

УДК 536.21 : 548.1.025

© 1991

ОСОБЕННОСТИ ПЕРЕНОСА ТЕПЛА В СЛОИСТЫХ СТРУКТУРАХ $CsR(MoO_4)_2$ ($R=Gd, Nd$)

Э. Е. Андерс, Б. А. Мерисов, А. В. Сологубенко,
С. В. Старцев, Г. Я. Хаджай

Предложена аппроксимация температурной зависимости теплопроводности слоистых монокристаллов $CsR(MoO_4)_2$ в базисной плоскости в широком интервале температур. Предполагается, что основной вклад в перенос тепла вносят изгибные колебания.

Известно, что в кристаллических структурах, содержащих относительно слабо связанные слои, могут распространяться изгибные колебания с квадратичным законом дисперсии $\omega \sim \kappa^2$ ($\kappa^2 = k_x^2 + k_y^2$; плоскость слоя — плоскость xy) и плотностью фононных состояний $dn(\omega) \sim \sim d\omega$ [1, 2]. Наличие таких колебаний приводит к изменению температурной зависимости теплоемкости от $C \sim T^3$ при самых низких температурах к $C \sim T^2$ и $C \sim T$ в области промежуточных температур [2].

В работе [3] с использованием спектра [4] проведен анализ температурной зависимости теплоемкости ряда слоистых веществ в широком интервале температур (до 0.7Θ) и показано, что учет изгибной ветви дает возможность описать $C_p(T)$ с хорошей точностью, а подгоночные параметры имеют простой физический смысл и согласуются с известными данными.

Представления о переносе тепла изгибными колебаниями были использованы в [5, 6] для объяснения особенностей температурной зависимости теплопроводности слоистых кристаллов PbI_2 и In_4Se_3 . Авторы обнаружили, что справа от максимума теплопроводности, в области, где «вымерзают» процессы переброса, температурная зависимость теплопроводности может быть описана соотношением $\lambda \sim \exp(\Theta/(bT))$, где $0.75 \leq b \leq 1.45$, и показали, что такие значения параметра b характерны именно для изгибных колебаний, в то время как для обычных «трехмерных» фононов $b \geq \geq 2$ [7].

Одноосное сжатие перпендикулярно слоям приводит к росту параметра b , что можно объяснить «трехмеризацией» структуры и вырождением изгибных колебаний, превращающихся в поперечные волны с линейным законом дисперсии [6].

Отметим, что в [5, 6] представления об изгибных колебаниях привлекались для трактовки лишь небольшого участка зависимости $\lambda(T)$. Можно ожидать, однако, что в слоистых кристаллах при распространении тепла вдоль слоев роль изгибных колебаний может быть определяющей в более широкой области температур, в частности слева от максимума теплопроводности.

В [8, 9] была предложена аппроксимация температурной зависимости фононной теплопроводности ВТСП керамиках в широком интервале температур, основанная на предположении о том, что тепло в этих материалах переносят как обычные «трехмерные» фононы, так и «квазидвумерные» фононы, распространяющиеся в плоскостях CuO_2 . При этом использование только трех основных механизмов рассеяния фононов — граничного

при низких температурах, а также фонон-фононного и фонон-примесного при высоких температурах — позволило описать экспериментальные данные с погрешностью, близкой к экспериментальной.

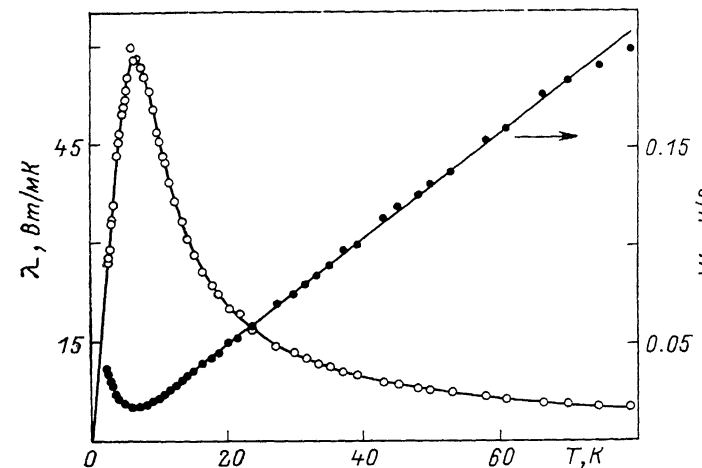


Рис. 1. Температурные зависимости теплопроводности λ и теплосопротивления W в базисной плоскости монокристалла $\text{CsGd}(\text{MoO}_4)_2$.

Сплошная линия — расчет по формуле (1).

