

УДК 621.315.592 : 534.28

ПОГЛОЩЕНИЕ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН
В КРИСТАЛЛАХ $YAlO_3$ и $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3$ С. Н. Иванов, А. Г. Козорезов, В. В. Медведь,
А. Б. Рахманов, С. А. Смирнова

Показано, что резкая зависимость коэффициента поглощения (КП) продольных акустических волн (АВ) от температуры при низких температурах в $YAlO_3$ обусловлена дисперсией скорости акустических фононов. Объяснены особенности поглощения продольных и сдвиговых АВ в твердом растворе $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3$. Наличие в этих кристаллах интенсивных процессов квазупругого рассеяния фононов приводит к существенному изменению величины и характера поглощения АВ по сравнению с чистым кристаллом (матрицей). Измерены скорости продольных и сдвиговых АВ в этих кристаллах.

Алюминат иттрия ($YAlO_3$) известен как перспективный лазерный материал [1-3]. Он относится к кристаллам ромбической сингонии пространственной группы D_{2h}^{18} . Параметры элементарной ячейки $a=5.330 \text{ \AA}$, $b=5.180 \text{ \AA}$, $c=7.375 \text{ \AA}$; $\alpha=91.6^\circ$, $\beta=\gamma=90^\circ$, плотность 5.18 г/см^3 , температура плавления 1875°C , теплопроводность (при 25°C) $0.11 \text{ Вт/см}\cdot\text{град}$, твердость, по Кнуппу, 1310 [4].

Приведенные физические характеристики $YAlO_3$ свидетельствуют (см. классификацию работы [5]) о его перспективности как материала для микроволновой акустики. Однако акустические свойства этого кристалла не исследованы. Еще одно свойство $YAlO_3$ привлекательно для акустических исследований — возможность получения на его основе твердых растворов путем замещения иттрия на атомы редкоземельных элементов [2]. В твердых растворах замещения имеет место сильное фонон-примесное рассеяние, и распространение АВ в них обладает рядом интересных особенностей [6-9].

Наиболее подробно изучены твердые растворы итрий-редкоземельного алюминиевого граната (ИАГ : R). В отличие от ИАГ : R кристаллы алюмината иттрия обладают более низкой симметрией и в них (как будет показано в дальнейшем) заметную роль играют эффекты дисперсии скорости акустических фононов. Поэтому исследование распространения АВ в твердых растворах алюмината иттрия представляют особый интерес.

Кристаллы $YAlO_3$ и $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3$ выращивались методом горизонтальной направленной кристаллизации в молибденовых тиглях. Образцы ориентировались вдоль направления $\langle 001 \rangle$. Для них были измерены поглощение, скорость и температурный коэффициент задержки (ТКЗ) продольных и сдвиговых АВ, которые возбуждались пленочными пьезопреобразователями из окиси цинка. Измерения поглощения АВ проводились стандартным эхо-импульсным методом в диапазоне частот $0.5-9.4 \text{ ГГц}$ и в интервале температур $4.2-300 \text{ К}$. Измерения скорости осуществлялись с помощью задержанной развертки на осциллографе С1-70. ТКЗ определялся по резульатам измерений скорости в интервале $T \approx 80-300 \text{ К}$.

В кристаллах $YAlO_3$, ориентированных в направлении $\langle 001 \rangle$, скорости АВ (см/с) равны: $v_{пр} \approx 7.94 \cdot 10^5$, $v_{сдв}^s \approx 5.44 \cdot 10^5$, $v_{сдв}^m \approx 4.39 \cdot 10^5$. Измеренные значения скоростей и значение плотности из [4] позволили опреде-

лить ряд модулей упругости второго порядка (дин/см²): $C_{55} \approx 32.7 \cdot 10^{11}$, $C_{22} \approx 15.3 \cdot 10^{11}$, $C_{33} \approx 10.5 \cdot 10^{11}$.

