

10,03

Влияние дисперсии и затухания состояний тепловых фононов на поглощение продольного ультразвука в кристаллах Ge

© И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев, С.М. Бахарев

Институт физики металлов УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

E-mail: kuleev@imp.uran.ru

(Поступила в Редакцию 7 декабря 2010 г.)

Предложен метод аппроксимации фононного спектра кубических кристаллов, полученного из данных по неупругому рассеянию нейтронов для симметричных направлений, на всю зону Бриллюэна в виде, позволяющем исследовать релаксационные характеристики фононных систем. Исследовано влияние дисперсии и затухания состояний тепловых фононов на поглощение продольного ультразвука в ангармонических процессах рассеяния с участием трех продольных фононов для кристаллов Ge. Показано, что учет дисперсии приводит к уменьшению анизотропии поглощения ультразвука в механизме релаксации LLL и позволяет согласовать результаты расчета коэффициентов поглощения ультразвука с экспериментальными данными в низкотемпературной области. Из экспериментальных данных по поглощению ультразвука определены температурная зависимость и анизотропия скорости релаксации тепловых продольных фононов в кристаллах Ge. Проведенный анализ позволил уточнить значения релаксационных параметров, полученных при интерпретации данных по теплопроводности кристаллов Ge с различным изотопическим составом в модели изотропной среды.

Работа выполнена по плану РАН в рамках темы № 01.2.006.13395 при поддержке программы ОФН РАН (грант № 09-Т-2-1005).

1. Введение

В работе [1] исследовано влияние затухания фононных состояний на релаксацию продольных фононов и поглощение ультразвука в кубических кристаллах в ангармонических процессах рассеяния с участием трех продольных фононов (механизм LLL), а также в процессах рассеяния продольного фонона двумя поперечными тепловыми фононами (механизм LTT). Ранее эти механизмы релаксации привлекались для объяснения температурных зависимостей поглощения ультразвука в кубических кристаллах [2–6]. Однако интерпретация экспериментальных данных [2–6] проводилась фактически на основе модели изотропной среды [7–13]. Использование таких параметров, как эффективная константа ангармонизма, средняя скорость упругих волн, а также приближения чистых мод не позволяло корректно учесть влияние кубической анизотропии на релаксационные процессы [7–13]. В отличие от ранее опубликованных работ [2–13] в [1] точно учтено влияние кубической анизотропии гармонической и ангармонической энергий фононов на релаксационные процессы. Показано, что доминирующим механизмом релаксации продольного ультразвука на тепловых фононах в кристаллах Ge является механизм LLL. Проанализированы особенности рассеяния продольных фононов и изменение анизотропии поглощения ультразвука в зависимости от величины параметра затухания тепловых фононов $\gamma_L = (\omega_q^L \tau_L(T))^{-1}$ ($\tau_L(T)$ — полное время релаксации тепловых продольных (L) фононов, T — температура, ω_q^L — частота

продольного фонона с волновым вектором \mathbf{q}). Показано, что существенное уменьшение анизотропии поглощения ультразвука в механизме релаксации LLL с увеличением затухания состояний тепловых фононов обусловлено изменением характера рассеяния фононов. При малом затухании в механизме LLL доминирует малоугловое рассеяние фононов, и анизотропия поглощения обусловлена ангармонической энергией. Во всех исследованных кристаллах при $\gamma_L \ll 1$ отношения коэффициентов поглощения ультразвука для симметричных направлений практически совпадают с отношениями квадратов матричных элементов для рассеяния коллинеарных фононов. С увеличением параметра γ_L расширяется область углов, на которые могут рассеиваться фононы в процессах релаксации LLL, и анизотропия поглощения существенно уменьшается за счет усреднения квадрата матричного элемента, определяющего вероятность трехфононных процессов рассеяния [1].

Однако пренебрежение дисперсией тепловых фононов в [1] не позволило согласовать количественно результаты расчетов коэффициентов поглощения с экспериментальными данными, а также проанализировать температурные зависимости поглощения. Учет дисперсии тепловых фононов в опубликованных до настоящего времени работах по поглощению продольного ультразвука проводился в приближении изотропной среды для модели колебаний линейной цепочки [8,9,13]

$$\omega = \frac{2S}{a} \sin \frac{qa}{2} \approx qS \left(1 - \frac{a^2 q^2}{24} \right), \quad (1)$$

где S — скорость фонона, \mathbf{q} — волновой вектор, a — расстояние между атомами. Он сводился к учету

† E-mail: kuleevimp.uran.ru

члена третьей степени по волновому вектору теплового фонона. В этом приближении учет дисперсии приводит к уменьшению абсолютных значений коэффициентов поглощения и изменению их температурных зависимостей [8,9,13]. Такой подход не является адекватным для кубических кристаллов и может быть использован для получения качественных результатов при изучении температурных зависимостей поглощения. В этом приближении не учитывается анизотропия дисперсии, связанная с особенностями спектра фононов в кубических кристаллах, а также различие дисперсии для различных колебательных ветвей. Для проведения детального анализа экспериментальных данных, включая температурные зависимости поглощения ультразвука, необходимо учесть дисперсию тепловых фононов, основываясь на данных по неупругому рассеянию нейтронов [14].

Целью настоящей работы является исследование влияния дисперсии и затухания фононных состояний на поглощение длинноволнового ультразвука $\hbar\omega_q^L \ll k_B T$ в ангармонических процессах рассеяния для кубических кристаллов. Проанализирован механизм релаксации LLL, в котором длинноволновый продольный ультразвук ($\hbar\omega_{q_1}^L \ll k_B T$) взаимодействует с двумя тепловыми фононами ($\hbar\omega_{q_2}^L \approx \hbar\omega_{q_3}^L \approx k_B T$), для которых необходим учет дисперсии. В качестве примера рассмотрим кристалл германия, для которого имеются детальные данные по спектру фононов [15,16], а также экспериментальные данные по поглощению ультразвука для всех симметричных направлений [2–5]. Нами предлагается метод аппроксимации экспериментального спектра фононов, который заключается в использовании степенного разложения спектра по приведенному волновому вектору фононов x ($x = q/q_{\max}$, q_{\max} — максимальный волновой вектор) для симметричных направлений и разложения по кубическим гармоникам при аппроксимации спектра на всю зону Бриллюэна аналогично тому, как это сделано в работе [17] для модели анизотропного континуума. Предложенная аппроксимация сохраняет кубическую анизотропию спектра, немаловажными достоинствами ее являются простота и возможность анализировать изменение анизотропии спектра при переходе от случая длинных волн ($x \ll 1$) к случаю коротковолновых фононов ($x \sim 1$). В настоящей работе она используется для анализа релаксационных характеристик фононной системы и поглощения продольного ультразвука в кристаллах Ge. Как и в приближении изотропной среды [6–9,13], учет дисперсии приводит к уменьшению абсолютных значений коэффициентов поглощения в этом механизме для всех симметричных направлений, а при низких температурах — к изменению температурных зависимостей поглощения. Для механизма релаксации LLL влияние дисперсии на поглощение ультразвука в Ge максимально в направлении [110] и минимально в направлении [001]. Поскольку максимальные значения поглощения ультразвука в модели анизотропного континуума [1] имеет в направлении [110], а минимальные — в направлении [001],

учет дисперсии приводит к уменьшению анизотропии поглощения. Параметром теории в нашей задаче является величина, определяющая затухание тепловых фононов $\gamma_L = (\omega_q^L \tau(T))^{-1}$. Из сопоставления результатов расчета поглощения ультразвука с экспериментальными данными [2] мы определили доминирующий механизм и анизотропию скорости релаксации тепловых продольных фононов в кристаллах Ge. Эта проблема является важной для исследования изотопического эффекта в теплопроводности и термоэдс в кристаллах Ge [18–21].

2. Аппроксимация спектра тепловых фононов в кубических кристаллах

В выполненных к настоящему времени экспериментальных исследованиях спектр фононов в кубических кристаллах измерялся, как правило, только в симметричных направлениях [14]. Для исследования скоростей релаксации фононов и коэффициентов поглощения ультразвука нам необходимо знать спектр фононов во всей зоне Бриллюэна. Модель анизотропного континуума позволяет решить эту задачу, но она справедлива только для волновых векторов, гораздо меньших дебаевского волнового вектора q_d . Спектр фононов с поляризаций λ в этой модели определяется линейным приближением по волновому вектору q

$$\omega_q^\lambda = S_0^\lambda(\theta, \varphi)q. \quad (2)$$

Анизотропия спектра определяется фазовой скоростью фононов $S_0^\lambda(\theta, \varphi)$, которая зависит от угловых переменных θ и φ вектора \mathbf{q} . В системе координат по ребрам куба имеем [17]

$$S_0^\lambda(\theta, \varphi) = \sqrt{\frac{c_{44}}{\rho}} \left(1 + \frac{c_{11} - c_{44}}{c_{44}} \left(\frac{1}{3} + Z_\lambda \right) \right)^{1/2},$$

$$Z_{t_1, t_2} = \frac{2}{3} r \cos\left(\frac{Q}{3} \mp \frac{2\pi}{3}\right), \quad Z_L = \frac{2}{3} r \cos\left(\frac{Q}{3}\right),$$

$$Q = \arccos p,$$

$$p = \left\{ \frac{1 + 4.5(k^2 - 1)\xi + 13.5\eta(k - 1)^2(2k + 1)}{r^3} \right\},$$

$$r = \sqrt{1 + 3(k^2 - 1)\xi}, \quad k = \frac{c_{12} + c_{44}}{c_{11} - c_{44}}, \quad (3)$$

где c_{ij} — упругие модули второго порядка, $\xi(\theta, \varphi) = n_1^2 n_2^2 + n_1^2 n_3^2 + n_2^2 n_3^2$ и $\eta(\theta, \varphi) = n_1^2 n_2^2 n_3^2$ — кубические гармоника, а $\mathbf{n} = \mathbf{q}/q = (\sin(\theta) \cos(\varphi), \sin(\theta) \sin(\varphi), \cos(\theta))$ — единичный волновой вектор фонона. Индекс L соответствует продольным фононам, а t_1 и t_2 — „быстрой“ (верхний) и „медленной“ (нижней) поперечным колебательным модам.

