

## Дробно-дифференциальная кинетика дисперсионного переноса как следствие его автомоделности

В. В. Учайкин<sup>1)</sup>, Р. Т. Сибатов

Ульяновский государственный университет 432970 Ульяновск, Россия

Поступила в редакцию 16 августа 2007 г.

Анализ экспериментальных данных по аномальному переносу в неупорядоченных полупроводниках демонстрирует универсальное поведение переходного фототока, свидетельствующее об автомоделности процесса переноса. На основании принципа автомоделности выводятся кинетические уравнения процесса, содержащие производную по времени дробного порядка  $\alpha \in (0, 1)$ . Эти уравнения удовлетворяют “принципу соответствия”: при  $\alpha \rightarrow 1$  они переходят в уравнения нормальной диффузии. Решения уравнений с дробными производными выражаются через устойчивые плотности и хорошо согласуются с экспериментальными данными.

PACS: 05.40.Fb, 73.50.—h

Дисперсионный перенос (ДП) носителей заряда наблюдается в различных по своей микроскопической структуре неупорядоченных полупроводниках: аморфных, органических, пористых, наноструктурных, поликристаллических, жидких, сильнолегированных и др. [1, 2]. ДП считается альтернативой гауссова переноса, впрочем существуют попытки (см., например, [3]) описать дисперсионную диффузию с помощью обычного диффузионного уравнения и гауссовой формы пакета частиц. Недавно было предложено использовать для описания ДП уравнения с дробными производными [4–8]. Формализм дробных производных часто упрекают в том, что предлагаемые уравнения не “подкреплены физическим содержанием” (см., например, [9]). Перечислим основные способы вывода дробно-дифференциального субдиффузионного уравнения.

1. Уравнения с дробной производной по времени были получены Нигматуллиным при рассмотрении диффузии на фрактальных структурах, моделирующих пористые и неупорядоченные среды [10, 11].

2. Один из способов вывода уравнений основан на асимптотическом переходе от интегральных уравнений случайных блужданий модели Шера и Монтролла [12] со степенным распределением времен ожидания к дробно-дифференциальным (подробнее см. [13, 14]). Модель Шера и Монтролла, как известно, хорошо описывает основные особенности ДП.

3. Основываясь на уравнении Ланжевена, Метцлер и Клафтер [15] развили трехуровневое описание субдиффузии с переходом к макроскопической дробно-дифференциальной динамике. В [15] исследо-

валось немарковское обобщение уравнения Чэпмена-Колмогорова для случайных процессов с непрерывным временем, управляемое распределением времен ожидания. Асимптотически степенное распределение (с “тяжелыми хвостами”) времен ожидания приводит к дробному уравнению Клейна-Крамерса, из которого выводятся дробные обобщения уравнений Релея и Фоккера-Планка.

4. Дробные уравнения можно получить из балансных уравнений захвата-эмиссии модели многократного захвата с экспоненциальной плотностью локализованных состояний (подробнее см. [6, 8]).

5. Иногда дробно-дифференциальные уравнения получают простой заменой производных целых порядков в классических кинетических уравнениях производными дробных порядков, и лишь потом пытаются дать физическое обоснование такой замены (см., например, [5]).

Все перечисленные способы основаны на предположениях относительно механизма переноса. Эти предположения приходится обосновывать при рассмотрении каждого отдельного случая: для конкретного материала и для конкретных условий эксперимента. Встает вопрос, нельзя ли непосредственно из набора экспериментальных данных сделать однозначный вывод о дробно-дифференциальном характере уравнения переноса.

В настоящей работе дан феноменологический вывод дробно-дифференциальных уравнений ДП на основе экспериментально установленных фактов, без использования предположений относительно механизма переноса. Предлагаемый вывод носит не только методический характер, но и указывает на то, что дробно-дифференциальные уравнения являются уни-

<sup>1)</sup>e-mail: uchaikin@sv.uven.ru

версальными уравнениями дисперсионного переноса в неупорядоченных полупроводниках.

