

## Зарядовое состояние проводящих мелкодисперсных систем в диэлектрической матрице

© Ю.В. Медведев, А.М. Гришин\*

Донецкий физико-технический институт Академии наук Украины,  
83114 Донецк, Украина

\* Department of Condensed Matter Physics, Royal Institute of Technology,  
S-100 44 Stockholm, Sweden

(Поступила в Редакцию 28 июня 2000 г.  
В окончательной редакции 16 октября 2000 г.)

Исследовано влияние флуктуаций числа Ферми-частиц на зарядовое состояние мелкодисперсных металлических гранул в диэлектрической матрице. Предполагается, что система гранул не образует туннельную среду и обмен заряда между металлическими элементами композита происходит за счет надбарьерного теплового переброса электронов. Из результатов расчета большой статистической суммы системы следует, что средний заряд  $i$ -й гранулы связан нелинейным соотношением с потенциалами  $V_i$  проводников.

Работа поддержана Министерством образования и науки Украины (проект 2М/71-2000), а также Королевской академией наук Швеции.

Необычные электрические свойства мелкодисперсных гранулированных (нанокристаллических) материалов обусловлены малыми размерами гранул, наличием диэлектрической прослойки между ними и квантованием заряда [1–6]. В частности, когда характерная энергия флуктуаций заряда на металлических гранулах  $E_c = e^2/2C$  ( $e$  — заряд электрона,  $C$  — характерная емкость контактирующих между собой гранул) превосходит энергию тепловых флуктуаций, при переносе заряда в среде из мелкодисперсных гранул возникает явление, которое получило название кулоновской блокады [7–10]. В простейшем виде этот эффект наблюдался и был объяснен еще в конце 60-х годов [7]. Многочисленные эксперименты (см., например, [5,6,8]) показывают, что вольт-амперные характеристики (ВАХ) этих сред являются нелинейными. При этом в большинстве случаев при не слишком больших напряжениях  $V$  на образце экспериментальные зависимости  $R(T, V)$  можно представить в виде  $R(T, V) = R(T)g(T, V)$ , где  $g(T, V) \rightarrow 1$  при  $V \rightarrow 0$ , а  $R(T)$  представляет собой температурную зависимость сопротивления при выполнении закона Ома. Эксперименты, выполненные с нанокompозитами различного состава, показывают, что  $R(T) \sim \exp(T_0/T)^\alpha$ , где  $T_0 \sim E_c$  имеет смысл энергии активации, показатель  $\alpha$  принимает значения в пределах от 1/4 до 1 [1–8]. Подобная зависимость с наиболее часто встречающимся показателем  $\alpha = 1/2$  впервые получена в рамках теории активированного туннелирования [8] в предположении, что между размерами гранул и расстояниями между ними существует некоторая ”структурная связь”. Однако, как показано недавно [10], ”закон 1/2” не связан с какими-либо искусственными правилами отбора для туннельных межгранульных переходов, а является простым следствием широкого разброса размера гранул, присущего реальным нанокompозитам. В работах [3] сформулирован иной подход (основанный на анализе релаксационных процессов в системе) к описанию токовых состояний

в гранулированных средах и рассмотрены особенности проводящих туннельных структур, содержащих в барьерном слое металлические гранулы. Примечательно, что эффекты кулоновской блокады проявляются также для очень широкого класса неупорядоченных проводников с диффузионным механизмом рассеяния [11].

Эффекты кулоновской блокады хорошо наблюдаются при исследовании одноэлектронного туннельного транспорта через металлические островки [12,13] (диаметр островков  $< 5$  nm) — на ВАХ имеют место эквидистантные кулоновские ступеньки. Каждая ступенька соответствует изменению среднего по времени заряда на островке на единицу. Замечательным результатом этих экспериментов является наблюдение указанных эффектов при азотных и комнатных температурах. Это определяется чрезвычайно малыми диаметрами металлических островков, что достигается технологией их приготовления с использованием сканирующего туннельного микроскопа, комбинированием электронно-лучевой литографии и ионно-лучевого осаждения.

Другое интересное свойство подобных мезоскопических структур — наличие корреляции между актами туннелирования отдельных электронов. Наиболее наглядно временная корреляция туннельных событий проявляет себя в осцилляциях напряжения с частотой  $f = I/e$  [14], которые возникают в результате присоединения контакта малой емкости к источнику постоянного тока  $I$ . В работе [15] одноэлектронные колебания наблюдались в одномерных массивах из туннельных переходов алюминий–окисел алюминия–алюминий (каждый включал в себя от 15 до 53 контактов) площадью до  $0.006 \mu\text{m}^2$  и емкостью  $\sim 0.2$  fF.

