# Безрезонаторная оптическая бистабильность в квазиодномерных полупроводниках пайерлсовского типа

А.Л.Семёнов, М.Ш.Шарапов

Показана принципиальная возможность реализации безрезонаторной оптической бистабильности в квазиодномерных пайерлсовских полупроводниках. Нелинейное взаимодействие системы со световым полем обусловлено красным сдвигом нижнего края оптического перехода полупроводника при увеличении концентрации неравновесных электрон-дырочных пар.

Ключевые слова: оптическая бистабильность, квазиодномерный пайерлсовский полупроводник.

#### 1. Введение

Большие перспективы использования оптической бистабильности для создания элементов оптической памяти и других устройств квантовой электроники обуславливают неослабевающий интерес к ее исследованию и поиску новых веществ с данным нелинейно-оптическим свойством [1-10]. Одним из наиболее хорошо изученных материалов, в котором наблюдается скачкообразное, гистерезисное поведение внутренних параметров системы при плавном изменении параметров падающего излучения, является сульфид кадмия [11-16]. В этом веществе благодаря сильному электрон-электронному взаимодействию при увеличении концентрации неравновесных фотовозбужденных электрон-дырочных пар происходит существенная перестройка электронного спектра и, как следствие, при определенных специально подобранных параметрах падающего излучения возникает безрезонаторная оптическая бистабильность при нарастающем поглощении [1, 11-16].

Красный сдвиг нижнего края полосы оптического поглощения при увеличении концентрации электрон-дырочных пар, имеющий место в сульфиде кадмия, наблюдается также в целом ряде квазиодномерных полупроводников пайерлсовского типа: комплексах платины со смешанной валентностью [17], солях с переносом заряда типа TTF-TCNQ, NMP-TSNQ, TTT(TCNQ)<sub>2</sub> [17], голубой бронзе K<sub>0.3</sub>MoO<sub>3</sub> [18, 19], двуокиси ванадия [20, 21], TaS<sub>3</sub> [19, 22, 23], TaSe<sub>3</sub>, (NbSe<sub>4</sub>)<sub>10/3</sub>I, (NbSe<sub>4</sub>)<sub>2</sub>I, NbS<sub>3</sub>, NbSe<sub>3</sub> и др. [19]. В частности, в двуокиси ванадия короткий лазерный импульс большой мощности способен инициировать фазовый переход полупроводник-металл (обращение в нуль ширины запрещенной зоны электронного спектра системы), происходящий по электронному механизму [21, 24, 25]. Отметим, что в квазиодномерных пайерлсовских полупроводниках, в отличие от сульфида кадмия, перестройка электронного спектра

Ульяновский государственный университет, Россия, 432700 Ульяновск, ул. Л.Толстого, 42; e-mail: semenov@quant.ulsu.ru

Поступила в редакцию 12 февраля 2001 г.

системы при изменении концентрации электрон-дырочных пар обусловлена сильным электрон-фононным взаимодействием [17, 19, 20, 26–32].

Таким образом, имеются хорошие предпосылки обнаружения безрезонаторной оптической бистабильности при нарастающем поглощении в квазиодномерных полупроводниках пайерлсовского типа. Теория данного явления в этих полупроводниках была развита в серии работ [33–35], где обсуждались механизм возникновения и условия наблюдения безрезонаторной оптической бистабильности и фотоиндуцированного фазового перехода в пайерлсовском полупроводнике.

В настоящей работе в рамках развитой в статьях [33– 35] теории исследуется зависимость ширины запрещенной зоны электронного спектра квазиодномерного пайерлсовского полупроводника и концентрации неравновесных фотовозбужденных электрон-дырочных пар от интенсивности и частоты падающего на образец излучения.

#### 2. Основные уравнения

Система Пайерлса, рассматриваемая в настоящей статье, представляет собой одномерную цепочку атомов с одним внешним электроном в каждом атоме. В высокотемпературной металлической фазе атомы в цепочке расположены эквидистантно, а электронная зона проводимости заполнена наполовину. При достаточно низких температурах одномерный металл становится неустойчивым, и при некоторой критической температуре происходит фазовый переход металл-полупроводник. При этом атомы в цепочке попарно сближаются [17, 28].

