

9.3 Modelle für die dynamische Leitfähigkeit

9.3.1 Theoretische Vorbemerkungen

Allgemein ist der Tensor der elektrischen Leitfähigkeit durch die *Kubo-Formel* gegeben [145], [146]:

$$\text{Gl. 9.25} \quad \sigma_{xy}(\omega) = \frac{1}{k_B T} \int_0^{\infty} \langle j_x(t) j_y(0) \rangle e^{-i\omega t} dt,$$

nach der die elektrische Leitfähigkeit durch die Korrelation der Stromdichtefluktuationen beschrieben werden kann.

Im Rahmen der Einteilchennäherung kann an Stelle der *Kubo-Formel* die *Kubo-Greenwood-Formel* für die elektrische Leitfähigkeit angegeben werden [147], [148], [99]:

Gl. 9.26

$$\sigma_{ij}(\omega) = \frac{e^2 \hbar^2 \pi V}{m^2 \omega} \int_0^{\infty} D(E) D(E + \hbar\omega) \langle \psi_{E+\hbar\omega} | \frac{\partial}{\partial x_i} | \psi_E \rangle \langle \psi_E | \frac{\partial}{\partial x_j} | \psi_{E+\hbar\omega} \rangle [f(E + \hbar\omega) - f(E)] dE$$

mit den Abkürzungen:

V : Kristallvolumen

$D(E)$: Zustandsdichte bei der Energie E

ψ_E : Elektronenzustandsfunktion der Energie E

f : Fermi - Funktion

Handelt es sich bei den elektronischen Zuständen um Blochzustände, so kann für Transportvorgänge mit Hilfe des *Liouvilleschen Theorems* die *Boltzmannsche Transportgleichung* aufgestellt werden. Aus dieser ergibt sich der Leitfähigkeitstensor unter der Annahme eines Relaxationszeitansatzes für Stoßprozesse zu [146]:

$$\text{Gl. 9.27} \quad \sigma(\omega) = \frac{e^2}{4\pi^3} \int \frac{\vec{\tau}_{\vec{k}} \circ \vec{v}_{\vec{k}}}{1 - i\tau(\omega - \vec{K}\vec{v}_{\vec{k}})} \frac{dS_F}{\hbar v_{\vec{k}}}$$

mit den Bezeichnungen:

τ : Relaxationszeit

\vec{K} : Wellenvektor der anregenden elektromagnetischen Welle

$\vec{v}_{\vec{k}}$: Geschwindigkeit eines Elektrons mit dem Wellenvektor \vec{k}

S_F : Fermi - Fläche

\circ : Dyadisches Produkt

Die Gl. 9.27 ergibt sich auch aus der Kubo-Greenwood-Formel durch die Annahme von Blochzuständen für die elektronischen Zustände.

Die Gl. 9.25 bis Gl. 9.27 bilden den theoretischen Ausgangspunkt für die Erstellung konkreter Modelle für die dynamische Leitfähigkeit. Durch den hohen Abstraktionsgrad sind diese Gleichungen aber nicht für eine Anpassung an Meßwerte geeignet.

Im folgenden werden daher verschiedene Ladungstransportmodelle vorgestellt, die von konkreten Annahmen über den Transportmechanismus ausgehen und entsprechende Vorhersagen über die dynamische Leitfähigkeit machen. Diese Modelle werden später zur Anpassung an die Meßwerte herangezogen. Die Modelle werden hier nur skizziert. Für tiefere Betrachtungen wird auf die jeweilige Originalliteratur verwiesen.

