EESTI NSV TEADUSTE AKADEEMIA TOIMETISED. 29. KÕIDE
FÜÜSIKA * MATEMAATIKA. 1980, NR. 1

ИЗВЕСТИЯ АКАДЕМИИ НАУК ЭСТОНСКОЙ ССР. ТОМ 29
ФИЗИКА * МАТЕМАТИКА. 1980, № 1

УДК 548.536

В. АЛТУХОВ

ОСОБЕННОСТИ ТЕПЛОВОГО СОПРОТИВЛЕНИЯ КРИСТАЛЛОВ, ИСПЫТЫВАЮЩИХ СТРУКТУРНЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД

(Представлена К. К. Ребане)

1. Введение

В экспериментах по теплопроводности кристаллов $SrTiO_3$ [1], $BaTiO_3$ [2] и систем типа KDP [3] было обнаружено, что в точках фазовых переходов температурная зависимость теплопроводности претерпевает изломы или проходит через минимумы. В [1, 2, 4] было высказано предположение, что при малых квазиимпульсах $\mathbf{q}$ наблюдаемые минимумы теплопроводности обусловлены сильным рассеянием акустических фононов на критических.

Теоретическому анализу этих экспериментов было посвящено немало работ [5–11]. В этих работах использовались различные подходы к решению проблемы и различные модели, но особенности теплового сопротивления объяснялись одинаково, а именно неупругим рассеянием акустических фононов, непосредственно взаимодействующих с критическими колебаниями. Ниже, однако, будет показано, что другой существенной причиной аномального поведения теплопроводности может быть квазиупругое рассеяние тепловых фононов, обусловленное центральным пиком, появляющимся при $T \to T_c$ в спектрах рассеянного света и критического рассеяния нейтронов.

Чтобы рассмотреть квазиупругое рассеяние, необходимо определить массовый оператор $P_\nu(\mathbf{Q}, \omega)$ однофононной функции Грина $\underline{G}_\nu(\omega)$ не только в области $\omega \approx \omega_\nu \gg \gamma_0$, но и в области $\omega \leqslant \gamma_0 = \bar{\tau}_\nu^{-1}$, где $\nu = (j, \mathbf{q})$, $\bar{\tau}_\nu$ — среднее время жизни фонона ω_ν с поляризацией j и квазиимпульсом $\mathbf{q}$, $\mathbf{Q}$ — импульс внешнего воздействия. Такое определение $P_\nu(\mathbf{Q}, \omega)$ равносильно учету пространственно-временных флуктуаций фононных чисел заполнения [12], а следовательно, и флуктуаций плотности в системе фононов со слабым ангармоническим взаимодействием [13]. Учет этих флуктуаций, наряду с оправданным при малых $\mathbf{q}$ предположением о параболической дисперсии колебаний мягкой ветви, приводит к расходящемуся при $T \to T_c$ выражению для обратного времени релаксации акустических фононов, т. е. к дополнительному квазиупругому механизму теплового сопротивления.

Описанная ситуация, по-видимому, характерна для систем с неполным смягчением мягкой моды. Спектральная плотность частот таких систем, как правило, содержит центральный пик, доминирующий при $T \to T_c$ ($SrTiO_3$ [14], KH_2PO_4 [15], Nb_3Sn [16]). В этих условиях квазиупругое рассеяние, как будет показано, может также стать преобладающим процессом и определить тем самым тепловое сопротивление кристаллов при $T \approx T_c$.

2. Постановка задачи. Спектральная плотность частот слабо ангармонического кристалла

Обратное время релаксации фонона в кристалле со слабым ангармоническим взаимодействием третьего порядка $\Phi(\nu, \nu', \nu'')$ можно представить в виде

$$\tau_\nu^{-1}(\omega_\nu) = \pi \sum_{\nu'} \int \frac{\hbar d\omega}{2\omega_{\nu'}} k_{\nu\nu'}(\omega) \varrho_\nu(\omega), \tag{1}$$

$$k_{\nu\nu'}(\omega) = \sum_{\nu''} |\Phi(\nu, \nu', \nu'')|^2 \varrho_{\nu''}(\omega - \omega_{\nu'}) n(\omega_{\nu'}) n(\omega - \omega_{\nu'}) / n(\omega), \tag{2}$$

$$\varrho_\nu(\omega) = [G_\nu(\omega + i\varepsilon) - G_\nu(\omega - i\varepsilon)] / 2\pi i, \tag{3}$$

где $G_\nu^{-1}(\omega) = \omega_\nu^2 - P_\nu(\omega) - \omega^2$, $n(\omega) = (e^{\beta\hbar\omega} - 1)^{-1}$, $\beta = 1/k_Б T$, $k_Б$ — постоянная Больцмана.

В этом виде формула (1) удобна для анализа квазиупругого рассеяния. * Причем, в интересующих нас случаях квазиупругого ($\omega \approx \omega_\nu$) и неупругого (при $\hbar\omega_\nu \ll k_Б T$) рассеяния, процессы распада несущественны и поэтому после интегрирования в (1) по частоте можно пренебречь слагаемым $k_{\nu\nu'}(-\omega_\nu)$.

