

СТАТИЧЕСКИЕ СМЕЩЕНИЯ АТОМОВ ОКОЛО ИЗОТОПИЧЕСКИХ ПРИМЕСЕЙ И ОСТАТОЧНОЕ ЭЛЕКТРОСОПРОТИВЛЕНИЕ

А. П. Жернов*

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

Поступила в редакцию 17 апреля 1998 г.

Обсуждается вопрос об остаточном электросопротивлении химически чистых металлов, представляющих собой смеси атомов изотопов. Анализируется в микроскопическом подходе вопрос о статических смещениях, возникающих около изотопических примесей из-за различия нулевых колебаний. Показано, что подобные статические смещения существенно влияют на остаточное сопротивление ρ_r . Их вклад в ρ_r преобладает над вкладом, обусловленным различием динамических амплитуд упругого рассеяния электронов.

1. ВВЕДЕНИЕ

Большинство кристаллов представляют собой смеси атомов изотопов с разными атомными весами. Однако возможно получение химически чистых и высокообогащенных по изотопическому составу кристаллов. В таком случае можно сравнить параметры натуральных и высокообогащенных соединений и выделить вклад, связанный с изотопическими примесями. Заметим, что недавно выполнены исследования теплопроводности германия с использованием образцов высокообогащенного ^{70}Ge [1]. В связи со сказанным, по мнению автора, представляет определенный интерес проблема остаточного электросопротивления металлов, которая экспериментально исследовалась недостаточно.

Как известно, в свое время Померанчук [2] указал на то, что в химически чистых металлах, в узлах кристаллической решетки которых находятся изотопы разных сортов, из-за существующей динамической разупорядоченности (обусловленной флуктуацией от узла к узлу величины массы атома) появляется конечное остаточное электросопротивление ρ_r при нулевой температуре. Согласно [2], сопротивление обусловлено тем, что при рассеянии электронов возникающие в виртуальных состояниях фононы испытывают влияние изотопического беспорядка. Соответствующее сопротивление пропорционально параметру электрон-ионного взаимодействия в четвертой степени. Иными словами, сопротивление ρ_r возникает в более высоком порядке по электрон-ионному взаимодействию, чем в случае борновского приближения.

Затем было показано [3], что в изотопически разупорядоченной решетке конечное сопротивление ρ_r существует уже в борновском приближении. Реально истинная амплитуда упругого рассеяния электрона на n -ионе a_n представляет собой произведение статической амплитуды a_0 (не меняющейся от узла к узлу) на динамический фактор

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

Дебая—Валлера W_n , значение которого зависит от массы колеблющегося атома, в результате чего разность амплитуд $a_n - a_{n'}$ отлична от нуля, и остаточное сопротивление появляется в стандартном приближении.

В данной работе обращается внимание на то, что в вокруг изотопических примесей должны существовать поля статических смещений $\{\zeta_n\}$. Интересно, что межатомные силовые параметры в районе изотопической примеси, вообще говоря, не меняются. Однако нулевые колебания атомов дают определенный вклад в энергию связи и, следовательно, влияют на статическую конфигурацию ионов решетки, приводя к смещениям атомов из равновесных положений (характерных для идеального кристалла) около примеси. При этом рассеяние электронов на статических околопримесных смещениях также ведет к определенному вкладу в электросопротивление.

Отметим, что в случае классической статистики значение среднего квадрата динамических атомных смещений $\langle u^2 \rangle$ не зависит от изотопического состава. Изменение величины $\langle u^2 \rangle$ и, следовательно, сопротивления ρ_r при варьировании содержания изотопов разных сортов в кристалле — это квантовый эффект [3]. При этом в области температур, где справедлива классическая статистика, фактор $\langle u^2 \rangle$ перестает зависеть от массы, в результате чего нивелируется различие между амплитудами рассеяния a_n и исчезает поле специфических статических смещений $\{\zeta_n\}$.

В разд. 2 настоящей работы получены в микроскопическом подходе уравнения для статических смещений в общем случае. Сделаны некоторые оценки в простейшей модели решетки. В разд. 3 обсуждается вопрос об электросопротивлении ρ_r . Одновременно анализируются вклады, связанные с различием динамических амплитуд электрон-ионного взаимодействия и с полями околопримесных статических смещений. Для простоты мы пренебрегаем взаимным влиянием изотопических примесей и ограничиваемся однопримесным приближением.

2. ДИНАМИЧЕСКАЯ РАЗУПОРЯДОЧЕННОСТЬ И СТАТИЧЕСКИЕ ОКОЛОПРИМЕСНЫЕ СМЕЩЕНИЯ

Рассмотрим кристаллическую решетку с изотопической примесью. Полная энергия E зависит от координат ионов R_n . В кристалле с примесями атомы смещаются из своих первоначальных положений, причем

$$R_n = R_n^{(0)} + \zeta_n + u_n,$$

где $R_n^{(0)}$ — равновесное положение иона в идеальной решетке, ζ_n — вектор статического смещения. Через u_n обозначен вектор динамических смещений. Принимая во внимание, что смещения малы по сравнению с межатомными расстояниями, разложим зависящую от структуры часть энергии в ряд по u_n и ζ_n относительно $R_n^{(0)}$.

