

Grundlagen der Theorie der strahlungslosen Multi-Phonon-Rekombination

Kurt Peuker† und Andreas Schenk¹

Optische und elektrische Eigenschaften von Halbleitern werden in entscheidendem Maße durch Rekombinationsprozesse beeinflusst. Erfolgt die Rekombination von Elektron-Loch-Paaren unter Beteiligung von Störstellen, so kann die Überschussenergie entweder an andere Elektron-Loch-Paare (Auger-Rekombination) oder an das Gitter abgegeben werden. Die Tatsache, daß im letzteren Falle Viel-Phononen-Prozesse eine wichtige Rolle spielen müssen, wurde bereits 1931 von Frenkel [1] und 1940 von Möglich und Rompe [2] erkannt. Die wesentlichen Grundlagen für die theoretische Erklärung des strahlungslosen Einfangs und der Emission von Ladungsträgern wurden Anfang der fünfziger Jahre in den klassischen Arbeiten von Huang und Rhys [3], Kriwoglaz [4] und Kubo und Toyozawa [5] geschaffen. Im Unterschied zur Theorie von Möglich und Rompe wurden in [3, 4, 5] und nachfolgenden Arbeiten Viel-Phononen-Übergänge in einem Modell mit linearer Elektron-Gitter-Wechselwirkung erklärt: Als Basis-Zustände für die Anwendung der Störungstheorie zur Beschreibung der Übergangswahrscheinlichkeiten werden diejenigen der adiabatischen Näherung [6] gewählt. Die elektronischen Zustände hängen dabei, wie bekannt, von der Konfiguration des Gitters ab, während das Potential der Kernschwingungen in den einzelnen Elektronenniveaus verschieden ist. Dank dieser Tatsache sind die Schwingungswellenfunktionen, welche zu verschiedenen Elektronenniveaus gehören, nicht mehr orthogonal, so daß Viel-Phononen-Prozesse in beliebiger Ordnung beschrieben werden. Die Grundidee dieser Theorie wurde in der überwiegenden Mehrzahl aller nachfolgenden Arbeiten – sie belaufen sich inzwischen auf einige Hundert – beibehalten. Dessen ungeachtet gab es in den letzten 25 Jahren nicht wenige Diskussionen und Kontroversen, insbesondere im Hinblick auf die Größenordnung der theoretischen Einfangsquerschnitte. Die Theorie der strahlungslosen Multi-Phonon-Rekombination gehört zweifelsohne zu den wenigen Gebieten der theoretischen Festkörperphysik, auf denen bis zum heutigen Zeitpunkt keine vollständige Klarheit über die Grundprinzipien der Theorie erreicht werden konnte. Es ist nützlich, die z. T. ungeklärten Probleme zunächst einmal zu klassifizieren:

a) Da mikroskopische Übergangswahrscheinlichkeiten keine physikalischen Meßgrößen sind und der irreversible Charakter der Energiedissipation nicht allein im Rahmen quantenmechanischer Vorstellungen beschrieben werden kann, ist völlig klar, daß die in der Störungstheorie berechneten Größen nicht eindeutig sind, d. h., sie hängen von der Wahl der Basiszustände und des zugehörigen Störoperators ab. Hierbei handelt es sich um ein tiefgreifendes physikalisches Problem. Ohne weitergehende Diskussion wird in der vorliegenden Arbeit in Übereinstimmung mit der Literatur postuliert, daß die adiabatische Näherung geeignete quasi-stationäre Zustände liefert und daß Übergänge zwischen diesen Zuständen mit meßbaren strahlungslosen Einfangs- und Emissionsprozessen verglichen werden können.

