

УДК 621.315.592

ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕКТРОНОВ ИЛИ ЭКСИТОНОВ В СИСТЕМЕ НЕРАВНОВЕСНЫХ ФОНОНОВ

Е. Л. Ивченко, Л. В. Такунов

Теоретически исследовано влияние вида неравновесного фононного распределения на функцию распределения взаимодействующих с этими фононами частиц (носители тока, экситоны). Точное численное решение кинетического уравнения сравнивается с решением, полученным в квазиупругом приближении. Проанализировано влияние на функцию распределения частиц конечности времени их жизни в зоне. Задание распределения акустических фононов, характеризуемого двумя эффективными температурами, позволяет описать функцию распределения экситонов в горячем пятне, измеренную в Cu_2O .

В [1] экспериментально исследовались спектры экситон-фононной люминесценции при интенсивном оптическом возбуждении образцов Cu_2O , когда вблизи поверхности создается горячее фононное пятно. Из этих спектров определялось энергетическое распределение экситонов в зоне Γ_3^+ (1s-ортоэкситоны), анализ которого позволил сделать в [1] ряд качественных выводов относительно неравновесного распределения фононов в горячем пятне. В настоящей работе теоретически исследуется связь между энергетическим распределением частиц с изотропным параболическим спектром $E_{\mathbf{k}} = (\hbar k)^2/2m$ (электроны, экситоны) и заданным частотным распределением неравновесных акустических фононов, взаимодействующих с этими частицами.

Для нахождения неравновесной функции распределения частиц $f(E)$ необходимо решить кинетическое уравнение

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{ст}} \equiv \sum_{\mathbf{k}'} [W_{\mathbf{k}' \rightarrow \mathbf{k}} f(E_{\mathbf{k}'}) - W_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'} f(E_{\mathbf{k}})] = 0, \quad (1)$$

$$W_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'} = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'}^{(\nu)}|^2 \left(N_{\omega_{\mathbf{q}}}^{(\nu)} + \frac{1 \pm 1}{2}\right) \delta(E_{\mathbf{k}'} - E_{\mathbf{k}} \pm \hbar\omega_{\mathbf{q}}^{(\nu)}). \quad (2)$$

Здесь $M_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'}^{(\nu)}$ — матричный элемент перехода $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'$ с испусканием (+) или поглощением (−) акустического фонона, $\mathbf{q} = \pm(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$ — волновой вектор, $\omega_{\mathbf{q}}^{(\nu)}$ — частота фонона ветви ν , $N_{\omega_{\mathbf{q}}}^{(\nu)}$ — числа заполнения неравновесных фононов. Мы предполагаем выполненным неравенство $f(E) \ll 1$, поэтому интеграл столкновений $(\partial f/\partial t)_{\text{ст}}$ линеен по отношению к функции $f(E)$. С учетом оптической генерации частиц и ухода их из зоны кинетическое уравнение имеет вид

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{ст}} + G(E) - \frac{1}{\tau_0} f(E) = 0, \quad (3)$$

где $G(E)$ — генерационный член, τ_0 — время жизни частиц в зоне. В квазиупругом приближении $\hbar\omega_{\mathbf{q}} \ll E$, где E — характерная энергия частиц, интеграл столкновений можно записать в дифференциальной форме [2]

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{ст}} = \frac{1}{g(E)} \frac{d}{dE} \left[g(E) \left(Q^0 f + D \frac{df}{dE} \right) \right]. \quad (4)$$

где $g(E)$ — плотность состояний частиц, $Q^0(E)$ — мощность спонтанных потерь, т. е. мощность потерь $Q(E) \equiv -\langle \Delta E \rangle_W$ при $N_{\omega}^{(v)} \equiv 0$; $D(E) \equiv 0.5 \langle (\Delta E)^2 \rangle_W$ — коэффициент энергетической диффузии (использованы обозначения § 2.4 книги [8]).

Рассчитаем вначале функцию распределения $f(E)$ в наивысшем приближении по малому параметру

$$\tau(E)/\tau_0 \ll 1, \quad (5)$$

где $\tau^{-1}(E_k)$ — вероятность рассеяния частицы из состояния k ,

$$\tau^{-1}(E_k) = \sum_{k'} W_{k \rightarrow k'}. \quad (6)$$

Эффекты конечного времени жизни τ_0 мы проанализируем в дальнейшем.