Уравнения, описывающие поведение пространственно-однородного квазиодномерного пайерлсовского полупроводника с одним внешним электроном на атом в световом поле, в дипольном приближении имеют вид [23, 33, 35]

$$\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = \frac{8\pi I}{cn_1\hbar^2} \sum_{|k| \le \pi/2} d_k^2 g\left(\frac{2\varepsilon_k}{\hbar} - \omega_0\right) \tanh\frac{\varepsilon_k - \mu}{2k_\mathrm{B}T} - \frac{n - n_0}{\tau}, \quad (1)$$

$$\frac{\mathrm{d}^{2}\xi}{\mathrm{d}t^{2}} + \frac{1}{\tau_{\mathrm{p}}}\frac{\mathrm{d}\xi}{\mathrm{d}t} = \frac{4}{NMR^{2}} \left(\sum_{|k| \leqslant \pi/2} \frac{\partial\varepsilon_{k}}{\partial\xi} \tanh\frac{\varepsilon_{k}-\mu}{2k_{\mathrm{B}}T} - A\xi\right), \quad (2)$$

где  $k = 0, \pm 2\pi/N, ..., \pm \pi/2$  – обезразмеренные квазиволновые числа электрона одномерной электронной зоны из первой зоны Бриллюэна, ширина которой равна 2π; n<sub>1</sub> – показатель преломления среды; *п* и *n*<sub>0</sub> – концентрации электронов в зоне проводимости при облучении полупроводника и в отсутствие облучения соответственно;  $\xi$  – параметр порядка фазового перехода металл-полупроводник (приведенная амплитуда фрелиховской фононной моды); т и т<sub>р</sub> – времена межзонной электронной и фононной релаксации соответственно; І-интенсивность падающего излучения; µ – квазиуровень Ферми электронов зоны проводимости;  $k_{\rm B}$  – постоянная Больцмана; T – абсолютная температура;  $\omega_0$  – центральная частота оптического спектра падающего излучения; N и М-концентрация и масса атомов, принимающих участие в образовании одномерной зоны электронного спектра соответственно; *R* – эффективный радиус атомной волновой функции электрона;  $g(\omega)$  – нормированная на единицу форма оптического спектра падающего излучения;

$$\varepsilon_k = 2b \operatorname{sign}(\cos k) (\cos^2 k + \sinh^2 \xi)^{1/2}$$
(3)

– электронный спектр пайерлсовского полупроводника в приближении сильной связи; 4b – ширина электронной зоны проводимости в металлической фазе (при  $\xi = 0$ );

$$d_k = \frac{2d}{1 + \varphi_k^2} \left| (1 - \varphi_k^2) \sinh \xi \cos k - 2\varphi_k \cosh \xi \sin k \right| \quad (4)$$

 матричный элемент оператора дипольного момента для переходов электрона с квазиволновым числом k из валентной зоны в зону проводимости;

$$\varphi_k = \frac{\cosh \xi \cos k - \operatorname{sign}(\cos k)(\cos^2 k + \sinh^2 \xi)^{1/2}}{\sinh \xi \sin k}; \quad (5)$$

 $2d\sinh\xi = d_0$  – матричный элемент оператора дипольного момента в центре зоны Бриллюэна (при k = 0);

$$A = 2 \sum_{|k| \le \pi/2} \left( \frac{\partial^2 \varepsilon_k}{\partial \xi^2} \tanh \frac{\varepsilon_k}{2k_{\rm B} T_0} \right) \Big|_{\xi=0}$$
(6)

– обобщенный коэффициент жесткости кристаллической решетки, который может быть выражен через критическую температуру  $T_0$  фазового перехода металл-полупроводник [25].

Уравнения динамики квазиодномерного пайерлсовского полупроводника (1), (2) следует дополнить соотношением электронейтральности, связывающим квазиуровень Ферми  $\mu$  и концентрацию электронов *n* зоны проводимости:

$$n = \frac{N}{2} - \sum_{|k| \le \pi/2} \tanh \frac{\varepsilon_{\mathbf{k}} - \mu}{2k_{\mathbf{B}}T}.$$
(7)

Уравнения (1), (2) с учетом уравнения электронейтральности (7) и вспомогательных соотношений (3)–(6) полностью описывают динамику параметров n(t) и  $\xi(t)$ пайерлсовского полупроводника при заданной температуре T и параметрах падающего излучения: интенсивности I, центральной частоте спектра излучения  $\omega_0$ , форме спектра излучения  $g(\omega)$ .