Значение ТКЗ для продольных АВ, усредненное в интервале температур 80—300 К, оказалось равным $(2 \div 3) \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, что не хуже, чем в некоторых традиционных акустических материалах (для $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ — $4 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$). Скорости продольных и сдвиговых АВ в образцах $\text{Y}_{0.9}\text{Lu}_{0.1}\text{AlO}_3$ той же ориентации, что и матрица, возросли: $v_{\text{пр}} \approx 8.39 \cdot 10^5$, $v_{\text{сдв}} \approx 4.7 \times 10^5 \text{ см/с}$; ТКЗ $\approx 6 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$. Это указывает на увеличение соответствующих модулей упругости второго порядка при замещении части атомов иттрия на атомы лютеция, так как при введении лютеция увеличивается плотность кристалла ($M_{\text{Lu}} \approx M_{\text{Y}}$, $\rho/\rho' \approx 0.97$).

Зависимости КП продольных АВ от температуры в YAlO_3 для ряда частот показаны на рис. 1. В области $T \approx 30 \div 50 \text{ K}$ КП продольных АВ не зависит от частоты и пропорционален T^{7+9} . При $T > 70 \text{ K}$ зависимость КП от температуры становится слабее, и в области температур 200—300 К КП практически не зависит от температуры.

Зависимость КП продольных АВ вида $\alpha \sim T^{7+9} \omega_s^0$ в некотором частот-

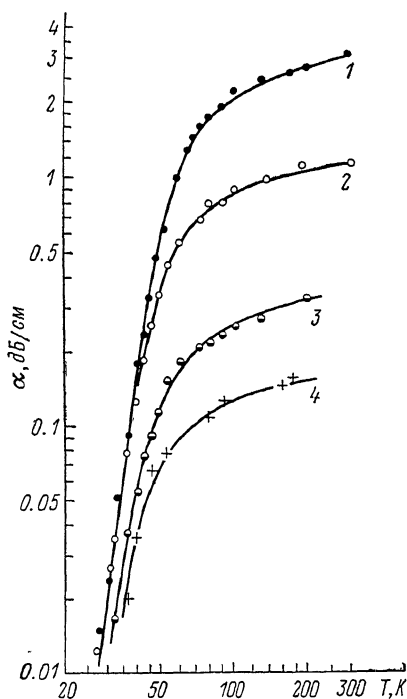


Рис. 1. Зависимость поглощения продольных АВ от температуры в YAlO_3 для частот 2.5 (1), 1.5 (2), 0.8 (3), 0.5 ГГц (4).

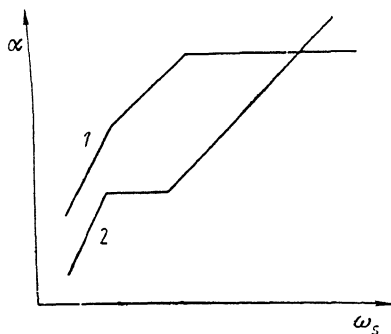


Рис. 2. Теоретические зависимости КП продольных АВ от частоты.

ном и температурном интервале может быть связана с дисперсией скорости акустических фононов или с анизотропией модулей упругости третьего порядка [10].

Идентифицировать природу участка T^{7+9} на температурной зависимости КП можно по поведению КП в области низких температур. При влиянии дисперсии на процесс взаимодействия зависимость типа T^{7+9} должна сохраниться и в области еще более низких температур. При анизотропии упругих модулей третьего порядка с понижением температуры и ростом параметра $\omega_s \tau_f$ (где ω_s — частота АВ, τ_f — время фонон-фононной релаксации) температурная зависимость КП ослабляется и должна следовать закону T^4 . На эксперименте, однако, при $T \leq 10 \div 15 \text{ K}$ величина КП очень мала и сколько-нибудь надежные измерения невозможны.

В этих условиях более информативным может оказаться исследование зависимостей КП от частоты. На рис. 2 схематически изображены теоретические зависимости КП продольных АВ от частоты: 1 — для кристалла с заметной дисперсией скорости акустических фононов, 2 — для кристалла с сильной анизотропией упругих модулей третьего порядка. На обеих зависимостях имеются участки, где КП не зависит от частоты. Для кри-

сталла с дисперсией на этом участке температурная зависимость должна следовать закону T^7 , а для кристалла с сильной анизотропией модулей упругости третьего порядка — T^9 [10]. Характер зависимости КП АВ от частоты в рассматриваемых случаях различный. Так, область «плато» в кристалле с дисперсией сменяет область линейного роста и «плато» простирается вплоть до самых высоких частот, пока основной вклад в поглощение

