

УДК 539.21:537.572

©1993

О ВЛИЯНИИ ЛОКАЛИЗОВАННЫХ КОЛЕБАНИЙ НА ПРОЦЕССЫ РАССЕЯНИЯ ЭЛЕКТРОНОВ В ДИЭЛЕКТРИКАХ

В.Г.Мазуренко, В.С.Кортов

В борновском приближении с использованием корреляционных функций проведены расчеты скорости рассеяния электронов на квазилокальных колебаниях в зависимости от энергии электронов, температуры образца и концентрации дефектов в кристаллах со структурой NaCl. Искажения в различных областях фононного спектра кристалла NaCl приводят к разным температурным зависимостям скорости рассеяния для низко- и высокоэнергетических электронов. Обсуждается природа наблюдаемых зависимостей.

Одним из эффективных каналов релаксации энергии электронов при транспорте в диэлектриках является рассеяние на фононах. При моделировании транспорта электронов обычно учитывается только рассеяние электронов на акустических и оптических фононах идеальной решетке, а точечные дефекты рассматриваются как статические [1]. Однако дефекты могут искажать колебательные движения ионов, и электроны будут испытывать дополнительное неупругое рассеяние не только от самого дефекта, но и от колебаний ионов дефектной области.

Настоящая работа посвящена исследованию влияния деформации фононного спектра кристалла на рассеяние электронов, энергии которых меньше или порядка ширины запрещенной зоны кристалла E_g . Этот диапазон энергий актуален при исследованиях экзоелектронной эмиссии, неупругого рассеяния вторичных электронов, при светолучевом пробое прозрачных диэлектриков, а также в ряде задач радиационной физики твердого тела.

1. Модельные представления и основные приближения

Дефектные колебания локализованы в хаотически расположенных областях кристалла. Поэтому традиционный подход учета электрон-фононного взаимодействия, основанный на использовании периодического возмущения, здесь не пригоден [2]. Математически задача рассеяния электронов на колебаниях решетки аналогична задаче рассеяния нейтронов на фононах, и в данном случае может быть использован формализм корреляционных функций Ван Хофа.

Скорость рассеяния γ_k (частота электрон-фононных соударений), которая описывает изменение импульса электрона при соударении с фоно-

нами, рассчитывается из соотношения [2]

$$\gamma_{\mathbf{k}} = \sum_{\mp} \sum_{\mathbf{q}} (1 - \cos(\vartheta)) W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\mathbf{q}, \omega), \quad (1)$$

где $W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\mathbf{q}, \omega)$ — вероятность перехода электрона из состояния с волновым вектором \mathbf{k} в состояние с волновым вектором \mathbf{k}' ; $\mathbf{q} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$; $\omega = \varepsilon_{\mathbf{k}'} - \varepsilon_{\mathbf{k}}$ (полагаем $\hbar = 1$); ϑ — угол между векторами \mathbf{k} и \mathbf{k}' ; знаки \pm обозначают поглощение или испускание фонона в процессе рассеяния.

В борновском приближении вероятность $W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\mathbf{q}, \omega)$ определяется выражением [3]

$$W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{2\pi}{m^* V_0} S(\mathbf{q}, \omega). \quad (2)$$

Здесь m^* — эффективная масса электрона; V_0 — объем элементарной ячейки; $S(\mathbf{q}, \omega)$ — корреляционная функция Ван Хова, расчетные формулы для которой приведены в Приложении.

Влияние локальной динамики точечных дефектов на скорость рассеяния электронов исследовали на щелочно-галогидных кристаллах (ШГК). При рассмотрении дефектных кристаллов, так же как и в работе [4], определяли вероятность рассеяния в кристалле, содержащем одну примесь, а затем умножали соответствующую вероятность на число примесей. Для вычисления скорости рассеяния $\gamma_{\mathbf{k}}$ необходимо выбрать динамическую модель кристалла. В настоящей работе использовали модель [5], в которой учитывается взаимодействие только между ближайшими соседями. Соответствующие силовые постоянные взаимодействия центрального и нецентрального типов (γ_1 и γ_2) связаны с модулями упругости соотношениями

$$\gamma_1 = ac_{11}, \quad \gamma_2 = ac_{44}$$

(a — постоянная решетки). Изменение массы примеси и силовых постоянных определяется выражениями

$$M' = QM, \quad \gamma'_1 = P_1\gamma_1, \quad \gamma'_2 = P_2\gamma_2$$

При варьировании параметров Q , P_1 , P_2 в различных областях фонового спектра кристалла со структурой NaCl возникают квазилокальные (резонансные) или локальные колебания.

