

УДК 537.524

© 1990

ЭЛЕКТРОПРОВОДНОСТЬ В СИСТЕМЕ БИПОЛЯРОНОВ МАЛОГО РАДИУСА ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ: ТУННЕЛЬНЫЙ МЕХАНИЗМ ПЕРЕНОСА

В. В. Брыксин

Предложена теория квантовомеханического межзельного туннелирования биполяронов малого радиуса, определяющего токоперенос в области низких и промежуточных температур. Подобно стандартным малым поляронам перенос биполяронов представляет собой сумму прыжкового и туннельного вкладов. С понижением температуры электропроводность биполярной системы осуществляется последовательно посредством прыжков монополяронов диссоциированных биполяронов, туннелирования монополяронов, туннелирования биполяронов и, наконец, рассеянием зонных биполяронов. Температурная зависимость проводимости имеет минимум вблизи перехода от монополяронного туннелирования к биполярному.

В последние годы растет интерес к электрофизическим свойствам систем с локально спаренными носителями тока. Это связано, в частности, с открытием высокотемпературной сверхпроводимости. Многие исследователи предполагают наличие в этих веществах локально спаренных электронов (см., например, [1-4]), в том числе биполяронов малого радиуса [5, 6]. Биполярное спаривание считается возможным и в системах с тяжелыми фермионами [7, 8]. Наличие малых биполяронов обнаружено в Ti_4O_7 , Fe_3O_4 , $LiNbO_3$, соединениях бора, окислах вольфрама, $BaTiO_3$, в квазиодномерных органических веществах (ссылки см. в [9]), в $NbO_{2.5-x}$ [10].

Теоретические исследования токопереноса биполяронами к настоящему времени ограничивались рассмотрением прыжковой проводимости [9, 11], вероятностей диссоциации и перескоков [12, 13], изучением биполярной зоны [13-15], поглощения света [16]. Оказалось, что в области перескокового режима биполяронный вклад в проводимость всегда мал по сравнению с монополяронным [11]. С другой стороны, подобно тому, как это имеет место в стандартной теории малых поляронов [17, 18], следует ожидать, что по мере понижения температуры режим классических межзельных перескоков в биполяронной модели должен смениться квантовомеханическим туннельным просачиванием, а при совсем низких температурах — и обычным зонным переносом. В настоящей работе показано, что биполяронный токоперенос состоит из двух аддитивных вкладов — перескокового и туннельного, причем при низких температурах доминирует последний. Более того, в низкотемпературной области туннельный биполяронный перенос оказывается более существенным, чем монополяронное туннелирование, что резко контрастирует со случаем высоких температур. Этот факт открывает возможность экспериментального изучения биполяронного переноса по статической электропроводности в низкотемпературной области. Туннельная биполяронная подвижность экспоненциально падает с ростом T .

1. Эффективный биполяронный гамильтониан и исходное выражение для электропроводности

В системе малых поляронов с внутриузельным притяжением имеются как монополяроны, так и биполяроны. Поэтому токоперенос осуществляется посредством трех механизмов: за счет движения монополяронов, движения биполяронов и переноса с диссоциацией и образованием биполяронной молекулы. В области высоких температур преобладают монополяронные межузельные перескоки [9, 11, 13]. Однако с самого начала ясно, что по мере понижения температуры количество монополяронов в системе падает за счет роста числа биполяронов по параметру $\exp(-U/2kT)$, где U — энергия связи биполярона, так что рано или поздно биполяронный механизм переноса начнет преобладать. Поэтому при изучении низкотемпературного токопереноса можно ограничиться рассмотрением только биполяронов, не учитывая процессов их диссоциации. Конкретное значение температуры, ниже которой основной вклад в ток дает биполяронное движение, будет получено ниже. Учет только биполяронных состояний позволяет производить изучение тока с помощью эффективного биполяронного гамильтониана [13]. Такой гамильтониан может быть получен посредством проектирования основного гамильтониана теории малых поляронов [17, 18] на подпространство биполяронных состояний с использованием теории возмущений по параметру I/U , где I — резонансный интеграл, определяющий ширину затравочной электронной зоны. После такой операции эффективный биполяронный гамильтониан H имеет вид [13]

$$H = H_{\text{ph}} + H' + H'',$$

$$H' = - \sum_{m, m'} J_{mm'} B_m^+ B_{m'}, \quad H'' = - \sum_{m, m'} v_{mm'} v_m (1 - v_{m'}), \quad (1)$$

где H_{ph} — гамильтониан фононного поля; $B_m = a_m \uparrow a_m \downarrow$ — оператор уничтожения биполярона на узле m ; $v_m = B_m^+ B_m$ — оператор числа биполяронов на узле m ; J и v — многофононные операторы

$$J_{mm'} = - \frac{i}{2\hbar} I_{mm'}^2 \left[\int_0^\infty dt - \int_{-\infty}^0 dt \right] \exp(-s|t| + \frac{iU}{\hbar} t) \times$$

$$\times [\Phi_{mm'}(-t) \Phi_{mm'} + \Phi_{mm'} \Phi_{mm'}(t)], \quad (2)$$

$$v_{mm'} = - \frac{i}{2\hbar} I_{mm'} I_{m'm} \left[\int_0^\infty dt - \int_{-\infty}^0 dt \right] \exp(-s|t| + \frac{iU}{\hbar} t) \times$$

$$\times [\Phi_{mm'}(-t) \Phi_{m'm} + \Phi_{mm'} \Phi_{m'm}(t)]. \quad (3)$$

Здесь $I_{m'm}$ — резонансный интеграл между узлами m' и m ,

$$\Phi_{mm'} = \exp \left\{ \sum_{\mathbf{q}} \frac{\gamma_{\mathbf{q}}^*}{\sqrt{2N}} (e^{-i\mathbf{q}\mathbf{R}_{m'}} - e^{-i\mathbf{q}\mathbf{R}_m}) b_{\mathbf{q}}^+ - \text{h. c.} \right\} \quad (4)$$

