

## ОСОБЕННОСТИ НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЙ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ ВЫСОКООБОГАЩЕННОГО И НАТУРАЛЬНОГО ГЕРМАНИЯ

А. П. Жернов\*, Д. А. Жернов

Российский научный центр «Курчатовский институт»  
123182, Москва, Россия

Поступила в редакцию 10 февраля 1998 г.

Анализируются в рамках теории Займана–Соффера экспериментальные данные по теплопроводности  $K(T)$  кристаллов германия натурального и высокообогащенного (99.99%)  $^{70}\text{Ge}$  со шлифованной и полированной поверхностями в интервале температур  $\sim 1.5\text{--}8\text{ К}$ . Во всех образцах в интервале  $\sim 1.5\text{--}4\text{ К}$  доминирует стандартный граничный механизм рассеяния. При повышении температуры в натуральном германии проявляется изотопический механизм рассеяния. В высокообогащенных образцах теоретические значения  $K(T)$  оказываются существенно меньше, чем экспериментальные. Высказывается предположение, что в этом случае проявляется режим пуазейлевского вязкого течения фононного газа.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Недавно в группе В. И. Ожогина синтезированы химически чистые, совершенные кристаллы германия  $^{70}\text{Ge}$  с обогащением 99.99%. Начато изучение различных их свойств. При этом проведено уже экспериментальное исследование теплопроводности  $K(T)$  в широком интервале температур на образцах различного состава, включая высокообогащенный  $^{70}\text{Ge}$  и натуральный [1, 2]. Соответствующие данные получены для кристаллов как с тонко полированной поверхностью, так и поверхностью, обработанной относительно более грубо 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 1.5 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, обсуждается для случая высокообогащенных и совершенных образцов возможность проявления предсказанного Гуржи эффекта [3]. Суть его в том, что существующее в потоке фононов перемещение квазичастиц может в определенных условиях рассматриваться как некоторое случайное блуждание, аналогичное пуазейлевскому вязкому течению жидкости [3, 4]. При этом при весьма низких температурах для акустической фононной моды с частотой  $\omega$  и поляризацией  $j$  скорость релаксации из-за ангармонических процессов с перебросом ( $U$ ), в которых непременно участвуют коротковолновые фононы с большими импульсами (сравнимыми с вектором обратной решетки), экспоненциально мала,

\*E-mail: zhernov@kurm.polyn.kiae.su

а именно

$$\frac{1}{\tau_U^{(j)}} \propto \omega^2 T \exp\left(-\frac{B_j}{T}\right).$$

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

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

(см., например, [4, 5]). Поэтому для соответствующих средних эффективных длин пробегов может существовать температурный интервал, в котором выполняется неравенство  $l_N \ll d \ll l_U$ , где  $d$  — характерный линейный размер образца. В таком интервале в случае весьма совершенных моноизотопических кристаллов влияние статических дефектов и изотопического беспорядка на структуру неравновесной функции распределения фононов 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 фононов, как  $\sim d^2/l_N$  [3] (см. также [4–6]).

Межов-Деглин [7, 8] исследовал теплопроводность весьма совершенных и моноизотопических образцов твердого  $^4\text{He}$  и четко обнаружил предсказанные Гуржи [3] особенности в температурном поведении теплопроводности  $K(T)$  в области слева от максимума (см. также [9]). Кроме того, вопрос о проявлении гидродинамического режима анализировался в случае кристаллов  $\text{NaF}$  и  $\text{Bi}$ , в которых отсутствует изотопический механизм рассеяния. Проявление названного режима в  $\text{NaF}$  и  $\text{Bi}$  менее выраженное по сравнению с твердым гелием. Обсуждение соответствующих результатов см., например, в [5].

## 2. ОСНОВНЫЕ СООТНОШЕНИЯ

Ограничимся областью весьма низких температур. В такой ситуации время релаксации  $\tau_j$  фононной моды с поляризационным индексом  $j$  и групповой скоростью  $v_j$  обусловлено в первую очередь 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 будем рассматривать в рамках теории Займана–Соффера [11, 12]. В ней учитывается как диффузное, так и зеркальное рассеяние фононов на границах образца. В этой теории фигурирует время релаксации

$$\tau_j^{(b)} = \frac{l_C}{v_j} \frac{1 + P(k_j, \phi)}{1 - P(k_j, \phi)}, \quad P(k_j, \phi) = \exp\left[-(2k_j\eta \cos \phi)^2\right]. \quad (1)$$

Здесь  $P$  — фактор зеркальности, который для  $j$ -моды зависит от величины фонованного волнового вектора  $k_j$  и его ориентации, т. е. угла  $\phi$ . Фактор шероховатости  $\eta$  характеризует уровень полировки поверхности. Отметим, что  $k_j = \omega/v_j$  и  $\phi = \pi/2 - \theta$ , где  $\theta$  — угол, образованный фонованым волновым вектором и единичным вектором вдоль направления температурного градиента.

