

Анизотропия поглощения поперечного ультразвука в кубических кристаллах Ge, Si и алмаза с различным изотопическим составом

© И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев

Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук,
620219 Екатеринбург, Россия

E-mail: kuleev@imp.uran.ru

(Поступила в Редакцию 21 декабря 2006 г.)

Рассмотрено поглощение поперечного ультразвука в кристаллах германия, кремния и алмаза в условиях конкуренции изотопического и ангармонических процессов рассеяния. Проанализированы зависимости коэффициентов поглощения поперечного ультразвука от направления волнового вектора квазипоперечных фононов в модели анизотропного континуума. Для ангармонических процессов рассеяния рассмотрен механизм Ландау–Румера. Из известных значений упругих модулей второго и третьего порядка найдены параметры, определяющие коэффициенты поглощения ультразвука для рассмотренных кристаллов с различной степенью изотопического беспорядка. Показано, что для изотопического и ангармонических процессов рассеяния угловые зависимости коэффициентов поглощения поперечного ультразвука качественно различаются. Поэтому исследование анизотропии коэффициентов поглощения ультразвука в кубических кристаллах позволяет определить доминирующий механизм релаксации ультразвука в изотопически модифицированных кристаллах.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 05-02-16912, программы президиума РАН № 12, ведущей научной школы № НШ 5869.2006.2, а также Фонда содействия отечественной науке.

PACS: 62.65.+k, 62.80.+f

В работах [1,2] рассчитаны скорости релаксации фононов в кубических кристаллах для ряда ангармонических процессов релаксации в модели анизотропного континуума и рассмотрено поглощение поперечного ультразвука в кристаллах Ge, Si и с различным изотопическим составом. Показано, что учет кубической анизотропии в матричном элементе, описывающем трехфононные процессы рассеяния, приводит к качественному различию между зависимостями скоростей релаксации от волнового вектора поперечных фононов и классической линейной зависимостью Ландау–Румера [3]. Однако анализ, проведенный в работах [1,2], выполнен в изотропном приближении для спектра и поляризаций фононов: в законе сохранения энергии не учитывалось влияние кубической анизотропии на спектр фононов, а колебательные моды считались чистыми модами (чисто продольными или чисто поперечными). Известно, что в кубических кристаллах распространяются квазипродольные или квазипоперечные колебания, и только в симметричных направлениях, таких как [100], [110] и [111], распространяются чистые моды [4–6]. В работе [7] показано, что вклад поперечной компоненты в квазипродольные колебания в кубических кристаллах мал, и им можно пренебречь. Напротив, вклад продольных компонент в квазипоперечные моды не является малым, и при усреднении по векторам поляризации в скоростях релаксации квазипоперечных фононов необходимо учитывать продольную компоненту этих мод. В отличие от ранее выполненных расчетов скоростей релаксации поперечных фононов в ангармонических процессах рассеяния в работе [8] точно учтено влияние кубической анизотропии как на спектр колебательных ветвей, входящих в закон сохранения энергии, так и на векторы поляризации фононов. Даны

оценки вкладов продольных компонент квазипоперечных колебаний в скорости релаксации фононов для кубических кристаллов с положительной (Ge, Si, алмаз и InSb) и отрицательной (KCl, NaCl и GaAs) анизотропией модулей упругости. Показано, что квазиизотропное приближение не является адекватным для количественного описания анизотропии скоростей релаксации квазипоперечных фононов в кубических кристаллах.

Поэтому приближения, принятые в [2], при анализе „гигантского“ изотопического эффекта в коэффициенте поглощения ультразвука в кристаллах Ge, Si и алмаза могут приводить к большой погрешности. В настоящей работе в отличие от [2] влияние кубической анизотропии на спектр и поляризацию фононов в модели анизотропного континуума учитывается строго. Мы проанализируем угловые зависимости коэффициентов поглощения квазипоперечного ультразвука и уточним результаты, полученные в [2], для анизотропии „гигантского“ изотопического эффекта в коэффициенте поглощения в кристаллах Ge, Si и алмаза. Что касается векторов поляризации фононов, то для квазипродольных колебаний ограничимся рассмотрением чистых мод. Как показано в работе [7], погрешность, вносимая этим приближением, для продольных фононом мала и составляет менее 2% для кристаллов Ga, Si и алмаза. Для квазипоперечных фононов, распространяющихся в направлениях отличающихся от симметричных, максимальный вклад продольной компоненты в поперечно-продольные колебания, согласно работе [7], составляет 16.5% для Ge, 10% для Si и 8% для алмаза. Поэтому далее при расчете коэффициентов поглощения ультразвука в произвольном направлении волнового вектора мы учтем вклад продольной компоненты в поперечно-продольные колебания

аналогично тому, как это сделано в работе [8] при расчете скоростей релаксации фононов.

1. Коэффициент поглощения поперечного ультразвука в кристаллах германия, кремния и алмаза с различным изотопическим беспорядком

Коэффициент поглощения ультразвуковых волн $\alpha_\lambda(\mathbf{q})$ с волновым вектором \mathbf{q} и поляризацией λ пропорционален скорости релаксации фононов $v_{\text{ph}}^\lambda(\mathbf{q}, T)$ (см., например, [6,9])

$$\alpha_\lambda(\mathbf{q}, T) = \frac{v_{\text{ph}}^\lambda(\mathbf{q}, T)}{2S_\lambda(\mathbf{q})}, \quad (1)$$

где $S_\lambda(\mathbf{q}) = S_\lambda(\theta, \varphi)$ — фазовая скорость фононов, зависящая от угловых переменных θ и φ вектора \mathbf{q} , T — температура. Выражение (1) справедливо при выполнении неравенства $\omega_{q\lambda}\tau_{\text{ph}}^\lambda(\mathbf{q}, T) \gg 1$, ($\tau_{\text{ph}}^\lambda(\mathbf{q}, T) = 1/v_{\text{ph}}^\lambda(\mathbf{q}, T)$), $\omega_{q\lambda}$ — частота фонона с волновым вектором \mathbf{q} и поляризацией λ). Поэтому далее ограничимся рассмотрением интервала температур и волновых векторов \mathbf{q} , в котором это неравенство выполняется. Экспериментальные исследования поглощения ультразвука [6,9,10] показывают, что неравенство $\omega_{q\lambda}\tau_{\text{ph}}^\lambda(\mathbf{q}, T) \gg 1$ выполняется при достаточно низких температурах, а именно при температурах, меньших 50, 100 и 300 К для кристаллов германия, кремния и алмаза соответственно. Очевидно, что в указанных температурных областях процессы фонон-фононного рассеяния с перебросом неэффективны. В противоположном предельном случае $\omega_{q\lambda}\tau_{\text{ph}}^\lambda(\mathbf{q}, T) \ll 1$, который реализуется при более высоких температурах и соответствует механизму поглощения Ахиезера, правильнее рассматривать фононы как квазичастицы, движущиеся в плавно меняющемся поле звуковой волны. В этом случае необходимо учитывать процессы фонон-фононного переброса [6]. При выполнении неравенства $\omega_{q\lambda}\tau_{\text{ph}}^\lambda(\mathbf{q}, T) \gg 1$ доминирующий вклад в объемный коэффициент поглощения звуковых волн вносят рассеяние на дефектах, включая и изотопическое рассеяние, и нормальные процессы фонон-фононного рассеяния (см., например, [6]). Учет этих процессов релаксации и ограничимся в данной работе. Здесь мы рассмотрим поглощение длинноволнового поперечного ультразвука ($\hbar\omega_{\text{ph}} \ll k_{\text{B}}T$).

