

Анализ температурной зависимости подвижности электронов в монокристаллах CdGeAs₂

© С.И. Борисенко*, В.Ю. Рудь†, Ю.В. Рудь, В.Г. Тютерев*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

* Сибирский физико-технический институт им. В.Д. Кузнецова,
634050 Томск, Россия

† Санкт-Петербургский государственный технический университет,
195251 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 3 июля 2000 г. Принята к печати 20 ноября 2000 г.)

Проведен анализ экспериментальной температурной зависимости холловской подвижности в монокристаллах CdGeAs₂ с вырожденным электронным газом. С этой целью был выполнен расчет дрейфовой подвижности путем численного решения уравнения Больцмана в приближении изотропного континуума, эффективной массы и с учетом сложного спектра полярных фононов. Согласие с экспериментом в области азотных температур удалось получить с учетом рассеяния электронов на однозарядных собственных дефектах кулоновского типа. В области комнатных температур согласие теории и эксперимента оказалось возможным достигнуть лишь при учете рассеяния электронов на плазменных колебаниях.

1. Введение

Усложнение атомного состава алмазоподобных полупроводников принадлежит одному из основных направлений развития современного полупроводникового материаловедения [1]. Переход к исследованиям тройных аналогов бинарных полупроводников A^{III}B^V привел к обнаружению среди тройных соединений с решеткой халькопирита кристаллов с рекордной нелинейной поляризуемостью d_{36} [2,3] и сразу поставил их в ряд лучших нелинейно-оптических материалов. Кристаллы CdGeAs₂ обладают максимальным среди этих материалов значением $d_{36} = 236$ пм/В и являются наиболее перспективными для создания высокоэффективных преобразователей излучения СО₂-лазера [2–4]. Однако эти перспективные применения тормозятся высоким оптическим поглощением в области прозрачности CdGeAs₂ [4,5]. Как известно, одним из критериев совершенства полупроводника остается высокая холловская подвижность носителей заряда. Недавно был достигнут качественный прорыв в технологии CdGeAs₂, и в результате развития метода низкотемпературной кристаллизации из нестехиометрических растворов–расплавов выращены монокристаллы с рекордно высокой для этого материала подвижностью электронов [6].

В данной работе на базе теоретических представлений об электронном и фононном спектре этого соединения [7,8] предпринят анализ температурной зависимости подвижности электронов в CdGeAs₂. В отличие от вычислений, выполненных в [9], в нашей работе расчет подвижности проведен для образцов с вырожденным электронным газом и с учетом возможного рассеяния на плазменных колебаниях. Рассеяние на неполярных оптических фононах ввиду его малости не учитывается [10]. Не учитываются также анизотропия и непараболичность энергетического спектра электронов, а также анизотропия рассеяния на полярных фо-

нонах, — соответствующие характеристики усредняются по углам. Для численного решения линейаризованного уравнения Больцмана использован итерационный метод, изложенный в работе [11]. Расчеты сравниваются с экспериментальными данными по температурной зависимости холловской подвижности для образца из работы [6].

2. Методика расчета и подвижности

Задача о расчете подвижности электронов CdGeAs₂ в области температур от азотных до комнатных предполагает учет неупругости полярного рассеяния на длинноволновых оптических фононах (РО), которое имеет место в полупроводниках данного типа [8], а также наличие вырождения электронного газа в образцах из работы [6]. Чтобы удовлетворять указанным требованиям, уравнение Больцмана в приближении слабого поля сводилось к функциональному уравнению для неравновесной добавки к функции распределения, которое решалось численно итерационным способом. Для смешанного рассеяния, включающего упругие механизмы рассеяния и РО-рассеяние, согласно [11], функциональное уравнение можно записать в виде

$$\tau(\varepsilon) = \tau_0(\varepsilon) \left\{ 1 + \sum_{\nu} \left[S_{\nu}^{+}(\varepsilon) \tau(\varepsilon + \hbar\omega_{\nu}) + S_{\nu}^{-}(\varepsilon) \tau(\varepsilon - \hbar\omega_{\nu}) \right] \right\}, \quad (1)$$

