Zeitschrift:	Helvetica Physica Acta
Band:	41 (1968)
Heft:	6-7
Artikel:	Abweichungen von der Matthiessenschen Regel in hochreinem Rubidium bei tiefen Temperaturen
Autor:	Mayer, H. / Schmider, P.
DOI:	https://doi.org/10.5169/seals-113969

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. <u>Mehr erfahren</u>

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. <u>En savoir plus</u>

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. <u>Find out more</u>

Download PDF: 01.08.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Abweichungen von der Matthiessenschen Regel in hochreinem Rubidium bei tiefen Temperaturen

von H. Mayer und P. Schmider

Physikalisches Institut der T. U. Clausthal (DBR)

(2. V. 68)

Summary. The size effect on the resistance of thin wires of the highly purified alkali metal Rb in zero magnetic field and the residual resistance have been investigated at liquid He temperatures. The results permit conclusions to be drawn as regards the contribution of the 'Umklapp-processes' and the mechanisms of electron scattering by metal surfaces.

I. Einleitung

Die Erscheinung, dass der spezifische Widerstand ϱ der Metalle zunimmt, wenn die Grösse der Messprobe in einer Dimension – dünne Schicht – oder in zwei Dimensionen – dünner Draht – einen bestimmten, allerdings auch von der Temperatur abhängigen Wert unterschreitet, wird bekanntlich dahingehend gedeutet, dass bei kleinen Dimensionen des Metalls die gegenüber der Streuung im Volumen sonst nicht beobachtbare Streuung der Leitungselektronen an den Grenzflächen einen mit abnehmender Dimension ansteigenden zusätzlichen Widerstand bewirkt.

Für diesen Fall kleiner, oder genauer gesagt, mit der mittleren freien Weglänge l der Leitungselektronen schon vergleichbarer Dimension d der Metallprobe muss die Matthiessen-Regel, die den spezifischen Widerstand sonst nur aus zwei Anteilen, einem temperaturunabhängigen $\varrho_{0,\infty}$ und einem temperaturabhängigen $\varrho_{i,\infty}(T)$, zusammensetzt, um einen dritten, von der Dimension d des Metalls abhängigen Anteil erweitert und also in der Form geschrieben werden:

$$\varrho(T, d) = \varrho_{0,\infty} + \varrho_{i,\infty}(T) + \varrho_F(d).$$
(1)

Untersuchungen von OLSEN [1] an dünnen In-Drähten bei tiefsten Temperaturen und analoge Ergebnisse von ANDREW [2] an Hg-Drähten haben nun gezeigt, dass Abweichungen von dieser Matthiessen-Regel auftreten. Ihre Messungen zeigten, dass auch der temperaturabhängige Anteil des Widerstandes $\varrho_i(T)$, der sogenannte «Idealwiderstand», vom Probendurchmesser abhängig wird.

Eine Möglichkeit für die Erklärung dieser Effekte schlug OLSEN [1] selbst vor, indem er neben den bekannten Streumechanismen im Festkörper die Existenz einer durch Elektron-Phonon-Stoss hervorgerufenen *temperaturabhängigen* Oberflächenstreuung postulierte. Wie BLATT und SATZ [3] in theoretischen Überlegungen dazu gezeigt haben, führt dieser Mechanismus tatsächlich zu einem von d und T abhängigen Widerstandsterm ϱ_{PF} folgender Gestalt:

$$(\varrho_{PF})^3 = 2 \pi (\varrho_\infty l)^2 \left(\frac{T}{\Theta}\right)^2 (\varrho_{i,\infty}(T)) \left(\frac{d}{2}\right)^{-2}$$
(2)

für: $l_i > d$.

Daraus folgt, dass die Matthiessen-Regel (1) durch einen weiteren, temperaturabhängigen Anteil zu erweitern und also in der Form

$$\varrho(T, d) = \varrho_{0,\infty} + \varrho_{i,\infty}(T) + \varrho_F(d) + \varrho_{PF}(T)$$
(3)

zu schreiben ist.

