

## Движение пробной наночастицы в квантовом кристалле с узкой вакансионной зоной

А.А. Левченко, Л.П. Межов-Деглин, А.Б. Трусов

Институт физики твердого тела, пос. Черноголовка, Московская обл., 142432, Россия  
E-mail: mezhov@issp.ac.ru

Статья поступила в редакцию 8 января 2003 г.

Температурная зависимость коэффициента диффузии пробной частицы  $D_p(T)$  диаметром  $d_p$  несколько нанометров, которая перемещается в квантовом кристалле с узкой вакансионной зоной  $Q_v \ll T_{\text{melt}}$  за счет взаимодействия с тепловыми вакансиями, существенно изменяется с понижением температуры в области  $T_{\text{melt}} \geq T_{\text{tr}} \geq Q_v$ , где происходит переход от классического термоактивированного перескока вакансий к зонному движению делокализованных вакансионных. Более того, в переходной области  $T \approx T_{\text{tr}}$  коэффициент диффузии пробной частицы в вязком газе вакансионных может возрастать, если эффективная длина свободного пробега вакансионных мала по сравнению с диаметром частицы  $l_v \ll d_p$  и увеличивается с понижением температуры быстрее, чем уменьшается концентрация тепловых вакансий  $x_v \sim \exp(-E_v/T)$ . При  $T \ll T_{\text{tr}}$  в разреженном газе вакансионных, где  $l_v \gg d_p$ , коэффициент диффузии частицы  $D_p(T) \sim x_v S_{vp}$  убывает пропорционально  $x_v$ , если сечение неупругого рассеяния вакансионного на пробной частице  $S_{vp}$  слабо зависит от температуры. Развита модель может быть применена для описания диффузии положительных зарядов в кристаллах ГПУ  ${}^4\text{He}$ , выращенных при давлениях выше минимального давления затвердевания гелия, и отрицательных зарядов в кристаллах параводорода.

Температурна залежність коефіцієнта дифузії пробної частинки  $D_p(T)$  діаметром  $d_p$  декілька нанометрів, котра переміщується у квантовому кристалі з вузькою вакансійною зоною  $Q_v \ll T_{\text{melt}}$  за рахунок взаємодії з тепловими вакансіями, суттєво змінюється зі зниженням температури в області  $T_{\text{melt}} \geq T_{\text{tr}} \geq Q_v$ , де відбувається перехід від класичного термоактивованого перескоку вакансій до зонного руху делокалізованих вакансіонів. Більш того, у перехідній області  $T \approx T_{\text{tr}}$  коефіцієнт дифузії пробної частинки у в'язкому газі вакансіонів може зростати, якщо ефективна довжина вільного пробігу вакансіонів мала в порівнянні з діаметром частинки  $l_v \ll d_p$  та зростає із зниженням температури швидше, ніж зменшується концентрація теплових вакансій  $x_v \sim \exp(-E_v/T)$ . При  $T \ll T_{\text{tr}}$  у розрідженому газі вакансіонів, де  $l_v \gg d_p$ , коефіцієнт дифузії частинки  $D_p(T) \sim x_v S_{vp}$  зменшується пропорційно  $x_v$ , якщо переріз непружного розсіяння вакансіона на пробній частинці  $S_{vp}$  слабо залежить від температури. Розвинута модель може бути застосована для опису дифузії позитивних зарядів в кристалах ГЩУ  ${}^4\text{He}$ , які вирощували при тисках вищих ніж мінімальний тиск тверднення гелію, та негативних зарядів у кристалах параводню.

PACS: 67.80.-s

### 1. Введение

Согласно классификации Андреева [1], к квантовым относятся кристаллы, в которых вероятность классического термоактивированного перескока точечных дефектов из узла в узел кристаллической решетки становится сравнимой с вероятностью подбарьерного квантового туннелирования дефектов

при достаточно высоких температурах  $T_{\text{tr}}$ , близких по порядку величины к температуре плавления образца  $T_{\text{melt}}$  (в обычных «классических» кристаллах температура  $T_{\text{tr}}$  экспоненциально мала по сравнению с  $T_{\text{melt}}$ ). Если ширина энергетической зоны точечных дефектов — вакансий  $Q_v$ , примесных атомов или молекул  $Q_i$  — в исследуемом квантовом

кристалле много меньше  $T_{\text{melt}}$ , то при высоких температурах, близких к температуре плавления образца,  $T \sim T_{\text{melt}} > T_{\text{tr}}$ , диффузия точечных дефектов описывается теми же закономерностями, что и в обычном «классическом» кристалле (классическая термоактивированная диффузия, см., например, [2]). В низкотемпературном пределе,  $T \ll T_{\text{tr}}$ , точечные дефекты делокализованы, и дефектонные волны, или дефектоны (соответственно вакансионны, примесоны) могут свободно распространяться в объеме совершенного квантового кристалла. В образце конечных размеров эффективные пробеги этих квазичастиц ограничиваются рассеянием на поверхности образца, так же как и пробеги фононов, или пробеги электронов в совершенном металлическом кристалле при температурах близких к нулю.

