

一维无序体系的交流跳跃导电

徐 慧 宋祚璞

(中南大学应用物理系,长沙 410083)
(2001 年 10 月 18 日收到 2002 年 1 月 7 日收到修改稿)

建立了 electron-phonon-field(EPF)电子隧穿电导模型,推导了一维无序体系新的交流电导公式.通过计算具有 20000—65000 个格点的无序体系的交流电导率,分析了交流电导率与温度及外场频率的关系,讨论了无序度对交流电导的影响.计算结果表明,无序体系的交流电导率随外场频率的增加而近似线性的增大;无序体系在低温区出现了负微分电阻特性,电导率随温度的升高而增大,在高温区电导率随温度的升高而减小;无序度对无序体系的交流电导影响明显:在低温区,无序度越小,体系的电导率越大;在高温区,适当增大无序度,有利于电子共振隧穿条件的形成,提高体系的电导率.但是如果无序度过大,电导率又会变小.

关键词:无序体系,电子隧穿,跳跃电导

PACC: 7210

1. 引言

近年来,由于非晶态半导体和有机聚合物所展现的令人鼓舞的应用前景,无序体系的电导问题越来越受到重视.无序体系的周期势场遭到破坏,电子波函数呈现局域化.描述自由程大于晶胞情况下电子输运现象的玻耳兹曼方程不再适用.目前,研究无序体系电导时应用较为广泛的理论主要有两种,一种是 Mott^[1]在研究冷却到液氮温度下补偿性晶态半导体的直流电导行为时提出的电子变程跳跃电导理论;另一种是 Miller 和 Abrahams^[2]在研究掺杂半导体时建立起来的跳跃电导理论. Aldea^[3]和 Newman^[4]在此基础上考虑单电子紧束缚近似,近邻相互作用,分别用傅里叶晶格变换和重正化群的方法发展了该理论. Mott 把电子在非周期性势场中的运动看作是一种扩散运动,计算了电子迁移率,但是没有考虑外场对电子运动的影响. Miller 和 Abrahams 考虑了电子与外场的相互作用,但没有考虑格点原子热运动对电子定向运动的影响. Havlin^[5], Samukhin 等^[6]采用分形愈渗理论对无序体系电导问题作了有益的研究.但是目前这方面的研究仍处于实验总结阶段,还没有完整的理论和一致的认识.有鉴于此,我们考虑了电子、声子和外场的作用关系,又考虑到一维问题能将明晰的物理思想和有效的数学方法联系起来,建立了 electron-phonon-field(EPF)电子隧穿电导模

型,由此推导了一维无序体系的交流电导公式.通过计算 20000—65000 格点无序体系的交流电导率,分析了电导率和温度及外场频率的关系,讨论了无序度对无序体系交流电导的影响.计算结果与实验定性符合.

2. 模型与方法

我们采用一维无序体系的 Anderson^[7]模型,各格点处势能无规起伏,计及次近邻格点电子的作用,体系哈密顿量可写为

$$H = \sum_{i=1}^N \epsilon_i |i\rangle \langle i| + \sum_{i=1}^N \sum_{j \neq i}^N t_{ij} |i\rangle \langle j|, \quad (1)$$

式中 N 为格点数, ϵ_i 在 $-D/2$ 和 $D/2$ 内无规起伏, D 代表无序度, t_{ij} 为近邻格点对电子的作用,计及最近邻和次近邻.

我们取^[8]

$$t_{ij} = -2 \sqrt{(|i-j|+1)} \quad \text{当 } |i-j| \leq M \quad (2)$$

$$t_{ij} = 0 \quad \text{当 } |i-j| > M, \quad (3)$$

式中 $M=2$.

我们利用 Dean 和 Martin^[9]的负本征值理论和 Wu 等^[10]的无限阶微扰理论,发展了新的方法求解无序体系的本征问题,该方法高效精确,能计算近十万阶的矩阵,计算误差小于 10^{-12} . 无序体系的电子波函数呈现局域化的特性.我们定义局域态电子波函数的扩展长度为体系哈密顿量的本征值对应的非

零本征矢分量的个数.随着无序度的增加,电子波函数由扩展态变为局域态,电子局域化程度不断加强,波函数扩展长度迅速减小.电子局域态形成后,本征矢量的量值和振幅位置不随格点数的增加而改变,中枢点也保持不变,但是本征矢和中枢点随着本征值的不同而改变.图 1 为无序体系的局域态波函数.图 2 为局域态波函数的扩展长度随无序度的变化规律图.

