложны и проводились только при низких температурах [7]. Они показали, что в типичном квазиодномерном проводнике - ромбическом TaS_3 при низких температурах $T \ll T_P$ наблюдается обусловленный электронно-дырочными возбуждениями через щель край фундаментального поглощения в области энергий, близких к величине энергетической щели, определяемой по температурной зависимости проводимости [8,9]. Абсолютная величина оптического поглощения α была такова, что в тонких образцах ($d < 1$ мкм) величина $\alpha d < 1$ в спектральной области $\nu < 2500$ см⁻¹, а коэффициент отражения менялся незначительно. В этих условиях поглощение происходит во всем объеме образца и величина его фотоотклика пропорциональна α [7]. Фотоотклик

имел характер болометрического отклика, а величина фотопроводимости при низкочастотной модуляции ($\sim 10^2$ Гц) была пренебрежимо мала [10,11].

В данном сообщении приводятся результаты исследования болометрического отклика в широкой области температур 19–300 К в образцах ромбического TaS_3 с различным содержанием дефектов. Измерения спектрального распределения болометрического отклика в области частот $4200\text{--}420\text{ см}^{-1}$ проводились на автоматизированном спектрометре ИКС-29 [12] с одновременной записью отклика образца и сигнала референсного приемника (висмутовый болометр). Исследуемые образцы TaS_3 имели характерные размеры $1 \times 5 \times 10^3$ мкм. Линейная концентрация примесей в наиболее чистых образцах была $10^{-5} - 10^{-4}$, температура пайерлсовского перехода была максимальной – $T_P = 220$ К, а пороговое поле для начала движения ВЗП было минимальным – $E_T = 0.5$ В/см ($T = 100$ К). В образцах с большим содержанием дефектов T_P оказалась значительно пониженной – до 205 К, пайерлсовский переход сильно размытым, а величина E_T в них достигала 30 В/см ($T = 100$ К).

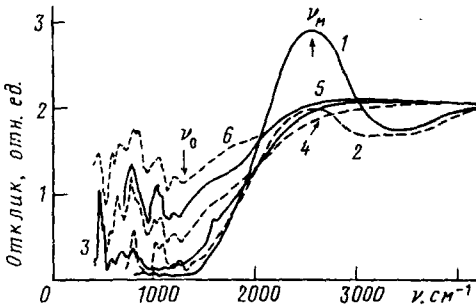


Рис.1. Спектральное распределение отклика образца №1 ромбического TaS_3 при температурах: кривая 1 – 19 К, 2 – 60 К, 3 – 82 К, 4 – 127 К, 5 – 167 К, 6 – 215 К. ν_0 – частота, соответствующая окончанию спада отклика, ν_m – частота, соответствующая максимуму отклика

На рис.1 сравниваются спектральные зависимости болометрического отклика образца TaS_3 толщиной $d = 1.4$ мкм и $E_T = 0.5$ В/см, полученные при разных температурах – от 19 до 215 К. Измерения проводились при излучении, поляризованном перпендикулярно оси главной проводимости c . Все кривые нормированы в точке $\nu = 4200\text{ см}^{-1}$ в области энергий, значительно больших энергетической щели Δ . Из сравнения хорошо видно, что влияние температуры существенно изменяет спектральное распределение отклика. Кривые были получены в течение одного цикла изменения температуры.

Как известно [1,2], в результате многократного термостатирования образца от комнатной до гелиевой температур, особенно при больших скоростях изменения температуры, в нем возникают дополнительные дефекты. При этом заметно растет величина порогового поля E_T . На рис.2а сравниваются две спектральные зависимости при одинаковой температуре: одна, полученная при первом цикле охлаждения, другая – после многократного температурного циклирования. На рис.2б приведено сравнение спектральных зависимостей для двух различных образцов при одинаковых температурах. Для чистого образца спектральная зависимость имеет обычный вид, тогда как для грязного образца поглощение в области фундаментального края значительно больше и форма спектра внутри энергетической щели значительно меняется.

Как видно из рис.1, спектральное распределение отклика при низких температурах характеризуется наличием четкого максимума при $\nu_m = 2550\text{ см}^{-1}$, быстрого спада поглощения до $\nu_0 \approx 1250\text{ см}^{-1}$ и очень малым, но конечным по-

