

03,08

Резонансное и релаксационное поглощение ультразвука анизотропными ян-теллеровскими центрами в GaAs

© К.А. Барышников¹, Н.С. Аверкиев¹, А.М. Монахов¹, В.В. Гудков²

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

² Уральский федеральный университет им. первого Президента России Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия

E-mail: barysh.1989@gmail.com

(Поступила в Редакцию 5 сентября 2011 г.)

Теоретически изучен вклад эффекта Яна-Теллера в поглощение ультразвуковой волны кристаллом GaAs, легированным медью. Отличительной особенностью рассматриваемой задачи является существование двух дырок в состоянии сложной валентной зоны. Найдена величина туннельного расщепления в ян-теллеровском центре. Получены теоретические значения коэффициентов поглощения для резонансного и релаксационного типов поглощения. Оценены величины этих коэффициентов.

Работа выполнена при частичной поддержке Министерства науки и образования РФ (гк № 14.740.11.0892 и договор 11.G34.31.0001 с СПбГПУ и ведущим ученым Г.Г. Павловым), РФФИ и научных программ РАН.

1. Введение

Экспериментальные исследования распространения ультразвука в полупроводниках позволяют определить такие важные параметры материала, как упругие модули, времена релаксации, симметрию дефектов [1]. Особую роль в этой методике играет изучение резонансного и релаксационного поглощения. Резонансное поглощение наиболее эффективно, если все уровни расщеплены на одинаковую величину, совпадающую с энергией поглощаемого фонона. Однако такой случай не всегда реализуется, поскольку исходное расщепление может флуктуировать за счет воздействия на дефект случайных деформационных, магнитных или электрических полей. Кроме резонансного возможно также релаксационное поглощение ультразвука, связанное с неравновесностью (отставанием от равновесного) заполнения расщепленных подуровней центра, изменяющих свое положение в поле звуковой волны [2–4]. Поскольку энергии звуковых квантов существенно меньше энергии квантов электромагнитного поля, используемых в оптических экспериментах или при измерениях ЭПР, поглощение ультразвука позволяет изучать примеси, у которых основное состояние расщеплено на небольшую величину.

Такое относительно небольшое расщепление может возникать в ян-теллеровских центрах за счет туннелирования ядер между эквивалентными симметричными конфигурациями [5] в полупроводниках A_2B_6 [4,6–8]. В настоящей работе рассмотрено поглощение ультразвука в GaAs, содержащем анизотропные ян-теллеровские дефекты.

В работе [9] показано, что элементы группы I Периодической таблицы (Cu, Ag, Au) создают в кристалле GaAs глубокие акцепторы, связывающие две дырки в основном состоянии, и эти дырки оказываются подвержены сильному эффекту Яна-Теллера. В работе [9]

изучались статические свойства Cu, Ag, Au и не рассматривались динамические задачи. Далее показано, что динамическое (туннельное) расщепление этих центров составляет несколько микроэлектронвольт и может привести к резонансному и релаксационному поглощению ультразвука. Показано, что в GaAs:Cu в экспериментально достижимых условиях возможно наблюдение обоих видов поглощения.

2. Анизотропия ян-теллеровского центра, вид адиабатических потенциалов и динамика деформации ядерной конфигурации

В настоящей работе для определенности рассмотрим наиболее изученный центр Cu_{Ga} . Согласно результатам исследований [10–12], центр Cu в GaAs с уровнем, лежащим на 0.15 eV выше потолка валентной зоны, представляет собой нейтральный акцептор Cu_{Ga}^0 , который связывает две дырки, взаимодействующие с E -модой колебаний комплекса $Cu_{Ga}4As$, образованного из иона Cu и четырех ближайших к нему атомов As. Благодаря этому взаимодействию комплекс обладает тетрагональной симметрией, т.е. искажен вдоль одной из осей $\langle 100 \rangle$ (эффект Яна-Теллера). Статическое смещение атомов As в комплексе $Cu_{Ga}4As$ из узлов решетки составляет $\sim 0.15 \text{ \AA}$, высота барьера между эквивалентными ориентациями при отсутствии давления приблизительно равна 10 meV, энергия ян-теллеровской стабилизации лежит в диапазоне 10–16 meV [9].

В рамках модели, развитой в работах [9–12], предполагается, что две дырки, входящие в исходном состоянии Γ_8 , взаимодействуют с колебаниями ядер комплекса симметрии T_d : A_1 -, E - и $2F_2$ -колебаниями. В общем случае, согласно теореме Яна-Теллера, взаимодействие

дырок с неполносимметричными колебаниями E - и F_2 -типа может приводить к понижению симметрии данного комплекса, тогда как взаимодействие с полносимметричными колебаниями A_1 изменяет объем комплекса, но не искажает его [8]. Полносимметричные колебания не приводят к расщеплению уровней и, следовательно, к поглощению ультразвука, поэтому взаимодействие дырок с ними не рассматривается. Из совокупности экспериментальных данных, представленных в работе [13], следует, что для данного центра взаимодействие дырок с F_2 -колебаниями несущественно и далее также рассматриваться не будет.

Для описания данной системы воспользуемся адиабатическим приближением, тогда эффективную потенциальную энергию взаимодействия i -й дырки с колебаниями атомов в базисе одночастичных волновых функций можно составить, пользуясь методом инвариантов:

$$\hat{V}(i) = \frac{b'}{2} [(3\hat{J}_z^2(i) - \hat{J}^2(i))Q_2 + \sqrt{3}(\hat{J}_x^2(i) - \hat{J}_y^2(i))Q_3], \quad (1)$$

где $\hat{J}_j(i)$ — оператор проекции момента импульса на ось j ($j = x, y, z$), индекс i обозначает номер дырки ($i = 1, 2$), т.е. оператор с индексом i действует только на переменные i -й дырки, $\hat{J}^2 = \hat{J}_x^2 + \hat{J}_y^2 + \hat{J}_z^2$, Q_2 и Q_3 — нормальные координаты колебаний E -типа.

