

Распространение тепловых импульсов в неупорядоченных средах*

Е.И. Саламатов

*Физико-технический институт Уральского отделения РАН
ул. Кирова, 132, г. Ижевск, 426001, Россия
E-mail: salam@otf.pti.udm.ru*

Статья поступила в редакцию 19 декабря 2002 г.

Исследованы процессы распространения тепловых импульсов в непроводящих неупорядоченных системах, содержащих центры захвата тепловых фононов (двухуровневые системы (ДУС)), при низких температурах. Основными параметрами рассмотренной модели с двумя различными ДУС являются теплоемкость каждой из подсистем и время релаксации при неупругом рассеянии фононов на ДУС. Рассчитано влияние взаимодействия фононов с двухуровневыми центрами на время прихода теплового импульса на болометр при различных концентрациях центров. Теоретические расчеты сравниваются с экспериментальными данными по распространению слабонервновесных фононов в твердых растворах редкоземельных иттрий-алюминиевых гранатов и в двухфазных керамиках при гелиевых температурах.

Досліджено процеси розповсюдження теплових імпульсів у непровідних системах, які містять центри захоплення теплових фононів (дворівневі системи (ДРС)), при низьких температурах. Основними параметрами розглянутої моделі з двома різними ДРС є теплоємність кожної з підсистем та час релаксації при непружному розсіюванні фононів на ДРС. Розраховано вплив взаємодії фононів з дворівневими центрами на час приходу теплового імпульсу на болометр при відмінних концентраціях центрів. Теоретичні розрахунки порівнюються з експериментальними даними по розповсюдженню слабонерівновесних фононів у твердих розчинах рідкісноземельних ітрій-алюмінієвих гранатів та у двофазних кераміках при гелійових температурах.

PACS: 60.70.+f

Введение

Метод «тепловых импульсов», основанный на анализе процесса диффузионного распространения слабонервновесных фононов, инжектируемых «теплым» генератором ($S/T \ll 1$, S — превышение температуры генератора над температурой термостата T) в исследуемый образец, эффективен для изучения дефектной структуры кристаллических, аморфных и керамических образцов [1–3]. Основные анализируемые характеристики в подобных исследованиях — время прихода максимума и форма теплового импульса, регистрируемого болометром. В работе [4] предложена довольно простая модель описания процессов распро-

странения тепловых импульсов в твердых растворах $YErAlO$, в которых центрами захвата неравновесных фононов являются парамагнитные атомы эрбия. В этих системах время распространения тепловых импульсов аномально велико, на два порядка больше, чем в аналогичных системах с другими примесями редкоземельных элементов. В работе [4] показано, что этот эффект обусловлен большим различием величин теплоемкостей фононов и примесных двухуровневых подсистем (ДУС) парамагнитной природы, поскольку неупругое рассеяние фононов на ДУС приводит к изменению формы распространяющегося по образцу импульса и увеличению времени прихода максимума импульса t_m ,

* Доклад был представлен на 3-м Международном семинаре по физике низких температур в условиях микрогравитации (CWS-2002).

пропорционального возрастанию теплоемкости образца C при введении примеси: $1/C = c_{ph}/(c_t + c_{ph})$, где c_{ph} , c_t — теплоемкости фононов и подсистемы ДУС. Число таких фононов растет с возрастанием времени диффузионного распространения сигнала в отсутствие центров захвата фононов $t_0 = L^2/2D_0$ (L — длина образца, D_0 — коэффициент диффузии фононов, обусловленный только упругим рассеянием). Например, в предположении упругого рэлеевского рассеяния фононов на дефектах величина $t_0 \propto NL^2T^4$, где N — концентрация ДУС. Учет неупругого рассеяния приводит к сложной температурной зависимости времени прихода максимума сигнала фоновой неравновесности t_m на болометр в образцах, содержащих двухуровневые системы (с центрами захвата неравновесных фононов). Предложенная в [4] модель позволила описать основные аномалии в температурной и концентрационной зависимостях t_m . В настоящей работе представлено дальнейшее развитие этого подхода в применении к более сложным системам с учетом процессов взаимного фонон-фононного рассеяния и распада фононов.

