

ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ ВЕЩЕСТВА

Особенности поведения бесфононной прыжковой проводимости в области кроссовера от линейной к квадратичной частотной зависимости

М. А. Ормонт

*Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, физический факультет, кафедра физики полупроводников. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.**E-mail: ormont@phys.msu.ru*

Статья поступила 16.11.2009, подписана в печать 02.12.2009

Показано, что в широкой области частот кулоновское взаимодействие между электронами «активных» (резонансных) пар играет основную роль. При расчете высокочастотной бесфононной проводимости стандартный подход к расчету суперлинейности частотной зависимости проводимости на переменном токе, основанный на использовании одночастичной плотности состояний с кулоновской щелью, неприменим. Наблюдаемая суперлинейность частотной зависимости бесфононной прыжковой проводимости может проявляться непосредственно в области кроссовера от линейной к квадратичной частотной зависимости проводимости.

Ключевые слова: бесфононная (резонансная) прыжковая проводимость, кулоновская щель.

УДК: 621.315.592. PACS: 72.20.Ee.

Введение

Для многих неупорядоченных материалов (таких, как аморфные и легированные полупроводники, полупроводниковые стекла, проводящие полимеры, гранулированные проводники и т. п.) частотная зависимость проводимости имеет универсальный степенной вид $\sigma = C\omega^s$, где C — постоянная, а s — показатель степени, который часто лежит в интервале $0 < s \leq 1$ [1]. Такая зависимость указывает на прыжковый характер транспорта, однако имеющаяся универсальность затрудняет получение информации о конкретных особенностях механизма переноса из вида частотной зависимости проводимости. По этой причине исследования отклонений от универсальности и нахождение их связи с особенностями механизма переноса и со структурными особенностями материала играют важную роль.

Существующие теории прыжковой проводимости на переменном токе предсказывают степенную частотную зависимость проводимости как для релаксационных переходов с участием фононов (показатель $s \approx 1$ [2]), так и для резонансных (бесфононных) переходов ($s \approx 2$ [3] или $s \approx 1$ (с учетом кулоновских эффектов) [4]). Теория бесфононной проводимости предсказывает переход от линейной к квадратичной частотной зависимости проводимости при возрастании частоты [3, 4].

С учетом кулоновского взаимодействия между электронами резонансных пар центров выражение для бесфононной проводимости в парном приближении имеет вид [4]

$$\sigma(\omega) = \frac{1}{3} \pi^2 e^2 a g_F^2 r_\omega^4 (\hbar\omega + U(r_\omega)), \quad (1)$$

где $U(r_\omega) = \frac{e^2}{\kappa r_\omega}$ — кулоновская энергия взаимодействия электронов на резонансной паре центров, $r_\omega = a \ln(\omega_c/\omega)$ — характерная длина прыжка на частоте ω , a — радиус локализации состояний, $\omega_c = 2I_0/\hbar$ — критическая частота, I_0 — предэкспоненциальный множитель в выражении для резонансного интеграла, κ —

диэлектрическая проницаемость среды, а g_F — одночастичная плотность состояний на уровне Ферми. Расстояния между центрами пар, дающих основной вклад в проводимость, превышают r_ω , поскольку при условии $r < r_\omega$ отталкивание уровней за счет гибридизации состояний приводит к тому, что разность энергий этих состояний ΔE_{if} становится больше энергии кванта электромагнитного поля $\hbar\omega$, так что резонансные переходы невозможны. При частотах $\omega \ll \omega_c$, соответствующих условию $r_\omega \gg a$, основной вклад в проводимость дают пары, для которых межцентровые расстояния r_{if} лежат в интервале $r_\omega \leq r_{if} \leq r_\omega + a$.

При увеличении частоты, когда энергия кванта поля $\hbar\omega$ становится больше, чем кулоновская энергия взаимодействия электронов на резонансной паре центров $U(r_\omega)$, теория бесфононной проводимости предсказывает кроссовер от линейной к квадратичной частотной зависимости проводимости при частоте ω_{cr} , определяемой из условия $\hbar\omega_{cr} = U(r_{\omega_{cr}})$ [4]. Переход от линейной к квадратичной частотной зависимости проводимости при возрастании частоты действительно наблюдался в области частот около 1 ТГц в металлических нанокompозитах [5] и в легированном кремнии в окрестности перехода металл–изолятор [6, 7].

