

РАСПРОСТРАНЕНИЕ НЕРАВНОВЕСНЫХ ТЕРАГЕРЦОВЫХ АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ В ПЛОТНОЙ КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ КЕРАМИКЕ НА ОСНОВЕ α - Al_2O_3

© А.А.Каплянский, М.Б.Мельников, С.П.Феофилов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия
(Поступила в Редакцию 28 ноября 1995 г.)

При $T = 2$ К исследовано распространение неравновесных акустических фононов 0.874 ТГц (29 cm^{-1}) в плотной кристаллической керамике на основе α - Al_2O_3 . Генерация фононов осуществлялась методом тепловых импульсов, а их детектирование — по R_2 -люминесценции примесных ионов Cr^{3+} . Установлен диффузионный режим распространения фононов с длиной свободного пробега $\bar{l} \approx 0.015$ см, которая в 15 раз превышает средний размер ($10 \mu\text{m}$) кристаллических зерен. Такая же величина \bar{l} получена в результате теоретического расчета \bar{l} для механизма рассеяния, вызванного отражением и преломлением плоских акустических волн на границах разориентированных зерен в модели акустического рассогласования.

Изучение особенностей транспорта акустических фононов терагерцового диапазона при низкой температуре в пространственно неоднородных твердотельных средах важно не только для сверхвысокочастотной акустики и выяснения механизмов рассеяния фононов, но и для приложений, использующих тепловые и механические свойства неоднородных твердых тел. Одним из интересных объектов исследования являются диэлектрические кристаллические однофазные керамики, состоящие из мелких монокристаллических зерен. Пространственная неоднородность акустических свойств такой керамики в первую очередь обусловлена разориентацией кристаллических зерен в сочетании с их упругой анизотропией. Для широкого круга кристаллов в условиях низких (гелиевых) температур при размерах монокристаллических зерен $R \sim 1-10 \mu\text{m}$ распространение терагерцовых фононов (длина волны которых $\lambda \sim 100 \text{ \AA}$ существенно меньше R) внутри отдельного зерна можно считать баллистическим. Можно предполагать поэтому, что основное влияние неоднородности керамики на фононный транспорт при низких температурах связано с эффектами прохождения фононов через границы между зернами.

В настоящей работе изучалось распространение терагерцовых фононов в кристаллической керамике на основе корунда α - Al_2O_3 (тригональный класс D_{3d}), акустические свойства которого хорошо изучены

на объемных монокристаллах. Ранее [1] методом тепловых импульсов с болометрической регистрацией изучалось распространение субтерагерцовых (с энергией 2–3 К) фононов в сильно пористых корундовых керамиках, состоящих из микронного размера зерен, соприкасающихся малыми участками своей поверхности. В отличие от [1] в нашей работе использовались «плотные» керамики, построенные из монокристаллических зерен $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, контактирующих друг с другом по всей поверхности зерна. Распространение в керамиках неравновесных терагерцовых (точнее, 874 GHz) фононов исследовалось при температуре жидкого гелия ($T = 2\text{ K}$) с помощью оптического детектирования фононов по люминесценции примесных ионов Cr^{3+} .

1. Экспериментальные результаты

В работе использовались керамические материалы на основе корунда $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ промышленного производства («Поликор»), которые содержали небольшую ($\sim 0.05\text{--}0.3\%$) добавку MgO . Электронно-микроскопические фотографии показывают, что типичный размер монокристаллических зерен $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ составляет около 10 μm . Зерна плотно упакованы, и между ними нет заметных пустот. Это подтверждается измерениями плотности керамики ($\sim 3.93\text{ g/cm}^3$), которая меньше плотности монокристаллов корунда лишь на единицы процентов. Молочно-белые полированные пластинки из нее толщиной $\sim 1\text{ mm}$ сильно рассеивают свет и слабо прозрачны, что обусловлено, очевидно, разориентацией зерен в сочетании с оптической анизотропией тригонального $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. Наличие в образцах низкой ($\sim 0.01\%$) остаточной концентрации примеси хрома приводит к существованию фотолюминесценции со спектром, идентичным спектру рубина $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3 : \text{Cr}^{3+}$. Наблюдаемые в спектре люминесценции R_1 - и R_2 -линии, отвечающие переходам $\bar{E}(^2E) \rightarrow ^4A_2$ и $2\bar{A}(^2E) \rightarrow ^4A_2$ в ионах Cr^{3+} , неоднородно уширены ($\Delta\nu \sim 3\text{ cm}^{-1}$), что свидетельствует о значительном (по сравнению с монокристаллическим рубином) содержании дефектов в зернах $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. Отметим также наличие в спектре люминесценции керамик слабой широкой полосы, близкой по виду к неоднородно уширенной R -линии ионов Cr^{3+} в кристаллах шпинели $\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ (MgAl_2O_4) [2].

