ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ ВЕЩЕСТВА

УДК 621.315.592

ОСОБЕННОСТИ ЧАСТОТНОЙ ЗАВИСИМОСТИ НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЙ БЕСФОНОННОЙ ПРОВОДИМОСТИ НЕУПОРЯДОЧЕННЫХ СИСТЕМ

И. П. Звягин, М. А. Ормонт

(*кафедра физики полупроводников*)

E-mail: ormont@phys.msu.ru

В рамках парного приближения рассмотрена частотная зависимость резонансной бесфононной прыжковой проводимости неупорядоченных систем с точечными центрами локализации в пределе низких температур. Показано, что существующая теория, предсказывающая степенную частотную зависимость низкочастотной бесфононной прыжковой проводимости $\sigma(\omega)$ и переход от линейной к квадратичной зависимости (кроссовер) при повышении частоты, может стать неприменимой, а квадратичная частотная зависимость может вообще не проявляться.

Введение

Измерения низкочастотной проводимости неупорядоченных материалов служат одним из важных методов исследования таких материалов и, в частности, позволяют получить информацию о механизме переноса заряда. Во многих подобных материалах (аморфных и легированных полупроводниках, полупроводниковых стеклах, проводящих полимерах, гранулированных проводниках и т. п.) частотная зависимость вещественной части проводимости описывается степенным законом

$$\sigma = A\omega^s, \tag{1}$$

где A — постоянная, а показатель степени s часто лежит в интервале $0 < s \leqslant 1$ (свойство универсальности, см. [1, 2]). Зависимость (1) указывает на то, что механизм проводимости является прыжковым. Однако универсальность частотной зависимости проводимости существенно затрудняет определение характеристик материала из измерений проводимости на переменном токе, и важную роль приобретает исследование отклонений от универсальности и установление их связи с особенностями механизма переноса и со структурными особенностями материала.

Степенная зависимость проводимости (1) с $s \approx 1$ обычно связывается с прыжковой проводимостью с участием фононов в условиях, когда характерная длина прыжка уменьшается с ростом частоты, оставаясь при этом существенно больше радиуса локализации состояний [3]. Аналогичная частотная зависимость получается при низких частотах и в случае бесфононной (резонансной) прыжковой проводимости при учете кулоновской корреляции локализованных носителей, попадающих на пары центров, переходы между которыми и определяют проводимость [4]. Существующая теория справедлива для частот, в которой $\omega < \omega_c$, где

$$\omega_c = 2I_0/\hbar, \tag{2}$$

а I_0 — предэкспоненциальный множитель в выражении для резонансного интеграла. В области частот, при которых энергия $\hbar\omega$ становится больше, чем энергия кулоновского взаимодействия между электронами пар, теория бесфононной проводимости предсказывает переход частотной зависимости проводимости от линейной ($s \approx 1$) к квадратичной ($s \approx 2$). Подобный переход действительно наблюдался при возрастании частоты (в области около 1 ТГц) в легированном кремнии в окрестности перехода металл–изолятор [5, 6] и в металлических нанокомпозитах [7]. В настоящей работе рассмотрен вопрос об отклонениях от «универсальной» зависимости (1), связанных с особенностями частотной зависимости бесфононной прыжковой проводимости в области частот $\omega \sim \omega_c$, в которой длина прыжка становится сравнимой с радиусом локализации.

Модель

Рассмотрим систему точечных локальных центров, которые случайным образом расположены в пространстве, а «затравочные» энергии локализованных состояний, отвечающие изолированным центрам, случайны. В парном приближении выражение для вещественной части бесфононной проводимости имеет вид (см., напр., [2])

$$\sigma(\omega) = \frac{\pi e^2 \omega}{\Omega} \sum_{\substack{\{\lambda,\lambda'\} \\ \lambda \neq \lambda'}} \left|\langle\lambda|(\boldsymbol{n},\boldsymbol{r})|\lambda'\rangle\right|^2 \times \\ \times \left(n_F(\varepsilon_\lambda) - n_F(\varepsilon_{\lambda'})\right) \delta(\varepsilon_\lambda - \varepsilon_{\lambda'} + \hbar\omega). \tag{3}$$