В переходной области  $T \sim T_{\text{tr}}$ , где происходит смена преобладающего механизма диффузии дефектов, эффективные пробеги дефектонов малы и по порядку величины сравнимы с постоянной кристаллической решетки образца  $l_v, l_i \sim a \sim 0,3$  нм. Основную роль здесь может играть рассеяние дефектонов на фононах или взаимное дефектон-дефектонное (например, примесон-примесонное) рассеяние, а также рассеяние на дефектах иной природы (динамический или статический сбой уровней дефектона в терминах работы [3]), что, собственно, и приводит к локализации дефектонов при  $T > T_{\text{tr}}$ .

Подробные расчеты поведения коэффициента диффузии примесей в квантовых кристаллах с узкой примесонной зоной при  $T \leq T_{\text{tr}}$  на примере диффузии атомов примеси  $^3\text{He}$  в кристаллах  $^4\text{He}$  ГПУ фазы (отношение  $Q_3/T_{\text{melt}} \sim 10^{-4}$ ), а также сравнение расчетов с результатами прямых ЯМР измерений диффузии примеси при различном содержании атомов  $^3\text{He}$  в образце  $^4\text{He}$  приведены в работах [1,3]. Здесь следует упомянуть также о теоретических расчетах коэффициента самодиффузии молекул в кристаллах параводорода  $p\text{-H}_2$  с учетом вкладов классического надбарьерного и квантового подбарьерного обмена местами между молекулами и вакансиями, расположенными в соседних узлах кристаллической решетки [4], и о результатах ЯМР измерений коэффициента самодиффузии (точнее, диффузии молекул примеси  $o\text{-H}_2$ , см. [5]) и диффузии молекул дейтеро-водорода HD (отношение  $Q_3/T_{\text{melt}} \sim 10^{-3}$ ) в кристаллах  $p\text{-H}_2$  [6]. В экспериментах [6] удалось наблюдать переход от термоактивированной диффузии локализованных молекул HD к собственному зонному движению делокализованных примесонов при охлаждении образца ниже 10 К. Максимальные пробеги примесонов в этих образцах при  $T \ll 8$  К были ограничены рассеянием на молекулах ортоводорода и уменьшались с повышением содержания примеси

$o\text{-H}_2$  в образце. Переход к зонному движению молекул  $o\text{-H}_2$  в экспериментах по самодиффузии наблюдать не удалось, по-видимому, вследствие того, что молекула ортоводорода (свободно вращающийся ротатор при высоких температурах) сильно деформирует окружающую кристаллическую матрицу кристалла  $p\text{-H}_2$ , так что соответствующая ширина зоны примесона  $o\text{-H}_2$  заметно меньше ширины зоны примесных молекул HD.

В данной статье обсуждаются особенности поведения коэффициента диффузии вакансий  $D_v(T)$  и классической пробной наночастицы  $D_p(T)$  диаметром  $d_p$  порядка нескольких нанометров ( $d_p \gg a$ ). Частица перемещается за счет взаимодействия с тепловыми вакансиями в квантовом кристалле с узкой вакансионной зоной  $Q_v \ll T_{\text{melt}}$ . Ранее в литературе этот вопрос подробно не исследовали, наша краткая заметка была опубликована в [7]. Естественно, что при обсуждении температурной зависимости коэффициента диффузии вакансий  $D_v(T)$  в кристалле с узкой зоной мы воспользовались известными результатами расчетов [1–3] поведения коэффициента диффузии примесонов  $D_3(T)$  в кристаллах  $^4\text{He}$ .

## 2. Вязко-упругое течение квантового кристалла

Вязко-упругое, т.е. вакансионное, течение кристалла вокруг пробной частицы является одним из основных механизмов движения частицы малых размеров под действием внешней силы [2]. В системе координат, связанной с пробной частицей, набегające вакансии поглощаются и излучаются на ее поверхности, что позволяет говорить о движении пробной частицы в «газе» классических вакансий или в газе вакансионных, неупруго рассеивающихся на пробной частице. Как отмечено во Введении, учет перехода с понижением температуры образца от классической термоактивированной диффузии вакансий к зонному движению вакансионных должен существенно сказаться в первую очередь на температурных зависимостях  $D_v(T)$  и  $D_p(T)$ , однако этот вопрос подробно не исследован.

Вакансионные механизмы диффузии зарядов (точнее, заряженных наночастиц), которые образуются в твердом гелии под действием радиоактивного облучения, подробно обсуждаются в обзорах Шикина и Дама [8,9]. Предполагается, что отрицательный заряд — это вакуумный электронный пузырек радиусом  $R_-$  порядка 1 нм (эта модель была подтверждена экспериментально [10] при изучении поглощения инфракрасного света отрицательными зарядами в кристаллах  $^4\text{He}$  и  $^3\text{He}$  ГПУ фазы). Строение положительных зарядов, образующихся при облучении в твердом гелии или водороде, до сих пор однозначно не установлено. По аналогии с