Феноменальная теория, описывающая системы с магнитными микрогранулами, сформулирована в работе [9]. Спин-зависящее туннелирование электронов в сочетании с кулоновской блокадой исследовалось как на пленках Co–Al–O с различными составами [16], так и на туннель-

ном контакте Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co [17], в котором окисел алюминия содержал слой микрокластеров Co с размерами от 2 до 4 nm. Туннельная структура на основе гранулированной пленки, представляющей собой магнито жесткие ферромагнитные наночастицы Co<sub>80</sub>Pt<sub>20</sub>, внедренные в матрицу SiO<sub>2</sub>, исследована в [18].

Когда гранулы находятся в сверхпроводящем состоянии, значение кулоновской энергии  $E_c$  необходимо сравнить с характерной энергией джозефсоновского взаимодействия  $E_j$  между гранулами [19–22]. Для достаточно малых величин отношения  $E_j/E_c$  эффект флуктуаций заряда на гранулах ведет к отсутствию фазовой когерентности на больших масштабах и, следовательно, к отсутствию сверхпроводимости в гранулированных системах. Фазовая диаграмма гранулированных сверхпроводников с учетом квантовых эффектов и при наличии диссипативных токов в системе подробно проанализирована в [23].

Теория всех указанных выше эффектов основывается на предположении, что электроны (куперовские пары) могут перетекать с одной гранулы на другую посредством активированного туннелирования, вероятность которого определяется выражением  $P \sim \exp(-2\chi s - T_0/T)$ , где  $\chi = 2\pi\hbar^{-1}(2m\Phi_0)^{1/2}$ ,  $m$  — масса электрона,  $\Phi_0$  — эффективная высота барьера,  $\chi^{-1}$  — длина затухания волновой функции в диэлектрике,  $s$  — толщина диэлектрической прослойки. В случае выполнения неравенства  $\chi s \ll T_0/T$  проводимость нанокомпозитов будет связана только с термической активацией носителей тока и будет обуславливаться надбарьерным тепловым потоком электронов между микрочастицами. Учет влияния флуктуаций заряда в такой системе из двух металлических частиц, образующих не туннельный контакт, а обычный конденсатор, на емкость системы проведен в [24]. В зависимости от соотношения параметров задачи дифференциальная емкость двух металлических частиц осциллирует или имеет резонансный характер, подобно поведению емкости отдельной гранулы, внедренной в изолирующий слой туннельного перехода [3]. Поэтому в условиях, когда нанокомпозит является составной частью электрической цепи, следует ожидать, что средний заряд  $i$ -й гранулы  $\langle Q_i \rangle = e(N_i - N_{0i})$  ( $N_i$  — оператор числа Ферми-частиц на  $i$ -м проводнике,  $N_{0i}$  — число носителей тока на  $i$ -м проводнике при отсутствии заряда на нем) уже не будет связан линейным соотношением с потенциалами  $V_i$ , как это имеет место в классической теории электричества.

Цель настоящей работы — вычисление большой статсуммы  $Z$  системы заряженных металлических гранул в диэлектрической матрице при учете флуктуаций избыточного числа Ферми-частиц на гранулах. Последовательный подход с использованием микроскопического гамильтониана для энергии электростатического взаимодействия между плотностями заряда в системе позволил провести эти вычисления в приближении среднего поля для микрогранул с размерами, удовлетворяющими условию  $r_{i\min}/\lambda_{TF} \gg 1$  (здесь  $r_{i\min}$  — минимальный геометрический размер  $i$ -го проводника,  $\lambda_{TF}$  — радиус

Томаса–Ферми). В соответствии с полученным результатом для  $Z$  особенности распределения

$$\langle Q_i \rangle = \beta^{-1} \partial \ln Z / \partial V_i - eN_{0i} = -\partial \Omega / \partial V_i - eN_{0i} \quad (1)$$

( $\beta$  — обратная температура,  $\Omega$  — термодинамический потенциал системы) нетривиальным образом задаются через потенциалы  $V_i$ . В частности, дифференциальная емкость, образованная двумя ближайшими гранулами, становится зависящей от разности потенциалов между ними.

