

# VỀ DẪN NHẢY BƯỚC BIẾN ĐỔI TRONG VẬT LIỆU VÔ ĐỊNH HÌNH

Đặng Đình Tới

Khoa Vật lý, Đại học KH Tự nhiên - ĐHQGHN

## I. ĐẶT VẤN ĐỀ

Mặc dù đã được Mott đề xuất từ năm 1968 [1], vấn đề dẫn nhảy bước biến đổi (Variable Range Hopping - VRH) hiện vẫn đang là rất thời sự và hấp dẫn. Theo Mott, ở nhiệt độ thấp, dẫn điện trong các hệ điện tử định xứ Anderson chủ yếu được xác định bởi các trạng thái điện tử thuộc lân cận hẹp của mức Fermi  $E_F$ . Giả thiết rằng mật độ trạng thái (Density of States DOS) đơn hạt trong miền này là không phụ thuộc vào năng lượng:  $g(\varepsilon) \equiv g_0 = \text{const}$ , Mott đã đưa ra định luật nổi tiếng về sự phụ thuộc nhiệt độ của độ dẫn  $\sigma$  (thường gọi là định luật Mott- $T^{-1/4}$ ):

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left\{-\left(\frac{T_M}{T}\right)^{1/4}\right\}, \quad T_M = \frac{\beta_M}{g_0 \xi^3 k_B}, \quad (1)$$

ở đây  $\xi$  là độ dài định xứ, hệ số  $\beta_M \approx 18,1$  [2]. Nhân tử  $\sigma_0$  phụ thuộc vào nhiệt độ rất yếu so với nhân tử e-mũ bên cạnh, nên trong thực tế thường bỏ qua sự phụ thuộc này [3].

Định luật Mott (1) đã được quan sát ở số lớn thực nghiệm với vật liệu khác nhau, như vô định hình, bán dẫn pha tạp, bán dẫn đa tinh thể, v.v... Nhưng với nhiều hệ vô định hình có một thực tế là [4], mặc dù đường cong thực nghiệm  $\ln(\sigma(T)/\sigma_0)$  có dáng điệu phù hợp với quy luật lý thuyết  $T^{-1/4}$ (1), song giá trị thực nghiệm của độ dẫn thường lớn hơn nhiều bậc so với giá trị lý thuyết, tính theo (1). Về mặt vật lý, sự khác lệch này trước hết có thể liên quan đến dáng điệu của DOS ở gần mức Fermi. Nếu DOS không phải là không đổi như Mott giả định mà tăng nhanh cùng với  $|\varepsilon - E_F|$ , thì giá trị lý thuyết của  $\sigma$  sẽ lớn hơn, và như vậy sự khác lệch giữa lý thuyết và thực nghiệm sẽ (phần nào) được giải quyết.

Efros và Shklovskii (ES) [5] chỉ ra rằng, do tương tác Coulomb xa giữa các điện tử định xứ, ở lân cận mức Fermi DOS có dạng:

$$g(\varepsilon) = \alpha_3 (\varepsilon - E_F)^2, \quad \alpha_3 = \frac{3}{\pi} \frac{\kappa^4}{e^6}, \quad (2)$$

ở đây  $e$  là điện tích cơ bản,  $\kappa$  là hằng số điện môi. Và khi đó, thay cho (1), tương ứng có:

$$\sigma(T) = \sigma_0 \exp\left\{-\left(\frac{T_{ES}}{T}\right)^{1/2}\right\}, \quad T_{ES} = \beta_{ES} \frac{e^2}{\kappa \xi k_B}, \quad (3)$$

ở đây  $\beta_{ES} = 2,8$  [6].

Định luật ES  $-T^{-1/2}$  (3) cũng đã được quan sát ở nhiều hệ bán dẫn pha tạp, vô định hình, v.v... Nhưng, ở đây lại xuất hiện một vấn đề khác: giá trị lý thuyết của  $T_{ES}$  tính theo (3) thường khác xa với giá trị thực nghiệm (và tương ứng giá trị độ dài định xứ  $\xi$  cũng vậy).

Trong thực tế, ở một số thí nghiệm thậm chí cả 2 định luật (1) và (3) đồng thời được quan sát trong cùng một mẫu, nhưng ở miền nhiệt độ khác nhau: định luật Mott  $-T^{-1/4}$  ở miền nhiệt độ tương đối cao và định luật ES  $-T^{-1/2}$  ở miền nhiệt độ thấp hoặc ngược lại. Mô tả giải tích sự chuyển tiếp liên tục giữa hai định luật là đề tài của nhiều công trình gần đây. Nhưng, mỗi lý thuyết hiện có thường chỉ giới hạn ở mô tả kết quả thực nghiệm cho một lớp vật liệu nào đó.

