

РЕЗОНАНСНОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ С ЛОКАЛИЗОВАННЫМИ СОСТОЯНИЯМИ

Л.А.Фальковский

Институт теоретической физики им. Л.Д.Ландау РАН
117334 Москва, Россия

Поступила в редакцию 17 января 2000 г.
После переработки 25 января 2000 г.

Принимая во внимание возможные локализованные состояния у границы непрерывного спектра и их естественное затухание, мы вычислили усредненную по расположению дефектов – точечных или линейных – гриневскую функцию оптических фононов. С ее помощью рассчитана зависимость от переданной частоты сечения рамановского рассеяния.

PACS: 79.60.Jv, 78.30.-j

1. В последнее время возродился интерес к исследованию влияния дефектов на динамические свойства кристаллов (см., например, [1]). Объясняется это несколькими причинами. Во-первых, стремление работать с образцами высокой чистоты, малых размеров или под давлением приводят к необходимости изучать эффект примесей или границ и, в частности, существующие вблизи гетеропереходов флуктуации напряжений, вызванные, например, различием в параметре решеток граничащих сред. Во-вторых, наиболее подходящим методом исследования в данном случае, по-видимому, является неупругое рассеяние света, поскольку рамановская линия оптических фононов (ее форма и положение) весьма чувствительна к влиянию дефектов [2]. Вместе с тем, современная методика “микро-рамана”, использующая сфокусированное лазерное пятно с диаметром $\sim 1 \text{ мк}$, позволяет изучать пространственные изменения в концентрации дефектов или напряжений с высоким пространственным разрешением.

Следует отметить (впервые это, по-видимому, сделал Лифшиц [3]), что задача о влиянии дефектов на фоновые спектры очень похожа на соответствующую проблему о взаимодействии электронов с примесями в металле или полупроводнике. В обоих случаях дефекты уменьшают длину свободного пробега зонных частиц – электронов или фононов. Кроме того, могут возникать локализованные состояния. Применительно к полупроводнику тогда говорят о хвостах плотности состояний в запрещенной зоне (именно этим вопросом наиболее детально и занимался Лифшиц, см. также [4]). Дефекты приводят также к тому, что состояния и в разрешенной зоне (в некоторой окрестности ее границы, а для двумерного или одномерного случаев – всюду) могут оказаться локализованными, точнее, нераспространяющимися. Локализация в электронной системе – один из актуальных вопросов мезоскопики и сегодня, а для системы акустических фононов она рассматривалась в работах [5–7].

Имеется, однако, и несколько существенных отличий, среди них кардинальные – тип статистики и отсутствие для фононов (по крайней мере, в неполярных диэлектриках) дальнодействующего кулоновского взаимодействия. Затем, у оптических фононов даже в идеальных кристаллах присутствует естественное затухание Γ^{nat} . Оно возникает благодаря распаду на пару акустических или оптических фононов и пропорционально среднему квадрату смещения атомов, то есть оказывается величи-

ной порядка 10^{-2} от собственной частоты ω_0 , что составляет несколько градусов и определяет естественную ширину рамановской линии. Отсюда вытекает и другое важное отличие: длина пробега оптических фононов не слишком велика в атомном масштабе $l \simeq a\sqrt{\omega_0/\Gamma^{nat}}$. Наконец, примесные состояния в полупроводнике из-за большой величины диэлектрической постоянной и, как правило, малой эффективной массы являются мелкими. Фононные состояния, локализованные на точечном дефекте, при слабом взаимодействии с дефектом отсутствуют вообще и возникают лишь при условии, что потенциал превышает некоторое критическое значение. Для случая слабого взаимодействия локализованные фононные состояния могут существовать на протяженном дефекте – линейном типа дислокации или плоском типа границы кристаллита.

До сих пор влияние естественного затухания на взаимодействие зонных и локализованных состояний не рассматривалось. Мы сравним в данной работе эффект точечных и линейных дефектов, принимая во внимание возможность образования локализованных состояний вблизи границы ветви оптических фононов и их естественное затухание. Мы увидим, что благодаря естественному затуханию вклад локализованных состояний возникает уже в линейном приближении по концентрации дефектов.