Чтобы определить массовый оператор $P_\nu(\mathbf{Q} \to 0, \omega)$ с учетом возможности $\omega \leqslant \gamma_0$, необходимо самосогласованно рассмотреть по крайней мере кубический ангармонизм $\Phi(\nu, \nu', \nu'')$. При этом собственная энергия $P_\lambda(\mathbf{Q}, \omega)$ представляет собой диагональную часть двухчастичной функции Грина, которую можно записать в виде суммы двух слагаемых [19]. Первое из них $P_\lambda(T)$ актуально в области $\omega \gg \gamma_0$ и, как обычно, вычисляется по теории возмущений. Второе слагаемое $P_\lambda^c(\mathbf{Q}, \omega)$ представляет собой сингулярную при малых $\mathbf{Q}$ и ω часть $P_\lambda(\mathbf{Q}, \omega)$ и имеет вид

$$P_\lambda^c(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{i\omega\beta\hbar^2}{4} \sum_\nu \frac{\Phi(\lambda, \nu, \nu)}{2\omega_\nu} m_\nu X_\nu^\lambda(\mathbf{Q}, \omega, \omega_\nu). \tag{4}$$

Здесь $m_\nu = n_\nu(n_\nu + 1)$, $n_\nu = n(\omega_\nu)$, $X_\nu^\lambda(\mathbf{Q}, \omega, \omega_\nu) \equiv X_\nu^\lambda(\omega)$ и в приближении «лестничных» диаграмм [19, 20] удовлетворяет транспортному уравнению

$$(\omega - \mathbf{Q}\mathbf{v}_\nu) X_\nu^\lambda(\omega) - 2i\Phi(\lambda, \nu, \nu)/\omega_\nu = (i/m_\nu) \sum_{\nu'} L_{\nu\nu'} X_{\nu'}^\lambda(\omega), \tag{5}$$

$$\frac{1}{m_\nu} \sum_{\nu'} L_{\nu\nu'} X_{\nu'}^\lambda(\omega) =$$

$$= \sum_{\nu'} \frac{2\pi\hbar}{2\omega_\nu 2\omega_{\nu'}} [k_{\nu\nu'}(\omega_\nu) + k_{\nu\nu'}(-\omega_\nu)] X_{\nu'}^\lambda(\omega) - 2\Gamma_\nu(\omega_\nu) X_\nu^\lambda(\omega). \tag{6}$$

Оператор столкновений $L_{\nu\nu'}$ выписан здесь в первом порядке по сла-

---

* Это выражение для $\tau_\nu^{-1}(\omega)$, несколько в ином виде, было ранее получено в [17, 18], где оно использовалось для анализа интерференции ангармонического и примесного рассеяния.

бому ангармонизму $\Phi(\nu, \nu', \nu'')$, $\Gamma_\nu(\omega_\nu)$ определяет затухание фонона в одночастичном ** приближении ($\tau_\nu^{-1} \approx 2\Gamma_\nu$), $v_\nu^\alpha = \partial\omega_\nu/\partial q_\alpha$.

Простейшее решение (5) получаем, заменяя интеграл столкновений $-L_{\nu\nu'}/m_\nu$ на $\gamma_0 = \overline{\tau}_\nu^{-1}$. При этом $P_\nu(\mathbf{Q} = 0, \omega) = P_\nu(\omega)$ принимает вид

$$P_\nu(\omega) = -2\omega_\nu\Delta_\nu(\omega) + 2i\omega\Gamma'_\nu(\omega), \tag{7}$$

$$2\omega_\nu\Delta_\nu(\omega) = 2\omega_\nu\Delta_\nu(T) - \delta_\nu^2(T)\gamma_0^2/(\omega^2 + \gamma_0^2), \tag{8}$$

$$2\Gamma'_\nu(\omega) = \Gamma_0(T) + \delta_\nu^2(T)\gamma_0/(\omega^2 + \gamma_0^2), \tag{9}$$

$\Delta_\nu(T)$ и $\Gamma_0(T)$ обусловлены регулярным слагаемым $P_\nu(T)$, а параметр $\delta_\nu^2(T) = \beta\hbar^2 \sum_{\nu'} |\Phi(-\nu', \nu', \nu)|^2 m_{\nu'}/4\omega_{\nu'}$ характеризует перенормированные частоты и дополнительное затухание в (9), которое в пределе $q \to 0$ и $\omega \to 0$ (когда $\delta_\nu^2 \sim \omega_\nu^2$) носит релаксационный характер.

