ЖЭТФ, 2012, том 142, вып. 1 (7), стр. 181–189

ОБОБЩЕНИЕ МОДЕЛИ МНОГОКРАТНОГО ЗАХВАТА

В. П. Шкилев *

Институт химии поверхности Национальной академии наук Украины
03164, Киев, Украина

Поступила в редакцию 17 января 2012 г.

Рассматривается прыжковый перенос заряда в неупорядоченных полупроводниках. С использованием концепции транспортного энергетического уровня выводятся макроскопические уравнения, являющиеся обобщением модели многократного захвата на тот случай, когда в полупроводнике присутствуют как энергетическая, так и пространственная неупорядоченности. Показано, что хотя оба вида неупорядоченности могут быть причиной дисперсионного переноса, частотная зависимость проводимости обусловливается исключительно пространственной неупорядоченностью.

1. ВВЕДЕНИЕ

Конструирование транспортных моделей, описывающих процессы переноса заряда в неупорядоченных полупроводниках, является актуальной теоретической задачей [1–3], имеющей важное практическое значение. Аналитические транспортные модели используются как при изучении свойств материалов, в частности, при нахождении энергетического распределения локализованных состояний [4, 5], так и при проектировании конкретных полупроводниковых приборов [6, 7].

В органических полупроводниках, а также в неорганических полупроводниках при низких температурах перенос заряда осуществляется посредством прыжков носителей заряда между локализованными состояниями [8]. Соответствующее кинетическое уравнение, описывающее процесс переноса на микроскопическом уровне, в пределе малых концентраций имеет следующий вид:

$$\frac{\partial P_n(t)}{\partial t} = -\sum_m W_{nm} P_n(t) + \sum_m W_{mn} P_m(t), \qquad (1)$$

где $P_n(t)$ — вероятность того, что в момент времени t частица (носитель заряда) находится в узле (в состоянии локализации) n; $W_{nm} = f(E_m - E_n, r_{nm})$ — вероятность перехода частицы из узла n в узел m в единицу времени; E_m — энергия частицы в узле m; r_{nm} — расстояние между узлами n и m. Конкретный вид функции f определяется тем, какое возмущение ответственно за переходы, определяющие данный процесс [8]. Степень неупорядоченности полупроводника и ее характер определяются распределениями случайных величин E_m и r_{nm}. В реальных полупроводниках, как правило, присутствуют оба вида неупорядоченности — энергетическая неупорядоченность, характеризуемая распределением энергий узлов, и пространственная неупорядоченность, характеризуемая распределением межузельных расстояний.

Для того чтобы получить описание процесса переноса на макроскопическом уровне, необходимо провести усреднение уравнения (1) по ансамблю конфигураций. Строгое решение этой задачи невозможно, поэтому были предложены различные упрощенные подходы [9–11]. Широкое признание получил подход, основанный на концепции транспортного энергетического уровня [12, 13]. В этом подходе к описанию прыжкового переноса применяется модель многократного захвата. Роль транспортных узлов при этом играют узлы с энергиями вблизи некоторого уровня энергии, называемого транспортным, а роль ловушек — узлы с более низкими значениями энергии. Этот подход использовался как для вычисления равновесных коэффициентов переноса [14, 15], так и для описания неравновесных процессов [16]. В некоторых работах на основе такого подхода решались обратные задачи, в частности, по данным времяпролетного эксперимента вычислялось энергетическое распределение ловушек [17].

Модель многократного захвата является базовой аналитической моделью для описания процессов переноса заряда в неупорядоченных полупроводниках.

*E-mail: shkilevv@ukr.net

Она основана на феноменологической системе уравнений, описывающей перенос заряда через зону проводимости с одновременным захватом носителей на локализованные состояния. Было показано, что при определенных условиях эта же система уравнений может описывать и прыжковый перенос [8, 18]. Линейный вариант модели многократного захвата формально эквивалентен модели случайных блужданий с непрерывным временем [18, 19]. Однако, в отличие от последней, модель многократного захвата существует также и в нелинейном варианте, что позволяет использовать ее при конечных концентрациях. Существенный недостаток этой модели состоит в том, что она предсказывает отсутствие зависимости проводимости от частоты [19], а это находится в явном противоречии с результатами экспериментов [8]. Объясняется этот недостаток тем, что в модели многократного захвата учитывается энергетическая неупорядоченность полупроводника, но полностью игнорируется пространственная неупорядоченность.

В экспериментах неупорядоченность полупроводника проявляется в так называемом дисперсионном переносе, т. е. в аномальной зависимости переходных характеристик от времени. Дисперсионный перенос может быть обусловлен как энергетической неупорядоченностью, так и пространственной неупорядоченностью [1, 8]. Если полупроводник содержит оба вида неупорядоченности, то оба они будут давать вклад в дисперсионный перенос. Адекватная математическая модель должна учитывать этот факт, иначе информация, извлекаемая при помощи этой модели из экспериментальных данных, будет искажаться. Так, по-видимому, происходит, когда энергетическое распределение ловушек вычисляется из данных времяпролетного эксперимента с использованием модели многократного захвата.