Выражение для скорости релаксации фононов на изотопическом беспорядке в кубических кристаллах, согласно [11,12], имеет вид

$$v_{\text{ph}i}(q_1, \lambda_1) = \pi g V_0 \omega_{q_1\lambda_1}^2 \times \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{q}_2\lambda_2} \delta(\omega_{q_1\lambda_1} - \omega_{q_2\lambda_2}) |(\mathbf{e}_{\mathbf{q}_1\lambda_1} \mathbf{e}_{\mathbf{q}_2\lambda_2}^*)|^2. \quad (2)$$

Здесь V_0 — объем, приходящийся на один атом, $\mathbf{e}_{\mathbf{q}\lambda}$ — вектор поляризации фононов, g — фактор изотопического беспорядка, $g = \sum_i C_i (\Delta M_i / \bar{M})^2$, где $\Delta M = M_i - \bar{M}$,

M_i — масса i -го изотопа, $\bar{M} = \sum_i C_i M_i$ — средняя масса изотопной композиции, а C_i — концентрация i -го изотопа. Выражение (2) можно представить в виде

$$v_{\text{ph}i}(q_1, \lambda_1) = \frac{g V_0 \omega_{q_1\lambda_1}^4}{8\pi^2} \Phi_{q_1\lambda_1}(\theta_1, \varphi_1),$$

$$\Phi_{q_1\lambda_1}(\theta_1, \varphi_1) = \sum_{\lambda_2=-1}^1 \int_{-1}^1 dx \int_0^{2\pi} d\varphi_2 \frac{|(\mathbf{e}_{\mathbf{q}_1}^{\lambda_1} \mathbf{e}_{\mathbf{q}_2}^{*\lambda_2})|^2}{(S_{\lambda_2}(\theta_2, \varphi_2))^3}. \quad (3)$$

Для изотропной среды несложно показать, что

$$\Phi_{q_1\lambda_1}(\theta_1, \varphi_1) = \frac{4\pi}{3} \left(\frac{1}{S_L^3} + \frac{2}{S_t^3} \right), \quad (4)$$

где S_L и S_t — скорости продольных и поперечных фононов. Для кубических кристаллов, воспользовавшись результатами, полученными в [7] для фазовых скоростей и векторов поляризации фононов, мы нашли, что функция Φ не зависит ни от поляризации, ни от углов рассеиваемого фонона

$$\Phi_{q_1\lambda_1}(\theta_1, \varphi_1) = \Phi = \frac{4\pi}{3} \left(\left\langle \frac{1}{S_L^3} \right\rangle + \left\langle \frac{1}{S_{t1}^3} \right\rangle + \left\langle \frac{1}{S_{t2}^3} \right\rangle \right),$$

$$\left\langle \frac{1}{S_\lambda^3} \right\rangle = \frac{1}{4\pi} \int d\Omega \frac{1}{(S_\lambda(\theta, \varphi))^3}. \quad (5)$$

Величины коэффициентов Φ для кристаллов германия, кремния и алмаза составляют $2.88 \cdot 10^{-16}$, $6.15 \cdot 10^{-17}$ и $5.19 \cdot 10^{-18}$ (s/cm)³ соответственно. Итак, для скорости релаксации фононов при рассеянии на изотопическом беспорядке в кубических кристаллах мы получили то же самое выражение, что и в работе [12],

$$v_{\text{ph}i}(q_1, \lambda_1) = \frac{\pi}{6} g V_0 \omega_{q_1\lambda_1}^2 D(\omega_{q_1\lambda_1}),$$

$$D(\omega_{q_1\lambda_1}) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{q}_2, \lambda_2} \delta(\omega_{q_1\lambda_1} - \omega_{q_2\lambda_2}), \quad (6)$$

которое можно представить в виде

$$v_{\text{ph}i} \cong B_i T_q^4, \quad T_q \equiv \hbar\omega_{q_i}/k_{\text{B}},$$

$$B_i = g(\hbar/k_{\text{B}})^4 (V_0\Phi/8\pi^2) = gB_i^*, \quad (6a)$$

где T_q — энергия ультразвукового кванта в градусах кельвина. Таким образом, скорости релаксации фононов на изотопическом беспорядке являются одинаковыми для продольных и поперечных фононов и зависят только от энергии рассеиваемого фонона. Величины коэффициентов B_i и B_i^* приведены в табл. 1. Они оказались меньше, чем их значения в одномодовом приближении [2] для поперечных фононов, в 1.38, 1.55 и 1.15 раза для кристаллов Ge, Si и алмаза соответственно. В связи с этим результаты, полученные в [2], для величин изотопического эффекта в коэффициентах поглощения ультразвука для этих кристаллов нуждаются в уточнении.

Согласно общепринятым представлениям [6,9,13–16], основным механизмом релаксации поперечных фононов в нормальных трехфононных процессах рассеяния является механизм Ландау–Румера [3], в котором слияние поперечного и продольного фононов порождает про-

Таблица 1. Значения параметров, определяющих скорости релаксации квазипоперечных фононов, в кристаллах германия, кремния и алмаза

Кристалл	$B_i^{\text{nat}}, \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-4}$	$B_i^*, \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-4}$	$B_0 \cdot 10^{24}, \text{cm}^4 \cdot \text{dyn}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-5}$		$B_0^{TLL}, \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-5}$			
			[100]	[110] (t_2)	[100]	[110] (t_1)	[110] (t_2)	[111]
Ge	7.3	$1.24 \cdot 10^4$	0.239	0.309	0.87	0.55	0.153	0.24
Si	0.46	$2.3 \cdot 10^3$	0.026	0.032	0.071	0.052	0.019	0.023
Алмаз	$4.13 \cdot 10^{-3}$	$5.5 \cdot 10^2$	$1.3 \cdot 10^{-5}$	$1.4 \cdot 10^{-5}$	0.0057	0.0045	0.00054	0.0016