Можно показать, что выражение для теплопроводности  $K$  решетки определяется как (см. [13])

$$K(T) = \sum_{j=1}^3 \frac{k_B l_C}{2\pi^2 v_j^2} \left( \frac{k_B T}{\hbar} \right)^3 \int_0^{z_{Dj}} dz \frac{z^4 e^z}{(e^z - 1)^2} \int_0^1 dy y^2 \operatorname{cth} Z_j(y). \quad (2)$$

Здесь  $z_{Dj} = \Theta_j/T$  — приведенная дебаевская температура. Фактор  $Z_j$  задается соотношением

$$Z_j(y) = \begin{cases} \frac{4k_B^2}{2v_j^2 \hbar^2} \eta^2 z^2 T^2 (1 - y^2), & \operatorname{cth} Z_j(y) \leq r, \\ ry^2, & \operatorname{cth} Z_j(y) > r. \end{cases} \quad (3)$$

При этом  $y = \cos \theta$ ; параметр  $r = l_{max}/l_C$ , где  $l_{max}$  — линейный размер образца (его длина). Ниже постоянные Больцмана  $k_B$  и Планка  $\hbar$  полагаются равными единице.

Обратим внимание на то, что значение  $Z_j$  чувствительно не только к уровню полировки поверхности образца, т. е. к величине  $\eta$ , 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  $F(y) = \operatorname{cth} Z_j(y)$  превышает  $r$ , то  $F(y)$  заменяется на  $ry^2$ .

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ДИСКУССИЯ

В данной работе были проанализированы с использованием соотношений (1)–(3) в интервале  $T \approx 1.5\text{--}8$  К низкотемпературные экспериментальные данные для теплопроводности натуральных и высокообогащенных по изотопическому составу образцов (с обогащением 99.99%). Как отмечалось, они получены для случаев тонкой полировки поверхности и поверхности, обработанной методом шлифовки [1, 2]. Так что имеются четыре набора экспериментальных кривых.

Единственным подгоночным параметром теории является величина  $\eta$ . Что касается параметра изотопического беспорядка

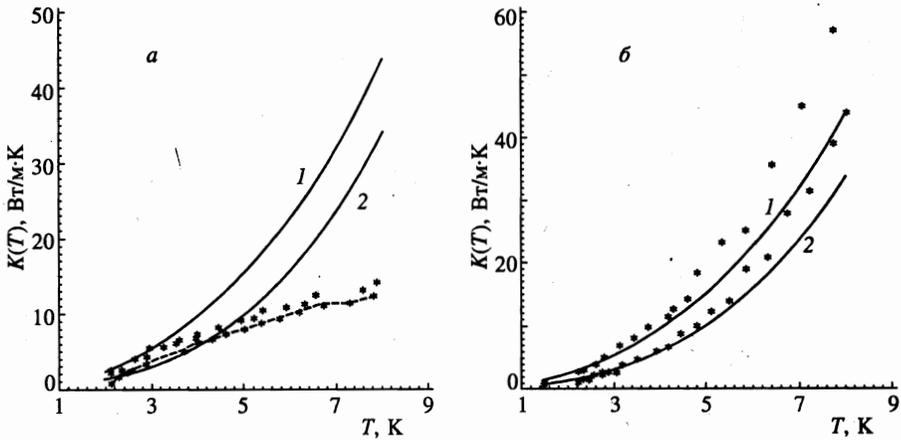
$$g = \frac{\sum c_i M_i^2 - (\sum c_i M_i)^2}{(\sum c_i M_i)^2},$$

где  $c_i$  и  $M_i$  — концентрация и масса изотопа сорта  $i$ , то он равен  $5.87 \cdot 10^{-4}$  и  $8.18 \cdot 10^{-8}$  соответственно для случаев натурального и высокообогащенного кристаллов. Для групповых скоростей поперечных и продольных акустических фонованых 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 геометрические