В предельном случае (5) при нахождении функции $f(E)/f(0)$ в уравнении (3) можно пренебречь генерационным и рекомбинационным членами. Тогда из (4) следует, что в квазиуспругом приближении

$$f(E) = f(0) \exp \left[- \int_0^E dE' \frac{Q^0(E')}{D(E')} \right]. \quad (7)$$

Значение функции распределения на дне зоны найдем, приравняв приход и уход

$$\int_0^{\infty} dE g(E) f(E) = \tau_0 \int_0^{\infty} dE g(E) G(E). \quad (8)$$

Из (7) следует, что эффективная температура частиц с энергией E

$$k_B T_{eff}(E) \equiv - \left[\frac{1}{f(E)} \frac{df(E)}{dE} \right]^{-1} = \frac{D(E)}{Q^0(E)}. \quad (9)$$

Для деформационного механизма взаимодействия частиц с LA -фононами, когда $|M_{k \rightarrow k'}^{(LA)}|^2 \sim q$, при $N_{\omega}^{(LA)} \gg 1$ справедливо соотношение

$$D(E)/Q^0(E) = \hbar s_{LA} \left(\int_0^{2k} dq q^4 N_{\omega_q}^{(LA)} \right) \left(\int_0^{2k} dq q^3 \right),$$

откуда получаем

$$N_{2s_{LA}k}^{(LA)} = \frac{1}{4\hbar s_{LA}kE} \frac{d}{dE} \left[E^2 \frac{f(E)}{Q^0(E)} \right], \quad (10)$$

где $k = (2mE/\hbar^2)^{1/2}$, s_{LA} — скорость продольного звука. Формулы (9), (10) решают обратную задачу об определении фононного распределения из измеренной зависимости $d \ln f(E)/dE$.

Согласно [1], зависимость $f(E)$ в Cu_2O при мощности лазерного возбуждения $P = 10^4$ Вт/см² ($\lambda = 530$ нм) включает две больцмановские области: низкоэнергетическую с температурой $T_n \approx 14$ К и высокоэнергетическую с $T_v \approx 22$ К, с переходом от одной области к другой при $E^* \approx 2$ мэВ. Тогда в предельном случае $\tau_0 \gg \tau(E)$ из (9), (10) следует, что в системе низко- и высокочастотные фононы характеризуются температурами T_n и T_v . Надежное определение частотной зависимости $N_{\omega}^{(LA)}$ в промежуточной области затруднено в связи с неточностью определения из эксперимента хода $f(E)$ при $E \sim E^*$. Для расчета $f(E)$ в этой области мы постулировали зависимость $N_{\omega}^{(LA)}$ в виде

$$N_{\omega} = \begin{cases} N(\omega, T_n), & \omega < \omega_0, \\ N(\omega, T_v), & \omega > \omega_0, \end{cases} \quad (11)$$

где ω_0 — некоторая частота, $N(\omega, T) = [\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1]^{-1}$. В этом случае в квазиупругом приближении $\hbar\omega \ll k_B T_{II}, k_B T_{II}$,

$$T_{\text{eff}}(E) = \begin{cases} T_{II}, & E < E_0, \\ T_{II} - (T_{II} - T_{II}) (E_0/E)^2, & E > E_0, \end{cases} \quad (12)$$

где $E_0 = (\hbar\omega_0)^2/8ms_{LA}^2$. Подставляя (12) в (7), получим после интегрирования по E функцию распределения частиц, отвечающую неравновесному фононному распределению (11):

при $E < E_0$

$$f(E) = f(0) \exp(-E/k_B T_{II}), \quad (13a)$$

при $E > E_0$

$$-\ln \frac{f(E)}{f(0)} = \frac{E}{k_B T_{II}} + \frac{E_0}{k_B} \left(\frac{1}{T_{II}} - \frac{1}{T_{II}} \right) + \frac{E_0}{k_B T_{II}} r(E), \quad (13b)$$

$$r(E) = \frac{1}{2a} \ln \left(\frac{Ea - E_0}{Ea + E_0} \frac{a+1}{a-1} \right), \quad a = \left(\frac{T_{II}}{T_{II} - T_{II}} \right)^{1/2}.$$

Второе и третье слагаемые в правой части (13b) обеспечивают плавный переход с ростом E от больцмановского распределения с $T=T_{II}$ к больцмановскому распределению с $T=T_{II}$. Заметим, что $r(E_0)=0$ и функция $f(E)$ в (13) при $E=E_0$ непрерывна.

