

Теоретическое исследование низкотемпературной теплоемкости одностенных и двустенных углеродных нанотрубок, взаимодействующих с окружением

М. В. Авраменко*, С. Б. Рошаль

Южный федеральный университет, г. Ростов-на-Дону, Россия

*avramenko.marina@gmail.com

Краткое содержание работы

В данной работе развивается континуальная модель низкочастотной динамики одностенных и двустенных углеродных нанотрубок (ОУНТ и ДУНТ) [1], слабо взаимодействующих с окружением. В результате:

- ❖ рассмотрена связь низкочастотного фононного спектра двустенной углеродной нанотрубки с фононными спектрами составляющих ее одностенных нанотрубок;
- ❖ предложен способ учета влияния окружения на низкочастотный фононный спектр одностенных и двустенных углеродных нанотрубок;
- ❖ предложен комбинированный метод оценки коэффициентов ван-дер-Ваальсова взаимодействия между слоями двустенной нанотрубки на основе спектроскопических данных и известных величин упругих модулей графита;
- ❖ рассчитана низкотемпературная удельная теплоемкость одностенных и двустенных углеродных нанотрубок;
- ❖ показано, что окружение наиболее существенным образом влияет на перестройку низкочастотного фононного спектра одностенных углеродных нанотрубок, что вызывает уменьшение их удельной теплоемкости более чем на порядок при сверхнизких температурах;
- ❖ установлено, что удельная теплоемкость двустенных углеродных нанотрубок оказывается значительно меньше, чем сумма удельных теплоемкостей двух образующих ее индивидуальных одностенных нанотрубок, при этом основной причиной данного эффекта является не окружение, а межслоевое взаимодействие между стенками двустенной трубки.

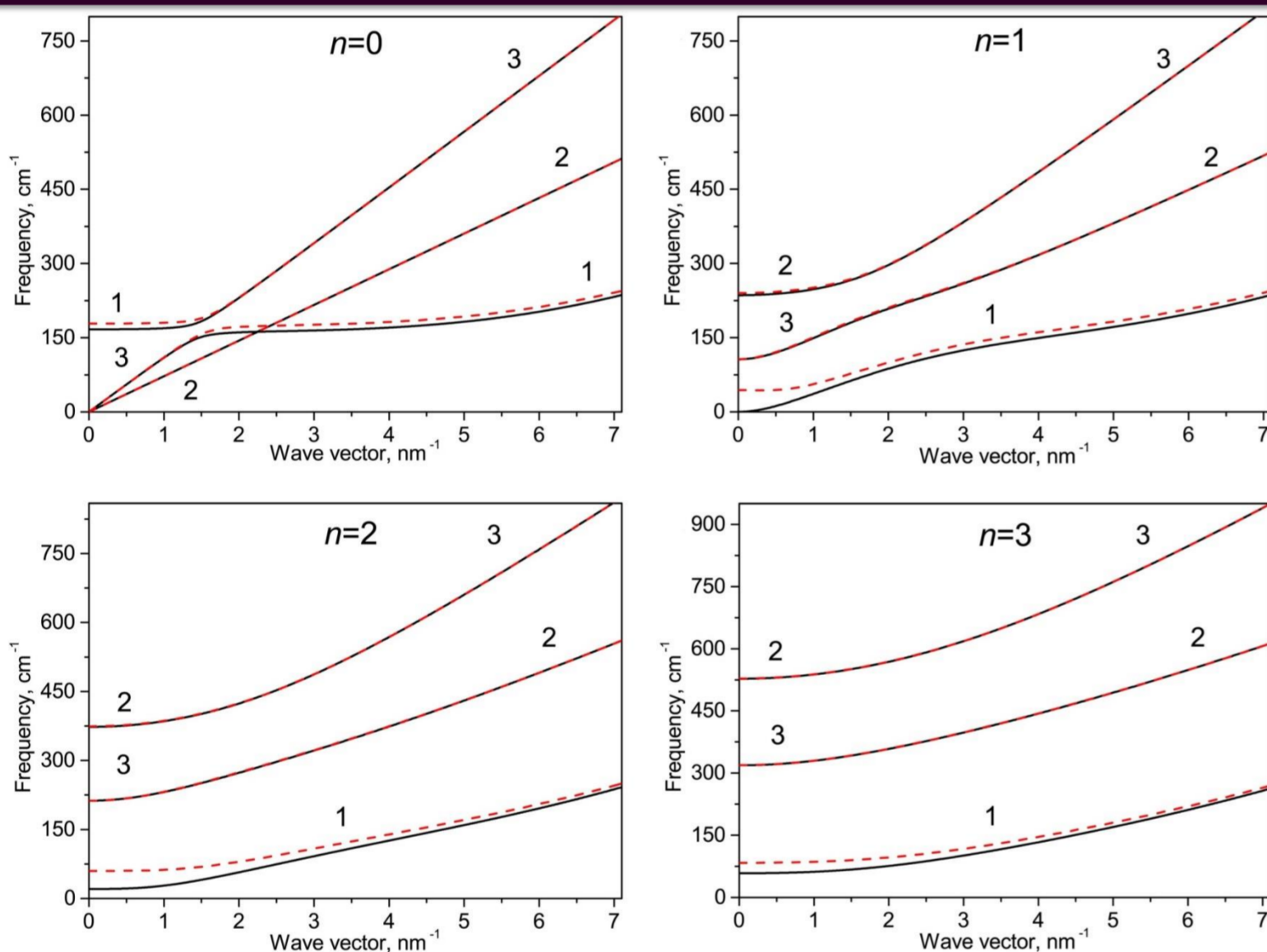
Динамика ОУНТ, взаимодействующей с окружением

