

## **Pokročilé disperzní modely v optice tenkých vrstev**

### Lekce 6: Disperzní modely krystalických látek – dvoufononová absorpce c-Si

Daniel Franta

Ústav fyzikální elektroniky, Přírodovědecká fakulta, Masarykova univerzita

jaro 2014

# Obsah

1 Teorie

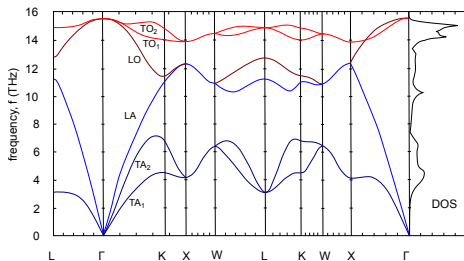
2 Konstrukce modelu

3 Experiment

4 Shrnutí

## Teorie

Fononové disperzní relace krystalického křemíku jsou dány translační symetrií:



Fonon je popsán větví ( $TA_1$ ,  $TA_2$ ,  $LA$ ,  $LO$ ,  $TO_1$ ,  $TO_2$ ) a vlnovým vektorem  $k$ . Pro absorpční a emisní procesy platí zákony zachování energie a hybnosti:

$$\sum_p \pm E_p = \pm E, \quad \sum_p \pm \mathbf{k}_p = 0,$$

kde  $+/-$  na levé straně značí kreaci/anihilaci fononu a na pravé straně absorpci/emisi fononu s energií  $E$  (hybnost fononu  $\rightarrow 0$ ). Pro absorpci fononu za současného vzniku dvou fononu nebo vzniku a zániku jednoho fononu platí:

$$E_A + E_B = E, \quad \mathbf{k}_A = -\mathbf{k}_B = \mathbf{k} \quad \text{nebo} \quad E_A - E_B = E, \quad \mathbf{k}_A = \mathbf{k}_B = \mathbf{k}$$

## Teorie

## Funkce síly přechodu systému při konečné teplotě

$$F(E, T) = \frac{\pi}{\epsilon_0 V} \left( \frac{e\hbar}{m_e} \right)^2 \sum_{i \neq f} \exp \left( \frac{\Omega - E_i}{k_B T} \right) \frac{|\langle f | \hat{p}_x | i \rangle|^2}{E_f - E_i} [\delta(E_f - E_i - E) + \delta(E_i - E_f - E)] ,$$

- $e, \hbar, \epsilon_0, m_e, k_B$ : elementární náboj, redukovaná Planckova konstanta, permitivita vakua, hmotnost elektronu, Boltzmannova konstanta
- $V$ : objem systému
- $|i\rangle, |f\rangle, E_i, E_f$ : vlastní stavy a odpovídající vlastní energie systému
- $T, \Omega$ : termodynamická teplota a termodynamický potenciál

$$\sum_i \exp \left( \frac{\Omega - E_i}{k_B T} \right) = 1$$

- Efektivní operátor hybnosti získaný s celkového dipólového operátoru

$$\hat{p}_x = \frac{im_e}{e\hbar} [\hat{H}_0, \hat{d}_x] = \hat{p}_{xe} - \frac{Z_{Si} m_e}{m_{Si}} \hat{p}_{xSi} ,$$

## Teorie

Rozdělíme systém na dva fonony  $A \pm B$  a zbytek systému:

