

03,08

Частотная зависимость угла диэлектрических потерь в неупорядоченных полупроводниках в терагерцовой области частот*

© М.А. Ормонт, И.П. Звягин

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
Москва, Россия

E-mail: ormont@phys.msu.ru

Особенности частотной зависимости вещественной части проводимости $\sigma_1(\omega)$ в области перехода от почти линейной ($s < 1$) к квадратичной ($s \approx 2$) могут служить указанием на изменение режима проводимости (переход от переменной к постоянной длине прыжка с ростом частоты); при этом резкость изменения наклона частотной характеристики связана с зависимостью предэкспоненциального множителя резонансного интеграла от межцентрового расстояния в паре. Частотная зависимость мнимой части проводимости $\sigma_2(\omega)$ не имеет особенностей в окрестности частоты перехода ω_{cr} , оставаясь почти линейной. Большая величина котангенса угла диэлектрических потерь $|\operatorname{ctg} \gamma| = |\sigma_2/\sigma_1|$ может указывать на то, что при $\omega < \omega_{cr}$ в области слабого изменения угла потерь $\gamma(\omega)$ мнимая часть проводимости определяется большим бесфононным вкладом σ_2^{res} , который существенно превосходит релаксационный σ_2^{rel} .

DOI: 10.21883/FTT.2018.05.45781.08D

1. Введение

Как известно, исследования диэлектрических потерь (в частности, измерения частотной зависимости проводимости $\sigma(\omega) = \sigma_1(\omega) + i\sigma_2(\omega)$) позволяют получить информацию о структурных особенностях материала и об особенностях явлений переноса носителей заряда в среде.

Мощность диэлектрических потерь P часто выражают через угол диэлектрических потерь γ , дополняющий до $\pi/2$ угол сдвига фаз между током и напряжением; соответственно имеем $\operatorname{tg} \gamma = \sigma_1/\sigma_2$ и $P = E_0^2 \sigma_1/2 = (E_0^2 \sigma_2/2) \operatorname{tg} \gamma$. Для многих неупорядоченных материалов (аморфные и легированные полупроводники, полупроводниковые стекла, проводящие полимеры, гранулированные проводники и т.п.) частотная зависимость вещественной части проводимости хорошо описывается степенной зависимостью

$$\sigma_1(\omega) = A\omega^s, \quad (1)$$

где A и s — постоянные. Как правило, в низкочастотной области показатель степени часто лежит в интервале $0 < s < 1$ (универсальность) [1], а с ростом частоты в зависимостях $\ln \sigma_1(\omega)$ от $\ln \omega$ наблюдается переход от почти линейного ($s \approx 1$) к квадратичному ($s \approx 2$) поведению („излом“) [2–5].

Степенная частотная зависимость (1) указывает на прыжковый характер переноса, однако универсальность зависимости $\sigma(\omega)$ существенно затрудняет получение информации о конкретных особенностях механизма переноса из вида частотной зависимости проводимости.

* Доклад на XIV Международной конференции „Физика диэлектриков“ (Санкт-Петербург, 29 мая–2 июня 2017 г.).

Материалы конференции частично опубликованы в выпуске № 3 за 2018 г. журнала „Физика твердого тела“.

По этой причине важную роль приобретают исследования отклонений частотной зависимости проводимости от универсальности и установление их связи с особенностями механизма переноса и со структурными особенностями материала.

Существующие теории прыжковой проводимости при переменном токе по локализованным состояниям примесной зоны предсказывают степенные частотные зависимости проводимости (1). В частности, показатель степени $s \approx 1$ получается в случае релаксационной проводимости с участием фононов при условии, что плотность состояний постоянна, а характерная длина прыжка существенно превышает радиус локализованных состояний [6–8]. Близкий к $s \approx 1$ показатель степени получается при низких частотах и в случае бесфононной (резонансной) прыжковой проводимости при учете кулоновских корреляций локализованных носителей [9]. Теория бесфононной проводимости предсказывает переход (кроссовер) от линейной частотной зависимости вещественной части проводимости (с $s \approx 1$) к зависимости, близкой к квадратичной (с $s \approx 2$ [10]) в области частот порядка ω_{cr} , при которых $\hbar\omega$ становится порядка энергии кулоновского взаимодействия между электронами внутри резонансных пар; при более низких частотах вещественная часть проводимости определяется фононным механизмом, а с ростом частоты бесфононный вклад в проводимость $\sigma^{res}(\omega)$ начинает преобладать над релаксационным $\sigma^{rel}(\omega)$.

Низкотемпературные измерения (при $T \sim 1$ К) частотной зависимости проводимости в легированном кремнии (Si:B [2], Si:P [3–5]) на изоляторной стороне перехода металл–диэлектрик и в металлических нанокompозитах [11] показали, что с ростом частоты зависимость вещественной части проводимости $\sigma_1(\omega)$ (1) переходит от линейной к квадратичной. В Si:P этот переход происходит при частотах порядка $\nu_{cr} \sim 1$ THz [3–5].

С учетом кулоновского взаимодействия между электронами на резонансных парах центров выражение для бесфононной проводимости по локализованным состояниям примесной зоны имеет вид [9]

$$\sigma_1^{\text{res}}(\omega) = \frac{1}{3} \pi^2 e^2 a g_F^2 r_\omega^4 \omega (\hbar\omega + U(r_\omega)), \quad (2)$$

где $U(r_\omega) = \frac{e^2}{\kappa r_\omega}$ — энергия кулоновского взаимодействия между электронами на резонансной паре центров, $r_\omega = a \ln(\omega_c/\omega)$ — характерная длина прыжка на частоте ω , a — радиус локализации волновой функции, $\omega_c = 2I_0/\hbar$ — критическая частота, $I_0 \sim e^2/\kappa a$ — предэкспоненциальный множитель в выражении для резонансного интеграла (порядка энергии ионизации примеси), κ — диэлектрическая проницаемость среды, а g_F — плотность локализованных состояний на уровне Ферми.

