

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ОКСИДНЫХ КЕРАМИК В ОБЛАСТИ ГЕЛИЕВЫХ ТЕМПЕРАТУР

*А. В. Таранов**, *Е. Н. Хазанов***

*Институт радиотехники и электроники Российской академии наук
125009, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 28 декабря 2007 г.

Исследованы основные закономерности транспорта тепловых фононов в оксидных керамиках в области гелиевых температур. Проведен анализ зависимости теплофизических характеристик керамики от структурных особенностей материала — размера зерна R , толщины d и структуры межзеренных границ. Показано, что в плотных крупнодисперсных керамиках, для которых $qR \gg 1$ (q — волновой вектор фонона), межзеренные границы и размер зерна являются основными факторами, определяющими теплофизические характеристики материала в области гелиевых температур. На основе предложенного в работе критерия проведен сравнительный анализ теплофизических характеристик оптически прозрачных керамики на основе кубических оксидов $Y_3Al_5O_{12}$ (YAG), Y_2O_3 , синтезированных в различных технологических условиях.

PACS: 61.46.-w, 63.22.-m

1. ВВЕДЕНИЕ

Современные оксидные керамики, синтезированные из нанопорошков, это материалы, широкий спектр конструкционных и физических свойств которых, в том числе теплофизические свойства, определяется их структурой.

Интерес к структурным особенностям керамики, с одной стороны, связан с формированием новых функциональных свойств, обусловленных их микро- и нанодисперсной структурой. С другой стороны, процессы изготовления керамики требуют контроля фазового состава, упаковки кристаллитов (зерен), их размеров, а также толщины и структуры межзеренных границ (МГ) как ключевого элемента, определяющего теплофизические свойства керамических материалов.

Теплофизические свойства диэлектрических материалов в области температур $T > 50$ – 100 К определяются, как правило, неупругими процессами фонон-фононного взаимодействия. Это обстоятельство затрудняет исследование структурных особенностей как монокристаллов, так и керамики и композитов на

их основе в экспериментах по анализу транспортных свойств фононов в таких материалах, так как измеряемые величины при этом усреднены по фононному спектру и механизмам рассеяния.

При понижении температуры (энергии) фононов, когда возникают условия для конкуренции между временами их упругого (τ_0) и неупругого (τ^*) рассеяния, возможен широкий набор режимов, описывающих транспорт фононов в материалах со структурными дефектами [1]. Наиболее информативным для исследования структурных дефектов и процессов транспорта фононов является режим классической диффузии, когда тепловой импульс слаборавновесных фононов (НФ), распространяющийся в исследуемом образце, упруго рассеивается дефектами структуры в отсутствие неупругих процессов фонон-фононного взаимодействия. Условием формирования такого режима является соотношение времен $\tau_0 \ll \tau_b \ll \tau^*$ (τ_b — время баллистического распространения в исследуемом образце), что гарантирует постоянство количества фононов за время наблюдения $t < \tau^*$ и позволяет исключить влияние граничного рассеяния. Как правило, эти условия выполняются при гелиевых температурах практически для всех плотных диэлектрических оксидных материалов с дефектами. При этом длины волн тепловых

*E-mail: taranov@cplire.ru

**E-mail: khazanov@cplire.ru

фононов $\lambda_{ph} \approx 10\text{--}50$ нм соизмеримы с характерными размерами элементов структуры керамик (МГ, поры, нанофрагменты), что делает такие фононы эффективным инструментом исследований нано- и микро неоднородных материалов.

Возможность реализации режима диффузии НФ в керамиках в области гелиевых температур обоснована и наблюдалась в работе [2]. В работе [3] было показано, что дополнительная стабилизация структуры МГ в керамике на основе нитрида алюминия радикально меняла температурную зависимость коэффициента диффузии $D(T)$ НФ в области гелиевых температур и приводила к изменению абсолютных значений $D(T)$ более, чем на порядок величины. При этом теплопроводность при комнатной температуре изменялась лишь в пределах 20%. Анализ размеров и акустической плотности МГ, их связи с технологическими условиями компактирования и синтеза керамики на примере $ZrO_2:Y_2O_3$ проведен в работе [4], где было показано, что особенности кинетики НФ в области гелиевых температур в керамических материалах с $qR \gg 1$ определяются главным образом структурой МГ, а получаемые в экспериментах результаты хорошо отражают относительные изменения в структуре МГ при отработке технологии их синтеза.