9.3.2 Delokalisierte Ladungsträger und Drude-Gleichung

Werden die Ladungsträger durch ausgedehnte Blochzustände beschrieben, so kann für die Berechnung der dynamischen Leitfähigkeit von der Gl. 9.27 ausgegangen werden. Mit der meist berechtigten Näherung $K \cdot v_F \ll \omega$ und unter Beschränkung auf isotrope Kristalleigenschaften erhält man aus Gl. 9.27 den folgenden skalaren Ausdruck für die dynamische Leitfähigkeit:

$$\text{Gl. 9.28} \quad \sigma(\omega) = \sigma_0 \frac{\omega_\tau}{\omega_\tau - i\omega},$$

mit:

$$\text{Gl. 9.29} \quad \sigma_0 = \frac{e_0^2}{12\pi^3} \int \tau v dS_F$$

Die Größe σ_0 entspricht der Gleichstromleitfähigkeit, und die inverse Relaxationszeit τ : $\omega_\tau = 1/\tau$ ist die Streufrequenz. Die Gl. 9.28 wird kurz „Drude-Gleichung“ genannt, da sie identisch zu der aus dem klassischen Drude-Modell ([149], [150]) abgeleiteten Gleichung für die dynamische Leitfähigkeit ist. Die Gleichstromleitfähigkeit ist über die Beziehung:

$$\text{Gl. 9.30} \quad \sigma_0 = \varepsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\omega_\tau}$$

mit der Plasmafrequenz ω_p , also der Resonanzfrequenz des Elektronenplasmas, verknüpft. Unter der Annahme eines parabolischen Bandverlaufes kann mit Hilfe der Gl. 9.29 die Plasmafrequenz bzw. die Gleichstromleitfähigkeit durch die Ladungsträgerkonzentration n und die effektive Masse m^* ausgedrückt werden:

$$\text{Gl. 9.31} \quad \omega_p^2 = \frac{e^2 n}{\varepsilon_0 m^*} \quad \text{und} \quad \sigma_0 = \frac{e^2 n}{m^* \omega_\tau}$$

Charakteristisch für die dynamische Leitfähigkeit von Ladungsträgern in ausgedehnten Zuständen ist ein für $\omega < \omega_\tau$ frequenzunabhängiger Realteil der Leitfähigkeit und ein negativer Beitrag zum Realteil der verallgemeinerten dielektrischen Funktion (Gl. 9.7). Dies führt bei hinreichender Konzentration an delokalisierten Ladungsträgern zu einem negativen Realteil der verallgemeinerten dielektrischen Funktion.

Die Annahme einer mittleren Stoßfrequenz ω_τ ist nur eine grobe Näherung. Genauere Betrachtungen der Stoßmechanismen erfordern eine energieabhängige Stoßfrequenz. Dies führt zu einer Frequenzabhängigkeit des Realteils der Leitfähigkeit auch für $\omega < \omega_\tau$. Ein theoretisches Modell zur Beschreibung von Streumechanismen zusammen mit einer Diskussion üblicher Streuvorgänge ist unter anderem durch Gerlach und Grosse [150] erfolgt. Für Anregungsenergien, die klein gegenüber der thermischen Energie der Elektronen sind, bleibt aber die Annahme einer mittleren Stoßfrequenz gerechtfertigt.

9.3.3 Lokalisierte Ladungsträger und Hopping-Leitung

Die *Boltzmannsche Transportgleichung* versagt, sobald die für den Ladungstransport verantwortlichen Ladungsträger örtlich lokalisiert sind. Aus quantenmechanischer Sicht besitzen diese Ladungsträger keinen eindeutigen Wellenvektor und folglich kann das *Liouvillesche Theorem* – Grundlage der Boltzmannschen Transportgleichung – nicht angewendet werden. Für die theoretische Beschreibung des Ladungstransportes durch lokalisierte Ladungsträger muß daher auf die Kubo- oder Kubo-Greenwood-Formel zurückgegriffen werden (siehe Kapitel 9.3.1). Ursache für die Lokalisation elektronischer Zustände ist Unordnung im Festkörper, die die Ausbildung von Blochwellen verhindert. In amorphen Materialien und stark gestörten Strukturen ist Hopping-Leitung daher der dominierende Transportmechanismus.

