

Влияние процессов фононного распада на формирование сигнала фононной неравновесности в кристаллах с двумя подсистемами ДУС

© Е.И. Саламатов

Физико-технический институт Уральского отделения Российской академии наук,
426000 Ижевск, Россия

E-mail: salam@otf.fti.udmurtia.su

(Поступила в Редакцию 10 июля 2002 г.)

Теоретически изучен вопрос о влиянии процессов фононного распада на характерное время распространения и форму сигнала фононной неравновесности в неупорядоченных кристаллах, в том числе в кристаллах, содержащих неупругие центры рассеяния фононов. Особое внимание уделено „медленным“ процессам, характерным для твердых растворов иттрий-алюминиевых гранатов и алюминатов с примесью эрбия. Показано, что в этих системах температурная зависимость времени прихода сигнала фононной неравновесности может в значительной мере определяться фонон-фононными взаимодействиями. Результаты теоретических исследований сравниваются с экспериментальными данными по распространению слабонеравновесных тепловых фононов в твердых растворах редкоземельных иттрий-алюминиевых гранатов и алюминатов.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 00-02-17426, 01-02-96463).

Процесс распространения слабонеравновесных фононов, инжектируемых „теплым“ генератором $S/T \ll 1$ (S — превышение температуры генератора над температурой термостата T) в неупорядоченный кристалл, в общем случае определяется многими факторами, обусловленными схемой проведения эксперимента, дефектной структурой исследуемого объекта, а также свойствами его фононной подсистемы [1–4]. Исследованию роли фонон-фононного взаимодействия в процессах распространения фононов в неупорядоченных кристаллах посвящено немало теоретических и экспериментальных работ [5–9]. Сейчас хорошо известно, что в случае сильного ангармонизма режим распространения неравновесных фононов не является чисто диффузионным, т. е. не характеризуется квадратичной зависимостью времени прихода максимума сигнала фононной неравновесности на болометр от длины образца ($t_m \sim L^2$). В работах [5–7] показано, что, если в ангармонических системах преобладают процессы распада фононов, т. е. числа заполнения неравновесных фононов $n(\omega) \ll 1$, в них реализуется режим квазидиффузии, при котором $t_m \sim L^{10/9}$ [5]. Если же наряду с процессами распада существенны и процессы слияния фононов ($n(\omega) \gg 1$), возможно установление режима нелокальной фононной теплопроводности, для которого $t_m \sim L^{8/5}$ [7].

Эти зависимости получены в предположении, что дефекты в кристаллах являются центрами упругого рассеяния фононов. Цель данной работы — проведение аналогичного исследования в таких системах, в которых наряду с этим возможны неупругие процессы, связанные с центрами захвата неравновесных фононов. В предыдущей работе [10] предложена теоретическая модель для описания процесса распространения тепловых импульсов в твердых растворах $Y_{3-x}Er_xAl_5O_{12}$, центрами захвата фононов в которых являются парамагнитные атомы эрбия. В рамках этой модели удалось

объяснить сильное (до двух порядков) замедление процесса диффузионного распространения фононов в этих системах и описать основные аномалии в температурной и концентрационной зависимостях времени прихода сигнала на болометр. Эффекты фонон-фононного взаимодействия в [10] не учитывались, хотя отмечалось, что при „медленном“ распространении теплового импульса роль фонон-фононного взаимодействия должна быть более значительна, чем в случае только упругого рассеяния фононов, поскольку время прохождения теплового импульса становится сравнимо по величине с характерным временем жизни фононов, обусловленным их ангармонизмом. В данной работе в рамках предложенной в [10] модели исследуется роль фонон-фононного взаимодействия в формировании формы сигнала, времени его прихода на болометр в зависимости от длины образца, температуры и концентрации дефектов в системах с центрами захвата неравновесных фононов. Теоретические зависимости сравниваются с экспериментальными, полученными в твердых растворах иттриевых алюмогранатов и алюминатов.

