

一维二元非对角关联无序体系跳跃电导特性 *

马松山^{1,2)} 徐 慧¹⁾ 刘小良¹⁾ 王焕友^{1,2)}

1) 中南大学物理科学与技术学院, 长沙 410083)

2) 中南大学材料科学与工程学院, 长沙 410083)

(2006 年 10 月 1 日收到 2006 年 10 月 14 日收到修改稿)

在单电子紧束缚无序模型基础上, 建立了一维二元关联无序体系电子跳跃输运直流电导模型, 并推导了其直流电导公式, 通过计算其直流电导率, 探讨了格点能量无序度、非对角关联及温度、外场对体系跳跃电导的影响。计算结果表明, 一维二元无序体系的直流电导率随着格点能量无序度的增大而减小, 当引入非对角关联时, 体系出现退局域化现象, 从而使体系的直流电导率增大。温度对体系的电子输运的影响表现为体系的直流电导率随温度的升高而增大, 在外加电场的调制下, 体系的直流电导率在强场区随电场强度增加而增长很快, 呈现出非欧姆定律特性, 但在弱场区外场的作用不明显。

关键词: 二元无序体系, 跳跃电导, 格点能量无序度, 非对角关联

PACC: 7210, 7215C, 7155J

1. 引 言

近年来, 随着生物物理学的发展, 对 DNA 分子中电子结构、输运特性的研究已成为国内外普遍关注的一个重要课题^[1-6]。而 DNA 分子链由 4 种核苷酸, 即鸟嘌呤(G)、腺嘌呤(A)、胞嘧啶(C)和胸腺嘧啶(T)为基本单元按一定的序列构成双螺旋链状结构, 其中 A-T, C-G 相互成对构成碱基对, 因此, DNA 双螺旋结构链可以认为是由两种基本碱基对随机分布所构成的一维二元无序体系^[7-11], 其中每个碱基对可视为一个格点。因而研究一维二元无序体系的电子输运特性对探讨 DNA 分子中电学性能, 揭示生命体的某些生物规律, 无疑是非常有意义的。

对于完全有序的晶体其电子波函数在整个晶体中是扩展的, 但当体系的有序结构被破坏时, 体系由有序体系转变为无序体系, 其电子波函数呈现出局域化特性^[12], 因而其电子输运特性完全不同于有序的晶态材料电子输运特性。对于无序体系的电子输运最早由 Mott 等^[13, 14]提出了电子跳跃输运机理, 并成功解释了冷却到液氮温度下的补偿性晶态半导体的直流电导行为。随后, Miller 和 Abrahams^[15]运用随机电阻网络模型(resistance network analogy)研究了低

杂质浓度体系中电子迁移率。Aldea 等^[16]和 Newman 等^[17]在此基础上考虑单电子、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。最近, Fogler 等研究了一维无序体系电子变程跳跃输运的非欧姆特性^[18], Ma 等人研究了一维对角无序体系的直流电导规律^[19], Rosenow 等结合重整化群理论探讨了一维电子体系的非线性交流电子输运^[20]。然而目前对于一维二元无序体系的研究大都注重于其电子结构特性的研究, 如 Davids 用传输矩阵方法研究了随机二元合金的 Lyapunov 指数特性^[21], 刘小良等探讨了一维二元无序固体的电子局域性质^[22], Liu 等研究了电场作用下具有库仑相互作用的电子波函数的局域化特性^[23], 得到了很有意义的结论, 而对于其电子输运特性的研究, 特别是格点能量无序及非对角关联对其电子输运的影响研究并不多见。

本文从一维二元非对角关联无序模型出发, 在单电子紧束缚近似下, 忽略电子间的相互作用, 只考虑近邻格点相互作用, 通过计算了探讨了包含 2×10^3 个格点的一维二元非对角关联无序体系中格点能量无序、非对角关联、温度及外加电场对其直流电导的影响。

* 高等学校博士学科点专项科研基金(批准号 20020533001)和湖南省自然科学基金(批准号 05JJ40135)资助的课题。

† E-mail: masongshan1126@yahoo.com.cn

2. 模型与方法

一维无序二元体系是由两种原子 A 和 B 随机排列所构成,为了研究其电子输运特性,我们构建了一维无序二元体系模型,其中原子 A 具有格点能量 ϵ_A ,原子 B 具有格点能量 ϵ_B .在单电子紧束缚近似下,其哈密顿量可表示为^[8,9]

