

Неравновесные состояния ангармонических фононов мягкой моды

© С.А. Киторов^{*,**}, А.М. Прудан^{**}, Чэнь Сяосин^{**}

* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, Санкт-Петербург, Россия

** Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет (ЛЭТИ), Санкт-Петербург, Россия

E-mail: ktitorov@mail.ioffe.ru

Развита теория неравновесного состояния оптических фононов мягкой моды в сегнетоэлектриках, подвергаемых накачке электромагнитным излучением. Получены уравнения самосогласованного поля, определяющие сдвиг температуры фазового перехода и изменение низкочастотной диэлектрической проницаемости вследствие возникновения неравновесного состояния. Предложена двухтемпературная модель процессов переноса энергии в условиях накачки. Найдены аналитические решения этой системы уравнений как в стационарном случае, так и для переходного процесса. Обнаружено, что при времени наблюдения порядка времени энергообмена между подсистемами должны наблюдаться пространственные осцилляции распределения температуры мягкой моды. Показано, что нелинейные эффекты могут быть причиной возникновения фононного „узкого горла“ в обмене энергией между фононными подсистемами. Построена точно решаемая модель нелинейных бризеров — бризеры с одноузельной нелинейностью.

PACS: 61.80.Ba, 63.20.Ry, 77.80.-e

1. Введение

В работе [1] была сформулирована проблема создания и исследования неравновесного состояния фононов мягкой моды под влиянием электромагнитной накачки. Было высказано предположение, что взаимодействие фононов мягкой моды сегнетоэлектрика, играющего роль диэлектрика в управляемом конденсаторе, индуцирует неравновесное состояние фононов мягкой моды, что приводит к сдвигу частоты мягкой моды и, следовательно, к изменению диэлектрической проницаемости. При этом возник вопрос о влиянии пространственного распределения параметров неравновесного фононного состояния на эффективность управления емкостью планарного конденсатора. Целью настоящей работы было изучить некоторые подходы к теоретическому описанию неравновесного состояния фононов, созданного накачкой, найти и проанализировать пространственное распределение параметров, характеризующих неравновесное состояние. Рассмотрен также вопрос о возможном нелинейном механизме замедленного обмена энергией между фононными подсистемами.

2. Приближение самосогласованного поля для неравновесных фононов

Диэлектрическая проницаемость ϵ сегнетоэлектрика типа смещения определяется главным образом частотой мягкой моды при нулевом волновом векторе $\epsilon = C/(\omega_s^2)$ [2]. Следовательно, задача состоит в определении зависимости частоты мягкой моды $\omega_s(0)$ от накачки. Частота мягкой моды определяется уравнением

самосогласования [3]

$$\omega_\lambda^2(\mathbf{q}) = \omega_{\lambda 0}^2(\mathbf{q}) + \sum_{\kappa, \lambda'} V_{\lambda\lambda\mu\mu'}(\mathbf{q}, \kappa) \frac{1 + 2n_\mu(\omega_\lambda(\kappa))}{\omega_\mu(\kappa)}, \quad (1)$$

где $\omega_\lambda(\mathbf{q})$ и $\omega_{\lambda 0}(\mathbf{q})$ — перенормированная и затравочная частоты λ -моды, $V_{\lambda\lambda\mu\mu'}(\mathbf{q}, \kappa)$ — ангармонические силовые константы, $n_\lambda(\omega)$ — фононная функция распределения, в случае полного термодинамического равновесия это функция Планка. В случае нарушения равновесия одной или нескольких мод функция распределения фононов может быть представлена в виде $n_\lambda(\omega) = n_\lambda^0(\omega) + \delta n_\lambda(\omega)$, где $n_\lambda^0(\omega)$ — равновесная функция Планка, $\delta n_\lambda(\omega)$ — неравновесная добавка. Предполагая поправку малой, мы можем написать выражение для сдвига частоты мягкой моды вследствие отклонения фононных чисел заполнения от равновесных значений

$$\delta\omega_\lambda(\mathbf{q}) = \omega_\lambda^{-1}(\mathbf{q}) \sum_{\kappa, \lambda'} V_{\lambda\lambda\mu\mu'}(\mathbf{q}, \kappa) \frac{\delta n_\mu(\omega_\lambda(\kappa))}{\omega_\mu(\kappa)}. \quad (2)$$