1. Основные уравнения

Решение кинетического уравнения, описывающего процесс распространения импульса фононов с учетом фонон-фононного взаимодействия в общем виде, даже при весьма упрощающих предположениях получить невозможно. Для того чтобы описать этот эффект в рамках простой модели работы [10], нам придется сделать два основных приближения. Во-первых, будут рассмотрены только процессы распада тепловых фононов. Это оправдано тем, что в экспериментах, которые будут обсуждаться, всегда выполняется условие $n(\omega) \ll 1$ ($n(\omega)$ — число заполнения инжектируемых фононов).

Во-вторых, будем считать, что длинноволновые фононы, образующиеся в процессе распада тепловых фононов, распространяются баллистически и не вносят вклада в формирование диффузионного сигнала на болометре. Конечно, это приближение значительно грубее тех, которые сделаны в работах [5–7], но оно позволяет получить достаточно простые аналитические выражения для экспериментально наблюдаемых величин и проанализировать их зависимость от параметров задачи. Кроме того, далее будет показано, что сделанные приближения позволяют получить и количественное согласие с экспериментальными результатами.

После сделанных упрощений система кинетических уравнений для описания процессов распространения теплового импульса принимает вид

$$\begin{aligned} \partial n_q / \partial t + (\Gamma_a + \Gamma_{1,tq} + \Gamma_{2,tq} + \Gamma_L) n_q \\ = \Gamma_L n_{q0} + \Gamma_a n_{q0} + \Gamma_{1,tq} n_{q0} + \Gamma_{2,tq} n_{q0}, \\ \partial E_1 / \partial t = (1/2\pi)^3 \int \omega_q \Gamma_{1,tq} (n_q - n_{1,t0}) d^3 q, \\ \partial E_2 / \partial t = (1/2\pi)^3 \int \omega_q \Gamma_{2,tq} (n_q - n_{2,t0}) d^3 q. \end{aligned} \quad (1)$$

В отличие от [10] в настоящей работе рассматриваются кристаллы с двумя различными независимыми подсистемами ДУС, что характерно для твердых растворов $Y_{3-x}Er_xAl_5O_{12}$ при промежуточных концентрациях атомов эрбия. В уравнениях (1) n_{q0} , $n_{i,t0}$ — равновесные числа заполнения фононов при температуре термостата и эффективной температуре ДУС i -подсистемы соответственно, E_i — энергия ДУС, $\Gamma_{i,tq}$ — скорость рассеяния фононов на ДУС, $\Gamma_L = -D_0 \partial^2 / \partial z^2$, D_0 — коэффициент диффузии фононов, определяемый только упругим рассеянием фононов на дефектах, Γ_a — скорость распада тепловых фононов. Поскольку мы полагаем, что полученные в результате распада длинноволновые фононы сразу же уходят в гелиевую ванну, соответствующий член описывает просто убыль тепловых фононов за счет процессов распада.

После линеаризации уравнений (1) и Лаплас-Фурье-преобразования по схеме работы [10] схема кинетических уравнений принимает вид

$$\begin{aligned} (p + N_1 \Gamma_1 + N_2 \Gamma_2 + k^2 D_0 + \Gamma_a) S_q(p, k) \\ - N_1 \Gamma_1 S_{1t}(p, k) - N_2 \Gamma_2 S_{2t}(p, k) = S(0), \\ p + (c_p / c_{1t} \Gamma_1) S_{1t}(p, k) - (c_p / c_{1t} \Gamma_1) S_q(p, k) = 0, \\ p + (c_p / c_{2t} \Gamma_1) S_{2t}(p, k) - (c_p / c_{2t} \Gamma_2) S_q(p, k) = 0. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь S_i — отклонение температуры подсистем ($i = q, 1t, 2t$) от температуры термостата, N_i — концентрация ДУС i -сорта, Γ_i — скорость рассеяния фононов в расчете на один дефект сорта i ; $c_p = 4\pi^4 (T/T_D)^3 / 5$ и $c_{i,t} = (\Delta_i/T)^2 \exp(-\Delta_i/T) / (1 + \exp(-\Delta_i/T))^2$ — теплоемкости фононов и ДУС соответственно; Δ_i — параметр

