

РАСПРОСТРАНЕНИЕ И РЕЛАКСАЦИЯ ВЫСОКОЧАСТОТНЫХ АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ В ТОНКИХ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛАСТИНКАХ

А.А.Максимов, И.И.Тартаковский

С помощью фонованого спектрометра, обладающего высоким пространственным и временным разрешением, изучаются процессы распространения и релаксации высокочастотных акустических фононов в тонких кристаллах антрацена. Обнаружена смена режимов распространения неравновесных фононов за время ~ 40 нс после действия импульса возбуждения.

Оптические методы широко используются при генерации коротковолновых акустических фононов с частотами $10^{11} - 10^{12}$ Гц и их детектировании. При фотовозбуждении кристаллов в результате безызлучательных процессов релаксации электронных возбуждений за время $\lesssim 10^{-10}$ с происходит генерация высокочастотных акустических фононов, которые начинают распространяться из области возбуждения в холодные участки кристалла. Распространение неравновесных фононов в зависимости от чисел заполнения их начального распределения и геометрии эксперимента сопровождается процессами спонтанного деления или слияния фононов, которые, в свою очередь, играют существенную роль в установлении режима распространения фононов в кристалле^{1,2}. В настоящей работе, используя методы детектирования высокочастотных фононов, обладающие частотной селективностью и высоким временным разрешением, впервые удалось проследить за релаксацией и установлением режима распространения неравновесных фононов в тонких кристаллических пластинках непосредственно с момента их возбуждения.

Эксперименты проводились на тонких ($d = 2 - 15$ мкм) кристаллах антрацена с развитой поверхностью [001], которые помещались в оптический гелиевый термостат при температуре $T_0 = 4,5$ К. Генерация коротковолновых фононов осуществлялась при возбуждении поверхности кристаллов импульсами азотного лазера (длительность импульса $\tau_p \approx 4,5$ нс, частота повторений 25 Гц, интенсивность накачки $P = 10 - 50$ кВт/см²), излучение которого поглощается в слое $\sim 0,5$ мкм.

Появление неравновесных фононов в детектируемом объеме кристалла регистрировалось по изменению коэффициента поглощения $\kappa(\omega) - \kappa_0(\omega)$ в области частот вблизи дна нижней

шей экситонной b -зоны ($\omega_T = 25096 \text{ см}^{-1}$). Величина $\kappa(\omega) - \kappa_0(\omega)$ измерялась в различные моменты времени после действия импульса накачки азотного лазера с помощью перестраиваемого лазера на красителе ($\tau_p \approx 3 \text{ нс}$, полоса генерации $\Delta\omega \lesssim 1 \text{ см}^{-1}$, поляризация излучения $E \parallel b$ -оси). Временная задержка импульсов перестраиваемого лазера относительно импульсов накачки могла изменяться с помощью оптической линии задержки в пределах $t_D = 0 - 150 \text{ нс}$.

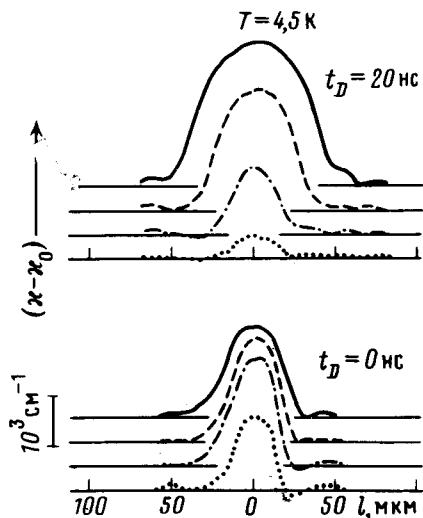


Рис. 1.