Der Ladungstransport entsteht durch einen nahezu sprunghaften Platzwechsel der Ladungsträger zwischen lokalisierten Zuständen unter dem Einfluß eines äußeren elektrischen Feldes. Für den Platzwechsel können verschiedene Mechanismen verantwortlich sein. Zum einen ist das klassische Überwinden einer Potentialbarriere möglich, wie es hauptsächlich bei der Ionenleitung auftritt (*klassisches Hopping*). Elektronen hingegen werden die Potentialbarriere eher durchtunneln. Der Tunnelprozeß ist dabei phononengestützt, das heißt, die Potentialbarriere ändert ihre Höhe und Dicke in Abhängigkeit von der lokalen Verzerrung des Gitters durch die Gitterschwingung. Die Tunnelwahrscheinlichkeit wird so zu einem bestimmten Zeitpunkt der Gitterschwingung maximal und der Platzwechsel kann erfolgen (*Phonon-assisted hopping*).

Ist das äußere elektrische Feld statisch, so wird die Leitfähigkeit des Materials durch die höchste Potentialbarriere auf dem Perkolationspfad durch die Probe bestimmt. Bei einem äußeren Wechselfeld hingegen ist der Bewegungsbereich der Ladungsträger eingeschränkt und niedrigere Potentialbarrieren bestimmen die Leitfähigkeit. Man erwartet folglich mit wachsender Frequenz eine zunehmende Leitfähigkeit des Materials, wie es ausnahmslos in allen Systemen mit Hopping-Leitung beobachtet wird.

Für die Beschreibung der dynamischen Leitfähigkeit geht man häufig von der Paar-Näherung aus, die annimmt, daß der Platzwechsel nur zwischen zwei Positionen erfolgt. Diese Annahme ist für hohe Frequenzen, wie sie auch in dieser Arbeit verwendet wurden ($\omega > 10^{11} \text{ s}^{-1}$), berechtigt, bei niedrigen Frequenzen (Wechselstrombereich) hingegen ist diese Annahme eine unzulässige Vereinfachung.

Legt man die Paar-Näherung zugrunde, so ist der Platzwechsel der lokalisierten Ladung in einem äußeren Wechselfeld in bezug auf ortsfeste Ladungen im Festkörper mit der Orientierung eines Dipols in einem elektrischen Feld vergleichbar. Das klassische Debye-Modell, das die Relaxation eines solchen Dipols beschreibt, ist damit die einfachste Näherung für die Berechnung der dielektrischen Funktion bzw. der dynamischen Leitfähigkeit bei Hopping-Leitung und ergibt:

$$\text{Gl. 9.32} \quad \sigma(\omega) = \frac{\alpha \cdot n \cdot \omega}{i + \omega\tau_0}.$$

α ist die Polarisierbarkeit, also die Änderung des Dipolmomentes, die beim Platzwechsel des Ladungsträgers zwischen den beiden Positionen auftritt. n beschreibt die Dichte der Hoppingzentren. τ_0 ist die Relaxationszeit, die das System braucht, um auf eine Änderung des äußeren Feldes zu reagieren. Bei einem phononengestützten Prozeß wird dies etwa die Dauer einer

Gitterschwingung sein $-1/\tau_0$ also der Frequenz eines optischen Phonons entsprechen.

Man beachte, daß der Imaginärteil von Gl. 9.32 negativ ist. Hopping-Leitung liefert folglich gemäß Gl. 9.7 einen positiven Beitrag zum Realteil der verallgemeinerten dielektrischen Funktion. Dies ist ein qualitativer Unterschied zur gewöhnlichen Bandleitung delokalisierte Elektronen (siehe Kapitel 9.3.2) und erlaubt es, experimentell zwischen beiden Prozessen zu unterscheiden. Für $\omega = 0$ ergibt Gl. 9.32 $\sigma = 0$. Dies ist eine falsche Aussage und eine Folge der bei kleinen Frequenzen nicht mehr gültigen Paar-Näherung.

