УДК 535.37 : 548.0

О ВЛИЯНИИ РЕАЛЬНЫХ ГРАНИЧНЫХ УСЛОВИЙ НА ЭКСПЕРИМЕНТЫ ПО РАСПРОСТРАНЕНИЮ НЕРАВНОВЕСНЫХ ФОНОНОВ: ОГРАНИЧЕНИЯ МЕТОДА ТЕПЛОВЫХ ИМПУЛЬСОВ

В. И. Козуб

Изучается влияние различных факторов на эксперименты по распространению тепловых импульсов в диффузионном режиме, в частности условий выхода фононов в термостат у передней и задней поверхности и электрон-фононных процессов в генераторе и детекторе. Показано, что данные факторы могут существенно влиять на форму сигнала. Последняя может быть достаточно сложной и проявлять различные участки, в частности переход от более слабой ($t^{-1/2}$) к более сильной ($t^{-3/2}$) временной зависимости в области спада. Максимум сигнала может быть связан не с характерной группой фононов, а с деталями приповерхностной кинетики. Полученные выводы позволяют объяснить ряд экспериментальных результатов и накладывают существенные ограничения на возможности метода тепловых импульсов в диффузионном режиме в силу существенной зависимости наблюдаемого сигнала от конкретной реализации эксперимента.

Как известно, наиболее простым и в силу этого широко распространенным методом, используемым при исследовании фононной кинетики в твердых телах, является метод тепловых импульсов (см., например, [1]). При этом неравновесные фононы создаются с помощью «теплового генератора» (металлической пленки, нанесенной на поверхность образца и подвергаемой импульсному нагреву). Возникающий при этом тепловой импульс регистрируется на противоположной грани образца, в простейшем случае — с помощью болометра. При этом источником информации является временна́я зависимость сигнала болометра. В сравнительно чистых материалах реализуется баллистический режим распространения фононов и максимум сигнала детектора определяется скоростью звука для соответствующей фононной моды. В случае же достаточно интенсивного упругого рассеяния фононов максимум сигнала имеет, очевидно, диффузионную природу. В связи с этим естественно желание как по положению этого максимума, так и по закону изменения сигнала извлекать информацию о рассеянии фононов. Цель настоящей заметки — обратить внимание на то обстоятельство, что, поскольку кинетика фононов в диффузионном режиме крайне чувствительна к граничным условиям, интерпретация временной зависимости сигнала детектора должна учитывать такие детали эксперимента, как характер теплоотвода, конкретные реализации генератора и детектора, характер границы металл—полупроводник и т. д. Действительно, использование в качестве термостата жидкого или сверхтекучего He, для которых коэффициент выхода фононов из образца порядка единицы, кардинально меняет характер граничных условий на передней поверхности образца (где расположен генератор) по сравнению с идеализированной ситуацией изолированного полупространства. С другой стороны, как было продемонстрировано ранее экспериментально [2], область контакта металлической пленки с полупроводником может существенным образом влиять на спектр фононов, излученных «тепловым генератором».

Поэтому представляется, что целый ряд особенностей, наблюдаемых в кспериментах с тепловыми импульсами (см., например, [3–7]), может быть связан именно с деталями граничных условий, а не со свойствами самого образца.

1. Прежде всего рассмотрим, как влияет на фононную кинетику величина коэффициента выхода фононов из образца в термостат k через переднюю поверхность (на которой расположен тепловой генератор) в простейшей одномодовой ситуации, когда частотная дисперсия несущественна в случае одномерной геометрии ($x>0$; поверхность образца отвечает $x=0$). Очевидно, что при $k\to 0$ реализуется обычный закон диффузии в полупространстве, так что на временах $t \gg (x^2/D)^{1/2}$ (D — коэффициент диффузии фононов) неравновесная добавка к функции распределения фононов $\tilde N = N - N_0(T_0)$ (N_0 — равновесная функция распределения, T_0 — температура термостата) ведет себя как $\tilde N \sim (Dt)^{-1/2}$. Другой предельный случай $k\to 1$ (эффективный уход в термостат); соответствующее граничное условие при $x=0$ есть $\tilde N\,|_{x=0}=0$.

