

ФИЗИКА ПОЛУПРОВОДНИКОВ И ДИЭЛЕКТРИКОВ

УДК 538.913

DOI: 10.17223/00213411/64/1/50

М.Л. ЗОЛОТАРЕВ, А.С. ПОПЛАВНОЙ, Т.П. ФЕДОРОВА, И.А. ФЕДОРОВ

ОСОБЕННОСТИ ФОНОННЫХ СПЕКТРОВ КРИСТАЛЛОВ CeO_2 , ThO_2 , NpO_2 ,
ОБУСЛОВЛЕННЫЕ СТРУКТУРОЙ ИХ ПОДРЕШЕТОК

В кристаллах CeO_2 , ThO_2 , NpO_2 акустические ветви фононного спектра отвечают преимущественно колебаниям ионов металла, оптические – кислорода за счет существенного различия величин масс этих компонент соединений. Важный кристаллографический фактор – металл и кислород размещаются в подрешетках, отвечающих разным типам Бравэ, что дает возможность анализировать колебания в соответствующих зонах Бриллюэна (ЗБ). Этот анализ проведен путем развертывания оптических ветвей фононного спектра из ЗБ кристалла в ЗБ подрешетки кислорода, число оптических ветвей в этой ЗБ вдвое меньше, чем в ЗБ кристалла. Влияние ангармонизма на тепловое уширение спектральных линий фононных частот исследовано в приближении двухфононных плотностей состояний. Вычисленные двухфононные плотности состояний для всех трех соединений представляют собой два широких структурированных пика. Температурные зависимости верхнего пика показывают тепловое уширение верхней части оптических ветвей, нижнего пика – низкоэнергетических оптических и акустических ветвей.

Ключевые слова: диоксиды тяжелых металлов, фононный спектр, подрешетки, псевдосимметрия, ангармонизм, двухфононная плотность состояний.

Введение

Диоксиды тяжелых металлов находят самое широкое техническое применение и поэтому их физические свойства исследуются уже достаточно длительное время в широком интервале температур [1, 2]. Кристаллы этих соединений являются суперионными проводниками по кислороду, в частности CeO_2 перспективен для использования в качестве электролита в твердотельных кислородных топливных ячейках (SOFCs) [1]. Диоксиды актинидов ThO_2 , NpO_2 хорошо известны как материалы ядерной энергетики [2]. Во многих работах отмечалось различное динамическое поведение ионов кислорода и металлов за счет существенного различия величин их масс (в ат. ед.: Ce – 140, Th – 232, Np – 237, O – 16). Уже в ранних работах [3, 4] при исследовании структуры UO_2 и ThO_2 методом нейтронной дифракции определены среднеквадратичные тепловые смещения атомов как функции температуры в интервале от 20 до 1100 °C и установлено, что смещения кислорода больше и быстрее растут с температурой за счет ангармонических колебаний. Подобные результаты получены при исследовании тепловых свойств методами рентгеновской дифракции для кристаллов NpO_2 в интервале температур от комнатной до 1174 K [5], для PuO_2 и ThO_2 в интервале от комнатной до 1274 K [6] и для CeO_2 в интервале температур от комнатной до 1770 K – методами нейтронной порошковой дифракции [7]. Температурная зависимость постоянной Грюнайзена γ , других тепловых параметров также связывалась с ангармонизмом колебаний решетки. Исследования ангармонических эффектов при низких температурах ($T = 12, 30, 300$ K) в кристаллах NpO_2 методами нейтронной дифракции выполнены в работе [8], определено значение коэффициента β_0 в ангармонической добавке 3-го порядка к потенциалу: $V_3 = \beta_0 \chi u z$. В области высоких температур помимо ангармонизма существенную роль начинает играть разупорядочение решетки.

Высокотемпературные исследования, вплоть до 2930 K, тепловых параметров колебаний решетки и упругих констант для UO_2 и ThO_2 выполнены в работе [9] методами неупругого рассеяния нейтронов. Разупорядочение подрешеток оценивалось путем измерения фракции ионов, покидающих регулярные узлы. Установлено, что френкелевский беспорядок в подрешетке кислорода начинается выше 2000 K, в то время как подрешетка металла все еще стабильна. Спектроскопическими методами исследовано изменение фононного спектра в высокотемпературной области. Оптические моды быстро уширяются в районе 2200 K и становятся ненаблюдаемыми при повышении температуры. Однако акустические моды хорошо определены до 2930 K, хотя заметно уширяются выше 2000 K. Тепловое уширение экситонных уровней в NpO_2 исследовано в работе [10] в интервале температур от 15 до 200 K и проведено сравнение с подобными исследованиями для UO_2 , PuO_2 и ThO_2 . Сделан вывод о сильном экситон-фононном взаимодействии в этих кристаллах, ширины фононных мод в NpO_2 больше, чем в ThO_2 . Комбинационное рассеяние (КР) первого порядка

Уважаемые читатели!

Доступ к полнотекстовой версии журнала
«Известия высших учебных заведений. Физика»
осуществляется на платформе
Научной электронной библиотеки eLIBRARY.RU
на платной основе:

<https://elibrary.ru/contents.asp?titleid=7725>