Das einfache Debye-Modell läßt sich verbessern, indem nicht nur ein Relaxationsprozeß angenommen wird, sondern entsprechend den verschiedenen Arten an Hopping-Zentren eine Verteilung von verschiedenen Relaxationszeiten τ_0 und Polarisierbarkeiten α zugrunde gelegt wird.

Quantenmechanisch wird der Platzwechsel der Ladungsträger durch eine Ratengleichung der Gestalt:

$$\text{Gl. 9.33} \quad \dot{f}_1 = w_{21}f_2 - w_{12}f_1 = -\dot{f}_2 \quad \text{mit : } f_1 = 1 - f_2$$

beschrieben. $f_{1,2}$ steht für die Besetzungswahrscheinlichkeit der Positionen 1,2, und w beschreibt die Übergangswahrscheinlichkeit. Durch die mathematische Ähnlichkeit dieser Ratengleichung zu dem im Debye-Modell angenommenen Relaxationsverhalten besitzen auch quantenmechanische Modelle der dynamischen Leitfähigkeit bei Hopping-Leitung immer einen Debye-ähnlichen Term.

In den letzten 40 Jahren ist eine große Anzahl an Hopping-Modellen entwickelt worden, die verschiedenste Annahmen über den Platzwechselmechanismus und das Relaxationsverhalten machen. Ein Überblick ist durch Long [151] und Elliott [152] gegeben. Qualitativ unterscheidet sich die dynamische Leitfähigkeit nur wenig, so daß unter Berücksichtigung der experimentellen Meßgenauigkeit aus dem Frequenzverhalten der dynamischen Leitfähigkeit kaum Rückschlüsse auf den konkreten Hopping-Mechanismus gezogen werden können. Dyre bestätigte durch ein *Freie Energie Barriere-Modell* [153] generell, daß unabhängig von dem konkreten Hopping-Mechanismus ein qualitativ gleichartiges Verhalten der dynamischen Leitfähigkeit zu erwarten ist.

Viele Hopping-Modelle sind für den Mikrowellenbereich entwickelt worden und werden ungültig für Frequenzen nahe der inversen Relaxationszeit $\omega \approx 1/\tau_0$. Butcher und Morys lösten als erste das quantenmechanische Hopping-Modell für hohe Frequenzen (Paar-Näherung) und geringe Dichten an Hoppingzentren vollständig und erhielten [154]:

$$\text{Gl. 9.34} \quad \sigma(\omega) = \frac{\sigma_\infty}{24} \int_0^\infty \frac{\omega\tau_0 \cdot x^4}{i + \omega\tau_0 e^x} dx \quad \text{mit : } \sigma_\infty = c \cdot n^2 \cdot k_B T .$$

Man beachte die Ähnlichkeit des Integranden mit dem einfachen Debye-Modell (Gl. 9.33). τ_0 ist eine Untergrenze der Relaxationszeit, deren inverser Wert etwa der größten optischen Phononenfrequenz im Material entspricht. n ist die Dichte der Hoppingzentren, und die Konstante c beinhaltet neben verschiedenen Natur- und Integrationskonstanten den maximalen energetischen Abstand der Hoppingzentren. Auch dieses Modell unterliegt den Grenzen der Paar-Näherung, verliert also für niedrige Frequenzen seine Gültigkeit.

Die Wechselwirkung benachbarter Hoppingplätze führt zu einer energetischen Aufspaltung der Energieniveaus der lokalisierten Zustände. Eine besondere Situation tritt ein, wenn die mittlere thermische Energie der Ladungsträger kleiner ist als die Energieseparation der Zustände. In diesem Fall kann ein optisch induzierter Übergang angeregt werden, wenn die Symmetrie der Zustände einen solchen Übergang erlaubt (Auswahlregeln). Theoretische [155]

und experimentelle [156], [157] Untersuchungen zeigen, daß *photoneninduziertes Hopping* eine Resonanzstelle der dynamischen Leitfähigkeit, meist im FIR-Bereich, erzeugt. Unterhalb des Maximums der Resonanz wird eine ω^2 -Abhängigkeit der dynamischen Leitfähigkeit beobachtet. Photonen-induziertes Hopping kann jedoch nur unter der Grundvoraussetzung $h\nu > k_B T$ beobachtet werden.