Untersuchungen des Widerstandsverhaltens dünner Drähte der hochreinen Alkalimetalle im Temperaturbereich des flüssigen He in Abhängigkeit vom Probendurchmesser *d*, die im Clausthaler Institut zur Ergänzung analoger Messungen an dünnen Schichten der hochreinen Alkalimetalle von MAYER und NOSSEK [4], HEINE [5] und GERMER [6] durchgeführt wurden, ergaben nun die Möglichkeit, die Untersuchungen von OLSEN an einem Metall, das im Verhalten seiner Leitungselektronen dem Modell der freien Elektronen nahezu vollkommen entspricht¹), durchzuführen und dabei die Beziehung (2) zu prüfen. Über die Ergebnisse dieser Messungen am Alkalimetall Rb wird im folgenden kurz berichtet.

II. Messanordnung und Durchführung der Messungen

Das bei den Untersuchungen benutzte Rb wurde durch eine im Vakuum durchgeführte Reduktion des Chlorides mit hochreinem, im Vakuum vordestilliertem Ca



Die Kapillaranordnung mit den Rb-Messdrähten der Durchmesser 0,2-0,3-1,0-1,0 mm.

¹) Siehe hierzu die Messergebnisse zum Halleffekt an hochreinem Rb von LANGEHEINE [7] und die Messergebnisse zu den optischen Konstanten des gleichen Rb von v. AUFSCHNAITER [8].

gewonnen und anschliessend bei dreimaliger UHV-Destillation weiter gereinigt und entgast. Danach wurde das Probenmaterial in ein Mehrfachkapillarsystem eindestilliert, dessen wesentliche Konstruktionsmerkmale (siehe Figur 1) kurz angegeben seien.

An einer Erweiterung G werden 4 Pyrex-Kapillarröhrchen K mit Durchmessern von 0,2 mm bis 1,0 mm angeschmolzen. An den unteren Kapillarenden sind je eine Strom- und eine Spannungselektrode aus dünnem Pt-Draht so eingelassen, dass keine Aufweitung des Kapillardurchmessers mehr erfolgt. Nach dem Füllen der Kapillaren und der gemeinsamen Erweiterung G mit Rb-Metall in der angedeuteten Weise wird das Probenmaterial der als «gerichtetes Erstarren» bekannten Temperaturbehandlung unterworfen. Dieses Verfahren dient der Herstellung einer möglichst einkristallinen Probe und bringt den Vorteil einer zusätzlichen Reinigung mit sich. Dabei wird von der bekannten Tatsache Gebrauch gemacht, dass an der Erstarrungsfront einer Schmelze Fremdatome weniger leicht eingebaut werden als gittereigene Atome. Die Schmelze führt also die Verunreinigungen in höherer Konzentration als der erstarrte Teil. In unserem Falle wurde die Erstarrungsfront von den Spitzen beginnend mit einer Geschwindigkeit von 7 mm/h zur Erweiterung am anderen Ende der Kapillaren geführt und die Prozedur 3 mal wiederholt.

Die Messung des elektrischen Widerstandes erfolgt nun in der Weise, dass – bei einer bestimmten Strombelastung – der Spannungsabfall über jeweils 2 Kapillaren gemessen wird, diese also in Reihe geschaltet sind. Bezeichnet man die bei einer bestimmten Temperatur an der *n*-ten Kapillare abfallende Spannung mit U_n und die im Experiment zwischen der *n*-ten und der *m*-ten Kapillare gemessene Spannung mit U_{nm} , so ergeben sich bei einem System von 4 Kapillaren folgende Bestimmungsgleichungen für die Unbekannten U_n :