Гамильтониан гармонического кристалла имеет вид

$$H = \sum_n \frac{(p_n^\alpha)^2}{2M_n} + \frac{1}{2} \sum_{n_1, n_2} \Phi_{2, n_1 n_2}^{\alpha\beta} u_{n_1}^\alpha u_{n_2}^\beta. \quad (1)$$

В (1) приняты следующие обозначения: p_n — импульс атома с массой M_n , находящегося в n -узле; $\Phi_{2, n_1 n_2}^{\alpha\beta}$ — силовой параметр второго порядка. Предполагается, что

$$M_n = M_0 + \Delta M \delta_{n,0}, \quad \Delta M = M_1 - M_0.$$

Здесь M_0 — масса атома регулярной матрицы, M_1 — масса изотопа. Начало координат совпадает с атомом примеси в его равновесном положении. Кроме того, по дважды повторяющимся декартовым индексам α, β здесь и в дальнейшем подразумевается суммирование.

Определим затем релаксационную энергию E_r , связанную с околопримесными статическими смещениями атомов ζ_n . Отметим, что в выражении для E_r наряду со стандартными членами первого и второго порядков по ζ_n удерживаются члены вида

$$\frac{1}{2} \Phi_{3, n_1 n_2}^{\alpha \beta \gamma} \langle u_{n_1}^\alpha u_{n_2}^\beta \rangle \zeta_{n_3}^\gamma.$$

Здесь $\Phi_{3, n_1 n_2}^{\alpha \beta \gamma}$ — силовой параметр третьего порядка, $\langle \dots \rangle$ означают усреднение по равновесному термодинамическому распределению.

Заметим, что существование отличного от нуля коррелятора

$$K_{n_1 n_2}^{\alpha \beta} = \langle u_{n_1}^\alpha u_{n_2}^\beta \rangle, \quad (2)$$

связанного с нулевыми колебаниями, является характерной особенностью квантового движения. Оно отражает тот факт, что в квантовой теории понятие полного покоя частицы лишено смысла.

Символически энергию E_r можно представить в обычной форме как

$$E_r = F \zeta + \frac{1}{2} \Phi_2 \zeta^2. \quad (3)$$

Фигурирующая в этом выражении эффективная сила F , действующая на атомы матрицы со стороны изотопической примеси и приводящая к смещениям, представляется в следующем виде:

$$F_n^\alpha = \frac{1}{2} \sum_{n_1 n_2} \Phi_{3, n_1 n_2}^{\alpha \beta \gamma} \Delta K_{n_1 n_2}^{\beta \gamma}. \quad (4)$$

При этом величина ΔK определяется как разность K -корреляторов для решеток с изотопической примесью и регулярной. А именно,

$$\Delta K_{n_1 n_2}^{\alpha \beta} = K_{n_1 n_2}^{\alpha \beta} (\Delta M \neq 0) - K_{n_1 n_2}^{\alpha \beta} (\Delta M = 0). \quad (5)$$

В (4), (5) силовой параметр Φ_3 , а также K -коррелятор заданы относительно равновесных положений ионов в идеальной решетке.

Из условия равенства нулю эффективной силы, действующей на атом, т.е. $\partial E_r / \partial \zeta_n$, получаем с использованием (3) систему уравнений для ζ :

$$F + \Phi_2 \zeta = 0. \quad (6)$$

Опираясь на (6), находим в координатном представлении, что

$$\zeta_n^\alpha \approx -\bar{D}_{nn'}^{\alpha \beta} F_{n'}^\beta, \quad \bar{D} = (\Phi_2)^{-1}. \quad (7)$$

При этом релаксационная энергия оказывается равной $E_r = F \zeta / 2$.

Получим для коррелятора K , определяющего в рассматриваемой проблеме эффективную силу F , явное выражение. С этой целью введем в рассмотрение собранную на операторах динамических атомных смещений функцию Грина

$$D_{nn'}^{\alpha\beta}(t) = -i\theta(t) \langle [u_n^\alpha(t), u_n^\beta(0)] \rangle. \quad (8)$$

При этом, как хорошо известно, интересующий нас коррелятор K выражается через функцию Грина D с помощью равенства

$$\int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) K_{n_1 n_2}^{\alpha\beta}(t) = \frac{2 \operatorname{Im} D_{n_1 n_2}^{\alpha\beta}(\omega - i\delta)}{1 - \exp(-\omega/T)}. \quad (9)$$

В ситуации, когда в узлах гармонической решетки находятся изолированные изотопические примеси, D -функция (8) удовлетворяет уравнению (см., например, [3])

$$D_{nn'}^{\alpha\beta}(\omega) = D_{0,nn'}^{\alpha\beta}(\omega) + \omega^2 \sum_{n_1} D_{0,nn_1}^{\alpha\gamma}(\omega) (M_0 - M_{n_1}) D_{n_1 n'}^{\gamma\beta}(\omega). \quad (10)$$

При этом «нулевая» функция Грина D_0 идеальной решетки может быть представлена как

$$D_{0,nn'}^{\alpha\beta}(\omega) = \frac{1}{M_0 N} \sum_{\mathbf{q}j} e^\alpha(\mathbf{q}, j) e^\beta(\mathbf{q}, j) \frac{\exp\{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_n^{(0)} - \mathbf{R}_{n'}^{(0)})\}}{\omega^2 - \omega^2(\mathbf{q}, j)}. \quad (11)$$

В (11) через $\omega(\mathbf{q}, j)$ и $e^\alpha(\mathbf{q}, j)$ обозначены частота и вектор поляризации фононной моды с квазиимпульсом \mathbf{q} и поляризацией j .

