Вестник
МОСКОВСКОГО УНИВЕРСИТЕТА
№ 6 — 1968

УДК 539.293.011

В. Д. КАРАИВАНОВ

К ТЕОРИИ ОПТИЧЕСКОГО ПОГЛОЩЕНИЯ СВОБОДНЫМИ НОСИТЕЛЯМИ ЗАРЯДА В ПОЛУПРОВОДНИКАХ

В случае, когда рассеяние происходит на фононах, получены выражения для добавки к коэффициенту оптического поглощения свободными носителями заряда в полупроводниках. Эта добавка получается за счет взаимодействия фононов с точечными дефектами решетки изотопического типа. В § 4 приводится расчет функции чисел заполнения для фононов.

Задача о вычислении тензора электропроводности и коэффициента оптического поглощения на свободных носителях заряда рассматривалась разными авторами и для ее решения применялись различные вычислительные методы. Так, в [1] дается современная постановка этой задачи в связи с методом функции Грина и приводятся результаты для полупроводников в случае рассеяния на акустических фононах. В [2] и [3] обсуждается получение аналога кинетического уравнения и метод его решения. В [4] приводятся результаты вычислений для полупроводников в случаях рассеяния на примесях и оптических фононах и обсуждается роль различных механизмов рассеяния.

Во всех этих работах член взаимодействия содержит только слагаемое, описывающее взаимодействие между электронами и фононами. Применение теории возмущений сводит это взаимодействие к замедлению свободных носителей заряда в идеальном фононном газе. На самом деле, фононы взаимодействуют между собой, а также и с дефектами решетки. В настоящей работе делается попытка учесть и взаимодействие фононов с дефектами решетки изотопического типа при вычислении коэффициента оптического поглощения свободными носителями заряда.

§ 1. Гамильтониан системы

Предположим

1. Определенное число атомов типа A, образующих одну из подрешеток, заменено произвольным образом атомами типа B, т. е. создан неупорядоченный бинарный раствор $A - B$.

2. Корреляция в расположении атомов на узлах рассматриваемой подрешетки отсутствует, т. е. раствор является идеальным.

3. Изменения силовых полей при замещении атома A с атомом B пренебрежимо малы.

Последнее предположение означает, что дефекты сводятся только к изменению массы в некоторых узлах. Оно в наибольшей степени осуществляется, если атомы B суть просто изотопы атомов A.

В остальном постановка задачи та же, что и в [4]. Рассматривается невырожденный полупроводник с простой зонной структурой. Для упрощения вычислений всюду, где нужно, делается предположение об изотропности.

Гамильтониан системы «электроны+фононы» записывается в виде:

$$H = H_e + H_{ph} + H_i,$$

$$H_e = \sum_{\tilde{p}} \varepsilon(p)\, a^+(\tilde{p})\, a(\tilde{p}).$$

Здесь $\tilde{p} = (\vec{p}, \sigma)$; σ — спиновая переменная. Кулоновское взаимодействие между электронами не учитывается.

Из 3 следует, что член взаимодействия H_i имеет такой же вид, как и в обычном случае, когда не учитывается взаимодействие фононов с дефектами решетки

$$H_i = \sum_{\tilde{p}, \vec{k}} A(k)\, a^+(\tilde{p} + \vec{k})\, a(\tilde{p})\, [b(\vec{k}) + b^+(-\vec{k})].$$

Далее предполагается, что ветви колебаний решетки независимы. Тогда в случае высоких частот (неравенство 3) рассеяние электронов происходит независимо на разных ветвях колебаний. Нас будет интересовать именно этот случай и поэтому в гамильтониан включается лишь одна ветвь колебаний, индекс которой не пишется. Рассматриваются только продольные волны.

Отметим, что функция $A(k)$ различна для акустических и для оптических фононов. Для гомеополярных полупроводников:

$$A_{ak}(k) = \frac{1}{\sqrt{V}} A_{ak} \frac{k}{\sqrt{\omega_{ak}(k)}},$$

$$A_{ak} = E_1 \sqrt{\frac{\hbar}{d}},$$

d — плотность кристалла, E_1 — константа потенциала деформации.

$$A_{on}(k) = \frac{1}{\sqrt{V}} A_{on} \frac{\sqrt{\omega_{on}(k)}}{k},$$

$$A_{on} = \left(\frac{8\pi^2 e^4}{M\omega_0 a^3}\right)^{1/2},$$

где M — приведенная масса ионов, а $\omega_0 = \omega_{on}(0)$.

