

О ТУННЕЛЬНОМ МЕХАНИЗМЕ ПРОВОДИМОСТИ КВАЗИОДНОМЕРНЫХ ПРОВОДНИКОВ С ВОЛНОЙ ЗАРЯДОВОЙ ПЛОТНОСТИ ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

Ф.Я.Надь

Институт радиотехники и электроники РАН
103907 Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 июня 1993 г.

Представлены экспериментальные результаты, показывающие, что основным механизмом проводимости квазиодномерных проводников с волной зарядовой плотности при температурах ниже некоторого характерного значения T_0 в электрическом поле, меньшем порогового, являются туннельные переходы коллективных возбужденных волн зарядовой плотности – фазовых солитонов.

Как известно, во многих квазиодномерных проводниках (КП) при понижении температуры ниже критического значения T_P вследствие пайерлсовской неустойчивости в исходной решетке образуется сверхструктура и соответствующая модуляция плотности заряда – волна зарядовой плотности (ВЗП) [1,2]. Свойства КП с ВЗП в области температур $T_P/2 < T < T_P$ достаточно хорошо изучены и в целом удовлетворительно объясняются существующими теориями [1,2]. В частности, было показано, что в реальных кристаллах ВЗП закреплена на примесях и дефектах, а проводимость σ_1 в слабом электрическом поле определяется электронно-дырочными возбуждениями через пайерлсовскую щель Δ . В электрическом поле, большем порогового значения E_T , начинается движение ВЗП, сопровождаемое нелинейным ростом проводимости и генерацией узкополосных колебаний.

Однако в области низких температур $T \ll T_P$ (примерно при $T < 30$ К для типичного КП TaS_3) свойства ВЗП существенно изменяются. Зависимость $\log \sigma_1(1/T)$ не имеет активационного вида с энергией активации Δ , ее наклон значительно уменьшается и она хорошо описывается соотношением $\sigma_1 \sim \exp(-T_1/T)^a$ с $a = 1/2$ и $T_1 \cong 400$ К [3]. Проводимость на переменном токе $\sigma_{ac} \sim \omega^\beta$ с $\beta = 0,7$ [4]. Обе эти зависимости соответствуют прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка [5]. В этой же области температур наблюдается максимум на температурной зависимости диэлектрической постоянной $\epsilon'(T)$, положение и амплитуда которого зависят от частоты [6]. Наблюдается также ряд аномалий в поведении теплоемкости [7] и электронного парамагнитного резонанса [8]. Значительно изменяется вид зависимости $\sigma(E)$. Однако довольно сложная зависимость проводимости от электрического поля $\sigma(E)$ при $E < E_T$ в этой области температур детально не была изучена и не был проведен анализ физических механизмов, обуславливающих эту проводимость.

В работе приведены данные об особенностях проводимости КП с ВЗП в области низких температур и электрических полей $E < E_T$ и проведен качественный анализ, свидетельствующий, что туннельный механизм проводимости становится одним из главных при понижении температуры ниже некоторого значения T_0 .

Измерения проводились на тонких кристаллических образцах ромбического $\alpha\text{-TaS}_3$ ($\sigma\text{-TaS}_3$) и моноклинного TaS_3 ($m\text{-TaS}_3$). Для измерений проводимости и ВАХ в области слабых электрических полей ($E < E_T$) и низких температур использовались электрометры с высоким входным сопротивлением ($\approx 10^{16}$ Ом). В области сильных электрических полей измерения проводились импульсным методом с помощью двухканального импульсного интегратора [10].

