

ДВУХСТАДИЙНЫЙ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ОТКЛИК ВОЛН ЗАРЯДОВОЙ ПЛОТНОСТИ В TaS₃

Н.И.Бакланов, С.В.Зайцев-Зотов¹⁾

Институт радиотехники и электроники РАН
103907 Москва, Россия

Поступила в редакцию 14 марта 1995 г.

Изучена кинетика поляризации волн зарядовой плотности в квазиодномерном проводнике TaS₃ при температурах 1,6 – 20 К и во временном интервале 5 мкс – 100 с. Обнаружено, что поляризация волн зарядовой плотности при подаче ступеньки напряжения происходит за счет термической активации и имеет две ярко выраженные стадии, связываемые с вкладом центров сильного пиннинга (быстрая стадия) и с поляризацией волн зарядовой плотности при слабом пиннинге (медленная стадия).

Низкотемпературные свойства квазиодномерных проводников в последние годы вызывают повышенный интерес, что связано с наблюдением ряда аномалий в кинетике волн зарядовой плотности (ВЗП) [1]. В TaS₃ наиболее интересна область температур ниже 20 К, в которой уменьшается энергия активации линейной проводимости и изменяется форма вольт-амперных характеристик. Для объяснения этих аномалий широко используется предположение о солитонном механизме проводимости [2–4]. Недавно было показано, что по крайней мере некоторые особенности низкотемпературной проводимости ВЗП могут быть объяснены крипом ВЗП [5], то есть без привлечения экзотических механизмов проводимости типа солитонного. При этом наиболее интересной областью температур оказалась как раз низкотемпературная область, $T \leq 10$ –20 К, в которой в тонких образцах TaS₃ было обнаружено уменьшение до нуля энергии активации нелинейной проводимости. Этот результат интерпретировался как переход от термически активированного к квантовому крипу ВЗП [5]. Возникает естественное предположение, что квантовые эффекты могут быть ответственны за низкотемпературные аномалии и в образцах обычных размеров [6, 7]²⁾.

В области низких температур проводимость квазиодномерных проводников исчезающе мала, и информацию о механизмах движения ВЗП удобно получать с помощью изучения их диэлектрического отклика. Так в K_{0,3}MoO₃ было обнаружено [8], что при сравнительно высоких температурах $T = 25$ – 60 К отклик на ступенчатое изменение напряжения следует затянutoй экспоненциальной зависимости,

$$Q(T, t) = Q_0 \left(1 - \exp \left[- \left(\frac{t}{t_0(T)} \right)^\alpha \right] \right), \quad (1)$$

причем $t_0 \propto \exp(W/T)$, где Q – поляризационный заряд, t – время, W – энергия активации, и $\alpha \approx 0,3$. В TaS₃ при $T = 20$ –40 К наблюдался зависящий от частоты максимум диэлектрической проницаемости [9], связываемый с

¹⁾ e-mail: zz@ire.rc.ac.ru

²⁾ В рамках солитонной модели проводимость TaS₃ при температурах ниже 20 К интерпретируется как прыжковая проводимость солитонов с переменной длиной прыжка (см., например, [3]), которая осуществляется благодаря туннелированию.

переходом в стекольное состояние, а при $T \leq 4,2$ К кинетика поляризации ВЗП не изучалась.

В настоящей работе мы приводим результаты изучения низкотемпературной кинетики поляризации TaS_3 в диапазоне времен $5 \text{ мкс} - 100 \text{ с}$ при температурах $1,6 - 20$ К. Полученные результаты свидетельствуют о коллективном механизме поляризации и о преобладающем вкладе термических флуктуаций в исследованном диапазоне времен и температур. Двухстадийность процесса релаксации поляризации интерпретируется как переход от сильного пиннинга (малые времена, низкие температуры) к слабому (большие времена, высокие температуры).