Проявляемый в последнее время интерес к исследованиям керамик на основе кубических оксидов связан с возможностью получения оптически прозрачных конструкционных материалов, а также их использования в качестве активной среды для лазерной генерации. Ряд таких материалов в реальных условиях невозможно синтезировать в виде монокристаллов, например, кубические оксиды T_2O_3 ($T = Y, Lu, Sc$), но их физические свойства могут быть реализованы в структуре керамики. Лидером в создании и производстве оптически прозрачной керамики в настоящее время является японская фирма Konoshima Chemical Co. [5]. Оценка толщины и структуры МГ в отдельных образцах керамики производства этой фирмы на основе итрий-алюминиевого граната (YAG) методом кинетики НФ в области гелиевых температур была проведена в работе [6], где было показано, что МГ формировались из аморфной фазы SiO_2 , а их толщины составляли значения $d < a_0$ (a_0 — постоянная решетки материала зерна). В последнее время опубликованы сравнительные результаты измерений теплопроводности в монокристаллах YAG и образцах керамики той же фирмы с различным размером зерна [7]. Влияние технологических режимов на структуру МГ в керамике $Y_2O_3:Nd$ исследовалось в работе [8] в об-

разцах, синтезированных в Институте электрофизики УрО РАН.

В последнее время освоен синтез образцов прозрачной керамики на основе YAG:Nd в ИРЭ РАН [9], накоплен статистический материал по исследованию особенностей транспорта НФ в широком спектре оксидных керамик.

Целью настоящей работы является исследование общих закономерностей транспорта НФ в области гелиевых температур в упомянутых выше керамиках, синтезированных на основе YAG и других оксидных материалов, связи низкотемпературных теплофизических характеристик с размером и структурой зерен и МГ.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

В работе анализируется распространение слабо-неравновесных тепловых фононов, создаваемых импульсным нагревом пленки металла (золота), нанесенной на один из торцов исследуемого образца. Прошедший через «дефектный» образец импульс фононной неравновесности регистрировался на противоположном торце широкополосным приемником — болометром на основе сверхпроводящей пленки олова. Измерения проводились при гелиевых температурах. Температура термостата T_0 могла меняться путем откачки паров He в интервале 1.5–3.8 К. Рабочая точка болометра смещалась по температуре полем сверхпроводящего магнита, расположенного в непосредственной близости с болометром. Мощности, выделяемые в пленке металла, составляли $10^{-2}\text{--}10^{-1}$ Вт/мм² (длительность импульса ≤ 100 нс). При этом пленка нагревалась до температуры T_h , такой что $\Delta T = T_h - T_0 \ll T_0$. Это позволило считать, что планковское распределение термализованных в пленке фононов имело температуру термостата. В результате проведения измерений при различных значениях T_0 получали температурные характеристики рассеяния НФ тепловых частот. Наличие в исследуемом образце центров рассеяния формировало диффузионный характер распространения НФ, описываемый уравнением

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = \frac{1}{D} \frac{\partial T}{\partial t}, \quad (1)$$

где $D = \kappa/c_v$ — коэффициент диффузии; κ , c_v — соответственно теплопроводность и теплоемкость материала.

Решение уравнения (1) для случая плоской геометрии источника отражает превышение температуры болометра над равновесной:

$$\Delta T \propto t^{-1/2} \exp\left(-\frac{L^2}{4Dt}\right),$$

где L — размер образца в направлении распространения НФ. Измеряемой в экспериментах величиной являлось время t_m прихода на болометр максимума диффузионного сигнала, $t_m = L^2/2D$, где $D = (1/3)lv$, l — длина свободного пробега, v — средняя по направлениям и поляризациям скорость фононов. Полагая, что регистрируемый болометром максимум сигнала НФ формируется фононами, соответствующими максимуму спектральной плотности энергии планковского распределения ($\hbar\omega = 2.8kT_0$), можно было исследовать теплофизические характеристики материала в рамках одночастотной модели.

В микро неоднородных керамических материалах в условиях $qR \gg 1$ спектр фононов аналогичен спектру колебательных возбуждений материала зерна. Поэтому при анализе транспортных свойств фононов в керамиках важно представлять, какие механизмы рассеяния определяют этот транспорт в исходных монокристаллах. В области гелиевых температур при исследовании теплопроводности монокристаллов YAG реальные механизмы рассеяния фононов маскируются граничным рассеянием [10]. В проводимых экспериментах в условиях «плоского» источника фононов (одномерная геометрия) в монокристаллах YAG реализовывался режим классической диффузии, что контролировалось энергией НФ, геометрией и размерами образца [11].