Здесь суммирование ведется по парам $\{\lambda, \lambda'\}$ центров, $\varepsilon_\lambda, \varepsilon_{\lambda'}$ — энергии локализованных состояний λ, λ' соответственно, $\boldsymbol{n}$ — единичный вектор вдоль направления внешнего электрического поля, $n_F(E)$ — функция Ферми, а Ω — объем системы. В (3) матричный элемент $\langle\lambda|(\boldsymbol{n},\boldsymbol{r})|\lambda'\rangle$ выражается через резонансный интеграл перекрытия $I_{\lambda\lambda'}$ волновых функций локализованных состояний:

$$\langle\lambda|(\boldsymbol{n},\boldsymbol{r})|\lambda'\rangle \approx (\boldsymbol{n},\boldsymbol{r})\frac{I_{\lambda\lambda'}}{(\varepsilon_{\lambda'}-\varepsilon_\lambda)}.$$

Резонансный интеграл экспоненциально убывает при возрастании расстояния между центрами пары $r_{\lambda\lambda'}$:

$$I_{\lambda\lambda'} = I_0 \exp(-2\gamma r_{\lambda\lambda'}), \tag{4}$$

где I_0 — предэкспоненциальный множитель, а γ^{-1} — радиус локализованных состояний.

В выражении (3) можно перейти от суммирования по состояниям λ и λ' к интегрированию по энергиям центров ε, ε' и их координатам:

$$\sigma(\omega) = \frac{4\pi e^2 g_F^2 \omega}{3\Omega}\left\{1-\exp\left(-\frac{\hbar\omega}{kT}\right)\right\}\int d\varepsilon \int d\varepsilon' \int\limits_0^\infty dr\, r^4 \times$$
$$\times\, \Phi(\varepsilon,\varepsilon',r)\frac{I^2(r)}{(\varepsilon-\varepsilon')^2} n_F(\varepsilon)\{1-n_F(\varepsilon')\}\,\delta(\varepsilon-\varepsilon'+\hbar\omega), \tag{5}$$

где g_F — плотность локализованных состояний на уровне Ферми (в рассматриваемой задаче ее обычно можно считать постоянной [4], а множитель $\Phi(\varepsilon,\varepsilon',r)$ в выражении (5) — это якобиан перехода от затравочных энергий $\varepsilon_0, \varepsilon_0'$ (без учета гибридизации) к энергиям ε, ε'. Множитель $\Phi(\varepsilon,\varepsilon',r)$ представляет собой функцию корреляции энергетических уровней, характеризующую условную вероятность того, что уровень энергии центра, расположенного на расстоянии r от заданного центра с энергией ε, имеет энергию ε' [8]. Корреляция энергетических уровней на малых расстояниях обусловлена квантовой гибридизацией электронных состояний центров и соответствует отталкиванию уровней. Функцию $\Phi(\varepsilon,\varepsilon',r)$ нетрудно найти для изолированной пары центров, для которых можно пренебречь перекрытием волновых функций с другими центрами, не принадлежащими рассматриваемой паре; вариационный расчет дает [9]

$$\varepsilon^\pm = \frac{\varepsilon_0+\varepsilon_0'}{2} \pm \frac{1}{2}\sqrt{(\varepsilon_0-\varepsilon_0')^2+4I^2(r)}, \tag{6}$$

$$\Phi(\varepsilon,\varepsilon',r) = \frac{\varepsilon'-\varepsilon}{\sqrt{(\varepsilon'-\varepsilon)^2-4I^2(r)}}, \tag{7}$$

где $\varepsilon^+ = \varepsilon'$, $\varepsilon^- = \varepsilon$.

Поскольку $\varepsilon_{\lambda'} - \varepsilon_\lambda = \hbar\omega$ (см. (5)), из (7) следует, что вследствие гибридизации, приводящей к отталкиванию уровней (6), вклад в проводимость могут вносить лишь пары центров, для которых $r_{\lambda\lambda'} \geqslant r_\omega$, где $r_\omega = \gamma^{-1}\ln(\omega_c/\omega)$, а ω_c определяется выражением (2).

