

## ПОГЛОЩЕНИЕ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН В КРИСТАЛЛАХ ХРИЗОБЕРИЛЛА ( $\text{BeAl}_2\text{O}_4$ ) И ВЛИЯНИЕ НА ЭТУ ВЕЛИЧИНУ $\gamma$ -ОБЛУЧЕНИЯ

С. Ф. Ахметов, В. В. Гуров, С. Н. Иванов, В. В. Медведев,  
А. Б. Рахманов

В интервалах температур 4.2—300 К и частот 0.8—9.4 ГГц исследовано поглощение продольных акустических волн (АВ) в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  и  $\gamma$ -облученном  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$ . Установлено влияние на поглощение АВ в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  (в области  $\omega_s \tau_\phi \gg 1$ , где  $\omega_s$  — частота АВ,  $\tau_\phi$  — время фонон-фононной релаксации) дисперсии скорости акустических фононов. Двумя независимыми методами определено время фонон-фононной релаксации этого материала. Наблюдалось влияние  $\gamma$ -облучения на поглощение АВ в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$ . Проведены рентгенофазовые исследования. Предложена модель радиационных дефектов хризоберилла, проявляющихся в поглощении АВ.

В последнее время появился ряд работ, посвященных исследованию спектров поглощения, возбуждения и люминесценции ионов  $\text{Cr}^{3+}$  в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  [1-3]. Имеются работы по технологии роста [4-7], измерению энтальпии образования, теплоемкости хризоберилла [8] и др. [9, 10].

Грубая оценка величины коэффициента поглощения АВ в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  по классификации работы [11] (с использованием некоторых физических характеристик  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  из [12]) указывает на вероятность высокого акустического качества хризоберилла. Экспериментальная проверка этого факта и подробные исследования акустических свойств  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  составляют предмет настоящей работы.

Кристаллы  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  (ромбическая сингония) выращивались методом горизонтальной направленной кристаллизации в молибденовых лодочках в атмосфере очищенного гелия. Образцы для акустических измерений вырезались из ориентированных с точностью  $0.3^\circ$  вдоль  $\langle 100 \rangle$  блоков и имели размеры  $2 \times 2 \times 10$  мм. Торцевые грани образцов полировались по оптическим стандартам и имели непараллельность  $4-10''$ . Возбуждение и прием продольных АВ осуществлялись с помощью текстурированных пленок из окиси цинка.

Измерения поглощения АВ проводились на частотах 0.8—9.4 ГГц в интервале температур 4.2—300 К импульсным эхо-методом. При обработке экспериментальных результатов из общей величины поглощения АВ  $\alpha_n$  вычитались остаточные (независимые от температуры) потери  $\alpha_0$ . Это позволяло выделять и исследовать чисто вязкостную (решеточную) часть коэффициента поглощения АВ. Точность измерений абсолютной величины коэффициента поглощения АВ составляла 0.01 дБ/см при  $T = 4.2-50$  К и была не менее 0.1 дБ/см при  $T > 100$  К.

На рис. 1 представлены типичные зависимости поглощения продольных АВ ( $\alpha = \alpha_n - \alpha_0$ ) в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  от температуры. Условно эти кривые можно разбить на несколько участков. В низкотемпературной области (например, при  $T \leq 50$  К для АВ частоты  $\approx 1.5$  ГГц)  $\alpha \sim T^2$ , при  $T > 100$  К наблюдается ослабление температурной зависимости  $\alpha(T)$ .

Важно отметить, что в области температур, где  $\alpha \sim T^2$ , поглощение продольных АВ не зависит от частоты; при отходе от этого участка (по-

вышение температуры) частотная зависимость становится сначала линейной ( $\alpha \sim \omega_s^1$ ), а потом квадратичной ( $\alpha \sim \omega_s^2$ ). Примеры частотных зависимостей поглощения АВ для ряда температур показаны на рис. 2. Характерная точка изменения зависимости поглощения АВ от частоты по мере роста температуры смещается вправо, и диапазон частот, где поглощение АВ не зависит от частоты, уменьшается.