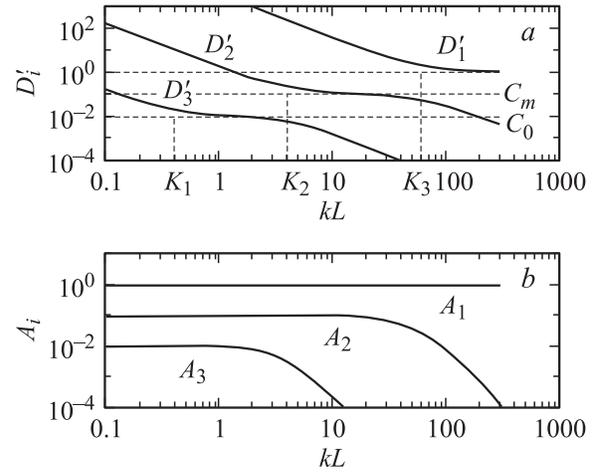


Рис. 1. Пространственная дисперсия эффективных коэффициентов диффузии (а) и весовых множителей (б).

ДУС, T_D — температура Дебая. При получении выражений (2) мы, как и в [10], пренебрегли зависимостью Γ_{iq} от q и ограничились линейным по концентрации дефектов N_i приближением.

Для фурье-образа решения системы (2) нетрудно получить

$$\begin{aligned} S_q(t, k) = A_1(k) e^{-D_2(k)k^2 t} + A_2(k) e^{-D_2(k)k^2 t} \\ + A_3(k) e^{-D_3(k)k^2 t}. \end{aligned}$$

Пространственная дисперсия эффективных коэффициентов диффузии и весовых множителей, полученных из численного решения характеристического уравнения системы (2), показана на рис. 1. В общем случае параметры $A_i(k)$ и безразмерные коэффициенты диффузии ($D'_i = D_i/D_0$) зависят от пяти параметров, аналогичных введенным в [10]: $k_i^2 L^2 = 2t_0 \tau_i$, где τ_i — время релаксации фононов по отношению к распадам ($i = a$) и к захвату подсистемами ДУС ($i = 1, 2$); $C_i = c_p / (c_p + c_{it} N_i)$. Особые точки, указанные на рисунке, выражаются через эти параметры следующим образом:

$$\begin{aligned} K_1 = k_a L, \quad K_2 = \sqrt{(k_a L)^2 + (k_2 L)^2}, \\ K_3 = \sqrt{(k_a L)^2 + (k_1 L)^2 + (k_2 L)^2}, \\ C_m = C_1 k_1^2 / (k_a^2 + k_1^2 + k_2^2), \\ C_0 = c_p / (c_p + c_{1t} N_1 + c_{2t} N_2) \\ = C_1 C_2 / (C_1 + C_2 - C_1 C_2). \end{aligned}$$

Далее для определенности будем полагать, что $C_1 > C_2$, $k_1 > k_2$.

Для анализа результатов, получаемых в предлагаемой модели, сначала рассмотрим влияние процессов распада фононов на распространение теплового импульса в кристаллах, не содержащих центров захвата.

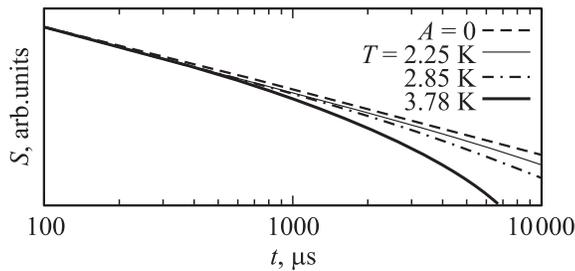


Рис. 2. Влияние слабого ангармонизма на кривизну заднего фронта сигнала фоновой неравновесности.

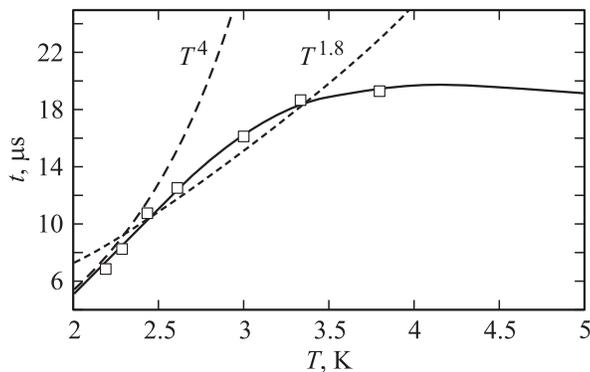


Рис. 3. Температурная зависимость времени прихода максимума сигнала в случае сильного ангармонизма. (Квадраты — экспериментальные точки из работы [12]).