Замена $-L_{\nu\nu'}/m_\nu$ в (5) на γ_0 означает, что $X_\nu^\lambda(\omega)$, по предположению, релаксирует со скоростью $\gamma_0 = \tau_R^{-1} + \tau_N^{-1}$. На самом деле за время γ_0^{-1} релаксирует отклонение $X_\nu^\lambda - \overline{X}_\nu^\lambda$ величины X_ν^λ от ее локально равновесного значения $\overline{X}_\nu^\lambda$. Кроме того, в общем случае N- и R-процессы по-разному влияют на релаксацию X_ν^λ. Последнее обстоятельство, однако, в данном случае не играет существенной роли, а более строгое выделение в (5) отклонения $X_\nu^\lambda - \overline{X}_\nu^\lambda$ приводит лишь к незначительному переопределению $\delta_\nu(T)$, но вида решения (7) не меняет.

Ввиду наличия в (8) и (9) слагаемого, пропорционального $\delta_\nu^2(T)$, в спектральной плотности $\varrho_\nu(\omega)$ появляется, кроме обычного полюса на частоте $\omega_\nu + \Delta_\nu(T)$, дополнительная особенность при $\omega \to 0$. Эта особенность становится доминирующей, если в спектре частот кристалла имеются критические ($\omega_{\nu_0} + \Delta_{\nu_0}(T) = \omega_0(\mathbf{q}, T) \to 0$ при $T \to T_0$) колебания.

Действительно, при $\Gamma_0 \ll \delta_0^2/\gamma_0$, $\omega_0^2(0, T) = \omega_0^2 \gg \gamma_0^2$ и $\gamma_0 \gg \gamma$, где $\gamma(\mathbf{q}) = \gamma_0\omega_c^2(\mathbf{q})/\delta_0^2(T)$, $\omega_c^2(\mathbf{q}) = \omega_0^2(\mathbf{q}) - \delta_0^2(T)$, согласно (3), (7)—(9), получаем

$$\pi\varrho_{\nu_0}(\omega) = \frac{\omega\Gamma_0(T)}{[\omega_0^2(\mathbf{q}) - \omega^2]^2 + \omega^2\Gamma_0^2(T)} + \frac{\delta_0^2(T)}{\omega_c^2(\mathbf{q})\omega_0^2(\mathbf{q})}\,\frac{\omega\gamma(\mathbf{q})}{\omega^2 + \gamma^2(\mathbf{q})}. \tag{10}$$

Ясно, что если при $T = T_c$ ($T_c \neq T_0$) в некоторой точке $\mathbf{q} = 0$ (или $\mathbf{q} = \mathbf{q}_R$, $\mathbf{q}_R$ — вектор импульса, отвечающий R-точке зоны Бриллюэна) $\omega_c(0, T_c) = 0$, то второе слагаемое в (10) доминирует и $\varrho_{\nu_0}(\omega)$ концентрируется около $\mathbf{q} = 0(\mathbf{q}_R)$, $\omega = 0$.

3. Скорость релаксации фононов при $T \to T_c$

Вычисляя $\tau_\nu^{-1}(\omega)$ по теории возмущений, сначала пренебрежем шириной акустического фонона и заменим в (1) $\varrho_\nu(\omega)$ на $\varrho_\nu^0(\omega) = [\delta(\omega - \omega_\nu) - \delta(\omega + \omega_\nu)]/2\omega_\nu$. Учитывая, что при $\omega \approx \omega_{\nu'}$ величина $k_{\nu\nu'}(-\omega_\nu) \ll k_{\nu\nu'}(\omega_\nu)$ для заданных $\nu'' = \nu_0 = (j, \mathbf{q})$ и $\nu = (j', \mathbf{q}')$, находим

** Если в уравнении (5) неоднородный член $2i\Phi(\lambda, \nu, \nu)/\omega_\nu$ заменить на $2iv_\nu^\alpha$, то с помощью его решения $X_\nu^\alpha(\omega)$ можно определить коллективное «транспортное» время релаксации $\tau_T(\omega)$. Такое определение τ_T согласуется с выводами [21]. Кроме того, оно остается верным и для дефектного кристалла. В последнем случае ширина $\Gamma_\nu(\omega)$ в (6) одновременно обусловлена и ангармоническим и примесным рассеянием [17, 18].

$$\tau_\nu^{-1}(\omega)=\pi\hbar\sum_{\nu_0}\frac{|\Phi(\nu,\nu',\nu_0)|^2}{2\omega 2\omega_{\nu'}}\varrho_{\nu_0}(\omega-\omega_{\nu'})\frac{n(\omega_{\nu'})n(\omega-\omega_{\nu'})}{n(\omega)},\qquad(11)$$

где $\nu'=(j'',\mathbf{q}'')$, $\mathbf{q}''=\mathbf{q}-\mathbf{q}'$. Подставляя (10) в (11), получаем два слагаемых $\tau_n^{-1}+\tau_c^{-1}$, описывающих неупругое и квазиупругое рассеяние фононов соответственно.