Проведем аппроксимацию фононного спектра на всю зону Бриллюэна, основываясь на данных по неупругому рассеянию нейтронов [15,16]. Для этого представим его в виде

$$\omega_q^\lambda = S_0^\lambda(\theta, \varphi)q\{1 - f^\lambda(\mathbf{q})\},$$

$$f^\lambda(\mathbf{q}) = A^\lambda(\theta, \varphi)x^2 - B^\lambda(\theta, \varphi)x^4 + C^\lambda(\theta, \varphi)x^6 - \dots, \quad (4)$$

где коэффициенты $A^\lambda(\theta, \varphi)$, $B^\lambda(\theta, \varphi)$, $C^\lambda(\theta, \varphi)$ характеризуют угловые зависимости спектра фононов, $x = q/q_{\max}$ — приведенный волновой вектор, а $q_{\max}(\theta, \varphi)$ — максимальный волновой вектор на границе зоны Бриллюэна. Для симметричных направлений он имеет вид

$$q_{\max}^{[001]} = 2\pi/a, \quad q_{\max}^{[101]} = (2\pi/a)(3\sqrt{2}/4),$$

$$q_{\max}^{[111]} = (2\pi/a)(\sqrt{3}/2). \quad (5)$$

Величина $q_{\max}(\theta, \varphi)$ может быть определена в области $0 \leq \theta \leq \pi/2$ и $0 \leq \varphi \leq \pi/4$ следующими соотношениями:

$$q_1(\theta, \varphi) = \frac{3/2q_{\max}^{[001]}}{n_x + n_y + n_z}, \quad q_2(\theta, \varphi) = \frac{q_{\max}^{[001]}}{n_x},$$

$$q_3(\theta, \varphi) = \frac{q_{\max}^{[001]}}{n_z},$$

$$q_{\max}(\theta, \varphi) = \min_{\substack{0 \leq \theta \leq \pi/2 \\ 0 \leq \varphi \leq \pi/4}} \{q_1(\theta, \varphi), q_2(\theta, \varphi), q_3(\theta, \varphi)\}. \quad (5a)$$

Аппроксимация экспериментального спектра производится в два этапа. На первом этапе мы аппроксимируем экспериментально измеренный спектр фононов различных поляризаций для симметричных направлений, используя разложение по степеням приведенного волнового вектора. Для этого зафиксируем углы θ_j и φ_j , соответствующие симметричным направлениям ([100], [110] или [111]), и, используя разложение эксперимен-

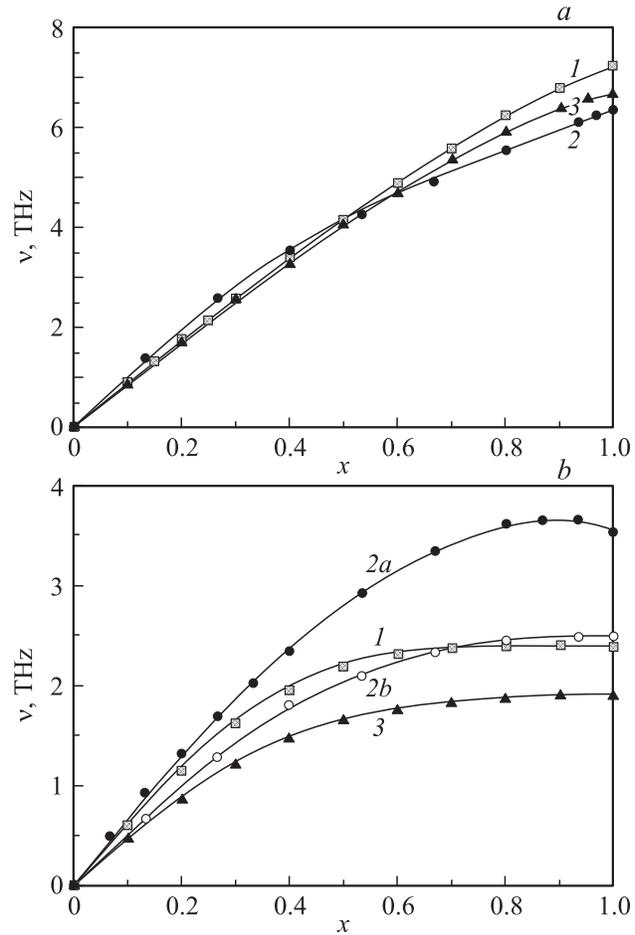


Рис. 1. Зависимости спектра продольных (а) и поперечных (б) фононов от приведенного волнового вектора $x = q/q_{\max}$ при аппроксимации полиномом седьмой степени согласно формуле (4) для симметричных направлений. а — для продольных мод в направлениях [001] (1), [110] (2) и [111] (3); б — для поперечных мод в направлениях [001] (1) и [111] (3), кривые 2а, 2б соответствуют быстрым и медленным поперечным модам в направлениях типа [110].

Таблица 1. Параметры, определяющие аппроксимацию спектра фононов

Продольная мода				Поперечная мода			
$A_{[001]}^L$	0.20	a_1^L	13.5	$A_{[001]}^T$	1.45	a_1^{T1}	-1.91
$B_{[001]}^L$	0.10	a_2^L	-116.2	$B_{[001]}^T$	1.27	a_2^{T1}	16.71
$C_{[001]}^L$	0.073	b_1^L	25.9	$C_{[001]}^T$	0.44	b_1^{T1}	-2.21
$A_{[110]}^L$	0.87	b_2^L	-231.9	$A_{[110]}^T$	0.76	b_2^{T1}	21.49
$B_{[110]}^L$	0.75	c_1^L	9.64	$B_{[110]}^T$	0.57	c_1^{T1}	-1.43
$C_{[110]}^L$	0.25	c_2^L	-80.9	$C_{[110]}^T$	0.28	c_2^{T1}	17.47
$A_{[111]}^L$	0.24			$A_{[110]}^{T2}$	0.98	a_1^{T2}	-1.29
$B_{[111]}^L$	0.11			$B_{[110]}^{T2}$	0.69	a_2^{T2}	11.11
$C_{[111]}^L$	0.089			$C_{[110]}^{T2}$	0.23	b_1^{T2}	-1.81
				$A_{[111]}^T$	1.42	b_2^{T2}	17.88
				$B_{[111]}^T$	1.34	c_1^{T2}	-1.92
				$C_{[111]}^T$	0.51	c_2^{T2}	21.84

тального спектра по степеням приведенного волнового вектора, находим коэффициенты $A^\lambda(\theta_j, \varphi_j)$, $B^\lambda(\theta_j, \varphi_j)$ и $C^\lambda(\theta_j, \varphi_j)$ для каждой акустической моды. Значения этих коэффициентов представлены в табл. 1. Как видно из рис. 1, аппроксимация спектра фононов в кристаллах Ge полиномом седьмой степени достаточно хорошо воспроизводит экспериментальные данные для всех колебательных мод в симметричных направлениях. Усредненная погрешность этой аппроксимации составляет 0.9% для продольных фононов, а для поперечных — 1.3%. Как явствует из табл. 1, влияние дисперсии на спектр фононов максимально в направлении [110] и минимально в направлении [001]: коэффициент $A_{[110]}^L$, характеризующий роль дисперсии при $x \ll 1$ в направлении [110], превосходит коэффициенты $A_{[001]}^L$ и $A_{[111]}^L$ в 4 раза. Заметим, что анизотропия и эффекты, связанные с дисперсией, для продольных фононов в Ge значительно меньше, чем для

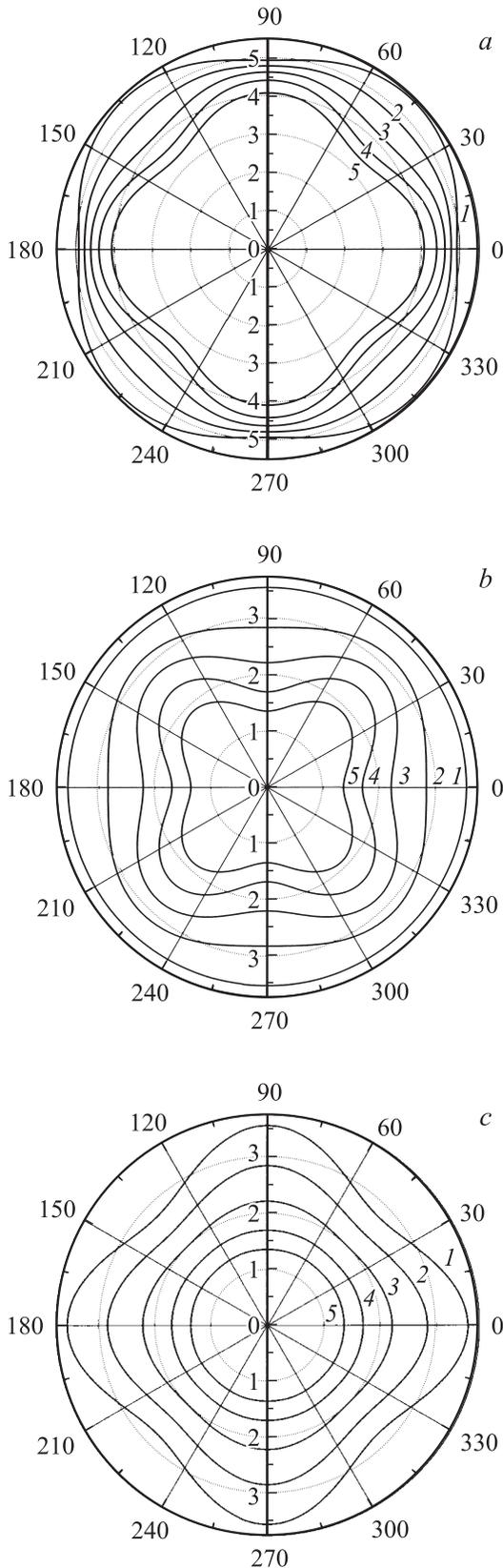


Рис. 2. Угловые зависимости фазовых скоростей $S^\lambda(x, \theta, 0)$ (10^5 см/с) в случае волновых векторов в плоскости грани куба для продольных (а), быстрых (б) и медленных (с) поперечных фононов при значениях приведенного волнового вектора $x = 0.001$ (1), 0,4 (2), 0,6 (3), 0,8 (4) и 1 (5).