— обычный для малых поляронов многофононный оператор, возникающий при поляронном каноническом преобразовании над гамильтонианом Фрелиха [17, 18]; $\gamma_{\mathbf{q}}$ — безразмерная константа электрон-фононной связи; $b_{\mathbf{q}}^+$ — оператор рождения фонона с импульсом \mathbf{q} ; \mathbf{R}_m — радиус-вектор узла; N — полное число узлов в системе,

$$\Phi(t) = \exp\left(\frac{i}{\hbar} H_{\text{ph}} t\right) \Phi \exp\left(-\frac{i}{\hbar} H_{\text{ph}} t\right).$$

Отметим, что в [19] был получен биполяронный гамильтониан типа (1), но усредненный по фононам, т. е. с заменой $J_{mm'} \rightarrow \langle J_{mm'} \rangle$ и $v_{mm'} \rightarrow \langle v_{mm'} \rangle$. При этом $\langle J_{mm'} \rangle$ играет роль эффективной биполяронной зоны, а $\langle v_{mm'} \rangle$ — биполярон-биполяронного взаимодействия. В [19] такой га-

мильтониан использовался для описания сверхпроводимости биполярной системы. Однако при изучении токопереноса использование усредненного по фоновым гамильтониана, разумеется, недопустимо.

В дальнейшем ограничимся случаем низкой концентрации биполяронов $\langle \nu_m \rangle \ll 1$, когда $1 - \nu_m$ в (1) можно заменить на единицу и

$$H'' = - \sum_m \nu_m \nu_{m'}, \quad \nu_m = \sum_{m'} \nu_{mm'} \quad (5)$$

Биполяронные операторы для различных узлов коммутируют, а на одном узле — антикоммутируют и могут быть связаны с оператором спина. Однако в исследуемом ниже однобиполяронном приближении существенна лишь антикоммутация на узле. Поэтому их можно считать обычными Ферми-операторами. С этой оговоркой проблема определения электропроводности в биполяронной системе становится очень похожей на задачу в модели малых поляронов [20]. Отличие заключается лишь в двух пунктах: во-первых, многофононные операторы $J_{mm'}$ и $\nu_{mm'}$ имеют более сложную структуру, чем оператор $\Phi_{mm'}$ фигурирующий в теории монополяронов, а во-вторых, оператор возмущения $H' + H''$ состоит из двух вкладов, один из которых недиагонален по узлам (H'), а второй (H'') диагонален. В монополяронной же модели имеется только недиагональное по узлам возмущение ((1.42) в [17]).

Перейдем теперь к формуле для электропроводности. Ниже ограничиваемся случаем узких зон биполяронных зон, когда $\langle J_{mm'} \rangle \ll kT$, т. е. биполярон однородно распределен по зоне. Другой предельный случай сверхнизких температур $\langle J_{mm'} \rangle \gg kT$ сводится к решению кинетического уравнения в импульсном представлении и для монополяронной модели рассмотрен в [21, 22].

В пределе узких зон $\langle J \rangle \ll kT$, как показано в [23], с помощью формулы Кубо в представлении дипольных моментов электропроводность σ может быть выражена через функцию условной вероятности P в узельном представлении

$$\delta = 2e^2 \beta n_b s^2 \sum_m X_m^z P_{0m}^{0m}(s) |_{s \rightarrow +0}, \quad (6)$$

где $\beta = 1/kT$, n_b — концентрация биполяронов, X_m — проекция на ось вектора R_m ,

$$P_{m_2 m_1}^{m_1 m_2}(s) = \int_0^\infty dt e^{-st} \text{Sp} \{ e^{-\beta H} \rho \langle 0 | B_{m_2} (B_{m_1}^+ B_{m_2})_t B_{m_1}^+ | 0 \rangle \}. \quad (7)$$

Шпур берется по фононным переменным, а матричный элемент — на биполяронном вакууме $|0\rangle$. Диагональная компонента функции условной вероятности $P_{m'm}^{m'm}(s)$ есть лапласов образ вероятности найти частицу в момент времени t на узле m , если при $t=0$ она помещена на узел m' . В (6) введен дополнительный множитель 4, возникающий вследствие двукратного спинового вырождения узельного состояния или, что то же самое, учтено, что заряд биполярона равен $2e$.

Используя соотношение Эйнштейна между σ и коэффициентом диффузии D , $\sigma = 4e^2 \beta n_b D$, имеем

$$D = \frac{s^2}{2} \sum_m X_m^z P_{0m}^{0m}(s) |_{s \rightarrow +0}. \quad (8)$$

Дальнейшая задача сводится к нахождению функции условной вероятности. Ряд теории возмущений для P содержит расходящиеся вклады по степеням $1/s$, лестничное суммирование которых приводит к системе уравнений, зацепляющих диагональные и недиагональные компоненты P [18, 23]

$$s P_{m'm'}^{m'm'} = \delta_{mm'} + \sum_{m_1} W_{m'm_1}^{m'm_1} P_{m_1 m'}^{m_1 m'} + \sum_{m_1 \neq m_2} W_{m'm_2}^{m'm_2} P_{m_2 m'}^{m_2 m'}, \quad (9)$$

$$sP_{m_2 m}^{m_1 m} = \sum_{m_3} W_{m_2 m_3}^{m_1 m_3} P_{m_3 m}^{m_2 m} + \sum_{m_4 \neq m_3} W_{m_2 m_4}^{m_1 m_4} P_{m_4 m}^{m_3 m}, \quad m_1 \neq m_2, \quad (10)$$

где W — неприводимые, не содержащие расходимостей $1/s$, блоки (вероятности). Процедура решения этой системы уравнений заключается в том, что недиагональные компоненты P с помощью (10) выражаются через диагональные (первый член правой части (10)). Затем полученный результат подставляют в последний член правой части (9).