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

$$t_{ij} = \begin{cases} t_{AA} = 1.0 & \epsilon_i = \epsilon_j = \epsilon_A, \\ t_{BB} = 1.73, & \epsilon_i = \epsilon_j = \epsilon_B, \text{ 其中 } |i - j| = 1, \\ t_{AB} = \frac{t_{AA} + t_{BB}}{2} = 1.36, & \epsilon_i \neq \epsilon_j, \end{cases}$$

很明显,该模型是 Anderson 无序模型的简单推广,因为在 Anderson 无序模型^[12]中非对角项被视为与格点原子无关的量,即 $t_{AA} = t_{BB} = t_{AB} = 1$,而忽略非对角无序关联的影响.

若 E_i 为哈密顿量的能量本征值, $|\varphi| = \sum_i \phi_i |i|$ 为与能量本征值 E_i 相对应的本征态,其中 $|\phi_i|^2$ 代表在二元无序体系中格点 i 处发现电子的概率,则薛定谔方程可表示为

$$E_i \phi_i = t_{i-1,i} \phi_{i-1} + \epsilon_i \phi_i + t_{i,i+1} \phi_{i+1}. \quad (3)$$

利用负本征值理论^[24]和无限阶微扰理论^[25],可以求解其本征方程.由于无序导致电子波函数呈现局域化特性,局域态的位置、局域长度亦可确定^[22,26].考虑到局域态之间的电子输运只能通过声子及外场的激发,通过电子在不同局域态间跳跃而实现.在没有外场作用时,电子从一个局域态中心位置 i 跳跃至另一个局域态中心位置 j 的跳跃概率满足如下形式^[15,18]:

$$\Gamma_{ij} = v_0 \mathcal{J}(E_i) [1 - \mathcal{J}(E_j)] \times \exp\left(-2\alpha|x_j - x_i| - \frac{E_j - E_i}{k_B T}\right), \quad (4)$$

其中 v_0 为声子频率, α^{-1} 描述电子波函数的局域长度, E_i 为局域于格点 i 处的电子局域态能量本征值,且 E_i 的数值以费米能为基点, $E_j - E_i$ 描述发生电子跳跃的两个电子局域态之间的能量差, $|x_j - x_i|$ 为电子跳跃的距离, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为温度, $\mathcal{J}(E_i)$ 为格点 i 被电子占据的概率,且 $\mathcal{J}(E_i)$

其中 ϵ_i 为第 i 格点的位能,且 ϵ_i 分别以 p 和 $1 - p$ 的概率取 ϵ_A, ϵ_B ,因而 p 表示随机链中原子 A 的含量,从而可描述链中两种原子的组分, N 为随机链的长度,即其所含原子的数量.显然, $|\epsilon_A - \epsilon_B|$ 代表格点能量的变化范围,即体系的格点能量无序度 W ,在本文中取 $\epsilon_A = \frac{W}{2}, \epsilon_B = -\frac{W}{2}$, t_{ij} 描述电子在 i 与 j 格点之间转移的跃迁矩阵元,即体系的非对角关联(off-diagonal correlations)项,若只计及近邻相互作用($|i - j| = 1$),则 t_{ij} 有三种可能取值形式^[9],即

$$\begin{aligned} \epsilon_i = \epsilon_j = \epsilon_A, \\ \epsilon_i = \epsilon_j = \epsilon_B, \text{ 其中 } |i - j| = 1, \\ \epsilon_i \neq \epsilon_j, \end{aligned} \quad (2)$$