дольный фонон ($T + L \rightarrow L$). Выражение для скорости релаксации фононов, распространяющихся в произвольном направлении относительно кристаллографических осей кристалла, в модели анизотропного континуума для этого механизма рассеяния получено в работе [8]. В отличие от ранее выполненных расчетов в нем точно учтено влияние кубической анизотропии как на спектр колебательных ветвей, входящих в закон сохранения энергии, так и на векторы поляризации фононов. В длинноволновом приближении при температурах, гораздо меньших температуры Дебая, для кристаллов кубической симметрии оно имеет вид [8]

$$\begin{aligned} v^{TLL}(\theta_1, \varphi_1) &= B_0^{TLL}(\theta_1, \varphi_1) T_q T^4, \\ B_0^{TLL}(\theta_1, \varphi_1) &= B_0 J(\theta_1, \varphi_1), \\ B_0 &= \frac{\pi^3 k_B^5}{15 \hbar^4 \rho^3 S_1(\theta_1, \varphi_1) \langle S_L \rangle^8}, \end{aligned} \quad (7)$$

где

$$\begin{aligned} J(\theta_1, \varphi_1) &= \int_{-1}^1 dx \frac{1}{\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi_2 \delta(\cos \theta_{12} - S^{**}) \\ &\times \frac{I(\theta_2, \varphi_2, \theta_1, \varphi_1)}{(1 + \Delta_2)^8}, \quad x = \cos \theta_2, \\ S^{**} &= \lim_{y \rightarrow 0} [S^*(1 - \Delta_2) + (\Delta_2 - \Delta_3)/y], \\ S^* &= S_t(\theta_1, \varphi_1)/S_L, \end{aligned}$$

$$\cos \theta_{12} = \sin \theta_1 \cos(\varphi_2 - \varphi_1) \sin \theta_2 + \cos \theta_1 \cos \theta_2. \quad (8)$$

Здесь ρ — плотность, угловые переменные θ_1 и φ_1 определяют направление волнового вектора звуковой волны \mathbf{q}_1 относительно кристаллографических осей. Значения коэффициентов B_0 и B_0^{TLL} для симметричных направлений приведены в табл. 1.

Спектр и векторы поляризации колебательных мод для произвольного направления волнового вектора определены в системе координат, связанной с ребрами куба. Величины $\Delta_2^L(\theta_2, \varphi_2)$ и $\Delta_3^L(\theta_3, \varphi_3)$ характеризуют анизотропию фазовых скоростей продольных фононов с волновыми векторами \mathbf{q}_2 и \mathbf{q}_3 :

$$\begin{aligned} \Delta_2^L(\theta_2, \varphi_2) &= (S_2^L(\theta_2, \varphi_2) - 1)/S_L, \\ S_L &= \langle S_L(\theta, \varphi) \rangle = \frac{1}{4\pi} \int d\Omega S_L(\theta, \varphi). \end{aligned} \quad (9)$$

Из закона сохранения импульса фононов угловые переменные θ_3 и φ_3 вектора \mathbf{q}_3 выражаются через угловые

переменные θ_1, φ_1 и θ_2, φ_2 волновых векторов \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_2 (см. подробнее в [8]). Максимальные величины $|\Delta_L(\theta, \varphi)|$ для кристаллов Ge, Si и алмаза составляют 0.08, 0.07 и 0.04 соответственно, поэтому можно ограничиться учетом членов, линейных по этой поправке, а величинами, квадратичными по этой поправке, пренебречь. Погрешность этого приближения составляет менее 1%. Выражение для матричного элемента, описывающего трехфононные процессы рассеяния квазипоперечных фононов в длинноволновом приближении, имеет вид [8]

$$\begin{aligned} I(\theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2) &= \left(2 \frac{q_1 q_2^3}{q_3} \right)^{-2} |V_{q_1 q_2 q_3}^{TLL}|^2 \\ &= \left\{ A_{\text{cub}}(\mathbf{e}_1 \mathbf{n}_2) \cos \theta_{12} + (2\tilde{c}_{155} + \Delta C) N_C \right. \\ &\quad + 2\tilde{c}_{155} N_{155} + 0.5\tilde{c}_{111} N_{111} + \tilde{c}_{112} N_{112} + (\mathbf{e}_1 \mathbf{n}_1) \\ &\quad \left. \times [0.5\tilde{c}_{112} \Delta N_{112} + 0.5\tilde{c}_{123} + (0.5c_{12} + c_{144})] \right\}, \end{aligned} \quad (10)$$

где

$$\begin{aligned} A_{\text{cub}} &= c_{12} + 3c_{44} + 2c_{144} + 4c_{456}, \\ y &= \frac{q_1}{q_2} = \frac{z_1}{z_2} \frac{(1 + \Delta_2)}{S^*(\theta_1, \varphi_1)}, \\ N_C &= \sum_i n_{1i} n_{2i}^2 [(\mathbf{e}_1 \mathbf{n}_2) n_{2i} + 0.5e_{1i}], \\ N_{112} &= \sum_i e_{1i} n_{1i} n_{2i}^2, \quad N_{111} = \sum_i e_{1i} n_{1i} n_{2i}^4, \\ N_{155} &= \sum_i e_{1i} n_{2i}^2 [n_{2i} \cos \theta_{12} + 0.5n_{1i}], \\ \Delta N_{112} &= \sum_i n_{2i}^2 n_{2i}^2, \quad \Delta N_{155} = \sum_i n_{1i} n_{2i}^3, \\ \tilde{c}_{111} &= c_{111} - 3c_{112} + 2c_{123} + 12c_{144} - 12c_{155} + 16c_{456}, \\ \Delta C &= c_{11} - c_{12} - 2c_{44}, \\ \tilde{c}_{112} &= c_{112} - c_{123} - 2c_{144}, \quad \tilde{c}_{155} = c_{155} - c_{144} - 2c_{456}, \end{aligned} \quad (11)$$

где c_{ij} — упругие модули второго порядка, а c_{ijk} — термодинамические модули упругости третьего порядка. Измеренные значения термодинамических модулей упругости второго и третьего порядков приведены в работе [17]. Значения модулей упругости \tilde{c}_{111} , \tilde{c}_{112} и \tilde{c}_{155} для кристаллов Ge, Si и алмаза приведены в работе [8]