$$\begin{aligned}
 F_{2\text{ph}}(E, T) &= \frac{\pi}{\epsilon_0 V |E|} \left( \frac{e\hbar}{m_e} \right)^2 \sum_{A,B} \sum_{\mathbf{k} \in \text{BZ}} \sum_i \exp \left( \frac{\Omega - E_i}{k_B T} \right) \\
 &\times \left[ \sum_{n_{A,\mathbf{k}}=0}^{\infty} \sum_{n_{B,-\mathbf{k}}=0}^{\infty} |\langle i, n_{A,\mathbf{k}} + 1, n_{B,-\mathbf{k}} + 1 | \hat{p}_x | i, n_{A,\mathbf{k}}, n_{B,-\mathbf{k}} \rangle|^2 c_{A,B,\mathbf{k}}^+ \delta [E_{A+B}(\mathbf{k}) - |E|] \right. \\
 &- \sum_{n_{A,\mathbf{k}}=1}^{\infty} \sum_{n_{B,-\mathbf{k}}=1}^{\infty} |\langle i, n_{A,\mathbf{k}} - 1, n_{B,-\mathbf{k}} - 1 | \hat{p}_x | i, n_{A,\mathbf{k}}, n_{B,-\mathbf{k}} \rangle|^2 c_{A,B,\mathbf{k}}^+ \delta [E_{A+B}(\mathbf{k}) - |E|] \\
 &+ \sum_{n_{A,\mathbf{k}}=0}^{\infty} \sum_{n_{B,\mathbf{k}}=1}^{\infty} |\langle i, n_{A,\mathbf{k}} + 1, n_{B,\mathbf{k}} - 1 | \hat{p}_x | i, n_{A,\mathbf{k}}, n_{B,\mathbf{k}} \rangle|^2 c_{A,B,\mathbf{k}}^- \delta [E_{A-B}(\mathbf{k}) - |E|] \\
 &\left. - \sum_{n_{A,\mathbf{k}}=1}^{\infty} \sum_{n_{B,\mathbf{k}}=0}^{\infty} |\langle i, n_{A,\mathbf{k}} - 1, n_{B,\mathbf{k}} + 1 | \hat{p}_x | i, n_{A,\mathbf{k}}, n_{B,\mathbf{k}} \rangle|^2 c_{A,B,\mathbf{k}}^- \delta [E_{A-B}(\mathbf{k}) - |E|] \right] \\
 c_{A,B,\mathbf{k}}^{\pm} &= \exp \left( - \frac{n_{A,\mathbf{k}} E_A(\mathbf{k}) + n_{B,\mp \mathbf{k}} E_B(\mp \mathbf{k})}{k_B T} \right), \quad E_{A \pm B}(\mathbf{k}) = E_A(\mathbf{k}) \pm E_B(\mp \mathbf{k}).
 \end{aligned}$$

## Teorie

Pro odvození základní teplotní závislosti použijeme základní předpoklad kvazičásticového přístupu:

$$|\langle i, n_{A,\mathbf{k}} + 1, n_{B,-\mathbf{k}} + 1 | \hat{p}_x | i, n_{A,\mathbf{k}}, n_{B,-\mathbf{k}} \rangle|^2 \approx (n_{A,\mathbf{k}} + 1) (n_{B,-\mathbf{k}} + 1) |\langle i, 1, 1 | \hat{p}_x | i, 0, 0 \rangle|^2$$

respektive

$$|\langle i, n_{A,\mathbf{k}} + 1, n_{B,\mathbf{k}} - 1 | \hat{p}_x | i, n_{A,\mathbf{k}}, n_{B,\mathbf{k}} \rangle|^2 \approx (n_{A,\mathbf{k}} + 1) n_{B,\mathbf{k}} |\langle i, 1, 0 | \hat{p}_x | i, 0, 1 \rangle|^2.$$

Funkci síly přechodu potom můžeme psát jako součet dvou členů:

$$F_{2\text{ph}}(E, T) = \sum_{A,B} [F_{A+B}(E, T) + F_{A-B}(E, T)],$$

kde oba členy můžeme rozepsat pomocí teplotního faktoru a funkce, která na teplotě nezávisí (v prvním přiblížení):

$$F_{A\pm B}(E, T) = \sum_{\mathbf{k} \in \text{BZ}} f_{A\pm B}(\mathbf{k}, T) P_{A\pm B}(\mathbf{k}) \delta [E_{A\pm B}(\mathbf{k}) - |E|].$$

Teplotní faktory se liší podle typu procesu a jsou dány Bose–Einsteinovou statistikou:

$$f_{A+B}(\mathbf{k}, T) = n_A(\mathbf{k}, T) + n_B(-\mathbf{k}, T) + 1, \quad f_{A-B}(\mathbf{k}, T) = n_B(\mathbf{k}, T) - n_A(\mathbf{k}, T),$$

$$n_p(\mathbf{k}, T) = f^{\text{BE}} [E_p(\mathbf{k})] = \frac{1}{\exp [E_p(\mathbf{k})/k_B T] - 1}.$$

## Teorie

Teplotně nezávislá část reprezentuje pravděpodobnost absorpčního procesu (maticové elementy přechodu):

$$P_{A+B}(\mathbf{k}) = \frac{\pi}{\epsilon_0 V |E|} \left( \frac{e\hbar}{m_e} \right)^2 |\langle i, 1, 1 | \hat{p}_x | i, 0, 0 \rangle|^2,$$

$$P_{A-B}(\mathbf{k}) = \frac{\pi}{\epsilon_0 V |E|} \left( \frac{e\hbar}{m_e} \right)^2 |\langle i, 1, 0 | \hat{p}_x | i, 0, 1 \rangle|^2.$$