## 3. Стационарное решение для невырожденного полупроводника

Анализ уравнений (1)–(7) проведем для невырожденного полупроводника, когда квазиуровни Ферми электронов  $\mu_e = \mu$  и дырок  $\mu_p = -\mu$  лежат в глубине запрещенной зоны электронного спектра  $\varepsilon_k$  (3):

$$0 \leqslant \mu < \frac{\varepsilon}{2} - 2k_{\rm B}T,\tag{8}$$

где

$$\varepsilon = 4b \sinh \xi \tag{9}$$

– ширина запрещенной зоны электронного спектра  $\varepsilon_k$  (3) квазиодномерного пайерлсовского полупроводника.

Исключая из уравнений (2), (7) квазиуровень Ферми  $\mu$ , для стационарного случая ( $d\xi/dt \equiv 0$ ) находим приближенную связь между шириной запрещенной зоны  $\varepsilon$  (9) и концентрацией n электронов в зоне проводимости при  $T < T_0/2$ :

$$n = \frac{N\varepsilon}{4\pi b} \ln \frac{\varepsilon_0}{\varepsilon},\tag{10}$$

где  $\varepsilon_0$  – ширина запрещенной зоны электронного спектра (3) в отсутствие облучения.

В дальнейшем будем предполагать, что огибающая оптического спектра падающего на полупроводник излучения имеет лоренцеву форму:

$$g(\omega) = \frac{\tau_0}{\pi [1 + (\omega \tau_0)^2]},$$
(11)

где  $\tau_0$  – обратная полуширина спектра. В этом случае для стационарного установившегося режима ( $I = \text{const}, \xi = \text{const}, n = \text{const}$ ) из уравнений (1), (2), (7) с учетом (9) получаем приближенную зависимость  $I(\varepsilon, \omega_0)$ :

$$I = \frac{cn_1\hbar^2}{32\pi^2 d^2 \tau (\tau_0^3 \omega_0)^{1/2}} \times (x - x_0) \left\{ (1 + x^2) \left[ x + (1 + x^2)^{1/2} \right] \right\}^{1/2},$$
(12)

где

$$x = \tau_0 \left(\frac{\varepsilon}{\hbar} - \omega_0\right) \tag{13}$$

– безразмерный параметр, характеризующий отстройку частоты нижнего края оптического перехода  $\varepsilon/\hbar$  от несущей частоты излучения  $\omega_0$ ;  $x_0 = \tau_0(\varepsilon_0/\hbar - \omega_0)$  – отстройка в отсутствие облучения, когда ширина запрещенной зоны равна  $\varepsilon_0$ . При выводе уравнения (12) предполагалось также, что центральная частота спектра излучения  $\omega_0$  близка к частоте нижнего края оптического перехода:

$$|\varepsilon - \hbar \omega_0| \ll \hbar \omega_0. \tag{14}$$

Условие невырожденности (8) с учетом уравнений (7), (10) может быть записано в более удобном виде:

$$\varepsilon_0 - \varepsilon < \frac{\left(\varepsilon_0 k_{\rm B} T\right)^{1/2}}{2};\tag{15}$$

здесь, как и в (10), предполагается, что  $T < T_0/2$ .



Рис.1. Зависимость ширины запрещенной зоны  $\varepsilon$  электронного спектра квазиодномерного пайерлсовского полупроводника от интенсивности *I* светового поля для центральной частоты его спектра  $\hbar\omega_0 = 0.592$  (*I*), 0.588 (*2*), 0.584 (*3*) и 0.580 эВ (*4*).

### 4. Результаты численных расчетов и их обсуждение

Численный расчет по формулам (10), (12) проводился для следующих значений параметров, характерных для двуокиси ванадия [20]: концентрация атомов ванадия  $N \simeq 7 \cdot 10^{22}$  см<sup>-3</sup>, ширина зоны проводимости электронного спектра в металлической фазе  $4b \simeq 1.1$  эВ, ширина запрещенной зоны электронного спектра в низкотемпературной полупроводниковой фазе  $\varepsilon_0 = 4b \sinh \xi_0 \simeq 0.6$ эВ, характерное время межзонной электронной релаксации  $\tau \approx 3 \cdot 10^{-11}$  с [36], матричный элемент оператора дипольного момента системы для переходов электрона из валентной зоны в зону проводимости в центре зоны Бриллюэна  $d_0 \approx 10^{-18}$  г·см/с [37, 38], обратная полуширина спектра падающего излучения  $\tau_0 \approx 10^{-13}$  с, показатель преломления среды на частоте падающего излучения  $n_1 \approx \sqrt{10} \approx 3.16$ .

