

УДК 539.293.6.013.539.293.535

Б. ЭССЕР

НЕПРЯМЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ПЕРЕХОДЫ В НЕУПОРЯДОЧЕННЫХ ПОЛУПРОВОДНИКАХ

Вычисляется коэффициент поглощения неупорядоченного полупроводника α в случае непрямых переходов. Рассматривается случай гладкого случайного поля, действующего в неупорядоченном полупроводнике. Показано, что коэффициент поглощения имеет экспоненциальный хвост $\alpha = A \exp[S(\hbar\omega - \varepsilon_{g,i})]$, где A — постоянная, S — обратная характерная энергия и $\varepsilon_{g,i}$ — непрямая ширина запрещенной зоны, по форме совпадающая с хвостом для прямых переходов. Глубоко в зоне коэффициент поглощения принимает обычную квадратичную зависимость.

Постановка задачи

В последнее время интенсивно изучаются оптические свойства неупорядоченных полупроводников. Эти свойства тесно связаны с зонной структурой неупорядоченных полупроводников, к которой возник большой интерес.

В данной работе вычисляется коэффициент поглощения для оптических переходов с участием фонона на основе модели неупорядоченного полупроводника, в которой на зонную картину кристаллического вещества $\varepsilon_e(\vec{k})$ ¹ налагается некоторое квазиклассическое случайное поле U . Соответствующий расчет для прямых переходов был выполнен в [1].

Гамильтониан электронов в зоне проводимости и в валентной зоне ($l=c, v$) мы возьмем в виде

$$\hat{H}_e = \int d\vec{x} \hat{\psi}_l^+(\vec{x}, t) \{[\varepsilon_e(-i\vec{\nabla}_x) - \mu] + U(\vec{x}) + \hat{s}(\vec{x}, t)\} \hat{\psi}_l(\vec{x}, t).$$

Здесь $\hat{\psi}_l^+(\vec{x}, t)$, $\hat{\psi}_l(\vec{x}, t)$ — операторы рождения и уничтожения электрона, соответствующие l -той зоне, $\varepsilon_l(\vec{k})$ — закон дисперсии в l -той зоне, μ — химический потенциал, $U(\vec{x})$ — квазиклассическое случайное поле и $\hat{s}(\vec{x}, t)$ — оператор фононного поля.

¹ В эту зонную картину могут быть включены некоторые эффекты, связанные с переходом в неупорядоченное состояние, как например, изменение ширины запрещенной зоны за счет изменения плотности аморфной фазы.

Мы возьмем

$$\varepsilon_c(\bar{k}) = \varepsilon_{g,i} + \frac{\hbar^2(\bar{k} - \bar{k}_0)^2}{2m_c} \quad (1)$$

и

$$\varepsilon_v(\bar{k}) = -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_v}, \quad (2)$$

где m_c и m_v — эффективные массы, а $\varepsilon_{g,i}$ — непрягая ширина запрещенной зоны. Усреднение по случайному полю U будет производиться с помощью функционального интегрирования с весовым функционалом гауссова типа $P[U]$:

$$P[U] = \exp \left\{ -\frac{1}{2} \int \bar{d}x \bar{d}x' U(\bar{x}) B(\bar{x}, \bar{x}') U(\bar{x}') \right\},$$

где $B(\bar{x}, \bar{x}')$ — симметричное, положительно определенное ядро. Условие квазиклассичности поля $U(\bar{x})$ имеет вид

$$\frac{\hbar^2 \psi_2}{2m_l \psi_1^{3/2}} \ll 1, \quad (3)$$

где

$$\psi_1 = \langle U^2 \rangle, \quad \psi_2 = \frac{1}{2} \langle (\nabla U)^2 \rangle, \quad (4)$$

а $\langle \rangle$ означает усреднение по случайному полю. Будем считать случайное поле достаточно сильным, так что не нужно учитывать экситонные состояния.