Pokud se nebudeme chtít vydat cestou, že z prvních principů budeme vyjadřovat maticové elementy, můžeme ještě na základě topologie ve 3D odvodit Van Hoveovy singularity v kritických bodech.

$$L(E) = \sum_{\mathbf{k} \in \text{BZ}} \delta [E_{A\pm B}(\mathbf{k}) - |E|]$$

# Obsah

1 Teorie

**2 Konstrukce modelu**

3 Experiment

4 Shrnutí



# Konstrukce modelu

Je nutné použít několika zásadních zjednodušení, abychom se dopracovali k v praxi použitelnému modelu.

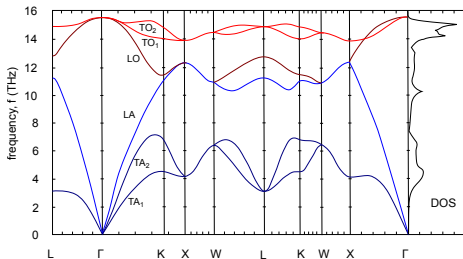
## 1. Nahrazení sčítání přes $k$ funkcemi závislými na $E$

$$F_{A\pm B}(E, T) = f_{A\pm B}(E, T) P_{A\pm B}(E),$$

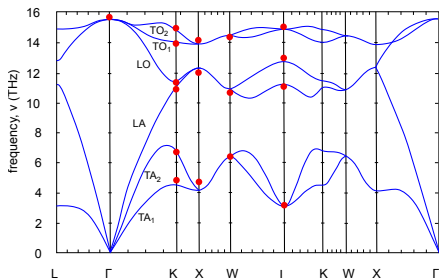
## 2. Zredukování počtu páسů

$$6^2 - 6 = 30 \rightarrow 15$$

TO+TO, TO+LO, TO+LA, LO+LA, TO+TA<sup>(1)</sup>, TO+TA<sup>(2)</sup>, TO+TA<sup>(3)</sup>, LO+TA, LA+TA<sup>(1)</sup>, LA+TA<sup>(2)</sup>, TA+TA, TO-TA, LO-TA, LA-TA a TO-LA



## Konstrukce modelu

3. Předpokládáme, že kritické body odpovídají bodům symetrie  $\Gamma$ , X, L, W and K

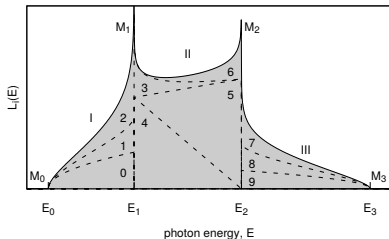
Nefitujeme energie kritických bodů, ale fitujeme 17 frekvencí +  $\nu_T$ :

$$E_{t,A\pm B} = h [\nu_{A(M_t)} \pm \nu_{B(M_t)}] [1 + \nu_T(T - 300)] \nu_{\text{iso}},$$

$$\begin{aligned} \nu_{\text{LA}(\Gamma)} = \nu_{\text{TA}_1(\Gamma)} = \nu_{\text{TA}_2(\Gamma)} &\equiv \nu_{\text{A}(\Gamma)} = 0, & \nu_{\text{LO}(\Gamma)} = \nu_{\text{TO}_1(\Gamma)} = \nu_{\text{TO}_2(\Gamma)} &\equiv \nu_{\text{O}(\Gamma)}, \\ \nu_{\text{TA}_1(\text{X})} = \nu_{\text{TA}_2(\text{X})} &\equiv \nu_{\text{TA}(\text{X})}, & \nu_{\text{LA}(\text{X})} = \nu_{\text{LO}(\text{X})} &\equiv \nu_{\text{L}(\text{X})}, \\ \nu_{\text{TO}_1(\text{X})} = \nu_{\text{TO}_2(\text{X})} &\equiv \nu_{\text{TO}(\text{X})}, & \nu_{\text{TA}_1(\text{L})} = \nu_{\text{TA}_2(\text{L})} &\equiv \nu_{\text{TA}(\text{L})}, \\ \nu_{\text{TO}_1(\text{L})} = \nu_{\text{TO}_2(\text{L})} &\equiv \nu_{\text{TO}(\text{L})}, & \nu_{\text{TA}_1(\text{W})} = \nu_{\text{TA}_2(\text{W})} &\equiv \nu_{\text{TA}(\text{W})}, \\ \nu_{\text{LA}(\text{W})} = \nu_{\text{LO}(\text{W})} &\equiv \nu_{\text{L}(\text{W})}, & \nu_{\text{TO}_1(\text{W})} = \nu_{\text{TO}_2(\text{W})} &\equiv \nu_{\text{TO}(\text{W})}, \\ \nu_{\text{LA}(\text{L})}, \nu_{\text{LO}(\text{L})}, \nu_{\text{TA}_1(\text{K})}, \nu_{\text{TA}_2(\text{K})}, \nu_{\text{LA}(\text{K})}, \nu_{\text{LO}(\text{K})}, \nu_{\text{TO}_1(\text{K})}, \nu_{\text{TO}_2(\text{K})}. \end{aligned}$$