Однако наблюдавшийся переход от линейной к квадратичной частотной зависимости оказался значительно более резким, чем предсказанный теоретически [4, 6, 8]. Кроме того, при частотах, меньших частоты кроссовера ω_{cr} , когда кулоновская энергия превышает энергию кванта электромагнитного поля $\hbar\omega < U(r_\omega)$, теория бесфононной проводимости предсказывает сублинейную ($s < 1$) частотную зависимость

$$\sigma(\omega) = \frac{1}{3} \pi^2 e^2 a g_F^2 r_\omega^4 \omega U(r_\omega). \quad (2)$$

В то же время в экспериментах [8, 9] была обнаружена суперлинейность ($s > 1$) частотной зависимости реальной части проводимости.

В работах [4, 8, 9] суперлинейность частотной зависимости бесфононной прыжковой проводимости неупорядоченных систем при частотах, меньших частоты кроссовера ω_{cr} , интерпретировалась как непосредственное проявление кулоновской щели, возникающей в одночастичной плотности состояний. Действительно, формальное использование одночастичной плотности состояний с кулоновской щелью $\rho(\varepsilon) = \frac{\kappa^3(\varepsilon - \mu)^2}{e^6}$ при частотах, соответствующих неравенству $\hbar\omega \ll \frac{e^2}{\kappa r_\omega} < \Delta$ (где Δ — ширина кулоновской щели, μ — уровень Ферми), приводит к суперлинейной частотной зависимости резонансной проводимости вида $\sigma(\omega) \sim \frac{\omega}{\ln(2I_0/\hbar\omega)}$ [4]. Однако сама возможность формального использования одночастичной плотности состояний с кулоновской щелью при расчете высокочастотной проводимости не очевидна. Это связано с тем, что при переходах на близкие центры, энергии конечных состояний, вообще говоря, отличны от самосогласованных энергий в основном состоянии системы из-за наличия дырки в конечном состоянии. Соответственно подход, основанный на формальном использовании одночастичной плотности состояний с кулоновской щелью при расчете высокочастотной проводимости, вообще говоря, неприменим в области высоких частот (при переходах на близкие центры).

Указанное обстоятельство непосредственно сказывается на частотной зависимости резонансной проводимости. В этих условиях представляется важным расчет частотной зависимости резонансной проводимости без формального использования одночастичной плотности состояний, описывающей распределение самосогласованных энергий.

1. Влияние немонотонности частотной зависимости низкотемпературной бесфононной прыжковой проводимости на кроссовер

В работе [10] было показано, что частотная зависимость бесфононной проводимости $\sigma(\omega)$ является немонотонной, проходя через максимум при $\omega = \omega_m$ (рис. 1). Появление немонотонности связано с тем, что частотная зависимость проводимости 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 . Проведенные в работе [10] оценки частоты ω_m , отвечающей максимуму, показывают, что эта частота может быть существенно меньше критической частоты ω_c , характерное значение которой составляет $\omega_c \sim 10^{12} \div 10^{13} \text{ с}^{-1} \approx 1-10 \text{ ТГц}$. Таким образом, максимум частотной зависимости вещественной части резонансной проводимости расположен в области частот, вполне доступной для экспериментального исследования.

Частота кроссовера и положение максимума частотной зависимости бесфононной проводимости непосредственно определяются значением безразмерного параметра $A = e^2/(\kappa a \hbar \omega_c) = e^2/(\kappa a 2I_0)$. Зависимости приведенной частоты кроссовера ω_{cr}/ω_c и положения максимума бесфононной прыжковой проводимости ω_m/ω_c

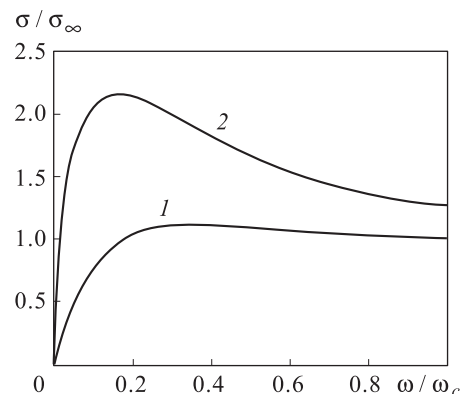


Рис. 1. Частотная зависимость действительной части бесфононной проводимости неупорядоченной системы с точечными центрами локализации, рассчитанная без учета кулоновского взаимодействия (кривая 1) и с учетом кулоновского взаимодействия (кривая 2) [10]. В области частот $\omega \gg \omega_c$ проводимость выходит на насыщение, приближаясь к значению σ_∞ сверху