Частотная зависимость характерной длины прыжка r_ω в режиме резонансной проводимости связана с гибридизацией электронных состояний. Согласно теории [9,10], из-за гибридизации волновых функций изолированной пары центров и соответствующего ей отталкивания уровней, наибольший вклад в бесфононную проводимость вносят пары центров, для которых межцентровые расстояния $r_{\lambda\lambda'}$ удовлетворяют неравенствам $r_\omega \leq r_{\lambda\lambda'} \leq r_\omega + a$; при $r_{\lambda\lambda'} < r_\omega$ отталкивание уровней за счет гибридизации состояний приводит к тому, что $\varepsilon_{\lambda\lambda'}^+ - \varepsilon_{\lambda\lambda'}^- > \hbar\omega$, и резонансные переходы невозможны. В случае достаточно большого разброса энергий уровней, при условии $|\varepsilon_{\lambda''}^0 - \varepsilon_\lambda^0| \gg |I_{\lambda,\lambda''}|$, $|\varepsilon_{\lambda''}^0 - \varepsilon_{\lambda'}^0| \gg |I_{\lambda',\lambda''}|$ пары центров λ, λ' с близкими энергиями $\varepsilon_\lambda^0 \approx \varepsilon_{\lambda'}^0$ можно считать изолированными; при учете гибридизации локализованных электронных состояний в таких парах перекрытием волновых функций центров λ, λ' с другими центрами λ'' можно пренебречь. Характерная длина прыжка r_ω в парном приближении на частоте ω определяется из условия $\hbar\omega = 2I_{\lambda,\lambda'}(r_\omega)$, где $I_{\lambda,\lambda'} = I_0 \exp(-r_{\lambda\lambda'}/a)$ — резонансный интеграл, а λ — номер центра. Следует отметить, что характерная длина прыжка r_ω определяется тем, что область значений $\varepsilon_{\lambda\lambda'}^+ - \varepsilon_{\lambda\lambda'}^-$ ограничена снизу величиной $2I(r_{\lambda\lambda'})$. Ограничение существенно, когда разность затравочных энергий $\varepsilon_\lambda^0 - \varepsilon_{\lambda'}^0$ по абсолютной величине меньше $2I_{\lambda,\lambda'}$. С ростом частоты ω характерная длина прыжка r_ω уменьшается.

Область применимости теории бесфононной проводимости [9,10] по частоте ограничивается сверху критической частотой $\omega_c > \omega$, при которой характерная длина прыжка r_ω становится порядка радиуса локализации состояний (формально при $\omega = \omega_c$ характерная длина прыжка r_ω обращается в нуль).

Из выражения (2) видно, что при малых частотах, когда кулоновская энергия превышает энергию кванта электромагнитного поля $\hbar\omega < U(r_\omega)$, для низкотемпературной бесфононной проводимости имеем частотную

зависимость типа

$$\sigma_1^{\text{res}}(\omega) = \frac{1}{3} \pi^2 e^2 a g_F^2 r_\omega^4 \omega U(r_\omega), \quad (3)$$

которую можно аппроксимировать сублинейной степенной функцией $\sigma = A\omega^s$ с показателем $s < 1$, а при $\hbar\omega > U(r_\omega)$ мы получаем зависимость, близкую к квадратичной,

$$\sigma_1^{\text{res}}(\omega) = \frac{1}{3} \pi^2 e^2 a g_F^2 r_\omega^4 \hbar\omega^2. \quad (4)$$

Соотношения (3), (4) описывают линейную и квадратичную частотные зависимости бесфононной прыжковой проводимости (с точностью до логарифмических поправок).

Поскольку r_ω слабо (логарифмически) зависит от частоты, переход (кроссовер) от сублинейной частотной зависимости вещественной части проводимости к квадратичной в (2) происходит при частоте кроссовера ω_{cr} , определяемой из условия $\hbar\omega_{\text{cr}} = U(r_{\omega_{\text{cr}}})$, когда энергия кванта электромагнитного поля $\hbar\omega$ становится равной кулоновской энергии $U(r_\omega)$. Согласно (2), в области кроссовера теория [9] предсказывает плавный переход от линейной частотной зависимости (3) проводимости, связываемой с режимом кулоновского стекла для взаимодействующих электронов, к квадратичной (4) в режиме ферми-стекла для невзаимодействующих электронов.

Сравнение с экспериментом. Одна из трудностей существующей теории [9] состоит в том, что наблюдаемый на опыте переход от линейной к квадратичной частотной зависимости вещественной части проводимости оказывается значительно более резким, чем предсказывает теория [2–5].

В [3] были проведены измерения угла диэлектрических потерь γ для легированного кремния Si:P в области $\omega < \omega_{\text{cr}}$ и было найдено, что измеренные частотные зависимости вещественной и мнимой частей проводимости близки $|\sigma_2(\omega)| \sim \sigma_1(\omega) \sim \omega^s$ ($s \approx 1$). При этом угол потерь $\gamma(\omega)$ слабо зависит от частоты, а частотная зависимость мнимой части проводимости $\sigma_2(\omega)$ остается почти линейной. Соответственно, излом на графике зависимости $\ln(\sigma_1(\omega))$ от $\ln \omega$, отвечающий переходу от линейной к квадратичной частотной зависимости $\sigma_1(\omega)$, проявляется и на частотной зависимости величины $\text{ctg} \gamma(\omega)$. Кроме того, оказалось, что в области слабой частотной зависимости $\gamma(\omega)$ при $\omega < \omega_{\text{cr}}$ измеренное отношение $|\sigma_2(\omega)|/\sigma_1(\omega) \sim 10^2$ превосходит значение, даваемое теорией релаксационной проводимости, более, чем в 30 раз [12]. Возможная причина этого связана с тем, что проводимость определяется двумя вкладами — резонансным (бесфононным) $\sigma^{\text{res}}(\omega)$ и релаксационным $\sigma^{\text{rel}}(\omega)$; соответственно $\text{ctg}(\gamma) = (\sigma_2^{\text{res}} + \sigma_2^{\text{rel}})/(\sigma_1^{\text{res}} + \sigma_1^{\text{rel}})$.

2. Влияние гибридизации электронных состояний на высокочастотную проводимость неупорядоченных полупроводников

Как было отмечено выше, наблюдаемый на опыте переход от линейной к квадратичной частотной зависимости вещественной части проводимости $\sigma_1(\omega)$ оказывается существенно более резким, чем предсказывает теория. При этом подход, основанный на парном приближении, предсказывает немонотонность частотной зависимости бесфононной проводимости $\sigma_1(\omega)$ и появление плавного максимума на частоте $\omega_m = K\omega_c$, где $K \approx 0.065$ [13].