## 1. Большая статистическая сумма системы заряженных металлических гранул

Рассмотрим неидеальный Ферми-газ, помещенный в термостат большого канонического ансамбля с фиксированным объемом  $v = \sum v_i$  (здесь  $v_i$  — объем  $i$ -го проводящего элемента системы), температурой и химическим потенциалом  $i$ -го проводника  $\mu_i = \mu_0 + eV_i$  ( $\mu_0$  — химический потенциал системы в состоянии равновесия). В этом случае проблема вычисления  $\langle Q_i \rangle$  состоит (см. (1)) в отыскании термодинамического потенциала

$$\begin{aligned} \Omega(v, T, \mu) &= -\beta^{-1} \ln \text{Sp} \{ \exp[-\beta(H - \sum \mu_i N_i)] \} \\ &= -\beta^{-1} \ln Z \end{aligned} \quad (2)$$

совокупности проводников в диэлектрической матрице. Здесь  $H = \sum H_{0i} + H_{\text{int}}$ , где  $H_{0i}$  — гамильтонианы отдельных элементов ансамбля проводников,  $H_{\text{int}}$  — оператор энергии электростатического взаимодействия между плотностями заряда в системе

$$H_{\text{int}} = 1/2 \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta\rho(\mathbf{r}) \delta\rho(\mathbf{r}'). \quad (3)$$

В соотношении (3)  $V(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$  — кулоновский потенциал,  $\delta\rho(\mathbf{r}) = \rho - n$  — оператор плотности избыточного заряда (плотность  $n$ , связанная с учетом действия положительно заряженного фона, определяется таким образом, что  $n = N_{0i}/v_i$ , когда точка  $\mathbf{r}$  находится в объеме  $i$ -го металлического резервуара).

Запишем статистическую систему совокупности заряженных проводников в виде среднего от  $T_\tau$ -экспоненты

$$Z = Z_0 \left\langle T_\tau \exp \left[ - \int_0^\beta H_{\text{int}}(\tau) d\tau \right] \right\rangle_0. \quad (4)$$

Угловые скобки в (4) обозначают усреднение по равновесному ансамблю не взаимодействующих между собой подсистем электронов, находящихся в различных гранулах,

$$\langle \dots \rangle = Z_0^{-1} \text{Sp} \{ \exp[-\beta \sum (H_{0i} - \mu_i N_i)] \dots \}.$$

Зависимость  $H_{\text{int}}$  от  $\tau$  в (4) возникает из-за использования представления взаимодействия.

Явный вид оператора  $H_{\text{int}}$  позволяет представить соотношение (4) для  $Z$  в виде следующего функционального интеграла [25]:

$$\begin{aligned} Z &= A^{-1} \int D\varphi(\mathbf{r}, \tau) \\ &\times \exp \left\{ -\int_0^\beta d\tau \int d\mathbf{r} (\nabla\varphi(\mathbf{r}, \tau))^2 / 8\pi - \beta\Omega_1 \{ \varphi(\mathbf{r}, \tau) \} \right\} \\ &= A^{-1} \int D\varphi(\mathbf{r}, \tau) \exp \left\{ -S \{ \varphi(\mathbf{r}, \tau) \} \right\}, \end{aligned} \quad (5)$$

где

$$\begin{aligned} A &= \int D\varphi(\mathbf{r}, \tau) \exp \left\{ -\int_0^\beta d\tau \int d\mathbf{r} (\nabla\varphi(\mathbf{r}, \tau))^2 / 8\pi \right\}, \\ \Omega_1 \{ \varphi(\mathbf{r}, \tau) \} &= -\beta^{-1} \\ &\times \ln \left\{ Z_0 \left\langle T_\tau \exp \left\{ -ie \int_0^\beta d\tau \int d\mathbf{r} \varphi(\mathbf{r}, \tau) \delta\rho(\mathbf{r}, \tau) \right\} \right\rangle_0 \right\}. \end{aligned} \quad (6)$$

Удобство записи  $T_\tau$ -экспоненты в (4) в виде соотношения (5) состоит в том, что  $\varphi(\mathbf{r}, \tau)$  в нем определена во всем пространстве, причем  $\varphi(\mathbf{r}, \tau)|_{r \rightarrow \infty} = 0$ .

