arXiv:2302.01480v1 [cond-mat.mtrl-sci] 3 Feb 2023

采用双声子极性光学声子散射半解析模型研究砷化镓中热电子的输运与噪声

Jiace Sun 和Austin J. Minnich *加州理学院工程与应用科学部，美国加利福尼亚州帕萨迪纳（日期：2023年2月6日）

摘要

近期关于砷化镓电子输运的第一性原理研究表明，高于最低阶的电子-声子（e- ph）相互作用在电荷输运和噪声现象中起着根本作用。研究发现，纳入电子与两个声子散射的次主导阶过程，能够使高场漂移速度与实验结果吻合良好，但未能预测电流涨落功率谱密度（PSD）随电场变化所呈现的特征性非单调趋势。第一性原理方法的高计算成本使得人们不得不对双声子散射项作出各种近似，并认为这些近似可能是产生差异的原因。本文提出一种基于 Fr¨ohlich 机制的双声子电子散射半解析输运模型，在保持精度误差不超过几个百分点的同时，放宽了第一性原理处理中采用的若干近似。我们将计算得到的输运和噪声性质与实验结果进行比较，并与光致发光实验测得的散射率进行对照。结果显示，漂移速度的定量误差在 15% 以内， Γ 谷间散射率的误差在 25% 以内，而与 $\Gamma - L$ 谷间散射率的差异则在两倍以内。结合这些结果以及此前关于砷化镓电流噪声的研究，我们认为，电流功率谱密度随电场变化呈现非单调趋势，最可能是由空间电荷畴的形成所致，而非通常认为的谷间散射。

* aminnich@caltech.edu

I. 引言

半导体中的电子输运具有根本意义，并且与微电子器件密切相关 [1–3]。半导体迁移率的上限由电子受声子散射所决定。早期的电荷输运性质研究采用半经验方法描述能带结构和电子-声子散射。蒙特卡罗方法的引入使得人们能够以较少近似对输运进行数值模拟 [4]。后来，人们开发出能够模拟真实器件几何结构的全能带蒙特卡罗工具，但电子-声子散射率的处理通常仍需要一些拟合参数。 [5–7]。基于密度泛函理论（DFT）、密度泛函微扰理论（DFPT）和 Wannier 插值的电子-声子相互作用第一性原理描述，使得人们能够无参数计算迁移率等低场电荷输运性质 [8, 9]。如今，这些方法已应用于多种半导体，包括硅 [10, 11],氮化镓 [12], 砷化镓 [13], 二维材料 [14–16], 以及其他材料。近期的方法学进展，包括双声子散射 [17], 四极相互作用 [18, 19], 和GW 修正 [11, 20], 推动了人们严格比较公认理论水平与实验结果。

第一性原理计算的准确性主要通过与低场迁移率值进行比较来评估。近期研究已将这类计算拓展至低场输运之外，研究噪声性质。 [21–24] 在砷化镓中，研究发现，尽管与实验相比，漂移速度随电场变化曲线的定性形状预测正确，但漂移速度的数值被高估了约 50%。[23] 纳入涉及两个声子的散射的次领先阶项（双声子）后，低场迁移率和漂移速度与实验的吻合度显著提高。然而，即使采用双声子理论，也未能预测功率谱密度随电场变化的非单调特征。由于第一性原理计算成本高昂，该研究对双声子过程的处理采用了若干近似，例如忽略非壳上双声子散射过程。这些被忽略的过程或其他数值因素是否能够解释功率谱密度差异，仍不得而知。

本文介绍了一种基于 Fr¨ohlich 机制的单声子和双声子电子-声子散射半解析模型，可在所需的宽能量范围内处理完整的双声子散射项，

该范围涵盖高场输运所需的能量，同时引入的误差仅为百分之几。我们发现，与第一性原理计算相比，输运和噪声性质在定性上没有变化。对于 Γ 谷散射率，计算得到的散射率与光致发光实验结果的偏差在25%以内；对于 Γ-L谷间散射率，二者相差约一倍。尽管一致性达到这一程度，先前观察到的功率谱密度差异在定性上仍然存在。我们考察了半解析模型中剩余的近似，发现这些近似不太可能解释功率谱密度差异。因此，我们得出结论：功率谱密度随电场变化所呈现的特征峰源于空间电荷畴的形成，而不是文献中一直假定的谷间散射。这一发现对于利用输运测量研究谷间散射具有重要意义。

II. 理论

A. 电荷输运与噪声特性形式体系概述 s

我们首先回顾使用玻尔兹曼输运方程进行电子输运和电子噪声第一性原理处理的方法 [25]。对于具有电场 $\vec{\mathcal{E}}$的空间均匀系统，电子分布函数 $f_{m\boldsymbol{k}}$ 由下式决定

$$\frac{\partial f_{m\boldsymbol{k}}}{\partial t} + \frac{e\vec{\mathcal{E}}}{\hbar} \cdot \nabla_{\boldsymbol{k}} f_{m\boldsymbol{k}} = \mathcal{I}[f_{m\boldsymbol{k}}], \tag{1}$$

其中， $f_{m\boldsymbol{k}}$ 表示能带指标为 m 、波矢为 $\boldsymbol{k}$的状态中的电子占据， e表示基本电荷， $\mathcal{I}[f_{m\boldsymbol{k}}]$ 表示碰撞项，用于描述电子与声子 [8]的散射。为简化起见，在以下所有推导中省略指标 m ，因为在所考虑的电场范围内，砷化镓中与电子输运相关的只有一条能带。

对于非简并电子，碰撞项可线性化为 [23]:

$$\mathcal{I}[f_{\boldsymbol{k}'}] \approx -\sum_{\boldsymbol{k}} \Theta_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} f_{\boldsymbol{k}}, \tag{2}$$

其中 $\Theta_{\boldsymbol{k}',\ \boldsymbol{k}}$ 为电子-声子碰撞矩阵。对角元素 $\Theta_{\boldsymbol{k},\ \boldsymbol{k}}$ 等于总散射率，即 $\Theta_{\boldsymbol{k},\ \boldsymbol{k}} = \Gamma_{\boldsymbol{k}} = -\sum_{\boldsymbol{k}' \neq \boldsymbol{k}} \Theta_{\boldsymbol{k}',\ \boldsymbol{k}}$。通过这种线性化以及有限差分

导数算符的表示 $\nabla_{\boldsymbol{k}}$ [22]，方程1 变为一个可通过数值线性代数求解的线性偏微分方程。稳态分布函数 $f^s_{\boldsymbol{k}}$ 的方程见参考文献22的方程 6。利用该分布函数，通过适当的布里渊区求和，可以计算稳态平均输运性质，例如漂移速度。

电流功率谱密度（PSD）用于表征占据数相对于平均分布的涨落。PSD 定义为电流密度涨落的自相关函数的傅里叶变换（参考文献 22中的公式 12）。按照参考文献 22，频率 ω 处的电流功率谱密度可计算为

$$S_{j_\alpha j_\beta}(\omega) = 2\left(\frac{2e}{\mathcal{V}_0}\right)^2 \Re\left[\sum_{\mathbf{k}} v_{\boldsymbol{k}\alpha} g_{\boldsymbol{k}\beta}\right], \tag{3}$$

其中，$v_{\boldsymbol{k}\alpha}$ 是电子在状态 $\boldsymbol{k}$ 沿坐标轴 α的群速度，$\mathcal{V}_0$ 是超胞体积，而 $g_{\boldsymbol{k}\beta}$ 是满足以下方程的有效分布函数 [26]：

$$\sum_{\boldsymbol{k}} (\Theta_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} + \frac{e\vec{\mathcal{E}}}{\hbar} \cdot \vec{D}_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} + i\omega\delta_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}}) g_{\boldsymbol{k}\alpha} = f^s_{\boldsymbol{k}'}(v_{\boldsymbol{k}',\alpha} - V_\alpha), \tag{4}$$

其中，D 是 $\nabla_{\boldsymbol{k}}$ 在公式 1中给出的有限差分表示，$f^s_{\boldsymbol{k}}$ 是波矢 $\boldsymbol{k}$处状态的稳态占据数，而 V_α 是沿坐标轴 α的漂移速度。

电子-声子碰撞矩阵通过对电子-声子相互作用强度进行微扰展开获得。对于非简并电子的单声子散射，非对角散射矩阵元为 [23]:

$$\Theta^{(1\mathrm{ph})}_{\boldsymbol{k}'=\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}} = -\frac{2\pi}{\hbar}\frac{1}{N}\sum_{\nu} |g_\nu(\boldsymbol{k},\boldsymbol{q})|^2 \left(\delta(\epsilon_{\boldsymbol{k}} - \hbar\omega_{\nu\boldsymbol{q}} - \epsilon_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}) N_{\boldsymbol{q}} + \delta(\epsilon_{\boldsymbol{k}} + \hbar\omega_{\nu\boldsymbol{q}} - \epsilon_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}})(N_{\boldsymbol{q}}+1)\right) \tag{5}$$

对于 $\boldsymbol{k} \neq \boldsymbol{k}'$，其中 $g_\nu(\boldsymbol{k},\ \boldsymbol{q})$ 是电子-声子散射矩阵元，$\epsilon_{\boldsymbol{k}}$ 是电子态 $\boldsymbol{k}$ 的能量，$\omega_{\nu\boldsymbol{q}}$ 是模式为 ν、波矢为 $\boldsymbol{q}$ 的声子的频率，N 是布里渊区内 $\boldsymbol{k}$ 点的总数，$N_{\boldsymbol{q}}$ 是根据玻色-爱因斯坦统计得到的声子占据。两个狄拉克δ函数分别是发射和吸收子过程的能量守恒条件。