9.3.4 Bandleitung mit Potentialfluktuationen

Bisher wurde eine strenge Trennung zwischen den beiden grundlegenden Transportmechanismen (Bandleitung delocalisierter Ladungsträger und Hopping-Leitung lokalisierter Ladungsträger) durchgeführt. Pistoulet et al. [158] berücksichtigten erstmals den Einfluß von Potentialfluktuationen auf die Bandleitung. Ihre Überlegungen beziehen sich auf stark kompensierte Halbleiter. Sie gehen davon aus, daß der Hauptbeitrag zur Leitfähigkeit des Materials von Ladungsträgern im Leitungsband (bzw. Valenzband) kommt. Die hohe Konzentration an kompensierten Störstellen führt aber zu einer beachtlichen Potentialfluktuation, die den Transportmechanismus im Leitungsband (Valenzband) beeinflusst. Sie nehmen an, daß die Energie der Leitungsbandkante E_L gemäß einer Gaußverteilung mit der Standardabweichung $\Gamma/\sqrt{2}$ fluktuiert. Die entsprechenden Potentialberge und -täler werden als kastenförmig angesehen. In jedem Abschnitt des Leitungsbandes wird normale Bandleitung angenommen, wobei je nach energetischer Lage der Bandkante mehr oder weniger viele Ladungsträger zur Verfügung stehen. Die Trennung zweier Potentialtäler durch einen Potentialberg wird als Kondensator beschrieben. Auf diese Weise wird der Leitungsmechanismus durch ein dreidimensionales RC-Netzwerk dargestellt. Die Gesamtleitfähigkeit wird durch Mittelung über die Streubreite der Leitungsbandkante berechnet. Dabei nehmen sie an, daß die Mittelung bei $g \cdot \Gamma$ abgebrochen werden kann, da besonders tiefe Potentialmulden und besonders hohe Potentialberge abgeschirmt werden. Für den Realteil der dynamischen Leitfähigkeit finden sie:

$$\text{Gl. 9.35} \quad \text{Re}(\sigma(\omega)) = \sigma_{00} \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^g \left[1 + \alpha \left[e^{2uB} - 1 \right] \frac{x e^{-uB} + \omega^2 \tau_{00}^2}{x^2 + \omega^2 \tau_{00}^2} \right] e^{-u^2 - uB} du$$

und für den Realteil der dielektrischen Funktion:

$$\text{Gl. 9.36} \quad \text{Re}(\epsilon(\omega)) = \epsilon_L \left[1 + \frac{8\alpha(1-\alpha)}{\sqrt{\pi}} \int_0^g \frac{\sinh^2(uB)}{x^2 + \omega^2 \tau_{00}^2} e^{-u^2} du \right]$$

mit den Abkürzungen:

$$B = \frac{\Gamma}{k_B T}$$

$$\text{Gl. 9.37} \quad \tau_{00} = \frac{\epsilon_0 \epsilon_L}{\sigma_{00}}$$

$$x = \alpha e^{-uB} + (1-\alpha) e^{uB}$$

σ_{00} entspricht der Leitfähigkeit, die ohne Potentialfluktuation auftreten würde. ϵ_L ist eine Konstante, die einen Beitrag zur dielektrischen Funktion der elektronischen Prozesse bei höheren Photonenenergien und der Gitterschwingungen zum Realteil der dielektrischen Funktion berücksichtigt. α ist die normierte Ausdehnung eines kastenförmigen Potentialtales.

Die Normierung ist so gewählt, daß die Summe der Ausdehnungen eines Potentialtales und eines Potentialberges immer 1 ergibt.

