

В. АЛТУХОВ

ОСОБЕННОСТИ ТЕПЛООВОГО 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 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 $T \rightarrow T_c$ в спектрах рассеянного света и критического рассеяния нейтронов.

Чтобы рассмотреть квазиупругое рассеяние, необходимо определить массовый оператор $P_v(\mathbf{Q}, \omega)$ однофононной функции Грина $\bar{G}_v(\omega)$ не только в области $\omega \approx \omega_v \gg \gamma_0$, но и в области $\omega \leq \gamma_0 = \tau_v^{-1}$, где $v = (j, \mathbf{q})$, τ_v — среднее время жизни фонона ω_v с поляризацией j и квазиимпульсом \mathbf{q} , \mathbf{Q} — импульс внешнего воздействия. Такое определение $P_v(\mathbf{Q}, \omega)$ 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 q предположением о параболической дисперсии колебаний мягкой ветви, приводит к расходящемуся при $T \rightarrow T_c$ 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 $T \rightarrow T_c$ (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 $\Phi(v, v', v'')$ можно представить в виде

$$\tau_v^{-1}(\omega_v) = \pi \sum_{v'} \int \frac{\hbar d\omega}{2\omega_{v'}} k_{vv'}(\omega) \varrho_v(\omega), \quad (1)$$

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

$$\varrho_v(\omega) = [G_v(\omega + i\varepsilon) - G_v(\omega - i\varepsilon)] / 2\pi i, \quad (3)$$

где $G_v^{-1}(\omega) = \omega_v^2 - P_v(\omega) - \omega^2$, $n(\omega) = (e^{\beta\hbar\omega} - 1)^{-1}$, $\beta = 1/k_B T$, k_B —

постоянная Больцмана.

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

Чтобы определить массовый оператор $P_v(\mathbf{Q} \rightarrow 0, \omega)$ с учетом возможности $\omega \leq \gamma_0$, необходимо самосогласованно рассмотреть по крайней мере кубический ангармонизм $\Phi(v, v', v'')$. 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

$$P_\lambda^c(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{i\omega\beta\hbar^2}{4} \sum_v \frac{\Phi(\lambda, v, v)}{2\omega_v} m_v X_v^\lambda(\mathbf{Q}, \omega, \omega_v). \quad (4)$$

Здесь $m_v = n_v(n_v + 1)$, $n_v = n(\omega_v)$, $X_v^\lambda(\mathbf{Q}, \omega, \omega_v) \equiv X_v^\lambda(\omega)$ и в приближении «лестничных» диаграмм [19, 20] удовлетворяет транспортному уравнению

$$(\omega - \mathbf{Q}v_v) X_v^\lambda(\omega) - 2i\Phi(\lambda, v, v)/\omega_v = (i/m_v) \sum_{v'} L_{vv'} X_{v'}^\lambda(\omega), \quad (5)$$

$$\begin{aligned} & \frac{1}{m_v} \sum_{v'} L_{vv'} X_{v'}^\lambda(\omega) = \\ & = \sum_{v'} \frac{2\pi\hbar}{2\omega_v 2\omega_{v'}} [k_{vv'}(\omega_v) + k_{vv'}(-\omega_v)] X_{v'}^\lambda(\omega) - 2\Gamma_v(\omega_v) X_v^\lambda(\omega). \end{aligned} \quad (6)$$

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

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

бому ангармонизму $\Phi(v, v', v'')$, $\Gamma_v(\omega_v)$ определяет затухание фонона в одночастичном ** приближении ($\tau_v^{-1} \approx 2\Gamma_v$), $v_v^\alpha = \partial\omega_v/\partial q_\alpha$.

Простейшее решение (5) получаем, заменяя интеграл столкновений $-L_{vv'}/m_v$ на $\gamma_0 = \tau_v^{-1}$. При этом $P_v(\mathbf{Q} = 0, \omega) = P_v(\omega)$ принимает вид

$$P_v(\omega) = -2\omega_v \Delta_v(\omega) + 2i\omega \Gamma'_v(\omega), \quad (7)$$

$$2\omega_v \Delta_v(\omega) = 2\omega_v \Delta_v(T) - \delta_v^2(T) \gamma_0^2 / (\omega^2 + \gamma_0^2), \quad (8)$$

$$2\Gamma'_v(\omega) = \Gamma_0(T) + \delta_v^2(T) \gamma_0 / (\omega^2 + \gamma_0^2), \quad (9)$$

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

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

Ввиду наличия в (8) и (9) слагаемого, пропорционального $\delta_v^2(T)$, в спектральной плотности $\rho_v(\omega)$ появляется, кроме обычного полюса на частоте $\omega_v + \Delta_v(T)$, дополнительная особенность при $\omega \rightarrow 0$. Эта особенность становится доминирующей, если в спектре частот кристалла имеются критические ($\omega_{v_0} + \Delta_{v_0}(T) = \omega_0(\mathbf{q}, T) \rightarrow 0$ при $T \rightarrow T_0$) 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

$$\rho_{v_0}(\omega) = \frac{\omega \Gamma_0(T)}{[\omega_0^2(\mathbf{q}) - \omega^2]^2 + \omega^2 \Gamma_0^2(T)} + \frac{\delta_0^2(T)}{\omega_c^2(\mathbf{q}) \omega_0^2(\mathbf{q})} \frac{\omega \gamma(\mathbf{q})}{\omega^2 + \gamma^2(\mathbf{q})}. \quad (10)$$

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 $\rho_{v_0}(\omega)$ концентрируется около $\mathbf{q} = 0(\mathbf{q}_R)$, $\omega = 0$.