2. Системы без центров захвата неравновесных фононов

Для этого случая надо положить $k_1 = k_2 = 0$. Тогда из (2) имеем

$$D'_1(k) = (k^2 + k_a^2)/k^2, \quad A_1(k) = 1,$$

что дает

$$S_q(t) \simeq e^{-t/\tau_a} e^{-L^2/4D_0 t} \sqrt{\pi/4D_0 t}. \quad (3)$$

Формально полученное выражение совпадает с выражением, описывающим форму первого пика в системах с центрами захвата неравновесных фононов из работы [10], поскольку то и другое описывает убыль фононов, формирующих сигнал фоновой неравновесности. В случае слабого ангармонизма появление дополнительной экспоненты приводит к „зарезанию“ сигнала только при больших временах и соответственно к увеличению кривизны заднего фронта сигнала. На рис. 2 представлены задние фронты сигналов, рассчитанные в предположении, что коэффициент диффузии определяется рэлеевским рассеянием на точечных дефектах: $D_0 = v^2 \tau_R / 3 = v^2 3BT^4$, где v — групповая скорость длинноволновых фононов, а скорость распада фононов может быть представлена в виде $\Gamma_a = AT^5$ ($k_a^2 = ABL^2 T^9 / 3v^2$). Параметры для расчета

кривых на рис. 2 взяты из работ [9,11]: $B = 195 \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-4}$, $A = 2.07 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-5}$ и $L = 0.5 \text{ cm}$. Во всех расчетах положено, что $v = 7 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}$. При этих значениях параметров теоретические кривые вполне удовлетворительно описывают экспериментальные данные (ср. с рис. 1 из работы [9]).

При больших значениях параметра k_a , когда начинает выполняться условие $\tau_a \leq t_0$, форма сигнала фоновой неравновесности меняется достаточно сильно для того, чтобы изменилось время прихода максимума сигнала

$$t_{\max}(T) = \frac{\sqrt{1 + 4k_a^2(T)} - 1}{2k_a^2(T)} t_0(T). \quad (4)$$

Полученная зависимость немонотонная — при малых значениях T она возрастает как T^4 , а при больших убывает по закону $T^{-1/2}$. Максимум на кривой $t_{\max}(T)$ достигается при температуре $T_{\max} = (20v^2/3BAL^2)^{1/9}$. На рис. 3 представлена эта зависимость, полученная при $B = 1200 \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-4}$, $A = 800 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-5}$ и $L = 0.6 \text{ cm}$ в сравнении с $t_0(T) \sim T^4$ и зависимостью $t_{\max} \sim T^{1.8}$, использованной в работе [12] для обработки экспериментальных результатов (квадраты). Экспериментальные данные были получены для твердого раствора $\text{Y}_{1-x}\text{Er}_x\text{Al}_2\text{O}_3$, в котором эффекты ангармонизма значительны. Представляется, что зависимость (4) лучше описывает эксперимент, и, по нашему мнению, „завал“ последней экспериментальной точки является проявлением немонотонности в зависимости $t_{\max}(T)$.

Таким образом, полученные результаты позволяют сделать вывод о том, что предлагаемая модель вполне удовлетворительно описывает известные экспериментальные данные. Чтобы сделать окончательные выводы, необходимо провести сравнение теоретических кривых с результатами аналогичного эксперимента с образцами различной длины, поскольку, согласно предлагаемой модели, время прихода максимума сигнала имеет нетривиальную зависимость от длины образца. При низких температурах она обычна для диффузионного распространения фононов $t_{\max} \sim L^2$, но с ростом температуры ослабевает и становится линейной (в отличие от результатов строгого подхода [5], в котором $t_{\max} \sim L^{10/9}$) при больших T . К сожалению, исследований влияния процессов распада фононов в образцах различной длины (и концентрации) в этих системах не проводилось. Такие измерения проводились в системах $\text{Y}_{3-x}\text{Er}_x\text{Al}_2\text{O}_5$, в которых необходимо учитывать центры захвата фононов.