B. 双声子散射

文献17推导了双声子散射的碰撞积分，其线性化形式见文献 23。双声子散射可分为双发射（2e）、一次发射一次吸收（1e1a）和双吸收（双声子过程）子过程。此处，我们改写文献 17 中的原有形式，以便于下一节的推导。假设文献 17中公式 4 的电子遵循非简并电子统计，我们通过将 23 中的公式 12 拆分为两部分，来改写该公式： $W^{(i)}$

$$\begin{aligned} W^{(i)} &= |\tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q},\boldsymbol{p},\alpha_2} + \tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{p},\boldsymbol{q},\alpha_1}|^2 \\ &= \left[|\tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q},\boldsymbol{p},\alpha_2}|^2 + \mathrm{Re}(\tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q},\boldsymbol{p},\alpha_2}\tilde{W}^*_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{p},\boldsymbol{q},\alpha_1})\right] + \left[|\tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{p},\boldsymbol{q},\alpha_1}|^2 + \mathrm{Re}(\tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{p},\boldsymbol{q},\alpha_1}\tilde{W}^*_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q},\boldsymbol{p},\alpha_2})\right], \end{aligned} \tag{6}$$

其中

$$\tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q},\boldsymbol{p},\alpha} = \frac{g_\nu(\boldsymbol{k},\boldsymbol{q})g_\mu(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{p})}{\epsilon_{\boldsymbol{k}'} - \epsilon_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} + \alpha\hbar\omega_{\nu\boldsymbol{p}} + i\eta - i\hbar\Gamma_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}/2}, \tag{7}$$

其中 η 是一个正无穷小量， $\Gamma_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} = \Gamma^{(1\mathrm{ph})}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} + \Gamma^{(2\mathrm{ph})}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}$ 是中间态 $\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}$的总散射率。对于 2e 和 2a 子过程，求和后两项给出相同的贡献。对于 1e1a 子过程，式 6中的两项在物理上分别代表先发射后吸收（a-e）和先吸收后发射（e-a）子过程。最后，对于式 $\boldsymbol{q}$ 和 $\boldsymbol{p}$ ，我们在式 (6) 的第二项中交换参考文献 23中式 9 的求和顺序， 并整理方程，得到：

$$\Theta^{(2\mathrm{ph})}_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} = -\frac{2\pi}{\hbar}\frac{1}{N^2}\sum_{\alpha_1=\pm1}\sum_{\alpha_2=\pm1}\sum_{\boldsymbol{q}+\boldsymbol{p}=\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k}}\sum_{\nu\mu}\tilde{\Theta}^{(\alpha_1,\alpha_2)}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q}\nu,\boldsymbol{p}\mu} \tag{8}$$

对于 $\boldsymbol{k} \neq \boldsymbol{k}'$，其中 α_1 和 α_2 表示第一个和第二个声子是发射（$\alpha_{1,\ 2} = 1$）还是吸收（$\alpha_{1,\ 2} = -1$），因此，$\alpha_{1,\ 2} = \pm1$ 的四种组合描述了四个子过程。

术语 $\tilde{\Theta}^{(\alpha_1,\alpha_2)}{}_{\boldsymbol{k}、\boldsymbol{q}\nu、\boldsymbol{p}\mu}$ 在公式 8中定义为

$$\tilde{\Theta}^{(\alpha_1,\alpha_2)}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q}\nu,\boldsymbol{p}\mu} = (N_{\boldsymbol{q}}+\delta_{\alpha_1,1})(N_{\boldsymbol{p}}+\delta_{\alpha_2,1})\left[|\tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q},\boldsymbol{p},\alpha_2}|^2 + \mathrm{Re}(\tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q},\boldsymbol{p},\alpha_2}\tilde{W}^*_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{p},\boldsymbol{q},\alpha_1})\right]\delta(\epsilon_{\boldsymbol{k}}-\epsilon_{\boldsymbol{k}'}-\alpha_1\omega_{\nu\boldsymbol{q}}-\alpha_2\omega_{\mu\boldsymbol{p}}). \tag{9}$$

由于双声子散射率取决于中间态速率，因此双声子散射

必须通过迭代计算。在每次迭代中，使用上一次迭代的中间态速率来更新双声子散射矩阵 $\Theta^{(2\mathrm{ph})}_{\boldsymbol{k}'\,\boldsymbol{k}}$，以及散射率 $\Gamma^{(2\mathrm{ph})}_{\boldsymbol{k}}$。

与单声子散射相比，双声子散射的计算开销大得多，尤其是高场输运，其所需的能量窗口比低场输运更大。在文献23中，为使计算可行，采用了若干近似，包括将双声子散射率的自洽迭代次数限制为三次，将壳外范围限制为 $|\epsilon_{\boldsymbol{k}'} - \epsilon_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} + \alpha\hbar\omega_{\nu\boldsymbol{p}}|$ 25 毫电子伏，并忽略干涉˜ ˜项 Re($W_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q},\boldsymbol{p},\alpha_2} W^*_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{p},\boldsymbol{q},\alpha_1}$) 项。此外，式9中可采用的最大网格密度为 $200 \times 200 \times 200$。这些近似对可观测输运和噪声性质的影响尚未评估。特别是，壳上近似忽略了壳外过程，因此会低估散射率。文献 [23]中曾指出，这些近似可能是功率谱密度差异的原因。

C. 单声子和双声子 Γ-Γ散射的半解析模型

本节介绍一种用于处理 Fr¨ohlich 相互作用引起的单声子和双声子 $\Gamma-\Gamma$ 谷内散射的半解析模型。该模型在保留第一性原理形式体系精度（误差仅为几个百分点）的同时，允许解除上述近似。该模型基于这样一个事实：在本研究所考虑的波矢范围内，砷化镓中的 Γ 谷近似呈球对称，而且仅使用 Fr¨ohlich 相互作用 [27]就能准确描述 Γ-Γ散射。该模型仅适用于 Γ 谷内散射，因为 Γ-L 谷间散射缺乏同等精度的解析描述。

半解析模型采用以下近似。首先，能带结构用 Kane模型 [28] 描述为球对称的非抛物线能带。对于 Γ谷，这一描述十分准确；在所考虑的波矢范围内（$\sim 0.1G$，其中 G 为倒易晶格常数），Kane模型能带与第一性原理能带结构的偏差最多为 7%。其次，先前研究表明，砷化镓中的Γ-Γ 电子-声子散射主要由纵向光学（LO）声子通过 Fr¨ohlich 相互作用 [29]主导。因此，我们忽略涉及其他声子支和散射机制的散射过程。计算所得 Fr¨ohlich 散射的矩阵元 $g_{\mathrm{LO}}(\boldsymbol{k},\boldsymbol{q})$ 几乎不表现出各向异性，因此 $g_{\mathrm{LO}}(\boldsymbol{k},\boldsymbol{q}) = g_{\mathrm{LO}}(k)$，从而可以将 $g_{\mathrm{LO}}(k)$ 的解析形式拟合到第一性原理计算值，具体方法见第 III 节。在此范围内

在所考虑的波矢范围内，这一近似的误差在 3% 以内 [27]。第三，我们将纵光学声子频率视为常数 $\omega_{\mathrm{LO}} = 35$ 毫电子伏。在此处考虑的声子波矢范围 $k \in (0,\ 0.2G)$内，该假设的误差小于 0.3%。

现在，我们基于这些简化讨论单声子和双声子电子-声子散射。通过令 $\boldsymbol{q} \to k_m - \boldsymbol{k}$ 和 $\boldsymbol{p} \to \boldsymbol{k}' - k_m$，式 8 中的求和可改写为布里渊区内关于中间波矢 k_m 的积分。此外，我们利用球对称性，将所有量改写为球坐标形式：$\Theta_{\boldsymbol{k}',\ \boldsymbol{k}} = \Theta(k,\ k',\ \theta_{\boldsymbol{k},\ \boldsymbol{k}'})$ 和 $\Gamma_{\boldsymbol{k}} = \Gamma_k$。经过一些简化后，我们得到单声子和双声子的碰撞矩阵：

$$\Theta^{(1\mathrm{ph})}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'}) = \frac{2\pi}{\hbar}\frac{1}{\Omega_{\mathrm{BZ}}}|g_{\mathrm{LO}}(|\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k}|)|^2 \sum_{\alpha=\pm1} A_\alpha \delta(\epsilon_k - \alpha\hbar\omega_{\mathrm{LO}} - \epsilon_{k'}) \tag{10}$$

and

$$\Theta^{(2\mathrm{ph})}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'}) = \frac{2\pi}{\hbar}\frac{1}{\Omega_{\mathrm{BZ}}^2}\sum_{\alpha_1=\pm1}\sum_{\alpha_2=\pm1} A_{\alpha_1}A_{\alpha_2}\delta(\epsilon_k - \epsilon_{k'} - (\alpha_1+\alpha_2)\hbar\omega_{\mathrm{LO}}) I^{(\alpha_1,\alpha_2)}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'}), \tag{11}$$

其中 Ω_{BZ} 是布里渊区体积。 A_α 是定义如下的声子占据因子

$$A_\alpha = N_{\mathrm{LO}} + \delta_{\alpha,+1}, \tag{12}$$

其中 $N_{\mathrm{LO}} = (\exp(\hbar\omega_{\mathrm{LO}}/k_BT) - 1)^{-1}$ 是纵光学声子占据数，而 $I^{(\alpha_1,\alpha_2)} = I^{(\alpha_1,\alpha_2)1} + I^{(\alpha_1,\alpha_2)\ 2}$ 可分解为非干涉部分 $I^{(\alpha_1,\alpha_2)\ 1}$ 和干涉部分 $I^{(\alpha_1,\alpha_2)\ 2}$：

$$\begin{aligned} I_1^{(\alpha_1,\alpha_2)}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'}) &= \int |\tilde{W}_{\boldsymbol{k},k_m-\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'-k_m,\alpha_2}|^2 \mathrm{d}^3k_m \\ &= \int \left|\frac{g_{\mathrm{LO}}(|k_m-\boldsymbol{k}|)g_{\mathrm{LO}}(|\boldsymbol{k}'-k_m|)}{\epsilon_{k'} - \epsilon_{k_m} + \alpha_2\omega_{\mathrm{LO}} + i\eta - \hbar\Gamma_{k_m}/2}\right|^2 \mathrm{d}^3k_m, \end{aligned} \tag{13}$$

and

$$I_2^{(\alpha_1,\alpha_2)}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'}) = \int_{\boldsymbol{q}+\boldsymbol{p}=\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k}} \mathrm{Re}(\tilde{W}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q},\boldsymbol{p},\alpha_2}\tilde{W}^*_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{p},\boldsymbol{q},\alpha_2})\mathrm{d}^3\boldsymbol{p}\mathrm{d}^3\boldsymbol{q} \tag{14}$$