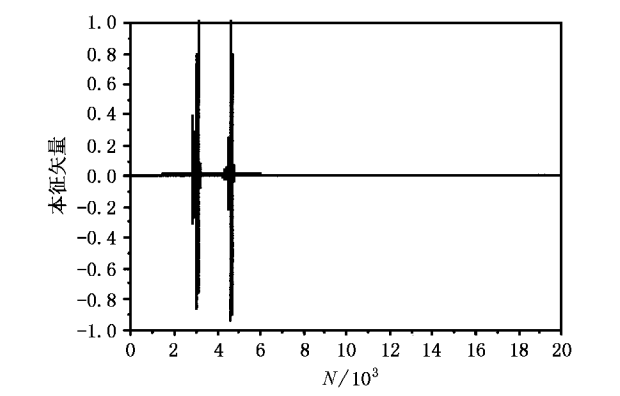


图 1 无序体系局域态波函数 体系格点数 N 为 65000,无序度 D 为 2,左侧的局域态对应的本征值为 $-0.8008-0.05748185201i$,中枢点为 3123;右侧的局域态对应的本征值为 $-0.999300709285774i$,中枢点为 4634.纵轴表示本征矢量,横轴表示体系格点数 N .

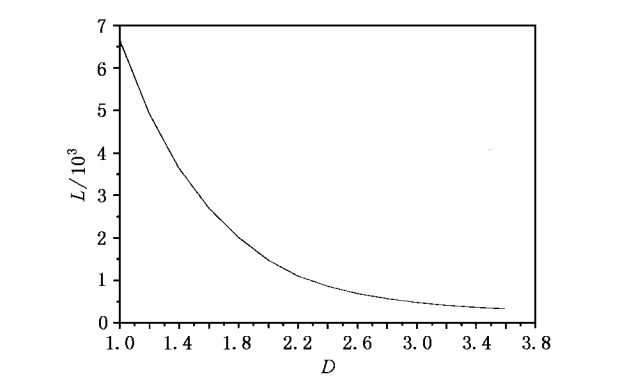


图 2 局域态波函数的扩展长度随无序度的变化规律图 纵轴 L 表示扩展长度,横轴 D 表示体系无序度

3. 无序体系 EPF 电子隧穿电导模型

根据无序体系中电子、声子和外场之间的相互作用关系,我们建立了 EPF 电子隧穿电导模型:对无序体系外加交流电场,电场强度为 $E\cos\omega_L t$, ω_L 为电场的频率.电子和场量子及声子相互作用,吸收光

子和声子的能量后,从低能级的局域态跳跃到比它能量高 $\hbar\omega_L + W$ 的局域态上, W 为电子吸收的声子的能量,即 $W = \hbar\omega_{ph}$, ω_{ph} 为声子频率.电子也可以放出光子和声子由高能级的局域态跳跃到低能级的局域态.图 3 显示了电子的跳跃过程.电子吸收光子和声子的能量后,在两个局域态之间跳跃,跳跃概率与以下几个因素有关:

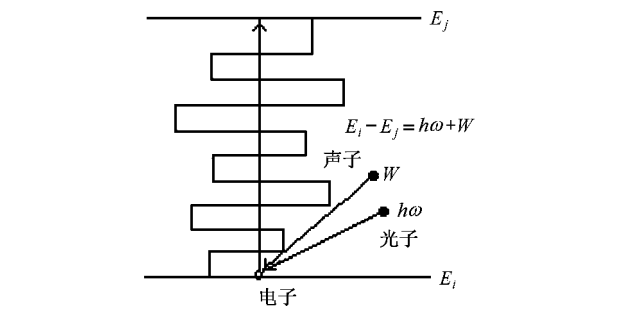


图 3 EPF 电子隧穿电导模型

a) 电子穿过初末局域态之间的势垒和势阱的隧穿概率 U .在满足一定的条件时,电子可发生共振隧穿,此时,电子的隧穿概率较大.

b) 寻找到能量为 W 的声子的概率.声子是玻色子,服从 Bose-Einstein 分布.当温度不高时,此概率正比于因子 $e^{-W/k_B T}$,这里 k_B 为玻耳兹曼常量, T 为温度.从这里可以看出,此概率随声子能量的增加而迅速减小.

c) 辅助电子跳跃的声子振动频率,即每秒钟该电子试图跳跃的次数.