¹ Die Autoren möchten sich bei Prof. R. Enderlein und Prof. E. Gutsche für zahlreiche stimulierende Diskussionen bedanken.

b) in der Literatur existieren insbesondere bezüglich der Größenordnung der Übergangswahrscheinlichkeiten erheblich differierende Resultate, obwohl sich die Autoren auf prinzipiell nicht voneinander abweichende Varianten der adiabatischen Näherung stützten und die gleiche Ordnung der Störungstheorie benutzten. So wird festgestellt, daß die in den ursprünglichen Arbeiten [3–5] verwendete Condon-Näherung unzureichend sei und daß im Rahmen der Nicht-Condon-Näherung [7] und der statischen Näherung (z. B. [8, 9]) um mehrere Größenordnungen unterschiedliche (größere) Ergebnisse erzielt würden.

c) Es ist klar, daß die quantitative Berechnung von Einfangsquerschnitten für spezielle Störstellen und Halbleitermaterialien auf erhebliche Schwierigkeiten stößt, insbesondere im Falle tiefer Störstellen. Bei der Interpretation experimenteller Ergebnisse wird man sich dementsprechend mit der Anpassung der wichtigsten in der Theorie enthaltenen Parameter begnügen müssen.

In der vorliegenden Arbeit wollen wir uns auf die unter b) genannten Probleme konzentrieren. Es soll die Frage beantwortet werden, warum in den bisherigen Arbeiten die genannten Diskrepanzen aufgetreten sind. Es wird gezeigt, wie eine widerspruchsfreie Formulierung der Theorie nichtstrahlender Multi-Phonon-Übergänge im Rahmen der adiabatischen Näherung gegeben werden kann.

1. Übergangsamplituden

Für die Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeiten für strahlungslose Multi-Phonon-Übergänge benötigt man die nicht-diagonalen Matrixelemente des Hamiltonoperators für die am Übergang beteiligten Zustände des gekoppelten Elektron-Gittersystems. Wir gehen davon aus, daß die Eigenzustände des Hamiltonoperators

$$H(q, Q) = H_e(q) + V(q, Q) + H_L(Q) \quad (1)$$

($H_e(q)$ ist der Hamiltonoperator des elektronischen Systems, $H_L(Q)$ beschreibt das freie Gitter und $V(q, Q)$ die Kopplung zwischen Elektronen und Gitter; q und Q sind Elektronen- bzw. Gitterkoordinaten) hinreichend gut durch die adiabatische Näherung beschrieben werden. Eine einfache Ableitung des ursprünglich von Born und Oppenheimer [6] in der Molekülphysik entwickelten Näherungsverfahrens wurde von Frank-Kamenezkij und Lukaschin [10] angegeben. Setzt man die Gesamtwellenfunktion $\Psi(q, Q)$ in der Form

$$\Psi(q, Q) = \varphi(q, Q) \Phi(Q) \quad (2)$$

in die Schrödinger-Gleichung mit dem Hamiltonoperator (1) ein, so folgt

$$\Phi H_e \varphi + V(\varphi \Phi) + H_L(\varphi \Phi) = E(\varphi \Phi). \quad (3)$$

Mit dem durch

$$\hat{L}(\varphi \Phi) = H_L(\varphi \Phi) - \varphi H_L \Phi = [H_L, \varphi] \Phi$$

definierten Operator \hat{L} und nach Division durch $\varphi\Phi$ nimmt (3) die Form

$$\frac{1}{\varphi} H_e \varphi + V + \frac{1}{\varphi\Phi} \hat{L}(\varphi\Phi) = E - \frac{1}{\Phi} H_L \Phi \quad (4)$$

an. Bezeichnet man die rechte Seite der Gleichung (4) mit $U(Q)$, so erhält man das gekoppelte Gleichungssystem

$$(H_e + V)\varphi + \frac{1}{\Phi} \hat{L}(\varphi\Phi) = U\varphi \quad (5)$$

$$(H_L + U)\Phi = E\Phi \quad (5a)$$

welches der ursprünglichen Eigenwertgleichung $H\Psi = E\Psi$ äquivalent ist. Die adiabatische Näherung ergibt sich aus (5) und (5a) durch die Vernachlässigung der „Nichtadiabazität“ $\hat{L}(\varphi\Phi)$:

$$(H_e(q) + V(q, Q))\varphi_n(q, Q) = U_n(Q)\varphi_n(q, Q) \quad (6)$$

$$(H_L(Q) + U_n(Q))\Phi_{nN}(Q) = E_{nN}\Phi_{nN}(Q). \quad (6a)$$

In dieser Näherung hängen die elektronischen Wellenfunktionen φ_n und Energieeigenwerte U_n von den fixierten Kernkoordinaten als Parameter ab; die elektronische Energie $U_n(Q)$ tritt als zusätzlicher Beitrag zum Potential der Kernschwingungen auf. Der Einfachheit halber werden im folgenden ein einfaches Einstein-Modell für die Gitterbewegung

$$H_L(Q) = \frac{\hbar\omega_0}{2} \left(-\frac{\partial^2}{\partial Q^2} + Q^2 \right) \quad (7)$$

