

Особенности низкотемпературной теплопроводности высокообогащенного и натурального германия

© А.П. Жернов, Д.А. Жернов

Российский научный центр "Курчатовский институт",
123182 Москва, Россия
Институт сверхпроводимости и физики твердого тела,
Москва, Россия

(Поступила в Редакцию 10 февраля 1998 г.)

Анализируются экспериментальные данные по теплопроводности $K(T)$ натурального и высокообогащенного (99.99%) кристаллов германия Ge^{70} со шлифованной и полированной поверхностями в интервале температур $\sim 2-8$ К. Во всех образцах в интервале от 2 до 4.0 К доминирует граничный механизм рассеяния. При повышении температуры в высокообогащенных образцах переносу фононов начинают "способствовать" N -процессы, и поведение $K(T)$ соответствует пуазейлевскому вязкому течению фононного газа. В изотопически неидеальных образцах существенным образом проявляется изотопический механизм рассеяния.

Недавно в группе В.И. Ожогина синтезированы химически чистые, совершенные и высокообогащенные кристаллы германия Ge^{70} (с обогащением 99.99%). Начато изучение различных их свойств. При этом проведено уже экспериментальное исследование теплопроводности $K(T)$ как на высокообогащенном образце, так и на образцах Ge^{70} с обогащением 96% и натуральном образце в широком интервале температур [1,2]. Соответствующие данные получены как для кристаллов с тонкой полировкой поверхности, так и для кристаллов с более грубо обработанной поверхностью методом шлифовки (см. детали в [2]). В результате мы обладаем уникальным экспериментальным материалом для более детального изучения кинетических процессов в регулярных системах и роли в кинетике изотопического беспорядка.

В настоящей работе анализируются экспериментальные данные [1,2], полученные для области гелиевых температур от 2 до 8 К. Во-первых, рассматриваются влияние уровня обработки поверхности образцов и возможная роль сильной дисперсии акустического фононного спектра германия в натуральных образцах Ge. Во-вторых, для случая высокообогащенных и совершенных образцов обсуждается возможность проявления предсказанного Р.Н. Гуржи эффекта. Суть этого эффекта в том, что существующее в потоке фононов перемещение квазичастиц может в определенных условиях рассматриваться как некоторое случайное блуждание (аналогичное пуазейлевскому течению жидкости [3,4]). Дело в том, что при весьма низких температурах для акустической фононной моды с частотой ω и поляризацией j скорость релаксации из-за ангармонических процессов с перебором (U), в которых непременно участвуют коротковолновые фононы с большими импульсами, экспоненциально мала, а именно

$$1/\tau_U^{(j)} \sim \omega^2 T \exp(-B_j/T).$$

В то же время скорости релаксации для продольных (l) и поперечных (t) мод из-за нормальных (N) процессов,

в которых могут участвовать любые фононы, в том числе только длинноволновые, описываются степенными температурными законами вида

$$1/\tau_N^{(l)} \sim \omega T^4, \quad 1/\tau_N^{(t)} \sim \omega^2 T^3$$

(см., например, [4,5]). Поэтому для соответствующих длин пробегов существует, как известно, температурный интервал, такой, что в нем выполняется неравенство

$$l_N \ll d \ll l_U,$$

где d — характерный размер образца. В указанном интервале в случае весьма совершенных моноизотопических кристаллов влияние статистических дефектов и изотопического беспорядка на структуру неравновесной функции распределения завуалировано за счет N -процессов. При этом резистивными являются только процессы рассеяния на стенках образца. Однако за счет более частых нерезистивных N -процессов эффективно возрастает транспортная длина свободного пробега фонона как $\sim d^2/l_N$ [3] (см. также [4–6]).

Л.П. Межов-Деглин провел измерения теплопроводности на весьма совершенных и моноизотопических образцах твердого гелия He^4 и обнаружил предсказанные Р.Н. Гуржи особенности в температурном поведении $K(T)$ в области слева от максимума [7] (см. также [8]). Но, кроме твердого гелия, в других материалах, насколько нам известно, не удалось надежно выявить область гидродинамического режима.