Общий формализм

Распространение короткого теплового импульса в образце — существенно нестационарный процесс. Наличие центров захвата может приводить к пространственной неоднородности системы, связанной с координатной зависимостью состояния центров захвата от температуры, т.е. к пространственной дисперсии эффективных коэффициентов диффузии. Используя приближения, принятые в [4] для описания процессов распространения импульса в образце с двумя различными ДУС, форму импульса в фурье-представлении можно записать как

$$S(t, k) = A_1(k) \exp(-D_1(k)k^2t) + A_2(k) \exp(-D_2(k)k^2t) + A_3(k) \exp(-D_3(k)k^2t). \quad (1)$$

Коэффициенты диффузии $D_i(k)$ и весовые множители $A_i(k)$ в (1) являются решениями секулярного уравнения вида (система кинетических уравнений аналогична системе (1), (2) в [4]):

$$(p + N_1\Gamma_1 + N_2\Gamma_2 + k^2D_0 + \Gamma_a)S_q(p, k) - N_1\Gamma_1S_{1t}(p, k) - N_2\Gamma_2S_{2t}(p, k) = S(0), \quad (2)$$

$$[p + (c_{ph}/c_{1t})\Gamma_1]S_{1t}(p, k) - (c_{ph}/c_{1t})\Gamma_1S_q(p, k) = 0, \\ [p + (c_{ph}/c_{2t})\Gamma_2]S_{2t}(p, k) - (c_{ph}/c_{2t})\Gamma_2S_q(p, k) = 0.$$

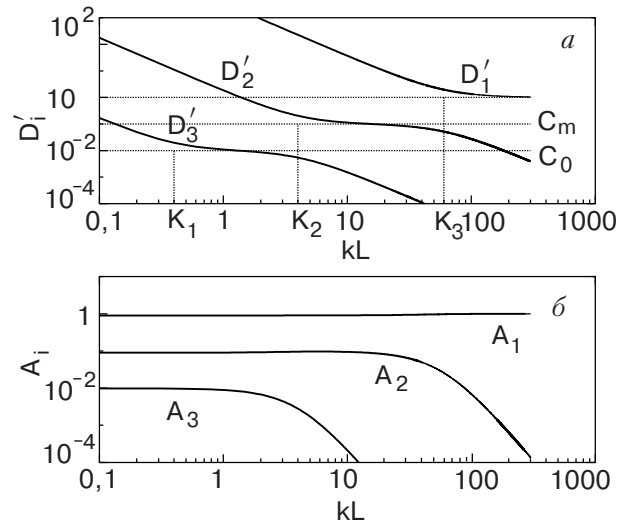


Рис.1. Пространственная дисперсия эффективных коэффициентов диффузии $D'_i = D_i/D_0$ (а) и весовых множителей A_i (б).

Здесь S_i — отклонение температуры подсистем ($i = q, 1t, 2t$) от температуры термостата; N_i — концентрация ДУС i -сорта; Γ_i — скорость рассеяния фононов в расчете на один дефект сорта i ; $c_{i,t} = (\Delta_i/T)^2 \exp(-\Delta_i/T)/(1 + \exp(-\Delta_i/T))^2$ и $c_{ph} = 4\pi^4(T/T_D)^3/5$ — теплоемкости ДУС и фононов соответственно; Δ_i — параметр ДУС; T_D — температура Дебая. Чтобы описать эффекты ангармонизма в рамках простой модели, принятой в работе [4], необходимо сделать два основных приближения. Во-первых, учитывать только процессы распада тепловых фононов. Это оправдано тем, что в экспериментах, которые обсуждаются ниже, всегда выполняется условие $n(\omega) \ll 1$ ($n(\omega)$ — число заполнения инжектируемых фононов). Во-вторых, считать, что длинноволновые фононы, образующиеся в процессе распада тепловых фононов, распространяются баллистически и не дают вклада в форму диффузионного сигнала, регистрируемого болометром. Соответствующий член Γ_a в уравнениях (2) описывает только убыль фононов.