Для параметров Cu_2O ($s_{LA}=4.5 \cdot 10^5$ см/с, эффективная масса экситонов $m=3m_0$ [1, 4], где m_0 — масса свободного электрона) при рассеянии на 180° экситона с энергией $E \sim 2$ мэВ энергия испускаемого LA -фонона сравнима с E и критерий квазиупругости не выполняется. Тем не менее численное решение уравнения (1) методом итераций показало, что для распределения фононов (11) в актуальной области значений T_{II} и T_{II} точная и приближенная функции $f(E)$ практически не различаются, и формулы (13a), (13b) можно использовать для анализа экспериментальных данных в пределе $\tau_0 \gg \tau_p$. На рис. 1 построено семейство кривых $f(E)$, рассчитанных для экситонов в Cu_2O при различных значениях граничной частоты ω_0 в фононном распределении (11). Зависимость от E последнего слагаемого в правой части (13b) может служить мерой взаимодействия высокоэнергетических частиц с низкочастотными фононами. Функция $r(E)$ вначале быстро нарастает с ростом E , а затем плавно приближается к предельному значению

$$(2a)^{-1} \ln [(a+1)/(a-1)] > 0.$$

Поэтому пересечение касательных к кривой $\ln f(E)$ в точке $E < E_0$ и точке $E \gg E_0$ происходит при энергии

$$E^* = E_0 \left(1 + \frac{a^2 - 1}{2a} \ln \frac{a+1}{a-1} \right). \quad (14)$$

Значения E_0 и E^* при $\kappa \equiv \hbar\omega_0/(2ms_{LA}^2) = 3.1$ указаны стрелками на рис. 1. Именно при этом значении κ получается наилучшее согласие с экспериментальной функцией распределения, измеренной в [1] при $P=10^4$ Вт/см².

Для иллюстрации влияния вида фононного распределения на распределение частиц по энергии на рис. 2 изображена зависимость $f(E)$, рассчитанная для неравновесной функции распределения фононов

$$N_\omega = \begin{cases} N(\omega_0, T_{II}), & \omega < \omega_0, \\ N(\omega, T_{II}), & \omega > \omega_0. \end{cases} \quad (15)$$

Различие между функциями $f(E)$, рассчитанными точно (кривая 2) и в квазиупругом приближении (кривая 3), в этом случае больше, чем для распределения (11), однако это различие невелико и, очевидно, формула квазиупругого приближения (7) по-прежнему применима.

Учет взаимодействия с ТА-фононами. Для описания экситон-фононного взаимодействия в Cu_2O мы использовали оператор деформационного взаимодействия в виде

$$V(\epsilon) = \begin{bmatrix} (a-b)\epsilon + 2\beta\epsilon_{xx} & c\epsilon_{xy} & c\epsilon_{xz} \\ c\epsilon_{xy} & (a-b)\epsilon + 2\beta\epsilon_{yy} & c\epsilon_{yz} \\ c\epsilon_{xz} & c\epsilon_{yz} & (a-b)\epsilon + 2b\epsilon_{zz} \end{bmatrix}. \quad (16)$$

Здесь оператор $V(\epsilon)$ записан в базе волновых функций ортоэкситона $\Gamma_{2'}^+$, преобразующихся при преобразованиях симметрии как функции yz , zx , xy ; $\epsilon_{\alpha\beta}$ — тензор деформаций, $\epsilon = \text{Sp } \epsilon$. Очевидно, при отличных от нуля константах деформационного потенциала b и c ортоэкситон взаимодействует не только с продольными, но и с поперечными акустическими

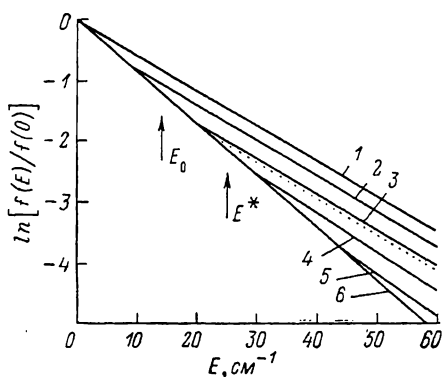


Рис. 1. Функция распределения частиц при большом времени их жизни в зоне, рассчитанная для фононного распределения (11) с $T_H=16$ К, $T_B=24$ К.

