

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ВЕРОЯТНОСТИ РАССЕЯНИЯ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА В МОЛИБДЕНЕ И ВОЛЬФРАМЕ

В. В. Бойко, В. Ф. Гантмахер, В. А. Гаспаров

Из исследований температурных зависимостей амплитуд линий радиочастотного размерного эффекта, проведенных в интервале 1,5—12° К, получена экспериментальная информация о вероятности рассеяния носителей заряда на различных участках поверхности Ферми молибдена и вольфрама. Установлено, что температурозависящая часть частоты столкновений в молибдене пропорциональна T^2 вплоть до 12° К. В вольфраме квадратичная зависимость наблюдается только ниже примерно 6° К; выше этой температуры имеет место закон T^3 . Сделана попытка проанализировать возможный вклад в наблюдаемые температурные зависимости электрон-электронного рассеяния. При этом проводится сравнение с непереходными металлами на базе известной информации об электронном спектре молибдена и вольфрама, в частности о форме их поверхностей Ферми.

Введение

Многочисленные измерения электросопротивления чистых металлов при низких температурах можно просуммировать следующим образом.

В непереходных металлах сопротивление меняется с температурой в большинстве случаев по закону $\rho = \rho_0 + bT^5$. Отклонения от этого закона довольно хорошо изучены. Чаще всего они бывают связаны с вымерзанием процессов переброса [1] или процессов «междолинного» электрон-фононного рассеяния с одного участка поверхности Ферми на другой, а также с особенностями топологии поверхности Ферми [2], с интерференцией рассеяния на примесях и фононах [3], с влиянием поверхности кристалла [4]. Отклонения эти, однако, сравнительно невелики, и обычно считается, что температурозависящая часть сопротивления обусловлена рассеянием электронов на фононах.

В переходных металлах картина существенно иная. Если отвлечься от различных осложняющих обстоятельств, типа отмечавшихся выше, то можно утверждать, что при низких температурах в чистых переходных металлах имеет место зависимость $\rho - \rho_0 = aT^2 + bT^5$ (см., например, работы [5, 6], в которых имеются обширные ссылки на предыдущие исследования). Квадратичный член в $\rho(T)$ обычно связывают с электрон-электронным рассеянием, поскольку известно, что частота электрон-электронных столкновений пропорциональна T^2 [7].

Объяснение того, почему эти столкновения проявляются в переходных металлах и не проявляются в непереходных, основываются обычно на двухзонной модели переходных металлов Мотта [8]. Эта модель предполагает наличие двух параболических незаполненных зон: одной с эффективной массой и скоростью, близкими к соответствующим величинам для свободных электронов (электронная s -зона), и другой с высокой плотностью состояний и соответственно тяжелой массой и малой скоростью на поверхности Ферми (дырочная d -зона). Ответственными за перенос заряда в этой модели являются легкие носители, а тяжелые дают слабый вклад в ток, но являются центрами рассеяния для легких.

Нам кажется, однако, и мы постараемся показать это ниже, что для противопоставления на основании этой модели вольфрама и молибдена непереходным металлам нет достаточных оснований, и что для наблюдаемой квадратичной зависимости $\rho(T)$ нужно искать иное объяснение. В качестве первого шага в этом направлении мы предприняли измерения в вольфраме и молибдене температурной зависимости вероятности рассеяния для различных групп носителей (находящихся на различных участках поверхности Ферми), используя для этой цели радиочастотный размерный эффект.

Как известно, линии размерного эффекта формируются сравнительно узким слоем орбит на поверхности Ферми, расположенным вблизи орбиты с экстремальным размером, а амплитуда линии пропорциональна количеству электронов из этого слоя, прошедших без рассеяния путь от одной стороны пластины до другой. Поэтому температурная зависимость каждой отдельной линии дает информацию о рассеянии электронов из состояний вдоль соответствующей экстремальной орбиты.

Размерный эффект уже неоднократно использовался для изучения рассеяния на фононах в непереходных металлах. При этом измеряемая величина ν_{ph} оказывается пропорциональной T^3 , а не T^5 , поскольку в размерном эффекте измеряется полная, а не транспортная частота столкновений, обратная величина которой ν_{ph}^{-1} есть среднее время между двумя элементарными актами столкновения с фононами [9, 10].