所以,电子在局域态之间的跳跃概率 P 应该是以上三个因素的因子的乘积,即

$$P = U e^{-W/k_B T} \gamma_{ph} \chi(E_i + \hbar\omega_L + W - E_j), \quad (4)$$

式中 ω_L 为交流电场的频率, U 为电子的隧穿概率.我们利用传输矩阵^[10,11]的方法,计算了电子在局域态之间的隧穿概率.

在入射区和出射区,电子波函数可以通过求解其相应的薛定谔方程而得到,分别表示为

$$\phi_i(x) = e^{ik_{//}x} \begin{bmatrix} A_i e^{ik_i x} \\ B_i e^{ik_i x} \end{bmatrix}, \quad (5)$$

$$\phi_{i+n}(x) = e^{ik_{//}x} \begin{bmatrix} A_{i+n} e^{ik_{i+n} x} \\ B_{i+n} e^{ik_{i+n} x} \end{bmatrix}, \quad (6)$$

$k_{//}$ 为 x 轴垂面上波矢 k 的分量,在势垒和势阱区,可以分别求解单电子薛定谔方程,进而利用波函数及其导数在势垒势阱界面处连续的条件写出传递矩

阵,求得电子隧穿整个结构的传输概率.

电子的隧穿过程可用方程表示为

$$\begin{bmatrix} A_i e^{ik_i x} \\ B_i e^{ik_i x} \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} A_{i+n} e^{ik_{i+n} x} \\ B_{i+n} e^{ik_{i+n} x} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_{i+n} e^{ik_{i+n} x} \\ B_{i+n} e^{ik_{i+n} x} \end{bmatrix}, \quad (7)$$

式中 M 为总传递矩阵,求解的实质是令 $B_{i+n} e^{ik_{i+n} x} = 0$,即出射区只有透射波而无反射波.

若定义透射概率 U 为透射概率流密度与入射概率流密度之比,则 U 可表示为

$$U = \frac{k_{i+n} |A_{i+n}|^2}{k_i |A_i|^2} = \frac{k_{i+n} |M_{11}|^{-2}}{k_i}. \quad (8)$$

由于时间反演对称性,本征态的复共轭也是薛定谔方程的解.即 $A_i^* e^{-ik_i x} + B_i^* e^{ik_i x}$ 也是入射区的解, $A_{i+1}^* e^{-ik_{i+n} x} + B_{i+n}^* e^{ik_{i+n} x}$ 也是出射区的解.只不过 B_i^* 为入射波振幅, A_i^* 为反射波振幅, B_{i+n}^* 为透射波振幅,因而有

$$\begin{bmatrix} A_i^* e^{ik_i x} \\ B_i^* e^{ik_i x} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_{i+n}^* e^{ik_{i+n} x} \\ B_{i+n}^* e^{ik_{i+n} x} \end{bmatrix}, \quad (9)$$

它等价于

$$\begin{bmatrix} A_i e^{ik_i x} \\ B_i e^{ik_i x} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{11}^* & M_{12}^* \\ M_{21}^* & M_{22}^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_{i+n} e^{ik_{i+n} x} \\ B_{i+n} e^{ik_{i+n} x} \end{bmatrix}. \quad (10)$$

M 必然满足

$$M_{11}^* = M_{11}, M_{12}^* = M_{12}, \quad (11)$$

这样

$$U = \frac{\det |M|}{|M_{11}|^2}. \quad (12)$$

4. 无序体系交流电导率公式

根据我们建立 EPF 电子隧穿电导模型,电子和声子及外加电场相互作用,吸收或放出光子或声子后,穿过势垒和势阱,由格点 i 跳跃到格点 j 的跳跃概率为

$$P = \frac{\det |M|}{|M_{11}|^2} e^{-W/k_B T} \nu_{ph} \delta(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph} - E_j). \quad (13)$$