($\hbar\omega_0$ ist die Phononenergie) und eine lineare Elektron-Gitter-Kopplung

$$V(q, Q) = V(q)Q \quad (8)$$

vorausgesetzt. Als „statische“ Wellenfunktionen wollen wir die Eigenfunktionen des Hamiltonoperators $H_e(q)$ bezeichnen:

$$H_e(q)\varphi_n^{(0)} = U_n^{(0)}\varphi_n^{(0)}. \quad (9)$$

Da im allgemeinen Fall das adiabatische Gleichungssystem (6) und (6a) nicht exakt lösbar ist, werden zunächst verschiedene störungstheoretische Näherungen diskutiert. Bei der Berechnung der Übergangsamplituden konzentrieren wir uns auf die niedrigste Ordnung bezüglich des nichtdiagonalen Matrixelementes

$$V_{mn'}^{(0)} = \langle \varphi_n^{(0)} | V(q) | \varphi_{m'}^{(0)} \rangle \quad (10)$$

während die als beliebig groß angenommenen diagonalen Matrixelemente $V_{nn}^{(0)}$ in allen Ordnungen berücksichtigt werden sollen. Dementsprechend wird in allen Fällen die Gittergleichung (6a) in der Form

$$(H_L(Q) + U_n^{(0)} + V_{nn}^{(0)})\Phi_{nN}^{(1)} = E_{nN}^{(1)}\Phi_{nN}^{(1)} \quad (11)$$

verwendet. Höhere Beiträge zu $U_n(Q)$ sind quadratisch in $V_{nn}^{(0)}$, und werden vernachlässigt. In niedrigster (nullter) Ordnung bezüglich $V(q)Q$ hat die Lösung der elektronischen Wellengleichung (6) die Form

$$\varphi_n(q, Q) = \varphi_n^{(0)}(q). \quad (12)$$

Für die nichtdiagonalen Übergangsmatrixelemente des vollständigen Hamiltonoperators H folgt damit sofort

$$\langle \Phi_{nN}\varphi_n | H | \varphi_{n'}\Phi_{n'N} \rangle = V_{nn'}^{(0)} \langle \Phi_{nN}^{(1)} | Q | \Phi_{n'N}^{(1)} \rangle. \quad (13)$$

Das ist das bekannte Resultat der statischen Näherung (vgl. Haug [8], Päßler [9]).

Im Falle Q -abhängiger elektronischer Wellenfunktionen $\varphi_n(q, Q)$ können die gesuchten Übergangsamplituden in der allgemeinen Form

$$\langle \Phi_{nN}\varphi_n | H | \varphi_{n'}\Phi_{n'N} \rangle = A_{nN, n'N'} + B_{nN, n'N'} + C_{nN, n'N'} \quad (14)$$

$$A_{nN, n'N'} = \langle \Phi_{nN}\varphi_n | (H_e + V) | \varphi_{n'}\Phi_{n'N'} \rangle \quad (14a)$$

$$B_{nN, n'N'} = \langle \Phi_{nN}\varphi_n | \hat{L} | \varphi_{n'}\Phi_{n'N'} \rangle \quad (14b)$$

$$C_{nN, n'N'} = \langle \Phi_{nN}\varphi_n | \varphi_{n'} H_L \Phi_{n'N'} \rangle \quad (14c)$$

geschrieben werden, wobei für die orthogonalen elektronischen Funktionen ($\varphi_n | \varphi_{n'} \rangle = \delta_{nn'}$) der Term $C_{nN, n'N'}$ stets gleich Null ist. In früheren Arbeiten zur nichtstrahlenden Multi-Phonon-Rekombination im Rahmen der adiabatischen Näherung [3–5, 7] wurde ausschließlich der Term $B_{nN, n'N'}$ berücksichtigt. Die ist gerechtfertigt, falls die elektronischen Funktionen φ_n exakte Lösungen der Gleichung (6) sind. In diesem Falle verschwindet $A_{nN, n'N'}$, wie leicht zu sehen ist. Es wurde jedoch übersehen, daß für approximative Lösungen von (6) der Beitrag $A_{nN, n'N'}$ im allgemeinen nicht zu vernachlässigen ist. In bestimmten Fällen spielt er sogar die dominierende Rolle.