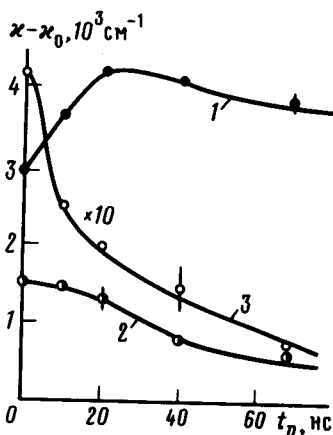


Рис. 3

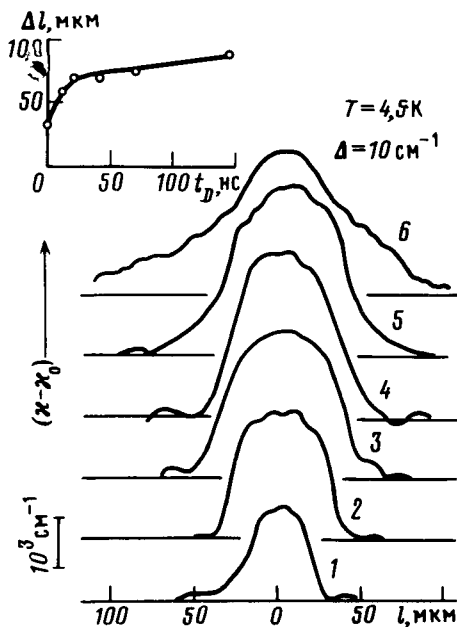


Рис. 2

Рис. 1. Пространственное изменение коэффициента поглощения в момент действия импульса накачки и через 20 нс на частотах $\Delta = \omega_T - \omega$: — — 10 см^{-1} , - - - - 15 см^{-1} , - · - · - 20 см^{-1} , · · · · 25 см^{-1} , $T_0 = 4,5 \text{ К}$, $d = 10 \text{ мкм}$, $P = 30 \text{ кВт/см}^2$

Рис. 2. Пространственное изменение коэффициента поглощения ($\Delta = 10 \text{ см}^{-1}$) при различных значениях времени задержки t_D : 1 — 0, 2 — 10, 3 — 20, 4 — 40, 5 — 68, 6 — 144 нс. $d = 10 \text{ мкм}$, $P = 30 \text{ кВт/см}^2$

Рис. 3. Временная зависимость коэффициента поглощения на частотах Δ : 1 — 10, 2 — 15, 3 — 20 см^{-1} ; однородное возбуждение поверхности кристалла при $P = 8 \text{ кВт/см}^2$, $d = 12 \text{ мкм}$

В кристаллах антрацена для нижней поляритонной ветви в области частот $\omega \gtrsim \omega_T$ выполняется соотношение $V_g < u$ (V_g — групповая скорость поляритонов, u — скорость звука)^{3,4}, в силу чего разрешены однофононные переходы с поглощением высокочастотных акустических фононов из поляритонных состояний, расположенных под дном экситонной зоны, в область $\omega \gtrsim \omega_T$. Так как в этой области частот резко возрастает плотность поляритонных состояний и, как следует из экспериментальных данных⁵ и результатов расчета в области $\omega \approx \omega_T$ имеется сравнительно узкий ($\sim 3 \text{ см}^{-1}$) пик в плотности состояний, основной вклад в процессы антистоксового рассеяния поляритонов с частотой ω дают однофононные переходы

ды с участием коротковолновых акустических фононов с частотой $\Omega_a \approx \omega_T - \omega = \Delta$. Поэтому, увеличение коэффициента поглощения $\kappa(\omega) - \kappa_0(\omega)$ с хорошим приближением оказывается пропорциональным изменению чисел заполнения Δn фононов с частотой $\Omega_a \approx \Delta$. Таким образом, варьируя частоту генерации перестраиваемого лазера и величину временной задержки, можно определять изменение чисел заполнения Δn для неравновесных фононов различной частоты в разные моменты времени после действия импульса накачки; тем самым, реализуется фононный спектрометр с разрешением по частоте $\sim 3 \text{ см}^{-1}$ и временным разрешением $\sim 3 \text{ нс}$, которое определяется длительностью лазерного импульса.