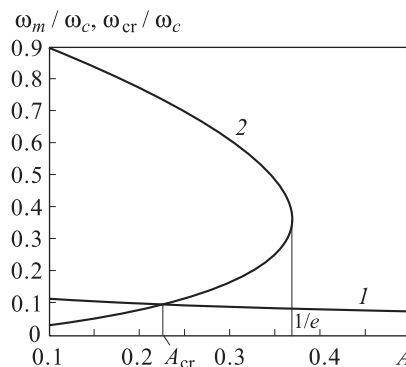


Рис. 2. Зависимости приведенной частоты максимума ω_m/ω_c (кривая 1) и частоты кроссовера ω_{cr}/ω_c (кривая 2) от параметра A [10]

от параметра A , полученные в работе [10], приведены на рис. 2. Из рис. 2 видно, что переход от линейной к квадратичной частотной зависимости появляется лишь при достаточно малых значениях параметра A , когда $\omega_{cr} < \omega_m$. На рис. 2 область значений A , отвечающих существованию кроссовера, ограничена сверху точкой A_{cr} пересечения кривых 1 и 2; в этой точке $\omega_{cr}(A_{cr}) = \omega_m(A_{cr})$. При $A > A_{cr}$ переход на падающий участок кривой $\sigma(\omega)$, предшествующий выходу на насыщение, происходит до того, как достигается область квадратичной зависимости (см. рис. 1, 2).

Поскольку для точечных водородоподобных центров значение предэкспоненциального множителя резонансного интеграла $I_0 \sim e^2/(ka)$ соответствует значению безразмерного параметра порядка единицы $A \sim 1$, то в этом случае кулоновская энергия взаимодействия электронов на резонансных парах центров больше энергии кванта поля, т. е. $U(r_\omega) > \hbar\omega$ в широком диапазоне частот в области $\omega < \omega_c$ (см. рис. 2). В этой области частот кулоновские эффекты существенны и частотная зависимость бесфононной проводимости близка к линейной ($s \approx 1$).

Таким образом, существующая теория [4] не объясняет кроссовера от линейной к квадратичной частот-

ной зависимости, поскольку в области частот $\omega < \omega_c$ кулоновское взаимодействие между электронами «активных» пар играет основную роль $e^2/(\kappa r_\omega) > \hbar\omega$.

2. Кулоновский вклад в суперлинейность частотной зависимости бесфононной проводимости

Как отмечалось выше, суперлинейность частотной зависимости бесфононной прыжковой проводимости связывалась в работах [4, 8, 9] с существованием кулоновской щели в одночастичной плотности состояний, описывающей распределение самосогласованных энергий взаимодействующих локализованных носителей заряда в основном состоянии системы. Общее выражение для бесфононной проводимости неупорядоченной системы точечных центров локализации в парном приближении в пределе низких температур можно записать в виде (см., напр., [1])

$$\text{Re } \sigma(\omega) = \frac{\pi e^2 \omega}{V_0} \sum_{\{i,f\}, i \neq f} \left[\frac{(\xi, r_{i,f}) I_{i,f}}{\Gamma_{i,f}} \right]^2 \delta(\Gamma_{i,f} - \hbar\omega), \quad (3)$$

где $\Gamma_{i,f} = \sqrt{(\varphi_f - \varphi_i)^2 + 4I_{i,f}^2} = \hbar\omega$ — разность энергий гибридованных состояний пары центров i и f (изменение полной энергии системы при одноэлектронном переходе с заполненного центра i на пустой центр f); ω — частота переменного электрического поля; ξ — единичный вектор вдоль направления внешнего электрического поля; $r_{i,f}$ — радиус-вектор, характеризующий положение центра f относительно центра i ; $I_{i,f} \approx I_0 \exp(-r_{i,f}/a)$ — резонансный интеграл в случае водородоподобных центров локализации;

$$\begin{aligned} \varphi_i &= \varphi_i^0 + \sum_{l \neq i, l \neq f} \frac{e^2 n_l^0}{\kappa r_{li}}, & \varphi_f &= \varphi_f^0 + \sum_{k \neq f, k \neq i} \frac{e^2 n_k^0}{\kappa r_{kf}}, \\ \varepsilon_i &= \varphi_i^0 + \frac{e^2}{\kappa} \sum_{j \neq i} \frac{n_j}{r_{ij}}, & \varepsilon_f &= \varphi_f^0 + \frac{e^2}{\kappa} \sum_{j \neq f} \frac{n_j}{r_{jf}}, \end{aligned} \quad (4)$$