电子由局域态 $|E_i\rangle$ 跳跃至局域态 $|E_j\rangle$,通过吸收光子 和外加交流电场交换的能量为:

$$\begin{aligned} & \hbar\omega_{Li} P f(E_i) [1 - f(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph})] \\ &= \hbar\omega_{Li} \frac{\det |M|}{|M_{11}|^2} e^{-W/k_B T} \nu_{ph} f(E_i) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \times [1 - f(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph})] \\ & \times \delta(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph} - E_j). \end{aligned} \quad (14)$$

电子由局域态 $|E_j\rangle$ 跳跃至局域态 $|E_i\rangle$,通过放出光子 和外加交流电场交换的能量为

$$\begin{aligned} & \hbar\omega_{Li} P f(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph}) [1 - f(E_i)] \\ &= \hbar\omega_{Li} \frac{\det |M|}{|M_{11}|^2} e^{-W/k_B T} \nu_{ph} f \\ & \times (E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph}) [1 - f(E_i)] \\ & \times \delta(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph} - E_j). \end{aligned} \quad (15)$$

电子在局域态 $|E_j\rangle$ 和局域态 $|E_i\rangle$ 之间跳跃,通过吸收或放出光子 和外场交换能量为

$$\begin{aligned} & \hbar\omega_{Li} P \{ f(E_i) [1 - f(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph})] \\ & - f(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph}) [1 - f(E_i)] \} \\ &= \hbar\omega_{Li} \frac{\det |M|}{|M_{11}|^2} e^{-W/k_B T} \nu_{ph} \\ & \times (f(E_i) - f(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph})) \\ & \times \delta(E_i + \hbar\omega_{Li} + \hbar\omega_{ph} - E_j) \\ &= \hbar\omega_{Li} (\hbar\omega_{Li} + W) \frac{\det |M|}{|M_{11}|^2} e^{-W/k_B T} \nu_{ph} \left(-\frac{\partial f(E)}{\partial E} \right). \end{aligned} \quad (16)$$

无序体系和外加交流电场交换的总能量为

$$\int \hbar\omega_{Li} (\hbar\omega_{Li} + W) \frac{\det |M|}{|M_{11}|^2} e^{-W/k_B T} \nu_{ph} \left(-\frac{\partial f(E)}{\partial E} \right) dE, \quad (17)$$

式中

$$f(E) = \frac{1}{e^{(E-E_F)/k_B T} + 1}, \quad (18)$$

$f(E)$ 为电子费密分布.

由电动力学理论可知,体系和交变电场交换的能量等于体系产生的焦耳热,

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \sigma_{ac} E^2 &= \int \hbar\omega_{Li} (\hbar\omega_{Li} + W) \frac{\det |M|}{|M_{11}|^2} \\ & \times e^{-W/k_B T} \nu_{ph} \left(-\frac{\partial f(E)}{\partial E} \right) dE. \end{aligned} \quad (19)$$

这样,我们最终得到了无序体系由于电子隧穿效应产生的交流电导率

$$\begin{aligned} \sigma_{ac} &= \int \frac{2 \hbar\omega_{Li} (\hbar\omega_{Li} + W)}{E^2} \frac{\det |M|}{|M_{11}|^2} \\ & \times e^{-W/k_B T} \nu_{ph} \left(-\frac{\partial f(E)}{\partial E} \right) dE. \end{aligned} \quad (20)$$

从推导的交流电导率公式来看,对体系电导有贡献的电子跳跃主要发生在费密能级 E_F 附近,因

此电子跳跃的初末两态能量相差较小,其局域态分布在 整个能区展宽^[12],两局域态中电子的局域位置可能相差很大^[13].这就意味着电子跳跃时,为了寻找能量相近的初末局域态,需要跳跃较远的距离.