Исходное состояние дырок характеризуется полным моментом $J(i) = 3/2$, и, согласно принципу Паули, двухчастичная волновая функция должна быть антисимметричной по отношению к перестановкам координат дырок. Это означает, что суммарный момент двух дырок может принимать только два значения: $J = 0$ и 2 .

Оператор обменного взаимодействия, определяющий расщепление уровней с $J = 0$ и 2 , в сферическом приближении имеет вид

$$\hat{H}_{\text{exch}} = -\Delta(\hat{\mathbf{J}}(1)\hat{\mathbf{J}}(2)), \quad (2)$$

где Δ — константа обменного взаимодействия. Причем при $\Delta > 0$ основным будет уровень $J = 2$, а при $\Delta < 0$ — уровень $J = 0$.

В базисе двухчастичных волновых функций, отвечающих полному моменту $J = 0$ и его проекции на ось z $J_z = 0$, а также $J = 2$ и соответствующему ему $J_z = 0, \pm 1, \pm 2$, эффективный потенциал атомов в среднем поле дырок примет вид

$$\hat{W} = \langle J^m J_z^m | \hat{V}(1) + \hat{V}(2) + \hat{H}_{\text{exch}} | J^n J_z^n \rangle = \begin{pmatrix} \frac{15}{4}\Delta & Fq_2 & 0 & 0 & \frac{F}{\sqrt{2}}q_3 & -\frac{F}{\sqrt{2}}q_3 \\ Fq_2 & \frac{3}{4}\Delta & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{3}{4}\Delta & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{3}{4}\Delta & 0 & 0 \\ \frac{F}{\sqrt{2}}q_3 & 0 & 0 & 0 & \frac{3}{4}\Delta & 0 \\ -\frac{F}{\sqrt{2}}q_3 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{3}{4}\Delta \end{pmatrix}, \quad (3)$$

где элементы в матрице по столбцам слева направо ($n = 1, \dots, 6$) и по строкам сверху вниз

($m = 1, \dots, 6$) соответствуют набору ($k = 1, \dots, 6$) двухчастичных базисных волновых функций $\vartheta_{J,J_z}^k = |J^k J_z^k\rangle: \vartheta_{0,0}, \vartheta_{2,0}, \vartheta_{2,1}, \vartheta_{2,-1}, \vartheta_{2,2}, \vartheta_{2,-2}$. Здесь $F = 2b'$ — линейная константа вибронного взаимодействия, а $q_2 = 3Q_2/2$, $q_3 = 3Q_3/2$ — новые координаты, полученные после масштабирования, соответствующие тем же E -колебаниям.

Рассмотрим сначала статическую задачу ($M \rightarrow \infty$, где M — масса четырех атомов As). Тогда эффективные потенциальные энергии атомов в среднем поле дырок, или адиабатические потенциалы (АП), равны сумме собственных значений матрицы (3) $u^v(q_2, q_3)$ и упругой энергии атомного остова, соответствующей E -колебаниям,

$$u(q_2, q_3) = \frac{K}{2}(q_2^2 + q_3^2) + u^v(q_2^2, q_3^2), \quad (4)$$

где K — коэффициент упругости атомного остова комплекса, рассчитанный без учета эффекта Яна–Теллера, а v нумерует ветви АП.

Как показывает расчет, существует три значения u^v :

$$u^\pm = \frac{3}{4}\Delta + \frac{3}{2}\Delta \pm \sqrt{\frac{9}{4}\Delta^2 + F^2(q_2^2 + q_3^2)}, \quad u^0 = \frac{3}{4}\Delta, \quad (5)$$

причем последнее четырехкратно вырождено.

В полярной системе координат АП такого центра зависят только от $\rho = (q_2^2 + q_3^2)^{1/2}$ и не зависят от угла. У нижней ветви АП u^- имеется новый потенциальный минимум в точке $\rho_0 = (F/K)(1 - \chi^2)^{1/2} \neq 0$, где $\chi = 3\Delta K/2F^2$ — константа, связанная с влиянием обменного взаимодействия. Видно, что обменное взаимодействие уменьшает эффект Яна–Теллера, а при $|\chi| > 1$ равновесное искажение симметрии центра отсутствует.

Собственная функция, соответствующая нижней ветви u^- , равна

$$\psi_- = \frac{\vartheta_{0,0}\lambda_- + \vartheta_{2,0}Fq_2 + (\vartheta_{2,2} - \vartheta_{2,-2})Fq_3/\sqrt{2}}{\sqrt{\lambda_-^2 + F^2(q_2^2 + q_3^2)}}, \quad (6)$$

где $\lambda_- = u^- - 3\Delta/4$.

Учет квадратичного по координатам q_2 и q_3 взаимодействия дырок с E -колебаниями сводится к замене в (5) q_2, q_3 на $q_2 + (q_2^2 - q_3^2)G/F$, $q_3 - 2q_2q_3G/F$, где G — квадратичная константа вибронного взаимодействия [11]. Можно показать [5], что это приводит к появлению трех минимумов на нижней ветви АП (рис. 1). В случае $|G\rho_0| \ll |F|$ эти минимумы расположены при $\rho = \rho_0$ и $\arctan(q_3/q_2) = \Phi_n^0 = n\pi/3$, $n = 0, 2, 4$ при $FG > 0$, а точки перевалов АП в данном приближении будут находиться на той же окружности $\rho = \rho_0$ в точках $\arctan(q_3/q_2) = \Phi_n^1 = n\pi/3$, $n = 1, 3, 5$. Случай $FG < 0$ соответствует перестановкам минимумов и перевалов, что сводится к замене оси отсчета угла в полярных координатах. Далее для определенности будем рассматривать $F > 0$ и $G > 0$.