Результаты аналогичных измерений для вольфрама и молибдена изложены в следующем разделе.

Эксперимент

Измерения амплитуды линий размерного эффекта проводились по записям производных по магнитному полю от действительной части поверхностного импеданса $\partial R / \partial H$ и $\partial^2 R / \partial H^2$ в диапазоне частот 0,8—8 МГц в температурном интервале 1,5—12° К. Установка и методика измерений, а также методы изменения и измерения температуры и приготовления образцов описаны в [10—12]. Чистота исходных монокристаллических слитков, из которых вырезались образцы, характеризуется отношением $\rho(293^\circ \text{ К}) / \rho(4.2^\circ \text{ К}) \approx 1,8 \cdot 10^4$ для молибдена и $\approx 3,5 \cdot 10^4$ для вольфрама.

Если за время свободного пробега электрон успевает совершить только пол-оборота по своей траектории, то амплитуда линии A связана с зависимой от температуры частью эффективной частоты столкновений $\nu(T)$ формулой, очень удобной для измерений: $A \propto e^{-\pi\nu/\Omega}$ при $\nu \pm \nu_0 > \Omega$, где ν_0 — частота столкновений со статическими дефектами, $\Omega = eH / mc$ — циклотронная частота, e и m — заряд и циклотронная масса электрона, c — скорость света. Для соблюдения условия $\nu \pm \nu_0 > \Omega$ требуется проводить эксперименты на возможно более толстых образцах. Образцы молибдена имели толщину 0,52 и 0,38 мм, вольфрама — 0,65 и 0,89 мм. Измерения проведены в поле H , параллельном поверхности образца, причем в процессе изменения температуры контролировалась неизменность формы и ширины линий.

Поверхности Ферми вольфрама и молибдена хорошо известны [13—15] (см. рис. 1). Они состоят из электронного октаэдра Γ , соединенного с шестью сфероидами S , дырочного октаэдра H и шести дырочных эллипсоидов N (мы для удобства обозначили эти поверхности буквами, причем почти во всех случаях тем же, что и точки высокой симметрии зоны Бриллюэна, находящиеся в их центрах). Кроме того, в молибдене имеются еще шесть небольших электронных линз L (см. рис. 2). Все поверхности замкнуты, суммарный объем дырочных поверхностей в точности равен объему электронных, общее количество носителей равно двум на атом.

Нами были исследованы температурные зависимости восьми линий в каждом из металлов; орбиты указаны в табл. 1.

В молибдене частота столкновений во всех случаях оказалась пропорциональной T^2 вплоть до 12°K (см. рис. 3). Коэффициент пропорциональности α , точность определения которого мы оцениваем примерно в 10%, по-видимому, максимален на перешейке между Γ - и S -поверхностями. Это следует из того, что величина α для орбиты, проходящей через перешеек (см. рис. 2), оказалась существенно большей, чем для орбит, целиком расположенных на Γ - или S -поверхностях. Аналогичная картина имела место на меди, где частота столкновений с фононами у электронов на перешейках в 10 раз больше, чем у электронов на центральной части поверхности [19]. Конечно, вывод о сильном рассеянии на перешейке неоднозначен. Вообще говоря, область сильного рассеяния может быть и окрестность точки O на сфероидах (см. рис. 2).

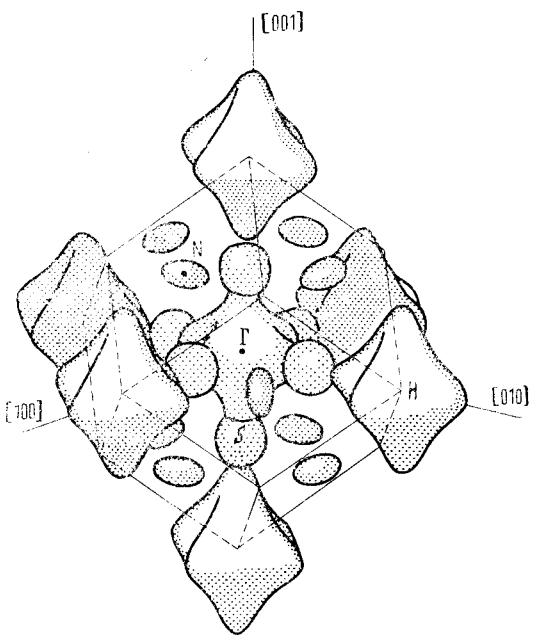


Рис. 1. Поверхность Ферми молибдена и вольфрама [16]