Существенное упрощение в вычислительной процедуре достигается учетом разницы в интенсивности рассеяния на катионах и анионах в ШГК. Известно, что в исследуемой области энергий электронов рассеяние на анионах значительно интенсивнее, чем на катионах [2]. Это позволяет производить суммирование в формуле (П.2) только по анионной подрешетке. Кроме того, использование позиционной симметрии ионов в идеальной и дефектной решетках позволяет вычислять меньшее число недиагональных элементов функции Грина (см. Приложение).

При вычислении скорости рассеяния $\gamma_{\mathbf{k}}$ по формуле (1) суммирование по \mathbf{q} стандартным образом заменяли на интегрирование по модулю волнового вектора \mathbf{q} [1,6]. Расчеты скорости рассеяния электронов проводили при варьировании температуры образца, энергии электронов и

концентрации дефектов. Величина γ_k зависит от температуры через факторы Дебая–Валлера, постоянную решетки, частоты фононов и числа заполнения фононов $n(\omega)$. Все эти вклады учитывались в расчетах γ_k .

При энергиях электронов $\sim 1 \div 10$ эВ существенны процессы переброна. Как было показано в работе [7], для носителей с такими энергиями в схеме расширенных зон необходимо учитывать волновые векторы из первой и части второй зоны Бриллюэна. В настоящей работе, так же как и в работе [7], процессы переброна учитывались в предположении малости угла между векторами \mathbf{q} и $\mathbf{q} + \mathbf{Q}$ (\mathbf{Q} — вектор обратной решетки). Отметим, что для исследуемого кристалла NaCl процессы переброна включаются в рассеяние электронов при энергиях около ~ 1.1 эВ.

Вероятность рассеяния электрона зависит от его энергии не только через корреляционные функции, но также через амплитуды $a_l(\mathbf{q})$. Амплитуды рассеяния можно оценить исходя из их связи с матричными элементами электрон-фононного взаимодействия $B(\mathbf{q})$ в борновском приближении [1]. Матричные элементы электрон-фононного взаимодействия пропорциональны некоторой степени n переданного импульса \mathbf{q}^n . Причем в ионных кристаллах для деформационных механизмов рассеяния $B(\mathbf{q})$ содержит \mathbf{q} в положительной степени, а для поляризационных — в отрицательной [1]. Такая функциональная зависимость $B(\mathbf{q})$ позволяет выделять вклады в рассеяние оптических и акустических колебаний для электронов различной энергии.

В работе [2] на примере кристалла NaCl было показано, что при энергиях электронов до 2–2.5 эВ наибольший вклад в рассеяние дают продольные оптические колебания, а свыше 2.5–3 эВ — акустические. В наших исследованиях рассматривались проявления деформации в оптической части фононного спектра для электронов с энергиями до ~ 2 эВ и в акустической — для электронов с энергией больше ~ 2 эВ.

2. Результаты расчетов и их обсуждение

Рассеяние на оптических колебаниях. Примесь замещения в анионной подрешетке с массой $M' = 0.6M_a$ (M_a — масса аниона) и $P_1 = 0.8$ индуцирует резонансное колебание с частотой $\omega_r = 4.1 \cdot 10^{13} \text{ c}^{-1}$ вблизи граничной частоты идеального кристалла.

На рис. 1 представлены зависимости скорости рассеяния электронов $\gamma_k^c/\gamma_k^0(300 \text{ K})$ (здесь $\gamma_k^0(300 \text{ K})$ — скорость рассеяния электронов в идеальной решетке при температуре 300 K) на оптических колебаниях в зависимости от энергии электронов для следующих концентраций дефектов: 2.5, 5 и 10 ат. % (кривые 1–3). Рост концентрации дефектов приводит к увеличению рассеяния относительно идеальной решетки до энергий электронов порядка ~ 2.8 эВ. Это связано с увеличением плотности колебательных состояний в оптической области, что в свою очередь приводит к росту рассеяния электронов. Для электронов с энергиями, большими ~ 2 эВ, скорость рассеяния в значительно меньшей степени зависит от концентрации дефектов. Отметим наличие изломов у кривых γ_k^c/γ_k^0 при энергиях около 1.08 и 2.05 эВ. Это согласуется с данными работы [7], где предсказано наличие таких изломов для γ_k в точках, соответствующих кратным значениям $g_m/2$ ($g_m = \pi/a$). Существование этих изломов свя-