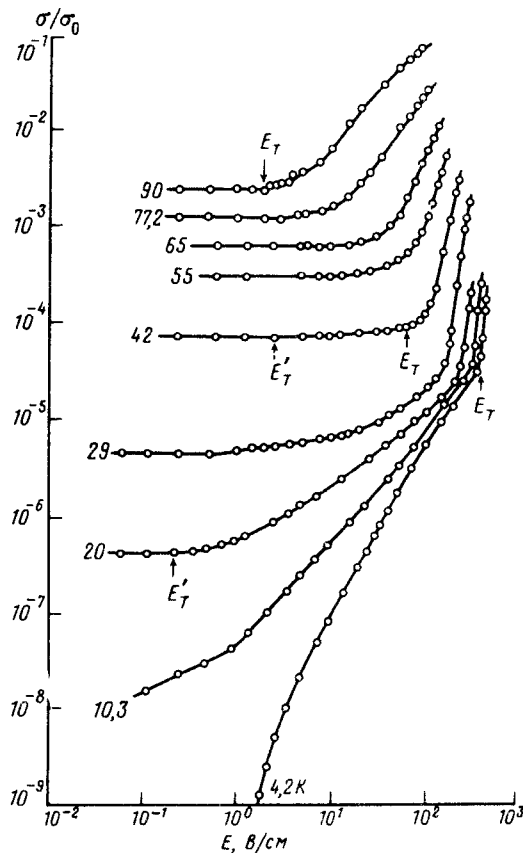


Рис.1 Зависимость проводимости образца $\alpha\text{-TaS}_3$, нормированной на ее значение при комнатной температуре σ_0 , от электрического поля при различных температурах, указанных у кривых

На рис.1 представлены зависимости проводимости σ образца $\alpha\text{-TaS}_3$ от электрического поля при температурах $T < T_P/2$ (для $\alpha\text{-TaS}_3$ $T_P = 220$ К). При $T = 90$ К зависимость $\sigma(E)$ имеет вид, типичный для всей области температур $T_P/2 < T < T_P$. В полях, меньших E_T , проводимость постоянна, а при $E > E_T$ возникает нелинейная проводимость, обусловленная движением ВЗП. С понижением температуры вид зависимости $\sigma(E)$ начинает меняться. В нелинейной области $E < E_T$ выгнутость кривых вверх уменьшается и вблизи 70–80 К зависимость $\sigma(E)$ приближается к степенной. Область перехода между омической и нелинейной частями расширяется и на кривой $\sigma(E)$ наблюдаются два пороговых поля E'_T и E_T (рис.1) [3]. Сначала ($T = 40$ К) при $E > E'_T$ наблюдается небольшое отклонение от омичности и постепенный рост σ . При температурах ниже 30 К рост σ между E'_T и E_T становится все более значительным. При этом E'_T уменьшается пропорционально T [10], а величина E_T растет: $E_T \sim \exp(-T_0/T)$ с $T_0 = 20$ К для $\alpha\text{-TaS}_3$ и $T_0 = 25$ К для $m\text{-TaS}_3$ [10].

При $T < 20$ К сопротивление образцов в слабом поле становится очень большим ($10^{13} - 10^{14}$ Ом), что ограничивает возможность его измерения. По этой причине при $T < 20$ К обычно не удается достичь линейной омической части ВАХ. При $T = 4,2$ К, начиная с самых малых полей, наблюдается рост проводимости на несколько порядков величины и зависимость $\sigma(E)$ имеет вид выгнутой вверх кривой (рис.1). Однако при $E < E_T$ на наблюдается узкополосная генерация, связанная с движением ВЗП как целого [11]. В области $E \approx E_T$ на зависимости $\sigma(E)$ наблюдается резкий излом и одновременно возникает узкополосная генерация с частотой, линейно зависящей от тока ВЗП [1,2,12].

