

- [4] Анализ поверхности методами Оже- и рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии / Под ред. Д. Бриггс и М.П. Сих. М., 1987. 598 с.
- [5] Байтингер Е.М., Тетерин Ю.А., Кугеев Ф.Ф. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 11. С. 316–319.
- [6] Соболев В.В. Энергетическая структура узкозонных полупроводников. Кишинев, 1983. 278 с.
- [7] Willis R.F., Fitton B., Painter G.S. // Phys. Rev. B. 1974. V. 9. N 4. P. 1926–1937.
- [8] Песин Л.А. // Физические свойства углеродных материалов. Челябинск, 1988. С. 28–31.
- [9] Байтингер Е.М., Песин Л.А., Кузнецов В.Л. и др. // ФТТ. 1991. Т. 33. № 11. С. 3153–3157.
- [10] Песин Л.А., Байтингер Е.М., Кузнецов В.Л. и др. // ФТТ. 1992. Т. 34. № 6. С. 1734–1739.
- [11] Монахов В.В. // Материалы X Всесоюзного семинара «Теория электронного строения и свойства тугоплавких соединений и металлов». Наманган, 1991. С. 49.
- [12] Кугеев Ф.Ф., Байтингер Е.М., Тетерин Ю.А. и др. // Химия твердого топлива. 1991. №3. С. 120–125.

Челябинский государственный
педагогический институт

Поступило в Редакцию
4 марта 1993 г.

© Физика твердого тела, том 35, № 8, 1993
Solid State Physics, vol. 35, N 8, 1993

СВЕРХМАЛЫЕ ПОЛЯРОНЫ В АМОРФНОМ ОКИСЛЕ ТАНТАЛА

В.В.Брыксин, С.Д.Ханин

Экспериментальное исследование температурной и частотной зависимостей электропроводности аморфного окисла тантала Ta_2O_5 , а также его вольт-амперных характеристик показало, что зарядоперенос в этом материале имеет прыжковый характер $[1-4]$. Прямые же измерения подвижности носителей заряда в этом материале $[2]$ обнаружили сверхмалое ее значение, порядка $10^{-15} \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$. Активационный характер температурной зависимости дрейфовой подвижности в аморфном Ta_2O_5 $[2]$ и некоторые особенности частотной зависимости электропроводности $[3]$ указывают на то, что носителями заряда в этом материале являются полярны малого радиуса.

Сверхмалая подвижность в Ta_2O_5 тесно связана с очень малым радиусом локализации носителей, который порядка 2 \AA $[1]$. Этот размер определяется радиусом d -состояний катионов тантала, по которым и происходят прыжки. Резонансный интеграл I , определяемый перекрытием волновых функций соседних ионов, пропорционален $\exp(-\alpha R)$ (α^{-1} — радиус локализации, R — длина прыжка), а подвижность в свою очередь пропорциональна I^2 . При столь малых значениях радиуса локализации на характер температурной зависимости прыжковой электропроводности может оказывать зависимость резонансного интеграла от амплитуды решеточных колебаний $[5]$. Учет этой зависимости для прыжковой электропроводности приводит к очевидной замене фактора I^2 на $\langle I^2 \rangle$, где $\langle \dots \rangle$ означает фоновое усреднение. С другой стороны, фоновое усреднение резонансного интеграла приводит к перенормировке его за счет фактора

Дебая-Уоллера, $\langle I^2 \rangle = I^2 \exp(2\alpha^2 \rho^2)$, где ρ^2 — среднеквадратичное тепловое смещение узла решетки. Так как в области высоких температур ρ^2 пропорционально kT , то эта перенормировка резонансного интеграла влечет за собой изменение температурной зависимости электропроводности.

В [6] произведен расчет прыжковой электропроводности σ в модели поляронов малого радиуса с учетом влияния тепловых колебаний решетки на резонансный интеграл. Результат этой теории имеет вид

$$\sigma = \epsilon n \frac{ea^2}{\hbar} \frac{\pi^{1/2} I^2}{E_a^{1/2} (kT)^{3/2}} \exp \left\{ -\frac{E_a}{kT} + \frac{kT}{\epsilon} \right\}, \quad (1)$$