In der ersten Näherung der Störungstheorie erhält man die Lösung der Gleichung (6) in der Form

$$\varphi_n(q, Q) = \varphi_n^{(0)} + \sum_m' \frac{V_{mn}^{(0)}Q}{U_n^{(0)} - U_m^{(0)}} \varphi_m^{(0)}(q) \quad (15)$$

(Condon-Näherung). Bei Verwendung des Ausdrucks (15) folgt

$$A_{nN, n'N'}^C = V_{mn'}^{(0)} \frac{V_{n'n'}^{(0)} - V_{nn}^{(0)}}{U_n^{(0)} - U_{n'}^{(0)}} \langle \Phi_{nN}^{(1)} | Q^2 | \Phi_{n'N'}^{(1)} \rangle + O(V_{mn'}^{(0)2}) \quad (16)$$

$$B_{nN, n'N'}^C = \frac{V_{mn'}^{(0)}}{U_n^{(0)} - U_{n'}^{(0)}} \langle \Phi_{nN}^{(1)} | [H_L, Q] | \Phi_{n'N'}^{(1)} \rangle + O(V_{mn'}^{(0)2}). \quad (17)$$

An dieser Stelle läßt sich die Ursache für die fehlerhafte Interpretation der Condon-Näherung, wie sie in früheren Arbeiten zugelassen wurde, leicht deutlich machen. Wie bereits festgestellt wurde, wurde in [3–5] nur der Beitrag B^C in Rechnung gestellt. Aus der äquivalenten Form

$$B_{nN, n'N'}^C = \frac{\hbar\omega_0}{U_n^{(0)} - U_{n'}^{(0)}} V_{mn'}^{(0)} \left(\Phi_{nN}^{(1)} \left| \frac{\partial}{\partial Q} \right| \Phi_{n'N'}^{(1)} \right) + O(V_{mn'}^{(0)2}) \quad (18)$$

folgt, daß die allein unter Verwendung von (18) berechnete Übergangswahrscheinlichkeit um den Faktor $(\hbar\omega_0)/(U_n^{(0)} - U_{n'}^{(0)})$ kleiner ist als das entsprechende Resultat in der statischen Näherung (13). Demgegenüber läßt sich das korrekte Ergebnis einfach ableiten, wenn man die Transformation

$$\frac{V_{mn'}^{(0)}}{U_n^{(0)} - U_{n'}^{(0)}} \langle \Phi_{nN}^{(1)} | [H_L, Q] | \Phi_{n'N'}^{(1)} \rangle = V_{mn'}^{(0)} \left\{ \frac{V_{n'n'}^{(0)} - V_{nn}^{(0)}}{U_n^{(0)} - U_{n'}^{(0)}} \times \langle \Phi_{nN}^{(1)} | Q^2 | \Phi_{n'N'}^{(1)} \rangle + \frac{1}{U_n^{(0)} - U_{n'}^{(0)}} (E_{nN} - E_{n'N'}) - (U_n^{(0)} - U_{n'}^{(0)}) \langle \Phi_{nN}^{(1)} | Q | \Phi_{n'N'}^{(1)} \rangle \right\} \quad (19)$$

benutzt, welche sich leicht mit der Bewegungsgleichung (11) beweisen läßt. Unter Beachtung der Energieerhaltung $E_{nN} = E_{n'N'}$ ergibt sich dann endgültig

$$A_{nN, n'N'}^C + B_{nN, n'N'}^C = V_{mn'}^{(0)} \langle \Phi_{nN}^{(1)} | Q | \Phi_{n'N'}^{(1)} \rangle + O(V_{mn'}^{(0)2}) \quad (20)$$