Рассмотрим классический “время-пролетный” эксперимент по определению дрейфовой подвижности носителей заряда. Электроны и дырки генерируются в образце обычно световым импульсом лазера со стороны полупрозрачного электрода. К электродам прикладывается напряжение такое, что соответствующее электрическое поле внутри образца значительно превышает поле неравновесных носителей заряда. Электроны (или дырки, в зависимости от знака напряжения) уходят в полупрозрачный электрод, дырки (или, соответственно, электроны) дрейфуют к противоположному электроду. В случае нормального переноса дрейфующие без захвата в поле  $E$  носители формируют прямоугольный импульс фототока

$$I(t) \propto \begin{cases} \text{const}, & t < t_T, \\ 0, & t > t_T, \end{cases} \quad (1)$$

где время пролета  $t_T$  определяется скоростью дрейфа  $v$  и длиной образца  $L$ :  $t_T = L/v$ . В действительности, рассеяние делокализованных носителей в процессе дрейфа, захват в локализованные состояния и термическое высвобождение носителей приводят к размытию пакета. Этот пакет носителей имеет гауссову форму со средним значением  $\langle x(t) \rangle \propto t$  и шириной  $\Delta x(t) \propto \sqrt{t}$ . В этом случае переходный ток  $I(t)$  остается постоянным, пока передний фронт гауссова пакета не достигает другого края образца. Спад тока происходит в течение времени  $\Delta x/\langle v \rangle$ . Как результат, мы наблюдаем сглаженный правый край импульса фототока. Такая картина наблюдается в большинстве упорядоченных материалов.

Однако в некоторых неупорядоченных полупроводниках (в аморфных, пористых, неупорядоченных органических, сильно легированных и др.) наблюдается специфический сигнал переходного тока  $I(t)$ , состоящий из двух областей со степенным поведением  $I(t)$  и промежуточной области:

$$I(t) \propto \begin{cases} t^{-1+\alpha}, & t < t_T, \\ t^{-1-\alpha}, & t > t_T, \end{cases} \quad \alpha < 1. \quad (2)$$

Показатель  $\alpha$ , называемый дисперсионным параметром, зависит от характеристик среды и может зависеть от температуры. По аналогии с нормальными переходными процессами параметр  $t_T$  называется временем пролета, хотя имеет несколько иной физический смысл. Экспериментально установлено [12], что при дисперсионном переносе

$$t_T \propto (L/U)^{1/\alpha}, \quad (3)$$

где  $U$  – напряжение.

Форма сигнала переходного тока в приведенных координатах  $\lg[I(t)/I(t_T)] - \lg[t/t_T]$  практически не зависит от величины приложенного напряжения и размеров образца (подробнее см. [1, 2]). Это свойство присуще многим материалам и названо свойством универсальности формы кривых переходного тока. Распространенность этих особенностей для различных неупорядоченных материалов подтверждает универсальность [16] свойств переноса.

Если наблюдаются зависимости (2), (3), то кривые переходного тока автоматически обладают асимптотическим свойством универсальности. Действительно, перепишем (2) в виде

$$I(t) \sim \begin{cases} A(L, E, \alpha, \dots) t^{-1+\alpha}, & t < t_T, \\ B(L, E, \alpha, \dots) t^{-1-\alpha}, & t > t_T, \end{cases} \quad (4)$$

Время пролета  $t_T$  определяется по пересечению асимптотик:

$$I_T = A(L, E, \alpha, \dots) t_T^{-1+\alpha} = B(L, E, \alpha, \dots) t_T^{-1-\alpha}.$$

Откуда  $t_T = (B/A)^{1/2\alpha}$ . Свойство асимптотической универсальности означает, что функция  $I(\tau t_T)/I_T$  для  $\tau \ll 1$  и  $\tau \gg 1$  не зависит от  $t_T$ . Нетрудно заметить, что для функций с асимптотиками (3) это свойство справедливо:

$$I(\tau t_T)/I_T \sim \begin{cases} \tau^{-1+\alpha}, & \tau < 1, \\ \tau^{-1-\alpha}, & \tau > 1, \end{cases} \quad \alpha < 1.$$

Отметим, что значение  $I(t_T)$  не равно  $I_T$ . Точка  $(t_T, I_T)$  определяется по пересечению асимптотик переходного тока при малых и больших временах.