В настоящей работе предпринята попытка провести разделение релаксационных процессов, определяющих фононную теплопроводность вдоль слоев с учетом переноса тепла изгибными колебаниями, для монокристаллов $\text{CsGd}(\text{MoO}_4)_2$ и $\text{CsNd}(\text{MoO}_4)_2$.

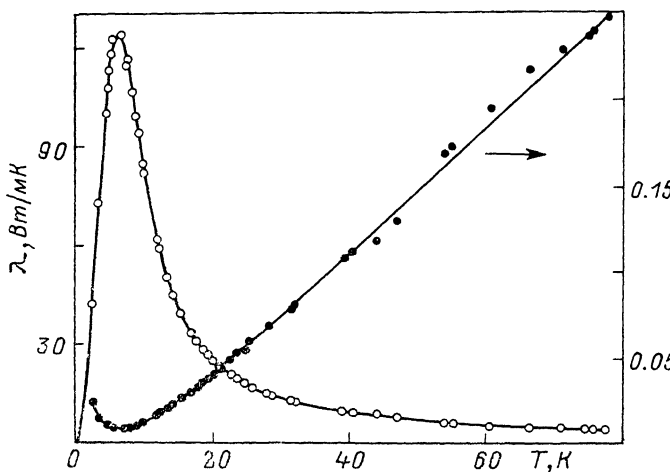


Рис. 2. Температурные зависимости теплопроводности и теплосопротивления в базисной плоскости монокристалла $\text{CsNd}(\text{MoO}_4)_2$.

Сплошная линия — расчет по формуле (1).

Щелочно-редкоземельные двойные кристаллы, как и ВТСП керамики, относятся к классу оксидных соединений, имеющих редкоземельную подсистему и обладающих слоистой кристаллической структурой.

Слои исследуемых димолибдатов содержат цепочки парамагнитных ионов (гадолиний, неодим) вдоль оси a (трансляция поперек слоев), чередующиеся с цепочками ионов цезия, причем ионы обоих сортов окружены восьмивершинниками из атомов кислорода, связанных в тетраэдры,

в центрах октаэдровых расположении атомы молибдена [10] (пространственная группа D_{2d}^3 при комнатной температуре). Кристаллы выращивали методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве.

Измерения теплопроводности λ проведены методом стационарного теплового потока вдоль слоев в интервале 2.5—80 К. Полученные температурные зависимости $\lambda(T)$ исследуемых кристаллов (рис. 1, 2) имеют классическую колоколообразную форму. Низкотемпературные структурные фазовые переходы в $\text{CsGd}(\text{MoO}_4)_2$ при 29 и 47 К, известные из данных о теплоемкости [11], на $\lambda(T)$ не проявляются (рис. 1).

Полученные экспериментальные данные были аппроксимированы при помощи простой модели типа [8, 9].

На рис. 1, 2 точками представлены экспериментальные данные, а сплошная линия описывается соотношением

$$\lambda^{-1} = \left[AT \int_{\Theta_1/T}^{\Theta/T} (x^2 e^x / (e^x - 1)^2) dx \right]^{-1} + BT [1 + C \exp(\Theta/(bT))]. \quad (1)$$

Первое слагаемое в (1) описывает граничное рассеяние изгибных колебаний с характеристической температурой Θ ; $\Theta_1 = \eta\Theta$, где η — подгоночный параметр, связанный с анизотропией образца ($\eta = \mu(1/c_1^2 + 1/c_2^2)/2\rho$); μ — модуль сдвига в плоскостях xz и yz ; c_1 и c_2 — скорости распространения волн в плоскости слоя; ρ — плотность [2]).

Отметим, что возможен и иной взгляд на физический смысл параметра Θ_1 . В [12] показано, что при определенных условиях в слоистых кристаллах «квазиизгибный» вид может приобрести оптическая мода, обладающая дисперсией, сравнимой с дисперсией акустических мод. В этом случае Θ_1 имеет смысл энергетической щели для оптических колебаний. Подобная щель того же порядка величины обнаружена оптическими методами в спектрах некоторых кристаллов исследуемого семейства димолибдатов [13]. По данным нейтронографических исследований, известно наличие таких колебательных ветвей для слоистого кристалла PbI_2 [14].

Второе слагаемое в (1) характеризует фонon-фононное рассеяние с перебросом. При $T \gg \Theta$ это слагаемое стремится к BT , а при низких температурах оно экспоненциально уменьшается, что соответствует «вымерзанию» процессов переброса. В (1) отсутствует член, описывающий рассеяние фононов на дефектах, что связано, вероятно, с высоким совершенством исследованных образцов. Не введены также члены, связанные с переносом тепла обычными «трехмерными» фононами при низких температурах. По-видимому, это обусловлено тем обстоятельством, что поток тепла был направлен вдоль слоев в отличие от [8], где исследования проводили на поликристалле, т. е. поток тепла был ориентирован относительно слоев произвольным образом.