服从费米统计分布,即

$$\mathcal{J}(E_i) = \frac{1}{\exp[(E_i/k_B T) + 1]}. \quad (5)$$

显然,在没有外场作用时,电子从 x_i 处跳跃到 x_j 处与其逆过程具有相同的跳跃概率,即处于动态平衡状态,但当有外加电场 F 时,这种动态平衡被破坏,从而使体系中出现电流.在外加电场的作用下,一方面使局域在不同格点上的能量本征值产生一个附加的能量降落,即 $E'_i = E_i - eFx_i$,另一方面,电场对体系中各格点电子占据的概率产生影响,使各格点为电子占据的概率进行重新分布,我们在不同的格点势中引入一个的增量 $\delta\mu_i$ 来描述这种改变,此时格点 i 被电子占据的概率可表示为

$$\mathcal{J}(E'_i) = \frac{1}{\exp[(E_i - \delta\mu_i)/k_B T] + 1}, \quad (6)$$

这时电子从 x_i 处的局域态跳跃到 x_j 处的局域态的跳跃概率可表示为

$$\begin{aligned} \Gamma'_{ij} = v_0 \mathcal{J}(E'_i) [1 - \mathcal{J}(E'_j)] \exp\left[-2\alpha|x_j - x_i| - \frac{E_j - E_i - eF(x_j - x_i)}{2k_B T}\right], \end{aligned} \quad (7)$$

此时,格点 i, j 之间的电流 $J_{ij} = e(\Gamma'_{ij} - \Gamma'_{ji})$ 可表示为^[18,27]

$$\begin{aligned} J_{ij} = ev_0 \exp\left(-2\alpha|x_j - x_i| - \frac{\Delta_{ij}}{2k_B T}\right) \times \sinh \frac{eF(x_j - x_i)}{k_B T}, \end{aligned} \quad (8)$$

其中 $\Delta_{ij} = |E_i| + |E_j| + |E_j - E_i|$. 对于给定的外加电场 F 增量 $\delta\mu_i$ 通常由电流密度守恒条件 $\sum_{i \neq j} J_{ij} = 0$ 确定, 即进出任意格点 i 电流的代数为 0, 因而不必具体计算 $\delta\mu_i$ 的值. 所以, 对于一维二元无序体系中由于电子的跳跃输运而产生的总的电流为^[28]

$$J = \sum_{i < n} \sum_{n > k} J_{ij} = \sum_{i < k} \sum_{j > k} ev_0 \exp\left(-2\alpha|x_j - x_i| - \frac{\Delta_{ij}}{2k_B T}\right) \sinh \frac{eF(x_j - x_i)}{k_B T}, \quad (9)$$

其中 n 为体系中任意固定的格点. 因此, 可能计算体系的跳跃电导

$$\sigma = \frac{J}{F} = \frac{1}{F} \left[\sum_{i < k} \sum_{j > k} ev_0 \exp\left(-2\alpha|x_j - x_i| - \frac{\Delta_{ij}}{2k_B T}\right) \times \sinh \frac{eF(x_j - x_i)}{k_B T} \right]. \quad (10)$$

3. 结果与分析

根据直流电导公式, 我们选择了包含 2×10^3 个格点原子的一维二元无序体系, 计算了其不同参数下的直流电导率, 并探讨了其直流电导率与格点能量无序度、非对角关联之间的关系, 以及温度、外场对其电导率的影响.

图 1 为温度、外加电场强度及体系中 A 原子的含量分别取定值 $T = 250$ K, $F = 10^3$ V/cm, $p = 0.5$ 情况下一维二元无序体系电导率与格点能量无序度的关系, 其中曲线 A 描述的是非对角关联情况, 而曲线 B 为 Anderson 模型情况. 由图可知, 体系的直流电导率随格点能量无序度的增大而减小. 我们知道, 由于无序导致电子波函数局域化, 因而随着格点能量无序度的增加, 电子波函数局域化程度逐渐增强, 电子波函数扩展长度减小, 从而使电子由一个局域态跳跃到另一个局域态的概率相应减小, 所以体系的直流电导率随格点能量无序度的增大而减小.

对比曲线 A 和曲线 B 还可发现, 曲线 A 的电导率总体上大于曲线 B 的电导率, 说明考虑非对角关联时, 体系的直流电导率大于 Anderson 模型情况下体系的电导率. 这是因为, 当引入非对角关联时, 体系出现退局域化现象^[9], 电子波函数由局域态向扩展态发展, 因而在考虑非对角关联的情况下, 体系的直流电导率要大于 Anderson 模型情况下体系的电导率. 此外, 我们还可以发现在 Anderson 模型下体系的