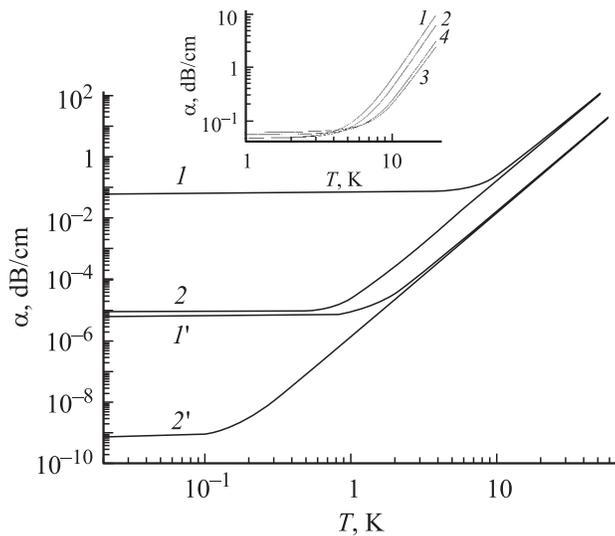


Рис. 1. Зависимости коэффициентов поглощения ультразвука от температуры в кристаллах Ge для медленной поперечной моды в направлении [011] при фиксированной энергии ультразвукового кванта $T_q = 0.48$ ($I', 2'$) и 4.8 К ($I, 2$) для кристаллов ^{nat}Ge ($g = 5.87 \cdot 10^{-4}$) (I, I') и ^{70}Ge (99.99%, $g = 0.816 \cdot 10^{-8}$) ($2, 2'$). На вставке приведены зависимости коэффициентов поглощения от температуры в кристаллах ^{nat}Ge при $T_q = 4.8$ К для различных кристаллографических направлений: I — для направления [001], 2 — для быстрой моды t_1 в направлении [101], 3 — для медленной моды t_2 в направлении [101], 4 — для направления [111].

(см. табл. 1). Первое слагаемое в формуле (10), пропорциональное A_{cub} , соответствует изотропному рассеянию, а остальные члены, содержащие модули упругости третьего порядка $\tilde{c}_{111}, \tilde{c}_{112}, \tilde{c}_{155}$ и ΔC , соответствуют анизотропному рассеянию. Эти члены отличают кубические кристаллы от изотропной среды — они обращаются в нуль при переходе к модели изотропной среды [1]. Следует отметить, что для произвольного направления волнового вектора \mathbf{q}_1 в отличие от направления [001], рассмотренного в [1], матричный элемент содержит ряд новых членов, пропорциональных модулям упругости третьего порядка \tilde{c}_{111} и \tilde{c}_{112} , а также слагаемое, пропорциональное величине $(\mathbf{e}_1 \mathbf{n}_1)$, которое учитывает продольную компоненту поперечно-продольных колебаний.

Учитывая согласно правилу Маттисена, что изотопическое рассеяние и нормальные процессы рассеяния фононов в механизме Ландау–Румера вносят аддитивный вклад в релаксацию поперечного звука, для коэффициента поглощения из формул (1), (6)–(11) найдем

$$\alpha_T(\theta_1, \varphi_1, T) = 8.68 \times (B_0^{TL}(\theta_1, \varphi_1)T_q T^4 + B_i T_q^4) / 2S_t(\theta_1, \varphi_1) \text{ [dB/cm]}. \quad (12)$$

Формулы (6)–(12) позволяют рассчитать зависимости коэффициентов поглощения поперечного ультразвука от направления волнового вектора при точном учете

кубической анизотропии в законе сохранения энергии в условиях конкуренции изотопического и ангармонических процессов рассеяния. На рис. 1 и 2 приведены зависимости коэффициентов поглощения поперечного ультразвука от температуры для кристаллов ^{nat}Ge и ^{70}Ge (99.99%), ^{nat}Si и ^{28}Si (99.983%), а также для природного алмаза с содержанием изотопа ^{13}C 1.1% ($g = 7.5 \cdot 10^{-5}$) и для алмаза с содержанием ^{13}C 0.01% ($g = 6.9 \cdot 10^{-7}$) при фиксированных энергиях ультразвукового кванта. Как видно из рисунков, изотопический эффект достигает достаточно высоких значений только для высокоэнергетических фононов, поскольку именно для них доминирует рэлеевское рассеяние на изотопическом беспорядке. Заметим, что при $T < T_q$ коэффициент α стремится к константе, характерной для изотопического рассеяния, а при $T \gg T_q$ выходит на зависимость T^4 , характерную для механизма Ландау–Румера. Различные высоты полок в начале координат показывают роль изотопического рассеяния. Следует отметить, что максимальный изотопический эффект имеет место в области температур $T \ll T_q$ ($T_q/T = z_1 > 1$). При этом отношение коэффициентов поглощения ультразвука $b_\alpha(T) = \alpha(^{nat}Ge) / \alpha(^{70}Ge(99.99\%))$ для кристаллов Ge при $T < T_q$ стремится к отношению факторов изотопического беспорядка $g_{nat} / g_{99.99\%}$: для Ge это отношение составляет порядка 7000, а для кремния с обогащением до 99.983% по изотопу ^{28}Si ($g = 3.2 \cdot 10^{-7}$) — порядка 630. Таким образом, изотопический эффект в коэффициенте поглощения ультразвука может достигать „гигантских“ величин в отличие от изотопических эффектов для теплопроводности и термоэдс в этих кристаллах [18–20]. Из вставки к рис. 1 видно, что максимальная величина коэффициента поглощения до-

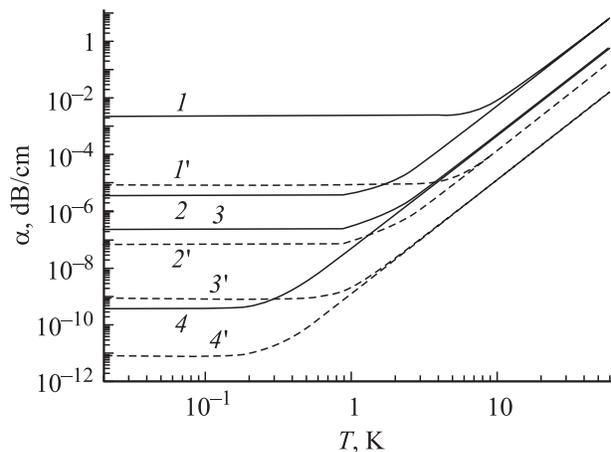


Рис. 2. Зависимости коэффициентов поглощения ультразвука от температуры в кристаллах Si ($1-4$) и алмаза ($1'-4'$) для медленной поперечной моды в кристаллографическом направлении [011] при фиксированных энергиях ультразвукового кванта $T_q = 0.48$ ($1, 2$) и 0.48 К ($3, 4$) для ^{nat}Si ($g = 2.01 \cdot 10^{-4}$) и ^{28}Si (99.983%, $g = 3.2 \cdot 10^{-7}$) соответственно, а также при $T_q = 4.8$ ($1', 2'$) и 0.48 К ($3', 4'$) для природного алмаза с содержанием изотопа ^{13}C 1.1% ($g = 7.5 \cdot 10^{-5}$) и алмаза с содержанием ^{13}C 0.01% ($g = 6.9 \cdot 10^{-7}$) соответственно.