$$U_n + U_m = U_{nm} \qquad 1 \leqslant n < m \leqslant 4.$$

Es handelt sich also um ein überbestimmtes lineares Gleichungssystem mit 6 Gleichungen für die 4 Unbekannten. Jedes U_n lässt sich auf $\binom{6}{4} = 15$ verschiedene Weisen aus dem Gleichungssystem berechnen, was mit Hilfe einer elektronischen Rechenmaschine geschah; dabei werden gleichzeitig Mittelwerte und Standardabweichungen ermittelt. Die hier beschriebene Messtechnik hat nun folgenden Vorteil: In die Messungen bei einer bestimmten Temperatur gehen nur die Summenspannungen von je 2 Kapillaren ein, die grösser sind als der Spannungsabfall an einer Kapillare allein und deshalb genauer gemessen werden können. Trotzdem kann der Spannungsabfall und, aus bekannter Geometrie, der spezifische Widerstand in jeder einzelnen Kapillare ermittelt werden, und zwar aus verschiedenen Wertekombinationen. Dadurch werden Fehler und Zufälligkeiten einer einzigen Messung ausgeschlossen. Mit dieser Methode ist eine wesentlich grössere Genauigkeit der erhaltenen Ergebnisse zu erzielen! Der Fehler ist selbst im Temperaturbereich des flüssigen He noch $\leq 1\%$.

Die Einstellung und Messung verschiedener Probentemperaturen erfolgte in einem geeigneten Kryostaten mit wahlweise flüssigem He-, H_2 - oder N_2 als Füllung.

Besondere Vorteile dieser Kapillar- und Messtechnik sind also:

1. Bei einer einzigen Destillation können gleichzeitig 4 oder mehr Rb-Proben unterschiedlichen Durchmessers, aber exakt gleicher Reinheit, hergestellt werden. Vol. 41, 1968

2. Der geschilderte Aufbau des Kapillarsystems erlaubt die als «gerichtete Erstarrung» bekannte Temperaturbehandlung der Proben.

3. Der in die Messung eingehende Spannungsabfall wird durch die Reihenschaltung der Kapillaren vergrössert und daher genauer messbar.

4. Es sind mehrere Messkombinationen möglich. Durch diese vergleichende Mehrfachmessung ist ebenfalls eine wesentlich grössere Genauigkeit zu erzielen.

III. Diskussion der Messergebnisse

Nach Extrapolation der Messwerte auf T = 0 °K und $d = \infty$ erhalten wir folgendes Ergebnis für den Restwiderstand:

$$\frac{\varrho \ (0^{\circ} \mathrm{K})}{\varrho \ (273, 2^{\circ} \mathrm{K})} = 0.95 \cdot 10^{-3} .$$

Die bisher von anderen Autoren am Alkalimetall Rb gemessenen Widerstandsverhältnisse sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Tabelle 1										
Jahr	Autor	Widerstandsverhältnis $\varrho(T)/\varrho(273,2^{\circ}\mathrm{K})$								
		4,2°K	1,64°K	1,25–1,13°K	0,78°K					
1928	McLennan, Niven, Wilhelm [9]	3 8,0 · 10− 3	-	-	_					
1930	Meissner, Voigt [10]	39,1 · 10− 3	-	38,0 · 10 ⁻³ 35,9 · 10 ⁻³ 34,6 · 10 ⁻³						
1948	Justi [11]	29,3 · 10 ⁻³ 13,3 · 10 ⁻³	··	-	12,4 · 10 ⁻³ 28,0 · 10 ⁻³					
1956	McDonald, White, Woods [12]	2,63 · 10-3	-	-	-					
1965	DUGDALE, PHILLIPS [13]	$1,62 \cdot 10^{-3}$	-	_	_					
1967	Eigene Messungen	1,57 · 10 ⁻³	0,98 · 10− 3	-	-					

Man ersieht daraus, dass das Probenmaterial tatsächlich als sehr rein und wohlgeordnet bezeichnet werden darf.