3.1. Неупругое рассеяние акустических фононов носит аномальный характер лишь в существенно низкочастотной (ультразвуковой) области спектра ($\omega_\nu\ll\omega_0$) и проявляется особенно сильно, когда критическая ветвь близко подходит к акустической и имеет место вырождение ветвей [9]. В этой области спектра дисперсия моды $\omega_0(\mathbf{q})$ близка к линейной [9] и основной вклад в τ_n^{-1} дают процессы, в которых фонон $\omega_{\nu'}$ тоже критический, т. е. $\omega_{\nu'}=\omega_0(\mathbf{q}-\mathbf{q}')$. При этом в случае малых $\omega_\nu\ll\omega_0\ll k_{Б}T$ имеем $\omega_0(\mathbf{q}-\mathbf{q}')-\omega_0(\mathbf{q})=$ $=\mathbf{q}'\partial\omega(\mathbf{q})/\partial\mathbf{q}\approx v_0\sigma(q)q'\cos\theta=r\sigma(q)\omega_\nu\xi$, где $q=|\mathbf{q}|$, $r=v_0/v$ — отношение средних скоростей для критической и акустической ветвей, $\sigma(q)\approx1$ описывает возможное отклонение дисперсии $\omega_0(\mathbf{q})$ от линейной. Учитывая сказанное и переходя в (11) от суммы к интегралу для τ_n^{-1}, получаем

$$\tau_n^{-1}(\omega)=$$

$$=\frac{\hbar N}{8\omega}\iint\frac{a^3q^2dqd\xi}{(2\pi)^2}\frac{|\Phi(\nu,\nu'_0,\nu_0)|^2}{\omega_0(\mathbf{q}-\mathbf{q}')\omega_0(\mathbf{q})}\left(-\omega\frac{\partial n_{\nu_0}}{\partial\omega_{\nu_0}}\right)\frac{\Gamma_0(T)}{\omega^2(1-r\sigma\xi)^2+\Gamma_0^2(T)},\qquad(12)$$

где $\nu'_0=(j,\mathbf{q}-\mathbf{q}')$, a — постоянная решетки.

Постоянную ангармонизма $|\Phi(\nu,\nu'_0,\nu_0)|^2$, связанную с т. н. стрикционным взаимодействием [9], при малых $\mathbf{q}'$ представим в виде $A_0^2\omega_\nu^2$, где A_0^2 — численный коэффициент, определяющий связь акустического фонона с двумя критическими. Интегрируя в (12) по $d\xi$, с учетом $\partial n_{\nu_0}/\partial\omega_{\nu_0}\approx-(\hbar\beta)^{-1}/\omega_0^2(\mathbf{q})$ и $\sigma(q)=1$ находим

$$\tau_n^{-1}(\omega)=\frac{\omega}{\omega_0}\frac{B}{\beta}\left[\operatorname{arctg}\frac{\omega(r-1)}{\Gamma_0(T)}+\operatorname{arctg}\frac{\omega(r+1)}{\Gamma_0(T)}\right],\qquad(13)$$

$B=IA_0^2\Omega/32\pi^2v_0^3$, I — безразмерный интеграл порядка единицы. Если пренебречь затуханием критических фононов ($\Gamma_0(T)\ll\omega$), то, в соответствии с (13), $\tau_n^{-1}(\omega)\approx\pi B\omega/\beta\omega_0$, что согласуется с результатами, полученными в [9, 22]. При $T\to T_c$, однако, условие $\Gamma_0\ll\omega$ часто не выполняется. Учет конечной ширины $\Gamma_0\neq0$ в этой ситуации, в силу (13), сильно изменяет τ_n^{-1}. В случае $\Gamma_0\gg\omega$ для $\tau_n^{-1}(\omega)$ получаем релаксационную зависимость от частоты. Такая зависимость была ранее определена в [23].

3.2. Квазиупругое рассеяние ($\omega\approx\omega_{\nu'}$), обусловленное вторым слагаемым в (10), доминирует при $T\to T_c$. Вычисляя τ_c^{-1}, заменим сумму по ν_0 интегралом по $d\mathbf{q}$ и учтем, что основной вклад при этом дают значения $\mathbf{q}$, близкие к точке $\mathbf{q}=0$. В окрестности $\mathbf{q}=0$ дисперсию частот мягкой ветви можно представить в виде $\omega_0(q,T)=$ $=D_0(q_0^2+q^2)$, где D_0 не зависит от температуры, а q_0 отражает температурное поведение ω_0 и обращается в нуль при $T=T_0$. Если фонон $\omega_{\nu'}$ принадлежит к той же акустической ветви, что и фонон ω_ν ($j'=j''$), то при $q\to0$ и $T\approx T_c$

$$n(\omega_{\nu'})n(\omega_\nu-\omega_{\nu'})/n(\omega_\nu)\approx[\hbar\beta(\omega_\nu-\omega_{\nu'})]^{-1}\approx[\hbar\beta\mathbf{q}\mathbf{v}_\nu]^{-1},\qquad(14)$$

$$2\omega_0(\mathbf{q})/(\omega_0^2(\mathbf{q})-\delta_0^2(T)) \approx D_0^{-1}/(k^2+q^2), \qquad (15)$$

