

Расчет подвижности носителей заряда в алмазе при низких температурах

© А.С. Батулин, В.Н. Горелкин, В.Р. Соловьев, И.В. Черноусов[¶]

Московский физико-технический институт,
141700 Долгопрудный, Россия

(Получена 10 ноября 2009 г. Принята к печати 22 декабря 2009 г.)

Проведены численные оценки различных квазиупругого и неупругого приближений для расчета подвижности электронов и дырок в алмазе при низких температурах, когда неупругость рассеяния носителей на акустических фононах становится существенной. Вычисления показали, что подвижность, отвечающая почти равновесной функции распределения, даже при температуре 20 К в несколько раз отличается от значения, получаемого в квазиупругом приближении. Полученные результаты важны для интерпретации низкотемпературных электрофизических экспериментов в высокочистых монокристаллах алмаза.

1. Введение

При температурах ниже 300 К в достаточно чистых образцах алмаза подвижность носителей заряда определяется рассеянием на акустических фононах. За последние полвека было проведено множество измерений подвижности носителей в алмазе в зависимости от температуры для разных типов алмазов [1–5]. Тем не менее, диапазон температур ниже 80 К практически не был изучен. В связи с перспективностью использования алмаза для создания электронных приборов с уникальными свойствами [6] и возможным наличием аномальных электрических явлений в алмазе при низких температурах [7], измерения подвижности в этом диапазоне температур в чистых монокристаллах алмаза рано или поздно будут проведены. По этой причине встает вопрос об интерпретации этих будущих экспериментов. Обычно для расчета подвижности применяют квазиупругое приближение, когда считают, что скорость изменения энергии частицы много меньше скорости изменения ее импульса. В случае рассеяния на акустических фононах это приближение дает для подвижности зависимость $\mu \propto T^{-3/2}$. Необходимо отметить, что оно неприменимо в алмазе при низких температурах ввиду большой энергии, теряемой носителем при испускании фонона. Поэтому при расчетах нужно учитывать неупругость, что, как показано в данной статье, кардинально усложняет выражения для интеграла столкновений носителей на акустических фононах, а следовательно, и сам расчет значений подвижности. Данная статья посвящена изучению отличий между подвижностями, получаемыми последовательным учетом неупругости взаимодействия носителей с фононами и квазиупругим подходом. Оказалось, что при температуре около 100 К их значения различаются на 20%, а при 20 К — в 3 раза.

2. Кинетическое уравнение Больцмана для функции распределения

2.1. Уравнение Больцмана в двухмоментном приближении

Для корректного учета вклада неупругих процессов в подвижность следует решать уравнение Больцмана для функции распределения носителей заряда $f(\mathbf{k}, t)$

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{e\mathbf{E}}{\hbar} \frac{\partial f}{\partial \mathbf{k}} = J_{\text{st}}[f] + Q[\varepsilon] - \frac{f}{\tau_{\text{rec}}(\varepsilon)}, \quad (1)$$

где e — заряд носителя, \hbar — постоянная Планка, \mathbf{E} — электрическое поле, \mathbf{k} — волновой вектор носителя, $J_{\text{st}}[f]$ — интеграл столкновений носителей с акустическими фононами, $Q(\varepsilon)$ — плотность источников носителей с энергией ε , $\tau_{\text{rec}}(\varepsilon)$ — время захвата (величина, обратная скорости захвата) носителей с энергией $\varepsilon = \hbar^2 k^2 / 2m$, m — эффективная масса носителей. В данной работе мы ограничимся рассмотрением пространственно однородного случая, поэтому в уравнении (1) координатно-зависимые части опущены. Уже такое упрощенное рассмотрение демонстрирует ряд принципиальных отличий от квазиупругого приближения (КП). Именно эти отличия мы и рассмотрим далее.

В случае слабых полей, который мы будем анализировать, вполне естественно использовать двухмоментное приближение [8], что соответствует первым двум членам разложения по полиномам Лежандра. В этом случае функция распределения $f(\mathbf{k}, t)$ представляется в виде

$$f(\mathbf{k}, t) = f_0(\varepsilon, t) + (\mathbf{E} \cdot \mathbf{k})\varphi(\varepsilon, t), \quad (2)$$