С помощью метода итераций приближенное решение уравнения (10) запишем в форме

$$D_{nn'}^{\alpha\beta}(\omega) \approx D_{0,nn'}^{\alpha\beta}(\omega) + \omega^2 \sum_{n_1} D_{0,nn_1}^{\alpha\gamma}(\omega) (M_0 - M_{n_1}) D_{n_1 n'}^{\gamma\beta}(\omega) + \omega^4 \sum_{n_1, n_2} D_{0,nn_1 n_2}^{\alpha\gamma}(\omega) (M_0 - M_{n_1}) D_{0, n_1 n_2}^{\gamma\gamma_1}(\omega) (M_0 - M_{n_2}) D_{0, n_2 n'}^{\gamma_1 \beta}(\omega) + \dots \quad (12)$$

В результате в интересующем нас однопримесном случае с использованием (12) и (9) получаем

$$\Delta K_{n_1 n_2}^{\alpha\beta}(t=0) \approx -\frac{\Delta M}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\omega^2}{1 - \exp(-\omega/T)} \operatorname{Im} \left[D_{0, n_1 0}^{\alpha\gamma}(\omega) D_{0, 0 n_2}^{\gamma\beta}(\omega) \right]. \quad (13)$$

Знание фактора ΔK , непосредственно характеризующего динамическую разупорядоченность, позволяет, опираясь на соотношения (7) и (4), определить поле статических смещений. Получаем

$$\zeta^\alpha(\mathbf{q}) = -\frac{1}{2} \frac{\Delta M}{M_0} \sum_j \frac{e^\alpha(\mathbf{q}, j) e^\beta(\mathbf{q}, j)}{M_0 \omega^2(\mathbf{q}, j)} \sum_{\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, j_1, j_2} \Phi_{3, \mathbf{q}\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2}^{\beta\gamma\delta} Z_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2}^{\gamma\delta}. \quad (14)$$

С целью сокращения записи положено

$$Z_{\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2}^{\gamma\delta} = \sum_{j_1, j_2} e^{\gamma(\mathbf{q}_1, j_1)} e^{\gamma_1(\mathbf{q}_1, j_1)} e^{\gamma_1(\mathbf{q}_2, j_2)} e^{\delta(\mathbf{q}_2, j_2)} \times \\ \times \frac{\omega(\mathbf{q}_1, j_1) [2n(\omega(\mathbf{q}_1, j_1)) + 1] - \omega(\mathbf{q}_2, j_2) [2n(\omega(\mathbf{q}_2, j_2)) + 1]}{M_0 [\omega^2(\mathbf{q}_1, j) - \omega^2(\mathbf{q}_2, j_2)]}, \quad (15)$$

где $n(\omega) = [\exp(\omega/T) - 1]^{-1}$.

Из (15) непосредственно следует, во-первых, что при абсолютном нуле температуры

$$Z_{\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2}^{\beta\gamma}(T=0) = \sum_{j_1, j_2} \frac{e^{\beta(\mathbf{q}_1, j_1)} e^{\gamma_1(\mathbf{q}_1, j_1)} e^{\gamma_1(\mathbf{q}_2, j_2)} e^{\gamma(\mathbf{q}_2, j_2)}}{M_0 [\omega(\mathbf{q}_1, j) + \omega(\mathbf{q}_2, j_2)]}. \quad (16)$$

Во-вторых, в пределе высоких температур $Z = 0$, и, следовательно, специфическое поле статических смещений исчезает.

Сделаем оценки в модели линейной цепочки с взаимодействием ближайших соседей. В таком случае для силовых параметров второго (f_2) и третьего (g_3) порядков их пространственные фурье-компоненты, т.е. $\Phi_{2,q}$ и Φ_{3,qq_1q_2} , представляются как (см., например, [4, 5])

$$\Phi_{2,q} = M_0 \omega_q^2, \quad M_0 \omega_q^2 = 4f_2 \sin^2(ql/2), \quad (17)$$

$$\Phi_{3,qq_1q_2} = -\frac{ig_3}{(f_2/M_0)^{3/2}} \tilde{\omega}_q \tilde{\omega}_{q_1} \tilde{\omega}_{q_2} \Delta(q + q_1 + q_2), \quad \tilde{\omega}_q = 2\sqrt{\frac{f_2}{M_0}} \sin \frac{ql}{2}. \quad (18)$$

Здесь l — постоянная решетки. Что касается соотношения между f_2 и g_3 , то в модели центральных сил и для интегрального фактора Грюнайзена $\gamma_G \approx 2$

$$-g_3l/f_2 \approx 10. \quad (19)$$

Опираясь на соотношения (14)–(16) и учитывая (17), (18), можно показать, что смещения атомов, расположенных на первой координационной сфере, относительно изотопической примеси такие:

$$\zeta = -0.3\epsilon \frac{g_3 l^2}{f_2} \sim -\epsilon l, \quad (20)$$

где ϵ — характерный параметр теории, причем

$$\epsilon = \frac{\Delta M}{M_0} \frac{\langle u^2 \rangle}{l^2}.$$

Через $\langle u^2 \rangle$ обозначен средний квадрат динамических атомных смещений.

Из формулы (20) следует, что за счет различия нулевых колебаний около тяжелого изотопа решетка «сжимается», а около легкого изотопа — расширяется.

В стандартных системах $\langle u^2 \rangle/l^2 \sim 10^{-3}$, а $|\Delta M|/M_0 \leq 0.1$. При этом оказывается, что $|\epsilon| \leq 10^{-4}$. Таким образом, статические околопримесные смещения в сравнении с межатомными расстояниями весьма малы.

Интересно сделать оценки для квантовых кристаллов, таких как в случае смеси изотопов ^4He и ^3He . Воспользуемся данными для дебаевской температуры $\Theta = 26$ К и постоянной решетки $l = 3.57$ Å, приведенными в [6]. Тогда имеем $\langle u^2 \rangle/l^2 \approx 3 \cdot 10^{-2}$.