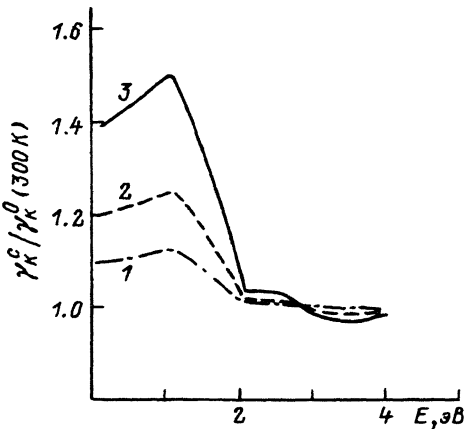


Рис. 1. Зависимость скорости рассеяния электронов на оптических колебаниях от энергии при различных концентрациях дефектов.

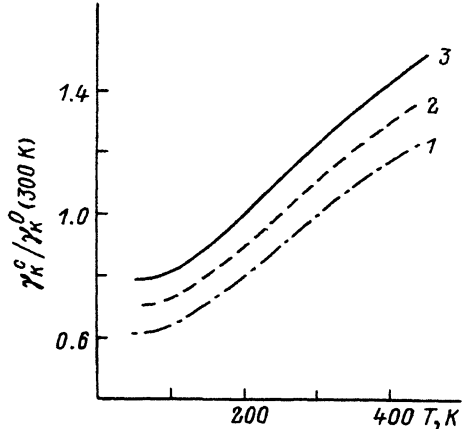


Рис. 2. Температурная зависимость скорости рассеяния электронов на оптических колебаниях.

зано с открытием новых каналов рассеяния электронов с перебросом на вектор обратной решетки $Q = 2g_m n$.

На рис. 2 в качестве примера представлены зависимости от температуры скорости рассеяния электронов с энергией 0.05 эВ на оптических колебаниях при тех же концентрациях дефектов. Наблюдается ожидаемое увеличение скорости рассеяния электронов при росте температуры и концентрации дефектов.

При проведении описанных выше расчетов предполагали, что амплитуда рассеяния на примесном ионе совпадает с амплитудой рассеяния на ионах идеальной решетки кристалла. Изменение амплитуды рассеяния на примесном ионе приводит лишь к небольшим количественным изменениям γ_k .

Рассеяние на акустических колебаниях. Введение в кристалл NaCl примеси замещения с массой $3M_a$ в анионной подрешетке приводит к появлению низкочастотного квазилокального колебания с частотой $\omega_r = 1.2 \cdot 10^{13} \text{ c}^{-1}$.

На рис. 3 приведены рассчитанные скорости рассеяния $\gamma_k^c/\gamma_k^0(300\text{ K})$ на акустических колебаниях в зависимости от энергии для указанных выше концентраций дефектов. Отметим наиболее важные особенности рассчитанных кривых. Имеется область энергий от 2.5 до 4.5 эВ, где γ_k существенно зависит от концентрации дефектов, причем в области энергий до 4.5 эВ наблюдается уменьшение скорости рассеяния при увеличении концентрации дефектов. Аномальную зависимость скорости рассеяния γ_k от концентрации (уменьшение γ_k при увеличении концентрации) можно объяснить тем, что при введении тяжелой примеси плотность колебательных состояний в низкочастотной области увеличивается и соответственно в более высокочастотной уменьшается. Вероятно, при рассматриваемых температурах наибольший вклад в рассеяние дают колебания, частота которых попадает в область с уменьшенной плотностью состояний. Подтверждением этому могут служить наши расчеты скорости рассеяния низкоэнергетических электронов (0.1 эВ) на акустических колебаниях.

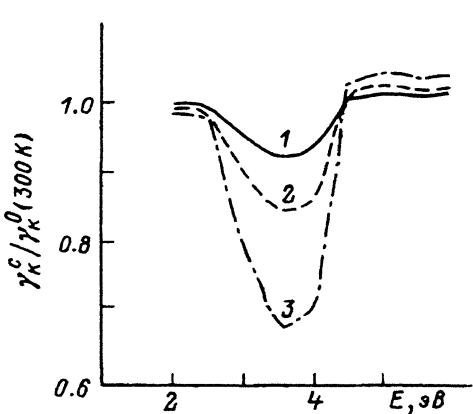


Рис. 3. То же, что и на рис. 1, для рассеяния на акустических колебаниях.