Немонотонность частотной зависимости проводимости $\sigma_1(\omega)$ определяется двумя конкурирующими тенденциями. Рост $\sigma_1(\omega)$ с частотой определяется увеличением энергии поглощаемого кванта $\hbar\omega$ и увеличением числа исходных центров $\sim g(\hbar\omega + U(r_\omega))$. Уменьшение $\sigma_1(\omega)$ с частотой определяется уменьшением квадрата изменения дипольного момента системы $(er_\omega)^2$ и уменьшением числа конечных центров $\sim gS_\omega a$, где $S_\omega a = 4\pi r_\omega^2 a$ — объем сферического слоя, в который происходят переходы.

Согласно [13], переход на падающий участок кривой $\sigma_1(\omega)$ происходит до того, как достигается область квадратичной зависимости $s \approx 2$. Соответственно вплоть до частоты ω_m , отвечающей максимуму $\sigma_1(\omega)$, кулоновское взаимодействие между электронами „активных“ пар играет основную роль $U(r_\omega) = e^2/kr_\omega > \hbar\omega$, и частотная зависимость $\sigma_1(\omega)$ остается близкой к линейной $s \approx 1$. Однако экспериментально наблюдаемое поведение проводимости $\sigma_1(\omega)$ в области перехода от линейной к квадратичной частотной зависимости не согласуется с предсказываемой теорией немонотонностью [2–5]. Таким образом, в рамках стандартных представлений о переменной длине прыжка r_ω , зависящей от частоты, теория резонансной проводимости не описывает наблюдаемый переход от линейной к квадратичной частотной зависимости проводимости $\sigma_1(\omega)$.

Наблюдаемый излом на кривых зависимости $\ln \sigma_1(\omega)$ от $\ln(\omega)$ может быть связан с переходом к режиму проводимости с постоянной (не зависящей от частоты) длиной прыжка, определяемой параметрами системы [14]. В этом случае оптимальная длина прыжка r_{opt} перестает зависеть от частоты за счет уменьшения гибридизации электронных состояний: с ростом частоты основной вклад в проводимость начинают вносить пары центров, в которых электрон не успевает гибридизоваться. Гибридизация характеризуется частотой Раби $\omega_R = 2I(r_{\lambda\lambda'})/\hbar$. При этом для пар с межцентровыми расстояниями $r_{\lambda\lambda'} \geq r_\omega$ частота Раби меньше частоты поля, т.е. $\omega_R < \omega$, и в этом случае эффекты гибридизации несут существенны. При высоких частотах, когда эффекты гибридизации несут существенны и оптимальная длина прыжка r_{opt} не зависит от частоты, выражение для

проводимости принимает вид [15]

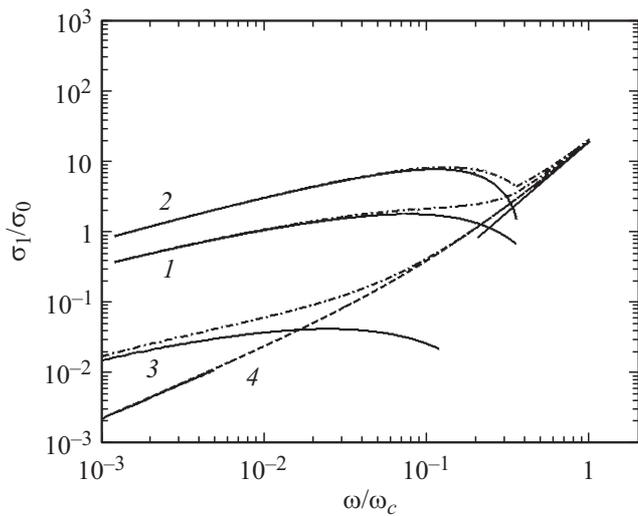
$$\sigma_1^{\text{res}}(\omega) = \frac{\pi^2}{3} C_1 e^2 \rho_0^2 a^5 \omega \left(\hbar\omega + \frac{e^2}{kr_{\text{opt}}} \right), \quad (5)$$

где $C_1 \approx 10$ — численный множитель, ρ_0 — одночастичная плотность состояний (считается постоянной). Независящая от частоты характерная длина прыжка r_{opt} обуславливает монотонный характер частотной зависимости вещественной части проводимости. Существование оптимального расстояния r_{opt} между центрами в парах обусловлено тем, что с уменьшением расстояния между центрами в паре уменьшается и изменение дипольного момента системы при электронном переходе, а с увеличением расстояния между центрами происходит экспоненциальное уменьшение перекрытия волновых функций состояний, отвечающих центрам локализации.

Согласно (5), переход от линейной частотной зависимости вещественной части проводимости к квадратичной с повышением частоты происходит при частоте $\omega \sim \omega_{\text{cr}}$, где частота кроссовера ω_{cr} определяется равенством $\hbar\omega_{\text{cr}} = U(r_{\text{opt}}) = e^2/kr_{\text{opt}}$, т.е. $\omega_{\text{cr}} \sim 0.1\omega_c$; при $a \approx 30 \text{ \AA}$ частота кроссовера порядка $\nu_{\text{cr}} = \omega_{\text{cr}}/2\pi \sim 1 \text{ THz}$ [15].

В некоторых работах (в экспериментах на Si:P [4,5]) наблюдалась суперлинейность ($s > 1$) частотной зависимости проводимости в области частот $\omega < \omega_{\text{cr}}$; это не согласуется с предсказываемой теорией сублинейностью ($s < 1$) (релаксационной [6–8] и бесфононной [9] компонент) в области промежуточных частот. В работах [4,9] суперлинейность частотной зависимости низкотемпературной проводимости неупорядоченных полупроводников в области частот $\omega < \omega_{\text{cr}}$ интерпретировалась как проявление кулоновской щели, возникающей в одночастичной плотности состояний, описывающей распределение самосогласованных энергий взаимодействующих локализованных носителей заряда в основном состоянии системы. В работе [16] отмечалось, однако, что суперлинейность и монотонность экспериментально измеренных частотных зависимостей проводимости $\sigma_1(\omega)$ в переходной области частот может быть обусловлена не кулоновской щелью в одночастичной плотности состояний, а постоянной (не зависящей от частоты) оптимальной длиной прыжка и определяющей ролью резонансного механизма проводимости. Оптимальная длина прыжка при этом отвечает переходам вне кулоновской щели.

