

КРАЙ ФУНДАМЕНТАЛЬНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ ПАЙЕРЛСОВСКОГО ДИЭЛЕКТРИКА ОРТОРОМБИЧЕСКОГО ТРИСУЛЬФИДА ТАНТАЛА

М.Е.Игкус, Ф.Я.Надь

Получено спектральное распределение отклика орторомбического TaS₃ и показано существование края фундаментального поглощения при энергиях, соответствующих пайерлсовской щели, а также узкой линии поглощения в центре щели.

Значительное число работ посвящено исследованию разнообразных эффектов, специфически присущих неорганическим квазиодномерным проводникам (см., например, ¹). До сих пор, однако, точно не установлены энергетическая структура и характер электронных возбуждений, определяющих механизм проводимости этих материалов в пайерлсовском состоянии. Исследование спектральных зависимостей оптических свойств может дать информацию для решения этих вопросов. Кристаллы квазиодномерных неорганических проводников таких, например, как NbSe₃ и TaS₃ имеют вид нитей с поперечными размерами 10·10 мкм² и это существенно затрудняет исследование оптического поглощения и отражения.

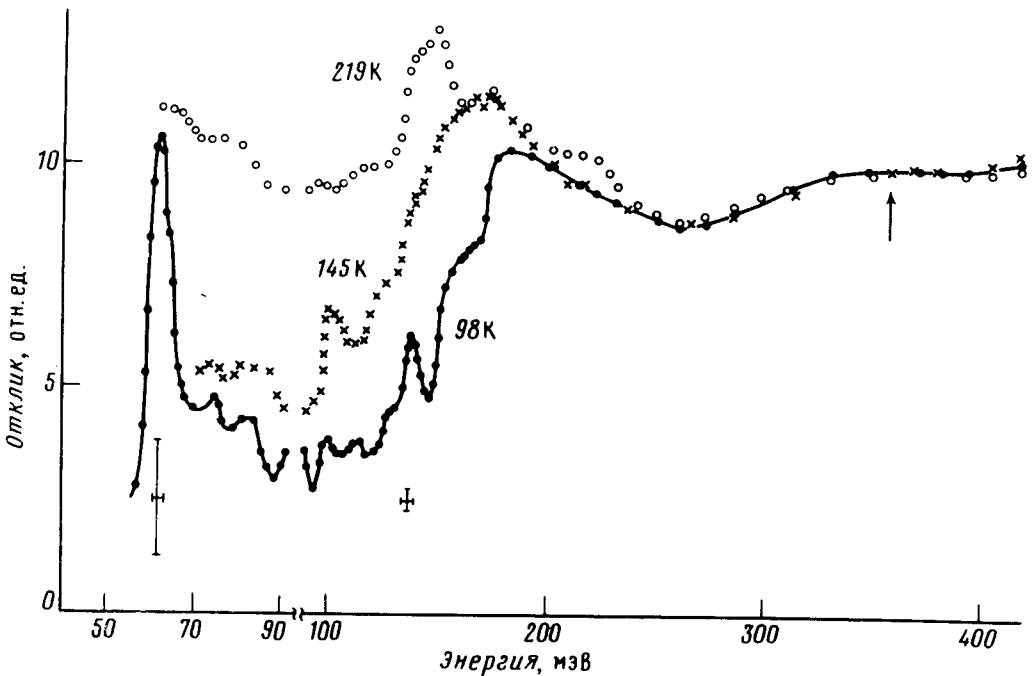


Рис. 1. Спектральное распределение отклика образца $A/E_T = 0,8$ В/см при температурах, указанных у кривых. Кривые приведены к одному масштабу в точке, указанной стрелкой

В данной работе исследован отклик орторомбического TaS₃, т. е. относительное изменение сопротивления $\Delta R/R$ под действием излучения, в спектральной области 3 – 22 мкм при температурах от 90 до 320 К, как выше, так и ниже температуры пайерлсовского перехода $T_p \approx 220$ К. Измерения проводились при смещении на образце, соответствующем полям, меньшим порогового E_T для начала движения волны зарядовой плотности (ВЗП) $\propto T^{-4}$. В пяти исследованных нами образцах величина E_T менялась от 0,3 до 1,5 В/см.

Во всем исследованном температурном и спектральном интервалах, в том числе и в СВЧ диапазоне (9,5 ГГц), отклик, во-первых, был пропорционален $d \ln R/dT$, а во-вторых, сдвинут по фазе на 90° относительно модулированного на низкой частоте (40 – 200 Гц) падаю-

шего излучения. При увеличении частоты модуляции отклик уменьшается обратно пропорционально ей. При этом, однако, не удавалось выделить компоненту отклика, находящуюся в фазе с модулированным излучением, которая могла бы отвечать каким-либо быстрым процессам, например, фотопроводимости. Постоянная времени СВЧ отклика равнялась 0,1 с. Все эти результаты, а также данные работы ⁵, показывают, что отклик кристаллов TaS₃ на действие как ИК, так и СВЧ излучения имеет преимущественно болометрический характер.