Хотя формально интегрирование ведется по всей зоне Бриллюэна, в действительности оно ограничено областью фазового пространства, в которой неравновесная добавка не мала. Это позволяет отбросить вклад акустических фононов, так как матричный элемент взаимодействия с ними мал при малых волновых векторах [4]. Параметризуем добавку следующим образом:

$$\delta n_s(k) = \begin{cases} \frac{\delta T}{\hbar\omega_s(k)}, & \omega_s(k) < \omega_m, \\ 0, & \omega_s(k) > \omega_m, \end{cases} \quad (3)$$

где δT — параметр, характеризующий „перегрев“ фононов мягкой моды, ω_m — максимальная частота фононов

мягкой моды, выше которой можно пренебречь разогревом. При частоте накачки $\omega > \omega_s(0)$ имеем оценку $\omega_m \sim \omega$, при $\omega \approx \omega_s(0)$ и $\omega\tau \gg 1$ $\omega_m \sim \tau^{-1}$.

3. Распределение парциальных температур

Предположим, что параметр δT в уравнении (3), характеризующий неравновесную добавку к функции распределения, может рассматриваться как возмущение парциальной температуры подсистемы фононов мягкой моды. При этом все остальные степени свободы (акустические фононы и другие „некритические“ степени свободы) характеризуются своей температурой. Такая двухжидкостная гидродинамика была разработана в теории плазмы [5]. Для того чтобы двухжидкостная гидродинамика была применима, необходимо, чтобы время обмена энергией между подсистемами было существенно больше, чем время установления локального равновесия внутри подсистем. В твердом теле есть еще одно важное условие применимости гидродинамики: частота столкновений фононов данной подсистемы в результате нормальных процессов должна быть выше частот столкновений в результате процессов переброса и взаимодействия с дефектами [6]. Несмотря на то что двухжидкостная гидродинамика не может быть точной моделью неравновесной фононной системы, простота и информативность этой модели заставляют нас применить ее для описания мягкой моды в присутствии накачки. Решающий аргумент в пользу такого подхода состоит в том, что непосредственное поглощение энергии накачки происходит в подсистеме фононов мягкой моды, а передача энергии акустическим фононам замедлена из-за малости передаваемого квазиимпульса. Уравнения двухтемпературной модели имеют вид

$$\kappa_1 \frac{\partial^2 T_1}{\partial x^2} + \frac{\varepsilon''(\omega)}{8\pi} |E_\omega|^2 - c_1 \frac{T_1 - T_2}{\tau_e} = c_1 \frac{\partial T_1}{\partial t}, \quad (4)$$

$$\kappa_2 \frac{\partial^2 T_2}{\partial x^2} - c_1 \frac{T_2 - T_1}{\tau_e} = c_2 \frac{\partial T_2}{\partial t}, \quad (5)$$

где T_1 и T_2 — температуры мягкой моды и акустических фононов соответственно, отсчитываемые от температуры термостата T_0 , κ_1 и κ_2 — парциальные теплопроводности мягкой моды и акустических фононов соответственно, c_1 и c_2 — соответствующие парциальные теплоемкости, τ_e — характерное время обмена энергией между подсистемами, $\varepsilon''(\omega)$ — мнимая часть диэлектрической проницаемости на частоте накачки ω . Интенсивность поля накачки убывает при поглощении экспоненциально: $|E_\omega(x)|^2 = |E_\omega(0)|^2 \exp[-x/l_0]$, где l_0 — глубина проникновения. Вдали от T_c мнимая часть диэлектрической проницаемости $\varepsilon''(\omega)$ является медленно меняющейся функцией температуры T_1 , поэтому ее можно разложить по степеням T_1 , ограничиваясь членами нулевого и первого порядка: $|E_\omega(x)|^2 \omega \varepsilon''(\omega, T_1)/8\pi = A - BT_1$.