Ở đây, chú ý là, các kết quả lý thuyết trước hết cũng lại phụ thuộc mạnh vào dạng hàm DOS  $g(\varepsilon)$  được chọn dùng trong tính toán.

Từ nhận xét trên, chúng tôi cho rằng nguyên nhân quan trọng dẫn đến khó khăn hiện tại trong so sánh các kết quả thực nghiệm và lý thuyết về VRH là, trong thực tế có lẽ không tồn tại một dạng DOS  $g(\varepsilon)$  chung cho mọi hệ điện tử định xứ mạnh đã được nghiên cứu thực nghiệm. Những vật liệu và/hoặc cấu trúc khác nhau hẳn là có dạng hàm  $g(\varepsilon)$  khác nhau. Có nhiều nguyên nhân dẫn đến sự khác nhau này: dạng DOS (2) vốn được đề xuất cho trường hợp  $T = 0$ , nhiệt độ hữu hạn làm cho DOS trở nên khác không ở mức Fermi,  $g(\varepsilon = E_F) \neq 0$  [11]; hiệu ứng chắn có ảnh hưởng khác nhau, chẳng hạn chắn do gate kim loại trong cấu trúc MOSFET cũng làm cho DOS trở nên khác không ở  $\varepsilon = E_F$  [10]; Thế thẳng giăng ngẫu nhiên và hiệu ứng kích thước hữu hạn cũng có thể đóng vai trò quan trọng [12] ...

Mục đích bài này là, trên cơ sở đề xuất một dạng DOS đơn giản, chúng tôi tính cụ thể độ dẫn VRH cho vật liệu vô định hình bằng phương pháp lý thuyết thẩm (percolation). Kết quả thu được phần nào lý giải những khó khăn nêu trên.

## II. MÔ HÌNH MẬT ĐỘ TRẠNG THÁI

Để tính độ dẫn VRH  $\sigma(T)$  chúng tôi xuất phát từ giả thiết cho rằng, đối với vật liệu vô định hình, DOS ở lân cận mức Fermi có dạng:

$$g_a(E) = g_0 \left[ 1 + \left( \frac{E}{E_0} \right)^2 \right], \quad (4)$$

ở đây  $E \equiv (\varepsilon - E_F)$ ,  $g_0 \equiv g(E = 0)$  là tham số thực nghiệm ( $g_0$  trong mô hình của Mott), năng lượng  $E_0$  xác định bằng điều kiện  $\frac{g_0}{E_0^2} = \alpha_3 \equiv \frac{3}{\pi} \frac{\kappa^4}{e^6}$ . Khi đó, rõ ràng các dạng hàm DOS  $\dot{g}(\varepsilon) = g_0$  của Mott và  $g(\varepsilon)$  của ES có thể xem như các giới hạn của DOS (4):

$$g_a(E) \rightarrow \begin{cases} g_0, & \text{khi } E \ll E_0 \\ \alpha_3 E^2, & \text{khi } E \gg E_0. \end{cases}$$

Mặt khác, so với hai trường hợp giới hạn Mott và ES thì dạng hàm (4) mô tả gần đúng hơn đáng kể định tính được thừa nhận rộng rãi đối với DOS ở gần mức Fermi của vật liệu vô định hình. Đáng kể đó là: DOS có cực tiểu (khác không) tại  $\varepsilon = E_F$  và tăng dần theo  $|\varepsilon - E_F|$  cả về hai phía [13].

Hơn nữa, dạng DOS (4) là đủ đơn giản để việc tính  $\sigma(T)$  có thể thực thi trong dải rộng giá trị nhiệt độ  $T$ , tiện lợi trong so sánh với thực nghiệm.