В экспериментах с неравновесными фононами, проводившихся при $T = 2\text{ K}$, генерация фононов осуществлялась методом тепловых импульсов (см. вставку на рис. 1). Источником их служила тонкая константановая пленка h , напыленная на торец керамической пластинки $1 \times 10 \times 10\text{ mm}$ и разогреваемая короткими ($\Delta t \sim 200\text{ ns}$) импульсами тока. Оптическим детектором [3] инжектируемых в пластинку фононов служил накачиваемый лучом Ag -лазера объем образца d , в котором часть ионов Cr^{3+} возбуждена в метастабильное 2E -состояние. При $T = 2\text{ K}$ заселен только нижний $\bar{E}(^2E)$ -подуровень дублета 2E , и объем испускает R_1 -линию $\bar{E} \rightarrow ^4A_2$, однако в присутствии фононов теплового импульса за счет однофононных переходов $\bar{E} \rightarrow 2\bar{A}$, индуцируемых резонансными фононами 874 GHz (29 cm^{-1}), заселяется верхний $2\bar{A}$ -подуровень, и в спектре люминесценции возгорает R_2 -линия. Импульс $R_2(t)$ отражает концентрацию неравновесных резонансных фононов 29 cm^{-1} и ее эволюцию во времени.

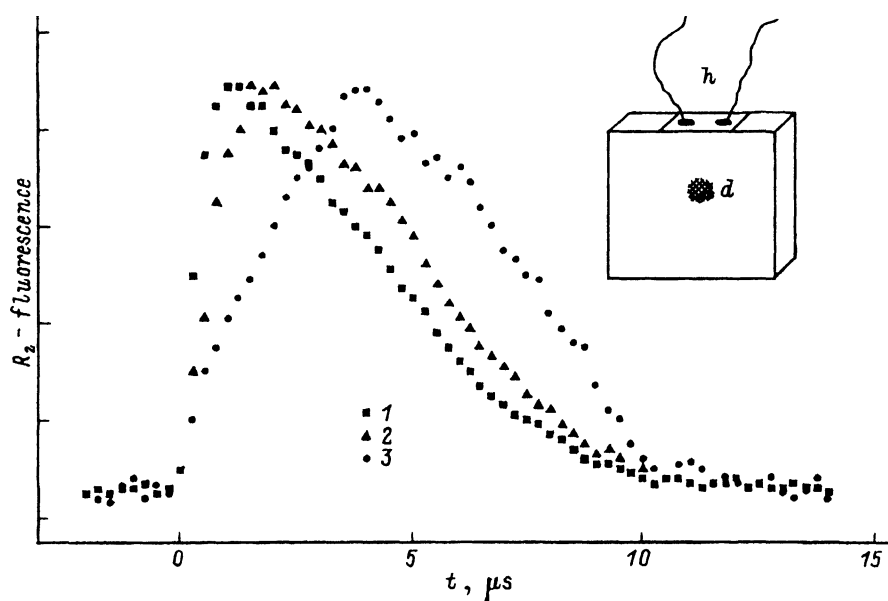


Рис. 1. Импульсы R_2 -люминесценции при расстояниях от детектора $L = 0$ (1), 0.5 (2) и 1.5 мм (3).

На вставке — схема опыта.

На рис. 1 показаны импульсы R_2 -люминесценции, измеренные при разных расстояниях L между нагревателем h и детектором d . Импульсы имеют передний фронт, удлиняющийся с ростом расстояния L , а зависимость временной задержки максимума импульса от расстояния до источника L близка при $L < 1.5$ мм к квадратичной (рис. 2). Следует отметить, что измерениям слабого сигнала люминесценции на расстояниях, превышающих 1.5 мм, препятствует сильное рассеяние лазерного луча в оптически мутном образце. Благодаря этому возбуждение Cr^{3+} происходит не только в сечении лазерного луча, но и в окружающей его области («ореол»), что увеличивает эффективный размер оптического детектора и вносит неопределенность в оценку расстояния L .

Особенности распространения фононов 29 см^{-1} в керамическом образце, проявляющиеся в форме R_2 -импульсов люминесценции (рис. 1), свидетельствуют о диффузионном режиме распространения фононов, испытывающих на пути от нагревателя до детектора многократное рассеяние. Для диффузионного режима характерна, в частности, квадратичная зависимость времени прихода максимума фонованого импульса от расстояния до источника. В геометрии плоского источника и «одномерной» диффузии зависимость времени t_{max} прихода максимума от расстояния L до источника фононов описывается известной формулой

$$t_{\text{max}} = \frac{L^2}{2D} = \frac{3L^2}{2\langle s \rangle \bar{v}}, \quad (1)$$