方程13 还可以通过将积分写成球坐标形式，并分离径向和角向部分，进一步简化：

$$I_1^{(\alpha_1,\alpha_2)}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'}) = \int \frac{\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'},k_m)}{|\epsilon_{k'} - \epsilon_{k_m} + \alpha_2\omega_{\mathrm{LO}} + i\eta - \hbar\Gamma_{k_m}/2|^2} k_m^2 \mathrm{d}k_m, \tag{15}$$

其中 $\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}{}_1$ 是定义如下的角向部分：

$$\tilde{I}_1^{(\alpha_1,\alpha_2)}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'},k_m)=\int|g_{\mathrm{LO}}(|k_m-\boldsymbol{k}|)g_{\mathrm{LO}}(|\boldsymbol{k}'-k_m|)|^2\sin\theta_{k_m}\mathrm{d}\theta_{k_m}\mathrm{d}\phi_{k_m},\tag{16}$$

其中，θ_{k_m}、ϕ_{k_m} 分别是定义中间波矢k_m的极角和方位角。由于 $\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}$ 1 与能带结构和自能无关，因此无需在每次二声子迭代中重新计算这一项。实际上，为了显著降低计算成本，在进行二声子迭代之前，先在由 k、k'、$\theta_{\boldsymbol{k}}$、$\boldsymbol{k}'$ 和 k_m 构成的网格上预计算 $\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}$ 1（k、k'、$\theta_{\boldsymbol{k}}$、$\boldsymbol{k}'$、k_m）。这里，k、k'、$\theta_{\boldsymbol{k}}$ 和 $\boldsymbol{k}'$ 由于能量守恒条件而彼此不独立。在预定义网格上计算出 $\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}$ 1（k、k'、$\theta_{\boldsymbol{k}}$、$\boldsymbol{k}'$、k_m）后，可根据方程 11、15 和 14 计算 $\Theta^{(2\mathrm{ph})}$（k、k'、$\theta_{\boldsymbol{k}}$、$\boldsymbol{k}'$）。需要指出的是，将径向部分与球面部分分离的方法不适用于 $\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}$ 2，因此需要进行计算成本较高的迭代更新。不过，由于 $\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}$ 2 通常远小于 $\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}$ 2，我们每隔 10 次迭代更新一次 $\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}$ 2，以降低自洽计算的成本。

为完成二声子迭代，最后需要计算的量是单声子和双声子总散射率：

$$\Gamma_k^{(\mathrm{type})}=\int\Theta^{(\mathrm{type})}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'})\mathrm{d}^3\boldsymbol{k}'=\int\Theta^{(\mathrm{type})}(k,k',\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'})2\pi k'^2\mathrm{d}k'\sin\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'}\mathrm{d}\theta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'}\tag{17}$$

其中，类型 $=$ 1声子，双声子表示散射类型。我们还对 k' 进行径向积分，以解析地计算公式 10 和 11中的狄拉克δ函数。公式 17 中的角向积分通过数值方法计算；详情见第 III节。

半解析模型的计算流程如下。首先，生成由 k、$\theta_{\boldsymbol{k}}$、$\boldsymbol{k}'$、k_m 构成的网格，并根据每个子过程的能量守恒条件计算相应的 k'。其次，根据公式 10 计算 $\Theta^{(1\mathrm{ph})}$(k、k'、$\theta_{\boldsymbol{k}}$、$\boldsymbol{k}'$)，并根据公式 17 计算 $\Gamma_k^{(1\mathrm{ph})}$。然后，根据公式 16 计算 $\tilde{I}^{(\alpha_1,\alpha_2)}$ 1 (k、k'、$\theta_{\boldsymbol{k}}$、$\boldsymbol{k}'$、k_m)。最后，通过公式 15、14、11 和 17 进行自洽二声子迭代，直至收敛；其中，公式 14 每迭代 10 次计算一次。

从计算成本的角度来看，由于球对称性，半解析模型将双声子散射率计算中的积分变量数量从 9 个（对$\boldsymbol{k}$、$\boldsymbol{k}'$、k_m积分）减少到 5 个（k、$\theta_{\boldsymbol{k}}$、$\boldsymbol{k}'$、k_m），并避免了重复计算

$I^{(\alpha_1,\alpha_2)}$ 1 在双声子自洽迭代中，这是因为式15将径向积分与角向积分分离。这种简化使得中间态积分可以使用更密集的网格，从而降低离散化误差。因此，与第一性原理计算相比，总散射率的离散化误差可以忽略不计。然而，由于半解析模型仅适用于 Γ-Γ散射，计算受 Γ-L 谷间散射影响的漂移速度和电流功率谱密度时，仍需要离散化散射矩阵（$\Theta_{\boldsymbol{k}'}$、$_{\boldsymbol{k}}$）。因此，对于当前计算，末态积分中的离散化误差无法避免。尽管如此，半解析模型仍能降低中间态积分的离散化误差，并处理完整的双声子散射项。第一性原理计算与半解析模型在 Γ 谷内散射方面的差异总结于

表I.

	第一性原理计算	半解析模型
末态积分	200×200×200	200×200×200用于可观测量 对散射率而言近乎精确
中间态积分	200×200×200	实际上精确
过程	仅壳上	包含所有过程
双声子迭代	3	迭代直至收敛
干涉项	未包括	已包括
计算时间（CPU 小时）	50000	40

表 I: Γ – Γ谷内散射的第一性原理计算与半解析模型的比较。除可观测量的末态积分网格密度外，半解析模型在所有方面均优于第一性原理模型；对于该项，两者使用相同的网格。

III. 计算细节

A. 第一性原理计算

第一性原理计算参数与我们先前的工作 [23] 相同。简而言之，使用密度泛函理论（DFT）和密度泛函微扰理论（DFPT）计算电子结构和电子-声子矩阵元，采用 QuantumEspresso [30, 31]、 $8\times8\times8$ 粗网格、72 里德伯的平面波能量截断，以及弛豫后的

晶格参数为 5。556 °A，以及非简并载流子浓度 10^{15} cm^{-3}。按照我们先前的工作 [23], , 我们对 Γ 谷和 L 谷均进行了能带结构修正。对于 Γ 谷，我们采用球对称 Kane 模型能带结构，[32] 其实验有效质量为 0。$067m_e$，非抛物性为 0.64 里德伯$^{-1}$ [2]。对于 L 谷，我们将能量平移 50 毫电子伏，以得到实验 Γ 谷与 L 谷之间 300 毫电子伏的能量间隔。随后，在 PERTURBO [33] 中应用 Wannier 插值，将电子-声子矩阵元插值到更精细的网格 $200 \times 200 \times 200$。得到电子-声子矩阵元后，根据方程5 和8计算单声子和双声子散射矩阵。方程5 和9 中的狄拉克δ函数用标准差为 5 毫电子伏的高斯函数近似。

计算散射矩阵时，采用 2 毫电子伏的声子频率截断，以忽略低频声子。为减少布里渊区积分中的 k 点数量，使用高于导带底 360 毫电子伏的能量截断。双声子计算通过将壳外范围限制在 25 毫电子伏，采用壳上近似。根据参考文献 [22], , 表示玻尔兹曼方程的线性方程组采用广义最小残差法（GMRES）求解。

B. 半解析模型

半解析模型所采用的能带结构与第一性原理计算中的相同。LO 声子能量取为 $\omega_{\mathrm{LO}} = 35$ 毫电子伏。函数 $g_{\mathrm{LO}}(k)$ 是通过对 $g_{\mathrm{LO}}(\boldsymbol{k}_i,\ \boldsymbol{p}_i)$ 进行加权平均得到的：

$$g_{\mathrm{LO}}(k) = \frac{\sum_i g_{\mathrm{LO}}(\boldsymbol{k}_i, \boldsymbol{p}_i) \exp(-\frac{(k-p_i)^2}{2\sigma^2})}{\sum_i \exp(-\frac{(k-p_i)^2}{2\sigma^2})} \tag{18}$$

其中，标准差 $\sigma = 5 \times 10^{-4}$ 里德伯，求和遍历所有壳上过程，而 $g_{\mathrm{LO}}(\boldsymbol{k}_i, \boldsymbol{p}_i)$ 通过 Wannier 插值计算。方程 16 中的球坐标积分定义为：the$\theta_{\boldsymbol{k}_m} = 0$ 方向与 $\boldsymbol{k}$ 和 $\boldsymbol{k}'$均正交。每个 $\theta_{\boldsymbol{k}_m}$ 和 $\phi_{\boldsymbol{k}_m}$ 积分均使用 200 个网格点。方程 15 中的径向积分转换为对 ϵ_{k_m} 的积分，并采用包含 120 个网格点的自适应积分范围进行计算。积分范围为 ($\epsilon_{k'} + \alpha_2\hbar\omega_0 - 6\hbar\Gamma_{k_m}, \epsilon_{k'} + \alpha_2\hbar\omega_0 + 6\hbar\Gamma_{k_m}$)，对应于以 $12\hbar\Gamma_{k_m}$ 为中心、宽度为