где $\tau(\varepsilon)$ — функция от энергии электрона ε , имеющая размерность времени релаксации и определяющая неравновесную добавку к функции распределения, выбранную

в обычном виде

$$g(k) = e \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \tau(\varepsilon) E v_k, \quad (2)$$

здесь $f_0(\varepsilon)$, E , v_k , $\hbar\omega_\nu$ — соответственно, равновесная функция Ферми–Дирака, напряженность электрического поля, скорость электрона в состоянии с волновым вектором k и энергией $\varepsilon = \hbar^2 k^2 / 2m^*$ с усредненной по углам эффективной массой m^* , а также энергия длинноволнового полярного фонона с номером ν ;

$$1/\tau_o(\varepsilon) = 1/\tau_{so}(\varepsilon) + \sum_i 1/\tau_i(\varepsilon), \quad (3)$$

где $\tau_i(\varepsilon)$ — время релаксации i -го упругого механизма рассеяния,

$$1/\tau_{so}(\varepsilon) = \sum_\nu \{S_{ov}^+(\varepsilon) + S_{ov}^-(\varepsilon)\}$$

— функция, соответствующая неупругому полярному рассеянию,

$$S_\nu^\pm(\varepsilon) = A_\nu \left[N_\nu + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \mp f_0(\varepsilon) \right] \frac{f'_0(\varepsilon')}{f'_0(\varepsilon)} \times \frac{(\varepsilon' + \varepsilon + 2\eta^2)}{\varepsilon \sqrt{\varepsilon}} S(\varepsilon, \varepsilon') \Big|_{\varepsilon' = \varepsilon \pm \hbar\omega_\nu},$$

$$S_\nu^\pm(\varepsilon) = A_\nu \left[N_\nu + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \mp f_0(\varepsilon) \right] \times \frac{2}{\sqrt{\varepsilon}} S_o(\varepsilon, \varepsilon') \Big|_{\varepsilon' = \varepsilon \mp \hbar\omega_\nu},$$

$$S(\varepsilon, \varepsilon') = \ln \left[\frac{(\sqrt{\varepsilon'} + \sqrt{\varepsilon})^2 + \eta^2}{(\sqrt{\varepsilon'} - \sqrt{\varepsilon})^2 + \eta^2} \right] - \frac{4\sqrt{\varepsilon\varepsilon'}[(\varepsilon' - \varepsilon)^2 + 3\eta^2(\varepsilon' + \varepsilon) + 2\eta^4]}{(\varepsilon' + \varepsilon + 2\eta^2)[(\varepsilon' - \varepsilon)^2 + 2\eta^2(\varepsilon' + \varepsilon) + \eta^4]},$$

$$S_o(\varepsilon, \varepsilon') = \ln \left[\frac{(\sqrt{\varepsilon'} + \sqrt{\varepsilon})^2 + \eta^2}{(\sqrt{\varepsilon'} - \sqrt{\varepsilon})^2 + \eta^2} \right] - \frac{4\sqrt{\varepsilon\varepsilon'}\eta^2}{(\varepsilon' - \varepsilon)^2 + 2\eta^2(\varepsilon' + \varepsilon) + \eta^4},$$

$$f'_0(\varepsilon) = \frac{\partial f_0(\varepsilon)}{\partial \varepsilon}, \quad \eta^2 = \frac{\hbar^2 \alpha_\infty^2}{2m^*},$$

$$A_\nu = \frac{\sqrt{2m^*} e^2 \omega_\nu}{32\pi \varepsilon_0 \hbar} C_{PO\nu}, \quad (4)$$

α_∞ — обратный радиус экранирования высокочастотных электрических колебаний, $C_{PO\nu} = \bar{S}_\nu^2 / \omega_\nu^2$ — константа электрон-фононного взаимодействия, \bar{S}_ν^2 — усредненный по углам квадрат силы осциллятора оптического фонона [9], $N_\nu = 1/[\exp(\hbar\omega_\nu/k_0T) - 1]$ — функция Бозе–Энштейна, ε_0 — диэлектрическая постоянная.