Параметры аппроксимации температурной зависимости теплопроводности монокристаллов $\text{CsR}(\text{MoO}_4)_2$ ($R = \text{Cd}, \text{Nd}$) по формуле (1)

	Θ, K	Θ_1, K	η	$B \cdot \frac{A}{\text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}}$
$\text{CsGd}(\text{MoO}_4)_2$	25 ± 1.5	1.5 ± 0.3	0.06 ± 0.02	3.9 ± 0.1
$\text{CsNd}(\text{MoO}_4)_2$	36 ± 6	3.2 ± 0.7	0.09 ± 0.03	9.2 ± 0.4

Продолжение

	$B \cdot 10^3, \text{m} \cdot \text{Вт}^{-1}$	C	b
$\text{CsGd}(\text{MoO}_4)_2$	3.12 ± 0.07	0.17 ± 0.01	0.9 ± 0.1
$\text{CsNd}(\text{MoO}_4)_2$	8.2 ± 0.2	1.23 ± 0.03	1.7 ± 0.3

В таблице приведены значения параметров аппроксимации. При указанных параметрах среднее отклонение экспериментальных точек от вычисленных по формуле (1) является минимальным и составляет около 1.5 %.

Обращает на себя внимание тот факт, что характеристические температуры для изгибных колебаний намного меньше значений дебаевской температуры, определенной из измерений низкотемпературной теплоемкости, например 174 К для $\text{CsGd}(\text{MoO}_4)_2$ [11]. Аналогичное различие получили в [3] для ряда слоистых кристаллов. В [8, 9] также характеристическая температура «квазидвумерных» фононов была существенно меньше, чем «трехмерных».

Уменьшение параметра γ свидетельствует о росте анизотропии. На это же указывает и уменьшение параметра b по сравнению с характерным для «трехмерных» фононов значением $b \geq 2$. Поэтому приведенные в таблице значения этих параметров могут указывать на то, что анизотропия $\text{CsNd}(\text{MoO}_4)_2$ меньше, чем $\text{CsGd}(\text{MoO}_4)_2$.

Таким образом, температурную зависимость теплопроводности щелочно-редкоземельных димолибдатов со слоистой структурой можно аппроксимировать, основываясь на представлении о переносе тепла изгибными колебаниями при низких температурах.

Список литературы

- [1] Лифшиц И. М. // ЖЭТФ. 1952. Т. 22. № 4. С. 471—474.
- [2] Лифшиц И. М. // ЖЭТФ. 1952. Т. 22. № 4. С. 475--486.
- [3] Андерс Э. Е., Сухаревский Б. Я., Шестаченко Л. С. // ФНТ. 1979. Т. 5. № 7. С. 783—793.
- [4] Косевич А. М. Физическая механика реальных кристаллов. Киев: Наукова думка, 1981. 327 с.
- [5] Андерс Э. Е., Волчок И. В., Сухаревский Б. Я. // ФНТ. 1978. Т. 4. № 9. С. 1202—1209.
- [6] Андерс Э. Е., Волчок И. В., Сухаревский Б. Я. // ФНТ. 1981. Т. 7. № 4. С. 494—500.
- [7] Займан Дж. Электроны и фононы. М.: ИЛ, 1962. 448 с.
- [8] Мерисов Б. А., Хаджай Г. Я., Воронов А. П., Гавренок О. А., Сологубенко А. В. // ФНТ, 1990. Т. 16. № 5. С. 647—650.
- [9] Мерисов Б. А., Хаджай Г. Я., Сологубенко А. В. // ФНТ. 1990. Т. 16. № 10. С. 1270—1274.
- [10] Мохосоев М. В., Алексеев Ф. П., Бутуханов В. П. Двойные молибдаты и вольфраматы. Новосибирск: Наука, 1981. 136 с.
- [11] Андерс Э. Е., Волчок И. В., Звягин А. И., Кокшениев В. Б., Старцев С. В. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1986. Т. 50. № 2. С. 369—380.
- [12] Сыркин Е. С., Феодосьев С. Б. // Деп. в ВИНТИ. 1985. N 2913-85ДЕП. 34 с.
- [13] Фомин В. И., Гнездилов В. П., Еременко В. В., Нестеренко Н. М. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 5. С. 266—268.
- [14] Dörner B., Grosh R. E., Harbeke G. // Phys. Stat. Sol. 1976. V. 73. N 2. P. 655—659.

Физико-технический институт
низких температур АН УССР
Харьков

Поступило в Редакцию
17 июня 1991 г.

Харьковский государственный университет
им. А. М. Горького