Очевидно, что такое условие справедливо лишь после прекращения действия генератора (момент $t=0$). Как показано, в частности, в [8], решение диффузионного уравнения с данным граничным условием при имеет асимптотику $\tilde N$ $t^{-3/2}$. Обсудим теперь, как влияет эффективность теплоотвода на поведение $\tilde N(x, t)$ при промежуточных k. Соответствующее граничное условие отвечает

$$D\nabla\tilde N|_{x=0} = kw\tilde N|_{x=0} \tag{1}$$

(w — скорость звука). Для решения уравнения диффузии с начальным условием $\tilde N(x>0,\ t=0)=\varphi(x)$, $\varphi(x>x_0)=0$ (где x_0 — ширина фононного импульса в образце в момент прекращения работы генератора) воспользуемся общим решением уравнения диффузии, определенным в интервале $(-\infty,\ \infty)$,

$$\tilde N = \int\limits_{-\infty}^{\infty} d\xi\,\frac{\varphi(\xi)}{\sqrt{2\pi Dt}}, \tag{2}$$

доопределив $\varphi(x)$ в «нефизической» области $x<0$ таким образом, чтобы выполнить граничные условия (1). Можно усмотреть, что при $t\to\infty$

$$(Dt > x_0^2)\ \nabla\tilde N \sim t^{-3/2},$$

$$\tilde N|_{x=0} \sim t^{1/2}\int\limits_{-\infty}^{\infty}\varphi(\xi)\,d\xi,$$

так что для выполнения (1) необходимо, чтобы

$$\int\limits_{-\infty}^{\infty}\varphi(\xi)\,d\xi = 0.$$

Введем координату x_1, такую что

$$\int\limits_{-\infty}^{\infty} d\xi\varphi(\xi - x_1)\,\xi^2 = 0. \tag{3}$$

Оценку x_1 можно получить из граничного условия (1), подставляя в него (2) и разлагая в левой части экспоненту при $4\,Dt \gg x_0$ по степеням $(\xi^2/4Dt)$ до 1-го порядка

$$(-kw)\int\limits_{-\infty}^{\infty}\varphi(\xi)\,\xi^2=2D\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\xi\xi\varphi(\xi). \tag{4}$$

Преобразуя в левой части (4) интеграл с учетом (3) как

$$(-kw)\int\limits_{-\infty}^{\infty}\varphi(\xi-x_1)(\xi-x_1)^2\,d\xi\simeq 2kwx_1\int\limits_{-\infty}^{\infty}\xi\varphi(\xi)\,d\xi,$$

имеем $x_1\ D/kw$; поскольку $D\sim wl/3$ (l — длина свободного пробега фононов), имеем $x_1\sim l/3k$.

Рассмотрим теперь, как ведет себя сигнал в $(\cdot)$ $x\gg x_0$, $|x_1|$, разлагая экспоненту в (2) при $2\sqrt{Dt}\gg x_0$ с учетом того, что масштаб спада функции φ характеризуется величинами x_0, x_1

$$N(x,t)=\frac{1}{\sqrt{2\pi Dt}}\,e^{-\frac{x^2}{4Dt}}\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\xi\varphi(\xi)\left[\frac{2x\xi-\xi^2}{4Dt}+\frac{4(x\xi)^2}{32(Dt)^2}\right]. \tag{5}$$

Для времени t_m, характеризующего максимум сигнала в точке, из (5) получаем

$$4Dt_m\sim\frac{x^2}{3}\left[2-\frac{41B}{4Ax}\right],\quad A=\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\xi\varphi(\xi)\,\xi,\quad B=\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\xi\varphi(\xi)\,\xi^2. \tag{6}$$