2. Рассмотрим оптическую ветвь фононного спектра вблизи ее экстремума. Для определенности будем считать, что экстремум – это максимум и он реализуется в центре зоны Бриллюэна. В условиях рамановского эксперимента существенны значения волнового вектора, определяемые длиной волны падающего света, то есть малые по сравнению с размерами зоны Бриллюэна. Поэтому можно пользоваться разложением спектра в окрестности экстремума

$$\omega^2 = \omega_0^2 - s^2 k^2 - i\omega\Gamma^{nat}.$$

Такая запись спектра учитывает инвариантность уравнений динамики решетки относительно обращения времени. Если отвлечься от возможного вырождения ветвей, то появляется только один дисперсионный параметр s , величина которого имеет порядок скорости звука $s \simeq \omega_0 a/\pi \simeq 10^6$ см/с.

Взаимодействие фононов с дефектами запишем в виде суммы по дефектам, расположенным в точках r_n :

$$U(r) = \sum_n u(r - r_n) = \sum_{n,q} u(q) e^{i\mathbf{q}(r - r_n)}.$$

Для линейных дефектов ($r - r_n$) – это двумерный вектор в плоскости, перпендикулярной оси дефекта z , а $u(\mathbf{q})$ не зависит от q_z .

В настоящее время нет экспериментальной информации относительно того, на каких расстояниях должен падать потенциал дефекта. При расчете фононных спектров хорошо работает схема, в которой принимается, что некулоновская часть взаимодействия атомов может учитываться в приближении нескольких ближайших соседей. Это равносильно предположению о короткодействии взаимодействия. Кроме того, существует убеждение, что значительная доля возмущения, вызванного различием параметра решетки в гетеропереходах, также релаксирует на атомных расстояниях от перехода. По этой причине мы будем рассматривать короткодействующие дефекты, то есть предполагать малым их радиус r_0 по сравнению с длиной пробега $r_0 \ll a\sqrt{\omega_0/\Gamma^{nat}}$ и считать константой фурье-компоненту потенциала взаимодействия $u(\mathbf{q}) = u_0$. Для изотопического дефекта это утверждение является строгим,

при этом $u_0 = (m_0 - m)r_0^3\omega^2/m_0$ пропорционально разности масс дефекта m и атома матрицы m_0 .

3. Величина, которая непосредственно измеряется на эксперименте – сечение однофононного рамановского рассеяния, пропорциональна мнимой части фононной запаздывающей гриновской функции. Ее следует усреднить по расположению дефектов. Соответствующий метод представляет собой вариант известной “крестовой” техники [8] и описан в [9]. Разлагая уравнение для гриновской функции по взаимодействию с дефектами, проводя усреднение по их расположению и суммируя получившийся ряд главных “непересекающихся” диаграмм, мы получаем для фурье-компоненты усредненной гриновской функции уравнение Дайсона

$$D(\mathbf{k}, \omega)^{-1} = D_0(\mathbf{k}, \omega)^{-1} + cu_0/(1 + u_0 \sum_{\mathbf{q}} D(\mathbf{q}, \omega)), \quad (1)$$

где

$$D_0(\mathbf{k}, \omega) = (\omega_0^2 - s^2 k^2 - i\omega\Gamma^{nat} - \omega^2)^{-1}$$

– гриновская функция в отсутствие дефектов, c – концентрация дефектов. Для точечных дефектов суммирование (интегрирование) проводится по трехмерному вектору \mathbf{q} , а в случае линейных – по двухмерному \mathbf{q}_{\perp} , причем третья компонента q_z совпадает с соответствующей компонентой вектора \mathbf{k} , стоящего в левой части (1). Условие, благодаря которому можно не учитывать диаграммы с пересечениями, записывается в виде $\omega_0/\Gamma \gg 1$ для точечных дефектов и $\ln(\omega_0/\Gamma) \gg 1$ – для линейных.