При $r_\omega \gg \gamma^{-1}$, т. е. при $\omega \ll \omega_c$, основной вклад в интеграл по r в (5) дает область значений $r_\omega < r \leqslant r_\omega + \gamma^{-1}$, и мы получаем обычное приближенное выражение для бесфононной проводимости на переменном токе [10, 11]

$$\sigma(\omega) = \frac{1}{3}\pi^2 e^2 \hbar \gamma^{-1} g_F^2 r_\omega^4 \omega^2. \tag{8}$$

При учете кулоновского взаимодействия между электронами в парах в подынтегральном выражении в (5) появляется множитель $(1+U(r)/(\hbar\omega))$, где $U(r) = e^2/(\kappa r)$, κ — диэлектрическая проницаемость, и выражение для бесфононной проводимости принимает вид [4]

$$\sigma(\omega) = \frac{4}{3}\frac{\pi^2 e^2 g_F^2}{\hbar^2}\int\limits_{r_\omega}^\infty \left(\hbar\omega + \frac{e^2}{\kappa r_{\lambda\lambda'}}\right)\frac{I_{\lambda\lambda'}^2 r_{\lambda\lambda'}^4}{\sqrt{(\hbar\omega)^2-4I_{\lambda\lambda'}^2}}\,dr_{\lambda\lambda'}. \tag{9}$$

При $r_\omega \gg \gamma^{-1}$ отсюда получаем

$$\sigma(\omega) = \frac{1}{3}\pi^2 e^2 \gamma^{-1} g_F^2 r_\omega^4 \omega(\hbar\omega + U(r_\omega)). \tag{10}$$

Частотная зависимость проводимости, таким образом, определяется поведением произведений $r_\omega^4\omega^2$ и $r_\omega^3\omega$ (первое и второе слагаемые в (10) при изменении частоты. Функция вида $r_\omega^s\omega^q$ есть немонотонная функция частоты, достигающая максимума при $\omega_m = \omega_c \exp(-s/q)$, т. е. выражение (8) для частотной зависимости проводимости в отсутствие кулоновских эффектов имеет максимум при $\omega_m \approx 0.14\omega_c$, а выражение $r_\omega^4\omega U(r_\omega) \sim \omega r_\omega^3$ — при $\omega_m \approx 0.05\omega_c$. Выражение (10) для проводимости можно переписать в виде

$$\sigma(\omega) = \frac{1}{3}\pi^2 e^2 \gamma^{-5} g_F^2 \hbar \omega_c^2 f\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right),$$

где

$$f(z) = z^2 \ln^4\left(\frac{1}{z}\right)\left(1 + A\frac{1}{z\ln\left(\frac{1}{z}\right)}\right), \tag{11}$$

$z = \omega/\omega_c$, а $A = e^2\gamma/(\kappa\hbar\omega_c) = e^2\gamma/(2\kappa I_0)$. Функция $f(z)$ имеет максимум, положение которого зависит от безразмерного параметра A. Оценка множителя I_0 для водородоподобных центров дает [4, 5]

$$I_0 \sim \frac{e^2\gamma}{\kappa}; \tag{12}$$

соответственно параметр A есть величина порядка единицы. Положение экстремума выражения (11) определяется уравнением

$$\left\{\left(-4+\frac{A}{z}\right)+2\ln\left(\frac{1}{z}\right)\right\}\ln\left(\frac{1}{z}\right) - 3\frac{A}{z} = 0, \tag{13}$$

корень которого мы обозначим через z_m. Зависимость $z_m = \omega_m/\omega_c$ от параметра A представлена на рис. 1 (кривая *1*). Численное решение уравнения (13) при $A = 1$ дает $\omega_m \approx 0.065\omega_c$. Напомним, что $r_\omega = \gamma^{-1}\ln(\omega_c/\omega)$, так что области частот $\omega < \omega_c$