Für die Interpretation der Messergebnisse zur Dickenabhängigkeit des elektrischen Widerstandes wird die SONDHEIMER-DINGLE-Formel [14, 15] herangezogen, der zufolge die mittlere freie Weglänge l, der vom Durchmesser abhängige Widerstand $\varrho(d)$, der Widerstand des kompakten Materials ϱ_{∞} und der Durchmesser d der Pro ben wie folgt verknüpft sind:

$$\varrho(d) = \varrho_{\infty} + \frac{3}{4} \, \varrho_{\infty} \, \frac{l}{d} \, (1 - p) \,. \tag{4}$$

Der Faktor p charakterisiert den Streumechanismus. Extremwerte sind:

p = 1 spiegelnde Reflexion

p = 0 diffuse Reflexion.

Gemäss vielfältiger experimenteller Erfahrung, (siehe z.B. SONDHEIMER [14], MacDONALD [16]) ist die Streuung als überwiegend diffus, also p = 0 anzunehmen. Insbesondere auf Grund neuester Untersuchungen von Koch [17] ist gezeigt, dass spiegelnde Reflexion von Metallelektronen nur bei streifendem Einfall erfolgt. Zur Auswertung schreiben wir die dann noch verbleibende Beziehung in folgender Form:

$$\varrho(d) \ d = \varrho_{\infty} \ d + \frac{3}{4} \ \varrho_{\infty} \ l \tag{5}$$

und tragen das gemessene Produkt $\varrho(d) d$ gegen d für verschiedene Temperaturen auf (Figur 2).



Graphische Auswertung der Formel $\varrho(d) d = \varrho_{\infty} d + 3/4 \varrho_{\infty} l$.

Aus dem Anstieg der Geraden kann der Widerstand ρ_{∞} bei der jeweiligen Temperatur abgelesen werden, der Schnittpunkt mit der Ordinate liefert den gesuchten Wert des Produktes $\rho_{\infty} l$, und aus dem Schnittpunkt mit der Abszisse ist die mittlere freie Weglänge l zu entnehmen. Zur exakten Bestimmung dieser Werte ist aber die Zeichengenauigkeit nicht ausreichend, man wird vielmehr ein numerisches Auswerteverfahren heranziehen müssen. Hierbei werden die experimentellen Werte für $\rho(d)$ und d in die «Weglängenformel» eingesetzt und nach den Unbekannten ρ_{∞} und $\rho_{\infty} l$ aufgelöst. Die dazu notwendigen zwei Gleichungen findet man, indem man den Ansatz für «dicke» Kapillaren (d = 1,0 mm) und «dünne» Kapillaren (d = 0,2 mm) macht. Auf diese Weise erhalten wir folgenden gemittelten Wert

$$(\varrho_{\infty} l)_{exp} = 3.5 \cdot 10^{-11} \, \Omega \, \mathrm{cm}^2$$
.

Vol. 41, 1968

Nach ZIMAN [18] ist in der Näherung freier Elektronen das Produkt $\rho_{\infty} l$ mit der Zahl n der Elektronen pro cm³ folgendermassen verknüpft:

$$\frac{1}{\varrho_{\infty} l} = \left(\frac{8 \pi}{3}\right)^{1/3} \frac{e^2}{h} n^{2/3} . \tag{6}$$

Setzt man für n die Zahl der Atome pro cm³ ein, was nach Messungen des HALLeffektes an in gleicher Weise präpariertem Rb von LANGEHEINE [7] gerechtfertigt ist, so erhält man

$$(\varrho_{\infty} l)_{theor} = 3.2 \cdot 10^{-11} \ \Omega \ {
m cm}^2$$

Bei Widerstandsmessungen an auf Quarz aufgedampften Rb-Schichten im Temperaturbereich zwischen 60°K und 90°K findet NOSSEK [19] für das Produkt $\varrho_{\infty} l$ folgende Werte:

$$T = 90^{\circ}\text{K}: \ \varrho_{\infty} \ l = 2,8 \cdot 10^{-11} \ \Omega \text{ cm}^2,$$
$$T = 60^{\circ}\text{K}: \ \varrho_{\infty} \ l = 3,5 \cdot 10^{-11} \ \Omega \text{ cm}^2.$$