В данной работе предлагается модель, учитывающая вклад обоих видов неупорядоченности в дисперсионный перенос. Предположения, сделанные при выводе уравнений модели, аналогичны предположениям, используемым в работе [18] при выводе уравнений модели многократного захвата. Единственное существенное отличие состоит в том, что в данной работе учитывается разброс расстояний между транспортными узлами. Из полученных уравнений следует, что в переменном внешнем поле два вида неупорядоченности проявляют себя по-разному. В частности, зависимость проводимости полупроводника от частоты приложенного напряжения обусловливается исключительно пространственной неупорядоченностью: если пространственная неупорядоченность отсутствует, то отсутствует и зависимость проводимости от частоты. Этот факт, в принципе, может использоваться для разделения вкладов разных видов неупорядоченности в дисперсионный перенос.

2. УСРЕДНЕННЫЕ УРАВНЕНИЯ

Как и при выводе уравнений модели многократного захвата, будем предполагать, что все узлы делятся на транспортные узлы, которые образуют связную сеть и дают основной вклад в перенос, и на ловушки, которые изолированы друг от друга и вклад которых в перенос пренебрежимо мал. В соответствии с концепцией транспортного энергетического уровня энергии всех транспортных узлов будем считать одинаковыми и равными E_0. Вероятности переходов зададим в форме Миллера–Абрахамса:

$$W_{nm} = \nu_0 \exp\Big[-2\gamma r_{nm} - \frac{1}{kT}\left(E_m - E_n - \mathbf{F}_n(t)\cdot\mathbf{r}_{nm}\right) \times H\left(E_m - E_n - \mathbf{F}_n(t)\cdot\mathbf{r}_{nm}\right)\Big], \quad (2)$$

где ν_0 — частотный множитель, γ — обратный радиус локализации, $\mathbf{F}_n(t)$ — значение силы в узле n в момент времени t, $\mathbf{r}_{nm}$ — радиус-вектор, соединяющий узел n с узлом m, k — постоянная Больцмана, T — температура, H — функция Хевисайда. Будем рассматривать случай слабого поля: $|\mathbf{F}_n|/\gamma kT \ll 1$.

Вначале получим уравнения для ловушек. Поскольку поле мало и вклад ловушек в перенос мал, влияние поля на вероятности перехода в этих уравнениях можно не учитывать. Разделим все ловушки на типы. К одному типу отнесем ловушки с одинаковыми значениями энергии. Усредним уравнение (1) по таким конфигурациям, для которых в точке $\mathbf{r}$ находится ловушка i-го типа. Среднее значение произведения положим равным произведению средних. Усредненное уравнение запишем в виде

$$\frac{\partial P_i^t(\mathbf{r},t)}{\partial t} = -\nu_0 \exp\left(-\frac{E_0 - E_i}{kT}\right) \times \int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|\right)\, d\mathbf{r}' P_i^t(\mathbf{r},t) + \nu_0 \int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|\right)\, P^m(\mathbf{r}',t)\, d\mathbf{r}'. \quad (3)$$

Здесь $P_i^t(\mathbf{r},t)$ — усредненная по конфигурациям вероятность того, что в точке $\mathbf{r}$ в ловушке i-го типа в момент времени t находится частица, E_i — значение энергии в ловушке i-го типа, $\kappa_i(|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|)$ — вероятность нахождения транспортного узла в точке $\mathbf{r}'$

при условии, что в точке $\mathbf{r}$ находится ловушка i-го типа, $P^m(\mathbf{r}', t)$ — усредненная по конфигурациям вероятность того, что в точке $\mathbf{r}'$ в транспортном узле в момент времени t находится частица.

Разлагая функцию $P^m(\mathbf{r}', t)$ в ряд в окрестности точки $\mathbf{r}' = \mathbf{r}$ и подставляя разложение под знак интеграла, получим

$$\int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\,P^m(\mathbf{r}',t)\,d\mathbf{r}' = \\ = \int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\,d\mathbf{r}' \times \\ \times \left[P^m(\mathbf{r},t) + a_i^2\Delta P^m(\mathbf{r},t) + \ldots\right],$$

где Δ — оператор Лапласа,

$$a_i^2 = \frac{\displaystyle\int (x'-x)^2 \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\,d\mathbf{r}'}{\displaystyle 2\int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\,d\mathbf{r}'} = \\ = \frac{\displaystyle\int (\mathbf{r}'-\mathbf{r})^2 \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\,d\mathbf{r}'}{\displaystyle 6\int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\,d\mathbf{r}'}.$$

Члены с производными первого порядка, а также со смешанными производными второго порядка исчезают в силу симметрии функции $\exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)$. Радиус локализации является микроскопической величиной, поэтому параметр a_i^2 также будет микроскопической величиной, следовательно, член $a_i^2\Delta P^m(\mathbf{r},t)$ будет пренебрежимо мал по сравнению с $P^m(\mathbf{r},t)$, если усредненные вероятности заметно изменяются только на макроскопических расстояниях. Малыми будут и члены с производными более высокого порядка. Таким образом, уравнение для ловушек i-го типа можно записать в виде

$$\frac{\partial P_i^t(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \\ = c_i\left[P^m(\mathbf{r},t) - \exp\left(-\frac{E_0-E_i}{kT}\right)P_i^t(\mathbf{r},t)\right], \quad (4)$$

где

$$c_i = \nu_0 \int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\kappa_i\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\,d\mathbf{r}'.$$

Данный вывод уравнения (4) по существу совпадает с выводом аналогичного уравнения в работе [18]. Различия сводятся к тому, что, во-первых, в [18] не использовалась концепция транспортного уровня и, во-вторых, ловушки были иначе разбиты на типы. Но эти различия несущественны, поскольку они сказываются лишь на выражениях для коэффициентов. Существенным ингредиентом этого вывода, от которого зависит вид полученного уравнения, является использование приближения среднего поля, т. е. представление среднего значения произведения в виде произведения средних.

