

УДК 537.226.31

## СОБСТВЕННЫЕ СВЧ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ПОТЕРИ В $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ПРИ 300—1000 К

В. С. Ильченко

Измерены собственные (решеточные) диэлектрические потери в монокристаллическом лейкосапфире  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  при 300—1000 К на частотах 9—72 ГГц. В рамках экспериментальной погрешности температурная и частотная зависимости тангенса угла потерь согласуются с предсказанием ангармонической теории собственных потерь  $\text{tg } \sigma \propto \omega^1 T^2$  для трехквантовых (двухфононных) и четырехквантовых (трехфононных) процессов. Абсолютное значение  $\text{tg } \delta$  по порядку величины совпадает с численной оценкой теории.

1. В работах [1, 2] сообщалось о наблюдении собственных диэлектрических потерь в совершенных кристаллах лейкосапфира при температурах  $T=4\div 300$  К на частотах СВЧ диапазона 9—72 ГГц. Собственные диэлектрические потери лейкосапфира при низких температурах характеризуются крутой степенной зависимостью тангенса угла потерь  $\text{tg } \delta(T) \sim T^\alpha$ ,  $\alpha \approx 5$ , близкой к предсказанию теории [3-6] для трехквантовых процессов типа «фотон+фонон  $\rightarrow$  фонон» в центросимметричной гексагональной решетке. Хотя лейкосапфир  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  относится к классу  $D_{3d}$  тригональной сингонии, его упругий спектр близок к спектру гексагонального кристалла с дополнительной (не связанной с симметрией) поверхностью вырождения колебательных ветвей. Эмпирическое выражение для зависимости низкотемпературных собственных потерь в  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  от частоты  $\omega$  и температуры  $\text{tg } \delta \sim \omega^{1.7 \pm 0.2} T^{4.75 \pm 0.10}$  [2] занимает промежуточное положение между теоретическими оценками для гексагональных (при наличии вырождения) и ромбоэдрических кристаллов, справедливыми при  $T \ll T_D$ ,  $\omega\tau \gg 1$  ( $T_D$  — температура Дебая,  $\tau$  — фононное время жизни)

$$\text{tg } \delta \approx \frac{\omega^2 (kT)^4}{\varepsilon \rho v^5 \hbar (kT_D)^2} \quad (\text{ромбоэдрическая решетка}), \quad (1)$$

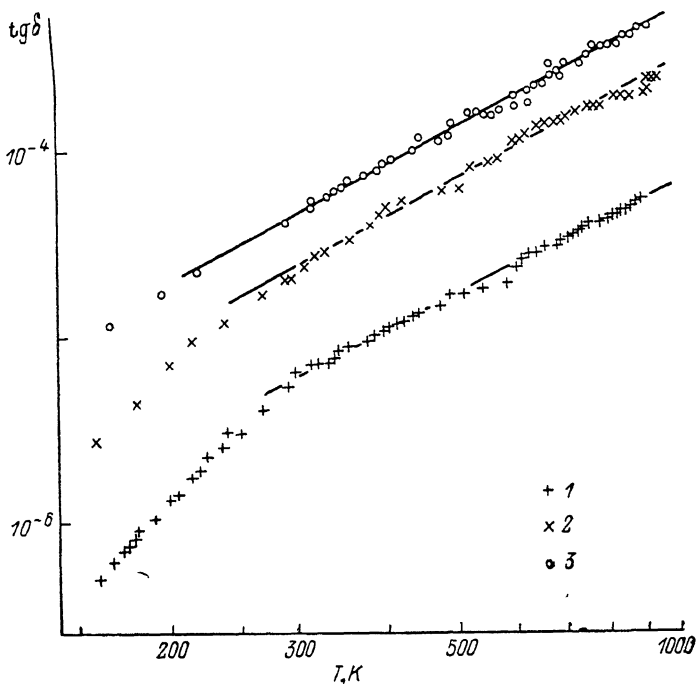
$$\text{tg } \delta \approx \frac{\omega (kT)^5}{\varepsilon \rho v^5 \hbar^2 (kT_D)^2} \quad (\text{гексагональная решетка}), \quad (2)$$

где  $\varepsilon$  — диэлектрическая проницаемость,  $\rho$  — плотность кристалла,  $v$  — скорость звука,  $\hbar$  — постоянная Планка,  $k$  — постоянная Больцмана.

Детальное обсуждение результатов эксперимента [1] с позиций теории можно найти в статье [6]; в целом же выводы [3-6] для случая ( $1/\tau \ll \omega \ll (kT/\hbar)$ ,  $T \ll T_D$ ) можно считать экспериментально подтвержденными.