Схема измерения во время-пролетных экспериментов выполняется таким образом, что плотность переходного фототока в образце толщиной  $L$  определяется как усредненная по толщине плотность тока проводимости

$$I(t) = \frac{1}{L} \int_0^L j(x, t) dx. \quad (5)$$

Очевидно, что на начальном этапе  $t \ll t_T$  интеграл в последней формуле не зависит от  $L$ . Согласно (3),  $t_T \propto L^{1/\alpha}$ . Значит, для  $A$ ,  $B$  и  $I_T$  можно записать:

$$A \propto L^{-1}, \quad B \propto A t_T^{2\alpha} \propto L, \quad I_T \propto L^{-1/\alpha}.$$

Таким образом, универсальность формы кривых переходного тока представляет собой в математичес-

ком смысле свойство автомодельности (самоподобия) на временных масштабах

$$I(t; L_2) \approx (L_2/L_1)^{-1/\alpha} I\left(t(L_2/L_1)^{-1/\alpha}; L_1\right), \quad (6)$$

где  $I(t; L_1)$  и  $I(t; L_2)$  – временные зависимости переходного тока в образцах толщиной  $L_1$  и  $L_2$  соответственно.

Плотность тока проводимости  $j(x, t)$  пропорциональна плотности распределения времени первого достижения  $p(t|x)$ :

$$j(x, t) = eNp(t|x),$$

где  $e$  – элементарный заряд,  $N$  – число фотоинжектированных носителей, приходящееся на единицу площади освещаемого электрода. Произведение  $p(t|x)dt$  представляет собой вероятность того, что блуждающая частица (в нашем случае носитель заряда) достигнет координаты  $x$  за время, лежащее в интервале  $[t, t + dt)$ . Плотность распределения координаты блуждающей частицы  $p(x|t)$  и поток вероятности  $p(t|x)$  связаны уравнением сохранения вероятности

$$\frac{\partial p(x|t)}{\partial t} + \frac{\partial p(t|x)}{\partial x} = \delta(x)\delta(t). \quad (7)$$

Согласно (2), асимптотика переходного тока и плотности распределения времени первого достижения на больших временах является степенной с показателем  $\alpha$ . Из (5) и (6) следует самоподобие функции  $p(t|x)$  на временных масштабах:

$$p(t|x_2) = \left(\frac{x_2}{x_1}\right)^{-1/\alpha} p\left(t\left(\frac{x_2}{x_1}\right)^{-1/\alpha} \middle| x_1\right). \quad (8)$$

Время достижения координаты  $2x$  является случайной величиной и представляет собой сумму двух слагаемых – независимых случайных времен, за которые носитель проходит слои  $(0, x)$  и  $(x, 2x)$ . Соответствующее распределение выражается сверткой распределений времен прохождения каждого слоя:

$$p(t|2x) = 2^{-1/\alpha} p(2^{-1/\alpha}t|x) = \int_0^t dt p(t-t'|x) p(t'|x) = p^*(t|x). \quad (9)$$

Первое равенство в (9) следует из автомодельности (8). Решением уравнения (9) является устойчивая плотность с характеристическим показателем  $\alpha$  (см., например, [17, 18]):

$$p(t|x) = \left(\frac{x}{K}\right)^{-1/\alpha} g^{(\alpha)}\left(t\left(\frac{x}{K}\right)^{-1/\alpha}\right). \quad (10)$$

Таким образом, плотность распределения времени первого достижения представляет собой одностороннюю устойчивую плотность с характеристическим показателем, равным дисперсионному параметру.

Подставив плотность тока проводимости  $j(x, t) = eNp(t|x)$  в формулу (5), приходим к выражению для переходного тока:

$$I(t) = \frac{eKN\alpha}{L} t^{\alpha-1} \int_{\zeta_0}^{\infty} \zeta^{-\alpha} g^{(\alpha,1)}(\zeta) d\zeta. \quad (11)$$

Здесь  $\zeta_0 = t(L/K)^{-1/\alpha}$ . Кривые переходного тока (11) в приведенных координатах для различных значений  $\alpha$  показаны на рис.1. Сравнение фотото-