Оператор фононного поля $\hat{s}(\bar{x}, t)$ возьмем в виде

$$s(\bar{x}, t) = \int \frac{d\bar{q}}{(2\pi)^3} i s_{\bar{f}} \{ \hat{a}_{\bar{f}}(t) e^{i\bar{f}\bar{x}} - \hat{a}_{\bar{f}}^\dagger(t) e^{-i\bar{f}\bar{x}} \},$$

$\hat{a}_{\bar{f}}(t)$ и $\hat{a}_{\bar{f}}^\dagger(t)$ — операторы рождения и уничтожения фонона с импульсом \bar{f} , явный вид функции $s_{\bar{f}}$ нам в дальнейшем не потребуется, так что мы ее специализировать не будем. Потребуем лишь, чтобы $s_{\bar{f}}$ в окрестности $\bar{f} = \bar{k}_0$ можно было заменить постоянной.

Следует отметить, что вопрос о фононном спектре неупорядоченного полупроводника сам по себе сложен. В не прямых переходах, однако, участвуют фононы с малыми длинами волн, $\lambda \sim a$, где a — межатомное расстояние. Так как в неупорядоченном полупроводнике ближний порядок очень хорошо определен, думается, что эти фононы можно рассматривать как в соответствующем кристаллическом веществе.

Мы будем рассматривать равновесную ситуацию, в которой температура $T \ll \varepsilon_{g,i}$, следовательно валентную зону можно считать полностью заполненной, а зону проводимости пустой.

Вычисление коэффициента поглощения

Исходим из следующей формулы для коэффициента поглощения:

$$\alpha(\omega) = \text{Re} \frac{8\pi i e^2 |\bar{v}_{cv}|^2}{3\Omega c \sqrt{\varepsilon} \hbar \omega} \int \bar{d}\bar{x} \int \bar{d}\bar{x}' K_{vc}^{\text{ret}}(\bar{x}, \bar{x}'; \bar{x}_1, \bar{x}'_1; \omega) \Big|_{\substack{\bar{x}=\bar{x}' \\ \bar{x}_1=\bar{x}'_1}} + (c \leftrightarrow v). \quad (5)$$

Здесь

$$K_{vc}^{\text{ret}}(\bar{x}, \bar{x}'; \bar{x}_1, \bar{x}'_1; \omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt' e^{i\omega(t-t')} (-i) \theta(t-t') \times \\ \times \langle [\widehat{\Psi}_v^+(\bar{x}, t) \widehat{\Psi}_c(\bar{x}', t); \widehat{\Psi}_c^+(\bar{x}_1, t') \widehat{\Psi}_v(\bar{x}'_1, t')]^{(-)} \rangle \quad (6)$$

есть Фурье-образ известной запаздывающей двухчастичной функции Грина,

$$\bar{v}_{cv} = \int d\bar{x} U_{c\bar{k}}^*(\bar{x}) \frac{\hbar}{im_0} \bar{\nabla}_{\bar{x}} U_{v\bar{k}}(\bar{x}), \quad (7)$$

где $U_{e\bar{k}}(\bar{x})$ — периодический фактор функции Блоха l -зоны кристаллического вещества, m_0 — масса свободного электрона, Ω — объем образца, ω — частота падающей электромагнитной волны, ϵ и c суть диэлектрическая проницаемость и скорость света в пустоте, а $(c \leftrightarrow v)$ обозначает такой же член, как первый в (5), где произведена взаимная замена индексов $c \leftrightarrow v$. Формула (5) получается из формулы Кубо для линейного отклика системы на электромагнитную волну после выделения из нее межзонных переходов. При этом считалось, что зависимостью $\bar{v}_{cv}(\bar{k})$ в (7) можно пренебречь и $\bar{v}_{cv}(\bar{k})$ заменить постоянной v_{cv} .

Таким образом, вычисление $\alpha(\omega)$ свелось к вычислению функции (6). Удобнее, однако, вычислять не прямо функцию (6), а соответствующую функцию Мацубары [2]:

$$\mathcal{K}_{vc}(\bar{x}, \bar{x}'; \bar{x}_1, \bar{x}'_1; \tau - \tau') = - \langle T_{\tau} \{ \bar{\Psi}_v(\bar{x}, \tau); \bar{\Psi}_c(\bar{x}', \tau); \bar{\Psi}_c(\bar{x}_1, \tau') \bar{\Psi}_v(\bar{x}'_1, \tau') \} \rangle, \quad (8)$$

где τ — мнимое время. Функцию (6) можно вычислить, если аналитически продолжить Фурье-образ диаграмм для (8) с дискретных точек на верхней мнимой оси на верхнюю комплексную плоскость, при этом мы будем выполнять это продолжение, как это было предложено в [3]. Ограничимся рассмотрением однофононных переходов, так что интересующие нас диаграммы имеют вид (см. рис.)

