

铁电半导体 SnTe 的晶格动力学*

刘平 徐文兰 陆卫

(中国科学院上海技术物理研究所, 中国科学院红外物理国家实验室, 上海, 200083)

TN304.9

摘要: 用刚性离子模型研究了铁电半导体 SnTe 的晶格动力学, 计及电子屏蔽作用对长程库仑作用的修正, 得到了光学模反常的色散关系.

关键词: 刚性离子模型, Ewald 变换, 屏蔽效应.

铁电半导体 碲化锡
晶格动力学

THE LATTICE DYNAMICS OF THE FERROELECTRIC SEMICONDUCTOR SnTe*

LIU Ping XU Wen-Lan LU Wei

(National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

Abstract The lattice dynamics of the ferroelectric semiconductor SnTe was investigated by using the rigid-ion model. Considering the screening effect of electrons on long-range Coulomb force, the abnormal dispersion relation was obtained.

Key words rigid-ion model, Ewald transformation, screening effect.

引言

铁电体是一类在某个温度范围内具有自发极化的介电晶体, 绝大部分铁电体结构复杂, 但像 SnTe 和 GeTe 这类 N-V 族化合物却是双原子窄带隙铁电半导体^[1], 研究它们不但有助于了解铁电体相变特性, 而且可能对铁电体和半导体集成器件的应用有所启迪.

对 SnTe 晶格动力学的理论研究可以追溯到 1963 年, 但直到最近发表的文章都是用壳层模型进行的, 在壳层模型中^[2], 晶格中的离子被看成由刚性离子实和零质量的电子壳层组成, 考虑了离子实之间、壳层之间、离子实和壳层之间的相互作用, 为了与实验比较, 势必引入许多参数, 这样就增加了计算的复杂性和计算结果的不确定性, 许多引入的参数也缺乏明显的物理意义.

作者注意到刚性离子模型的相对简单性, 特别是它在解释复杂的铁电体 RbCaF₃ 上获得成功^[1], 第一次将该模型用于 SnTe 的晶格动力学研究, 用很少的、具有鲜明物理意义的参数得到和壳层模型计算可以相比的、因而与实验也可相比的结果. 考虑到 SnTe

晶体中电子浓度比较高的特点, 我们还引入了电子屏蔽对长程作用的修正.

1 理论模型

由于晶体内原子间存在相互作用力, 因此各原子的振动不是孤立的, 整个晶格可以看作是一个互相耦合的振动系统. 在刚性离子模型中, 动力学矩阵元可分解为短程相互作用和长程库仑作用^[3], 即

$$D_{\alpha\beta}(kk'|\vec{q}) = R_{\alpha\beta}(kk'|\vec{q}) + T_{\alpha\beta}(kk'|\vec{q}) \quad (1)$$

对短程相互作用势取为 Born-Mayer 势 $\varphi^s = ae^{-b\varphi}$.

长程库仑作用的求和在正空间的收敛较慢, 用 Ewald 变换^[5]将其分为正空间和倒空间两部分^[4]. 对 SnTe 材料仅计及最近邻相互作用, 涉及的参数有: 力常数 a 和 b 反映结合键的强弱特性, 有效电荷 e 反映离子化的程度及库仑作用的大小.

2 屏蔽效应

由于 SnTe 样品的载流子浓度较高, 为 $5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, 造成相应的载流子海, 在晶格振动形成的宏观

* 国家重点基础研究发展规划资助项目

稿件收到日期 1999-05-06, 修改稿收到日期 1999-10-18

* The project supported by the Grant for State Key Program for Base Research of China

Received 1999-05-06, revised 1999-10-18

场作用下运动,形成屏蔽,在长波极限下可以完全抵消库仑作用,为描述屏蔽作用必须对长程库仑项进行修改.刚性离子模型中,介电系数为1,而实际晶体中由于存在载流子,介电常数不再恒为常数,因此需重新加以处理,在式(1)中,需加上一个屏蔽项

$$E_{ij}(kk'|q) = \delta_{ij} \delta_{kk'} E_i + \frac{4\pi e^2}{V_i} \sum_j \frac{(\vec{G} + \vec{q})_j (\vec{G} + \vec{q})_j}{|\vec{G} + \vec{q}|^2} \left\{ \frac{1}{\epsilon_{ij} |\vec{q} + \vec{G}|} - 1 \right\} c_j \vec{G} \cdot (\vec{a}(k') - \vec{a}(k)) \quad (2)$$

E_i 的作用是使库仑作用在叠加了屏蔽效应后仍具有平移不变性, J 为形成因子, ϵ_{ij} 为介电常数,其中涉及两个参数 K 和 K_s , K_s 为托马斯-费米屏蔽长度,若载流子被视为自由的,且具有有效质量 m^* ,则有

$$K_s = \frac{4\pi m^* e^2 (3n/\pi^2)^{1/2}}{h \epsilon}$$

SnTe 的 ϵ 约为 40²², K_s 为费米波矢,由于的载流子浓度远低于金属的典型值,因此 K_s 值较小,实际中取为 0.25 倒格矢单位.