Эксперименты с монокристаллами YAG и твердыми растворами на их основе показали, что в матрице YAG остаточное рассеяние НФ определяется рэлеевским механизмом ($\tau_0 \propto T^{-4}$) на атомах Y, заместивших Al в октаэдрических позициях решетки граната, $\tau_0 \approx 10^{-6}$ с при $T_0 = 3.8$ К. При средней скорости $v = 5.6 \cdot 10^5$ см/с это соответствует длине свободного пробега НФ в материале, равной $l = 0.5-0.6$ см. Времена неупругого рассеяния НФ ($\tau^* \propto T^{-5}$) для фононов тех же энергий ($T = 3.8$ К), измеренные в работе [12], имели значения $\tau^* \approx 3 \cdot 10^{-4}$ с. При этом значение длины свободного пробега относительно процесса ангармонического распада фонона, $l^* = \sqrt{D\tau^*}$, позволяет оценить предельные размеры образцов, исключая наличие в них неупругих процессов рассеяния за время наблюдения максимума сигнала регистрируемого теплового импульса.

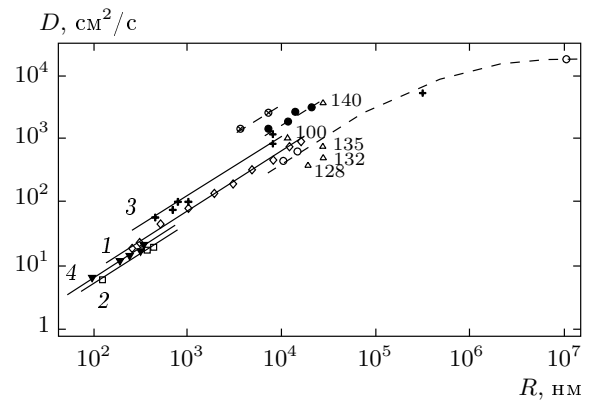


Рис. 1. Зависимости $D(R)$ в области $qR \gg 1$ в оксидных керамиках при $T = 3.8$ К: 1 — Al_2O_3 [13]; 2 — $\text{ZrO}_2:\text{Y}_2\text{O}_3$ [4]; 3 — $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Nd}$ [8]; 4 — TiO_2 (СВЧ-синтез) [14]; \circ — YAG, \bullet — YAG:Nd [6], \otimes — YAG [7], Δ — YAG:1%Nd

Для плотных, оптически прозрачных керамик на основе YAG [6] значения $D|_{3.8 \text{ К}} \approx 10^3$ см²/с (более, чем на порядок меньше значения в монокристаллах), что соответствует $l^*|_{3.8 \text{ К}} \approx 0.5$ см. При этом измеренные длины свободного пробега неравновесных фононов относительно упругого рассеяния на МГ $l \approx (2-5)R = 20-50$ мкм. Такое соотношение длин свободного пробега обеспечивало формирование режима классической диффузии. В керамиках с $D|_{3.8 \text{ К}} \approx 10^1-10^2$ см²/с ограничения на размер образцов составляли $L \leq 0.05-0.2$ см. Минимальный размер образцов определялся появлением баллистической компоненты в регистрируемом сигнале.

На рис. 1 представлены зависимости коэффициента диффузии D от среднего размера зерна в ряде плотных оксидных керамик при $T = 3.8$ К и при условии $qR \gg 1$. В этом случае резонансным рассеянием НФ на зернах можно пренебречь. Из рис. 1 видно, что коэффициент диффузии НФ растет по мере роста зерна. Крайняя правая точка на графике соответствует данным для монокристалла YAG [11]. Символами \otimes показаны значения $D_{3.8 \text{ К}}$, полученные из данных измерений теплопроводности керамик YAG в работе [7]. Образцы YAG:1%Nd, исследованные в настоящей работе (представлены на рис. 1 под рабочими номерами), были синтезированы в различных технологических режимах, что определяло разные условия формирования МГ и наличие остаточных пор.

Все представленные на рис. 1 керамики крупнодисперсные ($qR \gg 1$), что позволяет полагать МГ плоскими. Случай, когда R соизмеримо с длиной

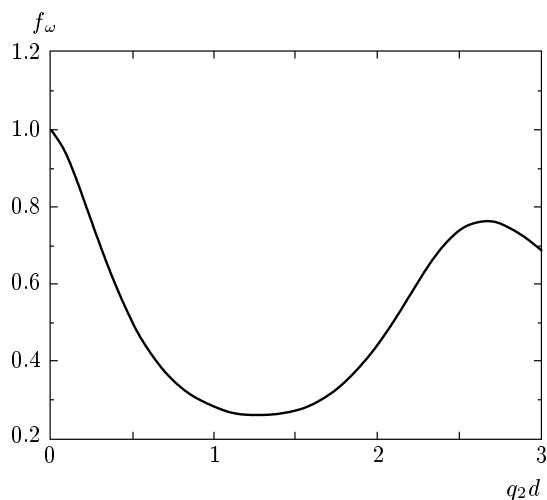


Рис. 2. Расчетная зависимость вероятности $f_\omega(q_2 d)$ прохождения НФ частоты ω из зерна в зерно через граничный слой толщины d в структуре YAG – аморфный SiO_2 – YAG согласно [13]