Введем масштабы длины $\tau_e \kappa_1/c_1 = l_1^2$, $\tau_e \kappa_2/c_2 = l_2^2$ и их отношение $l_1/l_2 = \xi$. Введем также безразмерные температуры $u_1 = (T_1 - T_0)/T_0$, $u_2 = (T_2 - T_0)/T_0$, $a = (A - T_0)/T_0$, безразмерные координату $y = x/l_1$ и глубину проникновения $y_0 = l_0/l_1$, безразмерную толщину пленки $d = D/l_1$. Пусть $\tilde{t} = t/\tau_e$ — время, измеренное в единицах времени релаксации энергии, $\xi = c_1/c_2$ — отношение теплоемкостей подсистем, $\xi < 1$. Уравнения переноса энергии принимают вид

$$\frac{\partial u_1(y, \tilde{t})}{\partial \tilde{t}} = \xi^2 \frac{\partial^2 u_1(y, \tilde{t})}{\partial y^2} - u_1(y, \tilde{t}) + u_2(y, \tilde{t}) + a(y) - bu_1(y, \tilde{t}), \quad (6)$$

$$\frac{\partial u_2(y, \tilde{t})}{\partial \tilde{t}} = \frac{\partial^2 u_2(y, \tilde{t})}{\partial y^2} + \xi [u_1(y, \tilde{t}) - u_2(y, \tilde{t})]. \quad (7)$$

Заметим, что формфакторы функции накачки должны быть дополнительно определены так, что $a(0) = a(d) = b(0) = b(d) = 0$. Эти уравнения должны быть дополнены граничными условиями, которые будут сформулированы следующим образом. Время релаксации энергии τ_e в объеме образца предполагается сравнительно большим благодаря жестким ограничениям объема фазового пространства в силу законов сохранения энергии и квазиимпульса. Однако в приграничных областях в силу обрыва решетки и повышенной концентрации дефектов взаимодействие подсистем происходит значительно эффективнее, чем в объеме, что и оправдывает условия $u_1 = u_2$ на обеих границах. С другой стороны, вследствие хорошего теплового контакта и отсутствия поглощения энергии накачки вне пленки температура на обеих границах равна температуре термостата T_0 , т. е.

$$u_1(0) = u_2(0) = u_1(d) = u_2(d) = 0. \quad (8)$$

Воспользуемся методом Лапласа–Фурье [7]. Получаем решение в виде

$$u_1(\tilde{t}) = \sum_{n=1}^N \frac{2a_0 n \pi \xi \sin \frac{n\pi y}{d}}{\left(\frac{d}{y_0}\right)^2 + (n\pi)^2} \left[\frac{\frac{2}{d} \left(\frac{n\pi}{d}\right)^2 + \xi}{A_n B_n} \right] + \frac{A_n + \left(\frac{n\pi}{d}\right)^2 + \xi}{A_n^2 - B_n} \exp(-A_n \tilde{t}) + \frac{B_n + \left(\frac{n\pi}{d}\right)^2 + \xi}{B_n^2 - A_n} \exp(-B_n \tilde{t}), \quad (9)$$

$$u_2(\tilde{t}) = \sum_{n=1}^N \left\{ \frac{2a_0 n \pi \xi \sin \frac{n\pi y}{d}}{\left(\frac{d}{y_0}\right)^2 + (n\pi)^2} \frac{1}{A_n B_n} + \frac{1}{A_n^2 - B_n} \exp(-A_n \tilde{t}) + \frac{1}{B_n^2 - A_n} \exp(-B_n \tilde{t}) \right\}, \quad (10)$$