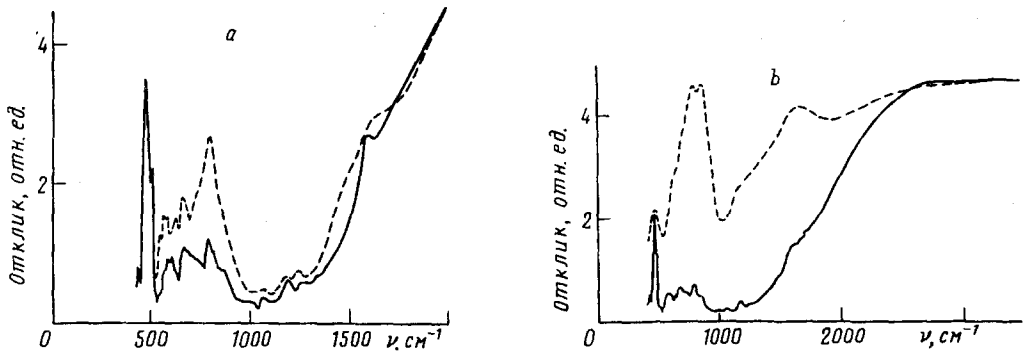


Рис.2. Сравнение спектральных зависимостей отклика образцов ромбического TaS₃ при $T = 82$ К. *a* - Образец №1 ($T_P = 220$ К, $E_T = 0.5$ В/см при $T = 100$ К), сплошная линия - после первого цикла охлаждения, штриховая линия - после многократного термоциклирования. *b* - Сплошная линия - образец №1; штриховая линия - образец №2 ($T_P = 205$ К, $E_T = 30$ В/см при $T = 100$ К)

поглощением в области $\nu < \nu_0$. Как уже отмечалось, такая форма спектрального распределения характерна для области энергий вблизи края фундаментального поглощения квазиодномерных проводников [7,10,11] и отражает зависимость от энергии плотности состояний в них $D(\nu)$. Существенным отличием такой зависимости от соответствующей зависимости для твердых тел с жесткой решеткой, например обычных полупроводников, является значительное размытие края $\delta\nu$ на величину порядка самой энергетической щели Δ ($\delta\nu = \nu_m - \nu_0 = \nu_0 \cong \Delta$). Как видно из рис.1 и 2, энергия окончания спада поглощения ν_0 во всей исследованной области температур, а также величина размытия края поглощения $\delta\nu$ в области температур ниже $\cong 80$ К мало меняются как с температурой, так и с концентрацией примесей. Нам кажется, что наиболее вероятной причиной размытия края при низких температурах являются эффекты, обусловленные нулевыми квантовыми флуктуациями фазы ВЗП. Теоретическое рассмотрение влияния этих флуктуаций при $T = 0$ и при учете поперечного взаимодействия между цепочками было проведено в работе [6], где была получена зависимость плотности состояний от энергии. На рис.3 представлено полученное экспериментально спектральное распределение отклика и расчетная зависимость $D(\nu)$ для $(m/m^*)^{1/2} = 0.05$ (то есть $m^* = 400m$), что близко к соотношению эффективных масс свободного электрона и ВЗП в TaS₃ [1]. Как видно из рис.3, эти зависимости качественно подобны, хотя и имеются некоторые количественные различия: большее поглощение вблизи ν_0 и более резкий максимум на экспериментальной зависимости поглощения по сравнению с расчетом. При этом, как и в теории, ν_0 сдвинута относительно центра щели Δ , а плотность состояний внутри щели ($\nu < \nu_0$) мала, то есть при низких температурах пайерлсовская щель в TaS₃ достаточно хорошо сформирована. Однако край фундаментального поглощения и при низких температурах все же размыт на величину $\cong \Delta$.

Как видно из рис.1, с ростом температуры происходит относительное понижение максимума поглощения вблизи ν_m с переходом к плавному насыщению кривой болометрического отклика с ростом ν . Одновременно с этим при температурах, больших $\cong 80$ К, начинается рост величины поглощения и в области $\nu < \nu_0$. Этот рост, в принципе, может быть связан с поглощением на сво-

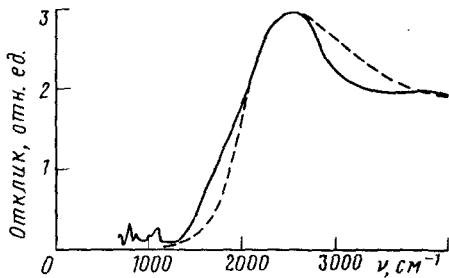


Рис.3. Сравнение спектральной зависимости отклика образца ромбического TaS_3 №1 при $T = 30$ К (сплошная линия) с теоретической зависимостью плотности состояний от энергии $D(\nu)$, согласно [6] (штриховая линия). Кривые нормированы по точке максимума

бодных носителях. Однако, как показывают расчеты [13], как по абсолютной величине (расчет дает на порядок меньшую величину поглощения), так и по виду температурной зависимости экспериментальные зависимости отличаются от расчетных. По-видимому, наиболее вероятной причиной такого видоизменения спектральной зависимости поглощения с ростом температуры являются тепловые флуктуации. Влияние тепловых флуктуаций на вид энергетического распределения плотности состояний $D(\nu)$ теоретически было изучено в работе [3], где были получены уменьшение величины особенности $D(\nu)$ вблизи ν_m , ее размытие и одновременный рост плотности состояний при $\nu < \nu_0$. Наши экспериментальные зависимости (рис.1) качественно согласуются с результатами [3] и показывают перераспределение плотности состояний из области энергий $\nu > \nu_0$ в область $\nu < \nu_0$. Эти результаты указывают на переход от достаточно хорошо сформировавшейся пайерловской щели при низких температурах к псевдощели при $T < T_P$. Из наших данных также следует, что и при $T \geq T_P$ имеется минимум в плотности состояний вблизи ν_0 [10], что согласуется с теоретическими расчетами работы [4].