где сферически-симметричная часть $f_0(\varepsilon, t)$ и дипольная часть $\varphi(\varepsilon, t)$ функции распределения зависят только от энергии носителя ε . Сферически-симметричная часть нормируется на плотность носителей заряда n :

$$\int f_0(\varepsilon, t) d\mathbf{k} = (2\pi)^3 n, \quad (3)$$

[¶] E-mail: ichernousov@inbox.ru

а плотность электрического тока \mathbf{j} определяется дипольной частью:

$$j_\alpha = en\mu E_\alpha,$$

где

$$\mu = \frac{2}{3\hbar} \frac{\int_0^\infty \varepsilon^{\frac{3}{2}} \varphi(\varepsilon, t) d\varepsilon}{\int_0^\infty \sqrt{\varepsilon} f_0(\varepsilon, t) d\varepsilon} \quad (4)$$

— подвижность. При сравнительно низких температурах ($T < 300$ К) основным механизмом рассеяния носителей заряда в чистых образцах является рассеяние на акустических фононах. Рассмотрим этот процесс в приближении деформационного потенциала (энергетическая поверхность считается изотропной), энергия взаимодействия между носителем и фононом представляется пропорциональной дивергенции вектора смещения с коэффициентом пропорциональности Ξ [8,9]. Константа деформационного потенциала Ξ для легких дырок в алмазе была определена в работе [10] по экспериментальным данным из [11] и оказалась равна 11.5 эВ. В этом приближении удалось свести интегралы столкновений для симметричной и дипольной частей функции распределения к одним функциям энергии [7].

Подстановка разложения (2) в уравнение (1) преобразует последнее в систему уравнений для функций f_0 и φ . Для малого электрического поля \mathbf{E} можно пренебречь членами уравнения, пропорциональными E^2 , тогда с учетом выражений для интеграла столкновений на акустических фононах из [7] получим систему

$$\frac{\partial f_0(\varepsilon, t)}{\partial t} = C(\varepsilon) \int_{\frac{2ms}{\hbar} - \frac{2\sqrt{2m\varepsilon}}{\hbar}}^{\frac{2ms}{\hbar} + \frac{2\sqrt{2m\varepsilon}}{\hbar}} \text{sign}(q) \left\{ f_0(\varepsilon + \hbar s q, t) [\bar{n}(q) + 1] - f_0(\varepsilon, t) \bar{n}(q) \right\} q^2 dq + Q(\varepsilon) - \frac{f_0(\varepsilon, t)}{\tau_{\text{rec}}(\varepsilon)}, \quad (5)$$

$$\frac{\partial \varphi(\varepsilon, t)}{\partial t} + \frac{e\hbar}{m} \frac{\partial f_0(\varepsilon, t)}{\partial \varepsilon} = C(\varepsilon) \times \int_{\frac{2ms}{\hbar} - \frac{2\sqrt{2m\varepsilon}}{\hbar}}^{\frac{2ms}{\hbar} + \frac{2\sqrt{2m\varepsilon}}{\hbar}} \text{sign}(q) \left\{ \varphi(\varepsilon + \hbar s q, t) \left[1 - \frac{1}{2\varepsilon} \left(\frac{\hbar^2 q^2}{2m} - \hbar s q \right) \right] \times [\bar{n}(q) + 1] - \varphi(\varepsilon, t) \bar{n}(q) \right\} q^2 dq - \frac{\varphi(\varepsilon, t)}{\tau_{\text{rec}}(\varepsilon)}, \quad (6)$$

где

$$C(\varepsilon) = \frac{\Xi^2}{4\pi\hbar^2 \rho s^2} \sqrt{\frac{ms^2}{2\varepsilon}},$$

ρ — плотность материала (для алмаза $\rho \approx 3.5$ г/см³), s — скорость звука в кристалле (для алмаза

$1.86 \cdot 10^6$ см/с),

$$\bar{n}(q) = 1 / \left[\exp\left(\frac{\hbar s q}{k_B T}\right) - 1 \right]$$

— среднее число фононов с волновым вектором q , T — температура кристалла, k_B — постоянная Больцмана, $\hbar s q$ — энергия фонона. В качестве носителей рассмотрим, для примера, легкие дырки. Их эффективная масса равна $m \approx 0.7m_e$ [11], где m_e — масса электрона. Использование при анализе одного определенного типа носителей не влияет на структуру уравнений. Для этого типа носителей были рассчитаны необходимые размерные константы и проведены численные расчеты. Заметим, что неупругие интегралы столкновений в правых частях (5) и (6) весьма неудобны для аналитических расчетов.