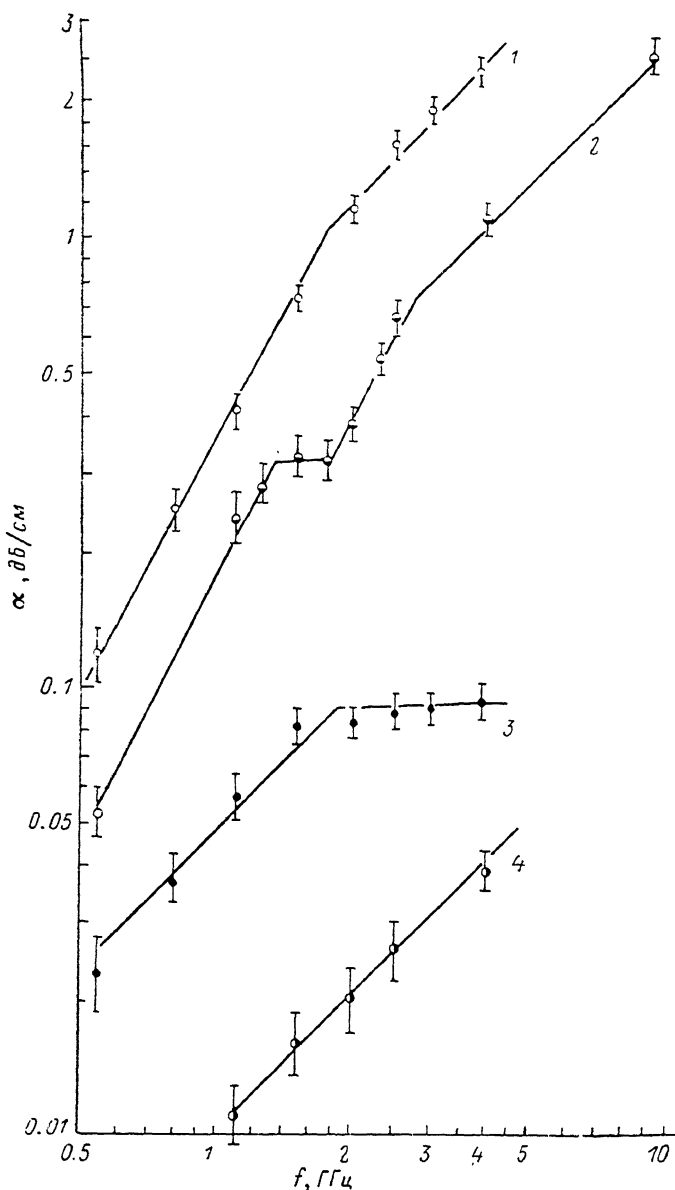


Рис. 3. Зависимость поглощения продольных АВ от частоты в $YAlO_3$ (1, 3) и $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3$ (2, 4). $T \approx 80$ (1, 2), ≈ 35 (3), ≈ 30 К (4).

вносят трехфононные процессы взаимодействия почти коллинеарных фононов. Для кристаллов с сильной анизотропией модулей упругости третьего порядка характерным является переход от квадратичной зависимости КП в ахизеровском режиме к слабой зависимости («плато») при более высоких частотах, которая затем сменяется участком линейного роста.

На рис. 3 приведены экспериментальные зависимости КП продольной АВ от частоты. Кривая 1 ($T \approx 80$ К) иллюстрирует переход от механизма

Ахизера $\alpha \sim \omega_s^2$ к трехфононному механизму взаимодействия $\alpha \sim \omega_s^3$, т. е. иллюстрирует левый перегиб кривой 1 рис. 2. При $T \approx 35$ К (кривая 3) на частотах выше 1.8 ГГц КП продольных АВ имеет «плато» ($\alpha \sim \omega_s^0$), которое сменяет линейную зависимость КП от частоты (правый перегиб кривой 1 на рис. 2). Зависимость КП продольных АВ от частоты свидетельствует о проявлении эффектов дисперсии скорости акустических фононов в кристаллах $YAlO_3$.