在有限温度下,因为电子是在费密能附近几个 $k_B T$ 能量范围内的能态上进行跳跃,假定电子每次跳跃的跳跃能相差不是很大,那么,交流电导公式可以简化为

$$\sigma_{ac} = \frac{2\hbar\omega_L(\hbar\omega_L + W)}{E^2} \frac{|\det M|}{|M_{11}|^2}$$
$$\times e^{-W/k_B T} \nu_{ph} \left(-\frac{\partial \mathcal{N}(E)}{\partial E} \right) \mathcal{N}(E_F) k_B T, \quad (21)$$

式中 $\mathcal{N}(E_F)$ 费密能 E_F 附近的电子态密度.

5. 计算结果与讨论

根据推导的交流电导公式,我们计算了具有 20000 至 65000 个格点的无序体系的交流电导率.图 4 和图 5 为无序体系交流电导率和外场频率的关系图.可以看到,无序体系的交流电导率随 外场频率的增加而近似线性的增大.图 4 中 A 和 B 两曲线对应的体系无序度不同,A 为 0.2,B 为 2.两曲线的线性度都很高,电导率和频率的关系指数接近于 1(曲线 A 为 1.02454,曲线 B 为 1.00034),但曲线斜率明显不同.图 5 中曲线对应体系的格点数较多 (65000),无序度也较大.它在高频区出现轻微的振荡,电导率与频率的关系指数为 0.96641.非晶氮化硅(粒径约为 15nm)粉体经 130MPa 压制成块体后,在不同的频率下测量其交流电导,得到其电导率 $\sigma(\omega)$ 正比于频率 ω 的 n 次方(n 在 0.65—1.6 之间,低频时 n 值较小,高频时 n 值较大)^[14].这与我

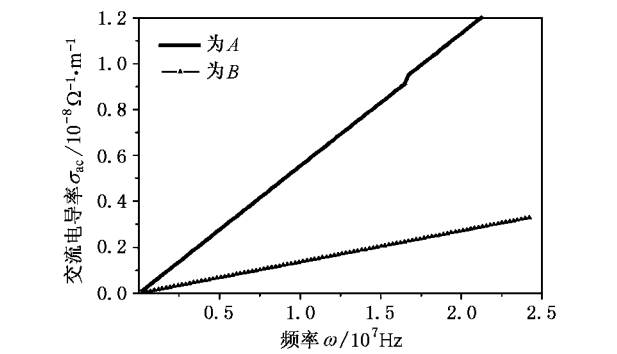


图 4 无序体系直流电导率与外场频率的关系图 体系格点数 N 为 20000 温度 T 为 100K;曲线 A 对应体系的无序度 D 为 0.2,曲线 B 对应体系的无序度 D 为 2

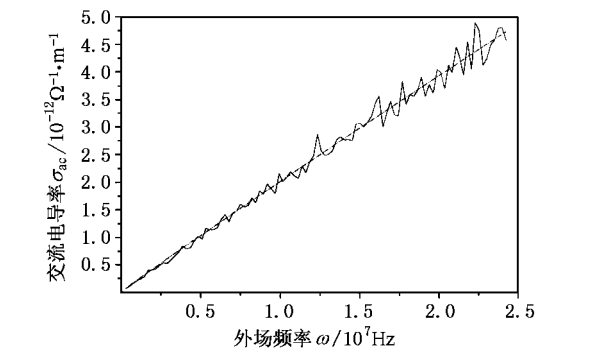


图 5 无序体系交流电导率与外场频率的关系图 体系格点数 N 为 65000 无序度 $D=3$ 温度 T 为 100K 拟合曲线方程为 $\sigma(\omega) = 3.4642 \times 10^{-19} \omega^{0.96641}$

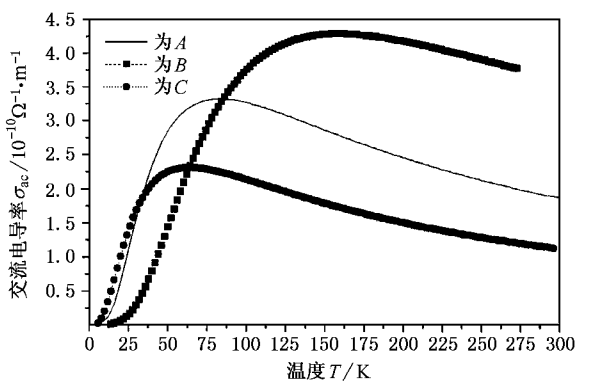


图 6 无序体系交流电导率与温度的关系图 体系格点数 N 为 20000 外场频率 ω_L 为 2.42×10^6 Hz. 曲线 A,B,C 对应体系的无序度分别为 2,1,0.5