Obwohl dieses mehr klassische Modell keine Hopping-Leitung im ursprünglichen Sinne zugrunde legt, liefert der Ladungstransport nach diesem Modell einen positiven Beitrag zur verallgemeinerten dielektrischen Funktion, wie man es bei Hopping-Leitung findet. Aus quantenmechanischer Sicht erscheint dies jedoch nicht verwunderlich, da es an den Bandrändern, die ja einer statistischen Fluktuation unterliegen, zu einer Lokalisation der Ladungsträger kommt. Obwohl dieses Modell eine Kombination zwischen den in Kapitel 9.3.2 und Kapitel 9.3.3 beschriebenen Transportvorgängen darstellt, geht dieses Modell für den Grenzfall $\Gamma \rightarrow 0$ (keine Potentialfluktuationen) nicht in die Drude-Gleichung über. Für $\Gamma = 0$ werden σ und ϵ frequenzunabhängig. Dies entspricht nicht dem Verhalten delokalierter Ladungsträger. Das Modell kann daher für diesen Grenzfall nicht verwendet werden. Im Gegensatz zu den Hopping-Modellen aus Kapitel 9.3.3 erlaubt dieses Modell aber eine Extrapolation zu $\omega = 0$, also auch eine Berechnung der Gleichstromleitfähigkeit.

9.3.5 Bandleitung unter Einfluß einer Lokalisation – erweiterte Drude-Gleichung

Bereits das im vorangegangenen Kapitel vorgestellte Modell stellt eine Kombination aus den zwei grundlegenden Transportmechanismen (Hopping-Leitung lokalisierter Ladungsträger und Bandleitung in ausgedehnten Zuständen) dar. Es ist aber kein streng quantenmechanisches Modell und beschreibt eher eine starke Lokalisation der Ladungsträger am Bandrand und erfaßt nicht den Übergang zu delokalisierten Ladungsträgern mit abnehmender Störung.

Mott [159] und andere Autoren (siehe Referenzen in [159]) hingegen gingen von einem metallischen Leitungsmechanismus mit delokalisierten Elektronen aus und untersuchten mit den Methoden der Störungstheorie den Einfluß einer Lokalisation der Ladungsträger auf den Transportmechanismus. Für die dynamische Leitfähigkeit findet Mott eine erweiterte Drude-Formel:

$$\text{Gl. 9.38} \quad \text{Re}(\sigma(\omega)) = \text{Re}(\sigma_{\text{Drude}}(\omega)) \left\{ 1 - \frac{1}{(k_F \Lambda)^2} \left(1 - \frac{\Lambda}{L_\omega} \right) \right\}$$

Λ ist die freie Weglänge bei elastischer Streuung, k_F der Fermi-Wellenvektor und L_ω eine freie Weglänge bei inelastischer Streuung, die durch die Periodendauer des angelegten Wechselfeldes $1/\omega$ bestimmt wird. Λ ist durch die Relaxationszeit τ (inverse Streufrequenz $1/\omega_\tau$ der Drude-Gleichung) und die Fermi-Geschwindigkeit der Ladungsträger v_F gegeben:

$$\text{Gl. 9.39} \quad \Lambda = v_F \tau .$$

Quantenmechanisch entspricht Λ der Kohärenzlänge eines Blochwellenzuges. L_ω kann nach Mott über die Beziehung:

$$\text{Gl. 9.40} \quad L_\omega = \sqrt{D/\omega}$$

abgeschätzt werden, wobei der Diffusionskoeffizient D durch die Beziehung:

$$\text{Gl. 9.41} \quad D = \frac{\Lambda^2}{3\tau}$$

gegeben ist. Die Gl. 9.38 lautet mit den entsprechenden Substitutionen:

$$\text{Gl. 9.42} \quad \text{Re}(\sigma(\omega)) = \text{Re}(\sigma_{\text{Drude}}(\omega)) \left[1 - \frac{1}{(k_F v_F)^2} \frac{1}{\tau^2} + \frac{1}{(k_F v_F)^2} \frac{\sqrt{3\omega}}{\tau^{\frac{3}{2}}} \right].$$