### III. TÍNH ĐỘ DẪN NHẢY $\sigma(T)$

Miller và Amrahams đã chỉ ra rằng [14], việc tính độ dẫn nhảy có thể quy về bài toán tính trở tương đương của một mạng các điện trở ngẫu nhiên. Mỗi nút (site)  $i$  (chẳng hạn, tâm tạp) được đặc trưng bởi tọa độ  $\vec{r}_i$  và năng lượng  $\varepsilon_i$ . Dòng Ohm giữa hai nút  $i$  và  $j$  bất kì là tỷ lệ với điện trở:

$$R_{ij} = R_{ij}^0 \exp(\eta_{ij}), \quad \eta_{ij} = \frac{2r_{ij}}{\xi} + \frac{\varepsilon_{ij}}{kT}, \quad (5)$$

trong đó  $r_{ij} = |\vec{r}_i - \vec{r}_j|$ ;  $\varepsilon_{ij}$  là năng lượng kích hoạt. Nhân tử  $R_{ij}^0$  phụ thuộc yếu vào tọa độ, năng lượng và nhiệt độ  $R_{ij}^0 \equiv R_0$ . Chú ý quan trọng là, do tính ngẫu nhiên của cả biến không gian ( $\vec{r}_i$ ) và năng lượng  $\varepsilon_i$ , đại lượng  $\eta_{ij}$  thăng giáng mạnh từ cặp nút này sang cặp nút khác và với hệ khảo sát luôn có  $\eta_{ij} \gg 1$ .

Bài toán tính trở tương đương của lưới các trở ngẫu nhiên (5) là không đơn giản. Bỏ qua sự thăng giáng của  $R_{ij}^0$ , Ambegaoker et al. [15] và Pollak [16] đã đề xuất phương pháp giải bài toán này dựa trên lý thuyết thấm (xem, chẳng hạn [17]). Định nghĩa, hai nút ( $i, j$ ) được gọi là liên kết nếu  $\eta_{ij} < \eta$  (tức  $R_{ij} < R$ ), khi đó bài toán tính trở tương đương sẽ chuyển về bài toán liên kết (bond-problem) trong lý thuyết thấm, và trở tương đương của hệ được xác định đơn giản bằng  $R = R_0 \exp(\eta_C)$ , hay tương ứng độ dẫn điện bằng:

$$\sigma = \sigma_0 \exp[-\eta_C(T)], \quad (6)$$

trong đó  $\eta_C$  là ngưỡng thấm của bài toán khảo sát.

Vì  $R_{ij}$  phụ thuộc  $e$ -mũ vào  $r_{ij}$  và  $\varepsilon_{ij}$  nên, tất nhiên, ngưỡng thấm  $\eta_C$  phụ thuộc mạnh vào đặc trưng phân bố không gian và phân bố năng lượng của các nút trong hệ. Nếu xem phân bố trong không gian là hoàn toàn ngẫu nhiên thì (với  $\xi$  và  $T$  đã cho) giá trị của  $\eta_C$  được xác định hoàn toàn bởi dạng của DOS. Nếu chọn DOS  $g(\varepsilon) = g_0 = const$  theo Mott, hay  $g(\varepsilon) = \alpha_3(\varepsilon - E_F)^2$  theo ES, thì bằng phương pháp lý thuyết thấm ta dễ dàng nhận lại các định luật (1) và (3) tương ứng. Trên thực tế, lý thuyết dẫn nhảy hiện đại được xây dựng cơ bản dựa trên phương pháp lý thuyết thấm.

Trong bài này, xuất phát từ DOS (4) chúng tôi tính  $\sigma(T)$  cho dải rộng các giá trị nhiệt độ, dựa trên phương pháp đề xuất bởi Efros et al. [6].

Với mỗi cặp nút, cách nhau  $r$ , ta dựng hai hình cầu bán kính  $r/2$ , tâm tại các nút. Tính tổng thể tích của tất cả các hình cầu như vậy, nhưng chỉ với các cặp nút liên kết thấm với nhau, trong toàn hệ. Tỷ số giữa tổng thể tích này với thể tích của toàn hệ là:

$$\alpha = \int F(\omega, r) \theta\left(\eta_C - \frac{\omega}{kT} - \frac{2r}{\xi}\right) \frac{\pi}{6} r^3 d^3 r d\omega, \quad (7)$$

trong đó hàm phân bố cặp

$$F(\omega, r) = \frac{1}{2} \int \int g(E_1) g(E_2) \delta(E_{12}(r) - \omega) dE_1 dE_2,$$

với

$$E_{12}(r) = \begin{cases} |E_1 - E_2| - \frac{e^2}{\kappa r}, & \text{khi } E_1 E_2 < 0 \\ \max\{|E_1|, |E_2|\}, & \text{khi } E_1 E_2 > 0, \end{cases}$$

và  $\theta$  là hàm bậc thang  $\theta(x) = 1$  nếu  $x > 0$ ,  $\theta(x) = 0$  nếu  $x < 0$ .