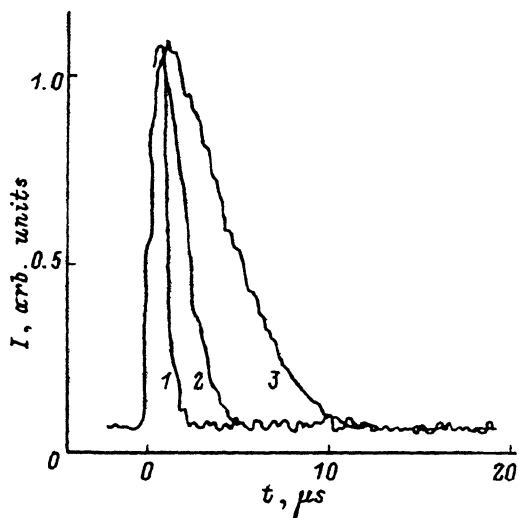
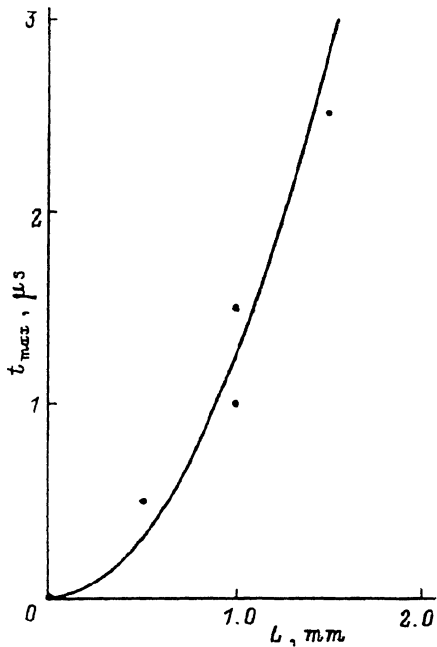


Рис. 2. Зависимость временной задержки максимума импульса R_2 -люминесценции от расстояния от источника фононов до детектора. Кривая — расчет по формуле (1) при $v = 8 \cdot 10^5$ см/с, $\bar{l} = 0.015$ см.

Рис. 3. Импульсы R_2 -люминесценции при положении детектора непосредственно вблизи нагревателя ($L = 0$) и при инжектируемой энергии тепловых импульсов, равной 1 (1), 4 (2) и 15 μJ (3).

где $D = 1/3\langle s \rangle \bar{l}$ — коэффициент диффузии фононов, $\langle s \rangle$ — средняя скорость фононов, \bar{l} — транспортная длина их свободного пробега. На основании опытных данных (рис. 2) и при $\langle s \rangle = 8 \cdot 10^5$ см/с (см. раздел 2) длина свободного пробега фононов 29 см^{-1} в керамике оказывается равной $\bar{l} = 0.015$ см.

Таким образом, длина свободного пробега \bar{l} фононов 29 см^{-1} в корундовой керамике на порядки меньше длины пробега в объемном $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ [4], где она составляет величины порядка см. Достаточно сильное рассеяние фононов в керамике $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ косвенно проявляется также в наблюдении при детектировании непосредственно вблизи нагревателя ($L = 0$) заметного уширения (от 1 до 7 μs) импульса люминесценции с увеличением джоулевой энергии, выделяемой в нагревателе от 1 до 15 μJ (рис. 3). Это, уширение указывает на задержку инжектированных фононов вблизи нагревателя, обусловленную фонон-фононным рассеянием в условиях большой концентрации неравновесных фононов («горячее пятно»). При этом упругое рассеяние фононов облегчает образование горячего пятна (например, в рубине высокого качества горячее пятно при инжекции тепловых импульсов обычно наблюдать трудно).

Отметим, что полученная из экспериментов длина свободного пробега терагерцовых фононов $\bar{l} \sim 0.015$ см в керамике на порядок величины превосходит размер кристаллических зерен ($R \sim 10^{-3}$ см).

2. Теоретический анализ диффузионного распространения фононов в плотной керамике на основе корунда

1) **П о с т а н о в к а з а д а ч и.** Поскольку характерный размер зерна исследуемой керамики $R = 10 \mu\text{m}$ намного больше длины волны фонона с энергией 29 cm^{-1} $\lambda_s = 10^{-2} \mu\text{m}$, то можно рассматривать распространение звука в отдельном взятом зерне в приближении плоских волн (акустических фононов). Будем считать, что в пределах отдельного зерна фонон 29 cm^{-1} распространяется баллистически, и проанализируем возможную роль в наблюдаемом на опыте диффузионном распространении фононов в керамике упругого отражения и преломления фононов на границах зерен.

Зерна керамики различаются между собой лишь кристаллографической ориентировкой. Будем считать, что они прилегают друг к другу настолько плотно, что имеет место жесткий контакт между ними. Это предположение, необходимое для конкретизации граничных условий задачи, обосновывается близостью плотностей керамики и монокристалла, а также отсутствием видимых разрывов между зернами на электронно-микроскопической фотографии. Различие ориентаций приведет к относительно небольшим отличиям акустических свойств сред по разные стороны рассматриваемой границы раздела, и, следовательно, однократное рассеяние звуковой волны на ней приведет в среднем лишь к незначительному изменению направления распространения переносимой волной энергии. Достаточно сильное рассеяние фононов, приводящее к диффузионному режиму их распространения, может возникнуть лишь при учете многократного рассеяния фононов на межзеренных границах.

