

# Расчет термоэлектрической эффективности многослойных структур с квантовыми ямами в случае полярного рассеяния носителей на оптических фононах

© Д.А. Пшенай-Северин, Ю.И. Равич\*

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

\* Санкт-Петербургский государственный политехнический университет,  
195251 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 21 января 2004 г. Принята к печати 3 марта 2004 г.)

Произведен расчет повышения термоэлектрической добротности в слоистой структуре с квантовыми ямами при полярном рассеянии носителей тока оптическими фононами. На основе выполненных ранее и новых расчетов для различных механизмов рассеяния сделан вывод, что увеличение добротности вследствие размерного квантования электронов возможно лишь при условии, что вероятность рассеяния носителей убывает при увеличении переданного волнового вектора.

## 1. Введение

Исследование термоэлектрических свойств квантово-размерных структур началось с работ Хикса и Дрессельхауза [1–3], которые провели расчет и оценки термоэлектрической добротности  $Z$  слоистой структуры с квантовыми ямами. Ими было показано, что за счет роста плотности состояний при размерном квантовании добротность таких структур может быть увеличена в 2–3 раза по сравнению с объемным значением, при условии, что подвижность носителей не изменяется при переходе от объемного образца к образцу с квантовыми ямами.

В то же время в ряде работ [4–8] было показано, что рост плотности состояний в структуре с размерным квантованием, который является основной причиной роста термоэлектрической добротности, может приводить одновременно к уменьшению подвижности носителей заряда. В частности, в случае рассеяния на акустических фононах и близкодействующем потенциале примесей в простейшей модели стандартного закона дисперсии носителей путем аналитических расчетов нами [8] было показано, что выражения для термоэлектрической добротности в объемном образце и образце с квантовыми ямами в точности совпадают. Величины термоэлектрических эффективностей в обоих случаях оказываются равными, если химические потенциалы выбирать из условия максимума добротности.

При рассеянии на акустических фононах и близкодействующем потенциале примесей матричный элемент не зависит от разности волновых векторов электронов в конечном и начальном состояниях, однако для случая рассеяния на полярных оптических колебаниях решетки такая зависимость имеет место. В ходе расчета времени релаксации в образце с квантовыми ямами для этого механизма рассеяния в работе [8] было недостаточно точно учтено влияние зависимости матричного элемента от переданного импульса при оценке одного из подынтегральных выражений. Поэтому полученный в работе [8]

результат в случае полярного рассеяния правилен только при относительно больших толщинах квантовых ям  $a$ , а в области малых толщин ям требует корректировки. В данной работе в рамках модели [8], основанной на предположении об изотропном параболическом спектре носителей заряда и учитывающей полярное рассеяние носителей на оптических фононах объемного типа, выполнен более аккуратный учет влияния указанного выше фактора на время релаксации и термоэлектрическую добротность в слоистых структурах с квантовыми ямами. Кроме того, проведено сравнение зависимости добротности от толщин квантовой ямы в рассматриваемом случае и в предположении, сделанном в работах Хикса и Дрессельхауза [1], о неизменном по сравнению с объемным образцом времени релаксации.

## 2. Время релаксации

В области температур выше температуры Дебая рассеяние на оптических фононах является упругим, а время релаксации в структуре с квантовыми ямами  $\tau_{2D}$  определяется следующим выражением:

$$\tau_{2D}^{-1} = \sum_q \frac{2\pi}{\hbar} |M_{\mathbf{k}_{\parallel}, \mathbf{k}_{\parallel} + \mathbf{q}_{\parallel}}|^2 \frac{\mathbf{k}_{\parallel} \mathbf{q}_{\parallel}}{k_{\parallel}^2} \delta(\varepsilon(\mathbf{k}_{\parallel} + \mathbf{q}_{\parallel}) - \varepsilon(\mathbf{k}_{\parallel})) - \sum_q \frac{2\pi}{\hbar} |M_{\mathbf{k}_{\parallel}, \mathbf{k}_{\parallel} - \mathbf{q}_{\parallel}}|^2 \frac{\mathbf{k}_{\parallel} \mathbf{q}_{\parallel}}{k_{\parallel}^2} \delta(\varepsilon(\mathbf{k}_{\parallel} - \mathbf{q}_{\parallel}) - \varepsilon(\mathbf{k}_{\parallel})), \quad (1)$$