$$k^2=(q_0^2-\delta_0^2/D_0^2q_0^2)/2. \qquad (16)$$

Подставим теперь второе слагаемое (10) в (11), учтем (14)—(16), после чего, интегрируя по углам, получим

$$\tau_c^{-1}(\omega_\nu)=\frac{|\Phi(-\nu,\nu,\nu'_0)|^2}{8\pi^2\omega_\nu^2\omega_0}\frac{\Omega\delta_0\gamma_0}{2\beta\omega_0^2v^2}\int\limits_0^{q_m}\frac{2qdq}{\mu(q^2+k^2)}\operatorname{arctg}\frac{q}{\mu(q^2+k^2)}, \qquad (17)$$

$\mu = 2\gamma_0 D_0/\delta_0 v$, $q_m \approx \pi/a$. Постоянную ангармонизма $|\Phi(-\nu,\nu,\nu'_0)|^2 \approx \Phi_0^2\omega_\nu^4$ мы вынесли из-под интеграла, полагая $-\nu=(j',-\mathbf{q}')$ и $\gamma'_0=(j,0)$, что справедливо для любых значений $\mathbf{q}'$, исключая малую область ($q'<k$) актуальных значений q. Для $T\approx T_c$ длина когерентности $1/k\to\infty$ и $\tau_c^{-1}(\omega_\nu)$ расходится для любых ω_ν. При $T\to T_c$ всегда имеется область температур, в которой $k\mu \ll 1$ и $\operatorname{arctg}[q/\mu(q^2+k^2)]$ можно разложить в ряд. Тогда, интегрируя по q, получаем

$$\tau_c^{-1}(\omega_\nu)=\frac{\Phi_0^2\omega_\nu^2}{8\pi^2\omega_0}\frac{\delta_0^2}{\omega_0^2}\frac{\Omega\gamma_0}{2\beta\delta_0v^2}\frac{\pi}{2\mu}\ln\left(1+\frac{q_m^2}{k^2}\right). \qquad (18)$$

Формально, вследствие наличия логарифма, этот результат для $\tau_c^{-1}(\omega)$ похож на результаты, полученные для критического затухания [24] и поглощения звука [25]. Зависимость τ_c^{-1} от ω и ω_0, а также k^2 от T в рассматриваемом нами случае, однако, другая. Это обстоятельство существенным образом меняет характер особенности. Рассмотренная, в частности, в [25] особенность, обусловленная флуктуациями параметра порядка, как и особенность (13), связанная с неупругим рассеянием, актуальна лишь в низкочастотной области дотепловых фононов ($\hbar\omega \ll k_БT$). В случае квазиупругого рассеяния, как мы видим, такого ограничения нет ***.

Выражение (17) получено по теории возмущений в предположении, что первоначально можно пренебречь шириной акустического фонона. В (1) используется $\varrho_\nu(\omega) \approx \varrho_\nu^0(\omega)$, тогда как ширина $\gamma(\mathbf{q})$ в (10) сохраняется. Полученное таким образом τ_c^{-1} следовало бы снова подставить в (1) и повторить вычисления. Такая процедура вычисления имеет смысл лишь при $\tau_c^{-1}(\omega) \leqslant \gamma(\mathbf{q})$, а условие $\tau_c^{-1}=\gamma$ является самосогласованным уравнением для определения k. Поскольку, однако, коэффициенты $\Phi(-\nu,\nu,\nu_0)$ для мягкой моды обычно неизвестны, то можно попытаться подобрать k, используя данные по рассеянию света и критическому рассеянию нейтронов. Рассчитывая затем теплопроводность с учетом квазиупругого рассеяния и сопоставляя полученные результаты с экспериментом, можно получить информацию об ангармонических постоянных мягкой моды.

Остановимся на ситуации, когда смягчение критической моды происходит в R-точке зоны Бриллюэна. В этом случае мягкой, в частности, может оказаться акустическая ветвь. Для $\mathbf{q}\approx\mathbf{q}_R$ имеем $\omega_0(q,T)=D_0[q_0^2+(q_R-q)^2]$. При этом для акустических ω_ν и $\omega_{\nu'}$ фононов законы сохранения энергии $\omega_\nu\approx\omega_{\nu'}$ и импульса $\mathbf{q}''+\mathbf{q}'=\mathbf{q}$ одновре-

*** Это обстоятельство, в частности, свидетельствует в пользу того, что механизм, обеспечивающий поглощение звука за счет флуктуаций параметра порядка [23, 25], существенно отличается от квазиупругого рассеяния, которое является следствием ангармонической связи акустического фонона с мягким при наличии «релаксационного» составляющего в затухании последнего (9).