Результаты по вольфраму изложить сложнее. Во всем температурном интервале экспериментальные точки не удается описать ни квадратичной, ни кубической зависимостью от T (см. рис. 4). Для всех изучавшихся орбит при $T \lesssim 6^\circ \text{K}$ выполнялась зависимость $\nu = \alpha T^2$, а при $T \gtrsim 6^\circ \text{K}$ — зависимость $\nu = \beta T^3$. Помимо величин α и β , определенных из графиков типа приведенных на рис. 4, в табл. 1 да-

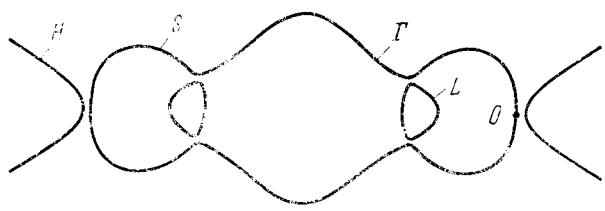


Рис. 2. Центральное сечение поверхности Ферми молибдена плоскостью (110). В вольфраме сечение аналогично, однако там нет линз L

ны также результаты обработки экспериментальных точек методом наименьших квадратов по формуле $\nu = \alpha T^2 + \beta T^3$. Такая обработка предполагает наличие двух независимых механизмов рассеяния — на электронах и на фононах.

Обсуждение

Поскольку для всех отдельных участков поверхностей Ферми известны размеры [11, 14] и циклотронные массы [16-18], нетрудно получить средние значения скоростей v , определяющие плотность состояний на каждом

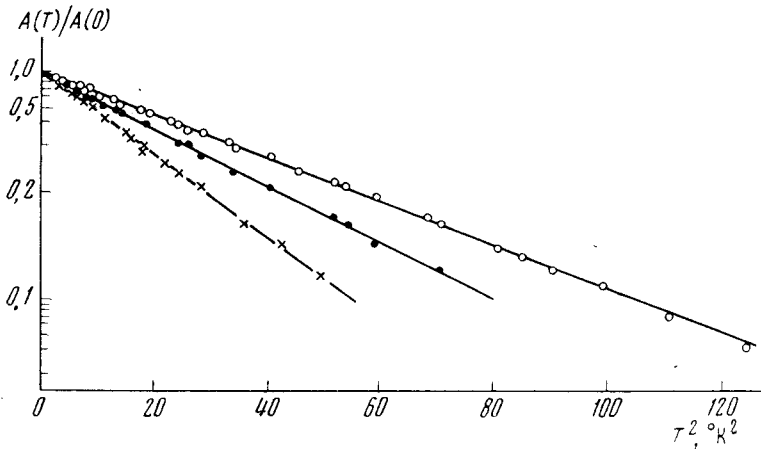


Рис. 3. Пример температурной зависимости амплитуд линий размерного эффекта на образце молибдена толщиной $d = 0,52$ м.м.; частота $\omega / 2\pi = 4,6$ Мгц. \circ , \bullet — зависимости для линий от центральных сечений поверхностей соответственно H и Γ при $H \parallel [111]$; \times — линия от сечения сфероида S при $H \parallel [110]$