Поскольку $|\Delta M|/M_0 = 0.25$, эти смещения оказываются заметными. На первой координационной сфере $\zeta = 0.025$. Эти смещения такого же масштаба, как и в случае систем со стандартными (неизотопическими) примесями.

Обратим внимание на то, что в связи с проблемой теплопроводности твердого ${}^4\text{He}$ с примесями ${}^3\text{He}$ в [7] было высказано предположение о дисторсии решетки вокруг легких изотопов, которая ведет к перенормировке силовых параметров. Было найдено, что смещения атомов на первой координационной сфере описываются формулой вида

$$\tilde{\zeta} = -\frac{1}{3} \frac{\Delta M}{M_0} \left(\frac{3E_0}{3E_0 + 8\pi\mu r^3} \right),$$

где $E_0 = (8Mr)^{-1}$ — энергия нулевых колебаний в сферической потенциальной яме радиусом r . Фактор $8\pi\mu r^2$ связан с релаксационной энергией из-за включения радиуса r . А именно, $\tilde{E}_r = 8\pi\mu r^2 \tilde{\zeta}^2$, где μ — модуль сжатия. Согласно [7], $\tilde{\zeta} \approx 0.02$. В определенной степени возможно, что расхождение с оценкой по формуле (20) связано с использованием в [7] для оценок значений параметров, отвечающих плотности 0.208 г/см^3 . В [6] этот же параметр равен 0.18 г/см^3 .

В Приложении 1 получено явное выражение для ζ_n в асимптотическом пределе, когда величина $|R_n^{(0)}|$ много больше, чем межатомное расстояние l .

3. ВЛИЯНИЕ ДИНАМИЧЕСКОЙ РАЗУПОРЯДОЧЕННОСТИ РЕШЕТКИ НА ОСТАТОЧНОЕ ЭЛЕКТРОСОПРОТИВЛЕНИЕ

Будем рассматривать непереходные металлы. Имея в виду качественную сторону явления, предположим, что электронная поверхность Ферми близка к сферической. Неравновесную функцию распределения электронов $\varphi_\alpha(\mathbf{k})$ выберем в форме $\varphi_\alpha(\mathbf{k}) \propto \propto v_k^\alpha$, где v_k — групповая скорость электрона. Тогда для описания остаточного электросопротивления можно воспользоваться выражением вида (см., например, [8, 3])

$$\rho_r = \frac{(2\pi)^3}{3m_*^2 \Omega_0 J^2} \int_{\sigma_F} \int_{\sigma_F} \frac{d\sigma_k}{v_k} \frac{d\sigma_{k'}}{v_{k'}} (\mathbf{v}_k - \mathbf{v}_{k'})^2 a_0^2(\mathbf{q}) S(\mathbf{q}), \tag{21}$$

где

$$\mathbf{q} = \mathbf{k}_F - \mathbf{k}'_F, \quad J = \frac{l}{4\pi^3} \int_{\sigma_F} d\sigma_k v_k \approx \frac{e v_F \sigma_F}{12 \pi^3}.$$

Здесь приняты следующие обозначения: a_0 — значение статической амплитуды рассеяния электрона на ионе; e и m_* — заряд электрона и его эффективная масса; Ω_0 — равновесный объем элементарной ячейки решетки. Интегрирование выполняется по поверхности Ферми (σ_F), элемент которой $d\sigma_k$. Кроме того, \mathbf{q} — вектор рассеяния, а \mathbf{k}_F — значение электронного импульса на поверхности Ферми.

Характеризующий рассеяние в решетке с динамическим и статическим беспорядком фактор $S(\mathbf{q})$ определяется как

$$S(\mathbf{q}) = \frac{1}{N} \sum_{nn'} \exp \{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_n - \mathbf{R}_{n'})\} \exp \left(-\frac{W_n(\mathbf{q}) + W_{n'}(\mathbf{q})}{2} \right),$$

где $\mathbf{R}_n = \mathbf{R}_n^{(0)} + \zeta_n$ и фактор Дебая—Валлера

$$W_n(\mathbf{q}) = \langle (\mathbf{q}\mathbf{u}_n(0))^2 \rangle.$$

Динамические и статические смещения малы по сравнению с межатомными расстояниями. Поэтому разложим экспоненту в ряд, сохраняя три первых слагаемых по W_n и два по ζ_n . Члены, содержащие дельта-функцию по импульсу не приводят к сопротивлению. Так что упругое рассеяние электронов проводимости описывается выражением

$$S(\mathbf{q}) \approx \frac{1}{N} \sum_{nn'} \exp \left\{ i\mathbf{q}(\mathbf{R}_n^{(0)} - \mathbf{R}_{n'}^{(0)}) \right\} \left\{ \frac{1}{2} W_n(\mathbf{q}) W_{n'}(\mathbf{q}) + (\mathbf{q}\zeta_n)(\mathbf{q}\zeta_{n'}) + \right. \\ \left. + \frac{i}{2} [(\mathbf{q}\zeta_n) W_{n'}(\mathbf{q}) - (\mathbf{q}\zeta_{n'}) W_n(\mathbf{q})] \right\}. \quad (22)$$

Отметим, что по определению W_n и ζ_n соответственно четная и нечетная функции $\mathbf{R}_n^{(0)}$, вследствие чего значение $S(\mathbf{q})$ является вещественным. При этом в (22) первый член описывает рассеяние, обусловленное различием между динамическими амплитудами упругого рассеяния атомом матрицы и изотопической примесью (см. детали в [3]), второй — рассеяние на околопримесных статических смещениях, третий — интерференционное рассеяние.