2 计算与讨论

SnTe 的高温原型相是 NaCl 结构,即 Sn 原子和 Te 原子分别占据一套简立方格子,嵌套而成.由对称性分析可知,原子间相互作用力常数矩阵可以用 A 和 B 两个参数描述,它们与 Bon-Mayer 势中的参数 a 和 b 有如下关系:

$$A = \frac{\partial^2 \phi}{\partial r^2} \Big|_0 = ab^2 e^{-b/r_0}$$

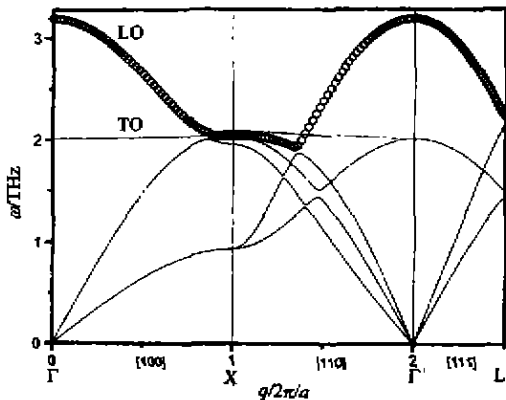


图1 不考虑屏蔽作用的色散关系
Fig. 1 The dispersion relation without the screening effect

$$B = \frac{\partial^2 \phi}{\partial r^2} \Big|_0 = -abe^{-b/r_0}/r_0$$

其中 r_0 为原子平衡间距, A 为中心力常数, B 为非中心力常数.增加 A 可增加纵模的频率,增加 B 会使横模升高.对于 SnTe,我们计算中调节得到的参数 A 和 B 分别为 24.31 和 -1.279,单位为 e^2/V_0 ;离子电荷为 1.84 个电子电荷,图 1 是不考虑屏蔽作用的计算结果,明显可见长波极限 $\omega_{LO} > \omega_{TO}$,与绝大多数离子晶体一致.

现在考虑屏蔽效应,取参数 E_i 为 13,单位为 e^2/V , K_s 为 2.0 个倒格子单位, K_s 为 0.25 个倒格子单位, r_0 为 0.25 个最小原子间距,得到结果如图 2.

在一般的离子晶体中长程库仑作用使光纵模的运动伴随宏观电场,因此声子频率升高,光学纵模 LO 与光学横模 TO 发生分离.在 SnTe 中,由于较高的载流子浓度造成的屏蔽效应抵消了长程库仑作用产生的宏观电场.在波矢为零处,光学纵模 LO 和光学横模 TO 趋于一致,但在波长较短时,离子运动加快,电子屏蔽作用跟不上离子的运动,所以在谱图中 LO 模出现塌陷,表现反常.非弹性中子散射谱中已观察到 SnTe 的 LO 声子的这种行为²¹.

式(2)中 $E_{ij}(kk'|q)$ 随 q 变化导致了色散关系在不同波矢 q 的行为,根据铁电软模理论,铁电性的产生是与布里渊区 Γ 点的光学横模的软化相联系的.我们的计算表明,由于电子屏蔽作用, Γ 点 TO 模的频率升高了,这就表明电子屏蔽是不利于铁电相变的.由于 SnTe 的载流子浓度较高,确实观察不到高的居里相变温度,这也提示我们:为了得到高的居里相变温度,必须设法降低 SnTe 的载流子浓度.

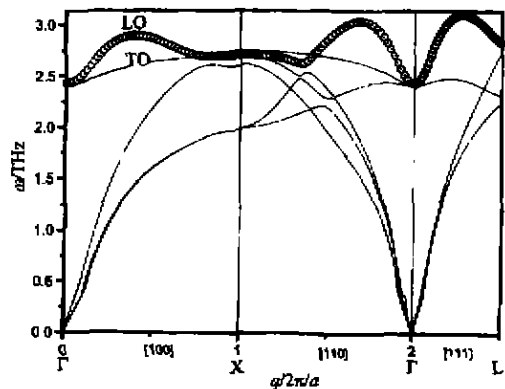


图2 考虑屏蔽作用的色散关系
Fig. 2 The dispersion relation with the screening effect

4 结论

本文用刚性离子模型计算 SnTe 的色散关系, 在考虑了屏蔽效应后, 得到了光子纵模在布里渊区中心附近的塌陷. 由电子屏蔽作用对色散关系的影响推出了减少载流子浓度以提高居里温度的设想, 本文中的计算方法可用于其它复杂的铁电结构.

REFERENCES

- [1] Lines M E, Glass A M. *Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials*. Oxford: Oxford University Press, 1977
- [2] Cowley R A, Cochran W, Brockhouse B N, *et al.* Lattice dynamics of alkali crystals II theoretical. *Phys. Rev. B*, 1963, **131**(3): 1030
- [3] Daniel Ph, Rousseau M. Vibrational investigation of the antiferrodistortive structural instabilities in the perovskite crystal RbCaF₃. *Phys. Rev. B*, 1997, **55**(10): 6222
- [4] Born M Huang K. *Dynamical theory of crystal lattices*. Oxford: Oxford University Press, 1954
- [5] Cowley R A. Some calculations using the Ewald transformation. *Acta Cryst.*, 1962, **15**: 687
- [6] Maradudin A A, Montroll E W, Weiss G H, *et al.* *Theory of Lattice Dynamics in the Harmonic Approximation*. New York: Academic Press, 1971
- [7] Cowley E R, Darby J K, Pawley G S. The lattice dynamics of tin telluride. *J. Phys. C*, 1969, **2**(2): 1917
- [8] Pawley G S, Cochran W, Cowley R A, *et al.* Diatomic Ferroelectrics. *Phys. Rev. Lett.*, 1966, **17**(11): 753