Введем вместо $D(\mathbf{k}, \omega)$ неизвестную функцию ζ посредством соотношения $D(\mathbf{k}, \omega)^{-1} = \zeta - s^2 k^2$ и независимую комплексную переменную $\zeta_0 = \omega_0^2 - i\omega\Gamma^{nat} - \omega^2$. Подставляя это в (1) и интегрируя, получаем вместо интегрального уравнения алгебраическое для ζ :

$$\zeta = \zeta_0 + n_c \omega_0^3 \left(\frac{\kappa}{\lambda} - \kappa + \frac{\pi}{2} \sqrt{-\zeta} \right)^{-1} \quad (2)$$

в случае точечных дефектов и

$$\zeta = \zeta_0 + n_c \omega_0^2 \left(\lambda^{-1} - \ln \frac{\kappa^2}{s^2 k_z^2 - \zeta} \right)^{-1} \quad (3)$$

в случае линейных. Безразмерные константа взаимодействия с дефектами λ (которая может быть и отрицательной) и число дефектов n_c в области с размерами порядка атомных связаны с исходными u_0 и с следующими соотношениями: $\lambda = u_0\kappa/6\pi^2s^3$, $u_0 \sim \omega_0^2 a^3$, $n_c = 6\pi^2 c s^3 / \omega_0^3$ – для точечных дефектов и $\lambda = u_0/4\pi s^2$, $u_0 \sim \omega_0^2 a^2$, $n_c = 4\pi c s^2 / \omega_0^2$ – для линейных, где параметр обрезания κ имеет масштаб частоты ω_0 . Параметр обрезания расходящихся на верхнем пределе интегралов определяется тем, что интегрирование по \mathbf{q} на самом деле ограничено пределами зоны Бриллюэна. Для интересующей нас области малых $|\omega^2 - \omega_0^2| \ll \omega_0^2 \sim \kappa^2$, где находится пик рамановского рассеяния (то есть при условии $|\zeta| \ll \kappa$), это обрезание вполне оправдано, поскольку для таких ζ существенны лишь аналитические свойства спектра в окрестности его границы. Разумеется, при этом на получающиеся зависимости от κ надо смотреть лишь, как на качественные. Наконец, должно быть сделано уточнение относительно выбора ветви логарифма и квадратного корня: в уравнениях (2) и (3) имеются в виду их значения в верхней комплексной полуплоскости. При этом каждое из этих уравнений в действительности является парой – для вещественной и мнимой частей.

4. На рис.1 – 4 с точностью до бозевского фактора $1 - \exp(-\omega/T)$ приведена зависимость сечения рамановского рассеяния, а именно $\text{Im}(1/\zeta)$, от переданной частоты ω при $k = 0$, полученная в результате решения уравнений (2), (3). Выбраны для определенности значения $\omega_0 = 520 \text{ см}^{-1}$ и $\Gamma^{\text{nat}} = 3.2 \text{ см}^{-1}$, соответствующие чистому кремнию, и кривые для этого предельного случая изображены точками. Здесь имеется лоренцовская зависимость рамановского спектра от переданной частоты:

$$\text{Im} \frac{1}{\zeta} = \omega \Gamma^{\text{nat}} / [(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\omega \Gamma^{\text{nat}})^2]$$

с шириной, равной Γ^{nat} на половине высоты.

Качественное исследование уравнений (2), (3) при малых n_c в первом приближении можно проводить, подставляя в правую часть ζ_0 вместо ζ и отделяя мнимую и вещественную части. Это приближение, будем называть его неренормированным, соответствует подстановке $D_0(k, \omega)$ вместо $D(k, \omega)$ в правую часть (1). Неренормированное приближение подробно рассматривалось в [9], соответствующие зависимости изображены на рис.1, 3, 4 пунктирными кривыми.