Плотность свободной энергии двумерной мембраны, учитывающая взаимодействие между ОУНТ и окружением

$$g = \frac{\lambda}{2} (\varepsilon_{ii})^2 + \mu \varepsilon_{ij}^2 + 2K(\Delta H)^2 + \frac{C}{2} (u_r)^2,$$

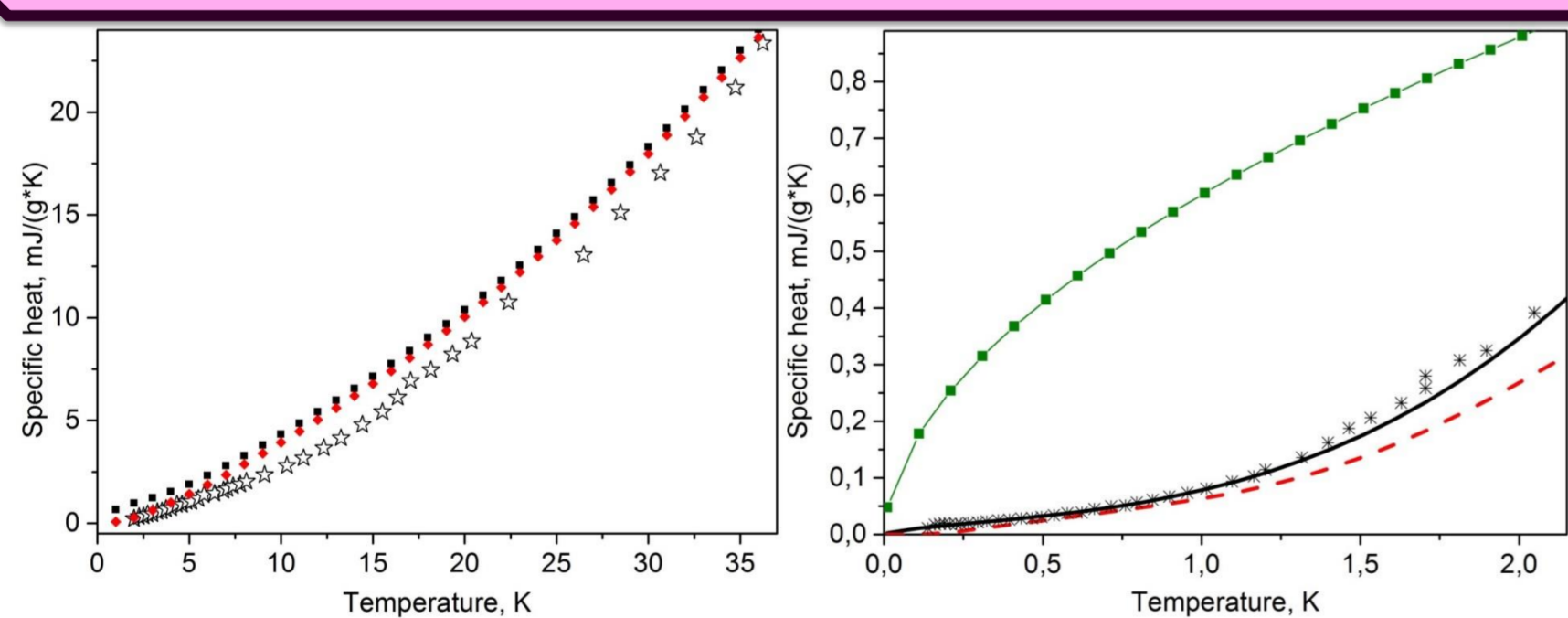
где λ и μ - плоские аналоги коэффициентов Ламе, K - прогибная упругость, H_0 - равновесная средняя кривизна мембраны, H - кривизна, приобретаемая мембраной в результате ее деформации, C - пиннинг-коэффициент, описывающий взаимодействие ОУНТ со средой, ε_{ij} - двумерный тензор деформации, зависящий в общем случае от H_0 и трехмерного поля смещений мембраны $\mathbf{u} = (u_r, u_\phi, u_z)$.