Как видно из рис.1 и 2, помимо общего роста поглощения с температурой в области $\nu < \nu_0$ в спектральном распределении отклика появляются также четко выделенные линии поглощения. Форма этих линий и особенно их интенсивность меняются с температурой. Линейчатая структура хорошо выделяется над уровнем фонового поглощения в области 60–167 К. При низких температурах интенсивность их мала, а при высоких они размываются. Тем не менее, положение этих линий по энергиям в пределах погрешности эксперимента мало меняется с температурой. В нескольких различных образцах при различных температурах наиболее четко выделяются 6 линий при следующих энергиях: дублет вблизи 500 см^{-1} (470 см^{-1} и 496 см^{-1}) [13], 570 см^{-1} , 670 см^{-1} , 790 см^{-1} и 1050 см^{-1} . Как уже отмечалось [7,10], мы считаем, что этим линиям поглощения отвечают энергии ионизации (то есть распада) различных солитонных состояний, образующихся в ВЗП в квазиодномерных проводниках [5]. Дублет вблизи 500 см^{-1} связан с возбуждением электрона с энергетического уровня, соответствующего его положению на амплитудном солитоне. Так как этот уровень, согласно теории [5,14], смещен от центра зоны, то есть его расстояния от краев запрещенной зоны разные, то он дает дублет. Линии в области $570\text{--}790 \text{ см}^{-1}$ могут соответствовать энергиям ионизации фазовых солитонов с зарядом $\pm 2e$, включающих два электрона или две дырки [5,15]. Положение линии 790 см^{-1} хорошо согласуется с теоретической оценкой для такой энергии $2 \times 0.6\Delta \sim 750 \text{ см}^{-1}$ ($2\Delta = 1250 \text{ см}^{-1}$). Увеличение интенсивности линий поглощения с ростом температуры обусловлено, по-видимому, происходящим при этом увеличении концентрации термоактивированных солитонов.

Число солитонов должно возрастать также и при увеличении концентрации дефектов, вблизи которых происходит деформация ВЗП с изменением ее фазы и образованием локализованных энергетических состояний для электронов [10,16,17]. Такое предположение подтверждается характером видоизменения поглощения с ростом числа дефектов (рис.2). В частности, в образцах с очень большой концентрацией дефектов линии поглощения в области $570-790\text{ см}^{-1}$ сливаются в малоструктурированную полосу поглощения (рис.2b). Малое конечное поглощение, сохраняющееся при низких температурах ($T = 19\text{ К}$), по-видимому, также обусловлено поглощением на солитонах, образующихся из-за деформации ВЗП вблизи центров сильного пиннинга и сохраняющихся и при $T \rightarrow 0$ [9,16].

Данная работа поддержана грантом 95-02-05811 Российского фонда фундаментальных исследований и грантом 1010-СТ93-0051 ИНТАС.

-
1. *Electronic Properties of Inorganic Quasi-One-Dimensional Compounds*. Ed. P.Monceau, Reidel, Dordrecht, 1985.
 2. *Charge Density Waves in Solids, Modern Problems in Condensed Matter Science*, Ed. L.P.Gor'kov and G.Gruner, Elsevier, Amsterdam, 1989.
 3. P.A.Lee, T.M.Rice and P.W.Anderson, *Phys. Rev. Lett.*, **31**, 462 (1973).
 4. М.В.Садовский, *ФТТ* **16**, 2504 (1974).
 5. С.А.Бразовский, И.Е.Дзялошинский, *ЖЭТФ* **71**, 2338 (1976); С.А.Бразовский, *ЖЭТФ* **78**, 678 (1980).
 6. Y.Suzumura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **56**, 2494 (1987).
 7. М.Е.Иткис and Ф.Я.Над', *Synthetic Metals* **29**, F421 (1989).
 8. T.Takoshima, M.Ido, K.Tsutsumi et al., *Sol. State Commun.* **35**, 911 (1980).
 9. С.К.Жилинский, М.Е.Иткис, Ф.Я.Надь и др., *ЖЭТФ* **85**, 362 (1983).
 10. М.Е.Иткис, Ф.Я.Надь, *Письма в ЖЭТФ* **39**, 373 (1984).
 11. J.W.Brill and S.L.Herr, *Sol. State Commun.* **49**, 265 (1984).
 12. О.Ю.Полянский, А.Я.Шульман, *Автометрия* **в1**, 97 (1984).
 13. М.Е.Иткис, Диссертация, Москва. 1989.
 14. С.Н.Артеменко, *Письма в ЖЭТФ* **63**, 52 (1996).
 15. S.A.Brazovskii, *Preprint* (1995).
 16. М.Е.Иткис, Ф.Я.Над' and P.Monceau, *J. Phys. Condens. Matter* **2**, 8327 (1990).
 17. А.И.Ларкин, *ЖЭТФ* **105**, 1793 (1994).