

## РАСПРОСТРАНЕНИЕ НЕРАВНОВЕСНЫХ ФОНОНОВ В КРИСТАЛЛАХ АНТРАЦЕНА ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

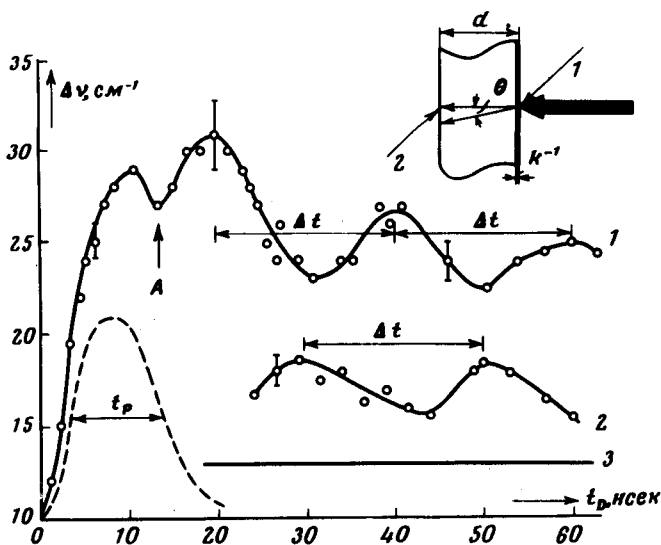
В.Л.Броуде, Н.А.Видмонт, В.В.Коршунов,  
И.Б.Левинсон, А.А.Максимов, И.И.Тартаковский

Возбуждая импульсом света одну из поверхностей тонкой кристаллической пластинки антрацена (толщина  $d = 12 \text{ мкм}$ ) при температуре  $T_0 \approx 5 \text{ К}$ , мы обнаружили временные осцилляции неравновесных свойств, которые связаны с последовательными отражениями фононов от поверхностей пластинки.

Фронтальная поверхность пластинки (развита  $[001]$ ) освещалась импульсным азотным лазером:  $\lambda = 3371 \text{ \AA}$ , длительность импульса на полувывоте  $t_p \approx 10 \text{ нсек}$ , частота повторений  $100 \text{ Гц}$ , интенсивность  $I = 10 \div 100 \text{ кВт/см}^2$ . Такое излучение поглощается на глубине  $k^{-1} = 0,5 \text{ мкм}$ . Размер пятна освещения  $\sim 0,4 \text{ мм}$  много больше толщины пластинки. Неравновесность детектировалась по спектру люминесценции, возбужденной ослабленным зондирующим импульсом второго лазера, задержанным относительно импульса накачки, и направленным на фронтальную или на тыловую поверхности пластинки. В спектре люминесценции регистрировалась ширина полосы  $\Delta\nu$  вибронного перехода  $23692 \text{ см}^{-1}$  и ее зависимость от времени задержки  $t_D \leq 100 \text{ нсек}$ . Измерения велись в стробоскопическом режиме с помощью ФЭУ-36 и стробоскопического осциллографа С-7-5, а также с помощью четырехкаскадного ЭОП<sup>а</sup> с пилообразным напряжением развертки, позволяющего иметь временное разрешение до  $50 \text{ нсек}$  [1].

Результаты измерений заключаются в следующем (рисунок). 1) Как на фронтальной, так и на тыловой поверхностях пластинки, ширина  $\Delta\nu$  осциллирует со временем  $t$ . Наиболее четко осцилляции видны после окончания импульса накачки, т.е. при  $t_D > t_p$ . Их период  $\Delta t \approx 20 \text{ нсек}$ .

2) Средние уровни, вблизи которых происходят осцилляции на фронтальной и тыловой поверхностях, зависят от интенсивности накачки и температуры. При низких температурах  $T_0$  и малых накачках ( $I \leq 10 \text{ квт/см}^2$ ) эти уровни практически совпадают на обеих поверхностях. С ростом  $I$  или  $T_0$  средние уровни раздвигаются, — уровень на фронтальной поверхности становится выше уровня на тыловой. Одновременно с этим падает относительная амплитуда осцилляции. При максимальной накачке ( $I \sim 100 \text{ квт/см}^2$ ) или при высокой температуре ( $T_0 \approx 30 \text{ К}$ ) на тыловой поверхности отличие  $\Delta\nu$  от равновесного очень невелико. 3) При  $t_D < t_p$  на фронтальной поверхности наблюдается процесс установления осцилляций.