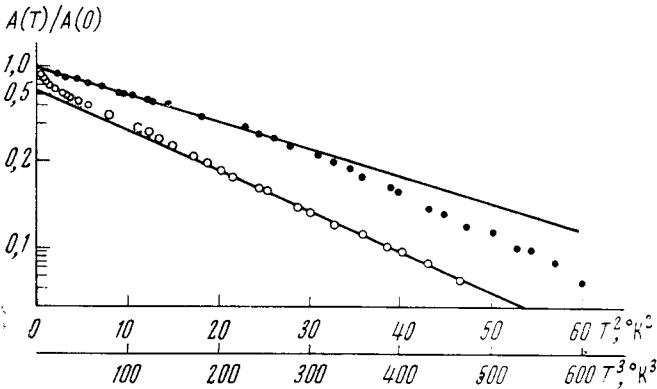


Рис. 4. Пример графиков логарифма приведенной амплитуды линий размерного эффекта на вольфраме, отложенного в виде функции T^2 (значки \bullet) и T^3 (значки \circ); $d = 0,80$ м.м., $\omega / 2\pi = 3,8$ Мгц, $H \parallel [110]$, орбита проходит по поверхностям Γ и S (см. рис. 2)

из участков: $g_i = (4\pi^3 \hbar v_i)^{-1} S_i$ (S_i — площадь соответствующего участка поверхности в k -пространстве). Как видно из табл. 1, различие в значениях v_i сравнительно невелико и не дает оснований говорить об узких зонах-ловушках. Об этом же свидетельствуют и данные по электронной теплоемкости [19]. Вычисленная из них суммарная плотность состояний $G = \sum g_i$, равная $G_W = 1,9 \cdot 10^{34}$ эрг $^{-1} \cdot$ см $^{-3}$ для вольфрама и $G_{Mo} = 3,2 \cdot 10^{34}$ эрг $^{-1} \cdot$ см $^{-3}$ для молибдена, оказывается того же порядка, что и у непереходных металлов (например, у меди $G_{Cu} = 1,6 \cdot 10^{34}$ эрг $^{-1} \cdot$ см $^{-3}$, у алюминия $G_{Al} = 2,2 \cdot 10^{34}$ эрг $^{-1} \cdot$ см $^{-3}$, у свинца $G_{Pb} = 2,7 \cdot 10^{34}$ эрг $^{-1} \cdot$ см $^{-3}$) (см. табл. 2).

Сравнивая вклад электрон-электронных столкновений в электросопротивление переходных металлов и, например, щелочных, ссылаются на различную роль нормальных столкновений. Поскольку в щелочном металле затухание тока должно сопровождаться диссипацией импульса, нормаль-

Таблица 1

Поверхность	Направление Н	m/m_0	$v_i \cdot 10^{-8}$, см/сек	$\alpha \cdot 10^{-7}$, °K ⁻² .сек ⁻¹	$\beta \cdot 10^{-7}$, °K ⁻³ .сек ⁻¹	$\alpha' \cdot 10^{-7}$, °K ⁻² .сек ⁻¹	$\beta' \cdot 10^{-7}$, °K ⁻³ .сек ⁻¹
Молибден, электронные поверхности							
Г Г Г-S S	[121]	1,38	0,6	1,6			
	[111]	1,08		1,9			
	[110]	2,50		2,9			
	[110]	0,80		2,2			
Молибден, дырочные поверхности							
Н Н Н N	[121]	0,85	0,9	2,3			
	[111]	0,80		2,1			
	[110]	0,88		2,6			
	[110]	0,40		3,6			
Вольфрам, электронные поверхности							
Г Г Г-S S	[121]	0,88	0,7	1,9	0,17	1,8	0,03
	[111]	0,83		1,7	0,18	1,4	0,05
	[110]	1,83		2,0	0,29	0,8	0,22
	[110]	0,56		2,1	0,28	1,3	0,14
Вольфрам, дырочные поверхности							
Н Н Н N	[121]	0,63	1,2	1,4	0,12	1,4	0,02
	[111]	0,57		1,0	0,10	0,50	0,06
	[110]	0,67		1,5	0,16	0,3	0,14
	[110]	0,27		0,6	1,2	0,95	

Таблица 2

Плотность состояний* и дебаевская температура вольфрама и молибдена и некоторых переходных металлов из данных по теплоемкости [19]

	Металл															
	W	Mo	Li	Na	K	Cu	Ag	Be	Mg	Zn	Cd	Hg	Al	In	Sn	Pb
$10^{-34} G$	1,9	3,2	2,1	0,9	0,7	1,6	1,0	0,7	1,5	1,1	0,8	2,4	2,2	1,7	1,8	2,8
Θ , °K	310	380	150	160	100	310	220	1030	330	240	220	90	390	130	170	90

* Плотность состояний приведена в эрг⁻¹.см⁻³.