Рассеяние электронов на плазмонах, как один из возможных механизмов рассеяния в полупроводниках при наличии большой концентрации свободных носителей заряда, согласно [12], можно описать по аналогии с РО-рассеянием, заменяя в формулах (3), (4) частоту фонона ω_ν на плазменную частоту ω_{PL} , а константу взаимодействия электрона с фононом C_{PO} на константу взаимодействия электрона с плазмоном C_{PL} , где

$$\omega_{PL} = \sqrt{\frac{e^2 n}{\varepsilon_0 \varepsilon_\infty m^*}}, \quad C_{PL} = \frac{1}{\varepsilon_\infty}, \quad (5)$$

n — концентрация электронов, ε_∞ — высокочастотная относительная диэлектрическая проницаемость.

Учет рассеяния на ионах примеси проводился с помощью времени релаксации, для расчета которого применялась известная формула Брукса–Херринга

$$\tau_I = \frac{16\pi \sqrt{2m^*} \varepsilon_0^2 \varepsilon_s^2}{e^4 N_I [\ln(1 + \beta) - \beta/(\beta + 1)]} \varepsilon^{3/2}, \quad (6)$$

где $\beta = 8m^* \varepsilon / \hbar^2 \alpha_s^2$, α_s — обратный радиус экранирования низкочастотных электрических полей, N_I , ε_s — концентрация однозарядных ионов примеси и статическая диэлектрическая проницаемость полупроводника.

Рассеяние на деформационном потенциале акустических колебаний (DA) рассматривалось как упругое и время релаксации рассчитывалось по известной формуле

$$\tau_{DA} = \frac{\pi \hbar^4 \tilde{c}_L}{\sqrt{2}(m^*)^{3/2} \tilde{D}_c^2 k_0 T} \varepsilon^{-1/2}. \quad (7)$$

Для кристаллов A^{II}B^{IV}C₂^V в приближении изотропного континуума \tilde{D}_c — усредненная по углам константа деформационного потенциала, соответствующая дну зоны проводимости,

$$\tilde{c}_L = \frac{1}{5}(2c_{11} + c_{33}) + \frac{2}{15}[(2c_{13} + c_{12}) + 2(2c_{44} + c_{66})] \quad (8)$$

— модуль упругости для продольных акустических колебаний. Формула получена из усреднения по углам проекции уравнения состояния упругого анизотропного континуума с симметрией халькопирита на волновой вектор продольных акустических колебаний.

3. Результаты расчета и анализ в сравнении с экспериментальными данными

Значения параметров CdGeAs₂, используемые при анализе температурной зависимости подвижности электронов, приведены в таблице. Константы электрон-фононного взаимодействия близких по частоте РО-фононов с симметрией Γ_4 и Γ_5 объединены. Отметим, что величина константы электрон-фононного взаимодействия на порядок меньше, чем электрон-плазмонного.

Параметры CdGeAs₂, используемые в расчете

Обозначение	Значение	Литературный источник
m^*	$0.034m_0$	[13]
ϵ_s	18.1	[14]
ϵ_∞	15.3	—
\tilde{c}_L	$11.2 \cdot 10^{12} \text{ Н/м}^2$	[15]*
\tilde{D}_c	14.5 эВ	[16]**
$\hbar\omega_1$	12 мэВ	[14]
$\hbar\omega_2$	20 мэВ	—
$\hbar\omega_3$	25 мэВ	—
$\hbar\omega_4$	33 мэВ	—
C_{PO1}	0.0008	—
C_{PO2}	0.0012	—
C_{PO3}	0.0052	—
C_{PO4}	0.0049	—
C_{PL}	0.065	—

Примечание. * Значение рассчитано по формуле (8).

** Значение получено как среднее арифметическое соответствующих констант деформационного потенциала в бинарных аналогах InAs и GaAs.

