

MÓDULO DE CORTE Y FRICCIÓN INTERNA EN $(TaSe_4)_2I$

H. Salva, A. Ghilarducci,

Centro Atómico Bariloche e Instituto Balseiro (CNEA-CONICET-IB), (8400) Bariloche, Argentina.

F. Levy,

Institut de Physique Appliquee, E. P. F. Lausanne, PHB, Ecublens, CH-1015 Lausanne, Suiza.

P. Monceau

CRTBT - CNRS, Av. Martyrs 25, B. P. 166X, 38042, Grenoble, Francia.

Se han realizado mediciones de módulo de corte y fricción interna en el compuesto unidimensional $(TaSe_4)_2I$ en un péndulo de torsión invertido forzado. Ciclando la temperatura entre ambiente y T_{min} ($250 K > T_{min} > 110 K$) se observa un ablandamiento (1-2%) del módulo en la transición de Peierls (248 K). La señal de fricción interna presenta un pico en la transición de Peierls cuando T_{min} desciende de 170 K, o cuando se duplica la excitación ($\epsilon_{pp} \sim 6 \times 10^{-4}$) a $T_{min} = 170 K$. Variando la frecuencia de medición entre 0,005 y 10 Hz durante isoterms entre 170 K y 270 K no se observan cambios en el módulo (resonancia del sistema ~ 60 Hz). Los efectos de fricción interna obtenidos se atribuyen a estados metaestables en los cuales se sitúa el sistema ya sea bajando la temperatura o aumentando la deformación.

Two Kind of low frequency measurements, internal friction (IF) and dynamic shear modulus (G), were made in a single crystalline $(TaSe_4)_2I$ sample, using a subresonant forced pendulum: 1) temperature dependence of IF and G, at 1Hz and strain amplitude 5×10^{-4} , during thermal cycles from 290 K to 190, 170, 150, 130 and 110 K, in cooling and heating rates of 0.4 K/min. 2) frequency dependence of IF and G from 10 Hz to 0.005 Hz during isotherms from 170 K to 270 K, at the same strain amplitude as before. Mainly remarks are the following: A dip in G vs. temperature is always observable in each one of the passages through the transition to the Peierls state, around 250 K in our sample. While an effect in IF is only clearly detected after cycling at 110 K, indicating that metaestable states are being freezing corresponding with matrix stresses and defect creation. A similar IF effect is observed doubling the strain amplitude, also associated with matrix defect creation. These results are discussed in the base of A. Virozstek-K. Maki model, which explains other authors results assuming that the lower sensibility of G (compared with Young modulus) for detecting the Peierls transition is due to the quasi-particles relaxation and its dependence with diffusion constant and measurement frequency. As in all the frequency range and all the thermal cycles the G defect is present, our conclusion is that this compound do no behave as the Virozstek-Maki model or that the $(TaSe_4)_2I$ diffusion constant is very far from the $NbSe_3$ and TaS_3 ones.

I. INTRODUCCIÓN

En años recientes se ha dedicado un considerable esfuerzo por comprender los efectos producidos en compuestos del tipo cadenas unidimensionales sometidos a tensiones elásticas. Estos trabajos comienzan en 1982 con mediciones de módulo Elástico E y fricción interna Q^{-1} en $NbSe_3$ por J. W. Brill y colaboradores¹. Luego, continuaron con mediciones sobre TaS_3 ², siempre observando los comportamientos con la temperatura como parámetro. Más tarde³ se hicieron medidas elásticas y eléctricas simultáneas y se observaron los cambios en E y Q^{-1} cuando la onda de densidad de carga (ODC), caracte-

terística de estos sistemas, se ponía en movimiento. Debido a las características de crecimiento de estos cristales (filamentos de 1-10 mm de largo y 1-100 μm de diámetro), este tipo de mediciones se han realizado en su mayoría por el método de lámina vibrante. Se ha medido también módulo de corte en TaS_3 y $NbSe_3$ ⁴ observando que transiciones que eran visibles en mediciones de E (lámina vibrante) pasaban desapercibidas en módulo de corte G (torsión).

K. Maki y colaboradores⁵ trataron de explicar esta diferencia teniendo en cuenta que los dos experimentos se realizaban a diferentes frecuencias lo que colocaba al sistema en condiciones diferentes respecto al tiempo de difusión de los electrones cuasi libres.

En $(TaSe_4)_2I$, cuya estructura se muestra en la Fig. 1 se ha medido el módulo elástico con frecuencias que van desde 400–9000 Hz (lámina vibrante)⁷⁻⁸ hasta ultrasonido (10–150 MHz)⁹. En todos los casos es observable la transición al estado

Peierls. En nuestro trabajo hemos realizado a) mediciones de G y Q^{-1} en ciclos de temperatura isócronos a 1 Hz y b) mediciones isotérmicas de G y Q^{-1} entre 5×10^{-3} y 10 Hz variando la temperatura entre 110 K y 290 K.