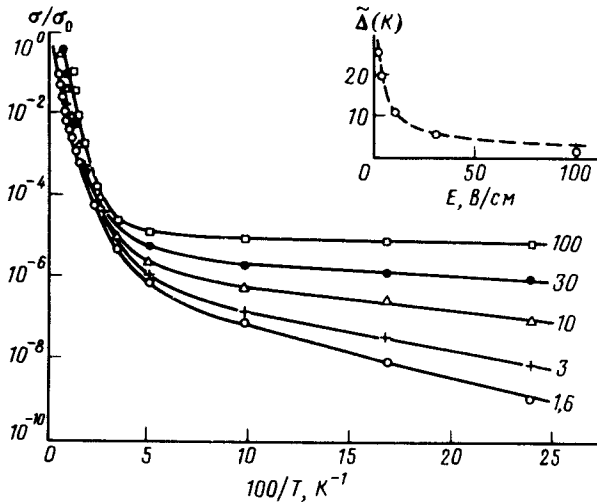


Рис.2. Температурная зависимость проводимости образца α -TaS₃ при различных электрических полях, указанных у кривых

На рис.2 представлены температурные зависимости проводимости $\sigma(1/T)$ при различных полях E для того же образца α -TaS₃. Как видно, в области $T < 30$ К при всех E наблюдается переход к более пологому нелинейному участку на кривых $\log\sigma(1/T)$, наклон которых уменьшается по мере роста E и приближения его к E_T . Если рассматривать участки кривых $\log\sigma(1/T)$ при $T < 10$ К как приближенно линейные и считать их наклон соответствующим некоторой "средней" энергии активации $\bar{\Delta}$, то можно построить зависимость $\bar{\Delta}$ от E (вставка на рис.2). В нашем случае эта зависимость имеет вид $\bar{\Delta} \sim E^{-\gamma}$ с $\gamma = 1/2$. Подобные же зависимости $\sigma(1/T)$ для α -TaS₃ можно получить из опубликованных нами ранее результатов измерения кривых $\sigma(E)$ при различных T вплоть до 4,2 К [3,10] путем перестроения их в кривые $\sigma(1/T)$ при различных E . Качественно подобные результаты получены недавно для квазиодномерных проводников (TMTSF)₂PF₆ с волной спиновой плотности (ВСП) [9], а также в образцах α -TaS₃ с очень малым поперечным сечением в области температур до 2 К [12]. Аналогичный вид имеют кривые $\sigma(1/T)$, полученные нами и для других типичных квазиодномерных проводников – моноклинного m -TaS₃ и голубой бронзы K_{0,3}MoO₃.

Зависимость проводимости образца m -TaS₃ от электрического поля (как

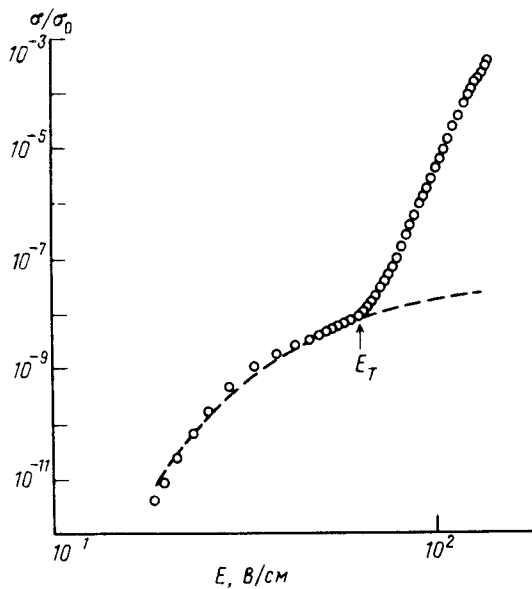


Рис.3. Зависимость проводимости образца $m\text{-TaS}_3$ от электрического поля при 4,2К. Пунктирная кривая соответствует соотношению $\sigma/\sigma_0 \sim E_0/E \exp(-E_0/E)$ с $E_0 = 210 \text{ В/см}$

меньшего так и большего порогового значения E_T) при низкой фиксированной температуре 4,2К представлена на рис.3 [13]. На этом же рисунке проведено сопоставление экспериментальной зависимости $\sigma/\sigma_0(E)$ при $E < E_T$ с теоретической зависимостью вида $\sigma/\sigma_0 \sim (E_0/E) \exp(-E_0/E)^{\delta}$, аналогичной зависимости $I/I_0 \sim \exp(-E_0/E)$, использованной в работе [9] для описания ВАХ квазиодномерного проводника с ВСП. Наилучшее (хотя и не полное) согласие нашей экспериментальной зависимости и расчетной кривой при $E < E_T$ получается для значений $\delta = 1$ и $E_0 = 210 \text{ В/см}$.