волны фонона ($qR \approx 1$) рассмотрен в работе [15], где МГ моделируются оболочками диаметра R с отличным от зерна коэффициентом упругости. Показано, что резонансный характер рассеяния НФ в нанодисперсном материале приводит к резкому уменьшению $D(R)$, а в условиях $k_2/k_1 \ll 1$ (k_1 и k_2 — коэффициенты упругости соответственно материала зерна и оболочки) — к возникновению запрещенной зоны в спектре фононных возбуждений материала.

Ключевым вопросом в поведении коэффициента теплопроводности является характер зависимости $D(T)$, определяемый рассеянием НФ на МГ. В работе [16] был теоретически проанализирован случай рассеяния НФ с энергией 29 см^{-1} в керамике $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ в предположении, что рассеяние на МГ определяется только кристаллографической разориентацией соседних зерен керамики при отсутствии какого-либо слоя между ними. Было показано, что в этом случае температурно-независимого механизма рассеяния НФ отношение $l/R \approx 15$, а вероятность прохождения через границу $f_\omega = 0.96$. При этом длина свободного пробега в направлении распространения фононов

$$l = 0.6R \frac{1}{1 - \langle \cos \alpha \rangle}$$

($\langle \cos \alpha \rangle$ — средний косинус угла однократного рассеяния НФ на МГ). Данный результат важен, так как определяет минимальные значения рассеяния НФ на МГ.

Однако такой подход не описывает наблюдаемую в экспериментах температурную зависимость $D(T)$. Модель, учитывающая конечную толщину МГ (зерно – плоский слой толщины d – зерно), была предложена в работе [13], где распространение НФ в зерне полагалось баллистическим, а вероятность прохождения из зерна в зерно — порядка f_ω . Данная величина определялась как отношение мощности потока НФ, прошедшего из зерна в зерно, к мощности излучения, падающего на МГ, с учетом всех углов падения и прохождения НФ и импедансов материалов зерна и МГ.

На рис. 2 для плоского слоя толщиной d , моделирующего МГ, представлена теоретическая зависимость f_ω от акустической толщины межзеренной границы ($q_2 d$) для керамики YAG (q_2 — волновой вектор фонона в материале МГ) для соотношения акустических импедансов МГ и зерна (YAG/аморфный SiO_2). Характер зависимости резонансный. В случае, когда проекция волнового вектора q_2 сравнима с толщиной границы d , вероятность прохождения минимальна.

Из качественных соображений следует, что в плотной керамике $D(T) \propto Rv f_\omega$ [2], т.е. температурная зависимость $D(T)$ определяется поведением $f_\omega(T)$. На рис. 3 приведены зависимости $D(T)$ в интервале температур 2.3–3.86 К для ряда образцов керамики YAG:1%Nd, синтезированных в ИРЭ РАН в условиях различных технологических маршрутов. Значения D при $T = 3.8 \text{ К}$, а следовательно, и времена упругого рассеяния НФ в исследованных образцах более, чем на порядок величины меньше значений в монокристалле YAG и твердом растворе YAG:10%Re (Re — примесь редкоземельного металла), что позволяет не учитывать рэлеевское рассеяние НФ на остаточных примесях и малых концентрациях Nd при анализе рассеяния на МГ. Судя по характеру зависимостей $D(T)$ в исследованных керамиках, во всех случаях $\partial D/\partial T < 0$, т.е. $q_2 d < 1$ (тонкая граница). Зависимости на рис. 3 меняются от $D(T) \propto T^{-2}$ до $D(T) \propto T^{-1}$ по мере увеличения толщины МГ, что для данных керамик в области гелиевых температур ($c_v \propto T^3$) должно приводить к соответствующему изменению температурной зависимости теплопроводности $k(T) = c_v D(T)$. Отметим, что частоты упруго рассеиваемых НФ, формирующих максимум регистрируемого болометром диффузионного сигнала в YAG, согласно [11], соответствуют $\hbar\omega \approx (3-4)kT$. В экспериментах по исследованию теплопроводности фононы данных частот определяют температурную зависимость в интервале температур 8–16 К, что и наблюдалось в рабо-