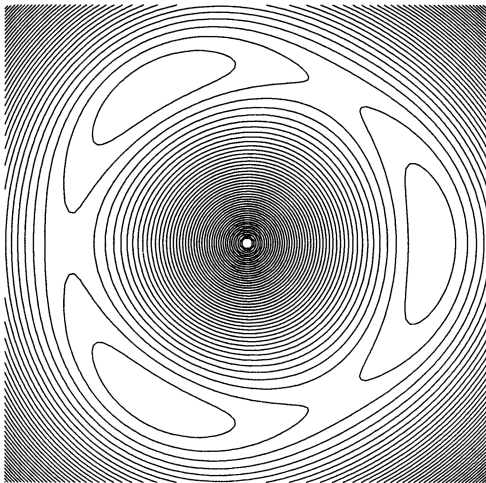


Рис. 1. Три ямы нижнего листа АП для случая $|G\rho_0| \ll |F|$ (вид сверху). Вдоль каждой из замкнутых линий энергия постоянна.

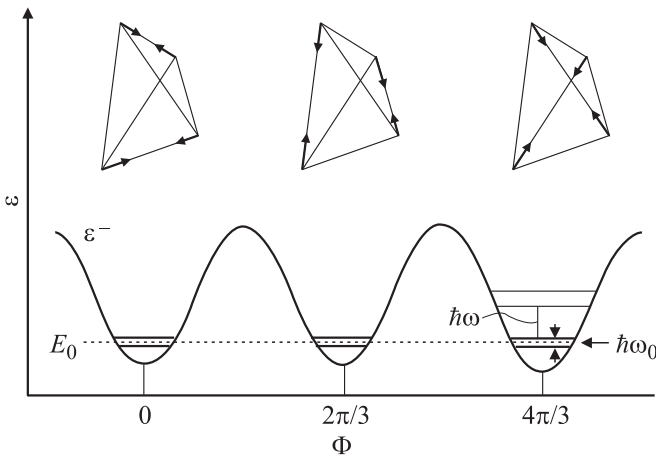


Рис. 2. Три ямы нижнего листа АП в зависимости от угла Φ [5] и соответствующие им искажения атомного остова квазимолекулы $\text{Cu}_{\text{Ga}}4\text{As}$; $\hbar\omega$ — энергетическое расстояние между колебательными уровнями, E_0 — основной нерасщепленный уровень трех осцилляторов, $\hbar\omega_0$ — туннельное расщепление.

В статическом приближении система будет находиться в одном из трех возможных положений. Пользуясь (6), можно записать вид собственных волновых функций для статической задачи в каждом из минимумов:

$$\psi_i = -\sqrt{\frac{1-\kappa}{2}} \vartheta_{0,0} + \sqrt{\frac{1+\kappa}{2}} \cos \Phi_{2(i-1)}^0 \vartheta_{2,0} + \frac{1}{2} \sqrt{1+\kappa} \sin \Phi_{2(i-1)}^0 (\vartheta_{2,2} - \vartheta_{2,-2}), \quad (7)$$

где i соответствует минимумам АП ($i = 1, 2, 3$).

При большой, но конечной массе атомов M система будет совершать колебания вокруг данного классического положения равновесия. Если масса достаточно

велика, то можно рассматривать эти колебания как три независимых линейных двумерных осциллятора, соответствующие трем минимумам АП в основном состоянии E_0 . Частота колебаний

$$\omega = \sqrt{\frac{9U_0}{M\rho_0^2}} = 3\sqrt{\frac{KG\rho_0}{FM}} \quad (8)$$

будет соответствовать энергетическому расстоянию от минимума до уровня колебаний E_0 , много меньшему высоте потенциального барьера $U_0 = KG\rho_0^3/F$ в обходе по окружности $\rho = \rho_0$.

Вообще говоря, волновая функция одного из осцилляторов проникает под барьер и „чувствует“ подбарьерный хвост функции другого осциллятора. Поэтому необходимо рассмотреть влияние осцилляторов друг на друга. Динамическая задача состоит в том, чтобы учесть это влияние и рассчитать на его основе новые смешанные дырочные и колебательные (вибронные) состояния, соответствующие динамике ядерного остова, точнее его переориентации вследствие туннелирования под барьер (рис. 2). Для получения аналитического выражения для туннельного расщепления выполнен расчет в рамках квазиклассического приближения, а расщепление для реальных параметров центра $\text{Cu}_{\text{Ga}}4\text{As}$ рассчитано численно.

В рассматриваемой квазимолекуле $\text{Cu}_{\text{Ga}}4\text{As}$ энергетическое расстояние между уровнями для радиальных колебаний равно $\hbar\omega_\rho \sim \sqrt{K/M}$, а для колебаний по углу Φ равно $\hbar\omega_\Phi = \hbar\omega \sim \sqrt{G/M}$. В силу соотношения $G\rho_0 \ll F$ (или $G \ll K$) можно считать, что туннелирование будет происходить по углу Φ без изменения квантово-механического состояния движения системы по радиусу ρ . Тогда можно произвести разделение переменных и получить одномерное уравнение Шредингера на окружности

$$-\frac{\hbar^2}{2M} \phi'' + U(x)\phi = E\phi, \quad (9)$$

где $U(x) = -U_0 \cos(3x/\rho_0) = -U_0 \cos 3\Phi$ (рис. 2), а $x = \rho_0\Phi$. В рамках квазиклассической теории туннелирование будет слабым, поэтому будем искать функцию ϕ в виде линейной комбинации функций (7) [14], соответствующих минимумам АП:

$$\phi(x) = C_1\chi_1(x)\psi_1 + C_2\chi_2(x)\psi_2 + C_3\chi_3(x)\psi_3, \quad (10)$$

где χ_1, χ_2, χ_3 — собственные функции осцилляторов для минимумов 1, 2 и 3 АП соответственно, а C_1, C_2, C_3 — некоторые константы.

Для непроницаемых барьеров существует уровень энергии E_0 , отвечающий движению системы в отдельной яме, а исходно основное состояние системы трехкратно вырождено. Возможность перехода через барьер приводит к расщеплению основного состояния на близкие уровни (рис. 2).

