

## РОЛЬ РАСПАДНЫХ ПРОЦЕССОВ В РАСПРОСТРАНЕНИИ СЛАБОНЕРАВНОВЕСНЫХ ФОНОНОВ ТЕПЛОВОГО ИМПУЛЬСА В КРИСТАЛЛАХ $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3:Lu$

Б. А. Данильченко\*\*, С. Н. Иванов\*, Д. В. Поплавский\*\*,  
А. В. Таранов\*, Е. Н. Хазанов\*

\* Институт радиотехники и электроники Российской академии наук  
103907, Москва, Россия

\*\* Институт физики Национальной академии наук Украины  
252142, Киев, Украина

Поступила в редакцию 15 ноября 1996 г.

В работе проанализированы данные по распространению слабонервновесных фононов  $\Delta T \ll T_{lat}$  в кристаллах  $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3$  с эффективным упругим рассеянием на атомах редкоземельных металлов. Экспериментальные результаты интерпретированы в рамках модели «квазидиффузии», когда трехфононные неупругие процессы распада играют определяющую роль в их кинетике. Расчеты методом Монте-Карло с учетом этих процессов дали хорошее количественное согласие с экспериментальными данными.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Кинетика неравновесных фононов, инжектированных в кристалл полупроводника или изолятора, определяется двумя основными процессами рассеяния: 1) упругим рассеянием на дефектах структуры (в том числе изотопах); 2) трехфононными процессами распада, в которых высокочастотный фонон распадается на два фонона более низкой энергии.

Если процессы упругого рассеяния достаточно эффективны, то инжектированные в кристалл неравновесные фононы распространяются диффузно, и при работе по схеме тепловых импульсов [1] сигнал на болометре имеет характерный вид диффузионного колокола. Анализ этой кривой позволяет получить информацию об эффективности и природе рассеивающих центров [2]. На диффузионное движение неравновесных фононов в условиях упругого рассеяния могут влиять процессы их распада, что приводит к более быстрому прохождению фононов через кристалл. Это явление получило название «квазидиффузии» и было впервые аналитически рассмотрено в работах [3–5]. В этих и последующих работах [6, 7], в том числе по численному моделированию проявления процессов распада, предполагается, что инжектированные фононы сильно неравновесны по частоте, которая близка к дебаевской. Такое предположение вытекает из количественного анализа эффективности упругого и распадного механизмов рассеяния фононов для ряда известных материалов, используемых в экспериментах с тепловыми импульсами.

Следует различать сильную неравновесность фононов по их частоте  $\omega$  и по числу их заполнения  $N(\omega)$ . При  $N(\omega) \ll 1$  справедливо рассмотрение, приведенное выше. В случае  $N \gg 1$  становятся существенными процессы слияния фононов, что изменяет

их кинетику. При этом возможно проявление качественно нового эффекта формирования «горячего пятна», впервые рассмотренного теоретически в [8] и наблюдаемого экспериментально в [9, 10].

В таблице представлены данные об эффективности упругого рассеяния и распадов для материалов, наиболее часто используемых в экспериментах по распространению неравновесных фононов.

Соединение	CaF <sub>2</sub> [13]	Si [10]	Ge [10]	GaAs [15]	Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub> :Lu <sub>0.3</sub> [1, 2]	Y <sub>0.9</sub> Lu <sub>0.1</sub> AlO <sub>3</sub>
$A, \text{c}^{-1} \cdot \text{K}^{-5}$	$8 \cdot 10^{-4}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$7.4 \cdot 10^{-4}$	$39 \cdot 10^{-4}$	$2.07 \cdot 10^{-4}$	$48 \cdot 10^{-4}$
$B, \text{c}^{-1} \cdot \text{K}^{-4}$	0.5	0.46	7.0	1.4	195	$7 \cdot 10^3$
$B^*$	$\approx 9.5$	31.5	141	7.5	$\approx 10^4$	$3.16 \cdot 10^4$
$T = T_{\min}, \text{K}$	$T \gg 38$	$T \gg 38$	$T \gg 19$	$T \gg 29$	$T \gg 10$	$T \gg 3.5$