Гамильтониан фононов H_{ph}, взаимодействующих с точечными дефектами решетки рассматриваемого типа, получен в [5]. Для оптических фононов соответствующее выражение дано в [6]. Также приведены и результаты, относящиеся к системе с гамильтонианом H_{ph}.

Для одной ветви колебаний

$$H_{ph} = \sum_{\vec{k}} \omega(k)\, b^+(\vec{k})\, b(\vec{k}) + \sum_{\vec{k}, \vec{k}} Q(\vec{k}, \vec{k}')\, b^+(\vec{k})\, b(\vec{k}') +$$

$$+\frac{1}{2}\sum_{\vec{k},\vec{k}'}[R(\vec{k},\vec{k}')\,b^{+}(\vec{k})\,b^{+}(\vec{k}')+R^{*}(\vec{k},\vec{k}')\,b(\vec{k})\,b(\vec{k}')]$$

Явный вид матричных элементов $Q(\vec{k},\vec{k}')$ и $R(\vec{k},\vec{k}')$ определяется разностями масс A и B и законом дисперсии $\omega(k)$. Они могут содержать также и слагаемые, пропорциональные производным модулей всестороннего сжатия и сдвига, и, может быть, производным других силовых постоянных по концентрации дефектов. Однако, имея в виду 3, мы считаем эти производные пренебрежимо малыми и не будем писать соответствующие слагаемые. Итак

$$Q(\vec{k}_1,\vec{k}_2)=h(\vec{k}_1,\vec{k}_2)\,C(\vec{k}_2-\vec{k}_1),$$

$$R(\vec{k}_1,\vec{k}_2)=h(\vec{k}_1,\vec{k}_2)\,C(\vec{k}_2+\vec{k}_1),$$

где для продольных акустических и оптических фононов

$$h(\vec{k}_1,\vec{k}_2)=\frac{1}{2}\eta\hbar\sqrt{\omega(k_1)\,\omega(k_2)}\,\vec{e}(\vec{k}_1)\,\vec{e}(\vec{k}_2).$$

Здесь $\vec{e}(\vec{k})$ — единичный вектор в направлении $\vec{k}$,

$$\eta=\frac{M_A-M_B}{\overline{M}},\quad \overline{M}=\left[\frac{1-C}{M_A}-\frac{C}{M_B}\right]^{-1},\quad C=\frac{N_B}{N_A+N_B}=\frac{N_B}{N},$$

N — число элементарных ячеек в фундаментальном объеме V, N_A и N_B — соответственно число атомов A и B в V, $C(k)$ — Фурье-компоненты флуктуаций концентрации (см. [6]).

§ 2. Аналог кинетического уравнения

Как известно, коэффициент оптического поглощения выражается через комплексную электропроводность системы. Формула Кубо [1] сводит вычисление тензора электропроводности к нахождению двухчастичной функции Грина

$$K(\tilde{p}_1,\tilde{p}_2;\ \tilde{p}_2',\tilde{p}_2';\ E)=\frac{1}{2\pi\hbar}\int_{-\infty}^{+\infty}dt\,e^{i\frac{Et}{\hbar}}\times$$

$$\times\, i\theta(t)\,\langle[a^{+}(\tilde{p}_1;\ t)\,a(\tilde{p}_2;\ t),\ a^{+}(\tilde{p}_1')\,a(\tilde{p}_2')]\rangle.$$

Уравнение для K получается таким же способом, как и в [2]. Отметим, что кроме обычного предположения о малости константы связи электрон-фононного взаимодействия A, предполагается, что величины Q и R содержат малый параметр g и сохраняются только члены, пропорциональные g и g^2; g^2 дается выражение (см. § 4.)

$$g^2=\frac{1}{4}\left(\frac{M_A-M_B}{\overline{M}}\right)^2 C(1-C).$$

Полученное уравнение для K представляет собой аналог кинетического управления. Ввиду громоздкости мы не будем его выписывать. Укажем лишь способ его упрощения.