Der sich aus der Störungsrechnung ergebende Korrekturterm ist von der Ordnung $1/(k_F \Lambda)^2$ (siehe Gl. 9.38). Mit zunehmendem Λ geht dieses Modell in die Drude-Gleichung für delokalisierte Ladungsträger über. Dies ist ein entscheidender Vorteil gegenüber dem Potentialfluktuationsmodell von Pistoulet. Bei sehr kleinen freien Weglängen hingegen (z.B. bei lokalisierten Ladungsträgern) wird der Störterm groß, und die Genauigkeit des Modells verschlechtert sich. Bei Wechselspannungen wird aber mit zunehmender Frequenz der Störterm entsprechend dem Verhältnis Λ/L_ω verringert. Die Genauigkeit dieses Modells bei kleinen elastischen freien Weglängen Λ ist daher bei höheren Frequenzen besser. Bei sehr hohen Frequenzen (FIR: $\omega > 10^{11} \text{s}^{-1}$) kann daher das Modell zumindest qualitativ auch auf stark lokalisierte Ladungsträger angewendet werden. Es stellt damit eine alternative Möglichkeit zur Beschreibung von Hoppingleitung bei sehr hohen Frequenzen dar. Im Gegensatz zum Hopping-Modell von Butcher und Morys (Gl. 9.34) ist es nicht auf eine niedrige Dichte an Hoppingzentren beschränkt.

Leider ist in diesem Modell nur der Realteil der dynamischen Leitfähigkeit analytisch gegeben. Die Berechnung des Imaginärteils bzw. der Beitrag zum Realteil der verallgemeinerten dielektrischen Funktion muß durch numerisches Lösen des Kramers-Kronig-Integrals (Gl. 9.16) erfolgen.

9.3.6 Vergleich der Modelle der dynamischen Leitfähigkeit

In diesem Abschnitt werden die zuvor vorgestellten Modelle der dynamischen Leitfähigkeit miteinander verglichen, um deren qualitative Gemeinsamkeiten und Unterschiede deutlich zu machen. In Abb. 9.1. sind die berechnete dynamische Leitfähigkeit und der Realteil der dielektrischen Funktion der einzelnen Modelle im Vergleich dargestellt.

Die Drude-Gleichung zur Beschreibung delocalisierter Ladungsträger ergibt eine bei tiefen Frequenzen konstante Leitfähigkeit. Erst oberhalb der Streufrequenz ω_c kommt es zu einem Abfall der Leitfähigkeit mit zunehmender Frequenz. Charakteristisch für delokalisierte Ladungsträger ist der negative Beitrag zum Realteil der verallgemeinerten dielektrischen Funktion.

Dazu invers ist das Verhalten bei Hopping-Leitung. Das Hopping-Modell zeigt eine mit der Frequenz zunehmende Leitfähigkeit, die erst nahe der inversen Relaxationszeit $1/\tau_0$ in einen frequenzunabhängigen Wert übergeht. Die Hopping-Leitung liefert einen positiven Beitrag zum Realteil der verallgemeinerten dielektrischen Funktion.

Die erweiterte Drude-Gleichung zeigt gut die Kombination beider Prozesse. Bei niedrigen Frequenzen ist eine mit der Frequenz zunehmende Leitfähigkeit zu beobachten. Das Verhalten entspricht hier fast dem des Hopping-Modells. Im Gegensatz zum Hopping-Modell mündet aber die modifizierte Drude-Gleichung in eine endliche Gleichstromleitfähigkeit. Bei hohen Frequenzen hingegen zeigt die modifizierte Drude-Gleichung den charakteristischen Abfall der Leitfähigkeit mit der Frequenz wie bei delokalisierten Ladungsträgern. Der Beitrag zum Realteil der verallgemeinerten dielektrischen Funktion ist ebenfalls von beiden Prozessen überlagert. Je nach Stärke der zugrunde gelegten Lokalisation kann es zu einem negativen oder positiven Beitrag kommen. Dabei überwiegen grundsätzlich bei niedrigen Frequenzen eher die Eigenschaften der lokalisierten Ladungsträger und bei hohen Frequenzen die Eigenschaften

