

モットの広範囲ホッピングにおけるフォノン遷移の取り扱いに関する再考

Re-consideration for phonon transition rate assumed in formula of Mott variable-range hopping

宝玉 充 泉田 貴士 谷本 弘吉 青木 伸俊 尾上 誠司 (東芝メモリ(株))

Michiru Hogyoku, Takashi Izumida, Hiroyoshi Tanimoto, Nobutoshi Aoki, and Seiji Onoue

(Institute of Memory Technology Research & Development, Toshiba Memory Corporation)

E-mail: michiru.hogyoku@toshiba.co.jp

アモルファスの絶縁体では、禁制帯中の広いエネルギー領域に、多量の局在準位が分布するケースが想定され得る。この場合、キャリアが同局在準位の間をホッピングするタイプの電気伝導が生じ得る。そして、そのホッピングの際のフォノン遷移とトンネル効果を考慮して、電気伝導の温度依存性が定式化されており、Mott Variable-Range Hopping (Mott-VRH)の名で広く知られている[1, 2]。

図1中の赤点線矢印のように、エネルギーの低い局在電子が、よりエネルギーの高い局在準位へとホッピングする際、一般にフォノン吸収をとまう。このようなフォノン吸収遷移は、高温域では比較的容易に起こり得る。ところが低温域では、フォノンが十分には励起されておらず、一般にフォノン数は少ないため、フォノンを吸収しようにもできない状況に陥り得る。つまり、低温域ではホッピングがフォノン吸収遷移に律速されるようになるのである。この事実に着目したMottは、ホッピングに関して次のような物理モデルを考案した[1, 2]。

① 低温になればなるほど、フォノンの吸収数ひいては吸収エネルギーが小さい遷移が優先され、その結果、ホッピングの際に、エネルギーの高い局在準位を経由しなくなる。

② そして、エネルギーの高い局在準位を経由しなくなった分、ホッピングの平均距離が伸びてしまい、トンネル確率はむしろ減少する。要するに、「低温化にともなってフォノン吸収数が少ない遷移が優先され、その結果、ホッピングの距離が伸びて図1から図2のような状況に変わってゆく」というホッピングの温度依存性の描像を、Mottは提示したのである。その後、この物理モデルはMott-VRHと呼ばれるようになった。

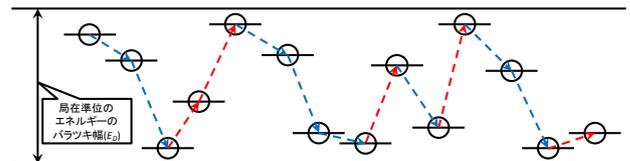
上記Mott-VRHは、様々な材料の電気伝導の実測説明に応用され、多くの成功を収めている[3]。その一方で、実測結果がうまく説明できない事例も報告されている[4]。また、Mott-VRHでは、Miller-Abrahamsモデル[5]と呼ばれる単一のフォノン遷移しか考慮していないモデル[6, 7]に基づいて、フォノン遷移確率が定式化されており、マルチフォノン遷移を考慮する必要性を指摘する声も上がっている[8]。

たとえば、アモルファス絶縁体の禁制帯中に、局在準位が0.5 eV程度のエネルギーバラツキ(E_D)で分布している場合を考えてみよう。その上で、室温(300 K)での kT のおよそ2倍に相当する、0.052 eVと少し大きめのフォノンエネルギー($h\nu$)を想定すると、十分な高温域でのフォノン吸収遷移の平均吸収数は、 $E_D/h\nu/3 = 0.5/0.052/3 \approx 3$ 個と計算される。(なぜ3で割るのかについては、[2]を参照のこと。また E_D がより大きくなったり、 $h\nu$ がより小さくなったりすると、平均フォノン吸収数は3個よりも大きくなる。)このような $E_D \gg h\nu$ のケースにおいて、フォノン吸収数が平均で複数個になる十分な高温域から、よりフォノン吸収数の少ない遷移が優先される低温域までを、途切れなくシームレスに計算するには、どうすれば良いであろうか? それにはやはり、我々が2015年春季応用物理学会[9]で指摘/提案したように、単一フォノン遷移しか考慮していないMiller-Abrahamsモデルを、マルチフォノンモデルに置き換えるほかはないであろう。