Функцию $K(\tilde{p}_1, \tilde{p}_2; \tilde{p}_3, \tilde{p}_4; E)$ можно записать в виде

$$K(\tilde{p}_1, \tilde{p}_2; \tilde{p}_3; \tilde{p}_4; E) = -\frac{1}{2\pi} \frac{n(p_1) - n(p_2)}{E + \varepsilon(p_1) - \varepsilon(p_2)} \times$$

$$\times \Delta(\tilde{p}_1 - \tilde{p}_4) \Delta(\tilde{p}_2 - p_3) + 0(A^2),$$

где

$$n(\tilde{p}) = \frac{1}{e^{\beta[\varepsilon(p)-\mu]} + 1}, \quad \left(\beta = \frac{1}{T}\right); \tag{1}$$

$\Delta(\tilde{p}_1 - \tilde{p})$ — единичная матрица. Уровень Ферми μ отсчитывается от дна зоны проводимости.

Это выражение подставляем во все члены, пропорциональные $A^2 g$ и $A^2 g^2$, где содержится $K(\tilde{p}_1, \tilde{p}_2; \tilde{p}_3, \tilde{p}_4; E)$ и $\tilde{p}_1 \not\equiv \tilde{p}_2$. Слагаемые, пропорциональные A^4, отбрасываются.

Следующий шаг состоит в усреднении уравнения по всем конфигурациям дефектов. (Черточка над буквой обозначает усредненную величину.) Так как $\overline{C(\vec{k})} = 0$, из уравнения выпадают все члены, пропорциональные g. В слагаемых, пропорциональных g^2, появляется среднее $\overline{C(\vec{k}_1) C(\vec{k}_2)}$. Из предположения 2 следует

$$\overline{C(\vec{k}_1) C(\vec{k}_2)} = \frac{1}{N} C(1 - C) \Delta(\vec{k}_1 - \vec{k}_2).$$

Опуская асимптотически малые члены $\left(\sim \frac{1}{V^2}\right)$, получаем

$$E\overline{K}(\tilde{p}, \tilde{p}; \tilde{p}', \tilde{p}'; E) = \sum_{\vec{k}} [\overline{W}(\tilde{p} - \vec{k}, \tilde{p}, \vec{k}; E) \overline{K} \times$$

$$\times \overline{K}(\tilde{p}, \tilde{p}; \tilde{p}', p'; E) - \overline{W}(\tilde{p}, \tilde{p} - \vec{k}, \vec{k}; E) \overline{K}(\tilde{p} - \vec{k}, \tilde{p} - \vec{k}; \tilde{p}', \tilde{p}'; E)] - \tag{2}$$

$$- \frac{1}{2\pi} \sum_{\vec{k}} [\Delta(\tilde{p} - \tilde{p}') - \Delta(\tilde{p} - \vec{k} - \tilde{p}'] \overline{F}(\tilde{p}, \vec{k}; E).$$

Здесь $\overline{W}$ и $\overline{F}$ — известные функции. Это уравнение в точности совпадает с уравнением, полученным в [4], надо только функцию

$$\nu_0(k) = \frac{1}{e^{\beta\omega(k)} - 1}$$

заменить на $\bar{\nu}(k) = \overline{\langle b^+(\vec{k}) b(\vec{k}) \rangle}$. Таким образом влияние взаимодействия фононов с дефектами решетки выразилось только в изменении функции чисел заполнения фононов.

Для решения уравнения (2) применяется метод, разработанный в [3] и [4].

Представим $\nu(k)$ в виде

$$\bar{\nu}(k) = \nu_0(k) + \delta\nu(k; \beta).$$

Тогда из решения (2) получаем выражение для добавки к коэффициенту оптического поглощения $\delta\alpha$. Величины $\delta\nu(k; \beta)$ и $\delta\alpha$ пропорциональны g^2.

§ 3. Приближенные выражения для $\delta\alpha(\omega)$

Будем рассматривать случай высоких частот

$$\omega\tau \gg 1, \tag{3}$$

(τ — время релаксации, см [1] и [4]).