In der niedrigsten Ordnung bezüglich $V_{mn'}^{(0)}$ liefern also statische und Condon-Näherung das gleiche Resultat. Dies ist keineswegs verwunderlich, da sich die Unterschiede in den elektronischen Wellenfunktionen [vgl. (12) und (15)] nur in Gliedern höherer Ordnung bezüglich $V_{mn'}^{(0)}$ auswirken. Von diesem Standpunkt aus liefert auch die Nicht-Condon-Näherung (vgl. Kowarskij [7]) nichts prinzipiell Neues. Die von Kowarskij und Mitarb. vor-

geschlagenen elektronischen Wellenfunktionen entsprechen denen der 1. Ordnung der Brillouin-Wigner-Störungstheorie:

$$\varphi_n^{NC}(q, Q) = \varphi_n^{(0)}(q) + \sum_m' \frac{V_{mn}^{(0)}Q}{\tilde{U}_n(Q) - \tilde{U}_m(Q)} \varphi_m^{(0)}(q) \quad (21)$$

$$\tilde{U}_n = U_n^{(0)} + V_{nn}^{(0)}Q$$

Man überzeugt sich leicht, daß die mit (21) berechneten Matrixelemente $A_{nn', n''}^{NC}$ von der Ordnung $(V_{mn}^{(0)})^2$ sind. Die bisherigen Arbeiten zur Nicht-Condon-Näherung [7, 11–13] sind durch einen beträchtlichen rechnerischen Aufwand charakterisiert. Dieser läßt sich auf ganz einfache Art und Weise vermeiden, wenn man die Relation

$$\begin{aligned} B_{nn', n''}^{NC} &= V_{mn}^{(0)} \left(\Phi_{nN}^{(1)} \left[H_L, \frac{Q}{\tilde{U}_n(Q) - \tilde{U}(Q)} \right] \Phi_{n'N'}^{(1)} \right) + O(V_{mn}^{(0)2}) \\ &= V_{mn}^{(0)} \left(\Phi_{nN}^{(1)} (\tilde{U}_{n'} - \tilde{U}_n) \frac{Q}{\tilde{U}_n(Q) - \tilde{U}(Q)} \Phi_{n'N'}^{(1)} \right) \\ &\quad + O(V_{mn}^{(0)2}) \\ &= V_{mn}^{(0)} (\Phi_{nN}^{(1)} |Q| \Phi_{n'N'}^{(1)}) + O(V_{mn}^{(0)2}) \end{aligned} \quad (22)$$

verwendet. Formel (22) beruht wiederum auf der Bewegungsgleichung (11) und der Beachtung der Energieerhaltung $E_{nN} = E_{n'N'}$. Wie man sieht, sind im Rahmen des Nicht-Condon-Schemas berechnete Übergangsamplituden, d. h. die Summe $A^{NC} + B^{NC}$ in niedrigster Ordnung bezüglich $V_{mn}^{(0)}$, mit dem Ergebnis der statischen Näherung identisch. Der Unterschied zur Condon-Näherung besteht lediglich darin, daß der relative Beitrag der Wechselwirkungen A und B verschieden ist, wobei im Falle (21) der Hauptbeitrag von B^{NC} allein geliefert wird. Betrachtet man die Wechselwirkung B allein, wie das in den früheren Arbeiten zur adiabatischen Näherung geschehen ist, so besteht tatsächlich ein erheblicher Unterschied zwischen den Näherungen (15) und (21). Erst die Berücksichtigung der vollen Summe (14) ergibt ein physikalisch widerspruchsfreies und befriedigendes Ergebnis.

Die Ergebnisse (13), (20) und (22) machen deutlich, daß die in der statischen Näherung berechnete Übergangsamplitude (13) die niedrigste Näherung, d. h. den in $V_{mn}^{(0)}$ linearen Beitrag für die Condon- und Nicht-Condon-Näherung darstellt. Die Näherung (11) und (12) läßt sich auch ganz allgemein als niedrigste Approximation für das adiabatische Gleichungssystem (6) und (6a) ansehen. Es besteht daher kein Grund, adiabatische und statische Näherung in irgendeiner Weise gegenüberzustellen. Vielmehr ist die letztere eine einfache Approximation für das allgemeinere Born-Oppenheimer-Prinzip. Es besteht nun die Frage, auf welche Weise die Anwendbarkeit der statischen Näherung abgeschätzt werden kann. Eine vollständige (nichtstörungstheoretische) Berücksichtigung der Elektron-Gitter-Kopplung $V(q)Q$ in Gleichung (6) ist im Falle eines 2 Niveausystems möglich. Eigenenergien und -funktionen haben dann die Form