При составлении таблицы полагалось, что упругое рассеяние в низкочастотном диапазоне может быть записано в виде

$$1/\tau_B = BT^4, \quad (1)$$

где  $T$  — энергия фонона в кельвинах. Для случая инъекции фононов в исследуемый материал с планковским распределением под величиной  $T$  мы будем понимать энергию доминантной группы фононов теплового импульса [2].

Скорость распада для ангармонических процессов, усредненная по поляризациям фононов и направлениям в  $q$ -пространстве, может быть представлена в виде

$$1/\tau_A = AT^5. \quad (2)$$

В [11] введена безразмерная величина соотношения эффективности упругого и ангармонического распадов:

$$B^* = B/(A^4 V_D / L)^{1/5}, \quad (3)$$

где  $V_D$  — усредненная скорость фононов в материале образца, длина которого  $L$ . Для данных, приведенных в таблице, величина баллистического времени распространения  $t_b = L/V_D$  выбиралась для всех материалов равной  $10^{-6}$  с, что по порядку величины соответствует условиям типичного эксперимента ( $L \simeq 1$  см,  $V_D = 10^5 \div 10^6$  см/с). В [11] показано, что использование аналитических расчетов для описания процессов квазидиффузии возможно только при выполнении условия

$$B^* \geq 3 \cdot 10^3. \quad (4)$$

Как видно из таблицы, это условие не выполняется для традиционных материалов класса полупроводников, и для учета вклада процессов распада требуется численное моделирование.

Существенно более высокий уровень упругого рассеяния может быть реализован в твердых растворах замещения, например, иттрий-редкоземельно-алюминиевых гранатах и иттрий-редкоземельных алюминатах. Близость ионных радиусов атомов иттрия и иона редкоземельного металла (например, Lu) обеспечивает полное взаимное замещение  $Y \leftrightarrow Lu$  без сколько-нибудь заметных искажений решетки, а большая разница

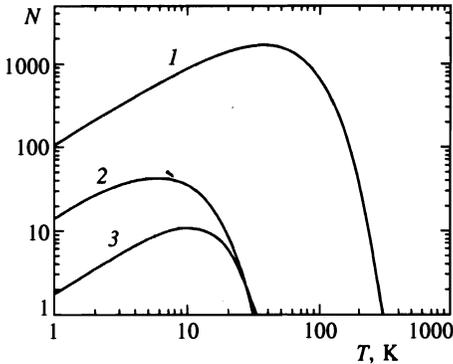


Рис. 1. Спектральная плотность числа фононов, инжектированных в кристалл при  $T_b = 3.81$  К в случае: 1 —  $\Delta T \gg T$ , 2 —  $\Delta T \ll T$ , кривая 3 — равновесное распределение фононов в нагревателе при  $T = 3.81$  К

в массах — высокий уровень упругого рассеяния и большую величину  $B^*$ . Расчеты коэффициентов  $A$  и  $B$  для граната и алюмината иттрия проводились нами в соответствии с процедурой, предложенной в [12, 13] в предположении отсутствия анизотропии скорости распада в  $q$ -пространстве.

Аналитическая теория [3–5] полагает, что соотношение между временами  $\tau_B$ ,  $\tau_A$  и  $t_b$  удовлетворяют условию

$$\tau_B \ll \tau_A, t_b, \quad (5)$$

которое позволяет оценить диапазон температур (энергий фононов), при которых возможна квазидиффузия. Соотношение  $\tau_B \ll \tau_A$  дает верхнюю границу, которая для материалов, приведенных в таблице, составляет  $T \approx 10^3$  К. Более существенной является нижняя граница

$$T_{min} = (V_D/LB)^{1/4}, \quad (6)$$

приведенная в четвертой строке таблицы. Величина  $V_D/L$  выбиралась, как и ранее, равной  $10^6$  с<sup>-1</sup>.