С ростом частоты характерная длина прыжка r_ω уменьшается, и в области высоких частот происходит переход к режиму проводимости с постоянной длиной прыжка, когда основной вклад в проводимость вносят электронные переходы внутри пар с оптимальными межцентровыми расстояниями r_{opt} , слабо зависящими от частоты. Переход к режиму проводимости с постоянной длиной прыжка r_{opt} происходит при $r_{\text{opt}} \approx r_\omega$ (где $r_{\text{opt}} \sim 3a$), т.е. при частоте $\omega_{\text{opt}} = \exp(-3)\omega_c \approx 0.05\omega_c$, и отвечает окрестности частоты кроссовера $\omega_{\text{cr}} \approx 0.1\omega_c$ [14]. Частота ω_{opt} , при



Частотные зависимости вещественной части проводимости σ_1/σ_0 : кривая 1 — подход на основе теории бесфононной проводимости в режиме с переменной длиной прыжка r_ω без учета зависимости предэкспоненциального множителя резонансного интеграла от межцентрового расстояния в паре, т.е. с постоянным предэкспоненциальным множителем; кривая 2 — подход на основе теории бесфононной проводимости в режиме с переменной длиной прыжка \tilde{r}_ω с учетом зависимости предэкспоненциального множителя резонансного интеграла от межцентрового расстояния в паре; кривая 3 — частотная зависимость релаксационной проводимости (28) с переменной длиной прыжка \tilde{r}_ω ; кривая 4 — проводимость в режиме с постоянной длиной прыжка; отрезки по краям, обозначенные сплошной линией, приведены для наглядности и соответствуют линейной и квадратичной частотным зависимостям. Штрихпунктирные кривые — экстраполяции моделей с переменной длиной прыжка (соответственно с постоянной предэкспонентой у резонансного интеграла и с предэкспонентой, зависящей от межцентрового расстояния) на область квадратичной частотной зависимости в режиме проводимости с постоянной длиной прыжка (кривая 4). Проводимость приведена в безразмерном виде, где $\sigma_0 = \frac{\pi^2 e^4 \rho_0^2 a^4 \omega_c}{3\kappa}$.

которой происходит переход к режиму с постоянной длиной прыжка r_{opt} , соответствует положению максимума $\sigma_1(\omega)$ в стандартной теории бесфононной проводимости с переменной длиной прыжка. В области частот, где $r_{opt} > r_\omega$, эффекты, связанные с гибридизацией локализованных состояний, становятся несущественны; при этом происходит переход от проводимости в режиме с переменной длиной прыжка к проводимости в режиме с постоянной длиной прыжка. Соответственно, ослабление гибридизации при высоких частотах обуславливает переход от линейной к квадратичной частотной зависимости бесфононной проводимости в терагерцовом диапазоне частот в окрестности ω_{cr} (рисунок).

В [17] было исследовано влияние эффектов гибридизации электронных состояний на высокочастотную проводимость неупорядоченных полупроводников, связанное со степенной зависимостью предэкспоненциаль-

ного множителя резонансного интеграла. В случае, когда расстояние между центрами в паре больше радиуса локализации, т.е. $r_{\lambda,\lambda'} > a$, величины матричных элементов переноса для изотропного закона дисперсии равны

$$s_{\lambda,\lambda'} \approx (r_{\lambda,\lambda'}/a)^2 \exp(-r_{\lambda,\lambda'}/a), \quad (6)$$

$$I_{\lambda,\lambda'} \approx (e^2/\kappa a)(r_{\lambda,\lambda'}/a) \exp(-r_{\lambda,\lambda'}/a), \quad (7)$$

где $I_{\lambda,\lambda'} \approx \langle \psi_\lambda | e^2/\kappa | \mathbf{r} - \mathbf{r}_\lambda | \psi_{\lambda'} \rangle$ — резонансный интеграл, $s_{\lambda,\lambda'} = \langle \psi_{\lambda'} | \psi_\lambda \rangle$ — интеграл неортогональности, $\psi_\lambda = (1/\sqrt{\pi a^3}) \exp(-|\mathbf{r} - \mathbf{r}_\lambda|/a)$ — волновая функция, отвечающая основному состоянию электрона на примеси. Из выражений (6), (7) видно, что предэкспоненциальные множители резонансного интеграла и интеграла неортогональности в случае водородоподобных центров зависят от расстояния между центрами степенным образом. Действительно, при большом межцентровом расстоянии в паре $r_{\lambda,\lambda'} \gg a$ основной вклад в резонансный интеграл $I_{\lambda,\lambda'}$ и интеграл неортогональности $s_{\lambda,\lambda'}$ дает интегрирование по сигарообразной области, вытянутой вдоль отрезка $r_{\lambda,\lambda'}$, внутри которой произведение волновых функций $\psi_\lambda \psi_{\lambda'}$ можно считать постоянным и равным

$$\psi_\lambda \psi_{\lambda'} \approx (1/a^3) \exp(-r_{\lambda,\lambda'}/a). \quad (8)$$

Степенная зависимость предэкспоненциальных множителей в интегралах $I_{\lambda,\lambda'}$, $s_{\lambda,\lambda'}$ от межцентрового расстояния $r_{\lambda,\lambda'}$ определяется объемом сигарообразной области, увеличивающимся с ростом межцентрового расстояния. Учет этой зависимости приводит к увеличению длины прыжка $\tilde{r}_\omega > r_\omega$ и, как следствие, проводимости. С учетом предэкспоненциального множителя длина прыжка \tilde{r}_ω на частоте ω определяется из условия $\hbar\omega = 2\tilde{I}_{\lambda,\lambda'}(\tilde{r}_\omega)$, где $\tilde{I}_{\lambda,\lambda'} \approx \frac{e^2 r_{\lambda,\lambda'}}{\kappa a} \exp(-r_{\lambda,\lambda'}/a)$. Область частот $\omega < \omega_c$ соответствует неравенствам $r_\omega, \tilde{r}_\omega > a$; при этом с ростом частоты ω длина прыжка \tilde{r}_ω уменьшается и по мере приближения к частоте кроссовера ω_{cr} стремится к величине r_ω . Пары с межцентровыми расстояниями $r_{\lambda\lambda'} < r_\omega, \tilde{r}_\omega$ не дают вклада в проводимость, поскольку отталкивание уровней становится большим $\hbar\omega$ и переходы невозможны. Немонотонность поведения $\sigma_1(\omega)$ сохраняется и при учете зависимости предэкспоненциального множителя резонансного интеграла $\tilde{I}_{\lambda,\lambda'}$ от межцентрового расстояния в паре (рисунок). Сублинейность ($s < 1$) частотной зависимости $\sigma_1(\omega)$ в области $\omega < \omega_{cr}$ и ее немонотонность обусловлены частотной зависимостью характерных длин прыжка $r_\omega, \tilde{r}_\omega$.