где a — постоянная решетки; E_a — энергия прыжковой проводимости в модели малых поляронов; n — концентрация носителей; ϵ — величина, имеющая размерность энергии, которая в области высоких температур $2kT \gg \hbar\omega_q$ (ω_q — частота оптического фонона) связана со среднеквадратичным тепловым смещением ρ^2 соотношением

$$\epsilon = \frac{kT}{2\alpha^2 \rho^2}. \quad (2)$$

Среднеквадратичное же смещение в области высоких температур

$$\rho^2 \cong 2kT/M\omega^2,$$

где M — масса иона, ω^2 — квадрат характерной фононной частоты. Отсюда

$$\epsilon \cong M\omega^2/4\alpha^2. \quad (3)$$

Отметим, что температурная перенормировка резонансного интеграла за счет фононов приводит также к экспоненциальному росту ширины поляронной зоны с температурой, в то время как в стандартной теории поляронов малого радиуса ширина поляронной зоны быстро убывает с увеличением T [7].

Сравнение формул (1) и (2) показывает, что поправки к температурной зависимости электропроводности существенны лишь в том случае, если $2\alpha^2 \rho^2 > 1$, т.е. для веществ с очень малым радиусом локализации [6,8]. В работе [9] проанализирована температурная зависимость проводимости большого круга веществ с малой подвижностью и сделан вывод, что эта зависимость имеет не чисто активационный характер, а, скорее, подчиняется более сложному закону (1). Поэтому в этих материалах играет существенную роль зависимость резонансного интеграла от фононных смещений. Однако это заключение для многих веществ представляется спорным, так как в них радиус локализации едва ли столь мал, что параметр $\alpha^2 \rho^2$ сравним или больше единицы [7].

Однако в окисле тантала, как уже отмечалось выше, радиус локализации очень мал, порядка ангстрема. Поэтому в этом веществе вполне вероятно наличие сильного влияния зависимости резонансного интеграла на температурную зависимость электропроводности, особенно в области высоких температур. Иными словами, носителями тока здесь

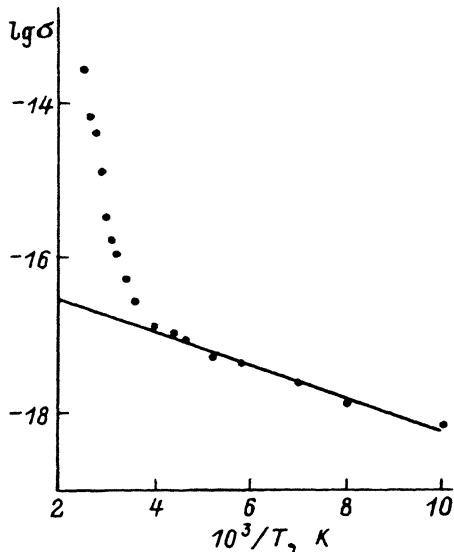


Рис. 1. Зависимость $\lg \sigma$ от обратной температуры для аморфного окисла Ta_2O_5 .

Оценка энергии активации $E_a \cong 0.1$ эВ в низкотемпературной области произведена по приведенной прямой.

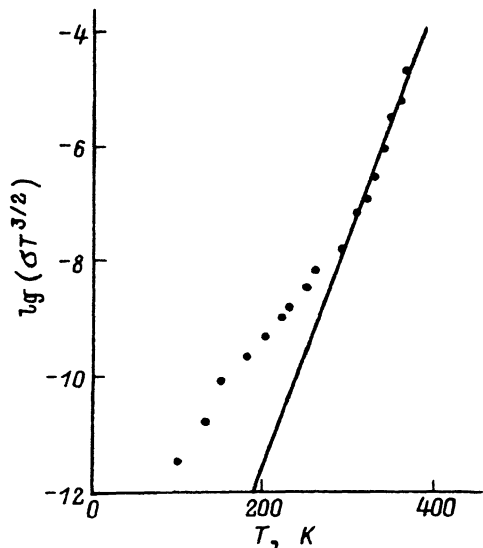


Рис. 2. Зависимость $\lg(\sigma T^{3/2})$ от температуры для Ta_2O_5 .

Оценка параметра ϵ произведена по наклону изображенной прямой.

могут оказаться сверхмалые поляроны. Этот термин введен в [7] для поляронных состояний, радиус которых сравним со среднеквадратичным тепловым смещением атомов решетки (малый полярон определен как состояние, размер которого меньше или сравним с постоянной решетки, т.е. намного превышает размер сверхмалого).