Когда потери энергии носителя при одном столкновении существенно меньше средней энергии носителя, импульс быстро теряет начальное направление, а энергия изменяется медленно. В этом случае интеграл столкновений можно существенно упростить, записав его в КП [12,13]:

$$J_{\text{st}}[(\mathbf{E} \cdot \mathbf{k})\varphi(\varepsilon)] = -(\mathbf{E} \cdot \mathbf{k})\nu_{\text{tr}}(\varepsilon)\varphi(\varepsilon, t), \quad (7)$$

где $\nu_{\text{tr}}(\varepsilon)$ — транспортная частота столкновений. Зависимость (7) гораздо удобнее для вычислений, чем интеграл столкновений из (6). Явное выражение для $\nu_{\text{tr}}(\varepsilon)$ [9] может быть записано в виде

$$\nu_{\text{tr}}(\varepsilon) = \frac{1}{\sqrt{2}\tau_0} \left(\frac{k_B T}{ms^2} \right)^{3/2} \left(\frac{\varepsilon}{k_B T} \right)^{1/2}, \quad (8)$$

где постоянная времени

$$\tau_0 = \frac{\pi\rho\hbar^4}{2\Xi^2 m^2 s}$$

для легких дырок в алмазе составляет $5.5 \cdot 10^{-11}$ с.

Из выражений (7) и (6) получается стандартное выражение для $\varphi(\varepsilon, t)$ [12,13]

$$\varphi(\varepsilon, t) = -\frac{e\hbar}{m \left(\nu_{\text{tr}}(\varepsilon) + \frac{1}{\tau_{\text{rec}}(\varepsilon)} \right)} \frac{\partial f_0(\varepsilon, t)}{\partial \varepsilon}, \quad (9)$$

которое обычно используется при расчетах. В дальнейшем полагаем, что в областях применимости КП $\tau_{\text{rec}}(\varepsilon) \gg 1/\nu_{\text{tr}}(\varepsilon)$, поэтому слагаемым, связанным с рекомбинацией, можно пренебречь. При подстановке (9) в (4) и интегрировании по частям для перехода от $\frac{\partial f_0(\varepsilon, t)}{\partial \varepsilon}$ к самой $f_0(\varepsilon, t)$ получается выражение для интегральной подвижности в КП:

$$\mu = \int_0^\infty \sqrt{\varepsilon} \tilde{K}(\varepsilon) f_0(\varepsilon, t) d\varepsilon / \int_0^\infty \sqrt{\varepsilon} f_0(\varepsilon, t) d\varepsilon. \quad (10)$$

Здесь подынтегральный множитель

$$\tilde{K}(\varepsilon) = \frac{e}{m\nu_{tr}(\varepsilon)} \left(1 - \frac{2\varepsilon}{3\nu_{tr}(\varepsilon)} \frac{\partial \nu_{tr}(\varepsilon)}{\partial \varepsilon} \right) \quad (11)$$

можно интерпретировать как подвижность носителей заданной энергии. В работах [10,14] было показано, что в некоторых интервалах энергии носителей эта функция может принимать отрицательные значения.

В простейшем случае почти равновесного распределения носителей по энергии

$$f_B \propto \exp\left(-\frac{\varepsilon}{k_B T}\right)$$

КП позволяет аналитически вычислить как дипольную часть функции распределения с помощью (9):

$$\varphi(\varepsilon, t) = \Phi \left(\frac{ms^2}{k_B T} \right)^{5/2} \left(\frac{2k_B T}{\varepsilon} \right)^{1/2} \exp\left(-\frac{\varepsilon}{k_B T}\right),$$

$$\Phi = \frac{\hbar e \tau_0}{m^2 s^2} = 1.5 \cdot 10^{-5} \text{ с} \cdot \text{см}^{3/2} \cdot \text{Г}^{-1/2}, \quad (12)$$

так и интегральную подвижность [9]:

$$\mu = 2\sqrt{2}\pi e s^2 \rho \hbar^4 / [3\Xi^2 m^{5/2} (k_B T)^{3/2}]. \quad (13)$$

2.2. Решение уравнения Больцмана в стационарном случае

Квазиупругое приближение неприменимо для носителей, чья энергия сопоставима с ms^2 — характерной энергией, теряемой ими при рассеянии на акустических фононах. В этом случае интеграл столкновений в (6) нельзя приближать более удобными с точки зрения вычислений выражениями, как это делалось в квазиупругом случае. Оказывается, что даже с учетом неупругости в важном случае стационарного состояния можно записать неявные уравнения для нахождения функции распределения. В этом случае частные производные по времени в системе уравнений (5), (6) равны нулю. После несложных преобразований (5) получим замкнутое интегральное уравнение

$$f_0(x) = \frac{Q(x)\sqrt{x} + \int_{1-\sqrt{x}}^{1+\sqrt{x}} \text{sign}(y) f_0(x+4y) \frac{\exp(\kappa y)}{\exp(\kappa y)-1} y^2 dy}{\frac{\tau_0 \sqrt{x}}{\tau_{rec}(x)} + \int_{1-\sqrt{x}}^{1+\sqrt{x}} \frac{\text{sign}(y) y^2}{\exp(\kappa y)-1} dy}, \quad (14)$$