В области  $T > 170\div 250$  К в зависимости от частоты авторами [2] наблюдался отход от закона  $T^5$  к более пологой зависимости  $\text{tg } \delta(T)$ , связанный, очевидно, с нарушением условий низкотемпературного приближения. В данной работе содержатся результаты измерений  $\text{tg } \delta$  в лейкосапфире в области температур 300—1000 К на частотах 9—72 ГГц, которые дополняют экспериментальную картину поведения собственных диэлектрических потерь в простых диэлектриках и позволяют шире апробировать выводы теории [3-6].

Большинство известных данных о СВЧ диэлектрических потерях в  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  при повышенных температурах получены с использованием поликристаллических образцов (керамика, поликор). В таких образцах невозможно наблюдать слабое решеточное поглощение, поскольку даже в монокристаллах небольшие дефекты структуры (блочность) и малое количество примесей легко маскируют собственные потери [2], которые составляют на частоте 10 ГГц при  $T=300\text{ К}$   $\text{tg } \delta \approx 5 \cdot 10^{-6}$ . В отдельных экспериментах применялись образцы монокристаллов [7-9], однако недостаточная чувствительность измерений ( $\text{tg } \delta_{\text{min}} = 10^{-4} \div 10^{-5}$ ) и отсутствие детального контроля за примесями и дефектами также не позволили наблюдать и идентифицировать решеточное поглощение.



Температурная зависимость тангенса угла собственных диэлектрических потерь в лейкосапфире на частотах СВЧ диапазона.

Данные для  $T < 300\text{ К}$  воспроизводятся по [2].

В настоящей работе использовались совершенные монокристаллы лейкосапфира с малым уровнем примесей ( $\leq 10^{-4}$  вес. %) и слабо выраженной блочной структурой (размер блока  $\geq 1$  см, разориентация  $\leq 1^\circ$ ). Собственный характер СВЧ диэлектрических потерь при  $T \geq 300\text{ К}$  подтверждается результатами предшествующих низкотемпературных измерений  $\text{tg } \delta$  [2], показавших, что уровень несобственных потерь, характеризующихся слабой зависимостью от температуры, составляет в этих кристаллах  $(\text{tg } \delta)_{\text{несобств}} \leq 1 \cdot 10^{-7}$  при  $T < 50\text{ К}$ .

Для измерения тангенса угла потерь в сантиметровом и миллиметровом диапазонах СВЧ использовался метод кольцевого диэлектрического резонатора с полным внутренним отражением [10, 11], позволяющий измерять  $\text{tg } \delta = 10^{-3} \div 10^{-8}$  с погрешностью 10 % по обратной величине собственной добротности высших азимутальных мод  $EH_{n13}$  ( $n=17 \div 50$ ) цилиндрического диэлектрического резонатора, вырезанного из исследуемого образца.

Результаты измерений представлены на рисунке. Там же частично воспроизведены данные [2] для области температур 170–300 К, где происходит изменение характера зависимости  $\text{tg } \delta (\omega, T)$  собственных диэлектрических потерь. Как видно из этого рисунка, в области температур выше

200—300 К в зависимости от частоты кривые  $\text{tg } \delta(T)$  для трех частот выходят на степенную зависимость  $T^{\alpha_1}$ ,  $\alpha_1 \approx 2$ ; МНК оценка показателя степени по методу линейной регрессии составляет:  $\alpha_1 = (1.93 \pm 0.10)_{0.9}$ ,  $T \geq 300$  К, 9 ГГц (1);  $(1.98 \pm 0.14)_{0.9}$ ,  $T \geq 240$  К, 36 ГГц (2);  $(1.99 \pm 0.12)_{0.9}$ ,  $T \geq 200$  К, 72 ГГц (3). Сравнение величины  $\text{tg } \delta$  на трех частотах свидетельствует о приближенно линейной частотной зависимости собственных потерь при  $T > 300$  К. В предположении зависимости  $\text{tg } \delta(\omega) \sim \omega^{\beta_1}$  оценка показателя частотной степенной зависимости составляет  $\beta_1 = (1.01 \pm 0.08)_{0.7}$ . Таким образом, поведение собственных диэлектрических потерь в лейкосапфире на частотах СВЧ диапазона при 300—1000 К в пределах экспериментальной погрешности можно описать степенным законом  $\text{tg } \delta \sim \omega^{\beta_1} T^2$ .