Дисперсия фононов для ОУНТ (10, 10) и $n=0..3$



Сплошные черные кривые построены для индивидуальной ОУНТ, а прерывистые красные - для той же самой ОУНТ, находящейся в среде с $C/\rho=4000 \text{ с}^{-2}$. В силу наличия у ОУНТ кривизны, колебания, за исключением выделенного случая $k=0$, характеризуются смешанной поляризацией. Моды с преимущественно радиальным, тангенциальным и продольным направлением поляризации обозначены цифрами 1, 2, и 3, соответственно. Преимущественные поляризации мод могут меняться с изменением волнового вектора.

Удельная теплоемкость ОУНТ



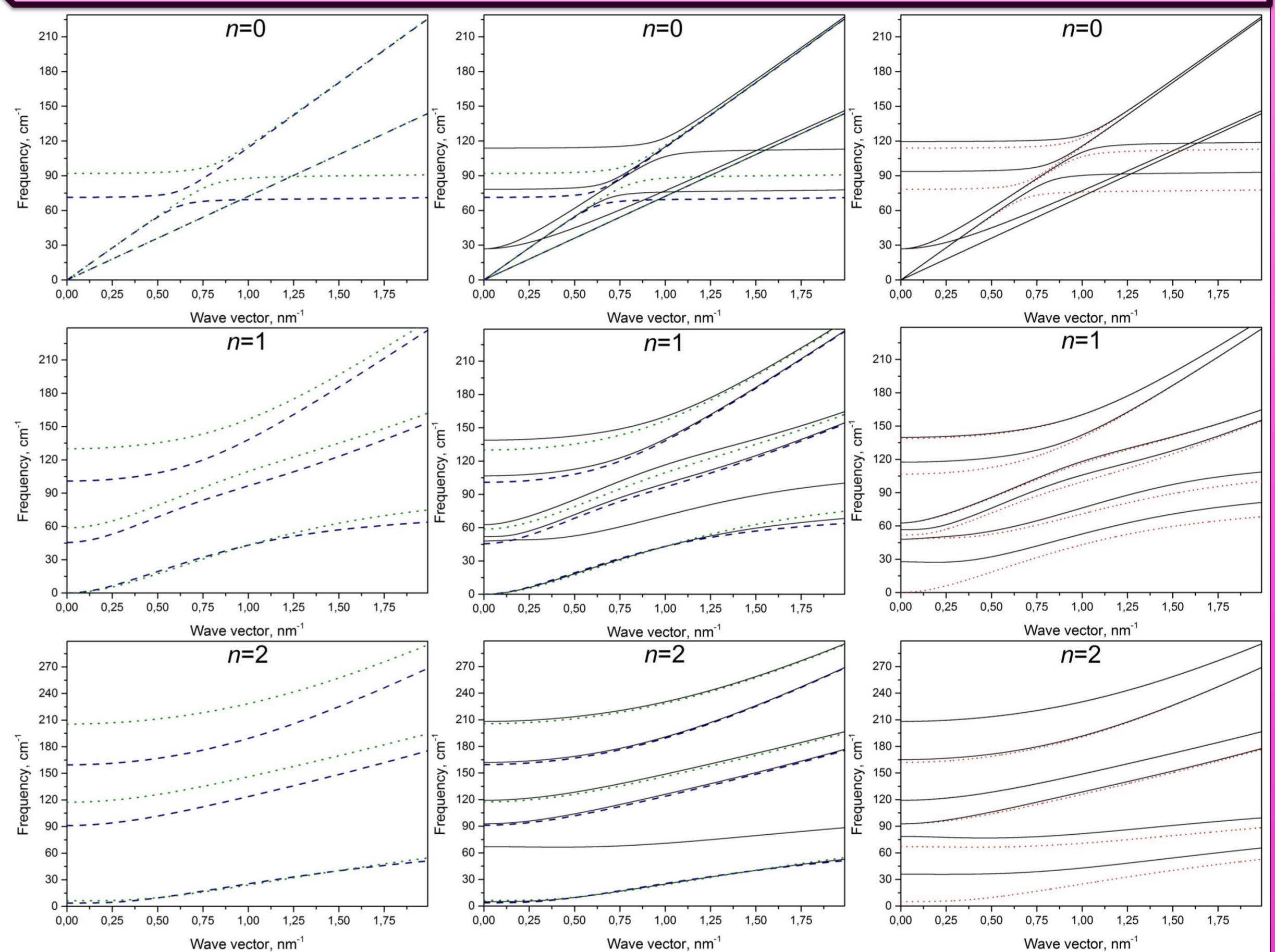
(а) Зависимость удельной теплоемкости от температуры: теоретическая с учетом пиннинг-эффекта (красные квадраты) и без его учета (черные квадраты), а также экспериментальная (пустые звезды), полученная с образца, содержащего преимущественно пучки ОУНТ [2].