Сплошные кривые 1–6 рассчитаны при $\chi \equiv \hbar\omega_0/2ms_{LA}^2 = 0, 2, 3, 4, 5, \infty$; пунктирная кривая — при $\chi=3.1$. Расчет проводился при $m=3m_0$, $s_{LA}=4.5 \cdot 10^8$ см/с, взаимодействие частиц с ТА-фононами не учитывалось. Стрелками указано положение энергий E_0 и E^* (см. (12), (14)) при $\chi=3.1$.

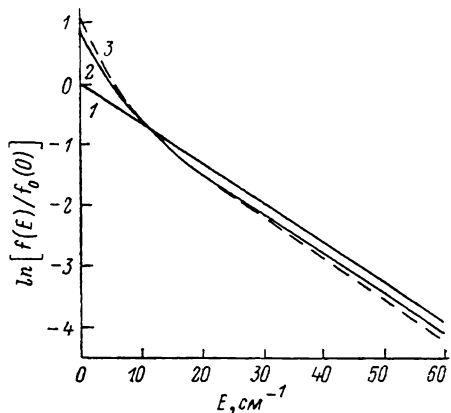


Рис. 2. Функция распределения частиц при большом времени их жизни в зоне для фононного распределения (15) с $T_B=21$ К.

Сплошные кривые 1, 2 рассчитаны при $\chi=0, 3$; штриховая кривая 3 — расчет при $\chi=3$ в квазиупругом приближении. Функции распределения нормированы на одну и ту же концентрацию частиц. $f_0(0)$ — функция распределения при $\chi=0$, $E=0$.

фононами. Расчет показывает, что для описания энергетической релаксации экситонов, т. е. для нахождения сферически симметричной составляющей неравновесной функции распределения экситонов, вместо матричного оператора (16) можно пользоваться скалярным оператором с матричными элементами

$$M_{k \rightarrow k'}^{(\nu)} = i \left(\frac{\hbar}{2\sigma s_\nu} \right)^{1/2} \Xi_\nu \rho, \quad (17)$$

где ρ — плотность, а эффективные константы деформационного потенциала Ξ_L и Ξ_T связаны с константами a , b и c в (16) соотношениями

$$\Xi_L^2 = a^2 + \frac{2}{3} \Xi_T^2, \quad \Xi_T^2 = \frac{6}{5} b^2 + \frac{1}{5} c^2. \quad (18)$$

При $a=1.203$ эВ, $b=0.292$ эВ, $|c|=0.227$ эВ [5] получаем $\Xi_L^2 = 1.52$ (эВ)², $\Xi_T^2 = 0.11$ (эВ)².

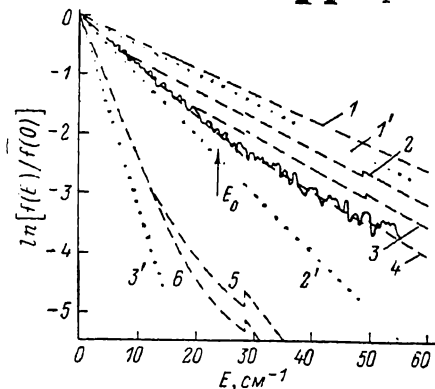
В квазиупругом приближении обратное время рассеяния на фононах ветви ν $\tau^{-1}(E) \propto (\Xi_\nu/s_\nu)^2$, в то время как выражения для мощности спонтанных потерь Q^0 и коэффициента диффузии D множителя s_ν^2 в знаменателе не содержат. Поэтому малость Ξ_T по сравнению с Ξ_L позволяет при расчете функции распределения $f(E)$ в квазиупругом приближении пренебрегать взаимодействием экситонов с ТА-фононами, тогда как вклад

LA- и TA-фононов в обратное время рассеяния (6) могут быть сравнимы из-за малости скорости поперечного звука s_{TA} по сравнению с s_{LA} . Точный расчет для распределения (15) показывает, что дополнительный учет в кинетическом уравнении взаимодействия экситонов в Cu_2O с TA-фононами приводит к незначительному изменению функции $f(E)$: с учетом TA-фононов кривая $\ln [f(E)/f_0(0)]$ почти совпадает с кривой \mathcal{Z} на рис. 2, рассчитанной в квазиупругом приближении при $E_T = 0$ (ясно, что это совпадение случайно).