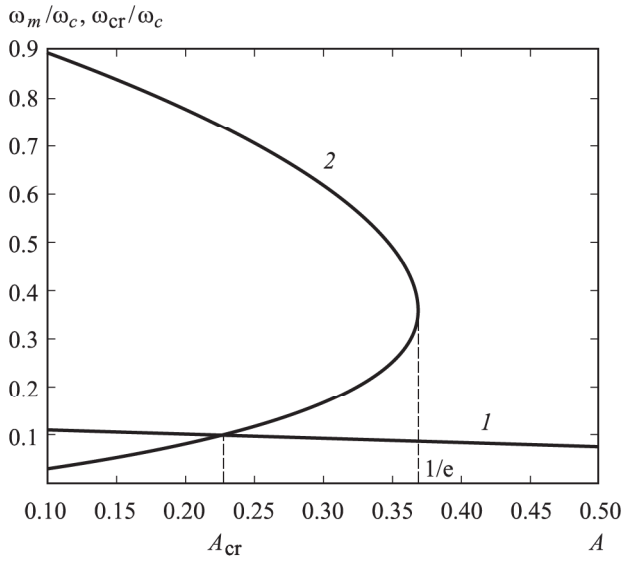

Рис. 1. Зависимости приведенной частоты максимума ω_m/ω_c (кривая *1*) и частоты кроссовера ω_{cr}/ω_c (кривая *2*) от параметра A

соответствует $r_\omega > \gamma^{-1}$. Таким образом, при типичных значениях A максимум находится в области применимости выражений (8), (10), определяемой условием $r_\omega \gg \gamma^{-1}$.

На рис. 2 приведены результаты прямого численного расчета проводимости как без учета кулоновского взаимодействия электронов, попадающих на изолированные пары центров (кривая *1*), так и с учетом этого взаимодействия (кривая *2*). Видно, что частотная зависимость бесфононной проводимости $\sigma(\omega)$ является немонотонной. Это связано с тем, что частотная зависимость проводимости

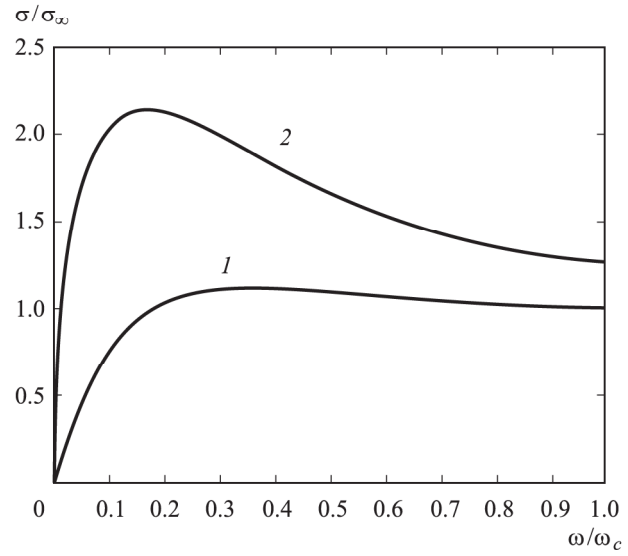

Рис. 2. Частотная зависимость проводимости неупорядоченной системы с точечными центрами локализации без учета кулоновского взаимодействия (кривая *1*, соотношение (5)) и при учете кулоновского взаимодействия (кривая *2*, соотношение (9))

определяется, с одной стороны, тем, что наибольший вклад в проводимость вносят пары центров, находящиеся на расстоянии r_ω друг от друга (этот вклад увеличивается с ростом частоты ω, т. е. с уменьшением r_ω), а с другой — количеством таких пар (уменьшающимся с уменьшением r_ω). Центры в парах, принимающих участие в проводимости, не могут находиться на расстояниях меньших, чем r_ω, так как при учете гибридизации, приводящей к отталкиванию уровней, в этом случае не обеспечивается выполнение закона сохранения энергии.