Вклад в сопротивление из-за механизма рассеяния, предложенного в [2], не учитывается. Соответствующее выражение содержит дополнительный по сравнению с (22) параметр малости порядка $(v_0(2k_F)/\epsilon_F)^2$. Здесь $v_0(2k_F)$ — фурье-компонента атомного псевдопотенциала в области больших переданных импульсов и ϵ_F — фермиевская энергия, k_F — фермиевский импульс. В случае стандартных металлов $(v_0(2k_F)/\epsilon_F)^2 \ll 1$ (см., например, [9]).

В идеальной решетке фактор Дебая—Валлера не зависит от узельного индекса n . Поэтому в (22) реально фигурирует величина

$$\Delta W_n = W_n(\Delta M \neq 0) - W_0(\Delta M = 0).$$

Ее пространственная фурье-компонента имеет следующий вид (см. [3]):

$$\Delta W(\mathbf{q}) = \frac{1}{N} \sum_n \exp(i\mathbf{q}\mathbf{R}_n^{(0)}) \Delta W_n = \frac{1}{N} \sum_n \exp(i\mathbf{q}\mathbf{R}_n^{(0)}) q^\alpha q^\beta \Delta K_{nn}^{\alpha\beta} = \\ = -\frac{1}{2} q^\alpha q^\beta \frac{\Delta M}{M_0} \sum_{\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2} Z_{\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2}^{\alpha\beta}. \quad (23)$$

Принимая во внимание сказанное, окончательно представим $S(\mathbf{q})$ в форме

$$S(\mathbf{q}) \approx \frac{1}{N} \left\{ \frac{1}{2} \Delta W(\mathbf{q}) \Delta W(\mathbf{q}) + (\mathbf{q}\zeta(\mathbf{q})) (\mathbf{q}\zeta(\mathbf{q})) + [(\mathbf{q}\zeta(\mathbf{q})) \Delta W(\mathbf{q}) - (\mathbf{q}\zeta^*(\mathbf{q})) \Delta W(\mathbf{q})] \right\}. \quad (24)$$

Напомним, что величина $\zeta(\mathbf{q})$ определена соотношениями (14)–(16).

Если примеси рассматриваются как изолированные, то при определении сопротивления можно заменить в (24) величину $1/N$ на концентрацию дефектов c . В случае изотопов вместо c фигурирует фактор

$$\delta M^2 = \frac{\langle M^2 \rangle - \langle M \rangle^2}{\langle M \rangle^2}, \quad \langle M \rangle = \sum_s \sum_n c_n^{(s)} M_n^{(s)}, \quad (25)$$

где $c_n^{(s)}$ — вероятность обнаружить изотоп сорта s в n -узле.

Далее с использованием (23) можно показать, что в модели линейной цепочки

$$\Delta W(q) \approx -\frac{1}{2} \epsilon q^2 l^2. \tag{26}$$

Одновременно, согласно (20), имеем

$$q \zeta(q) \approx -\frac{1}{2} \lambda \epsilon \frac{\sqrt{f_2/M_0}}{\omega_q} ql, \quad \lambda = \frac{g_3 l}{2 f_2} > 1. \tag{27}$$

Подставим (26) и (27) в (24). Получившееся выражение в свою очередь подставим в выражение (21) для ρ_r . Сравним величины стандартного и нестандартного остаточного сопротивлений. С этой целью рассмотрим фактор

$$\Upsilon = \frac{\int_0^{2k_F} q^3 a_0^2(q) N S(q)}{\epsilon^2 \int_0^{2k_F} dq q^3 a_0^2(q)}.$$

Для конкретности и простоты положим для амплитуды, что

$$\frac{a_0(q/2k_F)}{a_0(0)} = \frac{0.2}{(q/2k_F)^2 + 0.2}.$$

Тогда с учетом соотношений (26) и (27) и в предположении, что дебаевский волновой вектор близок к $2k_F$, получаем

$$\Upsilon = 0.15 Z_0^{2/3} \pi^2 \left\{ Z_0^{2/3} \pi^2 + 2.66 Z_0^{1/3} \lambda \pi + 2.15 \lambda^2 \right\}, \tag{28}$$

где Z_0 — число валентных электронов, приходящихся на атом.

Из результатов численных расчетов, т. е. из соотношения (28), следует, что в принятой модели беспорядок за счет статических смещений в (24) влияет на величину остаточного сопротивления в большей степени, чем различие амплитуд только из-за факторов Дебая—Валлера. Учет рассеяния на статических смещениях может изменить величину Υ при $Z_0 \geq 3$ в несколько раз, а при $Z_0 = 1$ — на порядок.

Были выполнены также расчеты для металла лития, у которого есть два изотопа: ${}^6\text{Li}$ и ${}^7\text{Li}$. В этом случае мы основывались на результатах микроскопической теории непереходных металлов Бровмана—Кагана (см. обзор [10]). В рамках этой теории кинетические коэффициенты регулярных металлов ранее анализировались в [11]. Соответствующие формулы, необходимые для определения величин, фигурирующих в развитой теории остаточного сопротивления, приведены в Приложении 2. Заметим, что при расчетах остаточного сопротивления использовалось двухволновое приближение для электронной волновой функции. Оказалось, что в пренебрежении дисторсией решетки $\Upsilon \approx 21$. При учете статических смещений $\Upsilon \approx 123$. Таким образом, подтверждаются полученные выше оценки величины Υ .

Обратим внимание на то, что в слабых металлических растворах со стандартными примесями замещения доминирующий вклад в остаточное сопротивление дают процессы рассеяния электронов на дефектах, обусловленные различием статических амплитуд.