Учет степенной зависимости предэкспоненциального множителя резонансного интеграла $\tilde{I}_{\lambda,\lambda'}$ от расстояния между центрами в паре приводит к существенному уменьшению относительного вклада бесфононной компоненты проводимости в режиме с переменной длиной прыжка в области перехода к режиму проводимости с постоянной длиной прыжка. Такое поведение частотной

зависимости проводимости $\tilde{\sigma}_1^{\text{res}}(\omega)$ обусловлено увеличением длины прыжка $\tilde{r}_\omega > r_\omega$, и соответственно величины проводимости и связано с быстрым уменьшением длины прыжка \tilde{r}_ω с ростом частоты в области перехода [17].

Таким образом, особенности частотной зависимости проводимости $\sigma_1(\omega)$ в области перехода от сублинейности ($s < 1$) к суперлинейности ($s \approx 2$) могут служить указанием на изменение режима проводимости (переход от переменной к постоянной длине прыжка с ростом частоты); при этом резкость изменения наклона частотной характеристики связана с зависимостью предэкспоненциального множителя резонансного интеграла $\tilde{I}_{\lambda,\lambda'}$ от межцентрового расстояния в паре.

В случае мелких примесных уровней (например, для Si:P, Si:B) эффекты гибридизации электронных состояний незначительны в диапазонах $\omega \ll \omega_{\text{cr}}$ и $\omega > \omega_{\text{cr}}$. В области частот $\omega \ll \omega_{\text{cr}}$ резонансный интеграл мал: $I_{\lambda,\lambda'}(\tilde{r}_\omega) < kT$, и для характерной длины прыжка при релаксационной проводимости имеем $\tilde{r}_\omega = (a/2) \ln(\omega_{\text{ph}}/\omega)$, где $\omega_{\text{ph}} \sim 10^{12}$ rad/s. С ростом частоты (т.е. с уменьшением характерных длин прыжка $\tilde{r}_\omega, r_\omega$) резонансная проводимость начинает преобладать над релаксационной, т.е. $\sigma_1(\omega) \approx \sigma_1^{\text{res}}(\omega)$. В области $\omega > \omega_{\text{cr}}$, отвечающей $r_\omega < r_{\text{opt}} \approx 3a$, происходит уменьшение гибридизации и основной вклад в проводимость вносят переходы внутри пар центров с межцентровыми расстояниями порядка r_{opt} , не зависящими от частоты.

3. Применение соотношений Крамерса–Кронига для анализа электрических свойств неупорядоченных полупроводников

Как известно, диэлектрическая спектроскопия служит одним из методов получения информации об особенностях механизмов переноса носителей заряда и о локальной структуре материала [18,19]. Получение указанной информации связано с исследованием частотных зависимостей функций линейного отклика среды: комплексной диэлектрической восприимчивости $\alpha(\omega) = \alpha_1(\omega) + i\alpha_2(\omega)$, комплексной проницаемости $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)$ и комплексной проводимости $\sigma(\omega) = \sigma_1(\omega) + i\sigma_2(\omega)$.

Анализ частотных зависимостей функций $\varepsilon(\omega)$, $\alpha(\omega)$, $\sigma(\omega)$ неупорядоченных систем в изоляторном состоянии $\sigma_{\text{dc}} = 0$ часто основывается на соотношениях Крамерса–Кронига (см., например, [3]). Согласно соотношениям Крамерса–Кронига, вещественная и мнимая части функций $\alpha(\omega)$, $\varepsilon(\omega)$, $\sigma(\omega)$ не являются независимыми: спектры вещественной и мнимой частей взаимосвязаны; это дает возможность восстановления функций линейного отклика $\alpha(\omega)$, $\varepsilon(\omega)$, $\sigma(\omega)$ среды по одной из их частей. Дисперсионные соотношения Крамерса–Кронига для комплексной проводимости

$\sigma(\omega)$ в отсутствие проводимости на постоянном токе $\sigma_{\text{dc}} = 0$ имеют вид

$$\sigma_1(\omega) = \frac{\omega}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\sigma_2(\omega')}{\omega'(\omega' - \omega)} d\omega', \quad (9.1)$$

$$\sigma_2(\omega) = -\frac{\omega}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\sigma_1(\omega')}{\omega'(\omega' - \omega)} d\omega'; \quad (9.2)$$

где $P \int_{-\infty}^{+\infty}$ — интеграл в смысле главного значения; при этом рассматриваются материалы, не имеющие собственного дипольного момента: $\mathbf{P}(\mathbf{E} = \mathbf{0}) = \mathbf{0}$. Соотношения Крамерса–Кронига для диэлектрической проницаемости $\varepsilon(\omega)$ и восприимчивости $\alpha(\omega)$ следуют из (9.1), (9.2), с учетом равенств $\varepsilon = 1 + 4\pi\alpha$ и $\sigma = -i\omega\alpha$.

Согласно соотношению (9.2), при $0 < s < 1$ степенной частотной зависимости вещественной части проводимости (1) с постоянным показателем степени соответствует такая же частотная зависимость ее мнимой части [20]

$$\sigma_2(\omega) = -\sigma_1(\omega) \operatorname{tg}(\pi s/2); \quad (10)$$

при этом комплексную проводимость можно представить в виде $\sigma = A_1(-i\omega)^s$, где $\sigma_1 = A_1\omega^s \cos(\pi s/2)$, $\sigma_2 = -A_1\omega^s \sin(\pi s/2)$. Соотношение (10) было использовано в [3] для анализа поведения комплексной проводимости в области не слишком высоких частот $\omega < \omega_{\text{cr}}$, где $|\sigma_2(\omega)| \sim \sigma_1(\omega) \sim \omega^s$ с показателем степени $s < 1$.