(б) Экспериментальные данные [3], аппроксимируемые функцией $0.043T^{0.62} + 0.035T^3$ [3] (черная кривая) и наши теоретические данные с учетом пиннинга ($C/\rho=100 \text{ с}^{-2}$) (красная кривая). Все предыдущие теоретические модели предсказывают значения теплоемкости, лежащие выше зеленой кривой.

Вывод #1:

Сверхнизкотемпературная теплоемкость ОУНТ в принципе не может быть корректно описана без учета взаимодействия между ОУНТ и окружением. Насколько нам известно, предложенный подход является единственным корректно описывающим экспериментальные данные в области при $T < 2 \text{ К}$.

Особенности низкочастотной динамики ДУНТ



Связь между низкочастотными фононными спектрами свободных ОУНТ (22, 14) и (40, 1) и ДУНТ (22, 14)@(40, 1). Спектры ОУНТ (22, 14) и (40, 1) показаны в первом столбце синими штриховыми и зелеными пунктирными линиями соответственно. Во втором столбце сверху дополнительно наложен фононный спектр свободной ДУНТ, показанный черными сплошными линиями. Наконец, в последнем столбце тот же спектр свободной ДУНТ перерисован красной пунктирной линией, а сверху черной сплошной линией изображен спектр ДУНТ, взаимодействующей с окружением. Графики, представленные в каждой строке, соответствуют дисперсионным кривым фононного спектра с одинаковым значением волнового числа l [5].