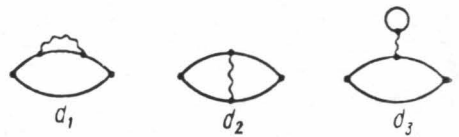


Диаграмма для однофононных переходов

Здесь простые линии изображают одночастичные функции Мацубары для зоны производимости и валентной зоны

$$g_e(\bar{x}, \bar{x}'; \tau - \tau') = - \langle T_{\tau} \{ \psi_e(\bar{x}, \tau) (\bar{\psi}_e(\bar{x}', \tau)) \} \rangle, \quad (9)$$

которые одеты случайным полем U , а волнистая линия отвечает фононной функции Грина

$$D(\bar{x}, \bar{x}'; \tau - \tau') = - \langle T_{\tau} \{ s(\bar{x}, \tau) s(\bar{x}', \tau') \} \rangle. \quad (10)$$

Вклады этих диаграмм удваиваются и учитываются аналогичные диаграммы, отличающиеся заменой $c \leftrightarrow v$.

Для функции (9) будем пользоваться известным представлением

$$g_e(\bar{x}, \bar{x}'; \tau) = \begin{cases} \int_{-\infty}^{+\infty} [1 - n^F(\eta)] e^{-\eta\tau} \rho_e(\bar{x}, \bar{x}'; \eta) d\eta & \tau > 0 \\ - \int_{-\infty}^{+\infty} n^F(\eta) e^{-\eta\tau} \rho_e(\bar{x}, \bar{x}'; \eta) d\eta & \tau < 0, \end{cases} \quad (11)$$

где

$$n^F(\eta) = (e^{\eta/\pi} + 1)^{-1},$$

и

$$\rho_e(\bar{x}, \bar{x}'; \eta) = \frac{1}{\pi\hbar} \text{Im} G_l^{\text{ret}}(\bar{x}, \bar{x}'; \eta), \quad (12)$$

где $G_l^{\text{ret}}(\bar{x}, \bar{x}'; \eta)$ есть Фурье-образ по времени от одночастичной запаздывающей функции Грина

$$G_l^{\text{ret}}(\bar{x}, \bar{x}'; t - t') = -i\theta(t - t') \langle [\hat{\Psi}_l(\bar{x}, t) \hat{\Psi}_l^\dagger(\bar{x}', t')]^{(+)} \rangle. \quad (13)$$

Начнем с вычисления диаграммы типа d_1 . Соответствующее аналитическое выражение имеет вид

$$\begin{aligned} \frac{1}{T} \delta_{\omega_n, \omega_{n_1}} d_1(\omega_n) = & -2\hbar \int d\bar{x} d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 d\bar{x}_3 \int_0^{1/\tau} e^{i\omega_n \tau} d\tau \int_0^{1/\tau} e^{-i\omega_{n_1} \tau_1} d\tau_1 \times \\ & \times \int_0^{1/\tau} d\tau_2 \int_0^{1/\tau} d\tau_3 g_c(\bar{x}, \bar{x}_3; \tau - \tau_3) g_c(\bar{x}_3, \bar{x}_2; \tau_3 - \tau_2) g_c(\bar{x}_2, \bar{x}_1; \tau_2 - \tau_1) \times \\ & \times g_v(\bar{x}_1, \bar{x}; \tau_1 - \tau) D(\bar{x}_3, \bar{x}_2; \tau_3 - \tau_2). \end{aligned} \quad (14)$$

Вычисление (13) для электрона в квазиклассическом поле производилось, как в [4], для $\rho_l(\bar{x}, \bar{x}'; \eta)$ в (12) имеем

$$\begin{aligned} \rho_l(\bar{x}, \bar{x}'; \eta) = & \frac{1}{\pi(2\pi)^3} \int d\bar{k} \int_{-\infty}^{+\infty} ds \exp \left\{ is [\eta - \varepsilon_l(\bar{k}) - U(\bar{R})] + \right. \\ & \left. + i\bar{k}\bar{v} \mp is^3 \frac{\hbar^2}{24m_l} [\nabla U_{\bar{R}}]^2 \right\}, \end{aligned} \quad (15)$$

знак минус для $l=c$, плюс для $l=v$. (Опущенные квантовые поправки дают в дальнейшем вклады более высокого порядка по параметру, стоящему в левой части (3).)