Совершая замену $x\to x+x_1$, $\xi\to\xi+x_1$, в соответствии с (3) получаем $B=0$, а вместо (6) имеем

$$t_m\sim(x+x_1)^2/6D=(x+\frac{l}{3k})^2/6D. \tag{7}$$

При этом

$$N_m\simeq\frac{A}{\sqrt{8\pi D^3t_m^3}}\,e^{-\frac{(x+x_1)^2}{4Dt_m}}$$

или, оценивая A ($A\ \ x\max(x_0, x_1)\,x_0\varphi(0)$),

$$N_m\sim N(x=0,\,t=0)\,\frac{\max(l/3k,\,x_0)\,x_0}{x^2\sqrt{8\pi}}. \tag{8}$$

В соответствии с (7) изменение условий теплоотвода, т. е. значения k, может приводить к изменению не только величины регистрируемого сигнала, но и времени прихода максимума. Именно улучшение теплоотвода (рост k) приводит к уменьшению t_m. По-видимому, именно с изменением теплоотвода в окрестности фазовых переходов в He (в λ-точке и в точке кипения) связаны аномальные резкие изменения t_m при изменении температуры термостата или мощности накачки, наблюдавшиеся в эксперименте [4, 6].

2. Теперь рассмотрим вопрос о форме сигнала, регистрируемого болометром, с учетом частотной дисперсии фононных потоков. Будем полагать, что за времена эксперимента фонон-фононные процессы происходить не успевают, т. е. речь идет о режиме парциальной диффузии.

Прежде всего проанализируем 1-й этап эксперимента, когда действует нагреватель (время $t < t_0 \sim 10^{-7}$ с). Для простоты положим, что при этом нагреватель изолирован от термостата (это предположение реалистично, во всяком случае при достаточно высоких температурах нагревателя, когда он окружен пленкой газообразного He); тепло при этом целиком уходит в образец. В металле электроны термализуются за счет электрон-электронных процессов ($\tau_{ee}^{-1} \sim T^2/\hbar\ \varepsilon_F$ и при $T > 2$ К $\tau_{ee} \lesssim 110^{-8}$ с $\ll t_0$), так что электронная температура нагревателя есть $T_c = T_H$ (пренебрегаем ее зависимостью от времени на временах $t \sim t_0$).

Обратимся к кинетическому уравнению для фононов в металле, предполагая возможным пренебречь рассеянием на дефектах (малые толщины пленки d и низкие температуры нагрева) и, таким образом, отвлечься от эффекта «фильтра низких частот», описанного в [2]

$$\frac{\partial N_\omega}{\partial t} + w\nabla N_\omega = \frac{N_0(T_{\text{н}}) - N_\omega}{\tau_{ph-e}}, \tag{9}$$

τ_{ph-e} — время фонон-электронной релаксации. Предполагая также

$$\frac{d}{\tau_{ph-e}} < \frac{D_\omega}{k_M\sqrt{D_\omega t_0}},$$

получаем следующую оценку для полного числа фононов, введенных в образец (ср. [8]),

$$C_\omega \simeq \tilde{N}_0(T_{\text{н}})\, dt_0/\tau_{ph-e} \tag{10}$$

($\tilde{N} = N(T_0)$). Выражение (10) можно рассматривать как начальное условие для последующего анализа распространения фононов.

Пренебрегаем сначала теплоотводом через границу $x = 0$. В таком случае для диффузии в бесконечный объем при $t \gg t_0$ имеем

$$\tilde{N}(\omega, t, x) \sim \frac{C_\omega}{2\sqrt{\pi D_\omega t}}\, e^{-x^2/4D_\omega t}. \tag{11}$$

Учтем теплоотвод через границу $x = L$, на которой расположен детектор (будем полагать, что размеры детектора $\ll L$, так что его наличие не возмущает характера распределения фононов при $x \sim L$). Нетрудно усмотреть, что если этот теплоотвод эффективен, т. е.

$$\frac{D_\omega}{wLk_L} < 1, \tag{12}$$

где k_L — коэффициент выхода фононов из образца через границу $x = L$ (если теплопроводность теплоотводящей среды конечна, то условие (12) заменяется условием $(D\omega/L)\sqrt{t/\tilde{D}_\omega} \ll 1$, где $\tilde{D}_\omega$ — коэффициент диффузии фононов в среде), то $\tilde{N}_\omega(0) \gg \tilde{N}_\omega(L)$ концентрация фононов у задней стенки много меньше, чем у передней. В нулевом приближении это обстоятельство можно учесть граничным условием $\tilde{N}_\omega(x = L) \simeq 0$. Учтем, что это условие автоматически выполняется для решения уравнения диффузии с начальным условием $N(t = 0) = C_\delta(x) - C_\delta(x - 2L)$. В итоге получаем

$$\tilde{N}_\omega(x, t) = \frac{\tilde{N}_0(T_н)\, dt_0}{2\tau_{ph-e}\sqrt{D_\omega t}} \left(e^{-\frac{x^2}{4D_\omega t}} - e^{-\frac{(x-2L)^2}{4D_\omega t}} \right). \tag{13}$$