$$U_{1,2}(Q) = \frac{1}{2}(\tilde{U}_1(Q) + \tilde{U}_2(Q)) \pm ((\tilde{U}_1 - \tilde{U}_2)^2 + 4|V_{12}^{(0)}|^2 Q^2)^{\frac{1}{2}} \quad (23)$$

$$\begin{aligned} \varphi_1(q, Q) &= \varphi_1^{(0)} \cos \frac{\beta}{2} + \varphi_2^{(0)} \sin \frac{\beta}{2} \\ \varphi_2(q, Q) &= -\varphi_1^{(0)} \sin \frac{\beta}{2} + \varphi_2^{(0)} \cos \frac{\beta}{2} \end{aligned} \quad (24)$$

$$\beta(Q) = \arctg(2V_{12}^{(0)}Q(\tilde{U}_1(Q) - \tilde{U}_2(Q))); \quad 0 \leq \pi \leq \beta$$

In diesem Falle reduziert sich die Übergangsamplitude exakt auf den Beitrag der Nichtadiabazität, d. h.

$$B_{1N, 2N'} = (\Phi_{1N} | \int dq \varphi_1(q, Q) [H_L, \varphi_2(q, Q)] \Phi_{2N'}) \quad (25)$$

Nach Einsetzen der elektronischen Wellenfunktionen (24) in (25) erhält man nach kurzer Rechnung

$$B_{1N, 2N'} = -\frac{1}{2} (\Phi_{1N} | [H_L, \beta(Q)] | \Phi_{2N'}) \quad (26)$$

Die Berechnung des Kommutators in (26) unter Beachtung der Gitter-Bewegungsgleichung

$$H_L(Q) \Phi_{nN} = (E_{nN} - U_r(Q)) \Phi_{nN} \quad (27)$$

und der Energieerhaltung $E_{nN} = E_{n'N'}$ liefert

$$\begin{aligned} B_{1N, 2N'} &= \frac{1}{2} (\Phi_{1N} | ((\tilde{U}_1 - \tilde{U}_2)^2 + 4|V_{12}^{(0)}|^2 Q^2)^{\frac{1}{2}} \\ &\quad \times \arctg(2V_{12}^{(0)}Q/(\tilde{U}_1 - \tilde{U}_2)) | \Phi_{2N'}) \end{aligned} \quad (28)$$

Mit den Bezeichnungen

$$Q_n = -V_{mn}^{(0)}/\hbar\omega_0, \quad Q_c = (U_1^{(0)} - U_2^{(0)})/\hbar\omega_0(Q_1 - Q_2),$$

$$A = 2V_{12}^{(0)}/\hbar\omega_0(Q_1 - Q_2)$$

$$Q' = Q/Q_c, \quad Q'_n = Q_n/Q_c$$

nimmt (28) die Form

$$\begin{aligned} B_{1N, 2N'} &= \frac{1}{2} \hbar\omega_0 Q_c^3 (Q'_1 - Q'_2) \\ &\quad \times (\bar{\Phi}_{1N} | ((1 - Q')^2 + A^2 Q'^2)^{\frac{1}{2}} \\ &\quad \times \arctg(AQ'/(1 - Q')) | \bar{\Phi}_{2N'}) \end{aligned} \quad (29)$$

an, wobei

$$\bar{\Phi}_{nN}(Q' - Q'_n) = \Phi_{nN}(Q_c(Q' - Q'_n))$$

ist. Wenn die wesentliche Überlappung der Schwingungswellenfunktionen $\bar{\Phi}_{1N}$ und $\bar{\Phi}_{2N'}$ auf das Gebiet beschränkt bleibt, was unter der Bedingung $|Q'| < 1, |Q'_1| \ll 1, |Q'_2| \ll 1$ gewährleistet ist, so genügt die Bedingung $A \ll 1$ für die Gültigkeit der statischen Näherung (13):

$$B_{1N, 2N'} = \frac{1}{2} A \hbar\omega_0 Q_c^3 (Q'_1 - Q'_2) (\bar{\Phi}_{1N} | Q' | \bar{\Phi}_{2N'}) \quad (30)$$