При выводе уравнения для транспортных узлов будем использовать тот же подход, что и при выводе уравнения для ловушек. Все транспортные узлы разделим на типы в соответствии с величиной среднего времени пребывания

$$\tau_n = \left(\sum_m W_{nm}\right)^{-1}.$$

Уравнение для данного типа узлов получим посредством усреднения по конфигурациям с использованием приближения среднего поля.

В исходном уравнении, подлежащем усреднению, выделим члены, описывающие обмен частицами между транспортными узлами и ловушками:

$$\frac{\partial P_n(t)}{\partial t} = -\sum_m W_{nm}P_n(t) + \sum_m W_{mn}P_m(t) - \\ - \sum_k W_{nk}P_n(t) + \sum_k W_{kn}P_k(t). \quad (5)$$

Здесь в первом и втором членах суммирование ведется по транспортным узлам, а в третьем и четвертом — по узлам, соответствующим ловушкам. Рассмотрим поочередно каждый член. Поскольку поле мало, в первых двух членах вероятности перехода можно представить в виде

$$W_{nm} = \nu_0 \exp(-2\gamma r_{nm}) \times \\ \times \left[1 + \frac{\mathbf{F}_n(t)\cdot\mathbf{r}_{nm}H\left(-\mathbf{F}_n(t)\cdot\mathbf{r}_{nm}\right)}{kT}\right]. \quad (6)$$

Усредняя первый член уравнения (5), получаем

$$-\nu_0 \int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) \times \\ \times \left[1 + \frac{\mathbf{F}(\mathbf{r},t)\cdot(\mathbf{r}'-\mathbf{r})H\left(-\mathbf{F}(\mathbf{r},t)\cdot(\mathbf{r}'-\mathbf{r})\right)}{kT}\right] \times \\ \times \lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\,d\mathbf{r}'P_j^m(\mathbf{r},t), \quad (7)$$

где $\lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)$ — вероятность нахождения транспортного узла в точке $\mathbf{r}'$ при условии, что в точке $\mathbf{r}$ находится транспортный узел j-го типа; $P_j^m(\mathbf{r},t)$ — усредненная по конфигурациям вероятность того, что в точке $\mathbf{r}$ в транспортном узле j-го типа в момент времени t находится частица. Усреднение второго члена дает

$$\nu_0 \int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) \times \\ \times \left[1 + \frac{\mathbf{F}(\mathbf{r}',t)\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}')H\left(-\mathbf{F}(\mathbf{r}',t)\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\right)}{kT}\right] \times \\ \times \lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) P^m(\mathbf{r}',t)\, d\mathbf{r}'. \quad (8)$$

Разложим функции $P^m(\mathbf{r}',t)$ и $\mathbf{F}(\mathbf{r}',t)P^m(\mathbf{r}',t)$ в ряды в окрестности точки $\mathbf{r}'=\mathbf{r}$ и подставим разложения под знак интеграла. В полученном выражении безградиентное слагаемое будет выглядеть следующим образом:

$$\nu_0 \int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) \times \\ \times \left[1 + \frac{\mathbf{F}(\mathbf{r},t)\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}')H\left(-\mathbf{F}(\mathbf{r}',t)\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\right)}{kT}\right] \times \\ \times \lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) d\mathbf{r}' P^m(\mathbf{r},t). \quad (9)$$

Главный градиентный член, не содержащий силы, запишется в виде

$$\frac{\nu_0}{6}\int (\mathbf{r}'-\mathbf{r})^2 \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) \times \\ \times \lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) d\mathbf{r}' \Delta P^m(\mathbf{r},t). \quad (10)$$

Главный градиентный член, содержащий силу, в общем случае имеет громоздкий вид, но если от пространственной переменной зависит только модуль силы, а не ее направление, то выражение получается достаточно простое:

$$-\frac{\nu_0}{6kT}\int (\mathbf{r}'-\mathbf{r})^2 \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) \times \\ \times \lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) d\mathbf{r}' \nabla\left[\mathbf{F}(\mathbf{r},t)P^m(\mathbf{r},t)\right]. \quad (11)$$

За пространственный перенос заряда ответственны члены (10) и (11). Члены (7) и (9) описывают перераспределение заряда между узлами разных типов в одной и той же точке пространства, поэтому в этих членах малыми слагаемыми, содержащими силу, можно пренебречь.