При интерпретации полученных данных следует обратить внимание на то, что в области температур ниже 30К наблюдается существенное изменение свойств КП с ВЗП. Например, переход от активационной к прыжковой проводимости [3,4], расходимость диэлектрической восприимчивости, измеренной на низких частотах [6], и др. В этой области температур концентрация электронно-дырочных возбуждений через пайерлсовскую щель становится пренебрежимо малой, а кинетические явления в КП определяются преимущественно ВЗП и ее коллективными возбуждениями – солитонами и дислокациями [3,4,10,11,14–16]. При $T \ll T_P$ ВЗП стремится быть когерентной на возможно больших расстояниях как вдоль, так и поперек оси наибольшей проводимости. Однако в реальных кристаллах потенциалы случайно распределенных примесей и дефектов вызывают значительные локальные деформации ВЗП. Особенно при низких температурах, когда эти потенциалы не заэкранированы свободными носителями, с учетом существующих теоретических моделей [14–16] можно предположить [6], что основное состояние ВЗП при температурах ниже некоторой T_0 представляет собой сверхструктуру с "вмороженными" в нее центрами сильного пиннинга, вблизи которых на малых расстояниях ($\sim 10^{-5} \text{ см}$) происходит быстрое изменение фазы ВЗП на $\pm 2\pi m$, то есть формируются фазовые солитоны, являющиеся квазичастицами с определенным зарядом и эффективной массой. При $E < E_T$, когда ВЗП неподвижна как целое, диэлектрическая восприимчивость и проводимость КП будут определяться поляризацией и воз-

возможностью движения этих солитонов. В целом же это состояние по многим своим характеристикам является аналогом стеклообразного состояния в таких материалах, как спиновые стекла [17] и ориентационные стекла [18].

Как показывают экспериментальные результаты, основным механизмом проводимости в таком состоянии ВЗП являются прыжки солитонов между примесными центрами, находящимися на разных расстояниях [3,4]. Отрыв закрепленного 2π солитона от примесного центра происходит за счет мгновенного локального разрушения параметра порядка ВЗП и изменения разности фаз на 2π , то есть представляет собой процесс проскальзывания фазы [19–24]. Этот процесс можно представить как переход между двумя потенциальными минимумами с энергетическим барьером, примерно равным в данном случае энергии конденсации на 1 электрон $T_0 = 20 - 25$ К [10]. При $T < T_0$ в слабом электрическом поле основным становится туннельный переход сквозь этот барьер. При проскальзывании фазы параметр порядка ВЗП разрушается в минимальном объеме, соответствующем элементарной ячейке сверхрешетки ВЗП. Поскольку в элементарной ячейке содержится, как правило, порядка 10 электронов, то процесс проскальзывания фазы, по-видимому, соответствует процессу макроскопического квантового туннелирования (МКТ) [10,25,26].

МКТ достаточно хорошо изучено для случая распада метастабильных состояний в системах с джозефсоновскими переходами [25,26]. Для случая ВЗП в работе [20] теоретически рассматривался процесс туннелирования солитона сквозь потенциальный барьер V , создаваемый центром сильного пиннига. По своему характеру (вероятность туннелирования $\exp(A)$, где A – действие) этот расчет соответствует случаю МКТ и, по-видимому, может быть использован для качественного анализа полученных нами результатов. В [20] было показано, что при $T \rightarrow 0$ удельное сопротивление КП со случайно распределенными примесными центрами $\rho \sim \exp(E_0/E)$, где величина характерного поля E_0 определяется примесным потенциалом V , средним расстоянием между примесями и эффективной массой солитона. Оценка E_0 на основании результатов [20] для α -TaS₃ дает значение $E_0 \sim 10^2$ В/см.