## Konstrukce modelu

## 4. Teplotně nezávislá část: kombinace 3D a 2D Van Hoveovy singularity



$i$	typ	region	$L_i(E)$
0	3D $M_0$	I	$\sqrt{X_I(E)}$
1	3D $M_1$	I	$1 - \sqrt{Y_I(E)}$
2	2D $M_1$	I	$-\ln Y_I(E)$
3	2D $M_1$	II	$-\ln X_{II}(E)$
4	3D $M_1$	II	$Y_{II}(E)$
5	3D $M_2$	II	$X_{II}(E)$
6	2D $M_1$	II	$-\ln Y_{II}(E)$
7	2D $M_1$	III	$-\ln X_{III}(E)$
8	3D $M_2$	III	$1 - \sqrt{X_{III}(E)}$
9	3D $M_3$	III	$\sqrt{Y_{III}(E)}$

$$P_{A \pm B}(E) = H(E) \sum_{i=0}^9 A_i L_i(E),$$

$$X_I(E) = \frac{E - E_0}{E_1 - E_0} \Pi_{E_0, E_1}(E),$$

$$Y_I(E) = \frac{E_1 - E}{E_1 - E_0} \Pi_{E_0, E_1}(E),$$

$$X_{II}(E) = \frac{E - E_1}{E_2 - E_1} \Pi_{E_1, E_2}(E),$$

$$Y_{II}(E) = \frac{E_2 - E}{E_2 - E_1} \Pi_{E_1, E_2}(E),$$

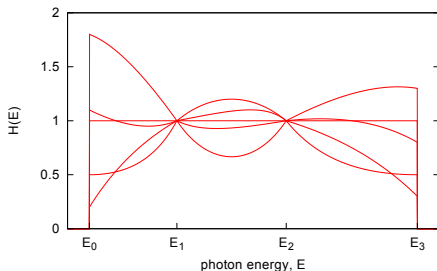
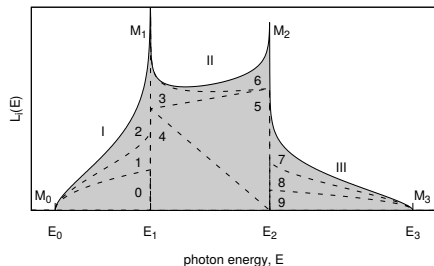
$$X_{III}(E) = \frac{E - E_2}{E_3 - E_2} \Pi_{E_2, E_3}(E),$$

$$Y_{III}(E) = \frac{E_3 - E}{E_3 - E_2} \Pi_{E_2, E_3}(E),$$

$$\Pi_{E_{\min}, E_{\max}}(E) = \begin{cases} 1 & : E_{\min} < E < E_{\max} \\ 0 & : \text{iinak} \end{cases}$$

## Konstrukce modelu

$$P_{A\pm B}(E) = H(E) \sum_{i=0}^9 A_i L_i(E),$$



$$H(E) = \kappa_0 Y_I(E) + \frac{\kappa_1 X_I(E)}{(\kappa_1 - 1)X_I(E) + 1} + \frac{\kappa_2 Y_{II}(E)}{(\kappa_2 - 1)Y_{II}(E) + 1} \\ + \frac{\kappa_3 X_{II}(E)}{(\kappa_3 - 1)X_{II}(E) + 1} + \frac{\kappa_4 Y_{III}(E)}{(\kappa_4 - 1)Y_{III}(E) + 1} + \kappa_5 X_{III}(E)$$