Обнаруженные в исследованных кристаллах зависимости поглощения продольных АВ вида  $\alpha \sim T^2 \omega_s^0$  характерны для кристаллов с существенной дисперсией скорости акустических фононов [13]. Количественный критерий, когда дисперсия скорости акустических фононов существенно

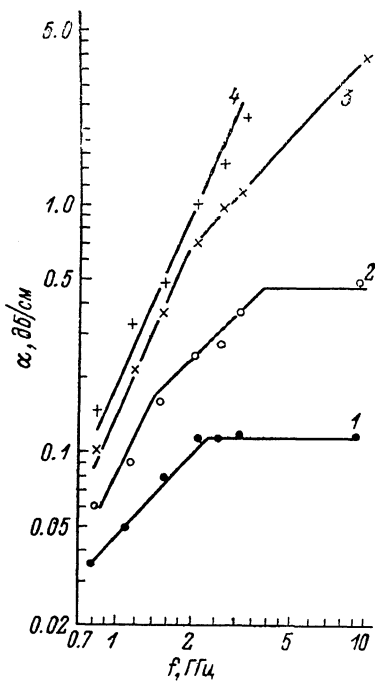
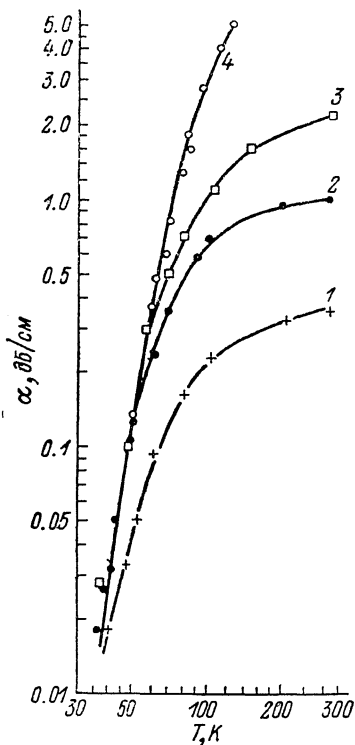


Рис. 1. Зависимость поглощения продольных АВ в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  от температуры.

$f$ , ГГц: 1 — 1.1, 2 — 2, 3 — 3, 4 — 9.4.

Рис. 2. Зависимость поглощения продольных АВ в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  от частоты.

$T$ , К: 1 — 50, 2 — 60, 3 — 100, 4 — 300.

влияет на вид частотных и температурных зависимостей поглощения АВ, приведен в [14]. Для области  $\omega_s \tau_\phi \gg 1$  ( $\omega_s$  — круговая частота АВ,  $\tau_\phi$  — время релаксации тепловых фононов) в предположении, что основной вклад в поглощение продольных АВ дают фононы энергии  $1.6kT$ , этот критерий имеет вид

$$(1.6kT)^2 \omega_s \tau_\phi L^2 / 8\hbar^2 v_\phi^2 > 1, \quad (1)$$

где  $L$  — размер элементарной ячейки кристалла,  $v_\phi$  — фазовая скорость тепловых фононов,  $k$  — постоянная Больцмана.

Для этой же области  $\omega_s \tau_\phi \gg 1$  в [15] делают вывод о вкладе в поглощение продольных АВ в основном фононов энергии  $\sim 6kT$ . Попытаемся экспериментально решить этот вопрос. Это важно для правильного определения температурной зависимости  $\tau_\phi$  в хризоберилле.

Из экспериментов по исследованию зависимости поглощения продольных АВ в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  на разных частотах нам известны температуры, при которых критерий (1) нарушается и зависимость  $\alpha(T)$  становится слабее, чем  $T^2$ . По этим точкам, воспользовавшись (1) и приравняв ее левую часть единице, можно определить  $\tau_\phi$  для ряда температур. При этом

использовались значение скорости продольных АВ  $v=11.05 \cdot 10^5$  см/с (для вычисления  $v_q$ ), измеренное нами для  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  в направлении  $\langle 100 \rangle$ , и линейный размер элементарной ячейки  $5.47 \text{ \AA}$  [12]. Результаты такой обработки показаны на рис. 3, 1. Там же приведена зависимость  $\sim T^{-5}$ , характерная для фонон-фононного ангармонизма. Согласие с экспериментом по характеру температурной зависимости хорошее.

В области «промежуточных» температур наблюдается смена закона  $\alpha \sim \omega_s^2$  на  $\alpha \sim \omega_s^1$  (рис. 2, 2, 3; здесь  $f = \omega_s / 2\pi$ ). Этот факт интерпретировался [16, 17] как смена механизмов поглощения АВ при  $\omega_s \tau_\phi \sim 1$ , что позволяет определить еще одним способом время релаксации тепловых фононов  $\tau_\phi \approx 1.1 \cdot 10^{-10}$  с при  $T \approx 60 \text{ К}$ .