Уравнение (10) можно разрешить тем же способом, что и в стандартной теории малых поляронов [17, 23]. Дело в том, что среди недиагональных вероятностей W , входящих в последний член правой части (10), наибольшими являются $W_{m_2 m_3}^{m_1 m_3}$ с $m_1 = m_3$ и $m_2 = m_4$. Другие компоненты малы по сравнению с этими по параметру $\exp(-aS_T)$, где a — число порядка единицы, $S_T \sim |\gamma_q|^2 \gg 1$ — фактор поляронного сужения зон (см. ниже). Как показывает анализ, такое же свойство недиагональных вероятностей сохраняется и в биполяронной модели. Пренебрегая такими экспоненциально малыми вероятностями, из (10) имеем

$$P_{m_2 m}^{m_1 m} = \{s - W_{m_2 m_3}^{m_1 m_3}\}^{-1} \sum_{m_3} W_{m_2 m_3}^{m_1 m_3} P_{m_3 m}^{m_2 m}, \quad m_1 \neq m_2. \quad (11)$$

Подставляя теперь (11) в (9), получаем замкнутое уравнение для диагональной компоненты функции условной вероятности

$$sP_{m m'}^{m m'} = \delta_{m m'} + \sum_{m_1} \tilde{W}_{m m_1}^{m m_1} P_{m_1 m'}^{m m'}, \quad (12)$$

где

$$\tilde{W}_{m m_1}^{m m_1} = W_{m m_1}^{m m_1} + \sum_{m_3 \neq m_2} W_{m m_3}^{m m_3} W_{m_3 m_1}^{m_2 m_1} (s - W_{m_3 m_3}^{m_2 m_2})^{-1}. \quad (13)$$

При учете, что в пространственно-однородной системе $P_{m m'}^{m m'}$ и $W_{m m'}^{m m'}$ зависят только от $m - m'$, уравнение (12) легко разрешается переходом в им-

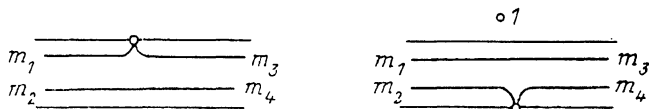


Рис. 1. Одноточечные диаграммы для «вероятностей» $W_{m_2 m_4}^{m_1 m_3}$, описывающих биполяронную зону в низшем порядке теории возмущений.

Точка взаимодействия (1) соответствует гамильтониану H' , изменяющему узельный индекс.

пульсное представление. Укажем здесь также, что имеют место правила сумм

$$\sum_{m'} P_{m m'}^{m m'} = 1/s, \quad \sum_{m'} \tilde{W}_{m m'}^{m m'} = 0.$$

Подставляя найденное решение в выражение для коэффициента диффузии (8), получаем

$$D = \frac{1}{2} \sum_m X_m^2 \tilde{W}_{0m}^{0m}. \quad (14)$$

Так как W (13) состоит из двух вкладов, то и электроперенос содержит два аддитивных слагаемых. Первый из них (связанный с W) описывает прыжковый биполяронный перенос. Он был рассмотрен в [9, 11, 13] и дал малый вклад по сравнению с монополяронными прыжками. Второе слагаемое в (13) ответственно за междузельное туннельное просачивание биполяронов. Соответствующий вклад в коэффициент диффузии D_t имеет вид

$$D_t = \frac{1}{2} \sum_m \sum_{m_1 \neq m_2} X_m^2 W_{0m_2}^{0m_1} W_{m_2 m}^{m_1 m} \tau_{m_1 m_2}, \quad (15)$$

где $\tau_{m,m_2} = -1/W_{m_2 m_1}^{m,m_1}$ — время туннельного просачивания. Формула (15), аналогичная соответствующему выражению для туннельного механизма переноса в теории монополяронов, позволяет исследовать температурное поведение биполяронной проводимости в области низких температур.

2. Низкотемпературная туннельная биполяронная проводимость

Выражения для вероятностей, входящих в (15), можно найти с помощью теории возмущений по $H' + H''$ в (1), т. е. по степеням резонансного интеграла I (точнее, для биполяронной модели по I^2). Для биполяронного гамильтониана в принципе можно построить диаграммную технику, подобную той, которая используется в стандартной теории малых поляронов [17, 18]. Однако вследствие того что многофононные операторы $J_{mm'}$ (2) и $\nu_{mm'}$ (3) имеют значительно более сложную структуру, чем оператор $\Phi_{mm'}$ в монополяронной модели, эта задача весьма громоздкая и мы ниже ограничимся низшими порядками теории возмущений.