Для учета многократных актов рассеяния используем по аналогии с теорией диффузии медленных нейтронов [5] понятие транспортной длины пробега фонона, характеризующей среднее расстояние, проходимое фононом в направлении первоначального распространения,

$$l_{tr} = l_s / (1 - \langle \cos \alpha \rangle). \quad (2)$$

Здесь l_s — длина свободного пробега фонона до акта рассеяния на интерфейсе, $\langle \cos \alpha \rangle$ — средний косинус угла однократного рассеяния. Тогда распространение звука в керамике можно рассмотреть как диффузию фононов с коэффициентом

$$D = l_{tr} \langle s \rangle / 3, \quad (3)$$

где $\langle s \rangle$ — средняя по направлениям распространения и направлениям поляризации групповая скорость звуковых волн в корунде. Коэффициент диффузии (3) входит в формулу (1), описывающую адекватную эксперименту «одномерную» диффузию фононов в геометрии с плоским источником фононов и соответствующую этой геометрии зависимость времени t прихода максимума концентрации фононов от расстояния L

между источником и точкой наблюдения. Задачей последующего расчета и является вычисление величины D .

2) Вычисление основных характеристик распространения фононов. Согласно (2), (3), коэффициент диффузии фононов в керамике определяется величинами l_s , $\langle \cos \alpha \rangle$, $\langle s \rangle$, которые будем вычислять следующим образом.

А. Длина свободного пробега до акта рассеяния l_s , очевидно, есть средний баллистический пробег фонона в зерне между его границами. Для простоты определения зависимости l_s от среднего размера зерна R здесь (и только здесь!) будем полагать, что зерна имеют форму куба с ребром R . Тогда l_s есть среднее расстояние между двумя произвольными точками на поверхности куба

$$l_s = \lim_{N \rightarrow \infty} \left(\frac{R}{N} \sum_{i=1}^N \left| x_i^{(1)} - \langle x_i^{(2)} \rangle \right| \right). \quad (4)$$

Здесь N — число пар точек, $x_i^{(1)}$ — случайно выбранная точка на одной из (для определенности нижней) граней куба,

$$\langle x_i^{(2)} \rangle = \pi^{-2} \int_0^{\pi/2} d\theta \int_0^{2\pi} d\psi x_i^{(2)}(\theta, \psi, x_i^{(1)}),$$

$x_i^{(2)}$ — точка пересечения луча, исходящего из точки $x_i^{(1)}$ в направлении, задаваемом углами θ и ψ в сферических координатах с выделенным направлением, нормальным к (нижней) грани.

Расчет при $N = 2000$ дал результат $l_s = 0.595R$.

В. Средний косинус угла рассеяния $\langle \cos \alpha \rangle$. Способ его вычисления поясняет рис. 4, схематически изображающий произвольную ситуацию рассеяния фонона на границе зерен. На рис. 4 показана плоская граница двух зерен 1 и 2 с разной кристаллографической ориентацией. Все координаты задаются в кристаллографической системе зерна 1, при этом ось сферической системы координат θ, ψ совпадает с тригональной осью кристалла корунда (класс D_{3d}). Вектор \mathbf{q} — нормаль к границе раздела, направленная из зерна 1 в зерно 2. Вектор $\mathbf{k} = (\sin \theta \cos \psi, \sin \theta \sin \psi, \cos \theta)$ описывает разориентацию зерен, направление \mathbf{k} задает ось, вокруг которой надо повернуть второе зерно для совмещения кристаллографических систем координат второго и первого зерен, ϕ — угол требуемого поворота. Предполагается, что в зерне 1 распространяется волна с волновой нормалью \mathbf{n} и вектором поляризации \mathbf{u}_0 , которая падает на границу раздела, порождая в общем случае три отраженные волны в зерне 1 и три преломленные волны в зерне 2. Углы отклонения этих волн зависят, очевидно, от векторов $\mathbf{n}, \mathbf{u}_0, \mathbf{q}, \mathbf{k}$, а также от угла ψ ($|\mathbf{n}|, |\mathbf{u}_0|, |\mathbf{q}|, |\mathbf{k}| = 1, 0 \leq \phi < \pi$). Вычисление $\cos \alpha(\mathbf{n}, \mathbf{u}_0, \mathbf{q}, \mathbf{k}, \phi)$ выполняется следующим образом [6,7].

а) Найдем фазовые скорости v_μ ($\mu = 1, 2, 3$), векторы рефракции $\mathbf{m}_\mu = \mathbf{n}/v_\mu$ и векторы поляризации $\mathbf{u}_{0\mu}$ ($|\mathbf{u}_{0\mu}| = 1$) квазипродольный и двух квазипоперечных волн, способных распространяться в первом

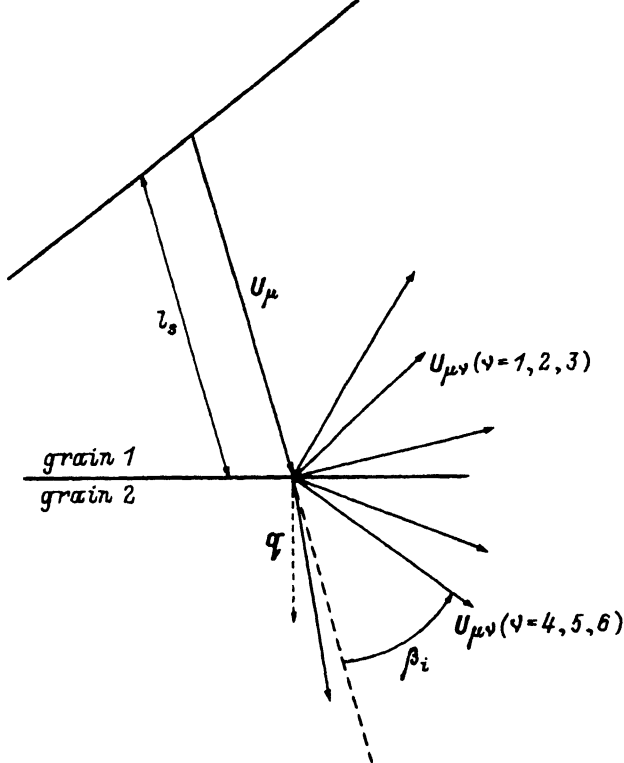


Рис. 4. Схема к расчету среднего угла рассеяния.