При $\omega \geqslant \omega_c$ нижний предел интегрирования по $r_{\lambda\lambda'}$ в (9) обращается в нуль и выражение для вещественной части бесфононной проводимости принимает вид

$$\sigma(\omega) = \frac{4}{3}\frac{\pi^2 e^2 \omega g_F^2}{\hbar}\int\limits_0^\infty \frac{I_{\lambda\lambda'}^2 r_{\lambda\lambda'}^4}{\sqrt{(\hbar\omega)^2 - 4I_{\lambda\lambda'}^2}} dr_{\lambda\lambda'} = \frac{1}{48}\frac{\pi^2 e^2 \omega g_F^2 I_0 \gamma^{-5}}{\hbar} F(q(\omega)), \quad (14)$$

где $q(\omega) = \hbar\omega/2I_0 = \omega/\omega_c > 1$, а $F(q) = \int\limits_0^\infty \frac{r^4 \exp(-r)}{\sqrt{q^2 - \exp(-r)}} dr$. При больших q, отвечающих высоким частотам, функцию $F(q)$ можно аппроксимировать выражением $F(q) \approx \frac{1}{q}\int\limits_0^\infty r^4 \exp(-r)\, dr = \frac{24}{q}$, и частотная зависимость проводимости становится логарифмически слабой. В области $\omega \gg \omega_c$ проводимость (14) выходит на насыщение

$$\sigma_\infty = \frac{\pi^2 e^2 g_F^2 I_0^2 \gamma^{-5}}{\hbar^2}, \quad (15)$$

приближаясь к значению σ_∞ сверху.

Обсуждение результатов

Таким образом, проведенное выше рассмотрение показывает, что важная особенность частотной зависимости проводимости состоит в появлении максимума и падающего участка на кривой $\sigma(\omega)$, предшествующего выходу проводимости на насыщение (15) при повышении частоты. Оценки частоты ω_m, отвечающей максимуму, показывают, что эта частота может быть существенно меньшей критической частоты ω_c, определяемой равенством (2). Используя оценку предэкспоненциального множителя I_0 (12) в выражении для резонансного интеграла, мы находим, что характерное значение критической частоты составляет $\omega_c \sim 10^{12} \div 10^{13}$ с$^{-1}$ ≈ 1–10 ТГц, т. е. максимум может быть расположен в области, доступной для экспериментального исследования.

С другой стороны, частота ω_{cr} кроссовера от линейной к квадратичной зависимости проводимости определяется условием $\hbar\omega = U(r_\omega)$, т. е. $\hbar\omega = e^2/(\kappa r_\omega)$. Из выражения (11) видно, что урав-