поперечных. В отличие от продольных мод для поперечных мод в Ge при $0.6 \leq x \leq 1$ имеются плоские участки, а поперечная мода t_1 имеет максимум при $x = 0.9$. Эти особенности приводят к появлению соответствующих пиков в плотности фононных состояний [15,16].

На втором этапе мы аппроксимируем экспериментально измеренный спектр фононов для симметричных направлений на всю зону Бриллюэна, используя разложение по кубическим гармоникам аналогично тому, как это сделано в работе [17]. В работе [17] показано, что выражения для скоростей звука (1), (2), полученные в модели анизотропного континуума, с хорошей точностью могут быть аппроксимированы в линейном приближении по кубическим гармоникам $\xi(\theta, \varphi)$ и $\eta(\theta, \varphi)$:

$$S_{0ap}^\lambda(\theta, \varphi) = S_{[100]}^\lambda \{1 + a_{01}^\lambda \xi(\theta, \varphi) + a_{02}^\lambda \eta(\theta, \varphi)\}. \quad (6)$$

Коэффициенты a_{01}^λ и a_{02}^λ находятся из условия, что в кристаллографических направлениях типа [110] и [111] выражения (6) совпадают с точным решением (2). Аппроксимация (6) (см. [17], рис. 2) хорошо воспроизводит все особенности колебательных ветвей фононов в кубических кристаллах для произвольного направления. Для Ge максимальная погрешность аппроксимации для волновых векторов, лежащих в плоскости грани куба, составляет примерно 1%, а для диагонального сечения — менее 3%. Усредненная по всем направлениям погрешность составляет менее 1%.

Аналогично [17] представим коэффициенты $A^\lambda(\theta, \varphi)$, $B^\lambda(\theta, \varphi)$, $C^\lambda(\theta, \varphi)$ для всей зоны Бриллюэна в линейном приближении по кубическим гармоникам $\xi(\theta, \varphi)$ и $\eta(\theta, \varphi)$

$$\begin{aligned} A^\lambda(\theta, \varphi) &= A_{[001]}^\lambda \{1 + a_1^\lambda \xi(\theta, \varphi) + a_2^\lambda \eta(\theta, \varphi)\}, \\ B^\lambda(\theta, \varphi) &= B_{[001]}^\lambda \{1 + b_1^\lambda \xi(\theta, \varphi) + b_2^\lambda \eta(\theta, \varphi)\}, \\ C^\lambda(\theta, \varphi) &= C_{[001]}^\lambda \{1 + c_1^\lambda \xi(\theta, \varphi) + c_2^\lambda \eta(\theta, \varphi)\}. \end{aligned} \quad (7)$$

Учитывая, что для симметричных направлений типа [001] $\xi(0, 0) = \eta(0, 0) = 0$, для [110] $\xi(\pi/4, 0) = 0.25$, $\eta(0, 0) = 0$, для [111] $\xi(\theta_{111}, \pi/4) = 1/3$, $\eta(\theta_{111}, \pi/4) = 1/27$, мы без труда находим соответствующие коэффициенты (табл. 1). Например, для продольных мод коэффициенты a_1^λ и a_2^λ могут быть представлены в виде

$$\begin{aligned} a_1^L &= 4[A_{[110]}^L - A_{[001]}^L]/A_{[001]}^L, \\ a_2^L &= 9[3A_{[111]}^L - 4A_{[110]}^L + A_{[001]}^L]/A_{[001]}^L. \end{aligned} \quad (8)$$

Аналогично находятся остальные коэффициенты. Их значения приведены в табл. 1. Окончательное выражение для спектра фононов можно представить в виде

$$\begin{aligned} \omega_q^\lambda &= \omega_{0m}^\lambda(\theta, \varphi) x \{1 - f_{[001]}^\lambda(x) - f_1^\lambda(x) \xi(\theta, \varphi) - \\ &\quad - f_2^\lambda(x) \eta(\theta, \varphi)\}, \\ \omega_{0m}^\lambda(\theta, \varphi) &= S_0^\lambda(\theta, \varphi) q_{\max}(\theta, \varphi), \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned}
f_{[001]}^\lambda(x) &= A_{[001]}^\lambda x^2 - B_{[001]}^\lambda x^4 + C_{[001]}^\lambda x^6 - \dots, \\
f_1^\lambda(x) &= 4x^2[A_{[110]}^\lambda - A_{[001]}^\lambda - (B_{[110]}^\lambda - B_{[001]}^\lambda)x^2 \\
&\quad + (C_{[110]}^\lambda - C_{[001]}^\lambda)x^4 - \dots], \\
f_2^\lambda(x) &= 9x^2[(3A_{[111]}^\lambda - 4A_{[110]}^\lambda + A_{[001]}^\lambda) \\
&\quad - (3B_{[111]}^\lambda - 4B_{[110]}^\lambda + B_{[001]}^\lambda)x^2 \\
&\quad + (3C_{[111]}^\lambda - 4C_{[110]}^\lambda + C_{[001]}^\lambda)x^4 - \dots].
\end{aligned}$$

Предложенная аппроксимация сохраняет кубическую анизотропию спектра, немаловажным достоинством ее является простота и возможность анализировать изменение анизотропии спектра при переходе от случая длинных волн ($x \ll 1$) к случаю коротковолновых фононов ($x \sim 1$). В качестве примера рассмотрим изменение фазовой скорости фононов при переходе от длинноволновых к коротковолновым фононам

$$\begin{aligned}
S^\lambda(x, \theta, \varphi) &= S_0^\lambda(\theta, \varphi) \{1 - f_{[001]}^\lambda(x) \\
&\quad - f_1^\lambda(x)\xi(\theta, \varphi) - f_2^\lambda(x)\eta(\theta, \varphi)\}. \quad (10)
\end{aligned}$$

Как видно из рис. 2, анизотропия фазовой скорости фононов качественно изменяется при переходе от модели анизотропного континуума (кривые 1 на рис. 2) к фазовым скоростям на границе зоны Бриллюэна. Если при $x \ll 1$ в направлениях [100] скорость продольных фононов минимальна, а в направлениях [111] — максимальна, то при $x \sim 1$ в направлениях [100] скорость продольных фононов максимальна, а в направлениях [110] — минимальна. Качественно изменяется и анизотропия фазовой скорости поперечных фононов обеих колебательных ветвей (рис. 2). Очевидно, что качественное изменение анизотропии спектра тепловых фононов может приводить к существенному изменению релаксационных характеристик фононной системы, таких как теплопроводность, термоэдс и поглощение ультразвука. Мы провели сравнение спектров, рассчитанных в линейном приближении по кубическим гармоникам (10) для Ge, с экспериментальными данными [15,16] для волновых векторов, лежащих в плоскости грани куба ($\varphi = 0$) и в диагональной плоскости ($\varphi = \pi/4$). Как показал проведенный анализ, при $x \leq 0.2$ спектр хорошо описывается моделью анизотропного континуума [17]. При относительно небольших значениях приведенного волнового вектора ($x \leq 0.5$) наше приближение описывает все особенности спектра колебательных мод с погрешностью, не превышающей 5%. Однако по мере приближения к границе зоны Бриллюэна погрешность аппроксимации возрастает, и для волновых векторов на границе зоны Бриллюэна отклонение от данных [15,16] достигает 20%. В дальнейшем, чтобы излишне не усложнять задачу расчета релаксационных характеристик фононной системы, ограничимся линейной по кубическим гармоникам аппроксимацией спектра согласно выражениям (7)–(9).