Члены, описывающие переходы частиц из транспортных узлов в ловушки и обратно, запишем, используя предположение, что вероятности таких переходов для узлов разных типов одинаковы. Из закона сохранения частиц и из уравнения (4) следует, что в таком случае первый член равен $-\kappa P_j^m(\mathbf{r},t)$, а второй равен $g(\mathbf{r},t)$, где

$$\kappa = \frac{\theta^m}{\rho^m}\sum_{i=1}^{N}\beta_i c_i, \quad (12)$$

θ^m — концентрация ловушек, ρ^m — концентрация транспортных узлов, β_i — доля ловушек i-го типа, N — число типов ловушек,

$$g(\mathbf{r},t) = \frac{\theta^m}{\rho^m}\sum_{i=1}^{N}\beta_i c_i \exp\left(-\frac{E_0-E_i}{kT}\right) P_i^t(\mathbf{r},t).$$

Собирая все найденные члены, получим уравнение для транспортных узлов j-го типа:

$$\frac{\partial P_j^m(\mathbf{r},t)}{\partial t} = -\nu_j P_j^m(\mathbf{r},t) + \nu_j\left\{P^m(\mathbf{r},t) - \right. \\ \left. - \frac{\sigma_j^2}{kT}\nabla\left[\mathbf{F}(\mathbf{r},t)P^m(\mathbf{r},t)\right] + \sigma_j^2\Delta P^m(\mathbf{r},t)\right\} - \\ - \kappa P_j^m(\mathbf{r},t) + g(\mathbf{r},t), \quad (13)$$

где

$$\nu_j = \nu_0\int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) d\mathbf{r}', \quad (14)$$

$$\sigma_j^2 = \frac{\int (x'-x)^2\exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) d\mathbf{r}'}{2\int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) d\mathbf{r}'} = \\ = \frac{\int (\mathbf{r}'-\mathbf{r})^2\exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) d\mathbf{r}'}{6\int \exp\left(-2\gamma|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right)\lambda_j\left(|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|\right) d\mathbf{r}'}. \quad (15)$$

Переходя от вероятностей к концентрациям частиц в ловушках, $\theta_i(\mathbf{r},t) = \theta^m\beta_i P_i^t(\mathbf{r},t)$, и в транспортных узлах, $\rho_j(\mathbf{r},t) = \rho^m\alpha_j P_j^m(\mathbf{r},t)$, где α_j — доля транспортных узлов j-го типа, приведем уравнения для транспортных узлов и для ловушек к следующему виду:

$$\frac{\partial\rho_j(\mathbf{r},t)}{\partial t} = -\nu_j\rho_j(\mathbf{r},t) + \alpha_j\nu_j \times \\ \times\left\{\rho(\mathbf{r},t) - \frac{\sigma_j^2}{kT}\nabla\left[\mathbf{F}(\mathbf{r},t)\rho(\mathbf{r},t)\right] + \sigma_j^2\Delta\rho(\mathbf{r},t)\right\} - \\ - \kappa\rho_j(\mathbf{r},t) + \alpha_j f(\mathbf{r},t), \quad j = 1,2,\ldots,M, \quad (16)$$

$$\frac{\partial\theta_i(\mathbf{r},t)}{\partial t} = -W_i\theta_i(\mathbf{r},t) + \mu_i\rho(\mathbf{r},t), \\ i = 1,2,\ldots,N. \quad (17)$$

Здесь

$$W_i = c_i\exp\left(-\frac{E_0-E_i}{kT}\right), \quad (18)$$

$$\mu_i = \frac{\theta^m}{\rho^m}\,\beta_i c_i, \tag{19}$$

$$f(\mathbf{r},t) = \sum_{i=1}^{N} W_i\theta_i(\mathbf{r},t), \tag{20}$$

$$\rho(\mathbf{r},t) = \sum_{j=1}^{M} \rho_i(\mathbf{r},t),$$

M — число типов транспортных узлов.

Уравнения (16), (17) являются обобщением модели многократного захвата на тот случай, когда транспортные узлы различаются по временам пребывания. Эта модель получается из уравнений для частного случая $M = 1$, $\rho_1(\mathbf{r},t) = \rho(\mathbf{r},t)$, $\alpha_1 = 1$. Как известно, модель многократного захвата имеет серьезный недостаток: она неспособна описывать наблюдающуюся в эксперименте зависимость проводимости от частоты [19]. Покажем, что уравнения (16), (17) лишены этого недостатка.

3. ВЫЧИСЛЕНИЕ ПРОВОДИМОСТИ

Чтобы вычислить проводимость, сведем систему уравнений (16), (17) к одному уравнению относительно суммарной концентрации частиц. Для этого перейдем в этих уравнениях к изображениям Лапласа (образ функции $f(t)$ обозначаем через $f(s)$):

$$s\rho_j(\mathbf{r},s) - \alpha_j\rho^0(\mathbf{r}) = -\nu_j\rho_j(\mathbf{r},s) + \\ + \alpha_j\nu_j\left\{\rho(\mathbf{r},t) + \sigma_j^2 G(\mathbf{r},s)\right\} - \kappa\rho_j(\mathbf{r},s) + \alpha_j f(\mathbf{r},s), \tag{21}$$

$$s\theta_i(\mathbf{r},s) - \gamma_i\theta^0(\mathbf{r}) = -W_i\theta_i(\mathbf{r},s) + \mu_i\rho(\mathbf{r},s). \tag{22}$$