Нами исследовался диэлектрический отклик образцов TaS_3 , возникающий после подачи ступеньки напряжения. Для этого мы измеряли зависимость поляризационного тока I от времени t при подаче знакопередающей периодической последовательности импульсов напряжения (см. вставку к рис.1). Кривые $I(t)$, полученные при противоположных полярностях, попарно вычитались. Поляризационный заряд $Q(t)$ получался интегрированием тока $I(t)$ и усреднялся по большому числу импульсов ($10 - 200$ имп.). Сопоставляя зависимости $Q(t)$, полученные при нулевом и ненулевом напряжениях на образце и при различных длительностях импульсов, можно оценить поправки к поляризационному заряду, возникающие из-за протекания тока (при $V \neq 0$) и из-за различной предыстории³⁾, и восстановить отклик образца на единичную ступеньку напряжения. Временной интервал измерений со стороны малых времен был ограничен постоянной времени высокочастотного электрометрического усилителя (1 мкс), а со стороны больших времен – низкочастотными шумами измерительной схемы и электрометрического усилителя (порядка 10^{-16} А). Температурный диапазон измерений со стороны высоких температур был ограничен появлением токового шума из-за роста проводимости образцов.

Измерялись образцы TaS_3 поперечного сечения $s = 200 - 1500 \text{ мкм}^2$ и длиной $1,2 - 6 \text{ мм}$. Мы изучили кинетику поляризации в образцах двух типов, которые будем условно называть “чистыми” и “легированными”. Чистые образцы имели пороговое поле начала нелинейной проводимости $E_T < 1 \text{ В/см}$ ($T = 77 \text{ К}$), а легированные – около 10 В/см , что соответствует относительному содержанию примесей $< 10^{-5}$ и $\sim 10^{-3}$, соответственно.

Было установлено, что зависимость величины поляризационного заряда от амплитуды ступеньки напряжения V близка к линейной вплоть до $V \approx V^*$, где V^* – напряжение, при котором возникает измеряемый нелинейный ток. Тем не менее, для уменьшения погрешности, связанной со слабой нелинейностью отклика, измерения при всех температурах проводились при одной и той же амплитуде импульсов $V \leq 0,3V^*$.

На рис.1 приведен типичный набор зависимостей $Q(t)$ для одного из чистых образцов TaS_3 . Релаксация поляризации носит неэкспоненциальный характер и продолжается вплоть до максимальных времен, при которых проводились измерения. При этом на зависимостях $Q(t)$ можно выделить два участка. Первый участок характеризуется сравнительно быстрым нарастанием поляризации со временем и сильной температурной зависимостью Q (быстрая релаксация). На втором участке зависимость поляризационного заряда от времени близка к логарифмической, $Q \propto \ln(t)$, а его температурная зависимость слабая (медленная

³⁾ При линейном отклике ($Q \propto V$) перекрытие откликов на передний и задний фронты импульса объясняет эффект старения, известный для неупорядоченных систем.