Для большинства рассмотренных материалов для наблюдения явления квазидиффузии необходимо, чтобы  $T \gg 20$  К. Это условие требует, как видно из рис. 1 (кривая 1), инъекции сильнонеравновесных фононов с температурой близкой к дебаевской. И только для кристаллов  $YAlO_3:Lu$ , которые и являются предметом настоящей статьи, из-за сильного упругого рассеяния возможно наблюдение явления квазидиффузии при работе со слабонеравновесными фононами, которые инжектируются при слабом ( $\Delta T < 0.5$  К) нагреве источника фононов. Как видно из рис. 1 (кривая 2), энергия доминантной группы фононов с некоторой точностью удовлетворяет условию из таблицы.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДЫ

В настоящей работе исследовалось распространение теплового импульса в кристалле  $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3$ . Кристаллы иттриевого алюмината имеют искаженную структуру перовскита (ромбическую) с пространственной группой  $D_{2h}^{16}$ . Образцы для исследований вырезались, как правило, перпендикулярно направлению (001), имели площадь  $1$  см<sup>2</sup> и размер в направлении распространения инжектированных фононов  $0.5$  см. Плоскости

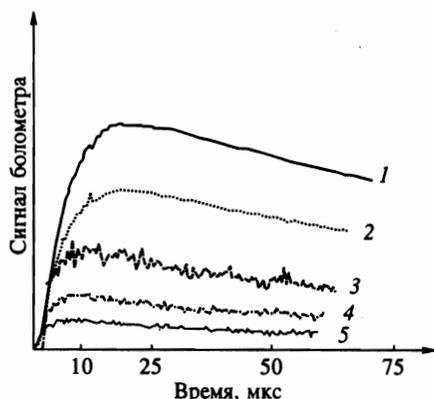


Рис. 2

Рис. 2. Экспериментальные зависимости отклика болометра от времени для образца  $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3$  длиной  $L = 0.6$  см при температурах: 1 — 3.81, 2 — 3.38, 3 — 2.40, 4 — 2.31, 5 — 2.21 К

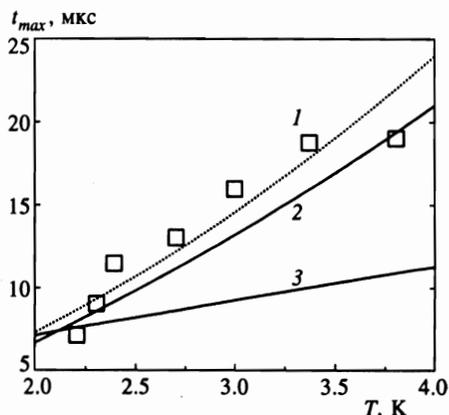


Рис. 3

Рис. 3. Температурная зависимость времени задержки максимума диффузионного сигнала: 1 — результат эксперимента, 2 — моделирование с учетом распадов, 3 — моделирование без учета распадов

кристалла полировались по оптическим стандартам; на одну из них методом термического напыления наносилась тонкая, 800–1000 Å, пленка золота, служащая инжектором фононов. На противоположную сторону образца напылялся болометр — тонкая пленка индия в форме меандра, площадь болометра  $0.3 \times 0.25$  мм<sup>2</sup>, его импеданс около 50 Ом.

Образец помещался в гелиевый криостат, температура которого поддерживалась откачкой и контролем давления паров. Это позволяло работать в интервале 1.7–3.8 К со стабильностью по температуре не хуже  $10^{-3}$  К.