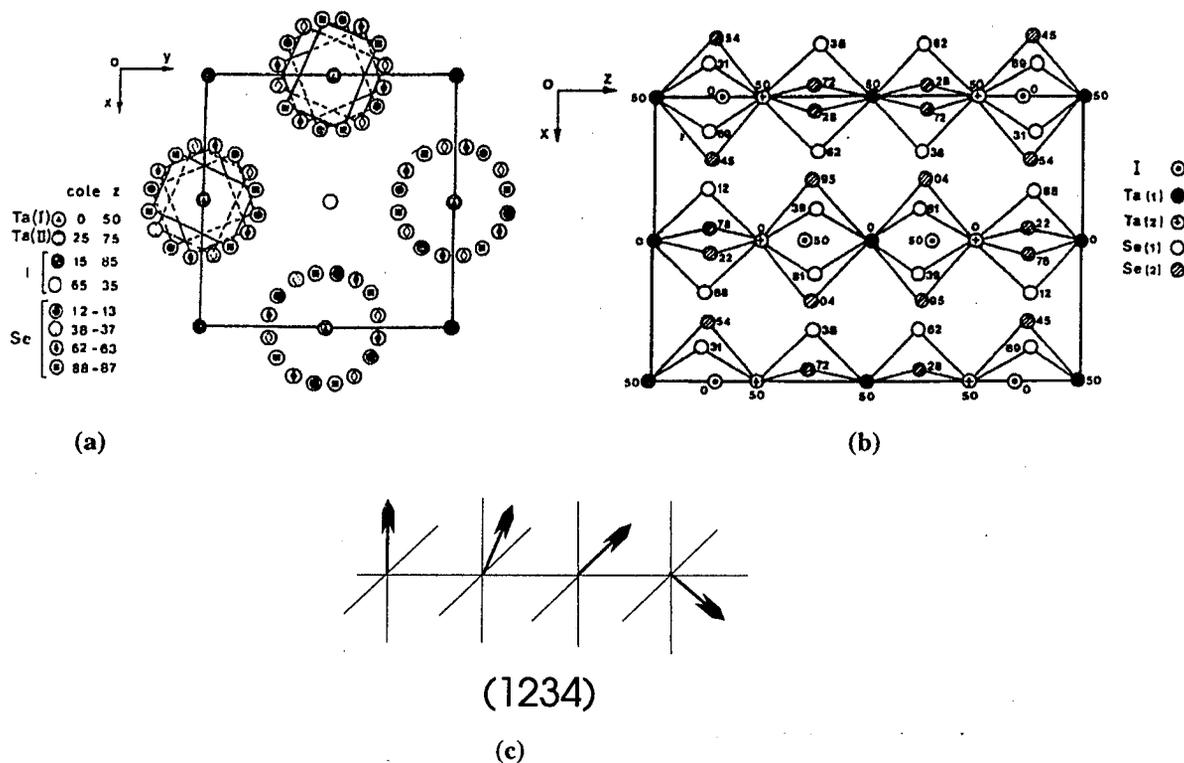


Fig. 1: Estructura cristalina de $(TaSe_4)_2I$ de ref.6. a) vista transversal de las cadenas de Ta; b) vista longitudinal de la celda unidad; c) ángulos de rotación de los paralelepípedos de Se.

II. MÉTODO EXPERIMENTAL

Las mediciones se realizaron en un péndulo forzado de torsión invertido que permite variar la temperatura de la muestra entre 4 y 300 K y la frecuencia de medición entre 10^{-4} Hz y 100 Hz¹⁰.

La muestra se colocó en las mordazas de anclaje pegadas con pintura de plata. Anteriores mediciones con otros epoxis mostraron que la pintura de plata se comporta adecuadamente. La muestra, de forma de paralelepípedo tenía aproximadamente 1 mm de lado y 5 mm de largo, la longitud libre de torsión resultante fue de ~ 2 mm.

Las velocidades de calentamiento y enfriamiento fueron siempre ajustadas a 0,4 K/min y se trabajó en una atmósfera de 200 mm Hg de helio gas. La deformación inicial fue de 10^{-3} rad que se traduce $\epsilon = 1 \text{ mm} / 2 \text{ mm} \times 10^{-3} \text{ rad} \sim 5 \times 10^{-4}$ como deformación de medida.

Las medidas se realizaron enfriando desde 290 K hasta T_m y luego calentando hasta 290 K. T_m se varió desde 250 K cada 20 K hasta 110 K (Fig. 2).