где

$$x = \frac{2\varepsilon}{ms^2}, \quad y = \frac{q\hbar}{2ms}, \quad \kappa = \frac{2ms^2}{k_B T}.$$

Аналогично преобразование выражения (6) приводит к уравнению для $\varphi(x)$:

$$\varphi(x) = \frac{-2\Phi \sqrt{x} \frac{\partial f_0(x)}{\partial x} + \int_{1-\sqrt{x}}^{1+\sqrt{x}} \text{sign}(y) \varphi(x+4y) \times \left[1 - \frac{2}{x}(y^2 - y) \right] \frac{\exp(\kappa y)}{\exp(\kappa y)-1} y^2 dy}{\frac{\tau_0 \sqrt{x}}{\tau_{rec}(x)} + \int_{1-\sqrt{x}}^{1+\sqrt{x}} \frac{\text{sign}(y) y^2}{\exp(\kappa y)-1} dy}. \quad (15)$$

Уравнение (14) может быть разрешено независимо от (15) для определения стационарной функции f_0 (следствие малости электрического поля). После этого по вычисленной сферически-симметричной части $f_0(x)$ можно найти дипольную часть $\varphi(x)$, разрешив уравнение (15).

Уравнения (14) и (15) можно решить численно методом последовательных приближений, однако для этого необходимо задать время (скорость) захвата носителей заряда $\tau_{rec}(x)$. В качестве механизма захвата рассмотрим захват на заряженные примеси [15,16], который был использован для расчетов в [7].

Для вычисления подвижности в неупругом приближении (НП) необходимо использовать формулу (4), которая по смыслу принципиально отличается от выражения (10) для КП. Подвижность системы носителей, согласно (10), определяется только симметричной частью функции распределения $f_0(\varepsilon, t)$, которая имеет смысл плотности носителей с данной энергией. В более общем случае из выражения (4) следует, что по одной $f_0(\varepsilon, t)$ уже нельзя найти подвижность ансамбля носителей заряда, необходимо знание дипольной части функции распределения $\varphi(\varepsilon, t)$. Это очень важное различие КП и НП.

3. Сравнение квазиупругого и неупругого приближений

Рассмотрим теперь, насколько сильные различия дает КП по сравнению с НП при вычислении подвижности. Наиболее естественно провести сравнение для стационарного, почти равновесного распределения f_B . В алмазе при температурах порядка 10–100 К свободных носителей, имеющих равновесную функцию распределения, ничтожно мало. Обычно в экспериментах при таких температурах носители в алмазе создаются внешним воздействием, например ионизацией примесей лазерным излучением [17]. Пусть постоянный источник носителей $Q(\varepsilon)$ сосредоточен в области энергии $\varepsilon \gg ms^2$ и концентрация центров захвата n_c такова, что время релаксации энергии носителей много меньше времени захвата. Тогда носители будут формировать функцию распределения, близкую к равновесной f_B .

Интересующая нас подвижность выражается через дипольную часть функции распределения $\varphi(\varepsilon)$ посредством (4). В свою очередь $\varphi(\varepsilon)$ вычисляется по форму-

лам (8) и (9) для КП и по формуле (15) для НП. Дипольная часть $\varphi(\varepsilon)$ при разных температурах показана на рис. 1.

При температурах порядка 10 К величины дипольной части $\varphi(\varepsilon)$ в рассматриваемых приближениях отличаются на порядок (рис. 1, *a*). Этот факт, как следует из (4), приводит к большим различиям между интегральной подвижностью в КП и НП.

При температурах выше 150 К (рис. 1, *b*) различие наблюдается только в области низких энергий (менее 10 К), где КП заведомо не применимо. Вклад этой области энергий в интегральную подвижность мал благодаря подинтегральному множителю $\varepsilon^{3/2}$ в выражении (4).