Если кристаллы содержат большое количество примесей, то в поглощении продольных АВ возникает ряд особенностей, обусловленных конкуренцией между процессами упругого рассеяния фононов на примесях и процессами фонон-фононного взаимодействия [7]. Отличия в характере поглощения АВ в примесном кристалле и матрице возникают в области температур, которая для матрицы соответствует переходу от ахизеров-

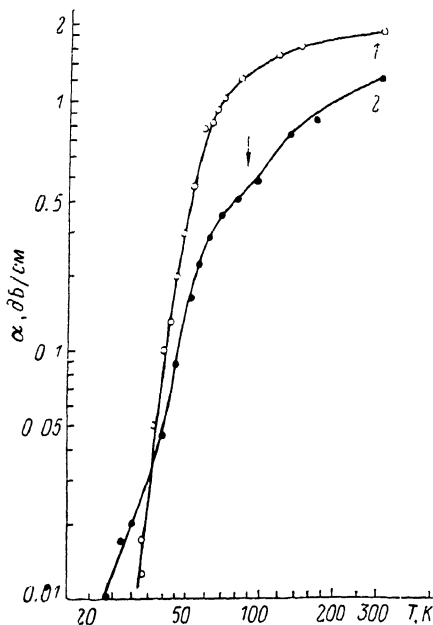


Рис. 4. Зависимость поглощения продольных АВ от температуры на частоте 2 ГГц в $YAlO_3$ (1) и $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3$ (2).

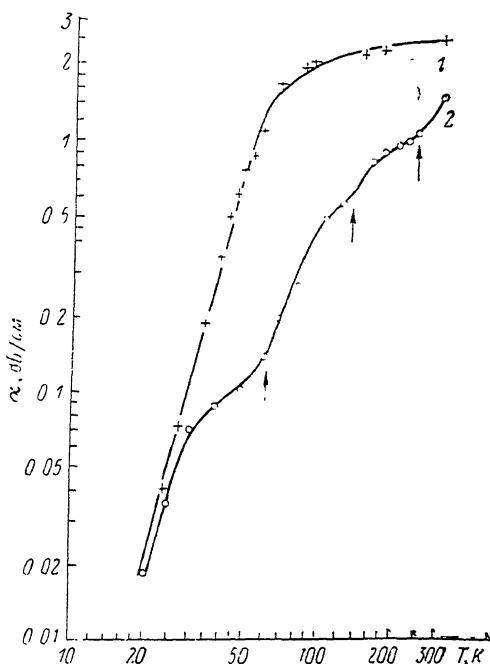


Рис. 5. Зависимость поглощения медленной сдвиговой АВ в $YAlO_3$ (1) и $Y_{0.9}Lu_{0.1}AlO_3$ (2) от температуры на частоте 1.5 ГГц.

ского режима поглощения к поглощению из-за трехфононных взаимодействий, т. е. при $\omega_s \tau_f \approx 1$. Для СВЧ диапазона эта область температур порядка нескольких десятков градусов Кельвина (см., например, рис. 3, 3), поэтому все указанные особенности легко наблюдались на эксперименте. Покажем, что и в кристаллах с примесями эффекты дисперсии фононов и анизотропии упругих модулей третьего порядка приводят к качественно разным особенностям на зависимости КП продольных АВ от температуры.

Рассмотрим сначала случай, когда заметную роль играет дисперсия фононов. В области высоких температур ($\omega_s \tau_f \ll 1$) поглощение в примесном кристалле не отличается от поглощения в матрице, если предположить, что τ_f одинаково в кристалле с примесями и матрице. В области более низких температур ($\omega_s \tau_f > 1$, но $\omega_s \tau_0 < 1$; τ_0 — время фонон-примесной релаксации) на температурной зависимости КП в примесном кристалле возникает уменьшение поглощения по сравнению с матрицей [7]. При дальнейшем понижении температуры и переходе к режиму трехфононных взаимодействий ($\omega_s \tau_f, \omega_s \tau_0 \gg 1$) зависимости и величина КП в примесном кристалле и матрице вновь должны оказаться идентичными. При еще более низких температурах температурная зависимость

КП в матрице станет сильной ($\sim T^7$) из-за того, что дефицит энергии в трехфононном процессе с участием продольных фононов не может быть покрыт «размазкой» из-за столкновений фононов. В примесном кристалле в тех же условиях трехфононные процессы тем не менее интенсивны по-прежнему, так как «размазка» \hbar/τ здесь определяется меньшим временем фонон-примесной релаксации. Зависимость от температуры здесь более плавная, а абсолютная величина КП выше, чем в матрице. Итак, в случае дисперсии фононов на температурной зависимости КП в примесном кристалле по сравнению с матрицей появляются две характерные области. В первой из них поглощение в примесном кристалле ниже, а во второй выше, чем в матрице.