III. RESULTADOS

Las medidas realizadas mostraron en todos los casos una variación (pico invertido) del módulo de corte en la temperatura de transición de Peierls (Figs. 3, 4 y 5). Se nota una diferencia máxima de ~ 6 K entre la rampa creciente y decreciente de temperatura en el mínimo de G que atribuimos a que el termómetro no está en contacto directo con la muestra. Descartamos efectos de histéresis.

Si el ciclado térmico se realiza hasta 170 K no aparece señal de fricción interna. Por debajo de esta temperatura comienza a crecer a medida que bajamos la temperatura mínima de ciclado. La variación

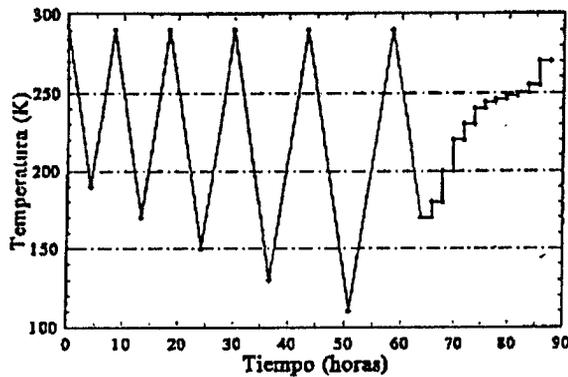


Fig. 2: Ciclados térmicos e isotermas

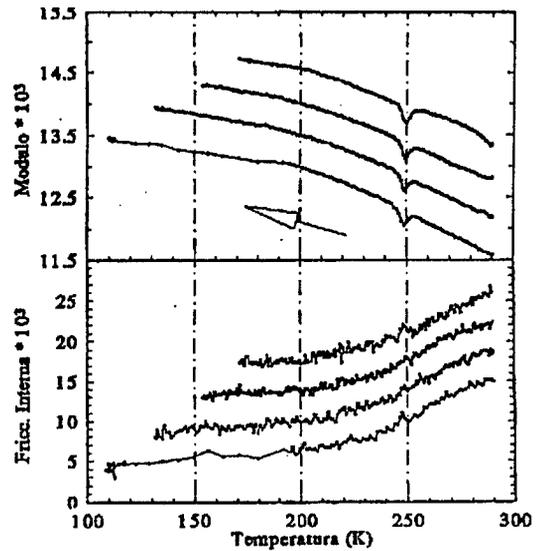


Fig. 3: Módulo de corte y fricción interna a 1 Hz bajando la temperatura a 0,4 K/min siguiendo los ciclados térmicos de la Fig. 2. Deformación de medida 5×10^{-4} .

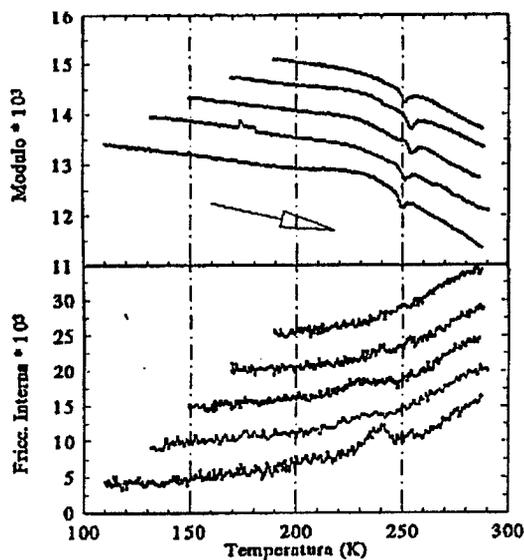


Fig. 4: Módulo de corte y fricción interna de 1 Hz subiendo la temperatura a 0,4 K/min siguiendo los ciclados térmicos de la Fig. 2. Deformación de medida 5×10^{-4} .

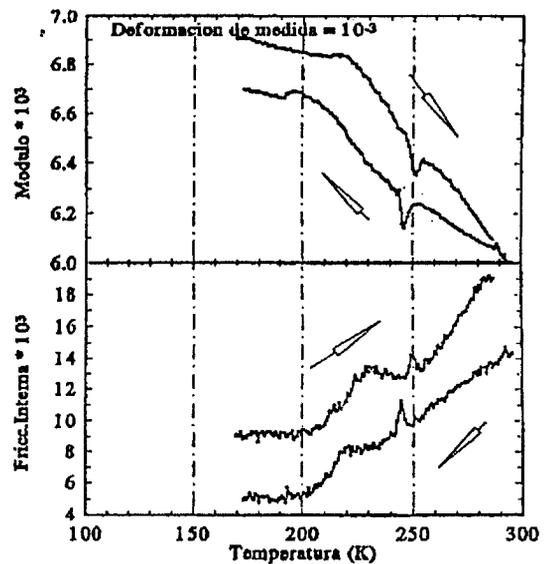


Fig. 5: Módulo de corte y fricción interna a 1 Hz en un ciclado térmico hasta 170 K con deformación de medida de 10^{-3} .

del módulo de corte permanece inalterada en estos casos.