Для полупроводников предполагается, что концентрация электронного газа мала ($e^{-\frac{\mu}{T}} \gg 1$) и (1) переходит в классическое выражение

$$n(\tilde{p}) = ne^{-\beta\varepsilon(p)}; \quad \varepsilon(\tilde{p}) = \frac{p^2}{2m}.$$

Для упрощения расчетов примем, что первая зона Бриллюена для фононов есть сфера с радиусом k_m.

В случае рассеяния на акустических фононах рассмотрим приближение, когда $\omega \gg \omega_m$ (ω — частота внешнего поля, ω_m — предельная частота фонона). Тогда получим

$$\delta\alpha(\omega) = \frac{24\pi^2}{c\sqrt{\varepsilon}} \frac{e^2 n A_{ak}^2}{\hbar^2 a^3 \omega_m \omega^2} \left(\frac{T}{\hbar\omega}\right) \operatorname{sh}\left(\frac{\hbar\omega}{T}\right) \times$$
$$\times \int_0^1 dx x^5 \frac{\delta\nu(x;\beta)}{a(x)} e^{-\frac{\varphi^4 x^4 + z^2}{4\varphi^2 x^2}}.$$

Здесь

$$x = \frac{k}{k_m}, \quad \delta\nu(x;\beta) = \delta\nu[k(x);\beta],$$

$$a(x) = \frac{\omega_{ak}[k(x)]}{\omega_m}, \quad z = \beta\hbar\omega, \quad \varphi = \sqrt{\frac{\beta}{2m}}\, k_m. \tag{4}$$

Для $\delta\nu(x;\beta)$ воспользуемся формулами (6) и (7). При этом первое слагаемое в (6) можно не учитывать, так как $s \gg 1$. Введя новую переменную интегрирования $t = x^{-2}$, приведем интеграл по x к виду

$$J = \int_1^\infty dt f(t) e^{-\frac{\varphi^2}{4t}} e^{-\frac{z^2}{4\varphi^2}t}.$$

Параметр $\frac{z^2}{4\varphi^2}$ можно записать таким образом

$$\frac{z^2}{4\varphi^2} \approx \frac{1}{T^0}\left(\frac{m}{m_0}\right)\omega^2 10^{-27}.$$

Здесь T^0 — температура в градусах, m_0 — масса свободного электрона. Для температур порядка 10°K этот параметр велик. Для температур порядка 100°K он велик при достаточно больших частотах. Если $\frac{z^2}{4\varphi^2}$ — большая величина, то для J можно применить метод асимптотических оценок Лапласа. Соответственно получаем

$$\delta\alpha(\omega) = \frac{24\pi^4}{c\sqrt{\varepsilon}} \frac{e^2 n A_{ak}^2 g^2}{\hbar m a^5 \omega_m \omega^2} \left(\frac{T}{\hbar\omega}\right)^2 \operatorname{sh}\left(\frac{\hbar\omega}{T}\right) \times$$

$$\times \exp\left[-\frac{1}{4T}\left(\frac{\pi^2\hbar^2}{2ma^2}+\frac{2}{\pi^2}ma^2\omega^2\right)\right]\begin{cases} c_1\dfrac{1}{\omega}, & \text{когда } T \ll \omega_m, \\ c_2\dfrac{1}{\omega_m}\left(\dfrac{T}{\hbar\omega}\right), & \text{когда } T \gg \omega_m. \end{cases}$$

Здесь c_1 и c_2 — константы порядка единицы.

$$c_1 = \frac{1}{2\pi}\int\limits_{\Delta\zeta} d\zeta\,\frac{\gamma_0(k_m, -\zeta)}{(\zeta+1)^2},$$

$$c_2 = \frac{1}{2\pi}\int\limits_{\Delta\zeta} d\zeta\,\frac{\gamma_0(k_m, \zeta)}{\zeta(\zeta+1)^2} - u_0(k_m).$$

Для оптических фононов приближенно напишем

$$\omega_{on}(k) = \omega_0 = \omega_{on}(0).$$

Учитывая, что $\delta\nu(k;\beta)$ зависит от k только через $\omega(k)$, запишем $\delta\nu(k;\beta) = \delta\nu(\beta)$ и соответственно

$$\delta\alpha(\omega) = \frac{1}{3\pi^2 c\sqrt{\varepsilon}}\,\frac{e^2}{\hbar^5}\,na^3 m A_{on}^2\,\delta\nu(\beta)\left(\frac{T}{\hbar\omega}\right)^2\times$$

$$\times\left[\operatorname{sh}\left(\frac{z+s}{2}\right)\int\limits_0^{\varphi^2} dt e^{-\frac{t^2+(z+s)^2}{4t}} + \operatorname{sh}\left(\frac{z-s}{2}\right)\int\limits_0^{\varphi^2} dt e^{-\frac{t^2+(z-s)^2}{4t}}\right],$$

где $s = \beta\omega_0$.

