

РЕЛАКСАЦИЯ ВЫСОКОЧАСТОТНЫХ АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ

Д.В.Казаковцев, А.А.Максимов, Д.А.Пронин,
И.И.Тартаковский

Экспериментально изучены процессы энергетической релаксации высокочастотных акустических фононов в тонких кристаллах антрацена. Сравнение с результатами модельного расчета позволило оценить параметры распределения генерируемых в процессе релаксации электронного возбуждения акустических фононов, а также их время жизни относительно ангармонических процессов.

Одной из наиболее интересных и важных проблем в физике фононов является релаксация системы неравновесных фононов в ходе установления в кристалле равновесной температуры. Ранние стадии такой релаксации при слабом возбуждении фононной системы, когда доминирует спонтанный распад фононов, наблюдались в экспериментах^{1, 2}. Для описания процессов релаксации при высоких уровнях возбуждения, когда изменение температуры, уставившейся в кристалле, может достигать величины, сравнимой с начальной температурой $\Delta T = T_k - T_0 \cong T_0$, оказывается необходимым учитывать, наряду с процессами распада высокочастотных акустических фононов, и процессы их слияния³. В настоящей работе измерены временные зависимости чисел заполнения высокочастотных неравновесных фононов в кристалле после действия интенсивного лазерного импульса и проведено их количественное сопоставление с результатами модельных расчетов, проведенных в приближении "квазинепрерывного" фононного спектра. Мы использовали предложенную в⁴ оптическую методику детектирования неравновесных акустических фононов, обладающую селективностью по частоте и высоким времененным разрешением. Это позволило проследить за изменением чисел заполнения фононов различных частот, начиная с момента времени непосредственно после окончания лазерного импульса. Чтобы исключить влияние распространения фононов на процесс их энергетической релаксации, мы, как и в¹, применяли однородное возбуждение поверхности кристалла широким лазерным пучком.

Эксперимент заключался в следующем. Фронтальная поверхность (развитая $a\bar{b}$ -плоскость) монокристаллов антрацена толщиной $d = 2 \div 5$ мкм, помещенных в оптический термостат в парах гелия при температуре $T_0 = 4,3$ К, однородно возбуждалась импульсами азотного ТЕА-лазера ($\omega = 28670 \text{ см}^{-1}$, длительность импульса $\tau_p \approx 0,5$ нс, частота повторений 100 Гц, максимальная интенсивность накачки на образце 100 кВт/см²). Этим же лазером возбуждался перестраиваемый лазер на красителе с частотой генерации ω вблизи дна нижайшей экситонной b -зоны $\omega_T = 25096 \text{ см}^{-1}$ (полуширина полосы генерации $\Delta\omega \approx 1 \text{ см}^{-1}$, длительность импульса $\tau_L \approx 0,3$ нс, поляризация излучения $E \parallel b$ -оси). Как показано в работах^{4, 5}, в кристаллах антрацена изменение коэффициента поглощения $\Delta k = k(\omega) - k_0(\omega)$ на частоте $\omega \leq \omega_T$ пропорционально изменению $\Delta n(\Omega)$ чисел заполнения фононов с частотой $\Omega = \omega_T - \omega$. Таким образом, измерения интенсивности излучения перестраиваемого лазера, прошедшего через кристаллическую пластинку в различные моменты времени t_D (задержка импульсов перестраиваемого лазера относительно импульсов N_2 -лазера достигалась с помощью оптической линии задержки, $t_D = 2 \div 10$ нс) при разных значениях частоты генерации ω позволяют получить информацию о релаксации фононов с различной энергией.

Результаты измерений для нескольких значений частоты Ω представлены на рис. 1. Видно, что кинетика изменения чисел заполнения фононов существенным образом зависит от их частоты. Так, для фононов с частотой $\Omega \approx 32 \text{ см}^{-1}$ (предельная частота акустических фононов в кристаллах антрацена составляет $\Omega_0 \approx 45 \text{ см}^{-1}$) наблюдается падение чисел заполнения, у фононов частоты $\Omega \approx 25 \text{ см}^{-1}$ за время $t_D \lesssim 10$ нс они практически не изменяются, а у фононов

с $\Omega \approx 14 \text{ см}^{-1}$, напротив, возрастают. Видно также, что в начальный момент времени энергетическое распределение акустических фононов, которые рождаются в кристалле в результате быстрых безызлучательных процессов при релаксации электронных возбуждений, существенно отличается от равновесного.