Исследование начнем с величин $W_{0m_2}^{0m_1}$ и $W_{m_2 m_1}^{m_1 m}$. В низшем порядке они могут быть изображены графиками с одной точкой взаимодействия (рис. 1). В дальнейшем ограничимся приближением сильной связи, когда учитываются резонансные интегралы только между ближайшими соседями, $I_{mm'} = I \sum_g \delta_{m, m'+g}$, где g — вектор ближайшего соседа. Как видно из рис. 1, интересующие нас вероятности имеют вид

$$\begin{aligned} W_{m_2 m_4}^{m_1 m_3} &= \frac{i}{\hbar} \{ \langle J_{m_1 m_3} \rangle \delta_{m_2 m_4} - \langle J_{m_1 m_2} \rangle \delta_{m_1 m_3} \} = \\ &= \frac{i}{\hbar} \langle J \rangle \sum_g \{ \delta_{m_1+g, m_3} \delta_{m_2 m_4} - \delta_{m_1 m_2} \delta_{m_1+g, m_3} \}, \end{aligned} \quad (16)$$

где $\langle J \rangle$ — фононное среднее от оператора $J_{mm'}$ (2) при $m' = m + g$, которое не зависит от m , а для кубической решетки — и от g . Подставляя (16) в (15), получаем

$$D_t = \frac{1}{2} \left[a \frac{\Delta E_b}{\hbar z} \right]^2 \tau, \quad (17)$$

где a — постоянная решетки, z — число ближайших соседей в решетке, $\Delta E_b = 2z \langle J \rangle$ — ширина биполяронной зоны. Для кубической решетки время релаксации $\tau = -1/W_{00}^{00} = -1/W_{gg}^{00}$ также не зависит от g .

Ширина биполяронной зоны (эффективная масса биполярона) исследовалась в [13–15]. В области низких температур [13, 14]

$$\Delta E_b = 4zI^2 \sqrt{\frac{2\pi}{\hbar\omega_0 U}} \exp \left\{ -\gamma_0 - \frac{U}{\hbar\omega_0} \ln \frac{e\hbar\omega_0\gamma_0}{U} \right\}, \quad (18)$$

где ω_0 — частота оптического фонона, γ_0 — константа связи

$$\gamma_0 = \frac{1}{N} \sum_q |\gamma_q|^2 (1 - \cos \mathbf{qg}). \quad (19)$$

Формула (18) справедлива при $U < \hbar\omega_0\gamma_0$. Напомним, что ширина монополяронной зоны [17]

$$\Delta E_p = 2zI \exp(-S_T) \approx 2zI \exp(-\gamma_0/2), \quad (20)$$

где фактор поляронного сужения затравочной зоны

$$S_T = \frac{1}{2N} \sum_q |\gamma_q|^2 (1 - \cos \mathbf{qg}) \operatorname{cth}(\hbar\omega_q/2kT). \quad (21)$$

Второе равенство в цепочке (20) справедливо при $\hbar\omega_0 > 2kT$.

Перейдем теперь к наиболее сложному вопросу расчета времени релаксации τ . Вклад в W_{00}^{gg} дают шесть диаграмм (рис. 2). Заметим, что вклад от двух диаграмм с одной точкой типа 1 (от H'') обращается в нуль, так как при переносе точки с верхней оси на нижнюю знак графика меняется. Это сокращение связано с тем, что при замене оператора v_m в (3) на его среднее по фононам значение, не зависящее от m , гамильтониан H'' описывает несущественное смещение начала отсчета энергии. Подчеркнем, что в многобиполярной задаче такой усредненный вклад от v ответствен за межбиполярное притяжение и установление дальнего порядка; см. (1).

Сумма четырех диаграмм $a-g$ (рис. 2) дает следующий вклад в W_{00}^{gg} ,

$$\frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-s|t|} \{ [\langle v_0(t) v_0 \rangle - \langle v_0 \rangle^2] - [\langle v_g(t) v_0 \rangle - \langle v_0 \rangle^2] \}.$$

Первая квадратная скобка проистекает от графиков a и b , а вторая — от c и d . Было принято во внимание, что в силу трансляционной симметрии

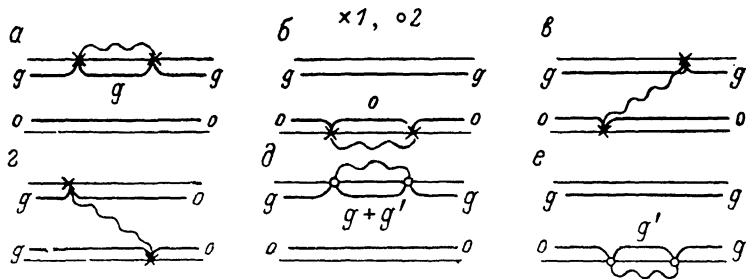


Рис. 2. Диаграммы, описывающие в низшем порядке теории возмущений, вероятность туннелирования W_{00}^{gg} .

$a-g$ — вклад от H'' (без изменения узельного индекса в точке взаимодействия 1); d, e — от H' (с изменением узельного индекса в точке взаимодействия 2). Волнистые линии означают фононное усреднение.

$\langle v_g \rangle = \langle v_0 \rangle$, $\langle v_g(t) v_g \rangle = \langle v_0(t) v_0 \rangle$ и $\langle v_g(t) v_0 \rangle = \langle v_0(t) v_{-g} \rangle = \langle v_0(t) v_g \rangle$. Последнее равенство есть следствие отсутствия центра инверсии в решетке. Вводя обозначение

$$\omega(g) = \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-s|t|} [\langle v_g(t) v_0 \rangle - \langle v_0 \rangle^2], \quad (22)$$