где

$$A_n = -\frac{2}{d} \left(\frac{n\pi}{d} \right)^2 - \xi + \frac{2\xi}{(\xi^2 - 1) \frac{2}{d} \left(\frac{n\pi}{d} \right)^2 + (b - \xi + 1)}, \quad (11)$$

$$B_n = -\frac{2\xi^2}{d} \left(\frac{n\pi}{d} \right)^2 - b - 1 + \frac{2\xi}{(\xi^2 - 1) \frac{2}{d} \left(\frac{n\pi}{d} \right)^2 + (b - \xi + 1)}. \quad (12)$$

В (9), (10) N — число членов ряда, учитываемых при суммировании. Построение кривых по этим формулам показало, что временная зависимость парциальных температур, как и следовало ожидать, представляет собой экспоненциальное приближение к стационарным значениям, проанализированным нами ранее. При $t \rightarrow 0$ мы получаем стационарное распределение температуры (рис. 1 — при равных теплопроводностях подсистем, рис. 2 — при малой теплопроводности подсистемы мягкой моды). Характерное время порядка τ_e . Анализ пространственного распределения парциальных температур в конечный момент времени показал присутствие осциллирующей парциальной температуры мягкой моды, которые „рассасываются“ по мере приближения к стационарному распределению. На рис. 3 представлена осциллирующая зависимость парциальной температуры мягкой моды от координаты в конечный момент времени. Ввиду не очень хорошей сходимости ряда Фурье в случае решения, содержащего мелкошабные осцилляции на фоне плавной функции, возникла необходимость применения альтернативного подхода. Рассмотрение суммы ряда Фурье методом асимптотического разложения подтвердило наличие пространственных осцилляций. Физическая причина этих осцилляций заключается в запаздывающем взаимодействии двух подсистем.

Обсудим некоторые закономерности, вытекающие из представленных результатов. Учет ненулевой парциальной теплопроводности приводит, естественно, к непрерывному распределению температур. Наблюдается очень быстрый рост температуры мягкой моды вблизи „горячей“ границы. Этот быстрый рост должен перейти в скачок при $\xi = 0$. При увеличении глубины проникновения максимум смещается к центру пленки. Распределение температуры акустических фононов практически симметрично. Из исходных уравнений видно, что относительная разность парциальных температур стремится к нулю при стремлении к нулю относительных градиентов температур. Но именно это и происходит при увеличении толщины пленки. Действительно, если функция u_2 не имеет особенностей в интервале $[0, d]$, то для ее второй производной справедлива оценка $u_2'' \sim u_2/d^2$. Следовательно, мы имеем оценку для относительного перегрева $(u_1 - u_2)/u_2 \sim d^2 = (l_2/D)^2$. Сказанное можно проиллюстрировать простым примером. Возьмем в качестве приближенного решения первую гармонику ряда Фурье: $u_2 = \sin(\pi y/d)$. Если ξ не мало, то из формул (10)–(12) следует очень быстрое убывание амплитуд гармоник Фурье для u_2 (как $1/n^3$). Тогда $u_2'' = -(\pi/d)^2 \sin(\pi y/d)$;

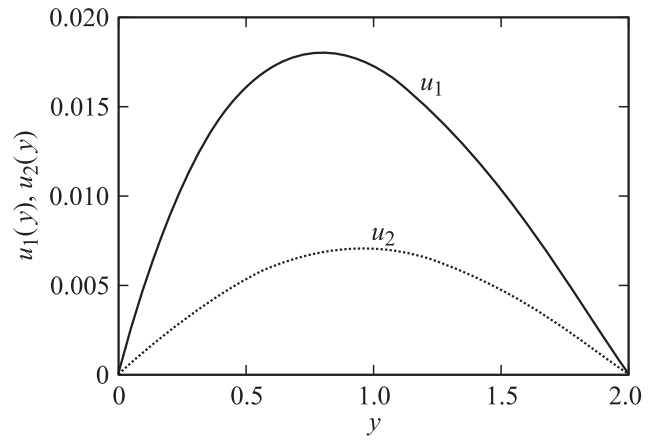


Рис. 1. Стационарное пространственное распределение парциальных температур подсистемы мягкой моды (сплошная кривая) и акустических фононов (пунктирная кривая) для $\xi = 0.1$, $a = 1$, $b = 0.1$, $\xi = 1$, $N = 200$, $y_0 = 10d$, $d = 2$.