En la Fig. 6 se muestra el comportamiento de G en función de la frecuencia para las isotermas de Fig. 2, luego de restar la curva de resonancia propia del sistema.

IV. CONCLUSIONES

Podemos indicar que a diferencia de $NbSe_3$ y TaS_3 , donde la variación de G en la transición es nula ($NbSe_3$) o poco visible (TaS_3)⁴, en este compuesto la variación es clara y reproducible.

A. Virozstek y K. Maki⁵ trataron de explicar

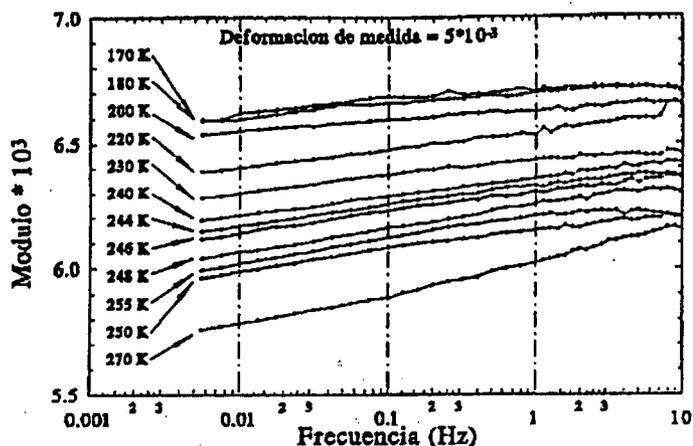


Fig. 6. Módulo de corte durante las isoterms de la Fig. 2, al cual se le ha restado la parte proveniente de la oscilación propia del sistema.

la poca sensibilidad de G para detectar la transición con relajación de las cuasipartículas (electrones cuasi-libres) y la dependencia con su constante de difusión y la frecuencia de medición.

Como resultado de su trabajo encuentran que el comportamiento del módulo en función de temperatura, en especial para $T < T_p$, depende de la relación $\omega/(Dq^2)$ donde ω es la frecuencia del sonido o de medición, D es la constante de difusión de las cuasipartículas y q es el vector de onda de la onda de sonido. Para el caso que nos interesa, al bajar la temperatura se produce la transición y la ODC se establece anclada, si $\omega/(Dq^2) \ll 1$ el estado condensado produce un endurecimiento del módulo a partir de T_p , pero si $\omega/(Dq^2) \gg 1$ el módulo permanece inalterado al pasar por T_p y mantiene el mismo valor en el estado condensado que en el normal.

Para ello hicieron notar que las mediciones de E se hicieron a frecuencias más altas que las de G , de manera que supusieron que las medidas de E se hicieron con $\omega/(Dq^2) \ll 1$ y las de torsión con $\omega/(Dq^2) \gg 1$. Sin embargo en nuestro caso desde 5×10^{-3} Hz hasta 10 Hz vemos la transición en forma nítida (Fig. 6); lo que indicaría que la constante de difusión de las cuasipartículas es muy diferente a los casos de $NbSe_3$ y TaS_3 .

Los ciclados en temperatura mostraron que al

bajar de 170 K comienza a aparecer una señal de fricción interna debajo de la transición de Peierls acompañada con una correspondiente anomalía en el módulo; que posiblemente sea debida a estados metaestables congelados. También se obtiene una señal de fricción interna aumentando la deformación (al doble) que correspondería a la creación de defectos al deformar excesivamente la muestra.

REFERENCIAS

1. J. W. Brill. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **81**, 107 (1982.)
2. G. Mozurekewich, P. M. Chaikin, W. G. Clark and G. Gruner. *Solid St comm* **56** (2), 421 (1985).
3. Kiang y Brill. *Phys Rev. Lett.* **63** (17), 1853 (1989).
4. Y. D. Xiang and J. W. Brill. *Sythetic Metals* **29**, F271 (1989).
5. A. Virozstek y K. Maki. *Phys. Rev.* **B41** (10), 7055 (1990).
6. *Une nouvelle famille de composés pseudo-unidimensionnels: les tetrachalcogenures de niobium et tantale.* P. Gressier. Tesis, U. E. R. de Chimie de l'Université de Nantes (15 mai 1985).
7. A. Suzuki, H. Mizubayashi, S. Okuda and M. Doyama. *Physica* **B143**, 161 (1986).
8. A. Suzuki, H. Mizubayashi and S. Okuda. *J. of Phys. Soc. of Japan* **57** (12).
9. M. Saint Paul, P. Monceau and F. Levy. *Solid St Comm.* **67**(6), 581 (1988).
10. G. D'Anna and W. Benoit. *Rev. Sci. Instrum.* **61**(12), 3821 (1990).