Пространственная дисперсия эффективных коэффициентов диффузии, полученных из численного решения характеристического уравнения системы (2), показана на рис.1. В общем случае параметры $A_i(k)$ и безразмерные коэффициенты диффузии $D'_i = D_i/D_0$ зависят от пяти параметров, аналогичных введенным в [4]: $(k_i L)^2 = (L/L_0)^2 = 2t_0/\tau_i$, где τ_i — время релаксации фононов по отношению к распадам ($i = a$) и к захвату подсистемами ДУС ($i = 1, 2$); $1/C_i = c_{ph}/(c_{ph} + c_{it}N_i)$. Особые точки, указанные на рисунке, выражаются через эти параметры следующим образом:

$$K_1 = k_a L, \quad K_2 = \sqrt{(k_a L)^2 + (k_2 L)^2},$$

$$K_3 = \sqrt{(k_a L)^2 + (k_1 L)^2 + (k_2 L)^2},$$

$$C_m = C_1 k_1^2 / (k_a^2 + k_1^2 + k_2^2),$$

$$C_0 = c_{ph} / (c_{ph} + c_{1t} N_1 + c_{2t} N_2) =$$

$$= C_1 C_2 / (C_1 + C_2 - C_1 C_2).$$

Результаты и обсуждение

На рис.2 представлены результаты численного расчета формы теплового импульса (1) при различных температурах. При вычислениях предполагалось, что коэффициент диффузии определяется рэлеевским рассеянием: $D_0 = v^2 / 3 B T^4$; $\Gamma_i = \Gamma_{0i} \exp(-\Delta_i / T)$, и для скорости фононного распада использовано выражение $\Gamma_a = A T^5$. Вычисления проведены при следующих значениях параметров: $B = 1200 \text{ c}^{-1} \cdot \text{K}^{-4}$, $A = 10^{-2} \text{ c}^{-1} \cdot \text{K}^{-5}$, $\Delta_1 = 4,5 \text{ K}$, $x_1 = 0,06$, $\Delta_2 = 29 \text{ K}$, $x_2 = 0,6$, $T_D = 630 \text{ K}$, $v = 7 \cdot 10^5 \text{ см} \cdot \text{с}^{-1}$, $L = 0,5 \text{ см}$, где x — концентрация ДУС, выраженная в формульных единицах $\text{Y}_{3-x}\text{Er}_x\text{Al}_5\text{O}_{12}$. Расчетные кривые вполне удовлетворительно согласуются с экспериментальными зависимостями, наблюдавшимися для твердых растворов $\text{Y}_{3-x}\text{Er}_x\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (см., например, [3], рис. 5), что указывает на пригодность используемой модели.

В последующем рассмотрении ограничимся анализом только медленных процессов, которые доминируют в режиме «узкого фононного горла». Как показано в [4], этот режим возникает, когда время обмена энергией между фононами и ДУС становится много меньше, чем диффузионное время t_0 . В этом случае время распространения фононов определяется только эффективным коэффициентом диффузии $D_{\text{eff}} = C_0 D_0$ (плато на нижней кривой рис.1) и не зависит от τ_1 и τ_2 :

$$t_m(T) \simeq \frac{\sqrt{1 + 4k_a^2(T)} - 1}{2k_a^2(T)} t_0(T) / C_0. \quad (3)$$

Для анализа процессов распада рассмотрим кристалл без центров захвата, полагая $C_0 = 1$. Как следует из (3), процессы распада приводят к немонотонной зависимости $t_m(T)$. При низких температурах время прихода максимума растет как T^4 , а при высоких падает по закону $T^{-1/2}$. Такое поведение t_m , наблюдающееся в системе $\text{Al}_{1-x}\text{Lu}_x\text{AlO}_3$ [5], можно объяснить большой скоростью распада фононов.