Обсудим теперь более детально вопрос о детектировании тепловых импульсов, которое осуществляется с помощью болометра того или иного типа. Как правило, основным элементом служит металлическая пленка (толщина $\mathscr{D}$), в которой происходит термализация фононов за счет взаимодействия с электронами (и детектор, в конечном счете, фиксирует именно эту электронную температуру). Поэтому детектор болометрического типа фиксирует именно плотность энергии, а не парциальное число заполнения фононов. Положим также, что теплосопротивление пленки меньше, чем теплосопротивление образца (т. е. $D_\omega/L \ll D_{\omega,\mathrm{det}}/\mathscr{L}$, где $D_{\omega,\mathrm{det}}$ — коэффициент диффузии фононов в детекторе), и меньше, чем теплосопротивление границы детектор—термостат (последнее обеспечивается, в частности, высокой электронной теплопроводностью детекторной пленки). С учетом сказанного, приравнивая поток энергии в образце потоку энергии в термостат, имеем

$$\int_0^\infty d\omega\, \hbar\omega\rho(\omega)\, D_\omega \nabla N_\omega \big|_{x=L} = \Delta T_d\, k_d(T)\, w\, C_{ph,d}(T), \tag{14}$$

где k_d — коэффициент выхода фононов из детектора в термостат; $C_{ph,\,d}$ — фононная теплоемкость детектора; $\rho(\omega)$ — плотность фононных состояний; ΔT_d — нагрев, фиксируемый детектором. Таким образом,

$$\Delta T_d = \frac{1}{k_d w C_{ph,d}} \int_0^\infty d\omega\, \hbar\omega\rho(\omega)\, D_\omega \frac{2L}{\sqrt{\pi}\,(4D_\omega t)^{3/2}} \times \\ \times \frac{\tilde{N}(T_н)\, dt_0}{\tau_{ph-e}} \exp\left(-\frac{L^2}{4D_\omega t}\right). \tag{15}$$

Рассмотрим сначала поведение на неслишком больших временах, когда $t < L^2/4D\ (\hbar\omega \sim T_н)$, т. е. когда наиболее высокочастотные фононы из «выпрусныx» в образец еще не достигли детектора. В этом случае, как легко видеть, основной вклад в интеграл по ω дают фононы с частотами $\omega_m(t)$, такими что $4D_{\omega-\omega_m} t \sim L^2$, т. е. наиболее высокочастотные фононы, успевающие достичь детектора к моменту t. Таким образом, временна́я зависимость сигнала детектора отражает «развертку» вкладов различных групп фононов по частотам: меньшие времена соответствуют меньшим частотам. В соответствии с (15) имеем

$$\Delta T_d \sim \frac{L}{k_d w C_{ph,d}} \frac{\hbar\omega_m \rho(\omega_m)}{(4\pi D_{\omega=\omega_m})^{1/2}} \frac{(T_н - T_0)\, dt_0}{\tau_{ph-e}(\omega_m)\, t^{3/2}} \propto \frac{\omega_m^6}{t^{3/2}}. \tag{16}$$

Поскольку $\omega_m \propto t^{-1/4}$ (так как $D_\omega \propto \omega^{-4}$; мы полагаем, что основной механизм упругого рассеяния фононов — релеевское рассеяние на дефектах), из (16) получаем

$$\Delta T_d(t) = \mathrm{const}. \tag{17}$$

Очевидно, что на малых временах такое поведение во всяком случае ограничено временем прихода баллистических фононов $t_б$. (Более детально эту область мы обсудим ниже).