Die mit den beiden verschiedenen experimentellen Methoden, d.h. durch die Messungen an dünnen Schichten einerseits, an dünnen Drähten andererseits, gewonnenen Werte stimmen nicht nur untereinander, sondern auch mit dem aus dem Modell freier Elektronen errechneten sehr befriedigend überein.

In Tabelle 2 ist in Spalte 2 der gemessene «Idealwiderstand» $\varrho_{i,\infty}(T)$ für den Kapillardurchmesser von 1 mm eingetragen, der durch Weglängeneffekt fast nicht mehr beeinflusst ist; in Spalte 3 der durch Weglängeneffekt schon wesentlich erhöhte «Idealwiderstand» $\varrho_{i,d}(T)$; schliesslich in Spalte 4 die Werte für $\varrho_{PF}(T)$, die man findet, indem man für eine bestimmte Temperatur die Differenz $\varrho_{i,d}(T) - \varrho_{i,\infty}(T)$ bildet.

Abhängigkeit des «Idealwiderstandes» vom Drahtdurchmesser						
Temp. °K	$\varrho_{i,\infty}(n \ \Omega \ \mathrm{cm})$	$\varrho_{i,d}(n \ \Omega \ { m cm})$	$\varrho_{PF}(n \ \Omega \ { m cm})$			
1,64	0,07	0,10	0,03			
1,93	0,08	0,17	0,09			
2,20	0,40	0,56	0,16			

Tabelle 2

Man erkennt daraus, dass der vierte, durch Elektron-Phonon-Oberflächenstreuung verursachte Anteil in der Matthiessen-Regel (3) sich auch im Falle des Alkalimetalles Rb als temperaturabhängig erweist.

Ein quantitativer Vergleich mit der Formel von BLATT und SATZ ist möglich, weil diese keine unbestimmten Parameter enthält. In Figur 3 sind die berechneten und gemessenen Werte für den Temperaturbereich 1,64 °K $\leq T \leq 2,20$ °K graphisch dargestellt.

Man erkennt einen qualitativ ähnlichen Kurvenverlauf, allerdings sind die berechneten Werte im Mittel etwa viermal grösser als die gemessenen. Dieser Befund ist

66



Zur Abschätzung der Umklappprozesse.

nicht weiter verwunderlich, denn bei der Ableitung der Formel für ϱ_{PF} haben BLATT und SATZ Umklapprozesse nicht berücksichtigt. Es ist jedoch bekannt [20], dass sich in diesem Temperaturbereich der «Idealwiderstand» zusammensetzt aus Anteilen von Kleinwinkel- und Umklappstreuungen. Man schätzt nun – immer noch im Sinne der Arbeit von BLATT und SATZ – die Anzahl der Umklappereignisse ab, indem man in die Beziehung für ϱ_{PF} an Stelle von $\varrho_{i,\infty}$ nur solche Werte $\varrho_{i,\infty}^n$ einsetzt, die die Übereinstimmung zwischen gemessener und berechneter Kurve herstellen und die den tatsächlich vorkommenden Elektron-Phonon-Kleinwinkelstreuprozessen entsprechen. Der restliche Widerstandsanteil $\varrho_{i\infty}^{u}$ wird als durch Umklapprozesse entstanden gedacht. Die Anzahl der Umklapprozesse wird durch die Grenzflächen der Probe nicht beeinflusst. In unserem Falle sind die Kurven zur Deckung zu bringen für

$$\varrho_{i,\infty}^n(T) = \frac{\varrho_{i,\infty}(T)}{64}$$
$$\frac{\varrho_{i,\infty}^n(T)}{\varrho_{i,\infty}^u(T)} = \frac{1}{64}.$$