Dementsprechend läßt sich feststellen: Die statische Näherung (13) ist als niedrigste Approximation des umfassenderen adiabatischen Konzeptes anzusehen. Sie ist unter den Bedingungen $|Q'_n| \ll 1, A \ll 1$ gültig, wohingegen im allgemeinen Falle beliebig große Abweichungen der adiabatischen Ergebnisse von der simplen statischen Approximation möglich sind. Keinesfalls ist die Schlußfolgerung richtig, daß die adiabatischen Ausdrücke bezüglich ihrer Größenordnung kleiner als die statischen sein sollten.

2. Übergangswahrscheinlichkeiten

Die Übergangswahrscheinlichkeit vom Zustand n in den Zustand n' läßt sich mit den bekannten Methoden der Multi-Phonon-Theorie berechnen. Verwendet man für die Übergangsamplitude den Ausdruck

$$V_{mn}^{(0)} (\Phi_{nN}^{(1)} | Q | \Phi_{n'N'}^{(1)})$$

so enthält die Rate fünf Parameter, nämlich die effektive Phononenenergie $\hbar\omega_0$, das nichtdiagonale Matrixelement der Elektron-Gitter-Kopplung $V_{mn}^{(0)}/\hbar\omega_0$, die elektronische Übergangsenergie

$$\varepsilon = (U_n^{(0)} - U_{n'}^{(0)})/\hbar\omega_0$$

die kombinierte Gitterrelaxationsenergie

$$\varepsilon_R = \frac{1}{2}(Q_n^2 - Q_{n'}^2)$$

und schließlich den Huang-Rhys-Parameter

$$S = \frac{1}{2}(Q_n - Q_{n'})^2$$

Für große Werte von $|\varepsilon - \varepsilon_R| \gg 1$ gilt

$$W_{nn'} = \omega_0 \frac{|V_{nn'}^{(0)}|^2}{(\hbar\omega_0)^2} \sqrt{\frac{\pi}{2}} (\alpha_0 R_0 + \alpha_1 R_1 + \alpha_{-1} R_{-1} + \alpha_2 R_2 + \alpha_{-2} R_{-2}) \quad (31)$$

mit

$$R_p = ((\varepsilon - \varepsilon_R - p) + z^2)^{-\frac{1}{4}} \left(\frac{N+1}{N} \right)^{\frac{\varepsilon - \varepsilon_R - p}{2}} \times \exp \left\{ -S(2N+1) + ((\varepsilon - \varepsilon_R - p)^2 + z^2)^{\frac{1}{2}} - (\varepsilon - \varepsilon_R - p) \ln \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_R - p}{z} + \left(\left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_R - p}{z} \right)^2 + 1 \right)^{\frac{1}{2}} \right) \right\}$$

$$z = 2S \sqrt{N(N+1)}$$

$$\alpha_0 = \frac{\varepsilon_R^2}{S} - 2S(N+1)N$$

$$\alpha_1 = (N+1)(1 - 2\varepsilon_R)$$

$$\alpha_{-1} = N(1 + 2\varepsilon_R)$$

$$\alpha_2 = S(N+1)^2$$

$$\alpha_{-2} = SN^2$$

(N ist die mittlere Phononenbesetzungszahl). Der Ausdruck (31) ist für beliebige Temperaturen gültig. Er enthält auch den Hochtemperaturgrenzfall, der gewöhnlich als Aktivationsverhalten der Multi-Phonon-Rekombination interpretiert wird. Die Bedingungen für diesen Fall sind sehr einschneidend:

$$kT \gg \hbar\omega_0, \quad kT \gg \hbar\omega_0 \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_R}{2S} \right) \quad (32)$$

des weiteren muß die Verschiebung der Gleichgewichtslage des Endzustandes sehr klein sein, d. h. $|Q_n| \ll 1$. Dann ist $\varepsilon_R \cong S$, und man erhält aus (31) das bekannte Resultat

$$W_{nn'} = W_{nn'}^\infty(T) \exp \left\{ \frac{-\hbar\omega_0(\varepsilon - S)^2}{4SkT} \right\} \quad (33)$$

$$W_{nn'}^\infty(T) = \omega_0 \frac{|V_{nn'}^{(0)}|^2}{(\hbar\omega_0)^2} \left(\frac{\pi kT}{\hbar\omega_0 S} \right)$$