где  $\hbar$  — постоянная Планка,  $\mathbf{q}$  — волновой вектор фонона,  $\mathbf{q}_{\parallel}$  — проекция волнового вектора фонона на плоскость слоев,  $M_{\mathbf{k}_{\parallel}, \mathbf{k}_{\parallel} \pm \mathbf{q}_{\parallel}}$  — матричный элемент рассеяния электрона из состояния с волновым вектором  $\mathbf{k}_{\parallel}$  в плоскости слоя в состояние с волновым вектором  $\mathbf{k}_{\parallel} \pm \mathbf{q}_{\parallel}$  с поглощением или испусканием фонона,  $\delta$ -функция учитывает сохранение энергии при упругом рассеянии, а  $\varepsilon(\mathbf{k}_{\parallel})$  — энергия электрона, связанная с движением в плоскости слоя, отсчитанная от дна нижней

подзоны размерного квантования. Матричный элемент рассеяния для этого случая равен [8]

$$M_{\mathbf{k}_{\parallel}, \mathbf{k}_{\parallel} + \mathbf{q}_{\parallel}} = M(q) Y^{\pm}(q_z^*), \quad (2)$$

где  $M(q)$  — хорошо известный матричный элемент для полярного рассеяния в объемном образце, а множитель  $Y^{\pm}(q_z^*)$  возникает при вычислении матричного элемента в результате интегрирования по координате  $z$ , направленной по нормали к плоскости слоя:

$$Y^{\pm}(q_z^*) = \frac{\exp(\pm i\pi q_z^*) \sin \pi q_z^*}{\pi q_z^* (1 - q_z^{*2})}, \quad (3)$$

где безразмерная величина  $q_z^*$  пропорциональна составляющей волнового вектора фонона  $q_z$ , перпендикулярной к плоскости слоев:

$$q_z^* = \frac{aq_z}{2\pi}. \quad (4)$$

Перейдем в (1) от суммирования к интегрированию в цилиндрической системе координат, направив цилиндрическую ось вдоль оси  $z$  и отсчитывая азимутальный угол  $\phi$  от направления волнового вектора  $\mathbf{k}_{\parallel}$ . Тогда, выделяя в объемном матричном элементе зависимость от волнового вектора фонона  $M^2(q) = M^2(k_{\parallel})k_{\parallel}^2/q^2$ , получим

$$\begin{aligned} \tau_{2D}^{-1} = & -\frac{2\pi}{\hbar} \frac{M^2(k_{\parallel})Vm^*}{8\pi^3\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dq_z \int_0^{2k_{\parallel}} q_{\parallel} dq_{\parallel} \int_0^{2\pi} d\phi \left[ \frac{\cos \phi}{q^2} \right. \\ & \left. \times \left\{ |Y^+(q_z^*)|^2 \delta\left(\frac{q_{\parallel}}{2k_{\parallel}} + \cos \phi\right) - |Y^-(q_z^*)|^2 \delta\left(\frac{q_{\parallel}}{2k_{\parallel}} - \cos \phi\right) \right\} \right], \end{aligned} \quad (5)$$

где  $V = Sa$  — объем слоя, представляющего собой квантовую яму для электронов, а  $m^*$  — эффективная масса электрона.

Выполнив интегрирование по углу  $\phi$  с помощью  $\delta$ -функций, а затем проинтегрировав по  $q_{\parallel}$ , получим для обратного времени релаксации следующее выражение:

$$\tau_{2D}^{-1} = -\frac{2\pi}{\hbar} \frac{M^2(k_{\parallel})Vm^*}{2\pi\hbar^2 a} \int_{-\infty}^{\infty} Y^2(q_z^*) \left( 1 - \frac{|q_z^*|}{\sqrt{q_z^{*2} + u^2}} \right) dq_z^*, \quad (6)$$

в котором  $Y^2(q_z^*) = |Y^{\pm}(q_z^*)|^2$ , а  $u = ak_{\parallel}/\pi$ . Это выражение согласуется с приведенным в работе [7].