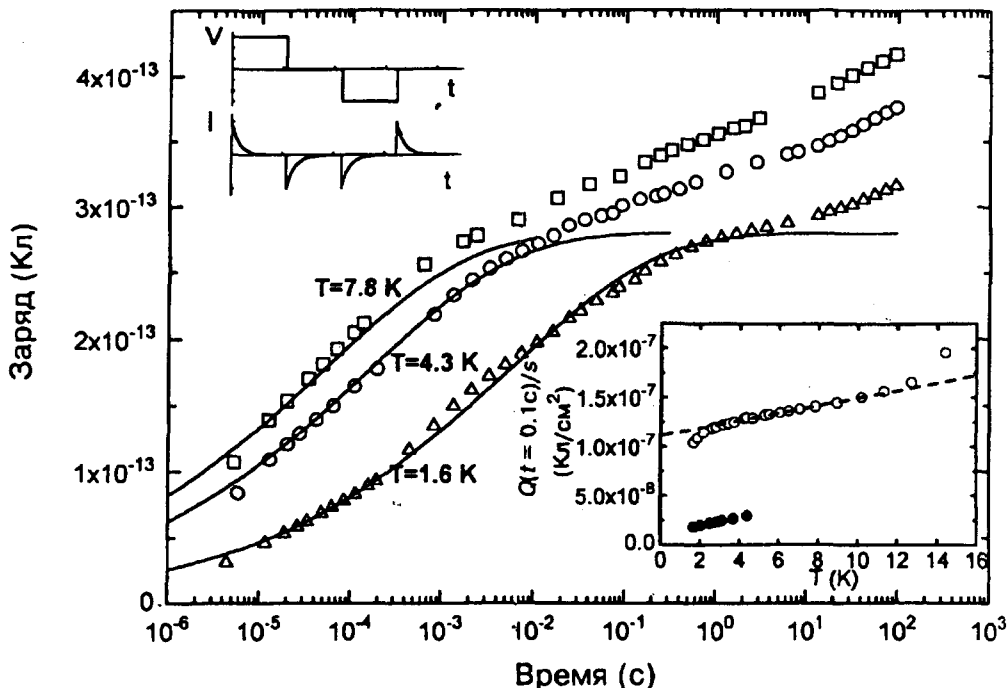


Рис.1. Отклик на единичную ступеньку напряжения для чистого образца TaS_3 при различных температурах. Сплошные кривые соответствуют затянутой экспоненциальной зависимости (уравнение (1)), с $\alpha = 0,27$ $t_0 = \tau \exp(W/T)$, $\tau = 1,5 \cdot 10^{-5}$ с и $W = 10$ К. В верхней части рисунка схематически показаны последовательность импульсов напряжения $V(t)$ и соответствующий ей отклик образца $I(t)$. На вставке – температурные зависимости поляризации (Q/s) для чистого (o) и легированного (•) образцов. Пунктир соответствует уравнению (2) с $\chi = 2$

релаксация). При понижении температуры граница раздела между быстрой и медленной релаксациями сдвигается в область больших времен. Однако при всех температурах область $Q \leq 2,5 \cdot 10^{-13}$ Кл принадлежит области медленной релаксации, а $Q \geq 2,8 \cdot 10^{-13}$ Кл – области быстрой релаксации.

На вставке к рис.1 показаны температурные зависимости заряда, достигаемого к моменту времени 0,1с, для чистого и легированного образцов TaS_3 . Участку медленной релаксации соответствует близкая к линейной зависимость $Q(T)$. Поляризация (то есть Q/s) легированного образца почти на порядок ниже, чем чистого.

Для каждого значения Q можно найти набор значений температур и времен, при которых достигается заданная поляризация. На рис.2 представлены полученные таким образом зависимости $\ln t(Q)$ от $1/T$. Зависимости близки к активационным, $t(Q) = t_0 \exp(W/T)$, где t_0^{-1} имеет смысл частоты попыток, а $W = 10 - 30$ К представляет собой эффективный энергетический барьер. Частота попыток для области медленной релаксации ($t_0 \sim 10^{-3}$ с) оказывается макроскопической, а в области быстрой релаксации уменьшается экспоненциально быстро с уменьшением Q . Таким образом в области медленной релаксации ка-

ждому значению Q соответствует энергетический барьер, а в области быстрой релаксации – частота попыток.

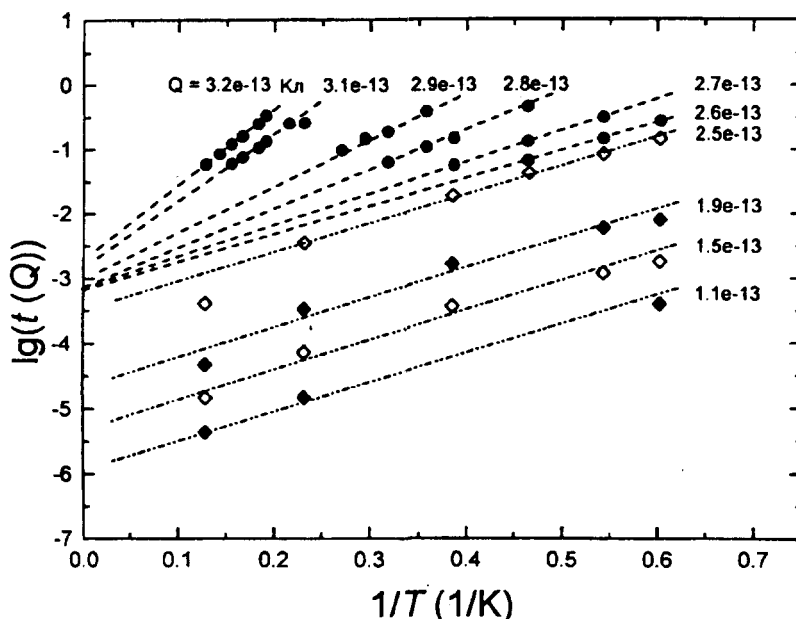


Рис.2. Зависимости времени, за которое достигается заданный поляризационный заряд, от обратной температуры; \circ соответствуют быстрой стадии, а \bullet – медленной

Макроскопические частоты попыток для релаксации поляризации несовместимы с представлениями о том, что низкотемпературные свойства TaS_3 обусловлены нескоррелированными перескоками *микроскопических* возбуждений вроде электронов (дырок), или же фазовых солитонов, переносящих двойной элементарный заряд. Наиболее естественно предположить, что в качестве сильнокоррелированной системы, ответственной за поляризацию, выступает сама ВЗП, и наблюдающаяся релаксация обусловлена термически-активированным крипом ВЗП⁴).