**Геометрические размеры образцов  $l_x, l_y, l_z$  и значения параметра  $\eta$  теории Займана-Соффера**

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

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



Температурные зависимости теплопроводности в случаях натуральных образцов (*а*) и высокообогащенных кристаллов (*б*). Теоретические кривые 1 и 2 соответствуют образцам с полированной и шлифованной поверхностями. Параметр зеркальности  $\eta = 36$  (кривая 1), 65 (кривая 2). Экспериментальные точки заимствованы из [2] (для шлифованной поверхности они соединены пунктирной линией на рис. *а*)

размеры образцов (см. [1, 2]). Отметим, что сечение их имеет прямоугольную форму. Соответствующие данные приводятся в таблице.

Расчетные теоретические кривые для различных значений параметра  $\eta$ , характеризующего уровень обработки поверхности, и экспериментальные данные в виде точек для четырех образцов представлены на рисунке.

Прокомментируем рисунок. Непосредственно видно, что фактор  $\eta$  существенным образом уменьшается, когда уровень обработки поверхности возрастает. В случае тонкой полировки натуральным и высокообогащенным образцам соответствуют значения  $\eta \approx 36$ . Для образцов с обработкой поверхности методом шлифовки значения параметра  $\eta$  также близкие, но  $\eta \approx 65-75$  (см. таблицу).

Отметим, что для натуральных образцов имеет место разумное согласие между теорией и экспериментом в температурном интервале  $\sim 1.5-4$  К. При  $T \geq 4$  К теоретические кривые  $K(T)$  лежат существенно выше, чем экспериментальные точки (см.

также [13–15]). Для высокообогащенных образцов согласие с теорией тоже разумное в интервале  $T \approx 1.5\text{--}4$  К. Но, при  $T \geq 4$  К расчетные значения  $K(T)$  заметно меньше, чем экспериментальные величины.

Прокомментируем эти результаты. В простейшем приближении

$$K(T) = \frac{1}{3} C_L(T) v_a^2 \tau_s, \quad \tau_s^{-1} = \sum_i (\tau^{(i)})^{-1}. \quad (4)$$

Здесь  $C_L$  — фононная теплоемкость и  $v_a$  — средняя скорость фононов. Через  $\tau_s$  обозначено суммарное время релаксации, обратная величина которого равна сумме обратных времен релаксации различных процессов.

Согласно (4), для натуральных по изотопическому составу кристаллов

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

где  $\tau^{(is)}$  — релаксационное время, обусловленное изотопическим беспорядком. Конкретные оценки показывают, что «отрицательное» отклонение для  $K(T)$  при  $T \geq 4$  К связано с пренебрежением в нашем анализе изотопическим фононным рассеянием в условиях наличия мягких поперечных мод (см. также [5, 6]).

Для высокообогащенных образцов  $\tau_s = \tau^{(b,c)}$ . Вместе с тем для германия эффективная дебаевская температура  $\Theta(T)$  (из-за мягких  $t$ -мод) имеет резко выраженный минимум при 25 К (см., например, [16, 17]). Поскольку

$$C_L(T) \propto \Theta^{-3}(T), \quad (5)$$

с учетом (4) и (5) можно качественно объяснить специфическое поведение  $K(T)$  — «положительное» отклонение при  $T > 4$  К как результат проявления мягких  $t$ -мод. Однако конкретные оценки с использованием результатов работ [16, 17] не позволяют даже грубо количественно описать наблюдаемое отклонение.

Как отмечалось во Введении, в литературе обсуждается вопрос о гидродинамическом вязком 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 проявление такого режима четко наблюдалось в кристаллах твердого гелия (см. [7, 8], а также монографию [9]). А именно, при самых низких температурах  $T < 0.6$  К в  $^4\text{He}$  средний пробег фононов, определяемый ангармоническими столкновениями, оказывается меньше, чем диаметр образца. В диапазоне 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  $l_{eff} = 0.1 d^2 / l_N$ . В такой ситуации согласно эксперименту и простым теоретическим оценкам слева от максимума  $K(T) \propto C_L l_N \propto T^8$ .