Здесь $\rho^0(\mathbf{r})$ — концентрация частиц в транспортных узлах в начальный момент времени, $\theta^0(\mathbf{r})$ — концентрация частиц в ловушках в начальный момент времени, γ_i — доля частиц, находящихся в начальный момент времени в ловушках i-го типа. Через $G(\mathbf{r},s)$ обозначено изображение Лапласа выражения

$$\Delta\rho(\mathbf{r},t) - \frac{1}{kT}\nabla\left[\mathbf{F}(\mathbf{r},t)\rho(\mathbf{r},t)\right].$$

В уравнении (21) предполагается, что в начальный момент времени частица может находиться в транспортном узле любого типа с одинаковой вероятностью.

Выражая из уравнения (21) концентрацию $\rho_j(\mathbf{r},s)$ и суммируя получающиеся соотношения, находим

$$\rho(\mathbf{r},s) = \frac{1-\psi(s+\kappa)}{s+\kappa}\left[\rho^0(\mathbf{r}) + f(\mathbf{r},s)\right] + \\ + \psi(s+\kappa)\rho(\mathbf{r},s) + \varphi(s+\kappa)G(\mathbf{r},s), \tag{23}$$

где

$$\psi(s) = \sum_{j=1}^{M}\frac{\alpha_j\nu_j}{s+\nu_j}, \quad \varphi(s) = \sum_{j=1}^{M}\frac{\alpha_j\nu_j\sigma_j^2}{s+\nu_j}.$$

Это уравнение можно преобразовать к виду

$$s\rho(\mathbf{r},s) - \rho^0(\mathbf{r}) = -\kappa\rho(\mathbf{r},s) + f(\mathbf{r},s) + \\ + \frac{(s+\kappa)\varphi(s+\kappa)}{1-\psi(s+\kappa)}\,G(\mathbf{r},s). \tag{24}$$

Суммируя уравнения (22) и прибавляя к (24), исключаем «источниковые» члены:

$$sP(\mathbf{r},s) - P^0(\mathbf{r}) = \frac{(s+\kappa)\varphi(s+\kappa)}{1-\psi(s+\kappa)}\,G(\mathbf{r},s). \tag{25}$$

Здесь $P(\mathbf{r},s) = \rho(\mathbf{r},s) + \theta(\mathbf{r},s)$ — суммарная концентрация частиц, $\theta(\mathbf{r},s) = \sum_{i=1}^{N}\theta_i(\mathbf{r},s)$ — концентрация частиц в ловушках, $P^0(\mathbf{r})$ — значение суммарной концентрации частиц в начальный момент времени. Переходя к физическому времени, получаем

$$\frac{\partial P(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \int\limits_0^t \Theta_1(t-\tau)\times \\ \times\left\{\Delta\rho(\mathbf{r},\tau) - \frac{1}{kT}\nabla\left[\mathbf{F}(\mathbf{r},\tau)\rho(\mathbf{r},\tau)\right]\right\}d\tau, \tag{26}$$

где $\Theta_1(t)$ — прообраз функции

$$\frac{(s+\kappa)\varphi(s+\kappa)}{1-\psi(s+\kappa)}.$$

Далее, выражая из уравнения (22) концентрацию $\theta_i(\mathbf{r},s)$ и суммируя получающиеся соотношения, находим

$$\theta(\mathbf{r},s) = \Phi(s)\theta^0(\mathbf{r}) + \Psi(s)\rho(\mathbf{r},s), \tag{27}$$

где

$$\Phi(s) = \sum_{i=1}^{N}\frac{\gamma_i}{s+W_i}, \quad \Psi(s) = \sum_{i=1}^{N}\frac{\mu_i}{s+W_i}.$$

С помощью этого соотношения можно выразить концентрацию в транспортных узлах через суммарную концентрацию:

$$\rho(\mathbf{r},s) = \frac{P(\mathbf{r},s)}{1+\Psi(s)} - \frac{\Phi(s)\theta^0(\mathbf{r})}{1+\Psi(s)}. \tag{28}$$

Переходя здесь к физическому времени и подставляя полученное выражение в (26), получаем окончательное уравнение для суммарной концентрации:

$$\frac{\partial P(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \int\limits_0^t \Theta_1(t-\tau) \times$$
$$\times \Delta \left[\int\limits_0^\tau \Theta_2(\tau-\zeta) P(\mathbf{r},\zeta)\, d\zeta - \Theta_3(\tau)\theta^0(\mathbf{r}) \right] d\tau -$$
$$- \frac{1}{kT} \int\limits_0^t \Theta_1(t-\tau) \nabla \left\{ \mathbf{F}(\mathbf{r},\tau) \times \right.$$
$$\left. \times \left[\int\limits_0^\tau \Theta_2(\tau-\zeta) P(\mathbf{r},\zeta)\, d\zeta - \Theta_3(\tau)\theta^0(\mathbf{r}) \right] \right\} d\tau, \quad (29)$$

где $\Theta_2(t)$ — прообраз функции $(1+\Psi(s))^{-1}$, $\Theta_3(t)$ — прообраз функции $\Phi(s)\,(1+\Psi(s))^{-1}$.