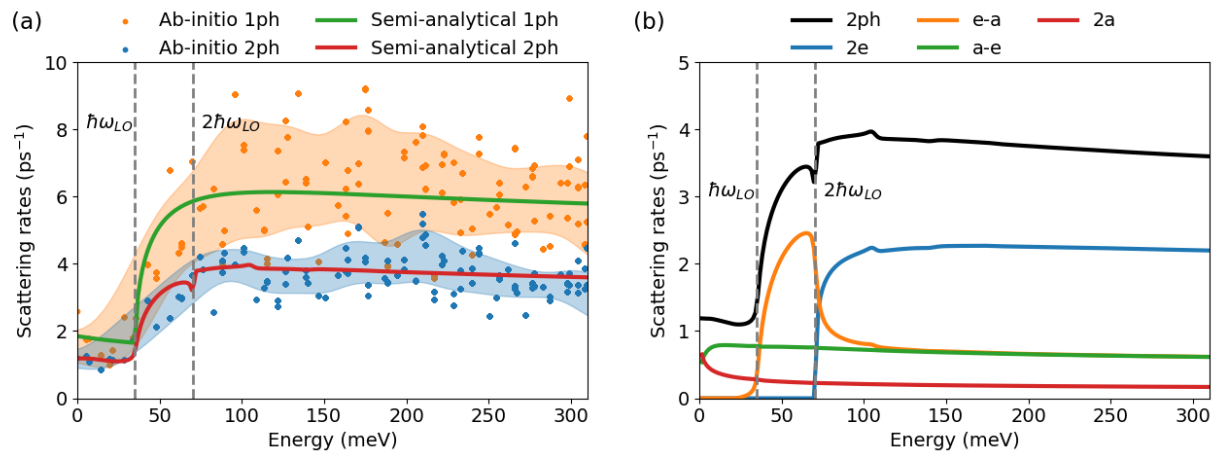

图 1: （a）通过第一性原理计算（符号和阴影区域）与半解析模型（线条）得到的 300 K 下 1ph 和 2ph Γ 谷散射率。请注意，这些散射率不包括谷间散射。由于第一性原理散射率存在变化，我们采用高斯展宽，并绘制阴影区域以表示一个标准差范围内的区域。（b）将半解析双声子散射率（黑色实线）分解为四个贡献子过程（蓝色、橙色、绿色和红色实线）。在（a）和（b）中，均绘出了表示 $\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$ 和 $2\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$ 能量的竖直虚线。

方程 15 分母中的洛伦兹函数。根据这一积分限选择估算的相对残差误差为 $1/12^2 \approx 0.7$ %。在单声子和双声子的末态积分中，方程 17 中的角向积分均采用 200 个网格点进行计算。上述所有数值积分均在均匀网格上使用中点法进行。双声子计算进行 20 次迭代，每 10 次迭代更新一次方程 14 中的干涉项。第 10 次与第 20 次迭代之间的相对差异小于 1 %，表明迭代过程已收敛。将 $\Theta(k,\ k',\ \theta_{\boldsymbol{k},\ \boldsymbol{k}'})$ 离散为$\Theta_{\boldsymbol{k}',\ \boldsymbol{k}}$，通过 scipy [34] 提供的规则网格插值完成。

IV. 结果

A. 300 K 下 Γ 谷散射率

我们首先展示图 Γ中砷化镓在 300 K 时通过第一性原理计算和半经验模型得到的单声子和双声子1a谷散射率随能量的变化。对于单声子和双声子散射率，第一性原理计算与半解析模型在定量上吻合。具体而言，我们观察到单声子和双声子散射率在 $\hbar\omega_{\mathrm{LO}} \approx 35$

毫电子伏后迅速增加，随后趋于平稳。考虑到半解析模型包含壳外过程和干涉项，而第一性原理计算忽略了这两者，半解析模型与第一性原理计算平均值之间仍能达到如此显著的一致性，令人瞩目。这种一致性部分可归因于第一性原理计算中迭代次数的限制与壳上近似之间的误差相互抵消。双声子散射率经过第三次迭代后，比收敛值高出约 9%；而壳上近似和非干涉近似则分别使散射率低估约 3% 和 5%。这些近似相互抵消，因此两种方法得以取得良好的一致性。总的来说，即使能量高达 300 毫电子伏，壳外过程对 Γ 谷内双声子散射率的贡献也很小。

第一性原理散射率与半解析散射率之间的主要差异，在于第一性原理计算中各个散射率在给定能量范围内有所变化，这是由于第一性原理计算所用的网格密度相对较低。如第IIC节所述，半解析模型采用了精细得多的网格，因此在相同能量范围内，各个散射率的变化可以忽略不计。尽管各向异性原则上也可能导致第一性原理散射率出现类似变化，但由于能带结构和电子-声子矩阵元具有高度球对称性（如第IIC节所述，约为 3%），这一贡献可以忽略。

半解析模型中的高网格密度使我们能够观察到第一性原理计算中无法分辨的散射率特征，包括前文提到的 $\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$ 处单声子和双声子散射率的快速增加，以及 $2\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$ 处一个虽小但明显的拐点（约 70 毫电子伏）。

现在我们逐一分析这些现象。对于单声子散射率，在 $\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$ 处的增加，是因为电子只有在能量高于 $\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$时才会发生 LO 声子发射。对于双声子散射率，情况更为复杂，因为双声子散射包含四个子过程（双电子过程、电子-声子吸收、声子-电子过程和双声子过程）。为更好地理解双声子散射率的特征，图1b分别绘出了这四个子过程的散射率。我们观察到，在 $\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$ 处总双声子散射率的增加，可归因于电子-声子吸收子过程，原因与单声子过程中的发射子过程类似，即电子-声子吸收子过程要求电子的能量高于 $\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$。在 $2\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$ 处的拐点

源于双电子发射速率增加与电子-声子吸收速率降低之间的抵消。双电子发射速率增加，是因为能量高于$2\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$时会发射两个 LO 声子。电子-声子吸收速率降低，则是因为式7（或式15）分母中的中间态速率增加。具体而言，对于一个满足 $\epsilon_{\boldsymbol{k}} = 2\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$的电子-声子吸收子过程，相应的中间态具有能带能量 $\epsilon_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} = \hbar\omega_{\mathrm{LO}}$，其中 $\Gamma^{(1\mathrm{ph})}$ 和 $\Gamma^{(2\mathrm{ph})}$ 均会增加，原因如上所述。实际上，中间态自能的影响会在 $\hbar\omega_{\mathrm{LO}}$的任意整数倍处引起变化，但其幅度会随能量升高而衰减，因此在高能量处无法观察到。

图 1b 中的另一个观察结果是，随着能量增加，电子-声子吸收速率与声子-电子发射速率之差渐近地减小到零。这可以通过分析方程 11 来理解。具体而言，在过程 $\boldsymbol{k}_i \to \boldsymbol{k}_m \to \boldsymbol{k}_f$ 中，态矢量的范数 k_i、 k_m、 k_f 之间的相对差异在高能量下（高于 LO 声子能量的数倍）变小，因此因子 $I^{(\alpha_1,\alpha_2)}(k$、 k'、 $\theta_{\boldsymbol{k}}$、$_{\boldsymbol{k}'})$ 对子过程类型不再敏感。因此，它们的大小完全由方程 $A_{\alpha_1}A_{\alpha_2}$中定义的声子占据因子决定，该方程为 12 ，满足 $\Gamma^{(2a)}/A_{-1}^2 = \Gamma^{(e-a)}/A_{-1}A_{+1} = \Gamma^{(a-e)}/A_{-1}A_{+1} = \Gamma^{(2e)}/A_{+1}^2$。由此关系可得 $\Gamma^{(e-a)} = \Gamma^{(a-e)}$。此外，在高能量区域，子过程速率还可得到一个共同的比值 $\Gamma^{(2a)}/\Gamma^{(e-a)} = \Gamma^{(e-a)}/\Gamma^{(2e)} = A_{-1}/A_{+1}$ 。这一关系见图 1b。

B. 300 K 下的漂移速度和电流功率谱密度

现在我们考察每个模型的输运和噪声性质。对于半解析模型的结果， Γ-Γ 散射矩阵中的块由式10 和11中的半解析模型计算得到，而 Γ-L 和 L-L 块则采用第一性原理计算的结果。图2a 和2b 分别展示了第一性原理计算和半解析模型得到的漂移速度与归一化电流功率谱密度。同时也绘出了实验测量结果以供比较。在图2a中，直到 5 $\mathrm{kVcm^{-1}}$，第一性原理计算和半解析模型对漂移速度随电场的变化给出了相近的预测结果。两者得到的低场迁移率均约为 7000 $\mathrm{cm^2V^{-1}s^{-1}}$，与约为 8000 $\mathrm{cm^2V^{-1}s^{-1}}$ 的实验值相差约 15% 以内。如第IVA节所述，第一性原理计算与半解析结果的相似性源于二者散射率的一致性。