жидким гелием можно предположить, что положительный заряд — это снежный шарик средним радиусом  $R_+$  порядка нанометров, состоящий из положительно заряженного молекулярного иона и слоя атомов гелия или молекул водорода вокруг него, удерживаемых силами электростатического притяжения, который перемещается в кристалле как целое под действием приложенного электрического поля. В обзорах [8,9] рассматривается движение зарядов при взаимодействии с локализованными вакансиями или со свободно распространяющимися по образцу вакансиями, т.е. высокотемпературный и низкотемпературный пределы в нашей классификации. Теоретическим расчетам подвижности положительных зарядов в твердом  $^4\text{He}$  в газе длинноволновых вакансионных (низкотемпературный предел) посвящена также работа [14]. Соответствие предложенных теоретических моделей результатам накопленных к настоящему времени данных по подвижности зарядов в твердом гелии требует отдельного подробного обсуждения, что находится вне рамок данной статьи.

Рассмотрим особенности поведения коэффициентов диффузии равновесных тепловых вакансий  $D_v(T)$  и взаимодействующей с вакансиями пробной наночастицы  $D_p(T)$  в квантовом кристалле с узкой вакансионной зоной. Прямые измерения коэффициента диффузии вакансий в кристаллах  $^4\text{He}$  и  $p\text{-H}_2$  затруднительны. Рассчитываемая по подвижности пробной частицы величина  $D_p(T)$  в первом приближении определяется суммой

$$D_p(T) = D_p^{\text{cl}}(T) + D_p^{\text{qu}}, \quad (1)$$

где  $D_p^{\text{cl}}$  соответствует диффузии в газе классических вакансий, а  $D_p^{\text{qu}}$  — в газе вакансионных.

Напомним, что поведение коэффициента диффузии пробной частицы в высокотемпературном и низкотемпературном пределах теоретически исследовано достаточно подробно. Поведение коэффициента  $D_p^{\text{qu}}$  в переходной области  $T \sim T_{\text{tr}}$ , где вакансионные пробеги сравнимы с постоянной кристаллической решетки образца  $a$  и могут быть много меньше диаметра пробной частицы

$$l_v \sim a \ll d_p, \quad (2)$$

требует дополнительного рассмотрения. При выполнении условий (2) пробная частица движется под действием внешней силы в плотном газе вакансионных. В системе координат связанной с частицей это соответствует вязкому (гидродинамическому) течению газа вакансионных вокруг пробной частицы.

Очевидно, что при  $l_v \ll a$  вероятность подбарьерного туннелирования много ниже вероятности классического термоактивированного перескока ло-

кализованной вакансии из узла в узел, т.е. классического надбарьерного обмена местами с одним из ближайших соседей (атомом или молекулой) в кристаллической решетке.

В низкотемпературном пределе условию

$$l_v \gg d_p \quad (3)$$

соответствует кнудсеновское течение разреженного вакансионного газа вокруг частицы в совершенном кристалле.

Ожидаемые из качественных соображений температурные зависимости коэффициентов диффузии тепловых вакансий  $D_v(T)$  и пробной наночастицы  $D_p(T)$  в кристалле с узкой вакансионной зоной схематически приведены на рис. 1. Для удобства использован полулогарифмический масштаб  $\log D = f(1/T)$ . На рисунке также показано изменение относительной концентрации тепловых вакансий  $x_v(T) \sim \exp(-E_v/T)$ , где  $E_v$  — свободная энергия образования вакансий.

На рис. 1 выделены три области температур.

I — *Высокие температуры*,  $T \sim T_{\text{melt}}$  — область классической термоактивированной диффузии. Коэффициент диффузии вакансий  $D_v^{\text{cl}} \approx (1/6)a^2/t$ , где  $t^{-1} \sim \exp(-E_b/T)$  — частота надбарьерных перескоков вакансии из узла в узел кристаллической решетки и  $E_b$  — высота потенциального барьера, разделяющего вакансию и атом (молекулу) матрицы,

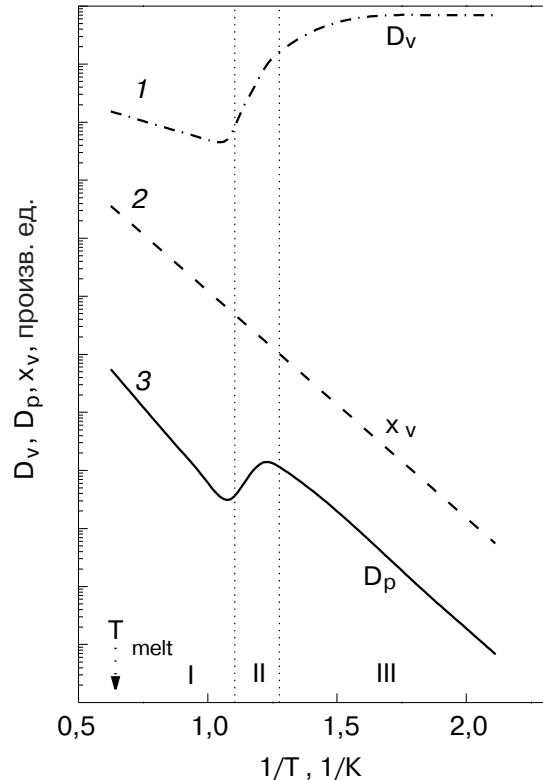


Рис. 1. Температурные зависимости коэффициентов диффузии вакансий  $D_v$  и пробной частицы  $D_p$  и концентрации вакансий  $x_v$ .