На рис. 1 представлено спектральное распределение отклика, приведенного к единичной падающей мощности, для образца А с E_T равным 0,8 В/см ($T = 100\text{K}$). При всех температурах $T < T_p$ отклик существенно зависит от энергии квантов излучения. Величина отклика, но не вид его спектрального распределения зависит от толщины образца d . В тонких образцах ($\sim 3\text{ мкм}$) отклик был больше, чем в толстых ($> 10\text{ мкм}$), т. е., по-видимому, в тонких образцах $\alpha d \approx 1$ (α — коэффициент поглощения). Уменьшение отклика в узком спектральном интервале, наличие узких линий (см. рис. 2) и зависимость от толщины показывают, что отклик определяется, главным образом, процессами и поглощения при оптических переходах, за которыми следуют процессы релаксации с передачей энергии возбуждений решетке, т. е. нагрев образца.

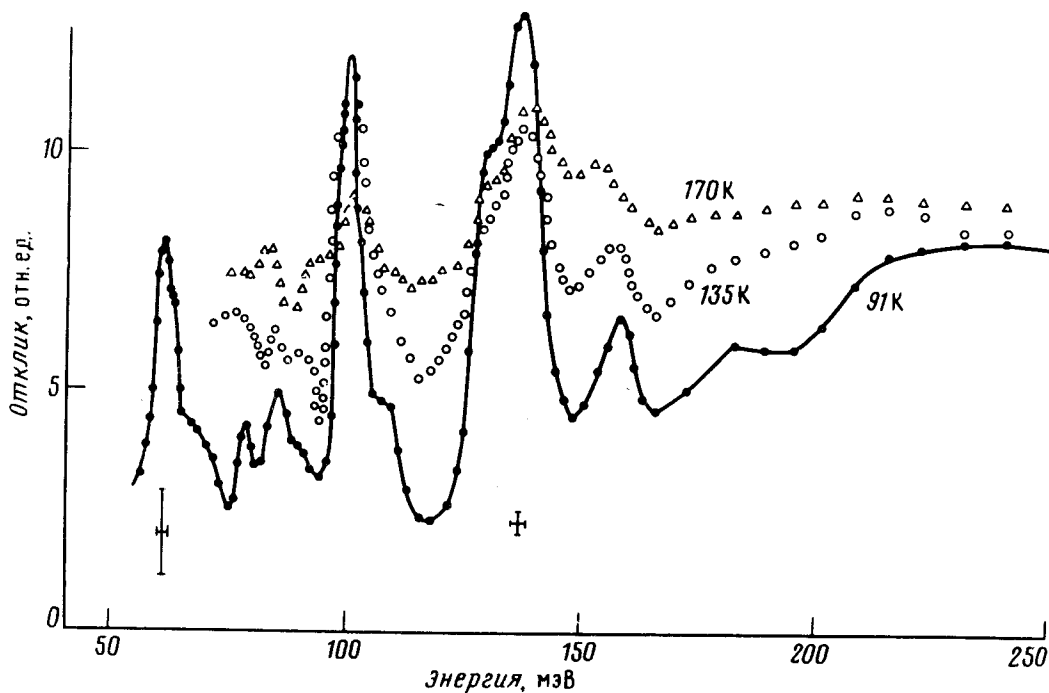


Рис. 2. Спектральное распределение отклика образца В ($E_T = 0,3\text{ В/см}$) при температурах, указанных у кривых

Из рис. 1 видно, что в области энергий 400 — 250 мэВ величина отклика слабо зависит от энергии квантов излучения для всех температур. При низких температурах (кривая при 98 К) спектральному распределению отклика присущи две основные черты. Во-первых, после максимума при $h\nu_1 \approx 184\text{ мэВ}$ наблюдается значительный спад поглощения с краем при $h\nu_2 \approx 125\text{ мэВ}$, и во-вторых, наблюдается узкий пик поглощения при $h\nu_3 \approx 62\text{ мэВ}$, с тонкой структурой, выявляющейся при увеличении спектрального разрешения. Заметим, что $\nu_2 \approx 2\nu_3$. С ростом температуры (рис. 1) максимум при $h\nu_1$ смещается в сторону меньших энергий и не исчезает вплоть до самых высоких измеренных нами температур (320 К). При этом поглощение в области энергий от ν_2 до ν_3 непрерывно увеличивается.