Согласно соотношениям Крамерса–Кронига, вещественная и мнимая части комплексной проводимости $\sigma(\omega)$, так же, как и части комплексной диэлектрической восприимчивости $\alpha(\omega)$, имеют одинаковые частотные зависимости, т.е. их отношение слабо зависит от частоты и определяется показателем степени s

$$\frac{\sigma_2(\omega)}{\sigma_1(\omega)} = -\frac{\alpha_1(\omega)}{\alpha_2(\omega)} = -\operatorname{tg}\left(\frac{\pi s}{2}\right), \quad (11)$$

где

$$\alpha_1(\omega) = -\sigma_2(\omega)/\omega = A\omega^{s-1} \operatorname{tg}(\pi s/2), \quad (12.1)$$

$$\alpha_2(\omega) = \sigma_1(\omega)/\omega = A\omega^{s-1}, \quad (12.2)$$

$$\alpha_1(\omega), \alpha_2(\omega) \sim \omega^{s-1}, \quad \sigma_1(\omega), \sigma_2(\omega) \sim \omega^s, \quad 0 < s < 1.$$

Из (11) с учетом $\operatorname{ctg}(\gamma) = \sigma_2(\omega)/\sigma_1(\omega)$ следует, что при $s < 1$ угол диэлектрических потерь γ не зависит от частоты

$$\operatorname{ctg}(\gamma) = \frac{\sigma_2(\omega)}{\sigma_1(\omega)} = -\operatorname{tg}\left(\frac{\pi s}{2}\right). \quad (13)$$

При значениях s , близких к единице, имеем $\frac{\sigma_2(\omega)}{\sigma_1(\omega)} \approx -\frac{2}{\pi(1-s)}$, $|\sigma_2|/\sigma_1 \gg 1$, т.е. $\gamma \approx 0$. Согласно (12), случаю малых энергетических потерь ($1 \gtrsim s$, $\gamma \approx 0$, $\operatorname{tg}(\gamma) \ll 1$) отвечает слабая частотная зависимость комплексной диэлектрической восприимчивости $\alpha(\omega) \sim \omega^{s-1}$.

Для частотных зависимостей вещественной и мнимой частей комплексной проводимости теория дает выражения вида $\omega^m \ln^n(\omega_{c,ph}/\omega)$ (где n, m — целые числа, $\omega_{c,ph}$ — характерная частота), которые не аппроксимируются степенной функцией с постоянным показателем степени s . Характерная фононная частота ω_{ph} представляет собой частоту попыток перехода электрона при релаксационной прыжковой проводимости; ω_c есть частота попыток перехода электрона при резонансной проводимости.

4. Расчет частотной зависимости угла потерь неупорядоченных полупроводников в области кроссовера

Согласно [21], выражение для бесфононной проводимости неупорядоченной изотропной системы имеет вид

$$\sigma_2^{\text{res}}(\omega) = \frac{ie^2\omega}{V_0} \sum_{\substack{\{if\} \\ i \neq f}} | \langle i | (\mathbf{n}, \mathbf{r}) | f \rangle |^2 \frac{(n_F(\varepsilon_i) - n_F(\varepsilon_f))}{(\hbar\omega - \Delta H_{if} + i\beta)}, \quad (14)$$

где i, f — номера центров локализации, V_0 — объем системы, \mathbf{n} — единичный вектор параллельный внешнему электрическому полю, $n_F(\varepsilon)$ — средние числа заполнения состояний с энергией ε ;

$$\Delta H_{if} = \varepsilon_f - \varepsilon_i - \frac{e^2}{kr_{if}} = \varphi_f - \varphi_i \quad (15)$$

— изменение энергии неупорядоченной системы при одноэлектронном переходе из начального состояния i в конечное состояние f , r_{if} — расстояние между центрами i и f , φ_i, φ_f — энергии электрона в состояниях i, f , $\varepsilon_i, \varepsilon_f$ — самосогласованные энергии электрона, отвечающие состояниям i, f [22]. Выражение (14) получено с использованием адиабатической гипотезы; здесь β — малая положительная величина, отвечающая адиабатически медленно возрастающему электрическому полю $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t + \frac{\beta}{\hbar} t)$. Выполнив согласно стандартной процедуре предельный переход $\lim_{\beta \rightarrow 0}$, имеем

$$\frac{1}{(\hbar\omega - \Delta H_{if} + i\beta)} = P \frac{1}{\hbar\omega - \Delta H_{if}} - i\pi\delta(\hbar\omega - \Delta H_{if}), \quad (16)$$

где P — интеграл в смысле главного значения.

Соответственно вещественная и мнимая части бесфононной проводимости равны

$$\sigma_1^{\text{res}}(\omega) = \frac{\pi e^2 \omega}{V_0} \times \sum_{\substack{\{if\} \\ i \neq f}} | \langle i | (\mathbf{n}, \mathbf{r}) | f \rangle |^2 (n_F(\varepsilon_i) - n_F(\varepsilon_f)) \delta(\Delta H_{if} - \hbar\omega), \quad (17.1)$$

$$\sigma_2^{\text{res}}(\omega) = \frac{e^2 \omega}{V_0} \sum_{\substack{\{if\} \\ i \neq f}} | \langle i | (\mathbf{n}, \mathbf{r}) | f \rangle |^2 \frac{(n_F(\varepsilon_i) - n_F(\varepsilon_f))}{(\hbar\omega - \Delta H_{if})}, \quad (17.2)$$

причем при переходе к интегрированию в (17.2) следует рассматривать интеграл в смысле главного значения.

При $r_{if} > a$ выражение для матричного элемента принимает вид

$$\langle i | (\mathbf{n}, \mathbf{r}) | f \rangle = \langle \psi_i | (\mathbf{n}, \mathbf{r}) | \psi_f \rangle \approx \frac{r_{if}^3}{a^2} \exp(-r_{if}/a) \cos \theta, \quad (18)$$

где θ — угол между векторами \mathbf{n} и \mathbf{r}_{if} . Матричный элемент имеет максимум при $r_{if} = 3a$; соответственно основной вклад в мнимую часть проводимости (17.2) вносят слагаемые с $r_{if} \sim r_{\text{opt}} > a$ и (17.2) можно записать в виде

$$\sigma_2^{\text{res}}(\omega) \approx \frac{e^2 \omega}{V_0} \sum_{\substack{\{if\} \\ i \neq f}} | \langle i | (\mathbf{n}, \mathbf{r}) | f \rangle |^2 \frac{(n_F(\varepsilon_i) - n_F(\varepsilon_f))}{\left(\varepsilon_i - \varepsilon_f + \frac{e^2}{kr_{\text{opt}}} + \hbar\omega\right)}. \quad (19)$$

Переходя в (19) от суммирования по парам к интегрированию по энергиям и пространственным координатам центров, имеем

$$\sigma_2^{\text{res}}(\omega) \approx e^2 \omega \rho_0^2 \times \iiint d\varepsilon_i d\varepsilon_f d\mathbf{r}_{if} | \langle i | (\mathbf{n}, \mathbf{r}) | f \rangle |^2 \frac{(n_F(\varepsilon_i) - n_F(\varepsilon_f))}{(\varepsilon_i - \varepsilon_f + \hbar\omega_1)}, \quad (20)$$

где $\hbar\omega_1 \equiv \frac{e^2}{kr_{\text{opt}}} + \hbar\omega$.