1. Общие соотношения

Выражение для теплопроводности решетки K представим в стандартной форме [9]

$$K(T) = \sum_{j=1}^3 \frac{k_B}{4\pi^2 v_j} \left(\frac{k_B T}{h} \right)^3 \int_0^{z_{D,j}} dz \tau_j(z) \frac{z^4 e^z}{(e^z - 1)^2}. \quad (1)$$

Здесь $z_{D,j} = \frac{\hbar\Theta_j}{k_B T}$ и $\tau_j(z)$ — соответственно приведенная дебаевская температура и время релаксации фононной моды с поляризационным индексом j и групповой скоростью v_j .

Будем рассматривать только процессы граничного рассеяния (т. е. область весьма низких температур). В такой ситуации величина τ представляет собой релаксационное время, обусловленное граничным рассеянием. Для случая диффузного граничного рассеяния и бесконечно длинного образца $\tau_j^{(b,c)} = l_c/v_j$, где l_c — длина свободного пробега фононной моды (или длина Казимира [10]). Для образцов с поперечным прямоугольным сечением S длина Казимира определяется как $l_c = 1.12\sqrt{S}$.

Влияние тонкой полировки поверхности, а также ее шлифовки (случай более грубой обработки) на температурную зависимость теплопроводности можно качественно рассмотреть в рамках теории Займана–Соффера [9,11]. В этой теории фигурирует время релаксации

$$\tau_j^{(b)} = \frac{l_c}{v_j} \frac{1 + P(k_j, \phi)}{1 - P(k_j, \phi)},$$

$$P(k_j, \phi) = \exp\left[-(2k_j\eta \cos(\phi))^2\right]. \quad (2)$$

Здесь P — фактор зеркальности, который для j -моды зависит от величины фононного волнового вектора k_j и его ориентации, т. е. угла ϕ ; η — параметр, характеризующий уровень полировки поверхности. Отметим, что $k = \omega/v_j$ и $\phi = \pi/2 - \Theta$, где Θ — угол, образованный фононным волновым вектором и единичным вектором вдоль направления температурного градиента.

Подставим (2) в (1). С учетом вышесказанного получаем

$$K(T) = \sum_{j=1}^3 \frac{k_B l_c}{2\pi^2 v_j^2} \left(\frac{k_B T}{\hbar}\right)^3 \times \int_0^{z_{D,j}} dx \frac{z^4 e^z}{(e^z - 1)^2} \int_0^1 dy y^2 \coth Z_j(y). \quad (3)$$

При этом фактор Z_j определяется как

$$Z_j(y) = \begin{cases} \frac{4k_B^2}{2v_j^2 \hbar^2} \eta^2 z^2 T^2 (1 - y^2), & \coth Z_j(y) \leq r, \\ ry^2, & \coth Z_j(y) > r. \end{cases} \quad (4)$$

Здесь $y = \cos \Theta$; параметр $r = l_{\max}/l_c$, где l_{\max} — линейный размер образца.

Обратим внимание на то, что величина Z_j не только чувствительна к уровню полировки поверхности образца, т. е. к величине η , но также зависит и от температуры T . Отметим также, что если $y \approx 1$, т. е. фононы ”перемещаются” параллельно оси образца, то интеграл по y расходится. Реально длина образца является конечной. Это обстоятельство учитывается в теории Займана–Соффера. И когда величина $F(y) = \coth Z_j(y)$ превышает r , $F(y)$ заменяется на ry^2 .

2. Результаты и обсуждение

В данной работе с использованием соотношений (3), (4) в интервале $T \approx 2-8$ К были проанализированы низкотемпературные экспериментальные данные для теплопроводности натуральных и высокообогащенных по изотопическому составу образцов (с обогащением 99.99%). Как отмечалось, они были получены для случаев тонкой полировки поверхности и для более грубо обработанной поверхности методом шлифовки [1,2]. Так что имеются четыре набора экспериментальных кривых. При этом параметр изотопического беспорядка

$$g = \frac{\sum c_i M_i^2 - (\sum c_i M_i)^2}{(\sum c_i M_i)^2}$$

(где c_i и M_i — концентрация и масса изотопа сорта i) соответственно равен $5.87 \cdot 10^{-4}$ и $8.18 \cdot 10^{-8}$.