Экспериментальная зависимость $Q(T, t)$ в области быстрой релаксации может быть приблизительно описана затянутой экспоненциальной зависимостью (1) (сплошные линии на рис.1). Основное расхождение связано с небольшой температурной зависимостью наклона зависимости $\ln(t(Q))$ от $1/T$ (рис.2). Кроме того, в отличие от случая голубой бронзы при высоких температурах [8], в котором наблюдалось прекращение релаксации при $t = t_{\max} \sim t_0$, в обсуждаемом здесь случае TaS_3 процесс релаксации продолжается и при $t \gg t_{\max}$, выходя на логарифмическую (или близкую к ней степенную) зависимость. Отметим, что в области медленной релаксации наблюдается соответствие между поляризацией и энергетическим барьером W , который необходимо преодолеть для достижения этой поляризации. Подобное соответствие характерно для

⁴) Тем не менее, отметим, что уменьшение поляризуемости с ростом концентрации примесей противоречит *солитонной* модели крипа [4].

неупорядоченных систем и обычно связывается с постепенным увеличением размера областей поляризации L , что приводит к $W \propto L^\chi$, где $1 < \chi < 2$ в случае трехмерного пиннинга [10]. Беря $Q \propto EL^2$ получаем [10]

$$Q(t) = Q_0 \left(1 + \frac{T}{T^*} \ln \frac{t}{t_0} \right)^{2/\chi}, \quad (2)$$

где T^* – характерный масштаб энергетических барьеров⁵⁾. В принципе, экспериментальные данные (рис.1,2) в области медленной релаксации соответствуют уравнению (2) с $\chi = 10$. Однако в этом случае расхождение между ожидаемым значением $1 \leq \chi \leq 2$ и значением $\chi = 10$, оцененным из эксперимента, составляет почти порядок. Разумного согласия между экспериментальными результатами и уравнением (2) можно достичь, если предположить, что в чистых образцах логарифмическая релаксация начинается лишь после достижения системой некоторой начальной поляризации. Случаю $\chi = 2$ (штриховая прямая на вставке к рис.1) соответствует начальная поляризация $2,2 \cdot 10^{-13}$ Кл и $Q/s = 1,1 \cdot 10^{-7}$ Кл/см².

В легированных образцах нами наблюдался лишь участок медленной (логарифмической) релаксации, который мог быть описан уравнением (2) с $T^* = 10$ К, $t_0 = 3$ мс и $2/\chi \approx 1$ ⁵⁾. Таким образом, значение $\chi \approx 2$ для легированных образцов близко к ожидаемому $1 < \chi < 2$ [10].

Отметим, что модели [10, 11] имеют лишь одну стадию релаксации, которая описывается или логарифмической, или заткнутой экспоненциальной зависимостями, но не обеими вместе. Мы полагаем поэтому, что при низких температурах в TaS₃ последовательно реализуются два *различных* термически активированных релаксационных процесса. С нашей точки зрения, ключевым моментом для понимания низкотемпературного поведения TaS₃ является анализ типа пиннинга ВЗП. Хорошо известно, что пиннинг ВЗП в TaS₃ при высоких температурах слабый. Однако в настоящее время существует большое число косвенных свидетельств того, что при достаточно низких температурах (по-видимому, в области температур 60–80 К для TaS₃) происходит переход к сильному пиннингу, что связано как с изменением экранировки ВЗП, так и с уменьшением роли термических флуктуаций (см., например, работы [5, 9]).

Предполагая, что в исследуемых кристаллах присутствуют центры сильного пиннинга, мы приходим к следующему сценарию поляризации ВЗП. Изменение электрического поля вызывает первоначально смещение ВЗП как целого. В результате становится энергетически выгодным проскальзывание фазы ВЗП⁶⁾ на части центров сильного пиннинга (активные центры). Каждый акт проскальзывания фазы приводит к смене знака силы пиннинга на таком центре пиннинга. В результате сильно изменяется локальная конфигурация ВЗП, что влияет на проскальзывание фазы на других активных центрах и может приводить к заткнутой экспоненциальной релаксации [11]. На временах, достаточных для перевода всех активных центров в пассивные, пиннинг ВЗП

⁵⁾ Отметим, что в случае активационной зависимости $t_0 = \tau \exp(W/T)$ уравнение (2) может быть использовано для описания релаксации после замены T^* на $T^*/(W/T^* + 1)$, Q_0 на $Q_0/(W/T^* + 1)^{2/\chi}$ и t_0 на τ .