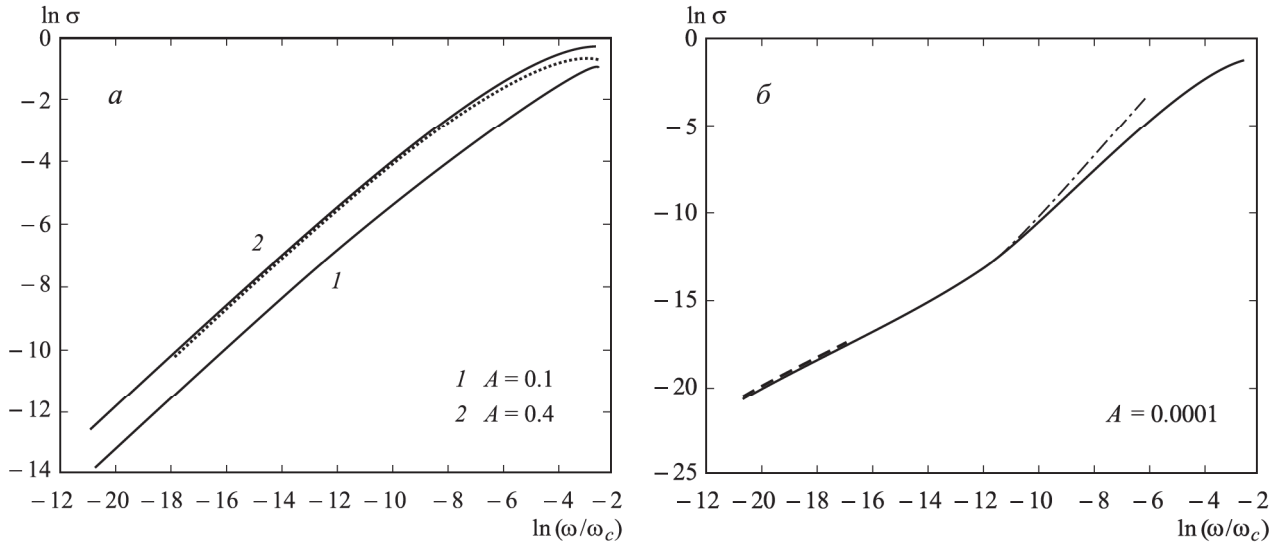

Рис. 3. Частотная зависимость проводимости неупорядоченной системы (11) (в двойном логарифмическом масштабе) при различных значениях параметра A: *а* — $A = 0.1$ (кривая *1*), $A = 0.4$ (кривая *2*); кривая, обозначенная точками, соответствует второму слагаемому выражения (11); *б* — $A = 0.0001$; пунктирная и штрихпунктирная кривые соответствуют второму и первому слагаемым выражения (11) соответственно

нение, определяющее соотношение между частотами $\omega_{\rm cr}$ и ω_c, имеет вид

$$z\ln(1/z) = A. \qquad (16)$$

Решение этого уравнения $z_{\rm cr} = \omega_{\rm cr}/\omega_c$ выражается через W — функцию Ламберта:

$$\omega_{\rm cr} = \omega_c A(-W(-A)) = \omega_c \frac{e^2\gamma}{\kappa\hbar\omega_c}\left(-W\left(-\frac{e^2\gamma}{\kappa\hbar\omega_c}\right)\right).$$

Зависимость приведенной частоты кроссовера от параметра A приведена на рис. 1. Согласно оценке (12), параметр A — величина порядка единицы. Вещественное решение уравнения (16) существует при условии $A < 1/e$; при этом неравенство $U(r_\omega) > \hbar\omega$ справедливо во всей области частот, т. е. во всей области $\omega < \omega_c$ кулоновские эффекты существенны и зависимость (1) близка к линейной ($s \approx 1$) (рис. 2, 3). Кроссовер от линейной к квадратичной зависимости может наблюдаться лишь при достаточно малых значениях A, когда $\omega_{\rm cr} \ll \omega_m$. Область значений A, при которых может проявляться кроссовер, ограничивается сверху точкой $A_{\rm cr}$, отвечающей точке пересечения кривых *1* и *2* на рис. 1, $\omega_{\rm cr}(A_{\rm cr}) = \omega_m(A_{\rm cr})$. При $A > A_{\rm cr}$ переход на падающий участок кривой $\sigma(\omega)$, предшествующий выходу на насыщение, происходит до того, как достигается область квадратичной зависимости (8) (рис. 3).

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант 06-02-16918а).

Литература

1. *Dyre J.C., Schroeder Th.B.* // Rev. Mod. Phys. 2000. **72**. P. 873.
2. *Zvyagin I.P.* // Charge transport in disordered solids with applications in electronics / Ed. by S. Baranovski. Chichester, 2006. P. 339.
3. *Pollak M., Geballe T.H.* // Phys. Rev. 1961. **22**. P. 1742.
4. *Шкловский Б.И., Эфрос А.Л.* // ЖЭТФ. 1981. **81**. С. 406.
5. *Lee M., Stutzmann M.L.* // Phys. Rev. Lett. 2001. **87**. P. 056402.
6. *Helgren E., Armitage N.P., Gruner G.* // Phys. Rev. Lett. 2002. **89**. P. 246601.
7. *Reedijk J.A., Adriaanse L.J., Brom H.B.* et al. // Phys. Rev. 1998. **B57**. P. R15116.
8. *Mott N.F.* // Phil. Mag. 1970. **22**. P. 7.
9. *Miller A., Abrahams E.* // Phys. Rev. 1960. **120**. P. 745.
10. *Мотт Н., Дэвис Э.* Электронные процессы в некристаллических веществах. М., 1974.
11. *Бонч-Бруевич В.Л., Звягин И.П., Кайпер Р.* и др. Электронная теория неупорядоченных полупроводников. М., 1981.

Поступила в редакцию
26.09.2007