Из (2), (3) видно, что константа взаимодействия фононов с дефектами и параметр обрезания входят лишь в комбинации $1/\lambda^* = (\lambda^{-1} - 1)\kappa$ для точечных дефектов и $1/\lambda^* = \lambda^{-1} - \ln(\kappa^2/\omega_0 \Gamma^{\text{nat}})$ – для линейных. При построении графиков для определенности параметр обрезания κ считался равным ω_0 .

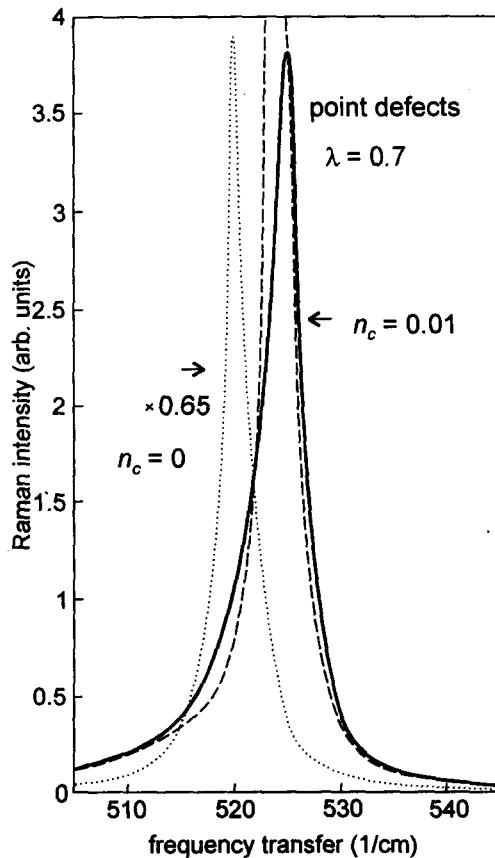


Рис.1

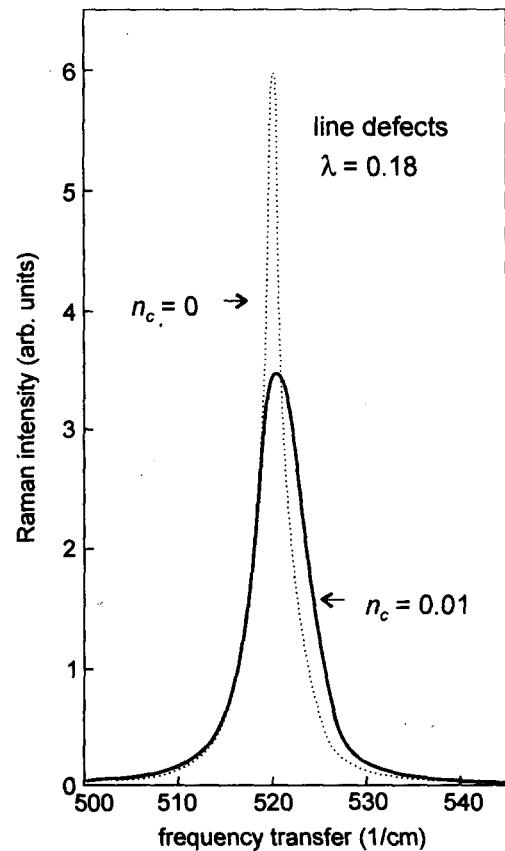


Рис.2

При $\lambda < 1$ для точечных дефектов и при $\lambda < 1/\ln(\kappa^2/\omega_0\Gamma^{nat})$ – для линейных локализованных состояний нет. Роль дефектов здесь сводится к тому, что фононы из непрерывного спектра на них рассеиваются упругим образом, благодаря чему фоновая линия смещается в высокочастотную сторону и уширяется. Вклад рассеяния в ширину фононов растет по мере удаления от границы ($\omega^2 < \omega_0^2$), потому что растет число конечных состояний, в которые могут переходить фононы. Линия теряет лоренцовскую форму, становясь более пологой с низкочастотной стороны (рис.1 и 2). Этот эффект наблюдался на продольных оптических фононах в SiC в работе [2] (см. рис. 2 в первой из цитированных работ).