Подставляя (11), (15) и (10) в (14), выполняя интегрирование по переменным η и совершая аналитическое продолжение ($i\omega_n \rightarrow \omega$), получаем

$$\begin{aligned} d_1(\omega) = & \frac{2i\hbar}{\pi + (2\pi)^3} \int d\bar{x} d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 d\bar{x}_3 \int \frac{d\bar{q}}{(2\pi)^3} s \frac{1}{f} \left\{ 1 + N_{\bar{f}} \right\} \int d\bar{k} d\bar{k}_1 d\bar{k}_2 d\bar{k}_3 \times \\ & \times \int_0^\infty ds_1 \int_0^\infty ds_2 \int_0^\infty ds_3 \exp \left\{ is_1 [\hbar\omega - \varepsilon_c(\bar{k}_1) + \varepsilon_v(\bar{k})] + \right. \\ & \left. + is_3 [\hbar\omega - \varepsilon_c(\bar{k}_3) + \varepsilon_v(\bar{k})] + is_2 [\hbar\omega - \varepsilon_c(\bar{k}_2) + \varepsilon_v(\bar{k}) \pm \hbar\omega_{\bar{f}}] + \right. \\ & \left. + i\bar{k}\bar{r} + i\bar{k}_1\bar{r}_1 + i(\bar{k}_2 \mp \bar{f})\bar{r}_2 + i\bar{k}_3\bar{r}_3 + s_v(-s_1 - s_2 - s_3, \bar{R}) + \sum_{j=1}^3 s_c(s_j \bar{R}_j) \right\}. \end{aligned} \quad (16)$$

Здесь

$$s_c(s, \bar{R}) = -isU(\bar{R}) \mp is^3 \frac{\hbar^2}{24m_c} [\bar{\nabla}_{\bar{R}} U(\bar{R})]^2, \quad (17)$$

$\bar{a}r, \bar{r}_1, \bar{r}_2, \bar{r}_3$ и $\bar{R}, \bar{R}_1, \bar{R}_2, \bar{R}_3$ — соответствующие разности и полусуммы координат диаграммы d_1 (например, $\bar{r} = \bar{x}_1 - \bar{x}$, $\bar{R} = \frac{1}{2}(\bar{x}_1 + \bar{x})$), $N_{\bar{f}} + 1$ соответствует $-\hbar\omega_{\bar{f}}$, $N_{\bar{f}}$ — соответствует $+\hbar\omega_{\bar{f}}$. Оценка характерных расстояний \bar{r} в интеграле (16) показывает, что

$$r < l = \sqrt{\frac{\psi_1}{\psi_2}},$$

где $l = \sqrt{\frac{\psi_1}{\psi_2}}$ — характерная длина изменения случайного поля. Это значит, что процесс, описываемый данной диаграммой, происходит в пространственной области, малой по сравнению с масштабом изменения случайного поля. В этом смысле все векторы $\bar{R}, \bar{R}_1, \bar{R}_2, \bar{R}_3$ близки. Таким образом, мы можем положить

$$U(\bar{R}_i) \cong U(\bar{R}) + (\bar{R}_i - \bar{R}) \bar{\nabla}_{\bar{R}} U(\bar{R}).$$

Подставляя это в (17), а (17) в (16), видим, что $U(\bar{R})$ вообще выпадает. Аналогичное обстоятельство имеет место и для прямых переходов. Усредним (16) по случайному полю U . Мы видим, что закон сохранения импульса нарушен вследствие наличия случайного поля. Однако соответствующая «размазка» $\delta k \sim \sqrt{\psi_2} S_2$ все же мала по сравнению с вектором k_0 , на который сдвинут минимум зоны проводимости. Если $k_0 \sim \frac{1}{a}$ (a порядка межатомного расстояния) $\mu S_2 \sim \left(\frac{\hbar^2}{2\mu} \psi_2\right)^{-1/2}$ (таковы будут k , существенные в интервале s_2), то

$$\frac{\delta k}{k_0} \sim \left(\frac{\psi_2 a^2}{\Delta^2}\right)^{1/2} \ll 1,$$

где $\Delta = \frac{\hbar^2}{2\mu a^2}$ — порядка ширины запрещенной зоны.