3. Коэффициенты поглощения продольного ультразвука в ангармонических процессах рассеяния для кубических кристаллов

Рассмотрим поглощение длинноволнового продольного ультразвука $\hbar\omega_q^L \ll k_B T$, для которого при достаточно низких температурах реализуется режим Ландау–Румера: $\omega_q^L \tau^\lambda(\mathbf{q}, T) \gg 1$. При выполнении приведенных выше неравенств коэффициент поглощения ультразвуковых волн $\alpha_\lambda(\mathbf{q})$ с волновым вектором \mathbf{q} и поляризацией λ пропорционален полной скорости релаксации фононов данной поляризации $\nu^\lambda(\mathbf{q}, T)$ (см., например, [8,9]). В настоящей работе мы ограничимся рассмотрением механизма релаксации LLL продольного ультразвука на тепловых фононах. Выражение для коэффициента поглощения, согласно [1,8,9,22], имеет вид

$$\begin{aligned}
\alpha_L(\mathbf{q}_1, T) &= \frac{4.34 \cdot \pi \hbar^4}{S_0^L(\theta_1, \varphi_1)(2\rho k_B T)^3} \frac{1}{V} \\
&\times \sum_{q_2} \frac{\text{sh}\left(\frac{z_1}{2}\right)}{z_1 z_2 (z_1 + z_2) \text{sh}\left(\frac{z_2}{2}\right) \text{sh}\left(\frac{z_1 + z_2}{2}\right)} |V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2}^{\text{LLL}}|^2 \\
&\times 2\delta(\omega_{\mathbf{q}_1}^L + \omega_{\mathbf{q}_2}^L - \omega_{\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2}^L) \text{ (dB/cm)}. \quad (11)
\end{aligned}$$

Здесь ρ — плотность, V — нормировочный объем, T — температура, поляризация L соответствует продольным фононам, $z_n = \hbar\omega_{q_n}^L/k_B T$. Точное выражение для квадрата матричного элемента трехфононных процессов рассеяния $|V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3}|^2$ для кубических кристаллов в модели анизотропного континуума определено в работе [23]. Здесь мы ограничимся рассмотрением релаксации продольных длинноволновых фононов ($\hbar\omega_{q_1}^L \ll k_B T$), для спектра которых можно использовать модель анизотропного континуума в соответствии с формулами (2) и (3). В ангармонических процессах релаксации они взаимодействуют с тепловыми фононами ($\hbar\omega_{q_2}^L \approx \hbar\omega_{q_3}^L \approx k_B T$), для которых мы будем учитывать дисперсию в соответствии с выражениями (4)–(10). Очевидно, что в рассматриваемом случае имеет место неравенство $q_1 \ll q_2 \approx q_3$.

При учете дисперсии тепловых фононов закон сохранения энергии в ангармонических процессах LLL не выполняется. Этот механизм может вносить вклад в поглощение ультразвука только при учете затухания фононных состояний. Ангармонические процессы рассеяния, а также рассеяние на дефектах, примесях и границах образцов приводят к конечному времени жизни фононов. Поэтому при учете затухания фононных состояний мы должны заменить δ -функцию в выражении (15), учитывающую закон сохранения энергии в ангармонических процессах релаксации, на лоренцевскую функцию, которая учитывает затухание тепловых продольных фононов

аналогично тому, как это сделано в работах [6–13],

$$\begin{aligned} \delta_\gamma(W_{LLL}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)) \\ = \frac{\gamma_L}{\pi[(W_{LLL}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2))^2 + \gamma_L^2]}, \\ \gamma_L = (\omega_{q_1}^L \tau_L)^{-1}, \end{aligned} \quad (12)$$

где функция „дефицита энергии“ в законе сохранения $W_{LLL}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)$ определена в Приложении, τ_L — полное время релаксации тепловых фононов, которое определяется всеми процессами релаксации. В общем случае оно зависит от волновых векторов тепловых фононов и температуры ($\tau_L(\mathbf{q}_2, T) = 1/\nu_L(\mathbf{q}_2, T)$).

В длинноволновом пределе для коэффициента поглощения продольного ультразвука в системе координат по ребрам куба получим

$$\begin{aligned} \alpha_L(\theta_1, \varphi_1, T) = A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L) z_1 T^5 (\text{dB/cm}), \\ z_1 = \hbar \omega_{q_1}^L / k_B T, \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L) = A_{0LLL}(\theta_1, \varphi_1) \\ \times J_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L) (\text{dB/cm} \cdot \text{K}^5), \\ A_{0LLL}(\theta_1, \varphi_1) = \frac{4.34\pi^2 k_B^5}{60\hbar^4 \rho^3 (S_0^L(\theta_1, \varphi))^3 (S_{100}^L)^7}. \end{aligned} \quad (14)$$

Входящие в выражения (14) коэффициенты для механизма LLL имеют вид

$$\begin{aligned} J_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L) = \left(\frac{15}{16\pi^4} \right) \\ \times \int_{-1}^1 dx_{\theta_2} \int_0^{2\pi} d\varphi_2 \frac{I_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)}{(\tilde{S}_{02}^L(\theta_2, \varphi_2))^7} (Z_{0m}^L(\theta_2, \varphi_2))^5 \\ \times \int_0^1 \frac{\delta_\gamma(W_{LLL}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)) x_2^4 dx_2}{(\text{sh}(z_2/2))^2 (1 - f(x_2, \theta_2, \varphi_2))^2}, \end{aligned} \quad (15)$$

$$\begin{aligned} \tilde{S}_{02}^L = \frac{S_0^L(\theta_2, \varphi_2)}{S_{100}^L}, \quad x_{\theta_2} = \cos \theta_2, \quad S_{100}^L = \left(\frac{c_{11}}{\rho} \right)^{1/2}, \\ Z_{0m}^L(\theta_2, \varphi_2) = \frac{\hbar \omega_{0m}^L(\theta_2, \varphi_2)}{k_B T} = \frac{\hbar S_0^L(\theta_2, \varphi_2) q_{\max}(\theta_2, \varphi_2)}{k_B T}, \\ x_2 = \frac{q_2}{q_{\max}(\theta_2, \varphi_2)}, \\ z_2(\theta_2, \varphi_2) = \frac{\hbar \omega_{q_2}^L(x_2, \theta_2, \varphi_2)}{k_B T} \\ = Z_{0m}^L(\theta_2, \varphi_2) x_2 (1 - f(x_2, \theta_2, \varphi_2)). \end{aligned} \quad (16)$$

В точном выражении для матричного элемента трехфононных процессов рассеяния [23] при анализе механизма LLL для продольных фононов ограничимся приближением чистых мод: будем считать, что векторы

поляризаций продольных фононов \mathbf{e}_i совпадают с направлениями единичных волновых векторов $\mathbf{n}_i = \mathbf{q}_i/q_i$ ($(\mathbf{e}_1 \mathbf{n}_1) = (\mathbf{e}_2 \mathbf{n}_2) = (\mathbf{e}_3 \mathbf{n}_3) = 1$). Погрешность этого приближения, согласно [17], не превышает 1% для кристаллов Ge. В длинноволновом пределе ($q_1 \ll q_2, q_3$), учитывая, что $\mathbf{n}_2 \cong \mathbf{n}_3$, для квадрата матричного элемента в механизме LLL найдем

$$\begin{aligned} I_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2) = \{c_{123} + \tilde{c}_{111} \sum_i n_{1i}^2 n_{2i}^4 \\ + \tilde{c}_{112} \sum_i [2n_{1i}^2 n_{2i}^2 + n_{2i}^4] + (c_{12} + 2c_{144})[1 + 2(\cos \theta_{12})^2] \\ + (4\tilde{c}_{155} - \Delta C) \sum_i [n_{1i}^2 n_{2i}^2 + 2n_{1i} n_{2i}^3 \cos \theta_{12}] \\ + (6c_{44} + 8c_{456})(\cos \theta_{12})^2\}^2, \end{aligned} \quad (17)$$

где $\tilde{c}_{112} = c_{112} - c_{123} - 2c_{144}$, $\tilde{c}_{155} = c_{155} - c_{144} - 2c_{456}$,

$$\begin{aligned} \tilde{c}_{111} = c_{111} - 3c_{112} + 2c_{123} + 12c_{144} - 12c_{155} + 16c_{456}, \\ \Delta C = c_{12} + 2c_{44} - c_{11}, \\ \cos \theta_{12} = (\mathbf{n}_1 \mathbf{n}_2) \\ = \sin \theta_1 \cos(\varphi_2 - \varphi_1) \sin \theta_2 + \cos \theta_1 \cos \theta_2. \end{aligned} \quad (18)$$

Здесь c_{ij} — упругие модули второго порядка, а c_{ijk} — термодинамические модули упругости третьего порядка. Отметим, что слагаемые, содержащие модули упругости третьего порядка \tilde{c}_{111} , \tilde{c}_{112} , \tilde{c}_{155} и ΔC , соответствуют анизотропному рассеянию. Эти члены отличают кубические от изотропной среды — они обращаются в нуль при переходе к модели изотропной среды. Остальные слагаемые в формуле (17) соответствуют изотропному рассеянию.

Формулы (3)–(10), (12) и (13)–(18) позволяют рассчитать коэффициенты $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L)$, которые характеризуют зависимости поглощения продольного ультразвука от направления волнового вектора звуковой волны относительно ребер куба, температуры и параметра затухания γ_L . В расчетах используются экспериментально определенные значения термодинамических модулей упругости второго c_{ik} и третьего c_{ijk} порядков, взятые из работ [9,24].