локализованные в соседних узлах кристаллической решетки. Поведение коэффициента диффузии пробной частицы  $D_p = D_p^{cl}(T)$  может быть описано известным законом Аррениуса:

$$D_p^{cl}(T) = D_0 \exp(-E_0^{cl}/T) \approx A^{cl} x_v D_v^{cl} \sim \exp\{-(E_v + E_b)/T\}. \quad (4)$$

Численный множитель  $A^{cl}$  пропорционален отношению удельных объемов вакансии и пробной частицы  $(a/d_p)^3$  [8,9]. При качественных оценках предполагается, что концентрация тепловых вакансий вокруг пробной частицы близка к их равновесной концентрации в объеме  $x_v$ , т.е. энергия активации диффузии пробной частицы в области I определяется суммой  $E_0^{cl} = E_v + E_b$ . Вопрос о концентрации вакансий вокруг заряженных пробных частиц в квантовых кристаллах требует отдельного изучения [8,9].

II — Область переходных температур,  $T \leq T_{tr}$ ,  $l_v \ll d_p$ . Наночастица движется в вязком газе вакансионных. Температурные зависимости коэффициентов диффузии вакансионных  $D_v^{qu}(T)$  и пробной частицы  $D_p^{qu}(T)$  в области II зависят от природы взаимодействия, ограничивающего величину  $l_v$ .

Если основную роль вблизи  $T_{tr}$  играет вакансион-фононное рассеяние  $l_v = l_{vph}$ , то в соответствии с оценками [1,3]  $l_{vph} \sim T^{-n}$ , где  $n \sim 9$ , и коэффициент диффузии вакансионных в переходной области будет возрастать с понижением температуры по степенному закону типа

$$D_v^{qu}(T) = D_{vph}^{qu}(T) \approx V_v l_{vph} \sim T^{-9}, \quad (5)$$

где  $V_v$  — скорость движения вакансионных в зоне,  $V_v = aKQ_v/h$ .

В случае преобладания вакансион-вакансионного рассеяния зависимость  $D_v^{qu} = D_{vv}^{qu}(T)$  определяется как содержанием вакансий в объеме  $(x_v/a^3)$ , так и энергией их упругого взаимодействия  $U = U_0(a/r)^3 = U_0 x_v$  [1]. Здесь  $r = a/x_v^{1/3}$  — среднее расстояние между двумя вакансионными и  $U_0$  — амплитуда их взаимодействия ( $U_0 \gg Q_v$ ). При высокой концентрации  $x_v > (Q_v/3U_0)^{3/4}$  вакансионны локализованы, так что основную роль играет классический термоактивированный перескок вакансии из узла в узел. С уменьшением  $x_v$  механизм диффузии вакансий изменяется. В области температур, где  $r$  больше радиуса локализации вакансионных  $R = a(3U_0/Q_v)^{1/4}$ , но меньше радиуса их упругого взаимодействия  $r_0 = a(U_0/Q_v)^{1/3}$ , т.е. при условии

$$(Q_v/3U_0)^{3/4} > x_v > Q_v/U_0, \quad (6)$$

коэффициент диффузии слабо локализованного вакансионного, дрейфующего в случайном потенциальном поле, создаваемом другими вакансионными, пропорционален [1]

$$D_{vv}^{qu}(T) \sim x_v^{-4/3} \sim \exp(4E_v/3T), \quad (7)$$

т.е. величина  $D_{vv}^{qu}$  экспоненциально возрастает с понижением температуры.

Когда среднее расстояние между вакансионными становится больше радиуса их упругого взаимодействия  $r > r_0$ , что соответствует концентрации  $x_v < Q_v/U_0$ , сечение упругого рассеяния вакансионных на вакансионных  $S_{vv} \sim r_0^2$  не зависит от  $x_v$ , и коэффициент диффузии вакансионных может быть записан в виде

$$D_{vv}^{qu}(T) \approx V_v l_{vv} \sim x_v^{-1}, \quad (8)$$

где  $l_{vv} = a^3/(x_v S_{vv})$  — эффективная длина свободного пробега.

Рассмотрим теперь поведение коэффициента диффузии пробной частицы  $D_p^{qu}$  в переходной области. Если вблизи  $T_{tr}$  преобладает вакансион-фононное взаимодействие, то коэффициент диффузии наночастицы

$$D_p^{qu}(T) = A^{qu} x_v D_{vph}^{qu} \sim \exp(-E_v/T) T^{-9} \quad (9)$$

также может возрастать с понижением температуры при условии, что эффективная длина свободного пробега вакансионных  $l_{vph}$  и, соответственно,  $D_{vph}^{qu}$  (5) возрастают с понижением температуры быстрее, чем  $x_v^{-1}$ .