Иначе должна выглядеть температурная зависимость поглощения в примесном кристалле по сравнению с матрицей в условиях анизотропии упругих модулей третьего порядка. Здесь при переходе к области температур, где в матрице поглощение определяется трехфононными взаимодействиями ($\omega_s \tau_f > 1$, но $\omega_s \tau_0 < 1$), в примесном кристалле не должно наблюдаться уменьшение поглощения по сравнению с матрицей и в обоих случаях КП $\sim T^9 \omega_s^0$ [7, 10].

Однако начиная с некоторой температуры характер температурной зависимости изменится как в примесном кристалле, так и в матрице. В примесном кристалле режим взаимодействия АВ с фононами при условии $\omega_s \tau_0 < 1$ все еще определяется наличием столкновений фононов с примесями. При $\omega_s \tau_0 \tau_f > 1$ поглощение контролируется рассеянием фононов на примесях и $\alpha \sim T^4 \omega_s^2 \tau_0(T)$ [7]. В матрице в тех же условиях могут реализоваться две возможности: а) поглощение по-прежнему следует закону $\alpha \sim T^9 \omega_s^0$; б) поглощение следует закону $T^4 \omega_s$. Случай «б» реализуется при достаточно низких температурах, когда из-за большой величины параметра $\omega_s \tau_f$ вклад от взаимодействия неколлинеарных продольных фононов становится малым по сравнению с вкладом от коллинеарного взаимодействия. В первом случае, очевидно, поглощение в примесном кристалле станет выше, чем в матрице; во втором случае поглощение вначале выше в матрице, затем — в примесном кристалле. При более низких температурах столкновения в примесном кристалле перестанут играть существенную роль и обе зависимости совпадут.

Подчеркнем, что описанная картина зависимости поглощения от температуры основана на упрощенной модели. В ней не учтена возможная немонотонная зависимость времен релаксации фононов τ_f и τ_0 от температуры, игнорируется зависимость времени фонон-фононной релаксации от наличия примесей. Тем не менее на качественном уровне наблюдение температурной зависимости поглощения в примесном кристалле позволяет сделать вполне определенные выводы о специфике взаимодействия в нем фононов.

На рис. 4 приведена экспериментальная зависимость КП продольной АВ от температуры в кристалле $Y_{0,9}Lu_{0,1}AlO_3$. Здесь, как легко видеть, можно выделить несколько характерных участков. В области $T < T^*$ (на частоте 2 ГГц $T^* \approx 35$ К) поглощение в твердом растворе больше, при $35 < T < 45$ К в пределах ошибок измерений равно, а при $T > 45$ К меньше, чем в матрице. В области $T \approx 80$ К четко проявляется обозначенный стрелкой минимум по сравнению с матрицей.

Из рис. 4 однозначно следует, что, как и в случае поглощения продольных АВ в матрице, на температурной зависимости поглощения в твердом растворе алюмината иттрия—лютеция проявляются эффекты дисперсии фононов.

Зависимость КП продольных АВ от частоты в твердом растворе $Y_{0,9}Lu_{0,1}AlO_3$ при $T \approx 80$ К (рис. 3, 2) качественно совпадает с картиной распространения продольных АВ в примесных кристаллах [7]. При более низких $T \approx 30$ К (рис. 3, 4) зависимость качественно соответствует результатам [11] для примесных кристаллов с учетом дисперсии фононов. При исследовании твердых растворов, когда условие квазиупругого рассеяния фононов ($\omega_s \tau_f < 1$) выполняется в широком температурном интервале,

естественно ожидать, что это обстоятельство должно существенно проявиться и в случае распространения сдвиговых АВ [8, 12].