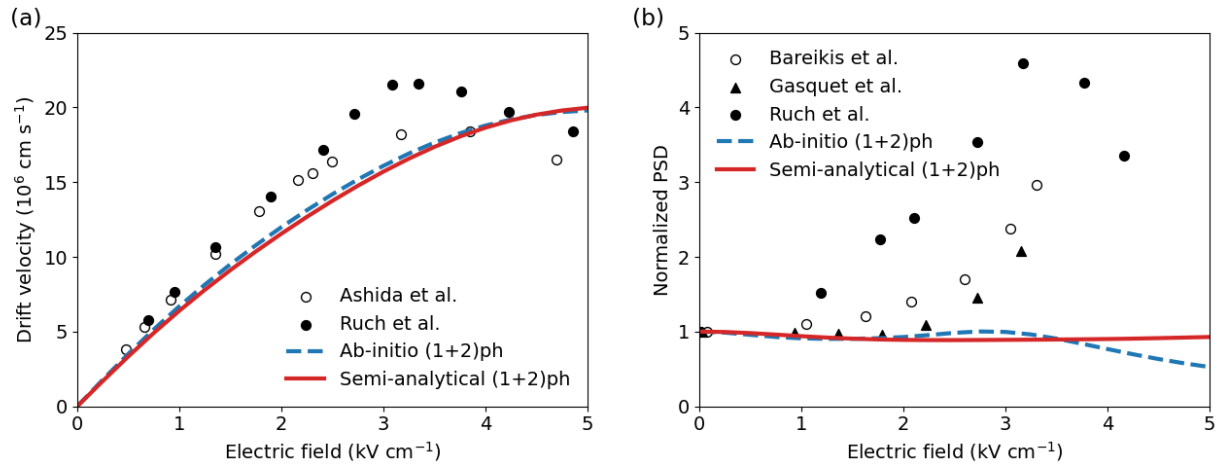

图 2：在温度为 300 K 时，通过第一性原理计算（蓝色虚线）和半解析模型（红色实线）得到的（1+2）ph 结果中，漂移速度和归一化功率谱密度随电场的变化。(a) 漂移速度随电场的变化：第一性原理计算和半解析模型在定性上与 Ruch 等人 [35]（实心圆）和 Ashida 等人 [36]（空心圆）的测量结果一致；(b) 归一化功率谱密度随电场的变化。采用两种方法计算得到的数值，与通过噪声温度和微分迁移率测量得到的结果（实心圆，参考文献 [37]；空心圆，参考文献 [38]）以及通过飞行时间实验得到的结果（三角形，参考文献 [39]）相比，均显示出一致的差异。

在图 2b中，不同实验测量得到的功率谱密度呈现出非单调变化趋势：起初下降，在负微分迁移率开始出现时附近显著上升，随后再次下降。文献 [23]解释了这一趋势的起源。然而，第一性原理计算和半解析模型均预测功率谱密度几乎不受电场影响，因此无法预测约 3 kVcm^{-1}处特征性的功率谱密度峰。

C. 低温 Γ 和 Γ-L 散射率与实验的比较

通过分析连续波发光光谱学峰的线宽，实验测得砷化镓中光激发热电子在 10 K 下的寿命。[40] 本节比较低温下第一性原理、半解析和实验的散射率。图 3a 和 3b中展示了通过第一性原理计算、半解析模型和实验获得的 Γ 和Γ-L 散射率。为便于与实验结果比较，计算在低温下进行。实验散射率和误差条由参考文献中直接报告的相应寿命和误差条换算得到，

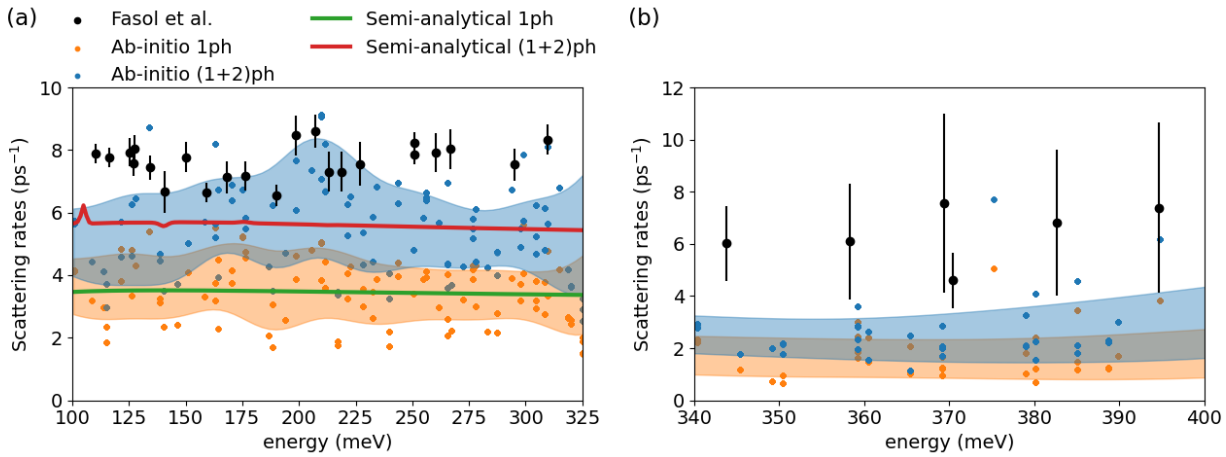

图3：实验结果（黑色符号，参考文献 40）、第一性原理单声子（橙色符号）和（1+2）声子、半解析单声子（绿色线条）和（1+2）声子结果：（a） Γ谷散射率和（b） Γ-L 谷间散射率，测量温度为氦温度。（1+2）声子计算在所有情况下都比单声子计算更符合实验结果。（1+2）声子散射率与实验结果的偏差，对于 Γ 散射率和Γ-L 谷间散射率，分别在 25% 以内和两倍以内。

。由于半解析模型仅适用于 Γ-Γ 散射，因此图 3b中仅展示实验和第一性原理结果。

图3a显示，关于 Γ谷散射的实验值和理论值在 100 毫电子伏至 325 毫电子伏之间几乎保持恒定。在此能量范围内，实验散射率约为 8 ps^{-1} ，而半解析单声子和（1+2）声子计算结果分别约为 3.5 ps^{-1} 和 6 ps^{-1}。这一结果证实，双声子散射对砷化镓中的电子散射有不可忽略的贡献。与第IVA节类似，第一性原理计算所得的散射率平均值与半解析模型在定量上吻合，但围绕平均值存在显著离散。这一观察再次表明，第一性原理计算中的近似并未导致定性偏差。

图3b展示了 Γ-L 第一性原理计算和光致发光实验的谷间散射率。根据文献40，实验结果 Γ-L 散射率是通过以下方式获得的

$$\Gamma_{\Gamma-L} = \Gamma_{\text{tot}} - \Gamma_{\Gamma-\Gamma}, \tag{19}$$

其中 $\Gamma_{\Gamma-\Gamma}$ 被视为通过拟合图3a中的数据估算得到的常数。为进行一项一

致的实验估算比较，图 Γ中的第一性原理-L 谷间散射率3b 也采用公式19 计算，而非直接由散射矩阵计算得出。结果发现，在从 340 毫电子伏到 400 毫电子伏的能量范围内，实验谷间散射率约为 6 ps^{-1} ，而第一性原理单声子和（1+2）声子分别给出约 2 ps^{-1} 和 3 ps^{-1}。尽管额外的双声子计算减小了与实验结果的偏差，但仍观察到低估了两倍。这一差异可能归因于：由于在高于 300 毫电子伏的能量下中间态散射率较大（出现在公式7和公式15的分母中），双声子计算需要大于 25 毫电子伏的壳外范围。然而，目前更大的壳外范围在计算上不可行。

五、讨论

该半解析模型处理了完整的 Γ 谷内双声子散射项，但并未定性改变输运和噪声性质。特别是，与实验结果功率谱密度之间的显著差异依然存在。现在，我们来考察这种差异可能的其他成因。

A. 低估的 Γ-L 谷间散射率

将我们计算得到的低温散射率与光致发光实验测得的结果进行比较后发现， Γ散射率的误差在 25% 以内，但 Γ-L 谷间散射率被低估了约一倍。尽管存在这一低估，先前研究表明，这种影响不太可能弥合功率谱密度差异。具体而言，针对砷化镓中电子输运、采用三谷 Γ-L-X 模型的蒙特卡罗模拟发现，增强的谷间散射会抑制功率谱密度特征（见参考文献 [41] 的图 7）。因此，尽管目前无法明确排除这种可能性，但预计纳入此前尚未考虑的谷间散射过程，不会改善与功率谱密度的吻合程度。

B. 同时电子-双声子相互作用的贡献 **n**

根据参考文献23，另一种可能性是没有考虑电子-双声子（e-2ph）相互作用的贡献 [42] 。在此，我们根据弗¨里赫机制，对这种影响的大小进行定性估算。根据参考文献 42，二阶电子-声子哈密顿量可写为

$$H_{\text{e-ph}} = \sum_{\boldsymbol{R}\kappa} \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{R}\kappa} \cdot \nabla V(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R}_\kappa) + \frac{1}{2} \sum_{\kappa} \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{R}\kappa} \cdot \nabla\nabla V(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R}_\kappa) \cdot \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{R}\kappa}, \tag{20}$$

其中， κ 是晶胞中原子的索引， $\boldsymbol{R}$ 是晶胞位置， $\boldsymbol{u}_{\boldsymbol{R}\kappa}$ 是相应的声子诱导位移， V 是电子势。在长波长极限下，通过为每个原子 [27]赋予一个点偶极子，可以得到 Fr¨ohlich 相互作用的电势。对于同一晶胞中原子位移相同的声学声子，净偶极矩为零，因此不会发生散射。类似地，通过为每个原子赋予一个点四极子，可以得到电子-双声子相互作用的电势。依照同样的逻辑，如果四极子由两个声学声子或两个光学声子诱导，则净四极矩为零。这意味着，基于 Fr¨ohlich 相互作用的同时电子-双声子相互作用只能由一个声学声子和一个光学声子诱导。

我们估算了这种同时涉及一个声学声子和一个光学声子的同时电子-双声子相互作用的数量级。完整的推导见附录。 Γ 谷中的最终估算散射率为

$$\Gamma^{(\text{e}-2\text{ph})}(k) \sim \frac{8\pi^2}{\Omega_{\text{BZ}}\hbar} \frac{k^3}{\epsilon_k} \left(\frac{eZ}{\Omega\epsilon_\infty} \sqrt{\frac{\hbar}{2M\omega_{\text{A}}}} \sqrt{\frac{\hbar}{2M\omega_{\text{O}}}} \right)^2 (N_{\text{A}} + 1)(N_{\text{O}} + 1), \tag{21}$$