Ta thấy trong trường hợp giới hạn  $T \rightarrow \infty$ , số hạng  $\omega/kT$  bên trong hàm  $\theta(x)$  sẽ bằng không, các tích phân  $\int g(E)dE$  sẽ đơn giản là tổng số nút  $N$  có trong một đơn vị thể tích của hệ (chẳng hạn, mật độ tâm tạp), và bài toán khảo sát rút về bài toán liên kết giản đơn của các nút phân bố ngẫu nhiên trong không gian (không có mật năng lượng). Đây là bài toán quen thuộc (bond-problem) trong lý thuyết thẩm với ngưỡng thẩm là  $r \equiv r_C = 0,875N^{-1/3}$  trong đó  $N$  là mật độ nút. Thành thử trong giới hạn này, đại lượng  $\alpha$  là hoàn toàn xác định:

$$\alpha(T \rightarrow \infty) = \frac{\pi^2}{3} N^2 \int_0^{r_C} r^5 dr = \frac{\pi^2}{18} N^2 r_C^6 \equiv \alpha_0. \quad (8)$$

Tương tự như bài toán phần thể tích trong lý thuyết thẩm, các tác giả [6] giả thiết rằng, đại lượng  $\alpha$  theo (7) là một bất biến, không phụ thuộc nhiệt độ, nghĩa là  $\alpha(T) \equiv \alpha_0 = inv$ . Sử dụng tính bất biến này với mật độ trạng thái  $g(\varepsilon)$  đã cho, dễ dàng tính các tích phân trong (7.8) để nhận được ngưỡng thẩm  $\eta_C$ , như hàm của nhiệt độ, và do đó, thay vào (6), tìm được phụ thuộc  $\sigma(T)$ . Chẳng hạn, trong các trường hợp riêng, nếu  $g(\varepsilon) = g_0$  bất biến (7) cho định luật Mott (1), còn nếu DOS có dạng (2) thì bất biến (7) sẽ dẫn về định luật ES (3). Ở đây để tính  $\sigma(T)$  cho các hệ vô định hình chúng tôi dùng bất biến (7) với mật độ trạng thái đề xuất (4). Thực hiện các tích phân, tuy dài nhưng đơn giản, từ (7) nhận được phương trình đại số xác định  $\eta_C$  như hàm của nhiệt độ:

$$\eta_C^8 \cdot \eta_{C0}^{-8} [1 + A_1 \eta_C^2 \cdot \eta_{C0}^{-8} S^8 + A_2 \eta_C^4 \cdot \eta_{C0}^{-16} S^{16}] = 1, \quad (9)$$

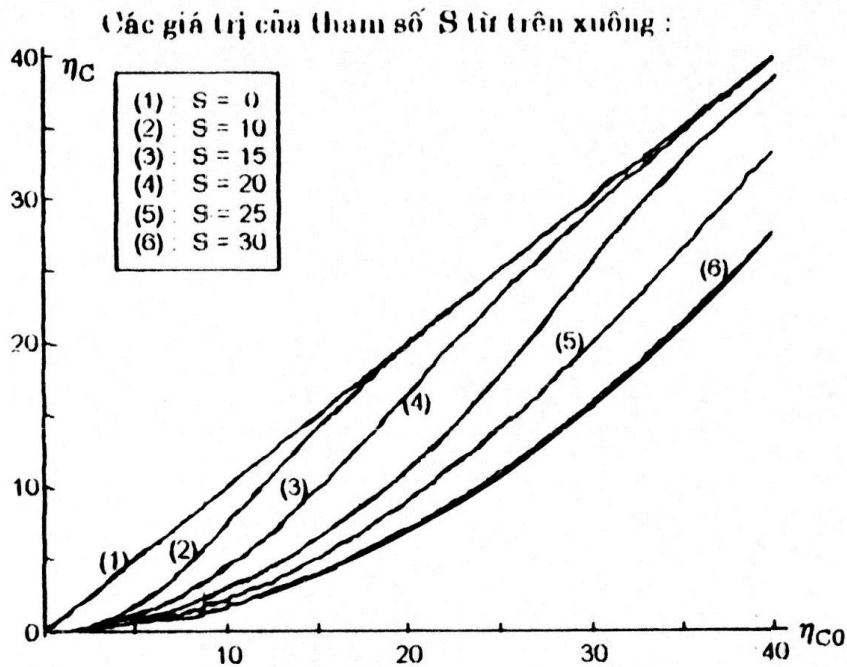
trong đó  $\eta_{C0} \equiv (\frac{T_M}{T})^{1/4}$  là ngưỡng thẩm ứng với mô hình Mott,  $S = (\frac{q}{E_0 g_0 \xi^3})^{1/4}$  là tham số thực nghiệm ( $q = 21,1$ ); các hệ số  $A_1 = 2/27$ ;  $A_2 = 7/2970$ .