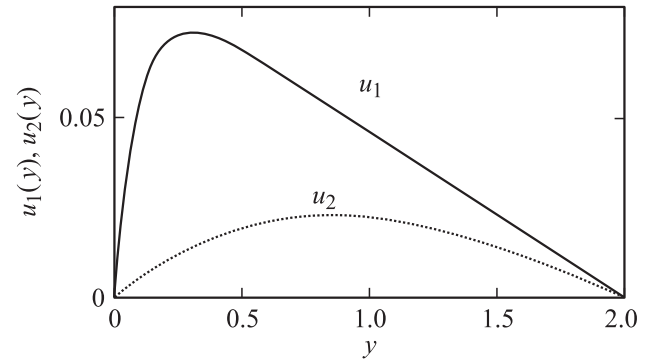


Рис. 2. То же, что на рис. 1, для $\xi = 0.1$.

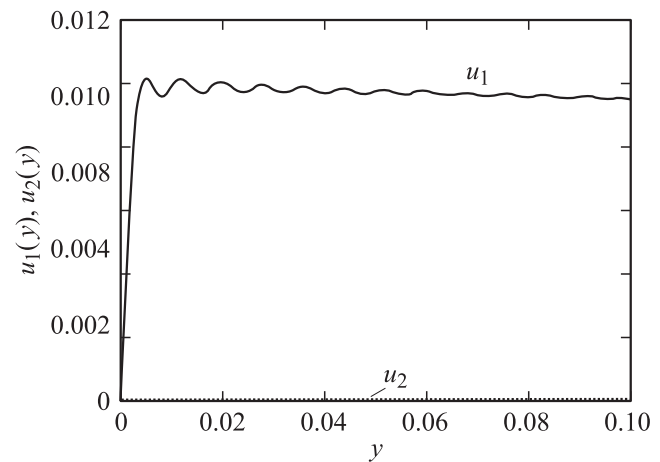


Рис. 3. Пространственная осцилляция парциальной температуры при $t = 0.01$, $\xi = 1$, $a = 1$, $b = 0.1$, $\xi = 1/50$, $N = 200$, $y_0 = 10d$, $d = 2$. Обозначение кривых то же, что на рис. 1.

следовательно, $(u_1 - u_2)/u_2 = (\pi/d)^2$ во всем интервале $[0, d]$. В случае сравнительно толстых пленок толщиной порядка микрона $(D/l_2)^2 \gg 1$, и, следовательно, относительный перегрев мал. Особым является случай малых ξ : в возникающих в этом случае пристеночных скачках производные не малы, что ведет к большому относительному перегреву в тонком слое.

4. Проблема „узкого горла“ в релаксации энергии и гипотеза дискретных бризеров как „аккумуляторов“ энергии

Для того чтобы объяснить заметный разогрев фононов мягкой моды полем накачки, требуется понять, каким образом возможно существование сравнительно больших характерных времен теплообмена между подсистемами. Мы можем рассмотреть несколько возможностей. Первая — длинноволновые фононы мягкой моды взаимодействуют преимущественно с длинноволновыми акустическими фононами. Запишем уравнение баланса энергии в виде