Имея уравнение для суммарной концентрации, вычислим проводимость с помощью флуктуационно-диссипационной теоремы, которая связывает проводимость с автокорреляционной функцией скорости в состоянии равновесия в отсутствие внешнего поля. Соответствующие формулы имеют следующий вид [19, 20]:

$$\sigma(\omega) = \frac{q^2 n}{kT} D(\omega), \quad (30)$$

$$D(\omega) = \frac{\omega^2}{6} \sum_{l=1}^{3} \left. \frac{\partial^2 P(\mathbf{k}, i\omega)}{\partial k_l \partial k_l} \right|_{\mathbf{k}=0}, \quad (31)$$

где σ — проводимость, ω — частота, q — заряд частицы, n — концентрация частиц, $P(\mathbf{k},s)$ — преобразование Фурье–Лапласа решения уравнения (29) с начальным условием $P^0(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{r})$ при равной нулю силе. Распределение частиц по узлам разных типов в начальный момент времени при вычислении функции $P(\mathbf{k},s)$ должно быть равновесным [19]:

$$\gamma_i = \frac{\mu_i}{W_i} \left(\sum_{l=1}^{N} \frac{\mu_l}{W_l} \right)^{-1},$$
$$\theta^0(\mathbf{r}) = P^0(\mathbf{r}) \sum_{l=1}^{N} \frac{\mu_l}{W_l} \left(1 + \sum_{l=1}^{N} \frac{\mu_l}{W_l} \right)^{-1}. \quad (32)$$

Из уравнения (29) следует, что функция $P(\mathbf{k},s)$ выглядит следующим образом:

$$P(\mathbf{k},s) = \left\{ 1 + \mathbf{k}^2 \frac{\Theta_1(s)}{1+\Psi(s)} \sum_{l=1}^{N} \frac{\mu_l}{W_l(s+W_l)} \times \right.$$
$$\left. \times \left(1 + \sum_{l=1}^{N} \frac{\mu_l}{W_l} \right)^{-1} \right\} \left[s + \mathbf{k}^2 \frac{\Theta_1(s)}{1+\Psi(s)} \right]^{-1}. \quad (33)$$

Дифференцируя это выражение и подставляя результат в (31) и (30), находим

$$\sigma(\omega) = \frac{q^2 n}{kT} \Theta_1(i\omega) \left(1 + \sum_{l=1}^{N} \frac{\mu_l}{W_l} \right)^{-1}. \quad (34)$$

Из формулы (34) видно, что частотная зависимость проводимости определяется функцией

$$\Theta_1(i\omega) = \frac{(i\omega+\kappa)\varphi(i\omega+\kappa)}{1-\psi(i\omega+\kappa)}.$$

Эта функция превращается в константу только при $M=1$, т. е. в отсутствие пространственной неупорядоченности. В этом случае формула (34) воспроизводит результат работы [19], состоящий в том, что в модели многократного захвата проводимость не зависит от частоты. При $M \geq 2$, т. е. при наличии пространственной неупорядоченности, зависимость проводимости от частоты будет присутствовать. Чтобы показать, что эта зависимость качественно согласуется с экспериментом, введем упрощающее предположение, а именно, предположим, что все σ_j^2 одинаковы. Это предположение не должно существенно исказить картину, поскольку, как следует из формул (14) и (15), при большом разбросе параметров ν_j разброс параметров σ_j^2 может быть небольшим. Если $\sigma_j^2 = \sigma^2$, то функция $\Theta_1(i\omega)$ приобретает вид

$$\Theta_1(i\omega) = \sigma^2 \frac{(i\omega+\kappa)\psi(i\omega+\kappa)}{1-\psi(i\omega+\kappa)}. \quad (35)$$

Функция $\psi(t)$, являющаяся прообразом функции $\psi(s)$, имеет смысл усредненной (речь идет об усреднении по пространственной неупорядоченности) функции распределения времени ожидания диффузионного скачка. В работах [9, 21] показано, что эта функция может быть аппроксимирована степенной функцией $\psi(t) = \mathrm{const} \cdot t^{-(1+n)}$ с параметром n, меняющемся в пределах от 0 до 1. При использовании этой аппроксимации, с учетом (35) выражение для проводимости (34) приобретает вид

$$\sigma(\omega) = \mathrm{const} \cdot (i\omega+\kappa)^{1-n}.$$

Из этого выражения следует, что действительная часть проводимости при малых частотах равна константе, а при больших частотах пропорциональна ω^{1-n}. Именно так ведут себя экспериментальные зависимости проводимости от частоты.

4. ОБСУЖДЕНИЕ И ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В уравнении (29) диффузионный член имеет, по сути, такой же вид, как и в модели многократного захвата. Небольшое отличие состоит в том, что функция памяти представлена в виде свертки. Напротив, «переносной» член принципиально отличается по своему виду от всех известных ранее выражений. В нем присутствуют две функции памяти, причем при зависящей от времени силе их нельзя свести к одной функции. Покажем, что этот член найден правильно, а именно, убедимся в том, что он согласуется с диффузионным членом. Для этого вычислим проводимость еще одним способом с использованием переносного члена.