Учет конечности времени жизни экситонов. На рис. 3 приведены результаты численного расчета функции распределения $f(E)$ при конечном времени жизни экситонов $\tau_0 = 10^{-9}$ с (кривые 1-5) и $1.5 \cdot 10^{-9}$ с (кривая 6) и экспериментальное распределение экситонов в горячем пятне при $P = 10^4$ Вт/см². При расчете для определенности мы предполагали, что экситоны генерируются в состоянии Δ_c энергией:

Рис. 3. Функции распределения частиц при конечном времени жизни их в зоне для фонованого распределения (11) с $T_{\text{н}} = 14$ К, $T_{\text{н}} = 28$ К (кривые 1-4) и равновесного фонованого распределения с $T = 4.2$ К (кривые 5, 6).

Сплошная кривая — эксперимент [1] при мощности возбуждения $P = 10^4$ Вт/см², кривые 1-4 рассчитаны соответственно при $\kappa = 0, 2, 3, 4$. Кривые 1'-3' — больцмановские функции с температурой $T_{\text{н}}$, $T_{\text{н}}$ и 4.2 К. Расчет проводился при $m = 3m_0$, $s_{LA} = 4.5 \cdot 10^5$ см/с; $s_{LA}/s_{TA} = 3.2$; $E^{(0)} = 60$ см⁻¹; $E_L^2 = 1.52$ (эВ)², $E_T^2 = 0.11$ (эВ)²; $\tau_0 = 10^{-9}$ с (кривые 1-5); $1.5 \cdot 10^{-9}$ с (кривая 6). Стрелка указывает положение энергии $E_0 = (\hbar\omega_0)^2/8ms_{LA}^2$ при $\kappa = 4$.



$E^{(0)}$ и генерационный член в (3) $G(E) = G\delta(E - E^{(0)})/g(E^{(0)})$ и полагали $E^{(0)} = 60$ см⁻¹, так что $E^{(0)}$ меньше энергии возбуждения оптических фононов в Cu_2O и в то же время в 3-5 раз превышает использованные при расчете значения $k_B T_{\text{н}}$, $k_B T_{\text{н}}$. Учитывалось взаимодействие экситонов и с LA-, и с TA-фононами, кривые 1-4 рассчитывались для фонованого распределения (11), кривые 5, 6 — для равновесных фононов с $T = 4.2$ К. Наилучшее согласие с экспериментальной кривой получается при $\kappa = 4$.

Разрывы расчетных функций $f(E)$ на рис. 3 совпадают с разрывами функции распределения экситонов, испытавших однократное рассеяние с испусканием акустического фонона

$$f^{(1)}(E) = \frac{\pi}{2} G\tau(E^{(0)})\tau(E) \sum_{\nu=L,T} \frac{E_{\nu}^2}{\hbar\rho s_{\nu}^2} \frac{q_{\nu}^2}{kk^{(\nu)}} (N_{\omega_q}^{(\nu)} + 1), \quad (19)$$

где $k^{(0)} = (2mE^{(0)}/\hbar^2)^{1/2}$, $q = (E^{(0)} - E)/\hbar s_{\nu}$. Функция $f^{(1)}(E)$ терпит разрыв при энергии $E_{\nu, \min}$ равной энергии экситона в конечном состоянии после однократного рассеяния на 180° с испусканием фонона ветви ν . Малость E_T^2 компенсируется в (19) большим множителем $s_{TA}^2 (N_{\omega}^{(TA)} + 1)$, вследствие чего скачки функции $f(E)$ в точках $E_{L, \min}$ и $E_{T, \min}$ сравнимы по порядку величины (значения q_L и q_T в этих точках различаются незначительно).