Поведение сечения существенно меняется, когда $1/\lambda^*$ проходит через нуль. При $\lambda > 1$ для точечных дефектов и при $\lambda > 1/\ln(\kappa^2/\omega_0\Gamma^{nat})$ – для линейных справа от границы непрерывного спектра появляются локализованные состояния (рис. 3 и 4), и им отвечает обращение в нуль реальной части знаменателей в (2), (3). Подчеркнем различие двух рассматриваемых размерностей дефектов. На точечных дефектах локализованные состояния возникают лишь тогда, когда константа связи превышает конечное критическое значение. На линейных дефектах из-за большого значения $\kappa^2/\omega_0\Gamma^{nat} \simeq \omega_0/\Gamma^{nat}$ локализованные состояния появляются при слабом притяжении – достаточно, чтобы радиус связанного состояния был меньше длины свободного пробега фононов из окрестности границы непрерывного спектра. Отмеченное различие находится в согласии с известным утверждением квантовой механики о существовании связанного состояния в мелкой двумерной потенциальной яме.

Рис.3 и 4 обнаруживают существенное отличие точного результата, показанного сплошными кривыми, от неренормированного приближения, показанного пунктирными кривыми в той области, где вносят вклад локализованные состояния. Максимум, полученный в неренормированном приближении, при точном вычислении замывается и превращается в растянутое плато, распространяющееся до границы непрерывного спектра. По существу, этот эффект и представляет собой резонансное взаимодействие состояний непрерывного спектра с локализованными. При интерпретации экспериментальных данных довольно часто пишут о таком изменении формы линии под влиянием дефектов, которое похоже на появление “плеча”, подобного изображенному на рис.3 и 4.

Но, пожалуй, один из самых интригующих примеров дают алмазоподобные материалы, у которых, как и у графита, наблюдается линия при 1600 см^{-1} или при 1300 см^{-1} , как у алмаза. При добавлении дефектов к графиту более пологим становится низкочастотное крыло линии 1600 см^{-1} (см. рис.1 и 2 в работе [10]) так, как это изображено на наших рис.1 и 2. Если же портить алмазные образцы, то более пологим оказывается высокочастотное крыло линии 1300 см^{-1} (см. рис.7 в [10] и рис.2 в [11]). Объяснение заключается в том, что в алмазе реализуется достаточно нетипичная ситуация – у зоны оптических фононов существует минимум в центре зоны Бриллюэна [12]. До сих пор в этой статье мы считали, что в центре зоны Бриллюэна находится максимум ветви оптических фононов. Для случая минимума во всех утверждениях, высказанных выше, надо изменить знак $\omega^2 - \omega_0^2$, что и объясняет алмазную аномалию.

В заключение хотелось бы подчеркнуть, что рассмотренные здесь особенности возникают уже в линейном приближении по концентрации дефектов и являются следствием конечности собственного времени жизни оптических фононов. Флуктуации в распределении дефектов (клusterные поправки) вносят вклад лишь в следующем – квадратичном – приближении.