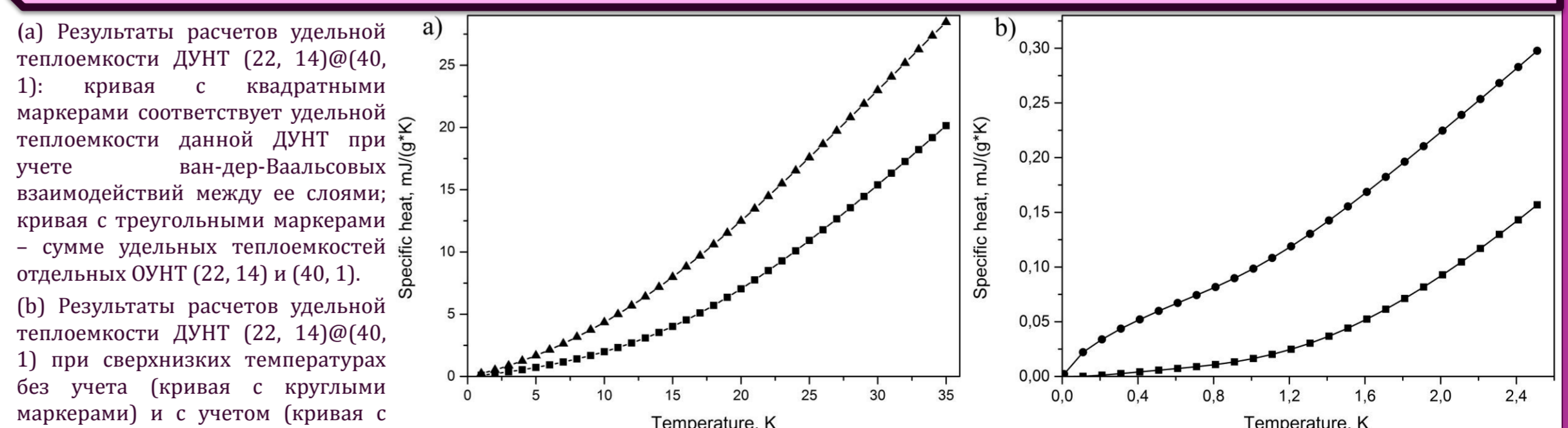
Оценка тангенциального взаимодействия между слоями ДУНТ

На основе метода [1] оценки коэффициента радиального ван-дер-Ваальсова взаимодействия между слоями ДУНТ из данных спектроскопии комбинационного рассеяния света и известных величин модулей упругости графита, можно получить:

$$G_r \approx \frac{c_{33} R_1 + R_2}{2 R_1 - R_2}, G_\phi \approx G_z \approx \frac{c_{44} R_1 + R_2}{2 R_1 - R_2}, \frac{G_r}{G_z} \approx \frac{G_r}{G_z} \approx \frac{c_{33}}{c_{44}} \approx \left(\frac{v_{LA}}{v_{TA}}\right)^2 \approx 7.75,$$

где G_r , G_ϕ и G_z - материальные константы, описывающие радиальное, тангенциальное поперечное и тангенциальное продольное взаимодействия между слоями ДУНТ, c_{33} и c_{44} - модули упругости графита, v_{LA} и v_{TA} - скорости распространения соответствующих звуковых волн в графите [5].

Удельная теплоемкость ДУНТ



(а) Результаты расчетов удельной теплоемкости ДУНТ (22, 14)@(40, 1): кривая с квадратными маркерами соответствует удельной теплоемкости данной ДУНТ при учете ван-дер-Ваальсовых взаимодействий между ее слоями; кривая с треугольными маркерами - сумме удельных теплоемкостей отдельных ОУНТ (22, 14) и (40, 1).

(б) Результаты расчетов удельной теплоемкости ДУНТ (22, 14)@(40, 1) при сверхнизких температурах без учета (кривая с круглыми маркерами) и с учетом (кривая с квадратными маркерами) взаимодействия между указанной ДУНТ и ее окружением. Величина C/ρ , определяющая радиальное взаимодействие ДУНТ с окружением, была принята равной 100 с^{-2} (как в случае с ОУНТ в работе [4], где это значение было получено с помощью аппроксимации экспериментальных данных) [5].

Вывод #2:

Удельная теплоемкость двустенных углеродных нанотрубок оказывается значительно меньше, чем сумма удельных теплоемкостей двух образующих ее индивидуальных одностенных нанотрубок, при этом основной причиной данного эффекта является не окружение, а межслоевое взаимодействие между стенками двустенной трубки.

[1] S. B. Rochal, V. L. Lorman and Yu. I. Yuzyuk, Physical Review B **88**, 235435 (2013).
 [2] J. Hone, B. Batlogg, Z. Benes, A. T. Johnson and J. E. Fischer, Science **289**, 1730 (2000).
 [3] J. C. Lasjaunias, K. Biljaković, Z. Benes, J. E. Fischer, and P. Monceau, Physical Review B **65**, 113409 (2002).
 [4] M. V. Avramenko, I. Yu. Golushko, A. E. Myasnikova and S. B. Rochal, Physica E **68**, 133-139 (2015).
 [5] M. V. Avramenko, С. Б. Рошаль, Физика твердого тела **58** (5), 979-986 (2016).