Вклад в ρ_r , вызванный рассеянием на смещенных около дефекта атомах матрицы, сравнительно мал. Исключение составляют изoeлектронные слабые растворы, где при учете дисторсии решетки сопротивление ρ_r может измениться на несколько десятков процентов (см., например, [12]). И только в случае металлов с изотопическими примесями, как показано выше, преобладает механизм рассеяния, связанный со статическими смещениями.

Рассмотрим вопрос о длинах пробегов. Как известно, длина пробега электронов проводимости при комнатной температуре определяется в непереходных металлах рассеянием электронов на фононах, причем (см., например, [12])

$$\Lambda_{ph} \sim 50 \frac{T_m}{T} l,$$

где T_m — температура плавления. Соответствующая величина Λ_{ph} порядка нескольких сот ангстрем. Принимая во внимание сказанное, можно в рамках использованной в [8] и [13] модели (она позволяет качественно учесть процессы рассеяния с перебором) показать, что при температуре абсолютного нуля в металле с разными изотопами эффективная длина пробега Λ_{is} , связанная с рассеянием из-за различия динамических амплитуд и статических смещений, по порядку величины равна

$$\Lambda_{is} \sim \frac{1}{\delta M^2} \frac{l^2}{\langle u^2 \rangle} \frac{1}{\Upsilon} \left[\frac{v_0(2k_F)}{v_0(q=0)} \right]^2 \Lambda_{ph}. \quad (29)$$

Параметр $\langle u^2 \rangle / l^2 \sim 10^{-3}$. В случае натуральных изотопических смесей таких металлов, как Li, Zn и Sn, определяемый формулой (25) параметр $\delta M^2 \geq 10^{-4}$. Для молибдена $\delta M^2 \approx 6 \cdot 10^{-4}$. Вследствие этого для подобных металлов $\Lambda_{is} \leq 1$ мм, в то время как в пренебрежении дисторсией $\Lambda_{is} \geq 1$ см. Если синтезировать образцы, содержащие, например, изотопы двух сортов в равном процентном соотношении, то за счет возрастания фактора изотопического беспорядка δM^2 длины пробегов Λ_{is} (28) могут уменьшиться более чем на порядок. При этом даже для естественных составов размеры используемых в эксперименте образцов могут быть стандартными.

Обозначим через Λ_{im} длину пробега, обусловленную упругим рассеянием электронов на неизотопических примесях с концентрацией c_{im} . Наблюдение эффектов, обусловленных изотопическим беспорядком, возможно, если $\Lambda_{im} \geq \Lambda_{is}$. При этом должно выполняться условие для концентрации точечных дефектов:

$$c_{im} \leq 4\eta \delta M^2 \Upsilon \left(\frac{\langle u^2 \rangle}{l^2} \right)^2, \quad \eta = \frac{\langle \langle (q/2k_F)^2 a_0^2 \rangle \rangle}{\langle \langle (a_{im} - a_0)^2 \rangle \rangle}, \quad (30)$$

где a_{im} — амплитуда рассеяния на примеси и

$$\langle \langle a^2 \rangle \rangle = \int \int_{\sigma_F \sigma_F} \frac{d\sigma_{\mathbf{k}}}{v_{\mathbf{k}}} \frac{d\sigma'_{\mathbf{k}}}{v'_{\mathbf{k}}} q^2 a^2(q).$$

Для гетеровалентных примесей $\eta \leq 1$. Если выполняется условие (19), то согласно (30) имеем

$$c_{im} \sim 10^{-3} \delta M^2,$$

т. е. образцы должны быть весьма совершенными.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе рассмотрены химически чистые металлы, в узлах решетки которых находятся разные изотопы. В первую очередь получены в микроскопическом подходе уравнения, описывающие возникающие из-за динамической разупорядоченности поля статических смещений около изотопов. Затем проанализирован вопрос об остаточном электросопротивлении в рамках борновского приближения. Одновременно учтены вклады, связанные и с различием динамических амплитуд упругого электрон-ионного взаимодействия, и с полями околопримесных статических смещений. Показано, что специфические статические смещения существенно влияют на остаточное сопротивление ρ_r . Их вклад в ρ_r может преобладать над вкладом, обусловленным различием динамических амплитуд рассеяния электронов.

Насколько известно автору, вопрос об остаточном электросопротивлении металлов, содержащих разные изотопы, экспериментально исследовался ранее Шарвиным на примере естественного олова [14]. Для конкретного теоретического рассмотрения желательно иметь данные для образцов с разным изотопическим составом.

Автор признателен С. М. Стишову за ценное замечание и А. В. Инюшкину за полезное сообщение. Благодарю Д. А. Жернова за помощь.

Работа выполнена при поддержке со стороны Н. А. Черноплекова.

ПРИЛОЖЕНИЕ 1

Рассмотрим вопрос об асимптотическом представлении поля статических смещений $\{\zeta_n\}$. При условии, что $|R_n| \gg l$, нужно в первую очередь определить величину $\zeta(\mathbf{q} \rightarrow 0)$.

Примем во внимание рекуррентное соотношение для силовых параметров разных порядков:

$$\sum_{n_1} R_{n_1}^{\alpha_1} \Phi_{p+1, n_1 \dots n_{p+1}}^{\alpha_1 \dots \alpha_{p+1}} = \Omega_0 \frac{\partial}{\partial \Omega_0} \Phi_{p, n_2 \dots n_{p+1}}^{\alpha_2 \dots \alpha_{p+1}} \delta_{\alpha_1}, \quad (\text{П.1})$$

где $p = 2, 3$. Оно было получено в [15] для непереходных металлов на основе микроскопической теории [10].