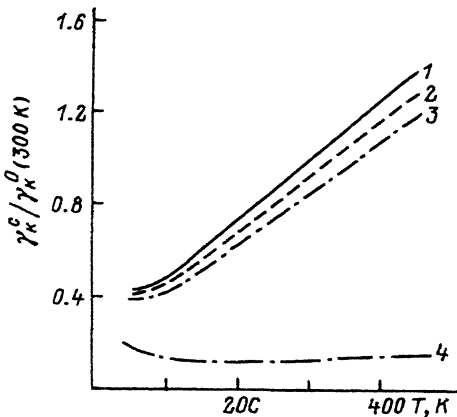


Рис. 4. То же, что и на рис. 2, для рассеяния на акустических колебаниях.

В этом случае существует область температур (до 100 К), где скорость рассеяния увеличивается при росте концентрации дефектов.

На рис. 4 в качестве примера представлены рассчитанные скорости рассеяния $\gamma_k^c / \gamma_k^0(300\text{ K})$ электронов с энергией 4.0 эВ на акустических колебаниях в зависимости от температуры для следующих значений концентраций дефектов: 2.5, 5, 10.0 и 30 ат.% (кривые 1–4). При температуре около 100 К наблюдается изменение наклона кривых. Кроме того, при больших концентрациях дефектов (30 ат.%) скорость рассеяния слабо меняется с температурой.

В настоящее время, к сожалению, отсутствуют экспериментальные данные для проверки количественных результатов расчета. Можно отметить лишь некоторые косвенные экспериментальные подтверждения найденных зависимостей. Как отмечалось выше, при рассеянии электронов на акустических колебаниях дефектной решетки с низкочастотным квазилокальным уровнем наблюдается уменьшение скорости рассеяния при увеличении концентрации дефектов. Аналогичное поведение было обнаружено экспериментально при измерении удельного сопротивления сплавов [8,9]. В зависимости от массы примеси в Mg наблюдалось как увеличение, так и уменьшение относительного удельного электросопротивления. Такое поведение связывалось с наличием квазилокальных колебаний в фоновом спектре металла [3].

Обратим также внимание на работы по лучевой прочности ШГК [10], где различная обработка кристаллов приводит к качественным изменениям в температурных зависимостях значений порогов разрушения. Поскольку величина порога разрушения определяется скоростью γ_k рассеяния электронов [2], то можно предположить, что одной из причин различий в температурной зависимости порогов разрушения для одних и тех же кристаллов, но обработанных по-разному, является дополнительное рассеяние на локализованных колебаниях.

Таким образом, проведенные расчеты свидетельствуют о существенной роли локализованных колебаний в процессах рассеяния электронов при их транспорте в диэлектриках. Для проверки наблюдаемых зависимостей необходима постановка специальных экспериментов на кристаллах с контролируемым содержанием примесей.

Корреляционная функция Ван Хова равна [11]

$$S(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{N} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \langle \sum_{l, l'} a_l(\mathbf{q}) a_{l'}(\mathbf{q}) \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_l(t) + i\mathbf{q}\mathbf{R}_{l'}(0)) \rangle, \quad (\text{П.1})$$

где $\mathbf{R}_l = \mathbf{R}_l^0 + \mathbf{u}_l$ — радиус-вектор иона l ; \mathbf{u}_l — оператор смещения иона l из положения равновесия; $a_l(\mathbf{q})$ — амплитуда рассеяния электрона на атоме l ; N — число ионов в кристалле. Символ $\langle \dots \rangle$ означает статистическое среднее с гамильтонианом, описывающим систему ионов.

В гармоническом приближении при учете только однофононных переходов корреляционная функция имеет вид

$$S(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{N} \sum_{l, l'} a_l(\mathbf{q}) a_{l'}(\mathbf{q}) \exp(-W(l') - W(l)) \langle (\mathbf{q}\mathbf{u}(l, t)) (\mathbf{q}\mathbf{u}(l', 0)) \rangle_{\omega}. \quad (\text{П.2})$$

Здесь $2W(l) = \langle (\mathbf{q}\mathbf{u}(l, 0)^2) \rangle$ — фактор Дебая-Валлера. Фурье-компоненты корреляционных функций связаны с элементами функции Грина соотношением [11]

$$\langle u_{\alpha}(l, t) u_{\beta}(l', 0) \rangle_{\omega} = 2 \text{sign} \omega (n(\omega) + 1) \text{Im} G_{\alpha\beta}(l, l'; \omega^2 - i\varepsilon), \quad (\text{П.3})$$

где

$$n(\omega) = (e^{\omega/T} - 1)^{-1},$$

ε — бесконечно малая положительная величина.