Зависимость полуширины  $\Delta\nu$  вибронной полосы  $2369 \text{ см}^{-1}$  от времени задержки  $t_D$  при накачке  $30 \text{ квт/см}^2$ ,  $T_0 = 5 \text{ К}$ . Зондирующий импульс направлен на фронтальную (1) и на тыловую (2) поверхности. Стрелкой  $A$  на кривой 1 указано время прихода фононов к фронту после отражения от тыловой поверхности. 3 — средний уровень осцилляций на обеих поверхностях при накачке  $9 \text{ квт/см}^2$ . Пунктир — форма импульса накачки в относительных единицах

Предлагаемая интерпретация эксперимента основывается на следующем. С одной стороны, изменения в полуширине  $\Delta\nu$  так или иначе связаны с изменением чисел заполнения фононов. С другой стороны, скорость распространения возмущения, оцененная из периода осцилляций  $2d/\Delta t = 1,2 \cdot 10^5 \text{ см/сек}$ , близка к скорости звука  $s = (1 \pm 4) \cdot 10^5 \text{ см/сек}$  [2]. Поэтому естественно думать, что передача неравновесности осуществляется фононами. При этом с такой скоростью она может идти или в режиме баллистического распространения [3], или в гидродинамическом режиме, поскольку теплопроводность существенно более медленна и не может приводить к такого рода осцилляциям.

Баллистическое распространение в тонкой пластинке отличается от обычного необходимостью учета фононов, распространяющихся под

различными углами  $\theta$  к нормали, и имеющих времена пробега  $d/s \cos \theta$ . Однако, как показали прямые численные расчеты, разброс времен пробега не приводит к размытию временных осцилляций числа фононов, возбужденных на фронтальной поверхности вплоть до длительности возбуждающего импульса  $t_p \leq 2d/s$ . Поэтому отличить баллистический режим от гидродинамического можно только по оценкам длин пробега.

При используемых интенсивностях накачки в результате релаксации электронного возбуждения до нижней экситонной зоны, а также в связи с интенсивным оже-процессом при высокой концентрации экситонов [4], почти вся энергия накачки превращается в коротковолновые фононы акустических ветвей, имеющие энергию  $\omega_0 \approx 30 \text{ см}^{-1}$  [2]. По-видимому, время такого размена  $\lesssim 10^{-10} \text{ сек}$ . Релаксация происходит в пределах слоя поглощения  $k^{-1} \approx 0,5 \text{ мкм}$ , так как длина диффузионного смещения экситонов  $\sim 0,1 \text{ мкм}$ , а смещения дебаевских фононов за время релаксации также не превышает  $0,1 \text{ мкм}$ .

Возникающие на этом этапе числа заполнения фононов  $n_0 \approx lk\tau_0 a_0^3 / 3\hbar\omega_0$ , здесь  $a_0^3 = 0,5 \cdot 10^{-21} \text{ см}^3$  — объем элементарной ячейки и  $\tau_0$  — время жизни фонона  $\omega_0$ . Мы будем считать длину свободного пробега такого фонона  $l_0 = s\tau_0 = 0,1 \text{ мкм} \approx 100 a_0$ . Тогда  $n_0 = 1$  лишь при  $l = 4200 \text{ кмт/см}^2$ . Для использованных накачек  $n_0 \ll 1$ , поэтому доминирующим процессом будет спонтанный распад фононов  $\omega_0$ , грубо говоря, на половинные фононы  $\omega_0/2$ , затем на  $\omega_0/4$ , и т.д. В процессе такой деградации фононы будут распространяться от фронтальной поверхности  $z=0$  вглубь кристалла. Так как с изменением частоты длина свободного пробега растет по закону  $l(\omega) = l_0 (\omega/\omega_0)^{-5}$ , то фононы частоты  $\omega$  достигнут глубины  $z = l(\omega)$ . Будем считать распространение стационарным. Тогда поток энергии во всех поколениях фононов должен равняться световому:  $n(\omega)(3\hbar\omega_0/a_0^3)(\omega/\omega_0)^4 s = I$ . Отсюда видно, что при удалении от фронтальной поверхности числа заполнения фононов возрастают:

$$n(z) = (I a_0^3 / 3\hbar\omega_0 s) (z/l_0)^{4/5}.$$

Пока  $n(z) < 1$ , фононы распространяются в баллистическом режиме; при тех  $z = \tilde{z}$ , где  $n(z) = 1$ , устанавливается гидродинамический режим. Уже при минимальной накачке  $l = 10 \text{ кмт/см}^2$  имеем:  $\tilde{z} \approx 20 \text{ мкм} \sim d$ . Это значит, что при всех использованных накачках, кроме самых малых, прежде чем фононы первый раз достигнут тыловой поверхности, они перейдут в гидродинамический режим распространения. Дальнейшее движение фононов и все последовательные отражения будут происходить в этом режиме. Время установления гидродинамического режима есть  $\tilde{z}/s \approx 10 \text{ нсек} < 2t_p$ ; поэтому стационарное рассмотрение процесса установления оправдано. Само гидродинамическое распространение уже не является стационарным, так как  $t_D \gtrsim 2t_p$ . Заметим, что от обычного второго звука оно отличается сильной степенью возбуждения фоновой системы.

Фононы подвержены также процессам переброса, переводящим распространение в диффузионный режим. Средняя частота фононов, для которых устанавливается гидродинамический режим,  $\tilde{\omega} = \omega_0 (I a_0^3 / 3\hbar\omega_0 s)^{1/4} \approx 0,3\omega_0$  при  $l = 10 \text{ кмт/см}^2$ . Для таких фононов длина свободного пробега относительно рассеяния на равновесных фононах с перебросом  $l_U = l_0 e^{\omega_0/T_0}$ . При  $T_0 = 5 \text{ К}$  это дает  $l_U = 60 \text{ мкм}$ , что заметно больше

$\approx$ . Однако уже при  $T_0 = 10$  К имеем  $l_U = 2$  мкм. Таким образом, при повышении  $T_0$  следует ожидать перехода в диффузионный режим, при котором замедляется поступление энергии на тыловую поверхность и исчезают осцилляции. Именно это и наблюдается на опыте. Сделанная оценка  $l_U$  не учитывает наличия неравновесных фононов с частотой  $\omega_0$ . Оценить их число очень трудно, но надо думать, что в этой области частот гидродинамический режим устанавливается медленнее, и поэтому число этих фононов меньше, чем в равновесном распределении с температурой, соответствующей  $\tilde{\omega}$ . Однако несомненно, что число этих фононов увеличивается с ростом  $\tilde{\omega}$ , т.е. с ростом  $l$ . Вкладом этих фононов в процессы переброса можно объяснить переход в диффузионный режим, наблюдавшийся при больших накачках.

Следует иметь в виду, что принятое значение  $l_0$ , хотя и правдоподобно, но произвольно, и что все использованные формулы сугубо порядковые. Поэтому численные оценки претендуют только на то, чтобы показать разумность принятой интерпретации. В частности, может быть, что гидродинамический режим не успевает установиться до первого отражения, и что первое расстояние  $d$  фононы проходят баллистически, т.е. несколько быстрее. Тогда можно понять почему время первого возвращения отраженного импульса (стрелка на рисунке) меньше периода дальнейших осцилляций  $\Delta t$ .

Следует подчеркнуть, что плоская геометрия способствует возрастанию чисел заполнения фононов в процессе их деления, ибо в этой геометрии плотность энергии при удалении от источника остается постоянной. Это, в свою очередь, благоприятствует установлению гидродинамического режима.

В заключение заметим, что ударных акустических волн при используемых мощностях накачки быть не может, ибо нелинейные акустические эффекты возникают при потоках  $l$  порядка  $(\hbar\omega_0/a^3)(M/m)^{1/2}s \approx 10^5$  кет/см<sup>2</sup>; здесь входит параметр адиабатичности, т.е. отношение массы электрона к массе ядра. Однако ударные волны в фононном газе не исключены.

Институт физики твердого тела  
Академии наук СССР

Институт теоретической физики  
им. Л.Д.Ландау  
Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
17 февраля 1977 г.

### Литература

- [1] В.Л.Броуде, В.В.Коршунов, И.И.Тартаковский, В.Б.Тимофеев. ФТТ, 17, 1753, 1975.
- [2] U.Lutz. Gitterdynamik von Anthrazen. Diss. Zürich, 1970.
- [3] V.A.Benderskii, V.Kh.Brikenstein, V.L.Broude, A.G.Lavrushko. Solid. St. Comm., 15, 1235, 1974.
- [4] O.S.Avanesjan et al. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 29, 165, 1974.