Опираясь на (14) и (П.1), можно показать, что

$$\begin{aligned} \zeta^\alpha(\mathbf{q} \rightarrow 0) \approx & -i \frac{\Delta M}{M_0} \sum_j \bar{D}_{\mathbf{q}j}^{\alpha\beta} q^\beta \sum_{\mathbf{q}_1 j_1 \mathbf{q}_2 j_2} \sum_m \left\{ \Omega_0 \frac{\partial}{\partial \Omega_0} \Phi_{2,0m} \right\} \times \\ & \times \exp(i \mathbf{q}_1 R_m) Z_{\mathbf{q}_1 j_1 \mathbf{q}_2 j_2}^{\beta\gamma} \Delta(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2), \end{aligned} \quad (\text{П.2})$$

где для сокращения записи положено

$$\bar{D}_{\mathbf{q}j}^{\alpha\beta} = \frac{e^\alpha(\mathbf{q}, j) e^\beta(\mathbf{q}, j)}{M_0 \omega^2(\mathbf{q}, j)}.$$

С использованием стандартного соотношения

$$\sum_{\alpha, \beta} e^\alpha(\mathbf{q}, j) \Phi_{2,q}^{\alpha\beta} e^\beta(\mathbf{q}, j) = M_0 \omega^2(\mathbf{q}, j)$$

и определения частичного фактора Грюнайзена в форме

$$\gamma_G(\mathbf{q}, j) = -\frac{\Omega_0}{\omega(\mathbf{q}, j)} \frac{\partial}{\partial \Omega_0} \omega(\mathbf{q}, j)$$

вместо (П.2) получаем

$$\zeta^\alpha(q \rightarrow 0) \approx -i \frac{\Delta M}{M_0} \gamma_G E_{vib} \sum_j \bar{D}_{\mathbf{q}j}^{\alpha, \beta} \frac{q^\alpha}{M_0}. \quad (\text{П.3})$$

Здесь

$$\gamma_G = \frac{\sum_{\mathbf{q}j} \gamma(\mathbf{q}, j) \omega(\mathbf{q}, j)}{\sum_{\mathbf{q}j} \omega(\mathbf{q}, j)}, \quad E_{vib} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}j} \omega(\mathbf{q}, j),$$

где γ_G — интегральный фактор Грюнайзена, E_{vib} — энергия нулевых колебаний.

Для кубических кристаллов с решетками ОЦК и ГЦК в общем случае фактор

$$\sum_{\mathbf{m}} \exp(i\mathbf{q} \mathbf{R}_{\mathbf{m}}^{(0)}) \bar{D}_{\mathbf{q}}$$

в асимптотическом пределе определен в [16]. Мы рассмотрим здесь случай изотропного упругого континуума. Тогда

$$\omega(q) = \sqrt{\frac{\lambda + \mu}{\rho}} q, \quad e^\alpha(\mathbf{q}) = \frac{\mathbf{q} \mathbf{v}}{q^2} q^\alpha, \quad (\text{П.4})$$

где λ и μ — коэффициенты Ламэ, \mathbf{v} — единичный вектор. При этом

$$M_0 (\lambda + 2\mu) / \rho = \Omega_0 C_{11},$$

где ρ — плотность и C_{11} — модуль упругости.

Подставляя (П.4) в (П.3), после простых преобразований имеем в асимптотическом пределе

$$\zeta_n = \frac{\Omega_0}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{q} \exp(i\mathbf{q} \mathbf{R}_n^{(0)}) \zeta(\mathbf{q}) \approx \frac{b}{4\pi} \frac{\mathbf{R}_n^{(0)} \Omega_0}{|\mathbf{R}_n^{(0)}|^3},$$

где b — мощность дефекта, причем

$$b = -\frac{\Delta M}{M_0} \frac{\gamma_G E_{vib}}{\Omega_0 C_{11}}.$$

ПРИЛОЖЕНИЕ 2

Как отмечалось, расчеты для лития выполнены были в рамках микроскопической многоэлектронной теории Бровмана—Кагана. При этом, во-первых, локальный псевдопотенциал «голового» иона выбирался в форме

$$v_0(q) = -\frac{4\pi}{q^2} \left[Z_0 e^2 \cos(qr_0) + v_0 r_0 \left(\frac{\sin(qr_0)}{qr_0} - \cos(qr_0) \right) \right] \exp(-\chi q^2),$$

где $\chi = 0.03(2k_F)^{-2}$. Эффективное межэлектронное взаимодействие рассматривалось в приближении Гелдарта—Тейлора [17]. Параметры $v_0(q)$ для Li найдены были ранее: $v_0 = -0.262$ и $r_0 = 0.825 \text{ \AA}$ [18].