Данные, представленные на рис. 1, получены в момент действия импульса накачки и 20 нс спустя; область возбуждения на поверхности кристалла имела форму длинной узкой полоски с поперечным размером $a \leq 20 \text{ мкм}$, расположенной вдоль b -оси. Прошедшее через кристаллическую пластинку излучение перестраиваемого лазера регистрировалось с помощью оптической системы с фиксированного участка в виде узкой полоски с поперечным размером $< 10 \text{ мкм}$, расположенной параллельно области возбуждения. Пространственное распределение величины $\kappa(\omega) - \kappa_0(\omega) \sim \Delta n$ измерялась путем сканирования пятна возбуждения по поверхности кристалла в направлении вдоль a -оси (т.е. изменяя расстояние l между генератором и детектором фононов) в различные моменты времени t_D . Из данных рис. 1 видно, что в начальный момент времени в области возбуждения практически имеются неравновесные фононы всех частот (в кристаллах антрацена $\Omega_0 \approx 30 \text{ см}^{-1}$ — предельная частота акустических фононов). После окончания импульса накачки наблюдается падение чисел заполнения фононов с частотой $\Omega_a = 20 - 25 \text{ см}^{-1}$. Их деградация сопровождается ростом чисел заполнения фононов меньшей энергии и распространением последних в холодные участки кристалла. Следует отметить, что, согласно измерениям, выполненным при временных задержках $t_D = 0 - 40 \text{ нс}$, фононы с частотой $\Omega_a = 20 - 25 \text{ см}^{-1}$ практически локализованы в области возбуждения. Такая локализация, по-видимому, связана с действием двух факторов: малого времени жизни относительно процессов распада и рассеяния и низкой групповой скорости фононов с частотой $\Omega_a \approx \Omega_0$.

На рис. 2 представлены данные по пространственному распределению неравновесных фононов с частотой $\Omega_a \approx 10 \text{ см}^{-1}$ в различные моменты времени после действия импульса накачки. Из этих данных следует, что в начальные моменты времени ($t_D = 0 - 20 \text{ нс}$) "расплывание" пакета фононов идет со скоростью $\approx 10^5 \text{ см/с}$, близкой к скорости звука в кристаллах антрацена ($u = 1 - 4 \cdot 10^5 \text{ см/с}$ в зависимости от поляризации и направления распространения^{6,7}), т.е. фононы распространяются в квазибаллистическом режиме на расстояние $L \approx 20 \text{ мкм}$. В более поздние моменты времени распространение фононов резко замедляется (см. вставку на рис. 2, Δl — ширина на полувысоте пространственного распределения фононов с частотой $\Omega_a \approx 10 \text{ см}^{-1}$), что свидетельствует об уменьшении длины пробега фононов при $t_D > 20 \text{ нс}$, как минимум, до значений $l_u < L \approx 20 \text{ мкм}$. Отметим, что при температуре кристалла $T_0 = 4,5 \text{ К}$ оценка длины свободного пробега фононов относительно процессов фон-фонного рассеяния с перебросом на тепловых (равновесных) фононах $l_u^0 \approx l_0 \exp\{\Omega_0/T\}$, $l_0 \approx 0,01 \text{ мкм}$ дает $l_u^0 \approx 140 \text{ мкм}$. Заметное уменьшение длины пробега $l_u \ll l_u^0$ может быть вызвано лишь ростом чисел заполнения фононов с энергией вблизи дебаевской ($\Omega_a \approx \Omega_0$) в объеме кристалла, занятом неравновесными фононами. Как следует из данных рис. 1, фононы с частотой $\Omega_a \approx \Omega_0$, которые возникают в кристалле за время действия импульса накачки, локализованы в области возбуждения. Поэтому рост чисел заполнения фононов с энергией вблизи дебаевской в участках кристалла, удаленных от области возбуждения, можно получить только за счет процессов слияния более низкочастотных неравновесных фононов. Возрастание чисел заполнения на высокочастотном хвосте фононного распределения, в результате чего изменяется режим распространения неравновесных фононов, естественно связать с процессом установления температуры $T > T_0$ в кристалле. Оценки показывают¹, что в условиях эксперимента температура может достигать значений $T \approx 9 \text{ К}$; при этом $l_u \approx 1 \text{ мкм}$.