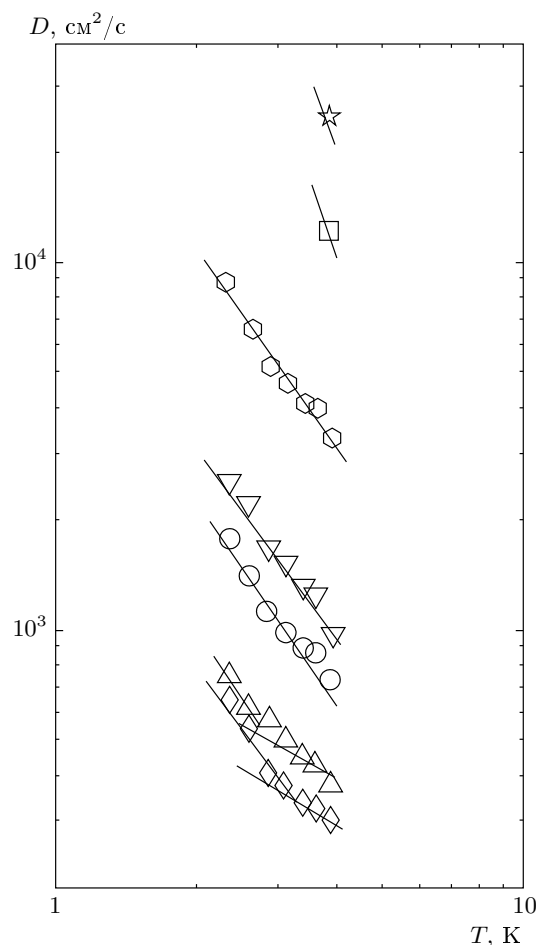


Рис. 3. Зависимости $D(T)$ для образцов керамики YAG:1%Nd с различной степенью стабилизации границ: образцы 140 (шестиугольник), 100 (∇), 135 (\circ), 132 (\triangle), 128 (\diamond). Значения коэффициента диффузии НФ в монокристалле YAG (\star) и твердом растворе $Y_{2.7}Re_{0.3}Al_5O_{12}$ (\square) при $T = 3.8$ К из [11]

те [7] при $k(T) \propto T$.

Характеристики образцов и расчетные значения d , полученные из анализа температурных зависимостей $D(T)$, представлены в таблице.

Методика определения структурных особенностей МГ на основе анализа температурных зависимостей $D(T)$ в общем случае тонкой или толстой МГ изложена в работе [4] на примере отработки вопросов компактирования и технологических маршрутов синтеза керамик на основе $ZrO_2:Y_2O_3$. Экспериментальные результаты сопоставлялись с выражением

$$l = l_0 \frac{f_\omega}{1 - f_\omega}$$

№ образца	R , мкм	L , см	$D _{3.8 \text{ К}}$, $\text{см}^2/\text{с}$	d , нм (вычисленное значение)
100	11	0.175	$9.6 \cdot 10^2$	0.21
135	30	0.143	$7.3 \cdot 10^2$	0.493
128	22	0.108	$3 \cdot 10^2$	0.67
132	31	0.141	$3.78 \cdot 10^2$	0.74
140	27	0.44	$3.32 \cdot 10^3$	0.31

из работы [17], физический смысл которого — эффективная длина свободного пробега НФ в слоистой периодической структуре с периодом R в условиях отсутствия рассеяния НФ в материале зерна ($l_0 = 0.6R$ — средняя длина пробега НФ в зерне до акта рассеяния на границе [16]).

Оптически прозрачные керамики на основе кубических оксидов имеют достаточно упорядоченную структуру и, скорее, напоминают поликристалл, в котором формирование МГ определяется процессом пластической деформации двойникованием на стадии компактирования нанопорошков. Изучение морфологии МГ [18] показало, что они имеют полосчатую структуру, а тройные стыки зерен имеют примерно одинаковые углы 120° , что свидетельствует о сопряжении зерен по плоскостям (111), т.е. по октаэдру. Указанная упаковка кристаллитов в условиях малой дисперсии размеров зерен R позволяет рассматривать структуру исследуемого образца как совокупность плоскопараллельных граней, равноотстоящих на расстояние R , границы между которыми («плоские слои») имеют конечную толщину менее 1 нм.