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

Вычисляя $\tau_v^{-1}(\omega)$ по теории возмущений, сначала пренебрежем шириной акустического фонона и заменим в (1) $\rho_v(\omega)$ на $\rho_v^0(\omega) = [\delta(\omega - \omega_v) - \delta(\omega + \omega_v)]/2\omega_v$. Учитывая, что при $\omega \approx \omega_v$ величина $k_{vv'}(-\omega_v) \ll k_{vv'}(\omega_v)$ для заданных $v'' = v_0 = (j, \mathbf{q})$ и $v = (j', \mathbf{q}')$, находим

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

$$\tau_v^{-1}(\omega) = \pi \hbar \sum_{v_0} \frac{|\Phi(v, v', v_0)|^2}{2\omega 2\omega_{v'}} Q_{v_0}(\omega - \omega_{v'}) \frac{n(\omega_{v'}) n(\omega - \omega_{v'})}{n(\omega)}, \quad (11)$$

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

$$\tau_n^{-1}(\omega) = \frac{\hbar N}{8\omega} \iint \frac{a^3 q^2 dq d\xi}{(2\pi)^2} \frac{|\Phi(v, v', v_0)|^2}{\omega_0(q - q') \omega_0(q)} \left(-\omega \frac{\partial n_{v_0}}{\partial \omega_{v_0}} \right) \frac{\Gamma_0(T)}{\omega^2 (1 - r \sigma \xi)^2 + \Gamma_0^2(T)}, \quad (12)$$

где $v'_0 = (j, q - q')$, a — постоянная решетки.

Постоянную ангармонизма $|\Phi(v, v'_0, v_0)|^2$, связанную с т. н. стрикционным взаимодействием [9], при малых q' представим в виде $A_0^2 \omega_{v'}^2$, где A_0^2 — численный коэффициент, определяющий связь акустического фонона с двумя критическими. Интегрируя в (12) по $d\xi$, с учетом $\partial n_{v_0} / \partial \omega_{v_0} \approx -(\hbar \beta)^{-1} / \omega_0^2(q)$ и $\sigma(q) = 1$ находим

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

$B = I A_0^2 \Omega / 32 \pi^2 v_0^3$, 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 $T \rightarrow T_c$, однако, условие $\Gamma_0 \ll \omega$ часто не выполняется. Учет конечной ширины $\Gamma_0 \neq 0$ 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 ($\omega \approx \omega_{v'}$), обусловленное вторым слагаемым в (10), доминирует при $T \rightarrow T_c$. Вычисляя τ_c^{-1} , заменим сумму по v_0 интегралом по dq и учтем, что основной вклад при этом дают значения q , близкие к точке $q = 0$. В окрестности $q = 0$ 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 $\omega_{v'}$ принадлежит к той же акустической ветви, что и фонон ω_v ($j' = j''$), то при $q \rightarrow 0$ и $T \approx T_c$

$$n(\omega_{v'}) n(\omega_v - \omega_{v'}) / n(\omega_v) \approx [\hbar \beta (\omega_v - \omega_{v'})]^{-1} \approx [\hbar \beta q v_v]^{-1}, \quad (14)$$

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

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

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

$$\tau_c^{-1}(\omega_v) = \frac{|\Phi(-v, v, v'_0)|^2}{8\pi^2 \omega_v^2 \omega_0} \frac{\Omega \delta_0 \gamma_0}{2\beta \omega_0^2 v^2} \int_0^{q_m} \frac{2q dq}{\mu(q^2 + k^2)} \operatorname{arctg} \frac{q}{\mu(q^2 + k^2)}, \quad (17)$$

$\mu = 2\gamma_0 D_0 / \delta_0 v$, $q_m \approx \pi/a$. Постоянную ангармонизма $|\Phi(-v, v, v'_0)|^2 \approx \Phi_0^2 \omega_v^4$ мы вынесли из-под интеграла, полагая $-v = (j', -q')$ и $v'_0 = (j, 0)$, что справедливо для любых значений q' , исключая малую область ($q' < k$) актуальных значений q . Для $T \approx T_c$ длина когерентности $1/k \rightarrow \infty$ и $\tau_c^{-1}(\omega_v)$ расходится для любых ω_v . При $T \rightarrow T_c$ 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