Ширину примесной зоны локализованных состояний δ можно считать существенно большей ширины кулоновской щели. Напомним, что кулоновская щель, возникающая в одночастичной плотности состояний $\rho(\varepsilon)$, описывающей распределение самосогласованных энергий взаимодействующих локализованных носителей заряда в основном состоянии системы, является следствием дальнедействующего характера кулоновского взаимодействия [23]. Оптимальная длина прыжков, вносящих основной вклад в проводимость, соответствует переходам между состояниями с энергиями, лежащими вне кулоновской щели. Соответственно, в случае столбовидной модели плотности состояний кулоновские эффекты, приводящие к появлению кулоновской щели, играют малую роль.

Интегралы по энергии в переходной области частот $\omega \sim \omega_c$, отвечающей случаю

$$\hbar\omega_1 = \frac{e^2}{kr_{\text{opt}}} + \hbar\omega < \delta,$$

равны

$$\iint d\varepsilon_i d\varepsilon_f \frac{(n_F(\varepsilon_i) - n_F(\varepsilon_f))}{(\varepsilon_i - \varepsilon_f + \hbar\omega_1)} \approx -\delta; \quad (21)$$

при этом мы считаем, что уровень Ферми μ находится глубоко в примесной зоне.

Подставляя (18) в (20), получаем, что интеграл по пространственным координатам центров в (20) равен

$$\int d\mathbf{r} |\langle i | (\mathbf{n}, \mathbf{r}) | f \rangle|^2 \approx C_0 a^5 \approx r_{\text{opt}}^5, \quad (22)$$

где $C_0 = 315$.

Из вида функции (18) следует, что максимум подынтегрального выражения в (24) достигается при значении $r_{if} = 4a$ и основной вклад в мнимую часть проводимости (17.2) вносят слагаемые с $r_{if} \sim 4a \sim r_{\text{opt}}$; при этом (22) не зависит от частоты.

С учетом равенств (21) и (22), в переходной области частот $\omega \sim \omega_{\text{cr}}$, где $\hbar\omega_1 = \frac{e^2}{\kappa r_{\text{opt}}} + \hbar\omega \ll \delta$, выражение для мнимой части бесфононной проводимости (17.2) принимает вид

$$\sigma_2^{\text{res}}(\omega) \approx -e^2 \omega \rho_0^2 r_{\text{opt}}^5 \delta. \quad (23)$$

Согласно (23), частотная зависимость мнимой части резонансной проводимости σ_2^{res} близка к линейной и имеет емкостной характер (отрицательна).

В режиме с постоянной длиной прыжка, согласно (5), (23), выражение для $\text{ctg}(\gamma)$ имеет вид

$$\text{ctg}(\gamma) = \frac{\sigma_2^{\text{res}}}{\sigma_1^{\text{res}}} \approx -10 \frac{\delta}{\hbar\omega_{\text{cr}}} \frac{1}{(1 + \omega/\omega_{\text{cr}})}, \quad (24)$$

где $\hbar\omega_{\text{cr}} = e^2/\kappa r_{\text{opt}}$; в области $\omega < \omega_{\text{cr}}$ отношение $\sigma_2^{\text{res}}/\sigma_1^{\text{res}}$ постоянно и равно $\text{ctg} \gamma \approx -10\delta/\hbar\omega_{\text{cr}}$.

Согласно (3), (23), с учетом перехода $\sigma_1(\omega)$ к режиму проводимости с переменной (зависящей от частоты) длиной прыжка r_ω с понижением частоты в окрестности кроссовера, выражение для $\text{ctg}(\gamma)$ имеет вид

$$\text{ctg}(\gamma) = \frac{\sigma_2^{\text{res}}}{\sigma_1^{\text{res}}} \approx -\frac{\delta}{\hbar\omega_{\text{cr}}} \left(\frac{r_{\text{opt}}}{r_\omega} \right)^3. \quad (25)$$

Соответственно, в области $\omega < \omega_{\text{cr}}$ вещественная и мнимая части комплексной проводимости имеют близкие частотные зависимости $|\sigma_2(\omega)| \sim \sigma_1(\omega) \sim \omega^s$ с показателем степени $s \approx 1$; при этом отношение частей проводимости $|\sigma_2|/\sigma_1$ слабо зависит от частоты и определяется отношением ширины примесной зоны δ к характерной кулоновской энергии $\hbar\omega_{\text{cr}} \approx e^2/\kappa r_{\text{opt}}$, $\hbar\omega_{\text{cr}} \ll \delta$.

Примем для оценки разброс уровней, возникающий за счет беспорядка в расположении заряженных примесей, равным $\frac{e^2}{\kappa} N_d^{1/3}$; тогда согласно (24) имеем $|\sigma_2|/\sigma_1 \approx 10^2 N_d^{1/3} a$. Полагая концентрацию примеси $N_d = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, а радиус локализации $a = 30 \text{ \AA}$, согласно (24), (25), получаем $|\sigma_2^{\text{res}}|/\sigma_1^{\text{res}} \sim 10-100$; это по порядку величины согласуется с экспериментально полученными значениями $|\sigma_2|/\sigma_1$ [4].

5. Заключение

Анализ величины и частотной зависимости тангенса угла потерь $\gamma(\omega)$, вообще говоря, требуют одновременного учета как резонансного, так и релаксационного вкладов в проводимость.