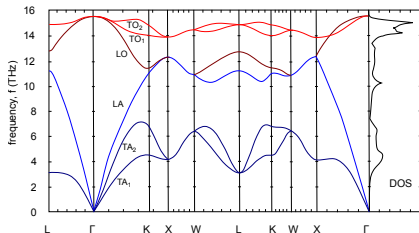
## Konstrukce modelu

## 5. Energie fononu mezi krytickými body je v teplotních faktorech aproximována lineární funkcí

$$f_{A+B}(E, T) = 1 + f^{\text{BE}} [E_A(E)] + f^{\text{BE}} [E_B(E)]$$

$$f_{A-B}(E, T) = f^{\text{BE}} [E_B(E)] - f^{\text{BE}} [E_A(E)]$$

$$E_A(E) = h \left\{ \nu_{A(M_0)} Y_I(E) + \nu_{A(M_1)} [X_I(E) + Y_{II}(E)] + \nu_{A(M_2)} [X_{II}(E) + Y_{III}(E)] + \nu_{A(M_3)} X_{III}(E) \right\} [1 + \nu_T(T - 300)] \nu_{\text{iso}} .$$



## Konstrukce modelu

Abychom mohli zavést parametr relativní síly přechodu, je nutné příspěvek normalizovat. Normalizace je provedena pro teplotu 300K:

$$F_{A\pm B}^0(E) = \frac{1}{C_N} f_{A\pm B}(E, T) P_{A\pm B}(E),$$

$$C_N = \int_{E_0}^{E_3} f_{A\pm B}(E, 300) P_{A\pm B}(E) dE.$$

Dále je nutné funkci rozšířit za pomocí Gauss–Dawsonovy funkce:

$$\hat{\beta}(x) = -\frac{\sqrt{2}}{\pi B} D\left(\frac{x}{\sqrt{2} B}\right) + i \frac{1}{\sqrt{2\pi} B} \exp\left(-\frac{x^2}{2B^2}\right),$$

kde  $B$  je rms (variance) rozšiřovací funkce. V IR oboru raději používáme FWHM:

$$\beta = \frac{2\sqrt{2 \ln 2}}{hc} B.$$

Normalizovaná funkce se potom spočítá pomocí konvoluce následovně:

$$\hat{\varepsilon}_{A\pm B}^0(E) = \hat{\beta} * \frac{F_{A\pm B}^0}{E},$$

kde symbol  $*$  značí konvoluci. Konvoluce a normalizace jsou implementované numericky.

## Konstrukce modelu

Sdružíme příbuzné pásy (15  $\rightarrow$  12)

$$\hat{\epsilon}_{\text{TO+TA}}^0(E) = \frac{\sum_{j=1}^3 C_{\text{TO+TA}(j)} \hat{\epsilon}_{\text{TO+TA}(j)}^0(E)}{\sum_{j=1}^3 C_{\text{TO+TA}(j)}}$$

Výsledný příspěvek do dielektrické funkce má potom tvar:

$$\hat{\epsilon}_{A\pm B}(E) = \alpha_{A\pm B} N_{\text{Si}} \hat{\epsilon}_{A\pm B}^0.$$

kde  $\alpha_{A\pm B}$  je **relativní síla přechodu** z kterého můžeme vypočítat efektivní náboj dvoufononových přechodů následovně:

$$e_{2\text{ph}}^* = Z_{\text{Si}} e \sqrt{\sum_{A\pm B} \alpha_{A\pm B}}.$$

# Obsah

1 Teorie

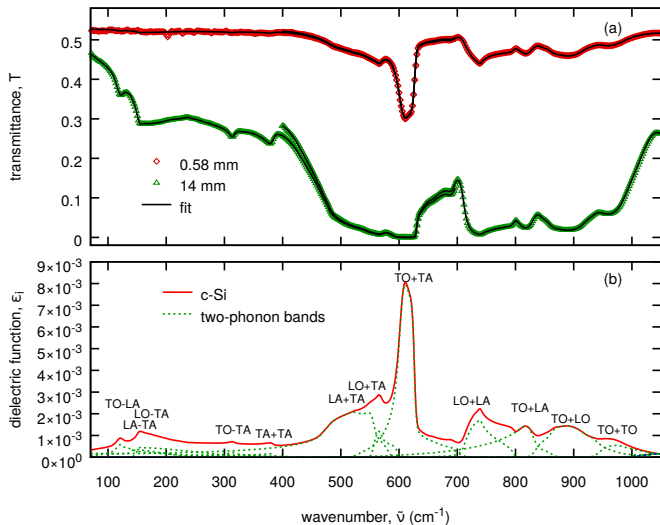
2 Konstrukce modelu

**3 Experiment**

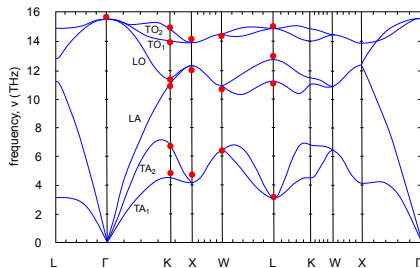
4 Shrnutí



## Experiment

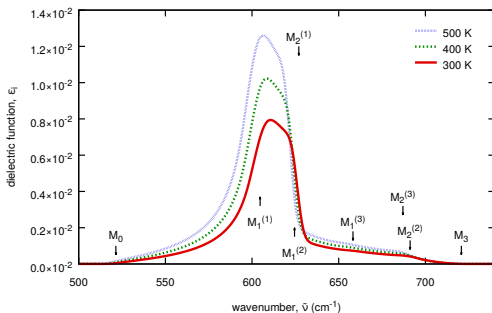


## Experiment



	$\nu_{TA_1}$ (THz)	$\nu_{TA_2}$ (THz)	$\nu_{LA}$ (THz)	$\nu_{LO}$ (THz)	$\nu_{TO_1}$ (THz)	$\nu_{TO_2}$ (THz)
$\Gamma$		$0^\dagger$			15.63	
X	4.71			11.98		14.09
L	3.14		11.05	12.93		14.99
W	6.39			10.63		14.33
K	4.82	6.70	10.88	11.30	13.90	14.91

## Experiment



Type	Combination	$\nu_{TO}$ (THz)	$\nu_{TA}$ (THz)	$\nu_{TO+TA}$ (THz)	$\tilde{\nu}_{TO+TA}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )
$M_0$	$O(\Gamma)+A(\Gamma)$	15.63	0	15.63	521.5
$M_1^{(1)}$	$TO(L)+TA(L)$	14.99	3.14	18.13	604.7
$M_1^{(2)}$	$TO_1(K)+TA_1(K)$	13.90	4.82	18.72	624.5
$M_2^{(1)}$	$TO(X)+TA(X)$	14.09	4.71	18.80	627.0
$M_2^{(3)}$	$TO_2(K)+TA_1(K)$	14.91	4.82	19.73	658.2
$M_2^{(3)}$	$TO_1(K)+TA_2(K)$	13.90	6.70	20.60	687.1
$M_2^{(2)}$	$TO(W)+TA(W)$	14.33	6.39	20.72	691.2
$M_3$	$TO_2(K)+TA_2(K)$	14.91	6.70	21.61	720.8

# Experiment

Relativní síla vícefónové absorpce (300K):

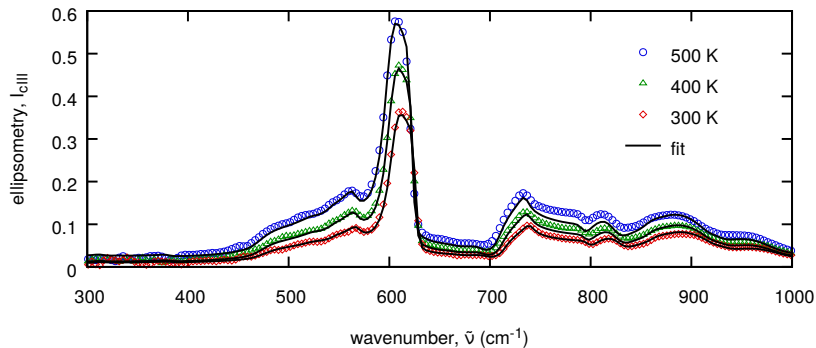
$$\alpha_{2\text{ph}} = 2.678 \times 10^{-05}, \quad e_{2\text{ph}}^* = 0.07245 e,$$

$$\alpha_{3\text{ph}} = 3.96 \times 10^{-06}, \quad e_{3\text{ph}}^* = 0.02786 e,$$

$$\alpha_{4\text{ph}} = 2.81 \times 10^{-07}, \quad e_{4\text{ph}}^* = 0.00742 e,$$

$$\alpha_{\text{mph}} = 3.102 \times 10^{-05}, \quad e_{\text{mph}}^* = 0.07798 e,$$

## Experiment



Fitovali pouze 1 parametr, tj. lineární závislost fononových energií na teplotě:

$$\nu_T = -3.36 \times 10^{-5} \quad (\text{K}^{-1}).$$

# Obsah

1 Teorie

2 Konstrukce modelu

3 Experiment

**4 Shrnutí**

# Shrnutí