Другой фактор, который следует принимать во внимание — теплоотвод в термостат через переднюю поверхность (через «тепловой генератор») после выключения нагрева. Если этот теплоотвод эффективен, то при $x = 0$ мы имеем при $t > t_0$ граничное условие

$$\tilde{N}_\omega \big|_{x=0} = 0.$$

С другой стороны, к моменту $t = t_0$, т. е. за время работы генератора в образце возникает фононное облако с характерным размером $x_0 \sim \sqrt{2D_\omega t}$. Описать дальнейшее распространение этого облака при наличии указанного граничного условия можно по аналогии с [8] и с предшествовавшими выкладками, доопределив начальное условие для задачи диффузии при $t > t_0$ в области $(x < 0)$. В результате вместо (11) имеем

$$\tilde{N}_\omega = \frac{C_\omega}{2\sqrt{\pi}\,\sqrt{D_\omega t}}\left[e^{-\frac{x^2}{4Dt}} - e^{-\frac{(x+2x_0)^2}{4Dt}}\right]. \tag{18}$$

Соответствующий поток энергии есть $(x \gg x_0)$

$$I_T = \int_0^\infty d\omega\, \hbar\omega\rho(\omega)\, D_\omega \frac{C_\omega x_0}{4\sqrt{\pi}\,(D_\omega t)^{3/2}}\, e^{-\frac{x^2}{4Dt}}. \tag{19}$$

Легко видеть, что в этом случае условие эффективного теплоотвода на границе $x = L$ приводит к удвоению потока I_T при $x = L$ по сравнению с (19), так как с учетом (13), (18)

$$\tilde{N}(x \sim L) \propto \exp\left(-\frac{x^2}{4Dt}\right) - \exp\left(-\frac{(x+2x_0)^2}{4Dt}\right) - \exp\left(-\frac{(x-2L)^2}{4Dt}\right) + \\ + \exp\left(-\frac{(x-2L-2x_0)^2}{4Dt}\right).$$

В итоге оценка для ΔT_d получается из (16) заменой $L \to 2x_0$. Поскольку $x_0 \sim \sim \sqrt{2D_\omega t_0}$, в этом случае

$$\Delta T_d \propto \frac{\omega_m^4}{t^{3/2}} \propto \frac{1}{t^{1/2}}, \tag{20}$$

что формально аналогично обычному диффузионному закону, хотя связано со значительно более сложной физической картиной.

Со стороны меньших частот (т. е. меньших времен) закон (20) ограничен условием эффективного теплоотвода $D_\omega / x_0 < kw$, т. е. $D_\omega < k^2 t_0 w$. В противном случае теплоотвод становится эффективным при $D_\omega / D_\omega t \sim kw$, т. е. при $\sqrt{D_\omega t} \sim D_\omega / kw$, и в этом случае x_0 в (19) следует заменить на D_ω / kw. При этом

$$\Delta T_d \backsim \frac{\omega_m^2}{t^{3/2}} \backsim \frac{1}{t} \tag{21}$$

Наконец, в случае очень малых частот, таких что $D_\omega/L > kw$, т. е. $D_\omega > (kwL)$, диффузия фононов в образце всегда более эффективна, чем их уход в термостат, и мы возвращаемся к закону (17).

Таким образом, в рассмотренной области времен сигнал является невозрастающей функцией времени. Как отмечали выше, такое поведение ограничивается во всяком случае временем прихода баллистических фононов. С другой стороны, поскольку в рассматриваемом режиме парциальной диффузии временная зависимость представляет собой «развертку» по частотам, она может быть затем домодифицирована в низкочастотной области (малые t) при наличии факторов, уменьшающих вклад низких частот. Одним из таких факторов может выступать неэффективность детектора фононов в условиях, когда длина свободного пробега фононов в детекторе $l_d(\omega)$ больше толщины детектора $\mathscr{L}$. В этом случае в выражения (15), (16), (20), (21) войдет дополнительный параметр $\sim \mathscr{L}/l_d \backsim \tau_{ph-e}^{-1} \backsim \omega_m$, так что в оценках (17), (20), (21) показатель степени, определяющий зависимость от t, увеличивается на 1/4. В частности, на самых малых временах, когда справедлива оценка (17), зависимость от времени приобретает вид