Обозначая интеграл, стоящий в (6), через  $3I(u)/2$ , получим

$$\tau_{2D}^{-1} = \frac{2\pi}{\hbar} M^2(k_{\parallel}) V \frac{g_{2D}}{a} \frac{3}{2} I(u), \quad (7)$$

где  $g_{2D} = m^*/2\pi\hbar^2$  — двумерная плотность электронных состояний без учета спинового вырождения, а

$$I(u) = \frac{2}{3} \int_{-\infty}^{\infty} Y^2(q_z^*) \left( 1 - \frac{|q_z^*|}{\sqrt{q_z^{*2} + u^2}} \right) dq_z^*. \quad (8)$$

В объемном образце время релаксации имеет следующий вид [9]:

$$\tau_{3D}^{-1} = \frac{2\pi}{\hbar} M^2(k) V g_{3D}, \quad (9)$$

где  $g_{3D} = m^*k/2\pi^2\hbar^2$  — плотность электронных состояний в единице объема без учета спинового вырождения.

Используя это выражение, найдем отношение времени релаксации в образце с квантовыми ямами и в объемном образце

$$\frac{\tau_{2D}}{\tau_{3D}} = \frac{2ak}{3\pi} I^{-1}(u). \quad (10)$$

Интеграл  $I(u)$  при больших  $u$  стремится к единице, а при малых — приблизительно равен  $I(u) \approx \frac{4}{3}u$ . Поэтому при больших толщинах квантово-размерных слоев  $a$  отношение времен релаксации совпадает с полученным в работе [8], а при малых толщинах ям это отношение оказывается не зависящим от  $a$  и время релаксации в образце с квантовыми ямами стремится к величине  $\tau_{3D}/2$ .

Таким образом, для рассеяния на полярных оптических фононах при относительно больших толщинах ям оказываются справедливыми выводы работы [8] — выражения для электропроводности, термоэдс, электронной теплопроводности и добротности совпадают с соответствующими значениями в объемном образце. Если же толщины ям относительно малы, то время релаксации перестает зависеть от  $a$  и оказываются справедливыми предположения, сделанные в работах Хикса и Дрессельхауза [1], с учетом того что  $\tau_{2D}$  в 2 раза меньше  $\tau_{3D}$ . Добротность в этом случае, как и было предсказано в [1], начинает расти с уменьшением толщин квантово-размерных слоев за счет увеличения плотности состояний в квантовых ямах.

### 3. Кинетические коэффициенты и термоэлектрическая добротность

Используя полученное выражение для релаксации в образце с квантовыми ямами, нетрудно найти электропроводность, термоэдс и электронную теплопроводность, а затем и термоэлектрическую добротность в таких структурах.

Например, для электропроводности будем иметь

$$\sigma_{2D} = \frac{2e^2}{m^*} \int_0^{\infty} \left( -\frac{\partial f_0(\varepsilon, \mu)}{\partial \varepsilon} \right) \tau_{2D} \frac{g_{2D}}{a} \varepsilon d\varepsilon, \quad (11)$$

где  $f_0(\varepsilon, \mu)$  — функция распределения Ферми,  $\varepsilon$  — энергия электрона, связанная с движением в плоскости слоя, а  $\mu$  — химический потенциал, причем за начало отсчета энергии выбрано дно нижней подзоны размерного квантования.

Для удобства дальнейшего изложения перепишем время релаксации в случае полярного рассеяния на

оптических фонах в объемном образце, выделив энергетическую зависимость

$$\tau_{3D} = \tau_0 x^{1/2}, \tag{12}$$

где  $x = \varepsilon/k_0T$ ,  $k_0$  — постоянная Больцмана, а  $T$  — абсолютная температура. Тогда в образце с квантовыми ямами время релаксации в соответствии с (10) равно

$$\tau_{2D} = \frac{2}{3} \tau_0 \frac{wx}{I(w\sqrt{x})}, \tag{13}$$

где  $w = a\sqrt{2m^*k_0T}/\pi\hbar$ .