При этом интегралы по S_1 и S_3 содержат быстро осциллирующую фазу, связанную с обратным неравенством

$$\frac{\hbar^2 \psi_2}{2\mu(\varepsilon_{g,d} - \varepsilon_{g,i})} \ll 1. \quad (18)$$

Здесь $\varepsilon_{g,d}$ — прямая ширина запрещенной зоны, и мы считали $\hbar\omega \sim \varepsilon_{g,i}$. Проводя интегрирование по частям по S_1 и S_3 и оставляя наименьший член по неравенству (18), имеем

$$d_1(\omega) = - \frac{i\Omega\hbar}{2\pi^3(\hbar\omega - \varepsilon_{g,d})^2} \int d_{\bar{f}} s_{\bar{f}}^2 \left\{ 1 + N_{\bar{f}} \right\} \int d\bar{k} \times \\ \times \int_0^\infty \frac{dS}{\left(1 + iS^3 \frac{\hbar^2 \psi_2}{18\mu}\right)^{3/2}} e^{iS[\hbar\omega - \varepsilon_c(\bar{k} + \bar{f}) + \varepsilon_v(\bar{k}) \pm \hbar\omega_{\bar{f}}]}, \quad (19)$$

где мы ввели приведенную эффективную массу μ :

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_c} + \frac{1}{m_v}.$$

Отметим, что связанное с неравенством (18) приближение имеет простой физический смысл. Неравенство (18) означает, что квантовые

поправки для промежуточных состояний, лежащих глубоко в зонах, несущественны. И в самом деле, положив $S_1 = S_3 = 0$, мы исключили два члена с постоянной Планка \hbar . Можно убедиться, что эти постоянные Планка как раз входят в функции Грина для промежуточных состояний. Таким образом, наш окончательный результат не изменится, если сразу для промежуточных состояний подставлять функции Грина в чисто классическом приближении. Подставляя в (16) законы дисперсии (2) и (3) и считая вблизи \bar{k}_0 , $s_{\bar{f}} \cong s_{\bar{k}_0}$ и $N_{\bar{f}} \cong N_{\bar{k}_0}$ постоянными, мы имеем после простой выкладки из (18)

$$d_1(\omega) = - \frac{2i\Omega s_{\bar{k}_0}^2 (m_c m_v)^{3/2}}{\pi^3 \hbar^5 (\hbar\omega - \varepsilon_{g,d})^2} \left\{ \frac{N_{\bar{k}_0}}{1 + N_{\bar{k}_0}} \right\} \times \\ \times \int_0^{\infty} d\xi \xi^2 \int_0^{\infty} \frac{sd}{\left(1 + is^3 \frac{\hbar^2 \psi_2}{18\mu}\right)^{3/2}} e^{is[\hbar\omega - (\varepsilon_{g,i} \mp \hbar\omega_{\bar{k}_0}) - \xi]} \quad (20)$$

Вычисление диаграммы d_2 производится по такой же схеме, что и вычисление диаграмм типа d_1 , и мы приходим к такой же зависимости от ω , как и в (20).

Вкладом диаграмм типа d_3 можно пренебречь, так как структура этих диаграмм ограничивает фоновый импульс. В самом деле, при обходе электронной петли электронный импульс в случайном поле меняется мало, в силу чего и фоновая линия несет малый импульс такого же порядка, и переход электрона из валентной зоны в минимум зоны проводимости оказывается невозможным.