Dễ dàng thấy rằng, trong hai giới hạn, nhiệt độ cao, ứng với  $E \gg E_0$  và nhiệt độ thấp, ứng với  $E \ll E_0$ , phương trình (9) cho tương ứng, định luật ES và định luật Mott. Với dải rộng nhiệt độ trung gian phương trình (9) có thể dễ dàng giải số. Kết quả nhận được sẽ cho một phụ thuộc liên tục của  $\eta_C(T)$  (tức là  $\sigma(T)$ ), bao gồm đoạn chuyển tiếp (crossover) giữa hai định luật giới hạn.

#### IV. THẢO LUẬN KẾT QUẢ

Trên hình là kết quả giải số phương trình (9) cho một số giá trị điển hình của tham số  $S$ , tương ứng các hệ vô định hình phổ biến. Chẳng hạn với a-Ge:  $\xi = 10\text{Å}$ ,  $g_0 = 3.10^{18} eV^{-1} cm^{-3}$  [4] thì  $E_0 \approx 0,017 eV$  và giá trị tương ứng của  $S$  là  $S = 25$ , còn giá trị  $\eta_{C0} = 30$  là ứng với  $T = 100K$ .

Để ý rằng, trên trục hoành của hình là  $\eta_{C0} = (\frac{T_M}{T})^{1/4}$ . Như vậy đồ thị nhận được thực chất cũng là mô tả phụ thuộc  $\xi(T)$  (và do đó  $\sigma(T)$ ) trong dải rộng các giá trị của nhiệt độ. Điều đáng chú ý đầu tiên là dáng điệu đồ thị ở hai giới hạn:  $\eta_{C0}$  lớn ( $T$  thấp) và  $\eta_{C0}$  nhỏ ( $T$  cao). Trong giới hạn nhiệt độ thấp, như thấy trên hình, tất cả các đường cong, với



giá trị khác nhau của tham số  $S$ , đều tiệm cận về dạng  $\eta_C \propto \eta_{C0}$ , nghĩa là trong giới hạn này, lời giải của phương trình (9) cho lại định luật Mott:  $\ln(\sigma(T)/\sigma_0) = \eta_C(T) \propto T^{-1/4}$ . Trong giới hạn ngược lại của nhiệt độ cao, các đường cong sẽ rõ ràng có dạng parabol  $\eta_C \propto \eta_{C0}^2$ , nghĩa là trong giới hạn này lời giải phương trình (9) cho lại định luật ES:  $\ln(\sigma(T)/\sigma_0) = \eta_C(T) \propto T^{-1/2}$ . Thành thử như đã nói ở trên, kết quả số trên hình bao cả định luật (1) và (3) như hai trường hợp giới hạn.

Quan trọng hơn là, các đường cong trên hình cho sự phụ thuộc liên tục của  $\sigma$  vào  $T$ , và như vậy chúng mô tả sự chuyển (crossover) giữa hai định luật giới hạn - là hiện tượng đang được nghiên cứu mạnh cả về thực nghiệm lẫn lý thuyết (xem [7 - 9]). Các đường cong nhận được mô tả định tính kết quả thực nghiệm mới đây [18] về Mott - ES chuyển tiếp (crossover) trong hệ với thế Coulomb chẵn.

Một kết quả đáng kể nữa, mà ta thấy rõ trên hình, là, với cùng giá trị  $S$ , giá trị của ngưỡng  $\eta_C$  ứng với DOS (4), là nhỏ hơn nhiều so với  $\eta_{C0}$ , ứng với mô hình Mott  $g(\varepsilon) = g_0$ . Chẳng hạn, với  $S = 25$ , ở giá trị  $\eta_{C0} = 30$  ta có tương ứng  $\eta_C = 20$ . Điều này nghĩa là, ở giá trị nghiên cứu của tham số  $S$  (tương ứng a-Ge, như đã nói ở trên) giá trị của độ dẫn tính theo mô hình mật độ trạng thái của chúng tôi là  $\exp(\eta_{C0} - \eta_C) = e^{10}$  lớn hơn giá trị tương ứng tính theo mô hình Mott, và do đó kết quả nghiên cứu của bài này giải quyết một phần khó khăn về sự khác nhau giữa giá trị độ dẫn thực nghiệm và giá trị độ dẫn lý thuyết (tính theo Mott) đã nêu trong phần mở đầu.