Плоскость раздела зерен 1 и 2 предполагается нормальной к плоскости рисунка. U_μ — плотность потока энергии μ -й падающей моды ($\mu = 1, 2, 3$ для квазипродольной и квазипоперечной мод соответственно), $U_{\mu\nu}$ ($\nu = 1-6$) — то же для порождаемых ею трех отраженных и трех преломленных волн, $\beta_{\mu\nu}$ — угол изменения направления распространения энергии для каждой из этих волн, l_s — длина свободного пробега фона до акта рассеяния, имеющего место на границе зерен.

зерне в направлении волновой нормали \mathbf{n} . Значения v_μ и $u_{0\mu}$ ищем как собственные числа и собственные векторы матрицы

$$\Lambda(\mathbf{n})_{ik} = (1/\rho)C_{ijkl}n_jn_l, \quad (5)$$

где [8] $\rho = 3974 \text{ kg/m}^3$ — плотность кристалла, C_{ijkl} — тензор модулей упругости ($i, j, l, k = 1, 2, 3$), представимый вследствие свойств симметрии в виде матрицы $C_{\mu\nu}$, $\mu, \nu = 1-6$. Для корунда (планаксиальный класс тригональной сингонии)

$$\|C\| = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & C_{14} & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ C_{14} & C_{14} & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & C_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} & \frac{C_{11}-C_{12}}{2} \end{pmatrix}, \quad (6)$$

где $C_{11} = 49.5$, $C_{33} = 49.7$, $C_{44} = 14.6$, $C_{12} = 16.0$, $C_{13} = 11.5$, $C_{14} = -2.3$ в единицах 10^{10} N/m^2 [9]. Переход к тензору четвертого ранга C_{ijkl} осуществляется путем замены индексов μ, ν на пары индексов $(ij), (lk)$ по обычному правилу $1 \leftrightarrow (11), 2 \leftrightarrow (22), 3 \leftrightarrow (33), 4 \leftrightarrow (23) = (32), 5 \leftrightarrow (13) = (31), 6 \leftrightarrow (12) = (21)$.

б) Для каждой падающей волны \mathbf{m}_μ ($\mu = 1-3$) найдем векторы рефракции $\mathbf{m}_{\mu\nu}$ ($\nu = 1-6$) порожденных ею шести (в общем случае) результирующих, т. е. отраженных и преломленных волн, причем $\nu = 1, 2, 3$ пусть соответствуют отраженным, а $\nu = 4, 5, 6$ — преломленным волнам. Искомые векторы строятся в виде

$$\mathbf{m}_{\mu\nu} = \mathbf{b} + \xi_\nu \mathbf{q}, \quad \mathbf{b} = [\mathbf{q}, (\mathbf{m}_\mu, \mathbf{q})], \quad (7)$$

где ξ_ν — ν -й корень уравнения шестой степени $\sum_{i=0}^6 h_i x^{(6-i)} = 0$ с коэффициентами

$$\begin{aligned} h_0 &= \det(\Lambda(\mathbf{q})), \quad h_1 = 2\text{Sp}(\Lambda(\mathbf{q})^{\text{mut}} K), \quad h_2 = 4\text{Sp}(K^{\text{mut}} \Lambda(\mathbf{q})), \\ h_3 &= 2\left\{4\det(K) + \text{Sp}([\Lambda(\mathbf{q}) + \Lambda(\mathbf{b})]^{\text{mut}} - \Lambda(\mathbf{q})^{\text{mut}} - \Lambda(\mathbf{b})^{\text{mut}}) - \right. \\ &\quad \left. - \text{Sp}(\Lambda(\mathbf{q}))\text{Sp}(K) + \text{Sp}(\Lambda(\mathbf{q})K)\right\}, \\ h_4 &= \text{Sp}(B^{\text{mut}} \Lambda(\mathbf{q})) + 4\text{Sp}(K^{\text{mut}} B), \\ h_5 &= 2\text{Sp}(B^{\text{mut}} K), \quad h_6 = \det(B), \end{aligned} \quad (8)$$

где $\Lambda(\mathbf{q}), \Lambda(\mathbf{b})$ получаются сверткой тензора упругости с соответственно векторами \mathbf{q} и \mathbf{b} аналогично (5). При этом для отраженных волн используется тензор C_{ijkl} , а для преломленных $C'_{i'j'l'k'} = R_{i'j} R_{j'l} R_{l'k} C_{ijkl}$, матрица вращения [10] $R_{ij} = \delta_{ij} \cos \phi + \varepsilon_{ijl} k_l \sin \phi + k_{ij}(1 - \cos \phi)$, δ_{ij} и ε_{ijl} — символы Кронекера и Леви-Чивита, M^{mut} для всякой матрицы означает взаимную к ней, т. е. такую, для которой $MM^{\text{mut}} = \det(M)E$, E — единичная матрица, $K_{ik} = (1/2\rho)C_{ijkl}(b_j q_l + q_j b_l)$, $B = \Lambda(\mathbf{b}) - E$. Выражения (8) для h_i приведены подробно, так как в [6], где данная процедура рассмотрена наиболее полно, с ошибками сосчитаны h_2 и h_5 .