$$\Delta T_d \backsim t^{1/4}, \tag{22}$$

т. е., поскольку далее с ростом t мы переходим в область оценок (20), (21) (где ΔT_d убывает с ростом t), зависимость имеет максимум, который определяется условием $D_\omega = kwL$, если неэффективность детектора сохраняется и в области (20), (21). При этом

$$t_{\max} \simeq L/kw. \tag{23}$$

Таким образом, значение $t_{\max}$ определяется чисто кинетическими факторами и, вообще говоря, не связано с температурой образца. Соответствующая зависимость может, однако, возникнуть при наличии зависимости $k(T)$. В частности, если k уменьшается с ростом температуры, то $t_{\max}$ смещается в область больших времен.

Наконец, в области временных асимптотик зависимости $\Delta T_d(t)$ на больших временах (при $t \gtrsim L^2/4D$ ($\hbar\omega \sim T_н$)) интегрирование по ω в (16), (19) ограничивается функцией $\bar{N}_0(T_н)$, так что в (16), (20) вместо ω_m следует подставить $\sim T_h$ и

$$\Delta T_d \backsim t^{-3/2}. \tag{24}$$

Таким образом, можно ожидать перехода от «диффузионной» зависимости (20) к более резкой зависимости (24).

Итак, даже в отсутствие вклада фонон-фононного рассеяния физическая картина, связанная с распространением фононов в образце, оказывается достаточно сложной. Представленный анализ позволяет сделать следующие выводы.

1. В экспериментах с тепловыми импульсами при низких температурах чрезвычайно важен учет реальных граничных условий, в частности условий теплоотвода на границах образца, а также деталей электрон-фононных процессов в генераторе и детекторе фононов (отметим, что возможную роль границы металл—образец мы ранее учитывали в работе [2]).

2. Временная зависимость сигнала на детекторе может быть достаточно сложной и проявлять различные участки; в частности, в области спада может происходить переход от более слабой ($\sim t^{-1/2}$) к более сильной ($\sim t^{-3/2}$) зависимости. Переход такого рода наблюдался недавно в экспериментах [7].

3. Детали этой зависимости могут отражать характер парциальной диффузии фононов различных частот, а также их выхода в термостат. Это, в частности, относится к максимуму кривой, который, как мы видели, может быть связан не с группой тепловых фононов с характерными энергиями $\hbar\omega \sim 3T$ (как можно было бы ожидать), а с фононами значительно меньших частот (на такое обстоятельство указывалось экспериментаторами в работах [3, 4]).

Указанные обстоятельства, на наш взгляд, накладывают серьезные ограничения на возможности метода тепловых импульсов в условиях диффузионного распространения фононов, поскольку наблюдаемый сигнал оказывается чрезвычайно чувствителен к конкретной реализации эксперимента.

Я благодарен С. Н. Иванову и Е. Н. Хазанову за многократное обсуждение вопросов, затронутых в статье, и за ознакомление с результатами работы [7] до ее публикации.

Список литературы

[1] Von Gutfeld R. L. // Physicalacoustics / Ed. W. P. Mason. 1989 V. 5. P. 233.
[2] Зиновьев Н. Н., Ковалев Д. И., Козуб В. И., Ярошецкий И. Д. // ЖЭТФ. 1987. Т. 92. С. 1331—1341.
[3] Иванов С. Н., Таранов А. В., Хазанов Е. Н., Ацаркин В. А., Демидов В. В. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. С. 274—284.
[4] Иванов С. Н., Хазанов Е. Н. // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. С. 294.
[5] Иванов С. Н., Хазанов Е. Н., Таранов А. В. // ЖЭТФ. 1985. Т. 89. С. 1824.
[6] Иванов С. Н., Хазанов Е. Н., Таранов А. В. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 6. С. 1843—1853.
[7] Иванов С. Н., Хазанов Е. Н., Таранов А. В. // ЖЭТФ. 1991. Т. 12. С. 2456—2466.
[8] Зиновьев Н. Н., Иванов Л. П., Козуб В. И., Ярошецкий И. Д. // ЖЭТФ. 1983. Т. 84. С. 1761.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе РАН
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию
18 октября 1991 г.