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

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 ($\hbar\omega \ll k_B T$). 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 $q_v(\omega) \approx q_v^0(\omega)$, 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 $\tau_c^{-1}(\omega) \leq \gamma(\mathbf{q})$, а условие $\tau_c^{-1} = \gamma$ является самосогласованным уравнением для определения k . Поскольку, однако, коэффициенты $\Phi(-v, v, v_0)$ 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 $\omega_0(\mathbf{q}, T) = D_0[q_0^2 + (q_R - q)^2]$. При этом для акустических ω_v и ω_v' фононов законы сохранения энергии $\omega_v \approx \omega_v'$ и импульса $q'' + q' = q$ 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 $q' \geq q_R/2$ 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 ω_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 $T \rightarrow T_c$, 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 $\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{q}_R$.

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

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

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

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

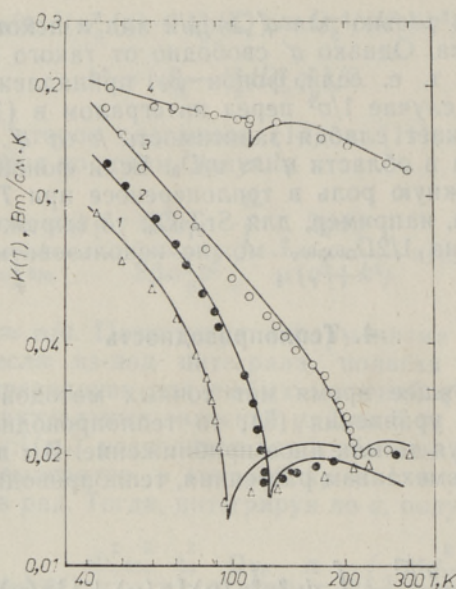
Здесь $\tau_0^{-1}(\omega)$ — время релаксации фононов в «нормальном» (неиспытывающем фазового перехода) кристалле; в дебаевской модели $\varrho(\omega^2) = 3\omega/2\omega_D^3$, $\omega_D = k_B \Theta/\hbar$, Θ — температура Дебая. В (19)–(21) не учтено неупругое рассеяние, поскольку, согласно (13)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

Выражение (19) мы использовали для модельного расчета теплопроводности KN_2PO_4 (KDP), KD_2PO_4 , KN_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 $\omega_0^2 = \alpha(T - T_0)$, $\alpha = 0,66 \text{ МэВ}^2/\text{К}$ [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 $T \rightarrow T_c$ 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 $T < T_c$; $D_0 \approx 10^{-14} \text{ МэВ} \cdot \text{см}^2$.

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 KN_2AsO_4 . Полученные при этом для различных кристаллов



Теплопроводность кристаллов KN_2AsO_4 (1), KN_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 , К | T_0 , К | T'_0 , К | Θ , К | Φ_1^2 , МэВ | Φ_2^2 , МэВ |
|---------------------------|-----------|-----------|------------|--------------|------------------|------------------|
| KN_2PO_4 | 122 | 118 | 126 | 325 | 0,082 | 0,204 |
| KD_2PO_4 | 220 | 216 | 224 | 323 | 0,096 | 0,083 |
| KN_2AsO_4 | 96 | 92 | 100 | 298 | 0,162 | 0,356 |
| SrTiO_3 | 108 | 103 | — | 700 | — | 0,840 |

В SrTiO_3 при переходе $T_c = 108$ К из кубической фазы ($T > T_c$) в тетрагональную: $\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{q}_R$, $\omega_0^2(\mathbf{q}_R, T_c) = \delta_0^2(T_c) = \alpha(T_c - T_0)$, $\alpha = 0,18$ МэВ²/К [14]. Учитывая, что $\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{q}_R$, 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 $q_v(\omega)$ 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 К) 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 $T \rightarrow T_c = 108$ К.

Особенности $K(T)$ в кристаллах типа КДР, 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 теплосопrotivления, 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 $1/k$. Подобранный 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. Manfe, A. J. H., Volger, J., Phys. Lett., **24A**, № 3, 139—140 (1967).
3. Suetmune, 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. Gairola, 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., Zavit, 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. Rappinger, 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. ALTUHOV

STRUKTUURSETE FAASISIIRETEGA KRISTALLIDE SOOJUSTAKISTUSE ISEÄRASUSED

On vaadeldud kristallivõre soojusjuhtivuse anomaalset temperatuurist sõltuvat käitumist struktuurse faasisiirde läheduses, kus on olulised foononsete täitearvude ruumilisel ajalised fluktuatsioonid. Esmakordselt on juhitud tähelepanu nendes tingimustes esinevale seni tundmatule soojusjuhtivuse kvaasielastsele mehhanismile, mille põhjustab akustiliste foononite hajumine tsentraalsel piigil. $T \rightarrow T_c$ 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 $T \rightarrow T_c$ 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 .