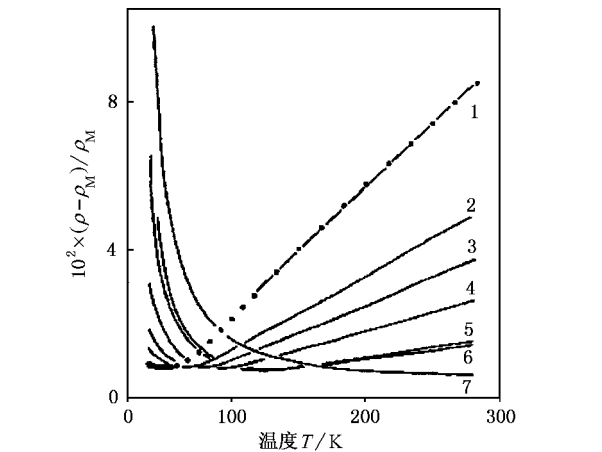


图 7 纳米超晶格 Cu-SiO₂ 归一化电阻与温度的关系图^[16]

们的计算结果接近. 丁建文等^[15]利用 M-A 方程计算了一维无序纳米链的交流电导, 与其相比, 我们的结果与实验更为一致. 无序体系的交流电导率之所以随外场频率的增加而增大, 是因为频率增大, 交流电场的光子能量增大, 使得电子在两局域态间跳跃所吸收的声子能量减小, 致使电子跳跃概率增大, 从而导致电导率的增大.

图 6 为无序体系的交流电导率与温度的依赖关系图. 图 6 中体系格点数为 20000, 外加频率为 2.42×10^6 Hz, 曲线 A, B, C 对应体系的无序度分别为 2, 1 和 0.5. 从图 6 中可以看到, A, B, C 三者具有基本一致的电导-温度依赖关系. 在低温区, 出现了负微分电阻温度特性, 即电导率随温度的升高而增大, 而在高温区, 电导率随温度的升高而减小. 图 7 为 Savvides 等^[16]测得的纳米超晶格 Cu-SiO₂ 归一化电阻与温度的关系图. 纳米超晶格也属于非周期结构体系, 注意到图 7 中电阻率出现了极小值, 即电导率有极大值存在, 这与我们的计算结果基本一致. 这一现象与电子在局域态间的跳跃有关, 可作如下解释: 在低温区, 格点原子热运动不很剧烈. 随温度升高, 格点原子热运动被逐渐激活, 这将有助于电子在局域态间的跳跃, 导致电导率的增大. 但在高温区, 格点原子热运动非常剧烈, 这时对电子的定向跳跃产生散射. 温度越高, 散射作用也越明显, 致使电导率减小.

无序度对体系的交流电导有明显的影响. A, B, C 三者交流电导率极大值对应的温度不同, 分别为 70, 130 和 50K 左右. 在低于 30K 的低温区, C 的无序度最小, 交流电导率最大. 而在 80K 以上的高温区, B 的电导率最大, C 的最小. 在低温区, 格点原子热运动不太剧烈, 这时无规起伏的格点势场对电子定向跳跃的散射作用起着决定性的影响. 无序度越小, 散射作用越不明显, 电导率也就越大. 所以在低温区, C 的电导率最大. 而在高温区, 格点原子热

运动非常剧烈, 它对电子定向跳跃的散射作用很明显, 成为影响体系电导的主要因素. 当体系无序度不太大时, 适当增大无序度, 有利于电子共振隧穿条件的形成. 所以在高温区, 无序度为 1 的 B 体系电导率大于无序度为 0.5 的 C 体系. 但是, 如果无序度过大, 它对电子定向跳跃的散射作用可以和格点原子热运动对电子定向跳跃的散射作用相比较时, 无序度越大, 电导率就越小. 图 6 中 A 体系的无序度为 2, 在高温区它的电导率较无序度为 1 的 B 体系电导率要小. 无序度对无序体系电导的影响是一个比较复杂的问题, 我们将在另文专门讨论.