3. Кристаллы с центрами захвата неравновесных фононов

Рассмотрим кристалл с одной подсистемой ДУС ($k_1 = 0$, $C_1 = 1$). Такая ситуация соответствует, в частности, твердым растворам $\text{Y}_{3-x}\text{Er}_x\text{Al}_2\text{O}_5$ при больших значениях концентрации атомов эрбия. Как отмечалось в [10], в этом случае вклад в C_0 от низкоэнергетических

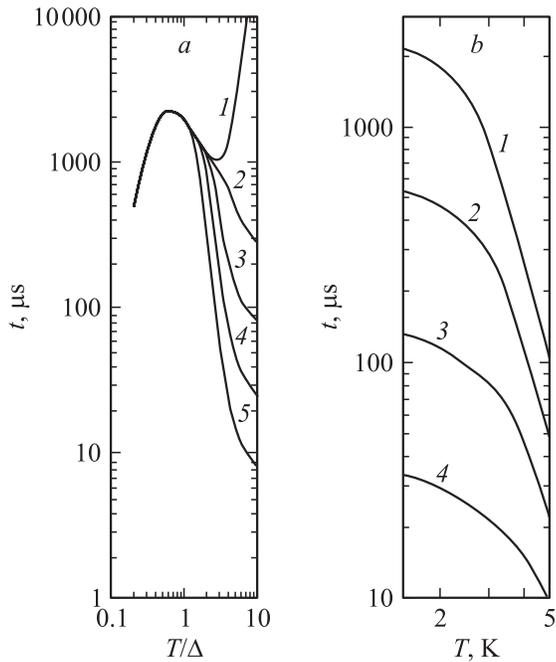


Рис. 4. Температурная зависимость времени прихода максимума сигнала в системах с центрами захвата неравновесных фононов. При $L = 0.22$ см и различных значениях параметра A : 1 — 0; 2 — 10^{-4} ; 3 — 10^{-3} ; 4 — 10^{-2} ; 5 — $10^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-5}$ (a). При $A = 10^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-5}$ и различных значениях параметра L : 1 — 0.22; 2 — 0.11; 3 — 0.055; 4 — 0.0275 см (b).

ДУС преобладает в рассматриваемой области температур и высокоэнергетическими ДУС можно пренебречь. Ограничиваясь анализом только медленных процессов, будем считать, согласно [10], что $k_2 \gg 1$ и $C_0 = C_2 \ll 1$. Тогда имеем

$$S_a(t) \sim \frac{1}{\sqrt{C_0 D_0 t}} \exp(-t/\tau_a) \exp(-L^2/4C_0 D_0 t),$$

$$t_{\max}(T) = \frac{\sqrt{1 + 4k_a^2(T)} - 1}{2k_a^2(T)} t_0(T)/C_0. \quad (5)$$

Как было показано в [10], зависимость $t_{\max}(T)$ при $A = 0$ имеет немонотонный характер: сначала экспоненциально растет (при $T \leq \Delta$), а при больших температурах падает по закону $1/T$ ($\Delta \ll T_D$). Распадные процессы могут приводить к более сильной степенной зависимости высокотемпературного участка кривой $t_{\max}(T)$, и при больших значениях константы ангармонизма $t_{\max}(T) \sim 1/T^{5.5}$. На рис. 4 представлены рассчитанные кривые для различных значений параметра A (рис. 4, a) и длины образца L (рис. 4, b). При расчете кривых на рис. 4 взяты следующие значения параметров: $\Delta = 1.8$ К, $T_D = 600$ К, $B = 6500 \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-4}$. Концентрация низкоэнергетических ДУС, которая не совпадает с концентрацией примесных атомов эрбия [10], в пересчете на формульные единицы $\text{Y}_{3-x}\text{Er}_x\text{Al}_5\text{O}_{12}$ $x = 0.5$.

Кривые на рис. 4, b качественно совпадают с экспериментальными результатами для $\text{Er}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ из ра-

боты [13] и демонстрируют переход от квадратичной зависимости $t_2(L)$ к линейной. Заметим, что в работе [10] рассматривалась другая возможная причина сильной температурной зависимости $t_{\max}(T)$ с отрицательной производной — нерэлеевский тип упругого рассеяния. К сожалению, в эксперименте невозможно определить характер упругого рассеяния.