Как видно из рис.3, экспериментальная зависимость $\sigma/\sigma_0(E)$ при $T = 4,2$ К достаточно хорошо может быть аппроксимирована зависимостью вида $\sigma/\sigma_0 \sim \exp(-E_0/E)$, соответствующей зависимости, полученной в [20]. При этом $E_0 = 210$ В/см. Это значение очень близко к величине поля, характерного для движения ВЗП также и в сильном поле и обусловленного процессами проскальзывания фазы под действием этого поля [10,11,23]. Аналогичное соответствие экспериментальной зависимости проводимости от E туннельной формуле было получено в КП с ВСП при низких температурах [9]. Это, по-видимому, указывает на качественное подобие свойств ВЗП и ВСП в стеклообразном состоянии, формирующемся при низких температурах.

Здесь уместно отметить, что при низких температурах заметную роль в проводимости ВЗП и ВСП могут играть также и квантовые флуктуации (нулевые колебания). Дело в том, что из-за "мягкости" одномерной сверхрешетки ВЗП (или ВСП) колебания ее узлов около положения смещенного равновесия достаточно велики (порядка самого смещения [27]). И хотя амплитуда этих колебаний значительно меньше, чем постоянная сверхрешетки, они все же, видимо, могут обуславливать существенное размытие сингулярности в плотности состояний вблизи края пайерлсовской щели [28] и при достаточно низкой температуре приводить к эффектам типа квантовой диффузии [29].

Туннельный механизм проводимости подтверждается также и видом температурной зависимости проводимости в области $T < 30$ К. В слабом поле зависимость $\log\sigma(1/T)$ не является линейной (т.е. активационной) и хорошо описывается соотношением $\sigma \sim \exp(-T_1/T)^\alpha$ с $\alpha = 1/2$, характерным для одномерной прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка, в основе которой лежит туннельный эффект. С ростом поля, при котором измеряется зависимость $\sigma(1/T)$, она становится все более пологой (рис.2), сохраняя заметную нелинейность. Однако число температурных точек, представленных на рис.2, недостаточно для корректного заключения о величине показателя α и его изменений с E . Здесь требуются более подробные измерения. Тем не менее, "средний" наклон $\bar{\Delta}$ близких к линейному участков зависимости $\log\sigma(1/T)$ уменьшается с ростом E примерно пропорционально $E^{-\gamma}$ с $\gamma = 1/2$ (вставка на рис.2). Такое видоизменение зависимости $\sigma(1/T)$ с ростом E качественно согласуется с определяющей ролью туннельного механизма проводимости. Действительно, в первом приближении без учета изменений формы барьера с ростом E увеличивается наклон потенциального рельефа, соответствующего метастабильным состояниям солитонов, и вероятность туннелирования возрастает, что и соответствует уменьшению "средней энергии активации" на зависимости $\sigma(1/T)$. При приближении E к E_T величина эффективного барьера значительно уменьшается и в проводимость начинают вносить заметный вклад также и процессы термоактивации через барьер за счет термодинамических флуктуаций. При $E > E_T$ движутся не только существовавшие ранее солитоны и дислокации, "вмороженные" в ВЗП, но начинается регулярное образование и движение новых солитонов за счет сильной полевой деформации ВЗП вблизи контактов и центров сильного пиннинга [10,11]. Этому соответствует резкий рост проводимости и появление периодических осцилляций при $E > E_T$.