6. 结 论

通过对一维无序体系交流电导率计算结果的分析, 我们得到以下结论:

1. 无序体系与晶格体系的交流电导特性完全不同. 对无序体系电导有贡献的电子跳跃主要发生在费密面附近, 电子跳跃的初末局域态能量相差较小, 而局域位置相差很大.
2. 随着外场频率的增大, 交流电场的光子能量增大, 使得电子在两局域态间跳跃所吸收的声子能量减小, 电子跳跃概率的增大, 导致无序体系的交流电导率随外场频率的增加而近似线性的增大.
3. 无序体系在低温区出现了负微分电阻特性, 即电导率随温度的升高而增大. 而在高温区, 电导率随温度的升高而减小. 不同体系的交流电导率极大值对应的温度不同.
4. 无序度对无序体系的交流电导影响明显. 在低温区, 无序度越小, 体系的交流电导率越大. 在高温区, 适当增大无序度, 有利于电子共振隧穿条件的形成, 提高体系的电导率. 但是如果无序度过大, 电导率又会变小.

[1] Mott N F and Davis E A 1979 *Electronic Processes in Non-crystalline Materials* (Oxford: Oxford Clarendon Press) Chap 6, 7
 [2] Miller A and Abrahams E 1960 *Phys. Rev.* **120** 745
 [3] Aldea A *et al* 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 1672
 [4] Newman M E J *et al* 1991 *Phys. Rev. B* **43** 1183
 [5] Havlin S and Ben-Avraham D 1987 *Adv. Phys.* **36** 695
 [6] Samukhin A N *et al* 1998 *Phys. Rev. B* **17** 11354
 [7] Anderson P W 1958 *Phys. Rev.* **109** 1492

[8] Day R and Martino F 1981 *J. Phys. C* **14** 4247
 [9] Dean P and Martin J L 1960 *Proc. Roy. Soc. A* **259** 409
 [10] Wu S Y and Zheng Z B 1981 *Phys. Rev. B* **24** 4787
 [11] Ricco B and Azbel M Y 1984 *Phys. Rev. B* **29** 1970
 [12] Xiong S J and Tan M Q 1987 *Acta Phys. Sin.* **36** 1230 (in Chinese)
 [熊诗杰、谭明秋 1987 物理学报 **36** 1230]
 [13] Xu H *et al* 1992 *Acta Phys. Sin.* **41** 1666 (in Chinese) [徐 慧等 1992 物理学报 **41** 1666]

- [14] Zhang L D *et al* 2001 *Noncrystalline Material and Nanostructure* (Beijing Scienca Press) p325 [张立德等 2001 纳米材料和纳米结构(北京 科学出版社)第 325 页]
- [15] Ding J W and Yan X H 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 314 (in Chinese) [丁建文、严晓红 1999 物理学报 **48** 314]
- [16] Savvides N *et al* 1982 *Solid State Commun.* **42** 143

Alternating current hopping conductivity studies on one-dimensional disordered systems

Xu Hui Song Yi-Pu

(*Department of Applied Physics , Central South University , Changsha 410083 ,China*)

(Received 18 October 2001 ; revised manuscript received 7 January 2002)

Abstract

A electron-phonon-field conductance model of electron tunneling transfer is set up , and a new alternating current conductance formula in one-dimensional disordered system is derived. By calculating the alternating current conductivity , the relationship among the electric field, temperature and conductivity is analyzed , and the effect of disordered degree on the alternating current conductance is discussed. The result shows that the conductivity of the disordered system linearly increases with rising frequency of the electric field. In the low-temperature region , the disordered system shows the characteristic of negative differential dependence of resistance and temperature. On the contrary , its conductivity decreases with rising temperature in the high-temperature region. The disordered degree has obvious influence on the alternating current conductance. The alternating current conductivity is great when the disordered degree is weak in the low-temperature region. However , when the disordered degree is raised properly in the high-temperature region , it is advantageous to form the electron tunneling transfer and to increase the conductivity of the system. But when the disordered degree is overly great , the alternating current conductivity becomes small.

Keywords : disordered system , electron tunneling transfer , hopping conductivity

PACC : 7210