Учет процессов распада позволяет объяснить сильную температурную зависимость отрицательной производной $dt_m(T)/dT$, характерную для систем с большим ($x > 1,5$) содержанием атомов эрбия [3]. Как показано в [4], зависимость $t_m(T)$, рассчи-

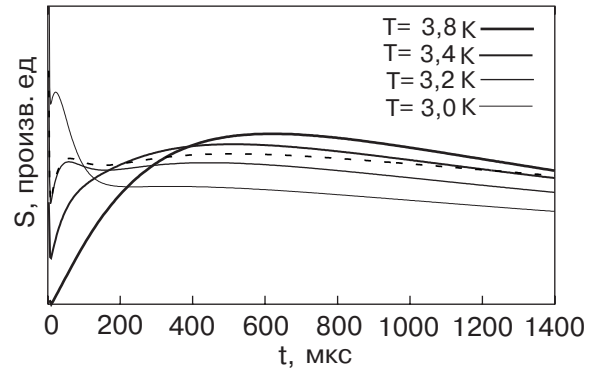


Рис. 2. Форма теплового импульса (сигнала фононной неравновесности), рассчитанная с учетом неупругого рассеяния фононов на двух двухуровневых подсистемах и процессов распада в фононной системе при различных температурах. Пунктирная кривая рассчитана при $A = 0$ и $T = 3,2 \text{ K}$.

танная без учета процессов распада для одной ДУС, имеет немонотонный характер: вначале (при $T \leq \Delta$) время экспоненциально возрастает, а при высоких температурах $t_m(T)$ падает по закону, близкому к $1/T$ ($\Delta \ll T_D$). Процессы распада могут приводить к более сильной степенной зависимости на высокотемпературном участке кривой $t_m(T)$, так что при больших значениях константы ангармонизма $t_m(T) \propto 1/T^{5,5}$.

Тот факт, что в режиме «узкого фононного горла» время распространения фононов не зависит от значений τ_1 и τ_2 , позволяет использовать полученные результаты для более широкого класса систем. Представляется, что к таким системам могут быть отнесены двухфазные керамики, состоящие из диэлектрической матрицы с небольшим содержанием металлических включений (керметы). В самом деле, высокая электронная теплопроводность металлических частиц позволяет в первом приближении считать их точечными центрами захвата энергии фононов, при этом электронная теплоемкость частиц при температурах эксперимента (2–4 К) может быть гораздо больше, чем фононная теплоемкость матрицы. Это должно приводить к малым значениям параметра C_0 , который, согласно предлагаемой модели, и определяет задержку времени распространения теплового импульса в таких системах по сравнению с системами без центров захвата фононов. Вследствие разной температурной зависимости теплоемкости электронной и фононной подсистем вклад металлической фазы в формирование сигнала фононной неравновесности может быть экспериментально наблюдаемым.

В работе [6] проведены исследования времени прохождения теплового импульса через однофазные корундовые Al_2O_3 керамики и керметы на основе корунда с добавлением стали до 20 весовых процентов. Оценим значение параметра $C_0(T) =$

$= (1 - y)c_{ph} / [(1 - y)c_{ph} + yc_{Me}]$, где $c_{Me} = \gamma T$ — теплоемкость электронной системы. Температура Дебая корунда равна 1042 К. Полагая, что величина γ для железа равна $4,9 \cdot 10^{-3}$ Дж/(моль · К²) [7], получаем: $D_{eff} = C_0 D_0 = 0,01 D_0$ для концентрации металлической фазы $y = 0,2$ и температуры $T = 3,8$ К. Приведенная оценка хорошо согласуется с экспериментом [6], если считать, что в качестве D_0 можно взять коэффициент диффузии «базового» образца. Поскольку коэффициент диффузии в однофазных керамиках довольно сложным образом зависит от способа приготовления и термообработки образцов [8], последнее справедливо только для образца 1, который отжигался при той же температуре, что и «базовый» (см. [6]).

При выполнении условия $(1 - y)c_{ph} \gg yc_{Me}$ температурная зависимость эффективного коэффициента диффузии принимает вид $D_{eff}(T) = D_0(T)/T^2$. При слабой зависимости D_0 от температуры это может приводить к изменению знака производной dD/dT при переходе от «базового» образца к керметам, что и наблюдалось экспериментально [6]. На рис. 3 представлены зависимости $D_{eff}(T)$ для $\gamma = 4,9 \cdot 10^{-3}$ Дж/(моль · К²) и различных значений y в предположении, что $D_0 \propto T^{-0,75}$. Неопубликованные экспериментальные результаты, предоставленные нам авторами работы [6], показаны квадратами. Как видно на рисунке, рассчитанные кривые находятся в хорошем соответствии с этими экспериментальными данными. Однако для окончательных выводов требуется проведение дополнительных экспериментов.