其中， ω_{O} 和 ω_{A} 分别是布里渊区边界处光学声子和声学声子的频率， N_{O} 和 N_{A} 是相应的声子占据数，Ω_{BZ} 是布里渊区体积， M 是晶胞中的平均原子质量， ϵ_∞ 是高频介电常数， Z 是单个原子的玻恩有效电荷。对于典型的 k ，当 $\epsilon_k = 200$ 毫电子伏时，300 K 下的电子-双声子散射率可估算为 $10^{-2.5}$ ps^{-1}，这比本研究得到的第一性原理或半解析双声子散射率小约 3.5 个数量级。因此，我们得出结论，基于

Fr¨ohlich 相互作用的同时电子-双声子相互作用可以忽略。

C. 空间电荷畴与实验非理想因素

最后，我们考虑一种解释功率谱密度峰的替代机制，它并非完全依赖谷间散射。对砷化镓负微分电阻的早期研究，源于人们观察到电场接近约 3 kVcm 的阈值时出现了电流不稳定性[−1]。 [43] 这些不稳定性被归因于与负微分电阻相关的空间电荷畴形成。通常用于从第一性原理描述电荷输运的玻尔兹曼形式，并不会计入此类效应，因为它忽略了对不稳定性至关重要的实空间梯度和空间电荷效应。

空间电荷不稳定性表现为电流涨落，因此空间电荷畴的成核或可解释阈值电场附近的功率谱密度峰。然而，这种解释存在一处矛盾：如图2所示，功率谱密度的上升始于低于负微分电阻阈值的电场。考虑到局部电场可能超过阈值、而平均电场却未超过，这一矛盾便可得到解释。McCumber 和 Chynoweth[44], 从理论上研究了这种可能性，发现偶极层生成过程对不均匀性十分敏感，例如纯随机泊松统计所导致的掺杂涨落。研究发现，即使平均均匀电场低于根据速度-电场特性确定的名义阈值电场，偶极层仍会传播。

这些考量支持这样一种解释：功率谱密度峰源于局部电场超过负微分电阻空间电荷畴形成的阈值电场后所产生的不稳定性。这一发现对利用输运研究确定谷间散射强度具有重要意义。具体而言，数十年来，研究人员一直使用蒙特卡罗方法，通过解读砷化镓中的输运和噪声测量来实现这一目的；在这些模拟中，噪声被假定完全由谷间散射引起。我们的结果表明，这种研究谷间散射的方法并不成立，因为噪声的物理起源与模型中的假设不同。因此，应采用光致发光方法直接测定电子寿命，例如参考文献 [40]所述的方法。

VI. 结论

我们提出了一种用于砷化镓中电子的单声子和双声子 Γ 谷内散射的半解析模型，使得在处理双声子项时可免除先前对 Γ 散射所作的近似，而误差仅为几个百分点。我们发现，计算得到的输运和噪声性质与第一性原理值在定性上没有差异。计算所得的漂移速度与实验值相差不超过 15%；对于 Γ 谷散射率，计算结果与测得的低温散射率相差不超过 25%，而对于 Γ-L 谷间散射，误差为两倍。不过，半解析模型并未改善功率谱密度方面的定性差异。综合这些观察结果和先前的研究，我们得出结论：功率谱密度峰源于空间电荷畴形成，而非如数十年来普遍认为的、与谷间散射相关的分配噪声。这一结果表明，在将输运和电噪声测量结果归因于谷间散射时必须谨慎。我们的研究结果凸显了通过第一性原理处理高场电荷输运和噪声性质所能获得的电荷输运见解。

VII. 致谢

本研究得到美国空军科学研究办公室通过资助编号 FA9550-19-1-0321 的支持。作者感谢 P. Cheng、B. Hatanp¨a¨a、D. Catherall、S-N. Sun 和 T. Esho 提供的宝贵讨论。

---

[1] 施敏和吴国坤，半导体器件物理，第3版（约翰·威立父子公司，2007年）。[2] M. Lundstrom，载流子输运基础（剑桥大学出版社，剑桥，2000年）。[3] H.L. Hartnagel、R. Katilius 和 A. Matulionis，半导体器件中的微波噪声（约翰·威立父子公司，纽约，2001年）第8章。[4] Carlo Jacoboni 和 Lino Reggiani，“蒙特卡罗方法在半导体电荷输运求解中的应用及其在共价材料中的应用”，《现代物理评论》**55**，645–705

(1983).[5] Karl Hess 编，《蒙特卡罗器件仿真：全能带及更广领域》，施普林格工程与计算机科学国际丛书，第144卷（Springer Science +Business Media, LLC，1991）。[6] M.V. Fischetti，“金刚石和闪锌矿结构的重要技术半导体中输运的蒙特卡罗模拟。I. 均匀输运”，IEEE电子器件汇刊 38，634–649（1991）。[7] M.V. Fischetti 和 S.E. Laux，“金刚石和闪锌矿结构的重要技术半导体中输运的蒙特卡罗模拟。II. 亚微米 MOSFET”，IEEE电子器件汇刊 38，650–660（1991）。[8] M. Bernardi，“电子和声子第一性原理动力学”，《欧洲物理学杂志B辑》89（2016），10.1140/epjb/e2016-70399-4。[9] Feliciano Giustino，“基于第一性原理的电子-声子相互作用”，《现代物理评论》89，015003（2017）。[10] O. D. Restrepo、K. Varga 和 S. T. Pantelides，“硅中电子迁移率的第一性原理计算：声子散射和库仑散射”，《应用物理快报》94，212103（2009）。[11] Samuel Ponc´e、Elena R. Margine 和 Feliciano Giustino，“迈向半导体中声子限制载流子迁移率的可预测多体计算”，《物理评论B辑》97，121201（2018）。[12] Samuel Ponc´e、Debdeep Jena 和 Feliciano Giustino，“通过晶场分裂反转实现氮化镓高空穴迁移率的途径”，《物理评论快报》123，096602（2019）。[13] Jin-Jian Zhou 和 Marco Bernardi，“砷化镓中的从头算电子迁移率和极性声子散射”，《物理评论B辑》94，201201（2016）。[14] K. M. Borysenko、J. T. Mullen、E. A. Barry、S. Paul、Y. G. Semenov、J. M. Zavada、M. Buongiorno Nardelli 和 K. W. Kim，“石墨烯中电子-声子相互作用的第一性原理分析”，《物理评论B辑》81，121412（2010）。[15] Kristen Kaasbjerg、Kristian S. Thygesen 和 Karsten W. Jacobsen，“从第一性原理研究 n型单层 mos_2 中的声子限制迁移率”，《物理评论B辑》85，115317（2012）。[16] Long Cheng、Chenmu Zhang 和 Yuanyue Liu，“为什么二维半导体通常具有较低的电子迁移率”，《物理评论快报》125，177701（2020）。

[17] Nien-En Lee、Jin-Jian Zhou、Hsiao-Yi Chen 和 Marco Bernardi, 《基于次领先阶微扰理论的砷化镓第一性原理电子-双声子散射》, 《自然·通讯》11，1607（2020）。[18] Guillaume Brunin、Henrique Pereira Coutada Miranda、Matteo Giantomassi、Miquel Royo、Massimiliano Stengel、Matthieu J. Verstraete、Xavier Gonze、Gian-Marco Rignanese 和 Geoffroy Hautier, 《超越 Fr¨ohlich 的电子-声子相互作用：极性和共价固体中的动态四极矩》, 《物理评论快报》125，136601（2020）。[19] Jinsoo Park、Jin-Jian Zhou、Vatsal A. Jhalani、Cyrus E. Dreyer 和 Marco Bernardi, 《基于第一性原理的长程四极电子-声子相互作用》, 《物理评论B辑》102，125203（2020）。[20] Zhenglu Li、Gabriel Antonius、Meng Wu、Felipe H. da Jornada 和 Steven G. Louie, 《基于 gw 方法的从头算线性响应理论电子-声子耦合：ba$_{1-x}$k$_x$bio$_3$,中的关联增强相互作用与超导性》, 《物理评论快报》122，186402（2019）。[21] Benjamin Hatanp¨a¨a、Alexander Y Choi、Peishi S Cheng 和 Austin J Minnich, 《非极性半导体中的双声子散射：热电子输运的第一性原理研究》, arXiv 预印本 arXiv:2207.11376（2022）。[22] Alexander Y. Choi、Peishi S. Cheng、Benjamin Hatanp¨a¨a 和 Austin J. Minnich, 《基于第一性原理的半导体热电子噪声》, 《物理评论材料》5，044603（2021）。[23] Peishi S Cheng、Shi-Ning Sun、Alexander Y Choi 和 Austin J Minnich, 《基于第一性原理的砷化镓高场输运与热电子噪声：双声子散射的作用》, arXiv 预印本 arXiv:2201.11912（2022）。[24] David S Catherall 和 Austin J Minnich, 《基于第一性原理的 p型硅高场电荷输运与噪声》, 《物理评论B辑》107，035201（2023）。[25] Chihiro Hamaguchi 和 C Hamaguchi, 《基础半导体物理学》, 第9卷（施普林格，2010）。[26] A. Rustagi 和 C. J. Stanton, 《类石墨烯系统的热电子噪声性质》, 《物理评论B辑》90，245424（2014）。[27] Carla Verdi 和 Feliciano Giustino, 《基于第一性原理的 Fr¨ohlich 电子-声子顶角》, 《物理评论快报》115，176401（2015）。