Отметим еще, что в [18] установлены критерии, при выполнении которых движение фононного газа под действием приложенного градиента температуры можно рассматривать как пуазейлевское вязкое течение. Требуется, чтобы

$$l_R / l_N \geq 10^3, \quad d / l_N \geq 30. \quad (6)$$

В связи со сказанным выше можно качественно объяснить специфическое «положительное» отклонение экспериментальных значений  $K(T)$  от теоретических величин

при  $T > 4$  К в  $^{70}\text{Ge}$  как результат проявления в совершенных высокообогащенных образцах вязкого пуазейлевского течения. Заметим, что уровень обработки поверхности существенно влияет на величину теплопроводности. Конкретные оценки требуют знания величин длин пробегов, обусловленных ангармоническими процессами. Кроме того, необходимо учесть эффекты, связанные с фононной фокусировкой [18].

Для нахождения длин пробегов мы воспользовались результатами теории теплопроводности кристаллической решетки Каллавэя (см., например, [5]). В этой теории учитывается вклад в теплопроводность от  $N$ - и от  $U$ -процессов. При этом, поскольку фононный спектр германия существенно анизотропный, учитывались вклады в теплопроводность в виде суммы вкладов от  $t$ - и  $l$ -мод. Мы выбрали  $\tau_N$  и  $\tau_U$  в стандартной форме:

$$\frac{1}{\tau_N^{(t)}} = A_N^{(t)} \omega T^4, \quad \frac{1}{\tau_N^{(l)}} = A_N^{(l)} \omega^2 T^3,$$

$$\frac{1}{\tau_U^{(t,l)}} = A_U^{(t,l)} \omega^2 T \exp\left(-\frac{B^{(t,l)}}{T}\right).$$

В [2] в результате оценок и из сравнения теоретических и экспериментальных результатов было найдено, что

$$A_N^{(t)} = 2 \cdot 10^{-13} \text{ К}^{-4}, \quad A_N^{(l)} = 2 \cdot 10^{-21} \text{ с} \cdot \text{К}^{-3},$$

$$A_U^{(t)} = 1 \cdot 10^{-19} \text{ К}^{-4}, \quad A_U^{(l)} = 5 \cdot 10^{-19} \text{ с} \cdot \text{К}^{-3}, \quad B^{(t)} = 55 \text{ К}, \quad B^{(l)} = 180 \text{ К}. \quad (7)$$

Обратим внимание на то, что в рассматриваемой модели теплопроводность германия представляет собой суперпозицию двух пиков, отвечающих  $t$ - и  $l$ -модам. Интересно, что для высокообогащенного образца (99.99%) непосредственно в максимуме при  $T_m \approx 16.5$  К основной вклад в  $K(T)$  оказался связанным с  $l$ -модами. Для образца же с обогащением 96% в максимуме определяющий вклад в  $K(T)$  обусловлен  $t$ -модами. Влияние  $l$ -мод оказывается отчасти завуалированным из-за изотопического рассеяния. Этим обстоятельством объясняется сдвиг максимума на несколько градусов ( $\sim 4$  К) в сторону меньших температур для образца с обогащением 96% по сравнению с кривыми для высокообогащенного (99.99%) образца. При этом в случае натурального образца в условиях достаточно сильного изотопического рассеяния роль  $l$ -мод несколько возрастает относительно  $t$ -мод и максимум на несколько долей градуса смещается в сторону больших температур.

Определим теперь длину свободного пробега  $l_i$  для фононной моды типа  $i$  ( $i = l, t$ ). Имеем

$$\frac{1}{l_i} = \int d\mathbf{q} \frac{C_q}{v_q l_q^{(i)}} \int d\mathbf{q} \frac{C_q}{v_q}. \quad (8)$$

Здесь  $C_q$  — парциальный вклад в решеточную теплоемкость от  $q$ -моды,  $v_q$  — ее групповая скорость.

В рассматриваемом температурном интервале с определенными выше параметрами (7) и с использованием (8) оказывается, что для поперечных мод неравенство  $l_N \ll \ll d \ll l_U$  не удовлетворяется. Что касается продольных мод, то ситуация следующая.

Можно показать, что  $l_N^{(l)} \ll l_U^{(l)}$ . При этом длины пробегов существенно различаются. Вместе с тем имеем

$$\frac{l_C}{l_N} \approx \frac{5 \cdot 10^8 T^5}{T_{Dl}^5},$$

где  $T_{Dl} = 330$  К — дебаевская температура для продольных мод. Таким образом, при  $T > 4$  К величина  $l_C$  больше, чем  $l_N$ , но того же порядка. И вообще говоря, условие (6) не выполнено.