с) Для каждой результирующей волны $\mathbf{m}_{\mu\nu}$ найдем векторы смещений $\mathbf{u}_{\mu\nu}$ из совместного решения уравнения Кристоффеля

$$(\Lambda(\mathbf{m}_{\mu\nu}) - E)\mathbf{u}_{\mu\nu} = 0, \quad (9)$$

позволяющего определить направления $\mathbf{u}_{\mu\nu}$, и соответствующих жесткому контакту твердых тел граничных условий непрерывности векторов смещений

$$\mathbf{u}_\mu + \sum_{\nu=1}^3 \mathbf{u}_{\mu\nu} - \sum_{\nu=4}^6 \mathbf{u}_{\mu\nu} = 0 \quad (10)$$

и непрерывности напряжений на границе раздела зерен

$$\left(S_{\mu} + \sum_{\nu=1}^3 S_{\mu\nu} - \sum_{\nu=4}^6 S_{\mu\nu} \right) \mathbf{q} = 0. \quad (11)$$

Здесь S — тензор напряжений, имеющий компоненты

$$(S_{\mu})_{ij} = C_{ijkl}(\mathbf{m}_{\mu})_k(\mathbf{u}_{\mu})_l, \quad (S_{\mu\nu})_{ij} = C'_{ijkl}(\mathbf{m}_{\mu\nu})_k(\mathbf{u}_{\mu\nu})_l, \quad \nu = 1, 2, 3,$$

$$(S_{\mu\nu})_{ij} = C'_{ijkl}(\mathbf{m}_{\mu\nu})_k(\mathbf{u}_{\mu\nu})_l, \quad \nu = 4, 5, 6.$$

Решение системы (9)–(11) мы получали в виде $\mathbf{u}_{\mu\nu} = a_{\nu} \mathbf{w}_{\mu\nu}$, где $\mathbf{w}_{\mu\nu} = (\Lambda(\mathbf{m}_{\mu\nu}) - E)^{\text{mut}} \mathbf{p}$, \mathbf{p} — произвольный вектор, не нормальный к $\mathbf{w}_{\mu\nu}$, a_{ν} — компонента вектора \mathbf{a} , являющегося решением системы $M\mathbf{a} = \mathbf{r}$, составленной следующим образом. Если $\nu = 1, 2, 3$, то

$$r_{\nu} = -(\mathbf{u}_{\mu})_{\nu}, \quad M_{\nu\eta} = (\mathbf{w}_{\mu\eta})_{\nu}.$$

Если $\nu = 4, 5, 6$, то

$$r_{\nu} = -C'_{(\nu-3)jkl}(\mathbf{m}_{\mu})_k(\mathbf{u}_{\mu})_l \mathbf{q}_j,$$

$$M_{\nu\eta} = C'_{(\nu-3)jkl}(\mathbf{m}_{\mu\eta})_k(\mathbf{w}_{\mu\eta})_l \mathbf{q}_j, \quad \eta = 1, 2, 3,$$

$$M_{\nu\eta} = C'_{(\nu-3)jkl}(\mathbf{m}_{\mu\eta})_k(\mathbf{w}_{\mu\eta})_l \mathbf{q}_j, \quad \eta = 4, 5, 6.$$

d) Найдем углы отклонений α от направления распространения падающего фонона и доли потоков энергии, уносимой каждой отраженной и преломленной волной.

Вектор плотности потока энергии акустической волны $\mathbf{U} = s\rho\omega^2|\mathbf{u}|^2/2$, соответственно доля энергии μ -й падающей волны, уносимая ν -й волной, образовавшейся в результате ее преломления либо отражения волной [7] (с учетом $|\mathbf{u}_{\mu}| = 1$), есть

$$P_{\mu\nu} = \left((\mathbf{s}_{\mu\nu}, \mathbf{q}) [\mathbf{u}_{\mu\nu}]^2 \right) / (\mathbf{s}_{\mu}, \mathbf{q}). \quad (12)$$

Заметим, что коэффициенты отражения R_{μ} и пропускания T_{μ} для μ -й моды

$$r_{\mu} = \sum_{\nu=1}^3 P_{\mu\nu}, \quad t_{\mu} = \sum_{\nu=4}^6 P_{\mu\nu}. \quad (13)$$

Очевидно, что $P_{\mu\nu}$ есть вероятность рассеяния μ -го фонона на угол $\beta_{\mu\nu}$.

$$\cos \beta_{\mu\nu} = (\mathbf{s}_{\mu}, \mathbf{s}_{\mu\nu}) / |\mathbf{s}_{\mu}| |\mathbf{s}_{\mu\nu}|. \quad (14)$$

Из (9), (11) следует средний косинус угла рассеяния μ -го фонона

$$(\cos \beta)_{\mu} = \sum_{\nu=1}^6 P_{\mu\nu} (\cos \beta)_{\mu\nu}. \quad (15)$$

Таким образом, в результате выполнения пунктов а-д находится средний косинус угла отклонения для случая рассеяния на интерфейсе одной падающей $\{\mathbf{n}, \mathbf{u}_0\}$ моды $\cos \alpha(\mathbf{n}, \mathbf{u}_0, \mathbf{q}, \mathbf{k}, \phi) = (\cos \beta)_\mu$.