$$\frac{dW_s}{dt} = c_s \frac{T_s - T_0}{\tau_e}, \quad (13)$$

где W_s — плотность энергии подсистемы фононов мягкой моды, T_s и T_0 — парциальные температуры подсистем мягкой моды и термостата соответственно, c_s — удельная теплоемкость подсистемы мягкой моды, $\tau_e \sim \tau/\delta$, τ — характерное время жизни фонона мягкой моды, δ — параметр упругости рассеяния, $\delta = \langle \omega_{ac} \rangle / \langle \omega_s \rangle$, $\langle \omega_{ac} \rangle$ и $\langle \omega_s \rangle$ — средние частоты принимающих участие в процессах рассеяния акустических фононов и фононов мягкой моды. Малость параметра неупругости δ гарантируется преобладанием процессов рассеяния с участием одного акустического фонона. Учитывая квазиупругость рассеяния, теория фоновой релаксации может быть построена в некоторой аналогии с теорией горячих электронов. Однако выигрыш во времени релаксации за счет квазиупругости не превышает одного порядка, т.е. для времени релаксации энергии получаем оценку $\tau_e \leq 10^{-11}$ с. Вторая возможность — это учет существенной нелинейности динамики фононов мягкой моды. Можно предположить, что время жизни сильно возбужденных состояний может быть существенно больше времени, даваемого линейной теорией. Например, модель нелинейных дискретных бризеров (НДБ) демонстрирует аномально большое время жизни. Многочисленные возможные приложения концепции НДБ можно найти в обзоре [8]. Мы обсудим эту проблему более детально для случая метастабильной решетки, в которой имеет место структурный фазовый переход первого рода. Запишем лагранжиан достаточно общего вида

$$L = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left[\frac{1}{2} (u_n)^2 - \frac{b^2}{2} (u_{n+1} - u_n)^2 - U(u_n) \right]. \quad (14)$$

Это выражение непосредственно обобщается на случай решетки произвольной размерности. Потенциальная функция $U(u_n)$ должна удовлетворять двум условиям. Во-первых, она должна обеспечивать существование нетривиальных решений; следовательно, система должна иметь не менее двух точек равновесия $dU(u)/du = 0$. Во-вторых, должна быть обеспечена по крайней мере локальная устойчивость относительно малых, но конечных возмущений везде вдали от бризера. Этим требованиям удовлетворяет потенциальная функция следующего вида:

$$U(u_n) = \frac{\alpha}{2} u_n^2 - \frac{\beta}{4} u_n^4 + \frac{\gamma}{6} u_n^6 + \dots \quad (15)$$

Все коэффициенты предполагаются положительными. Это распределение знаков характерно для систем, испытывающих фазовый переход первого рода, близкий ко второму. Сдвигая начало координат в левый минимум и пренебрегая высшими степенями, получаем следующий эффективный потенциал:

$$U_L = \frac{\alpha'}{2} u_{Ln}^2 - \frac{\beta'}{3} u_{Ln}^3. \quad (16)$$

Мы имеем для одномерной системы (в окрестности левого минимума) в приближении вращающейся волны [8]

$$-\omega^2 u_n - b^2(2u_n - u_{n+1} - u_{n-1}) + \alpha u_n - \beta u_n^2 = 0. \quad (17)$$

Теперь перейдем к безразмерным переменным

$$-\omega'^2 v_n - (2v_n - v_{n+1} - v_{n-1}) + \alpha' v_n - \beta' u_0 v_n^2 = 0, \quad (18)$$

где $\omega'^2 = \frac{\omega^2}{\omega_0^2 b^2}$ — безразмерная искомая частота, $\alpha' = \frac{\alpha}{b^2}$, $\beta' = \frac{\beta}{b^2}$ — безразмерные коэффициенты нелинейного потенциала, а $v_n = \frac{u_n}{u_0}$ — безразмерная искомая функция. Спектр в гармоническом приближении $\omega_k^2 = \alpha' + 2 - 2 \cos(ka)$.

Рассмотрим хорошо локализованное симметричное решение с максимальной амплитудой осцилляций на некотором узле, которому мы присвоим номер $n = 0$. Имея в виду быстрое убывание амплитуды при увеличении $|n|$, предположим, что нелинейностью можно пренебречь на всех узлах решетки, кроме центрального, $n = 0$. Тогда уравнение (18) может быть переписано в виде

$$-\omega'^2 v_{n,1} - (2v_{n,1} - v_{n+1,1} - v_{n-1,1}) + \alpha' v_{n,1} = \alpha' v_{0,1}^2 \delta_{n,0}, \quad (19)$$