Anschrift der Verfasser:

Dr. Kurt Peuker, Dipl.-Phys. Andreas Schenk, Sektion Physik der Humboldt-Universität zu Berlin, 1086 Berlin, PSF 1297

Literatur

- [1] Frenkel, J.: Phys. Rev. 37 (1931) S. 17 und 1276.
- [2] Möglich, F.; Rompe, R.: J. Phys. 115 (1940) S. 707.
- [3] Huang, K.; Rhys, A.: Proc. Roy. Soc. A 204 (1950) S. 406.
- [4] Kriwoglaz, M. A.: Zh. eksper. teor. fiz. 25 (1953), S. 191.
- [5] Kubo, R.; Toyozawa, Y.: Progr. Theor. Phys. (Kyoto) 13 (1955), S. 160.
- [6] Born, M.; Oppenheimer, R.: Ann. Phys. 84 (1927), S. 457.
- [7] Kowarskij, W. A.: Fiz. tverd. tela 4 (1962), S. 1636.
- [8] Haug, A.: Theoret. Festkörperphysik II. Wien: Deuticke 1970.
- [9] Pässler, R.: phys. stat. sol. (b) 65 (1974), S. 561.
- [10] Frank-Kamenetskij, M. O.; Lakuschin, A. W.: Uspechi fiz. nauk 116 (1975), S. 193.
- [11] Ridley, B. K.: J. Phys. C 11 (1978) S. 2323.
- [12] Goto, H.; Adachi, V.; Ikoma, T.: Phys. Rev. B 22 (1980) S. 782.
- [13] Gutsche, E.: Proc. Int. Luminescence Conf. Berlin (West) 1981.

Zusammenfassung

Kurt Peuker und Andreas Schenk

Grundlagen der Theorie der strahlungslosen Multi-Phononen-Rekombination

In der vorliegenden Arbeit wird gezeigt, daß im Gegensatz zu Aussagen in der Literatur alle bisher bekannten störungstheoretischen Zugänge (Condon-Näherung, Nicht-Condon'sche Näherung, statische Näherung) in niedrigster Ordnung bezüglich der nichtdiagonalen Elektron-Gitter-Kopplung zu dem gleichen Resultat führen. Insbesondere wird geklärt, warum in früheren Arbeiten viel zu kleine Werte für die Übergangswahrscheinlichkeiten erhalten wurden.

Курт Пойкер и Андреас Шенк

Основы теории безлучевой мульти-фонон-рекомбинации

В предлагаемой работе показывается, что в противоположность к высказываниям в литературе все известные до сих пор теоретические подходы помех (Кондон-питание, Некондонное питание, статическое питание) самого низкого порядка в отношении недиагональной связи электрона-решетки ведут к одинаковому результату. Особенно выясняется, почему в ранних работах получали слишком незначительные значения для переходных вероятностей.

Kurt Peuker and Andreas Schenk

Fundamentals of the theory of non-radiative multiphonon recombination

This study points out that, contrary to what has been written in the literature, all approaches of perturbation theory (Condon approximation, non-Condon approximation, static approximation) in the lowest order with respect to non-diagonal electron lattice coupling lead to the same result. The authors particularly explain why the values for the transition probabilities given in earlier works were much too small.

Kurt Peuker et Andreas Schenk

Fondements de la théorie de la recombinaison multiphononique non radiative

Les auteurs montrent dans cette communication que, contrairement à ce qui est dit dans les ouvrages spécialisés, toutes les approches connues jusqu'ici de la théorie des perturbations (approximation Condon, approximation non-condonienne, approximation statique) dans l'ordre le plus bas par rapport au couplage non-diagonal électron-grille, conduisent au même résultat. Ils clarifient notamment la question de savoir pourquoi, dans les ouvrages antérieurs, on a obtenu des valeurs beaucoup trop petites pour les probabilités du passage.