Проводимость определяется как отношение плотности тока к напряженности поля (рассматривается случай изотропной среды):

$$\sigma(\omega) = \frac{qn|\mathbf{V}|}{|\mathbf{E}_0|\exp(i\omega t)}, \qquad (36)$$

где $\mathbf{V}$ — средняя скорость частиц, $\mathbf{E}_0\exp(i\omega t)$ — электрическое поле. Фигурирующую здесь среднюю скорость найдем с помощью уравнения (29), подставляя в него выражение для силы

$$\mathbf{F}(t) = q\mathbf{E}_0\exp(i\omega t), \qquad (37)$$

умножая на $\mathbf{r}$, интегрируя по всему пространству и деля на число частиц. Предполагая, что на бесконечности концентрация обращается в нуль вместе со своей первой производной, находим

$$\mathbf{V} = \frac{q\mathbf{E}_0}{kT}\int\limits_0^t \Theta_1(t-\tau)\exp(i\omega\tau) \times \times \left[\int\limits_0^\tau \Theta_2(\tau-\zeta)\,d\zeta - \Theta_3(\tau)\right] d\tau = = \frac{q\mathbf{E}_0\exp(i\omega t)}{kT}\int\limits_0^t \Theta_1(\tau)\exp(-i\omega\tau) \times \times \left[\int\limits_0^{t-\tau} \Theta_2(t-\tau+\zeta)\,d\zeta - \Theta_3(t-\tau)\right] d\tau. \qquad (38)$$

В пределе больших времен последний интеграл равен $\Theta_1(i\omega)\Theta_2(0)$. (Это можно проверить, переходя к изображению Лапласа и используя свойство $\lim_{t\to\infty} f(t) = \lim_{s\to\infty} sf(s)$.) Подставляя найденную скорость в (36), получаем (34). Таким образом, непосредственное вычисление проводимости с использованием переносного члена уравнения (29) дает тот же результат, что и общая теория, использующая диффузионный член этого уравнения. Это означает, что переносной и диффузионный члены уравнения (29) согласуются друг с другом.

Условия проведения времяпролетного эксперимента таковы, что в начальный момент времени все частицы находятся в транспортных узлах [18]. Кроме того, в этом эксперименте внешняя сила постоянна. При таких ограничениях уравнение (29) приобретает вид

$$\frac{\partial P(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \int\limits_0^t \Theta(t-\tau) \times \times \left[\Delta P(\mathbf{r},\tau) - \frac{\mathbf{F}}{kT}\nabla P(\mathbf{r},\tau)\right] d\tau, \qquad (39)$$

где функция памяти $\Theta(t)$ является сверткой функций $\Theta_1(t)$ и $\Theta_2(t)$:

$$\Theta(t) = \int\limits_0^t \Theta_1(t-\tau)\Theta_2(\tau)\,d\tau. \qquad (40)$$

Отсюда видно, что из данных времяпролетного эксперимента можно определить только функцию $\Theta(t)$, но не функции $\Theta_1(t)$ и $\Theta_2(t)$ по отдельности. Напомним, что функция $\Theta_1(t)$ отвечает за пространственную неупорядоченность, а функция $\Theta_2(t)$ — за энергетическую. Следовательно, разделить вклады разных видов неупорядоченности в дисперсионный перенос на основе одних только данных времяпролетного эксперимента нельзя. В частности, нельзя найти энергетический спектр локализованных состояний. Для того чтобы это сделать, необходимо иметь дополнительную информацию. Такой информацией может быть, например, экспериментальная зависимость проводимости от частоты. Если она известна, то с помощью соотношения (34) можно исключить функцию $\Theta_1(t)$ из уравнения (40) и решить это уравнение относительно функции $\Theta_2(t)$, которая содержит информацию об энергетическом спектре.

При конечных концентрациях уравнение для ловушек в рассматриваемой модели имеет такой же вид, как и в модели многократного захвата:

$$\frac{\partial \theta_i(\mathbf{r},t)}{\partial t} = -W_i\theta_i(\mathbf{r},t) + \mu_i\left(1 - \frac{\theta_i}{\beta_i\theta^m}\right)\rho(\mathbf{r},t). \qquad (41)$$

Это уравнение отличается от уравнения (17) наличием дополнительного множителя, который учитывает тот факт, что в отдельной ловушке одновременно может находиться не более одной частицы. Вид уравнения для транспортных узлов в этом случае будет зависеть от того, что происходит при попытке второй частицы совершить скачок в уже занятую ловушку. Здесь возможны два варианта: либо частица остается в том же узле, в котором она находилась перед совершением такой попытки, либо она в результате взаимодействия с частицей, находящейся в ловушке, перескакивает в некоторый другой узел. В первом случае в уравнении (16) должен быть изменен член, описывающий уход частиц из транспортных узлов в ловушки. Он должен быть заменен выражением

$$\frac{\theta^m}{\rho^m}\sum_{i=1}^{N}\beta_i c_i\left(1-\frac{\theta_i}{\beta_i\theta^m}\right)\rho_j(\mathbf{r},t).$$