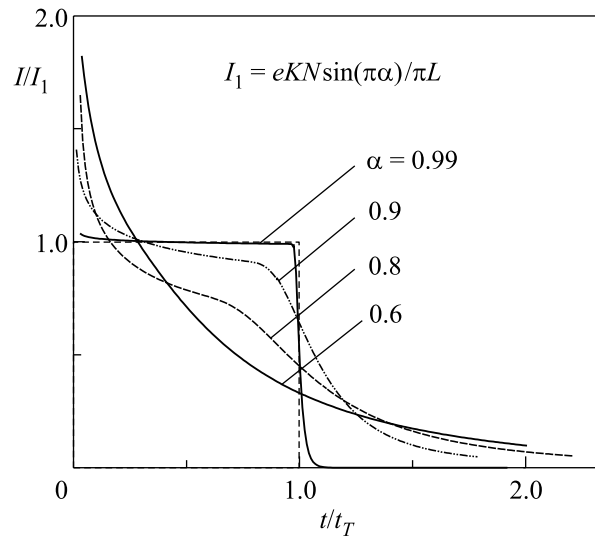


Рис.1. Теоретические кривые переходного тока (11), для различных значений дисперсионного параметра

ка (11) с экспериментальными данными и результатом, полученным с помощью “основного уравнения ДП” Архипова-Руденко [19], представлено на рис.2. Рисунок демонстрирует лучшее согласие с экспериментом результата, полученного на основе дробно-дифференциального уравнения. При выводе своего уравнения авторы [20] использовали приближение, согласно которому большинство носителей захвачены на достаточно глубокие ловушки (ниже демаркационного уровня), освобождение с которых к моменту  $t$  остается маловероятным, что не выполняется при значениях  $\alpha$ , близких к единице. Уравнение, предложенное в [20], позволяет выразить все результаты в элементарных функциях в случае экспоненциальной плотности локализованных состояний, однако не дает перехода при  $\alpha \rightarrow 1$  к режиму нормального переноса. Отметим, что подход Архипова и Руденко используется и в недавних работах [21, 22]. В [22] подход адаптирован для прыжкового механизма.

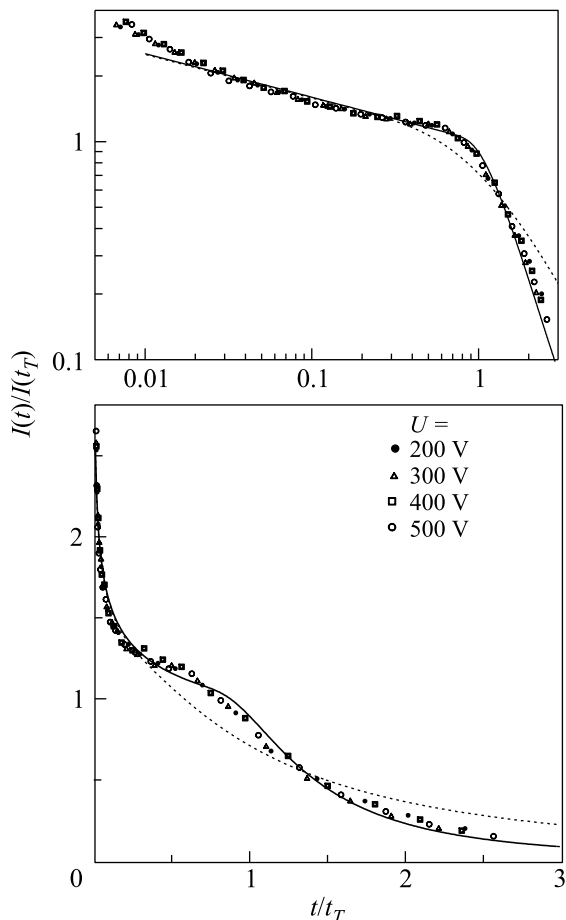


Рис.2. Кривые переходного тока. Точки (оцифрованы с рисунка из статьи Шера и Монтролла [12]) – экспериментальные данные для органического комплекса тринитрофлуоренон-поливинилкарбазол (ТНФ-ПВК), полученные Гиллом (Gill). Пунктир – результат, полученный с помощью ”основного уравнения ДП” Архипова-Руденко [19]. Сплошная линия – переходный ток (11). Дисперсионный параметр  $\alpha = 0.8$  [12]

Плотность распределения параллельной полю координаты фотоинжектированных носителей  $f(x, t)$ , как следует из (7) и (10), равна

$$f(x, t) = p(x|t) = -\frac{\partial}{\partial x} \int_0^t p(t|x) dt = \frac{t}{\alpha K} \left(\frac{x}{K}\right)^{-1/\alpha-1} g^{(\alpha)} \left(t \left(\frac{x}{K}\right)^{-1/\alpha}\right). \quad (12)$$

Графики этой плотности представлены на рис.3.