Для расчета туннельного расщепления рассмотрим три участка на окружности длиной $2\rho_0\pi/3$ каждый. Центры этих участков выберем в точках минимумов $U(x)$. Напишем уравнение Шредингера для отдельной независимой i -й потенциальной ямы и уравнение для ϕ

$$\begin{aligned} \psi_i'' + \frac{2M}{\hbar^2} (E_0 - U(x))\psi_i &= 0, \\ \phi'' + \frac{2M}{\hbar^2} (E - U(x))\phi &= 0. \end{aligned} \quad (11)$$

Домножая первые уравнения ($i = 1, 2, 3$) в (11) на ϕ , а вторые — на ψ_i , затем вычитая одно из другого и интегрируя по участку окружности, соответствующему индексу i , получим систему из трех уравнений. Используя равенство (10) и то, что волновые функции осцилляторов $\chi_i(x)$ экспоненциально затухают вне данной i -й ямы, получим задачу на собственные значения E и соответствующие им собственные векторы

$$\begin{pmatrix} E - E_0 & V & V \\ V & E - E_0 & V \\ V & V & E - E_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{pmatrix} = 0, \quad (12)$$

где $V = (\hbar^2/4M)(3\kappa - 1)\chi(\frac{\pi\rho_0}{3})\chi'(\frac{\pi\rho_0}{3})$. Собственные значения и собственные векторы равны

$$\begin{aligned} \tilde{E}_0 &= E_0 - 2V, \quad \phi_0 = \frac{1}{\sqrt{3}}(\psi_1^{(0)} + \psi_2^{(0)} + \psi_3^{(0)}), \\ \tilde{E}_{1,2} &= E_0 + V, \quad \phi_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}(\psi_1^{(0)} - \psi_3^{(0)}), \\ \phi_2 &= \frac{1}{\sqrt{6}}(\psi_1^{(0)} - 2\psi_2^{(0)} + \psi_3^{(0)}), \end{aligned} \quad (13)$$

где $\psi_i^{(0)} = \chi_i(x)\psi_i$.

Туннельное расщепление равно $\hbar\omega_0 = 3V$, а квазиклассические волновые функции под барьером имеют вид $\chi(x) \approx \sqrt{M\omega/2\pi|p|} \exp(-(1/\hbar) \int_0^{\pi\rho_0/3} |p(x)| dx)$, где, пренебрегая E_0 , запишем $|p(x)| \approx \sqrt{2MU(x)}$ — модуль классического импульса в данной точке потенциала $U(x)$. Окончательно величина туннельного расщепления равна

$$\hbar\omega_0 = \frac{3\hbar\omega}{8\pi} |1 - 3\kappa| \exp\left(-\frac{8}{3\hbar} \rho_0^2 \sqrt{MG(1 - \kappa^2)^{1/2}}\right), \quad (14)$$

где $\kappa = 3\Delta K/2F^2$. При $-1 < \kappa < 1/3$ основным будет невырожденный уровень $E = E_0 - 2V$, а при $1/3 < \kappa < 1$ — двукратно вырожденный уровень $E = E_0 + V$; при $\kappa = 1/3$ туннельного расщепления нет ($\hbar\omega_0 = 0$), т.е. система остается в трехкратно вырожденном состоянии.

Формула (14) справедлива в случае, когда выполняются соотношения $G\rho_0 \ll F$ и $\hbar\omega \ll U_0$, однако для комплекса $\text{Cu}_{\text{Ga}}4\text{As}$, согласно работе [9], эти соотношения не выполняются. Поэтому для определения туннельного

расщепления и для проверки полученных аналитических выражений исходная задача на собственные значения с матрицей вибронного взаимодействия (3) для системы с конечной массой была решена численно.

Можно показать, что и при учете конечной массы состояния $\nu_{2,1}$ и $\nu_{2,-1}$ не подвержены эффекту Ян-Теллера, так что соответствующая матрица \hat{W} будет иметь размерность 4×4 . Тогда уравнение Шредингера в безразмерных единицах имеет вид

$$\begin{aligned} -\frac{1}{m} (\partial^2/\partial q_2^2 + \partial^2/\partial q_3^2) \hat{I} \chi + (q_2^2 + q_3^2) \hat{I} \chi \\ + \begin{pmatrix} \kappa & q_2 & \frac{1}{\sqrt{2}} q_3 & -\frac{1}{\sqrt{2}} q_3 \\ q_2 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{1}{\sqrt{2}} q_3 & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} q_3 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \chi \\ + Q \begin{pmatrix} 0 & (q_2^2 - q_3^2) & -\sqrt{2} q_2 q_3 & \sqrt{2} q_2 q_3 \\ (q_2^2 - q_3^2) & 0 & 0 & 0 \\ -\sqrt{2} q_2 q_3 & 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{2} q_2 q_3 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \chi = \varepsilon \chi, \end{aligned} \quad (15)$$

где q_2, q_3 — безразмерные координаты, полученные из исходных координат данной системы заменой $q_2 \rightarrow \alpha q_2, q_3 \rightarrow \alpha q_3$; $m = 2M\beta\alpha^2/\hbar^2$ — безразмерная масса, $Q = G\alpha^2/\beta$ — безразмерная квадратичная вибронная константа, $\kappa = 3\Delta/\beta$ и $\varepsilon = E/\beta$ — безразмерные константа обменного взаимодействия и общая энергия системы, \hat{I} — единичная матрица размерностью 4×4 . Единицы измерения координат и энергии равны соответственно $\alpha = 2F/K$ и $\beta = 2F^2/K$.

В указанных единицах измерения величина туннельного расщепления уровней (14) и условия его применимости переписутся в виде

$$\begin{aligned} \hbar\omega_0 &= \frac{9\sqrt{2}}{8\pi} (1 - \kappa^2)^{1/4} (1 - 3\kappa) \sqrt{\frac{Q}{m}} \\ &\times \exp\left(-\frac{\sqrt{2}}{3} \sqrt{Qm} (1 - \kappa^2)^{5/4}\right), \end{aligned} \quad (16)$$

где $Q \ll 1, \sqrt{Qm} \gg 1$.