Подставляя вклады диаграмм типа d_1 и d_2 в (5) и умножая на число эквивалентных минимумов в зоне проводимости γ , мы имеем

$$a_i(\omega) = \frac{4s_{\bar{k}_0}^2 \gamma (2m_c)^{3/2} (2m_v)^{3/2} e^2 |\bar{v}_{cv}|^2}{\pi^2 \hbar^6 \omega (\hbar\omega - \varepsilon_{g,d})^2 c \sqrt{\varepsilon}} \left\{ \frac{N_{\bar{k}_0}}{1 + N_{\bar{k}_0}} \right\} \times \\ \times \int_0^{\infty} d\xi \xi^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{ds}{\left(1 + is^3 \frac{\hbar^2 \psi_2}{18\mu}\right)^{3/2}} e^{is[\hbar\omega - (\varepsilon_{g,i} \mp \hbar\omega_{\bar{k}_0}) - \xi]}.$$

На хвосте

$$S[(\varepsilon_{g,i} - \hbar\omega_{\bar{k}_0}) - \hbar\omega] \gg 1,$$

где

$$S = \left(\frac{\hbar^2 \psi_2}{18\mu} \right)^{-\frac{1}{3}} = \left[\frac{\hbar^2}{36\mu} \langle (\nabla U)^2 \rangle \right]^{-\frac{1}{3}} \quad (21)$$

(смотри определение ψ_2 , формула (4)).

Мы имеем

$$\alpha_1(\omega) = A_i [N_{\bar{k}_0} e^{s\hbar\omega_{\bar{k}_0}} + (N_{\bar{k}_0} + 1) e^{-s\hbar\omega_{\bar{k}_0}}] e^{s(\hbar\omega - \varepsilon_{g,i})}, \quad (22)$$

где A_i — некоторая постоянная.

Большинству ситуаций будет соответствовать случай

$$s\hbar\omega_{\bar{k}_0} < 1,$$

так что формула (22) принимает более простой вид

$$\alpha_i(\omega) = A_i (2N_{\bar{k}_0} + 1) e^{s(\hbar\omega - \varepsilon_{g,i})}. \quad (23)$$

Таким образом мы получим экспоненциальный хвост для коэффициента поглощения в случае непрямых переходов. Хвост коэффициента поглощения для прямых переходов $\alpha_d(\omega)$ имеет вид [1]

$$\alpha_d = A_d e^{s(\hbar\omega - \varepsilon_g)}, \quad (24)$$

где A_d — постоянная, s совпадает с (21), ε_g — ширина запрещенной зоны, т. е. по форме совпадает с (22), (23). Этот результат не удивителен, так как мы видели, что промежуточные состояния в случае непрямых переходов можно трактовать в чисто классическом приближении и, следовательно, остаются лишь квантовые поправки для начальных и конечных состояний, как и в случае прямых переходов. Глубоко в разрешенных зонах учет случайного поля несуществен, и мы получим зависимость

$$\alpha_i(\omega) = A_i' \{N_{\bar{k}_0} [\hbar\omega - (\varepsilon_{g,i} - \hbar\omega_{\bar{k}_0})]^2 + (N_{\bar{k}_0} + 1) [\hbar\omega - (\varepsilon_{g,i} + \hbar\omega_{\bar{k}_0})]^2\}$$

при

$$S[\hbar\omega - (\varepsilon_{g,i} + \hbar\omega_{\bar{k}_0})] \gg 1.$$

В настоящее время, по-видимому, экспериментально установлено, что экспоненциальное поведение коэффициента поглощения на хвосте является вообще характерной чертой неупорядоченных полупроводников. Мы убедились в том, что в рамках использованной модели неупорядоченного полупроводника появляется одно и то же экспоненциальное убывание коэффициентов поглощения как для хвоста прямых (24), так и для непрямых (22), (23) переходов. Таким образом, мы получаем экспоненциальный хвост при довольно общих предположениях.

Автор благодарит проф. В. Л. Бонч-Бруевича за предложенную тему и многие полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Bonch-Bruевич V. L. Phys. stat. sol., **42**, 35, 1970.
2. Matsubara T. Progr. Theor. Phys., **14**, 351, 1955.
3. Дзялошинский И. Е. ЖЭТФ, **42**, 1126, 1962.
4. Бонч-Бруевич В. Л. Вопросы электронной теории сильно легированных полупроводников. Итоги науки. Физика твердого тела. М., 1965.

Поступила в редакцию
5.9 1972 г.

Кафедра
физики полупроводников