Таблица 2. Величины коэффициентов $b_\alpha(T)$ для кристаллов Ge в различных кристаллографических направлениях для разных температур и значений параметра T_q

b_α	$T_q = 0.48$ K			$T_q = 1$ K			$T_q = 10$ K		
	1 K	4 K	10 K	1 K	4 K	10 K	1 K	4 K	10 K
b_α [100]	1.92	1.004	1	9.64	1.03	1.0009	3927	35	1.87
b_α [110] $_{t_2}$	5.77	1.02	1.0005	45.67	1.18	1.005	6201	172	5.49
b_α [110] $_{t_1}$	2.43	1.006	1.0002	14.4	1.05	1.002	4683	53	2.34
b_α [111]	4.35	1.01	1.0003	32.4	1.12	1.003	5856	122	4.15

стигается в кристаллах Ge для медленной поперечной моды в направлениях типа [101], а минимальная — для направлений типа [001]. Отношение максимальных величин коэффициентов поглощения к минимальным значениям составляет 1.29, 1.25, 1.1 для Ge, Si и алмаза соответственно. В направлениях [111] величины коэффициентов поглощения меньше, чем в направлениях типа [011], в 1.1, 1.09, 1.04 раза для Ge, Si и алмаза соответственно.

Для иллюстрации низкотемпературного поведения изотопического эффекта в различных кристаллографических направлениях в табл. 2 приведены значения коэффициента $b_\alpha(T)$ для разных температур и величин параметра T_q (частоте ультразвука 100 GHz соответствует $T_q = 4.8$ K). Из сравнения результатов, приведенных в табл. 2 и 3 работы [2], видно, что оценки анизотропии изотопического эффекта, выполненные в квазиизотропном приближении для спектра фононов [2], не являются адекватными для кристаллов германия. При фиксированной энергии ультразвукового кванта из условия $b_\alpha(T) = 2$ можно определить температуру $T_2 = (B_i T_q^3 / B_0^{TLL}(\theta, \varphi))^{1/4}$, при которой объемный коэффициент поглощения ультразвука в высокообогащенных кристаллах Ge, Si и алмаза (например, в кристаллах ^{70}Ge (99.99%)) будет в 2 раза меньше, чем в кристаллах с природным составом изотопов (например, в кристаллах $^{\text{nat}}\text{Ge}$). Оценки показывают, что при измерениях коэффициентов поглощения ультразвука на частоте 10 GHz ($T_q = 0.48$ K) величина T_2 равна 1.5, 1.3 и 1 K для Ge, Si и алмаза соответственно. Если проводить измерения поглощения ультразвука при температуре жидкого гелия ($T_2 = 4.2$ K), то из условия $b_\alpha(T) = 2$ находим, что частота ультразвука должна составлять 39 GHz ($T_q = 1.8$ K), 49 GHz ($T_q = 2.3$ K) и 71 GHz ($T_q = 3.4$ K) для Ge, Si и алмаза соответственно. Очевидно, что при температурах выше гелиевых измерения коэффициента поглощения ультразвука в кристаллах Ge необходимо проводить в терагерцевом диапазоне частот — порядка 0.1–0.5 THz, чтобы получить заметный изотопический эффект. Учитывая прогресс, достигнутый при изучении генерации, распространения и поглощения гиперзвуковых квантов терагерцевого диапазона [21–23], техническая возможность таких исследований представляется вполне реальной.

2. Анизотропия коэффициента поглощения поперечного ультразвука в кристаллах германия, кремния и алмаза в условиях конкуренции изотопического и ангармонических процессов рассеяния

Проанализируем угловые зависимости коэффициентов поглощения звуковых волн для двух наиболее актуальных случаев: 1) для волновых векторов звуковых волн q_1 , лежащих в плоскости грани куба ($\varphi_1 = 0$); 2) для волновых векторов звуковых волн q_1 , лежащих в диагональной плоскости ($\varphi_1 = \pi/4$). Для анализа этих зависимостей введем безразмерный коэффициент $\alpha_T^*(\theta_1, \varphi_1)$, нормированный на направление [001]

$$\alpha_T^*(\theta_1, \varphi_1) = \frac{S'_{[100]} (B_0^{TLL}(\theta_1, \varphi_1) T^4 + B_i T_q^3)}{S_r(\theta_1, \varphi_1) (B_{0[100]}^{TLL} T^4 + B_i T_q^3)} = \left(\frac{S'_{[100]}}{S_r(\theta_1, \varphi_1)} \right)^2 \frac{(J(\theta_1, \varphi_1) T^4 + B_i T_q^3 S_r(\theta_1, \varphi_1))}{(J_{[100]} T^4 + B_i T_q^3 S'_{[100]})}. \quad (13)$$

Из выражения (13) следует, что в условиях доминирующей роли изотопического $\alpha_{\text{iso}}^*(\theta_1, \varphi_1)$ или ангармонических процессов рассеяния $\alpha_{TLL}^*(\theta_1, \varphi_1)$ анизотропия коэффициентов поглощения ультразвука будет существенно отличаться:

$$\alpha_{\text{iso}}^*(\theta_1, \varphi_1) = \frac{S'_{[100]}}{S_r(\theta_1, \varphi_1)},$$

$$\alpha_{TLL}^*(\theta_1, \varphi_1) = \frac{S'_{[100]} B_0^{TLL}(\theta_1, \varphi_1)}{S_r(\theta_1, \varphi_1) B_{0[100]}^{TLL}} = \left(\frac{S'_{[100]}}{S_r(\theta_1, \varphi_1)} \right)^2 \frac{J(\theta_1, \varphi_1)}{J_{[100]}}. \quad (14)$$

Формулы (13), (14) позволяют рассчитать зависимости коэффициентов поглощения поперечного ультразвука от направления волнового вектора квазипоперечных фононов при точном учете кубической анизотропии в законе сохранения энергии в условиях конкуренции изотопического и ангармонических процессов рассеяния. Такие зависимости приведены на рис. 3, 4 для поперечных мод в кристаллах германия, кремния и алмаза. В расчетах использованы экспериментально определенные значения термодинамических модулей упругости второго c_{ik} и третьего c_{ijk} порядков, взятые из работы [17] (см. также табл. 1 в работе [8]).