Единственным подгоночным параметром теории является величина η . Для групповых скоростей поперечных и продольных акустических фононных мод принимались стандартные значения, а именно $v_t = 3.16 \cdot 10^5$ см/с, $v_l = 5.21 \cdot 10^5$ см/с. При определении длины Казимира l_c и параметра r использовались конкретные параметры образцов (см. [1,2]). Соответствующие значения приводятся в таблице.

Геометрические размеры образцов l_x, l_y, l_z и значения параметра теории Займана–Соффера η

Образец	l_x, l_y, l_z, mm	η, A
$n(s)$	$2.33 \times 2.3 \times 40.7$	65
$n(p)$	$2.4 \times 2.35 \times 40.8$	36
$h(s)$	$2.2 \times 2.5 \times 40.4$	65–75
$h(p)$	$2.44 \times 2.13 \times 40.4$	28

Примечание. Значения параметра изотопического беспорядка g для натурального (n) и высокообогащенного (h) образцов соответственно равны $5.87 \cdot 10^{-4}$ и $8.18 \cdot 10^{-8}$. Значки s и p маркируют соответственно шлифованные и полированные образцы.

Расчетные теоретические кривые для различных значений параметра η , характеризующего уровень обработки поверхности, и экспериментальные данные в виде точек для четырех образцов представлены на рис. 1, 2.

Прокомментируем рис. 1 и 2. Непосредственно видно, что фактор η существенным образом уменьшается, когда уровень обработки поверхности возрастает. В случае тонкой полировки образцам натуральным и высокообогащенным соответствуют значения $\eta \approx 36$ и 28. Для образцов с обработкой поверхности методом шлифовки значения параметра η также близкие, но $\eta \approx 65$ (см. таблицу).

Отметим, что согласие между теорией и экспериментом для натуральных образцов разумное в интервале $T \approx 2-4$ К. Но при $T \geq 4$ К расчетные кривые лежат выше, чем экспериментальные точки (см. также [12–14]). Для высокообогащенных образцов согласие между теорией и экспериментом также имеет место в температур-

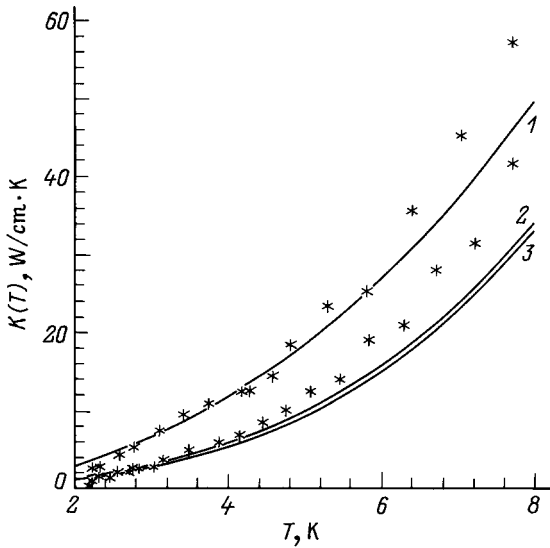


Рис. 1. Зависимость K от T . Случай высокообогащенных кристаллов. Теоретические кривые соответствуют образцам с полированной (1) и шлифованной (2,3) поверхностями. Параметр зеркальности η равен 28 (1), 65 (2) и 75 (3). Экспериментальные точки заимствованы из [2].