Сравнение кривых 1 и 1' или 5, 6 и 3' показывает, что учет конечности времени жизни при равновесном распределении фононов приводит к повышению эффективной температуры экситонов. Так, на участке от 0 до 12 см⁻¹ кривые 5 или 6 соответствуют больцмановскому распределению с температурой $T_{\text{eff}} \approx 6$ К в согласии с экспериментальной функцией распределения, измеренной в [1] в отсутствие горячего пятна. Если учет конечности времени жизни экситона разворачивает зависимость $\ln [f(E)/f(0)]$ в сторону кривой 1, то учет взаимодействия с TA-фононами при распределении (11) приводит к уменьшению $f(E)$ на высокоэнергетическом участке: для TA-фононов энергия $E_0 = (\hbar\omega_0)^2/8ms^2$ выше, чем ана-

логичная энергия для LA -фононов. Кривые $\ln [f(E)/f(0)]$ на рис. 3 сдвинуты вверх относительно кривых на рис. 1, рассчитанных при тех же значениях x . Следовательно, учет конечного времени жизни $\tau_0=10^{-9}$ с сказывается на $f(E)$ сильнее, чем учет взаимодействия экситонов с TA -фононами.

Заметим, что величины Ξ_v в (17) можно считать константами лишь при условии $a_B q \ll 1$, где a_B — боровский радиус экситона. Действительно, для полупроводников с простыми изотропными зонами величину Ξ_L в (17) нужно заменить на [6]

$$\Xi_L(q) = \frac{\Xi^{(c)}}{\left[1 + \left(\frac{a_B}{2} q \frac{m_v}{M}\right)^2\right]^2} - \frac{\Xi^{(v)}}{\left[1 + \left(\frac{a_B}{2} q \frac{m_c}{M}\right)^2\right]^2}, \quad (20)$$

где $\Xi^{(c)}$, $\Xi^{(v)}$ — константы деформационного потенциала для электронов в зоне проводимости и валентной зоне; m_c , m_v — эффективные массы электронов и дырок, $M=m_c+m_v$. При $m_c=0.34m_0$, $m_v=2.66m_0$ и диэлектрической проницаемости 6 получаем $a_B=10.5$ Å. Оценки показывают, что при различных знаках $\Xi^{(c)}$ и $\Xi^{(v)}$ учет зависимости $\Xi_L(q)$ мало влияет на функцию распределения ортоэкситонов в Cu_2O , тогда как при совпадающих знаках $\Xi^{(c)}$ и $\Xi^{(v)}$ наличие этой зависимости может заметно модифицировать хвост функции распределения $f(E)$.

Таким образом, в работе показано, что задание неравновесного распределения акустических фононов (11), характеризующего двумя температурами, позволяет описать экспериментальную функцию распределения экситонов в горячем пятне, и установлена связь между граничной частотой фононного распределения ω_0 и энергией «излома» у функции распределения экситонов.

В заключение авторы выражают благодарность А. В. Акимову, А. А. Каплянскому и Е. С. Москаленко за постановку задачи и полезные дискуссии.

Л и т е р а т у р а

- [1] *Akimov A. V., Kaplyanskii A. A.* In: *Phonon Physics*, ed. by Kollár J., Kroó N., Menyhard N., Siklos T., 1985, p. 449—451; *Акимов А. В., Каплянский А. А., Москаленко Е. С.* ФТТ, 1987, т. 29, № 2, с. 509—514.
- [2] *Басс Ф. Г., Гуревич Ю. Г.* Горячие электроны и сильные электромагнитные волны в плазме полупроводников и газового разряда. М.: Наука, 1975. 400 с.
- [3] *Гантмагер В. Ф., Левинсон И. Б.* Рассеяние носителей тока в металлах и полупроводниках. М.: Наука, 1984. 350 с.
- [4] *Крейнгольд Ф. И., Лидер К. Ф.* ФТТ, 1987, т. 29, № 3, с. 749—752.
- [5] *Waters R. G., Pollak F. H., Bruce R. H., Cummins H. Z.* Phys. Rev. B, 1980, vol. 21, N 4, p. 1665—1675.
- [6] *Ивченко Е. Л., Собиров М. М.* ФТТ, 1985, т. 27, № 4, с. 1096—1104.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Поступило в Редакцию
8 декабря 1987 г.