Результаты численных расчетов представлены на рис.1–3. На рис.1, 2 показаны зависимости ширины запрещенной зоны  $\varepsilon$  электронного спектра пайерлсовского полупроводника и концентрации *n* электронов в зоне проводимости от интенсивности *I* светового поля для разных центральных частот  $\omega_0$  оптического спектра светового поля. Проведенный нами анализ показал, что при выполнении условия

$$\varepsilon_0 - \hbar \omega_0 > 1.62\hbar/\tau_0 = 0.011 \text{ }$$
B, (16)

накладывающего ограничение снизу на несущую частоту  $\omega_0$  светового поля, зависимости  $\varepsilon(I)$  и n(I) в некоторой



Рис.2. Зависимость концентрации электронов *n* в зоне проводимости полупроводника от интенсивности *I* светового поля для центральной частоты его спектра  $\hbar\omega_0 = 0.592$  (*I*), 0.588 (*2*), 0.584 (*3*) и 0.580 эВ (*4*).



Рис.3. Зависимость ширины запрещенной зоны  $\varepsilon$  электронного спектра квазиодномерного пайерлсовского полупроводника от интенсивности I и центральной частоты  $\omega_0$  оптического спектра светового поля.

области изменения I ( $I_2 < I < I_1$ ) имеют неоднозначный характер. В точках  $I_1$  и  $I_2$ , где  $\partial \varepsilon / \partial I = 0$  и  $\partial n / \partial I = 0$ , происходят скачкообразные изменения  $\varepsilon$  и n (на рис.1, 2 показаны стрелками). Разность  $\Delta I = I_1 - I_2$  определяет ширину области оптической бистабильности при нарастающем поглощении.

Необходимо отметить, что условие (15) при температуре T = 100 К и ширине запрещенной зоны в отсутствие облучения  $\varepsilon_0 = 0.6$  эВ накладывает следующее ограничение на область изменения ширины запрещенной зоны  $\varepsilon$ при наличии облучения:

$$0 < \varepsilon_0 - \varepsilon < 0.036 \ \Im \mathbf{B}. \tag{17}$$

Неравенство (17), как видно из рис.1 и 3, справедливо для полученных нами решений, включая участки бистабильности системы.

На рис.3 показана трехмерная поверхность  $I(\hbar\omega_0, \varepsilon)$ , иллюстрирующая сложное немонотонное и неоднозначное поведение внутреннего параметра системы  $\varepsilon$  при изменении параметров внешнего воздействия I и  $\omega_0$ .

Бистабильность поглощения электромагнитных волн в пленках VO<sub>2</sub> вблизи критической температуры фазового перехода полупроводник-металл  $T_0 = 340$  К наблюдается экспериментально [39–41]. Численные значения длины волны ( $\lambda = 2.2$  мм) и интенсивностей ( $I_{1,2} \sim 1$  Вт/см<sup>2</sup>) облучения, времени переключения между полупроводниковым и металлическим состояниями ( $\tau_s \sim 0.1$  с), а также вид зависимостей интенсивностей  $I_{1,2}$  от температуры окружающей среды свидетельствуют [40] о тепловом механизме возникновения наблюдавшейся в [39–41] бистабильности.

Используя формулу

$$\gamma = \frac{16\pi^2}{cn_1\hbar^2} \sum_{|k| \le \pi/2} \varepsilon_k d_k^2 g\left(\frac{2\varepsilon_k}{\hbar} - \omega_0\right) \tanh\frac{\varepsilon_k - \mu}{2k_{\rm B}T},\tag{18}$$

для электронного механизма переключения между двумя полупроводниковыми состояниями с малым коэффициентом оптического поглощения  $\gamma_1$  при  $\hbar\omega_0 < \varepsilon$  и большим коэффициентом оптического поглощения  $\gamma_2$  при  $\hbar\omega_0 > \varepsilon$  получаем численные оценки:

$$\gamma_1 = \gamma(\hbar\omega_0 < \varepsilon) \approx 3 \cdot 10^4 \,\mathrm{cm}^{-1},\tag{19}$$

$$\gamma_2 = \gamma(\hbar\omega_0 > \varepsilon) \approx 1.1 \cdot 10^5 \,\mathrm{cm}^{-1}. \tag{20}$$

Экспериментально измеренный коэффициент  $\gamma$  оптического поглощения полупроводниковой фазы VO<sub>2</sub> на частотах  $\hbar\omega_0 > \varepsilon$  лежит в пределах (0.15 – 1.8)·10<sup>5</sup> см<sup>-1</sup> [20], что подтверждает справедливость численной оценки (20).