В вязком газе сильно взаимодействующих между собой вакансионных в области температур, где выполняется неравенство (6),

$$D_p^{qu}(T) = A^{qu} x_v D_{vv}^{qu} \sim x_v^{-1/3} \sim \exp(E_v/3T), \quad (10)$$

т.е. с охлаждением образца экспоненциальное уменьшение коэффициента  $D_p(T)$  в области I сменяется в области II экспоненциальным возрастанием. При  $x_v \leq Q_v/U_0$  в интервале температур, где  $l_{vv} \sim x_v^{-1} \ll d_p$  (движение в вязком газе слабо взаимодействующих вакансионных), коэффициент диффузии частицы  $D_p^{qu}(T) \sim x_v D_{vv}^{qu}$  не зависит от температуры. Этот режим мог бы наблюдаться в экспериментах с пробными частицами большого диаметра.

III — Низкие температуры,  $T \ll T_{tr}$ ,  $l_v = L \gg d_p$  ( $L$  — характерный размер образца). Пробег вакансионных ограничен рассеянием на поверхности совершенного кристалла или на статических дефектах в объеме менее совершенного образца. Коэффициент диффузии вакансионных определяется произведением  $V_v l_v$  и не зависит от температуры.

Коэффициент диффузии пробной частицы пропорционален концентрации вакансионов  $x_v$  и сечению неупругого рассеяния вакансиона на частице  $S_{vp}$  [1,8,9,11]:

$$D_p^{qu} \approx b^2 x_v (kQ_v/h)(S_{vp}/a^2). \quad (11)$$

Если сечение  $S_{vp}$  не зависит от температуры, то с понижением температуры величина  $D_p^{qu}$  экспоненциально убывает,  $D_p^{qu}(T) \sim x_v \sim \exp(-E_v/T)$ . Значения входящих в выражения (7)–(9) численных множителей  $A^{qu} \ll 1$ , так как в результате неупругого рассеяния набегающего вакансиона на частице центр тяжести пробной частицы перемещается на расстояние  $b \sim a(a/d_p)^2 \ll a$ .

### 3. Сравнение с результатами измерений коэффициента диффузии зарядов в ГПУ кристаллах ${}^4\text{He}$ и $p\text{-H}_2$

Соотношения между энергиями  $E_v$ ,  $E_b$ ,  $U_0$ ,  $Q_v$  и температурой плавления  $T_{\text{melt}}$  существенно определяют величину и температурную зависимость коэффициента диффузии вакансий и взаимодействующих с ними пробных частиц в квантовом кристалле. Рассчитать из первых принципов значения этих энергий для конкретного образца невозможно. Прямые измерения коэффициента диффузии тепловых вакансий  $D_v(T)$  в квантовых кристаллах также затруднительны. Поэтому вопрос о ширине зоны вакансионов и роли различных механизмов диффузии вакансий в исследуемом образце приходится решать на основании сравнения между собой, а также с известными из литературы зависимостями  $x_v(T)$ , экспериментальных данных о диффузии пробных частиц различной природы (изотопических примесей, зарядов, введенных в кристалл посторонних частиц и т.п.) в образцах близкого молярного объема.

Критический обзор накопленных к настоящему времени экспериментальных данных по диффузии дефектов различной природы в твердом гелии и водороде (более полусотни публикаций разных авторов) — тема отдельного рассмотрения. В данном разделе мы ограничимся попыткой выяснить возможность применения развитой выше модели для объяснения результатов проведенной в нашей лаборатории серии измерений подвижности зарядов в ГПУ кристаллах  ${}^4\text{He}$  и  $p\text{-H}_2$  [11,12], которые были выращены из специально очищенной жидкости при давлениях, превышающих минимальные давления затвердевания жидкого гелия и водорода. Подвижность зарядов измеряли времяпролетной методикой в плоском конденсаторе (диоде), вмороженном в твердый гелий или водород. Поскольку ГПУ кристаллы сильно анизотропны, численные значения и

температурные зависимости подвижности зарядов в образцах, выращенных при одинаковых давлениях, могли заметно различаться (как и исследованная нами ранее теплопроводность гелиевых кристаллов), но в целом картина хорошо воспроизводилась.

Можно считать установленным [1,8,9], что в кристаллах ГПУ  ${}^4\text{He}$ , выращенных при давлениях выше минимального давления затвердевания ( $P > 25$  атм), диффузия положительных зарядов, как и диффузия атомов примеси  ${}^3\text{He}$  вблизи  $T_{\text{melt}}$ , контролируется их взаимодействием с тепловыми вакансиями. Температурные зависимости коэффициентов  $D_3(T)$  и  $D_+(T)$  в образцах близкого молярного объема  $V_m \approx 20,7$  см<sup>3</sup>/моль (давление затвердевания  $\sim 31$  атм) показана на рис. 2. Кривые 1 и 2 иллюстрируют влияние примесон-примесонного взаимодействия на зависимость  $D_3(T)$  при повышении концентрации примеси от 0,006 до 2% [13].