Полученное значение  $\tau_\phi$  оказывается почти на порядок величины меньше, чем из (1), но представляется нам более вер-

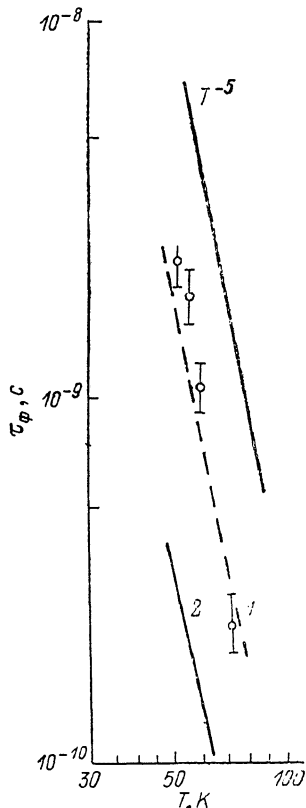


Рис. 3. Зависимости времени фонон-фононной релаксации от температуры в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$ .

Кривая 1 получена из критерия учета дисперсии скорости акустических фононов. Кривая 2 получена из кривой 1 с учетом, что основной вклад в поглощение АВ в области  $\omega_s \tau_\phi \gg 1$  вносят фононы энергии  $\sim 5 \div 6 \text{ кТ}$ .

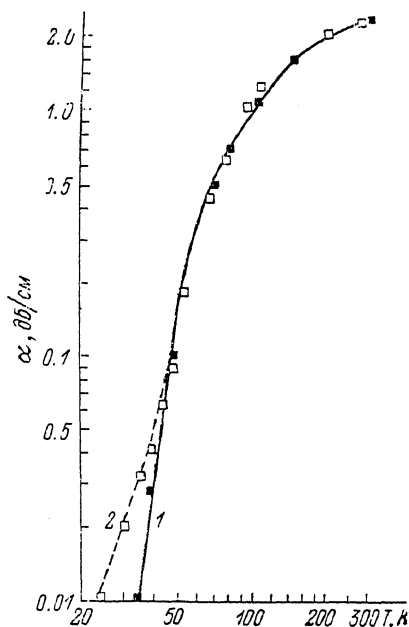


Рис. 4. Зависимости поглощения продольной АВ от температуры в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  (1) и  $\gamma$ -облученном  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  (2).

ным, так как в его определении не заложены грубые приближения критерия (1).

Сравнение значений  $\tau_\phi$ , полученных этими двумя способами, показывает, что предположение работы [14] о преимущественном вкладе в поглощение продольных АВ в области  $\omega_s \tau_\phi \gg 1$  фононов энергии  $\sim 1.6 kT$  неверно; основной вклад в поглощение в области  $T \approx 50 \text{ К}$  дают фононы  $\sim 4$  и  $3 kT$  при  $T \approx 76 kT$ . Подправленная с учетом этого эффекта зависимость  $\tau_\phi$  от температуры для хризоберилла изображена на рис. 3, 2.

Заметим, что изложенное выше справедливо, конечно, с точностью до ошибок экспериментального определения  $\tau_\phi$ , модели учета дисперсии в поглощении продольных АВ [14] (синусоидальный закон дисперсии, линейная цепочка) и т. д.

В работах [18-21] исследовалось влияние на поглощение АВ облучения ряда кристаллов  $\gamma$ -квантами. При этом радиационные дефекты про-