4. Результаты численного анализа влияния дисперсии и затухания тепловых фононов на поглощение продольного ультразвука в Ge

Рассмотрим влияние дисперсии и затухания тепловых фононов на анизотропию поглощения ультразвука для механизма релаксации LLL в кристаллах Ge. Сравним с результатами, полученными ранее в модели анизотропного континуума с учетом затухания тепловых фононов [1]. Отличие настоящего анализа от результатов

работы [1] заключается не только в учете дисперсии тепловых фононов при расчете поглощения, но и в отказе от „низкотемпературного приближения“, которое широко использовалось ранее в теоретических работах [1,6–13]. Для того чтобы оценить количественно роль „низкотемпературного приближения“, пренебрежем дисперсией и рассмотрим выражение (15) в приближении изотропной среды

$$J_{L\lambda_2\lambda_2}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_2) = \int_{-1}^1 dx_{\theta_2} \int_0^{2\pi} d\varphi_2 I_{L\lambda_2\lambda_2}(\theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2) \times \delta_\gamma(W_{L\lambda_2\lambda_2}(\theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)) J(Z_d^{\lambda_2}), \quad (19)$$

где

$$J_4(Z_d^{\lambda_2}) = \frac{15}{16\pi^4} \int_0^{z_2^{\lambda_2}} dz_2 F_4(z_2), \quad F_4(z_2) = \frac{z_2^4}{[\text{sh}(z_2/2)]^2}, \quad z_2 = \frac{\hbar\omega_{q_2}^{\lambda_2}}{k_B T}, \quad Z_d^{\lambda_2} = \frac{T_d^{\lambda_2}}{T}. \quad (20)$$

Здесь $T_d^{\lambda_2}$ — температура Дебая, согласно [18], для продольных фононов в Ge $T_d^L = 333$ К, а для поперечных фононов $T_d^T \approx 118$ К. В низкотемпературном приближении $T \ll T_d^{\lambda_2}$ интеграл $J_4(Z_d)$ может быть точно вычислен: $J_4(Z_d)|_{Z_d \rightarrow \infty} \rightarrow 1$. Поэтому при $Z_d^{\lambda_2} \gg 1$ трехкратный интеграл (15) может быть сведен к двукратному интегралу (см. [1] формулы (4), (16) и (20)). Подынтегральная функция $F_4(z_2)$ имеет широкий максимум при $z_2 \approx 3.85$, а основной вклад в интеграл $J_4(Z_d)$ вносит область значений $2 \leq z_2 \leq 6$. При $Z_d^{\lambda_2} \geq 20$ погрешность „низкотемпературного приближения“ составляет менее 1%. Это ограничивает область температур менее 17 К для продольных тепловых фононов (механизм релаксации LLL) и 6 К — для поперечных тепловых фононов (механизм релаксации ЛТТ). Условие применимости „низкотемпературного приближения“ при расчете коэффициентов поглощения ультразвука во многом совпадает с условием наблюдения закона Дебая T^3 в низкотемпературном поведении теплоемкости. Как указывалось в [25], для реальных кристаллов температуры, при которых реализуется закон Дебая T^3 для теплоемкости, должны быть достаточно малы, а именно для значений $Z_d \geq 50$. Поэтому при анализе экспериментальных данных [2–5] для кристаллов Ge в актуальной области температур $10 < T < 60$ К мы должны пользоваться точными выражениями (15). Естественно, что при учете реального спектра фононов мы не можем выделить отдельно вклады дисперсии и низкотемпературного приближения в поглощение ультразвука и свести выражение (15) к двукратному интегралу [1].

Поскольку для кристаллов Ge поглощение продольного ультразвука исследовалось только в симметричных

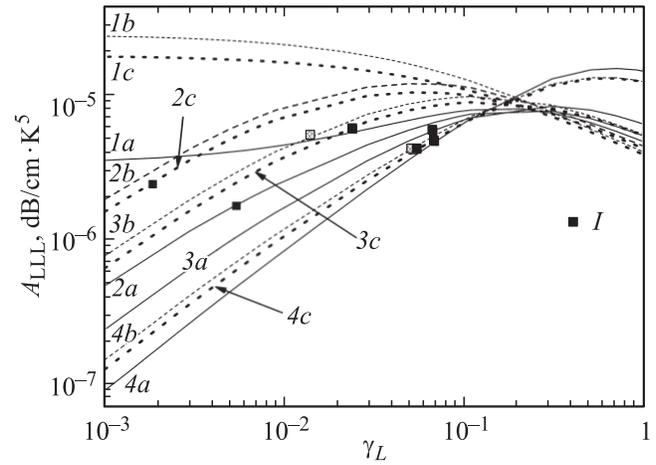


Рис. 3. Зависимости коэффициентов $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, \gamma_L)$ от параметра затухания γ_L для кристаллографических направлений [001] (1a–4a), [110] (1b–4b) и [111] (1c–4c), вычисленные при температурах $T = 0.1$ (1a–1c), 12 (2a–2c), 20 (3a–3c) и 50 К (4a–4c). I — экспериментальные данные [2].

направлениях [2–5], нами рассчитаны зависимости коэффициентов $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L)$, характеризующих поглощение продольного ультразвука, от параметра затухания в интервале значений $10^{-4} < \gamma_L < 1$ при фиксированных значениях температуры (рис. 3). Эти зависимости при $T = 0.1$ К согласуются с зависимостями $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, \gamma_L)$, рассчитанными для механизма релаксации LLL в модели анизотропного континуума, с погрешностью, меньшей 0.5% (см. [1], рис. 1, a). Однако с повышением температуры энергия тепловых фононов увеличивается, и роль дисперсии возрастает. Как видно из рис. 3, зависимости коэффициентов $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L)$ от параметра затухания, вычисленные с учетом дисперсии фононов (кривые 2–4), качественно отличаются от вычисленных в приближении анизотропного континуума (кривые 1). Причем с уменьшением затухания и повышением температуры различие кривых 1 и 2–4 быстро нарастает. Отношения коэффициентов $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, \gamma_L)$ [1] и $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L)$ при $T = 12$ К ($T = 12$ К — самая низкая температура, при которой имеются данные по поглощению ультразвука в Ge [2]) и $\gamma_L = 10^{-2}$ составляют 1.8, 2.8 и 2.5 для направлений [001], [110] и [111] соответственно, а при $\gamma_L = 10^{-3}$ эти отношения возрастают до 7.6, 13.4 и 11.8 для тех же направлений. Этот результат является достаточно неожиданным, поскольку при $T = 12$ К максимальный вклад в поглощение вносят тепловые фононы с частотой порядка 1 ТГц ($z_{2\max} = \hbar\omega_{q_2}^L/k_B T \approx 4$), что соответствует температуре $T_{\max} = 48$ К. Этим фононам соответствует значение приведенного волнового вектора $x \approx 0.1$ (рис. 1). Поправки к спектру фононов за счет дисперсии, согласно формулами (4), (9), не превышают 1–2%. Поэтому, казалось бы, роль дисперсии при $T = 12$ К должна быть незначительной. Однако из рис. 3 следует, что это не так: при $\gamma_L = 10^{-3}$ учет дисперсии приводит к уменьшению

коэффициентов $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, \gamma_L)$ на порядок величины. Проведенный анализ показал, что определяющую роль в формировании резкой зависимости поглощения от параметра затухания играет функция „дефицита энергии“ $W_{LLL}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)$. Дело в том, что в модели анизотропного континуума эта функция обращается в нуль только при рассеянии коллинеарных фононов [1]. При $x_2 \neq 0$ функция $W_{LLL}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)$ отлична от нуля, и в отсутствие затухания механизм релаксации LLL не дает вклад в затухание ультразвука. Для рассеяния коллинеарных фононов ($\theta_1 = \theta_2, \varphi_1 = \varphi_2, \theta_{12} = 0$) функция $W_{LLL}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)$ достигает минимума, а при $x \rightarrow 0$ функция $W_{LLL}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_1, \varphi_1) \rightarrow 0$. Таким образом, механизм релаксации LLL, как и механизм релаксации ЛТТ, может вносить вклад в поглощение ультразвука только при учете затухания фоновых состояний: при $\gamma_L \rightarrow 0$ коэффициенты $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L)$ стремятся к нулю. Учет дисперсии приводит к тому, что при $\gamma_L \ll 1$ коэффициенты $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L)$ становятся возрастающими функциями параметра затухания. Как видно из рис. 3, при фиксированном затухании ($\gamma_L \ll 1$) увеличение температуры приводит к монотонному уменьшению коэффициентов $A_{LLL}(\theta_1, \varphi_1, T, \gamma_L)$.

Рассмотрим влияние дисперсии тепловых фононов на анизотропию поглощения ультразвука. Для количественной характеристики анизотропии поглощения в механизме LLL введем коэффициенты

$$\beta_{LLL}^{[110]}(\gamma_L, T) = \alpha_{LLL}^{[110]}(\gamma_L, T) / \alpha_{LLL}^{[001]}(\gamma_L, T),$$

$$\beta_{LLL}^{[111]}(\gamma_L, T) = \alpha_{LLL}^{[111]}(\gamma_L, T) / \alpha_{LLL}^{[001]}(\gamma_L, T), \quad (21)$$

В работе [1] показано, что при малых значениях параметра затухания фоновых состояний ($\gamma_L \ll 1$) в механизме релаксации LLL доминирует малоугловое рассеяние фононов, и анизотропия поглощения ультразвука обусловлена главным образом ангармонической энергией. С увеличением параметра γ_L расширяется область углов θ_{12} , на которые могут рассеиваться фононы, и анизотропия поглощения ультразвука существенно уменьшается за счет усреднения квадрата матричного элемента [1]. Нами показано, что дисперсия продольных фононов является еще одним фактором, приводящим к уменьшению анизотропии поглощения ультразвука в кристаллах Ge. С повышением температуры энергия тепловых фононов увеличивается, и роль дисперсии возрастает. При этом анизотропия поглощения ультразвука в механизме релаксации LLL, как видно из рис. 3, уменьшается. Так, например, при фиксированном значении затухания $\gamma_L \approx 10^{-2}$ для температур $T = 0.1, 15, 30$ и 50 К имеем $\beta_{LLL}^{[110]}(\gamma_L, T) = 4.9, 3, 2.1, 1.4$, а $\beta_{LLL}^{[111]}(\gamma_L, T) = 3.7, 2.6, 1.48, 1.28$ соответственно. Физическое объяснение этого результата является достаточно простым. Как уже отмечалось ранее в работах [5–9] для модели изотропной среды, учет дисперсии приводит к уменьшению коэффициента поглощения ультразвука. Для продольных фононов в кристаллах Ge

влияние дисперсии максимально в направлении [110] и минимально в направлении [001]: коэффициент $A^L(\theta, \varphi)$ при x^2 в выражении (4) для направления [110] превосходит значения коэффициентов для направлений [001] и [111] приблизительно в 4 раза (табл. 1). С ростом температуры увеличивается энергия тепловых фононов, эффективно взаимодействующих с ультразвуком, и соответственно возрастает роль дисперсии, приводящей к уменьшению поглощения. Максимальные значения поглощения, имеющие место для направлений типа [110], с ростом температуры (при фиксированном затухании) уменьшаются быстрее, чем для направлений [001] и [111]. Соответственно уменьшаются значения коэффициентов, характеризующих анизотропию поглощения. Однако далее мы покажем, что оценки анизотропии поглощения ультразвука, основанные на предположении, что параметр затухания и соответственно скорость релаксации тепловых фононов не зависят от величины и направления волнового вектора фонона, не являются корректными.