С учетом (13) выражение (11) можно переписать в виде

$$\sigma_{2D} = \frac{2\sqrt{2}e^2\sqrt{m^*}(k_0T)^{3/2}\tau_0}{3\pi^2\hbar^3} I_2^{(2D)}(\mu^*, w), \tag{14}$$

где  $\mu^* = \mu/k_0T$  — безразмерный химический потенциал, а

$$I_n^{(2D)}(\mu^*, w) = \int_0^\infty \left( -\frac{\partial f_0(x, \mu^*)}{\partial x} \right) \frac{x^n}{I(w\sqrt{x})} dx. \tag{15}$$

Выражение для электропроводности в объемном образце отличается только заменой интеграла  $I_n^{(2D)}(\mu^*, w)$  на интеграл  $I_n^{(3D)}(\mu^*)$ , задаваемый выражением

$$I_n^{(3D)}(\mu^*) = \int_0^\infty \left( -\frac{\partial f_0(x, \mu^*)}{\partial x} \right) x^n dx. \tag{16}$$

Аналогичным образом могут быть получены выражения для термоэдс

$$\alpha_{2D} = -\frac{k_0}{e} \left( \frac{I_3^{(2D)}(\mu^*, w)}{I_2^{(2D)}(\mu^*, w)} - \mu^* \right), \tag{17}$$

электронной теплопроводности

$$\kappa_{2D} = \frac{2\sqrt{2}\sqrt{m^*}k_0/(k_0T)^{5/2}\tau_0}{3\pi^2\hbar^3} \times \left\{ I_4^{(2D)}(\mu^*, w) - \frac{(I_3^{(2D)}(\mu^*, w))^2}{I_2^{(2D)}(\mu^*, w)} \right\} \tag{18}$$

и безразмерной термоэлектрической эффективности

$$Z_{2D}T = \frac{(I_3^{(2D)}(\mu^*, w) - \mu^* I_2^{(2D)}(\mu^*, w))^2}{I_2^{(2D)}(\mu^*, w)(1/B + I_4^{(2D)}(\mu^*, w)) - (I_3^{(2D)}(\mu^*, w))^2}, \tag{19}$$

где параметр материала  $B$  определяется следующим выражением:

$$B = \frac{2\sqrt{2}m^*k_0(k_0T)^{5/2}\tau_0}{3\pi^2\hbar^3\kappa_{ph}}, \tag{20}$$

в котором  $\kappa_{ph}$  — фононная составляющая теплопроводности.

В объемном образце выражение для безразмерной термоэлектрической эффективности  $Z_{3D}T$  имеет вид (19), где надо заменить  $I_n^{(2D)}(\mu^*, w)$  на  $I_n^{(3D)}(\mu^*)$ ; при этом выражение для параметра материала оказывается тем же, что и в образце с квантовыми ямами (20), если считать, что фононные составляющие теплопроводностей в обоих случаях равны.

Если же предположить, что время релаксации в образце с квантовыми ямами не изменяется по сравнению с объемным, как было сделано в работе Хикса и Дрессельхауз [1], то электропроводность  $\sigma_{2D}^*$  для этого случая можно получить из (11), подставив  $\tau_{2D} = \tau_{3D}$ :

$$\sigma_{2D}^* = \frac{e^2k_0T\tau_0}{\pi\hbar^2a} I_{3/2}^{(3D)}(\mu^*). \tag{21}$$

Для добротности в этом случае получим следующее выражение:

$$Z_{2D}^*T = \frac{(I_{5/2}^{(3D)}(\mu^*) - \mu^* I_{3/2}^{(3D)}(\mu^*))^2}{I_{3/2}^{(3D)}(\mu^*)(1/B^* + I_{7/2}^{(3D)}(\mu^*)) - (I_{5/2}^{(3D)}(\mu^*))^2}, \tag{22}$$