На рис. 5 приведены зависимости КП медленной сдвиговой АВ в $YAlO_3$ и $Y_{0,9}Lu_{0,1}AlO_3$ от температуры на частоте 1,5 ГГц. Для образцов $Y_{0,9}Lu_{0,1}AlO_3$ на такой зависимости проявляются три минимума при $T \approx 60$, ≈ 140 и ≈ 240 К. В области температур $T < 70$ К для $YAlO_3$ и $T < 30$ К для $Y_{0,9}Lu_{0,1}AlO_3$ температурная зависимость КП следует закону $\alpha \sim T^4$. Такая зависимость является естественной, поскольку в кристаллах при низких температурах поглощение сдвиговых АВ определяется трехфононным процессом Ландау—Румера $t+l \rightarrow l$.

Эффекты дисперсии фононов и анизотропии модулей упругости третьего порядка в случае сдвиговых АВ, очевидно, не играют столь существенной роли, как для поглощения продольного АВ. В области $T > 30$ К столкновения фононов с примесями являются существенными и определяют общее уменьшение поглощения по сравнению с матрицей. Наиболее интересным представляется наличие трех минимумов на зависимости поглощения сдвиговых АВ от температуры. В отсутствие детальной информации об акустических свойствах $YAlO_3$ однозначная интерпретация наблюдаемых особенностей затруднительна.

Можно предположить, что в алюминате иттрия из-за низкой симметрии кристаллической структуры спектральная плотность квадрата смещения примесного атома (от которой зависят характеристики рассеяния фононов) различна для разных направлений смещения атома по отношению к кристаллическим осям и в основном сосредоточена в различных неперекрывающихся спектральных полосах. Поскольку рассеяние фононов на примесях интенсивно в той области частот, где велика спектральная плотность квадрата смещения примесного атома, то в рассматриваемом случае рассеяние фононов может быть особенно интенсивным в нескольких интервалах фононных частот. Соответственно на температурной зависимости КП сдвиговых АВ могут возникнуть в общем случае три минимума.

Таким образом, распространение АВ в твердых растворах на основе алюмината иттрия обладает рядом особенностей, характерных для твердых растворов на основе ИАГ [6] и бората иттрия [12]. На эти особенности примесных кристаллов накладывается специфика распространения АВ в иттриевом алюминате — дисперсия акустических фононов и низкая симметрия его кристаллической решетки.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Каминский А. А., Осико В. В. // Изв. АН СССР. неорг. матер. 1970. Т. 6. № 4. С. 629—640.
- [2] Арсеньев П. А., Багдасаров Х. С., Курбанов Х. М., Фенин В. В. Выращивание диэлектрических лазерных кристаллов. Душанбе: Дониш, 1986. 256 с.
- [3] Butaeva T. I., Kaminskii A. A., Ovanesjan K. I., Petrosjan A. G. // Cryst. Research Techn. 1986. V. 21. N 12. P. 1577—1581.
- [4] Weber M. T., Bass M., Andringa K., Monchamp R. R., Comperchio E. // Appl. Phys. Lett. 1969. V. 15. N 8. P. 342—350.
- [5] Pehwald Walthier Int. Conf. on Phonon Scatt. in Solids. Paris, July 3—6, 1973. P. 45—48.
- [6] Гуляев Ю. В., Иванов С. Н. и др. // ЖЭТФ. 1983. Т. 84. № 2. С. 672—678; Иванов С. Н., Медведь В. В., Котелянский И. М., Хазанов Е. Н. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 10. С. 2941—2945.
- [7] Гуляев Ю. В., Козорезов А. Г. // ЖЭТФ. 1982. Т. 82. № 5. С. 1551—1561.
- [8] Гуляев Ю. В., Козорезов А. Г., Красильников М. В. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 8. С. 2397—2405.
- [9] Акустические кристаллы / Под ред. М. П. Шаскольской. М.: Наука, 1982. 632 с.
- [10] Такер Дж., Рэмpton В. Гиперзвук в физике твердого тела. М.: Мир, 1975. 453 с.
- [11] Kozogezov A. G. // Phys. Lett. 1983. V. 98A. N 5, 6. P. 261—265.
- [12] Гуляев Ю. В., Иванов С. Н., Котелянский И. М. и др. // Письма в ЖТФ. 1986. Т. 12. № 1. С. 18—21.