5. Анализ экспериментальных данных

Наиболее подробные экспериментальные данные, включая и низкотемпературные измерения для всех симметричных направлений в Ge, получены в работе [2]. Главным образом на этих данных и будет основан наш анализ. Основное внимание уделено низкотемпературной области поглощения $12 < T < 20$ К, поскольку именно в этой области учет дисперсии, как показали оценки, выполненные в модели изотропной среды [6–9], приводит к новым эффектам в погло-

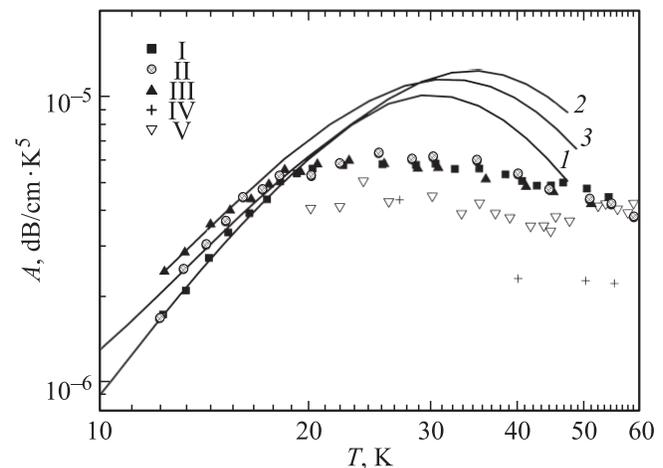


Рис. 4. Температурные зависимости коэффициентов поглощения ультразвука с частотой $\nu = 2.05$ GHz $A_{LLL}^{\text{heer}}(\theta, \varphi, T, \gamma_L)$ для направлений [100] (I), [110] (2) и [111] (3), рассчитанных для релаксационных параметров из табл. 4. Символами показаны экспериментальные данные для $A_L^{\text{exp}}(\theta, \varphi, T)$ из работы [2] при $\nu = 2.05$ GHz в направлениях [001] (I) [110] (II), [111] (III); из работы [3] при $\nu = 9$ GHz в направлениях [001] и [110] (IV) и из работы [4] при $\nu = 3.1$ GHz в направлении [110] (V).

шении ультразвука (рис. 4). Во-первых, зависимости коэффициентов поглощения от температуры в интервале $12 < T < 20$ К для всех симметричных направлений следуют зависимостям $\alpha^{\text{exp}}(T) = AT^n$ (при этом коэффициент $A_L^{\text{exp}}(\theta, \varphi, T) = \alpha_L^{\text{exp}}(\theta, \varphi, T)k_B/\hbar\omega_q^L T^4 \sim T^{(n-4)}$), где показатель степени $6 < n < 7$. При более высоких температурах ($25 < T < 50$ К) показатель степени n близок к четырем [2–5], при этом коэффициент $A_L^{\text{exp}}(\theta, \varphi, T)$ близок к константе (рис. 4). Во-вторых, последовательный учет кубической симметрии и дисперсии фононов при расчете релаксационных характеристик фононной системы позволяет из экспериментальных данных по поглощению ультразвука определить зависимости параметров затухания и, следовательно, скоростей релаксации тепловых фононов от температуры. Это дает возможность уточнить значения релаксационных параметров, полученных из данных по теплопроводности кристаллов Ge с различным изотопическим составом, включая и высокообогащенные образцы ^{70}Ge (99.99%) [18–20].

Для этого сначала из экспериментальных данных [2–5] определяем зависимости коэффициентов $A_L^{\text{exp}}(\theta, \varphi, T) = \alpha_L^{\text{exp}}(\theta, \varphi, T)k_B/\hbar\omega_q^L T^4$ от температуры для всех симметричных направлений. Эти данные показаны символами на рис. 4. Затем из равенства $A_{\text{LLL}}^{\text{theor}}(\theta, \varphi, T, \gamma_L) = A_L^{\text{exp}}(\theta, \varphi, T)$ для данных [2] находим зависимости параметров γ_L и обратного времени релаксации фононов от температуры для всех симметричных направлений и для всех частот ультразвука. Как показал анализ, в интервале температур $12 < T < 20$ К зависимости параметра затухания и обратного времени релаксации тепловых фононов от температуры для всех симметричных направлений могут быть описаны степенной зависимостью вида $\tau^{-1}(T) = AT^n$, где показатель степени n близок к пяти при частотах ультразвука порядка или больше 1 GHz (табл. 2). Некоторый разброс значений n для различных направлений и частот ультразвука, по-видимому, обусловлен разными интервалами параметров затухания, по которым проводится усреднение с лоренцевской функцией. Так, например, при частоте ультразвука 2.05 GHz параметр затухания γ_L изменяется в интервалах $0.55 \cdot 10^{-2} \leq \gamma_L \leq 6.8 \cdot 10^{-2}$, $0.084 \cdot 10^{-2} \leq \gamma_L \leq 1.4 \cdot 10^{-2}$ и $0.18 \cdot 10^{-2} \leq \gamma_L \leq 2.4 \cdot 10^{-2}$ для направлений типа [001], [110] и [111] соответственно (табл. 3). Следует отметить, что полученный в модели изотропной среды критерий $\gamma_L(T) = (\omega_q^L \tau_L(T))^{-1} \gg (T/T_d)^2$, при выполнении которого должна, согласно [8,9], наблюдаться зависимость поглощения типа $\alpha^{\text{exp}}(T) = AT^7$, выполняется для направлений типа [001] и [111], а для направлений типа [110] при $12 < T < 15$ К параметр затухания γ_L оказывается меньше, чем $(T/T_d)^2$. Однако для всех направлений наблюдается одинаковый показатель температурной зависимости.

При относительно низких частотах ультразвука значения параметра затухания возрастают, и показатель степени температурной зависимости уменьшается (табл. 2).

Таблица 2. Показатели степени n , определяющие температурные зависимости параметров затухания γ_L и обратного времени релаксации тепловых фононов, из данных поглощения в низкотемпературной области $12 < T < 20$ К*

ν , GHz	n		
	[001]	[110]	[111]
2.84	5	5.5	
2.05	5.5	6.2	5.2
1.035	5		5.2
0.998		6.4	

* Поглощение ультразвука в работе [2] в направлениях типа [001] и [111] измерялось на частоте 1.035 GHz, а в направлениях типа [110] — на частоте 0.998 GHz.

Таблица 3. Интервалы изменения параметров затухания γ_L для поглощения ультразвука в низкотемпературной области $12 < T < 20$ К

ν , GHz	γ		
	[001]	[110]	[111]
2.84	[0.0072;0.102]	[0.0019;0.009]	
2.05	[0.055;0.68]	[0.00084;0.014]	[0.0018;0.024]
1.035	[0.0048;0.053]		[0.0086;0.032]
0.998		[0.0019;0.028]	

Таблица 4. Значения коэффициентов A_{phN}^L , определяющих скорости релаксации фононов в нормальных процессах рассеяния, для симметричных направлений

ν , GHz	$A_{\text{phN}}^L, 10^5 \text{ 1/K}^5$		
	$A_{\text{phN}}^{[001]}$ [001]	[110]	[111]
2.84	2.2	6.4	
2.05	2.1	0.77	1.0
1.035	1.6		0.8
0.998		0.45	

Полученные нами зависимости обратного времени релаксации тепловых фононов $\tau^{-1}(T) \approx AT^5$ дают основание предположить, что основным механизмом релаксации продольных фононов являются нормальные процессы релаксации. Этими процессами, согласно [18–20], являются процессы релаксации Херринга [26], в которых слияние продольного фонона с медленным поперечным фононом порождает быстрый поперечный фонон

$$\tau_L^{-1}(\mathbf{q}_2, T) = \nu_{\text{phN}}^L(\mathbf{q}_2, T) \cong A_{\text{phN}}^L \left(\frac{T}{10}\right)^5 z_2^2 (\text{s}^{-1}). \quad (22)$$

Как следует из анализа теплопроводности [18–20], коэффициент A_{phN}^L изотропен и равен $3.4 \cdot 10^6 \text{ 1/K}^5$. Мы подставили выражение (22) в параметр затухания, а коэффициент A_{phN}^L использовали в качестве подгоночного параметра. В результате такой подгонки оказалось,