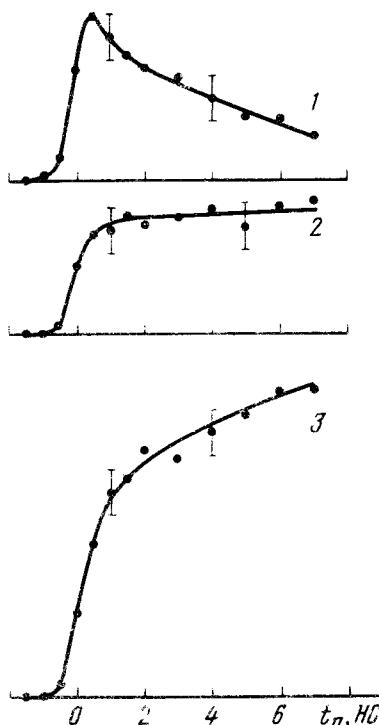


Рис. 1. Временная зависимость изменения коэффициента поглощения $\Delta k(\omega)$ при различных значениях $\Omega = \omega_T - \omega$: 1 – 32 см^{-1} , 2 – 25 см^{-1} , 3 – 14 см^{-1} . Возбуждение импульсом лазера в момент $t_D = 0$

Приведенные результаты позволяют заключить, что импульсная лазерная накачка приводит к генерации акустических фононов в широком диапазоне частот, причем в начальный момент времени основная энергия возбуждения сосредоточена в высокочастотной области фононного спектра. В процессе релаксации числа заполнения высокочастотных фононов $\Omega > 25 \text{ см}^{-1}$ падают, а числа заполнения фононов меньших частот $\Omega < 25 \text{ см}^{-1}$ возрастают. Заметим, что общая энергия фононного распределения сохраняется, так как в эксперименте условия адиабатичности выполняются с хорошей точностью вплоть до времени $t_D \approx 1 \text{ мкс}$.

Для теоретического описания релаксации системы неравновесных акустических фононов в условиях, отвечающих экспериментальной ситуации, были проведены численные расчеты кинетики изменения чисел заполнения фононов различных частот. Для этого кинетическое уравнение для чисел заполнения фононов различных частот, записанное в модели одной продольной и двух вырожденных поперечных изотропных бездисперсионных ветвей в соответствии с⁶, численно решалось на эквидистантной сетке: диапазон частот $0 \div \Omega_0$ разбивался на N уровней, $N = 32$. Матричные элементы трехфононных ангармонических процессов считались пропорциональными произведению модулей волновых векторов фононов:

$$|f(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3)|^2 \propto |\mathbf{k}_1| \cdot |\mathbf{k}_2| \cdot |\mathbf{k}_3|. \quad (1)$$

Учитывались все трехфононные процессы типа $LA \rightarrow TA + TA$ и $LA \rightarrow LA + TA$, удовлетворяющие законам сохранения энергии и квазимпульса. Модель проверялась на соответствие времени жизни LA -фононов относительно процессов распада зависимости $\tau_{decay}(\Omega) \propto (\Omega/\Omega_0)^{-5}$ при малых возмущениях. Одним из изменяемых параметров расчета был коэффициент в соотношении (1), что удобнее представлять как изменение времени жизни дебаевских фононов

$\tau_0 = \tau_{decay}(\Omega_0)$. Сравнивая с экспериментом расчеты при различных τ_0 , мы получили, в основном по поведению фононов $\Omega \approx 32 \text{ см}^{-1}$, что наилучшее согласие имеется при $\tau_0 \approx 1 \text{ нс}$.

Вторым подгоночным параметром был спектр акустических фононов, рождающихся из оптических, т.е., начальное распределение акустических фононов по энергии. Изменялось положение максимума этого спектра Ω_{max} и его полуширина $\Delta\Omega$. При этом полная энергия фононной системы принималась постоянной и соответствовала конечной температуре $T_K = 11,5 \text{ К}$, что отвечало условиям эксперимента. Несколько рассчитанных кривых, приведенных на рис. 2, показывают, что характер релаксации существенно зависит от параметров Ω_{max} и $\Delta\Omega$ начального распределения. Наилучшее согласие с экспериментом достигается при $\Omega_{max} = 0,6\Omega_0$ и $\Delta\Omega \leq \Omega_0/4$. Положение $\Omega_{max} \approx 28 \text{ см}^{-1}$ согласуется с частотой $\Omega_{opt}^{min} = 49 \text{ см}^{-1}$ нижайшего оптического фонона в кристалле антрацена и с результатами работы ⁷, где показано, что в результате распада оптических фононов рождаются преимущественно акустические фононы с половинной частотой.