По известной $\varphi(\varepsilon)$ можно вычислить интегральную подвижность, используя формулы (15), (4) для НП и (13) для КП. Результаты расчета, представленные на рис. 2, показывают, что в области низких температур ($T < 100$ К) используемые приближения дают значительно различающиеся значения равновесной подвижности, что согласуется с рассуждениями, приведенными выше (при температуре 90 К их значения различаются на 20%, а при 20 К — в 3 раза). При температурах

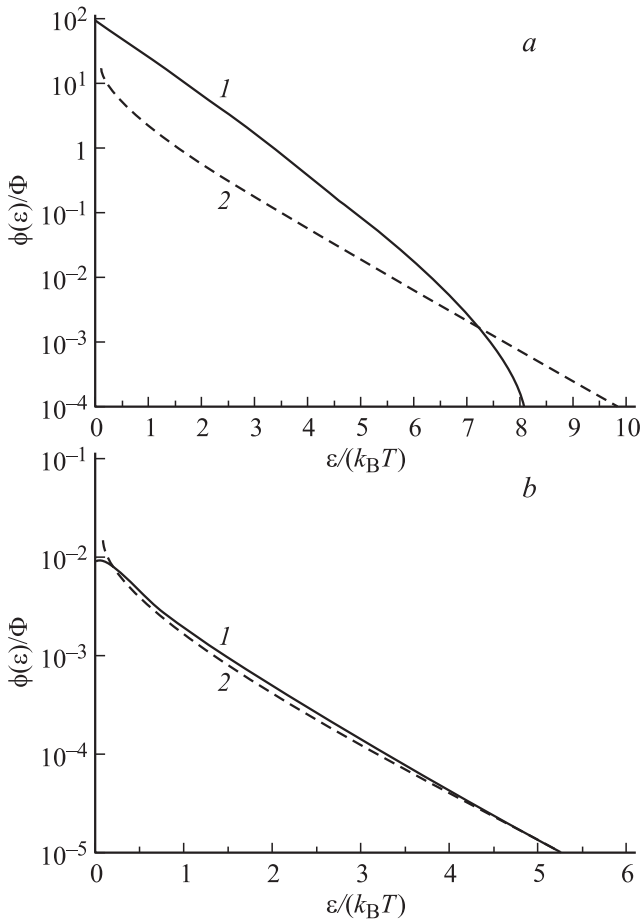


Рис. 1. Дипольная часть функции распределения $\varphi(\varepsilon)$ с учетом неупругости (кривые 1) и в квазиупругом приближении (кривые 2) при различных температурах T , К: *a* — 10, *b* — 160.

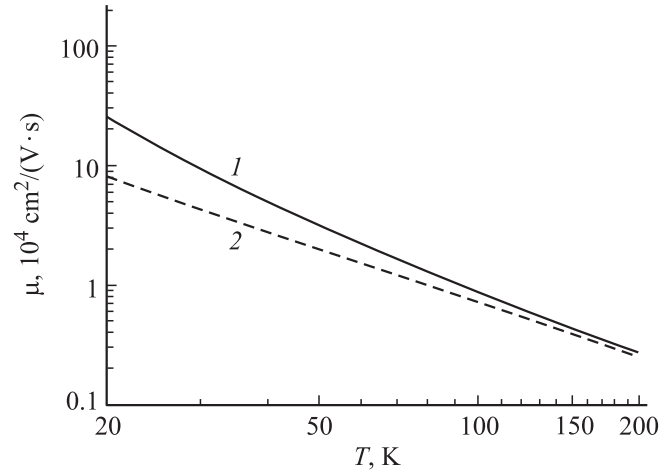


Рис. 2. Температурные зависимости равновесной подвижности носителей заряда μ с учетом неупругости (кривая 1) и в квазиупругом приближении (кривая 2).

$T < ms^2/k_B \approx 20$ К сравнивать эти приближения некорректно, поскольку испускание фононов носителями затруднено, и КП вообще лишено смысла. Кроме того, при экстремально низких температурах определяющую роль начинает играть рассеяние носителей на заряженных примесях, которое не учитывалось в нашей модели.

Проведенное сравнение говорит о неприменимости КП при температурах ниже 100 К и об определяющем вкладе неупругих процессов при рассеянии носителей на акустических фононах при этих температурах. Это объясняется значительной величиной энергии (порядка ms^2), теряемой носителем при взаимодействии с акустическим фононом. Алмаз обладает наибольшей скоростью звука $1.86 \cdot 10^6$ см/с среди простых полупроводников со структурой алмаза и цинковой обманки, поэтому в нем вклад неупругости рассеяния на фононах проявляется при столь высокой температуре.