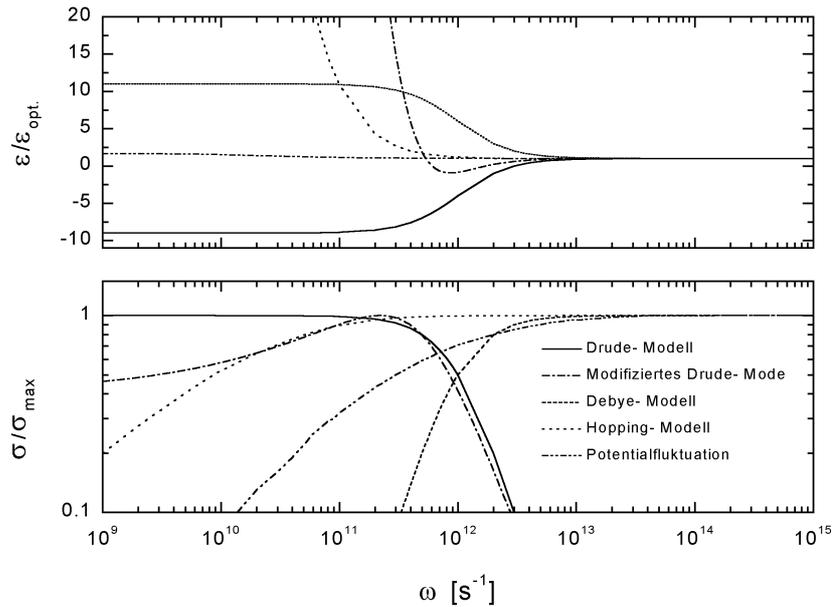


Abb. 9.1: Qualitativer Vergleich der dynamischen Leitfähigkeitsmodelle. Erklärung siehe Text.

der delokalisierten Ladungsträger.

Das Modell von Pistoulet für den Einfluß von Potentialfluktuationen zeigt qualitativ das Verhalten des Hopping-Modells. Es mündet aber in einer endlichen Gleichstromleitfähigkeit und zeigt einen nur gering positiven Beitrag zum Realteil der verallgemeinerten dielektrischen Funktion.

Zum Vergleich ist auch das klassische Debye-Modell in Abb. 9.1 mit aufgenommen worden.

9.4 Reflexionsspektren

Für die meisten der hier untersuchten Proben lagen zwar bereits Reflexionsspektren vor [104], jedoch waren diese ursprünglich für die Untersuchung von Gitterschwingungen aufgenommen worden und beinhalteten gewisse Meßunsicherheiten am langwelligen Ende des Spektrums. Um eine verlässliche Analyse der optischen Leitfähigkeit und der verallgemeinerten dielektrischen Funktion durchführen zu können, war es notwendig, im Rahmen dieser Arbeit die Reflexion aller bisher untersuchten Proben erneut im FIR-Bereich zu vermessen. Dabei wurde dem langwelligen Ende des Meßbereichs (Wellenlänge bis 1mm!) besondere Beachtung geschenkt. Bei diesen Wellenlängen traten besondere Probleme auf:

1. Der minimale Strahldurchmesser des Meßlichtes ist durch Beugungserscheinungen an den Aperturblenden begrenzt.
2. Die verwendeten Probenblenden sind bei diesen Wellenlängen nicht mehr vollständig absorbierend, so daß ein zusätzlicher Reflexionsanteil von den Blenden die Messung beeinflusst.

Von Borkarbid, reinem β -rhomboedrischen Bor und den Verbindungen der Strukturgruppe des YB_{66} standen Proben mit ausreichender Größe zur Verfügung, so daß trotz großer Aperturblende (Durchmesser 5mm) Probenblenden verwendet werden konnten, die größer als die Aperturblende des Spektrometers waren und damit Einflüsse der Probenblenden