Точки на кривой 3 построены по данным измерений [11], крестики описывают результаты наших собственных контрольных измерений  $D_+(T)$  в ячейке несколько иной конструкции, предназначенной для работы с твердым водородом [12]. Как в [11], так и в настоящих измерениях положение точки ми-

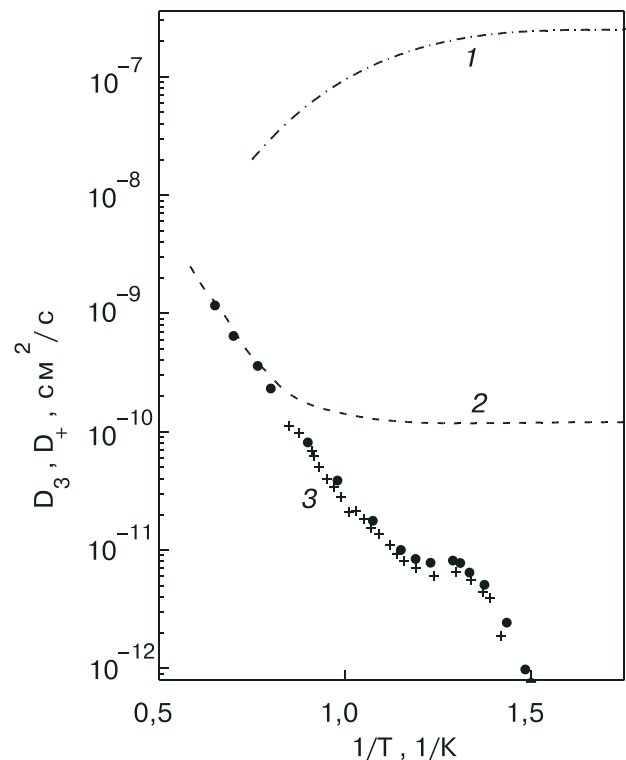


Рис. 2. Диффузия зарядов и примесных атомов в ГПУ кристаллах  ${}^4\text{He}$  молярным объемом  $V_m = 20,7$  см<sup>3</sup>/моль. Температурные зависимости коэффициента диффузии атомов примеси  ${}^3\text{He}$  в  ${}^4\text{He}$   $D_3(T)$  с содержанием примеси  ${}^3\text{He}$   $x_3 = 0,006$  (1) и 2 (2) % [13], а также коэффициента диффузии положительных зарядов  $D_+(T)$  (3): результаты данной работы (+); измерения [11] (●).

нимума и относительная высота максимума на кривой  $D_+(T)$  практически не изменялись с уменьшением приложенного электрического поля от  $10^4$  до  $1,5 \cdot 10^3$  В/см. Следовательно, возникновение максимума нельзя объяснить изменением с понижением температуры до 0,9 К механизма взаимодействия вакансион с зарядами, дрейфующими в поле напряженностью  $10^4$  В/см, как это предлагали в работе [14].

Наблюдавшееся в разных образцах 1,5–4-кратное возрастание коэффициента диффузии  $D_+$  более естественно связать с изменением механизма диффузии вакансий. В согласии с рентгеновскими данными [15], в образцах ГПУ  $^4\text{He}$  молярным объемом  $V_m \approx 20,7 \text{ см}^3/\text{моль}$  концентрация тепловых вакансий на линии плавления ( $T_{\text{melt}} \approx 1,8 \text{ К}$ ) составляет  $x_v(T_{\text{melt}}) = 3 \cdot 10^{-3}$  и уменьшается почти в 30 раз при охлаждении до 0,9 К (зависимость  $x_v(T)$  для подобного образца описывается прямой 2 на рис. 1). Если полагать, что ниже 0,9 К преобладает вакансион-вакансионное взаимодействие и зависимость  $D_+(T)$  описывается выражением (10), справедливым при выполнении неравенства (6), то легко оценить, что отношение  $Q_v/U_0$  заключено в пределах  $10^{-5} < Q_v/U_0 < 10^{-4}$ , т.е. в образцах молярным объемом  $V_m \approx 20,7 \text{ см}^3/\text{моль}$  ширина энергетической зоны вакансион  $Q_v \leq 10^{-4}$  К на 4–5 порядков выше значений, используемых в [1,14], и близка к ширине зоны примесонов,  $Q_v \leq Q_3$ . При оценке  $Q_v$  принято, что амплитуда вакансион-вакансионного взаимодействия  $U_0 = 1 \text{ К}$ , так как приводимые в литературе [1,16,17] значения лежат в пределах  $U_0 = 2-0,1 \text{ К}$ .

Как показали численные расчеты, оценки  $Q_v$  по формулам, приводимым в работе [3], в предположении, что основную роль вблизи  $T_{\text{tr}}$  играет динамический (фононный) сбой уровней вакансий, т.е. зависимости  $D_v(T)$  и  $D_+(T)$  вблизи 0,9 К описываются выражениями типа (5) и (9), приводят к близким значениям  $Q_v \leq 10^{-4}$  К.