4. Заключение

При низких температурах основной вклад в рассеяние носителей заряда вносят акустические фононы. Подвижность носителей заряда вычислялась в рамках кинетического уравнения Больцмана. Сравнительный анализ показал, что квазиупругое приближение для интеграла столкновений в кинетическом уравнении неприменимо при энергиях носителей, сопоставимых с характерной теряемой энергией ms^2 . Учет неупругости электрон-фононных процессов сильно изменяет значения дипольной части функции распределения и, как следствие, подвижности носителей при малых температурах (< 100 К). Так, при температуре около 100 К подвижности с учетом и без учета неупругости рассеяния различаются на 20%, а при 20 К — в 3 раза. Это утверждение можно проверить экспериментально.

Работа поддержана грантом Министерства образования и науки РФ РНПВШ 2.1.1.5909.

Список литературы

- [1] M.A. Prelas, G. Popovici, L.K. Bigelow (Editors). *Handbook of Industrial Diamonds and Diamond Films* (N.Y., Marcel Dekker, 1998) p. 253.
- [2] M. Nesladek, A. Bogdan, W. Deferme, N. Tranchant, P. Bergonzo. *Diamond Relat. Mater.*, **17**, 1235 (2008).
- [3] J. Isberg, J. Hammersberg, E. Johansson, T. Wikstrom, D.J. Twitchen, A.J. Whitehead, S.E. Coe, G.A. Scarsbrook. *Science*, **297**, 1670 (2002).
- [4] H. Pernegger, H. Roe, S. Weilhammer, P. Eremin, V. Fraiskolbl, H. Griesmayer, E. Kagan, H. Schnetzer, S. Schnetzer, S. Stone, R. Trischuk, W. Twitchen, D. Whitehead. *J. Appl. Phys.*, **97**, 73 704 (2005).
- [5] M. Pomorski, E. Berdermann, W. De Boer, A. Furgeri, C. Sander, J. Morse. *Diamond Relat. Mater.*, **16**, 1066 (2007).
- [6] R.S. Sussmann. *CVD Diamond for Electronic Devices and Sensors* (Wiley Ser. Mater. Electron. Optoelectron. Appl., 2009).
- [7] А.С. Батури́н, В.Н. Горелкин, В.Р. Соловьёв, И.В. Черноусов. *Физика плазмы*, **34**, 431 (2008).
- [8] Е.М. Лившиц, Л.П. Пятаевский. *Физическая кинетика* (М., Физматлит, 2002) с. 123.
- [9] В.Л. Бонч-Бруевич, С.Г. Калашников. *Физика полупроводников* (М., Наука, 1977) с. 455.
- [10] A.S. Baturin, V.N. Gorelkin, V.S. Rastunkov, V.R. Soloviev. *Physica B*, **374–375**, 340 (2006).
- [11] А.П. Бабичев, Н.А. Бабушкина, А.М. Браткобский и др. *Справочник. Физические величины*, под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мелихова (М., Энергоатомиздат, 1991) с. 456.
- [12] Б.И. Давыдов. *ЖЭТФ*, **6** (5), 463 (1936).
- [13] M.J. Druyvesteyn. *Physica*, **10**, 61 (1930); *Physica*, **11**, 1003 (1934).
- [14] А.С. Батури́н, Ю.М. Белоусов, В.Н. Горелкин, В.П. Крайнов, В.С. Растунков. *ЖЭТФ*, **130** (6 (12)), 1 (2006).
- [15] M. Lax. *Phys. Rev.*, **119**, 1502 (1960).
- [16] В.Н. Абакумов, И.Н. Ясиевич. *ЖЭТФ*, **71**, 657 (1976).
- [17] R. Sauer, N. Teofilov, K. Thonke. *Diamond Relat. Mater.*, **13**, 691 (2004).

Редактор Т.А. Полянская

Calculation of charge carriers mobility in diamond at low temperatures

A.S. Baturin, V.N. Gorelkin, V.R. Soloviev,
I.V. Chernousov

Moscow Institute of Physics and Technology,
141700 Dolgoprudny, Russia

Abstract In this work numerical estimates (assessments) of discrepancies between quasi-elastic and inelastic approaches for mobility calculations have been carried out at low temperatures, when inelasticity of charge scattering on acoustic phonons becomes significant. As a result, equilibrium mobility in inelastic approximation at even 20 K is several times different from that, calculated in quasi-elastic approach. The results obtained are important for the treatment of low temperature electrical experiments in highly monocrystalline diamonds at low temperatures.