Согласно аппроксимации самосогласованного, или среднего, поля, основной вклад в интеграл (5) определяется функцией  $\varphi(\mathbf{r}, \tau)$ , отвечающей минимуму функционала  $S \{ \varphi(\mathbf{r}, \tau) \}$ . Во внутренней области  $i$ -го проводника эта функция удовлетворяет уравнению

$$\begin{aligned} \nabla^2 \varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r}, \tau) &= -4\pi\delta\Omega_1 \{ \varphi(\mathbf{r}, \tau) \} / \delta\varphi(\mathbf{r}, \tau) \\ &= -4\pi ie \langle \langle \delta\rho_i(\mathbf{r}, \tau) \rangle \rangle. \end{aligned} \quad (7)$$

В тех же областях пространства, в которых  $\langle \langle \delta\rho_i(\mathbf{r}, \tau) \rangle \rangle = 0$ ,

$$\nabla^2 \varphi_{(\text{ex})}(\mathbf{r}, \tau) = 0, \quad \text{причем} \quad \varphi_{(\text{ex})}(\mathbf{r}, \tau)|_{r \rightarrow \infty} = 0. \quad (8)$$

Для среднего значения переменной величины в (7) введено обозначение

$$\begin{aligned} \langle \langle \delta\rho(\mathbf{r}, \tau) \rangle \rangle &= \frac{\langle T_\tau \exp [-ie \int d\tau \int d\mathbf{r} \varphi(\mathbf{r}, \tau) \delta\rho(\mathbf{r}, \tau)] \delta\rho(\mathbf{r}, \tau) \rangle_0}{\langle T_\tau \exp [-ie \int d\tau \int d\mathbf{r} \varphi(\mathbf{r}, \tau) \delta\rho(\mathbf{r}, \tau)] \rangle_0}. \end{aligned} \quad (9)$$

Сделаем естественное предположение, что для термодинамически равновесной ситуации решение уравнений (7) и (8) следует искать в классе функций, не зависящих от  $\tau$ . В этом случае, как нетрудно заметить, (7) и (8) представляют собой уравнения Пуассона и Лапласа соответственно для расчета электростатического

поля проводников, несущих на себе комплексный заряд, распределенный по объемам металлов с плотностью  $\delta\rho_i(\mathbf{r}) = ie \langle \langle \delta\rho_i(\mathbf{r}) \rangle \rangle$ .

Таким образом, функцию  $\varphi(\mathbf{r})$  можно отождествить с электростатическим потенциалом поля системы комплексно заряженных тел. Из этого, в частности, следует, что внутри  $i$ -й гранулы (вдали от поверхностного слоя толщиной порядка радиуса Томаса–Ферми  $\lambda_{\text{TF}}$ , в котором сосредоточен заряд в электростатике проводников) значение искомого функции  $\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r})$  равно константе. Что же касается приповерхностного слоя ( $\Delta r \sim \lambda_{\text{TF}}$ ), то здесь  $\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r})$  меняются незначительно, но чтобы рассчитать эти изменения, необходимо провести сложное микроскопическое рассмотрение с учетом реальной границы.

Можно, однако, столь малые расстояния исключить и решать задачу макроскопически. При этом поведение нулевого приближения для  $\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r})$  во всем пространстве, занятом металлом, следует аппроксимировать решением уравнения (7) с соответствующими граничными условиями на поверхности проводника. Последнее возможно потому, что аналогия с электростатикой позволяет применить для расчета  $\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r})$  разложение этой функции в ряд по малому естественному параметру  $\lambda_{\text{TF}}/r_{i\text{min}}$  (здесь  $r_{i\text{min}}$  — минимальный геометрический размер  $i$ -й гранулы).

Действительно, применяя метод возмущений по  $(\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r}) - \varphi_{(\text{in})i}^0(\mathbf{r}))$  ( $\varphi_{(\text{in})i}^0(\mathbf{r})$  — значение  $\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r})$ , отвечающее условию электронейтральности в глубине металлического включения) в определении  $\langle \langle \delta\rho(\mathbf{r}, \tau) \rangle \rangle$  (9), легко убедиться, что справедливо следующее уравнение:

$$\nabla^2 \varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r}) = -4\pi ie \int d\mathbf{r}' K(\mathbf{r} - \mathbf{r}') (\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r}') - \varphi_{(\text{in})i}^0(\mathbf{r}')), \quad (10)$$

где  $K(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$  определяется через среднее  $\langle \delta\rho(\mathbf{r})\delta\rho(\mathbf{r}') \rangle_0$ . Фактически  $K(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$  представляет собой поляризационный оператор системы электронов, взаимодействующих друг с другом и с компенсирующим положительным фоном. Результаты вычисления  $K(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$  хорошо известны (см., например, [26]). В применении к металлам эти результаты состоят в том, что в статическом случае мнимая часть ядра  $K(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$  равна нулю (нас интересует лишь электрон-электронное взаимодействие), в то время как характер изменения  $\text{Re} K(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$  дает возможность утверждать, что в  $\mathbf{r}$ -пространстве эта функция существенна лишь на расстояниях  $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$  порядка  $\lambda_{\text{TF}}$ . Этот факт (наряду со слабой зависимостью функции  $\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r})$  от координаты  $r$ ) позволяет оценить интеграл в (10). Нетрудно показать, что в безразмерных переменных  $r/r_{i\text{min}}$  правая часть (10) пропорциональна  $(r_{i\text{min}}/\lambda_{\text{TF}})^2$ .