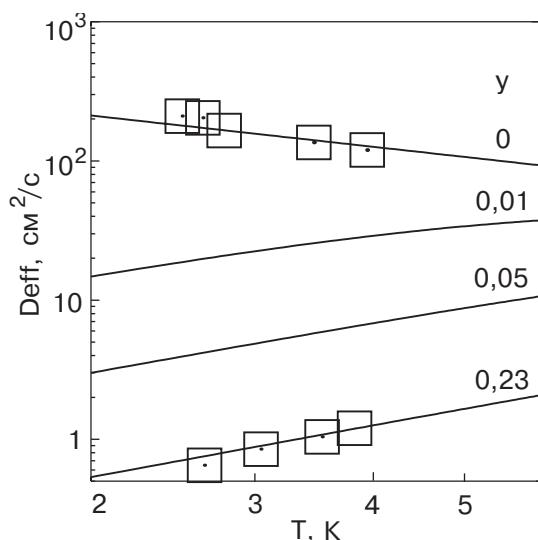


Рис. 3. Температурная зависимость эффективного коэффициента диффузии при различных значениях концентрации металлической фазы y ; \square — экспериментальные точки для «базового» образца (вверху) и образца 1 (внизу) [6].

Заключение

Уточнение модели, предложенной в работе [4], позволяет адекватно описать большое число экспериментальных результатов, полученных при изучении распространения фононов в образцах, содержащих примесные двухуровневые системы. Общий характер введенных параметров дал возможность сравнить наши результаты с экспериментальными данными, полученными как для твердых растворов иттрий-эрбиевых гранатов, где центрами захвата являются парамагнитные атомы эрбия, так и для диэлектрических керамик с металлическими включениями в качестве центров захвата.

Автор благодарен С.Н. Иванову и Е.Н. Хазанову за плодотворные дискуссии и предоставленную возможность воспользоваться экспериментальными данными до их опубликования. Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты № 03-02-16233 и 01-02-96462).

1. R.J. van Gutfeld and A.H. Nethercot Jr., *Phys. Rev. Lett.* **12**, 641 (1964).
2. С.Н. Иванов, Е.Н. Хазанов, *ЖЭТФ* **88**, 294 (1985).
3. С.Н. Иванов, А.Г. Козорезов, А.В. Таранов, Е.Н. Хазанов, *ЖЭТФ* **100**, 1591 (1991).
4. Е.И. Саламатов, *Phys. Solid State* **44**, 978 (2002).
5. Б.А. Данильченко, С.Н. Иванов, Д.В. Поплавский, А.В. Таранов, Е.Н. Хазанов, *ЖЭТФ* **112**, 326 (1997).
6. S.N. Ivanov, E.N. Khazanov, A.V. Taranov et al. *Phys. Solid State* **43**, 665 (2001).
7. И.С. Григорьев, Е.З. Мейлихов, *Физические постоянные*, Справочник, Наука, Москва (1991).
8. С.Н. Иванов, А.Г. Козорезов, А.В. Таранов, Е.Н. Хазанов, *ЖЭТФ* **102**, 600 (1992).

Propagation of heat pulses in disordered media

E.I. Salamatov

The processes of propagation of heat pulses in disordered media with nonequilibrium thermal phonon trapping centers (two-level systems, TLS) are studied at helium temperatures. The main parameters of the model in question with two different TLS are the heat capacity of each of the subsystems and the relaxation time on inelastic phonon scattering by TLS. The effect of phonon–two-level center interaction on arrival time of a heat pulse is calculated for different concentrations of the centers. The theoretical results are compared with the low-temperature experimental data on propagation of weakly nonequilibrium phonons in solid solutions of rare-earth yttrium aluminium garnets and two-phase ceramics.