менно выполняются только для $q' \gtrsim q_R/2$ или в некоторых особых точках зоны Бриллюэна. Однако q' свободно от такого ограничения, если $\omega_{v'} = \omega_0(\mathbf{q} - \mathbf{q}', T)$, т. е. если фонон $\omega_{v'}$ принадлежит мягкой ветви колебаний. В этом случае $1/v^2$ перед интегралом в (17) заменяется на $1/2D_0\omega_0\omega_v{}^2$ и возникает слабая зависимость k от q'. Эта зависимость пренебрежимо мала в области $q' \approx v/D_0$. Если фононы именно из этой области играют важную роль в теплопереносе при $T \to T_c$, как это по оценкам получается, например, для $SrTiO_3$, то выражение (17) для τ_c^{-1} после замены $1/v^2$ на $1/2D_0\omega_0\omega_v{}^2$ можно использовать в случае $\mathbf{q} \to \mathbf{q}_R$.

4. Теплопроводность

Поскольку в настоящее время нет точных методов решения фононного кинетического уравнения (5), то теплопроводность обычно рассчитывают, используя то или иное приближение. В τ-приближении, учитывая квазиупругий механизм рассеяния, теплопроводность можно представить в виде

$$K(T) = \frac{v^2\hbar^2}{a^3 k_Б T^2} \int d\omega^2 \omega^2 n(\omega)\,[n(\omega)+1]\,\tau(\omega)\,\varrho(\omega^2), \tag{19}$$

$$\tau^{-1}(\omega) = \tau_0^{-1}(\omega) + \tau_c^{-1}(\omega), \tag{20}$$

$$\tau_c^{-1}(\omega) = [a^3\Phi(\omega)/32\pi\beta v D_0\omega_0]\ln(1+q_m^2/k^2). \tag{21}$$

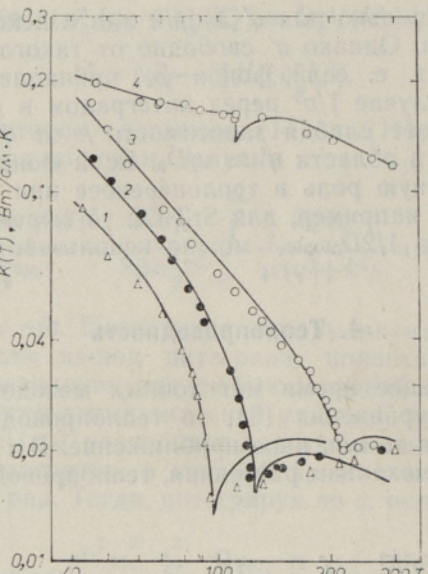
Здесь $\tau_0^{-1}(\omega)$ — время релаксации фононов в «нормальном» (неиспытывающем фазового перехода) кристалле; в дебаевской модели $\varrho(\omega^2) = 3\omega/2\omega_D^3$, $\omega_D = k_Б\Theta/\hbar$, Θ — температура Дебая. В (19)—(21) не учтено неупругое рассеяние, поскольку, согласно (13) и (18), $\tau_c^{-1}/\tau_n^{-1} \sim \ln(1 + q_m^2/k^2)$, т. е. квазиупругое рассеяние доминирует при $T \to T_c$.

Выражение (19) мы использовали для модельного расчета теплопроводности KH_2PO_4(KDP), KD_2PO_4, KH_2AsO_4 и $SrTiO_3$. Параметры τ_0^{-1}, описывающего граничное, примесное и ангармоническое рассеяние, подбирались при этом в соответствии с данными [1] и [3].

Температурная зависимость мягкой моды в KDP при $T > T_c$ хорошо установлена $\omega_0^2 = \alpha(T - T_0)$, $\alpha = 0{,}66$ *МэВ*^{2}/К [15]. Свойства мягкой моды в низкотемпературной фазе менее изучены, однако в целом они подобны свойствам ω_0^2 при $T > T_c$. Кроме того, недавно появилось сообщение [26] о том, что в KDP центральный пик наблюдается и при $T \to T_c$ снизу, причем при $T > T_c$ и $T < T_c$ он ведет себя в какой-то мере аналогично, поэтому $\tau_c^{-1}(T, \omega)$ в KDP можно определить в виде симметричной по отношению к T_c функции температуры с $k^2 = q_0^2|T - T_c|/2|T - T_i|$, где $q_0^2 = \sqrt{(\alpha|T - T_i|/D_0^2)}$, $T_i = T_0$ при $T > T_c$ и $T_i = T'_0$ при $T < T_c$; $D_0 \approx 10^{-14}$ *МэВ·см*^{2}.

В случае KDP, согласно (18) и (21), $\Phi(\omega) = \omega^2\Phi_0^2$. Численные значения коэффициентов Φ_0^2, равные Φ_1^2 и Φ_2^2 соответственно для $T < T_c$ и $T > T_c$, были подобраны нами исходя из условия наилучшего совпадения результатов расчета с экспериментом (см. рисунок, кривая *2*).