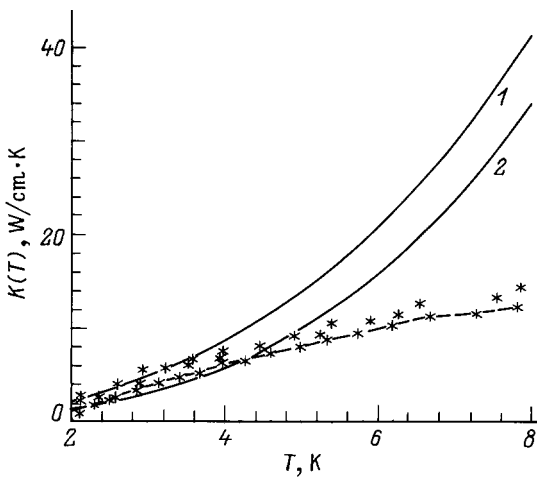


Рис. 2. Зависимость K от T . Случай натуральных образцов. Теоретические кривые соответствуют образцам с полированной (1) и шлифованной (2) поверхностями. Параметр зеркальности η равен 36 (1) и 65 (2). Экспериментальные точки заимствованы из [2]. Для шлифованной поверхности они соединены штриховой линией.

ном интервале $\sim 2-4$ К. Когда же температура возрастает ($T \sim 4-8$ К), теоретические значения оказываются меньше, чем экспериментальные.

Обсудим эти результаты. В простейшем приближении

$$K(T) = \frac{1}{3} C_v(T) v^2 \tau_s, \quad \tau_s^{-1} = \sum_i (\tau^{(i)})^{-1}. \quad (5)$$

Здесь C_v — фоннная теплоемкость, v — средняя скорость фононов, τ_s — суммарное время релаксации.

В области очень низких температур для высокообогащенных образцов $\tau_s = \tau^{(b,c)}$. Затем примем во внимание, что для германия эффективная дебаевская температура $\Theta(T)$ имеет резко выраженный минимум при 25 К (см., например, [10,11]) и

$$C_v(T) \sim \Theta^{-3}(T). \quad (6)$$

Тогда, согласно (5) и (6), можно качественно объяснить специфическое поведение $K(T)$ ("положительное" отклонение при $T > 4$ К) как результат проявления мягких поперечных мод. Однако конкретные оценки с использованием результатов [15,16] не позволяют даже грубо количественно описать наблюдаемое отклонение.

Как отмечалось выше, в литературе обсуждается вопрос о гидродинамическом режиме течения фононов. При этом если данный режим реализуется, то он приводит к существенному возрастанию теплопроводности с левой стороны от температурного максимума. В настоящее время имеется единственное экспериментальное наблюдение такого режима в кристаллах твердого гелия [7], а именно при самых низких температурах ($T < 0.6$ К) в гелии средний пробег фононов, определяемый ангармоническими столкновениями, оказывается меньше, чем диаметр образца. Тогда $K(T) \sim C_v \sim T^3$. В интервале же 0.6–1 К выполняется условие $l_N \ll d, l_R l_N \gg d^2$, где l_N и l_R — длины пробега, отвечающие нормальным и резистивным процессам. При этом $l_{ef} = 0.1 d^2 / l_N$.

В этой ситуации, согласно эксперименту и простым теоретическим оценкам, слева от максимума $K(T) \sim C_v l_N \sim T^8$.

Отметим также, что в [7] установлены критерии, при выполнении которых движение фононного газа под действием приложенного градиента температуры можно рассматривать как пуазейлевское вязкое течение. Требуется, чтобы

$$l_R / l_N \geq 10^3, \quad d / l_N \geq 30.$$

В связи с вышесказанным можно качественно объяснить специфическое "положительное" отклонение экспериментальных значений $K(T)$ от теоретических величин при $T > 4$ К в Ge^{70} как результат проявления в совершенных высокообогащенных образцах гидродинамического режима. Заметим, что уровень обработки поверхности (не обсуждавшийся в [7]) влияет в некоторой степени на температурную зависимость теплопроводности. Конкретные оценки требуют знания величин длин пробега, обусловленных нормальными ангармоническими процессами. Кроме того, необходимо учесть эффекты, связанные с фононной фокусировкой [17].