На рис. 4 представлена теоретическая зависимость отношения $f_\omega/(1 - f_\omega)$ от $q_2 d$ в образцах оптически прозрачной керамики YAG. Зависимость отражает участок резонансной кривой для случая отношения импедансов материала зерна (YAG, $\rho = 4.55 \text{ г/см}^3$, $v = 5.6 \cdot 10^5 \text{ см/с}$) и материала МГ (SiO_2 -стеклофаза, $\rho_2 = 2.02 \text{ г/см}^3$, $v = 4.05 \cdot 10^5 \text{ см/с}$) $z_2/z_1 = 0.32$. Там же приведены экспериментальные зависимости $D(T)$ для образцов, представленных на рис. 3. Длина свободного пробега НФ для данной температуры в конкретном образце вычислялась из значений времени $t_m(T)$ прихода максимума диффузионного сигнала при данной температуре:

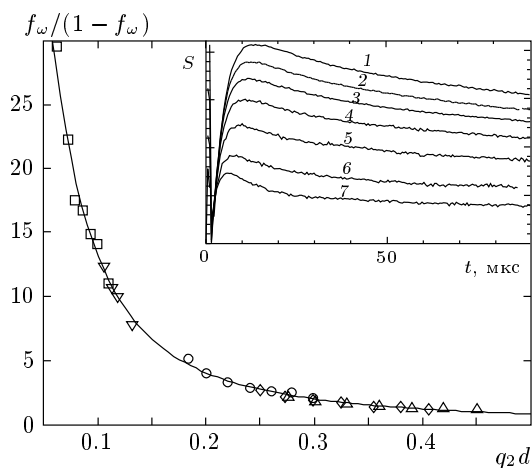


Рис. 4. Расчетная зависимость $f_\omega/(1 - f_\omega)$ от акустической толщины МГ в образцах YAG:1%Nd. Точки — эксперимент для образцов керамики YAG, представленных на рис. 3: 140 (\square), 100 (∇), 135 (\circ), 132 (\triangle), 128 (\diamond). На вставке — временные зависимости регистрируемого болометром сигнала $S(t)$ фононной неравновесности в образце 135 при различных температурах термостата: $T = 3.86$ (1), 3.60 (2), 3.36 (3), 3.10 (4), 2.83 (5), 2.58 (6), 2.36 (7) К

$$l(T) = \frac{3L^2}{2vt_m(T)}$$

Пример семейства диффузионных кривых для ряда температур в одном из образцов приведен на вставке к рис. 4. По данному значению l для одной из точек (например $T = 3.8$ К) по теоретической зависимости определялась величина $q_2 d$, из которой, в свою очередь, вычислялось значение d ($q_2 = 2.8kT_0/\hbar v$). Координатами остальных точек температурной зависимости для данного образца были соответствующие экспериментальные значения $l(T)/0.6R$ и $q_2(T)d$ (для значения d , вычисленного на предыдущем шаге). То, что точки, соответствующие экспериментальным значениям для всех образцов, ложатся на расчетную зависимость, свидетельствует об удовлетворительном качестве предложенной модели.

Тот факт, что различные технологические маршруты синтеза керамик при плотной упаковке и хорошем качестве кристаллитов ($l/R > 1$) приводят к различной толщине МГ, позволяет считать размер (толщину МГ) важным технологическим параметром материала.

На рис. 5 представлены зависимости нормированного на размер зерна R коэффициента диффузии

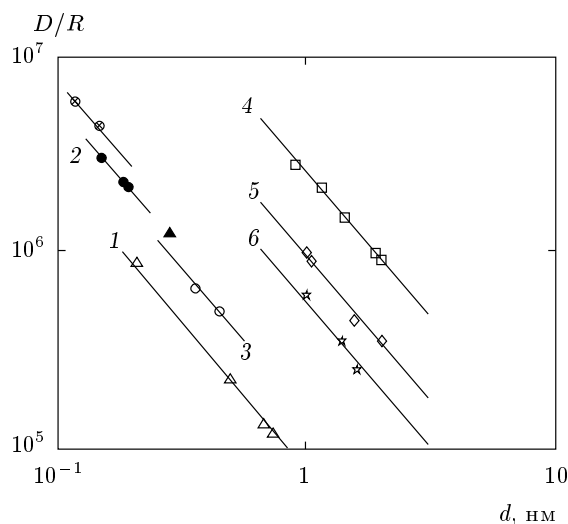


Рис. 5. Нормированные на размер зерна R зависимости коэффициента диффузии НФ от d при $T = 3.8$ К в керамиках: 1 — YAG:1%Nd; 2, 3 — YAG:1%Nd и YAG [6]; 4 — $Y_2O_3:1\%Nd$ [8]; 5, 6 — $ZrO_2:Y_2O_3$ (разные способы компактирования $\rho_5 > \rho_6$) [4]. Точки \otimes — значения из данных по теплопроводности в керамиках YAG $R = 3.0, 7.5$ мкм из [7]. \blacktriangle — YAG:1%Nd, образец 140

НФ от d при $T = 3.8$ К в керамиках на основе кубических оксидов. Все результаты приведены для случая $qR \gg 1$ и $l/R > 1$. Последнее условие гарантирует баллистическое распространение НФ в зерне. Зависимости 1 и точка \blacktriangle на продолжении зависимости 3 (образец 140) отражают данные таблицы. Зависимости 5, 6 соответствуют образцам керамики $ZrO_2:Y_2O_3$ [4], полученным различными методами компактирования, обусловившими их различную плотность.