При промежуточных концентрациях атомов эрбия ($x = 0.5-1.5$) в твердых растворах $\text{Y}_{3-x}\text{Er}_x\text{Al}_5\text{O}_{12}$ вклады от низкоэнергетических и высокоэнергетических ДУС становятся существенны, что проявляется в появлении двух пиков, соответствующих „медленным“ процессам на сигнале фононной неравновесности [13]. Эксперименты по спин-решеточной релаксации указывают на то, что их энергетические параметры равны $\Delta_1 = 4.5$ и $\Delta_2 = 28.8$ К [14]. На рис. 5 показаны результаты численного решения системы уравнений (2) с учетом процессов распада. Расчеты проводились при $B = 1200 \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-4}$, $A = 10^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-5}$, $\Delta_1 = 4.5$ К, $x_1 = 0.06$, $\Delta_2 = 29$ К, $x_2 = 0.6$, $T_D = 630$ К, $L = 0.5$ см. Здесь, как и в [1], полагалось, что скорость энергообмена между фононами и ДУС экспоненциально зависит от температуры ($\Gamma_i \sim \exp(-\Delta_i/T)$). Полученные теоретические зависимости соответствуют экспериментальным результатам (ср. с рис. 5 работы [13]), что еще раз подтверждает разумность предложенной модели. Для сравнения штриховой кривой изображена зависимость $S(t)$, рассчитанная без учета процессов распада ($A = 0$) при $T = 3.2$ К. Как и следовало ожидать, ангармонические эффекты наиболее сильно влияют на самые медленные процессы с характерным временем распространения $t_m \sim t_0/C_0 \gg t_0$.

В общем случае приближенные аналитические выражения для температурной зависимости времени прихода максимумов сигнала фононной неравновесности на болометр при наличии двух систем ДУС получить не удастся, и мы ограничимся только пределом очень быстрого энергообмена между фононами и ДУС. При этом $k_1, k_2 \rightarrow \infty$, и для самого медленного процесса нетрудно получить выражение, формально совпадающее с (4), в котором параметр C_0 уже определяется обеими

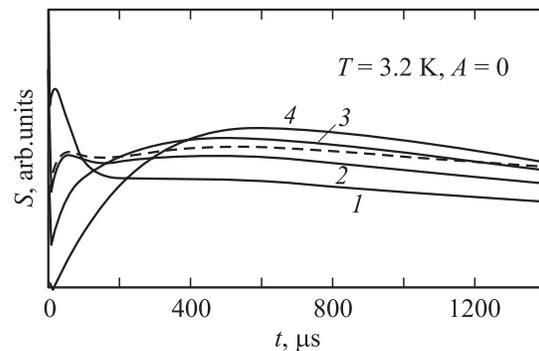


Рис. 5. Форма сигнала фононной неравновесности в кристаллах $\text{Y}_{3-x}\text{Er}_x\text{Al}_5\text{O}_{12}$ с двумя подсистемами ДУС при различных температурах T , К: 1 — 3.0, 2 — 3.2, 3 — 3.4, 4 — 3.8.

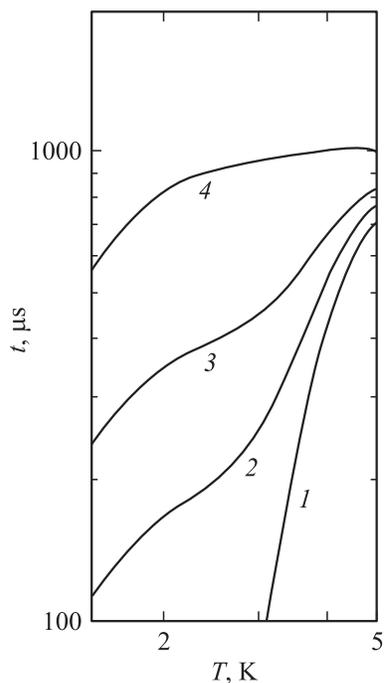


Рис. 6. Температурная зависимость времени прихода максимума сигнала в системах с центрами захвата неравновесных фононов, рассчитанная для различных значений концентрации низкоэнергетических ДУС, x : 1 — 0, 2 — 0.03, 3 — 0.06, 4 — 0.15.