Частоты и векторы поляризации фононных мод гармонической решетки лития определялись с использованием динамической матрицы в стандартной форме (см., например, [9]):

$$D_{\alpha\beta}(\mathbf{q}) = \frac{4\pi Z_0^2 e^2}{M_0 \Omega_0} \sum_{\mathbf{B}} \left[\Psi_{2,\alpha\beta}(\mathbf{q} + \mathbf{B}) - \sum_{\mathbf{B} \neq 0} \Psi_{2,\alpha\beta}(\mathbf{B}) \right] + Z_0^2 e^2 \sum_{\mathbf{n} \neq 0} [\exp(\mathbf{qR}_n^{(0)}) - 1] \left[\frac{R_n^{(0),\alpha} R_n^{(0),\beta}}{R_n^{(0)2}} F_1(R_n^{(0)}) - \delta_{\alpha\beta} F_2(R_n^{(0)}) \right].$$

Здесь \mathbf{B} — вектор обратной решетки. Фактор $\Psi(q)$ характеризует вклады в динамическую матрицу кулоновского и косвенного (посредством электронов проводимости) парного межионного взаимодействий. Он имеет вид

$$\Psi_{2,\alpha\beta}(q) = q^\alpha q^\beta \Psi(q), \quad \Psi(q) = \frac{4\pi Z_0^2 e^2}{\Omega_0 q^2} \exp\left(-\frac{q^2}{4\eta}\right) - \Omega_0 v_0^2(q) \frac{\Pi(q)}{\epsilon(q)},$$

где $\epsilon(q) = 1 + 4\pi e^2 \Pi(q)/q^2$ — диэлектрическая функция с поляризационным оператором Π , а η — параметр Эвальда. Связанные с кулоновским взаимодействием величины $F_{1,2}(R)$ можно записать следующим образом:

$$F_1(R) = \frac{3 \operatorname{erf}(\sqrt{\eta} R)}{R^3} + 2 \sqrt{\frac{\eta}{\pi}} \exp(-\eta R^2) \left(\frac{3}{R^2} + 2\eta \right),$$

$$F_2(R) = \frac{\operatorname{erf}(\sqrt{\eta} R)}{R^3} + 2 \sqrt{\frac{\eta}{\pi}} \frac{\exp(-\eta R^2)}{R^2},$$

$$\operatorname{erf}(x) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x dz \exp(-z^2).$$

Для фурье-компоненты силового параметра третьего порядка использовалось представление вида

$$\Phi_{3,\mathbf{k},\mathbf{q},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\alpha\beta\gamma} = \sum_{\mathbf{q}} [\Psi_{3,\alpha\beta\gamma}(\mathbf{k} + \mathbf{B}) + \Psi_{3,\alpha\beta\gamma}(\mathbf{q} + \mathbf{B}) - \Psi_{3,\alpha\beta\gamma}(\mathbf{k} + \mathbf{q} + \mathbf{B})] + Z_0^2 e^2 \sum_{\mathbf{n} \neq 0} \{ [R_\alpha R_\beta R_\gamma \bar{F}_3(R) + (R_\alpha \delta_{\beta\gamma} + R_\beta \delta_{\alpha\gamma} + R_\gamma \delta_{\alpha\beta}) \bar{F}_2(R)] \times [\sin(\mathbf{kR} + \mathbf{qR}) - \sin(\mathbf{kR}) - \sin(\mathbf{qk})] \}_{R=R_n^{(0)}}.$$

С целью сокращения записи здесь положено

$$\Psi_{3,\alpha\beta\gamma}(\mathbf{q}) = q_\alpha q_\beta q_\gamma \Psi(\mathbf{q}),$$

$$\bar{F}_n(R) = \left(\frac{1}{R} \frac{d}{dR} \right)^n \bar{F}(R), \quad \bar{F}(R) = \frac{2}{R} \sqrt{\frac{\eta}{\pi}} \int_R^{\infty} \exp(-\eta z^2) dz.$$

Обратим внимание на то, что в [15] получены в явной форме выражения для силовых параметров, которые позволяют учесть многочастичное межзонное взаимодействие.

Литература

1. M. A. Asen-Palmer, N. Bartcovsky, E. Gmelin, M. Cardona, A. P. Zhernov, A. V. Inushkin, A. N. Toldenkov, V. I. Ozhogin, K. M. Itoh, and E. E. Haller, *Phys. Rev. B* **56**, 9431 (1997).
2. И. Я. Померанчук, *ЖЭТФ* **35**, 992 (1958).
3. Ю. М. Каган, А. П. Жернов, *ЖЭТФ* **53**, 1744 (1967).
4. Г. Лейбфрид, Э. Людвиг, *Теория ангармонических эффектов в кристаллах*, Изд-во иностр. лит., Москва (1963).
5. Г. Лейбфрид, Н. Бройер, *Точечные дефекты в металлах*, Мир, Москва (1981).
6. Н. Ашкрофт, Н. Мермин, *Физика твердого тела*, Мир, Москва (1979).
7. P. G. Klemens and A. A. Maradudin, *Phys. Rev.* **123**, 804 (1961).
8. Дж. Займан, *Электроны и фононы*, Изд-во иностр. лит., Москва (1963).
9. В. Хейне, М. Коэн, Д. Уэйр, *Теория псевдопотенциала*, Мир, Москва (1973).
10. Е. Г. Бровман, Ю. М. Каган, *УФН* **112**, 369 (1974).
11. А. П. Жернов, Ю. М. Каган, *ФТТ* **50**, 1107 (1978).
12. Z. Popovic, J. P. Carbotte, and G. R. Piercy, *J. Phys. F* **3**, 1008 (1973).
13. Ю. М. Каган, А. П. Жернов, *ЖЭТФ* **50**, 1109 (1966).
14. Ю. В. Шарвин, *ЖЭТФ* **49**, 1217 (1963).
15. A. P. Zhernov and T. A. Mamedov, *Phys. Stat. Sol. (b)* **103**, 477 (1981).
16. М. А. Кривоглаз, *Теория рассеяния рентгеновских лучей и тепловых нейтронов неидеальными кристаллами*, Наука, Москва (1967).
17. D. J. W. Geldart and R. Taylor, *J. Rhys.* **48**, 155 (1970).
18. А. П. Жернов, Д. Шолт, *ФТТ* **19**, 3400 (1977).