Сравнение результатов численных расчетов туннельного расщепления и аналитической формулы (16) для различных значений параметров данной ян-теллеровской системы, взятых из [9], приведено в таблице.

Из таблицы видно, что значения $\hbar\omega_0$ и полученного численно туннельного расщепления $\hbar\omega_{\text{num}}$ для реальных параметров задачи отличаются друг от друга в десятки раз как в большую, так и в меньшую сторону. Это связано с тем, что условия применимости для расчета туннельного расщепления (14) не выполняются.

Результаты численного расчета

N_0 n/n	Δ meV	$F \cdot 10^6$, eV/cm	$G \cdot 10^{15}$, eV/cm ²	$K \cdot 10^{15}$, eV/cm ²	κ	m	Q	\sqrt{Qm}	$\hbar\omega_0 \cdot 10^{-17}$, erg	$\hbar\omega_{num} \cdot 10^{-17}$, erg
1	0	4.4	1.6	5.0	0	34	0.64	5	9.65	1.24
2	0	6.4	2.0	6.9	0	58	0.58	6	6.34	1.90
3	2	6.3	1.4	5.6	0.42	101	0.50	7	-1.51	0.38
4	0	8.8	2.8	10.0	0	68	0.56	6	6.28	2.47
5	4	7.8	2.0	7.5	0.74	99	0.53	7	-27.09	-2.59
6	0	13.4	1.14	9.0	0	499	0.25	11	0.36	4.44
7	4	13.4	1.2	9.2	0.31	467	0.26	11	0.06	4.96
8	8	13.4	1.3	9.3	0.62	452	0.28	11	-3.35	2.44

Из таблицы также видно, что $\kappa = 1/3$ не является критическим значением данного параметра, при котором происходит вырождение всех трех нижних уровней системы и при проходе через которое основным становится двукратно вырожденный уровень, а невырожденный становится следующим возбужденным уровнем. Однако наблюдается изменение положения двукратно и однократно вырожденных уровней друг относительно друга, выраженное в изменении знака величины туннельного расщепления, но при другом значении критического параметра κ .

Расчет $\hbar\omega_{num}$ при изменении константы обменного взаимодействия показал, что критическое значение κ не равняется $1/3$ и зависит от того, при каких ян-теллеровских параметрах мы рассматриваем данную систему.

Для проверки формулы (14) был проведен еще один численный расчет. Условия применимости формулы (14) требуют достаточно большой массы при малой квадратичной вибронной константе, поэтому для преодоления трудностей численного расчета в случае малого параметра при старшей производной уравнение

Шредингера (15) удобно переписать в новых единицах измерения координат и энергии: $\alpha' = (\hbar^2/MK)^{1/4}$ и $\beta' = (\hbar^2K/4M)^{1/2}$. В этой системе единиц масса равна единице, а вибронные линейная и квадратичная константы запишутся в виде $f = F\alpha'/\beta'$ и $g = G\alpha'^2/\beta'$.

Формула для логарифма $\hbar\omega_0$ в новой системе единиц имеет вид

$$\ln(\hbar\omega_0) = \ln\left(\frac{9\sqrt{2}}{8\pi} (1 - \kappa^2)^{1/4} (1 - 3\kappa) \sqrt{g}\right) - \frac{\sqrt{2}}{3} (1 - \kappa^2)^{5/4} \sqrt{g} f^2. \tag{17}$$

Результаты численного расчета $\ln(\hbar\omega_{num})$ в зависимости от f^2 при фиксированных значениях $\kappa = 0$ и $g = 0.01$ приведены на рис. 3.

Из рис. 3 видно, что экспоненциальная часть формулы верна, поскольку обе прямые практически параллельны. Две прямые сдвинуты друг относительно друга, а это значит, что ошибка в теоретической формуле (14) находится в предэкспоненте. Отсюда следует, что квазиклассическая теория не может дать точную предэкспоненциальную часть, но тем не менее дает достаточно точную экспоненциальную часть, с помощью которой мы можем оценить туннельное расщепление по порядку величины.

Согласно данным таблицы, величина туннельного расщепления составляет $1-10 \mu\text{eV}$, что соответствует частотам ультразвука порядка 1 GHz . Далее выполнен расчет поглощения ультразвука в кристаллах, содержащих такие ян-теллеровские центры.

3. Взаимодействие центра с ультразвуком и расчет коэффициентов поглощения

Одна из особенностей полупроводников состоит в эффективном взаимодействии носителей заряда со статическими и звуковыми деформациями в кристалле. Наличие исходного расщепления уровней (вызванного, например, эффектом Яна-Теллера [4,5] или случайными электрическими и деформационными полями [2,3])

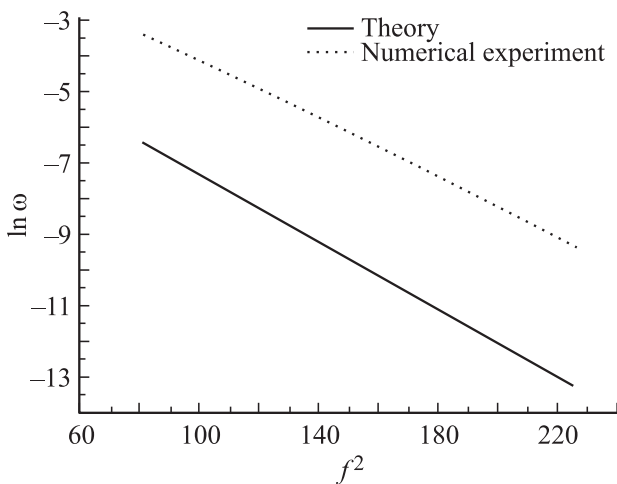


Рис. 3. Зависимости $\ln(\hbar\omega_0)$ (сплошная линия) и $\ln(\hbar\omega_{num})$ (пунктирная линия) от f^2 .