[28] Evan O Kane, 《锑化铟的能带结构》, 《固体物理与化学杂志》1，249–261（1957）。[29] Herbert Fr¨ohlich, 《晶格场中的电子》, 《物理学进展》3，325–361（1954）。[30] Paolo Giannozzi、Stefano Baroni、Nicola Bonini、Matteo Calandra、Roberto Car、Carlo Cavaz- zoni、Davide Ceresoli、Guido L Chiarotti、Matteo Cococcioni、Ismaila Dabo、Andrea Dal Corso、Stefano de Gironcoli、Stefano Fabris、Guido Fratesi、Ralph Gebauer、Uwe Gerstmann、Christos Gougoussis、Anton Kokalj、Michele Lazzeri、Layla Martin-Samos、Nicola Marzari、Francesco Mauri、Riccardo Mazzarello、Stefano Paolini、Alfredo Pasquarello、Lorenzo Paulatto、Carlo Sbraccia、Sandro Scandolo、Gabriele Sclauzero、Ari P Seitsonen、Alexander Smogunov、Paolo Umari 和 Renata M Wentzcovitch, 《QUANTUM ESPRESSO：用于材料量子模拟的模块化开源软件项目》, 《物理学杂志：凝聚态》21，395502（2009）。[31] P Giannozzi、O Andreussi、T Brumme、O Bunau、M Buongiorno Nardelli、M Calandra、R Car、C Cavazzoni、D Ceresoli、M Cococcioni、N Colonna、I Carnimeo、A Dal Corso、S de Gironcoli、P Delugas、R A DiStasio、A Ferretti、A Floris、G Fratesi、G Fugallo、R Gebauer、U Gerstmann、F Giustino、T Gorni、J Jia、M Kawamura、H-Y Ko、A Kokalj、E K¨u¸c¨ukbenli、M Lazzeri、M Marsili、N Marzari、F Mauri、N L Nguyen、H-V Nguyen、A Otero de-la Roza、L Paulatto、S Ponc´e、D Rocca、R Sabatini、B Santra、M Schlipf、A P Seitsonen、A Smogunov、I Timrov、T Thonhauser、P Umari、N Vast、X Wu 和 S Baroni, 《借助 QUANTUM ESPRESSO 进行材料建模的高级功能》, 《物理学杂志：凝聚态》29，465901（2017）。[32] E. M. Conwell 和 M. O. Vassell, 《n型砷化镓中的高场输运》, 《物理评论》166，797–821（1968）。[33] Jin-Jian Zhou、Jinsoo Park、I-Te Lu、Ivan Maliyov、Xiao Tong 和 Marco Bernardi, 《Perturbo：用于第一性原理电子-声子相互作用、电荷输运和超快动力学的软件包》, 《计算机物理通讯》264，107970（2021）。[34] Pauli Virtanen、Ralf Gommers、Travis E. Oliphant、Matt Haberland、Tyler Reddy、David Cournapeau、Evgeni Burovski、Pearu Peterson、Warren Weckesser、Jonathan Bright、St´efan J. van der Walt、Matthew Brett、Joshua Wilson、K. Jarrod Millman、Nikolay Mayorov、Andrew˙R. J. Nelson、Eric Jones、Robert Kern、Eric Larson、C J Carey、Ilhan Polat、Yu Feng、Eric W. Moore、Jake VanderPlas、Denis Laxalde、Josef Perktold、Robert Cimrman、Ian Henriksen,

E. A. Quintero, Charles R. Harris, Anne M. Archibald, Antˆonio H. Ribeiro, Fabian Pedregosa, Paul van Mulbregt, 和 SciPy 1.0 贡献者，“SciPy 1.0：Python 科学计算的基础算法”，《自然·方法》17，261–272（2020）。[35] J. G. Ruch 和 G. S. Kino，“砷化镓速度-电场特性的测量”，《应用物理快报》10，40–42（1967）。[36] Kazumi Ashida、Masataka Inoue、Junji Shirafuji 和 Yoshio Inuishi，“砷化镓中热电子的能量弛豫效应”，《日本物理学会誌》37，408–414（1974）。[37] D. Gasquet、M. de Murcia、J.P. Nougier 和 C. Gontrand，“300 K 下砷化镓中热电子的输运参数”，Physica B+C 134，264–268（1985）。[38] V. Bareikis、V. Viktoravicius、A. Galdikas 和 R. Miliusyte，“砷化镓三能谷模型中 Γ 谷与 l 谷之间的微波噪声及耦合常数”，《苏联半导体物理》14，847–849（1980）。[39] J. G. Ruch 和 G. S. Kino，“砷化镓的输运性质”，《物理评论》174，921–931（1968）。[40] G. Fasol、W. Hackenberg、H. P. Hughes、K. Ploog、E. Bauser 和 H. Kano，“砷化镓中飞秒载流子散射的连续波光谱学”，《物理评论B辑》41，1461–1478（1990）。[41] J Poˇzela 和 A Reklaitis，“高电场下砷化镓中的电子输运性质”，Solid-State Electronics 23，927–933（1980）。[42] P. Kocevar，“多声子散射”，载于《半导体中的非线性输运物理》，David K. Ferry、J. R. Barker 和 C. Jacoboni 编（Springer US，波士顿，MA，1980），第167–174页。[43] J. B. Gunn，“III–V族半导体中的电流不稳定性”，《IBM研究与发展杂志》8，141–159（1964）。[44] D.E. McCumber 和 A.G. Chynoweth，“‘双能谷’半导体中负电导放大和冈恩不稳定性的理论”，IEEE电子器件汇刊 ED-13，4–21（1966）。

附录 x：同时电子-双声子散射率的推导

我们推导了第 VB 节中给出的同时发生的电子-双声子散射率的估算方法。考虑一种晶体，其中每个原胞包含带电荷 Z_κ、位于 $\boldsymbol{\tau}_\kappa$处的原子， $\boldsymbol{R}$ 是晶格矢量，而 $\boldsymbol{G}$ 是倒易晶格常数。晶格位移 $u_{\boldsymbol{R}\kappa}$ 可用正则模分解为：

$$u_{\boldsymbol{R}\kappa} = \sum_{\boldsymbol{q}\nu} \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}\kappa\nu} e^{i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{R}}, \tag{A.1}$$

其中

$$\boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}\kappa\nu} = \sqrt{\frac{\hbar}{2NM_\kappa\omega_{\boldsymbol{q}\nu}}}\boldsymbol{e}_{\boldsymbol{q}\kappa\nu}(b^\dagger_{\boldsymbol{q}\nu} + b_{-\boldsymbol{q}\nu}), \tag{A.2}$$

N 是超胞中的晶胞数， M_κ 是原子 κ的质量， ν 是声子模， $\boldsymbol{e}_{\boldsymbol{q}\kappa\nu}$是声子极化单位矢量，$b^\dagger_{\boldsymbol{q}\nu}$， $and b_{\boldsymbol{q}\nu}$分别是声子 $\boldsymbol{q}\nu$的产生算符和湮灭算符。

点电荷 Z 在位置$\boldsymbol{R}_\kappa = \boldsymbol{R} + \boldsymbol{\tau}_\kappa$ 产生的电子库仑势能为

$$V(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R} - \boldsymbol{\tau}_\kappa) = -\frac{Z_\kappa e^2}{4\pi\epsilon_\infty|\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R} - \boldsymbol{\tau}_\kappa|}. \tag{A.3}$$

为方便起见　　将 $V(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{R}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)$ 改写为倒易空间中的傅里叶变换　　：

$$V(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R} - \boldsymbol{\tau}_\kappa) = -\frac{1}{N\Omega}Z_\kappa\sum_{\boldsymbol{q}}\sum_{\boldsymbol{G}} V(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{G})e^{i(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{G})\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{R}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)}, \tag{A.4}$$

其中 Ω 为原胞体积，且

$$V(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{G}) = \frac{e^2}{\epsilon_\infty(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{G})^2}. \tag{A.5}$$

根据参考文献 42，电子-双声子哈密顿量为

$$H(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{2}\sum_{\boldsymbol{R}\kappa} \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{R}\kappa}\cdot\nabla\nabla V(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R} - \boldsymbol{\tau}_\kappa)\cdot\boldsymbol{u}_{\boldsymbol{R}\kappa}. \tag{A.6}$$

由方程A.4，我们可以得到

$$\nabla\nabla V(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{R}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)=Z_\kappa(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G})(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G})\sum_{\boldsymbol{k}}\sum_{\boldsymbol{G}}V(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G})e^{i(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G})\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{R}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)}, \tag{A.7}$$

其中，本式及后续公式中的向量乘积定义为外积。利用公式 A.1 和公式 A.7，可得

$$\begin{aligned}
H(\boldsymbol{r}) &= \frac{1}{2\Omega}\sum_{\boldsymbol{R}\kappa} Z_\kappa \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{R}\kappa}\cdot\nabla\nabla V(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{R}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)\cdot\boldsymbol{u}_{\boldsymbol{R}\kappa} \\
&= \frac{1}{N\Omega}\sum_{\boldsymbol{R}\kappa}\sum_{\boldsymbol{q}\nu<\boldsymbol{q}'\nu'} Z_\kappa \sum_{\boldsymbol{k}}\sum_{\boldsymbol{G}} \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}\kappa\nu}\cdot(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G})\boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}'\kappa\nu'}\cdot(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G})V(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G})e^{i(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}')\cdot\boldsymbol{R}}e^{i(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G})\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{R}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)} \\
&= \frac{1}{N\Omega}\sum_{\boldsymbol{G}\kappa}\sum_{\boldsymbol{q}\nu<\boldsymbol{q}'\nu'} Z_\kappa \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}\kappa\nu}\cdot(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})\boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}'\kappa\nu'}\cdot(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})V(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})e^{i(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)} \\
&= \frac{e^2}{\Omega\epsilon_\infty}\sum_{\boldsymbol{G}\kappa}\sum_{\boldsymbol{q}\nu<\boldsymbol{q}'\nu'} Z_\kappa \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}\kappa\nu}\cdot\frac{(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})}{|(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})|^2}\cdot\boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}'\kappa\nu'}e^{i(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)} \\
&\sim \frac{e^2}{\Omega\epsilon_\infty}\sum_{\boldsymbol{G}\kappa}\sum_{\boldsymbol{q}\nu<\boldsymbol{q}'\nu'} Z_\kappa u_{\boldsymbol{q}\kappa\nu}u_{\boldsymbol{q}'\kappa\nu'}e^{i(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)}(b^\dagger_{\boldsymbol{q}\nu}+b_{-\boldsymbol{q}\nu})(b^\dagger_{\boldsymbol{q}'\nu'}+b_{-\boldsymbol{q}'\nu'}) \\
&\sim \frac{e^2}{\Omega\epsilon_\infty}\sum_{\boldsymbol{q}\nu<\boldsymbol{q}'\nu'}\sum_{\kappa} Z_\kappa u_{\boldsymbol{q}\kappa\nu}u_{\boldsymbol{q}'\kappa\nu'}e^{i(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}')\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{\tau}_\kappa)}(b^\dagger_{\boldsymbol{q}\nu}+b_{-\boldsymbol{q}\nu})(b^\dagger_{\boldsymbol{q}'\nu'}+b_{-\boldsymbol{q}'\nu'})
\end{aligned} \tag{A.8}$$