Усреднив далее его по всем (трем) модам, распространяющимся в направлении волновой нормали падающей волны \mathbf{n} (т. е. по направлениям поляризации падающих волн \mathbf{u}_0), получим

$$\cos \alpha(\mathbf{n}, \mathbf{q}, \mathbf{k}, \phi) = \langle \cos \alpha(\mathbf{n}, \mathbf{u}_0, \mathbf{q}, \mathbf{k}, \phi) \rangle_{\mathbf{u}_0} = \frac{1}{3} \sum_{\mu=1}^3 (\cos \beta)_\mu. \quad (16)$$

Усреднение по остальным параметрам, описывающим разные (относительно кристаллографических осей) направления волновой нормали падающей волны (\mathbf{n}), разное положение границы раздела (\mathbf{q}) и разную кристаллографическую ориентацию соседнего зерна (\mathbf{k}, ϕ)

$$\langle \cos \alpha \rangle = \langle \cos \alpha(\mathbf{n}, \mathbf{q}, \mathbf{k}, \phi) \rangle_{\mathbf{n}, \mathbf{q}, \mathbf{k}, \phi}, \quad (17)$$

проводилось методом Монте-Карло. Усреднение по 4000 ситуаций привело к результату $\langle \cos \alpha \rangle = 0.96$, что соответствует углу рассеяния $\alpha = 16^\circ$.

С. Средняя групповая скорость $\langle s \rangle$ вычислялась путем усреднения по направлениям распространения \mathbf{n} и направлениям поляризации \mathbf{u}_0 абсолютных величин групповых скоростей $s(\mathbf{n}, \mathbf{u}_0)$ звуковых волн в монокристалле корунда. Процедура определения последних начинается с нахождения векторов рефракции $\mathbf{m} = \mathbf{m}_\mu(\mathbf{n})$, $\mu = 1, 2, 3$ (см. пункт В.а), после чего компоненты вектора s [6]

$$s(\mathbf{n}, \mathbf{u}_0)_i = \frac{C_{ijkl}}{\rho} \frac{\left((\Lambda(\mathbf{m}) - E)^{\text{mut}} \right)_{jk} m_l}{\text{Sp} \left((\Lambda(\mathbf{m}) - E)^{\text{mut}} \right)}.$$

После усреднения мы получили $\langle s \rangle = 8021 \text{ м/с}$.

3) Р е з у л ь т а т ы р а с ч е т а. В соответствии с (2) и численными результатами, полученными в подразделе 2 настоящего раздела, $l_{tr} = 15R$, т. е. средний пробег высокочастотного фонона в направлении первоначального распространения составляет в корундовой керамике примерно 15 зерен. Заметим, что при этом рассчитанный по (13) средний коэффициент отражения на границе раздела составляющих ее зерен $\langle r \rangle = 0.026$ (численные расчеты проводились на персональном компьютере 486DX33).

3. Обсуждение результатов

При теоретическом расчете длины пробега фононов 29 см^{-1} в плотной корундовой керамике предполагалась «идеальность» границ между кристаллическими зернами, позволяющая использовать при рассмотрении поведения фононов на границе модель плоских волн и акустического рассогласования. Вычисленная в таком приближении длина свободного пробега фононов $\bar{l} \approx 0.015 \text{ см}$, определяющая коэффициент диффузии ($D = 1.2 \cdot 10^4 \text{ см}^2/\text{с}$), дает верхний предел для возможных опытных значений \bar{l} , так как другие дополнительные механизмы

рассеяния, возможные в реальном материале, могут только укорачивать пробег фононов. Результаты экспериментов (разд. 1), которые дают значение $\bar{l} \approx 0.015$ см, совпадающее с расчетом, удовлетворяют этому условию. Вместе с тем, по-видимому, не следует преувеличивать значение хорошего совпадения опытных и расчетных значений длины пробега. Есть основания считать, что структура межзеренных границ является достаточно сложной. Действительно, в разделе 1 упомянуто наблюдение в спектре люминесценции образцов неоднородно ушренных R -линий, характерных для ионов Cr^{3+} в структуре поро разупорядоченной решетке смешанного окисла — шпинели MgAl_2O_4 ($\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$). Из отношения интегральной интенсивности R -линий ионов Cr^{3+} в $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (рубин) и ионов Cr^{3+} в MgAl_2O_4 (и в предположении равномерного распределения хрома в керамике) следует, что шпинель в керамике составляет $\sim 0.15\%$ полного объема образца. Эта цифра согласуется с величиной вносимой в керамику добавки MgO ($0.05\text{--}0.3\%$), что свидетельствует о вхождении практически всего MgO в керамику в виде фазы MgAl_2O_4 . Представляется вероятным, что эта фаза занимает в керамике пространство между зернами $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, обеспечивая «склеивку» зерен. Легко оценить, что содержание шпинели 0.15% в керамике с размером $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ -зерен $R \sim 10 \mu\text{m}$ отвечает толщине прослоек шпинели $\sim 100 \text{ \AA}$. Последняя величина сравнима с длиной волны фононов 29 cm^{-1} .