⁶⁾ Здесь под проскальзыванием фазы ВЗП мы понимаем процесс локального изменения конфигурации ВЗП, связанный с переходом между метастабильным и основным состояниями ВЗП на пиннирующей примеси [12].

эквивалентен слабому. Поэтому дальнейшая поляризация ВЗП связана с постепенным ростом размеров и числа областей, в которых за время наблюдения возможно изменение конфигурации ВЗП [10].

С ростом концентрации примесей следует ожидать относительного возрастания вклада от слабого пиннинга. Это объясняет преобладание медленной релаксации в исследованных нами легированных образцах, а также отмеченное выше обстоятельство, что уравнение (2) гораздо лучше описывает медленную релаксацию в легированных образцах, чем в чистых.

Выше мы исходили из предположения, что все центры пиннинга имеют близкую энергию взаимодействия с ВЗП. В реальном образце следует ожидать существования различных центров сильного пиннинга, отличающихся энергиями. Такие центры сильного пиннинга обеспечивают дополнительные вклады, лежащие в различных (возможно и не перекрывающихся) временных и температурных интервалах. В случае большого различия энергий пиннинга релаксационный процесс должен представлять собой чередование быстрых и медленных стадий релаксации. При этом анализ энергий релаксационных процессов должен давать набор характерных энергий. Рост поляризации при $T > 12$ К (см. вставку к рис.2) может быть вызван переходом к очередной быстрой стадии. Небольшое температурное изменение энергии активации в области быстрой релаксации (рис.2) может быть следствием как существования примесей с близкими энергиями взаимодействия с ВЗП, так и проявлением туннельного вклада в быструю релаксацию.

Таким образом, нами наблюдалась двухстадийная релаксация поляризации TaS_3 и было показано, что она может быть описана в рамках существующих представлений о термически активированном крипе ВЗП и для своего объяснения не требует привлечения каких-либо экзотических механизмов проводимости. В соответствии с рассмотренной моделью ответ на вопрос о типе пиннинга (слабый, сильный или смешанный) оказывается зависящим от температуры и временного интервала (частоты), а двухстадийность релаксации является свидетельством перехода от одного типа пиннинга к другому.

Авторы благодарят Е.Коломейского, А.С.Артеменко, J.Souletie и K.Biljaković за полезные обсуждения. Работа была поддержана Международным научным фондом (грант M1Q000) и Российским фондом фундаментальных исследований (грант 95-02-05392).

-
1. *International Workshop on Electronic Crystals*, Eds. by S.Brasovskii and P.Monceau, J. de Phys., IV, vol. 3 (1993).
 2. T.Takoshima, M.Ido, K.Tsutsumi, and T.Sambongi, Sol. Stat. Comm. **35**, 911 (1980).
 3. M.E.Itkis, F.Ya.Nad', and P.Monceau, J. Phys.: Condens. Matter **2**, 8327 (1990).
 4. А.И.Ларкин, ЖЭТФ **105**, 1793 (1994).
 5. S.V.Zaitsev-Zotov, Phys. Rev. Lett. **71**, 605 (1993).
 6. Ji-Min Duan, Phys. Rev. B **48**, 4860 (1993); Phys. Rev. Lett. **72**, 586 (1994).
 7. S.V.Zaitsev-Zotov, Phys. Rev. Lett. **72**, 587 (1994).
 8. G.Kriza and G.Mihaly, Phys. Rev. Lett. **56**, 2529 (1986).
 9. F.Ya.Nad' and P.Monceau, Sol. St. Comm. **87**, 13 (1993).
 10. T.Natterman, Phys. Rev. Lett. **64**, 2454 (1990).
 11. R.G.Palmer, D.L.Stein, E.Abrahams and P.W.Anderson, Phys. Rev. Lett. **53**, 958 (1984).
 12. S.Abe, J. Phys. Soc. Jpn. **54**, 3494 (1985); **55**, 1987 (1986); J.R.Tucker, W.L.Lyons, and G.Grammie, Phys. Rev. B **38**, 1148 (1988).