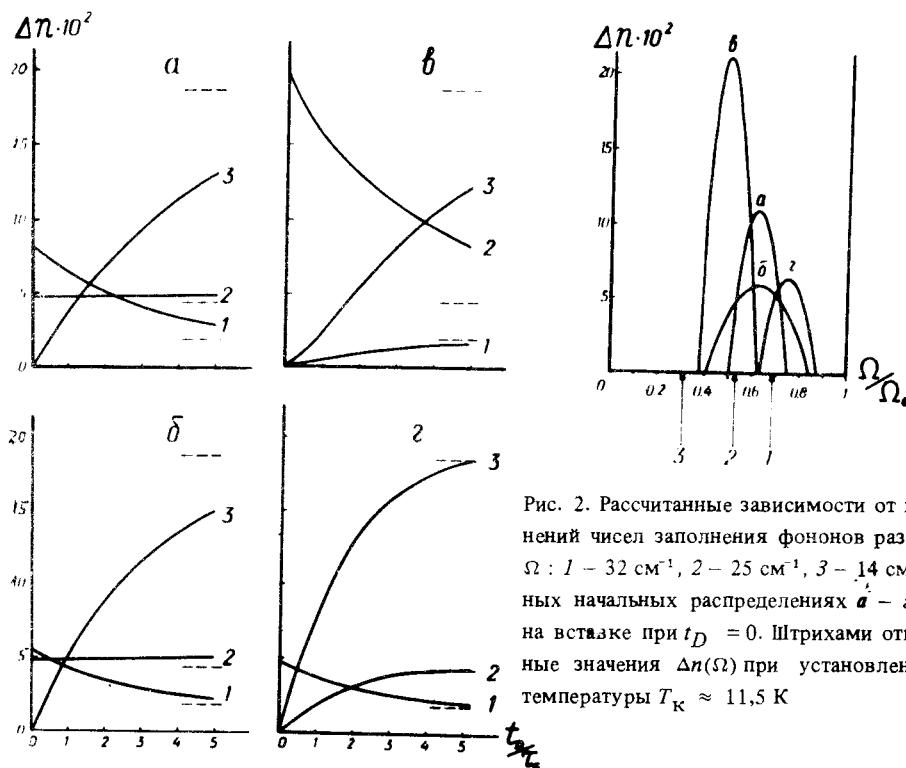


Рис. 2. Рассчитанные зависимости от времени изменений чисел заполнения фононов различных частот Ω : 1 – 32 см^{-1} , 2 – 25 см^{-1} , 3 – 14 см^{-1} при различных начальных распределениях $a - \delta$, показанных на вставке при $t_D = 0$. Штрихами отмечены конечные значения $\Delta n(\Omega)$ при установлении конечной температуры $T_K \approx 11,5 \text{ К}$

В отличие от модели "поколений" ⁸ с набором уровней $\Omega_0, \Omega_0/2, \Omega_0/4$, и т.д., система эквидистантных по частоте фононных состояний лучше соответствует непрерывному фононному спектру. Она позволяет проследить влияние фононов с промежуточными частотами $\Omega_0/2 < \Omega < \Omega_0$ и, тем самым, провести количественное сопоставление расчетов с экспериментом, тогда как в модели поколений из-за ее грубой дискретности по частоте экспериментальные кинетические зависимости представлены, по существу, в диапазоне одного поколения фононов. Наибольшие отличия от результатов модели поколений обнаружены в характере релаксации фононов низких частот. Это связано с тем, что в модели с "квазинепрерывным" фононным спектром эти фононы возникают в первых же распадах, а в модели поколений – только после нескольких последовательных распадов.

В заключение авторы выражают благодарность И.Б.Левинсону за полезные замечания при обсуждении, а также В.В.Коршунову и В.В.Моторину за предоставленную возможность работы с азотным ТЕА-лазером.

Литература

1. Happel H., Renk K.F., Ayant Y., Buisson R. Phonon Scattering in Condensed Matter V., Proc. 5-th Int. Conf., Urbana, Illinois, June 1986. Ed. by A.C. Anderson and J.P. Wolfe, Berlin: Springer-Verlag, 1986, p. 347; *Europhys. Lett.*, 1987, **3**, 1001.
2. Baumgartner R., Engelhardt M., Renk K.F. *Phys. Rev. Lett.*, 1981, **47**, 1403.
3. Казаковцев Д.В., Левинсон И.Б., ЖЭТФ, 1985, **88**, 2228; Kazakovtsev D.V., Levinson Y.B. In Physics of Phonons. Ed. T. Paszkiewicz, Berlin: Springer-Verlag, 1987, 276 (Lecture Notes in Physics, 285).
4. Максимов А.А., Тартаковский И.И. Письма в ЖТФ, 1986, **12**, 112.
5. Максимов А.А., Тартаковский И.И. Письма в ЖЭТФ, 1985, **42**, 458.
6. Рейстен Дж. Физика фононов, М.: Мир, 1975, Гл. 5, § 7.
7. Rhee B.K., Bron W.E. *Phys. Rev. B.*, 1986, **34**, 7107.
8. Schaich W.L. *Sol. State. Comm.*, 1984, **49**, 55.

Институт физики твердого тела
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
2 декабря 1988 г.