Зависимости, приведенные на рис. 5, свидетельствуют о том, что теплофизическое качество керамик в исследуемом диапазоне улучшается по мере уменьшения толщины МГ (зависимость от R учтена при нормировке). Зависимости 1 в исследованных керамиках YAG связаны с наличием избыточной пористости в процессе отработки технологии синтеза. Поры имели размер приблизительно 1 мкм ($qR_p \gg 1$) и, согласно [15], не давали существенного вклада в температурную зависимость $D(T)$.

Зависимости 2 и 3 на рис. 5, полученные из результатов работы [6], могут свидетельствовать о вытеснении части ионов Nd в область границ в процессе синтеза керамики, что при оценке толщины МГ требует корректного учета величины акустического импеданса материала МГ.

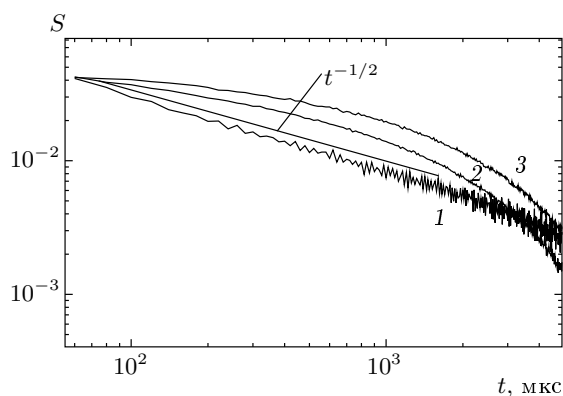


Рис. 6. Асимптотики заднего фронта фононного сигнала (за максимумом) в образцах: 1 — $\text{Y}_2\text{O}_3:1\%\text{Nd}$ ($d \approx a_0$), 2 — $\text{Y}_2\text{O}_3:1\%\text{Nd}$ ($d > a_0$) из [8], 3 — $\text{YAG}:1\%\text{Nd}$ (образец 135)

Две точки \otimes в области малых d из данных по теплопроводности в керамиках YAG с размером зерна 3.0 и 7.5 мкм из работы [7] корректно отражают только значения D/R и условно привязаны к соответствующим значениям d . Значения $l/R \geq 20$ для данных керамик, характеризующие качество их МГ, затрудняют оценку толщины и структуры МГ в рамках рассматриваемой в работе модели, которая предполагает конечные значения толщины МГ, что приводит к резонансному механизму рассеяния фононов при переходе из зерна в зерно. Значения теплоемкости YAG при оценках брались из работы [19]. На данный момент эти результаты можно считать рекордными для керамик на основе YAG, когда высокая стабилизация МГ достигнута при наименьшем размере зерна.

Зависимость 4 (рис. 5) отражает результаты исследований серии керамик $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Nd}$, полученных в Институте электрофизики УрО РАН в условиях различных технологических режимов синтеза [8]. Одним из технологических условий при компактировании таких керамик было отсутствие добавок иных материалов для формирования МГ. В синтезированных плотных прозрачных образцах керамик Y_2O_3 с высокой степенью стабилизации границ оказалось, что $d \approx a_0$, а значение отношения $l/R \approx 10$ приближалось к условиям [16], когда рассеяние на МГ начинает определяться кристаллографической ориентацией соседних зерен. При этом наблюдалось различие в поведении диффузионного сигнала, регистрируемого в образцах $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Nd}$ с МГ $d \approx a_0$ и $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Nd}$ при $d > a_0$.

На рис. 6 представлены асимптотики заднего фронта диффузионного сигнала в двойном логарифмическом масштабе для образцов $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Nd}$ с $d \approx a_0$ и $d > a_0$ из работы [8] и YAG (образец 135), где МГ представляла собой слой аморфного SiO_2 с акустическим импедансом, сильно отличающимся от акустического импеданса зерна. Отметим, что режим диффузии во всех случаях контролировался по соответствию зависимости $t_m(L) \propto L^2$.