Расчет подвижности проводился в области температур от 50 до 350 К. На рис. 1 приведена температурная зависимость концентрации электронов исследуемого образца n (кривая 1), рассчитанная из температурной зависимости коэффициента Холла [6], а также температурные зависимости приведенной энергии Ферми F/k_0T (кривая 2) и отношения радиуса экранирования R_α к половине среднего расстояния между однозарядными дефектами донорного типа, обозначенной как R_{av} (кривая 3). Последние в дальнейшем изложении будем называть ионами примеси. Расчет уровня Ферми проводился в приближении эффективной массы в предположении равенства концентрации электронов и ионов примеси ($n = N_I$). Радиус экранирования рассчитывался с помощью формулы Дебая для вырожденного электронного газа. Согласно рис. 1, электронный газ во всей области исследуемых температур для кристаллов, исследованных в работе [6], является вырожденным, а радиус экранирования R_α в 2 ÷ 3 раза выше R_{av} . Последний результат дает основания полагать, что приближение об одночастичном рассеянии электронов на ионах в рассматриваемом образце не выполняется и обычная формула Дебая для расчета радиуса экранирования в данном случае несправедлива. Следует отметить, что высокие концентрации электронов в полученных образцах при азотных температурах не удается объяснить на основе представлений о существовании в таком материале только простых примесных центров донорного типа с положительной энергией активации и малой плотности состояний на дне зоны проводимости.

На рис. 2 представлена зависимость от температуры энергии плазмона $\hbar\omega_{PL}$ (кривая 1), рассчитанная по формуле (5), а также зависимость произведения

плазменной частоты на усредненное по энергии время релаксации импульса $\omega_{PL}\tau$ (кривая 2), величина которого характеризует условие существования плазмона [12]. Эти величины рассчитаны с учетом экспериментальных зависимостей концентрации и холловской подвижности электронов от температуры (см. рис. 1 из работы [6]). Из рис. 2 следует, что во всей области температур существование плазмонов возможно ($\omega_{PL}^2\tau^2 \gg 1$), а их энергия выше максимальной энергии РО-фонона (см. таблицу) и сравнима с ней по величине.

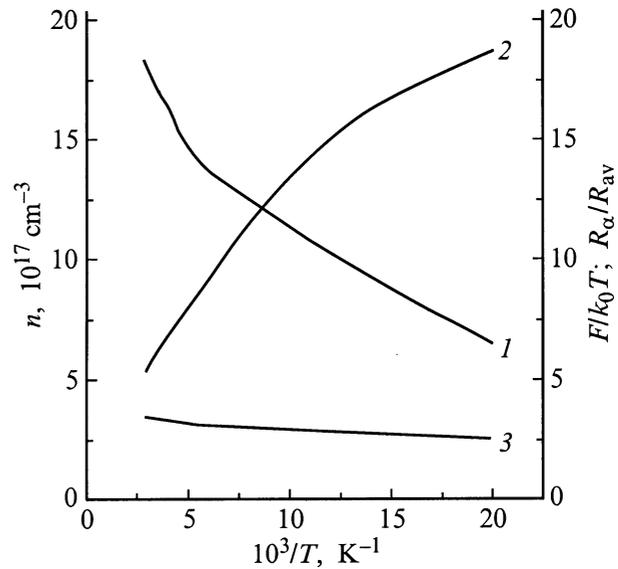


Рис. 1. Температурные зависимости некоторых параметров электронного газа в монокристаллах CdGeAs₂: 1 — концентрация электронов n , 2 — приведенная энергия электронов на уровне Ферми F/k_0T , 3 — отношение R_α/R_{av} (см. в тексте).