Естественно предположить, что описанная «симметричная» модель рассеяния реализуется и в других кристаллах типа KDP. В частности, мы использовали эту модель для τ_c^{-1} при расчете теплопроводности KD_2PO_4 и KH_2AsO_4. Полученные при этом для различных кристаллов



Теплопроводность кристаллов KH_2AsO_4 (*1*), KH_2PO_4 (*2*), KD_2PO_4 (*3*) и $SrTiO_3$ (*4*).

значения параметров связи Φ_1^2 и Φ_2^2 приведены в таблице, в которой даны также значения температур Дебая Θ и температур T_c, T_0 и T'_0.

Кристалл	T_c, K	T_0, K	T'_0, K	Θ, K	Φ_1^2, *МэВ*	Φ_2^2, *МэВ*
KH_2PO_4	122	118	126	325	0,082	0,204
KD_2PO_4	220	216	224	323	0,096	0,083
KH_2AsO_4	96	92	100	298	0,162	0,356
$SrTiO_3$	108	103	—	700	—	0,840

В $SrTiO_3$ при переходе $T_c = 108$ K из кубической фазы ($T > T_c$) в тетрагональную: $\mathbf{q} \to \mathbf{q}_R$, $\omega_0^2(\mathbf{q}_R, T_c) = \delta_0^2(T_c) = \alpha(T_c - T_0)$, $\alpha = 0{,}18$ $МэВ^2/К$ [14]. Учитывая, что $\mathbf{q} \to \mathbf{q}_R$, при $T > T_c$ для $\Phi(\omega)$ получаем $v^2\Phi_2^2/2D_0\omega_0$. Характер мягкой моды в тетрагональной фазе, однако, существенно меняется. Центральный пик здесь не наблюдается. Поэтому мы предположили, что при $T < T_c$ ведущая к квазиупругому рассеянию мягкая мода заморожена, k^2 не зависит от температуры и $\Phi(\omega) \approx \Phi_1^2(\omega_D v^2/2D_0)(T/\Theta)^3$, где $\Phi_1^2 \approx 150$ *МэВ*.

5. Заключение

Таким образом, наличие центрального пика в спектральной плотности $\varrho_v(\omega)$ приводит к квазиупругому рассеянию акустических фононов и, как следствие, к аномально малой теплопроводности. При этом, например для $SrTiO_3$, τ_c^{-1} дает ощутимый вклад ($\sim 20\%$) в широкой

(50—200 K) области температур. При $T \approx T_c$ в случае $SrTiO_3$ на кривой $K(T)$ возможен неглубокий резкий излом (кривая *4*). Ввиду этого было бы интересно провести более тщательное измерение зависимости $K(T)$ для $SrTiO_3$ при $T \to T_c = 108$ K.

Особенности $K(T)$ в кристаллах типа KDP, полученные при расчете (кривые *1—3*), носят другой, более «симметричный», характер. При $T > T_c$ согласие с экспериментом, однако, не очень хорошее. Это расхождение, возможно, обусловлено тем, что при $T > T_c$ действует еще один, не учтенный в нашей модели, механизм теплосопротивления, обусловленный рассеянием фононов на неупорядоченных структурных элементах высокотемпературной фазы [3]. Вопрос о наличии именно такого механизма рассеяния и о его влиянии на температурное поведение теплопроводности требует, однако, специального рассмотрения.

Во всех исследованных нами случаях было получено неплохое, особенно при $T < T_c$, согласие теории с экспериментом. Следует иметь в виду, что рассмотрена довольно широкая область температур. При $T < T_c$ заметны, однако, систематические отклонения в поведении рассчитанных кривых от экспериментальных данных. Эти отклонения увеличиваются по мере удаления от точки перехода T_c и, очевидно, обусловлены использованными в теории приближениями. Это прежде всего относится к выражению (18) для $\tau_c^{-1}(T, \omega)$, справедливому лишь в области $k\mu \ll 1$ и для $q' > k$.

Другое приближение, использованное в расчете, связано с характером температурной зависимости длины когерентности $1/k$. Подобранная нами на основании экспериментальных данных зависимость k от T, вообще говоря, нарушается для температур, расположенных в непосредственной близости к точке перехода T_c. Использование полученной нами зависимости в области $T \approx T_c$ приводит к расхождению τ_c^{-1} в точке $T = T_c$, вследствие чего в этой модели, как, впрочем, и в других известных нам моделях, теплопроводность в точке T_c обращается в нуль. Поэтому при расчете глубина провала на кривой теплопроводности при $T = T_c$ лимитировалась исходя из данных эксперимента.

Несмотря на сказанное, в целом формула (18), видимо, верно передает характер особенности на кривой теплопроводности в сравнительно широкой области температур. Отметим, что вид этой особенности слабо зависит от вида гладкой функции $\Phi(\omega)$ и определяется температурными характеристиками величин ω_0 и k.

Автор благодарен Н. Н. Кристофелю, П. И. Консину, Г. С. Завту за детальное обсуждение результатов работы, а также А. П. Леванюку и Н. М. Плакиде за полезные критические замечания.