Затягивание заднего фронта регистрируемого диффузионного сигнала в образце керамики YAG, так же как и в образце керамики $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Nd}$ с $d > a_0$, на фоне зависимости $S(t) \propto t^{-1/2}$ в $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Nd}$ с $d \approx a_0$, характерной для классической диффузии, может быть связано с переотражениями от МГ при баллистическом распространении НФ в зернах (кристаллитах) из-за сильного различия акустических импедансов зерна и МГ в YAG. А в случае достаточно толстой границы $d > a_0$ в Y_2O_3 возможно и квазиупругое рассеяние, связанное с переотражениями НФ внутри межзеренного слоя. Вид зависимости $S(t) \propto t^{-1/2}$ свидетельствует об однократном упругом рассеянии НФ на МГ, и может быть критерием оценки качества стабилизации МГ.

Таким образом, теплофизические свойства плотных, хорошо структурированных керамик на основе оксидов в области $qR \gg 1$ при Не-температурах определяются размером кристаллитов (зерен) $D \approx R$ и толщиной МГ. Характер температурной зависимости определяется резонансным рассеянием фононов на МГ.

Исследования кинетики НФ в области Не-температур являются чувствительным способом сравнительной оценки степени стабилизации МГ в керамических материалах в зависимости от условий их компактирования и синтеза. Полученные результаты и предложенные критерии оценки теплофизических свойств керамических материалов отражают средние по образцу данные по структуре МГ.

Авторы выражают благодарность Ю. Л. Копылову и В. Б. Кравченко за предоставленные образцы и обсуждение результатов.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты №№ 07-02-12033, 07-02-00391), программы Президиума РАН 2П.

ЛИТЕРАТУРА

1. И. Б. Левинсон, ЖЭТФ **79**, 1394 (1980).

2. С. Н. Иванов, А. Г. Козорезов, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, *ЖЭТФ* **102**, 600 (1992).
3. С. Н. Иванов, Л. М. Жукова, Я. Н. Сойфер, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, *Неорг. материалы* **36**, 611 (2000).
4. Ю. Н. Барабаненков, В. В. Иванов, С. Н. Иванов, Е. И. Саламатов, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, О. Л. Хасанов, *ЖЭТФ* **129**, 131 (2006).
5. K. Ueda, J. Lu, K. Takaichi et al., *Rev. Laser Eng.* **31**, 465 (2003).
6. Ю. Н. Барабаненков, С. Н. Иванов, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, Х. Яги, Т. Янагитани, К. Такаичи, Дж. Лю, Дж.-Ф. Биссон, А. Ширакава, К. Уеда, А. А. Каминский, *Письма в ЖЭТФ* **79**, 421 (2004).
7. H. Yagi, T. Yanagitani, T. Numazawa, and K. Ueda, *Ceramics Int.* **33**, 711 (2007).
8. В. В. Иванов, С. Н. Иванов, А. С. Кайгородов, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, В. Р. Хрустов, *Неорг. материалы* **43**, 1515 (2007).
9. A. A. Kaminskii, V. B. Kravchenko, Yu. L. Kopylov, S. N. Bagaev, V. V. Shemet, A. A. Komarov, F. Kalmeyer, and H. J. Eichler, *Phys. Stat. Sol. (a)* **204**, 2411 (2007).
10. G. A. Slack and D. W. Oliver, *Phys. Rev.* **134**, 592 (1971).
11. S. N. Ivanov, E. N. Khazanov, T. Paszkiewicz, M. Wilczynski, and A. V. Taranov, *Z. Phys. B* **99**, 535 (1996).
12. С. Н. Иванов, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, *ЖЭТФ* **99**, 1311 (1991).
13. Ю. Н. Барабаненков, В. В. Иванов, С. Н. Иванов, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, *ЖЭТФ* **119**, 546 (2001).
14. В. В. Иванов, С. Н. Иванов, О. В. Карбань, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, В. Р. Хрустов, *Неорг. материалы* **40**, 1400 (2004).
15. В. В. Иванов, Е. И. Саламатов, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, *ЖЭТФ* **133**, 339 (2008).
16. А. А. Каплянский, М. Б. Мельников, С. Н. Феофилов, *ФТТ* **38**, 1434 (1996).
17. В. Д. Каган, А. В. Суслов, *ФТТ* **36**, 2672 (1994).
18. М. Ш. Акчурин, Р. В. Гайнутдинов, Р. М. Закалюкин, А. А. Каминский, *ДАН* **415**, 322 (2007).
19. С. Р. Арутюнян, Х. С. Багдасаров, А. П. Додокин, А. М. Кеворков, *ФТТ* **27**, 2299 (1985).