Функции (10) и (12) являются решением уравнений с дробными производными (см., например, [18]).

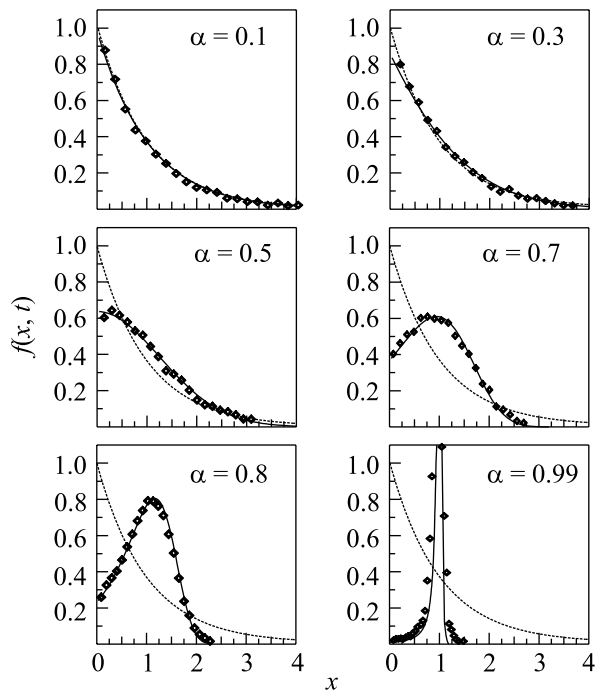


Рис.3. Нормированная на единицу полная концентрация носителей. Точки – результат моделирования методом Монте-Карло в рамках схемы блужданий Шера-Монтролла, штриховые линии – результат, полученный с помощью ”основного уравнения ДП” Архипова-Руденко [19], сплошные линии – плотности (12)

Дробно-дифференциальное уравнение для плотности  $p(t|x)$  имеет вид

$$K^{-1} \frac{\partial^\alpha}{\partial t^\alpha} p(t|x) + \frac{\partial}{\partial x} p(t|x) = \delta(x)\delta(t).$$

Здесь

$$\frac{\partial^\alpha f(\mathbf{r}, t)}{\partial t^\alpha} = \frac{1}{\Gamma(1-\alpha)} \frac{\partial}{\partial t} \int_0^t \frac{f(\mathbf{r}, t')}{(t-t')^\alpha} dt'$$

– дробная производная Римана-Лиувилля порядка  $0 < \alpha \leq 1$ . Аналогичное уравнение будет справедливо и для плотности тока проводимости  $j(x, t)$ .

Дробно-дифференциальное уравнение дисперсионного дрейфа, записанное для полной концентрации имеет вид

$$\frac{\partial^\alpha}{\partial t^\alpha} f(x, t) + K \frac{\partial}{\partial x} f(x, t) = \frac{t^{-\alpha}}{\Gamma(1-\alpha)} \delta(x). \quad (13)$$

Здесь рассматривалось одностороннее движение носителей. В случае наличия потока в отрицательном

направлении и/или рассеяния носителей в последнем уравнении добавится диффузионное слагаемое

$$\frac{\partial^\alpha f(x, t)}{\partial t^\alpha} + K \frac{\partial f(x, t)}{\partial x} - D \frac{\partial^2 f(x, t)}{\partial x^2} = \delta_\alpha(t) \delta(x), \quad (14)$$

где  $\delta_\alpha(t) = t^{-\alpha} / \Gamma(1 - \alpha)$ .

При устремлении дисперсионного параметра  $\alpha$  к единице фундаментальные решения уравнения (14) переходят в гауссову плотность, при этом само уравнение переходит в классическое одномерное уравнение Фоккера-Планка.