Далее, согласно (5), для натуральных по изотопическому составу кристаллов

$$K(T) \approx \frac{1}{3} C_v(T) v^2 \tau^{(b)} \left(1 - \frac{\tau^{(b)}}{\tau^{(is)}} \right),$$

где $\tau^{(is)}$ — релаксационное время, обусловленное изотопическим беспорядком. Отсюда видно, что "отрицатель-

ное” отклонение для $K(T)$ при $T \geq 4$ К связано с преобладанием в нашем анализе сильным изотопическим фоновым рассеянием из-за мягких мод (см. также [5,6]).

Резюмируем сказанное. В области температур 2–4 К изменение поведения теплопроводности в зависимости от меры зеркальности поверхности можно качественно описать в рамках теории Займана–Соффера. В совершенных высокообогащенных образцах при температурах $T \geq 4$ К наблюдается отклонение от кнудсеновского течения потока фононов, когда большинство столкновений происходит со стенками. Возникающие отклонения могут быть объяснены тем, что проявляется режим вязкого пуазейлевского течения. В натуральных образцах Ge при $T \geq 4$ К начинается существенным образом проявляться изотопическое рассеяние.

Отметим, что в условиях пуазейлевского течения становится возможным существование второго звука — колебаний плотности тепловых возбуждений. Подобный эффект наблюдался в гелии (см., например, [8]). Интересно было бы исследовать второй звук и в Ge.

Список литературы

- [1] В.И. Ожогин, А.В. Инюшкин, А.Н. Толденков, Г.Э. Попов, Ю. Холлер, К. Ито. Письма в ЖЭТФ. **63**, 463 (1996).
- [2] M. Asen-Palmer, K. Bartkowsky, E. Gmelin, M. Cardona, A.P. Zhernov, A.V. Inuiskin, A.V. Taldenkov, V.I. Oghogin, K.M. Itoh, E.E. Haller. Phys. Rev. **B 56**, 9431 (1997).
- [3] Р.Н. Гуржи. ЖЭТФ **46**, 719 (1965); УФН **94**, 689 (1968).
- [4] Е.М. Лившиц, Л.П. Питаевский. Физическая кинетика. Наука, М. (1979).
- [5] В.Л. Берман. Теплопроводность твердых тел. Мир, М. (1979).
- [6] В.Л. Гуревич. Кинетика фоновых систем. Наука, М. (1980).
- [7] Л.П. Межов-Деглин. ЖЭТФ **49**, 66 (1965); ЖЭТФ **71**, 1453 (1976); ФТТ **22**, 1748 (1980).
- [8] Б.Н. Есельсон, В.Н. Григорьев, В.Г. Иванцов, Э.Я. Рудаковский, Д.Г. Саникидзе, И.А. Сербин. Растворы квантовых жидкостей. Наука, М. (1973).
- [9] J.M. Zaiman. Electrons and Phonons. Oxford, London (1960). P. 456.
- [10] H.B. Casimir. Physica **5**, 495 (1938).
- [11] S.B. Soffer. J. Appl. Phys. **38**, 1710 (1967).
- [12] D.R. Frankl, G.J. Campisi. In: Proc. Int. Conf. on Phonon Scattering in Solids (Paris, 1972) / Ed. H.J. Albany. La Documentation Francaise, Paris (1972). P. 88–93.
- [13] W.S. Hust, D.R. Frankl. Phys. Rev. **186**, 801 (1969).
- [14] W.S. Hust, D.R. Frankl. Phys. Rev. **B 19**, 3133 (1979).
- [15] A.D. Zdetsis, C.S. Wang. Phys. Rev. **B 19**, 2999 (1979).
- [16] Resul Eryigit, Irving P. Herman. Phys. Rev. **B 53**, 7775 (1996).
- [17] A.K. Mc Curdy, H.J. Maris, C. Elbaum. Phys. Rev. **B 2**, 4077 (1970).