получаем, что вклад от диаграмм $a-g$ W_{00}^{gg} можно привести к виду

$$W_{00}^{gg} = w(g) - w(0). \quad (23)$$

Подставляя в (22) оператор v_m (3), (5), после довольно громоздкого, но стандартного в теории малых поляронов [17, 18] фононного усреднения получаем следующее выражение для $w(g)$:

$$\begin{aligned} w(g) = & (I/\hbar)^4 \sum_{g_1, g_2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[\int_0^{\infty} dt_1 - \int_{-\infty}^0 dt_1 \right] \left[\int_0^{\infty} dt_2 - \int_{-\infty}^0 dt_2 \right] \times \\ & \times \exp \left\{ -4S_T - s|t| + \frac{i}{\hbar} U(t_1 + t_2) \right\} \times \\ & \times \exp \left\{ \sum \Gamma_{\mathbf{q}} (1 - \cos \mathbf{q} \mathbf{g}_1) [\cos \omega_{\mathbf{q}}(t_1 - i\hbar\beta/2) + \cos \omega_{\mathbf{q}}(t_2 - i\hbar\beta/2)] \right\} \times \\ & \times \left\{ \exp \left[2 \sum_{\mathbf{q}} \Gamma_{\mathbf{q}} (\cos \mathbf{q} (\mathbf{g} + \mathbf{g}_1 + \mathbf{g}_2) + \cos \mathbf{q} \mathbf{g} - \cos \mathbf{q} (\mathbf{g} + \mathbf{g}_1) - \cos \mathbf{q} (\mathbf{g} + \mathbf{g}_2)) \right] \times \right. \end{aligned}$$

$$\times \cos \omega_{\mathbf{q}} t \sin (\omega_{\mathbf{q}} t_1 / 2) \sin (\omega_{\mathbf{q}} t_2 / 2) - 1 \}, \quad (24)$$

где $\Gamma_{\mathbf{q}} = |\gamma_{\mathbf{q}}|^2 / (N \text{sh}(\hbar \omega_{\mathbf{q}} \beta / 2))$, S_T определено в (21).

Как будет видно ниже, основной вклад в интеграл по временам (24) дает область малых $\omega_{\mathbf{q}} t_1$, $\omega_{\mathbf{q}} t_2 \sim |\gamma_{\mathbf{q}}|^{-2} \ll 1$. В силу этого показатель экспоненты в (24) можно разложить в ряд по t_1 и t_2

$$\begin{aligned} w(g) = & (I/\hbar)^4 \sum_{g_1, g_2} \left[\int_0^{\infty} dt_1 - \int_{-\infty}^0 dt_1 \right] \left[\int_0^{\infty} dt_2 - \int_{-\infty}^0 dt_2 \right] \int_{-\infty}^{\infty} dt \times \\ & \times \exp \left[-s|t| + \frac{i}{\hbar} (U + 4E_a)(t_1 + t_2) \right] \times \\ & \times \left\{ \exp \left[- \sum_{\mathbf{q}} \frac{\alpha_{\mathbf{q}}(g g_1 g_2) \omega_{\mathbf{q}}^2 t_1 t_2}{2N \text{sh}(\hbar \omega_{\mathbf{q}} \beta / 2)} \cos \omega_{\mathbf{q}} t \right] - 1 \right\}, \end{aligned} \quad (25)$$

где E_a — энергия активации для однофононного прыжка

$$E_a = \frac{1}{4N} \sum_{\mathbf{q}} |\gamma_{\mathbf{q}}|^2 \hbar \omega_{\mathbf{q}} (1 - \cos \mathbf{q} \mathbf{g}), \quad (26)$$

$$\alpha_{\mathbf{q}}(g g_1 g_2) = |\gamma_{\mathbf{q}}|^2 [\cos \mathbf{q}(\mathbf{g} + \mathbf{g}_1 + \mathbf{g}_2) + \cos \mathbf{q} \mathbf{g} - \cos \mathbf{q}(\mathbf{g} + \mathbf{g}_1) - \cos \mathbf{q}(\mathbf{g}_2 + \mathbf{g})]. \quad (27)$$

Из (25) видно, что основной вклад в интеграл дают t_1 , $t_2 \sim \hbar/4E_a$, что и утверждалось выше. По этой же причине экспонента под интегралом может быть разложена в ряд с точностью до квадратичного члена (первый член разложения, описывающий однофононный процесс, обращается в нуль после интегрирования по t). Выполняя интегрирование по t_1 , t_2 и t , имеем

$$w(g) = \frac{I^4}{\hbar^2 (U + 4E_a)^6} \sum_{\mathbf{q}, \mathbf{q}'} \sum_{g_1, g_2} \left[\frac{(\hbar \omega_{\mathbf{q}})^2}{N \text{sh}^2(\hbar \omega_{\mathbf{q}} \beta / 2)} \right]^2 \alpha_{\mathbf{q}}(g g_1 g_2) \alpha_{\mathbf{q}'}(g g_1 g_2) \delta(\omega_{\mathbf{q}} - \omega_{\mathbf{q}'}). \quad (28)$$

Обратимся теперь к исследованию вклада в W_{00}^{gg} от диаграмм ∂ и ϵ на рис. 2 (W''_{00}^{gg}). Вклад от этих диаграмм имеет вид

$$W''_{00}^{gg} = - \frac{2}{\hbar^2} \text{Re} \sum_{g'} \int_0^{\infty} dt e^{-st} \{ \langle J_{0g'}(t) J_{g'0} \rangle - \langle J_{0g'} \rangle^2 \}. \quad (29)$$