Рассмотрим более подробно случай, когда волновые векторы звуковых волн \mathbf{q}_1 лежат в плоскости грани куба ($\varphi_1 = 0$). В этом случае для быстрой (изотропной) моды t_1 ($S_{r1}(\theta_1, 0) = \sqrt{c_{44}/\rho}$) с вектором поляризации, перпендикулярным рассматриваемой грани куба, при доминирующей роли изотопического рассеяния коэффициент поглощения ультразвука изотропен. При доминирующей роли ангармонических процессов анизотропии коэффициентов поглощения ультразвука в кристаллах Ge, Si и алмаза относительно невелика — коэффициенты

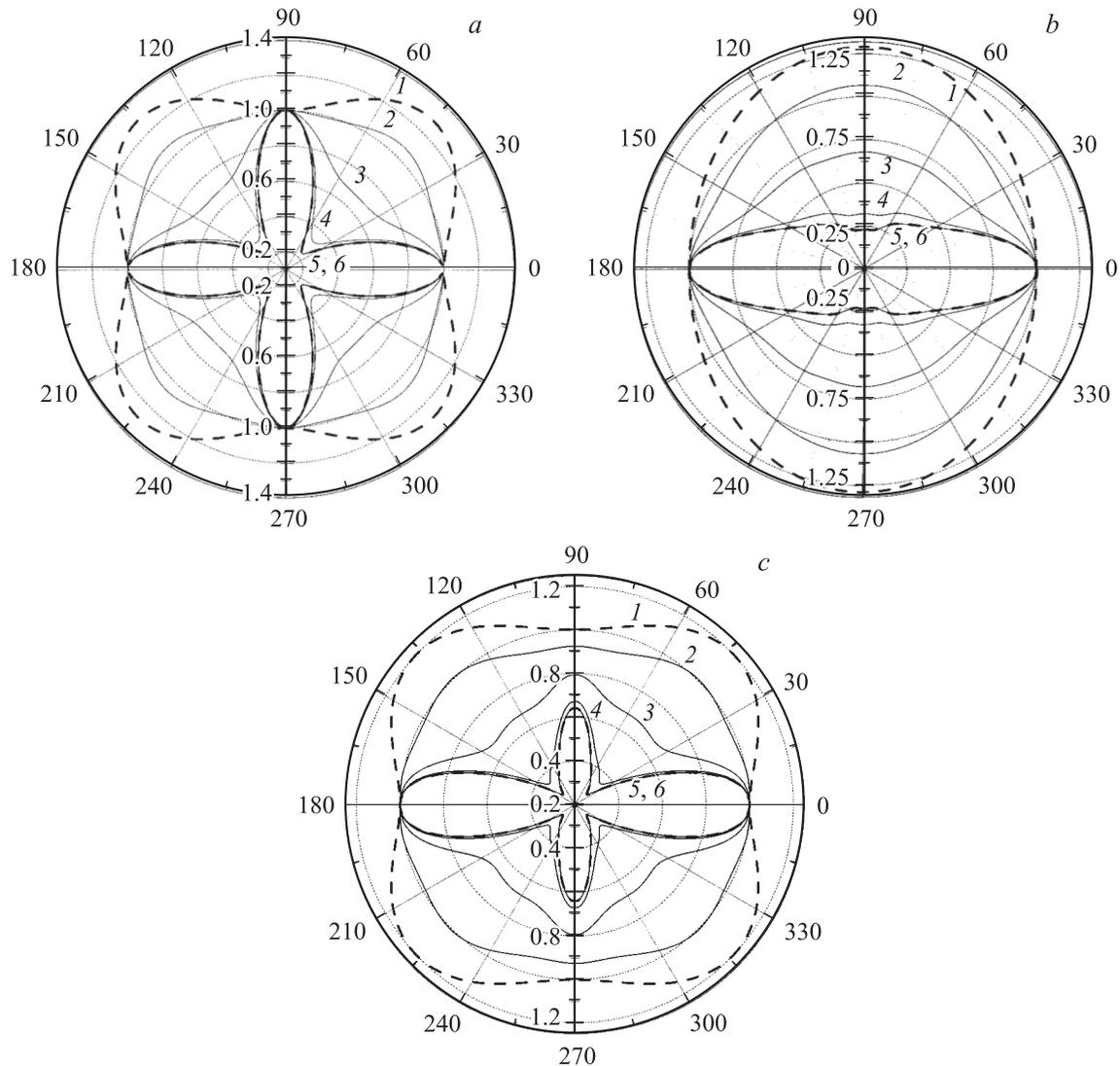


Рис. 3. Зависимости коэффициентов поглощения поперечного ультразвука от направления волнового вектора звуковой волны для кристаллов $^{\text{nat}}\text{Ge}$ при фиксированной энергии ультразвукового кванта $T_q = 4.8 \text{ K}$ и различных температурах. 1 — для изотопического рассеяния ($T \rightarrow 0 \text{ K}$), 2 — при $T = 4 \text{ K}$, 3 — при $T = 6 \text{ K}$, 4 — при $T = 10 \text{ K}$, 5 — при $T = 40 \text{ K}$, 6 — для ангармонических процессов рассеяния. *a* — для квазипоперечной моды t_2 с вектором поляризации в плоскости грани куба; *b* — для чистой моды t_1 с вектором поляризации, перпендикулярным диагональной плоскости; *c* — для квазипоперечной моды t_2 с вектором поляризации в диагональной плоскости.

$\alpha_{TLL}^*(\theta_1, 0)$ слабо меняются с изменением угла θ_1 . Максимальные величины коэффициентов $\alpha_{TLL}^*(\theta_1, 0)$ в кристаллах Ge, Si и алмаза достигаются в кристаллографическом направлении [001], а минимальные — в направлении [101]: значения коэффициента $\alpha_{TLL}^*(\pi/4, 0)$ составляют 0.64, 0.73 и 0.8 для Ge, Si и алмаза соответственно.

Более интересны результаты для медленной квазипоперечной моды t_2 с вектором поляризации в плоскости грани куба (рис. 3, *a*; 4, *a*). Как видно из рис. 3, 4 (кривые 1 и 1'), величины $\alpha_{\text{iso}}^*(\theta_1, 0)$ в кристаллах Ge, Si и алмаза при доминирующей роли изотопического рассеяния возрастают с увеличением угла θ_1 и достигают максимума в кристаллографических направлениях типа [101]. Значения $\alpha_{\text{iso}}^*(\pi/4, 0)$ для этих направлений составляют 1.29, 1.25, 1.1 для Ge, Si и алмаза соот-

ветственно. При доминирующей роли ангармонических процессов рассеяния в противоположность изотопическому рассеянию коэффициенты $\alpha_{TLL}^*(\theta_1, 0)$ значительно уменьшаются при переходе от направления [001] ($\theta_1 = 0$) к направлению [101] ($\theta_1 = \pi/4$). В этом случае значения $\alpha_{TLL}^*(\theta_1, 0)$ при $\theta_1 = \pi/4$ составляют 0.23, 0.33, 0.11 для Ge, Si и алмаза соответственно. Итак, при доминирующей роли ангармонических процессов рассеяния максимальная анизотропия коэффициента поглощения поперечного ультразвука имеет место для алмаза. Как видно из рис. 3, *a* (кривые 3–5), для кристаллов $^{\text{nat}}\text{Ge}$ с увеличением температуры от 4 до 40 K происходит переход от доминирующей роли дефектного (изотопического) рассеяния к доминирующей роли ангармонических процессов рассеяния, и угловые зависимости

