

РАМАНОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ГЕРМАНИИ ПРИ ВЫСОКОМ ДАВЛЕНИИ: ИЗОТОПИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ

Ю.А. Тимофеев, Б.В. Виноградов, С.М. Стишов

Институт физики высоких давлений РАН
142092 Троицк, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 30 декабря 1998 г.

Исследовалось рамановское рассеяние света первого порядка в изотопически обогащенных образцах германия ^{70}Ge , ^{72}Ge , ^{74}Ge и германии природного изотопного состава при высоких давлениях. Как оказалось, изотопическая зависимость частоты $LTO(\Gamma)$ моды в изотопически чистых образцах германия может быть описана в рамках гармонического приближения ($\nu \propto m^{-1/2}$). В то же время частота $LTO(\Gamma)$ моды германия природного изотопического состава, по-видимому, содержит вклад, обусловленный эффектами изотопического беспорядка.

PACS: 62.50.+p, 63.20.-e, 78.30.Hv

Интерес к изотопическим эффектам в германии в значительной степени стимулировался доступностью высокосовершенных изотопически чистых монокристаллических образцов. Одной из первых работ в этой области оказалась работа, в которой с помощью трехкристального спектрометра измерены параметры элементарной ячейки ^{74}Ge и германия природного изотопного состава при комнатной и "азотной" температурах [1]. Относительная разница объемов оказалась равной величине порядка 10^{-5} , что соответствует теоретическим ожиданиям для квантовых эффектов подобного рода в германии. Действительно, как нетрудно показать, относительную разницу объемов двух изотопов при $T = 0$ можно записать в виде (см., например, [2])

$$\Delta V/V \cong \Delta \Theta_D / E_c, \quad (1)$$

где $\Delta \Theta_D$ – разность дебаевских температур, E_c – энергия связи. Принимая $\Theta_D = 374 \text{ K}$ [3] для германия природного изотопного состава и учитывая, что $\Theta_D \propto m^{1/2}$, получим $\Theta_D = 370$ для ^{74}Ge . Далее, подставляя в (1) $E_c = 3.87 \text{ эВ/атом}$ [3], получим $\Delta V/V \cong 9 \cdot 10^{-5}$, что хорошо согласуется с экспериментальными значениями. Подобные же оценки для относительной разницы объемов природного германия и ^{74}Ge дают значение $\Delta V/V \cong 2 \cdot 10^{-4}$ при $T = 0 \text{ K}$. Соответствующее экспериментальное значение для $T = 54 \text{ K}$ равно $7.5 \cdot 10^{-5}$ [4]. Недавно более точные оценки квантовых эффектов в германии получены методом численного моделирования в широком диапазоне температур в работе [5]. Так или иначе, квантовые эффекты в германии невелики и их наблюдение представляет собой гораздо более сложную задачу по сравнению со случаем алмаза. Соответствующие оценки, сделанные в рамках квазигармонического приближения, показывают, что квантовые вклады в фоновые частоты изотопически чистых образцов слишком малы, чтобы быть наблюдаемыми. При этом изотопические эффекты специфической природы, а именно эффекты изотопического беспорядка, по-видимому, столь же ярко выражены в германии [6], как и в алмазе [7].

В настоящей работе представлены результаты исследований рамановского рассеяния света первого порядка в германии различного изотопного состава при давлении

до 9 ГПа и комнатной температуре. Полученные данные свидетельствуют о положительном сдвиге частоты $LTO(\Gamma)$ моды в изотопически неупорядоченном природном германии относительно соответствующей частоты виртуального кристалла.

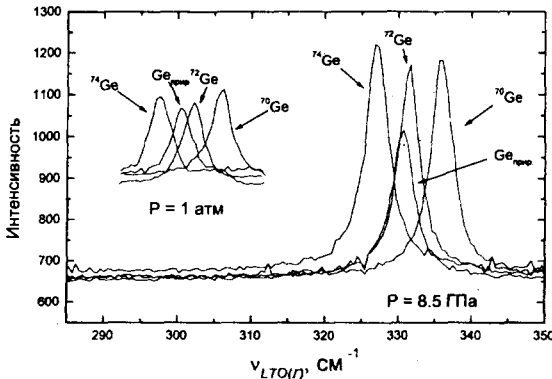


Рис.1. Примеры рамановских спектров первого порядка в изотопически различных образцах германия

Измерение рамановских спектров проводилось с помощью спектрометра ДФС-24, снабженного системой голографических "notch" фильтров, и CCD детектора для регистрации спектров. Рамановские спектры возбуждались линией излучения $\lambda = 479.886$ нм аргонового лазера. Калибровка детектора проводилась по спектрам излучения неоновой лампы. Давление создавалось с помощью алмазных наковален. Средой, передающей давление, служил сжатый гелий. В алмазную ячейку одновременно помещались четыре изотопически различных образца германия и два кусочка рубина, размером 25–30 мкм каждый. Монокристаллические образцы германия выкальчивались из слитков соответствующего изотопного состава. Линия люминесценции рубина использовалась для измерения давления. Температура алмазной ячейки поддерживалась равной 20°C с точностью $\pm 0.02^\circ\text{C}$. Спектральное положение $LTO(\Gamma)$ линии рамановского рассеяния определялось с точностью порядка 0.1 см^{-1} . Случайная погрешность измерения давления не превышала величины 0.01 ГПа. В таблице приведен изотопический состав образцов. Примеры измеренных спектров даны на рис.1.