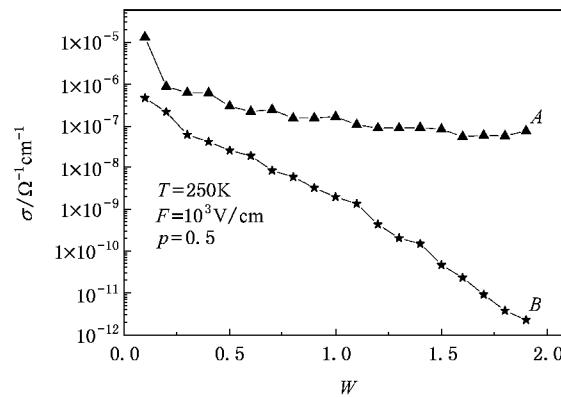


图 1 一维二元无序体系直流电导率与格点能量无序度的关系

直流电导率随无序度的增加下降很快, 而当引入非对角关联时, 体系的电导率随无序度的增加下降比较缓慢, 当格点能量无序度较小时, 二者的差别不大, 而随着格点能量无序度的增加, 二者的差别逐渐增大. 这是因为格点能量无序和非对角关联对一维二元无序体系的电子输运影响上存在着一个竞争机理. 一方面, 格点能量无序使体系的电子波函数向局域化方向发展, 从而使体系的直流电导率随无序的增加而减小, 另一方面, 非对角关联使体系的电子波函数向退局域化方向发展, 电子波函数由局域态向扩展态转变. 因此, 在格点能量无序和非对角关联的共同影响下, 非对角关联在一定程度上缓解了体系的直流电导率随无序度的增大而降低的趋势, 从而使一维二元非对角无序体系的直流电导率随格点能量无序度的增加而降低的速度比 Anderson 模型情况下大大降低了, 特别是当格点能量无序度较大时, 非对角关联的作用表现得更加明显.

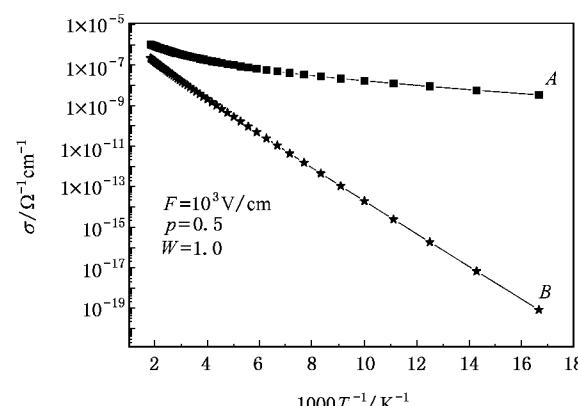


图 2 一维二元无序体系直流电导率随温度的变化关系

由于处于局域态的电子是通过声子的帮助而实现在局域态间的跳跃输运,因此格点原子的热振动对体系的电子跳跃概率产生很大的影响.图2中曲线A为一维二元非对角关联无序体系的直流电导率随温度的变化关系,其中外加电场强度、体系中A原子的含量及格点能量无序度分别取定值 $F = 10^3$ V/cm, $p = 0.5$ 和 $W = 1.0$.为了对比,我们同时计算了在相同参数下不考虑非对角关联,即Anderson模型的情况下体系的直流电导率随温度的变化关系(曲线B).可见不论是否考虑非对角关联,一维二元无序体系的直流电导率随温度的升高而增大.这是因为随着温度的升高,格点原子热运动加剧,而在无序体系中电子输运是通过声子的激发,吸收声子的能量而实现在不同局域态之间跳跃输运,因而随着温度的升高电子发生跳跃输运的概率增加,从而使体系的直流电导率相应增大.同时还可发现,在高温区,一维二元非对角关联无序体系的电导率与不考虑非对角关联的Anderson模型情况下的电导率比较接近,而当温度很低时,二者的差别很大,表明在高温区体系中的电子跳跃输运主要是通过定程跳跃来实现的,即电子的跳跃输运发生在相邻格点之间,而在低温区,体系中的电子跳跃输运主要以变程跳跃输运的形式实现.因为非对角关联实现上相当于在体系中增加了电子长程跳跃输运的“通道”,因而当变程跳跃输运方式对体系的电导起主导作用时,非对角关联体系的电导率会远大于没有关联时体系的电导率.所以,在高温区,一维二元非对角关联无序体系的电导率与不考虑非对角关联的Anderson模型情况下的电导率比较接近,而当温度较低时,二者的差别很大,非对角关联情况下体系的电导率要远大于Anderson模型情况下的电导率.