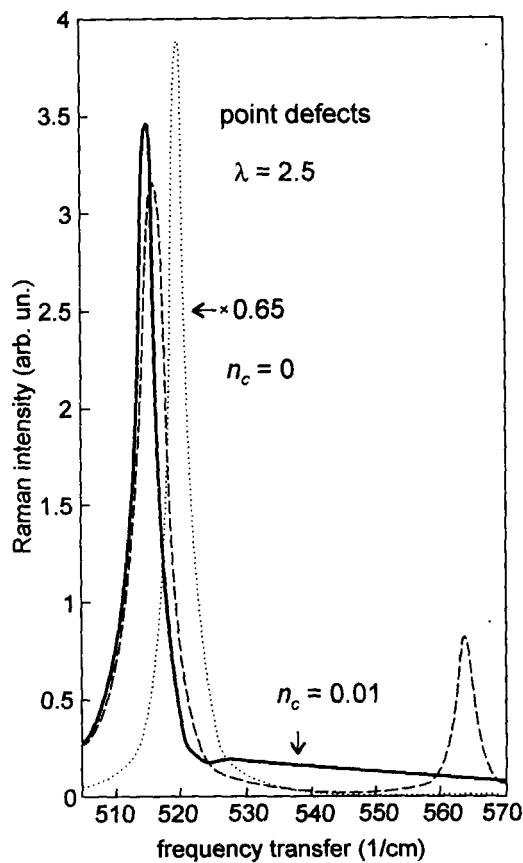


Рис.3

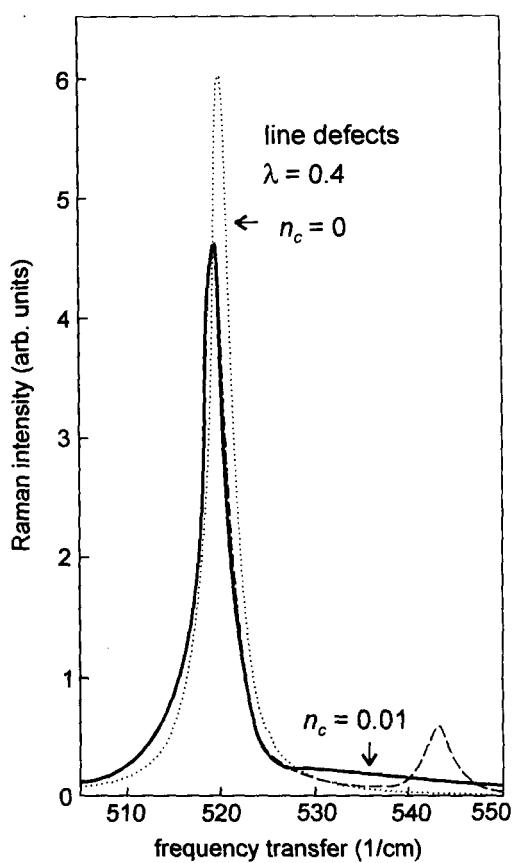


Рис.4

Работа была начата во время пребывания автора в GES, Университет Montpellier-II, Франция, и я признателен J. Camassel за сотрудничество и гостеприимство. Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований.

-
1. A.Gobel, T.Ruf, J.M.Zhang et al., Phys. Rev. **B59**, 2749 (1999).
 2. L.A.Falkovsky, J.M.Bluet, and J.Camassel, Phys. Rev. **B55**, R14697 (1997); L.A.Falkovsky, J.M.Bluet, and J.Camassel, Phys. Rev. **B57**, 11283 (1998).
 3. И.М.Лифшиц, ЖЭТФ **17**, 1017 (1947); И.М.Лифшиц, Nuovo Cim. **3**, Suppl., 716 (1956); УФН **83**, 617 (1964).
 4. М.А.Иванов, Ю.Г.Погорелов, ЖЭТФ **72**, 2198 (1977).
 5. T.R.Kirkpatrick, Phys. Rev. **B31**, 5746 (1985).
 6. Ю.М.Каган, Я.А.Иослевский, ЖЭТФ **45**, 819 (1963).
 7. И.Я.Полищук, А.Л.Бурик, Л.А.Максимов, Письма в ЖЭТФ **51**, 644 (1990).
 8. А.А.Абрикосов, Л.П.Гор'ков, И.Е.Дзялошинский, *Методы квантовой теории поля в статистической физике*, М.: Наука, 1963.
 9. Л.А.Фальковский, ЖЭТФ **117**, вып. 4 (2000), в печати.
 10. J.Wagner, M.Ramsteiner, Ch.Wild, and P.Koidl, Phys. Rev. **B40**, 1817 (1989).
 11. J.W.Ager III, D.K.Veirs, and G.M.Rosenblatt, Phys. Rev. **B43**, 6491 (1991).
 12. M.Schwoerer-Bohning, A.T.Macrand, and D.A.Arms, Phys. Rev. Lett. **80**, 5572 (1998).