今回我々は、上記条件の周辺を絞って、Miller-Abrahamsモデルとマルチフォノンモデルのフォノン遷移確率の違いを数値的に検証すると共に、マルチフォノンの効果でMott-VRHの温度依存性が変調を受ける(9)を参照)メカニズムを明らかにした。 kT は、Mott[1]がMiller-Abrahamsモデルの適用上限と判断した $h\nu/4$ に設定した。つまり $T=0.052[eV]/4/k[eV/K]=150\text{ K}$ とした。再配置エネルギー(λ)は、 $h\nu$ の1倍、2倍、あるいは5倍に設定した。また、マルチフォノンモデルの低温域での近似関数に相当する、Miller-Abrahamsモデルにポアソン分布関数($\exp[-\lambda(h\nu)] [\lambda(h\nu)]^p / p!$)をかけたもの[10]も、参考

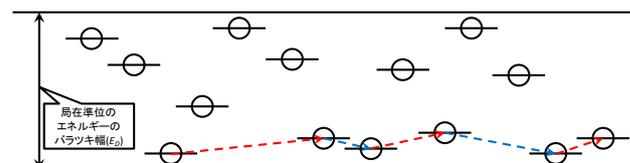
のためにあわせて計算した(ここで p はフォノン放出数)。図3に $\lambda=h\nu$ とした場合のフォノン遷移確率の計算結果を示す。これより、マルチフォノンモデル(緑四角)とその近似関数(赤線)は、おおむね一致しているのが分かる。つまりMiller-Abrahamsモデルは、ポアソン分布関数をかけていない分だけ、マルチフォノンモデルからズレてしまうのである。さらにそのズレに相当するポアソン分布関数は、先の式より、 $|p|$ すなわちフォノン放出数の絶対値に依存するのが分かる。またMottの描像によれば、ホッピングを律速するフォノン吸収数($-p$)は、温度の低下と共に少なくなる。結局のところ、Miller-Abrahamsモデルとマルチフォノンモデルのズレは温度に依存する結果になって、Mott-VRHの温度依存性に変調が加わる(9)を参照)ものと考えられる。なお、 λ を $h\nu$ の2倍にしても5倍にしても、この結論は変わらなかった。

参考文献: [1] N. F. Mott, J. Non-Cryst. Solids **1**, 1 (1968). [2] ザイマン 乱れの物理学 13.3 節. [3] A. Yildiz et al., J. Appl. Phys. **108**, 083701 (2010). [4] T. Serin et al., Physica B **406**, 3551 (2011). [5] A. Miller and E. Abrahams, Phys. Rev. **120**, 745 (1960). [6] V. Coropceanu et al., Chem. Rev. **107**, 926 (2007), Section 4.2. [7] I. I. Fishchuk et al., Phys. Rev. B **78**, 045211 (2008), Section II-B. [8] D. Emin, Phys. Rev. Lett. **32**, 303 (1974). [9] 宝玉 充 他, 2015年 第62回応用物理学会春季学術講演会, 13a-A24.4. [10] B. K. Ridley, *Quantum Processes in Semiconductors*, 4th ed., Clarendon, Oxford, 1999, Section 6.4.



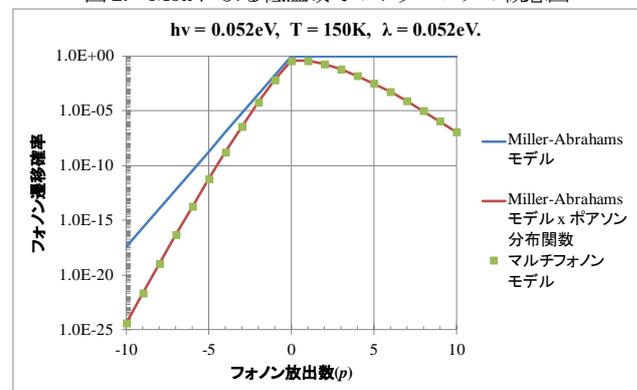
- ・局在準位間のエネルギー差が大きい。
- ・つまり、赤点線矢印のフォノン吸収遷移におけるフォノン吸収数が多い。
- ・ただし高温域であれば、フォノン数が多く、上記遷移は比較的容易に生じ得る。

図1. Mottによる高温域でのホッピングの概念図



- ・温度低下と共に、フォノン吸収遷移におけるフォノン吸収数が、制限されるようになる。
- ・その結果、エネルギーの高い局在準位を経由したホッピングが、起こらなくなる。
- ・代わりに、ホッピングの対象となる局在準位が減って、平均のホッピング距離が伸びる。

図2. Mottによる低温域でのホッピングの概念図

図3. 再配置エネルギー(λ) = フォノンエネルギー($h\nu$) = 0.052 eV かつ $T = 150\text{ K}$ の場合の計算結果