ные электрон-электронные столкновения не могут давать вклада в электросопротивление. В матричный же элемент столкновений с перебросом входит дополнительный, по-видимому довольно маленький, интерференционный множитель (см. [20], гл. 4 и 9). С другой стороны, если в металле среди носителей есть и электроны, и дырки, то ток может быть отличен от нуля и при равном нулю полном импульсе системы. В этих условиях столкновения электронов с дырками, являющиеся, по сути дела, нормальными столкновениями, дают вклад в электросопротивление и общая роль электрон-электронных столкновений должна быть существенно большей.

По этому поводу можно заметить следующее. Во-первых, нормальные, но «межзонные» столкновения должны быть существенны не только в переходных металлах, но в равной степени, например, в кадмии, цинке или олове, где число электронов равно числу дырок. Между тем, сопротив-

ление этих металлов меняется по закону Блоха. Во-вторых, можно сослаться на измерения методом радиочастотного размерного эффекта, амплитуда линий которого одинаково чувствительна ко всем столкновениям — как к нормальным, так и с перебросом. Ни на одном из непереходных металлов квадратичного члена в частоте столкновений не обнаружено. (Правда, квадратичная зависимость $\nu \propto T^2$ имеет место в полуметаллах висмуте и сурьме, но там есть весьма веские основания считать, что это все же столкновения с фононами, а необычная степень T^2 вместо T^3 для полной частоты столкновений обусловлена специфической формой поверхностей Ферми в полуметаллах [9].)

Таким образом, разница между вольфрамом и молибденом, с одной стороны, и непереходными металлами, с другой, действительно пуждается в специальном объяснении. Первая, в каком-то смысле тривиальная, возможность объяснения заключается в том, что эта разница может возникнуть в результате случайных численных соотношений между двумя параметрами: дебаевской температурой Θ и плотностью состояний G . Первый из них определяет частоту электрон-фононных столкновений $\nu_{\text{э-ф}} \sim \sim \hbar^{-1} kT (T/\Theta)^2$; k — постоянная Больцмана. (Имеется в виду полная частота электрон-фононных столкновений. Для электрон-электронных столкновений различие между полной и транспортной частотами несущественно, так как рассеяние не является малоугловым.) Параметр G определяет частоту электрон-электронных столкновений $\nu_{\text{э-э}}$, так как вместе с G растет и число n_2 рассеивающих электронов и число n_3 возможных конечных состояний: $n_2 \approx n_3 \approx kTG$ (подробные формулы см. в Приложении).

Итак, в принципе возможно, что электрон-электронные столкновения проявляются в вольфраме и молибдене из-за высокой дебаевской температуры ($\Theta_{\text{W}} = 310^\circ \text{K}$, $\Theta_{\text{Mo}} = 380^\circ \text{K}$), уменьшающей частоту столкновений с фононами. Действительно, как видно из табл. 2, и у вольфрама, и у молибдена довольно выгодное для электрон-электронных столкновений сочетание значений G и Θ , причем у молибдена оно более выгодно, чем у вольфрама. Имеются, однако, и контрдоводы. Например, измерения на меди показали, что в ней, несмотря на высокую дебаевскую температуру $\Theta_{\text{Cu}} = 310^\circ \text{K}$, на любых участках поверхности Ферми $\nu \propto T^3$, во всяком случае при $T \lesssim 3^\circ \text{K}$ [10].

С точки зрения выяснения роли соотношения параметров G и Θ очень интересен алюминий, потому что у него и плотность состояний, и дебаевская температура выше, чем у вольфрама. В области гелиевых температур показатель степени в зависимости $\rho(T)$ у алюминия несомненно меньше пяти [21, 22], однако, по-видимому, и квадратичный закон выполняется не столь хорошо, как у вольфрама. Во всяком случае, единого мнения о природе температурной зависимости сопротивления алюминия сейчас еще нет. Вместе с тем для алюминия нет и измерений частот столкновений для отдельных групп электронов.