Tóm lại, trong bài này chúng tôi đã đề xuất một dạng hàm đơn giản cho DOS ở gần mức Fermi của các hệ vô định hình. Trên cơ sở dạng DOS này, bằng phương pháp lý thuyết thậm chí chúng tôi đã nghiên cứu sự phụ thuộc của độ dẫn vào nhiệt độ trong dải rộng các giá trị nhiệt độ. Trong các trường hợp giới hạn, kết quả nhận được chuyển về các định luật Mott và ES, còn trong miền nhiệt độ trung gian nó mô tả sự chuyển liên tục giữa hai định luật này. Giá trị số của độ dẫn tính trong mô hình của chúng tôi lớn hơn đáng kể giá trị tương ứng tính trong mô hình Mott, và do đó phù hợp hơn với giá trị thực nghiệm.

Tác giả chân thành cảm ơn TS Nguyễn Văn Liên (Viện Vật lý) đã đề xuất vấn đề và cho những ý kiến quý báu giúp tác giả hoàn thành bài báo này.

### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] N.F. Mott. *J. Non-Cryst. Solids*, **1**(1968), 1.
- [2] T.G. Caster, M. Pollak, and B.I. Shklovskii. *Hopping Transport in Solids*, (Amsterdam: Elsevier/North - Holland) (1990), 1.
- [3] N.V. Agrinskaya and V.I. Kozub. *Solid State Commun.*, **91**(1994), 853.
- [4] M. Ortuo and M. Pollak. *Philos. Mag.*, B **47**(1983), L49.
- [5] A.L. Efros and B.I. Shklovskii. *Solid State Phys.*, **8**(1975), L49.
- [6] A.L. Efros, N.V. Lien, and B.I. Shklovskii. *Solid State Commun.*, **32**(1979), 851.
- [7] A. Aharony, Y. Zhang and M.P. Sarachic. *Phys. Rev. Lett.*, **68**(1992), 3900.
- [8] Y. Meir. *Phys. Rev. Lett.*, **77**(1996), 5265.
- [9] N.V. Lien. *Phys. Letters A*, **207**(1995), 379.
- [10] I.L. Aleiner and B.I. Shklovskii. *Phys. Rev.*, B**49**(1994), 13721.
- [11] E.I. Levin, N.V. Lien, B.I. Shklovskii, and A.L. Efros *Sov.Phys. JETP*, **65**(1987), 842.
- [12] U. Kabasawa et al. *Phys. Rev. Lett.*, **70**(1993), 1700.
- [13] N.F. Mott. *Conduction in Non-Crystalline Materials*. Oxford: Clarendon Press, Oxford Univ., 1993.
- [14] A. Miler and E. Abraham. *Phys. Rev.*, **120**(1960), 745.
- [15] V. Ambegaokar, B.I. Halperin, and J.S. Langer. *Phys. Rev.*, B **4**(1971), 2612.
- [16] M. Pollak. *J Non-Cryst. Solids*, **8**(1972), 486.
- [17] B.I. Shklovskii and A.L. Efros. *Electronic Properties of Doped Semiconductors*. Berlin: Springer Verlag, 1984.
- [18] X.L. Hu, Van Keuls F. W., Y. Carmi, H.W. Jiang, and A.J. Dahm. *Solid State Commun.*, **96**(1995), 65.
- [19] R. Rosenbaum, N.V. Lien, M.R. Graham, and M. Witcomb. *J. Phys. Condens. Matter*, **9** (1997), 6247.

VNU. JOURNAL OF SCIENCE, Nat. Sci., Vol.XV, n<sup>o</sup>4 - 1999

### ON VARIABLE-RANGE HOPPING IN AMORPHOUS MATERIALS

**Dang Dinh Toi**

*Faculty of Physical*

College of Natural Sciences - VNU

Based on a simple density of states, the variable-range Hopping conductivity is calculated in amorphous materials for large range temperature. In limit cases, the result leads to well-known Mott and Efros-Shklovskii laws. In the intermediately region it describes the crossover between these laws and allows remove some difficulty in comparison between theory and experiment.