В поддержку оценки  $Q_v \leq Q_3$  следует отметить, что, согласно [14,15], локальное изменение удельного объема (сжатие решетки) вокруг вакансии  $dV/V \sim 0,3-0,5$  больше локального расширения решетки  $dV/V \sim 0,1-0,2$  вокруг атома примеси  $^3\text{He}$  в  $^4\text{He}$ , т.е. поле смещений вокруг локализованной вакансии и амплитуда вакансион-вакансионного взаимодействия  $U_0 \sim (dV/V)^2$  заметно превосходят поле смещений и энергию взаимодействия между примесными атомами. Напомним специально, что вакансия, как и примесный атом, — это дефект кристаллической решетки.

Значения  $Q_v \ll 1 \text{ К}$  приводились в литературе и ранее [17]. По заключению авторов ЯМР исследо-

ваний диффузии  $^3\text{He}$  в  $^4\text{He}$  [18], ширина энергетической зоны вакансион в кристаллах ГПУ  $^4\text{He}$  не превосходит нескольких милликельвин даже в образцах максимального молярного объема (и быстро уменьшается с ростом давления затвердевания согласно [1]). Отметим также работу [19] по исследованию взаимодействия волн первого и второго звука в кристаллах  $^4\text{He}$ , в которой для объяснения результатов предполагается, что в образцах, выращенных при минимальных давлениях, зона дефектонов (предположительно вакансион) может иметь ширину более 0,1 К.

В кристаллах  $p\text{-H}_2$ , выращенных из жидкости при давлениях близких к атмосферному, установлено [12], что температурная зависимость коэффициента диффузии отрицательных зарядов  $D_-(T)$  (точки 3 на рис. 3) практически совпадает с рассчитанной в [4] температурной зависимостью коэффициента самодиффузии молекул  $D_s(T)$  (кривая 1), и близка к известному по ЯМР измерениям [5] поведению коэффициента диффузии изотопической примеси  $D_{\text{HD}}$  в области термоактивированной диффузии

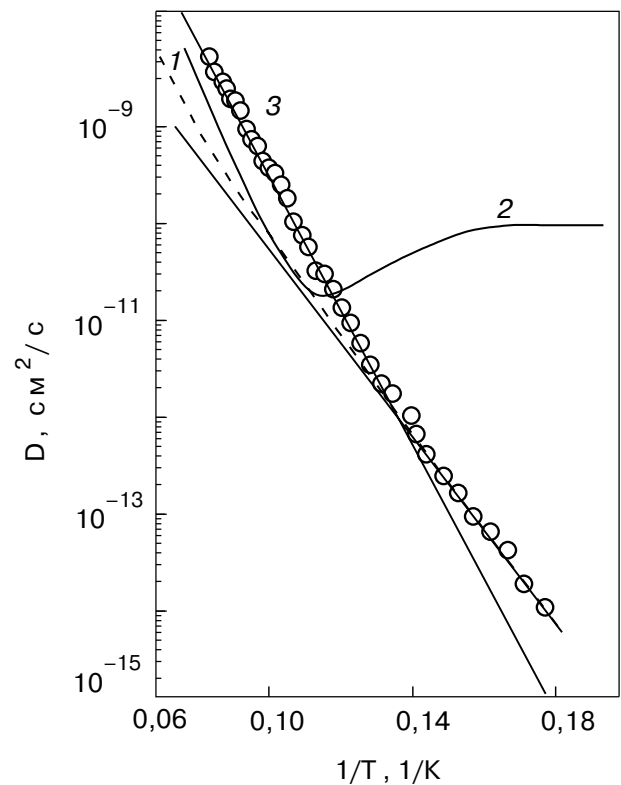


Рис. 3. Диффузия зарядов и примесных молекул в кристаллах  $p\text{-H}_2$ : расчетный коэффициент диффузии молекул водорода по модели [4] (1); коэффициент диффузии примесных молекул HD  $D_{\text{HD}}(T)$  [6] (2); коэффициент диффузии отрицательных зарядов  $D_-(T)$  [12] (○) (3). Две сплошные прямые, проведенные по точкам 3, соответствуют высотемпературной и низкотемпературной частям кривой  $D_-(T)$ .

молекул (минимум на кривой 2, по мнению авторов [6], соответствует переходу от обмена с вакансиями к собственному зонному движению примесных HD). Уменьшение энергии активации диффузии отрицательных зарядов  $D_-(T)$  с охлаждением образца от 13,3 до 6 К согласуется с предсказываемым в [4] уменьшением эффективной энергии активации диффузии молекул  $E_0$  вследствие перехода от термоактивированных перескоков с  $E_0^{\text{cl}} = E_b + E_v = 200$  К к подбарьерному туннелированию вакансий с  $E_0^{\text{qu}} = E_v = 100$  К.