Наряду с этим может иметься и какая-то особая причина, приводящая к зависимости $\nu \propto T^2$ в переходных металлах, во всяком случае, в вольфраме и молибдене. Эту причину следует искать не в самом электронном спектре: поверхности Ферми этих металлов не обладают какими-либо качественными отличиями. Различие скорее в генезисе спектра у переходных и непереходных металлов. В непереходных металлах спектр получается в приближении слабо связанных электронов и электронные ψ -функции — почти непромодулированные плоские волны. Для спектров же переходных металлов исходными являются атомные ψ -функции, а расчет ведется в приближении сильной связи. Поэтому блоховский модулирующий множитель $u(\mathbf{r})$ в электронных ψ -функциях переходных металлов является сильно осциллирующим. Это может оказаться существенным для

матричных элементов как электрон-электронного, так и электрон-фононного рассеяний.

Авторы благодарны Ю. М. Кагану за ценные дискуссии, Г. Н. Ландышевой за помощь в измерениях.

ПРИЛОЖЕНИЕ

В работе [10] были выведены соотношения, связывающие эффективную частоту столкновений, измеряемую в размерном эффекте, с матричным элементом электрон-фононного рассеяния. Здесь мы приведем подобные же соотношения и для электрон-электронных столкновений.

Рассмотрим рассеяние электрона с энергией ϵ_1 и волновым вектором k_1 на электроне (ϵ_2, k_2) . Поскольку при аномальном скин-эффекте добавка к функции распределения Δf отлична от нуля лишь вдоль узкого пояса на поверхности Ферми, можно считать, что функции распределения рассеивающего электрона f_2 , а также конечных состояний f_3 и f_4 равновесны: $f_i = [\exp(\epsilon_i - \epsilon_F) / kT + 1]^{-1}$; ϵ_F — энергия Ферми. В экспериментах измеряется скорость изменения за счет столкновений величины Δf . Изменение это происходит как за счет изменения числа уходов из состояния k_1 , так и за счет изменения (вследствие принципа Паули) числа приходов в состояние k_1 из других состояний. Полное изменение, нормированное на один электрон, пропорционально функции

$$\Phi(\epsilon_1) = f_2(1 - f_3)(1 - f_4) + f_3f_4(1 - f_2) = f_2(1 - f_3 - f_4) + f_3f_4.$$

Полная частота ν_e рассеяния электрона k_1 равна квадрату матричного элемента взаимодействия M_{12}^{34} , умноженному на $\Phi(\epsilon_1)$, проинтегрированному по всем состояниям рассеивающего электрона k_2 и по всем конечным состояниям k_3 и k_4 , с учетом законов сохранения энергии и квазиимпульса. После замены переменных $d^3k_i = dS_i d\epsilon_i / \hbar v_i$ (dS_i — элемент изоэнергетической поверхности, v_i — скорость электрона) интегрирование распадается на две части: «энергетическую» и «геометрическую». Интеграл по энергиям можно вычислить:

$$J(\epsilon_1) = \iiint \Phi(\epsilon_i) \delta(\epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_3 - \epsilon_4) d\epsilon_2 d\epsilon_3 d\epsilon_4 = \frac{(kT)^2}{2} \left[\pi^2 + \left(\frac{\epsilon_1 - \epsilon_F}{kT} \right)^2 \right]$$

и сразу же усреднить по энергии ϵ_1 электронов, входящих в добавку к функции распределения Δf . Поскольку $\Delta f \sim \partial f / \partial \epsilon$, то

$$\mathcal{J} = \int J(\epsilon) \frac{\partial f}{\partial \epsilon} d\epsilon / \int \frac{\partial f}{\partial \epsilon} d\epsilon = \frac{2}{3} \pi^2 (kT)^2.$$

Интеграл по поверхности Ферми

$$I(k_1) = \iiint (M_{12}^{34})^2 \delta(k_1 + k_2 - k_3 - k_4 - K) \frac{dS_2 dS_3 dS_4}{v_2 v_3 v_4}$$

(K — вектор обратной решетки) содержит в себе форму поверхности Ферми и распределение скоростей на ней, а также матричный элемент взаимодействия.