Таким образом, из совокупности приведенных в данной работе результатов (в частности, видоизменения зависимости $\sigma(1/T)$ с ростом E и соответствия формы зависимости $\sigma(E)$ при низких температурах $T < 20$ К туннельному механизму), а также полученных ранее данных можно сделать вывод, что в квазиодномерных проводниках с ВЗП при температурах ниже некоторого характерного значения T_0 (для TaS_3 $T_0 \cong 20$ К) электропроводность в поле, меньшем порогового, осуществляется за счет макроскопического квантового туннелирования солитонов. Этот результат указывает также на общность механизмов проводимости квазиодномерных проводников с ВЗП и ВСП при низких температурах.

Автор выражает благодарность М.Е.Иткису и П.Монсо за полезные дискуссии.

-
1. P.Monceau, ed., *Electronic Properties of Inorganic Quasi-One-Dimensional Compounds*, Part II, 1985 (Reidel, Dordrecht), p.139.
 2. G.Grüner, *Rev. Mod. Phys.* **60**, 1129 (1980).
 3. С.И.Жилинский, М.Е.Иткис, И.Ю.Кальнова и др., *ЖЭТФ* **85**, 362 (1983).
 4. S.K.Zhilinskii, M.E.Itkis, and F.Ya.Nad', *Phys. Status. Solidi* **a81**, 367 (1984).
 5. Н.Мотт, Э.Дэвис, *Электронные процессы в некристаллических веществах*, М.: Мир, 1982.
 6. F.Ya.Nad' and P.Monceau, *Solid State Commun.* 1993 (to be publ.).
 7. K.Biljakovic, J.C.Lasjaunias, P.Monceau, and F.Levy, *Europhys. Lett.* **8**, 771 (1989).
 8. J.Dumas, R.Buder, J.Marcus, et al., *Physica B* **143**, 183 (1986).
 9. G.Mihaly, Y.Kim, and G.Grüner, *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 2713 (1991).

10. M.E.Itkis, F.Ya.Nad', and P.Monceau, *Fizika (Zagreb)* **21**, suppl. 3, 787 (1989); *J. Phys. Condens. Matter* **2**, 8327 (1990).
11. F.Ya.Nad' and P.Monceau, *Phys. Rev.* **B46**, 7413 (1992).
12. С.В.Зайцев-Зотов, частное сообщение (1993).
13. M.E.Itkis, F.Ya.Nad' and P.Monceau, *Synth. Met.* **41-43**, 4037 (1991).
14. S.A.Brazovskii and S.I.Matveenko, *J. Physique* **1**, 269 1173 (1991).
15. С.А.Бразовский, *ЖЭТФ* **78**, 677 (1980).
16. J.R.Tucker, W.G.Lyons, and G.Gammie, *Phys. Rev.* **B38**, 1148 (1988).
17. K.Binder and A.P.Young, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 801 (1986).
18. U.T.Höchli, K.Knorr, and A.Loidl, *Adv. Phys.* **39**, 405 (1990).
19. J.C.Langer and V.Ambegaokar, *Phys. Rev.* **164**, 498 (1967).
20. A.I.Larkin and P.Lee, *Phys. Rev.* **B17**, 1596 (1978).
21. N.P.Ong and G.Verma, *Phys. Rev.* **B27**, 4495 (1983).
22. L.P.Gor'kov, in *Charge Density Waves in Solids, Modern Problem in Condensed Matter Science*, ed. by L.P.Gor'kov and G.Gründer (Elsevier, Amsterdam, 1989), **25**, 403 (1989).
23. F.Ya.Nad', *ibid*, p.191.
24. S.A.Artemenko and A.F.Volkov, *ibid*, p.365.
25. A.O.Caldeira and A.J.Leggett, *Phys. Rev. Lett.* **46**, 211 (1981).
26. А.И.Ларкин, Ю.Н.Овчинников, *Письма в ЖЭТФ* **37**, 322 (1983).
27. R.H.McKenzie and J.W.Wilkins, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1085 (1992).
28. M.E.Itkis and F.Ya.Nad', *Synth. Met.* **29**, F421 (1989).
29. А.Ф.Андреев, *УФН* **118**, 251 (1976).