Возникает вопрос: в какой мере структура межзеренных границ повлияет на характер акустического согласования соседних зерен и не вызовет ли она дополнительного рассеяния фононов на границах. Вообще говоря, могут оказаться важными процессы неупругого рассеяния на межзеренных границах, которые приведут к сокращению эффективного времени жизни фононов 29 cm^{-1} , впрыснутых в образец. Неупругое затухание фононов 29 cm^{-1} может сказаться на форме индуцируемых ими импульсов R_2 -люминесценции в ходе диффузии фононов вдоль образца, причем таким образом, что определяемый из опыта коэффициент диффузии и длина пробега окажутся завышенными. Для ответа на вопрос о том, в какой мере эта ситуация имеет место в наших опытах, нужны дальнейшие исследования.

Наблюдавшееся в опытах с тепловыми импульсами в настоящей работе и в [11] рассеяние фононов на границах зерен в плотной керамике должно, очевидно, проявиться и в теплопроводности керамик при низкой температуре, где существенно рассеяние на границах образцов (зерен). В [12] приведена температурная зависимость в области гелиевых и субгелиевых температур коэффициента теплопроводности k в корундовой керамике с размером зерен $3 \mu\text{m}$ (см. рис. 2 в [12]). Коэффициент теплопроводности k ($= 1/3 C_v \bar{l}$, где C_v — теплоемкость, \bar{l} — длина свободного пробега актуальных фононов) при $0.2 < T < 10 \text{ K}$ зависит от температуры как $C_v(T) \sim T^3$. Такая же зависимость $k \sim C_v \sim T^3$ наблюдается в этой области температур у объемного корунда (см., например, рис. 1 в [13]). Сравнение величин k [12,13] показывает, что при одинаковой температуре теплопроводность корундовой керамики в ~ 100 раз меньше таковой у объемного корунда. Интересно отметить, что примерно во столько же раз отличаются найденные длины пробега фононов в этих материалах.

В заключение отметим, что недавние опыты [11] с тепловыми импульсами в плотной керамике «поликор» на основе корунда, в которых болометрически детектировались субтерагерцовые фононы с энергией ~ 3 К, подтвердили результаты нашей работы. В [11] отмечено, что коэффициент диффузии фононов D в плотной керамике, отвечающей длине пробега 10^{-2} см, намного превосходит D в пористой керамике, где медленность диффузии фононов вызвана их задержкой в пределах зерна, которое фононы покидают через малые по площади контакты с соседними зернами.

Авторы благодарны С.Н. Иванову и В.Л. Шехтману за полезное обсуждение, а также А.Б. Ормонту за электронно-микроскопическое исследование образцов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 93-02-2560) и Международного научного фонда (проекты NUC000 и NUC300).

Список литературы

- [1] Ivanov S.N., Kozorezov A.G., Khazanov E.N., Taranov A.V. *Solid State Commun.* **83**, 365 (1992).
- [2] Басун С.А., Дерень П., Каплянский А.А., Стреньк В., Феофилов С.П. *ФТТ* **31**, 3, 199 (1989).
- [3] Renk K.F., Deisenhofer J. *Phys. Rev. Lett.* **26**, 13, 764 (1971).
- [4] Kaplyanskii A.A., Basoon S.A., Shekhtman V.L. *J. de Phys. Suppl.* **42**, 12, C6-439 (1981).
- [5] Бекурц К., Виртц К. *Нейтронная физика. М. (1968).* 456 с.
- [6] Федоров Ф.И. *Теория упругих волн в кристаллах. М. (1965).* 386 с.
- [7] Weiss O. In: *Nonequilibrium Phonons in Nonmetallic Crystals / Ed. W. Eisenmenger and A.A. Kaplyanskii. North-Holland (1986).* P. 1-50.
- [8] Рубин и сапфир / Отв. ред. Л.М. Беляев. М. (1974). 190 с.
- [9] *Акустические кристаллы. Справочник / Под ред. М.П. Шаскольской. М. (1982).* 632 с.
- [10] Сиротин Ю.Н., Шаскольская М.П. *Основы кристаллофизики. М. (1979).* 639 с.
- [11] Иванов С.Н., Таранов А.В., Хазанов Е.Н. *ФТТ* **37**, 11, 3201 (1995).
- [12] Graebner J.E., Golding B. *Phys. Rev.* **B34**, 8, 5788 (1986).
- [13] De Goer A.M., Salce B. In: *Phonon Physics / Ed. J. Kollar, N. Kroo, N. Manyhard, T. Siklos. World Scientific (1985).* P. 54.