что параметр $A_{\text{ph}N}^L$ на порядок величины меньше, чем следует из анализа теплопроводности [18–20] (табл. 4). Как видно из рис. 4, для этих значений (табл. 4) в интервале температур $12 < T < 20$ К для всех симметричных направлений и частот ультразвука $\nu = 1-2.84$ GHz рассчитанные значения поглощения хорошо согласуются с экспериментальными данными [2]. При более высоких температурах ($25 < T < 50$ К) измеренные значения поглощения [2–4] следуют зависимостям $\alpha^{\text{exp}}(T) \approx AT^4$ (при этом коэффициент $A_L^{\text{exp}}(\theta, \varphi, T) \sim \text{const}$). Однако рассчитанные значения $A_{\text{LLL}}^{\text{theor}}(\theta, \varphi, T, \gamma_L)$ достигают максимума при $T \sim 30-35$ К, где они превышают экспериментальные значения в 1.7–2 раза, затем монотонно убывают (рис. 4). Расхождение результатов расчета с экспериментальными данными [2] в этой температурной области связано с пренебрежением рассеянием тепловых продольных фононов на дефектах для механизма LLL, а также ангармоническими процессами рассеяния ультразвука двумя поперечными тепловыми фононами (механизм LTT). Учет этих факторов требует отдельного рассмотрения. Следует отметить, что для различных симметричных направлений значения коэффициента $A_{\text{ph}N}^L$ значительно различаются (табл. 4): в направлении [001] он в 2 раза больше, чем для [111], и в 3 раза больше, чем для [110]. Таким образом, из данных по поглощению ультразвука следует, что скорость релаксации тепловых фононов в кубических кристаллах является анизотропной. Следует отметить, что значения подгоночных параметров $A_{\text{ph}N}^L$ для разных частот ультразвука и фиксированного направления распространения несколько различаются. Это связано с тем, что при изменении частот ультразвука изменяются величины параметров затухания $\gamma_L = (\omega_q^L \tau_L(q_2, T))^{-1}$, определяющих ширину лоренцевской функции распределения, по которой производится усреднение в (15).

Остановимся теперь на различии коэффициентов $A_{\text{ph}N}^L$, следующих из данных по теплопроводности и поглощению ультразвука в Ge. Как уже отмечалось в [1], роль нормальных и резистивных процессов рассеяния в теплопроводности кристаллов и затухании фононных состояний различна. Эта проблема детально обсуждалась в [1,20,21] при анализе теплопроводности и термоэдс кристаллов Ge с различным изотопическим составом. В затухание фононных состояний вносят аддитивный вклад все процессы релаксации фононов, включая резистивные (рассеяние на дефектах, изотопическом беспорядке и в процессах фонон-фононного переброса), а также нормальные процессы фонон-фононного рассеяния (N -процессы). Непосредственный вклад в теплосопrotивление вносят только резистивные процессы рассеяния. Тогда как N -процессы не приводят к релаксации импульса фононной системы и соответственно к теплосопrotивлению, а приводят ее к локально-равновесному состоянию с дрейфом (см., например, [20,21]). Эти процессы, перераспределяя импульс внутри фононной системы, изменяют относительный вклад резистивных

процессов рассеяния в теплосопrotивление. Таким образом, N -процессы оказывают только косвенное влияние на теплопроводность и в связи с этим точность их определения из данных по теплопроводности невелика. В рамках релаксационного метода [18–20,27] параметры, обуславливающие интенсивность ангармонических процессов рассеяния фононов различных поляризаций, являлись подгоночными параметрами теории, которые определялись из сопоставления результатов расчета теплопроводности с экспериментальными данными. Эти расчеты проводились фактически на основе модели изотропной среды: использование таких параметров, как эффективная константа ангармонизма и средняя скорость упругих волн, а также приближение чистых мод не позволило корректно учесть влияние кубической анизотропии на релаксационные процессы. Такая программа была выполнена при анализе теплопроводности кристаллов Ge с различным изотопическим составом, включая и высокообогащенные образцы $^{70}\text{Ge}(99.99\%)$ [18,20]. Полученные параметры позволили определить полные скорости релаксации продольных и поперечных фононов. Оказалось, что в кристаллах Ge для продольных фононов в интервале $10 < T < 100$ К доминируют нормальные, а для поперечных — резистивные процессы рассеяния. Следует отметить, что для продольных фононов параметры, определяющие интенсивность ангармонических процессов рассеяния, из данных по теплопроводности в принципе не могут быть определены с достаточной точностью. Во-первых, продольные фононы вносят малый вклад в теплопроводность кристаллов Ge: согласно оценкам [20,28], в температурной области от 10 до 100 К от 80 до 90% тепла переносится поперечными фононами. Во-вторых, нормальные процессы рассеяния продольных фононов оказывают только косвенное влияние на теплопроводность, и соответственно точность определения коэффициента $A_{\text{ph}N}^L$ из этих данных невелика. В связи с этим для поперечных фононов параметры, характеризующие ангармонические процессы релаксации, из данных по теплопроводности могут быть определены более надежно, чем для продольных фононов. Таким образом, приведенные выше доводы показывают, что оценка коэффициентов $A_{\text{ph}N}^L$, полученная нами из данных по поглощению ультразвука в Ge, является более надежной, чем из данных по теплопроводности [18–20].

6. Заключение

Итак, разработан метод аппроксимации экспериментального спектра фононов, который заключается в использовании степенного разложения спектра по приведенному волновому вектору фононов для симметричных направлений и разложения по кубическим гармоникам при аппроксимации спектра на всю зону Бриллюэна. Использование этого метода позволило исследовать влияние дисперсии и затухания состояний тепловых

фононов на поглощение продольного ультразвука в механизме релаксации LLL для кристаллов Ge. Показано, что учет дисперсии приводит к уменьшению анизотропии поглощения ультразвука в механизме релаксации LLL и позволяет согласовать результаты расчета коэффициентов поглощения ультразвука с экспериментальными данными в низкотемпературной области. Определена температурная зависимость и анизотропия времени релаксации тепловых продольных фононов в кристаллах Ge. Полученные нами зависимости скорости релаксации тепловых фононов показывают, что основным механизмом релаксации продольных фононов являются нормальные процессы релаксации Херринга, в которых слияние продольного фонона с медленным поперечным фононом порождает быстрый поперечный фонон. Проведенный анализ позволил уточнить значения релаксационных параметров, полученных из данных по теплопроводности кристаллов Ge с различным изотопическим составом [18–20] в модели изотропной среды.

При рассмотрении поглощения ультразвука в механизме релаксации LLL мы ограничились низкотемпературным интервалом $12 < T < 20$ К для всех симметричных направлений. Дело в том, что, как показывают оценки, при $T < 20$ К доминирующий вклад в поглощение ультразвука вносит механизм релаксации LLL, тогда как при более высоких температурах ($25 < T < 50$ К) значительную роль играет механизм релаксации ЛТТ. Анализ этого механизма требует отдельного рассмотрения.

Авторы выражают благодарность А.П. Танкееву за обсуждение результатов работы и критические замечания.

Приложение. Закон сохранения энергии и групповая скорость тепловых фононов

Рассмотрим закон сохранения энергии в механизмах релаксации LLL и ЛТТ

$$\delta(\omega_{\mathbf{q}_1}^L + \omega_{\mathbf{q}_2}^{\lambda_2} - \omega_{\mathbf{q}_1+\mathbf{q}_2}^{\lambda_2}) = \frac{1}{\omega_{\mathbf{q}_1}^L} \delta(W_{L\lambda_2\lambda_2}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)),$$

$$W_{L\lambda_2\lambda_2}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2) = [1 - (\omega_{\mathbf{q}_1+\mathbf{q}_2}^{\lambda_2} - \omega_{\mathbf{q}_2}^{\lambda_2})/\omega_{\mathbf{q}_1}^L]. \quad (\text{П1})$$

Здесь $\theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2$ — угловые переменные векторов \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_2 . Для механизма релаксации LLL индекс $\lambda_2 = L$, а для механизма ЛТТ индекс λ_2 равен t_1 или t_2 . Индекс L соответствует продольным фононам, а t_1 и t_2 — „быстрой“ (верхней) и „медленной“ (нижней) поперечным колебательным модам. В работе рассматривается релаксация продольных длинноволновых фононов ($\hbar\omega_{\mathbf{q}_1}^L \ll k_B T$). В ангармонических процессах рассеяния они взаимодействуют с тепловыми фононами ($\hbar\omega_{\mathbf{q}_2}^{\lambda_2} \approx \hbar\omega_{\mathbf{q}_3}^{\lambda_2} \approx k_B T$). Поэтому в длинноволновом приближении имеет место неравенство $q_1 \ll q_2 \approx q_3$. В этом случае для произвольных направлений волновых

векторов \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_2 функция $W_{L\lambda_2\lambda_2}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)$ может быть выражена через групповую скорость фононов $V_g^{\lambda_2}$

$$W_{L\lambda_2\lambda_2}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2) = 1 - \frac{1}{S_0^{\lambda_2}(\theta_1, \varphi_1)} (\mathbf{V}_g^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2) \cdot \mathbf{n}_1), \quad (\text{П2})$$

$$\begin{aligned} V_g^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2) &= S_0^{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2) \\ &\times \{V_n^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2)\mathbf{n}_2 + S_{\theta_2}^{\lambda_2}\mathbf{e}_{\theta_2} + S_{\varphi_2}^{\lambda_2}\mathbf{e}_{\varphi_2}\}, \\ V_n^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2) &= 1 - f^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2) - x \frac{\partial}{\partial x} f^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2). \end{aligned} \quad (\text{П3})$$