Отметим, что наблюдаемый процесс переноса энергии из области возбуждения в холодные участки кристалла напоминает механизм нелокальной теплопроводности, предложенный в работе ⁸.

При однородном возбуждении всей поверхности кристалла реализуются условия плоской геометрии эксперимента, когда распространение фононов вдоль поверхности образца можно не учитывать. Как следует из данных, представленных на рис. 3, в начальные моменты времени после возбуждения ($t_D < 20$ нс) характер изменения чисел заполнения фононов разных частот существенно различается. Так, числа заполнения высокочастотных фононов с $\Omega_a \approx \approx 20 \text{ см}^{-1}$ резко уменьшаются, что определяется их быстрым спонтанным распадом. Для более низкочастотных фононов с $\Omega_a \approx \Omega_0/3 \approx 10 \text{ см}^{-1}$ наблюдается рост чисел заполнения, связанный с тем, что распад фононов данной частоты оказывается медленнее, чем их генерация за счет распада фононов больших энергий. Для фононов промежуточной частоты $\Omega_a \approx 15 \text{ см}^{-1}$ наблюдается стабилизация чисел заполнения, что свидетельствует о том, что генерация и спонтанный распад фононов данной частоты при $t_D \lesssim 20$ нс компенсируют друг друга. В дальнейшем ($t_D \gtrsim 40$ нс) числа заполнения фононов с $\Omega_a = 10 - 20 \text{ см}^{-1}$ плавно уменьшаются и по мере установления температуры $T > T_0$ стремятся к своим равновесным значениям. Отметим, что сложный характер кинетики может быть также связан с существенным различием времен спонтанного распада фононов квазипродольных и квазипоперечных ветвей ⁹.

В заключение авторы выражают благодарность Д.В.Казаковцеву и И.Б.Левинсону за полезные обсуждения.

Литература

1. Броуде В.Л., Видмонт Н.А., Казаковцев Д.В., Коршунов В.В., Левинсон И.Б., Максимов А.А., Тартаковский И.И., Яшников В.П. ЖЭТФ, 1978, 74, 314.
2. Казаковцев Д.В., Левинсон И.Б. Письма в ЖЭТФ, 1978, 27, 194.
3. Galanin M.D., Khan-Magometova Sh.D., Myasnikov E.N. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 1980, 57, 119.
4. Видмонт Н.А., Максимов А.А., Тартаковский И.И. Письма в ЖЭТФ, 1983, 37, 578.
5. Видмонт Н.А., Максимов А.А., Тартаковский И.И. ФТТ, 1982, 24, 1384.
6. Lutz U. Gitterdynamik von Antrazen, Diss., Technischen Hochschule, Zürich, 1970.
7. Казаковцев Д.В., Левинсон И.Б., Яшников В.П. ЖЭТФ, 1978, 74, 328.
8. Левинсон И.Б. ЖЭТФ, 1980, 79, 1394.
9. Такер Дж., Рэмpton В. Гиперзвук в физике твердого тела, М.: Мир, 1975,

Институт физики твердого тела
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
29 октября 1985 г.

¹¹ Оценку температуры кристалла в предположении однородного нагрева области с поперечным размером $\approx \Delta l$ можно получить из соотношения

$$\frac{\pi^2 (T^4 - T_0^4)}{10 (\hbar \bar{v})^3} \approx P \tau_P \frac{a}{d \Delta l},$$

где $\bar{v} \approx 2 \cdot 10^5$ см/с — среднее значение скорости звука в кристалле антрацена.