2. Дебаевская температура лейкосапфира  $T_D = 1047$  К [12]; таким образом, переход от закона  $\text{tg } \delta \sim T^5$  к закону  $\text{tg } \delta \sim T^2$  в области 150—250 К лежит существенно ниже  $T_D$ . По-видимому, он связан с изменением знака неравенства между  $\omega\tau$  и 1.

Порядковые оценки  $\text{tg } \delta$  в ангармонической теории собственных диэлектрических потерь в кристаллах

		$T \ll T_D$		$T > T_D$	
		гексагон.	ромбоэдр.	гексагон.	ромбоэдр.
Трехквантовые потери					
(При наличии вырождения)					
$\omega\tau \gg 1$		$\frac{\omega (kT)^5}{\epsilon\rho v^5 \hbar^2 (kT_D)^2}$	$\frac{\omega^2 (kT)^4}{\epsilon\rho v^5 \hbar (kT_D)}$	—	—
		[3, 4, 6]			
$\omega\tau \leq 1$		$\frac{\omega (kT)^3}{\epsilon\rho v^5 \hbar (kT_D)} \frac{1}{\tau} \ln \frac{kT\tau}{\hbar}$ [5]	$\frac{\omega (kT)^4}{\epsilon\rho v^5 \hbar (kT_D)^2} \frac{1}{\tau} \ln \frac{kT\tau}{\hbar}$ [5]	$\frac{\omega (kT) (kT_D)}{\epsilon\rho v^5 \hbar} \frac{1}{\tau} \ln \frac{kT_D\tau}{\hbar}$ [5] (A)	
Четырехквантовые потери					
		$\frac{\omega (kT)^9}{\epsilon\rho^2 v^{10} \hbar^5 (kT_D)^2}$ [5, 6]		$\frac{(kT_D)^5}{\epsilon\rho^2 v^{10} \hbar^5} \omega (kT)^2$ [5, 6, 13] (B)	

При  $\omega\tau < 1$  столкновительное размытие фононных частот  $1/\tau$  становится больше частоты  $\omega$  внешнего поля и понятие трехквантовых потерь в общем случае ввести корректно не удастся. Однако в [6] сформулированы условия, при которых можно выделить основной вклад в потери при  $\omega\tau < 1$ , а также дан «рецепт» получения выражения для этого вклада из оценок трехквантовых потерь при  $\omega\tau \gg 1$  типа (1), (2). В общем виде такое выражение получено в работе [5]. В таблицу сведены оценки для трехквантовых потерь при различных соотношениях  $T$  и  $T_D$ ,  $\omega\tau$  и 1 для гексагональных и ромбоэдрических кристаллов, взятые из [3, 4, 6] и построенные на основе указанного рецепта и общего выражения [5]. В той же таблице приведены оценки [5, 6, 13] для четырехквантовых (трехфононных) потерь, которые при  $T \approx T_D$  также могут вносить основной вклад в потери. Оценки трехквантовых потерь при  $\omega\tau < 1$  содержат непосредственно время фононной релаксации  $\tau$ , которое должно претерпевать изменения вблизи  $T \approx T_D$ . При  $T \ll T_D$  [4]

$$\tau \equiv \tau_N \approx \frac{\rho v^5 \hbar^4}{(kT)^9} \quad (\text{время нормальных процессов}), \quad (3)$$

при  $T > T_D$

$$\tau \equiv \tau_{c. n.} \approx \frac{\rho v^5 \hbar^4}{(kT_D)^4} \frac{1}{kT} \quad (\text{время свободного пробега}). \quad (4)$$

Как видно из таблицы, основной результат эксперимента  $\text{tg } \delta \sim \omega^1 T^2$  строго согласуется лишь с оценкой (Б) для четырехквантовых потерь при  $T > T_D$ . Трехквантовые потери, согласно оценке (А), при  $T > T_D$  также должны иметь приблизительно квадратичную зависимость от температуры. Если положить  $\tau \equiv \tau_{c. n.} \sim 1/T$  (4), то

$$\text{tg } \delta \approx \frac{(kT_D)^5 \omega (kT)^2}{\varepsilon \rho^2 v^{10} \hbar^8} \ln \frac{kT_D \tau}{\hbar}. \quad (5)$$