Daraus ergibt sich:

In dem genannten Temperaturbereich kann also das Widerstandsverhalten des Alkalimetalls Rb durch Berücksichtigung der Umklapprozesse als überwiegender Streumechanismus befriedigend gedeutet werden. Vol. 41, 1968

In einer theoretischen Arbeit befasst sich PFENNIG [20] mit dem Verhältnis von Umklapprozessen zur Kleinwinkelstreuung. Unter für Rb nicht sonderlich einschränkenden Voraussetzungen ergeben seine Berechnungen für dieses Metall

$$\frac{\varrho_{i,\infty}^n(T)}{\varrho_{i,\infty}^u(T)} = \frac{1}{74.6}.$$

Die gute Übereinstimmung beider Ergebnisse ist eine Stütze für die Interpretation der Messergebnisse in dieser Weise. Tatsächlich ist hier ein Weg vorhanden, die sonst im Experiment schwer zu trennenden Grössen $\varrho_{i,\infty}^n$ und $\varrho_{i,\infty}^u$ gesondert zu erfassen.

Literaturverzeichnis

- [1] J. L. OLSEN, Symposium of the Electric and Magnetic Properties of thin Metallic Layer, Leuven (Belgien), 1961.
- [2] E. R. ANDREW, Proc. phys. Soc. (L) 62, 77 (1949).
- [3] F. J. BLATT und H. G. SATZ, Helv. phys. Acta 33, 9, 1007 (1960).
- [4] H. MAYER und R. NOSSEK, Z. Phys. 138, 353 (1954).
- [5] K. HEINE, Diss. Clausthal 1963.
- [6] D. GERMER, Diss. Clausthal 1967.
- [7] J. LANGEHEINE, Diss. Clausthal 1968.
- [8] ST. V. AUFSCHNAITER, Diss. Clausthal 1966.
- [9] J. C. MCLENNAN, C. D. NIVEN und J. O. WILHELM, Philips Mag. [7] 6, 672 (1928).
- [10] W. MEISSNER und B. VOIGT, Ann. Phys. (Lpz.) 7, 761 (1930).
- [11] E. JUSTI, Ann. Phys. (Lpz.) 3, 183 (1948).
- [12] D. K. C. McDonald, G. K. WHITE und S. B. Woods, Proc. R. Soc. (L) A 235, 358 (1956).
- [13] J. S. DUGDALE und D. PHILLIPS, Proc. R. Soc. (L) A 287, 381 (1965).
- [14] E. H. SONDHEIMER, Adv. Phys. 1, 1 (1952).
- [15] R. B. DINGLE, Proc. R. Soc. (L) A 201, 544 (1950).
- [16] D. K. C. McDONALD, Electrical Conductivity of Metals and Alloys at Low Temperature, Hdb. Phys. 14, 137 (1956).
- [17] J. F. KOCH, Techn. Report Nr. 722, Univ. of Maryland, Dept. Phys. and Astronomy.
- [18] J. M. ZIMAN, Electron and Phonons (Carendon Press, Oxford 1960).
- [19] R. Nossek, Z. Naturf. 16a, 11 (1961).
- [20] H. PFENNIG, Z. Phys. 155, 332 (1959).

Die Frucht meiner zweijährigen Spezialisierung bei Herrn Prof. Dr. G. BUSCH

von M. Moldovanova

Halbleiterlaboratorium, Universität Sofia, Bulgarien

(1. V. 68)

Im Oktober des Jahres 1960 stellte ich mich Herrn Prof. Dr. GEORG BUSCH zur Spezialisierung in Festkörperphysik als Stipendiantin der UNESCO vor.

Er ist ein Meister des Experiments und flösst seinen zahlreichen Schülern Liebe und Achtung für die experimentelle Arbeit ein.