Изотопный состав образцов германия

Изотоп	70	72	73	74	76	
Масса, углерод.ед.	69.924	71.922	72.923	73.921	75.921	
Образец	Содержание изотопов, %					Средняя атомная масса
70	96.88	1.21	0.32	1.33	0.26	70.03 ± 0.1
72	0.51	97.34	0.56	1.33	0.26	71.95 ± 0.1
74	0.23	0.32	0.14	99.19	0.12	73.91 ± 0.1
Природн.	21.42	26.78	8.05	35.7	8.05	72.61 ± 0.2

Рис.2 демонстрирует зависимость частоты $LTO(\Gamma)$ моды изотопически различных образцов германия от давления. Расчеты с использованием уравнения состояния германия, полученного в работе [8], показывают, что постоянная Грюнрайзена, характеризующая объемную зависимость частоты $LTO(\Gamma)$ моды, $\gamma \cong 1$ ($\gamma = -(\partial \ln \nu / \partial \ln V)_T$) и не зависит от изотопического состава и давления в пределах

точности экспериментов (см. по этому поводу также [9, 10]). На рис.3 изображена зависимость приведенных частот $LTO(\Gamma)$ моды $\nu^* = \nu m^{1/2}$ изотопически различных образцов германия от давления. Как видно из рисунка, зависимость $\nu^*(P)$ для изотопически «чистых» образцов германия (см. таблицу) может быть описана единой кривой. В то же самое время, зависимость $\nu(P)$ для природного образца германия, являющего собой пример системы с изотопическим беспорядком, не может быть приведена аналогичным преобразованием к функциональному виду, характеризующему чистые изотопы. Таким образом, в случае природного германия, по-видимому, имеет место перенормировка энергии $LTO(\Gamma)$ фононов как результат изотопического беспорядка [7,8,11]. Из рис.3 следует, что соответствующий «перенормировочный» вклад варьирует от 0.3 до 0.6 см^{-1} в зависимости от давления. В недавней работе [12] «перенормировочный» энергетический сдвиг $LTO(\Gamma)$ фонона в германии природного изотопного состава оценивается величиной 0.34 см^{-1} при нормальном давлении и $T \cong 10 \text{ К}$, что, вообще говоря, согласуется с настоящими результатами.

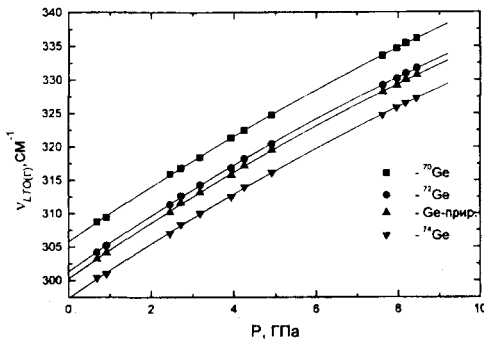


Рис.2. Зависимость частоты $LTO(\Gamma)$ моды в изотопически различных образцах германия от давления

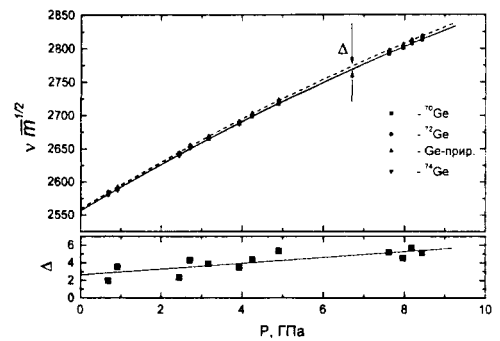


Рис.3. Зависимость приведенной частоты $\nu m^{1/2}$ $LTO(\Gamma)$ моды в изотопически различных образцах германия от давления

В заключение обратим внимание на то, что рис.3 вполне убедительно демонстрирует квазигармонический характер $LTO(\Gamma)$ колебаний в изотопически чистом германии. Очевидно, что в этом случае можно пользоваться простым гармоническим выражением для частоты колебаний $\nu = (k/m^*)^{1/2}$, имея в виду, что силовая постоянная k зависит от плотности. Поскольку нет никаких оснований считать, что силовая постоянная зависит от изотопического беспорядка, то проблема вычисления соответствующей частоты в изотопически неупорядоченном кристалле сводится к «правильному» вычислению приведенной массы m^* . Тогда результаты, представленные на рис.3, возможно, показывают, что приведенная масса зависит от плотности. Однако точность настоящих экспериментальных данных недостаточно велика для более определенных утверждений.

1. R.C.Buschert, A.F.Merlini, S. Face et al., Phys. Rev. **B38**, 5219 (1988).
2. M.Muinov, H.Kanda, and S.M.Stishov, Phys. Rev. **B50**, 13860 (1994).
3. C.Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 4-th Ed. John Wiley and Sons, Inc. New York, London, Sydney, Toronto.
4. A.Kazimirov, J.Zegenhagen, and M.Cardona, Science **282**, 930 (1998).
5. J.C.Noya, C.P.Herrero, and R.Ramirez, Phys. Rev. **B56**, 237 (1997).

6. H.D.Fuchs, C.H.Grein, C.Thomsen et al., Phys. Rev. **B43**, 4835 (1991).
7. K.C.Hass, M.A.Tamor, T.R.Anthony, and W.F.Banholzer, Phys. Rev. **B45**, 7171 (1992).
8. В.А.Гончарова, Е.В.Чернышова, Ф.Ф.Воронов, ФТТ **25**, 3680 (1983).
9. D.Olego and M.Cardona, Phys. Rev. **B25**, 1151 (1982).
10. И.В.Александров, А.Ф.Гончаров, А.Н.Зисман, С.М.Стишов, ЖЭТФ **93**, 680 (1987).
11. D.T.Wang, A.Göbel, J.Zegenhagen, and M.Cardona, Phys. Rev. **B56**, 13167 (1997).
12. J.M.Zhang, M.Giehler, A.Göbel et al., Phys. Rev. **B57**, 1348 (1998).