Подставляя в (29) явный вид многофононных операторов J (2) и производя фононное усреднение, получаем

$$\begin{aligned} W''_{00}^{gg} = & \frac{I^4}{\hbar^4} z \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[\int_0^{\infty} dt_1 - \int_{-\infty}^0 dt_1 \right] \left[\int_0^{\infty} dt_2 - \int_{-\infty}^0 dt_2 \right] \times \\ & \times \exp \left\{ -4S_T - s|t| + \frac{i}{\hbar} U(t_1 + t_2) \right\} \times \\ & \times \exp \left\{ \sum_{\mathbf{q}} \Gamma_{\mathbf{q}} (1 - \cos \mathbf{q} \mathbf{g}) [\cos \omega_{\mathbf{q}}(t_1 - i\hbar\beta/2) + \cos \omega_{\mathbf{q}}(t_2 - i\hbar\beta/2)] \right\} \times \\ & \times \left\{ \exp \left[4 \sum_{\mathbf{q}} \Gamma_{\mathbf{q}} (1 - \cos \mathbf{q} \mathbf{g}) \cos \omega_{\mathbf{q}} t \cos (\omega_{\mathbf{q}} t_1 / 2) \cos (\omega_{\mathbf{q}} t_2 / 2) \right] - 1 \right\}. \end{aligned} \quad (30)$$

Вероятность W'' (30) с точностью до знака совпадает с вероятностью биполярного межузельного перескока W_{0g}^{0g} , исследованной в [13] в области высоких температур $\hbar \omega_{\mathbf{q}} \beta < 1$. В этой области она экспоненциально мала, $\sim \exp[-(U + 4E_a)^2 / 16E_a kT]$. В интересующем нас здесь низкотемпературном пределе, когда $\Gamma_{\mathbf{q}} \ll 1$, из (30) после интегрирования по временам с учетом двухфононных процессов имеем

$$W''_{00} = \frac{I^4}{\hbar^4} e^{-4S_T} z \left[\int_0^\infty dt_1 - \int_{-\infty}^0 dt_1 \right] \left[\int_0^\infty dt_2 - \int_{-\infty}^0 dt_2 \right] \exp\left(\frac{i}{\hbar} U(t_1 + t_2)\right) \times \\ \times \exp\left\{-\sum_{\mathbf{q}} \Gamma_{\mathbf{q}} (1 - \cos \mathbf{q}\mathbf{g}) [\cos \omega_{\mathbf{q}}(t_1 - i\hbar\beta/2) + \cos \omega_{\mathbf{q}}(t_2 - i\hbar\beta/2)]\right\} \times \\ \times 8\pi \sum_{\mathbf{q}, \mathbf{q}'} \Gamma_{\mathbf{q}} \Gamma_{\mathbf{q}'} (1 - \cos \mathbf{q}\mathbf{g}) (1 - \cos \mathbf{q}'\mathbf{g}) \delta(\omega_{\mathbf{q}} - \omega_{\mathbf{q}'}) \cos(\omega_{\mathbf{q}} t_1/2) \cos(\omega_{\mathbf{q}'} t_2/2).$$

Учитывая, что ширина биполяронной зоны [13]

$$\Delta E_b = 2z \langle J \rangle = \frac{I^2}{\hbar} e^{-2S_T} \text{Im} \int_0^\infty dt \exp\left\{\frac{i}{\hbar} Ut - \sum_{\mathbf{q}} \Gamma_{\mathbf{q}} (1 - \cos \mathbf{q}\mathbf{g}) \cos \omega_{\mathbf{q}}(t - i\hbar\beta/2)\right\},$$

имеем

$$W''_{00} \approx -\frac{(\Delta E_b)^2}{z\hbar^2} 4\pi \sum_{\mathbf{q}, \mathbf{q}'} \Gamma_{\mathbf{q}} \Gamma_{\mathbf{q}'} (1 - \cos \mathbf{q}\mathbf{g}) (1 - \cos \mathbf{q}'\mathbf{g}) \delta(\omega_{\mathbf{q}} - \omega_{\mathbf{q}'}). \quad (31)$$

Сравнивая W'' (31) с W' (28), видим, что $W''/W' \sim (\Delta E_b/I)^2$, т. е. W'' экспоненциально мала (см. (18)) и ее можно опустить. Тогда, согласно (23) и (28),

$$\frac{1}{z} = \frac{I^4}{\hbar^2 (U + 4E_a)^6} \sum_{\mathbf{q}, \mathbf{q}' \vartheta_1, \vartheta_2} \sum \frac{(\hbar\omega_{\mathbf{q}})^4}{N^2 \text{sh}(\hbar\omega_{\mathbf{q}}\beta/2)} \delta(\omega_{\mathbf{q}} - \omega_{\mathbf{q}'}) \times \\ \times \langle \alpha_{\mathbf{q}}(0, \vartheta_1, \vartheta_2) \alpha_{\mathbf{q}'}(0, \vartheta_1, \vartheta_2) - \alpha_{\mathbf{q}}(\vartheta, \vartheta_1, \vartheta_2) \alpha_{\mathbf{q}'}(\vartheta, \vartheta_1, \vartheta_2) \rangle \approx \\ \approx c \frac{I^4 E_a^2}{(U + 4E_a)^6} \frac{\omega_0^2}{\Delta\omega} \exp(-\hbar\omega_0\beta) \sim \frac{I^4}{E_a^4} \frac{\omega_0^2}{\Delta\omega} \exp(-\hbar\omega_0/kT), \quad (32)$$

где c — число, $\Delta\omega$ — дисперсионная ширина фононной зоны. Интересно отметить, что вероятность биполяронного туннелирования (32) практически совпадает с вероятностью туннелирования монополяронов, рассчитанной по диаграммам четвертого порядка, которые в модели малых поляронов оказываются больше вклада от графиков второго порядка для этой величины [17, 20, 24] (ср. (32) с (П. 33) в [17]). Таким образом, согласно (32), (17) и в соответствии с соотношением Эйнштейна имеем, что при не зависящей от T концентрации биполяронов n_b туннельная электропроводность растет с понижением температуры, $\sigma_t \sim (1/T) \exp(\hbar\omega_0/kT)$. Подобным образом ведет себя туннельный вклад в электропроводность и для монополяронов. Однако эффективная масса биполяронов значительно больше, а поэтому подвижность их меньше, чем монополяронов. Отношение этих подвижностей порядка $(\Delta E_b/\Delta E_p) \ll 1$, $\Delta E_p = 2zIe^{-S_T}$.