## Сравнительные данные межплоскостных расстояний

BeAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub>						
исходный		облученный		ромб. синг. [22]		
J/J <sub>0</sub>	d/n, Å	J/J <sub>0</sub>	d/n, Å	J/J <sub>0</sub>	d/n, Å	hkl
7	4.76	8	4.76	—	—	—
36	4.29	36	4.29	4	4.47	001
35	4.04	51	4.04	6	4.03	011
9	3.80	8	3.81	—	—	—
7	3.70	6	3.70	5	3.60	120
8	3.50	8	3.50	—	—	—
18	3.32	19	3.33	—	—	—
80	3.25	80	3.25	8	3.24	0.21
28	3.22	26	3.21	—	—	—
2	3.08	6	3.08	—	—	—
4	3.01	5	3.00	—	—	—
4	2.99	5	2.99	—	—	—
4	2.94	4	2.94	—	—	—
3	2.92	4	2.92	4	2.85	121
3	2.79	3	2.79	—	—	—
80	2.57	80	2.57	8	2.57	031
14	2.375	9	2.379	—	—	—
3	2.361	7	2.362	—	—	—
47	2.329	55	2.327	8	2.33	131; 201
14	2.291	14	2.292	—	—	—
48	2.272	59	2.270	7	2.26	211
11	2.170	13	2.168	—	—	—
100	2.090	100	2.091	10	2.08	041
90	2.081	100	2.083	—	—	—
33	2.058	—	—	—	—	—
3	2.012	4	2.012	—	—	—
6	1.987	6	1.986	2	1.98	—
2	1.933	—	—	—	—	—
6	1.876	10	1.875	2	1.88	050
6	1.810	6	1.810	6	1.80	310
2	1.793	2	1.789	—	—	—
3	1.737	2	1.735	—	—	—
1	1.695	—	—	—	—	—
6	1.676	6	1.676	—	—	—
15	1.656	15	1.656	4	1.65	241
95	1.618	85	1.618	10	1.61	212
95	1.614	95	1.614	—	—	—
12	1.550	12	1.550	2	1.555	142
14	1.510	17	1.510	5	1.513	—
12	1.489	8	1.489	—	—	—
32	1.467	24	1.467	5	1.462	—
4	1.390	3	1.391	—	—	—
10	1.385	9	1.385	—	—	—

являлись в поглощении АВ как точечные дефекты рэлеевского типа [21] или как источники дополнительных релаксационных потерь АВ [18–20].

В настоящей работе ставилась цель проследить влияние  $\gamma$ -облучения на поглощение АВ в хризоберилле. Исследование BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> интересно, во-первых, тем, что этот материал имеет в своей структуре легкий атом (Be), который может при  $\gamma$ -облучении смещаться из своих равновесных позиций в решетке [22]; во-вторых, BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> — кристалл с дисперсией акустических фононов, в нем могут необычным образом проявляться в поглощении продольных АВ центры рассеяния тепловых фононов [13].

Кристаллы хризоберилла облучались  $\gamma$ -квантами от источника Co<sup>60</sup> с энергией  $\gamma$ -квантов  $\sim 1$  МэВ до дозы  $\sim 10^8$  Р. На рис. 4 представлена температурная зависимость поглощения продольной АВ частоты  $f=3$  ГГц. Здесь же для сравнения приведена аналогичная зависимость для необлученного кристалла BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.

В области  $T < 45$  К поглощение продольных АВ в хризоберилле, подвергнутом  $\gamma$ -облучению, больше, чем в необлученном кристалле, и линейно зависит от частоты АВ.

Согласно [13], это означает, что в  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$ : $\gamma$  появились центры рассеяния тепловых фононов, уменьшающие эффективное время релаксации фононов, что и приводит к росту поглощения продольных АВ.

Какова природа обнаруженных центров рассеяния? При  $\gamma$ -облучении кристалла в результате столкновения электронов (образовавшихся при комптоновском рассеянии) с атомами возможно образование дефектов по Френкелю [23]. Оценки показывают, что энергии комптоновских электронов  $\sim 1$  МэВ (что соответствует нашей экспериментальной ситуации) достаточно для смещения из своих равновесных позиций атомов Ве.

Для проверки этого утверждения проведены рентгенофазовые исследования образцов хризоберилла до и после  $\gamma$ -облучения. Съемка измельченного до порошка в агатовой ступке  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  проводилась на аппарате ДРОН-2.0 в отфильтрованном медном излучении. Скорость вращения гониометра 2 град/мин. Результаты исследований приведены в таблице.

Из этой таблицы отчетливо видно, что после облучения  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$  происходит изменение интенсивности некоторых рефлексов. Например, относительные интенсивности линий 4.04, 3.08, 2.327, 2.270, 1.875, 1.510 значительно увеличились, а линий 2.375, 1.058, 1.933, 1.695, 1.618, 1.467 столь же значительно уменьшились. Как известно, интенсивность рефлексов зависит от ретикулярной плотности плоской сетки кристаллографической решетки [23]. Следовательно, можно считать, что  $\gamma$ -облучение кристаллов хризоберилла приводит к перемещению ионов из одних плоских сеток в другие. По-видимому, это наилегчайший Ве.