На рис. 2 представлено спектральное распределение отклика образца B с меньшим $E_T = 0,3$ В/см для трех температур $T < T_p$. Так же как и для образца A , наблюдается спад поглощения, край которого, без учета структуры лежит вблизи 120 мэВ. На фоне спада наблюдается четко выраженная структура в виде резких пиков при энергиях 157, 136, 100 мэВ, а также более слабые пики в области 70 – 90 мэВ. Аналогичная структура наблюдалась во всех исследованных образцах, в том числе и в образце A (рис. 1), но в ослабленном виде (см. также ⁵). Для образца B сохраняется пик при $h\nu_3 \approx 61$ мэВ, но его величина относительно меньше, чем в образце A с большим E_T . При повышении температуры положение пиков меняется мало вплоть до 170К, но величина их уменьшается и структура размывается. Наблюдаемая структура не является следствием дифракции или интерференции, поскольку в образцах с существенно различными поперечными размерами положение пиков не изменялось.

Как известно, в орторомбическом TaS_3 в области температур 100 – 200К наблюдается активационная зависимость проводимости с энергией активации $\Delta \approx 700 - 800$ К (60 – 70 мэВ) ²⁻⁴. Наблюдаемый нами рост поглощения при $h\nu_2 \approx 125$ мэВ вызывается, по нашему мнению, оптическими возбуждениями электронно-дырочных пар из основного состояния в ВЗП через пайерлсовскую щель и соответствует краю фундаментального поглощения орторомбического TaS_3 . Полученная нами энергия возбуждения хорошо согласуется с термической энергией активации 2Δ . Размытие кривой поглощения вблизи края и его структура связаны, по-видимому, с сильным взаимодействием электронных возбуждений с фононами, соответствующими пайерлсовской деформации решетки ⁶. Рост поглощения в запрещенной области энергий с ростом температуры (рис. 1) указывает на постепенный переход от щели к псевдощели. Сохранение максимума на спектральной кривой вблизи 150 мэВ до температуры 320К, значительно более высокой, чем температура трехмерного упорядочения T_p , свидетельствует, по-видимому, о сохранении и при $T > T_p$ особенности в плотности состояний, отвечающей наличию псевдощели. Этот результат согласуется с наблюдением на электронограмме дифракционных максимумов, соответствующих сверхрешетке при $T > T_p$ ⁷.

Узкий пик при 62 мэВ мы связываем с солитонными состояниями в центре запрещенной зоны ⁶. В пользу этого свидетельствует также обнаруженное нами ранее по измерениям частотной зависимости проводимости ⁸ существование конечной плотности состояний вблизи уровня Ферми в центре пайерлсовской щели. Формироваться подобные солитонные состояния могут в том числе и на имеющихся в кристалле дефектах, а также на границах, разделяющих области соизмеримости. Тот факт, что не удается выделить фотопроводимость на фоне болометрического сигнала, обусловлен очень малым временем жизни оптически возбуждаемых электронов и дырок вследствие их быстрой релаксации (автолокализации) в солитонное состояние за время $\sim 10^{-13}$ с ⁹.

Авторы благодарят Я.С.Савицкую за предоставление образцов, С.Н.Артеменко, С.А.Бразовского, А.Ф.Волкова, Ш.М.Когана и Т.М.Лифшица за полезные обсуждения, а также С.В.Малкова и В.Я.Покровского за помощь в проведении экспериментов.

Литература

1. Proc. of the Colloque International du CNRS, Les Arcs, 1982, J. de Physique 1983, **44**, Colloque C3, 1615–1761.
2. Sambongi T., Tsutsumi K., Shiozaki Y., Yamamoto M., Yamaya K., Abe Y. Solid State Comm., 1977, **22**, 729.
3. Zettl A., Günner G., Thompson A.H. Phys. Rev. 1982, **B26**, 5760.
4. Жилинский С.К., Иткус М.Е., Надь Ф.Я., Кальнова И.Ю., Преображенский В.Б. Препринт ИРЭ АН СССР №21, 1981; ЖЭТФ, 1983, **85**, 362.
5. Brill J.W., Herr S.L. Phys. Rev., 1983, **B27**, 3916.
6. Бразовский С.А. ЖЭТФ, 1980, **78**, 677.

7. *Roucau C., Ayroles R., Monseau P., Guemas L., Meershaut A., Rouxel J.* Phys. Stat. Sol. (a), 1980, 62, 483.
8. *Zhilinskii S.K., Itkis M.E., Nad' F. Ya.* Phys. Stat. Sol. (a), 1984, 81, 367.
9. *Vardeny Z., Strait J., Moses D., Chung T.C., Heeger A.J.* Phys. Rev. Lett., 1982, 49, 1657; *Shank C.V., Yen R., Fork R.L., Orenstein J., Baker G.L.* Phys. Rev. Lett., 1982, 49, 1660.

Институт радиотехники и электроники
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
5 марта 1984 г.