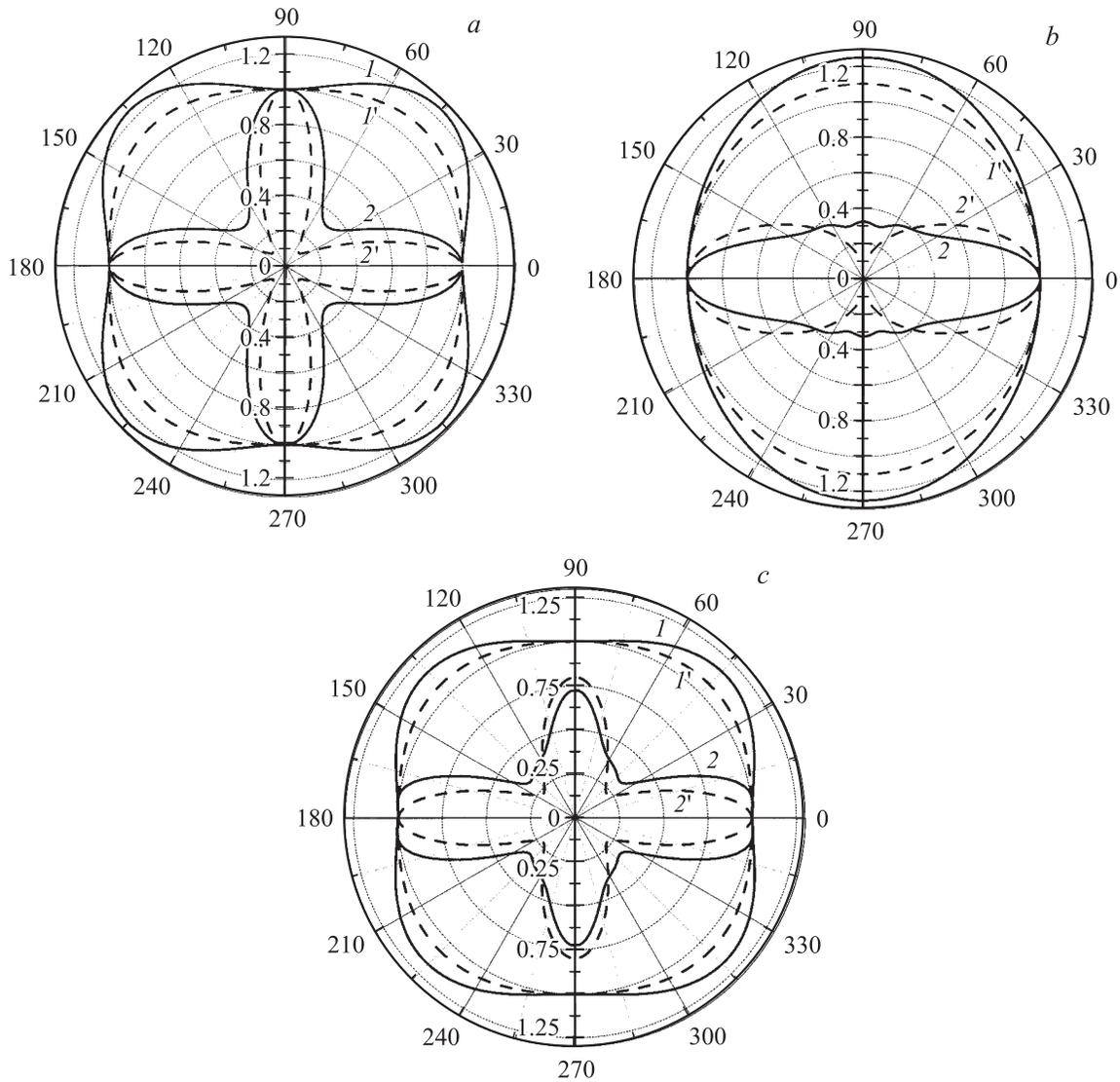


Рис. 4. Зависимости коэффициентов поглощения поперечного ультразвука от направления волнового вектора звуковой волны для кристаллов Si ($1, 2$) и алмаза ($1', 2'$) при фиксированной энергии ультразвукового кванта $T_q = 4.8$ К. 1 и $1'$ — для изотопического рассеяния ($T \rightarrow 0$ К), 2 и $2'$ — для ангармонических процессов рассеяния. a — для квазипоперечной моды t_2 с вектором поляризации в плоскости грани куба; b — для чистой моды t_1 с вектором поляризации, перпендикулярным диагональной плоскости; c — для квазипоперечной моды t_2 с вектором поляризации в диагональной плоскости.

коэффициента $\alpha_T^*(\theta_1, 0)$ при этом качественно меняются. Кривые 5 на этих рисунках, рассчитанных при $T = 40$ К, практически совпадают с кривыми 6, характерными для механизма Ландау–Румера. Следует отметить, что для кристаллов Ge с обогащением 99.99% по изотопу ^{70}Ge ($g = 0.816 \cdot 10^{-8}$) при $T_q = 4.8$ К (что соответствует частоте ультразвука 100 GHz) во всем температурном интервале от 4 до 40 К доминирующий вклад в поглощение ультразвука вносят ангармонические процессы рассеяния, и угловые зависимости коэффициентов $\alpha_T^*(\theta_1, 0)$ описываются кривыми 6. Очевидно, что исследование анизотропии коэффициентов поглощения ультразвука в кубических кристаллах позволяет определить доминирующий механизм релаксации ультразвука при данной температуре. Для этого достаточно измерить коэффициент

поглощения α_T для квазипоперечной моды t_2 с вектором поляризации в плоскости грани куба в направлениях $[100]$ и $[101]$ и определить отношение $\alpha_T^{*t_2}(\pi/4, 0)$. Если выполняется неравенство $1 \leq \alpha_T^{*t_2}(\pi/4, 0) \leq 1.29$, то доминирующий вклад в релаксацию ультразвука в кристаллах Ge вносит изотопическое рассеяние. Если коэффициент $\alpha_T^{*t_2}(\pi/4, 0)$ меньше единицы и стремится к значению 0.23, то доминирующий вклад в релаксацию ультразвука в кристаллах Ge вносят ангармонические процессы рассеяния.