В заключение обратим внимание на наличие рефлексов, не имеющих аналогов в литературе [24], и отчетливое расщепление некоторых линий (2.08 и 1.61), свидетельствующее, по-видимому, о некотором искажении (понижении) ромбической симметрии исследуемых кристаллов хризоберилла.

#### Список литературы

- [1] Xi Lin, Cang Xu, Quarles Gregory T., Walling John C. // Phys. Rev. B.: Condens. Matter. 1985. V. 32. N 5. P. 2788—2797.
- [2] Севастьянов Б. К., Ремпайло Ю. Л., Веремейчик Т. Ф., Орехова В. П. // ДАН СССР. 1985. Т. 285. № 5. С. 1119—1123.
- [3] Елисеев А. П., Юркин А. М., Федорова Е. Н., Самойлова Е. Г. // ЖПС. 1986. Т. 44. № 3. С. 491—494.
- [4] Farrell E. F., Fang J. H., Newuhem R. // Amer. Miner. 1963. V. 48. P. 804—810.
- [5] Ma Xiaoshan, Wang Siting, Tin Zhongru, Shen Yafany. // Гуансюэсюэбао, Acta Opt. Sin. 1986. V. 6. N 8. P. 734—743.
- [6] Guo Xing-an, Zhang Boug-xing, Wu Lu-Sheng, Chen Mei-Ling // Adv. Laser Sci. // Proc. I. Int. Laser Sci. Conf. Dallas. Tex. 18—22, 1985. N. Y., 1986. P. 249—250.
- [7] Xingan Guo, Meiling Chen, Mairan Li, Qinghai Qin, Mingfang Huang, Tingwei Fei, Shulin Wen, Zhongnam Li, Yong Qin. // J. Cryst. Growth. 1987. V. 83. N 3. P. 311—318.
- [8] Киселева И. А., Мельчакова Л. В., Огородова Л. П. // Вестник МГУ, химия. 1986. Т. 27. № 3. P. 311—318.
- [9] Goossens R. J. G., Dijkuls J. I., De Wijn H. W. // Phonon Scatter. Condensed Matter. Proc. 4 Int. Conf. Stuttgart, Aug. 22—26, 1983. Berlin e. a., 1984. P. 112—114.
- [10] Majetich S., Rives J. E., Meltzner R. S. // Phonon Scatter. Condensed Matter. 5. Proc. 5. Int. Conf. Urbana. June 2—6, 1986. Berlin e. a., 1986. P. 338—340.
- [11] Rehwald Walther. // Int. Conf. on phonon Scattering in solids. Paris, July 3—6, 1972. P. 45—48.
- [12] Винчелл А. Н., Випчелл Г. Оптическая минералогия. М.: ИЛ, 1953. 562 с.
- [13] Kozogezov A. G. // Phys. Lett. 1983. N 5. P. 261—264.
- [14] Труэлл Р., Эльбаум Ч., Чик Б. Ультразвуковые методы в физике твердого тела. М.: Мир, 1972. 307 с.
- [15] Гуревич Л. Э., Шкловский Б. И. // ФТТ. 1967. Т. 9. № 2. С. 526—534.
- [16] Илизавский Ю. В., Чиплис Д. // ФТТ. 1972. Т. 14. № 8. С. 2412—2415.
- [17] Иванов С. Н., Мансфельд Г. Д., Хазанов Е. Н. // ФТТ. 1973. Т. 15. № 1. С. 317—318.
- [18] Авдонин В. Я., Леманов В. В., Юшин Н. К. // ФТТ. 1978. Т. 20. № 4. С. 1100—1103.
- [19] Иванов С. Н., Медведь В. В., Рахманов А. Б. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 3. С. 902—904.
- [20] Иванов С. Н., Медведь В. В., Рахманов А. Б., Хазанов Е. Н. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 12. С. 3691—3694.

- [21] Nava R., Rodrigues M. // Int. Conf. on phonon Scattering in Solids. Paris. July 3—6, 1972. P. 280—283.
- [22] Динс Дж., Винйард Дж. Радиационные эффекты в твердых телах. М.: ИЛ, 1960. 243 с.
- [23] Костов И. Кристаллография. М.: Мир, 1965. 269 с.
- [24] Миркля Л. И. Справочник по рентгеноструктурному анализу поликристаллов. М.: ГИФМЛ, 1961. С. 863.

Институт радиотехники  
и электроники АН СССР  
Москва

Поступило в Редакцию  
21 ноября 1988 г.

---