Следовательно, чтобы компенсировать такую большую величину (градиенты функции  $\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r})$ , как отмечалось, не могут быть значительны из-за плавного поведения этой функции), первая поправка  $\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r}) - \varphi_{(\text{in})i}^0(\mathbf{r})$  должна быть  $\sim (r_{i\text{min}}/\lambda_{\text{TF}})^{-2}$ . Исходя из этого результата, можно полагать, что нулевое приближение для  $\varphi_{(\text{in})i}(\mathbf{r})$

вплоть до самых границ проводников задается уравнением (7). Поведение же  $\varphi_{(ex)}(\mathbf{r})$  в диэлектрической матрице по-прежнему будет описываться уравнением (8).

Такой подход всегда предполагает обычная электростатика системы заряженных проводящих тел (см., например, [27]). В этом подходе наряду с объемной всегда возникает поверхностная плотность заряда  $\sigma(\mathbf{r})$ , определяющая граничные условия для потенциалов на поверхности проводников. В нашем случае эти условия, дополняющие пару уравнений (7) и (8), выглядят следующим образом:

$$\begin{aligned} \mathbf{n}_i(\partial\varphi_{(ex)}/\partial\mathbf{r} - \partial\varphi_{(in)i}/\partial\mathbf{r})|_{\mathbf{r}=\mathbf{r}_s} &= -4\pi\sigma_i; \\ \varphi_{(ex)}|_{\mathbf{r}=\mathbf{r}_s} &= \varphi_{(in)i}|_{\mathbf{r}=\mathbf{r}_s}. \end{aligned} \quad (11)$$

В соотношении (11)  $\mathbf{n}_i$  — единичный вектор внешней нормали к поверхности проводника,  $\mathbf{r}_s$  — точки, принадлежащие поверхности.

Теперь внутри любого металлического включения вплоть до ограничивающей его поверхности должно выполняться условие электронейтральности  $\langle\langle\delta\rho_i(\mathbf{r})\rangle\rangle = 0$ , которое и задает нулевое приближение  $\varphi_i^0$  для  $\varphi_{(in)i}$ .

Воспользуемся теперь тем, что соотношение (6), определяющее функционал  $\Omega_1$ , может быть записано в виде следа операторной формы

$$\exp(i\epsilon\beta\Sigma N_{0i}\varphi_i^0)\Pi \exp\{-\beta\Sigma[H_{0i}(\mathbf{p}) + e(i\varphi_i^0 - V_i)n_{pi}]\}. \quad (12)$$

Для металлических гранул оператор  $n_{pi} = \Sigma a_{p\sigma}^+ a_{p\sigma}$  ( $a_{p\sigma}^+$  и  $a_{p\sigma}$  — операторы рождения и уничтожения частиц с импульсом  $\mathbf{p}$  и спином  $\sigma$  соответственно) коммутирует с гамильтонианами, описывающими систему свободных электронов в каждой из гранул, поэтому след соответствующего оператора легко вычисляется. В результате имеем

$$\Omega_1 = \Sigma\Omega_{0i} - ie\Sigma N_{0i}\varphi_i^0 - 2\beta^{-1}\Sigma \ln[1 + f_{\mathbf{p}}(e^{-\beta e(i\varphi_i^0 - V_i)} - 1)], \quad (13)$$

где  $\Omega_{0i} = -\beta^{-1} \ln Z_i$  — термодинамический потенциал незаряженного проводника,  $f_{\mathbf{p}}$  — функция распределения Ферми.