Выражения для вещественной и мнимой частей релаксационной проводимости имеют вид

$$\begin{aligned} \sigma_1^{\text{rel}} &= \frac{\pi^4 e^2 \rho_0^2}{24} a \omega \kappa T \bar{r}_\omega^4, \\ \sigma_2^{\text{rel}} &= -\frac{\pi^3 e^2 \rho_0^2}{30} \omega \kappa T \bar{r}_\omega^5, \end{aligned} \quad (26)$$

при $U(\bar{r}_\omega) = \frac{e^2}{\kappa \bar{r}_\omega} < kT$ (отметим, что выражение для σ_1^{rel} представляет собой соотношение Остина–Мотта [7]). С учетом (26) тангенс угла потерь равен

$$\text{tg}(\gamma) = \frac{\sigma_1^{\text{rel}}}{\sigma_2^{\text{rel}}} = -\frac{5\pi}{2} \ln^{-1} \left(\frac{\omega_{\text{ph}}}{\omega} \right). \quad (27)$$

При низких температурах $U(\bar{r}_\omega) = \frac{e^2}{\kappa \bar{r}_\omega} \gg kT$ имеем

$$\begin{aligned} \sigma_1^{\text{rel}} &= \frac{\pi^2 e^4 \rho_0^2}{6\kappa} a \omega \bar{r}_\omega^3, \\ \sigma_2^{\text{rel}} &= -\frac{\pi e^4 \rho_0^2}{6\kappa} \omega \bar{r}_\omega^4, \end{aligned} \quad (28)$$

здесь выражение для σ_1^{rel} совпадает с результатом, полученным в [8].

В этом случае тангенс угла потерь с точностью до численного множителя совпадает с (27)

$$\text{tg}(\gamma) = \frac{\sigma_1^{\text{rel}}}{\sigma_2^{\text{rel}}} = -2\pi \ln^{-1} \left(\frac{\omega_{\text{ph}}}{\omega} \right). \quad (29)$$

Как известно, функции вида $\omega^m \ln^n(\omega_{\text{ph}}/\omega)$, фигурирующие в выражениях для проводимости $\sigma_1(\omega)$ и $\sigma_2(\omega)$ (26), (28), при $\omega \ll \omega_{\text{ph}}$ можно аппроксимировать степенным законом $A\omega^s$ с показателем степени

$$s = \frac{d \ln(\sigma(\omega))}{d \ln \omega} = m - \frac{n}{\ln(\omega_{\text{ph}}/\omega)}; \quad (30)$$

при этом показатель степени s уменьшается с ростом частоты ω [20].

Согласно (26), (28), вещественная и мнимая части релаксационной проводимости, $\sigma_1(\omega)$ и $\sigma_2(\omega)$ имеют частотные зависимости $\sigma_1(\omega) \sim |\sigma_2(\omega)| \sim \omega^s$ с показателем степени $s < 1$; при этом для характерных значений параметра $\omega_{\text{ph}} \sim 10^{12}-10^{13} \text{ rad/s}$ в рассматриваемой области частот $\nu \sim 10^{10}-10^{12} \text{ Hz}$ величина отношения $|\sigma_2|/\sigma_1$ порядка единицы. Это не согласуется с аномально большими измеряемыми значениями $|\text{ctg} \gamma|$ в переходной области частот.

Согласно (24), (25), эти расхождения можно объяснить на основе подхода, принимающего во внимание как

фононный, так и резонансный вклады в проводимость. Большая величина отношения $|\operatorname{ctg} \gamma| = |\sigma_2|/\sigma_1$ указывает на то, что при $\omega < \omega_{\text{ср}}$ в области слабого изменения угла потерь $\gamma(\omega)$ мнимая часть проводимости определяется большим бесфононным вкладом σ_2^{res} , который существенно превосходит релаксационный σ_2^{rel} .

Список литературы

- [1] I.P. Zvyagin. In: Charge Transport in Disordered Solids with Applications in Electronics / Ed. S. Baranovski. John Wiley & Sons, Chichester (2006). P. 339.
- [2] M. Lee, M.L. Stutzmann. Phys. Rev. Lett. **87**, 056402 (2001).
- [3] E. Helgren, N.P. Armitage, G. Gruner. Phys. Rev. B **69**, 014201 (2004).
- [4] M. Hering, M. Scheffler, M. Dressel, H.V. Lohneysen. Phys. Rev. B **75**, 205203 (2007).
- [5] E. Ritz, M. Dressel. Phys. Status Solidi C **5**, 703 (2008).
- [6] M. Pollak, T.H. Geballe. Phys. Rev. **122**, 1742 (1961).
- [7] I.G. Austin, N.F. Mott. Adv. Phys. **18**, 41 (1969).
- [8] A.L. Efros. Philos. Mag. B **43**, 829 (1981).
- [9] Б.И. Шкловский, А.Л. Эфрос. ЖЭТФ **81**, 406 (1981).
- [10] N.F. Mott. Philos. Mag. **22**, 7 (1970).
- [11] J.A. Reedijk, L.J. Adriaanse, H.B. Brom, L.J. de Jongh, G. Schmid. Phys. Rev. B **57**, R15116 (1998).
- [12] А.Л. Эфрос. ЖЭТФ **89**, 1834 (1985).
- [13] И.П. Звягин, М.А. Ормонт. Вестн. МГУ. Физика, астрономия, **4**, 44 (2008).
- [14] М.А. Ормонт, И.П. Звягин. ФТП **49**, **4**, 449 (2015).
- [15] М.А. Ормонт. Вестн. МГУ. Физика, астрономия, **2**, 57 (2011).
- [16] М.А. Ормонт. ФТП **49**, **10**, 1314 (2015).
- [17] М.А. Ормонт, И.П. Звягин. ФТП **52**, **2**, 161 (2018).
- [18] F. Kremer, A. Schonhals. Broadband dielectric spectroscopy. Springer, Berlin, N. Y. (2003). 729 p.
- [19] Г. Фрелих. Теория диэлектриков. Диэлектрическая проницаемость и диэлектрические потери. ИЛ, М. (1960). 251 с.
- [20] И.П. Звягин. Кинетические явления в неупорядоченных полупроводниках. Изд-во. МГУ, М. (1984). 192 с.
- [21] В.Л. Бонч-Бруевич, И.П. Звягин, Р. Кайпер, А.Г. Миронов, Р. Эндерлайн, Б. Эссер. Электронная теория неупорядоченных полупроводников. Наука, М. (1981). 384 с.
- [22] Б.И. Шкловский, А.Л. Эфрос. Электронные свойства легированных полупроводников. Наука, М. (1979). 416 с.
- [23] A.L. Efros, B.I. Shklovskii. In: Electron–Electron Interactions in Disordered Systems / Ed. A.L. Efros, M. Pollak. North–Holland, Elsevier Science Publishers B.V., Amsterdam (1985). P. 409.