числа заполнения $n_j = 0$ и 1 отвечали зарядовому состоянию j центра $e_j = 0$ и $e_j = -|e|$ соответственно; $\{n_k^0\}$ — начальный набор чисел заполнения; φ_i^0 и φ_f^0 — «затравочные» энергии электронов, соответствующие центрам i и f ; φ_i, φ_f — энергии начального состояния (когда центр i занят и центр f пары центров свободен) и конечного состояния с занятым центром f и свободным центром i ; $\varepsilon_i, \varepsilon_f$ — одночастичные самосогласованные энергии взаимодействующих локализованных электронов. В основном состоянии системы все центры с энергиями ε_j ниже уровня Ферми μ заняты, а центры с энергиями выше уровня Ферми $\varepsilon_j > \mu$ свободны.

Соотношения, связывающие энергии электронов φ_i с самосогласованными энергиями ε_i имеют вид

$$\varphi_f = \varepsilon_f - \frac{e^2}{\kappa r_{if}}, \quad \varphi_i = \varepsilon_i, \quad (5)$$

где энергии φ_i и ε_i отвечают начальному набору чисел заполнения $\{n_k^0\}$. Таким образом, энергии конечных состояний, вообще говоря, отличны от самосогласованных энергий в основном состоянии системы из-за наличия дырки в конечном состоянии.

В выражении для бесфононной проводимости (3) можно перейти от суммирования к интегрированию следующим образом:

$$\sum_{\{i,f\}, i \neq f} \dots \rightarrow \int d\varphi_i d\mathbf{r}_i \int d\varphi_f d\mathbf{r}_f P(\varphi_i, \varphi_f, r_{if}) \dots, \quad (6)$$

где $P(\varphi_i, \varphi_f, r_{if}) d\varphi_i d\varphi_f$ — число пар центров с энергиями электронов φ_i и φ_f , лежащими соответственно в интервалах $(\varphi_i, \varphi_i + d\varphi_i)$ и $(\varphi_f, \varphi_f + d\varphi_f)$ для центров i и f , находящихся на расстоянии r_{if} друг от друга.

Определим условную вероятность $p(\varepsilon_i, \varepsilon_f, r_{if})$ через соотношение $P(\varphi_i(\varepsilon_i), \varphi_f(\varepsilon_f, r_{if}), r_{if}) = p(\varepsilon_i, \varepsilon_f, r_{if}) \times g(\varepsilon_i)g(\varepsilon_f)$ (в отсутствие корреляции между энергиями $\varepsilon_i, \varepsilon_f$ центров i и f мы имеем $p(\varepsilon_i, \varepsilon_f, r_{if}) = 1$).

В области высоких частот $\omega > \omega_{cr}$, где $\hbar\omega \gg e^2/\kappa r_\omega$, изменение энергии системы при резонансном поглощении кванта поля, вызывающем переход электрона с центра i на центр f , равно

$$\Delta E = \hbar\omega = \Gamma_{i,f} = \sqrt{(\varphi_f - \varphi_i)^2 + 4I_{i,f}^2}. \quad (7)$$

С учетом (5) выражение (7) можно переписать в виде

$$\varepsilon_f - \varepsilon_i - \frac{e^2}{\kappa r_{if}} = \varphi_f - \varphi_i = \sqrt{(\hbar\omega)^2 - 4I_{i,f}^2}. \quad (8)$$

При выполнении условия

$$\sqrt{(\hbar\omega)^2 - 4I_{i,f}^2} \gg \frac{e^2}{\kappa r_{if}}, \quad (9)$$

или

$$(\hbar\omega)^2 \gg 4I_{i,f}^2 + \left(\frac{e^2}{\kappa r_{if}} \right)^2, \quad (10)$$

с учетом (5) можно положить $\varphi_i = \varepsilon_i, \varphi_f \approx \varepsilon_f$.

Как отмечалось выше (см. введение), основной вклад в бесфононную проводимость вносят пары центров, для которых межцентровое расстояние r_{if} удовлетворяет неравенствам $r_\omega < r_{if} < r_\omega + a$. При $r_{if} = r_\omega$ резонансный интеграл равен $I_{i,f}(r_\omega) = \hbar\omega/2$, так что соотношение (10) заведомо не выполняется. Вместе с тем из-за экспоненциально быстрого убывания резонансного интеграла с расстоянием $I_{i,f} \approx I_0 \exp(-r_{i,f}/a)$ при выполнении неравенства $\hbar\omega \gg e^2/\kappa r_\omega$ в интервале $r_\omega < r_{if} < r_\omega + a$ существует область, в которой условие (10) удовлетворяется, так что $\varphi_i = \varepsilon_i, \varphi_f \approx \varepsilon_f$. В этом случае при вычислении бесфононной проводимости можно использовать плотность состояний $g(\varepsilon)$ с кулоновской щелью, описывающую распределение самосогласованных энергий взаимодействующих локализованных носителей заряда.