Во втором случае нужно изменить член, описывающий приток частиц в транспортные узлы. Его следует записать в виде

$$\alpha_j\left[\sum_{i=1}^{N}W_i\theta_i(\mathbf{r},t)+\frac{\rho}{\rho^m}\sum_{i=1}^{N}c_i\theta_i(\mathbf{r},t)\right].$$

В последнем случае таким же способом, каким это было сделано выше, из уравнения (16) можно исключить концентрации $\rho_j(\mathbf{r},t)$. В результате получается уравнение, совпадающее с уравнением (26):

$$\frac{\partial P(\mathbf{r},t)}{\partial t}=\int_0^t\Theta_1(t-\tau)\times \\ \times\left\{\Delta\rho(\mathbf{r},\tau)-\frac{1}{kT}\nabla\left[\mathbf{F}(\mathbf{r},\tau)\rho(\mathbf{r},\tau)\right]\right\}d\tau. \quad (42)$$

Модель, состоящая из уравнений (41) и (42), отличается от нелинейной модели многократного захвата тем, что уравнение (42) является немарковским. Поскольку в реальных неупорядоченных полупроводниках всегда присутствует пространственная неупорядоченность, функция памяти $\Theta_1(t)$ всегда будет отлична от дельта-функции. Если это отличие существенно, то использование нелинейной модели многократного захвата вместо модели (41), (42) при описании нестационарных процессов (например, при описании данных импедансной спектроскопии [22, 23]) может приводить к существенным погрешностям.

Таким образом, в данной работе предложена аналитическая транспортная модель, описывающая прыжковый перенос заряда в неупорядоченных полупроводниках. Уравнения модели выводятся из основного кинетического уравнения с использованием концепции транспортного энергетического уровня и выражения Миллера – Абрахамса для вероятностей переходов. Усреднение микроскопических уравнений проводится способом, использовавшимся ранее при выводе уравнений модели многократного захвата. Отличие предлагаемой модели от модели многократного захвата состоит в том, что в ней учитывается разброс расстояний между транспортными узлами. Полученное в данной работе уравнение для суммарной концентрации содержит две функции памяти, одна из которых соответствует пространственной неупорядоченности, а другая — энергетической неупорядоченности. При зависящем от времени силовом поле эти две функции входят в уравнение несимметричным образом. Как следствие, в переменном поле пространственная и энергетическая неупорядоченности проявляют себя по-разному. В частности, пространственная неупорядоченность может быть причиной зависимости проводимости от частоты, а энергетическая неупорядоченность — нет. Этот факт, в принципе, можно использовать для разделения вкладов разных видов неупорядоченности в дисперсионный перенос.

ЛИТЕРАТУРА

1. Р. Т. Сибатов, В. В. Учайкин, УФН **179**, 1079 (2009).
2. В. Р. Никитенко, А. П. Тютнев, ФТП **41**, 1118 (2007).
3. C. Longeaud and S. Tobbeche, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 045508 (2009).
4. J. Dacuna and A. Salleo, arXiv:1108.2756.
5. W. L. Kalb, S. Haas, C. Krellner et al., Phys. Rev. B **81**, 155315 (2010).
6. B. Ruhstaller, E. Knapp, B. Perucco et al., in *Optoelectronic Devices and Properties*, ed. by O. Sergiyenko, InTechOpen (2011), p. 433.
7. E. Knapp, R. Hausermann, H. U. Schwarzenbach, and B. Ruhstaller, J. Appl. Phys. **108**, 054504 (2010).
8. И. П. Звягин, *Кинетические явления в неупорядоченных полупроводниках*, Изд-во МГУ, Москва (1984).
9. H. Scher and E. W. Montroll, Phys. Rev. B **12**, 2455 (1975).
10. B. Movaghar and W. Schirmacher, J. Phys. C **14**, 859 (1981).
11. V. I. Arkhipov and G. J. Adriaenssens, J. Phys.: Condens. Matter **8**, 7909 (1996).
12. M. Grunewald and P. Thomas, Phys. Stat. Sol. (b) **94**, 125 (1979).
13. D. Monroe, Phys. Rev. Lett. **54**, 146 (1985).

14. S. D. Baranovskii, H. Cordes, F. Hensel, and G. Leising, Phys. Rev. B **62**, 7934 (2000).

15. V. I. Arkhipov, E. V. Emelianova, P. Heremans et al., J. Optoelectr. Adv. Mater. **4**, 425 (2002).

16. В. Р. Никитенко, А. П. Тютнев, Н. А. Королев, ФТП **43**, 1507 (2009).

17. M. Brinza and G. J. Adriaenssens, J. Optoelectr. Adv. Mater. **8**, 2028 (2006).

18. F. W. Schmidlin, Phys. Rev. B **16**, 2362 (1977).

19. K. W. Kehr and J. W. Haus, Physica A **93**, 412 (1978).

20. H. Scher and M. Lax, Phys. Rev. B **7**, 4491 (1973).

21. H. Scher and M. Lax, Phys. Rev. B **7**, 4502 (1973).

22. E. Knapp and B. Ruhstaller, Appl. Phys. Lett. **99**, 093304 (2011).

23. J. M. Montero and J. Bisquert, J. Appl. Phys. **110**, 043705 (2011).