Неравновесные фононы возбуждались коротким 100 нс импульсом тока, нагревающим золотую пленку. Болометр находился вблизи точки сверхпроводящего перехода и служил для регистрации фононов, прошедших через образец. Приложение слабого магнитного поля позволяло изменять температуру сверхпроводящего перехода болометра в соответствии с температурой бани (криостата).

В наших экспериментах мощность, рассеиваемая в инжекторе фононов, лежала в пределах  $5 \cdot 10^{-3}$ – $10^{-1}$  Вт/мм<sup>2</sup>. Нагреватель инжектирует неравновесные планковские фононы с температурой нагревателя  $T_h$ , которая при таком малом уровне рассеиваемой мощности оказывается близкой к температуре бани, т. е.  $\Delta T = (T_h - T_b) \ll T_b$ .

Работа в таком режиме инжекции «квазиравновесных» фононов имеет определенные преимущества: из анализа поведения слабонеравновесного теплового импульса, например, в гранатах мы знаем температуру доминантной группы инжектированных фононов  $(3.2 \div 3.8)T_b$ , которые формируют сигнал отклика на болометре [2], при этом эффекты дисперсии незначительны. Простые оценки показывают, что условие  $T \gg 3.5$  К выполняется во всем температурном диапазоне, и эффект квазидиффузии должен быть значительным.

На рис. 2 приведены типичные зависимости откликов болометра от времени для

ряда температур термостата. Они имеют характерный диффузионный вид. Видно, что максимум сигнала болометра по времени уменьшается вместе с температурой. На рис. 3 приведены зависимости положения диффузионного максимума  $t_{max}$  от температуры. В пределах точности измерения этой величины зависимость  $t_{max}$  от  $T_b$  может быть аппроксимирована зависимостью  $t_{max} = CT^{1.8}$  (кривая 1). Из простых оценок при  $\Delta T \ll T_b$  следовало ожидать зависимости вида  $t_{max} = CT^4$ , как это было показано в [2]. Поскольку авторы работы [2] исходят из модели чистой диффузии, полученное различие может быть связано с участием процесса распада в данном материале. На рис. 3 также представлены результаты модельного эксперимента (кривые 2 и 3), которые будут обсуждаться ниже.

### 3. МОДЕЛИРОВАНИЕ ПО МЕТОДУ МОНТЕ-КАРЛО

При моделировании решалась задача движения фононов определенной частоты из центра сферы на ее поверхность. Для получения парциального вклада этой группы фононов в сигнал болометра, количество фононов, достигших поверхности сферы, умножалось на их частоту. Количество фононов, инжектированных в кристалл на данной частоте задавалось в соответствии с формулой

$$N(\omega) = \omega^2 \left( (e^{\hbar\omega/kT_h} - 1)^{-1} - (e^{\hbar\omega/kT_b} - 1)^{-1} \right), \quad (7)$$

где  $T_b$  — температура бани (кристалла),  $T_h = T_b + \Delta T$  — температура нагревателя. Значение  $\Delta T$  было взято близким к экспериментальным значениям равным 0.2 К для  $T_b = 2.21$  К и  $\Delta T = 0.4$  К для остальных температур. Для моделирования полного сигнала болометра полученные парциальные вклады суммировались по начальной частоте распределения (7). Экспериментальные результаты, представленные на рис. 2, являются промежуточным вариантом между плоским и точечным источниками. Результаты моделирования, выполненные для точечного источника, приводились к геометрии эксперимента путем умножения шкалы времени на 1.9 согласно процедуре, предложенной в [2].

Было проведено моделирование как с учетом только механизма упругого рассеяния, так и с учетом обоих механизмов рассеяния (упругого рассеяния и трехфононных процессов распада).