3. Обсуждение результатов

Теперь можно описать температурную зависимость электропроводности биполяронной системы в широком интервале температур. Эта зависимость в значительной мере регулируется таким параметром, как число электронов проводимости на узел ν . Принятое выше одноэлектронное приближение соответствует $\nu \ll 1$ (или в условиях дырочной проводимости $2 - \nu \ll 1$). Относительная доля монополяронных и биполяронных состояний определяется величиной $\lambda = \nu^2 \exp(U/kT)$ [9]. При $\lambda \gg 1$ в системе преобладают биполяроны, так что их концентрация $n_b = \nu/v_a$ (v_a — объем элементарной ячейки). Концентрация же монополяронов $n_p = 2\sqrt{\nu} \exp(-U/2kT)/v_a$. В случае $|\lambda| \ll 1$ $n_b = \nu^2 \exp(U/kT)/4v_a$, $n_p = \nu/v_a \gg n_b$. В температурном интервале, где при заданном ν $n_b \ll n_p$, температурная зависимость проводимости системы описывается стандартной теорией малых поляронов [17, 18]. Наибольший интерес для нас представляет область температур и

концентраций, когда $n_b = \nu/v_a \gg n_p = 2\sqrt{\nu} \exp(-U/2kT)/v_a$. Схематически температурная зависимость электропроводности для этого случая приведена на рис. 3. Обе кривые зависимости $\sigma_p(T)$ и $\sigma_b(T)$ имеют две характерные области, разделенные температурами T_1 и T'_1 соответственно. Область $T > T_1$ характеризуется тем, что в ней монополярная подвижность имеет прыжковый характер, $\mu_p \sim \exp(-E_a/kT)$. При этом проводимость $e n_p \mu_p \sim \exp\{-(E_a + U/2)/kT\}$ [9]. Соответственно при $T > T'_1$ биполярный перенос осуществляется прыжками, и в этой области как подвижность μ_b , так и проводимость $\sigma_b \sim \exp\{-(E_a + U/2 + U^2/16E_a)/kT\}$. В области классических перекоков по этому σ_b всегда меньше σ_p .

По мере понижения температуры при $T < T_1$ монополярный перенос принимает туннельный характер, и здесь $\mu_p \sim \exp(\hbar\omega_0/kT)$, при этом $\sigma_p \sim \exp\{-(U/2 - \hbar\omega_0)/kT\}$, т. е. продолжает падать с уменьшением T . В этом отношении биполярная система радикально отличается от монополярной, в которой концентрация n_p от T не зависит, а поэтому при тунелировании σ_p растет с понижением температуры по закону $\exp(\hbar\omega_0/kT)$. Заметим, что $kT_1 = c\hbar\omega_0$, где c — число, порядка единицы [17]. С понижением температуры биполярный прыжковый перенос сменяется туннельным при $T = T'_1$, так что при $T < T'_1$ μ_b , $\sigma_b \sim \exp(\hbar\omega_0/kT)$, как показано выше. В этой области биполярная проводимость начинает расти с уменьшением температуры. При некоторой температуре T_b туннельный вклад в проводимость от биполяронов начинает превышать туннельный монополярный вклад. Температуру T_b можно определить из равенства $\sigma_p(T_b) = \sigma_b(T_b)$ или $n_p(T_b)D_p(T_b) = n_b(T_b)D_p(T_b)$. Так как время релаксации τ для биполяронов и монополяронов одинаково, то, согласно (17), это равенство имеет вид $2 \exp(-U/2kT_b)(\Delta E_p)^2 = \sqrt{\nu}(\Delta E_b)^2$ или

$$2kT_b = U/\ln \left[\frac{2}{\sqrt{\nu}} \left(\frac{\Delta E_p}{\Delta E_b} \right)^2 \right] = U \left\{ \gamma_0 + \frac{2U}{\hbar\omega_0} \ln \frac{e\hbar\omega_0\gamma_1}{U} + \ln \frac{\hbar\omega_0 U}{4\pi T^2 \sqrt{\nu}} \right\}. \quad (33)$$

Учитывая, что $\gamma\hbar\omega_0 \geq U$, видим, что kT_b меньше, чем $\hbar\omega_0$.

Таким образом, в биполярной модели зависимость $\sigma(T)$ в широком температурном интервале имеет минимум вблизи $T = T_b$, соответствующий переходу от монополярного туннельного переноса к биполярному туннелированию. Вторая характерная точка на зависимости $\sigma(T)$ соответствует $T = T_1$. В ней происходит уменьшение энергии активации с понижением T от $E_a + U/2$ до $U/2 - \hbar\omega_0$. Эта точка соответствует переходу от монополярного туннелирования к монополярным межузельным перекокам. Подчеркнем также, что в настоящей работе не рассмотрена область сверхнизких температур $kT < \Delta E_b$, в которой перенос приобретает зонный характер. Следует ожидать, что в этой области биполярная проводимость будет иметь степенную зависимость от температуры подобно монополярной [22].