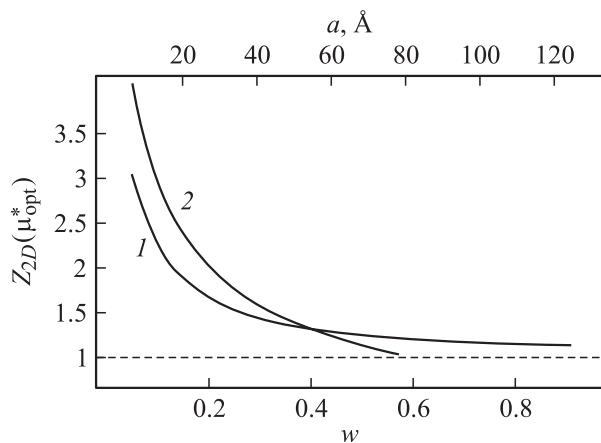
где параметр материала  $B^*$  отличается от  $B$  множителем

$$B^* = B \frac{3}{2w}. \tag{23}$$

Используя формулы (19) и (22), можно оценить изменение добротности при переходе от объемного образца к образцу с квантовыми ямами, а также сравнить величины этого изменения с учетом уменьшения времени релаксации (19) и без него (22). Для этого выберем значение параметра  $B = 0.073$ , соответствующее оптимизированной по химическому потенциалу добротности  $Z_{3D}(\mu_{opt}^*)T \approx 1$ . Это дает возможность построить графики оптимизированных по величине химического потенциала добротностей  $Z_{2D}(\mu_{opt}^*)$  и  $Z_{2D}^*(\mu_{opt}^*)$ , отнесенных к объемному значению, от параметра  $w$  (см. рисунок).

Для численных оценок были выбраны следующие параметры: температура Дебая  $\Theta_D = 150$  К и усредненная эффективная масса  $m^* = 0.07m_0$ , соответствующие параметрам PbTe. Тогда для комнатной температуры  $T = 300$  К выполняется условие упругости рассеяния.

Для того чтобы реализовалась ситуация, в которой преимущественный вклад в перенос дает нижняя подзона размерного квантования, необходимо, чтобы энергетическое расстояние до второй подзоны, равное  $3\hbar^2\pi^2/2m^*a^2$ , было велико по сравнению с тепловой энергией или с величиной химического потенциала в области вырождения. Первое из этих условий ограничивает сверху диапазон изменения параметра  $w$  величиной  $\sqrt{3}$ . Проверка второго из условий с использованием проведенных оценок показала, что в области  $w > 0.44$ , где величина  $\mu_{opt}^*$  оказывается положительной, оптимальные значения величины химического потенциала не превышают  $k_0T$ . Таким образом, вкладом в перенос от вышележащих подзон можно пренебречь.



Зависимость отношения термоэлектрической эффективности в слоистой структуре с квантовыми ямами и в объемном образце от параметра  $w$ , пропорционального толщине квантовой ямы  $a$ . Кривая 1 построена с учетом изменения времени релаксации в структуре с квантовыми ямами, а кривая 2 — с использованием объемного значения для времени релаксации [1].

На рисунке кривая 1 соответствует термоэлектрической эффективности, отнесенной к объемному значению, в структурах с квантовыми ямами с учетом изменения времени релаксации, а кривая 2 — добротности, вычисленной, как и в работах Хикса и Дрессельхауз [1], с использованием объемного значения для времени релаксации. Сравнение показывает, что в обоих случаях термоэлектрические эффективности увеличиваются с уменьшением толщин квантовых ям, однако при учете изменения времени релаксации при переходе от объемного образца к структуре с квантовыми ямами выигрыш в добротности будет несколько меньше, поскольку в этом случае предельное значение времени релаксации в структуре с квантовыми ямами в 2 раза меньше, чем в объемном образце.

#### 4. Заключение

В данной работе было теоретически исследовано влияние изменения времени релаксации на термоэлектрическую эффективность слоистых структур с квантовыми ямами в случае полярного рассеяния носителей на оптических фононах. Расчеты показали, что с уменьшением толщин ям  $a$  время релаксации в образце с квантовыми ямами перестает зависеть от  $a$  и отличается от объемного значения только численным множителем. Это объясняется видом зависимости матричного элемента рассеяния от волнового вектора фонона. Из-за отсутствия закона сохранения квазиимпульса в направлении оси  $z$  увеличивается число фононов, с которыми могут взаимодействовать электроны, т. е. расширяется фазовый объем электронных фононов в пространстве волновых векторов. Это приводит к увеличению вероятности рассеяния и уменьшению времени релаксации, если

матричный элемент не зависит от волнового вектора фононов, что реализуется, например, в случае рассеяния на акустических фононах. В случае рассеяния на оптических фононах уменьшение объемного матричного элемента с ростом волнового вектора фонона компенсирует увеличение вероятности рассеяния за счет расширения фазового объема электронных фононов.