ЛИТЕРАТУРА

1. Steigmeier, E. F., Phys. Rev., **168**, № 2, 523—530 (1968).
2. Mante, A. J. H., Volger, J., Phys. Lett., **24A**, № 3, 139—140 (1967).
3. Suemune, Y., J. Phys. Soc. Jap., **22**, № 3, 735—743 (1967).
4. Nettleton, R. E., Phys. Rev., **A140**, № 4, 1453—1462 (1965).
5. Tani, K., Tsuda, N., J. Phys. Soc. Jap., **26**, № 1, 113 (1969).
6. Inoue, M., J. Phys. Soc. Jap., **25**, № 1, 288 (1968).
7. Bahadur, R., Sharma, P. K., Phys. Rev., **B10**, № 7, 2934—2944 (1974).
8. Gairolo, R. P., Semwal, B. S., J. Phys. Soc. Jap., **43**, № 3, 954- 960 (1977).
9. Балагуров Б. Я., Ж. эксперим. и теор. физ., **61**, вып. 4, 1627—1635 (1971).
10. Могилевский Б. М., Чудновский А. Ф., Теплопроводность полупроводников, М., «Наука», 1972, § 2.6.
11. Вакс В. Г., Введение в микроскопическую теорию сегнетоэлектриков, М., «Наука», 1973, § 36.

12. Cowley, R. A., Coombs, G. J., J. Phys., **C6**, № 1, 143—157 (1973).
13. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М., Статистическая физика, ч. I, М., «Наука», 1976, § 116.
14. Shapiro, S. M., Axe, I. D., Shirane, S., Riste, T., Phys. Rev., **B6**, № 11, 4332—4341 (1972).
15. Lagakos, N., Cummins, H., Phys. Rev., **B10**, № 3, 1063—1069 (1974).
16. Shirane, S., Axe, I. D., Phys. Rev. Lett., **27**, № 26, 1803—1806 (1971).
17. Altukhov, V. I., Phys. status solidi (b), **64**, № 1, 403—412 (1974).
18. Altukhov, V. I., Zavt, G. S., Phys. status solidi (b), **65**, № 1, 83—92 (1974).
19. Балагуров Б. Я., Вакс В. Г., Ж. эксперим. и теор. физ., **57**, вып. 5, 1646—1659 (1969).
20. Sham, L. I., Phys. Rev., **156**, № 2, 494—500 (1967); ibid. **163**, № 2, 401—407 (1967).
21. Ranninger, I., Ann. Phys., **45**, № 3, 452—478 (1967); ibid. **49**, № 2, 297—308 (1968).
22. Pytte, E., Phys. Rev., **B1**, № 2, 924—930 (1970).
23. Леванюк А. П., Ж. эксперим. и теор. физ., **49**, вып. 4, 1304—1312 (1965).
24. Reiter, G., Tzoar, N., Phys. Rev., **B14**, № 1, 208—218 (1976).
25. Леванюк А. П., Минаева К. А., Струков Б. А., Физ. твердого тела, **10**, вып. 8, 2443—2448 (1968).
26. Marmelstein, M. D., Cummins, H. Z., Phys. Rev., **B16**, № 5, 2177—2183 (1977).

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
10/IX 1979

V. ALTUHHOV

STRUKTUURSETE FAASISIIRETEGA KRISTALLIDE SOOJUSTAKISTUSE ISEÄRASUSED

On vaadeldud kristallivõre soojusjuhtivuse anomaalset temperatuurist sõltuvat käitumist struktuurse faasisiirde läheduses, kus on olulised fonoonsete täitearvude ruumilis-ajalised fluktuatsioonid. Esmakordselt on juhitud tähelepanu nendes tingimustes esinevale seni tundmatule soojusjuhtivuse kvaasielastsele mehhanismile, mille põhjustab akustiliste foononite hajumine tsentraalsel piigil. $T \to T_c$ juures vastav relaksatsiooni pöördeaeg hajub foononite sagedusest sõltumata, mistõttu kvaasielastne hajumine võib saada soojustakistuses domineerivaks protsessiks. Saadud tulemuste põhjal on analüüsitud KH_2PO_4, KD_2PO_4, KH_2AsO_4 ja $SrTiO_3$ kristallide soojustakistuse temperatuurisõltuvuse iseärasusi.

V. ALTUKHOV

ANOMALIES OF THERMAL RESISTANCE OF CRYSTALS PRESENTING A STRUCTURAL PHASE TRANSITION

An anomalous temperature behavior of lattice thermal conductivity of crystals near the structural phase transition is studied for a case when space- and time-dependent fluctuations of the phonon occupation number density are essential. The occurrence of the quasi-elastic mechanism of thermal resistance due to the scattering of phonons by the central peak is demonstrated. At $T \to T_c$ the corresponding inverse relaxation time diverges independently of the phonon frequency, and quasi-elastic scattering may become dominant. The results are applied in the analysis of the thermal conductivity for KH_2PO_4, KD_2PO_4, KH_2AsO_4 and $SrTiO_3$.