Без учета «слабого» логарифмического множителя это выражение совпадает с оценкой (Б) для четырехквантовых потерь. Здесь можно заметить, что более подробная интерпретация результатов настоящей работы, по-видимому, невозможна без более детального расчета трехквантовых потерь в переходной области  $\omega \tau \approx 1$ , а также знания поведения  $\tau(T)$  в исследуемом интервале температур. Предсказание  $\text{tg } \delta \sim \omega^1 T^2$ , согласующееся с экспериментом, можно получить для трехквантовых потерь, если  $\tau \equiv \tau_{c. n.}$  в то время как численные оценки по формулам (3), (4) показывают, что по крайней мере в переходной области от  $T^5$  к  $T^2$  фоновое время  $\tau$  в лейкосапфире совпадает с нормальным временем  $\tau_N$ . При  $T=200$  К  $\tau_N \approx \rho v^5 \hbar^4 / (kT)^5 \approx 1 \cdot 10^{-11}$  с, т. е. условие  $\omega \tau \approx 1$  должно выполняться для частот СВЧ диапазона; при оценке использовано:  $\rho=4$  г/см<sup>3</sup>,  $v=6 \times 10^5$  см/с [12]. (Для  $\tau_{c. n.}$  по формуле (4) получаем значение  $3 \cdot 10^{-14}$  с).

Абсолютные значения тангенса угла потерь, полученные в эксперименте, согласуются с оценками (А), (Б) таблицы. Так, например, при  $T=300$  К из (Б) получаем ( $\varepsilon=10$ ):  $\text{tg } \delta_{\text{теор}} \approx 7 \cdot 10^{-6}$  для  $\omega=2\pi \cdot 9$  ГГц ( $\text{tg } \delta_{\text{эксп}}=5 \cdot 10^{-6}$ ),  $\text{tg } \delta_{\text{теор}} \approx 3 \cdot 10^{-5}$  для  $\omega=2\pi \cdot 36$  ГГц ( $\text{tg } \delta_{\text{эксп}}=2 \cdot 10^{-5}$ ),  $\text{tg } \delta_{\text{теор}} \approx 6 \cdot 10^{-5}$  для  $\omega=2\pi \cdot 72$  ГГц ( $\text{tg } \delta_{\text{эксп}}=4 \cdot 10^{-5}$ ).

Таким образом, результаты измерений собственных диэлектрических потерь в лейкосапфире  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  при 300–1000 К на частотах сантиметрового и миллиметрового диапазонов СВЧ 9–72 ГГц качественно согласуются с предсказанием [3–6] для температурной и частотной зависимости трехквантовых и четырехквантовых потерь (случай  $T > T_D$ ,  $\omega \tau \leq 1$ ); абсолютная величина тангенса угла потерь  $\text{tg } \delta$  по порядку величины совпадает с числовыми оценками [3–6].

Автор признателен В. Б. Брагинскому и Х. С. Багдасарову за помощь и ценные советы.

#### Список литературы

- [1] Брагинский В. Б., Багдасаров Х. С., Булыгин Ф. В., Ильченко В. С. // Письма в ЖТФ. 1985. Т. 11. № 7. С. 427–430.
- [2] Braginsky V. B., Bagdasarov Kh. S., Ilchenko V. S. // Phys. Lett. A. 1987. V. 120. N 6. P. 300–305.
- [3] Гуревич В. Л. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 11. С. 3453–3461.
- [4] Гуревич В. Л. Кинетика фононных систем. М., 1980. 400 с.
- [5] Таганцев А. К. // ЖЭТФ. 1981. Т. 80. № 3. С. 1087–1098.
- [6] Гуревич В. Л., Таганцев А. К. // ЖЭТФ. 1986. Т. 91. № 1 (7). С. 245–258.
- [7] Воробьев Е. А., Михайлов В. Ф., Харитонов А. А. СВЧ диэлектрики в условиях высоких температур. М., 1977. 206 с.
- [8] Афсар М. Н., Ваттон К. Дж. // ТИИЭР. 1985. Т. 73. № 1. С. 143–166.
- [9] Afsar M. N. // IEEE Trans. Instr. Meas. 1987. V. 36. N 2. P. 554–559.
- [10] Взятых В. Ф., Добромислов В. С., Масалов В. Л., Нестеренко С. С., Потапов А. А. // Тр. МЭИ. 1978. В. 360. С. 51–57.
- [11] Брагинский В. Б., Вятчанин С. П. // ДАН СССР. 1980. Т. 252. С. 584–585.
- [12] Рубин и сапфир / Под ред. М. В. Классен-Неклюдовой и Х. С. Багдасарова. М., 1974. 236 с.
- [13] Stolen R., Dransfeld K. // Phys. Rev. 1965. V. 139. № 4A. P. 1295–1303.

Московский государственный  
университет им. М. В. Ломоносова  
Москва

Поступило в Редакцию  
9 ноября 1988 г.  
В окончательной редакции  
13 февраля 1989 г.