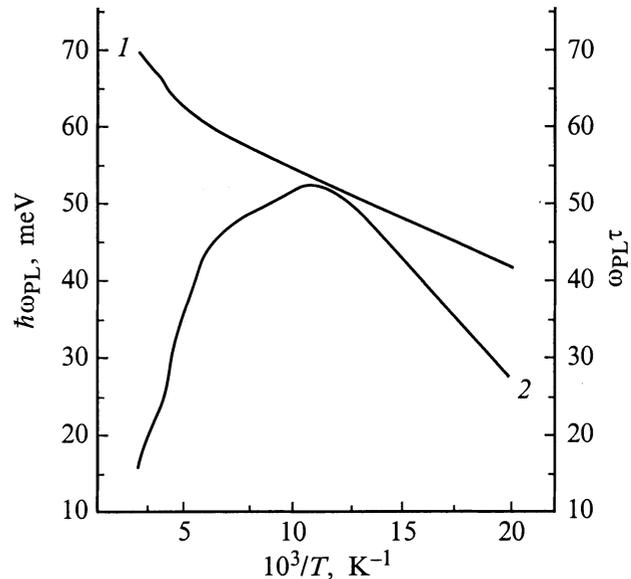


Рис. 2. Характеристики плазменных колебаний электронного газа в CdGeAs₂: 1 — $\hbar\omega_{PL}$, 2 — $\omega_{PL}\tau$.

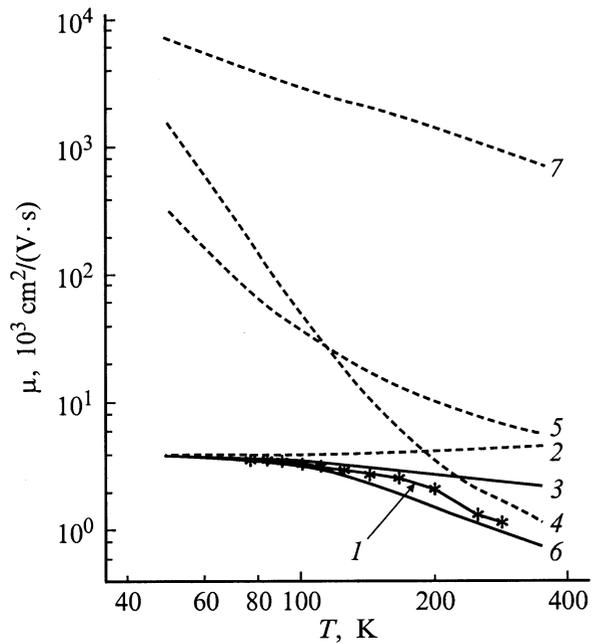


Рис. 3. Экспериментальная (кривая 1, [6]) и расчетные температурные зависимости подвижности электронов в монокристаллах CdGeAs₂, учитывающие рассеяние: 2 — на ионах примеси (ION), 3 — ION + PO (полярное на оптических фононах), 4 — PL (на плазменных колебаниях), 5 — PO, 6 — ION + PO + PL, 7 — DA (деформационное на акустических фононах).

На рис. 3 представлены результаты расчета температурной зависимости дрейфовой подвижности при учете различных механизмов рассеяния (кривые 2–7) и экспериментальные данные по холловской подвижности (кривая 1). Как и следовало ожидать, в области азотных температур основным механизмом рассеяния является рассеяние на ионах примеси (однозарядных дефектах). Хорошее согласие с экспериментальными данными в этой области температур достигнуто с помощью формулы Брукса–Херринга в предположении, что радиус экранирования равен среднему расстоянию между ионами (кривая 2). В области комнатных температур учет смешанного рассеяния на ионах примеси и РО-фононах (кривая 3) дает значение подвижности, которое значительно превышает экспериментальную величину. Более интенсивный характер реального рассеяния электронов в образце может быть связан, как нам представляется, с учетом рассеяния на плазмонах (кривая 4), которое в рамках используемой модели электрон-плазмонного взаимодействия при комнатной температуре является более существенным, чем рассеяние на РО-фононах (кривая 5). Учет PL-рассеяния совместно с рассеянием на ионах примеси и РО-фононах (кривая 6) в области комнатных температур дает неплохое согласие с экспериментальными данными. Взаимодействие электронов с РО-фононами и плазмонами экранировалось так же, как и взаимодействие с ионами примеси. Заметим, что

рассеяние электронов на DA-фононах (кривая 7) в рассматриваемой области температур является слабым и поэтому им можно пренебречь.