Величины $S_\theta^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2)$ и $S_\varphi^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2)$ определяются выражениями

$$\begin{aligned} S_\theta^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2) &= \left[\frac{1}{S_0^{\lambda_2}} \frac{\partial S_0^{\lambda_2}}{\partial \xi} (1 - f^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2)) - f_1^{\lambda_2}(x_2) \right] \frac{\partial \xi}{\partial \theta} \\ &+ \left[\frac{1}{S_0^{\lambda_2}} \frac{\partial S_0^{\lambda_2}}{\partial \eta} (1 - f^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2)) - f_1^{\lambda_2}(x_2) \right] \frac{\partial \eta}{\partial \theta}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} S_\varphi^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2) &= \frac{1}{\sin \theta} \\ &\times \left\{ \left[\frac{1}{S_0^{\lambda_2}} \frac{\partial S_0^{\lambda_2}}{\partial \xi} (1 - f^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2)) - f_1^{\lambda_2}(x_2) \right] \frac{\partial \xi}{\partial \varphi} \right. \\ &+ \left. \left[\frac{1}{S_0^{\lambda_2}} \frac{\partial S_0^{\lambda_2}}{\partial \eta} (1 - f^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2)) - f_1^{\lambda_2}(x_2) \right] \frac{\partial \eta}{\partial \varphi} \right\}, \quad (\text{П4}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{S_0^{\lambda_2}} \frac{\partial S_0^{\lambda_2}}{\partial \xi} &= \left[\left(\frac{S_{100}^{\lambda_2}}{S_0^{\lambda_2}} \right)^2 \frac{c_{11} - c_{44}}{2c_{44}} Z_\lambda \right] \frac{1.5(k^2 - 1)}{r^2} \\ &\times \left\{ 1 - \frac{1.5(k^2 - 1)\xi + 13.5\eta(k - 1)^2(1 + 2k)}{(1 - p^2)^{1/2}(r)^3} \text{tg}(Q_\lambda) \right\}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{S_0^{\lambda_2}} \frac{\partial S_0^{\lambda_2}}{\partial \eta} &= \left[\left(\frac{S_{100}^{\lambda_2}}{S_0^{\lambda_2}} \right)^2 \frac{c_{11} - c_{44}}{2c_{44}} Z_\lambda \right] \\ &\times \frac{4.5(k - 1)^2(1 + 2k)}{(1 - p^2)^{1/2}(r)^3} \text{tg}(Q_\lambda), \end{aligned}$$

$$Q_L = \frac{Q}{3}, \quad Q_{t_1 t_2} = \frac{Q}{3} \mp \frac{2\pi}{3},$$

$$\frac{\partial \xi}{\partial \theta} = \sin 2\theta [\cos 2\theta + 0.5(\sin \theta)^2(\sin 2\varphi)^2],$$

$$\frac{\partial \xi}{\partial \varphi} = 0.5(\sin \theta)^4 \sin 4\varphi,$$

$$\frac{\partial \eta}{\partial \theta} = \frac{1}{4} \sin 2\theta (\sin \theta)^2 [3(\cos \theta)^2 - 1] \sin^2 2\varphi,$$

$$\frac{\partial \eta}{\partial \varphi} = \frac{1}{2} (\sin \theta)^4 (\cos \theta)^2 \sin 4\varphi, \quad (\text{П5})$$

где $\mathbf{n}_2 = \{\sin \theta_2 \cos \varphi_2, \sin \theta_2 \sin \varphi_2, \cos \theta_2\}$, $\mathbf{e}_{\theta_2} = \{\cos \theta_2 \cos \varphi_2, \cos \theta_2 \sin \varphi_2, -\sin \theta_2\}$, $\mathbf{e}_{\varphi_2} = \{-\sin \varphi_2, \cos \varphi_2, 0\}$. Нетрудно убедиться, что векторы $\mathbf{n}_2, \mathbf{e}_{\theta_2}$ и \mathbf{e}_{φ_2}

образуют взаимно ортогональную тройку единичных векторов. Параметры Z_λ , p , r и Q определены формулами (2). Для функции $W_{L\lambda_2\lambda_2}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2)$ в произвольных направлениях векторов \mathbf{n}_1 и \mathbf{n}_2 окончательно получим

$$\begin{aligned} W_{L\lambda_2\lambda_2}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2) &= 1 - \frac{S_0^{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2)}{S_0^L(\theta_1, \varphi_1)} \\ &\times \{V_n^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2) \cos \theta_{12} + S_{\theta_2}^{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2) \\ &\times [\sin \theta_1 \cos \theta_2 \cos(\varphi_2 - \varphi_1) - \sin \theta_2 \cos \theta_1] \\ &+ S_{\varphi_2}^{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2) [\sin \theta_1 \sin(\varphi_1 - \varphi_2)]\}. \end{aligned} \quad (\text{П6})$$

В частном случае симметричных направлений $[001]$ ($\theta_1 = 0$, $\varphi_1 = 0$) и $[110]$ ($\theta_1 = \pi/4$, $\varphi_1 = 0$) из (П6) следует

$$\begin{aligned} W_{L\lambda_2\lambda_2}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2) &= 1 - \frac{S_0^{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2)}{S_{[001]}^L} \\ &\times \{V_n^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2) \cos \theta_2 - S_{\theta_2}^{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2) \sin \theta_2\}, \\ S_{100}^L &= \left(\frac{c_{11}}{\rho}\right)^{1/2}, \\ W_{L\lambda_2\lambda_2}(x_2, \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2) &= 1 - \frac{S_0^{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2)}{\sqrt{2}S_{[110]}^L} \\ &\times \{V_n^{\lambda_2}(x_2, \theta_2, \varphi_2) [\sin \theta_2 \cos \varphi_2 + \cos \theta_2] \\ &+ S_{\theta_2}^{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2) [\cos \theta_2 \cos \varphi_2 - \sin \theta_2] - S_{\varphi_2}^{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2) \sin \varphi_2\}, \\ S_{[110]}^L &= \left(\frac{(c_{11} + c_{12} + 2c_{44})}{2\rho}\right)^{1/2}. \end{aligned} \quad (\text{П7})$$

Список литературы

- [1] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев. ФТТ **52**, 1377 (2010).
- [2] J.P. Kalejs, H.J. Maris. J. Appl. Phys. **41**, 460 (1970).
- [3] M. Pomerantz. Phys. Rev. A **139**, 501 (1965).
- [4] K.R. Keller. J. Appl. Phys. **38**, 3777 (1967).
- [5] А.А. Булгаков, В.В. Тараканов, Ф.Н. Чернец. ФТТ **15**, 1915 (1973).
- [6] S.L. McBride, H.J. Maris, B. Truel. J. Acoust. Soc. Am. **45**, 1385 (1969).
- [7] В.В. Леманов, Г.А. Смоленский. УФН **108**, 465 (1972).
- [8] H.J. Maris. In: Physical acoustics / Eds W.P. Mason, R.N. Thurston. Academic Press, N.Y. (1971). V. 8. P. 279.
- [9] B. Truel, C. Elbaum, V.B. Chick. Ultrasonic methods in solid state physics. Academic Press, N.Y.–London (1969). 307 p.
- [10] Дж. Такер, В. Рэмington. Гиперзвук в физике твердого тела. Мир, М. (1975). 453 с.
- [11] H.J. Maris. Phil. Mag. **9**, 901 (1964).
- [12] W.P. Mason. Physical acoustics / Ed. W.P. Mason. Academic Press, N.Y.–London (1965). V. 3. Pt B. P. 235.
- [13] В.Л. Гуревич. Кинетика фононных систем. Наука, М. (1980). 400 с.
- [14] H. Bilz, W. Kress. Phonon dispersion relations in insulators. Springer Ser. in Solid State Sciences. Springer-Verlag, Berlin–Heidelberg–N.Y. (1979). V. 10. 241 p.
- [15] G. Nilson, G. Nelin. Phys. Rev. B **3**, 364 (1971).
- [16] G. Nilson, G. Nelin. Phys. Rev. B **5**, 3151 (1972).
- [17] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев. ФТТ **49**, 422 (2007).
- [18] M. Asen-Palmer, K. Bartkowski, E. Gmelin, M. Cardona, A.P. Zhernov, A.V. Inyushkin, A.N. Taldenkov, V.I. Ozhogin, K.M. Itoh, E.E. Haller. Phys. Rev. B **56**, 9431 (1997).
- [19] А.П. Жернов, А.В. Инюшкин. УФН **171**, 827 (2001); УФН **172**, 573 (2002).
- [20] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев. ЖЭТФ **120**, 1952 (2001).
- [21] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев, А.Н. Талденков, А.В. Инюшкин, В.И. Ожогин, К. Ито, Ю. Халлер. ЖЭТФ **123**, 1227 (2003).
- [22] Б.М. Могилевский, А.Ф. Чудновский. Теплопроводность полупроводников. Наука, М. (1972). 536 с.
- [23] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев. ФТТ **47**, 300 (2005).
- [24] И.Н. Францевич, Ф.Ф. Воронов, С.А. Бакута. Упругие постоянные и модули упругости металлов и неметаллов. Наук. думка, Киев, (1982). 286 с.
- [25] Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела. Наука, М. (1978). 790 с.
- [26] C. Herring. Phys. Rev. **95**, 954 (1954).
- [27] Р. Берман. Теплопроводность твердых тел. Мир, М. (1962). 286 с.
- [28] R.A. Hamilton, J.E. Parrot. Phys. Rev. **178**, 1284 (1969).