由于电子在局域态之间的跳跃受外加电场的调制,因而外加电场对体系的直流电导率有很大影响.图3为一维二元非对角关联无序体系的直流电导率与外场强度的关系图,其中格点能量无序度、体系中A原子的含量分别取定值 $W = 1.0$, $p = 0.5$.由图可知,体系的直流电导率随外加电场的增大而增大,但在弱场区,电导率随电场的增大几乎没什么变化,而在强场区,电导率随电场强度增加而增长很快,使体系的直流电导率随电场的变化关系呈现出非欧姆定律特性.对于这一现象,我们的解释是:由于在一维体系电子跳跃输运过程中总有一些电了跳跃很难进

行的“障碍”,当外加电场比较弱时,电场对电子跳跃的驱动作用相比这些“障碍”来说几乎可以忽略,因而体系的电阻主要由这些“障碍”决定.但是随着外加电场的逐渐增大,这些“障碍”的作用慢慢地为电场所消减,当电场强度增大到一定程度时,这些“障碍”的作用完全被消除,体系的电导率可以表示为 $\sigma \sim \sigma_0 \exp\left(\frac{eFL}{Ck_B T_0}\right)^{0.5}$,其中L为电子跳跃特征长率^[18 29 30].所以当外场强度较强时,体系的电导率随着电场强度的增大而显著增大,呈现出非欧姆特性.

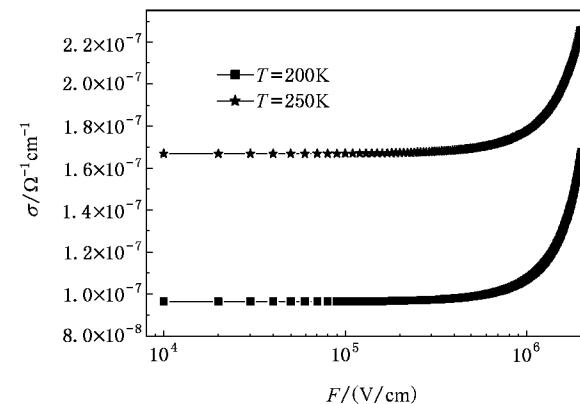


图3 一维二元无序体系直流电导率随外加电场的变化关系

4. 结 论

1. 一维二元非对角关联无序体系的格点能量无序度对其电子输运影响很大,表现为其直流电导率随着格点能量无序度的增大而减小.

2. 当引入非对角关联时,体系出现退局域化现象,电子波函数由局域态向扩展态发展,从而使体系的直流电导率大于Anderson模型情况下体系的电导率.

3. 温度对一维二元非对角关联无序体系的电子输运的影响表现为体系的直流电导率随温度的升高而增大,同时在高温区体系中的电子跳跃输运主要是通过定程跳跃来实现的,即电子的跳跃输运发生在相邻格点之间,而在低温区,体系中的电子跳跃输运主要以变程跳跃输运的形式实现.

4. 一维二元非对角关联无序体系电子输运受外加电场的调制,在弱场区,电导率随电场的增大几乎没什么变化,而在强场区,电导率随电场强度增加而增长很快,使体系的直流电导率随电场的变化关系呈现出非欧姆定律特性.