Параметр φ^2 (4) можно записать в виде $\varphi^2 = T'/T$, где

$$T = \frac{\pi^2\hbar^2}{2ma^2} \sim 10^4 \text{ град.}$$

Следовательно, для температур порядка 100° К и более низких можно приближенно интегрировать по t от 0 до ∞. Тогда интегралы выражаются через функцию Макдональда $K_1(u)$. Из (6) и (7) получаем

$$\delta\alpha(\omega) = \frac{4}{3\pi^2 c\sqrt{\varepsilon}}\,\frac{e^2}{\hbar^5}\,na^3 m\,A_{on}^2\,g^2\left(\frac{T}{\hbar\omega}\right)^2\times$$

$$\times\left[\frac{\hbar(\omega+\omega_0)}{2T}\operatorname{sh}\left(\frac{\hbar(\omega+\omega_0)}{2T}\right)K_1\left(\frac{\hbar(\omega+\omega_0)}{2T}\right)+\right.$$

$$\left.+\frac{\hbar(\omega-\omega_0)}{2T}\operatorname{sh}\left(\frac{\hbar(\omega-\omega_0)}{2T}\right)K_1\left(\frac{\hbar(\omega-\omega_0)}{2T}\right)\right]\begin{cases} c_3\dfrac{\omega_0}{\omega}, & \text{когда } T \ll \omega_0, \\ c_4\dfrac{T}{\hbar\omega}, & \text{когда } T \gg \omega_0. \end{cases}$$

Здесь c_3 и c_4 — константы порядка единицы.

$$c_3 = \frac{1}{\pi}\int\limits_{\Delta\zeta} d\zeta\,\frac{\gamma_0(0, -\zeta)}{(\zeta+1)^2};\quad c_4 = \frac{1}{\pi}\int\limits_{\Delta\zeta} d\zeta\,\frac{\gamma_0(0, -\zeta)}{\zeta(\zeta+1)^2} - u_0(0).$$

Опыт для обнаружения $\delta\alpha$ очевиден: надо сравнить коэффициенты оптического поглощения для двух образцов, один из которых содержит преимущественно один изотоп данного элемента, а другой — смесь двух изотопов в соотношении приблизительно 1 : 1. (В этом случае имеет ме-

сто наибольшее нарушение идеальности решетки.) Однако безразмерный параметр g^2 очень мал, для $\frac{M_A - M_B}{\overline{M}}$ порядка $\frac{1}{50}\, g^2 \sim 10^{-4}$. Так как $\frac{\delta\alpha}{\alpha_0} \sim g^2$, то можно ожидать, что $\delta\alpha$ больше для полупроводников с повышенным содержанием легких элементов в решетке, например для органических полупроводников.

§ 4. Вычисление $\delta\gamma(k, \beta)$

Пользуясь известными выражениями [1] и [7] для $\delta\nu\,(k, \beta)$, получаем

$$\overline{\nu}(k) = \frac{1}{\pi}\int_0^\infty \frac{dE}{e^{\beta E}-1}\,\frac{\overline{\gamma}(k;\,E)}{[E-\omega(k)-\overline{u}(k;\,E)]^2+\overline{\gamma}^2(k;\,E)} +$$

$$+\frac{1}{\pi}\int_0^\infty \frac{dE\,e^{\beta E}}{e^{\beta E}-1}\,\frac{\overline{\gamma}(k;\,-E)}{[E+\omega(k)+\overline{u}(k;\,-E)]^2+\overline{\gamma}^2(k;\,-E)},$$