Проанализируем теперь случай, когда волновые векторы звуковых волн \mathbf{q}_1 лежат в диагональной плоскости ($\varphi_1 = \pi/4$). Для чистой моды t_1 с вектором поляризации, перпендикулярным этой плоскости (кривая 6 на рис. 3, b , кривые 2 и 2' на рис. 4, b), при доминирующей роли

ангармонических процессов рассеяния коэффициенты $\alpha_{TLL}^{*1}(\theta_1, \pi/4)$ в кристаллах Ge, Si и алмаза монотонно уменьшаются с увеличением угла θ_1 и достигают минимальных значений для направления [011] ($\theta_1 = \pi/2$). Эти значения соответствуют моде t_2 в плоскости грани куба при $\theta_1 = \pi/4$, т.е. значения коэффициентов $\alpha_{TLL}^{*1}(\pi/2, \pi/4) = \alpha_{TLL}^{*2}(\pi/4, 0) = 0.23, 0.33, 0.11$ для Ge, Si и алмаза соответственно. Для квазипоперечной моды t_2 с вектором поляризации в диагональной плоскости (кривая *b* на рис. 3, *c*, кривые 2 и 2' на рис. 4, *c*) коэффициенты $\alpha_{TLL}^{*2}(\theta_1, \pi/4)$ уменьшаются от максимальных значений в направлении [001] ($\theta_1 = 0$), достигают минимума в окрестности угла $\theta_1 \cong \pi/4$, затем возрастают и при $\theta_1 = \pi/2$ приближаются к значениям $\alpha_{TLL}^{*1}(\pi/4, 0)$, соответствующим быстрой моде t_1 в плоскости грани куба. При доминирующей роли изотопического рассеяния (кривые 1 и 1' на рис. 3, 4) угловые зависимости коэффициентов поглощения ультразвука имеют протиположный характер: коэффициенты $\alpha_{iso}^*(\theta_1, \pi/4)$ монотонно возрастают с увеличением угла θ_1 и достигают максимума для направления [011] ($\theta_1 = \pi/4$), увеличиваясь в 1.29, 1.25, 1.1 раза для Ge, Si и алмаза соответственно. Как видно из рис. 3, *b* и *c* (кривые 3–5), для кристаллов ^{nat}Ge с увеличением температуры от 4 до 40 К происходит переход от доминирующей роли изотопического рассеяния к доминирующей роли ангармонических процессов рассеяния. При этом угловые зависимости коэффициента $\alpha_T^*(\theta_1, 0)$ для поперечных мод с волновыми векторами в диагональной плоскости качественно изменяются. Наиболее резкое изменение происходит в температурном интервале $4 < T < 10$ К, когда величина T_q сравнима с температурой. Для кристаллов Si и алмаза (рис. 4) нами рассмотрены два предельных случая: доминирующей роли ангармонических процессов (кривые 2 и 2') и доминирующей роли изотопического рассеяния (кривые 1 и 1').

В настоящей работе рассмотрен объемный коэффициент поглощения длинноволнового поперечного ультразвука. В образцах конечных размеров всегда присутствует граничное рассеяние звуковых квантов, которое играет важную роль в релаксации импульса звуковых волн при достаточно низких температурах. Оно вносит не зависящий от температуры вклад в поглощение ультразвука. Если этот вклад будет превышать вклад изотопического рассеяния, то изотопический эффект в поглощении ультразвука не будет наблюдаться для этих кристаллов. Более детальное обсуждение роли граничного рассеяния дано в работе [2].

Итак, в настоящей работе рассчитаны коэффициенты поглощения поперечного ультразвука в кристаллах германия, кремния и алмаза с различным изотопическим составом с учетом влияния кубической анизотропии на спектр и векторы поляризации колебательных мод. Проанализирована анизотропия „гигантского“ изотопического эффекта в поглощении поперечного ультразвука в изотопически модифицированных кристаллах германия, кремния и алмаза и уточнены результаты, полученные

в работе [2]. Исследована анизотропия коэффициента поглощения поперечного ультразвука в кристаллах германия, кремния и алмаза в условиях конкуренции изотопического и ангармонических процессов рассеяния. Рассмотрены два наиболее актуальных случая, когда волновые векторы ультразвуковых квантов лежат в плоскостях граней куба или в диагональных плоскостях. Показано, что для изотопического и ангармонических процессов рассеяния угловые зависимости коэффициентов поглощения поперечного ультразвука качественно различаются. Поэтому исследование анизотропии коэффициентов поглощения ультразвука в кубических кристаллах позволяет определить доминирующий механизм релаксации ультразвука.

Авторы выражают благодарность А.П. Танкееву, А.В. Инюшкину, Г.Д. Мансфельду, В.А. Волкову и С.Г. Алексееву за обсуждение результатов работы и критические замечания.

Список литературы

- [1] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев. ЖЭТФ **126**, 129 (2004); ФТТ **47**, 300 (2005).
- [2] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев, А.В. Инюшкин, В.И. Ожогин. ЖЭТФ **128**, 370 (2005).
- [3] L. Landau, J. Rumer. Sov. Phys. **11**, 18 (1937).
- [4] Ф.И. Федоров. Теория упругих волн в кристаллах. Наука, М. (1965).
- [5] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теория упругости. Наука, М. (1987).
- [6] B. Truel, C. Elbaum, B.B. Chick. Ultrasonic methods in solid state physics. Academic Press, N.Y.–London (1969).
- [7] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев. ФТТ **49**, 422 (2007).
- [8] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев, И.Ю. Арапова. ФТТ **49**, 1272 (2007).
- [9] Дж. Такер, В. Рэмpton. Гиперзвук в физике твердого тела. Мир, М. (1975).
- [10] W.P. Mason. Phys. Acoustics III (Pt B), 235 (1965).
- [11] P. Carruthers. Rev. Mod. Phys. **33**, 92 (1961).
- [12] S. Tamura. Phys. Rev. B **27**, 858 (1983).
- [13] В.Л. Гуревич. Кинетика фононных систем. Наука, М. (1980).
- [14] H.J. Maris. Phys. Acoustics VII, 280 (1971).
- [15] Б.М. Могилевский, А.Ф. Чудновский. Теплопроводность полупроводников. Наука, М. (1972).
- [16] R.A.H. Hamilton, J.E. Parrot. Phys. Rev. **178**, 1284 (1969).
- [17] И.Н. Францевич, Ф.Ф. Воронов, С.А. Бакута. Упругие постоянные и модули упругости металлов и неметаллов. Наук. думка, Киев (1982).
- [18] А.П. Жернов, А.В. Инюшкин. УФН **171**, 827 (2001); УФН **172**, 573 (2002).
- [19] A.V. Inyushkin, A.N. Taldenkov, A.M. Gibin, A.V. Gusev, H.-J. Pohl. Phys. Stat. Sol. (c) **1**, 2995 (2004).
- [20] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев, А.Н. Талденков, А.В. Инюшкин, В.И. Ожогин, К. Ито, Ю. Халлер. ЖЭТФ **123**, 1227 (2003).
- [21] C. Thomsen, H.T. Grahn, H.J. Maris, J. Tauc. Phys. Rev. B **34**, 4129 (1986).
- [22] S. Kojima, N. Tsumura, M. Takeda, S. Nishizawa. Phys. Rev. B **67**, 035 102 (2003).
- [23] N.M. Stanton, R.N. Kini, A.J. Kent, M. Henini, D. Lehmann. Phys. Rev. B **68**, 113 302 (2003).