будет приводить к переходам между уровнями под воздействием ультразвука и вызывать его поглощение.

Влияние внешней деформации на дырки, находящиеся в состоянии симметрии типа Γ_8 , описывается гамильтонианом Бира–Пикуса [15] $V_\varepsilon(i)$, содержащим три константы деформационного потенциала a_T , b_T и d_T :

$$\begin{aligned} \hat{V}_\varepsilon(i) = & a_T \hat{I}(i) \text{Sp} \varepsilon + b_T \left(\frac{3\hat{J}_z^2(i) - \hat{J}^2(i)}{3} \varepsilon_1 \right. \\ & \left. + \frac{\hat{J}_x^2(i) - \hat{J}_y^2(i)}{2} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) \right) + \frac{2d_T}{\sqrt{3}} (\{\hat{J}_x(i), \hat{J}_y(i)\} \varepsilon_{xy} \\ & + \{\hat{J}_y(i), \hat{J}_z(i)\} \varepsilon_{yz} + \{\hat{J}_x(i), \hat{J}_z(i)\} \varepsilon_{xz}). \end{aligned} \quad (18)$$

Здесь ε_{lk} — компоненты тензора деформации, $\text{Sp} \varepsilon = \sum_l \varepsilon_{ll}$, $\varepsilon_1 = \varepsilon_{zz} - (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy})/2$, а i нумерует дырки ($i = 1, 2$).

Собственные ультразвуковые колебания в кристалле кубической симметрии (GaAs), распространяющиеся вдоль направления $\mathbf{k} \parallel [110]$, имеют три моды (одну продольную и две поперечные), векторы деформации которых направлены соответственно вдоль $[110]$ и $[\bar{1}10]$, $[001]$. Подставив соответствующие компоненты тензора деформации для каждой из трех волн в выражение (18), можно получить операторы взаимодействия ультразвука с одной дыркой для трех поляризаций звуковой волны: $\hat{V}_\varepsilon^{[110]}(i)$, $\hat{V}_\varepsilon^{[\bar{1}10]}(i)$, $\hat{V}_\varepsilon^{[001]}(i)$. Для расчета коэффициентов поглощения, обусловленного ян-теллеровским центром с двумя дырками, необходимо перейти в базис двухчастичных волновых функций дырок ϑ_{J,J_z} . Тогда получим три оператора взаимодействия ультразвука с акцептором, связывающим две дырки: $\hat{W}_\varepsilon^{[110]}$, $\hat{W}_\varepsilon^{[\bar{1}10]}$, $\hat{W}_\varepsilon^{[001]}$.

Поперечные ультразвуковые волны, поляризованные вдоль $[001]$, не взаимодействуют с комплексом, поскольку оператор $\hat{W}_\varepsilon^{[001]}$ соответствует взаимодействию данной волны только с состояниями дырок $\vartheta_{2,1}$ и $\vartheta_{2,-1}$, а в выражения (6), (7) и функции ϕ_i , описывающие состояния исследуемого комплекса, состояния $\vartheta_{2,1}$ и $\vartheta_{2,-1}$, не входят.

Для поляризации $[\bar{1}10]$ оператор взаимодействия исследуемого ян-теллеровского центра с ультразвуком, вычисленный на основе функций (13), имеет вид

$$\begin{aligned} \hat{H}_\varepsilon^{[\bar{1}10]} = & \langle \phi_i | \hat{W}_\varepsilon^{[\bar{1}10]} | \phi_j \rangle \\ = & \begin{pmatrix} 0 & -b(\varepsilon) & \sqrt{3}b(\varepsilon) \\ -b(\varepsilon) & \sqrt{\frac{3}{2}}b(\varepsilon) & -\sqrt{\frac{1}{2}}b(\varepsilon) \\ \sqrt{3}b(\varepsilon) & -\sqrt{\frac{1}{2}}b(\varepsilon) & -\sqrt{\frac{3}{2}}b(\varepsilon) \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (19)$$

где

$$\begin{aligned} b(\varepsilon) = & b_T \sqrt{\frac{3}{2}} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) \left(\frac{3\sqrt{1-\kappa^2}}{8} + \frac{1+\kappa}{16} \right), \\ \varepsilon_{xx} \sim & \exp(-i\omega t), \quad \varepsilon_{yy} \sim \exp(-i\omega t) \end{aligned}$$

— деформации, вызванные ультразвуковой волной.

Существует два типа поглощения звуковой волны: резонансный и релаксационный. Резонансное поглощение связано с переходами между двумя уровнями, возникшими в результате туннельных переходов ядер между тремя эквивалентными конфигурациями (13).

Для определенности сначала будет рассмотрен случай $-1 < \kappa < 1/3$ (основным является невырожденное состояние). Предполагая, что $|b(\varepsilon)| \ll \hbar\omega_0$ и туннельное расщепление во всех комплексах одинаковое, и используя золотое правило квантовой механики, можно получить вероятность перехода между данными уровнями в единицу времени:

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} 4|b(\varepsilon)|^2 \delta(\hbar\omega_0 - \hbar\omega). \quad (20)$$

Поглощаемая мощность в единице объема в таком случае будет равна

$$\begin{aligned} P_{\text{rez}} = & \hbar\omega WN \left\{ f_I \left(1 - f_F^{(1)} \right) + f_I \left(1 - f_F^{(2)} \right) \right. \\ & \left. - f_F^{(1)} (1 - f_I) - f_F^{(2)} (1 - f_I) \right\}, \end{aligned} \quad (21)$$

где $\hbar\omega$ — энергия кванта ультразвуковых колебаний, а остальная часть выражения — разность между количеством переходов в единицу времени в единице объема из основного состояния в возбужденное и из возбужденного в основное с учетом двукратного вырождения верхнего уровня; $f_I = 1/(1 + 2 \exp(-\hbar\omega_0/kT))$ — равновесная заселенность нижнего уровня, $f_F^{(1)} = f_F^{(2)} = \exp(-\hbar\omega_0/kT)/(1 + 2 \exp(-\hbar\omega_0/kT))$ — равновесные заселенности некоторых двух ортогональных состояний, соответствующих верхнему вырожденному уровню.