4. Заключение

Проведенный анализ экспериментальных данных по температурной зависимости холловской подвижности в CdGeAs₂ с вырожденным электронным газом позволяет предположить, что в области азотных температур основным механизмом рассеяния является рассеяние на ионизированных центрах кулоновского типа, связанных с собственными дефектами в полученных монокристаллах CdGeAs₂. В области комнатных температур таким механизмом может оказаться рассеяние электронов на плазмонах или смешанное электрон-фононное и электрон-электронное рассеяние, анализ которого в свете полученных результатов для рассматриваемого типа сложных полупроводников представляется актуальным. Наряду с этим важной задачей для дальнейших исследований представляется анализ температурной зависимости коэффициента Холла, целью которого является выяснение причины столь высокой концентрации электронов при азотных температурах и определение природы собственных дефектов решетки донорного типа в монокристаллах CdGeAs₂ с рекордно высокой подвижностью электронов.

Список литературы

- [1] Н.А. Горюнова. *Химия алмазоподобных полупроводников* (Л., ЛГУ, 1963).
- [2] Н.А. Горюнова, С.М. Рывкин, И.М. Фишман, Г.П. Шпенников, И.Д. Ярошецкий. *ФТП*, **3**, 1525 (1968).
- [3] Ф.П. Кесаманлы, Ю.В. Рудь. *ФТП*, **27**, 1761 (1993).
- [4] М.С. Ohmer, R. Pandey. *MRS Bulletin*, **23**, 16 (1998).
- [5] P.G. Schunemann, K.L. Schepler, P.A. Budni. *MRS Bulletin*, **23**, 45 (1998).
- [6] И.К. Полушина, В.Ю. Рудь, Ю.В. Рудь, Т.Н. Ушакова. *ФТТ*, **41**, 1190 (1999).
- [7] А.С. Поплавной, Ю.И. Польшгалов, В.А. Чалдышев. *Изв. вузов. Физика*, № 7, 17 (1970).
- [8] А.С. Поплавной, В.Г. Тютерев. *Изв. вузов. Физика*, № 6, 39 (1978).
- [9] С.И. Борисенко, Г.Ф. Караваев, В.Г. Тютерев. *ФТП*, **16**, 432 (1982).
- [10] С.И. Борисенко, Г.Ф. Караваев, С.И. Скачков, В.Г. Тютерев. *ФТП*, **17**, 2198 (1983).
- [11] С.И. Борисенко. *ФТП*, **35** (3), 313 (2001).
- [12] А.С. Давыдов. *Теория твердого тела* (М., Наука, 1976) гл. 4, с. 90.
- [13] С.И. Борисенко, Г.Ф. Караваев. *Изв. вузов. Физика*, № 4, 101 (1988).
- [14] G.D. Holah, A. Miller, W.D. Dunnett, G.W. Iseler. *Sol. St. Commun.*, **23**, 75 (1977).
- [15] Tu Hailing, G.A. Saumbers, W.A. Lambson, R.S. Teigelson. *J. Phys. C*, **15**, 1399 (1982).
- [16] С.И. Борисенко, Г.Ф. Караваев. *Изв. вузов. Физика*, № 5, 117 (1988).

Редактор Т.А. Полянская

An analysis of the temperature dependence of the electron mobility in a CdGeAs₂ single crystal

S.I. Borisenko*, V.Yu. Rud'†, Yu.V. Rud', V.G. Tyuterev*

Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

* Siberian Physicotechnical Institute,
634050 Tomsk, Russia

† St. Petersburg State Technical University,
195251 St. Petersburg, Russia

Abstract We have investigated the experimental temperature dependency of Hall mobility in a CdGeAs₂ single crystal with degenerate electron gas. For this purpose the calculations of the drift mobility were performed by the numerical solution of the Boltzmann equation in the effective mass and isotropic continuum approximations considering the complicated character of the polar phonon spectrum. We succeeded in obtaining the agreement with experiment in the 77 K temperature region taking into account the electron scattering by single-charged Coulomb defects. The agreement of theory with experiment at room temperatures was achieved only under taking into account the electron-plasmon scattering.