В пределе низких частот $\omega < \omega_{cr}$, соответствующих неравенству $\hbar\omega \ll e^2/\kappa r_\omega$, условие (10) во всем интервале $r_\omega < r_{if} < r_\omega + a$ нарушается, поскольку радиус локализации a мал по сравнению с величиной r_ω . Соответственно мы можем положить $P(\varphi_i, \varphi_f, r_{if}) \approx g^2$, где g — плотность распределения энергий φ_i^0 и φ_f^0 , и считать величину g постоянной.

Заключение

В заключение сформулируем основные выводы.

1. Показано, что в широкой области частот $\omega < \omega_c$ кулоновское взаимодействие между электронами «активных» пар играет основную роль $e^2/(\kappa r_\omega) > \hbar\omega$, и существующая теория [4] не объясняет кроссовера от линейной к квадратичной частотной зависимости бесфононной прыжковой проводимости.

2. Найдено, что стандартный подход к расчету суперлинейности частотной зависимости проводимости на переменном токе, основанный на использовании одночастичной плотности состояний с кулоновской щелью, вообще говоря, неприменим при расчете высокочастотной бесфононной проводимости.

3. В области частот, меньших частоты кроссовера ω_{cr} , подход, учитывающий корреляцию между самосогласованными энергиями, предсказывает сублинейную частотную зависимость бесфононной прыжковой проводимости.

4. Суперлинейность частотной зависимости бесфононной прыжковой проводимости может проявляться в области кроссовера от линейной к квадратичной частотной зависимости проводимости.

Считаю своим долгом выразить благодарность профессору И. П. Звягину за многочисленные полезные дискуссии и проявленный интерес к работе.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант 09-02-00561а).

Список литературы

1. Zvyagin I.P. // Charge transport in disordered solids with applications in electronics / Ed. by S. Baranovski. Chichester, 2006. P. 339.
2. Pollak M., Geballe T.H. // Phys. Rev. 1961. **22**. P. 1742.
3. Mott N.F. // Phil. Mag. 1970. **22**. P. 7.
4. Шкловский Б.И., Эфрос А.Л. // ЖЭТФ. 1981. **81**. С. 406.
5. Reedijk J.A., Adriaanse L.J., Brom H.B. et al. // Phys. Rev. 1998. **B57**. P. R15116.
6. Lee M., Stutzmann M.L. // Phys. Rev. Lett. 2001. **87**. P. 056402.
7. Helgren E., Armitage N.P., Gruner G. // Phys. Rev. 2004. **B69**. P. 014201.
8. Hering M., Scheffler M., Dressel M. et al. // Phys. Rev. 2007. **B75**. P. 205203.
9. Ritz E., Dressel M. // Phys. Stat. Sol. 2008. **5**. P. 703.
10. Звягин И.П., Ормонт М.А. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 2008. **4**. С. 44.

Behavior features of phononless hopping conductivity in the vicinity of crossover from linear to quadratic frequency dependence

M. A. Ormont

Department of Semiconductor Physics, Faculty of Physics, M. V. Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia.

E-mail: ^a ormont@phys.msu.ru.

It is shown, that in a wide frequency range Coulomb interactions between the electrons of the pairs localized on the “active” (resonance) pairs of centers play the main role. So in the existing theory of the high-frequency phononless AC hopping conductivity, the one-particle density of states with Coulomb gap generally cannot be used in the standard approach to superlinearity calculation of the resonance AC conductivity. The observed superlinear frequency behavior of the phononless hopping conductivity might be demonstrated in the vicinity of crossover from linear to quadratic frequency dependence.

Keywords: phononless (resonance) hopping AC conductivity, Coulomb gap.

PACS: 72.20.Ee.

Received 16 November 2009.

English version: *Moscow University Physics Bulletin* 2(2010).

Сведения об авторе

1. Ормонт Михаил Александрович — канд. физ.-мат. наук, доцент; тел.: (495) 939-41-18, e-mail: ormont@phys.msu.ru.