Описанное поведение $\sigma(T)$ справедливо для случая, когда во всем температурном интервале концентрация биполяронов превышает концентрацию монополяронов. Если же при $kT > kT_0 = |U/\ln \nu|$ монополярон-

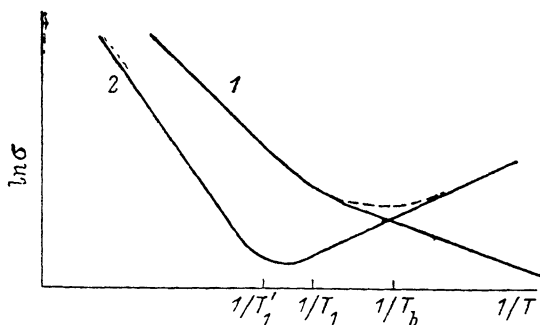


Рис. 3. Схематическое изображение температурной зависимости проводимости в биполярной модели.

1 — монополярный вклад $\sigma_p(T)$, 2 — биполярный вклад. Штрихи — результирующая кривая.

ная концентрация превысит биполярную, то в этой области температур $n_p \approx \nu$ и перестает зависеть от T . В этой области температур σ принимает характер, обычный для стандартной теории малых поляронов. В частности, если $T_0 > T_1$, то на рис. 3 в точке T_0 возникнет переход от активационной зависимости с $E_a + U/2$ к зависимости с меньшей энергией активации E_a . Если $T_1 > T_0 > T_b$, то в области монополярного туннельного просачивания возникнет горб: при $T_1 > T > T_0$ имеется активационное спадание $\sigma \sim \exp(\hbar\omega_0/kT)$, а при $T_0 > T > T_b$ активационный рост $\sigma \sim \exp\{-(U/2 - \hbar\omega_0)/kT\}$. Результирующая кривая $\sigma(T)$ будет обладать двумя минимумами и одним максимумом.

Можно также заметить, что в окрестности перехода от монополярной к биполярной проводимости (т. е. вблизи T_b) следует ожидать наличия существенного вклада в токоперенос от неучтенных в настоящей работе процессов с диссоциацией и образованием биполяронов в процессе туннелирования. Отметим также, что, поскольку число монополяронов чувствительно при $T < T_0$ к магнитному полю H [9] (если параметр $\mu_B H/kT$ не мал; μ_B — магнетон Бора), биполярный и монополярный механизмы переноса можно отличать по магнетосопротивлению. В частности, в интервале температур $0 < T < T_b$, где основной вклад дают биполяроны, магнетосопротивление мало. В области температур $T_b < T < T_0$ должно наблюдаться отрицательное магнетосопротивление [9], а при $T > T_0$ вследствие тепловой диссоциации биполярных молекул опять зависимость проводимости от H должна быть слабой.

Список литературы

- [1] Emery V. J. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 58. N 26. P. 2794—2797.
- [2] Hirsch J. E. // Phys. Rev. B. 1987. V. 35. N 16. P. 8726—8729.
- [3] Кулик И. О. // ФНТ. 1987. Т. 13. № 8. С. 879—883.
- [4] Пашицкий Э. А., Винецкий В. Л. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 46. Приложение. С. 124—127.
- [5] Александров А. С. // ЖЭТФ. 1989. Т. 95. № 1. С. 296—300.
- [6] Александров А. С. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 46. Приложение. С. 128—130.
- [7] Yan-Min L., Li-Yuan Zhang. // Sol. St. Comm. 1985. V. 57. N 8. P. 553—557.
- [8] Ranninger J., Robaszkiewicz S., Sulpice A., Tournier B. // J. Europhys. Lett. 1987. V. 3. N 3. P. 347—357.
- [9] Брыксин В. В. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 7. С. 6—16.
- [10] Rüscher C., Salje E., Hussain A. // J. Phys. C. 1988. V. 21, N 20. P. 3737—3749.
- [11] Брыксин В. В., Волошин В. С. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 8. С. 2357—2365.
- [12] Kuroda Y., Mills D. L. // Phys. Rev. B. 1985. V. 31. N 12. P. 7624—7635.
- [13] Брыксин В. В., Гольдев А. В. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 5. С. 1476—1486.
- [14] Педан А. Г. // ФНТ. 1986. Т. 12. № 7. С. 709—717.
- [15] Александров А. С., Кабанов В. В. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 4. С. 1129—1135.
- [16] Брыксин В. В., Волошин В. С., Райцев А. В. // ФТТ. 1983. Т. 25. № 5. С. 1427—1434.
- [17] Сб. «Поляроны» / Под ред. Ю. А. Фирсова. М.: Наука, 1975. 423 с.
- [18] Böttger H., Bryksin V. V. Hopping Conduction in Solids. Berlin, 1985. 398 с.
- [19] Alexandrov A., Ranninger J., Robaszkiewicz S. // Phys. Rev. B. 1986. V. 33. N 7. P. 4526—4537.
- [20] Ланг И. Г., Фирсов Ю. А. // ЖЭТФ. 1962. Т. 43. № 5. С. 1843—1860.
- [21] Friedman L. // Phys. Rev. 1964. V. 135. N 1A. P. A233—A245.
- [22] Gogolin A. A. // Phys. St. Sol. (b). V. 103. N 2. P. 397—409.
- [23] Кудинев Е. К., Фирсов Ю. А. // ФТТ. 1966. Т. 8. № 3. С. 666—679.
- [24] Брыксин В. В., Фирсов Ю. А. // ФТТ. 1968. Т. 10. № 9. С. 2600—2607.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Поступило в Редакцию
11 апреля 1989 г.