Отсутствие зависимости времени релаксации от толщин квантовых ям в области малых  $a$  приводит к увеличению добротности по сравнению с объемным образцом. Однако выигрыш в добротности в этом случае оказывается меньше, чем полученный в рамках предположения Хикса и Дрессельхауз [1] о не изменяющемся по сравнению с объемным образцом времени релаксации, из-за того что в области малых  $a$  время релаксации в структуре с квантовыми ямами оказывается в 2 раза меньше, чем в объемном образце.

Из расчетов, произведенных нами в настоящей работе и в [8], следует вывод, что увеличение  $Z$  благодаря размерному квантованию электронов возможно лишь при условии, что вероятность рассеяния носителей тока убывает с увеличением волнового вектора, переданного при рассеянии.

Приведенные же в настоящей работе численные результаты имеют смысл лишь в сравнении с результатами, полученными без учета влияния размерного квантования на подвижность. Как известно из литературы [4–7, 10–13], более реалистичные результаты могут быть получены лишь с учетом влияния слоистого характера структуры на фононы, и туннелирования электронов через барьеры, разделяющие квантовые ямы, теплопроводности по барьерным слоям, а также рассеяния на неоднородностях толщины квантовых ям.

Работа поддержана Программой фундаментальных исследований Отделения физических наук Российской академии наук.

#### Список литературы

- [1] L.D. Hicks, M.S. Dresselhaus. *Phys. Rev. B*, **47**, 12 727 (1993).
- [2] L.D. Hicks, M.S. Dresselhaus. *Phys. Rev. B*, **47**, 16 631 (1993).
- [3] L.D. Hicks, T.C. Harman, M.S. Dresselhaus. *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 3230 (1993).
- [4] D.A. Broido, T.L. Reinecke. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 1170 (1995).
- [5] D.A. Broido, T.L. Reinecke. *Phys. Rev. B*, **51**, 13 797 (1995).
- [6] T.L. Reinecke, D.A. Broido. *Proc. Mater. Res. Soc. Symp.*, **487**, 161 (1997).
- [7] I. Sur, A. Casian, A.A. Balandin, Z. Dashevsky, V. Kantser, H. Scherrer. *Proc. 21st Int. Conf. on Thermoelectrics* (Long Beach, CA, USA, 2002) p. 288.
- [8] Д.А. Пшенай-Северин, Ю.И. Равич. *ФТП*, **36**, 974 (2002).
- [9] А.И. Ансельм. *Введение в теорию полупроводников* (М., Наука, 1978).
- [10] L. Friedman. *Phys. Rev. B*, **32**, 955 (1985).
- [11] T. Koga, O.A. Rabin, M.S. Dresselhaus. *Phys. Rev. B*, **62**, 16 703 (2000).

- [12] A. Balandin. Phys. Low-Dim. Structur., **5/6**, 73 (2000).  
[13] A. Khitun, K.L. Wang. Phys. Low-Dim. Structur., **5/6**, 11 (2000).

*Редактор Л.В. Беляков*

## **Calculation of the thermoelectric figure of merit in layered structures with quantum wells in the case of polar scattering on optical phonons**

*D.A. Pshenay-Severin, Yu.I. Ravich\**

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

\* St. Petersburg State Technical University,  
195251 St. Petersburg, Russia

**Abstract** Calculation of an increase in the thermoelectric figure of merit in layered structures with quantum wells has been made under the polar scattering on optical phonons. On the base of calculations fulfilled earlier and the new ones as well, it is concluded that the increase in the figure of merit may occur due to the size quantum effect only if the probability of carrier scattering decreases with the growth the wave vector change.