В настоящей работе для вычисления элементов функции Грина использовали рекурсивный метод [12]. Диагональные элементы функции Грина в рекурсивном методе представляются в виде непрерывной дроби [12]

$$G_{\alpha\beta}(l, l'; z^2) = \frac{1}{z^2 - a_1 - \frac{b_1}{z^2 - a_2 - \dots - \frac{b_{k-1}}{z^2 - a_k b_k t(z^2)}}}, \quad (\text{П.4})$$

где $t(z)$ — функция обрыва непрерывной дроби, а коэффициенты a_n, b_n находятся из рекуррентного соотношения вида

$$|n + 1 \rangle = (D - a_n)|n \rangle - b_{n-1}|n - 1 \rangle. \quad (\text{П.5})$$

Здесь D — динамическая матрица кластера, моделирующего кристалл. Векторы $|n \rangle, n = 1, 2, 3, \dots$ образуют базис, в котором матрица D имеет трехдиагональную форму. Выбирая начальный вектор $|1 \rangle = |l, \alpha \rangle$, можно по формулам (П.4), (П.5) рассчитать диагональные элементы функции Грина $G_{\alpha\beta}(l, l')$: Алгоритм расчета функции обрыва $t(\omega)$ и диагональных элементов функции Грина описан в работе [13].

Недиагональные элементы функции Грина вычислялись по схеме, описанной в работе [12]. Для этого сначала рассчитывали резольвенту $R_{\alpha\beta}^+$ по формулам (П.4), (П.5) путем выбора начального вектора в виде

$$|1\rangle = (|l, \alpha\rangle + |l', \beta\rangle) / \sqrt{2},$$

а затем — резольвенту $R_{\alpha\beta}^-$ с начальным вектором

$$|1\rangle = (|l, \alpha\rangle - |l', \beta\rangle) / \sqrt{2}.$$

Недиагональные элементы функции Грина вычислялись по формуле

$$G_{\alpha\beta}(l, l') = (R_{\alpha\beta}^+ - R_{\alpha\beta}^-) / 2.$$

Список литературы

- [1] Гантмахер В.Ф., Левинсон И.Б. Рассеяние носителей тока в металлах и полупроводниках. М.: Наука, 1984. С. 350.
- [2] Sparks M., Mills D.L., Warren R. et al. // Phys. Rev. B. 1981. V. 24. N 6. P. 3519–3536.
- [3] Жернов А.П., Черноплеков Н.А., Мрозан Э. Металлы с немагнитными примесями атомами. М.: Энергоатомиздат, 1992. С. 363.
- [4] Марадудин А.А. Дефекты и колебательный спектр кристаллов. М.: Мир, 1967. С. 432.
- [5] Maradudin A.A., Mazur P., Montrol E.W., Weiss G.H. // Rev. Mod. Phys. 1958. V. 30. N 1. P. 175–196.
- [6] Llaser J., Garwin E.L. // J. Appl. Phys. 1969. V. 40. N 7. P. 2766–2775.
- [7] Захаров С.И., Фивейский Ю.Д. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 1. С. 124–133.
- [8] Hedgcock F.T., Muir W.B. // Phys. Rev. 1964. V. 136. N 2A. P. 561–568.
- [9] Damon D.H., Klemens P.G. // Phys. Rev. 1965. V. 138. N 5A. P. 1390–1394.
- [10] Горшков Б.Г., Данилейко Ю.К., Епифанов А.С. и др. // ЖЭТФ. 1977. Т. 72. № 3. С. 1171–1181.
- [11] Каган Ю., Жернов А.П. // ЖЭТФ. 1966. Т. 50. № 4. С. 1107–1123.
- [12] Black J.E., Laks B., Mills D.L. // Phys. Rev. B. 1980. V. 22. N 4. P. 1818–1829.
- [13] Мазуренко В.Г. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 11. С. 3399–3403.

Уральский государственный
технический университет
Екатеринбург

Поступило в Редакцию
7 июня 1993 г.