где δ_{nm} — символ Кронекера, второй индекс означает первую гармонику. Заметим, что положение центрального узла $n = 0$ может быть выбрано произвольно; энергия НДБ не зависит от позиции в регулярной системе в отсутствие внешних полей, и, следовательно, НДБ может быть транслирован на любой узел решетки. Уравнение (19) может быть решено точно с использованием

подхода, разработанного в теории локальных и квазилокальных колебаний [9]. Таким образом, используя преобразование Фурье в пространстве узлов, получаем пространственное распределение амплитуды НДБ

$$v_{n,1} = \frac{\alpha' v_{0,1}^2}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{dk \exp(ikn)}{\omega_k^2 - \omega'^2}. \quad (20)$$

Используя метод пятого параметра, можем переписать интеграл в виде

$$v_{n,1} = \frac{\alpha' v_{0,1}^2}{\pi} \int_0^{\infty} ds \exp[-(\alpha' + 2 - \omega'^2)s] \pi I_n(2s), \quad (21)$$

где $|\arg(2s)| < \pi$, $I_n(x)$ — модифицированная функция Бесселя. Учитывая, что $(\alpha' - \omega'^2) > 0$ и $n > 1$, можем вычислить интеграл (21)

$$v_{n,1} = \alpha' v_{0,1}^2 \frac{2^n}{\sqrt{(\alpha' + 2 - \omega'^2)^2 - 2^2} \times \left[(\alpha' + 2 - \omega'^2) + \sqrt{(\alpha' + 2 - \omega'^2)^2 - 2^2} \right]^n}. \quad (22)$$

Приравнявая n к нулю, получаем уравнение для собственных частот, причем вследствие нелинейности задачи частота является функцией амплитуды на центральном узле

$$l = \frac{\alpha' v_{0,1}}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{dk}{\omega_k^2 - \omega'^2}. \quad (23)$$

Вычислив интеграл, получаем

$$v_{0,1} = \frac{\sqrt{\alpha' - \omega'^2} \sqrt{\alpha' - \omega'^2 + 4}}{\alpha'}. \quad (24)$$

Наряду с локальными колебаниями существуют и квазилокальные бризеры. Мнимая часть частоты (обратное время жизни квазилокальных бризеров) пропорциональна плотности фононных состояний на частоте колебаний. Малость плотности состояний вблизи края полосы мягкой моды обеспечивает большое время жизни бризеров.

5. Заключение

В настоящей работе мы разработали простой теоретический подход к описанию разогрева фононов мягкой моды электромагнитным полем накачки. Показано, что заметный разогрев возможен в достаточно тонких сегнетоэлектрических пленках, сравнимых по толщине с тепловой длиной. Предложен нелинейный механизм, который может привести к достаточно большому времени релаксации энергии, так что заметный „разогрев“ мягкой моды возможен при реалистическом уровне накачки. Построена теория нелинейных дискретных бризеров с одноузельной нелинейностью.

Список литературы

- [1] А.М. Прудан, А.В. Мезенов, С.А. Ктиоров. Письма в ЖТФ **33**, 33 (2007).
- [2] В.Г. Вакс. Введение в микроскопическую теорию сегнетоэлектриков. Наука, М. (1973).
- [3] Р. Блинц, Б. Жекш. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики. Динамика решетки. Мир, М. (1975).
- [4] В.Л. Гуревич. Кинетика фононных систем. Наука, М. (1980).
- [5] С.И. Брагинский. В кн.: Вопросы теории плазмы. Госатомиздат, М. (1963). В. 1. С. 183.
- [6] Р.Н. Гуржи. УФН **94**, 689 (1968).
- [7] Н.С. Кошляков, Э.Б. Глинер, М.М. Смирнов. Основные дифференциальные уравнения математической физики. ГИФМЛ, М. (1962).
- [8] S. Flash, C.R. Willis. Phys. Rep. **295**, 181 (1998).
- [9] А. Марадудин. Дефекты и колебательный спектр кристаллов. Мир, М. (1968).