Разделив P_{rez} на плотность потока энергии ультразвуковой волны для поляризации $[\bar{1}10]$ и пользуясь приближением $\hbar\omega_0 \ll kT$, получим коэффициент резонансного поглощения ультразвука

$$\alpha_{\text{rez}} = \frac{32Nb_T^2}{dv^3kT} \left(\frac{3\sqrt{1-\kappa^2}}{8} + \frac{1+\kappa}{16} \right)^2 \frac{\omega^2 \tau}{1 + (\omega - \omega_0)^2 \tau^2}. \quad (22)$$

Здесь N — концентрация ян-теллеровских центров (Cu), b_T — константа деформационного потенциала, d — плотность кристалла GaAs, v — скорость распространения волны $[\bar{1}10]$ в кристалле. В (22) учтено, что имеется однородное уширение уровней за счет конечного времени жизни τ возбужденных состояний.

Изменение энергий уровней в поле звуковой волны приводит к релаксационному поглощению, вызванному отставанием заполнения этих уровней от равновесных значений (время прихода системы к термодинамическому равновесию в стационарном случае сравнимо с периодом ультразвуковой волны). Для нахождения коэффициента релаксационного поглощения ультразвука $\alpha_{\text{рл}}$ необходимо знать среднюю поглощаемую мощность

в единице объема полупроводника

$$P_{\text{rlx}} = N \sum_i \overline{f_i \dot{\tilde{E}}_i}, \quad (23)$$

где f_i — функция распределения центров по энергиям подуровней \tilde{E}_i , расщепленных вибранным взаимодействием и деформацией звуковой волны, $\dot{\tilde{E}}_i$ — производная по времени от энергии i -го подуровня (в общем случае комплексная, $i = 0, 1, 2$), а черта означает усреднение по периоду звуковых колебаний.

В первом порядке малости по $|b(\varepsilon)|/\hbar\omega_0$ из вида потенциала возмущения (19) в каждый момент времени t получим

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{E}}_1(t) &= 2\sqrt{3}b_T C i \omega e^{-i\omega t} \left(\frac{3\sqrt{1-\kappa^2}}{8} + \frac{1+\kappa}{16} \right), \\ \dot{\tilde{E}}_2(t) &= -2\sqrt{3}b_T C i \omega e^{-i\omega t} \left(\frac{3\sqrt{1-\kappa^2}}{8} + \frac{1+\kappa}{16} \right), \\ \dot{\tilde{E}}_0(t) &= 0. \end{aligned} \quad (24)$$

Здесь C — комплексная амплитуда деформации.

Для описания данной трехуровневой системы в каждый момент времени напишем уравнения для заселенностей подуровней

$$\begin{cases} \frac{df_0}{dt} = -f_0 W_{1,0} - f_0 W_{2,0} + f_1 W_{0,1} + f_2 W_{0,2}, \\ \frac{df_1}{dt} = -f_1 W_{0,1} - f_1 W_{2,1} + f_0 W_{1,0} + f_2 W_{1,2}, \\ \frac{df_2}{dt} = -f_2 W_{0,2} - f_2 W_{1,2} + f_1 W_{2,1} + f_0 W_{2,0}. \end{cases} \quad (25)$$

Здесь $W_{m,m'}$ — вероятность перехода из состояния m' в состояние m . Правые части уравнения (25) обращаются в нуль, если функции f_0, f_1, f_2 имеют вид равновесных функций распределения $f_0^{(0)}, f_1^{(0)}, f_2^{(0)}$ с энергиями $\tilde{E}_0(t), \tilde{E}_1(t), \tilde{E}_2(t)$ соответственно.

Реальное распределение отличается от $f_i^{(0)}(\tilde{E}_i(t))$ вследствие конечности скорости релаксации. Система не успевает подстраиваться к мгновенным значениям энергий. Поэтому в выражении для заселенности i -го уровня будет присутствовать линейная по $b(\varepsilon(t))$ добавка $f_i^{(1)}$ к „квазиравновесной“ функции $f_i^{(0)}(\tilde{E}_i(t))$:

$$f_i(t) = f_i^{(0)}(\tilde{E}_i(t)) + f_i^{(1)}(t). \quad (26)$$

Тогда с учетом (24) и (26) выражение для поглощающей мощности примет вид

$$P_{\text{rlx}} = \frac{N}{2} \operatorname{Re} \left(\sum_i f_i^{(1)*} \dot{\tilde{E}}_i \right) = \frac{N}{2} \operatorname{Re} (f_-^{(1)*} \dot{\tilde{E}}_1), \quad (27)$$

где знак * означает комплексное сопряжение, Re — действительная часть комплексного числа, а $f_-^{(1)} = f_1^{(1)} - f_2^{(1)}$.