где $u(k;\,E)$, $\gamma(k;\,E)$ — вещественная и мнимая части поляризационного оператора одночастичной фононной функции; δ — образная часть находится в первом слагаемом. Сохраняя только члены, пропорциональные g^2, имеем

$$\overline{\nu}(k) = \frac{1}{e^{\beta[\omega(k)+\overline{u}(k;\,\omega(k))]}-1} + \frac{1}{\pi}\int_0^\infty \frac{dE e^{\beta E}}{e^{\beta E}-1}\,\frac{\overline{\gamma}(k;\,-E)}{[E+\omega(k)]^2}.$$

При $T \gg \overline{u}(k;\,\omega(k))$ это дает

$$\delta\nu(k;\,\beta) = \overline{\nu}(k) - \nu_0(k) =$$

$$= \frac{e^{\beta\omega(k)}\,\beta\,\overline{u}(k;\,\omega(k))}{[e^{\beta\omega(k)}-1]^2} + \frac{1}{\pi}\int_0^\infty \frac{dE e^{\beta E}}{e^{\beta E}-1}\,\frac{\overline{\gamma}(k;\,-E)}{[E+\omega(k)]^2}. \tag{5}$$

Для $\overline{\gamma}(k;\,E)$ в первом приближении по g^2 имеем ([6])

$$\overline{\gamma}(k;\,E) = -\pi\frac{g^2}{Na^3}\sum_{\vec{q}} f(\vec{k},\,\vec{q})\,[\delta[E-\omega(q)] - \delta[E+\omega(q)]],$$

где функция $f(\vec{k},\,\vec{q})$ зависит от $\vec{k}$ и $\vec{q}$ только через закон дисперсии. Из этого выражения явствует, что $\overline{\gamma}(k;\,E) \neq 0$ только тогда, когда $|E|$ попадает в интервал изменения $\omega(q)$.

Обозначим этот интервал через ΔE.

Введем безразмерную переменную $\zeta = \frac{E}{\omega'}$ и обозначения

$$\gamma_0(k;\,\zeta) = \frac{1}{g^2}\,\frac{1}{\omega'}\,\overline{\gamma}(k;\,E(\zeta)),$$

$$u_0(k) = \frac{1}{g^2}\,\frac{1}{\omega'}\,\overline{u}(k;\,\omega(k)),$$

где γ_0 и u_0 — безразмерные функции порядка единицы. $\omega' = \omega_m$ для акустических фононов и ω_0 — для оптических фононов. Тогда в предельных

случаях низких температур ($T \ll \omega'$) и высоких температур ($T \gg \omega'$) из (5) получаем.

Низкие температуры $T \ll \omega'$:

$$\delta\nu(k;\beta) = -g^2 \frac{se^{sa(k)}}{[e^{sa(k)}-1]} u_0(k) + \frac{g^2}{\pi} \int d\zeta \frac{\gamma_0(k;-\zeta)}{[\zeta + a(k)]^2}. \tag{6}$$

Здесь $s = \beta\omega'$, $\Delta\zeta = \Delta E/\omega'$.

Для оптических фононов первым слагаемым можно пренебречь.

Высокие температуры $T \gg \omega'$:

$$\delta\nu(k;\beta) = \frac{g^2}{s}\left(\frac{1}{\pi}\int\limits_{\Delta\zeta} d\zeta \frac{\gamma_0(k;-\zeta)}{\zeta[\zeta + a(k)]} - \frac{u_0(k)}{a(k)}\right). \tag{7}$$

В заключение выражаю глубокую признательность В. Л. Бонч-Бруевичу за полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Bonch-Bruevich W. L. Proc. International School. «Enrico Fermi», Bolojna, 1966.
2. Зубарев Д. Н. «Успехи физических наук», **71**, 71, 1960.
3. Плакида Н. М., ДАН СССР, **147**, 1067, 1962.
4. Костадинов И. З., Пройкова Я. Г. «Вестн. Моск. ун-та», сер. физ., астрон., № 2, 61, 1967.
5. Кривоглаз М. А. «Физика твердого тела», **2**, 1200, 1960.
6. Кривоглаз М. А. «Теория рассеяния рентгеновских лучей и тепловых нейтронов реальными кристаллами». М., «Наука», 1967.
7. Бонч-Бруевич В. Л. О некоторых точных теоремах теории многих тел. В сб.: «Проблемы многих тел и физика плазмы». М., «Наука», 1967.

Поступила в редакцию
19.3 1968 г.

Кафедра
физики полупроводников