Устойчивые распределения, которые использовались при выводе уравнений, играют такую же роль при суммировании независимых случайных величин с бесконечными дисперсиями, как и гауссово распределение в случае конечных дисперсий. Никакие другие распределения, кроме устойчивых, не являются предельными для нормированных сумм одинаково распределенных случайных величин при стремлении числа слагаемых к бесконечности (подробнее см. [17]). Вид плотности (10) доказывает гипотезу Шера и Монтролла о временах ожидания, распределенных по закону со степенной асимптотикой.

Таким образом, в предлагаемой работе обосновано следующее:

- из экспериментально установленных фактов (свойства универсальности кривых переходного тока и степенной зависимости времени пролета от толщины образца) с необходимостью следует, что концентрации неравновесных носителей при дисперсионном переносе выражаются через *устойчивые плотности* и удовлетворяют *дробно-дифференциальным* уравнениям;
- в отличие от решений, полученных с помощью “основного уравнения дисперсионного переноса” Архипова-Руденко [20, 19], решения дробно-дифференциальных уравнений удовлетворяют *принципу соответствия*, то есть при устремлении дисперсионного параметра  $\alpha$  к единице переходят в решения для нормального переноса, при этом сами уравнения переходят в классическое уравнение Фоккера-Планка;
- *устойчивая плотность* потока вероятности при дисперсионном дрейфе доказывает справедливость гипотезы Шера и Монтролла о степенном распределении времен ожидания.
- дробно-дифференциальная модель согласуется с теорией Шера и Монтролла и моделью

многократного захвата, но при этом дробно-дифференциальная модель позволяет в рамках *единого формализма* описывать нормальный и дисперсионный перенос;

- дробно-дифференциальное уравнение может служить феноменологической основой для описания дисперсионного переноса в неупорядоченных полупроводниках.

Авторы благодарны Российскому фонду фундаментальных исследований (грант # 07-01-00517) за финансовую поддержку исследования

1. А. Меден, М. Шо, *Физика и применение аморфных полупроводников*, М.: Мир, 1991.
2. И. П. Звягин, *Кинетические явления в неупорядоченных полупроводниках*, М.: Мир, 1984.
3. Дж. Какалиос, У. Джексон, В кн.: *Аморфный кремний и родственные материалы*, Под ред. Х. Фришце, М.: Мир, 1991.
4. E. Barkai, Phys. Rev. E **63**, 046118 (2001).
5. J. Bisquert, Phys. Rev. Lett. **91**, 010602 (2003).
6. J. Bisquert, Phys. Rev. E **72**, 011109 (2005).
7. V. V. Uchaikin and R. T. Sibatov, In.: *Nonlinear Science and Complexity*, Eds. A. C. J. Luo et al., World Scientific, Singapore, 2007, p. 43.
8. Р. Т. Сибатов, В. В. Учайкин, ФТП **41**, 346 (2007).
9. А. М. Дыхне, П. С. Кондратенко, Л. В. Матвеев, Письма в ЖЭТФ **80**, 464 (2004).
10. R. R. Nigmatullin, Phys. Status Solidi B **123**, 739 (1984).
11. R. R. Nigmatullin, Phys. Status Solidi B **124**, 389 (1984).
12. H. Scher and E. W. Montroll, Phys. Rev. B **12**, 2455 (1975).
13. A. I. Saichev and G. M. Zaslavsky, Chaos **7**(4), 753 (1997).
14. В. В. Учайкин, ЖЭТФ **115**, 2113 (1999).
15. R. Metzler and J. Klafter, Phys. Rev. E **61**, 6308 (2000).
16. A. K. Jonscher, *Universal Relaxation Law*, Chelsea Dielectric Press, London, 1996.
17. V. V. Uchaikin and V. M. Zolotarev, *Chance and Stability Utrecht*, The Netherlands, VSP, 1999.
18. В. В. Учайкин, УФН **173**, 847 (2003).
19. В. И. Архипов, Л. П. Казакова, Э. А. Лебедев, А. И. Руденко, ФТП **22**, (1988) 723.
20. V. I. Arkhipov and A. I. Rudenko, Philos. Mag. B **45**, 189 (1982).
21. B. Kaczer, V. Arkhipov, R. Degraeve et al., Appl. Phys. Lett. **86**, 143506 (2005).
22. В. Р. Никитенко, А. П. Тютнев, ФТП **41**, 1118 (2007).