Параметры поверхности Ферми в ряде переходных металлов уже сейчас можно считать известными. Поэтому, если будет доказано, что в экспериментах, типа описанных выше, наблюдаемый квадратичный рост объясняется рассеянием на электронах, то в принципе из таких экспериментов можно будет получить более прямую информацию об электрон-электронном взаимодействии, чем, например, из данных по электросопротивлению.

Литература

- [1] F. W. Ekin, V. W. Maxfield. Phys. Rev. B, 4, 4215, 1971.
 [2] Р. Н. Гуржи, А. И. Копелиович. ЖЭТФ, 61, 2514, 1971.
 [3] Ю. Н. Каган, А. П. Жернов. ЖЭТФ, 60, 1832, 1971.
 [4] М. Я. Азбель, Р. Н. Гуржи. ЖЭТФ, 42, 1632, 1962.
 [5] D. K. Wagner, J. C. Garland, R. Bowers. Phys. Rev. B, 3, 3141, 1971.
 [6] А. В. Волькенштейн, В. А. Новоселов, В. Е. Старцев. ЖЭТФ, 60, 1078, 1971.
 [7] Л. Д. Ландау, И. Я. Померанчук. ЖЭТФ, 7, 379, 1937.
 [8] N. F. Mott. Proc. Roy. Soc. (London), A156, 368, 1936.
 [9] В. Ф. Гантмахер, В. Т. Долгополов. ЖЭТФ, 60, 2260, 1971.
 [10] В. Ф. Гантмахер, В. А. Гаспаров. ЖЭТФ, 64, 1712, 1973.
 [11] В. В. Бойко, В. А. Гаспаров, И. Г. Гвердцители. ЖЭТФ, 56, 489, 1969.
 [12] В. В. Бойко, В. А. Гаспаров. ЖЭТФ, 61, 1976, 1971.
 [13] T. L. Loucks. Phys. Rev., 139, A1181, 1965; 143, 506, 1966.
 [14] В. В. Бойко, В. А. Гаспаров. ЖЭТФ, 61, 2362, 1971.
 [15] R. D. Girvan, A. V. Gold, R. A. Phillips. J. Phys. Chem. Sol., 29, 1485, 1968.
 [16] W. M. Walsh, Jr. Solid State Physics, 1, Electrons in Metals, ed. F. P. Cochran and R. R. Haering, New York: Gordon and Breach, 1969.
 [17] R. Herrmann. Phys. Stat. Sol., 25, 427, 1968.
 [18] R. Herrmann, H. Krüger. Phys. Stat. Sol., 41, 99, 1970.
 [19] К. А. Гсхнейднер. Sol. St. Phys., 16, 275, 1964.
 [20] J. M. Ziman. Electrons and Phonons, Clarendon Press, 1960 (перевод: Дж. Займан. Электроны и фононы, ИИЛ, 1962).
 [21] F. C. Garland, R. Bowers. Phys. Kondens. Mat., 9, 36, 1969.
 [22] F. R. Fickett. Cryogenics, 11, 349, 1971.

TEMPERATURE DEPENDENCE OF THE PROBABILITY
FOR SCATTERING OF CHARGE CARRIERS IN MOLYBDENUM
AND TUNGSTEN

V. V. Boiko, V. F. Gantmakher, V. A. Gasparev

Experimental information on the probability for scattering of charge carriers at various sections of the Fermi surface of molybdenum and tungsten is obtained in investigations of the temperature dependences of the radio-frequency size effect line amplitudes carried out in the 1.5–12° K range. The temperature-dependent part of the collision frequency for molybdenum is found to be proportional to T^2 up to 12° K. A quadratic dependence is observed in tungsten only below about 6° K; a T^3 law is observed above this temperature. An attempt is made to analyze the possible contribution of electron-electron scattering to the observed temperature dependences. On basis of available information on the electron spectra of molybdenum and tungsten and on the shape of their Fermi surfaces, a comparison is carried out with nontransition metals.