Качественное описание поведения коэффициентов диффузии вакансий и пробных частиц в  $p$ -H<sub>2</sub> в области переходных температур  $11 \text{ К} > T > 9 \text{ К}$  затруднено из-за необходимости учета перескоков вакансий и молекул как на основной, так и на первый возбужденный уровень, расположенный внутри глубокой потенциальной ямы [4]. Ниже 9 К вкладом перескоков на верхний уровень можно пренебречь. Полагая, что относительная концентрация тепловых вакансий на линии плавления твердого водорода  $x_v(T_{\text{melt}}) \approx 3 \cdot 10^{-3}$  и уменьшается с охлаждением как  $x_v(T) \sim \exp(-100/T)$ , а амплитуда вакансион-вакансионного взаимодействия  $U_0$  сравнима с  $T_{\text{melt}}$ , т.е.  $U_0 \sim 10$  К, из неравенства  $x_v(9 \text{ К}) \leq Q_v/U_0$  легко оценить, что ширина зоны вакансионной в кристалле  $p$ -H<sub>2</sub> по порядку величины близка к  $Q_v \sim 10^{-3}$  К (отметим, что ширина зоны примесных молекул HD близка к  $10^{-2}$  К, по оценкам [6]).

Итак, предположение о том, что в квантовых ГПУ кристаллах <sup>4</sup>He и  $p$ -H<sub>2</sub>, выращенных при давлениях выше минимального давления затвердевания жидкости, ширина зоны вакансионной  $Q_v \ll T_{\text{melt}}$  позволяет не только объяснить причины возникновения особенностей в поведении коэффициентов диффузии заряженных пробных наночастиц, но и оценить значения  $Q_v$  в соответствующих образцах.

1. А.Ф. Андреев, *УФН* **118**, 251 (1976).
2. А.М. Косевич, *Физическая механика реальных кристаллов*, Наукова думка, Киев (1981).
3. Ю.М. Каган, Л.А. Максимов, *ЖЭТФ* **84**, 792 (1983).
4. С. Ebner and C.C. Sung, *Phys. Rev.* **B5**, 2625 (1972).
5. F. Weinhaus and H. Meyer, *Phys. Rev.* **B7**, 2974 (1973).
6. D. Zhou, M. Rall, J.P. Brison, and N.S. Sullivan, *Phys. Rev.* **B42**, 1929 (1990).
7. L.P. Mezhev-Deglin, A.A. Levchenko, and A.B. Trusov, *J. Low Temp. Phys.* **111**, 545 (1998).
8. В.Б. Шикин, *УФН* **121**, 457 (1977).
9. A.J. Dahm, *Prog. in Low Temp. Phys.*, Vol. IX, D.F. Brewer (ed.), North-Holland (1985).

10. А.И. Голов, Л.П. Межев-Деглин, *Письма в ЖЭТФ* **56**, 527 (1992).
11. А.И. Голов, В.Б. Ефимов, Л.П. Межев-Деглин, *ЖЭТФ* **94**, 198 (1988).
12. А.А. Левченко, Л.П. Межев-Деглин, И.Е. Штинов, *Письма в ЖЭТФ* **54**, 238 (1991).
13. В.Л. Михеев, В.А. Майданов, Н.П. Михин, *ФНТ* **9**, 901 (1983).
14. А.Ф. Андреев, А.Д. Савищев, *ЖЭТФ* **96**, 1109 (1989).
15. В.А. Fraas, P.R. Granfors, and R.O. Simmons, *Phys. Rev.* **B39**, 124 (1989).
16. С.Е. Кальной, М.А. Стржемечный, *ФНТ* **8**, 1025 (1982).
17. H.A. Goldberg and R.A. Guer, *J. Low Temp. Phys.* **28**, 449 (1977).
18. I.S. Schuster, E. Polturak et al, *J. Low Temp. Phys.* **103**, 159 (1996).
19. J.M. Goodkind, *Phys. Rev.* **B89**, 095301 (2002).

### Diffusion of a probe nanoparticle in a quantum crystal with narrow vacancy band

A.A. Levchenko, L.P. Mezhev-Deglin,  
and A.B. Trusov

The vacancy-assisted diffusion of a probe nanoparticle with a diameter  $d_p$  of a few nm drifting through a quantum crystal with a narrow vacancy band  $Q_v \ll T_{\text{melt}}$  is considered qualitatively. Below the melting point  $T_{\text{melt}}$  the temperature dependence of the diffusion coefficient of the nanoprobe,  $D_p(T)$ , changes significantly at temperatures near  $T_{\text{tr}}$  ( $T_{\text{melt}} \geq T_{\text{tr}} \geq Q_v$ ), where the transition from thermally activated hopping of localized vacancies to a proper band motion of delocalized vacancies takes place. Moreover, if the mean free path of the vacancies  $l_v(T)$  at  $T_{\text{tr}}$  is less than  $d_p$  and increases with lowering temperature quicker than  $x_v^{-1}$  (here  $x_v$  is the relative concentration of the thermal vacancies) the diffusion coefficient  $D_p$  of the nanoprobe drifting in the dense gas of quasiparticles grows with cooling the sample. At  $T \ll T_{\text{tr}}$ , in the rarified gas of quasiparticles where  $l_v \gg d_p$ , the diffusion coefficient  $D_p$  falls almost near exponentially, proportionally with  $x_v$ , if the cross-section of inelastic vacancy-probe particle scattering is weakly dependent on temperature. We believe that our model could be applied for the description of the diffusion of positive charges in hcp <sup>4</sup>He crystals grown at pressures higher than the minimal pressure of helium solidification and the diffusion of negative charges in hcp crystals grown from pure parahydrogen.