Следует отметить, что моделирование со спектральной плотностью числа фононов в виде (7) давало резкий пик при малых временах. Этот пик соответствовал парциальному вкладу низкочастотных фононов, которые баллистически не распадаясь, достигают приемника. Отсутствие баллистического пика в эксперименте может быть обусловлено двумя причинами: 1) явлением ухода акустических фононов в жидкий гелий [14], 2) «обрезанием» спектра инжектированных фононов в низкочастотной области, наблюдаемого для тонких ( $< 2000 \text{ \AA}$ ) нагревателей [15]. Для учета этого обстоятельства при моделировании спектр инжектированных фононов обеднялся для частот  $\nu \leq 0.15$  ТГц.

Моделирование выполнялось для исходных LA- и TA-фононов. Результаты не зависели от поляризации исходных фононов из-за быстрой конверсии мод при упругом рассеянии фононов в исследуемом кристалле.

Процесс моделирования по методу Монте-Карло представлял собой двухпараметрическую задачу, где параметрами были константы упругого рассеяния и ангармонизма. Наилучшее согласие с экспериментом было получено при таких значениях этих

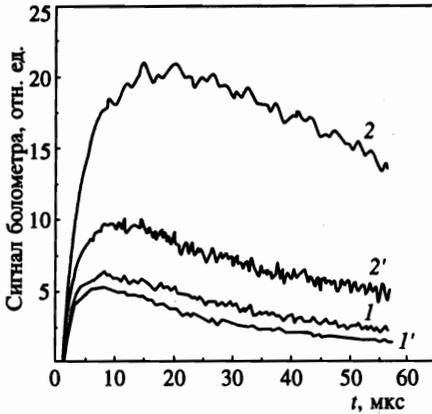


Рис. 4. Результаты моделирования сигнала болометра для двух температур кристалла с учетом распадов (1, 2) и без их учета (1', 2') при  $T = 2.21$  К (кривые 1, 1') и  $T = 3.81$  К (кривые 2, 2')

констант:

$$A = 800 \cdot 10^{-4} \text{ с}^{-1}\text{К}^{-5}, \quad B = 2.5 \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}\text{К}^{-4}.$$

Как видно, константа упругого рассеяния по порядку величины близка к теоретически рассчитанной величине (см. таблицу), тогда как константа ангармонизма, отвечающая за распады, на порядок больше теоретически рассчитанной величины. Это указывает на более существенную роль процессов ангармонизма в исследуемых кристаллах. Как видно, при полученных выше параметрах величина  $B^* = 1.2 \cdot 10^3$ . Значит, согласно критерию (4) аналитическое решение задачи «квазидиффузии» фононов невозможно, аналитические оценки могут быть некорректны, что оправдывает использование метода Монте-Карло.

Результаты моделирования сигнала болометра с учетом всех вышеперечисленных условий представлены на рис. 4. Из сравнения результатов моделирования, представленных на этом рисунке, видно существенное различие потоков фононов, полученных без учета их распада (кривые 1', 2') и с учетом их распада (кривые 1, 2). Это различие проявляется в значениях величин потоков фононов и в положении во времени ( $t_{max}$ ) их максимальных значений ( $A_{max}$ ). При учете только процессов упругого рассеяния величины  $A_{max}$  и  $t_{max}$  всегда меньше, по сравнению с результатами моделирования с учетом процессов распада фононов, и это несмотря на то что число инжектированных фононов в обоих случаях одинаково.

На первый взгляд различие в значениях  $t_{max}$  находится в противоречии с моделью «квазидиффузии». Согласно этой модели распад фононов должен формировать максимум потока фононов при временах меньших по сравнению с потоком нераспадающихся фононов. Этот вывод является очевидным при рассмотрении кинетики фононов с фиксированной исходной частотой  $\omega_0$  и продемонстрирован на примере GaAs [7]. В нашем случае кажущееся противоречие связано с моделированием полного спектра инжектированных фононов в отличие от моделирования кинетики монохроматических фононов, рассмотренного в [7].