Вычитая друг из друга два последних уравнения в выражении (25), принимая во внимание, что в линейном по $b(\varepsilon(t))$ приближении учитывать зависимость $W_{m,n}$ от звуковой деформации не нужно ($W_{1,2} = W_{2,1}$; $W_{0,1} = W_{0,2}$; $W_{1,0} = W_{2,0}$), и обозначив $1/\tau_1 = W_{0,1} + 2W_{2,1}$, получим уравнение

$$\frac{\partial f_-^{(1)}}{\partial t} = -\frac{f_-^{(1)}}{\tau_1} + \frac{f_1^{(0)} + f_2^{(0)}}{kT} \dot{\tilde{E}}_1. \quad (28)$$

Решение уравнения (28) для интересующих нас времени $t \gg \tau_1$ имеет вид

$$f_-^{(1)}(t) = \frac{f_1^{(0)} + f_2^{(0)}}{kT} \frac{\tau_1}{1 - i\omega\tau_1} \dot{\tilde{E}}_1. \quad (29)$$

Учитывая, что при $|\tilde{E}_1 - \tilde{E}_0|, |\tilde{E}_2 - \tilde{E}_0| \ll kT$, $f_1^{(0)} + f_2^{(0)} \approx 2/3$, и разделив P_{rlx} на плотность потока ультразвуковой волны, получим коэффициент релаксационного поглощения ультразвука

$$\alpha_{\text{rlx}} = \frac{4Nb_T^2}{d\nu^3 kT} \left(\frac{3\sqrt{1-\kappa^2}}{8} + \frac{1+\kappa}{16} \right)^2 \frac{\omega^2 \tau_1}{1 + \omega^2 \tau_1^2}. \quad (30)$$

В том случае, когда основным уровнем комплекса является двукратно вырожденное состояние ($1/3 < \kappa < 1$), выражения для коэффициентов резонансного и релаксационного поглощения ультразвука также определяются формулами (22) и (30).

Выражения для α_{rez} и α_{rlx} в случае продольных колебаний звуковой волны различаются коэффициентом, зависящим от κ , и тем, что в знаменатель выражения входит скорость продольного звука, которая в случае GaAs в 2 раза выше, чем для поперечного. Это означает, что соответствующие коэффициенты поглощения будут на порядок меньше.

Выражения (22) и (30) получены в рамках квазиклассического приближения и при условии, что линейный эффект Яна-Теллера существенно сильнее, чем квадратичный. Однако это сказывается на величине коэффициента $\left(\frac{3\sqrt{1-\kappa^2}}{8} + \frac{1+\kappa}{16} \right)^2$, а не на частотной и температурной зависимостях коэффициентов поглощения. Эти зависимости определяются величиной туннельного расщепления, которая может быть взята из таблицы.

4. Заключение

В работе рассмотрено поглощение ультразвука, обусловленное анизотропными ян-теллеровскими центрами Cu в кристалле GaAs, основное состояние которых расщепилось за счет туннелирования ядер между эквивалентными симметричными конфигурациями. Получена аналитическая формула для расчета туннельного расщепления в квазиклассическом приближении. Выполнено численное интегрирование соответствующего уравнения Шредингера и показано, что величина туннельного расщепления для GaAs:Cu лежит в диапазоне

2.4–31.0 μeV , что соответствует возможному диапазону резонансных частот $\nu_0 = 0.5\text{--}7.5\text{ GHz}$. При стандартных значениях параметров кристалла GaAs, концентрации ян-теллеровских центров Cu $N = 10^{17}\text{ cm}^{-3}$, температуре $T = 4\text{ K}$, временах жизни на верхнем уровне $\tau = 10^{-8}\text{ s}$ и частоте ультразвукового фонона $\nu = 150\text{ MHz}$ величина коэффициента резонансного поглощения α_{rez} будет лежать в диапазоне $0.05\text{--}14\text{ cm}^{-1}$, а коэффициент релаксационного поглощения в максимуме ($2\pi\nu\tau_1 = 1$) $\alpha_{\text{rlx}} \approx 8\text{ cm}^{-1}$. Эти оценки показывают, что коэффициенты поглощения α_{rez} и α_{rlx} можно наблюдать в эксперименте, если размеры образца кристалла GaAs составляют около 1 см.

Список литературы

- [1] B. Luthi. Physical acoustics in the solid state. 2nd ed. Springer, Berlin (2005). P. 119.
- [2] K. Lassmann, H. Schad. Solid State Commun. **18**, 449 (1976).
- [3] N.S. Averkiev, A.A. Gutkin, O.G. Krasikova, E.B. Osipov, M.A. Reshchikov. Solid State Commun. **68**, 1025 (1988).
- [4] V. Gukhov. In: H. Koppel, D.R. Yarkony, H. Barentzen. The Jahn–Teller effect, fundamentals and implications for physics and chemistry. Springer, Berlin (2009). P. 743.
- [5] И.Б. Берсукер. Эффект Яна–Теллера и вибронные взаимодействия в современной химии. Наука, М. (1987). 344 с.
- [6] V.V. Gudkov, A.T. Lonchakov, V.I. Sokolov, I.V. Zhevstovskikh. Phys. Rev. B **73**, 035 213 (2006).
- [7] O. Mualin, E.E. Vogel, M.A. de Orue, L. Martinelli, G. Bevilacqua, H.-J. Schulz. Phys. Rev. B **65**, 035 211 (2001).
- [8] G. Bevilacqua, L. Martinelli, E.E. Vogel, O. Mualin. Phys. Rev. B **70**, 075 206 (2004).
- [9] Н.С. Аверкиев, А.А. Гуткин, Е.Б. Осипов, В.Е. Седов, А.Ф. Цацульников. ФТТ **32**, 9, 2667 (1990).
- [10] Н.С. Аверкиев, А.А. Гуткин, И.А. Меркулов. Изв. АН СССР. Сер. физ. **52**, 3, 482 (1988).
- [11] Н.С. Аверкиев, А.А. Гуткин, Е.Б. Осипов, В.Е. Седов. ФТП **21**, 3, 415 (1987).
- [12] N.S. Averkiev, A.A. Gutkin, I.A. Merkulov, E.B. Osipov, V.E. Sedov. Proc. XIX Int. Conf. on the Physics of Semicond. Inst. of Phys. Polish Acad. Sci., Warsaw, Poland (1988). V. 2. P. 1075.
- [13] Н.С. Аверкиев, Т.К. Аширов, А.А. Гуткин. ФТТ **24**, 7, 2046 (1982).
- [14] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Квантовая механика. Нерелятивистская теория. ГИФМЛ, М. (1963). С. 213.
- [15] Г.Л. Бир, Г.Е. Пикус. Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках. Наука, М. (1972). 324 с.