Согласно определению  $\langle\langle\delta\rho_i(\mathbf{r}, \tau)\rangle\rangle$ , следующему из (7), и результата (13) для  $\Omega_1$  требование  $\langle\langle\delta\rho_i(\mathbf{r}, \tau)\rangle\rangle = 0$  выполняется, когда

$$e\varphi_i^0 = -ieV_i + 2\pi nT, \quad n = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots \quad (14)$$

С другой стороны, значения функций  $\varphi_i(\mathbf{r})$  на поверхности проводников должны выражаться через коэффициенты емкости и электростатической индукции  $C_{ik}$  и полный "заряд"  $k$ -й гранулы

$$\varphi_{(in)i}^0 = \Sigma C_{ik}^{-1} \left( ie \int d\mathbf{r} \langle\langle\delta\rho_k(\mathbf{r})\rangle\rangle \right). \quad (15)$$

Действительно, в соответствии с исходными предположениями определение  $\varphi_{(ex)}$  сводится к стандартной

задаче Дирихле. Поэтому из граничных условий для  $\varphi_{(in)i}$  и  $\varphi_{(ex)}$  (11) следует искомое равенство (15).

Таким образом, с привлечением результатов (13) и (14) функциональное интегрирование в соотношении (5) позволяет представить большую статистическую сумму совокупности заряженных проводников в виде следующей простой формы:

$$\begin{aligned} Z &= Z_0 A^{-1} \exp(\epsilon\beta\Sigma N_{0i}V_i) \Sigma \exp[-i\beta/2\Sigma\varphi_i(n)\langle Q_i \rangle] \\ &= Z_0 A^{-1} \exp(\epsilon\beta\Sigma N_{0i}V_i) \Sigma \exp[-i\beta/2\Sigma C_{ik} \\ &\quad \times (-iV_i + 2\pi nT/e)(-iV_k + 2\pi mT/e)]. \end{aligned} \quad (16)$$

Показатель экспоненты в верхней строчке формы (15) формально имеет структуру выражения полной электрической энергии системы проводников, несущих на себе заряд. Поэтому неудивительно, что при пренебрежении флуктуациями числа электронов на проводниках (при фиксированных целочисленных зарядах  $\langle Q_i \rangle = e(N_i - N_{0i})$ , когда  $N_i$  уже не оператор, а число) расчет по приведенной выше схеме приводит к значению  $i\varphi_i = V_i$  и показателю экспоненты в виде классического результата для потенциальной энергии заряженных проводников. Результат (16) является "каноническим" по числу частиц, так как представляет собой след оператора с переменным числом электронов на элементах ансамбля проводящих тел. В этом случае появляется неоднозначность значений стационарных точек действия  $\varphi_i$  и, как следствие, заряда (см. (15), (14)). Этот факт находит отражение в дополнительном суммировании в форме (16) по индексам  $n$  и  $m$ .

## 2. Средний заряд элемента нанокompозита

Соотношение (16) определяет термодинамический потенциал ансамбля гранул в приближении среднего поля, а вместе в нем в том же приближении, согласно (1), и средние значения операторов  $Q_i$ . Получение компактных выражений для  $\langle Q_i \rangle$  в случае многих тел возможно лишь в некоторых предельных случаях. В важном частном случае  $C_{ik} = C_i\delta_{ik}$  ( $C_i$  — емкость  $i$ -й гранулы), т.е. в пренебрежении дальнедействующим кулоновским взаимодействием зарядов на различных гранулах, вычисления  $Z$  по формуле (16) приводят к известным результатам [3] для  $\langle Q_i \rangle$  в виде немонотонных функций напряжения. Если одинаковые металлические гранулы взаимодействуют между собой попарно, мы получим нетривиальный результат расчета связи между средним значением заряда системы и напряжением  $U$ , приведенный в [24]. Действительно, для системы из двух взаимодействующих одинаковых гранул  $N_{10} = N_{20}$ , а потенциалы гранул  $V_1 = U/2$ ,  $V_2 = -U/2$ . Отсюда и

на основании формы (16) находим, что

$$\begin{aligned} Z &= Z_0 \tilde{A}^{-1} \Sigma \exp[-a(ix/2 + \pi n/a)^2] \\ &= Z_0 \tilde{A}^{-1} \exp(x^2/4a) \theta_3[-\pi x/2, \exp(-\pi^2/a)]. \end{aligned} \quad (17)$$

Здесь  $\tilde{A}^{-1}$  — перенормированная константа  $A^{-1}$  ( $\tilde{A}^{-1} = A^{-1} \Sigma \exp[\beta C_0 (2\pi m T)^2 / 2e^2]$ , где  $C_0 = 2 \times (C_{11} + C_{12})$ ),  $x = eU/E_c$ ,  $a = T/E_c$ ,  $\theta_3(\xi, \zeta)$  — эллиптическая зета-функция.