- Гиббс Х. Оптическая бистабильность. Управление светом с помощью света (М., Мир, 1988).
- Хаджи П.И., Гайван С.Л. Квантовая электроника, 23, 1009 (1996).
- 3. Хаджи П.И., Федоров Л.В. Квантовая электроника, 29, 61 (1999).
- 4. Хаджи П.И., Ляхомская К.Д. Квантовая электроника, **29**, 43 (1999).
- Хаджи П.И., Русанов А.М., Гайван С.Л. Квантовая электроника, 27, 262 (1999).
- Хаджи П.И., Ткаченко Д.В., Гайван С.Л. Квантовая электроника, 27, 265 (1999).
- 7. Ротару А.Х., Тонгу В.З. ЖЭТФ, **112**, 1778 (1997).
- 8. Сайко А.П. Квантовая электроника, **25**, 259 (1998).
- 9. Есипов С.Э. ЖЭТФ, 97, 1031 (1990).
- 10. Парканский Б.Ш., Ротару А.Х. ЖЭТФ, 99, 899 (1991).
- Лысенко В.Г., Ревенко В.И., Тратас Т.Г., Тимофеев В.Б. ЖЭТФ, 68, 335 (1975).
- 12. Лысенко В.Г., Ревенко В.И. ФТТ, **20**, 2144 (1978).
- 13. Коршунов В.В., Лебедев М.В., Лысенко В.Г. ФТТ, 27, 1518 (1985).
- Днепровский В.С., Климов В.И., Названова Е.В. ФТТ, 32, 1941 (1990).
- Днепровский В.С., Климов В.И., Названова Е.В. ЖЭТФ, 98, 1035 (1990).
- Балтрамеюнас Р., Гульбинас В., Екимов А.И., Кудрявцев И.А., Пакальнис С., Тамулайтис Г., Геник Д.И. ФТП, 25, 271 (1990).
- 17. Булаевский Л.Н. УФН, **115**, 263 (1975).
- Артеменко С.Н., Волков А.Ф., Зайцев-Зотов С.В. УФН, 166, 434 (1996).

- 19. Gruner G. Rev. Mod. Phys., 60, 1129 (1988).
- Бугаев А.А., Захарченя Б.П., Чудновский Ф.А. Фазовый переход металл-полупроводник и его применение (Л., Наука, 1979).
- Бугаев А.А., Гудялис В.П., Захарченя Б.П., Чудновский Ф.А. Письма в ЖЭТФ, 34, 452 (1981).
- Минакова В.Е., Латышев Ю.И., Волков В.А. Письма в ЖЭТФ, 62, 422 (1995).
- 23. Надь Ф.Я., Иткис М.Е. Письма в ЖЭТФ, 63, 246 (1996).
- 24. Семенов А.Л. *ФТТ*, **40**, 2113 (1998).
- 25. Семенов А.Л. ЖЭТФ, 116, 2154 (1999).
- 26. Berggren K.F., Huberman B.A. Phys. Rev. B, 18, 3369 (1978).
- Капаев В.В., Копаев Ю.В., Молотков С.Н. Микроэлектроника, 12, 499 (1983).
- 28. Семенов А.Л. *ФТТ*, **39**, 925 (1997).
- 29. Семенов А.Л. ЖЭТФ, 117, 1175 (2000).
- 30. Семенов А.Л. ФТТ, 42, 1125 (2000).
- 31. Семенов А.Л. ФТТ, 42, 1842 (2000).
- 32. Семенов А.Л. ЖЭТФ, 115, 1297 (1999).
- 33. Семенов А.Л. ЖЭТФ, 111, 1398 (1997).
- Семенов А.Л. ЖЭТФ, 111, 2147 (1997).
- 35. Семенов А.Л. ЖЭТФ, 114, 1407 (1998).
- Балашенков Н.Р., Карасев В.Б., Солунин А.А., Хахаев И.А., Цибадзе К.Ш., Чудновский Ф.А. ФТТ, 36, 2475 (1994).
- Андреев А.В., Емельянов В.И., Ильинский Ю.А. Кооперативные эффекты в оптике: сверхизлучение, бистабильность, фазовые переходы (М., Наука, 1986).
- Клышко Д.Н. Физические основы квантовой электроники (М., Наука, 1986).
- Биленко Д.И., Лодгауз В.А. Квантовая электроника, 12, 177 (1985).
- 40. Биленко Д.И., Лодгауз В.А., Хасина Е.И. ЖТФ, 59, 140 (1989).
- Егоров Ф.А., Темиров Ю.Ш., Соколовский А.А. Письма в ЖЭТФ, 15, 8 (1989).