Действительно, в случае моделирования с набором фиксированных частот фононов каждая частота дает результат в соответствии с теорией «квазидиффузии». Суммирование парциальных вкладов в сигнал фононов, распределенных в соответствии с (7), приводит к формированию максимума сигнала, задержанного по отношению к сигналу «чистой» диффузии. Наличие процессов распада приводит к перераспределению длинновременного фононного хвоста «чистой» диффузии в область малых времен прихода.

По указанным причинам и формируется столь необычный вид временного распределения потока фононов при учете их распадов.

На рис. 3 представлены зависимости положения во времени диффузионного максимума от температуры кристалла для двух рассмотренных случаев; здесь также нанесены экспериментальные точки. Видно, что эксперимент достаточно хорошо описывается именно той кривой, где учтены распады. При меньших  $T_b$  энергия доминантной группы фононов меньше, вследствие чего вклад процессов распада будет также меньше. Этим и объясняется тот факт, что кривые 1, 2 и 3 при низких температурах кристалла сближаются — при этом процессы распада перестают играть существенную роль в кинетике фононов.

#### 4. ВЫВОДЫ

Исследована кинетика слабонеравновесных фононов в кристаллах  $YAlO_3:Lu$ . Показано, что она не может быть описана в рамках диффузии фононов без учета трехфононных процессов распада. Выполнено моделирование по методу Монте-Карло диффузии неравновесных фононов с непрерывным спектральным распределением. Результаты моделирования хорошо описывают экспериментально наблюдаемые зависимости при константах упругого рассеяния, близких к рассчитанным, тогда как константа ангармонизма должна превышать рассчитанную по известным параметрам кристалла более чем на порядок величины. В связи с этим можно ожидать аномальное поведение константы Грюнайзена при низких температурах.

Авторы благодарны Т. Пашкевичу и И. Кагановой за полезные дискуссии, а также И. Обухову за помощь, оказанную при моделировании по методу Монте-Карло.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 970216810).

#### Литература

1. С. Н. Иванов, А. В. Таранов, Е. Н. Хазанов, ЖЭТФ **99**, 1311 (1991).
2. S. N. Ivanov, E. N. Khazanov, P. Paszkiewicz, A. V. Taranov, and M. Wilczynski, *Z. für Phys. B* **99**, 535 (1996).
3. Д. В. Казаковцев, И. Б. Левинсон, Письма в ЖЭТФ **27**, 181 (1978).
4. D. V. Kazakovtsev and Y. B. Levinson, *Phys. Stat. Sol. B* **96**, 117 (1979).
5. Y. B. Levinson, *Nonequil. phonons In Nonmetallic Crystals*, ed. by W. Eisenmenger and A. A. Kaplyanskii, North-Hollands, Amsterdam (1986).
6. P. Wolfe and G. A. Northrop, in *Phonon Scattering in condensed Matter*, ed. by W. Eisenmenger, Klassmann, Springer, Berlin (1984), p. 100.
7. Б. А. Данильченко, Д. В. Казаковцев, И. А. Обухов, ЖЭТФ **106**, 1439 (1994).
8. Д. В. Казаковцев, И. Б. Левинсон, ЖЭТФ **88**, 2228 (1985).
9. B. A. Danilchenko, M. I. Slutskii, and D. V. Kazakovtsev, *Phys. Lett. A* **1-2**, 77 (1989).
10. А. В. Акимов, А. А. Каплянский, М. А. Погарский, В. К. Тихомиров, Письма в ЖЭТФ **43**, 259 (1986).
11. H. J. Maris, *Phys. Rev. B-I* **41**, № 14, 9736 (1990).
12. H. J. Maris and S. Tamura, *Phys. Rev. B-II* **47**, 727 (1993).
13. H. S. Tamura, *Phys. Rev. B* **31**, № 4, 2574 (1985).
14. B. A. Danilchenko and V. N. Poroshin, *Cryogenics* **23**, 546 (1983).
15. Б. А. Данильченко, И. А. Обухов, С. Х. Рожко, ЖЭТФ **96**, 256 (1990).