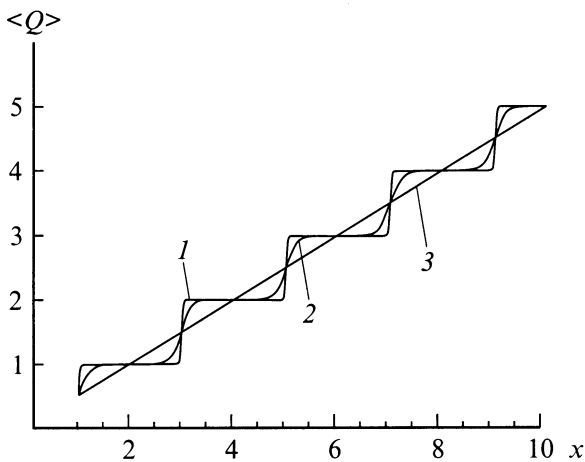
Подставляя (17) в (1), получаем, что средний заряд конденсатора

$$\langle Q \rangle = CU + ea \partial \ln \left\{ \theta_3[-\pi x/2, \exp(-\pi^2/a)] \right\} / \partial x. \quad (18)$$

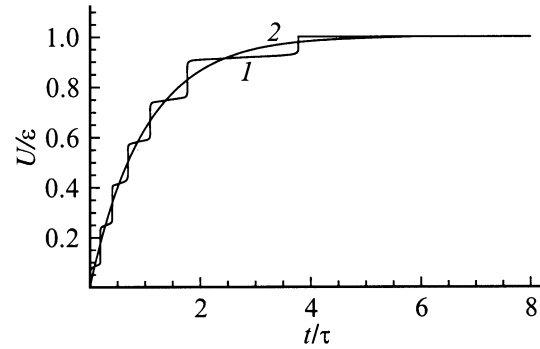
Формула (18) учитывает флуктуации электронов на гранулах, образующих обычный конденсатор (в классической электростатике  $Q = CU$ ). В предельных случаях ( $a \ll 1$  и  $a \gg 1$ ) соотношение (18) приводит к результатам работы [24]. Подчеркнем, что, когда указанная система подключается к источнику тока, флуктуации заряда на обкладках конденсатора могут происходить за счет прихода или ухода электронов в источник.

Рис. 1 демонстрирует изменение среднего заряда  $\langle Q \rangle$  в зависимости от безразмерной переменной  $x = eU/E_c$  при различных значениях параметра  $a$ . При низких температурах ( $a < 1$ ) скачки  $\langle Q \rangle$  согласуются с известными представлениями о кулоновской блокаде в одноэлектронике [27]. Заряд на конденсаторе в силу своей дискретной природы не меняется до тех пор, пока напряжение не достигает значения, соответствующего равновероятному обнаружению состояний с  $k$  и  $k + 1$  электронами. Флуктуации заряда между этими состояниями сглаживают ступеньки на зависимости  $\langle Q \rangle(x)$ . При  $a \gg 1$  система становится нечувствительной к изменению числа Ферми-частиц на единицу.

Простой численный расчет показывает, что необходимость учета дискретности носителей тока при равновесных процессах зарядки конденсатора (больших ха-



**Рис. 1.** Зависимость среднего заряда на конденсаторе от безразмерной переменной  $x = eU/E_c$  при значениях параметра  $a$ : 1 — 0.01, 2 — 0.1, 3 — 1.



**Рис. 2.** Изменение разности потенциалов на конденсаторе (безразмерные единицы) в зависимости от времени зарядки конденсатора при значениях параметра  $a$ : 1 — 0.05, 2 — 1. Принято, что заряд меняется от нуля до  $6e$ .

рактерных временах  $\tau = RC$ , где  $R$  — омическое сопротивление цепи) приводит к изменению разности напряжения на конденсаторе по сложному неэкспоненциальному закону (рис. 2). По оси ординат на рис. 2 отложена безразмерная величина  $y = U/\varepsilon$ , где  $\varepsilon$  — эдс источника, по оси абсцисс — время, нормированное на  $\tau$ . Ток зарядки конденсатора должен демонстрировать подобное "ступенчатое" поведение. Поэтому электромагнитные колебания, возникающие в колебательных контурах, содержащих конденсатор малой емкости, будут происходить во времени не по простому периодическому закону.