- [1] Porath D , Bezryadin A , Vries S de , Dekker C 2000 *Nature* (London) **403** 635
- [2] Rakitin A , Aich P , Papadopoulos C , Kobzar Y , Vedeneev A S , Lee J S , Xu J M 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 3670
- [3] Kasumov A Y , Kociak M , Gueron S , Reulet B , Volkov V T , Klinov D V , Bouchiat H 2001 *Science* **291** 280
- [4] Braun E , Eichen Y , Sivan U , Ben-Yoseph G 1999 *Nature* (London) **391** 775
- [5] Richter J , Mertig M , Pompe W , Monch I , Schackert H K 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 536
- [6] Cuniberti G , Craco L , Porath D , Dekker C 2002 *Phys. Rev. B* **65** 241314
- [7] Yu Z G , Song X Y 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** (26) 6018
- [8] Carpena P , Bernaola-Galvan P , Ivanov P C , Stanley H E 2002 *Nature* **418** 955
- [9] Wei Zhang , Sergio E Ulloa 2004 *Phys. Rev. B* **69** 153203
- [10] Ma S S , Xu H , Liu X L , Guo A M 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 3170 (in Chinese) [马松山、徐慧、刘小良、郭爱敏 2006 物理学报 **55** 3170]
- [11] Liu X L , Xu H , Ma S S , Ding C S , Guo A M 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5562 (in Chinese) [刘小良、徐慧、马松山、邓超生、郭爱敏 2006 物理学报 **55** 5562]
- [12] Anderson P W 1958 *Phys. Rev.* **109** 1492
- [13] Mott N F 1956 *Can. J. Phys.* **34** 1356
- [14] Mott N F , Davis E A 1979 *Electronic processes in non-crystalline materials* (London : Clarendon Press)
- [15] Miller A , Abrahams E 1960 *Phys. Rev.* **120** 745
- [16] Aldea A , Dulea A 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 1672
- [17] Newman M E J , Stinchcombe R B 1991 *Phys. Rev. B* **43** 1183
- [18] Fogler M M , Kelley R S 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 166604
- [19] Ma S S , Xu H , Liu X L , Xiao J R 2006 *Chin. Phys.* **15** 190
- [20] Rosenow B , Nattermann T 2006 *Phys. Rev. B* **73** 085103
- [21] Davids P S 1995 *Phys. Rev. B* **52** 4146
- [22] Liu X L , Xu H , Ma S S , Song J Q 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2949 (in Chinese) [刘小良、徐慧、马松山、宋招权 2006 物理学报 **55** 2949]
- [23] Liu W M , Liang J Q , Chui S T 2002 *Phys. Rev. B* **65** 033102
- [24] Dean P , Martin J L 1960 *Proc. Roy. Soc. A* **259** 409
- [25] Wu S Y , Zheng Z B 1981 *Phys. Rev. B* **24** 4787
- [26] Xu H , Zeng H T 1992 *Acta Phys. Sin.* **41** 1666 (in Chinese) [徐慧、曾红涛 1992 物理学报 **41** 1666]
- [27] Pollak M , Riess I 1976 *J. Phys. C : Solid State Phys.* **9** 2339
- [28] McInnes J A , Butcher P N , Triberis G P 1990 *J. Phys. Condens. Matter* **2** 7861
- [29] Nattermann T , Giamarchi T , Doussal Le P 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 056603
- [30] Mallinin S V , Nattermann T , Rosenow B 2004 *Phys. Rev. B* **70** 235120

Characteristics of hopping conductivity in one-dimensional binary disordered system with off-diagonal correlations^{*}

Ma Song-Shan^{1,2†} Xu Hui¹⁾ Liu Xiao-Liang¹⁾ Wang Huan-You^{1,2)}

1) (School of Physics Science and Technology , Central South University , Changsha 410083 , China)

2) (School of Materials Science and Engineering , Central South University , Changsha 410083 , China)

(Received 1 October 2006 ; revised manuscript received 14 October 2006)

Abstract

Based on a tight-binding disordered model describing a single electron band , we establish a model of electronic transport in one-dimensional binary disordered systems with off-diagonal correlations , and derive the dc conductance formula. By calculating the dc conductivity , the function of disorder and off-diagonal correlations in electronic transport are analyzed , and the relationships between electric field and conductivity and between temperature and conductivity are studied. The results indicate that the conductivity of the systems decreases with the increase of the degree of lattices energy disorder , and off-diagonal correlations lead to delocalization and enhance the electrical conductivity of system. The model also quantitatively explains the temperature and electric field dependence of the conductivity of systems , that is , the dc conductivity of the systems increases with the increasing of temperature and electric field .

Keywords : binary disordered systems , hopping conductivity , degree of lattices energy disorder , off-diagonal correlations

PACC : 7210 , 7215C , 7155J

^{*} Project supported by the Doctoral Program Foundation of Institutions of Higher Education , China (Grant No. 20020533001) and Hunan Provincial Natural Science Foundation of China (Grant No. 05JJ40135).

† E-mail : masongshan1126@yahoo.com.cn