подсистемами ДУС и имеет более сложную температурную зависимость. На рис. 6 показаны соответствующие кривые, рассчитанные по формуле (4) при различных соотношениях между концентрациями ДУС. На рисунке приведены кривые, рассчитанные при тех же параметрах, что и для рис. 5. Как следует из рисунка, при достаточно большой концентрации низкоэнергетических ДУС на зависимости $t_m(T)$ появляется точка перегиба, что соответствует неопубликованным экспериментальным данным, полученным группой С.Н. Иванова для твердых растворов алюмината $Y_{1-x}Er_xAl_2O_3$ при $x = 0.1$ и 0.15 . Общее же изменение температурной зависимости t_m с ростом концентрации, наблюдаемое в этой системе, может быть интерпретировано как переход от одной системы ДУС к другой.

Таким образом, учет распадных процессов в рамках предложенной ранее модели позволил описать большую совокупность явлений, экспериментально обнаруженных при исследовании процессов распространения тепловых импульсов в неупорядоченных системах с центрами захвата неравновесных фононов. Простота модели и универсальность ее параметров позволяет надеяться, что она будет полезна и при описании кинетических процессов в более сложных системах, например в керметах. В самом деле, при температурах эксперимента электронная теплоемкость небольшого числа металлических включений в диэлектрической матрице таких двухфазных керамик может быть гораздо больше, чем

фононная теплоемкость самой матрицы, что должно приводить к малым значениям параметра C , который, согласно предлагаемой модели, и определяет время распространения теплового импульса в случае быстрого энергообмена между подсистемами. Благодаря разной температурной зависимости теплоемкостей электронной и фононной подсистем вклад металлической фазы в формирование сигнала фононной неравновесности может быть экспериментально наблюдаемым.

Автор выражает признательность С.Н. Иванову за плодотворные дискуссии и ценные замечания, а также Е.Н. Хазанову за представленную возможность ознакомиться с неопубликованными экспериментальными результатами.

Список литературы

- [1] R.J. Gutfeld, A.H. Nethercot, jr. Phys. Rev. Lett. **12**, 23, 641 (1964).
- [2] С.Н. Иванов, Е.Н. Хазанов, А.В. Таранов. Письма в ЖЭТФ **40**, 1, 20 (1984).
- [3] С.Н. Иванов, Е.Н. Хазанов. ЖЭТФ **88**, 1, 294 (1985).
- [4] В.И. Козуб. ФТТ **37**, 5, 1429 (1992).
- [5] Д.В. Казаковцев, И.Б. Левинсон. Письма в ЖЭТФ **27**, 3, 194 (1978).
- [6] D.V. Kazakovtsev, Y.B. Levinson. Phys. Stat. Sol. (b) **96**, 1, 117 (1979).
- [7] И.Б. Левинсон. ЖЭТФ **79**, 4, 1294 (1980).
- [8] С.Н. Иванов, Е.Н. Хазанов, А.В. Таранов. ФТТ **27**, 9, 2791 (1985).
- [9] С.Н. Иванов, А.В. Таранов, Е.Н. Хазанов. ЖЭТФ **99**, 4, 1311 (1991).
- [10] Е.И. Саламатов. ФТТ **44**, 5, 935 (2002).
- [11] S.N. Ivanov, E.N. Khazanov, T. Paszkiewicz, A.V. Taranov, M. Wilczynski. S. Phys. B **99**, 4, 535 (1996).
- [12] Б.А. Данильченко, С.Н. Иванов, Д.В. Поплавский, А.В. Таранов, Е.Н. Хазанов. ЖЭТФ **112**, 1, 325 (1997).
- [13] С.Н. Иванов, А.Г. Козорезов, А.В. Таранов, Е.Н. Хазанов. ЖЭТФ **100**, 5, 1591 (1991).
- [14] С.Н. Иванов, А.В. Таранов, Е.Н. Хазанов, В.А. Ацаркин, В.В. Демидов. ЖЭТФ **94**, 274 (1989).