Вопрос о возможности выполнения и соответствии использованного приближения эксперименту состоит в оценке отношения  $r_{i \min} / \lambda_{TF}$ . Радиус Томаса-Ферми  $\lambda_{TF}$  порядка межатомного расстояния, поэтому для микрочастиц размером  $r \sim 10$  nm неравенство  $r / \lambda_{TF} \gg 1$  легко выполняется. Далее в условиях эксперимента важно добиться того, чтобы электростатическая энергия  $E_c$  была достаточно большой. Единственный параметр, которым можно управлять в определении  $E_c$ , — геометрическая емкость  $C$ . При  $C \sim 10^{-18}$  F  $E_c \sim 10^{-21}$  J. Для таких значений  $C$  квантовые свойства системы, связанные с необходимостью учета дискретности заряда, будут проявляться при температурах порядка 10 K.

В заключение отметим другие существенные аспекты проведенного выше расчета. Во-первых, мы предполагали, что ансамбль гранул в диэлектрической матрице не образует туннельную среду при отличной от нуля разности потенциалов между гранулами. Это соответствует случаю с малой прозрачностью туннельных переходов, и приближение является законным, если поправка к энергии электрона за счет туннельного оператора мала по сравнению с электростатической энергией  $E_c$ . Во-вторых, мы пренебрегали пространственным квантованием спектра электронов, так как эффекты дискретности заряда начинают проявляться с уменьшением размеров частиц раньше, чем становятся существенными эффекты квантования [28].

## Список литературы

- [1] P. Sheng, B. Abeles, M.D. Coutts, Y. Arie. *Adv. in Phys.* **24**, 408 (1975).
- [2] P. Sheng. *Phil. Mag.* **B65**, 357 (1992).
- [3] И.О. Кулик, Р.И. Шехтер. *ЖЭТФ* **68**, 623 (1975); *ФНТ* **1**, 435 (1975); *ФНТ* **2**, 21 (1976).
- [4] R.C. Dynes, J.P. Garno. *Phys. Rev. Lett.* **46**, 137 (1981).
- [5] Б.И. Белевцев, Ю.Ф. Комник, А.В. Фомин. *ФНТ* **12**, 821 (1986).
- [6] В.Д. Окунев, Н.Н. Пафомов. *ЖЭТФ* **116**, 276 (1999).
- [7] H.Z. Zeller, I. Giaver. *Phys. Rev.* **B181**, 789 (1969).
- [8] P. Sheng, B. Abeles, Y. Arie. *Phys. Rev. Lett.* **31**, 44 (1973).
- [9] J.S. Helman, B. Abeles. *Phys. Rev. Lett.* **37**, 1429 (1976).
- [10] Е.З. Мейлихов. *ЖЭТФ* **115**, 1484 (1999).
- [11] Yu.V. Nazarov. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1245 (1999).
- [12] C. Schonberger, H. van Houten, H.C. Donkerstoot. *Europhys. Lett.* **20**, 249 (1992).
- [13] W. Chen, H. Ahmed, K. Nakazoto. *Phys. Appl. Lett.* **66**, 3383 (1995).
- [14] D.V. Averin, K.K. Likharev. *J. Low Temp. Phys.* **62**, 345 (1986).
- [15] P. Delsing, T. Claeson, K.K. Likharev, L.S. Kuzmin. *Phys. Rev.* **B42**, 7439 (1990).
- [16] J. Inoue, S. Maekawa. *Phys. Rev.* **B53**, R11927 (1996).
- [17] S. Mitani, S. Takahashi, K. Takahashi, K. Yakushiji, S. Maekawa, F. Fujimori. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2799 (1998).
- [18] K. Inomata, H. Ogiwara, Y. Saito, K. Yusu, K. Ichihara. *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, L1380 (1997).
- [19] B. Abeles. *Phys. Rev.* **B15**, 2828 (1977).
- [20] E. Simanek. *Solid Stat. Commun.* **31**, 419 (1979).
- [21] К.Б. Ефетов. *ЖЭТФ* **78**, 2017 (1980); *ЖЭТФ* **87**, 971 (1985).
- [22] D.M. Wood, D. Stroud. *Phys. Rev.* **B25**, 1600 (1982).
- [23] А.Д. Заикин, С.В. Панюков. *Тр. ФИАН* **204**, 86 (1990).
- [24] Ю.М. Иванченко, Ю.В. Медведев. *ФНТ* **11**, 537 (1985).
- [25] В.Н. Попов. *Континуальные интегралы в квантовой теории поля и статистической физике*. Атомиздат, М. (1976).
- [26] Д. Пайнс. *Элементарные возбуждения в твердых телах*. Мир, М. (1965). С. 382.
- [27] Дж. Джексон. *Классическая электродинамика*. Мир, М. (1965). С. 702.
- [28] Р.И. Шехтер. *ЖЭТФ* **63**, 1410 (1972).