Таким образом, в рассматриваемом случае нет развитого гидродинамического режима, но связанные с ним эффекты должны в определенной степени проявляться для продольных мод.

Подчеркнем, что, когда поверхность образцов полируется,  $l_C$  возрастает. В простейшем случае возникающее изменение времени релаксации можно описать как [10]

$$\frac{1}{\tau_b} = \frac{v_a}{l_C} \frac{1-P}{1+P}.$$

Величина параметра  $P$ , который характеризует долю зеркально отражающихся от границ квазичастиц, меняется от нуля до единицы. Согласно [2], при переходе от «шлифованных» к «полированным» высокообогащенным образцам Ge величина  $P$  изменяется от 0.2 до  $\sim 0.4$ .

Подчеркнем, что с ростом зеркальности поверхности, когда возрастает  $P$ , и следовательно, уменьшается различие между  $l_N$  и  $l_C$ , одновременно увеличивается величина отклонения экспериментальных значений  $K(T)$  от рассчитанных теоретически (см. рис. б).

Резюмируем сказанное. В области температур 1.5–4 К изменение поведения теплопроводности германия в зависимости от меры зеркальности поверхности можно качественно описать в рамках теории Займана–Соффера. В совершенных высокообогащенных образцах при  $T \geq 4$  К наблюдается отклонение от кнудсеновского течения потока фононов, когда большинство столкновений происходит со стенками. Возникающие отклонения могут быть объяснены тем, что начинает проявляться режим вязкого пуазейлевского течения. В натуральных образцах Ge при  $T \geq 4$  К существенным образом проявляется изотопическое рассеяние.

Отметим, что в условиях пуазейлевского течения становится возможным существование второго звука — колебаний плотности тепловых возбуждений. Подобный эффект наблюдался в гелии [9], и, по-видимому, в NaF и Bi [5]. Интересно было бы исследовать второй звук и в совершенных кристаллах германия.

Работа выполнена по инициативе В. И. Ожогина и благодаря поддержке Н. А. Черноплекова.

## Литература

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. Inuishkin, A. V. Taldenkov, V. I. Ozhogin, K. M. Itoh, and E. E. Haller, *Phys. Rev. B* **56**, 9431 (1997).
3. Р. Н. Гуржи, *ЖЭТФ* **46**, 719 (1965); *УФН* **94**, 689 (1968).
4. Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Физическая кинетика*, Наука, Москва (1979).
5. В. Л. Берман, *Теплопроводность твердых тел*, Мир, Москва (1979).
6. В. Л. Гуревич, *Кинетика фононных систем*, Наука, Москва (1980).
7. Л. П. Межов-Деглин, *ЖЭТФ* **49**, 66 (1965), **71**, 1453 (1976);
8. Л. П. Межов-Деглин, *ФТТ* **22**, 1748 (1980).
9. Б. Н. Есельсон, В. Н. Григорьев, В. Г. Иванцов, Э. Я. Рудаковский, Д. Г. Саникидзе, И. А. Сербин, *Растворы квантовых жидкостей*, Наука, Москва (1973).
10. Н. В. Casimir, *Physica* **5**, 495 (1938).
11. J. M. Zaiman, *Electrons and Phonons*, Oxford, London (1960), p. 456.
12. S. B. Soffer, *J. Appl. Phys.* **38**, 1710 (1967).
13. D. P. Singh and Y. P. Foshi, *Phys. Rev. B* **19**, 3133 (1979).
14. D. R. Frankl and G. J. Campisi, in *Proceeding of the International Conference on Phonon Scattering in Solids*, Paris, 1972, ed. by H. J. Albany, La Documentation Francaise, Paris (1972), p. 88.
15. W. S. Hust and D. R. Frankl, *Phys. Rev.* **186**, 801 (1969).
16. A. D. Zdetsis and C. S. Wang, *Phys. Rev. B* **19**, 2999 (1979).
17. Resul Eryigit, Irving P. Herman, *Phys. Rev. B* **53**, 7775 (1996).
18. A. K. McCurdy, H. J. Maris, and C. Elbaum, *Phys. Rev. B* **2**, 4077 (1970).