На рис. 1 приведены экспериментальные данные зависимости $\lg \sigma$ от обратной температуры (детали экспериментальной процедуры и свойств использованных образцов приведены в [1]) для аморфных окислов тавтала. Такую зависимость в рамках прыжкового переноса можно качественно описать перескоками по ближайшим соседям — R -протекание в области высоких температур, $T > 300$ К, где температурная зависимость имеет активационный характер с энергией активации порядка 0.5 эВ. В области же низких температур эта зависимость близка к закону Мотта $\ln \sigma \sim -(T_0/T)^{1/4}$.

Однако возможна и иная интерпретация экспериментальных данных на основе механизма переноса заряда сверхмалыми поляронами. На рис. 2 приведена та же зависимость в координатах $\ln(\sigma T^{3/2})$ от T . Как видно из этого рисунка, при $T > 300$ К температурная зависимость электропроводности можно представить в виде

$$\ln(\sigma T^{3/2}) = \frac{kT}{\epsilon} + A, \quad (4)$$

где ϵ и A не зависят от температуры. По наклону прямой определяем величину $\epsilon \cong 2 \cdot 10^{-3}$ эВ $\cong 3 \cdot 10^{-15}$ эрг. Используя для массы тавтала $M = 3 \cdot 10^{-22}$ г, из (3) получаем оценку для Ta_2O_5 :

$\omega/\alpha \cong 6 \cdot 10^3$ см/с. Если теперь для радиуса локализованного состояния принять $\alpha^{-1} \cong 2 \times 10^{-8}$ см, то получим для характерной фоновой частоты $\omega \cong 3 \cdot 10^{11}$ с, что представляется разумной оценкой.

Согласно (1), в области низких температур зависимость σ от T в модели сверхмалых поляронов имеет активационный характер $\ln(\sigma T^{3/2}) \sim -E_a/kT$. Формальная оценка E_a в области температур $T < 300$ К по зависимости на рис. 1 дает $E_a \cong 0.1$ эВ. Однако экспериментальная зависимость $\ln(\sigma T^{3/2})$ от $1/T$ в области $T < 300$ К имеет заметную вогнутость, и поэтому ее предпочтительнее интерпретировать все же в рамках закона Мотта. Формула (1) была получена для упорядоченных систем и поэтому не содержит эффектов, связанных с R - ϵ -протеканием, приводящих к закону Мотта [10].

Таким образом, проведенный анализ показал, что в области высоких температур в некристаллическом окисле тантала перенос заряда возможно производится сверхмалыми поляронами. Однако окончательный выбор в пользу модели сверхмалых поляронов можно будет сделать лишь после детального анализа других экспериментальных данных по Ta_2O_5 — зависимости поглощения света от частоты, вольт-амперных характеристик, термоэдс и т.п. Теоретический анализ этих кинетических коэффициентов в модели сверхмалых поляронов дан в работе [11], а эффекта Холла — в [12].

Список литературы

- [1] Брыксин В.В., Дьяконов М.Н., Ханин С.Д. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 5. С. 1403.
- [2] Bryksin V.V., Goltsev A.V., Khanin S.D. // Phil. Mag. B. 1991. V. 64. P. 91.
- [3] Bryksin V.V., Goltsev A.V., Khanin S.D., Novotelnova A.V., Vasilev A.N. // Phys. Stat. Sol. (b). 1990. V. 161. P. 777.
- [4] Ханин С.Д. // Проблемы электрофизики металлооксидных конденсаторных диэлектриков. Обзоры по электронной технике. 1990. Сер. 5. В. 1. С. 58.
- [5] Hurd C.M. // J. Phys. C. 1985. V. 18. P. 6487.
- [6] Брыксин В.В. // ЖЭТФ. 1991. Т. 100. С. 1556.
- [7] Поляроны / Под ред. Ю.Ф.Фирсова. М.: Наука, 1975. С. 423.
- [8] Emin D. // Phil. Mag. B. 1985. V. 52. P. L71.
- [9] Lagnel P., Poumellec B., Picard C. // Phys. Stat. Sol. (b). 1989. V. 151. P. 531.
- [10] Böttger H., Bryksin V.V. // Hopping conduction in solids. Berlin: Akad. Verlag, 1985. P. 398.
- [11] Брыксин В.В. // ЖЭТФ. 1992. Т. 101. С. 180.
- [12] Брыксин В.В. // ЖЭТФ. 1992. Т. 101. С. 1282.

Физико-технический институт
им. А.Ф.Иоффе РАН
Санкт-Петербург
НИИ «Гириконд»
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию
9 марта 1993 г.