其中 $u_{\boldsymbol{q}\kappa\nu}=\sqrt{\hbar/2M_\kappa\omega_q}$ 是声子位移的振幅，

$$\sum_{\boldsymbol{R}} e^{i(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'-\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G})\cdot\boldsymbol{R}}=N\delta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'} \tag{A.9}$$

在第三行中使用了，

$$\frac{(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})}{|(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'+\boldsymbol{G})|^2}\sim 1 \tag{A.10}$$

在第四行中使用了，并且在最后一行中，$\boldsymbol{G}\neq 0$ 对 $\sum_{\boldsymbol{G}}$ 的贡献被忽略。

我们注意到，四极矩$\sum_\kappa Z_\kappa \boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}\kappa\nu}\boldsymbol{u}_{\boldsymbol{q}'\kappa\nu'}$出现在公式A.8的第三行。对于砷化镓这类极性材料，每个晶胞都含有两个电荷相反、质量相近的原子，因此我们可以对四极矩进行 $\mathbb{Z}_2$ 对称性分析。由于 Z_κ 对于晶胞中的两个原子具有奇对称性，声子模必须是

一个具有奇对称性的（光学模），另一个具有偶对称性的（声学模），以避免相互抵消。

电子-声子散射矩阵元可写为

$$g^{(2)}_{\nu\nu'}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{p}) \sim \frac{Z_\kappa e^2}{\Omega\epsilon_\infty} u_{\boldsymbol{q}\kappa\nu} u_{\boldsymbol{p}\kappa\nu'}, \tag{A.11}$$

其中忽略了相位因子。

类似于方程 11 和方程 13，我们可以推导出特定声子模式和子过程类型对应的电子-双声子碰撞矩阵元：

$$\Theta_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} \sim \frac{2\pi}{\hbar}\frac{1}{\Omega_{\mathrm{BZ}}^2}\delta(\epsilon_{k'} - \epsilon_k - \Delta E)\int_{\boldsymbol{q}+\boldsymbol{p}=\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k}} N_q N_p \left|g^{(2)}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{p})\right|^2 d^3\boldsymbol{p}. \tag{A.12}$$

下文假设声子 $\boldsymbol{q}$ 为光学声子，声子 $\boldsymbol{p}$ 为声学声子。此外，我们假设光学声子没有色散，而声学声子具有速度为 s 的线性色散，即：

$$\begin{aligned} \omega_q &= \omega_{\mathrm{O}} \\ \omega_p &\sim sp \sim \frac{p}{k_{\max}}\omega_{\mathrm{A}}, \end{aligned} \tag{A.13}$$

其中，ω_{O} 和 ω_{A} 分别是布里渊区边缘处光学声子和声学声子的频率。由于此处布里渊区边缘处横向声子和纵向声子的频率大小相同，我们忽略二者之间的差异。利用上述假设的声子色散关系，可得

$$\begin{aligned} N_q &\sim N(\omega_{\mathrm{O}}) \\ N_p &\sim N(\omega_{\mathrm{A}})\frac{N(\omega_p)}{N(\omega_A)} \sim N(\omega_{\mathrm{A}})\frac{\omega_A}{\omega_p} \sim N(\omega_{\mathrm{A}})\frac{k_{\max}}{p}, \end{aligned} \tag{A.14}$$

其中，在第二行中，我们假设温度不太低，即 $\beta\hbar\omega < 1$或 $\beta\hbar\omega \sim 1$，因此 $N(\omega) = \frac{1}{e^{\beta\hbar\omega}-1} \sim \frac{1}{\beta\hbar\omega}$，而 $k_{\max}$是布里渊区边缘处的波矢。

类似地，我们有

$$g^{(2)}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{p}) \sim g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\sqrt{\frac{k_{\max}}{p}}, \tag{A.15}$$

其中

$$g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})=\frac{eZ}{\Omega\epsilon}\sqrt{\frac{\hbar}{2M\omega_{\mathrm{A}}}}\sqrt{\frac{\hbar}{2M\omega_{\mathrm{O}}}}. \tag{A.16}$$

随后我们可以根据式$\Theta_{\boldsymbol{k}',\,\boldsymbol{k}}$从式A.12计算

$$\begin{aligned}\Theta_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}}&\sim\frac{2\pi}{\hbar}\frac{1}{\Omega_{\mathrm{BZ}}^2}\left|g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\right|^2\delta(\epsilon_{k'}-\epsilon_k-\Delta E)A_{\alpha_1}(\omega_{\mathrm{O}})A_{\alpha_2}(\omega_{\mathrm{A}})\int\left(\frac{k_{\max}}{p}\right)^2d^3\boldsymbol{p}\\&\sim\frac{2\pi}{\hbar}\frac{1}{\Omega_{\mathrm{BZ}}^2}\left|g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\right|^2\delta(\epsilon_{k'}-\epsilon_k-\Delta E)A_{\alpha_1}(\omega_{\mathrm{O}})A_{\alpha_2}(\omega_{\mathrm{A}})\Omega_{\mathrm{BZ}}\\&=\frac{2\pi}{\hbar}\frac{1}{\Omega_{\mathrm{BZ}}}\left|g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\right|^2\delta(\epsilon_{k'}-\epsilon_k-\Delta E)A_{\alpha_1}(\omega_{\mathrm{O}})A_{\alpha_2}(\omega_{\mathrm{A}}),\end{aligned} \tag{A.17}$$

其中，Ω_{BZ} 为布里渊区体积，$\alpha_{1,\,2}$ 表示声子是被吸收还是发射，并且

$$A_\alpha(\omega)=N(\omega)+\delta_{\alpha,+1}. \tag{A.18}$$

散射率可通过对$\Theta_{\boldsymbol{k}',\,\boldsymbol{k}}$关于 $\boldsymbol{k}'$进行积分来计算：

$$\begin{aligned}\Gamma_k&=\int\Theta_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}}d^3\boldsymbol{k}'\\&\sim\int\frac{2\pi}{\hbar}\frac{1}{\Omega_{\mathrm{BZ}}}\left|g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\right|^2\delta(\epsilon_{k'}-\epsilon_k-\Delta E)A_{\alpha_1}(\omega_{\mathrm{O}})A_{\alpha_2}(\omega_{\mathrm{A}})4\pi k'^2dk'\\&=\frac{8\pi^2}{\hbar\Omega_{\mathrm{BZ}}}\left|g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\right|^2A_{\alpha_1}(\omega_{\mathrm{O}})A_{\alpha_2}(\omega_{\mathrm{A}})k'^2\frac{dk'}{d\epsilon_{k'}}\\&\sim\frac{8\pi^2}{\hbar\Omega_{\mathrm{BZ}}}\left|g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\right|^2A_{\alpha_1}(\omega_{\mathrm{O}})A_{\alpha_2}(\omega_{\mathrm{A}})\frac{k^3}{\epsilon_k}\\&\sim\frac{8\pi^2}{\hbar}(\frac{k}{k_{\max}})^3\left|g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\right|^2A_{\alpha_1}(\omega_{\mathrm{O}})A_{\alpha_2}(\omega_{\mathrm{A}})\frac{1}{\epsilon_k}\end{aligned} \tag{A.19}$$

其中，假设 $k'\sim k$，因为声子能量（$\leq$ 35 毫电子伏）相较于我们所考虑的能量范围（$\sim$ 200 毫电子伏）较低。

考虑温度为 $\sim$ 300K、能量约为 200 毫电子伏的砷化镓（对应于 $\frac{k}{k_{\max}}\sim0.05$，我们有：

$$\begin{aligned}A_{\alpha_1}(\omega_{\mathrm{O}})\sim A_{\alpha_2}(\omega_{\mathrm{A}})&\sim1\\\left(\frac{k}{k_{\max}}\right)^3&\sim0.05^3\sim10^{-4}\\\epsilon_k&\sim0.2\mathrm{eV}\sim10^{-2}\mathrm{Ry}\\\left|g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\right|^2&\sim10^{-4}\mathrm{Ry}\end{aligned} \tag{A.20}$$

Thus

$$\Gamma_k \sim \frac{8\pi^2}{\hbar}\left(\frac{k}{k_{\max}}\right)^3 \left|g^{(2)}(k_{\max},k_{\max})\right|^2 A_{\alpha_1}(\omega_{\mathrm{O}})A_{\alpha_2}(\omega_{\mathrm{A}})\frac{1}{\epsilon_k} \sim 10^{-8}\mathrm{Ry} \sim 10^{-4}\mathrm{ps}^{-1} \quad \text{(A.21)}$$

考虑 3×3 种声子极化和 2×2 种子过程类型，总散射率约为 $\Gamma_k^{(\mathrm{total})} \sim 36\Gamma_k \sim 10^{-2.5}\mathrm{ps}^{-1}$，比本文研究的双声子散射率低约 3.5 个数量级。